

非破壊分析装置の概要

1995年10月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 - 33

動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所

技術開発推進部 技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technology Management Section, Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel
Development Corporation 4-33, Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki,
319-11, Japan)

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development
Corporation)1994

非破壊分析装置の概要

所 要一*1, 寺門 茂*2, 和田 勉*1
大内 隆雄*1, 鈴木 徹*1, 石川進一郎*1
中村 仁宣*3, 川崎 雅史*1, 丸山 創*4

要 旨

従来、プルトニウムの測定は破壊分析（化学分析）により行われていたが、測定の迅速性、簡便さ等により様々な方法の非破壊分析法が開発された。

プルトニウム燃料工場では、測定対象物の大きさ、形状に合わせた専用の非破壊分析装置を開発し、燃料製造工程等に配置し、プルトニウムの測定を実施している。

本書は、プルトニウム燃料工場において使用している非破壊分析装置等についてその概要をとりまとめたものである。

なお、化学分析によるプルトニウムの測定についても参考までに記述した。

-
- *1 プルトニウム燃料工場検査課
 - *2 プルトニウム燃料工場設備課
 - *3 プルトニウム燃料工場転換課
 - *4 プルトニウム燃料工場管理課

目 次

| | |
|-------------------|----|
| HRGS | 1 |
| PSMC | 3 |
| WDAS | 5 |
| GBAS | 7 |
| HBAS | 9 |
| PCAS | 11 |
| FPAS | 13 |
| FAAS | 15 |
| MAGB | 17 |
| 蛍光X線分析 | 19 |
| 電位差滴定法 | 21 |
| 同位体希釈質量分析法 | 23 |
| 電位規制クーロメトリ法 | 24 |

H R G S

日本語名：高分解能ガンマ線スペクトル分析計

英語名：High Resolution Gamma-ray Spectrometer

略語：HRGS

1. 概 要

本システムは、プルトニウムの同位体組成比 (Pu-238, 239, 240, 241, 242等) を非破壊で測定するための装置であり、パッシブ中性子同時計数法 (P SMC, W D A S等) によるプルトニウムの定量を行う際に必要となる、プルトニウム同位体組成比を提供する。

一般に、同位体組成比の分析には、極めて精度の高い質量分析法 (破壊分析) が用いられている。しかし、試料の溶解、イオン交換等の前処理に日数を要することから、査察現場では即応性に優れた本装置が用いられている。

2. 測定原理・構成

本システムは、高分解能ゲルマニウム検出器、高精度波高分析計、データ処理装置及びプリンターで構成されており、その全体構成を写真-1に示す。また、本システムの特徴は以下のとおりである。

- (1) プルトニウム試料においてはエネルギーの異なったガンマ線が数多く放出されている。これらのガンマ線をエネルギー毎に弁別するため弁別性に最も優れた高分解能のゲルマニウム検出器を用いている。
- (2) 高精度波高分析計は、検出器へ高電圧を長時間安定して供給する電圧調整部、検出部からのアナログ信号を4096チャンネルのデジタル信号に変換するA/Dコンバータ部及び4096チャンネルのスペクトルデータをデータ処理装置へ転送するインターフェース部で構成されている。
- (3) データ処理装置は、波高分析計から転送された複雑なスペクトルデータを高速度処理し、プルトニウムから放出されたガンマ線と、それ以外から放出されたガンマ線とを判定・識別する。さらに、識別されたプルトニウムからのガンマ線から、どのエネルギーにどの程度の強度のガンマ線が放出されているか判定し、判定された各エネルギーのガンマ線強度の相対比からプルトニウムの同位体組成比を算出する。

これらのデータ処理には米国ローレンスリバモア研究所において開発されたPuガンマ線スペクトル解析コード「MGA」が使用されている。このコードは、試料の種類やサイズに限定されないこと、測定時間が短く精度が高いこと、各スペクトルの相対比から同位体比が求められること等の特徴があり、また、多くの使用実績がある。図-1にMGAで使われているガンマ線のグルーピングを示す。

3. 測定性能

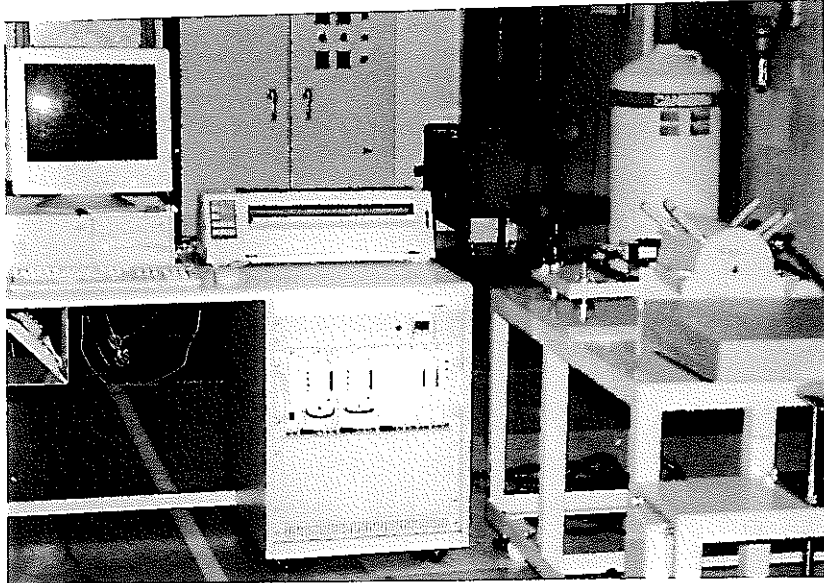
測定対象物： 廃棄物用ドラム缶、スクラップ等

測定元素： ^{238}Pu ~ ^{241}Pu , ^{241}Am , ^{237}Np 等

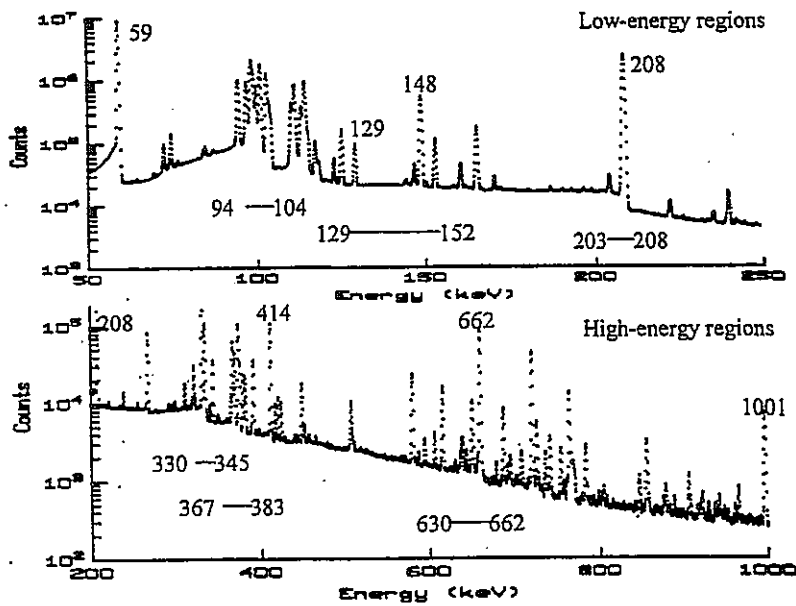
測定時間： 20~30分/試料

4. その他

通常、溶液、粉末、ペレット等の小型の試料は、グローブボックス内床面の案内管に挿入し、案内管の外側に設置したGe検出器で測定する。また、廃棄物ドラム缶の測定は、Ge検出器の前方にドラム缶を配置し、ドラム缶を回転しながら測定する。



写真一1 HRGSシステム



図一1 MGAで使われているガンマ線のグルーピング

P S M C

日本語名：プルトニウムスクラップ測定装置

英語名：Plutonium Scrap Multiplicity Counter

略語：P S M C

1. 概 要

本システム（写真-1）は、主に不純物を含むスクラップ試料中のプルトニウム量を測定するために米国ロスアラモス国立研究所が開発したものである。

2. 測定原理・構成

測定原理は、試料より放出される中性子を ^3He 比例計数管で計測し、その中性子分布（計数率変動分布）によりプルトニウムの同位体である Pu-238, Pu-240 及び Pu-242 からの自発核分裂量を導き出した後、同位体組成比を使用してプルトニウム量を求める。

放出される中性子には、前記自発核分裂に加え、Pu-239等による誘発核分裂、不純物との (α, n) 反応による中性子が混在しており、いずれも未知数である。このため、本システムでは、測定した中性子分布より、自発核分裂や誘発核分裂による中性子と (α, n) 反応による中性子を分別するとともに同時性の中性子については、核分裂により生じる中性子が 2～3 個であり相互に関連しているという性質とその発生確率を考慮し、正味の自発核分裂量を導き出す。（マルチプリシティ法）

本システムは、検出部、同時計数装置部、データ処理部から構成されている。

検出部（図-1）は、中性子減速材（ポリエチレン）中に中性子検出器（ ^3He 比例計数管 80本）が埋め込まれており、中心には試料をセットするチャンバ（20cm ϕ × 41cm）がある。チャンバ上下は、グラファイト材が配置されており、試料が ^3He 比例計数管の中心に位置し、かつ、試料の中性子が漏れないような構造となっている。

同時計数装置部は、 ^3He 比例計数管を高電圧で使用するための高電圧電源部、計測及びその制御を行うマルチプリシティモジュールにより構成され、マルチプリシティモジュールは、中性子分布を取得するため 256 階調のシフトレジスタ部とスケーラー部から構成されている。

計測データは、パソコンに伝送され、計測終了後、直ちに解析ソフトウェアでプルトニウム量が算出され、プリンターにより結果が出力される。また、本ソフトウェアにより検出器のパラメータセット、測定条件の設定も行うことが可能である。

