

吸光光度法によるNp含有MOX燃料中のNpの定量

(研究報告)

2001年12月

核燃料サイクル開発機構
東海事業所

本資料の全部または一部を複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構
(Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2001

吸光光度法による Np 含有 MOX 燃料中の Np の定量
(研究報告)

影山 十三男 菅谷 伸一 河野 秀作
樋口 英俊* 遠藤 秀男**
木幡 正人*** 野田 吉範***

要 旨

Np 含有 MOX 燃料中の Np 含有量を測定するために、吸光光度法による測定条件について検討した。

試料溶液中の Np の原子価を IV 価に調整した後、727nm の吸収ピークの吸光度を測定することにより、Np 濃度を求めた。本法の検量線は、Np 濃度 0.8mg/ml まで直線性を示した。また、Np 溶液に Pu, U 量を各々 Np の 30 倍量、60 倍量まで添加したが、この範囲では Np 分析値への影響はなかった。

本分析法により、2%Np 含有 MOX 燃料を想定した試料中の Np 含有量を分析したときの相対標準偏差 (RSD) は約 4%であった。

さらに、物性測定試験に用いる Np 含有 MOX 燃料の原料粉中の Np 含有量を測定した。その結果、本法は Np を Pu と U から分離することなく Np 含有量を測定できることを確認した。

本分析法は、物性測定試験用の Np 含有 MOX 燃料中の Np 含有量を分析するための迅速簡便法として十分適用できる。

環境保全研究開発センター 先進リサイクル研究開発部 プルトニウム燃料開発 Gr

* 保安管理部 危機管理整備室

** プルトニウム燃料センター 製造加工部 技術開発室

*** 検査開発株式会社

Determination of Neptunium in Neptunium-Uranium-Plutonium Mixed Oxide
Fuel by Spectrophotometry.

Tomio KAGEYAMA, Shin-ichi SUGAYA, Shusaku KONO
Hidetoshi HIGUCHI* Hideo ENDO**
Masato KOWATA*** Yoshinori NODA***

Abstract

The measurement condition by spectrophotometry was evaluated to measure Np content in MOX fuel containing Np.

The Np concentration was obtained by measuring the 727nm absorption peak, after the valence of Np in the sample solution was adjusted to the Np(IV). The calibration curve showed the linearity up to Np concentration 0.8mg/ml. Though Pu and U quantity were respectively added to the Np solution to 30 times and 60 times of Np concentration, there was no effect to the Np analysis.

By using this method, relative standard deviation (RSD) of the analyzed values of Np content for 2%Np - MOX fuel was about 4%. In addition, It was confirmed that the Np content could be measured without separating Np from Pu and U.

This method can be sufficiently applied as a quick simple method to analyze Np content in MOX fuel containing Np.

Plutonium Fuel Technology Group, Advanced Fuel Recycle Technology Division, Waste Management and Fuel Cycle Research Center

* Emergency Planning Section, Safety Administration Division

** Fuel Technology Engineering Section, Plutonium Fuel Fabrication Division, Plutonium Fuel Center

*** Inspection development Company

目 次

1. 緒言	1
2. 試験	2
2.1 試験の進め方	2
2.2 試薬類	2
2.3 装置	3
3. 結果及び考察	3
3.1 Np 標準溶液の調製試験	3
3.2 Np 吸収スペクトルの確認	5
3.3 Pu 及び U の影響確認	5
3.4 検量線の作成	6
3.5 Np(IV) の経時変化の確認	7
3.6 精度の確認及び実試料への適用	7
4. 結言	8
5. 参考文献	9

1. 緒言

マイナーアクチニド含有燃料開発として Np 含有 MOX 燃料の製造が計画されている。これに先駆けて、照射試験等に対応できるよう許認可取得のため Np 含有 MOX 燃料の物性測定試験を実施している。Np 含有 MOX 燃料中の Np 含有率を精度良く測定することは品質管理上重要である。そのため物性測定試験用 Np 含有 MOX 燃料中の Np の定量分析法を早急に確立することが求められており、簡便・迅速に Np を分析する手段として比較的短期間で開発出来る可能性のあった吸光光度法による Np 分析法を検討した。

試料中の Np を簡便に分析する手法としては、 α 線または γ 線を利用した放射能分析法が広く用いられている。放射能分析法は、試料の前処理を必要とせず、低濃度の分析が短時間に終了するといった利点があり、再処理センター¹⁾ や大洗工学センター^{2), 3)} における照射済み燃料中の Np 分析においては、この放射能分析が採用されている。しかし、放射能分析法は、試料の幾何形状や測定条件によりばらつきが生じやすいため 10%を超える測定誤差を生じる可能性がある。

一方で、吸光光度法は、試料溶液中の目的元素の吸光度を測定し、検量線と比較することにより、溶液中に存在する目的元素濃度を数%の精度で分析する方法である。

吸光光度法には大きく分けて、発色試薬と錯形成させた後に吸光度を測定する方法と、試料溶液の原子価調整を行った後に直接吸光度を測定する方法がある。前者は目的元素が試料中に微量に含まれる場合に用いられ、環境試料や廃水中の Np 分析法として幾つかの報告がなされている⁴⁾。後者は目的元素が比較的多量に含まれる場合に用いられ、Np 単体における吸光スペクトルの測定が文献⁵⁾に報告されている。しかし、Np 含有 MOX 燃料のように、多量の Pu 及び U が共存する試料中の Np 分析に吸光光度法が適用された例は少ない。そこで、Np 含有 MOX 燃料中の吸光光度法による Np 分析法の最適分析条件を設定するために試験を実施した。

Np は酸溶液中で、+III～+VIの原子価数をとるが、それぞれに特有の吸収波長を持っている。本試験は、吸光度測定波長の選定 (Np の原子価数の検討)、検量線法の適用できる濃度範囲の確認、試料中に共存する Pu 及び U の影響確認、実試料への適用の検討を行った。

Np 分析法の検討には Np 標準溶液が必要となるが、現在市販されている Np 標準溶液は放射能分析用に調製された低濃度のものであり、mg/ml オーダーの濃度を必要とする吸光光度法に使用出来ない。このため、Np 分析法の検討に先立ち、Np 標準溶液調製試験も実施した。

2. 試験

2.1 試験の進め方

吸光光度法による Np 分析法を確立するため、以下に示す段階ごとに試験を実施した。

ステップ 1) Np 標準溶液調製

Np 含有 MOX から、イオン交換によって Np を分離精製し、本試験にて使用する Np 標準溶液を調製する。Np を効率よく分離する条件を確認する。

ステップ 2) Np の吸収スペクトルの確認

吸光光度法による Np 定量分析に最適な Np の価数（測定波長）を決定する。Np 標準溶液の酸化状態を変え、それぞれの酸化状態における吸収スペクトルを確認する。

ステップ 3) Pu、U の影響の確認

Np 溶液中に Pu、U が存在している場合、Np の吸収スペクトルに対するそれらのスペクトルの影響を確認する。影響のない Np ピークを測定波長と決定して、測定に際して調整する Np の酸化状態を決める。

ステップ 4) 検量線の作成

測定波長にて検量線を作成し、検量線が直線性を維持できる濃度領域を確認する。

ステップ 5) 原子価調整後のスペクトル経時変化の確認

測定する酸化数に Np を原子価調整後、その状態を保てる時間を把握する。

ステップ 6) 実試料への適応及び分析精度の確認

実際の MOX 燃料を模擬した組成の試料を分析し、分析精度を確認する。

2.2 試薬類

MOX 燃料中の Np 分析法の最適条件を設定するために、mg/ml オーダーの濃度の Np 標準溶液が必要であり、放射能分析用に市販されている低濃度の標準溶液は使用出来ない。そのために必要な Np 標準溶液の調製及び Pu、U 標準溶液の調製を以下の方法で行い使用した。

(1) Np 標準溶液

Np 標準溶液は、Pu 転換施設で調製した Np 含有 MOX 粉末を用い、図 2.1 に示す Np 標準溶液調製フロー図に従って Np を精製し、Np(VI) - Np(IV) 電位差滴定法⁶⁾により分析して、3.89mg/ml の Np 標準溶液を調製した。

(2) Pu 標準溶液

プルトニウム同位体組成比が既知である、BNFL 社製 PuO₂ 粉末（平均原子量：239.31）を用い、図 2.2 に示す Pu 標準溶液調製フロー図に従って Pu を精製し、Pu(VI) - Pu(IV) 電位差滴定法⁷⁾により分析して、5.70mg/ml の Pu 標準溶液を調製した。

(3) U 標準溶液

金属ウラン 1g を精秤し、8M 硝酸で溶解し、乾固寸前まで加熱濃縮した後 0.5M 硝酸で全量を 100 ml にし、10.98mg/ml の U 標準溶液を調製した。

(4) その他の試薬

過酸化水素水、フッ化水素酸、硫酸第一鉄、ヒドラジン、硝酸は、JIS 試薬特級を必要に応じて調製し使用した。

水はヤマト科学社製 WG25 型蒸留水製造装置により製造した蒸留 - イオン交換水を使用した。

2.3 装置

Np の吸収スペクトルの測定は、UOP Guided Wave 社製モデル 260 型の光ファイバー式吸光光度計を使用した。グローブボックス内にセルボックスを設置し、光ファイバーによりグローブボックス外に設置した吸光光度計本体と接続した (図 2.3 参照)。

また、Np、Pu 標準溶液の値付け及び U の標準溶液濃度確認には平沼社製 COMTITE-980 型自動滴定装置を使用した。電極部及び試薬の滴下ビュレットチップをグローブボックス内に設置し、グローブボックス外に設置した自動滴定装置本体及びビュレット本体とを接続した。グローブボックス内から試薬が逆流することを防止するために、試薬配管の途中には逆止弁を設けた (図 2.4 参照)

