

JAERI-Tech
96-033



NUCEFハイブリッドK吸収端濃度計の整備
(共同研究)

1996年7月

峯尾英章・岡本久人・宮内正勝・岡崎修二・星 勝哉*・竹下 功
Sin-Tao HSUE**

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公開している研究報告書です。
入手の問合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力公済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1996

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 刷 (株)高野高速印刷

NUCEFハイブリッドK吸収端濃度計の整備

日本原子力研究所東海研究所NUCEF試験室
峯尾 英章・岡本 久人・宮内 正勝・岡崎 修二
星 勝哉*・竹下 功・Sin-Tao HSUE**

(1996年6月17日受理)

ハイブリッドK吸収端濃度計(HKED)は、K吸収端濃度計と蛍光X線分析計を組み合わせた非破壊分析計で、ウランとプルトニウムを含む溶液中の両方の元素濃度を1000秒程度の短時間で同時に正確に測定する。NUCEFでは、臨界実験用のウラン及びプルトニウムを含む溶液燃料の計量管理分析及び工程管理分析に用いるため、HKEDを平成6年1月にDOE/原研保障措置技術研究協力協定の下で設置した。本機器は、国及び国際原子力機関による査察にも使用される予定である。

ウラン溶液による校正試験及び長期測定試験を行った。校正試験結果をDavies&Gray法による濃度測定結果と比較したところ0.3%以内で一致した。約1年の長期測定試験では安定した測定結果を得た。また、ウラン溶液をセルに密封した校正試料の濃度の長期安定性を測定したところ、安定性は高く、密封セルを用いた通常査察におけるHKEDの校正が十分可能であることが示された。

本研究は、米国エネルギー省と日本原子力研究所との間の核物質管理、計量管理、検証及び物理的防護に係る研究及び開発に関する協定の下で行われたものである。

東海研究所：〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

* 日本原燃株式会社

** 米国ロスアラモス国立研究所

Installation of a Hybrid K-edge/XRF Densitometer in NUCEF

Hideaki MINEO, Hisato OKAMOTO, Masakatsu MIYAUCHI, Shuji OKAZAKI
Katsuya HOSHI * , Isao TAKESHITA, and Sin -Tao HSUE **

Department of NUCEF Project
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received June 17, 1996)

Hybrid K-edge/XRF densitometer (HKED) is a non-destructive measurement device consists of a K-edge densitometer and a X-ray fluorescence spectrometer. It enables accurate measurement of uranium and plutonium concentrations in a solution simultaneously, within a relatively short measurement time about 1000 seconds. In NUCEF, an HKED was installed in January 1994 as a part of DOE/JAERI research cooperation. The HKED will be employed for the uranium and plutonium concentration measurement in the nuclear material accountancy and control as well as in the process control of NUCEF critical facilities. The device will be also used in the inspection activities at NUCEF by the Government of Japan and International Atomic Energy Agency.

Calibration test and long-term stability test were carried out on the HKED using uranium solution. The calibration test result was compared with the result by Davies & Gray method and found to be agreed within 0.3%. Also, the HKED showed good stability for a year. Furthermore, an encapsulated cell containing uranium standard solution for calibration was prepared. It was found that the uranium concentration in the cell had good stability so that it may be used for the calibration in the routine inspection.

This work was performed under the USDOE/JAERI Agreement Concerning Research and Development in Nuclear Material Control, Accountancy, Verification and Physical Protection.

* Japan Nuclear Fuel Limited

** Los Alamos National Laboratory

Keywords : Hybrid K-edge/XRF Densitometer, K-edge Densitometry, XRF Spectrometry,
Nondestructive Assay, Nuclear Material Accountancy and Control,
Safeguards, NUCEF

目 次

1. はじめに	1
2. ハイブリッドK端濃度計によるU及びPuの測定原理と特徴	2
2.1 K吸収端デンストメトリ	2
2.2 蛍光X線スペクトロメトリ	4
2.3 ハイブリッドK吸収端濃度分析法の一般的特徴	6
2.4 NUCEFハイブリッドK吸収端濃度計の特徴	6
3. NUCEFハイブリッドK吸収端濃度計の導入の経緯	8
3.1 ハイブリッドK吸収端濃度計の選定	8
3.2 DOE/原研研究協力による導入	8
3.3 NUCEFへの設置までの経緯	9
4. NUCEFハイブリッドK吸収端濃度計の設計の経緯	11
4.1 基本仕様	11
4.2 ハードウェアの設計と製作の経緯	13
4.3 ソフトウェアの設計の経緯	20
5. ハイブリッドK吸収端濃度計の校正実験及び長期性能試験	25
5.1 校正用標準ウラン溶液	25
5.2 校正試験及び結果	25
5.3 長期間測定実験及び結果	26
5.4 校正用溶液の安定性試験	26
6. おわりに	33
謝 辞	34
参考文献	35

Contents

1. Introduction	1
2. Principle of Concentration Measurement by Hybrid K-edge/XRF Densitometer	2
2.1 K-edge Densitometry	2
2.2 X-ray Fluorescence Spectrometry	4
2.3 General Features of Hybrid K-edge/XRF Densitometer	6
2.4 Features of Hybrid K-edge/XRF Densitometer of NUCEF	6
3. Installation of Hybrid K-edge/XRF Densitometer to NUCEF	8
3.1 Selection of Hybrid K-edge/XRF Densitometer	8
3.2 DOE/JAERI Research Cooperation	8
3.3 Installation	9
4. Design of NUCEF Hybrid K-edge/XRF Densitometer	11
4.1 Basic Specification	11
4.2 Hardware Design	13
4.3 Software Design	20
5. Calibration and Long-term Stability Tests	25
5.1 Standard Uranium Solution for Calibration	25
5.2 Calibration Test and Results	25
5.3 Long-term Stability Test and Results	26
5.4 Stability Test of Encapsulated Uranium Standard Solution	26
6. Conclusions	33
Acknowledgment	34
References	35

1.はじめに

燃料サイクルバックエンドの再処理、廃棄物管理分野における安全性確保と新技術の創成に資するために整備された燃料サイクル安全工学研究施設 (NUCEF) には、STACY (定常臨界実験装置) 及び TRACY (過渡臨界実験装置) の2基の臨界実験装置がある。このうち、STACY (定常臨界実験装置) では、ウラン及びプルトニウムの硝酸溶液が用いられる。臨界実験用の溶液燃料は、核燃料調製設備で調整され供給される。この核燃料調製設備の工程管理のため、さらにこれら溶液燃料の計量管理のため、核物質の濃度の測定は必須である。工程管理用の分析は頻度が高いため発生する分析廃液量を極力抑えた方法で濃度測定を行うことが望ましい。また、計量管理においては、特にプルトニウムの在庫量について、保障措置上の適時性目標達成のため中間在庫検認を行うこととなっており、迅速かつ正確な濃度測定が要求される。これらの要求を満たしうる機器として、非破壊測定法の1つであるハイブリッドK吸収端濃度計 (以下、HKED) を選定しNUCEFに整備した。

HKED は、K吸収端濃度計と蛍光X線分析計を組み合わせたものでハイブリッド型と呼ばれ、ウランとプルトニウムの濃度比が大きく異なる場合にこのハイブリッド型がきわめて有効になる。すなわち、定量性に優れたK吸収端濃度計により多量に存在している方の元素濃度を測定し、蛍光X線分析計により目的元素の存在比を求め、両元素の濃度を定量するものである。

この特徴を活かして、ウラン及びプルトニウムの濃度比が大きい (U/Pu: 約100) 再処理工場の溶解液中の両元素の分析機器として開発、適用研究が西独カールスルーエ研究所 (以下、KfK) で行われた^{1,2)}。各国においても研究開発、再処理工場への導入が進められてきた³⁻⁶⁾。最近では、使用済燃料溶解液、高レベル放射性廃液中のマイナーアクチノイド (アメリカシウム、ネプツニウム等) の測定への適用も検討されている⁷⁾。

このように、HKED は注目されており、HKED を用いた測定に係る技術の研究開発は、計量管理技術の高度化のために重要である。NUCEF の HKED は、米国エネルギー省 (DOE) と原研との間で1990年 (平成2年) 7月に締結された「核物質管理、計量管理、検証及び物理的防護に係る研究及び開発に関する協定」 (以下、保障措置技術研究協力協定) に基づき1990年11月に合意した協定の行動書3 (Action Sheet 3) 「NUCEFのための非破壊測定技術の共同開発」によって、設計及び製作がなされ、1994年 (平成6年) 1月に整備された。

本報は、HKEDの測定原理及び特徴、NUCEFのHKEDの設計及び導入の経緯、並びにウランを用いた測定試験の結果の概要を述べ、今後の課題を明らかにしたものである。

2. ハイブリッドK端濃度計によるU及びPuの測定原理と特徴

ハイブリッドK吸収端濃度計 (HKED) は、1.で述べたようにK吸収端濃度計 (KED) と蛍光X線分析計 (XRF) を組み合わせたものであり、基本的には、両測定器ともにウランとプルトニウムの同時測定が可能である。KED は比較的濃度の高いウランやプルトニウムに対しては定量性が優れており、一方、XRF は試料や測定系の影響を受け易いが低濃度元素に対しても感度的に優れている。両者の長を生かして、KED により多量に存在している方の元素濃度を測定し、XRF により目的元素の存在比を求めることにより、元素濃度を定量するものである。言い換えると、両者が補完しあって目的元素の濃度をより正確に定量できるようにしたものである。

以下に、KED 法と XRF 法によるウランとプルトニウムの測定原理を述べる。

2.1 K吸収端デンストメトリ

原子 (ここではウラン及びプルトニウム) による X 線の吸収係数は、X 線のエネルギーの増加とともに連続的に減少し、元素固有の K 吸収端エネルギー (K 殻電子が励起される得る最低エネルギー) 点では、Table 2.1 に示すように大きく増加する。したがって、連続エネルギースペクトルの X 線を試料に照射すると Fig. 2.1 に示すように、試料中の元素濃度に依存する段差が透過 X 線スペクトル上の K 吸収端エネルギー点に現れる。KED は、このスペクトル上に現れた段差の大きさから試料中のウランやプルトニウム等の目的元素を定量する分析手法である。この分析法の原理の概要を以下に述べる。

試料溶液に照射した X 線の透過率 T は、

$$T = \exp(-\mu_A \cdot \rho_A \cdot X) \cdot \exp(-\mu_M \cdot \rho_M \cdot X) \quad (1)$$

で表される。ここで、

- μ_A : 目的元素の質量吸収係数 (cm^2/g)
- ρ_A : 目的元素の濃度 (g/cm^3)
- μ_M : マトリックス (共存元素) の質量吸収係数 (cm^2/g)
- ρ_M : マトリックスの濃度 (g/cm^3)
- X : 試料溶液の厚さ (cm)

である。

いま目的元素の K 吸収端エネルギーの上、下における X 線の透過率を T_U 及び T_L 、質量吸収係数の差を $\Delta\mu_A$ 及び $\Delta\mu_M$ ($\Delta\mu_A = \mu_{AU} - \mu_{AL}$, $\Delta\mu_M = \mu_{MU} - \mu_{ML}$) とすると、透過率の比 R は、

$$R = T_U / T_L = \exp(-\Delta\mu_A \cdot \rho_A \cdot X) \cdot \exp(-\Delta\mu_M \cdot \rho_M \cdot X) \quad (2)$$

となり、(2)式を変換すると、目的元素の濃度 ρ_A は、

$$\rho_A = \frac{-\ln R}{\Delta\mu_A \cdot X} - \frac{\Delta\mu_M \cdot \rho_M}{\Delta\mu_A} \quad (3)$$

となる。目的元素の K 吸収端エネルギー近傍におけるマトリックスの質量吸収係数が十分小さければ $\Delta\mu_M$ は $\Delta\mu_A$ に比べてはるかに小さくなるので、(3)式の右辺第 2 項は無視できる。

したがって、目的元素濃度 ρ_A は、

$$\rho_A \approx \frac{-\ln R}{\Delta\mu_A X} \quad (4)$$

となり、マトリックスに無関係に求めることができる。

本法は、(4)式からも明らかのように K 吸収端エネルギー一点における段差を正確に求めることの他に、試料中の元素濃度範囲に対応できる実際的な質量吸収係数差 $\Delta\mu_A$ の最適化を図るとともに、照射 X 線ビームの測定セル通過長を一定にすることが精度の高い測定を行う上で重要である。

Table 2.1 にウランとプルトニウムの K 吸収端エネルギー、K 吸収端エネルギーにおける質量吸収係数の差を示す。

Table 2.1 Electron binding energies in the K-shell and mass attenuation coefficients of uranium and plutonium⁸⁾