3. 測定性能

測定対象：MOXスクラップ及び不純物等を多く含むPuO₂中のPu

測定範囲：数mg ～ 5Kg

検出効率：約55%

測定時間：60sec × 10回

測定誤差：～5%（設計値）

4. その他

本システムを使用する場合は、機器の校正としてCf-252で効率の確認をするとともに測定開始前に必ずバックグラウンドを計測し、システムが正常に動作していることを確認してから測定を実施している。

本システムは現在、プルトニウム燃料工場に於いて燃料製造により発生するスクラップ等のプルトニウム量を確定するために使用されている。

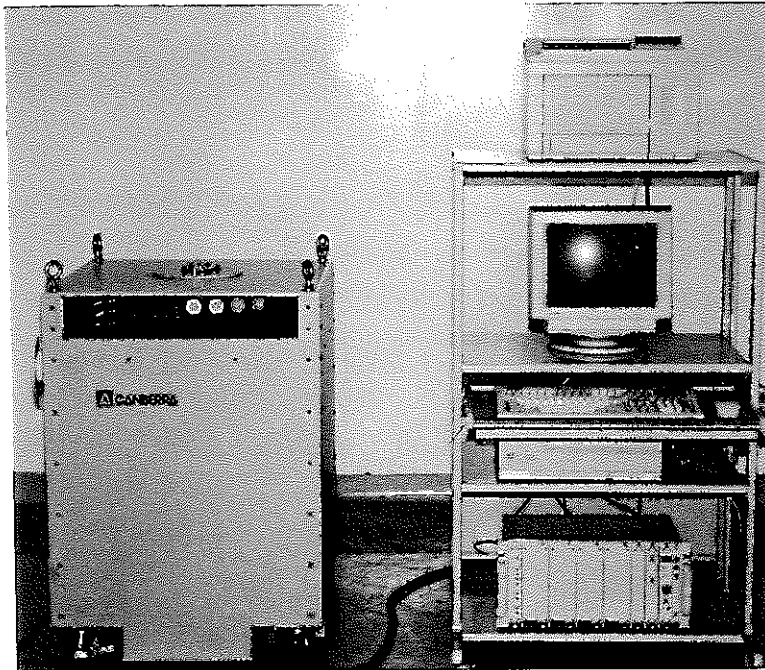
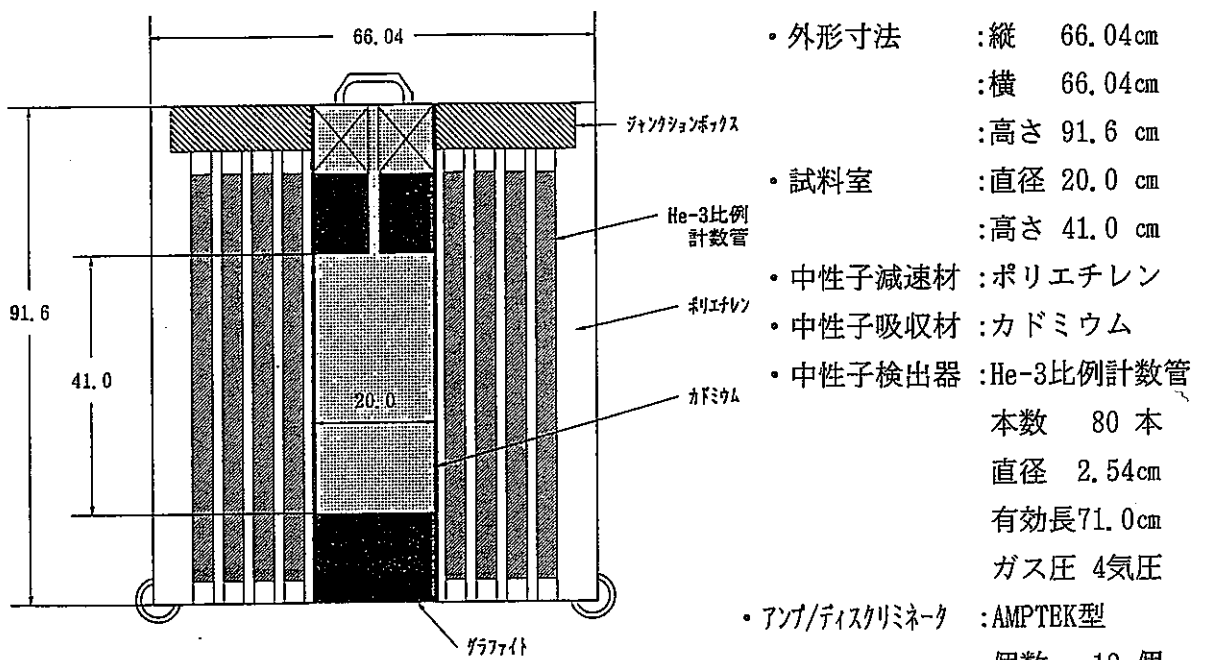


写真-1 PSMCシステム



- ・外形寸法 :縦 66.04cm
:横 66.04cm
:高さ 91.6 cm
- ・試料室 :直径 20.0 cm
:高さ 41.0 cm
- ・中性子減速材 :ポリエチレン
- ・中性子吸収材 :カドミウム
- ・中性子検出器 :He-3比例計数管
本数 80本
直径 2.54cm
有効長71.0cm
ガス圧 4気圧
- ・アンプ/ディスクリミネータ :AMPTEK型
個数 19個
(本体に内蔵)

図-1 検出部断面図

W D A S

日本語名：廃棄物ドラム缶非破壊測定装置

英語名：Waste Drum Assay System

略語：WDAS

1. 概要

本システムは、廃棄物（主にドラム缶）中の微量のプルトニウム量をパッシブ中性子法で測定するために、動燃と米国ロスアラモス国立研究所が共同で開発したものである。

2. 測定原理・構成

核燃料物質から発生する中性子のうちプルトニウムの同位体であるPu-238、Pu-240及びPu-242は自発核分裂し、その結果、即発中性子を平均2個以上同時に放出する。この自発核分裂により放出される複数の中性子のみを (α, n) 反応等の結果放出される中性子と区別して選択的に測定する方法を中性子同時計数法とよぶ。

本システムは、この中性子同時計数法によりPuの同位体のうち自発核分裂を生じるPu-238、Pu-240及びPu-242を定量的に測定するものであり、Puの同位体組成比が既知であれば本システムによる測定結果からプルトニウム量が求められる。

本システムは、同時計数装置部、線源付加部及びデータ解析装置部から構成されるWDASの全体構成を写真—1に示す。

ドラム缶内部に収納されている廃棄物は、その種類（可燃物、難燃物及び不燃物）によって水素等の軽元素の含有量が異なる。軽元素が多く含まれる廃棄物では、中性子は減速（熱中性子になること）吸収され、測定は影響を受ける。線源付加（Add-A-Source）法は、これに影響されないで測定できるようにするための方法で、具体的にはCf-252（ $\sim 3 \times 10^4 \text{ n/s}$ ）を測定の都度、廃棄物ドラム缶の底部に付加したときと付加しない時の計数比により補正し、廃棄物の種類による影響を少なくする方法である。図—1に線源付加法について示す。

また、測定時にはドラム缶が回転し、廃棄物の空間依存性が少なくなるよう工夫されている。日常的な廃棄物の量程度であればこれ等の補正法により精度の高い測定ができる。プルトニウム量を測定するには検量線が必要である。

3. 測定性能

測定対象：廃棄物（主にドラム缶）中のプルトニウム

測定範囲：mgオーダー \sim 1000g

検出効率：約18%

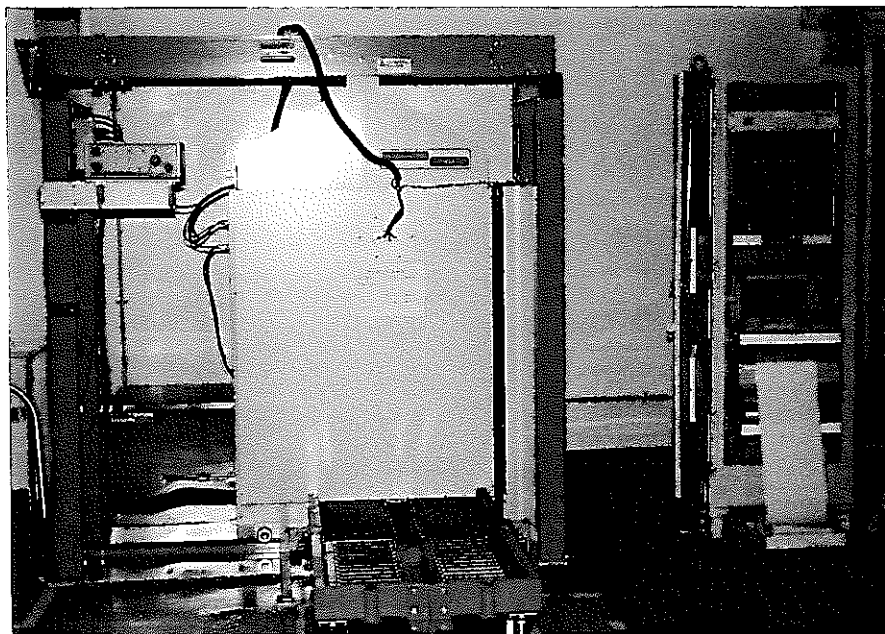
測定時間：17分（線源付加7分（1分 \times 7回）+
廃棄物ドラム缶測定（1分 \times 10回））

