

MOX 粉末の同位体希釈質量分析法用 ^{239}Pu 、 ^{235}U 混合スパイクの調製と 実試料への適用

Preparation of mixed spike with ^{239}Pu and ^{235}U for MOX analysis by isotope dilution mass spectrometry and
application to actual sample

*堀籠 和志¹, 田口 茂郎¹, 山本 昌彦¹, 稲田 聡¹, 久野 剛彦¹

¹日本原子力研究開発機構

同位体希釈質量分析法による U・Pu 混合酸化物 (MOX) 中の U、Pu 濃度分析に最適化した ^{239}Pu 、 ^{235}U を
内標準とする混合スパイクを調製し、MOX 粉末中の U、Pu 濃度を高精度に分析できる結果が得られた。

キーワード: ^{239}Pu 、 ^{235}U 、スパイク、同位体希釈法、MOX

1. 緒言 U・Pu 混合酸化物 (MOX) 粉末の核物質計量管理を目的とした U、Pu 濃度分析には、同位体希釈
質量分析法 (IDMS) を適用している。IDMS は、スパイクと呼ばれる、分析対象物の同位体元素の既知量を
内標準として分析試料と混合し、その同位体比の変化から U、Pu 濃度を求める定量法であり、極めて信頼性
の高い分析結果を得ることができる。本研究では、MOX 粉末の同位体組成及び U、Pu 含有比に対して、分
析値の不確かさが最小となる ^{239}Pu 、 ^{235}U を内標準とする混合スパイク (^{239}Pu : 98 wt%、 ^{235}U : 93 wt%、Pu :
U = 2 : 1) (混合スパイク) を調製した。本報では、混合スパイクを用いて東海再処理施設で製造された MOX
粉末を分析し、その分析値の不確かさを評価するとともに、国際原子力機関 (IAEA) で調製されたスパイク
(IAEA スパイク) との比較分析結果について報告する。

2. 実験 混合スパイクの調製には、米国 NBL 製の Pu 標準物質 CRM126 (Pu 金属, 99.87 wt%)、U 標準物質
CRM116 (U 金属, 99.97 wt%) を使用し、Pu 金属は電解研磨、U 金属は化学研磨により、予め表面の不純物
を除去した後、0.1mg まで正確に秤量し、Pu 金属は 0.1 M フッ酸と 8 M 硝酸の混酸中で、U 金属は 8 M 硝酸
中で、それぞれ加熱溶解した。次に Pu と U の含有比が 2 : 1 となるよ
う各溶解液を混合し、ガラスバイアルに一定量ずつ分取した。MOX
粉末の分析は、試料を加熱溶解後、一定量採取し、スパイクが入った
ガラスバイアルに添加した。調製は全て重量法で行った。このガラス
バイアルから一部を分取し、U と Pu を陰イオン交換樹脂 (Bio-Rad
製 AG1-X2) 及び固相抽出樹脂 (Eichrom 製 TEVA-resin) を用いて分
離した後、表面電離型質量分析計 (Thermo Fisher Scientific 製 TRITON)
により同位体比を測定し、U、Pu 濃度を算出した。混合スパイクによ
る MOX 分析値の不確かさは、ISO-GUM^[1] に基づき評価した。

3. 結果及び考察 混合スパイクによる MOX 粉末の分析値の相対拡
張不確かさは、Pu で 0.10 % ($k=2$)、U で 0.13 % ($k=2$) であった。混
合スパイク及び IAEA スパイクにより得られた MOX 粉末試料の分析
値を比較した結果 (図 1)、混合スパイクは、Pu; 42.80 ± 0.04 wt% ($k=2$)、
U ; 45.02 ± 0.06 wt% ($k=2$) に対し、IAEA スパイクの分析結果は、Pu ;
 42.80 ± 0.04 wt% ($k=2$)、U ; 44.95 ± 0.04 wt% ($k=2$) であり、両者の分析
値は、不確かさの範囲で良好に一致し、本件で調製した混合スパイク
を用いることで MOX 粉末を高精度に分析できることがわかった。

参考文献

[1] JCGM / WG1, Guide to the expression of uncertainty in measurement (GUM), JCGM100:2008.

*Kazushi Horigome¹, Shigeo Taguchi¹, Masahiko Yamamoto¹, Satoshi Inada¹ and Takehiko kuno¹

¹Japan Atomic Energy Agency.

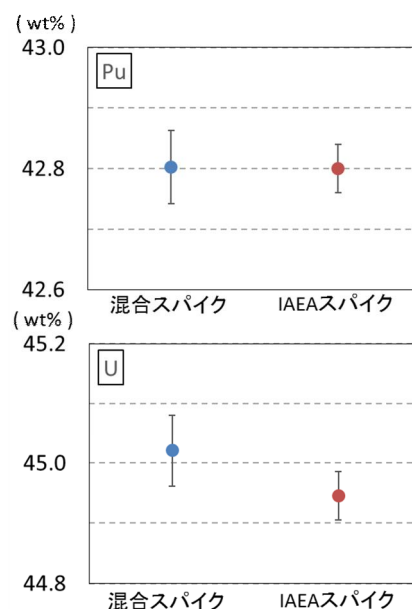


図1 混合スパイクとIAEAスパイクによる
実MOX粉末の分析結果の比較
(エラーバーは不確かさ $k=2$)