Element	U	Pu
Electron Binding Energy (keV)	115.6	121.8
Mass Attenuation Coefficient (μ_U :cm ² /g)	1.331	1.419
(μ_L :cm ² /g)	4.832	5.268
Difference of Mass Attenuation Coefficients	3.501	3.849

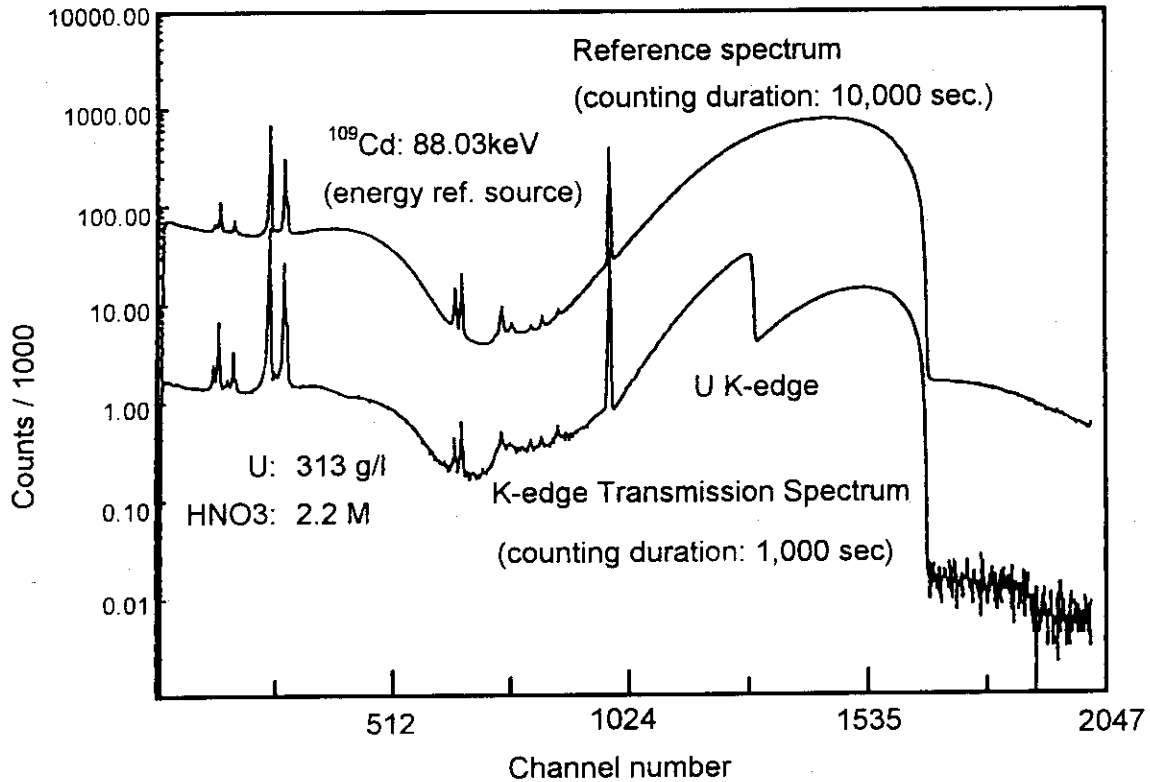


Fig. 2.1 K-edge transmission spectrum from uranyl nitrate solution of STACY

2.2 蛍光 X 線スペクトロメトリ

原子はエネルギーを吸収すると励起され、通常、電磁波を放出しながら基底状態に戻る。元素の K 吸収端エネルギーより十分大きいエネルギーを吸収して、K 軌道電子を殻外にはじき出すと、外側軌道の電子が K 軌道に転移し、元素固有のエネルギーの特性 X 線が放出される。この特性 X 線を Ge 検出器等を用いて測定すると、Fig. 2.2 に示すようなスペクトルが得られ、スペクトル中のピーク強度は元素濃度にほぼ比例する。元素濃度の測定手法としては、 γ 線放出核種の測定に利用されている γ 線スペクトロメトリと同様であり、K 系列の特性 X 線のスペクトルを測定し、スペクトル解析により放出割合の大きいピークの計数率から元素濃度を求める。

本法は、比較的高い測定感度を有しているが、試料溶液の密度変化による特性 X 線の溶液中での減衰率が、特性 X 線のエネルギーによって変化するため、元素濃度の定量を行うためには検出効率の補正が必要となる。このため、測定に利用するエネルギーが大きく異なると広い濃度範囲にわたって正確な測定値を得るには、検出効率の補正が重要となる。HKED では分岐比が大きくかつエネルギーの近接したウランとプルトニウムの特性 X 線を利用して両者の存在比を求めるようになっている。

Table 2.2 にウラン及びプルトニウムの K 系列の主要特性 X 線のエネルギー及び放出率を示す。

Table 2.2 K series X-rays and its intensities of uranium and plutonium⁹⁾

Element	$K\alpha_1$	$K\alpha_2$	$K\beta_1$	$K\beta_3$	$K\beta_5$	$K\beta_2$	$K\beta_4$
U	98.434 45.1	94.654 28.3	111.298 10.70	110.421 5.65	111.964 0.397	114.445 4.15	114.844 0.12
Pu	103.734 45.1	99.525 28.4	117.228 10.70	116.244 5.44	117.918 0.413	120.540 4.18	120.969 0.13

Upper : Energy(keV) Lower : Intensity(%)

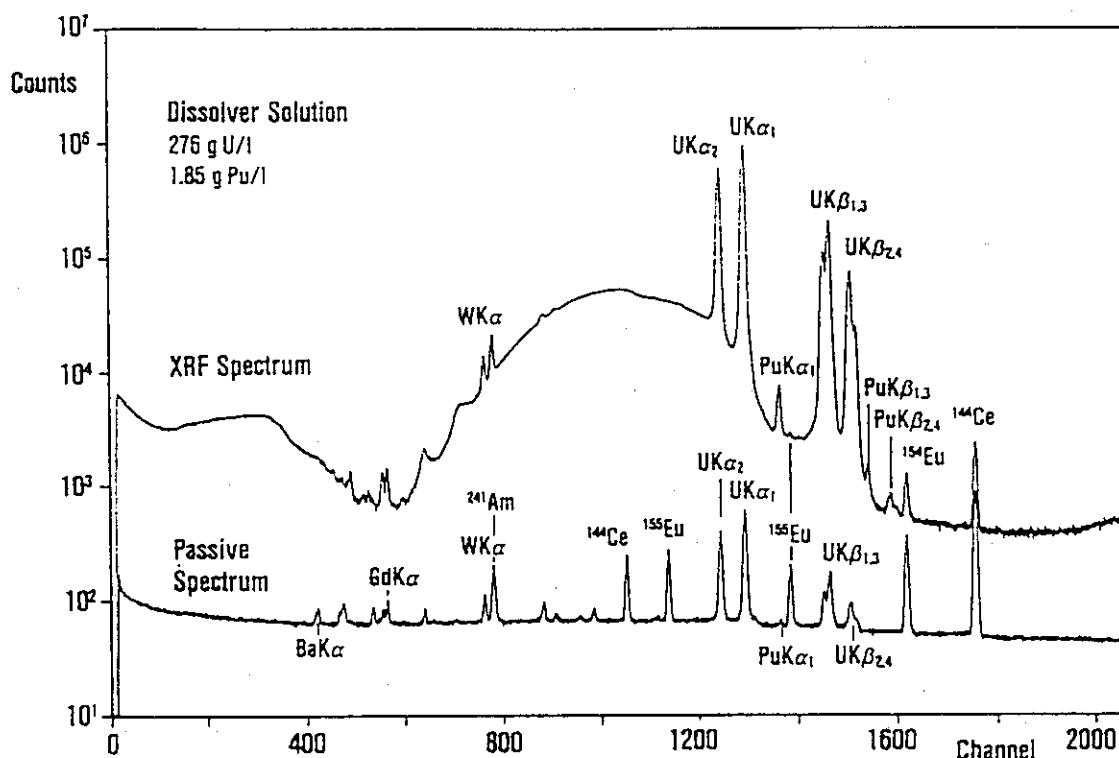


Fig. 2.2 Typical XRF spectrum (top) and passive spectrum (bottom) measured with the XRF detector from an input solution⁴⁾

2.3 ハイブリッド K 吸収端濃度分析法の一般的特徴

HKED 法は、基本的にはγ線スペクトロメトリと同様な非破壊分析法であり、核燃料物質濃度の分析法として、以下のような特徴を有している。

- (1) 試料に対して特別な処理を施すことなくウランとプルトニウムの同時測定ができる。
試料溶液を測定セルに移すのみで、分離処理等を行うことなくウランとプルトニウムの同時分析ができる。
- (2) 非破壊分析法であるが破壊分析法に匹敵する分析精度を有している。
同位体希釈質量分析法、酸化還元滴定法等に比べて若干劣るものの、1%以内の比較的高い分析精度が得られる。
- (3) 分析所要時間が比較的短い。
試料の前処理が不要であることから、試料溶液の測定セルへの移し替えと数百秒から1千秒程度のスペクトル測定時間で分析結果を得ることができる。
- (4) 破壊分析法に比べて分析廃液の発生量が極めて少ない。
破壊分析法のように様々な試薬を添加した分析廃液は発生せず、測定済み試料溶液（プロセスへ戻すことも可能）と測定セルの洗浄液が発生するのみである。

2.4 NUCEF ハイブリッド K 吸収端濃度計の特徴

NUCEF の HKED は、先にも述べたように、NUCEF の原子炉施設における核燃料物質の計量管理分析及び核燃料調製設備の運転管理分析等に使用されるものであり、基本的には他の施設のものとは大きく異なるものではないが、以下のような点を特徴として挙げる事ができる。

- (1) 1 個の測定セルで K 吸収端測定と蛍光 X 線測定を行う。
再処理工場で使用済燃料溶解液中のウランとプルトニウム濃度の濃度測定に用いられる HKED には、K 吸収端測定と蛍光 X 線測定用の 2 個の測定セルが用いられているが、NUCEF の装置では 1 個のセルで測定するようになっており、測定試料の準備が簡便になっている。

(2) 試料濃度に応じて厚みが 2 cm のセル (2 cm セル) と厚みが 4 cm のセル (4 cm セル) を使い分けることにより広い濃度範囲の測定ができる。

ウランあるいはプルトニウムの濃度がおよそ 50 g/L 以下の場合には、4 cm セルを、それ以上の時は、2 cm セルを用いることにより、10 g/L から 500g/L の濃度まで測定が可能になっている。

(3) 試料溶液の組成に応じて、K 吸収端濃度測定及び蛍光 X 線濃度測定の組み合わせにより種々の測定モードが選択できる。

ウランまたはプルトニウムのみ K 吸収端濃度測定または蛍光 X 線測定、両者の K 吸収端濃度測定及び蛍光 X 線測定等、試料の組成に応じた測定モードが選択できる。

(4) 6 試料まで連続自動測定ができる。

6 個の測定セルが装荷でき、個々に設定した測定モードで自動制御により連続測定ができるようになっている。

(5) 保障措置に係る国及び IAEA の査察用機器としても利用される。

査察用機器としても使用されるため、施設側申告値と査察側測定値との比較ができるようになっており、施設名、査察官名、施設側申告値等が入力できる。また、測定パラメータの変更は、有資格者しか行えないようにアクセスレベルが設定されている。

(6) 妨害元素の存在が認められた場合には、警告が行われる。

Th、Np 及び Am の存在が検出された場合には、ウラン及びプルトニウムの測定値に影響を与える可能性があるため、その存在を警告として表示するようになっている。

3. NUCEF ハイブリッド K 吸収端濃度計の導入の経緯

3.1 ハイブリッド K 吸収端濃度計の選定

臨界実験で使用する溶液燃料中ウラン及びプルトニウムの濃度分析へ HKED の要素技術である KED 法及び XRF 法を適用するための検討は、NUCEF 計画の前身の 1 つである CSEF (Criticality Safety Experimental Facility) 計画時代の頃から開始されている。この当時は、ハイブリッド型としてウラン及びプルトニウムの濃度を同時測定できる段階までには至っていなかった。その後、1983 年ごろから KfK でハイブリッド化が行われ、1989 年に KfK で開発された HKED がフランスラアグの UP-3 再処理工場における溶解液中の核物質濃度測定のために設置された⁴⁾。その後動力炉・核燃料開発事業団では 1980 年代後半から東海再処理工場、やはり溶解液を対象とした測定試験が開始された。

NUCEF 計画は 1985 年 (昭和 60 年) ごろからスタートしたが、溶液燃料中のウラン及びプルトニウム濃度の測定方法の選定は重要な事項であり、CSEF 計画から引き続き調査が続けられ、KfK の情報等から 1988 年までに以下の理由で HKED が選定された。