測定誤差： \sim 5%（設計値）

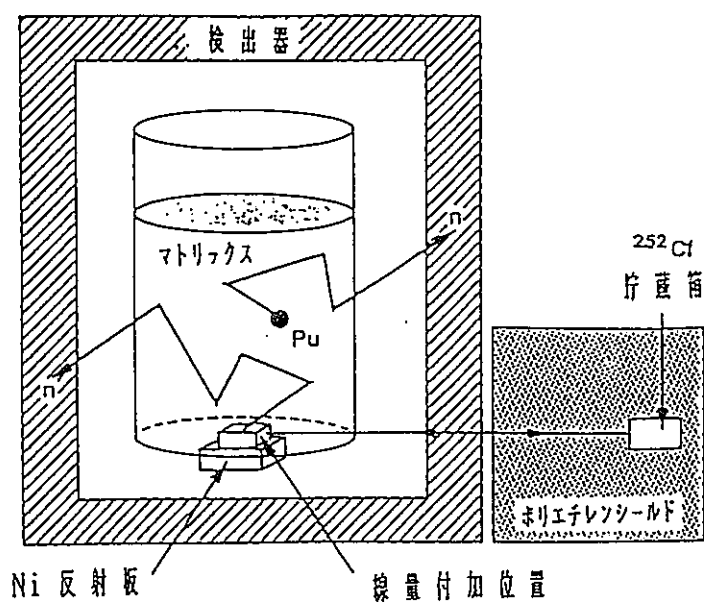
4. その他

本システムの機器の校正として廃棄物ドラム缶の測定開始前には必ずバックグラウンド

ド及びCf-252の中性子線源の測定を行い、システムが正常に作動していることを確認してから測定を実施する。



写真一1 WDASシステム



図一1 線源付加法

G B A S

日本語名：PPPF工程内滞留Pu用NDA システム

英語名：Glove Box Assay System

略語：G B A S

1. 概 要

本システム（写真-1）は、グローブボックス中の核物質の滞留量を測定するために動燃と米国ロスアラモス国立研究所が共同で開発したものである。

2. 測定原理・構成

測定原理は、Pu-238, Pu-240及びPu-242からの自発核分裂による中性子を、他の（ α , n）反応の結果放出される中性子から選択的に計数することにより、測定物質中のプルトニウム量を求めるもので、検出部、同時計数装置部及びデータ解析装置部から構成される。

検出部（図-1）は、グローブボックスを挟み込むようにスラブ型の検出器2台により構成され、中性子減速材（ポリエチレン）に中性子検出器（ ^3He 比例計数管20本）が埋めこまれている。本システムは、通常査察時のホールドアップの検認に使用されている。

同時計数装置部は、検出器に高電圧を印加するための高電圧電源部、自発核分裂中性子とその他の中性子とに区別する同時計数回路及び通信・制御を行う制御回路部等から構成される。

データ解析装置部は、査察現場で取扱いが容易なラップトップ型計算機が用いられており、測定開始・終了、測定回数の指定、データ転送の機器制御及び測定結果の解析が行える。

3. 測定性能

測定対象：グローブボックス中の滞留プルトニウム

測定範囲：10 ～ 10,000 g

検出効率：約5%

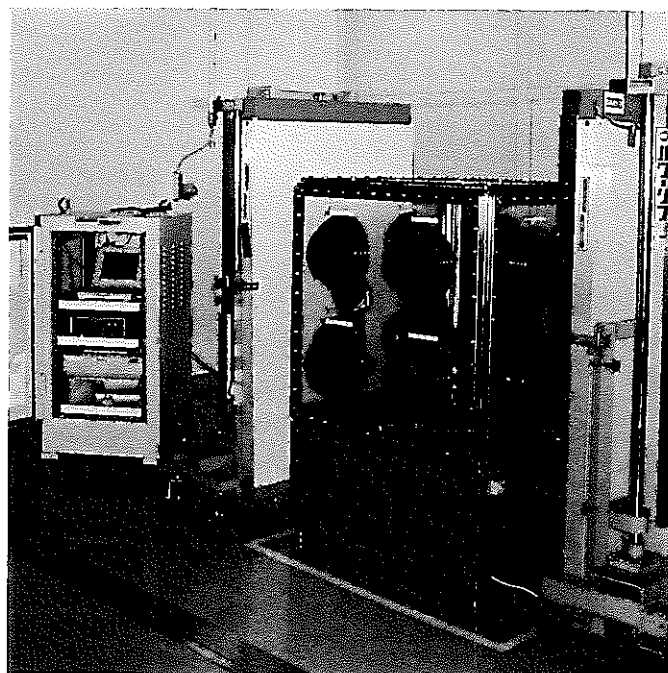
測定時間：60秒×10回（6面もしくは12面測定）

測定誤差：～15%（設計値）

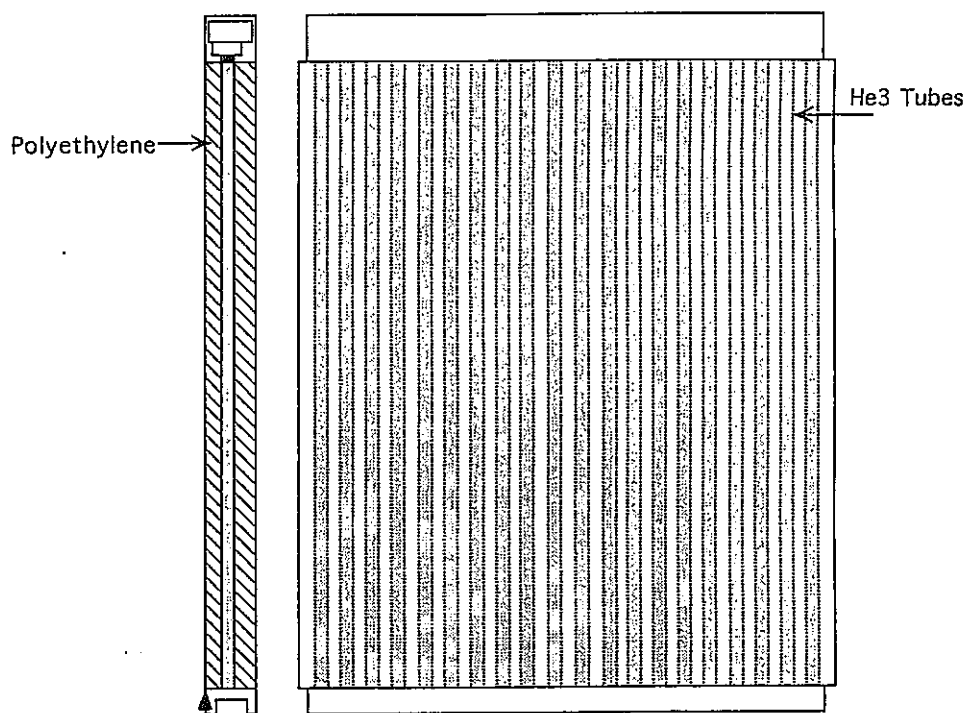
4. その他

測定は、査察時に指定されたグローブボックスで実施している。本システムを使用する場合は、機器の校正として検認対象試料の測定開始前に、必ずバックグラウンド及びCf-252の中性子線源の測定を行い、システムが正常に作動していることを確認してから測定を実施している。

なお、GBASはグローブボックスの広い範囲に亘って測定を行うため、ホールドアップの存在位置及び近傍のグローブボックスからのバックグラウンド（中性子）に影響される。従って、現在バックグラウンドの影響・位置依存性の影響を減少させるために、Super GBASの開発が計画されている。



写真一1 GBAS



図一1 検出部概略図

H B A S

日本語名：混合機ホールドアップ測定装置
英語名：Holdup Blender Assay System
略語：H B A S

1. 概 要

本システムは、動燃と米国ロスアラモス国立研究所が共同で開発したものであり、G B A Sと同じ仕様の装置である。

平成2年、転換技術開発施設の混合工程（混合機）におけるホールドアップ測定の必要が生じたため、プルトニウム燃料第三開発室で使用していたG B A Sによる測定を試みた。

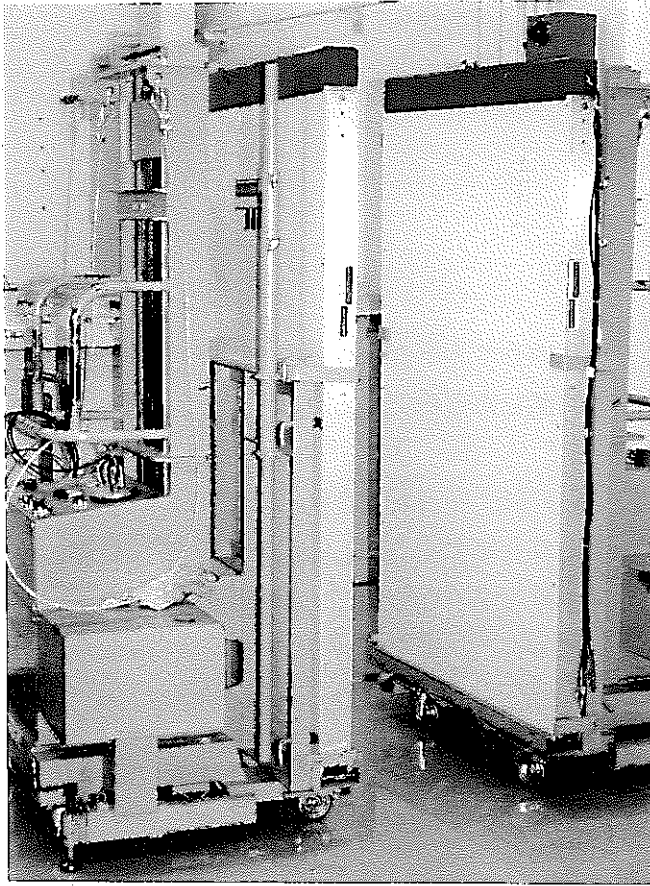
混合工程のグローブボックスは、作業者の被ばく低減のため重遮蔽構造である。このためG B A Sによる測定では、プルトニウムからの中性子が遮蔽され、計数率が低くなること等が想定されたが、測定時間の延長等で対応できることが判明した。