3. 結果及び考察

3.1 Np 標準溶液の調製試験

(1) Np のイオン交換分離精製

粉末試料 (Np 量で約 600 mg) を 50 ml ビーカーに採取し、8M 硝酸を加え、数滴のフッ化水素酸を添加して、ホットプレート上で加熱溶解した。試料が完全に溶解した後、乾固寸前まで加熱を継続し、フッ化水素酸を追い出した後、8M 硝酸で再溶解した。その後、Np をイオン交換樹脂に吸着させるため、0.5M ヒドラジン溶液、1M 硫酸第一鉄溶液を添加して、試料溶液中の Pu と Np の原子価をそれぞれ Pu(III)、Np(IV) に原子価調整した。原子価調整した溶液の吸収スペクトルを図 3.1.1 に示す。この吸収スペクトルからは、Np(V) の特徴である 986nm のピーク及び Np(VI) の特徴である 1225nm のピークは確認できなかった。また、Np(IV) の特徴である 727nm 及び 973nm のピークが確認できた。一方、Pu は III 価の特徴である 563nm 及び 602nm のピークが現れている。しかし、Pu(VI) の 988nm のピークは観察できなかった。以上のことから、Np は IV 価に、Pu は III 価に調整されていることが分かった。

樹脂への Np(IV) の吸着効率を高めるため、濃硝酸を添加して溶液中の酸濃度を 6 ~

8M に調整した。この溶液を、NO₃ 型に調整した陰イオン交換樹脂 (Bio-Rad 社製 AG1-X8 100~200mesh) を充填したカラムに流し、試料溶液中の Np(IV) を樹脂に吸着させた。

Np を樹脂に吸着させた後、Pu、U を完全に除去するために硫酸第一鉄とヒドラジンの混合溶液 20CV (CV: カラムボリューム) により洗浄した。このときの溶出液の吸収スペクトルを図 3.1.2 に示す。この吸収スペクトルにおいて、Pu(III) のピーク及び U と思われるピークが観察されたが、Np のピークは観察されなかった。

次に、8M 硝酸 10CV により洗浄を実施したが、このときの洗浄液の吸収スペクトル (図 3.1.3) においても、Np の溶出を示すピークはなかった。このことから、Np(IV) はイオン交換樹脂に完全に吸着され、洗浄によっても流出していないことがわかった。

次に、0.1M 硝酸 15CV で樹脂に吸着した Np(IV) を溶離した。この時、溶離液 1CV ずつ分取し、溶離液の吸収スペクトルを測定して、溶出挙動を観察した。その時のスペクトルと各吸収ピークの挙動を調べた結果を図 3.1.4 に示す。

スペクトルには Np(IV)、Np(V) のピークが見えたが、これは、陰イオン交換樹脂に Np(IV) として吸着し、溶出時に Np(IV) の一部が Np(V) に酸化したものと考えられる。溶出挙動から Np は 2CV 前後のとき最大に溶出することがわかった。また、Pu のピークも僅かに見えていることから、Np 溶離液中に Pu が存在しており、1 回のイオン交換と洗浄では、Np との分離が不完全であることがわかった。Np 標準溶液を調製するために、Np と Pu は完全に分離する必要がある。1 回目のイオン交換分離だけでは、Np を完全に分離することはできなかったことから、1 回目のイオン交換分離で得られた Np 溶液を再度原子価調整して 2 回目のイオン交換を実施した。

手順は 1 回目のイオン交換分離と同様に実施した。吸着洗浄後、0.3M 硝酸で Np の溶離を行ったときの吸収スペクトルを図 3.1.5 に示す。なお、2 回目のイオン交換における溶離液中の Np は、ほとんど Np(IV) であった。Np(V) の存在は微量であり、1 回目のイオン交換の際と異なった挙動を示した。これは、2 回目のイオン交換では共存する Pu の量が微量だったため、原子価調整に用いた還元剤が十分に存在し Np を IV 価に保持していたためと考えられる。

また、この吸収スペクトルから Pu のピークは検出されなかった。以上のことから、2 回のイオン交換を行うことによって Pu はよく分離され、Np 標準溶液として使用できることを確認した。

(2) Np 標準溶液の値付け

Np 標準溶液中の Np 濃度を確定するために、吸光度法⁵⁾ 及び電位差滴定法⁶⁾ による測定を行った。Np の電位差滴定分析法による定量に関しては、Godbole and Patil⁶⁾ は、過酸化銀 (AgO) で試料溶液中の Np を VI 価に酸化し、Np(VI) を過剰な Fe(II) で Np(IV) に還元し、過剰な Fe(II) 量を Ce(IV) で逆滴定することにより、硫酸溶液中の Np 濃度を 0.5% の精度で求めている。また、Kasar ら⁸⁾ は、Ce(IV) で試料溶液中の Np を VI 価に酸化し、Fe(II) 溶液で Np(IV) に還元した時の Fe(II) 溶液の消費量から Np 濃度を求めている。

一方、MOX 燃料中の Pu の電位差滴定分析法⁷⁾は、硝酸銀及び過硫酸アンモニウムを添加して過酸化銀(AgO)を生成させ試料溶液中の Pu を(VI)に酸化し、Pu(VI)を過剰な Fe(II)で Pu(IV)に還元し、過剰な Fe(II)を Ce(IV)で逆滴定する。

つまり、Np の電位差滴定分析法は Pu 分析法と同じ原理であるため、Np 溶液に Pu が共存すると Pu の影響を受けてしまうことが分かる。そこで、あらかじめ Np 溶液中に Pu が共存していないことを、吸光光度法による Pu 分析により確認するために、溶液中の Pu を(VI)に酸化して直接吸光光度法により求めた。この結果、Np 溶液中の Pu 濃度は検出限界(0.05mg/ml)未満であり、標準溶液として使用出来ることを確認した。Np 量の値付けは、前述した Godbole and Patil 法に従って実施した。その結果、Np 標準溶液中の Np 濃度は 3.89mg/ml であった。なお、Np 分離操作(2回のイオン交換)における Np の回収率は約 28%であった。

3.2 Np 吸収スペクトルの確認

Np の吸光光度法による分析条件を設定するにあたり、硝酸中で安定な Np(IV)、(V)いずれのピークで測定するかを検討を行うために、それぞれ原子価を調整し、吸収ピークを確認した。

(1) Np(V) の検討

Np(V) は標準溶液から 0.5ml 分取し、Ce(IV)溶液及びヒドラジン溶液をもちいて原子価調整した(測定試料容量:20ml)。この溶液の吸収スペクトルを図 3.2.1 に示す。また、Np(V)の吸収スペクトルの文献データ⁵⁾を図 3.2.2 に示す。これらの結果より、原子価調整剤の添加によって試料溶液中の Np の原子価は、完全に V 価に調整されていることがわかった。

(2) Np(IV) の検討

Np(IV) は標準溶液から 0.5ml 分取し、ヒドラジン溶液、硫酸第一鉄溶液を用いて原子価調整した(測定試料容量:20ml)。この溶液の吸収スペクトルを図 3.2.3 に示す。また、Np(IV)の吸収スペクトルの文献データ⁵⁾を図 3.2.4 に示す。これらの結果より、原子価調整剤の添加によって試料溶液中の Np の原子価は完全に IV 価に調整されていることがわかった。(1)及び(2)の結果から、Np が単体で存在している場合は、IV 価、V 価いずれのピークも安定しており、定量分析のための吸光度測定波長に設定できることがわかった。

3.3 Pu 及び U の影響確認

Np 分析への吸光光度法の適用にあたり、溶液中に Pu 及び U が存在する場合、隣接するそれらの吸収ピークによる妨害が予想されたため、Np 標準溶液に Pu 標準溶液及び U 標準溶液を添加してその影響を確認した。

試験は、5%Np 含有 MOX 燃料を想定し、Np : Pu : U = 5 : 30 : 65 となるように Pu 及び U

を添加し、Np をIV価及びV価に調整したときの吸収スペクトルにおよぼすPu及びUのピークの影響を評価した。

(1) Np (IV) の吸収ピークに与えるPu及びUの影響

試料溶液中のNpをIV価に調整したとき、PuはIII価に、UはVI価に調整される。このとき、Np(IV)の特徴である727nmのピークはPu(III)とU(VI)の影響は受けないが、973nmのピークは低くなった。結果を図3.3.1に示す。

(2) Np (V) の吸収ピークに与えるPu及びUの影響

試料溶液中のNpをV価に調整したとき、Pu及びUはVI価に調整される。このとき、Np(V)の特徴である986nmのピークは、Pu(VI)の988nmのピークと重なるため直接影響を受けてしまうことを確認した。結果を図3.3.2に示す。(1)及び(2)の結果から、Npの吸光光度法による分析は、Np(IV)の727nmのピークを用いて分析することとした。

(3) Npに対するPu及びUの量的な影響

Np量に対してPu、Uが多量に共存する場合の妨害の影響を確認した。結果を図3.3.3に示す。

Npに対してPuが3倍から31.6倍量、Uが5.6倍から63.2倍量まで添加したときのNp分析値への影響を評価したところ、これらの範囲においてはNpの分析値に影響を及ぼさないことがわかった。なお、Npに対してPuが31.6倍量、Uが63.2倍量は1%Np含有MOX粉に相当する。

このことから、本法はMOX粉中のNpの定量に適用できると考えられる。

3.4 検量線の作成

3.3の結果から、Npの吸光光度法による分析は、IV価の727nmのピークを用いて分析することとし、Np濃度が0~1.6mg/mlの範囲で、Np(IV)について検量線を作成した。

検量線を図3.4.1に示す。図3.4.1からわかるように、Np(IV)濃度が0mg/ml~0.8mg/mlの範囲で良い直線性を示した。

また、検量線で直線性を示す範囲のモル吸光係数を算出した。その結果、最大吸収波長727nmのピークのモル吸光係数は73.2(L mol⁻¹cm⁻¹)であり、文献値⁵⁾(Uが共存する硝酸酸性下で58(L mol⁻¹cm⁻¹; 699nm))と同様の値を示した。

これらの結果から、Np(IV)の分析には0mg/ml~0.8mg/mlの濃度範囲で検量線法で行うこととした。

参考のため、Np(IV)最大吸収波長973nmのピークで測定した検量線も図3.4.1に示す。727nmのピークと同様に0mg/ml~0.8mg/mlの範囲で良い直線性を示した。また、モル吸

光係数は $60.2(\text{L mol}^{-1}\text{cm}^{-1})$ であり、文献値⁵⁾ (U が共存する硝酸酸性下で $62(\text{L mol}^{-1}\text{cm}^{-1} : 978\text{nm})$) とよく一致した。