- ・ 2.3 で述べたように非破壊測定であるため、測定後採取した試料をプロセスへ戻すことが可能で発生廃棄物がきわめて少ない。
- ・ 2.3 で述べたように迅速で高精度の測定が可能である。
- ・ 線源に X 線を用いることができるようになったため、従来の半減期の短い RI 線源に比べて維持が簡便である。
- ・ 国際的に積極的な開発努力が続けられている。

3.2 DOE/原研研究協力による導入

1989 年から HKED の導入先決定の努力がなされた。当初は、メーカーを通じて、開発を行ってきた KfK からの導入を予定したが不調に終わった。次いで、K 吸収端濃度計の開発及び設置並びに保障措置用の蛍光 X 線測定技術の開発を行ってきた実績のある米国ロスアラモス国立研究所 (以下 LANL) との交渉を行った結果、原研が直接入手することとなった。当時、原研 DOE 間の保障措置技術研究協力協定は未締結であったが、この研究協力協定の下での研究協力の 1 つとして HKED が入手できる可能性があった。このため、この協定は 1990 年 (平成 2 年) 7 月 2 日に締結され、同年 11 月 16 日にこの機器の開発を協定の下での行動書 (Action sheet) の 1 つとすることが合意された。

3.3 NUCEF への設置までの経緯

HKED のハード及びソフトウェアの設計製作は、LANL において原研と密接なコンタクトを取りながら進められた。これに並行して、HKED の測定試料装荷部を格納するグローブボックス及び電力供給用の配電盤については、原研が LANL から必要な情報を得て国内メーカーに製作を担当させた。

Table 3.1 に当該機器が NUCEF への設置までの経緯の概要を示す。表は、行動書合意と同時に合意されたスケジュールと、機器の設置が行われた 1994 年（平成 6 年）1 月に原研と DOE が確認した当該機器設置までの実績を比較して示している。この間、DOE 原研間の保障措置技術開発協力協定の常設調整グループ会合（PCG (Permanent Coordinating Group) Meeting）での進捗状況の確認や東海及び LANL での技術的な打ち合わせを行った。

Table 3.1 Activities toward the installation of HKED in NUCEF

Activities	Provisional schedule (as of Nov., 1990)	Results (as of Jan., 1994)
Order detector, x-ray generator, and other electronic components	March, 1991	March, 1991
Mechanical design: conceptual and sufficient detail for the glove box design to be frozen	April, 1991	July, 1991
Design review	May, 1991	November, 1991
Detail mechanical design	June, 1991	August, 1991
Approval for fabrication	July, 1991	January, 1992
Mechanical fabrication	August, 1991	February, 1992
Software development	April-September, 1991	March, 1992
System assembly and testing	August-October, 1991	April, 1992
Measurement and testing	Nov., 1991 - Feb., 1992	Oct., 1992-Nov., 1993
Training and acceptance test by JAERI	March, 1992	July, 1993
Shipping	April, 1992	Dec., 1993 - Jan., 1994
Installation	TBD	January, 1994

TBD: to be determined

表から明らかなように、HKED は当初の予定より 1 年 9 ヶ月程度遅れて NUCEF に設置された。NUCEF の HKED は、2.4 で既に述べたように施設の計量管理だけでなく、国及び国際原子力機関（IAEA）による査察でも用いられることとなっている。施設の機器を査察

に用いる場合、国及びIAEAの認証(Authentication)を受けることが必要であるが、HKEDはIAEAからまず仕様要求書(User Requirement)が提出され、この仕様を受容試験計画(Acceptance Test Plan)に基づく受容試験で確認することにより認証が行われる。したがって、IAEAが要求する性能を加味して設計製作する必要がある。IAEAからの仕様要求書の初稿の提示は、原研とLANLで行ったソフトウェアの機能仕様の検討が終了した後の1992年3月に行われた。したがって、仕様の再度見直しが必要になり、IAEAによる最終的な仕様要求書作成までにIAEA及びLANLとの情報交換に9ヶ月あまりを要した。IAEAから要求された仕様は大部分がソフトウェアに関するもので、この作業により当該機器の製作工程が直接影響を受け、当初のスケジュールから遅れを生じることとなった。

HKEDのLANLからNUCEFへの輸送手続は、1993年(平成5年)4月から商事会社を通じて行った。輸送直前に機器(X線発生装置)の不調の発生があったが、最終的には、NUCEFにおけるホット試験の開始以前の1994年(平成6年)1月にNUCEFの分析室(I)に据え付けられた。Fig. 3.1にHKEDの分析室(I)における据え付け位置を示す。

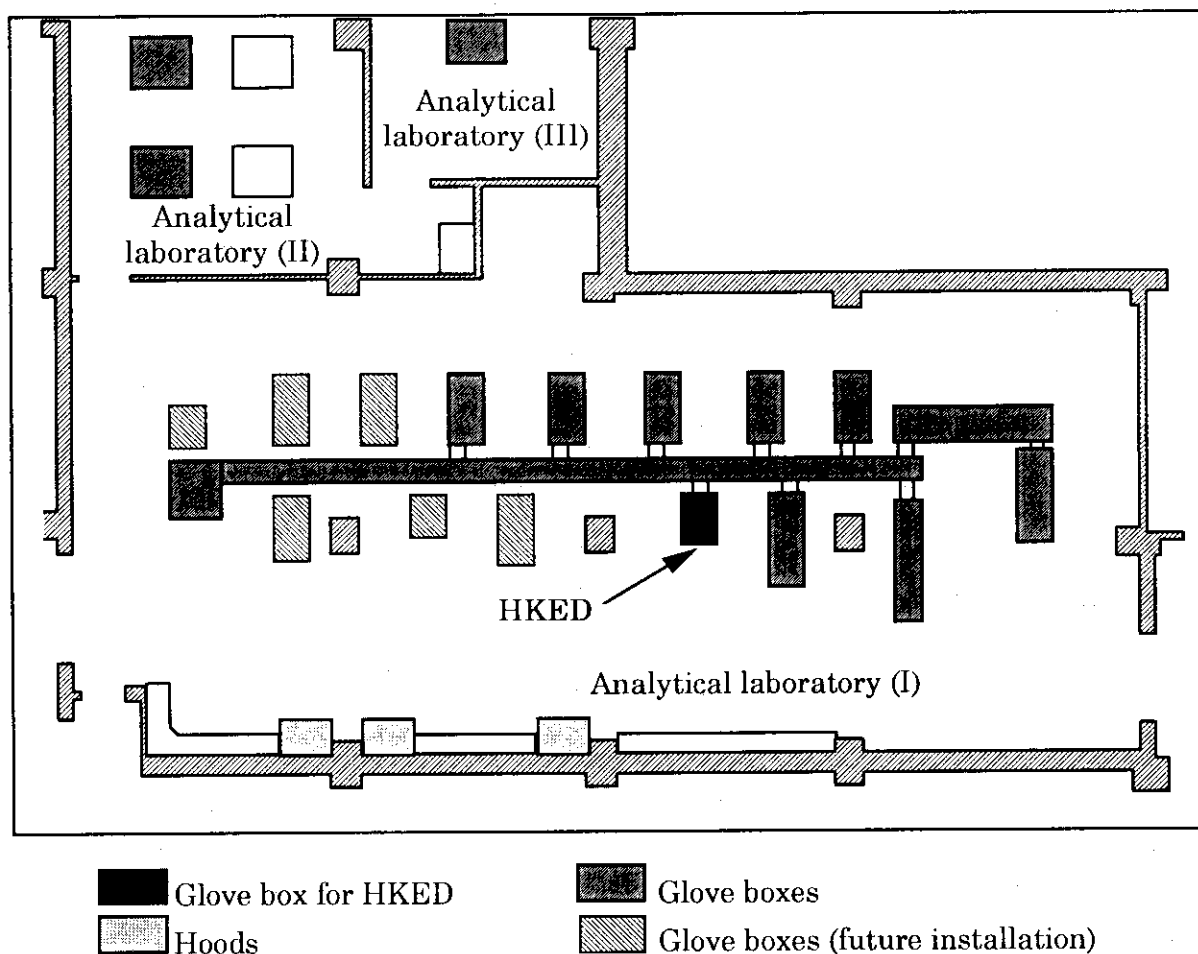


Fig. 3.1 Location of HKED installed in Analytical laboratory of NUCEF¹⁰⁾

4. NUCEF ハイブリッド K 吸収端濃度計の設計の経緯

4.1 基本仕様

Table 4.1 に、保障措置技術開発研究協力協定の締結時に合意された NUCEF へ設置する HKED の基本的な仕様を示す。この仕様をもとに LANL での機器の設計製作が開始され、完成までの過程において機能の変更や付加が行われた。

Table 4.1 Basic specification of HKED of NUCEF (as of Nov., 1990)

Items	Specification		
1. General	The hybrid-type NDA system, based on the technique of K-edge densitometry and X-ray fluorescence spectrometry, measures the concentration of uranium and plutonium with high precision and accuracy.		
2. Environmental condition	(1)Temperature	22~27°C	
	(2)Humidity	40~50%RH	
	(3)Pressure	-12~-15mmH ₂ O	
	(4)Background	< 30 μSv/h	
3. Electric source	(1)AC	100V ± 10% 1φ, 50Hz	
	(2)AC	200V ± 10% 3φ, 50Hz	
4. Cooling water	(1)Water temperature	20~30°C	
	(2)Water pressure	1 ~3kgf/cm ²	
	(3)Flow rate	about 4 L/min	
	(4)Water	distilled water	
5. Precision	(1)Precision for single component solution (1000sec. assay)	10~30gU/L	<± 1.5%
		30gU/L <	<± 0.5%
		10~30gPu/L	<± 1.5%
		30gPu/L <	<± 0.5%
	(2)Precision for mixed solution (1000sec. assay)	U/Pu: 1~50	0.5%
		U/Pu: 50	0.75%
		U/Pu: 100	1%
		U/Pu: 500	50%

Table 4.1 Basic specification of HKED of NUCEF (as of Nov., 1990) (continued)

Items	Specification
6. System configuration	(1) LANL's scope X-ray generator, X-ray fluorescence detector, Densitometry detector, Amplifier, Detector bias supply, Digital stabilizer, LN ₂ level monitor, Automatic LN ₂ supplier, A-D converter, Counter/Timer, MCA, Sample changer, Computer, Printer, X-Y plotter, Radiation shielding (<20 μ Sv/h at the surface of equipment)
	(2) JAERI's scope Glove box, Cooling water supply system
7. Software configuration	(1) Background subtraction of K-edge spectrum (2) Fitting of K-edge spectrum (3) Energy calibration of K-edge spectrum (4) Calculation of U and Pu concentrations (5) Background subtraction of K-XRF spectrum (6) Energy calibration of K-XRF spectrum (7) Calibration of area and ratio of peaks in K-XRF spectrum (8) Output of results (9) Output of spectrums to X-Y plotter

note) LN₂: Liquid nitrogen

1992年(平成4年)に国からIAEAへ提出されたNUCEFのDIQ(設計情報質問書)では、K吸収端濃度計によるプルトニウム濃度の測定誤差について偶然誤差及び系統誤差として0.5%としている。基本仕様では、プルトニウム単独では30 gPu/Lを超える濃度で、混合溶液の場合はU/Puが1~50の範囲で満たされる。この仕様は、今後計画されている受容試験で実際の測定により確認される。

LANLとの技術的な打ち合わせの結果、Table 4.1に示した機器の構成は最終的には以下のように変更された。

- ・液体窒素のレベルモニタ及び自動供給装置は、取りやめになり液体窒素容器を準備した。
- ・冷却水供給装置は、LANLが準備した。さらに無停電電源を追加した。

4.2 ハードウェアの設計と製作の経緯

HKED は、試料装荷部を内装するグローブボックスと接続して設置される（以下、HKED とグローブボックスを含めて本装置という。）。先にも述べたように、HKED は LANL が設計・製作を担当し、グローブボックスの整備は NUCEF が担当した。NUCEF 担当設備については、三菱重工業（株）が、設計・製作を行った。

4.2.1 設計の基本

本装置は、NUCEF の原子炉施設（STACY 施設及び TRACY 施設）に属する分析設備の一部である。したがって、

- 1) 「日本原子力研究所東海研究所 原子炉設置変更許可申請書」、「日本原子力研究所東海研究所の原子炉施設の変更〔STACY（定常臨界実験装置）施設の設置〕に係る設計及び工事の方法の認可申請書」及び「日本原子力研究所東海研究所の原子炉施設の変更〔TRACY（過渡臨界実験装置）施設の設置〕に係る設計及び工事の方法の認可申請書」と整合していること。
- 2) 本装置は、労働安全衛生法に基づく「電離放射線障害防止規則」に整合していること。
- 3) 性能維持、操作及び保守が容易であること。