平成3年、校正式を求める試験等を行い確証が得られたため、混合工程に導入し、混合機専用のホールドアップ測定装置という意味でHoldup Blender Assay System (H B A S)とした。

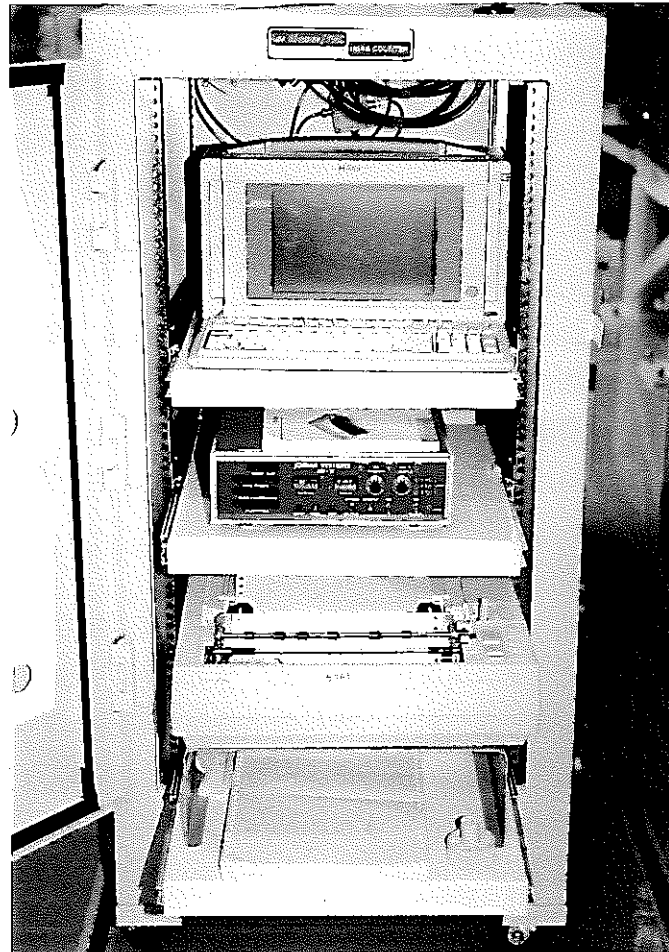
平成7年7月には、転換技術開発施設の脱硝工程、焙焼還元工程、粉碎工程、中間貯蔵庫についてもそれぞれの校正式を得ることが出来、これらの工程に対しても使用している。

2. 測定原理・構成（G B A S参照）

3. 測定性能（G B A S参照）



写真一 HBAS外観



写真二 計数装置

P C A S

日本語名：プルトニウムキャニスター測定システム
 英語名：Plutonium Canister Assay System
 略語：P C A S

1. 概 要

本システム（写真-1, -2）は、キャニスター中のプルトニウム量を測定するために動燃と米国ロスアラモス国立研究所が共同で開発したものである。

2. 測定原理・構成

測定原理は、プルトニウムの同位体であるPu-238, Pu-240及びPu-242からの自発核分裂による即発中性子を、 (α, n) 反応等により発生する中性子から選択的に計測することにより、被測定物質中のプルトニウム量を求めるもので、検出部、同時計数装置部及びデータ解析装置部から構成されている。

検出部（図-1）はキャニスターの外形に合うよう製作される。検出部は、円筒状の中性子減速材（ポリエチレン）に中性子検出器（ ^3He 比例計数管24本）が埋めこまれており、中性子減速材の内外壁には中性子吸収材のカドミウム板が取り付けられていて、壁からの反射中性子による影響を防止できる構造になっている。また、検出部の下部にニッケルとグラファイトの反射材を取り付け、さらに上下部のポリエチレン幅を厚くすることで検出器の検出効率を均一化している。同時計数装置部は、検出器に高電圧を印加するための高電圧電源部、自発核分裂中性子とその他の中性子とに区別する同時計数回路及び通信・制御を行う制御回路部等から構成されている。

データ解析装置部は、査察現場で取扱いが容易なラップトップ型計算機が用いられており、測定開始終了、測定回数の指定、データ転送の機器制御及び測定結果の解析が行えるようになっている。

3. 測定性能

測定対象：キャニスター中のPuO₂, MOX中のプルトニウム
 測定範囲：#1, #2 1 ~ 10,000 g, #3 1 ~ 12 kg
 検出効率：約13%
 測定時間：60秒×7回
 測定誤差：~3%（設計値）

4. その他

本システムと監視/封じ込み（AC/S）システムとを併用することにより、貯蔵中のキャニスターの動き及び存在状況が把握できるため、IAEAの基準に則った検認必要数量に対し、検認数の減少が可能となり、査察の効率化が図られている。

測定は、キャニスターの移動時に行われている。本システムを使用する場合は、機器の校正として検認対象試料の測定開始前に、必ずバックグラウンド及びCf-252の中性子線源の測定を行い、システムが正常に作動していることを確認してから測定を実施する。