更に、Np を V 価に調整して測定した検量線を図 3.4.2 に示す。Np (IV) と同様に Np 濃度は $0\text{mg/ml} \sim 0.8\text{mg/ml}$ の範囲で直線性を示した。検量線で直線性を示す範囲のモル吸光係数 (最大吸収波長 986nm) を算出したところ、 $347(\text{Lmol}^{-1}\text{cm}^{-1})$ であった。文献値^{5) 9)} では、Np(V) のモル吸光係数は硝酸酸性下で $300 \sim 400(\text{L mol}^{-1}\text{cm}^{-1} : 981\text{nm})$ であり、本試験の結果と良く一致した。

3.5 Np(IV)の経時変化の確認

試料溶液中の Np を IV 価に調整した後、測定迄の時間を変化させて吸光度の経時変化を調べた。結果を図 3.5.1 に示す。原子価調整後 15 分間は安定しないが、15 分から 150 分までの間は安定した吸光度を得ることができた。180 分後から低値を示しはじめたが、これは不均化反応等により原子価が不安定になり IV 価以外 Np が存在するようになったためと考えられる。24 時間経過すると、吸光度はさらに減少し、原子価調整後 30 分のときの吸光度を 1 とする相対強度で約 0.26 を示した。

このことから、吸光光度法による、Np の分析を行う場合は、原子価調整後、15 分から 150 分の間実施することが望ましいといえる。

3.6 精度の確認及び実試料への適用

2%Np 含有 MOX 燃料を想定して、Np 溶液に Pu 及び U を添加して調製した模擬溶液を用いて、本法の繰り返し分析精度を求めた。その結果、試料溶液中の Np 濃度 77.8mg/ml に対し、Np 分析値は $76.7 \pm 2.98\text{mg/ml}$ ($n=15$) であり、ほぼ一致した値となった。このときの相対標準偏差 RSD は 3.8%であった。

これまでの試験結果から、Np 含有 MOX 燃料中の Np の定量分析のフローシートを作成した。フローシートを図 3.6.1 に示す。このフローシートに従って、実試料の分析を行った。実試料は、Pu 転換施設で調製した Np 含有 MOX 粉 (Np 含有率 5%及び 12%) を用いた。(実試料は、Pu 転換施設で Np 溶液中の Np 濃度を γ 線スペクトル法により分析し、既知濃度の Pu 及び U 溶液と混合して粉末に調製したものであり、Np 含有率は理論値である。) 典型的な吸収スペクトルとして、5%Np 含有 MOX 粉を用いた場合の吸収スペクトルを図 3.6.2 に示す。共存する Pu 及び U の原子価はそれぞれ Pu(III) 及び U(VI) に調整されていることが分かる。また、Pu 及び U とともに 727nm の Np(IV) のピークには重ならないことが確認できる。

実試料の分析結果を表 3.6.1 に示す。この結果、本法による Np 含有率の測定結果は γ 線スペクトル法で得た値とほぼ同値を示し、かつ γ 線スペクトル法より高精度に、繰り返し精度 4%で分析できることが確認できた。

4. 結言

本試験を行い、得られた結果を以下に示す。

- (1) Np の定量の最適分析条件は 0.5M ヒドラジン溶液及び 1M 硫酸第一鉄溶液で Np を IV 価に調整し、吸光度測定波長は 727nm であった。
- (2) Np の検量線は Np 濃度 0mg/ml～0.8mg/ml の範囲で直線性を示した。
- (3) 波長 727nm のピークの Np (IV) のモル吸光係数は $73.2 \text{ (L mol}^{-1}\text{cm}^{-1}\text{)}$ であった。
- (4) Np 量に対して Pu 30 倍量、U 60 倍量までは Np の分析値に影響がないことがわかった。
- (5) Np (IV) は原子価調整後 150 分間は安定していることがわかった。
- (6) 本分析法における繰り返し分析精度は 4% であった。

本分析法は、迅速簡便法として有効であるが、Np 含有 MOX 燃料の製造に伴う品質管理のための Np 含有率の分析は、Pu, U 含有率分析と同程度の精度 (0.3%以下) を要求されることが考えられる。

また、代替核物質として保障措置の観点から Np を分析する場合も、0.2%～0.3%の分析精度を要求されることも十分考えられる。そのため、分析精度の向上が期待でき、且つ検量線を必要としない分析法として可能性のある電気化学分析法による Np の定量分析法を検討することが今後の課題となる。

5. 参考文献

- 1) 桑名宏一他：“再処理全工程中のネプツニウム分析法の開発”，PNC ZN8410 89-030.
- 2) 小山真一他：“照射済 MOX 燃料中の MA 分析（2）”，PNC ZN9410 95-353.
- 3) 小山真一：“照射済 MOX 燃料中の Np, Am 分析技術の確立”，サイクル機構技報, No. 3, 45-52(1999)
- 4) D. G. Chuguryan, V. I. Dzyubenko and N. V. Gerbelev: “COMPLEX FORMATION BETWEEN NEPTUNIUM(V) AND VARIOUS THIOSEMICARBAZIDE DERIVATIVES IN AQUEOUS SOLUTION”, Radiokhimiya, 29(3)286-293(1987)
- 5) R. Gauthier, V. Ilmstadter and K. H. Lieser: “SIMULTANEOUS QUANTITATIVE DETERMINATION OF THE VARIOUS OXIDATION STATES OF NEPTUNIUM AT LOW CONCENTRATIONS BY SPECTROPHOTOMETRY”, Radiochimica Acta, 33, 35-39(1983)
- 6) A. G. Godbole and S. K. Patil: “DETERMINATION OF NEPTUNIUM BY REDOX TITRATION”, Talanta, 26, 330-332(1979)
- 7) 中野啓昌他：“ウラン存在時のプルトニウムの電位差滴定”，Japan Analyst, 19, 1293-1296(1970)
- 8) U. M. Kasar, A. R. Joshi, S. K. Patil: “DETERMINATION OF NEPTUNIUM USING CONTROLLED POTENTIAL COULOMETRY”, J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, 150(2), 369-376 (1991)
- 9) P. Cauchetier: “DOSAGE SPECTROPHOTOMETRIQUE DU NEPTUNIUM”, Anal. Chimica. Acta, 124, 443-448(1981)