を設計・製作の検討方針とした。

4.2.2 設計及び製作

以下に主要な設計・製作時の検討事項及び製作後の確認事項等を述べる。

1)耐震機能

グローブボックスの耐震設計基準は、Bクラスである。このため、グローブボックスとHKEDのハウジング部との接続方法として自在伸縮継手方法と直接接続方法（フランジ接続）を検討した。自在伸縮継手方法の場合は、接続部に地震時の荷重負荷は少ないが、試料移動用シャフトが長くなるなど、水平保持、配置等の点で問題が生じた。直接接続方法の場合は、接続部に地震時の荷重の問題はあるものの、シャフトの水平保持、配置等の設計に余裕があるため、本装置では、直接接続方法を採用した。接続部の地震時の荷重を低減するためにX線管及びその遮蔽体の荷重は、ハウジングに掛からないようにグローブボックスとは独立した架台で受けることとした。また、ハウジング部の荷重も架台で受けることとした。なお、X線発生装置はホールインアンカーで床及び柱に下部及び上部を固定した。

2) 遮蔽機能

本装置を設置している分析室 (I) は、線量当量率 $20\mu\text{Sv/h}$ 以下で管理されており、本装置表面の線量当量率についても、「電離放射線障害防止規則」に基づき $20\mu\text{Sv/h}$ 以下とすることとした。一方、LANL では、通常作業において近接する境界で $20\mu\text{Sv/h}$ 以下と判断していたため、一部の領域において基準値を越えることが検査時に判明した。このため、この部分にタングステン板 ($t=0.8\text{mm}$) による遮へいを追加して基準値を達成した。

3) 閉じ込め機能

ハウジング部の漏れ率は、グローブボックスの設計基準と同じ 0.08 vol\%/h (-30mmAq 時) 以下とした。LANL では、ハウジング部の Oリングシール部及び信号線等のコネクタ一部の漏れ検査をヘリウムリークデテクターで実施し、 $1 \times 10^{-6}\text{ Std cc/sec}$ 以下であることを確認し NUCCEF に搬入した。据付け完了後のグローブボックスとハウジング部の漏れ率の測定は、大気圧比較法により 0.08 vol\%/h (-30mmAq 時) 以下であることを確認した。

4) インターロック機能

本装置には、X線管の冷却水流量が低下 (圧力スイッチ使用) した場合に X線の発生を停止させる装置保護及びサンプルトレイが測定位置外に移動した場合に X線の発生を停止させる作業者の被ばく防止の2つのインターロック機能を設けた。

5) 機器配置

分析室 (I) 内の設置スペースに制限があるため、機器の操作性、保守作業等を考慮して配置を決定した。分析室 (I) 内機器配置及び本装置の設置状態をそれぞれ Fig. 4.2.1 及び Photo 4.2.1 に示す。

6) 構造

本装置の測定部の概略構造を Fig. 4.2.2 (平面図) 及び Fig. 4.2.3 (側面図) に示す。

① グローブボックス内で硝酸溶液等を取り扱うため、グローブボックス内設置機器の腐食防止対策として、ハウジング部の腐食性ガス等の侵入防止用としてメタクリル製カバーをグローブボックス内に設置した。なお、グローブボックス内設置機器の材料は、可能な限り耐腐食性材料とした。

② X線の実効通過長は、分析誤差の要因となる。試料溶液に対する X線の実効通過長はビーム軸、測定セルの取付状態、測定セル寸法精度に依存する。また、測定セルの X線ビーム軸に対する傾き角度 (θ) は、 $1/\cos\theta$ の実効長を増加させる。このため、サンプルチェンジャー部のサンプルトレイの固定方法及び測定セル装着方法について検

討し、サンプルトレイは、位置決用ピン2本により移動用台に固定する方法とした。これにより、グローブ操作による交換作業でも問題なくサンプルトレイを正しく固定できることを確認した。また、測定セルの装着再現性確保の観点から、サンプルトレイの測定セル装着部寸法と測定セル寸法との公差（クリアランス）を小さくしたため、測定セルの挿入がスムーズにできなかつたが、サンプルトレイ上面角部の面取りを行うことによりサンプルセルの装着がスムーズかつ確実に行えるようになった。

③ X線管交換時のビーム軸合わせを考慮して、上下方向の調整は、簡単な回転機構により容易にできるようにし、左右方向については、X線管の受架台をX線管下部形状に合わせることで位置決が確実に行えるようにした。これにより、X線管の上下・左右方向の調整が問題なく行えることを確認した。

