

# プルトニウム粒子を対象とした $\alpha$ 線測定による 粒子中アメリシウム定量法検討

(燃料サイクル安全研究ディビジョン 保障措置分析化学研究グループ)

## 【はじめに】

原子力機構では、原子力施設等における未申告活動を検知する手段の一つとして、保障措置環境試料分析手法の開発を実施している。その一環として、施設等からの拭き取り試料(スワイプ)に付着した核物質を含む粒子をSEM-EDXにより検出し、TIMSにより同位体組成を分析する手法を確立した<sup>1)</sup>。回収した粒子中のプルトニウムの有無を事前に確認するため、 $\alpha$ 線測定の適用性を検討している。これまでに、TIMSフィラメント上にピックアップしたプルトニウム粒子を溶解し、 $\alpha$ 線測定によって $(^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am})/(^{239+240}\text{Pu})$ 放射能比を得たうえで、続くTIMS測定により、プルトニウム同位体比測定を試みた。フィラメント上で溶解した粒子をTIMS/連続昇温法で測定した場合、フィラメント加熱電流を利用したアメリシウム・プルトニウムの明確な分離が困難であった。本発表では、 $^{241}\text{Am}$ の定量を目的として、プルトニウム標準試料由来の粒子を $\alpha$ 線測定し、プルトニウム同位体組成の認証値と $(^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am})/(^{239+240}\text{Pu})$ 放射能比を比較し、定量性を検討したので報告する。

<sup>1)</sup> D.Suzuki et al., Chem. Lett., 41, 90-91 (2012).

## 【実験】

プルトニウム同位体標準(SRM947)を、2008/7/14に精製し、 $^{241}\text{Am}$ を分離した。SRM947の認証値と分離精製後の組成を表1に示す。

精製後の試料を蒸発乾固後に削り取り、プルトニウム粒子を作製した。代表的なものを図1に示す。作製した粒子をSEMにより採寸し、長軸と短軸の平均を粒子径とした。

精製後4年目から約1年おきに、粒子を、SEM下で、TIMSフィラメント上にピックアップ、試料台に固定し、 $\alpha$ 線測定装置(ORTEC製OCTETE-Plus, BU-024-600-AS)で測定した。

試料台とフィラメントの配置を、図2に示す。

表1: プルトニウム同位体標準(SRM947)の組成

	$^{238}\text{Pu}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$	$^{242}\text{Pu}$
Atom Percent 1971/10/13	0.296	75.696	18.288	4.540	1.180
Atom Percent 2008/7/14	0.231	78.768	18.977	0.795	1.229