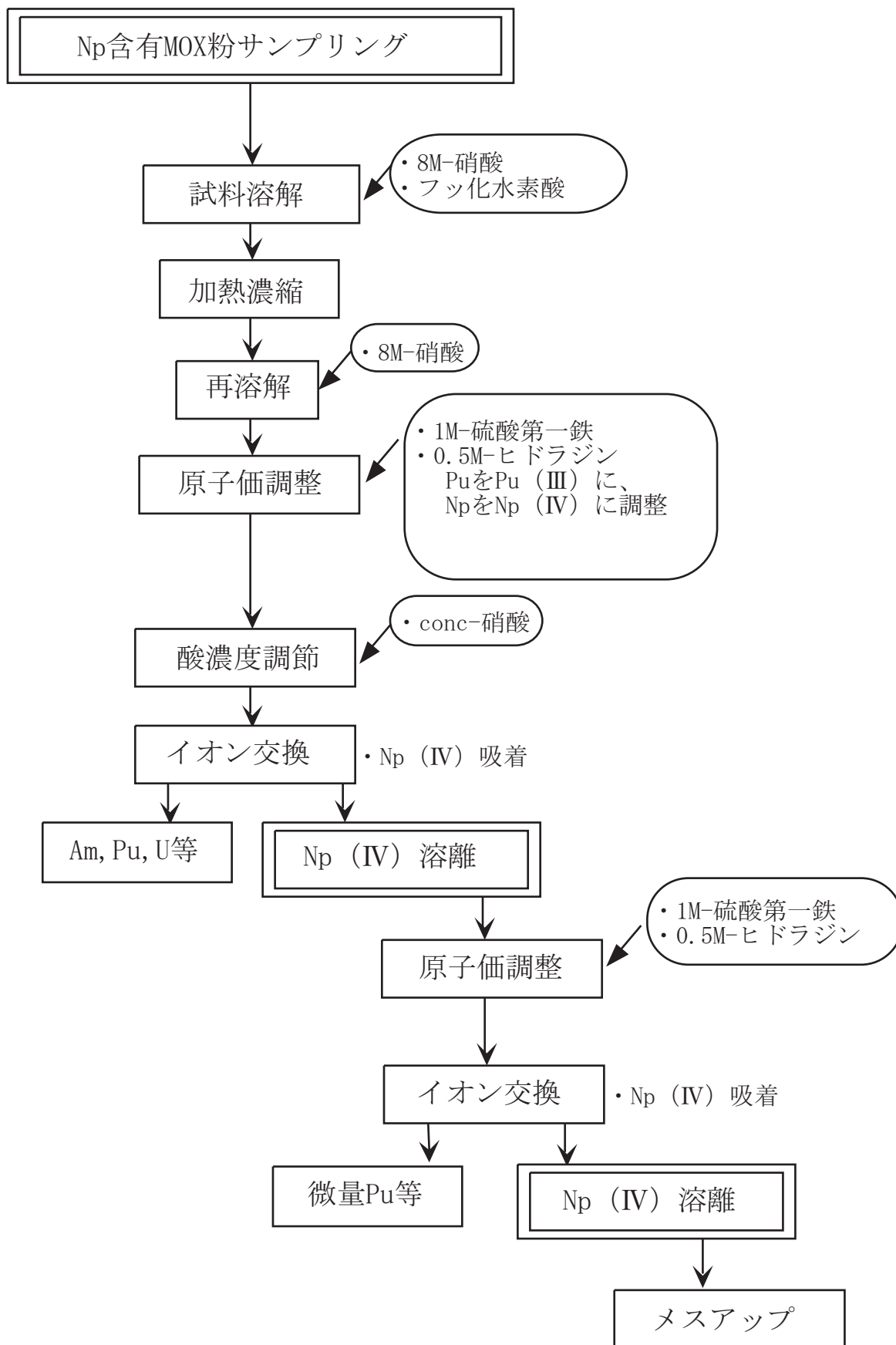


図2.1 Np標準溶液調製フロー図

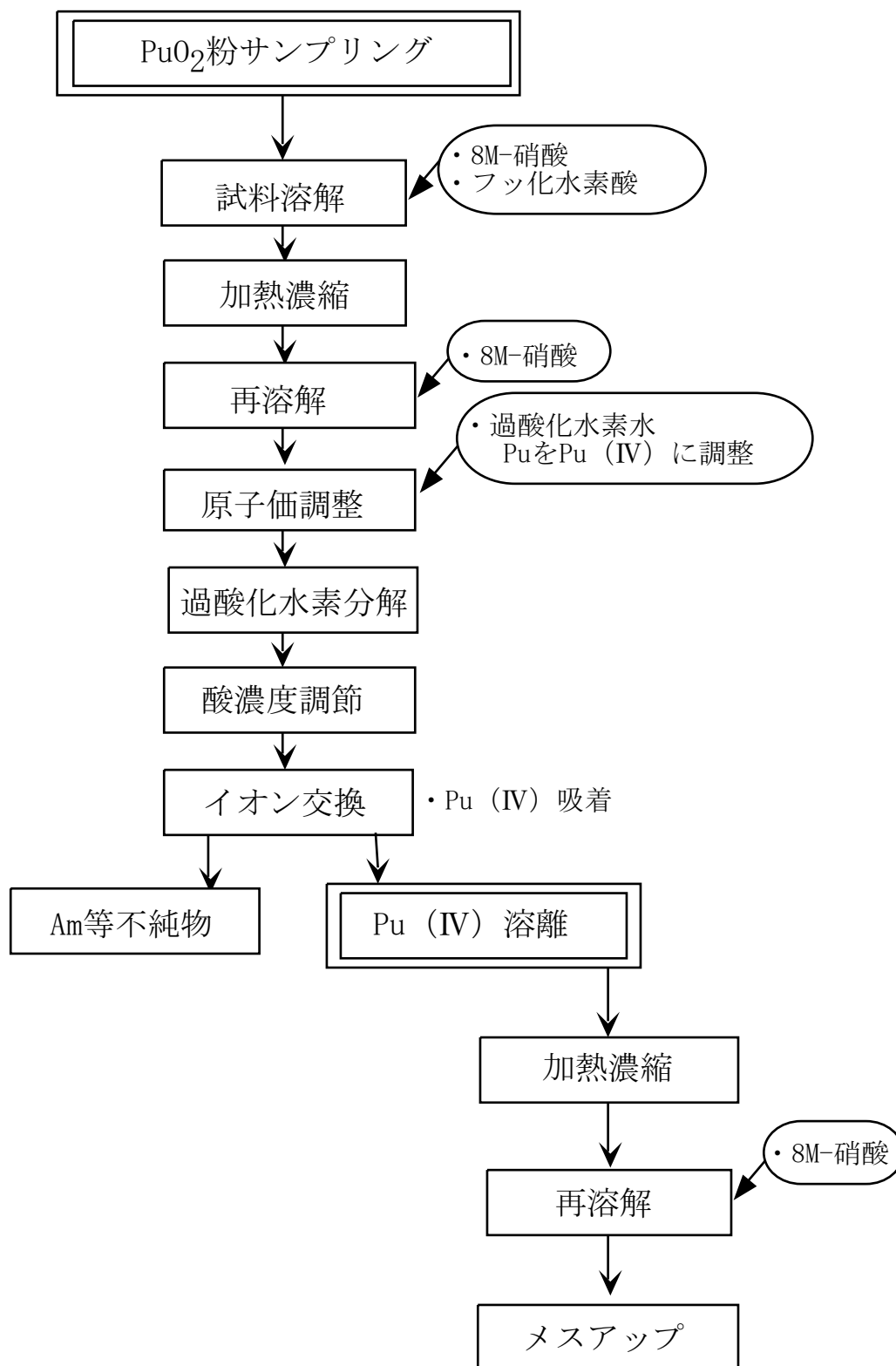


図2.2 Pu標準溶液調製フロー図

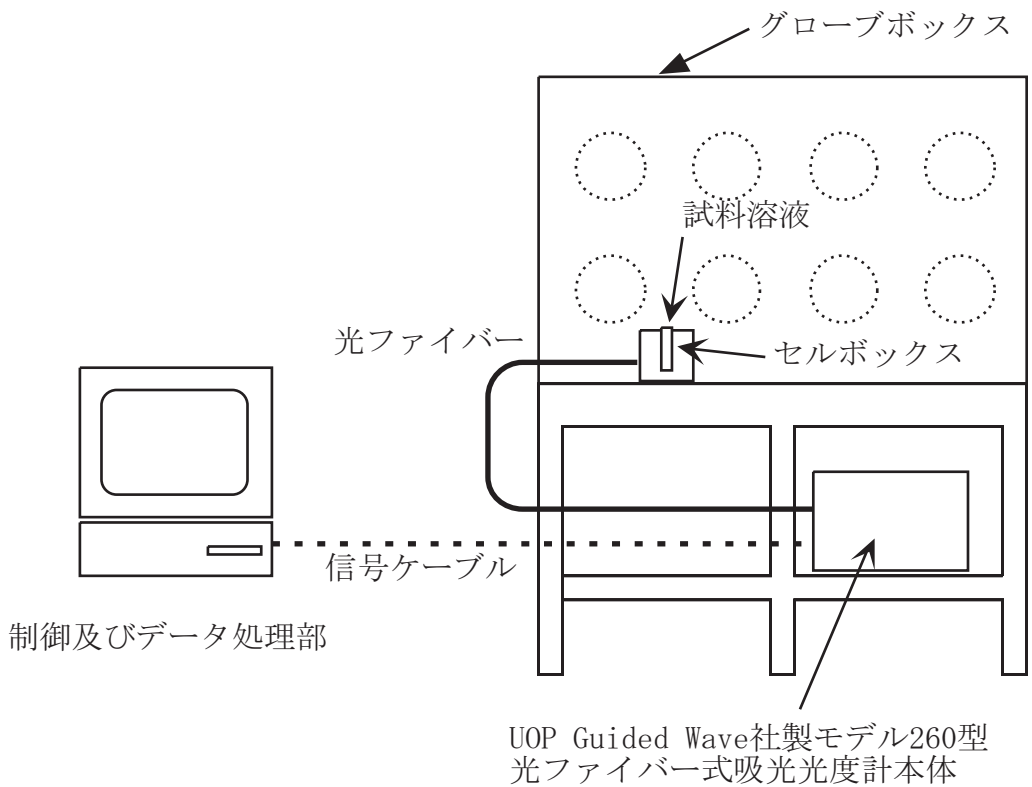


図2.3 吸光光度計

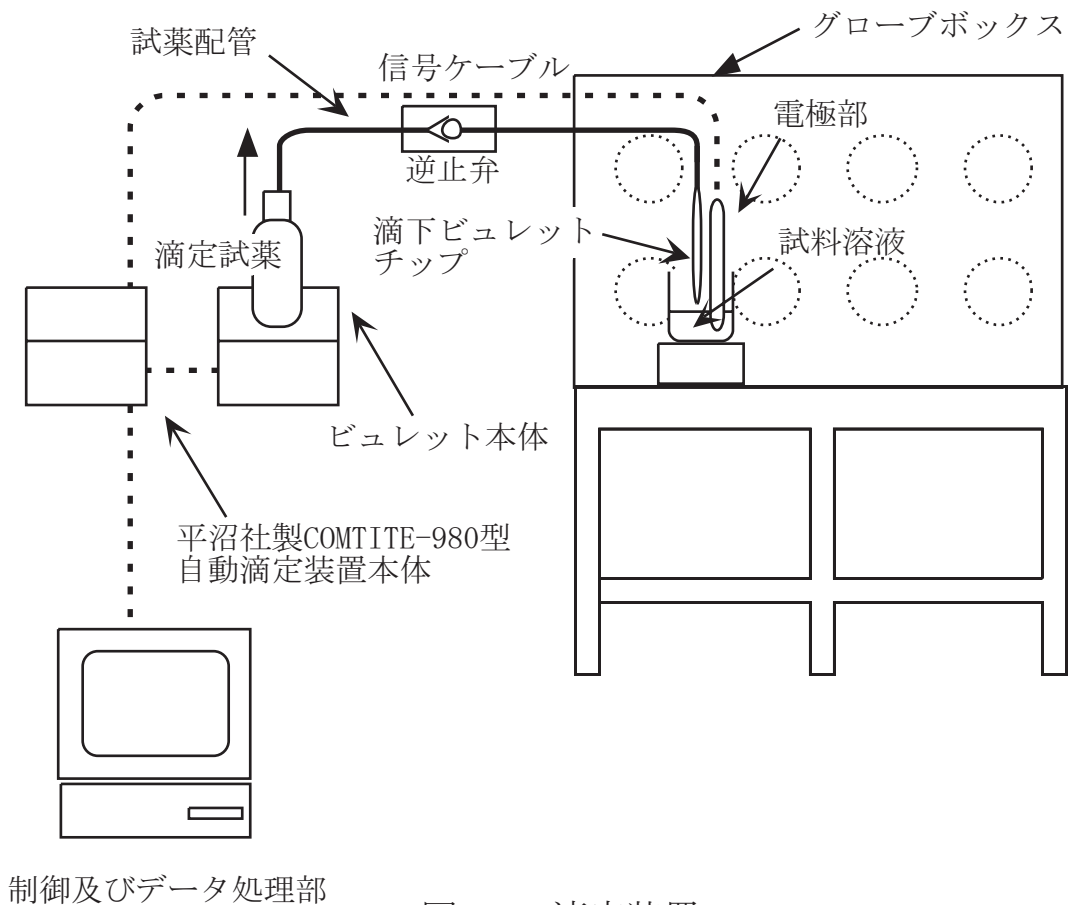


図2.4 滴定装置

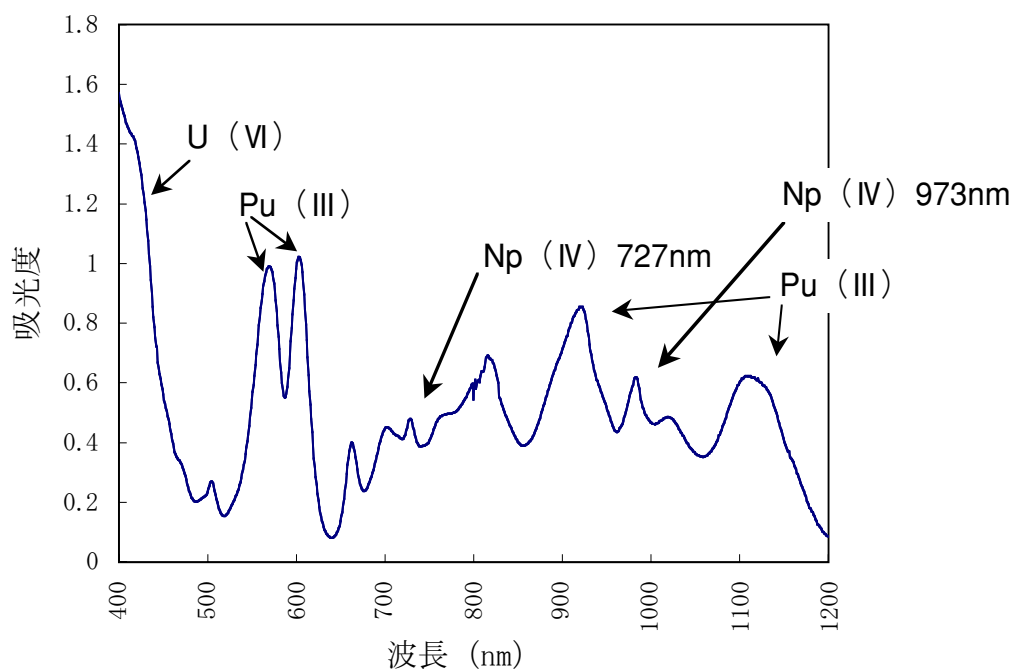