7) その他

① グローブボックス用グローブの破損防止のため、グローブ操作範囲にある構造物の角部の加工方法、仕上げ精度及び突起物の有無を検討し、問題がないことを確認した。

② X線発生中の表示ランプが備えられていることを確認した。

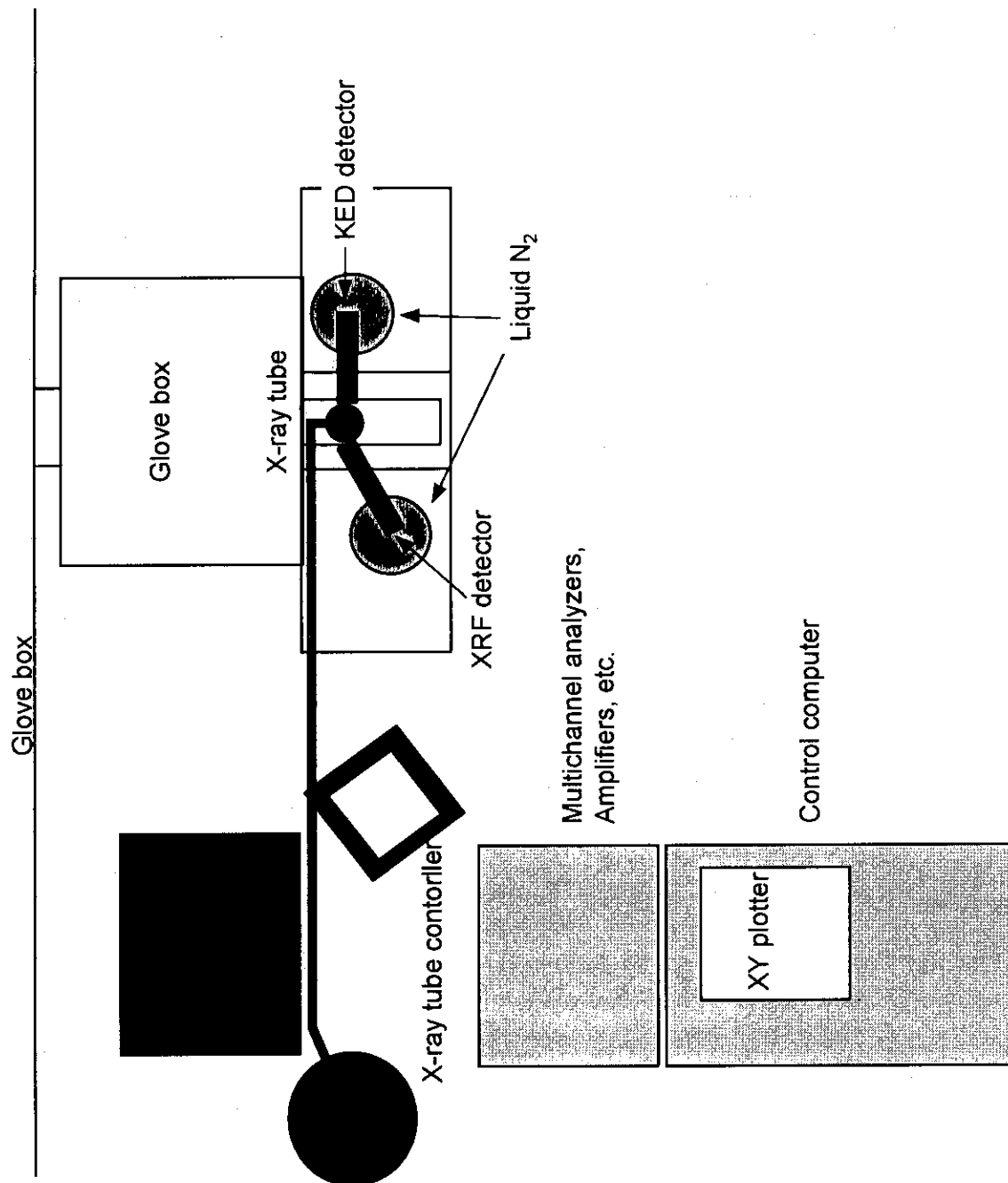


Fig. 4.2.1 Arrangement of HKED at Analytical laboratory (I) of NUCEF

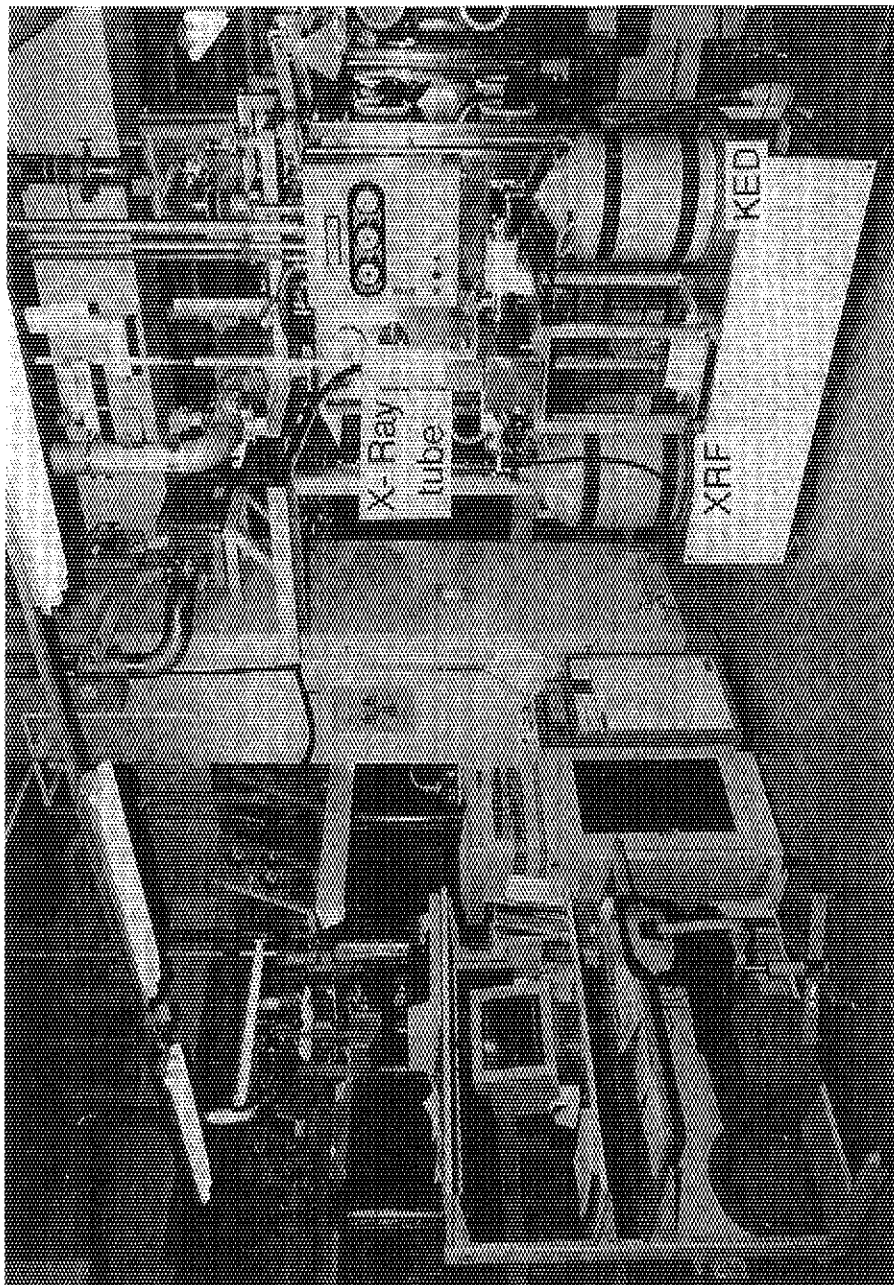


Photo 4.2.1 HKED installed in Analytical laboratory (I) of NUCEF

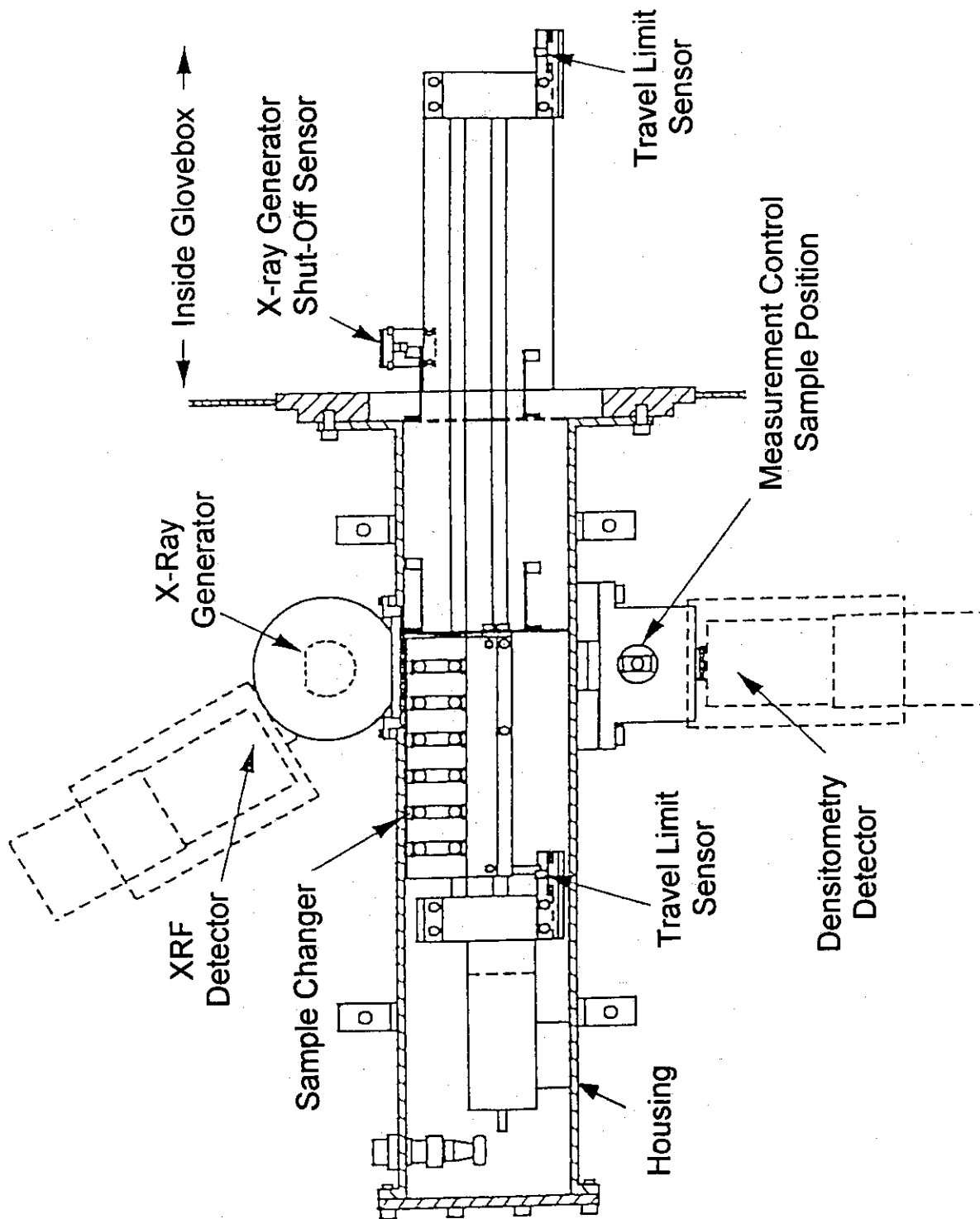


Fig. 4.2.2 Measurement section of HKED (top view)

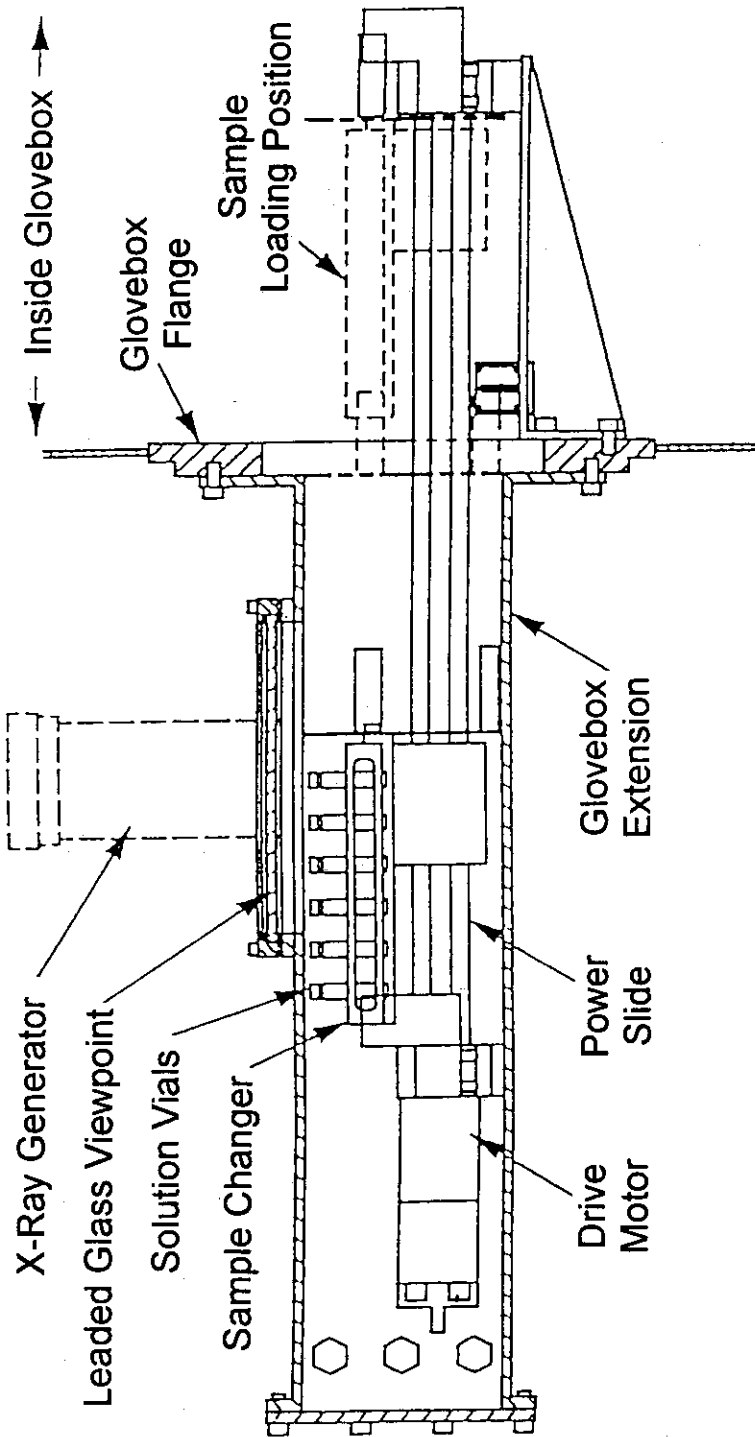


Fig. 4.2.3 Measurement section of HKED (side view)

4.3 ソフトウェアの設計の経緯

4.3.1 ソフトウェア機能仕様の概要

Table 4.1 に示した基本仕様に基づく HKED のソフトウェアに関する機能仕様が LANL から示された。その概要を Table 4.2 に示す。

Table 4.2 Outline of HKED software specification

Items	Specification
System components	HP Vectra 386/25 (with math coprocessor) 3.5 inch FD drive×2 44MB Bernoulli disks×2 (removable HD) Ortec 919 MCA×2
Language	Microsoft C compiler etc.
Security	Level 1: HKED measurement only Level 2: HKED measurement and changing measurement parameters and passwords (authorized person only)
Menu	
Measurement	Assay: Assay and data analysis (write a spectrum on specified disk) MC Bias: Measurement control-bias run and test of MC bias with 95 % confidence limit MC Precision: Test of short term measurement reproducibility Autocycle: Repeat measurement under a fixed condition Reference: Collect and store a reference spectrum for future densitometry and XRF analysis when x-ray tube is changed or after several years
Archives	List Assay Log: List up and print the assay log List MC Log: List up and print the MC bias and MC precision test logs
Parameter	Default: Set printout level, specify disk to store the assay data, set assay time Edit Parameters: Modify all the parameters for HKED Print Parameter: Print out the parameters Print Change History: Print out the parameter modification log
Analyze	From Disk: Analyze recorded spectra

4.3.2 IAEA 仕様要求の概要

IAEA からの NUCEF の HKED に対する仕様要求書は、3.3 で述べたように 1992 年 3 月に初稿が提出され、正式な仕様要求書は 1992 年（平成 4 年）12 月に提出された。この間 4 回の仕様要求書のドラフトが IAEA から提出され、逐次原研及び LANL におけるドラフトの検討と IAEA への検討結果の回答を行った。正式の仕様要求書の概要と施設側の対応を Table 4.3 に示す。

Table 4.3 Outline of IAEA user requirement on HKED

Items	Requirements	remarks
(1)Application of HKED to the verification of the declared uranium and plutonium concentrations		
(2)Measurement principle of HKED: K-adsorption edge spectrometry and X-ray fluorescence spectrometry		
(3)Acceptance test prior to inspection use		
(4)Minimum required performance	1)Measurement capability and uncertainties ・ single component solution (1000sec. assay) 10~30g/L $\leq \pm 1.5\%$ 30g/L <math>< \pm 0.5\%</math> ・ mixed solution: U/Pu ratio Overall uncertainty of Pu 1-50 0.5% 50 0.75% 100 1% ・ Independent measurement of the presence of any interfering elements 2)Operating requirements ・ Collecting of assay data on samples, background and normalization data	1)uncertainties are same as basic specification <u>Measures for interfering elements are necessary</u> 2)possible
(5)Hardware requirements	1)System components : a detector for K-edge, a detector for K-XRF, electronics and power modules, and computer and printer 2)Spectra of the actual sample under acquisition should be visible	1)possible 2)possible after assay

(6)Software requirements	<p>1)Measurement U K-edge, Pu K-edge, U/Pu K-edge, U/Pu ratio XRF, U K-edge+U/Pu ratio XRF</p> <p>2)Supply of software to IAEA side</p>	<p>1)Available</p> <p>2)necessary for independent measurement</p>
(7)Reliability and Maintenance	<p>1)System Mean Time Failure > 1 year</p> <p>2)Inform IAEA of any module replacement and carry out necessary authentication</p>	<p>1)possible</p> <p>2)possible</p>
(8)Data acquisition and Processing	<p>1)User interface: simple and logical steps</p> <p>2)Presentation of data on CRT</p> <p>3)Spectra evaluation</p> <ul style="list-style-type: none"> • Energy calibration • Background subtraction • Normalization of spectra • Check for the absence or presence of Am, Pu, Th, U and Np (if applicable) • A test of reproducibility of measurement <p>4)A detailed description of algorithms, calibration procedure, error propagation</p> <p>5)Output</p> <ul style="list-style-type: none"> a) reports for background measurements, normalization measurements, assay measurements b) All input parameters, item ID and vial ID c) Results with error d) Information about reproducibility e) A warning in case of interfering elements f) Operator declaration - inspector comparison g) X-ray tube voltage, count rate, K-edge position, detector resolution (FWHM), calibration factor etc. h)A diskette storing a copy of spectrum and information on the above a)~g) 	<p>1)possible</p> <p>2)possible</p> <p>3)can be evaluated</p> <p><u>Measures for checking presence of those elements are necessary.</u></p> <p>4),5)possible, but <u>measures for 5)e) and f) are necessary.</u></p>

	6)Software support • A support for inspector side when software is upgraded, is expected	
(9)Authentication and Validation of result	1) Authentication can be achieved by, for example, use of IAEA controlled software and the shipping of randomly selected samples 2) Authentication of measurement cells could involve the random use of Agency cells, or random check of operator's cells	will be carried out by agreed procedure
(10)Calibration	1) Detail description of calibration procedures 2) Verification of Solution samples used in calibration	will be carried out by agreed procedure
(11)Documentation	Functional specifications Design specifications Operating manual, Maintenance manual Software documentation Calibration procedure, Inspection procedure	will be prepared for inspector side

4.3.3 IAEA 仕様要求に伴うソフトウェアの変更

上記の仕様要求書で示された性能を満足するため、特に以下の機能が付加された。

(1) 妨害元素が存在する測定ではできるだけその影響を受けない測定が可能であること

- ウラン濃度測定時のプルトニウム及びトリウムの存在の影響
- プルトニウム濃度測定時のウラン、トリウム、アメリシウム及びネプツニウムの存在の影響
- U/Pu 比測定時のトリウム、アメリシウム及びネプツニウムの影響

このため、2.4 で示したように、アメリシウム、トリウム及びネプツニウムの存在をチェックし警告を与える機能が付加された。蛍光 X 線のスペクトルを測定し、このスペクトルから各元素特有のピークを探索し、元素の存在の有無を検出する。