本システムは、東海事業所プルトニウム燃料工場で使用されている。

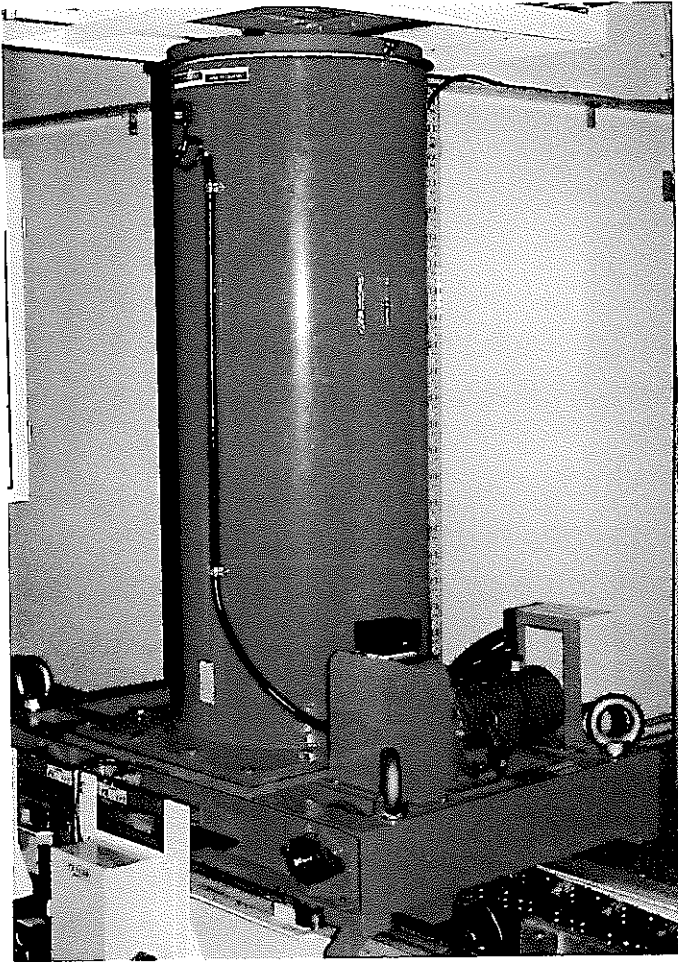


写真-1 PCAS #1, #2

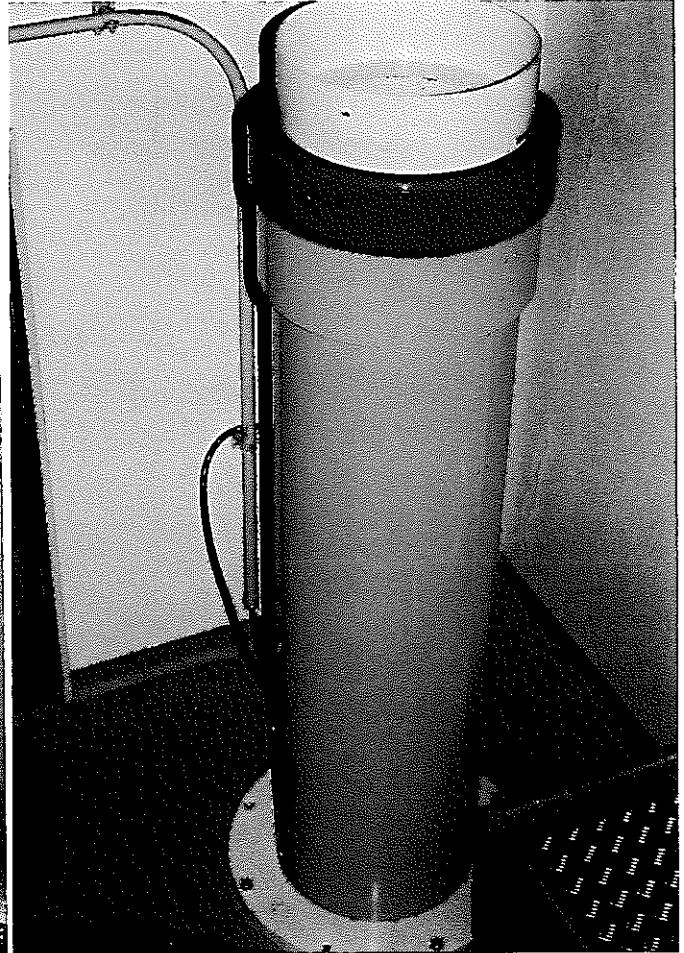


写真-2 PCAS #3

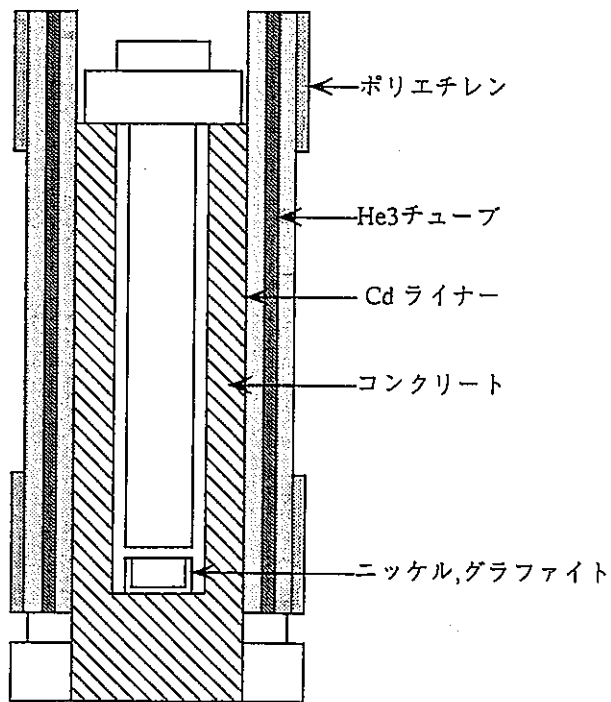


図-1 検出部概略図

F P A S

日本語名：燃料ピン用遠隔制御NDAシステム

英語名：Fuel Pin Assay System

略語：FPAS

1. 概要

本システム（写真-1）は、「もんじゅ」及び「常陽」の燃料ピン中のプルトニウム量を測定するため、動燃と米国ロスアラモス国立研究所が共同で開発したものである。

2. 測定原理・構成

測定原理は、プルトニウムの同位体であるPu-238, Pu-240及びPu-242からの自発核分裂による即発中性子を、 (α, n) 反応等により発生する中性子から選択的に計数することにより被測定物中のプルトニウムの量を求めるもので、検出部、同時計数装置部及びデータ解析装置部から構成される。

検出部（図-1）は燃料要素の搬送用ローラコンベアーに設置されており、燃料ピントレイの上部と側面を取り囲むように製作されている。箱型の中性子減速材（ポリエチレン）に中性子検出器（ ^3He 比例計数管16本）が埋めこまれており、中性子減速材の内外壁には中性子吸収材のカドミウム板を取り付け、壁からの反射中性子及び外部からの中性子の影響を防止している。また、トレイの配置位置を変える事によって、「もんじゅ」及び「常陽」の燃料ピンに対応する事が可能な構造になっている。

同時計数装置部は、検出器に高電圧を印加するための高電圧電源部、自発核分裂の中性子とその他の中性子とに区別する同時計数回路及び通信・制御を行う制御回路部等から構成されている。

データ解析装置部は、査察現場で取扱いが容易なラップトップ型計算機が用いられており装置の測定開始・終了、測定回数の指定、データ転送の機器制御及び測定結果の解析が行えるようになっている。

3. 測定性能

測定対象：燃料ピン中のプルトニウム

測定範囲：10 ～ 10,000 g

検出効率：約7%

測定時間：60秒×10～15回

測定誤差：～2%（設計値）

4. その他

測定は、プルトニウム燃料第三開発室組立検査室で行われている。本システムを査察現場で使用する場合は、機器の校正として検認対象試料の測定開始前に、必ずバックグラウンド及びCf-252の中性子線源の測定を行い、システムが正常に作動していることを確認する。

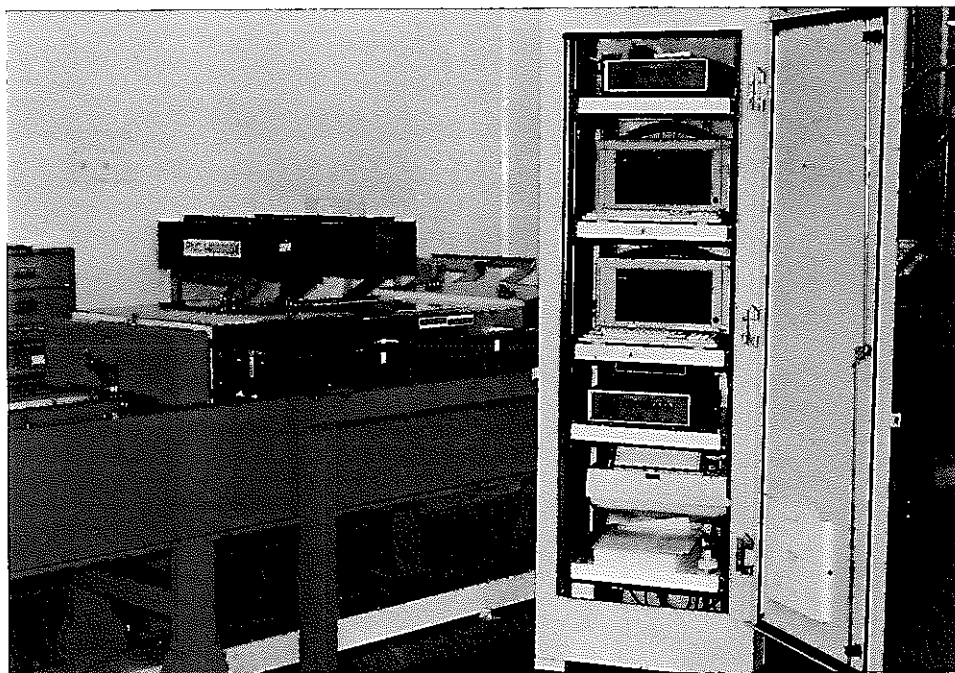


写真-1 FPAS

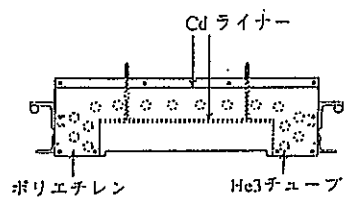
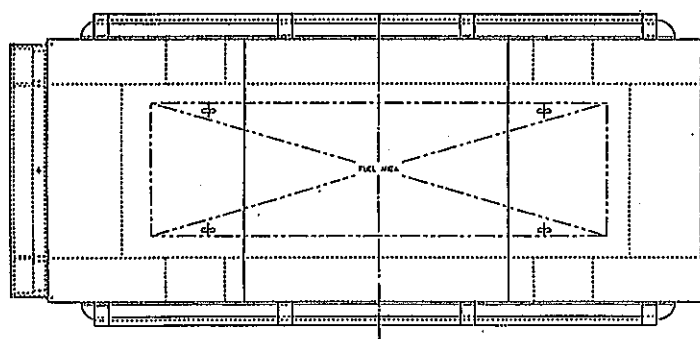


図-1 検出部概略図

F A A S

日本語名：燃料集合体遠隔制御NDAシステム

英語名：Fuel Assembly Assay System

略語：FAAS

1. 概要

本システム（写真-1）は、「もんじゅ」及び「常陽」の燃料集合体中のプルトニウム量を測定するために動燃と米国ロスアラモス国立研究所が共同で開発したものである。

2. 測定原理・構成

測定原理は、プルトニウムの同位体であるPu-238, Pu-240及びPu-242の自発核分裂による即発中性子を、 (α, n) 反応等により発生する中性子から選択的に計数することにより被測定物中のプルトニウムの量を求めるもので、検出部、同時計数装置部及びデータ解析装置部から構成される。

検出部（図-1）は燃料集合体を取り囲むように円筒状に製作されている。円筒状の中性子減速材（ポリエチレン）に中性子検出器（ ^3He 比例計数管12本）が埋め込まれており、中性子減速材の内外壁には中性子吸収材のカドミウム板が取り付けられていて、壁からの反射中性子による影響を防いでいる。また、上下部のポリエチレン幅を厚くすることで検出器の縦軸方向の検出効率を均一化している。さらに、測定器の位置を変える事によって、「もんじゅ」及び「常陽」の燃料集合体に対応できる構造になっている。

同時計数装置部は、検出器に高電圧を印加するための高電圧電源部、自発核分裂中性子とその他の中性子とに区別する同時計数回路及び通信・制御を行う制御回路部等から構成されている。

データ解析装置部は、査察現場での取扱いが容易なラップトップ型計算機が用いられており、装置の測定開始・終了、測定回数の指定、データ転送の機器制御及び測定結果の解析が行えるようになっている。

3. 測定性能

測定対象：燃料集合体中のプルトニウム
測定範囲：1 ～ 10,000 g
検出効率：約13%
測定時間：60秒×7回
測定誤差：～2%（設計値）

4. その他

本システムと、AC/Sシステムとあわせて使用することにより、貯蔵庫中の動き及び存在状況を把握、IAEAの基準に則った検認必要数量の減少がはかられ、査察の効率化に寄与している。