図3. 1. 1 試料溶液（原子価調整後）の吸収スペクトル

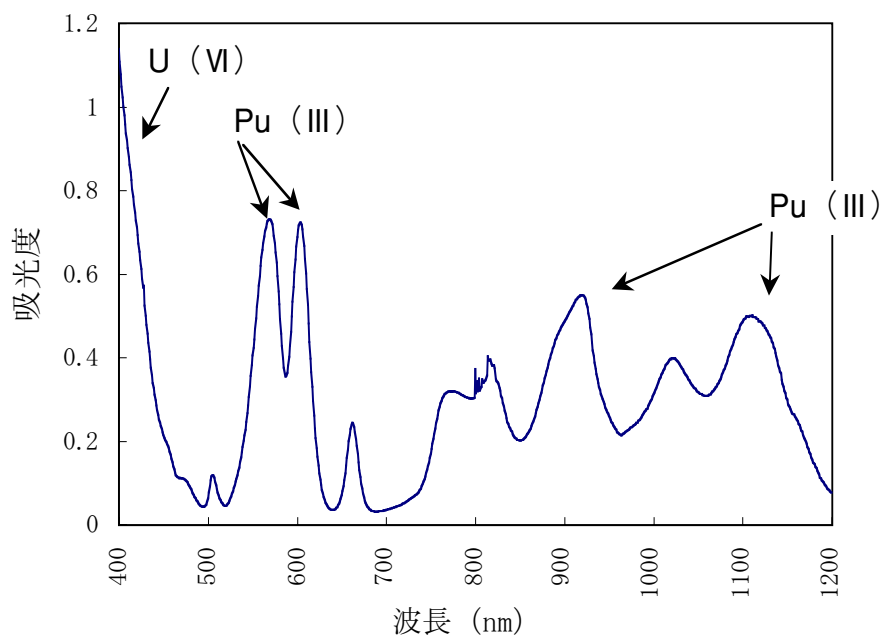


図3. 1. 2 イオン交換溶出液の吸収スペクトル

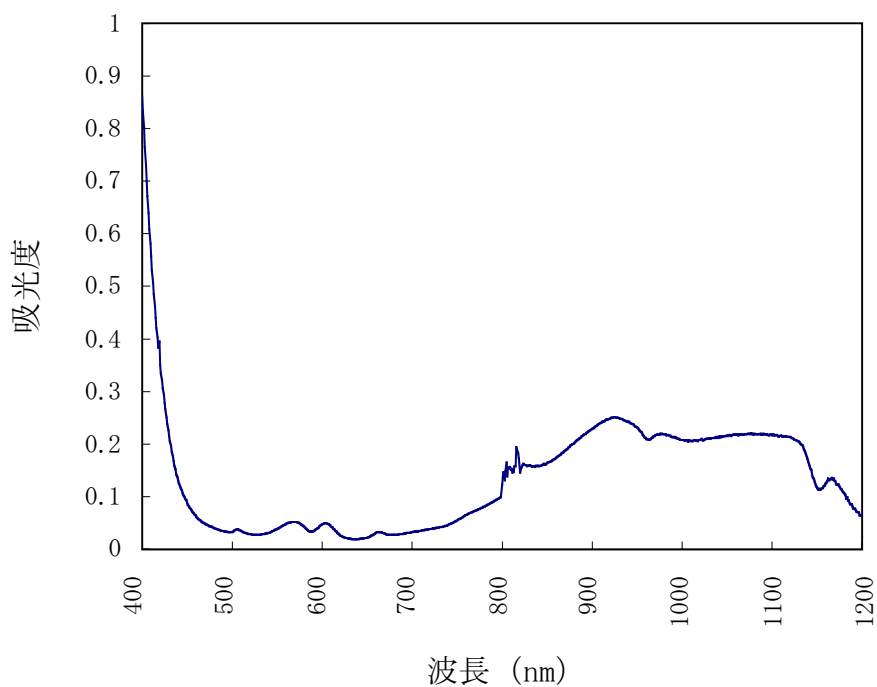


図3.1.3 イオン交換洗浄液の吸収スペクトル

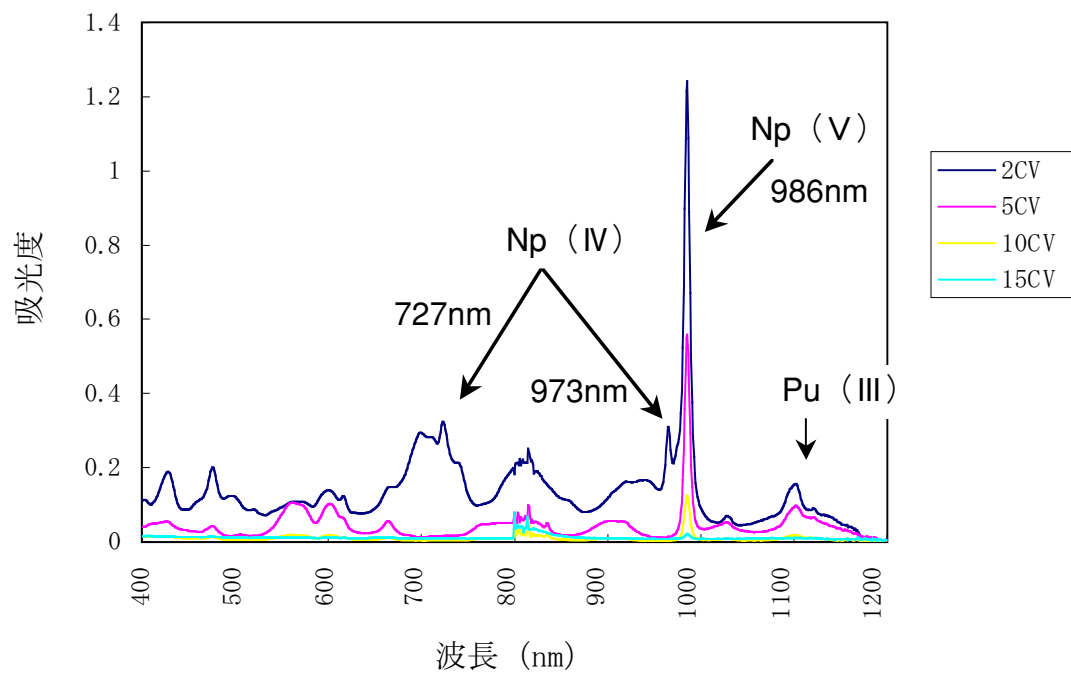


図3.1.4 イオン交換溶離液の吸収スペクトル

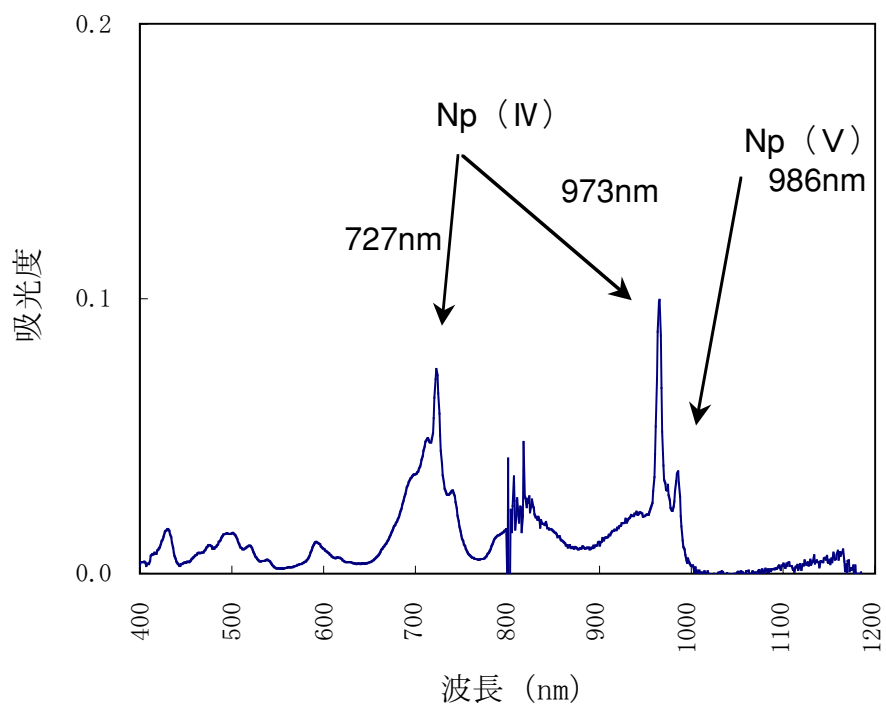


図3.1.5 イオン交換（2回目）溶離液の吸収スペクトル