- (2) K 吸収端の測定から重量ベースの濃度を算出するために必要な原子量（同位体組成比から求める）の入力及び測定温度の入力が各測定ごとに行えること。

この入力は Table 4.2 に示すメニューの「解析」のオプションの中で行える。

- (3) 施設側申告値（ウラン濃度、プルトニウム濃度）が入力でき、査察側測定値との比較ができること。

この入力及び比較は Table 4.2 に示すメニューの「解析」のオプションの中で行える。

5. ハイブリッドK吸収端濃度計の校正実験及び長期性能試験

1995年(平成7年)4月にNUCEF原子炉施設で使用するウラン溶液燃料の一部を用いてHKED校正用標準ウラン溶液を調製し、LANLと共同で校正実験を行った。さらに校正実験の結果を反映させて測定パラメータの変更を行い、同年8月からパラメータを変更したソフトウェアによる校正実験を実施した。この校正実験後、ルーチン分析試料を用いて滴定分析との比較による長期性能試験を実施している。以下にその概要を述べる。

5.1 校正用標準ウラン溶液

HKEDの校正は、2回にわたって実施された。各校正実験毎に、STACYの臨界実験に使用する10%濃縮ウラン燃料溶液を適宜濃縮あるいは希釈して、酸化還元電位差滴定法(Davies & Gray法^{11),12),13)}：以下DG法という。)によりウラン濃度を定量し、校正用標準ウラン溶液として用いた。

DG法は、鉄(II)還元-ニクロム酸カリウム酸化滴定法であり、Davies & Gray¹¹⁾が開発しNBL¹²⁾等で改良された方法で、現在精度の高いウラン分析法として広く利用されている方法である。

初めに、9.8M以上のリン酸溶液中で鉄2価によりウラン6価をウラン4価に還元し、過剰の鉄2価はモリブデン6価を触媒として硝酸で酸化する。次に、バナジウム4価を加え、ニクロム酸カリウム標準溶液で再びウランを6価に酸化しつつ滴定し、消費したニクロム酸カリウム標準溶液の量とウランとの当量からウラン濃度を求める方法である。校正用ウラン標準溶液の調製では、滴定に用いたニクロム酸カリウム標準溶液の濃度を、標準ウラン溶液(純度99.99%の金属ウラン：JAERI-U4で調製)で標定した。なお、ウラン濃度は、1試料当たり約20mgのウランを含む試料溶液を5回測定することにより求めた。本法により得られたウラン濃度の標定精度は、系統誤差0.11%、偶然誤差0.13%であった。

また、滴定によるウラン濃度定量の1993年の国際目標値¹⁴⁾では、系統誤差及び偶然誤差は共に0.10%であり比較すると定量精度は現状の分析水準からみて十分に高いものである。

5.2 校正実験及び結果

第1回目の校正実験を1995年4月に、調製した校正用ウラン標準溶液を用いてLANLとの共同で行った。この実験では、HKEDにより各校正用標準溶液について、それぞれ3回づつ1000秒間測定を行った。測定結果をDG法による定量値とともにTable 5.1に示す。

厚みが2cmのセル(2cmセル)及び4cmのセル(4cmセル)には、それぞれ約6cc

及び約 12 cc の溶液が注入される。4 cm セルによる測定では低濃度試料 (約 12 g/L) において、DG 法との間に大きな差が認められた。一方、2 cm セルによる約 300 g/L を越えるウラン濃度測定では、DG 法に比べて明らかに高い値を示しており、1% 以上もの正のバイアスが認められた。これは、LANL でウラン濃度が 50~200g/L の試料を用いた実験により測定パラメータ ((4)式における $\Delta\mu_A$ の値) の最適化を行っていたことに起因していることが明らかになった。このため、新たにこの校正実験結果を反映させた測定パラメータの再計算を LANL で行い、新パラメータの設定を行った。

パラメータ変更後、第 2 回目の校正実験として 1995 年 8 月~10 月にわたって校正用試料測定を行った。実験結果は、Table 5.2 に示したように 2 cm セル測定及び 4 cm セル測定においても HKED と DG 法の間には有意なバイアスは認められず、 $\pm 0.3\%$ 以内で良い一致を示した。パラメータ変更前後における HKED と DG 法によるウラン濃度測定値の比を Fig.5.1 及び Fig.5.2 に示す。

5.3 長期間測定実験及び結果

第 2 回目の校正実験と並行して、STACY の臨界実験に伴って採取した分析試料を用いた長期間測定実験をパラメータ変更後の測定プログラムにより開始した。測定は 2 cm セルを用い、1000 秒間行った。使用した溶液のウラン濃度は DG 法により測定した。ウラン濃度は、約 50~500 g/L の範囲であった。測定結果を Fig.5.3 に DG 法で得られた濃度に対する HKED で得られた濃度の比で示す。本図から明らかなように、これまでの実験では、HKED/DG 比はほぼ $\pm 1\%$ 以内であり、HKED の測定は安定した結果を示した。

5.4 校正用溶液の安定性試験

HKED による分析データの管理には、装置の定期的な校正が必要であり、また、国及び IAEA による査察時においても使用前の校正試験が必要とされている。校正の都度標準ウラン溶液を調製することは、校正試験が煩雑になる。このため、校正用標準ウラン溶液を測定セルに密封し、これを用いた校正試験実施の可能性を評価することとした。DG 法により濃度を決定したウラン溶液を用いて、測定セルの四フッ化エチレン製栓をエポキシ樹脂でシールし、これによる繰り返し測定を 1995 年 6 月から継続して行ってきた。これまでに得られた測定結果を Fig.5.4 に示す。測定は、パラメータ変更後の測定プログラム及びウラン濃度が約 300 g/L の試料を用いて 2 cm セルを用いて実施した。校正実験で得られた初期濃度の値との比は 0.4% 以内に入っており、これまでのところ約 200 日間安定した測定値が得られている。ウラン溶液については、密封セルによる HKED の校正が十分可能であることを示している。

Table 5.1 Calibration result of HKED using initial measurement parameters

2 cm cell

assay time: 1000s

No. of assay: 3

Results of DG method		Mean values of HKED measurement results		HKED/DG
(g/L)	(±%)	(g/L)	(±%)	
52.91	0.02	53.28	0.48	1.007
118.76	0.03	119.81	0.24	1.007
222.97	0.05	225.00	0.18	1.009
313.15	0.05	318.38	0.18	1.010
357.31	0.12	381.34	0.18	1.011
402.53	0.07	408.10	0.81	1.014
453.93	0.04	481.00	0.21	1.018
HKED/DG (mean) :				1.011 ± 0.004

4 cm cell

assay time: 1000s

No. of assay: 3

Results of DG method		Mean values of HKED measurement results		HKED/DG
(g/L)	(±%)	(g/L)	(±%)	
11.86	0.17	12.25	1.85	1.033
52.91	0.02	52.78	0.32	0.997
118.76	0.03	118.81	0.21	0.999
HKED/DG (mean) :				1.010 ± 0.020

Table 5.2 Calibration results of HKED after changing measurement parameters

2 cm cell

assay time: 1000s

No. of assay: 3

Results of DG method		Mean values of HKED measurement results		HKED/DG
(g/L)	(±%)	(g/L)	(±%)	
49.95	0.06	50.23	0.49	1.006
102.16	0.03	102.05	0.26	0.999
197.75	0.09	197.91	0.20	1.001
289.86	0.03	289.63	0.17	0.999
320.10	0.12	319.08	0.18	0.997
398.45	0.02	397.81	0.20	0.998
480.56	0.02	481.77	0.24	1.003
HKED/DG (mean) :				1.000 ± 0.003

4 cm cell

assay time: 1000s

No. of assay: 3

Results of DG method		Mean values of HKED measurement results		HKED/DG
(g/L)	(±%)	(g/L)	(±%)	
10.42	0.10	10.42	1.22	1.000
49.95	0.06	49.93	0.31	1.000
102.16	0.03	101.89	0.23	0.997
HKED/DG (mean) :				0.999 ± 0.002

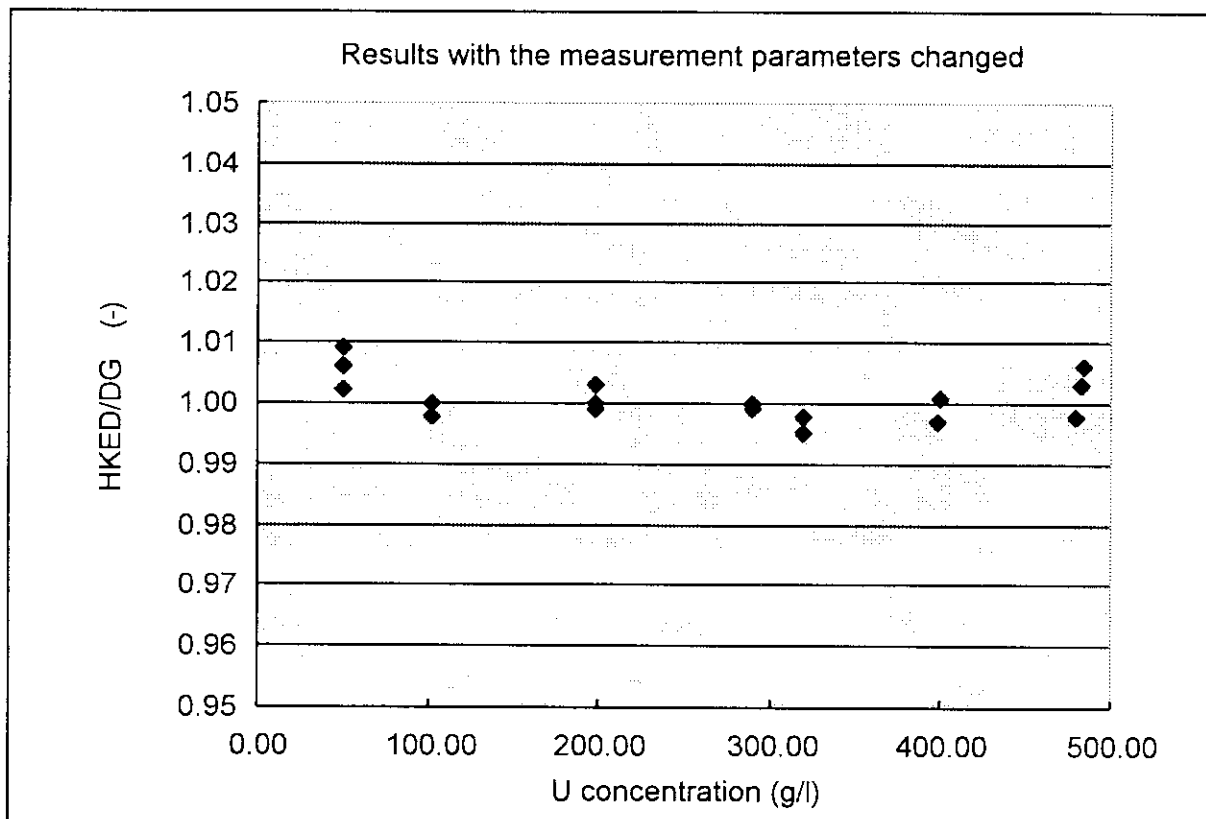
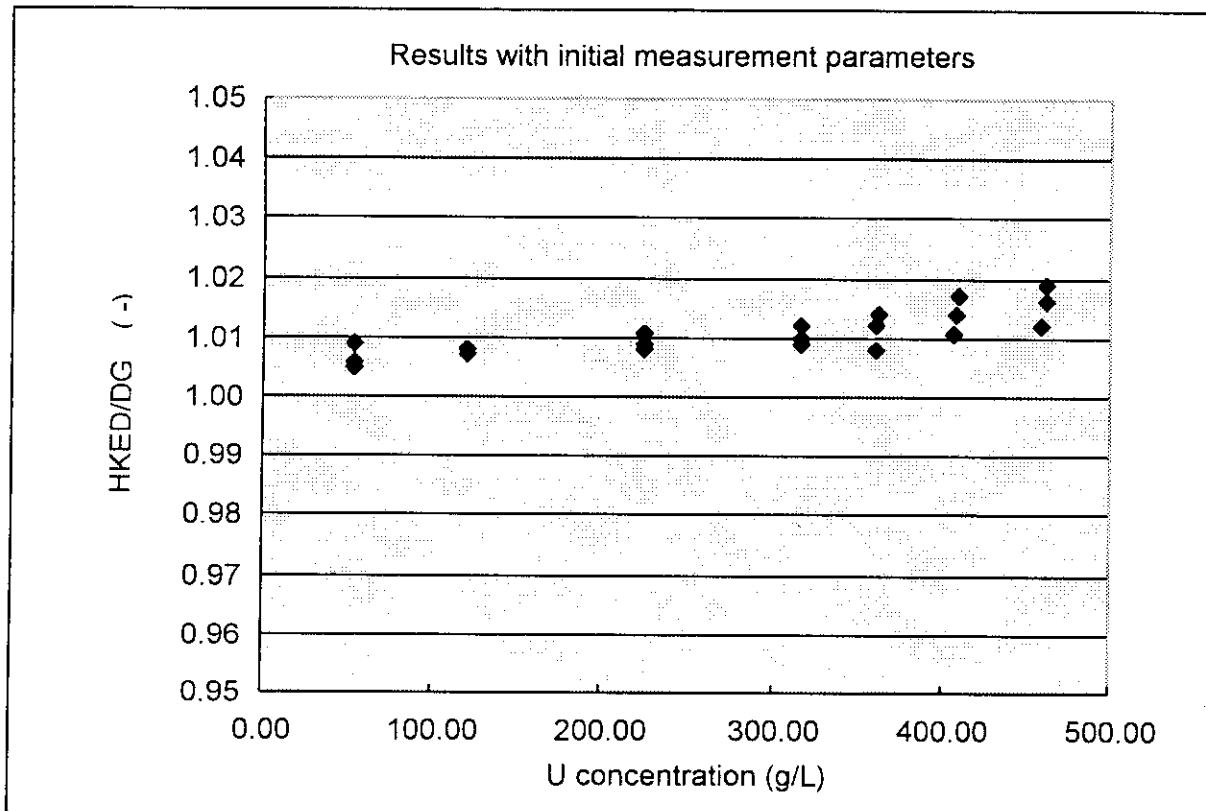