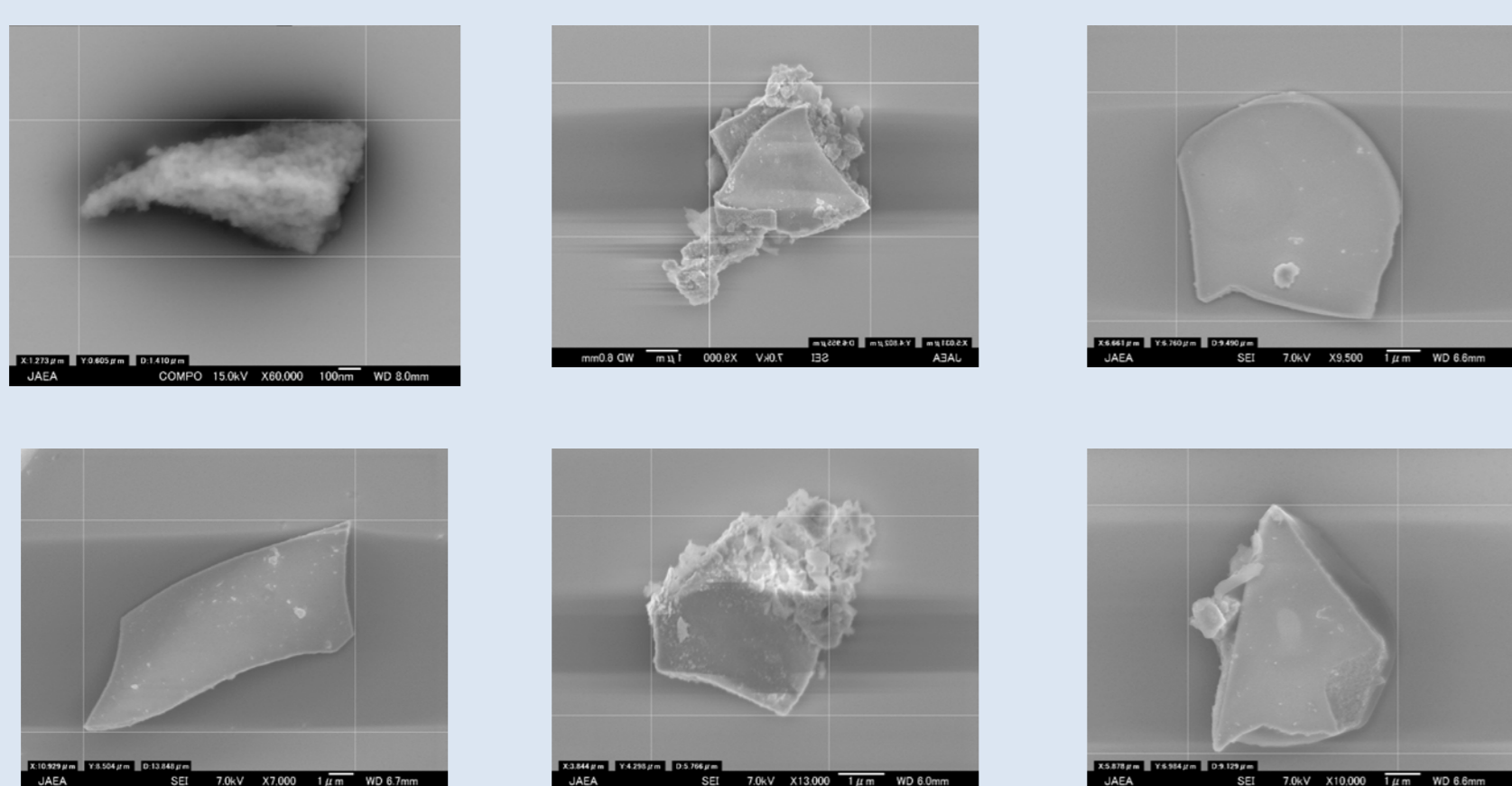


図1: 作製したプルトニウム粒子の例  
(ブロック状の他、尖鋭、集合状の粒子もあった)

Si検出器の位置  
(ORTEC OCTETE-Plus, BU-024-600-AS、有感面積600 mm<sup>2</sup>)