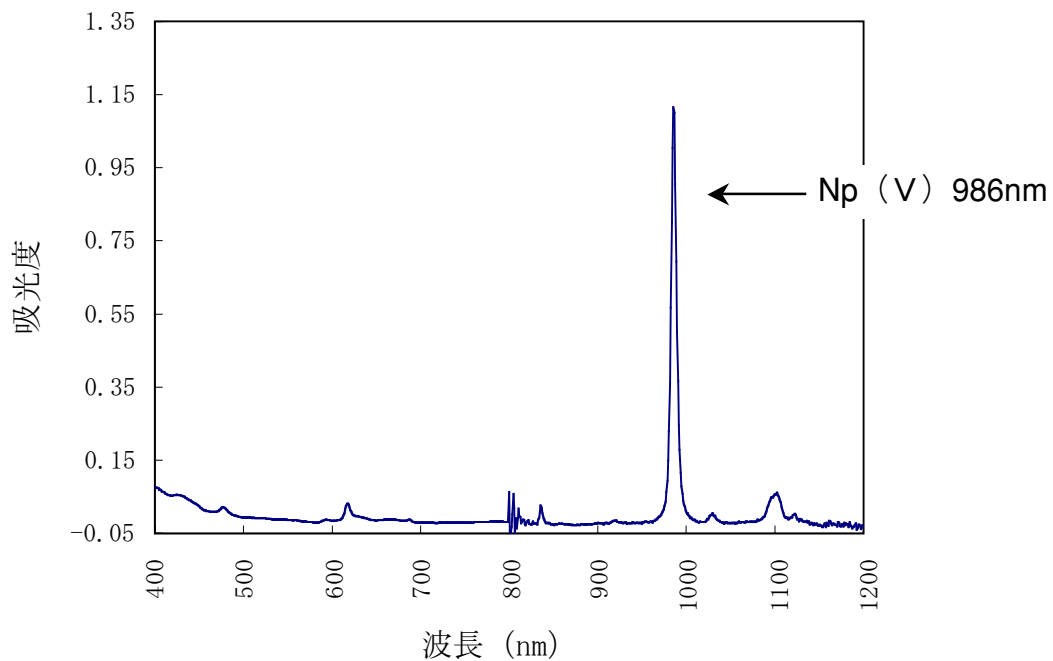


図3.2.1 Np (V) の吸収スペクトル

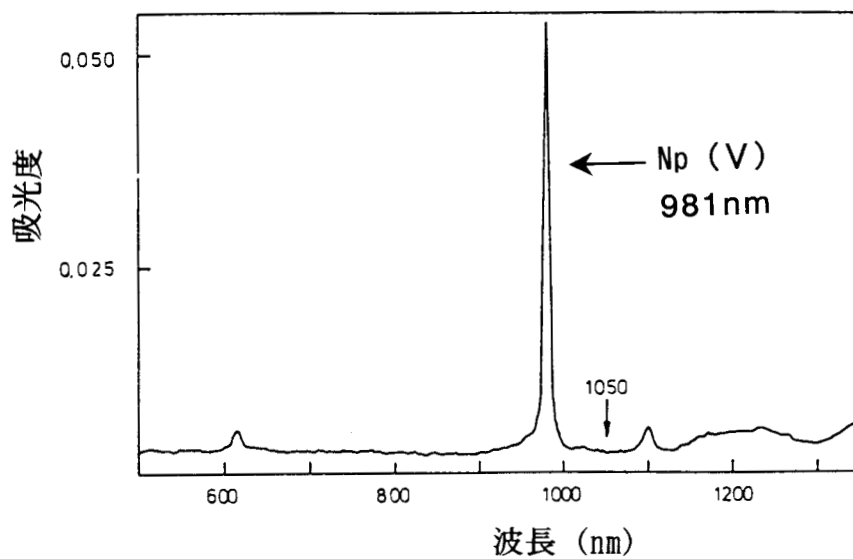


図3.2.2 Np (V) の吸収スペクトル (文献⁵⁾)

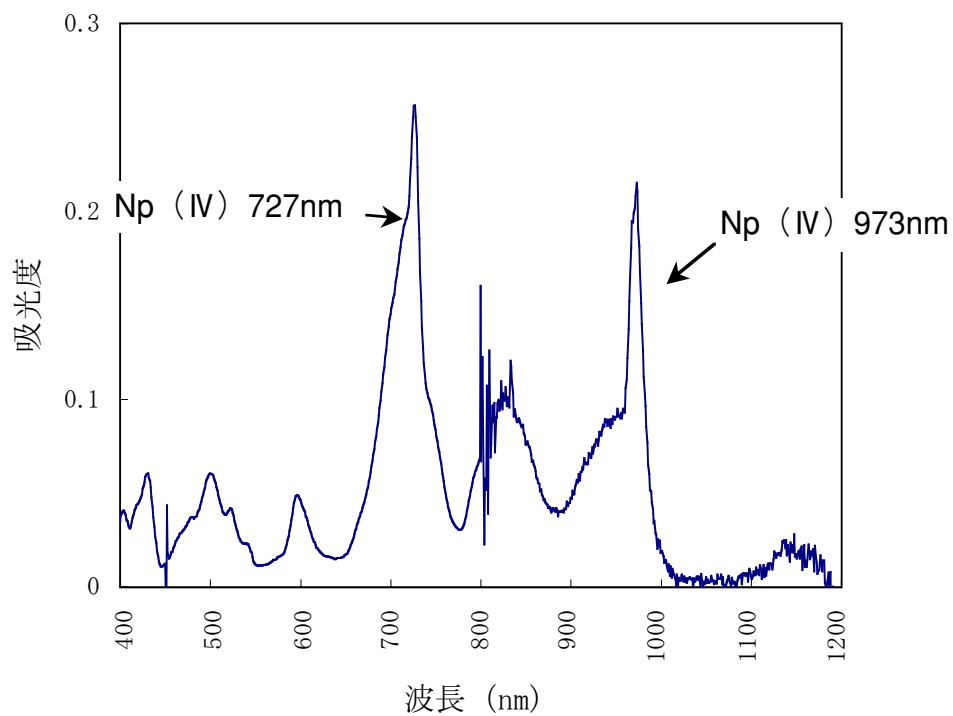


図3.2.3 Np (IV) の吸収スペクトル

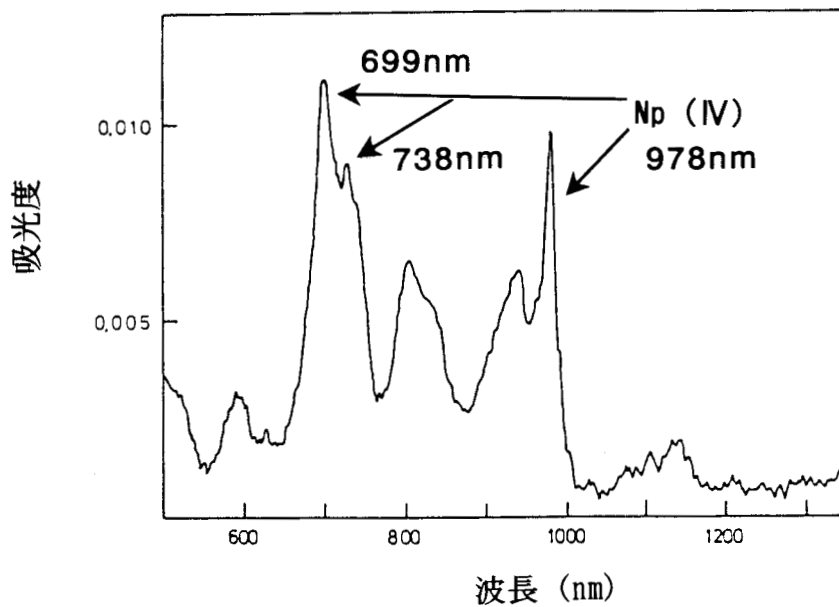


図3.2.4 Np (IV) の吸収スペクトル (文献⁵⁾)