Fig. 5.1 U concentration ratios (HKED/DG) by initial measurement parameters and by changed measurement parameters (2 cm cell)

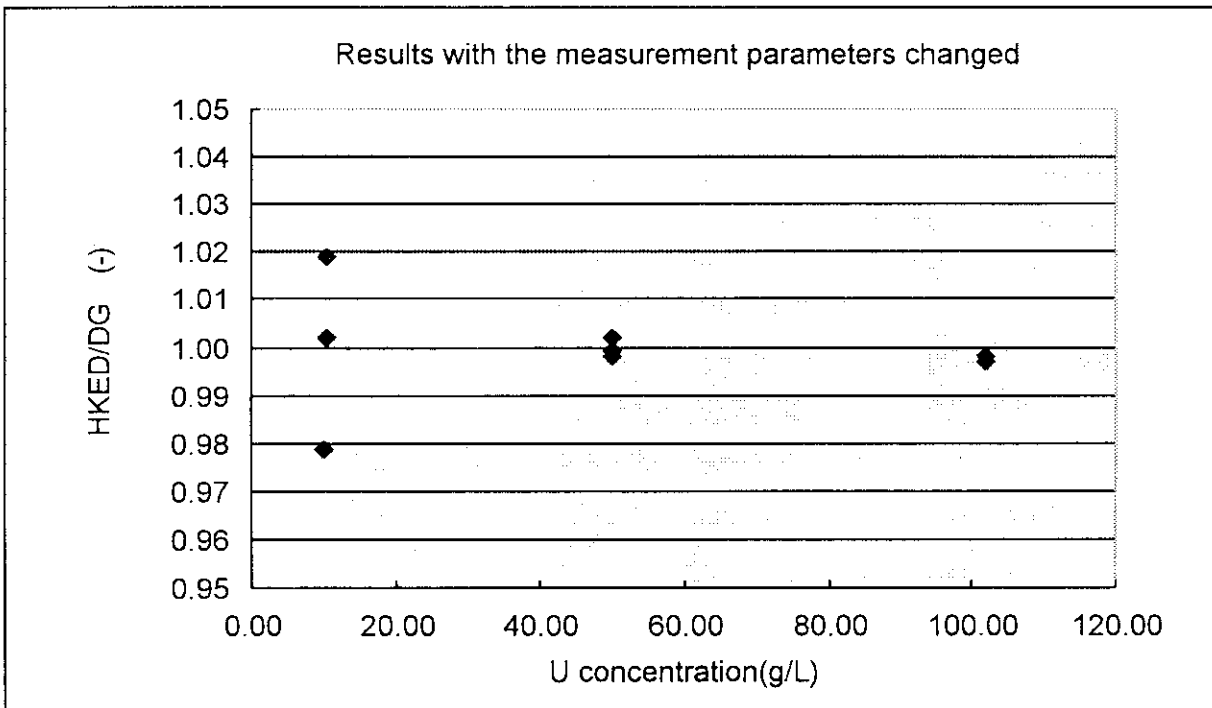
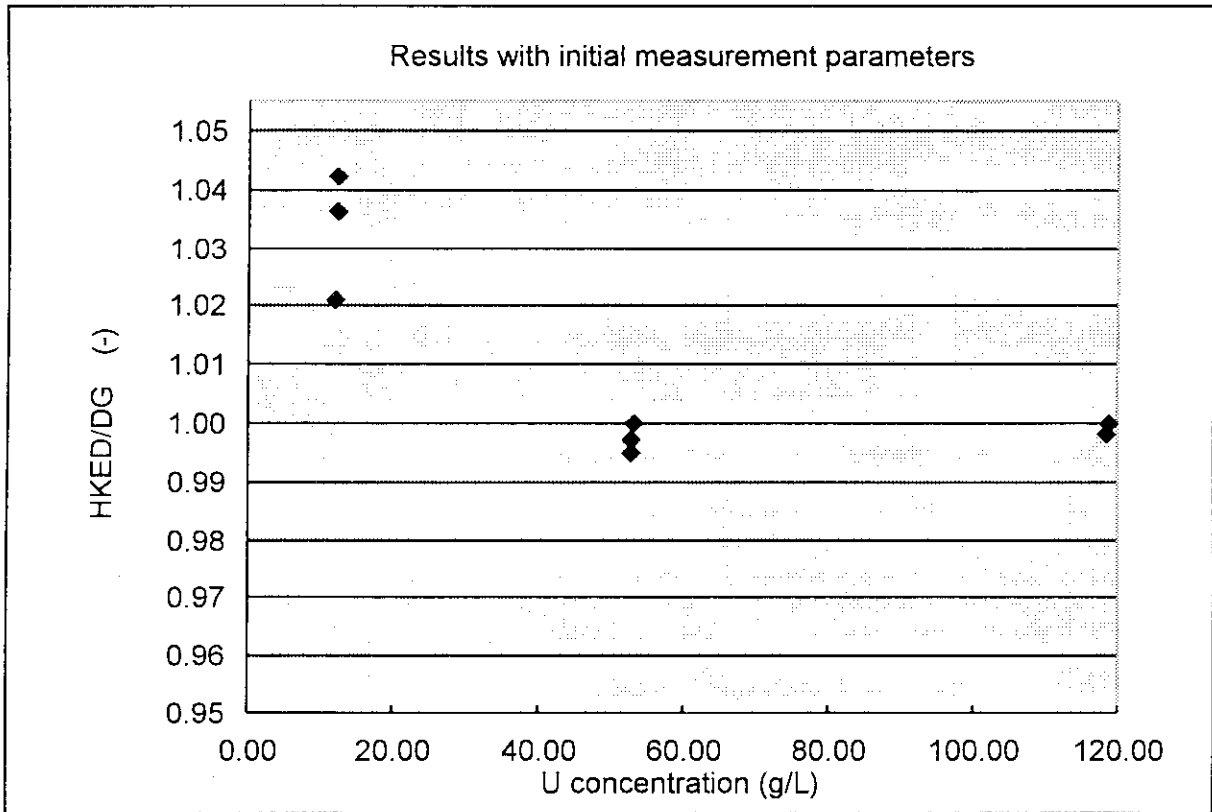


Fig. 5.2 U concentration ratios (HKED/DG) by initial measurement parameters and by changed measurement parameters (4 cm cell)

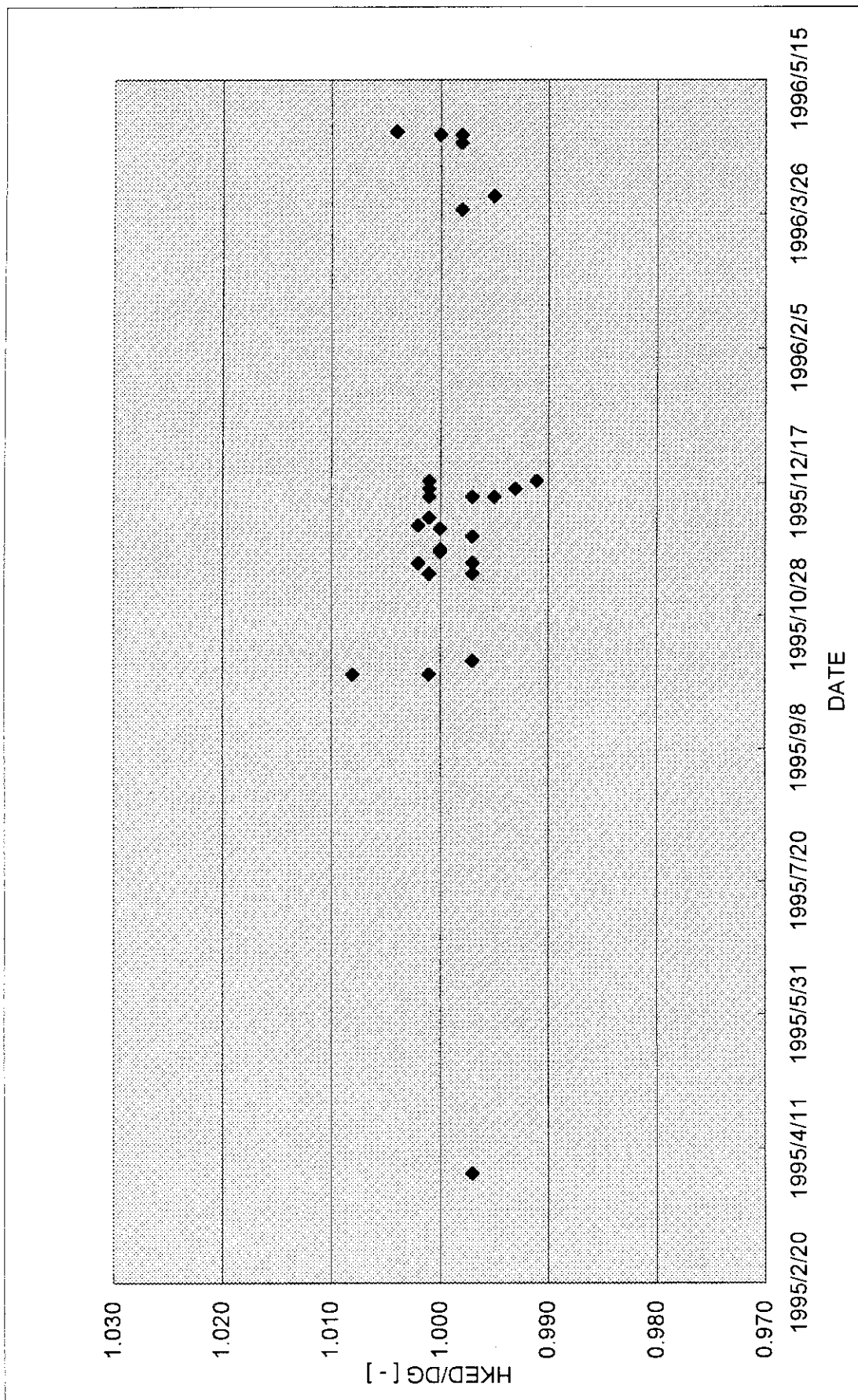


Fig. 5.3 Long-term stability of HIKED measurement for 50 to 500 gU/L (2cm cell)