測定は、燃料集合体貯蔵庫への入出庫の都度行われる。本システムを査察現場で使用する場合は、機器の校正として検認対象試料の測定開始前にならずバックグラン

ド及びC f -252の中性子線源の測定を行い、システムが正常に作動していることを確認してから測定を実施している。

本システムは、プルトニウム燃料第三開発室の燃料集合体貯蔵庫で使用されている。

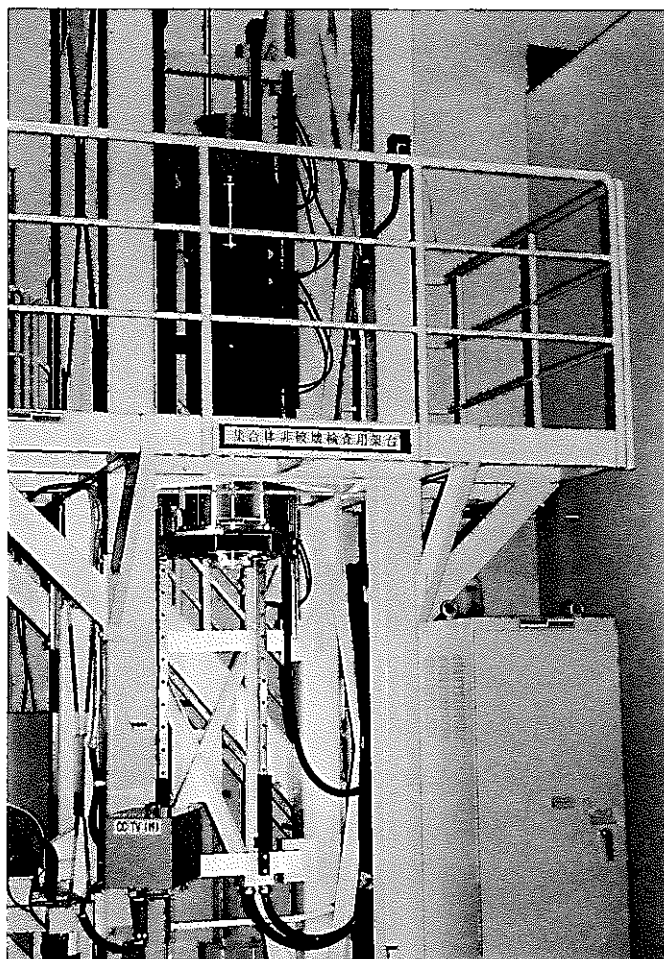


写真-1 FAAS

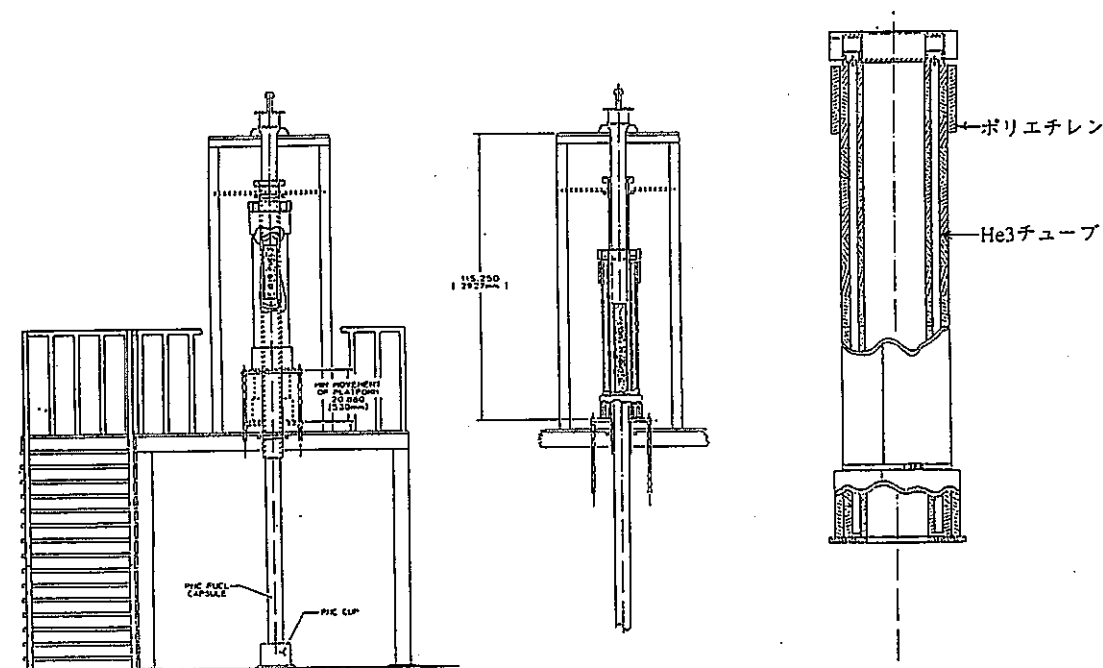


図-1 検出部

M A G B

日本語名：工程搬送容器用NDA システム

英語名：Material Accountancy Glove Box Assay System

略語：MAGB

1. 概要

本システム（写真-1）は、プルトニウム燃料第三開発室で使用中の搬送容器中のPu量を測定するためにPNCと米国ロスアラモス国立研究所が共同で開発したものである。

2. 測定原理・構成

測定原理は、プルトニウムの同位体であるPu-238, Pu-240及びPu-242の自発核分裂からの即発中性子を、 (α, n) 反応等により放出される中性子から選択的に計数することにより被測定物質中のプルトニウムの量を求めるもので、検出部、同時計数装置部及びデータ解析装置部から構成されている。

検出部（図-1）は、搬送容器を挟み込むようにスラブ型の検出器2台で構成され、搬送用のグローブボックスの経路中に設けられた秤量用グローブボックスに設置されている。スラブ状の中性子減速材（ポリエチレン）に中性子検出器（ ^3He 比例計数管16本）が埋めこまれている。また、上下部のポリエチレン幅を厚くすることで検出器の縦軸方向の検出効率を均一化している。

同時計数装置部は、検出器に高電圧を印加するための高電圧電源部、自発核分裂中性子とその他の中性子とに区別する同時計数回路及び通信・制御を行う制御回路部等から構成される。

データ解析装置部は、査察現場で取扱いが容易なラップトップ型計算機が用いられ、装置の測定開始・終了、測定回数の指定、データ転送の機器制御及び測定結果の解析が行えるようになっている。

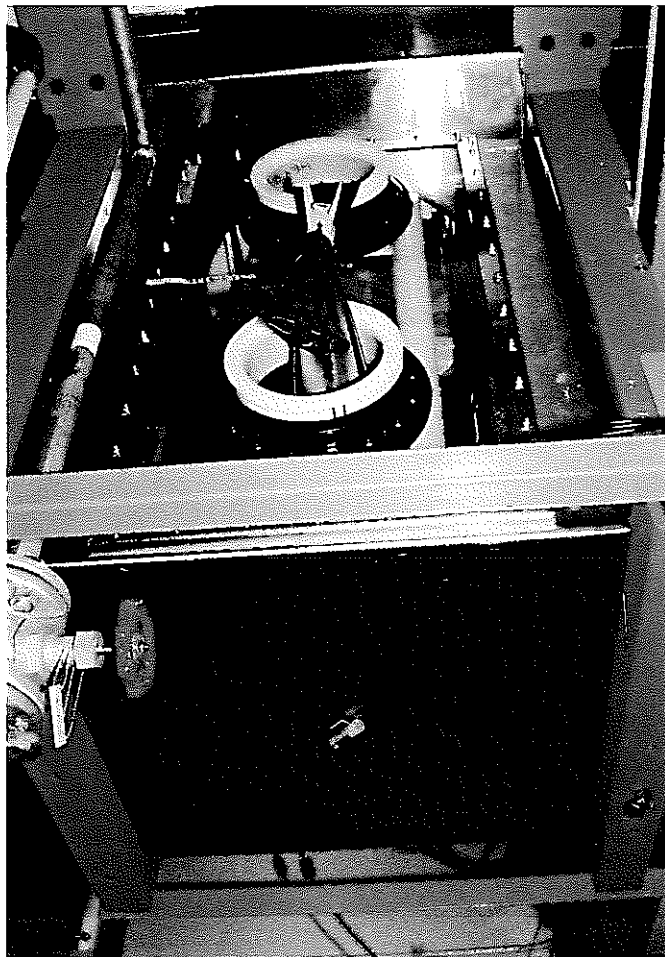
3. 測定性能

測定対象：搬送容器中のプルトニウム
測定範囲：10 ～ 10,000 g
検出効率：約6%
測定時間：60秒×10回
測定誤差：～3%（設計値）

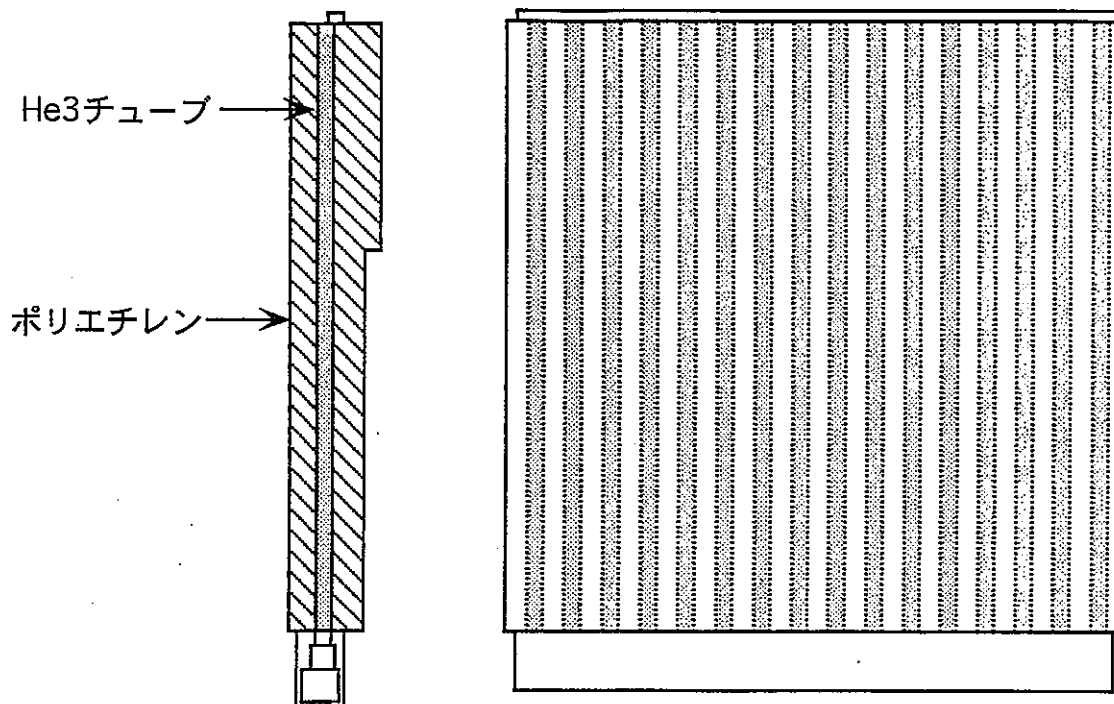
4. その他

本システムは、プルトニウム燃料第三開発室の通常査察時に、ペレット工程の中間保管庫（原料、粉末、ペレット）に在庫される搬送容器の測定に使用されている。また、本システムと搬送容器ID読み取りシステム(IDMS)と連動して使用することにより、査察官の立会なしに測定を行うことが可能である。