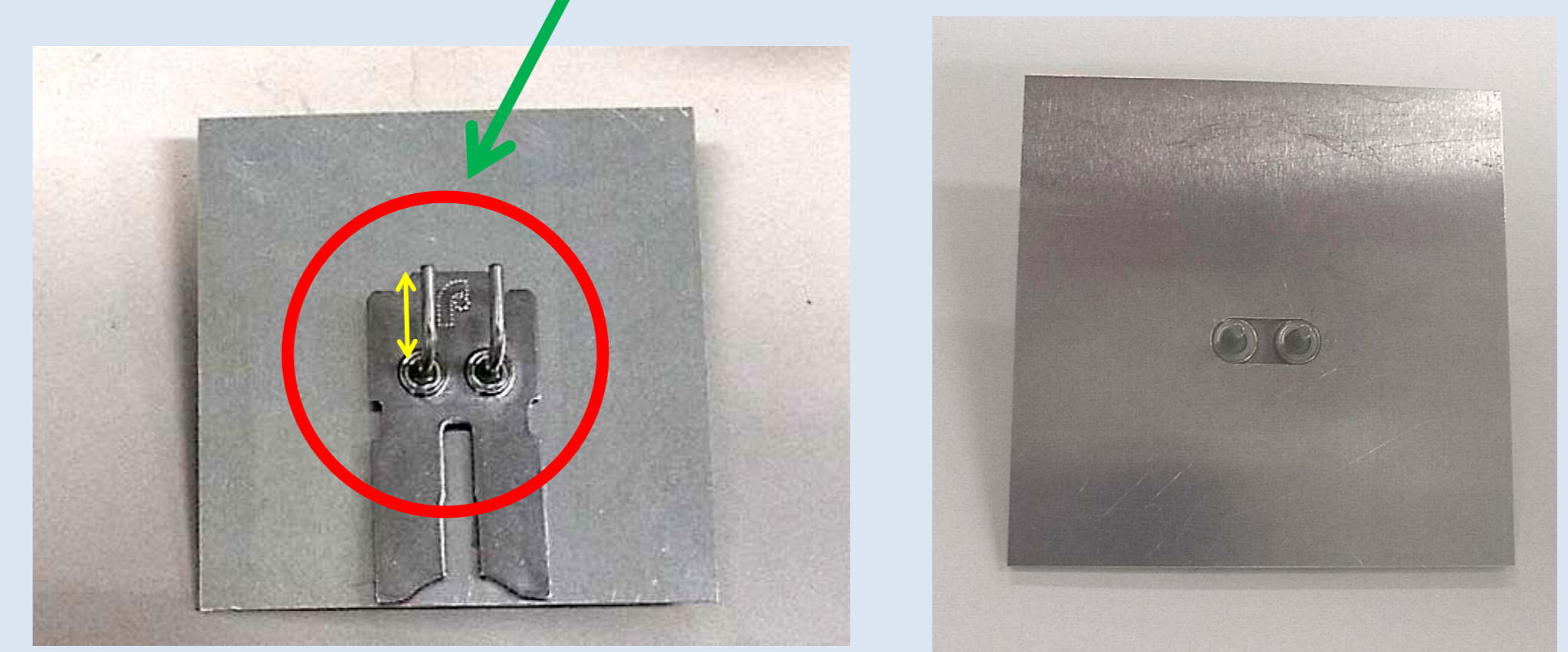


図2: TIMSフィラメント用の $\alpha$ 線測定用試料台(左)、裏側(右)  
赤丸は、検出器位置に相当。試料検出器間距離は5 mm。

## 【結果と考察】

本法によって作製された粒子の粒子径は、0.5~3.8  $\mu\text{m}$ であった。粒子径に対する $^{239+240}\text{Pu}$ ピークの半値幅を図3に示す。図1のように、さまざまな粒子形状がある上、簡易な方法で粒子径を見積もったにも係わらず、 $\alpha$ 線ピークの半値幅と相関性があった。また、3  $\mu\text{m}$ 以下の粒子であれば、半値幅は170 keV未満で測定できることが分かった。

図4に、これらの粒子を測定した際に得られた $(^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am})/(^{238+239}\text{Pu})$ 放射能比および2008/7/14に精製されてからの経過年数から見積もった計算値を示す。放射能比が漸増するのは、 $^{241}\text{Am}$ が、プルトニウム同位体標準中に含まれる $^{241}\text{Pu}$ の壊変生成物として増加するためである。本法で作製された粒子径0.5  $\mu\text{m}$ 以上の粒子の場合、概ね誤差1 $\sigma$ の範囲で計算値と一致しており、本法が、 $^{241}\text{Am}$ を含むプルトニウム試料に対し、適用可能であると考えられる。

## 【今後の予定】

TIMS/連続昇温法により、プルトニウム粒子中の $^{241}\text{Am}/^{239}\text{Pu}$ 、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比が得られれば、本法と組み合わせることにより、 $^{241}\text{Am}$ を含む粒子であっても、 $^{238}\text{Pu}/(^{239+240}\text{Pu})$ 比を推定できると考えられる。また、同様に $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比から $^{241}\text{Am}/(^{239+240}\text{Pu})$ 比を推定できる。今後、これらの実験結果を元に、 $^{241}\text{Am}$ の分離精製時期を逆算・推定する予定である。