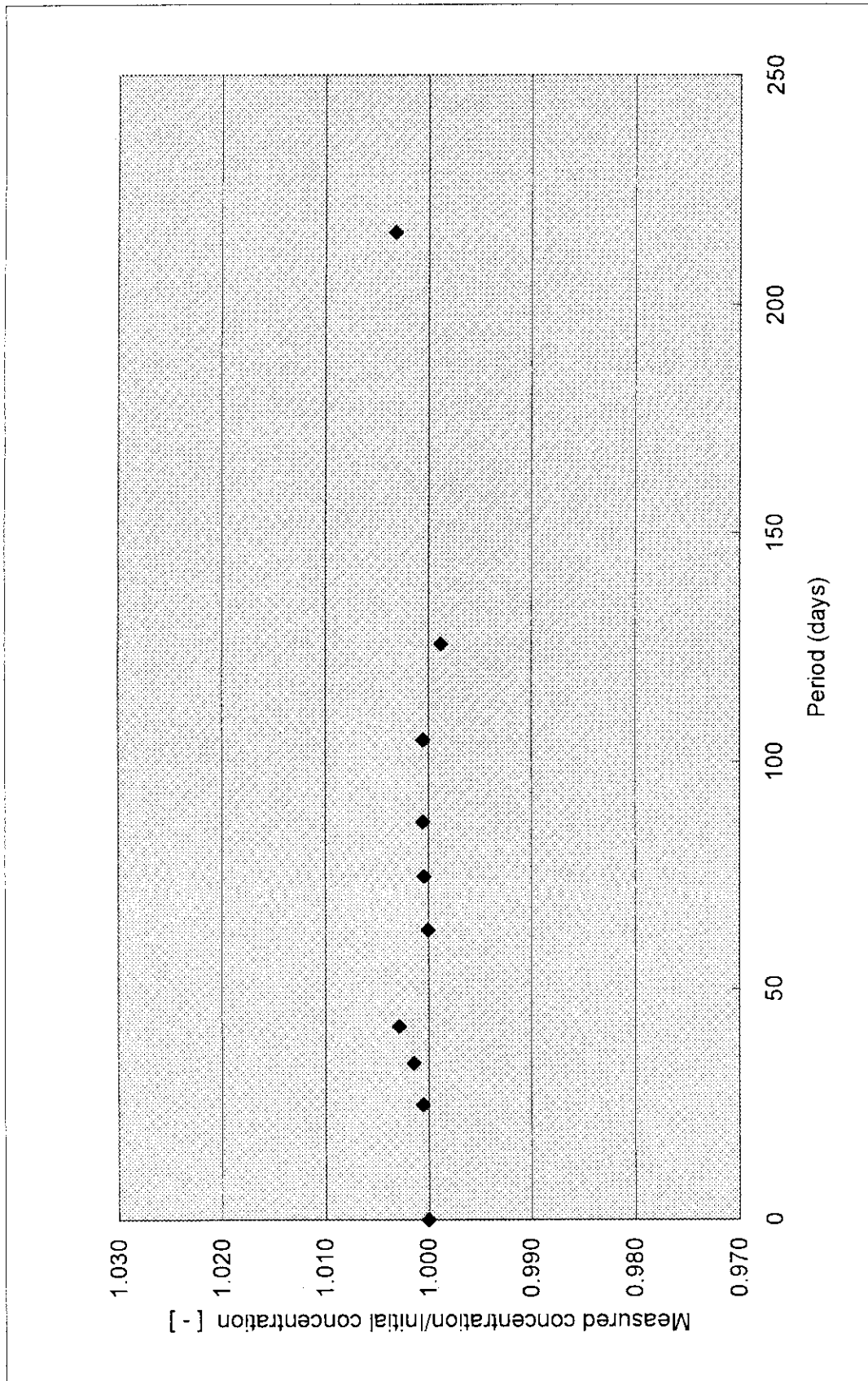


Fig.5.4 Stability of U concentration of the solution in an encapsulated measurement cell
(U concentration (289.86g/L) 2 cm cell)

6. おわりに

1994年(平成6年)1月にNUCEFに整備されたハイブリッドK吸収端濃度計について、その測定原理、特徴、導入経緯、設計の経緯及びウラン濃度測定試験結果の概要を述べた。今後は、以下の課題に取り組み、NUCEFの核物質の計量管理及び査察に十分使用可能な機器とするとともに、計測技術の高度化をめざした技術開発を行う予定である。

(1) 今後の試験項目

1) 長期性能試験の継続及びセル封入による校正用試料の長期安定性試験

NUCEFの計量管理では、溶液燃料中の核燃料物質を高精度で測定することが重要である。核燃料物質の量は、予め定められた貯槽に溶液燃料を集め、バルク測定(溶液体積あるいは重量測定)と溶液をサンプリングし濃度を測定することにより決定される。したがって、バルク測定及び濃度測定の両者をとともに精度良く行う必要があるだけでなく、両測定の誤差(系統誤差及び偶然誤差)を明らかにする必要がある^{15),16)}。さらに、4.1で述べたように、NUCEFのDIQ(設計情報質問書)に示されたHKEDによる測定に関する誤差以内で測定が行えるよう見通しをつける必要がある。

5.3においては、ウラン溶液の測定についてHKEDの高い精度が示されたが、HKEDによる測定の精度を維持あるいは向上させ、その測定誤差を明らかにするため、今後も長期に渡るHKEDの性能試験を継続して行う。ウラン溶液を用いた試験を行った後は、プルトニウム溶液を用いた試験を行う。

校正用ウラン試料については、5.4で述べたように計量管理及び査察時の校正作業を簡略化するために校正溶液のセル封入による方法が提案され、試験を行った結果その長期安定性は高く、この方法を用いた校正の可能性が示された。ウランに対する実在庫検認は年1回14ヶ月を超えない間隔で行われるため、校正用試料の安定性は、この間隔以上のかんりの長い期間に渡って維持される必要がある。このため、セル封入校正試料の長期安定性試験を今後も継続して行う。

プルトニウムの校正試料については、比較的短時間で通常同位体組成のプルトニウムでは崩壊が起きるため、セル封入による方法は困難である。このため、他の方法を検討する必要がある。

2) 供試液量の低減化試験

HKED法は、2.3で述べたように分析廃液の発生量が極めて少ないことが特徴の一つであるが、現在用いている測定セル中に注入する分析試料の体積を減らし、分析廃液の発生量をさらに低減化できる可能性がある。このため、使用する溶液体積を順次減らし測定試験を行い、低減化を図る。

(2) 査察で用いるための今後の課題

IAEA の仕様要求に対しては、4.3.3 で述べた対応がなされ、機能的には問題はないと考えられるが、HKED に対する認証を受けるためには以下の項目をさらに検討し国及び IAEA と協議して、ウラン溶液やプルトニウム溶液を用いた受容試験を順次受けていく必要がある。

1) 施設側と査察側で独立測定を行うための方法の確立

HKED を用いた測定では施設側と査察側双方で全く同じソフトウェアを用い、査察側はこのソフトウェアを封印等の方法で管理し、独立な測定が行えるようにする予定となっている。しかしながら、コンピュータは、施設側と兼用となるため、査察側が使用する場合にコンピュータのオペレーティングシステムについても不正変更を防止するための何らかの手段が必要である。これについては、受容試験を通じ査察側と施設側の協議を行いその手段を決定していく必要がある。

2) 査察用マニュアルの整備

査察において HKED を使用する場合に毎回同様な手順で検認活動が行われる必要がある。このため、査察用のマニュアルの整備が必要になる。このマニュアルは受容試験等を通じ、査察側と施設側の協議のもとで作成し整備される計画である。

謝 辞

本報の作成にあたり、多くの激励をいただいた NUCEF 試験室長前田充氏に深く感謝いたします。

ハイブリッド K 吸収端濃度計の導入に際しては、様々の方々のご協力、ご助言を得ました。DOE/原研の保障措置技術研究協力協定の締結のためにご尽力された当時企画室の田島保英氏に深く感謝いたします。さらに、同協定に基づく常設調整グループの原研側メンバーの猪川浩次氏（当時保障措置技術研究室）及び海江田圭右氏（国際協力室）に深く感謝いたします。また、常設調整グループ DOE 側メンバーの K.E. Sanders 氏をはじめ DOE 及び LANL 関係者の方々に深く感謝いたします。

さらに、一連の試験で使用したウラン標準溶液の調整に関わった NUCEF 試験室技術試験課分析グループの皆様に深く感謝いたします。

(2) 査察で用いるための今後の課題

IAEA の仕様要求に対しては、4.3.3 で述べた対応がなされ、機能的には問題はないと考えられるが、HKED に対する認証を受けるためには以下の項目をさらに検討し国及び IAEA と協議して、ウラン溶液やプルトニウム溶液を用いた受容試験を順次受けていく必要がある。

1) 施設側と査察側で独立測定を行うための方法の確立

HKED を用いた測定では施設側と査察側双方で全く同じソフトウェアを用い、査察側はこのソフトウェアを封印等の方法で管理し、独立な測定が行えるようにする予定となっている。しかしながら、コンピュータは、施設側と兼用となるため、査察側が使用する場合にコンピュータのオペレーティングシステムについても不正変更を防止するための何らかの手段が必要である。これについては、受容試験を通じ査察側と施設側の協議を行いその手段を決定していく必要がある。

2) 査察用マニュアルの整備

査察において HKED を使用する場合に毎回同様な手順で検認活動が行われる必要がある。このため、査察用のマニュアルの整備が必要になる。このマニュアルは受容試験等を通じ、査察側と施設側の協議のもとで作成し整備される計画である。

謝 辞

本報の作成にあたり、多くの激励をいただいた NUCEF 試験室長前田充氏に深く感謝いたします。

ハイブリッド K 吸収端濃度計の導入に際しては、様々の方々のご協力、ご助言を得ました。DOE/原研の保障措置技術研究協力協定の締結のためにご尽力された当時企画室の田島保英氏に深く感謝いたします。さらに、同協定に基づく常設調整グループの原研側メンバーの猪川浩次氏（当時保障措置技術研究室）及び海江田圭右氏（国際協力室）に深く感謝いたします。また、常設調整グループ DOE 側メンバーの K.E. Sanders 氏をはじめ DOE 及び LANL 関係者の方々に深く感謝いたします。

さらに、一連の試験で使用したウラン標準溶液の調整に関わった NUCEF 試験室技術試験課分析グループの皆様に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) Eberle, H., Matussek, P., Michel-Piper, I., and Ottmer, H.: "Assay of Uranium and Plutonium in Solution by K-Edge Photon Absorptiometry Using a Continuous X-Ray Beam", Proc. 2nd Annual Symp. on Safeguards and Nucl. Mater. Manag., ESARDA, pp372-378 (1980).
- 2) Ottmer, H., Eberle, H., and Koch, L.: "Demonstration of NDA Technology for Reprocessing Input Analytical Measurements", J. of INMM, vol. XV, p632 (1986).
- 3) Andrew, G., and Taylor, B.L.: "The Feasibility of Using K-XRF for the On-Line Measurement of Pu/U Ratios of Highly Active Dissolver Solutions", AERE-M3134 (1980).
- 4) Ottmer, H., and Eberle, H.: "The Hybrid K-Edge/K-XRF Densitometer: Principles-Design-Performance", KfK 4590, (1991).
- 5) 林充之, 和地勇, 池田久, 他: "再処理工場における保障措置分析技術の開発について", 動燃技法, No.62, pp55-64 (1987).
- 6) 広木俊男, 石黒信治, 狩野元信: "リサイクル機器試験施設分析設備の概要", 動燃技報, No.96, pp44-48 (1995).
- 7) Stewart, J.E., Walton, R.B., Phillips, J.R., Hsue, S.T., Eccleston, G.W., Menlove, H.O., Davidson, J.M., and Stanbro, W.D.: "Measurement and Accounting for Minor Actinides Produced in Nuclear Power Reactors", LA-13054-MS, (1996).
- 8) Storm, E., and Israel, H.: "Nuclear Data Tables", 7(1970).
- 9) Browne, E., and Firestone, R.B.: "Table of Radioactive Isotopes", A Wiley-Interscience Publication, (1986).
- 10) 宮内正勝, 岡本久人, 深谷洋行, 坂爪克則, 齋田暁, 中尾智春, 久保田正敏, 新妻泰, 園部保, 岡崎修二: JAERI-Tech 96-007, "NUCEF 分析設備" (1996).
- 11) Davies, W., and Gray, W.: "A Rapid and Specific Titrimetric Method for the Precise Determination of Uranium Using Iron(II) Sulfate as Reductant", Talanta, 11, pp1203-1211(1964).
- 12) Eberle, A.R., Lerner, M.W., Goldbeck, C.G., and Roddenn, C.J.: "Titrimetric Determination of Uranium in Product, Fuel and Scrap Materials after Ferrous Ion Reduction in Phosphoric Acid. Part I. Manual Titration. Part II. Automatic Titration", NBL-252(1970).
- 13) 加藤義春, 山本忠史, 武藤博, 木原壮林: 分析化学, 23, p672 (1974).
- 14) International Atomic Energy Agency: "1993 International Target Values for Uncertainty Components in Fissile Isotope and Element Accountancy for the Effective Safeguards of Nuclear Materials", STR-294 Rev.0, (1993).

- 15) 柳澤宏司, 峯尾英章, 星勝哉, 外池幸太郎, 萩原弘之, 竹下功: JAERI-Tech 94-001, "NUCEF 臨界実験施設の計量槽初期校正(1)-測定方法とその結果-" (1994).
- 16) 柳澤宏司: JAERI-Tech 94-005, "NUCEF 臨界実験施設の計量槽初期校正(2)-データ解析" (1994).