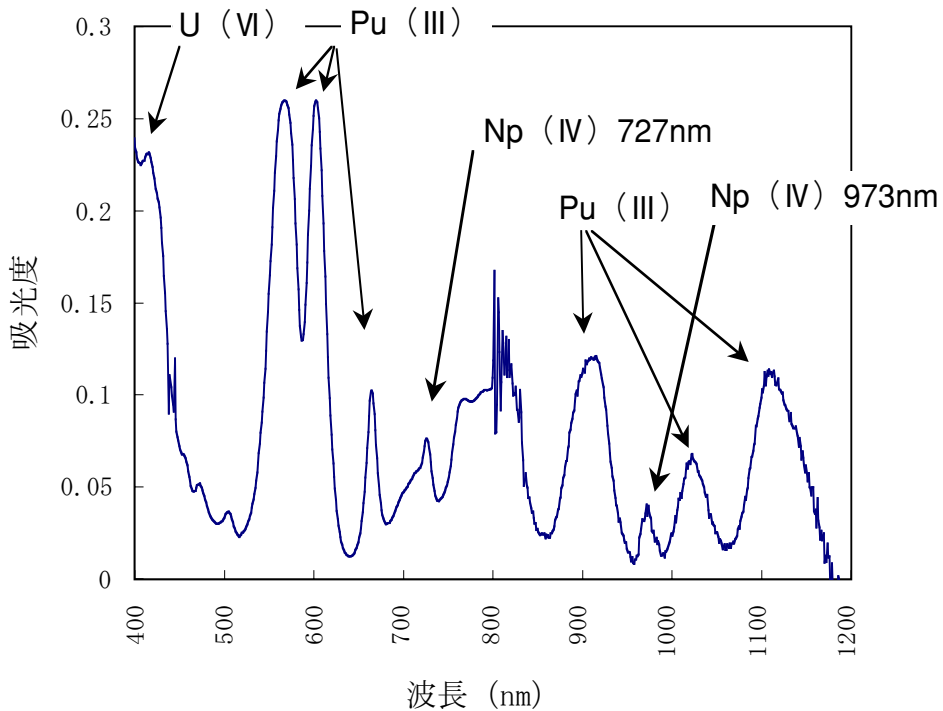


図3.3.1 模擬試料 (Np (IV) に調整) の吸光スペクトル

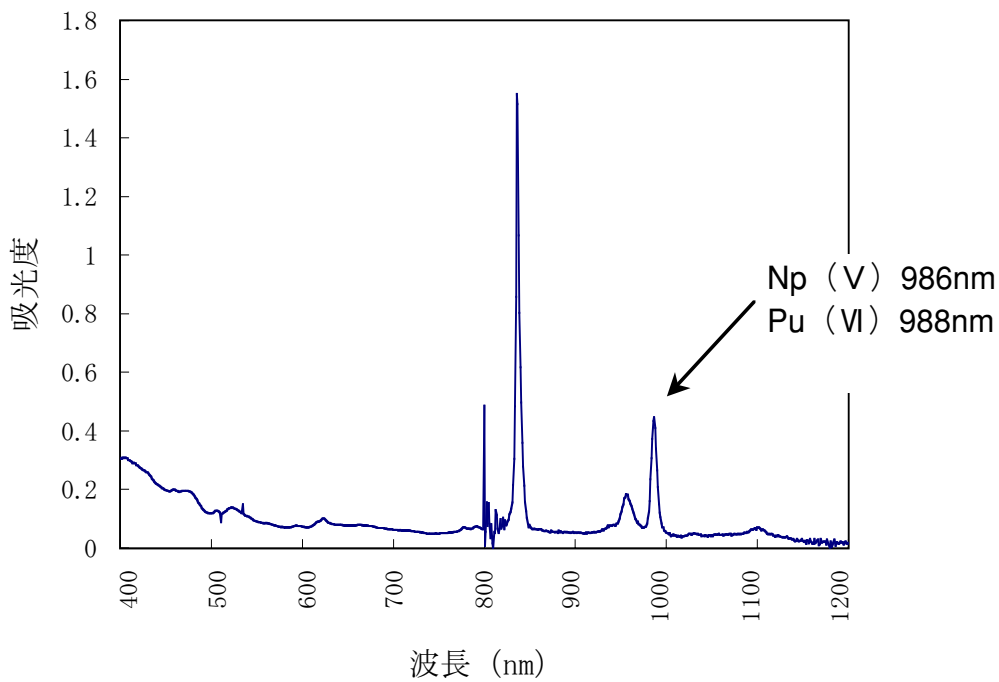
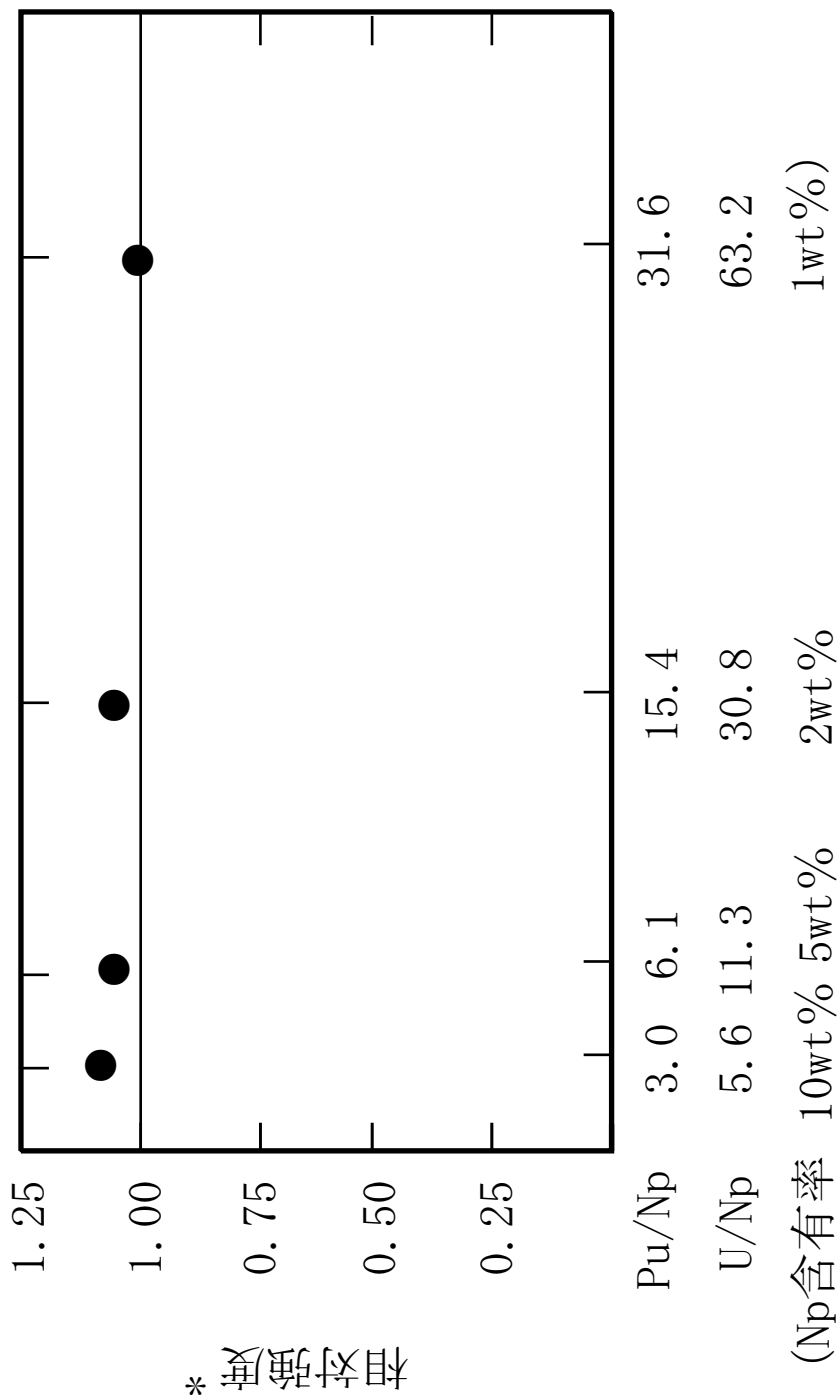