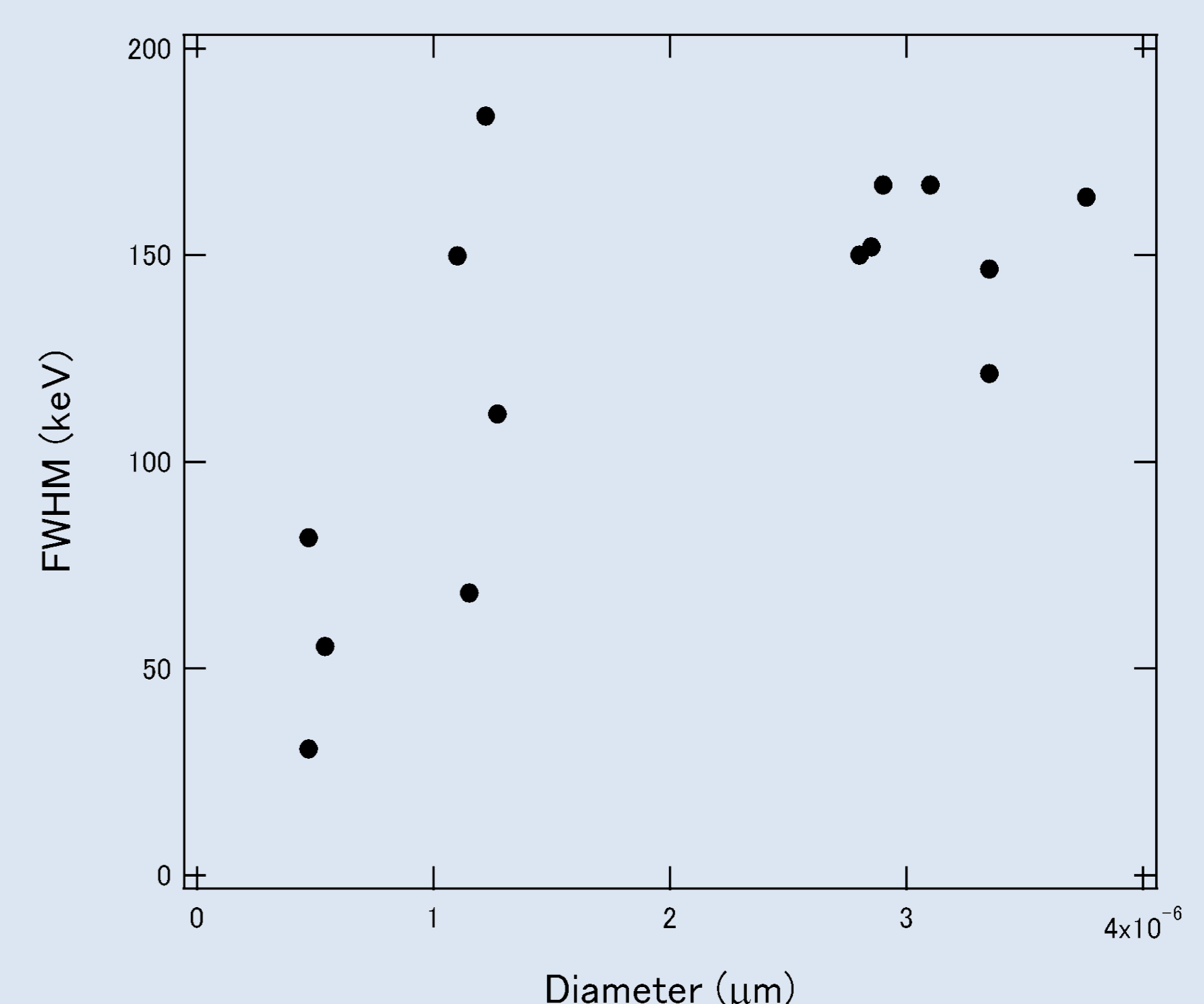


図3: 粒子径に対する $^{239+240}\text{Pu}$ ピークの半値幅

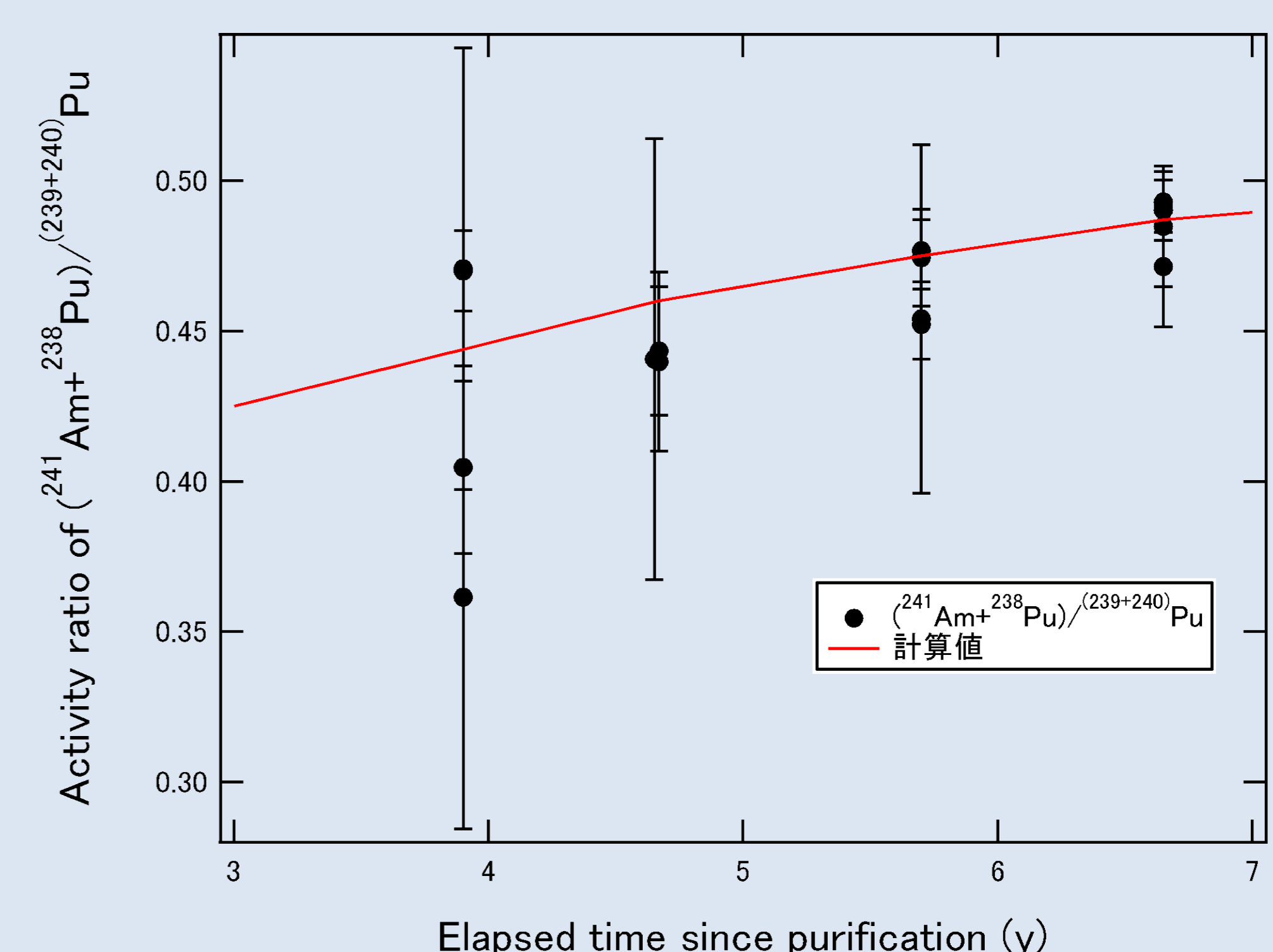


図4: 精製時期ごとの $(^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am})/(^{238+239}\text{Pu})$ 放射能比

## プルトニウム粒子を対象とした $\alpha$ 線測定による粒子中アメリシウムの定量法検討

(燃料サイクル安全研究ディビジョン 保障措置分析化学研究グループ)

原子力機構では、原子力施設等における未申告活動を検知する手段の一つとして、保障措置環境試料分析手法の開発を実施している。その一環として、これまでに施設等からの拭き取り試料(スワイプ)に付着した核物質を含む粒子をSEM-EDX(エネルギー分散型X線検出器付き走査型電子顕微鏡)により検出し、TIMS(表面電離型質量分析装置)により同位体組成を分析する手法を確立した。現在は、回収した粒子中のプルトニウムの有無を事前に確認するため、 $\alpha$ 線測定の適用性を検討している。

これまでに、TIMSに試料を導入するためのReフィラメント上にピックアップしたプルトニウム粒子を溶解し、 $\alpha$ 線測定によって $(^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am})/^{(239+240)}\text{Pu}$ 放射能比を得たうえで、続くTIMS測定により、プルトニウム同位体比測定を試みた。フィラメント上で溶解した粒子をTIMS/連続昇温法で測定した場合、フィラメント加熱電流を利用したアメリシウム・プルトニウムの明確な分離が困難であった。

本発表では、 $^{241}\text{Am}$ の定量を目的として、プルトニウム標準試料由来の粒子を $\alpha$ 線測定し、プルトニウム同位体組成の認証値と $(^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am})/^{(239+240)}\text{Pu}$ 放射能比を比較し、定量性を検討したので報告する。