本システムの校正として検認対象容器の測定開始前にかかわらずバックグラウンド及びCf-252の中性子線源の測定を行い、システムが正常に作動していることを確認してから測定を実施している。



写真一 グローブボックスに設置したMAGB



図一 検出部概略図

蛍光X線分析

日本語名 : 蛍光X線分析装置 (エネルギー分散型)

英語名 : X-ray Fluorescence Spectrometer (Energy Dispersive Type)

1. 概要

本装置は、プルトニウム転換技術開発施設に設置されており、硝酸プルトニウム、硝酸ウラニル、プルトニウム・ウラン混合酸化物粉末、転換工程廃液等に含まれるプルトニウム、ウラン、不純物等の定量分析に適應できるが、主に転換工程廃液等のプルトニウム、ウランの工程管理分析及び計量管理分析に使用している。

2. 測定原理

測定原理としては、試料に本装置から発生するX線を照射すると、図-1に示すようにその試料を構成する元素(原子)の内殻軌道電子が殻外に叩き出され、内殻軌道に空孔を生じる。この空孔は、速やかに外殻軌道電子によって埋められ安定状態に戻る。この時、軌道間のエネルギー差を持つ特性X線(以下「蛍光X線」という)を放出し、Si(Li)半導体検出器で検出している。

蛍光X線は、各原子に固有のエネルギーを持っており、その強度と構成元素の濃度の相関は良好であることから、あらかじめ、作成しておいた目的元素のX線強度と濃度との関係の検量線から濃度を定量することができる。なお、本装置のエネルギー検出レベルに合わせ、プルトニウム、ウランの蛍光X線は、K系列よりもエネルギーの低いL系列を選択している。

本装置は、図-2に示すようにX線発生部、検出部、コントロール部等から構成される。

X線発生部は、フィラメント変圧器、高電圧変圧器、管電流調整用抵抗器、管電圧調整用単巻変圧器及びX線管から構成されている。X線管は、サイドウィンド型Rh X線管を使用している。

管電圧の設定は、元素の最低励起電圧と共存元素の影響を考慮し、重元素の測定では、管電圧を高くして感度を上げ、軽元素では、管電圧を低くして重元素の影響を少なくするとともに、S/N比を良くするように設定する。管電流の設定では、微量成分の測定には電流を上げ感度を良くし、主成分を測定する場合は、数え落とし等の問題が生じないように低めに設定して精度を良くしている。

また、X線管と試料の間にフィルター(銅)を入れ、妨害線を除去しS/N比を良くしている。

検出部は、エネルギー分散型で低エネルギーX線を有効に検出し、エネルギー分解能の優れたSi(Li)半導体検出器と多重波高分析器とを組み合わせ、検出器に入るX線パルスをデジタル信号に換え、順次エネルギーごとに振り分け記録され、この中から目的元素のエネルギーのデータを取り出し濃度を求めている。このSi(Li)半導体検出器は、漏れ電流の影響による分解能の低下を防止するため、液体窒素デュワー瓶に取付けられ、常時冷却して使用するよう装置に組み込まれている。

コントロール部は、装置の制御やデータ処理を行うため、マルチチャンネルアナライザー、ビデオモニター、コンピューター等が設置されている。マルチチャンネルアナライザーは、デジタル信号をビデオモニター上にスペクトルとして表示するために使用される。コンピューターは、測定元素の設定(ウィンド)を行い、設定中のピークを数値化して表示したり、測定時の条件設定や機器の制御、測定結果の解析、データの転送等を行う。

3. 測定精度

測定対象 : 硝酸プルトニウム、硝酸ウラニル、プルトニウム・ウラン混合酸化物粉末等

測定範囲 : 溶液系試料のプルトニウム及びウランの測定の場合、試料量約3 mlを用いた場合、測定濃度範囲は 0.02 mg/ml ~ 1.0 mg/ml である。

測定精度 : 相対精度 約2% (上記測定の時)

4. その他

測定対象元素のプルトニウム及びウランを測定する場合は、管電圧を37V、管電流を160 μ Aに設定し、PuのL α 線及びUのL α 線を検出している。この時の測定時間は通常300秒2回で行い、測定値のバラツキが生じた場合は3回測定している。

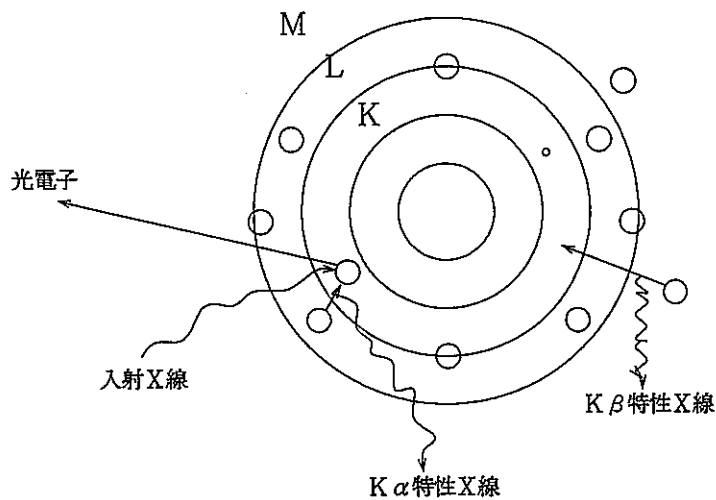


図 - 1 特性X線の発生機構

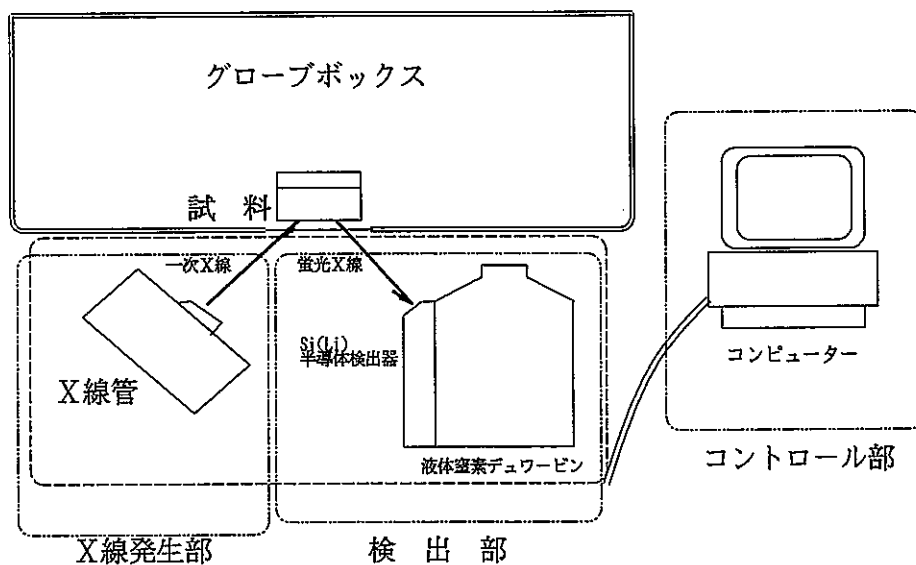


図 - 2 構成図

電位差滴定法

日本語名 : 電位差滴定法

英語名 : Potentiometric Titration

1. 概 要

中和反応、酸化還元反応等の化学反応を利用し、目的物質の量をそれと直接又は間接に定量的に反応する標準溶液で滴定し、反応に用いた標準溶液の容積から目的物質を定量する方法で、反応の終点を当量点付近の電極電位の変化から判定するため電位差滴定という。

滴定装置は、電極部、ビューレット部及び自動滴定装置で構成される。電極部は試料溶液を均一に混合するためのスターラ、電極、試薬チューブから構成され、電極には酸化還元反応に適した複合白金電極を使用している。ビューレット部は、標準溶液を入れる容器と自動滴定装置から指示された量の標準溶液を正確に滴下するビューレットで構成される。自動滴定装置は、分析条件の設定、装置の制御、滴定時の電位変化から標準溶液滴加量の制御、終点の決定等の機能を有している。

滴定装置の概略を図-1に、自動滴定装置を写真-1に示す。

2. 電位差滴定によるプルトニウムの分析

本分析法は、プルトニウム酸化物及びプルトニウム・ウラン混合酸化物中のプルトニウム量を求めるために用いられる。

測定原理は、試料に硝酸とフッ化水素酸（1～2滴）を加え加熱溶解・放冷後、硝酸銀と過硫酸アンモニウムを加えて、プルトニウムをVI価に調整する。その後、標準溶液（鉄II価）を過剰に加えてプルトニウムをIV価に還元する。過剰の標準溶液（鉄II価）を標準溶液（セリウムIV価）で逆滴定し白金電極を用いて終点電位（750～800mV）を確認して、プルトニウムを定量する。

本分析法は、粉末、ペレット等の固体試料及び溶液試料に適用でき、その適用濃度範囲は5～20mgであり、分析精度は0.5%である。しかし、アメリシウム及びネプチニウム等の不純物の存在が妨害するため、現在では、不純物に影響されず高精度の得られる他の分析法に変わりつつある。