図3.3.2 模擬試料 (Np (V) に調整) の吸光スペクトル



*Np標準溶液の吸光度を1とする

図 3.3.3 Np分析における共存Pu、Uの影響

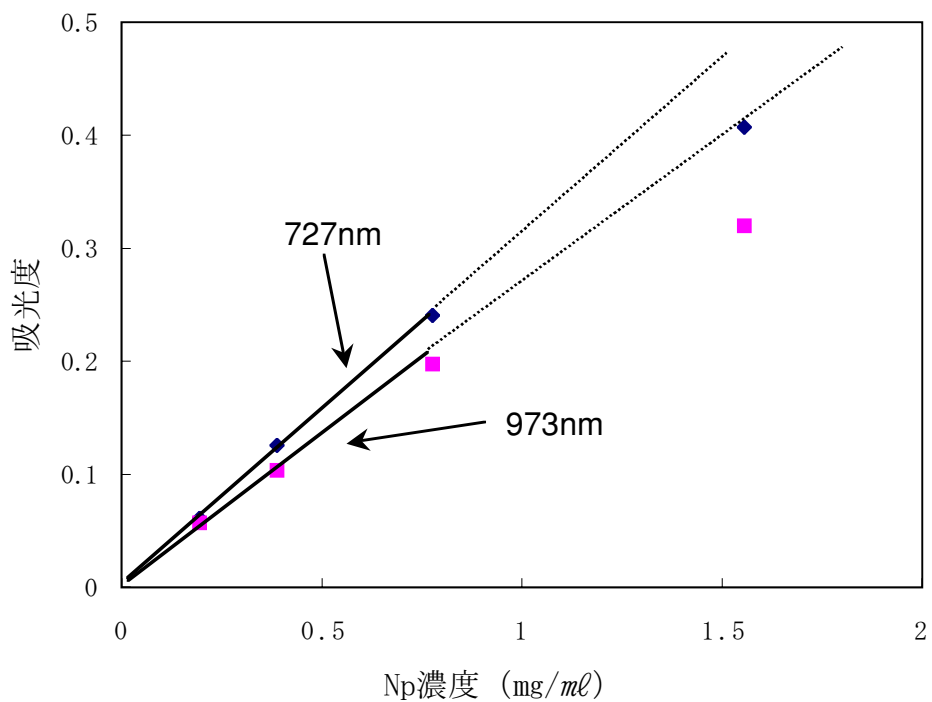


図3.4.1 Np (IV) 検量線

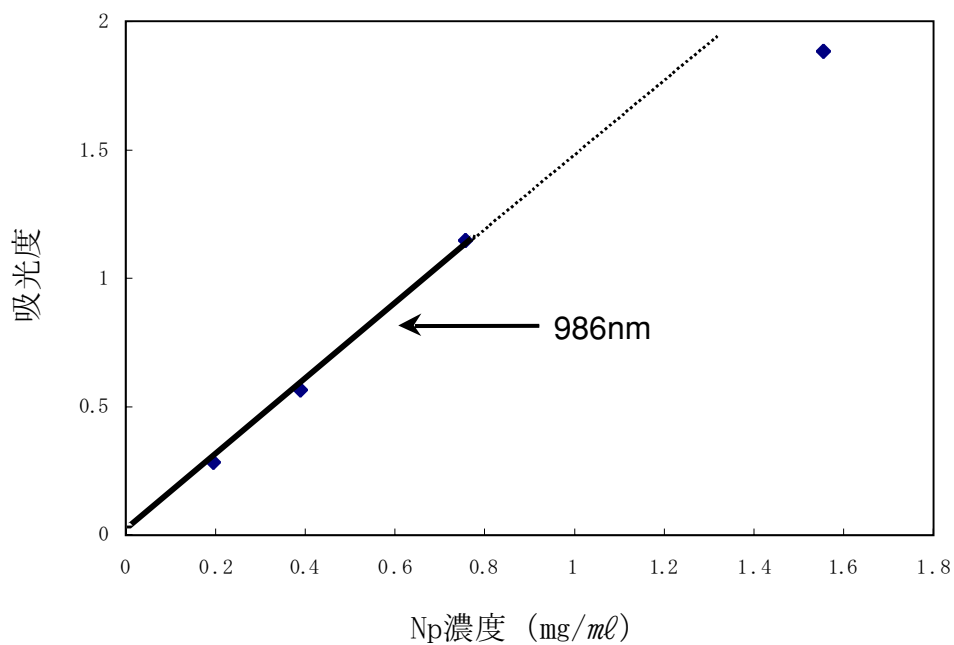
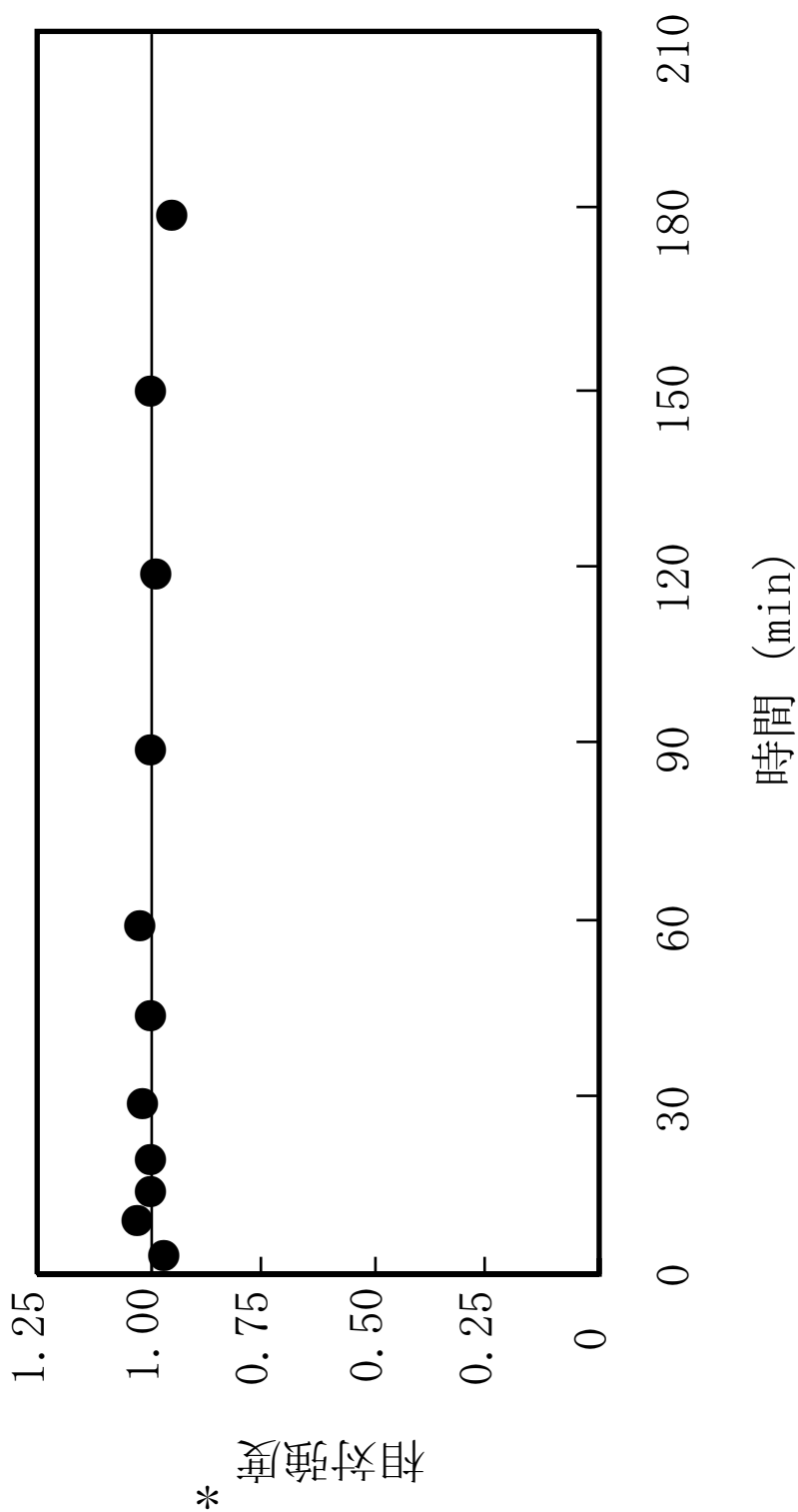


図3.4.2 Np (V) 検量線



* 原子価調整後30minのときの吸光度を1とする

図 3.5.1 Np(IV)の安定性

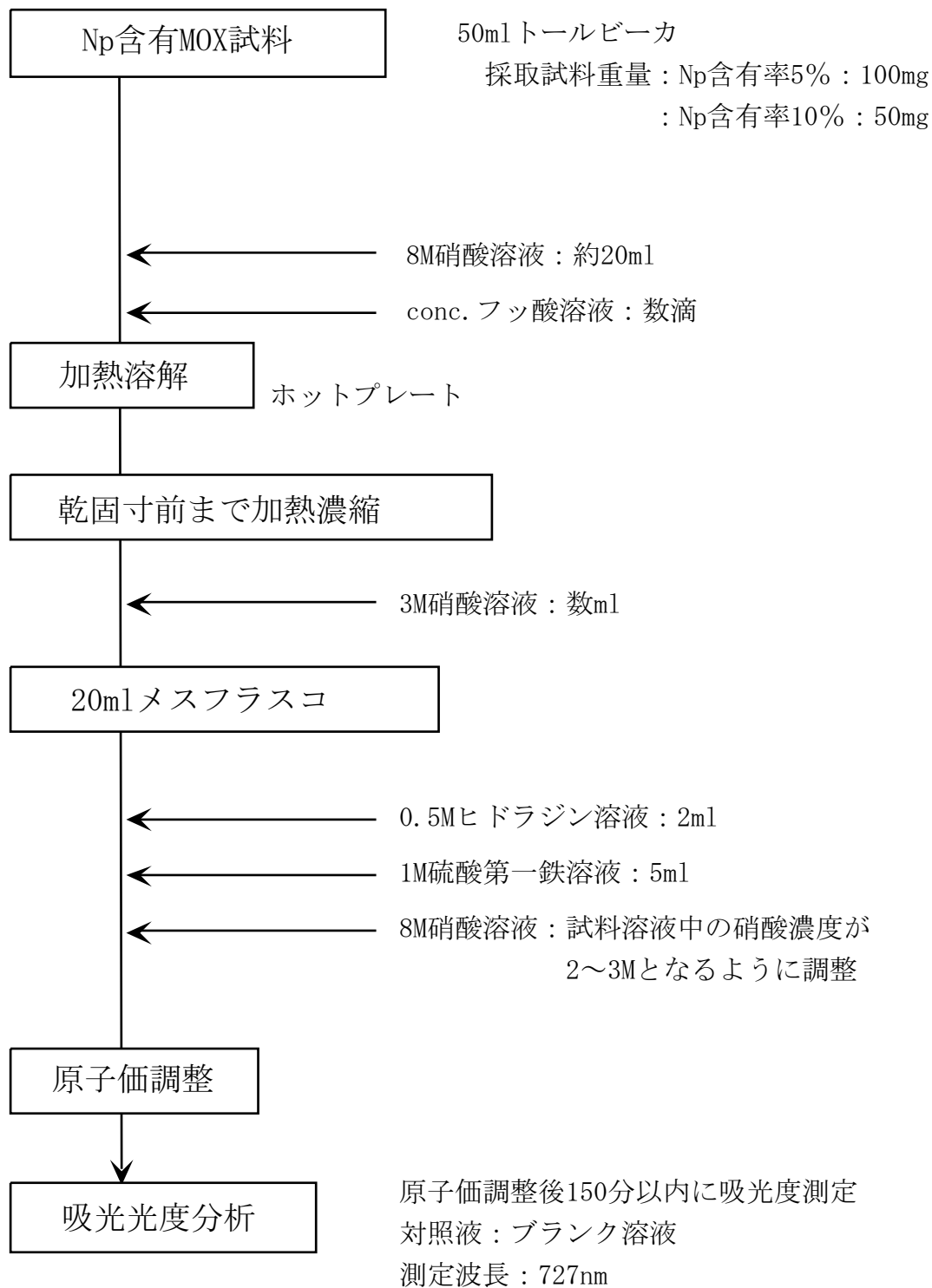


図3.6.1 Np分析のフローシート

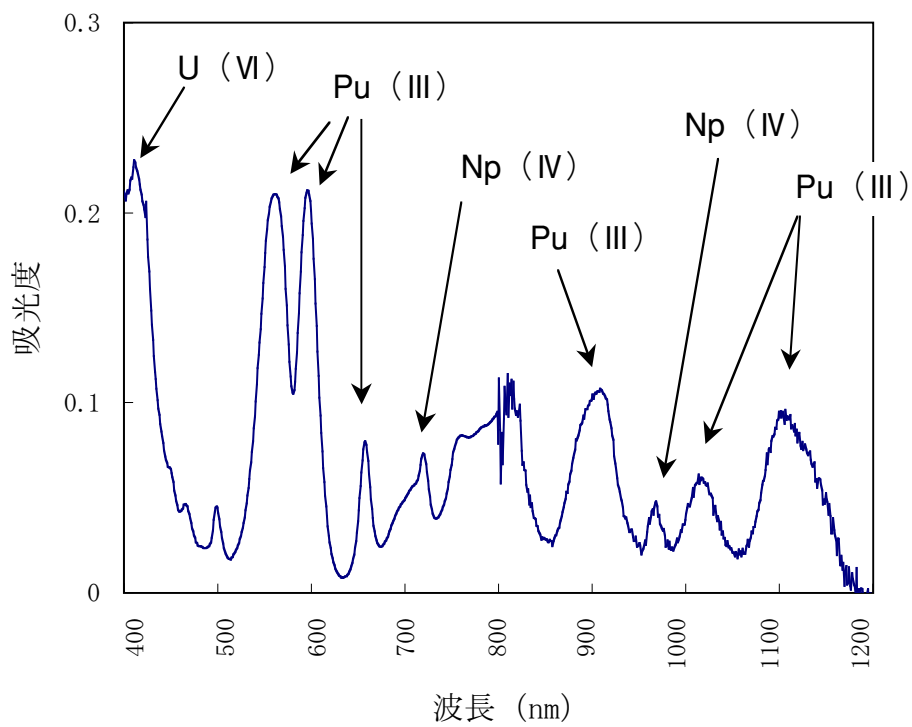


図3.6.2 5wt%Np含有MOX溶液の吸収スペクトル

表3.6.1 実試料分析結果

測定試料	Np含有率理論値*	Np含有率実測値
(Np 0.05 Pu 0.3 U 0.65) O ₂ 粉末	5%	5.63±0.03% (n=6)
(Np 0.12 Pu 0.3 U 0.58) O ₂ 粉末	12%	11.3±0.26% (n=9)

*Pu転換施設において、Np溶液中のNp濃度をγ線スペクトル法により分析し、既知濃度のPu及びU溶液と混合して粉末に調製した理論値である。