3. 電位差滴定によるウランの分析

本分析法は、硝酸プルトニウム・ウラニル混合溶液、硝酸ウラニル溶液、プルトニウム・ウラン混合酸化物粉末中のウラン量を求めるために用いられる。

測定原理は、試料にリン酸を加えて強リン酸溶液とした後、スルファミン酸を含んだ硫酸第一鉄によりVI価のウランをIV価に還元し、過剰の硫酸第一鉄（II価）を、硝酸—スルファミン酸—モリブデン酸アンモニウム混合溶液を加えて、III価に調整する。その後、硫酸バナジウムを指示薬として加え重クロム酸カリウム標準溶液で滴定しウラン量を求める。

本分析法の適用濃度範囲は、2～20mg、分析精度は0.2%以下である。

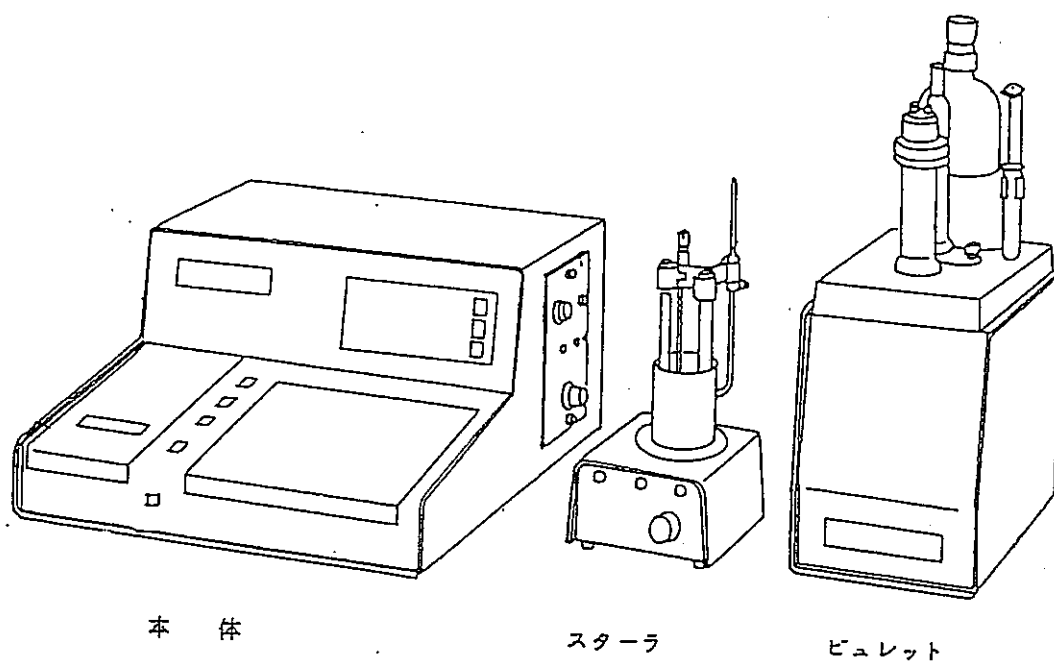


図-1 滴定装置外観図



写真-1 自動滴定装置本体

同位体希釈質量分析法

日本語名 : 同位体希釈質量分析法
 英語名 : Isotope Dilution Mass Spectrometry
 略語 : IDMS

1. 概要

本分析法は、プルトニウム・ウラン混合酸化物（以下「MOX」という）中のウラン及びプルトニウムの濃度並びに同位体組成を測定するための方法である。測定原理は、MOX試料（未知試料）にスパイク試料（濃度既知）を添加し、質量分析装置によりMOX試料及び混合試料（MOX試料とスパイク試料を混合したもの）の同位体組成比を測定する。その結果、MOX試料の同位体組成比と混合試料の同位体組成比は、異なる結果となる。この同位体組成比の違いからMOX試料中のウラン及びプルトニウムの濃度を算出する。（図-1）

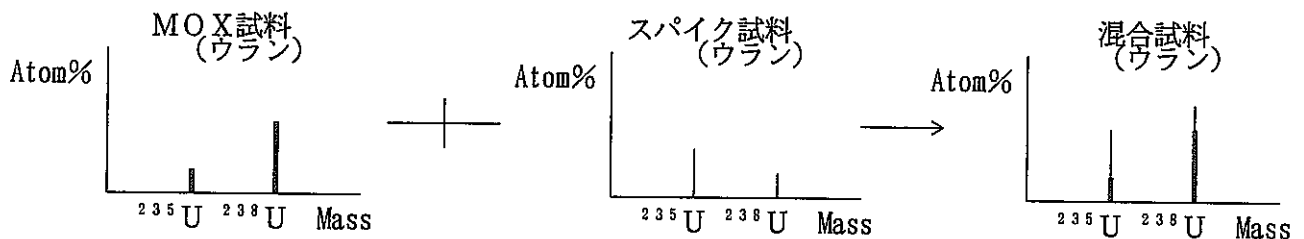


図-1 同位体希釈質量分析法の測定原理

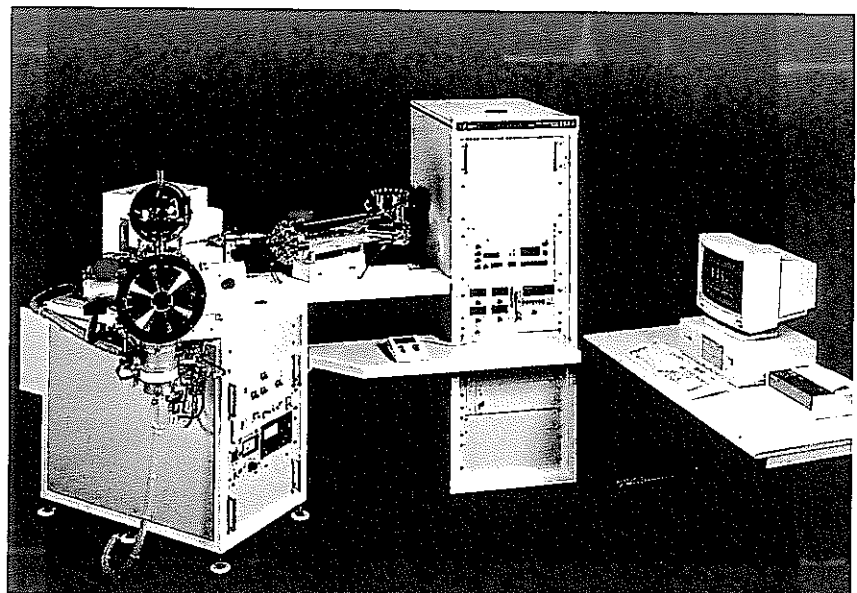
2. 同位体希釈質量分析法によるU、Puの分析

本分析の手順は次の通りである。①MOX燃料を溶解した後2つに分け、一方にスパイク試料を添加する。②イオン交換によりウランとプルトニウムを分離する。③質量分析装置によりMOX試料及び混合試料の同位体組成比を測定する。

質量分析は、試料をレニウムフィラメント上に蒸着させ、高真空中で600～2000℃まで加熱しイオン化させる。このイオンに高電圧をかけることでイオンビーム化させ、磁場中を通過させる。イオンは磁場によって曲げられ、それぞれの質量スペクトルが得られる。この質量スペクトルの強度を検出器で測定することにより、同位体組成比が求められる。

これらの結果より、MOX中のウラン、プルトニウムの濃度及び同位体組成比を算出する。本分析ではウラン及びプルトニウム濃度が0.001 w/w以上であれば測定が可能であり、分析精度は0.2%程度である。

写真に質量分析装置を示す。



電位規制クーロメトリ法

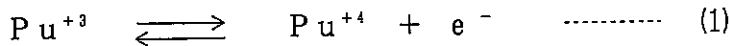
日本語名 : 電位規制クーロメトリ法

英語名 : Controlled-Potential Coulometric Assay

1. 概 要

本分析法は、プルトニウム酸化物及びプルトニウム・ウラン混合酸化物中のプルトニウム含有率を定量するための方法である。

測定原理は、試料を溶解後、定電位電解を行うことによって、(1)式に示すプルトニウムの酸化・還元反応を起こさせ、その際に生じる電気量を測定し、その量からプルトニウムを求める。



装置は、ポテンショスタット、サンプルチェンジャ、制御用コンピュータ及び測定セル部（参照電極、作用電極及び対極）から構成される。

ポテンショスタットは、酸化及び還元に必要な電位を発生させる。サンプルチェンジャには、試料セルがセットされ、連続的に13個の試料が測定できるようになっている。測定セル部では、試料セルに電極がセットされ、酸化及び還元に適切な電位をかけることで、電極上で上記の反応が進行する。これらの一連の動作は全てコンピューターにより制御され、最初にサンプルチェンジャに試料をセットすれば、自動的に全ての試料が分析され、結果が算出される。

2. 電位規制クーロメトリ法によるPuの分析

分析は、①未知試料の溶解、②希釈、③標準試料溶液の測定、④未知試料溶液の測定の手順で実施する。なお、本分析法は、不純物として鉄が定量的に妨害するため、未知試料中の鉄を他の分析法で定量し、その結果を用いてクーロメトリによる測定結果を補正している。

本分析を管理するために、毎回標準溶液試料を測定し、標準値との差が所定の範囲に入っている事を確認している。また、未知試料の測定においても、繰り返し測定を行い所定のバラツキの範囲であることを確認している。もしも、これらが所定の範囲を超えた場合には、再分析を行う。本分析における精度は0.2%である。

分析対象は、プルトニウム酸化物及びプルトニウム・ウラン混合酸化物(FBR燃料)であるが、鉄が多い試料では、補正の割合が大きくなり分析精度に影響を与えるため、本分析法には適さない。また、試料中のウランの比率の高いATR燃料についても、ウランが間接的に影響を与えるため適さない。

写真にクーロメトリ装置を示す。

