

保障措置環境試料中に含まれるウラン微粒子の化学状態分析手法の開発

日本原子力研究開発機構 安全研究センター 保障措置分析化学研究グループ
蓬田 匠 yomogida.takumi@jaea.go.jp



Key point

マイクロサンプリングによりウラン微粒子を検出・移送し、顕微ラマン分光測定時の条件を最適化することで、サブミクロンサイズの微小なウラン微粒子の化学形を判別できた。

1. 背景

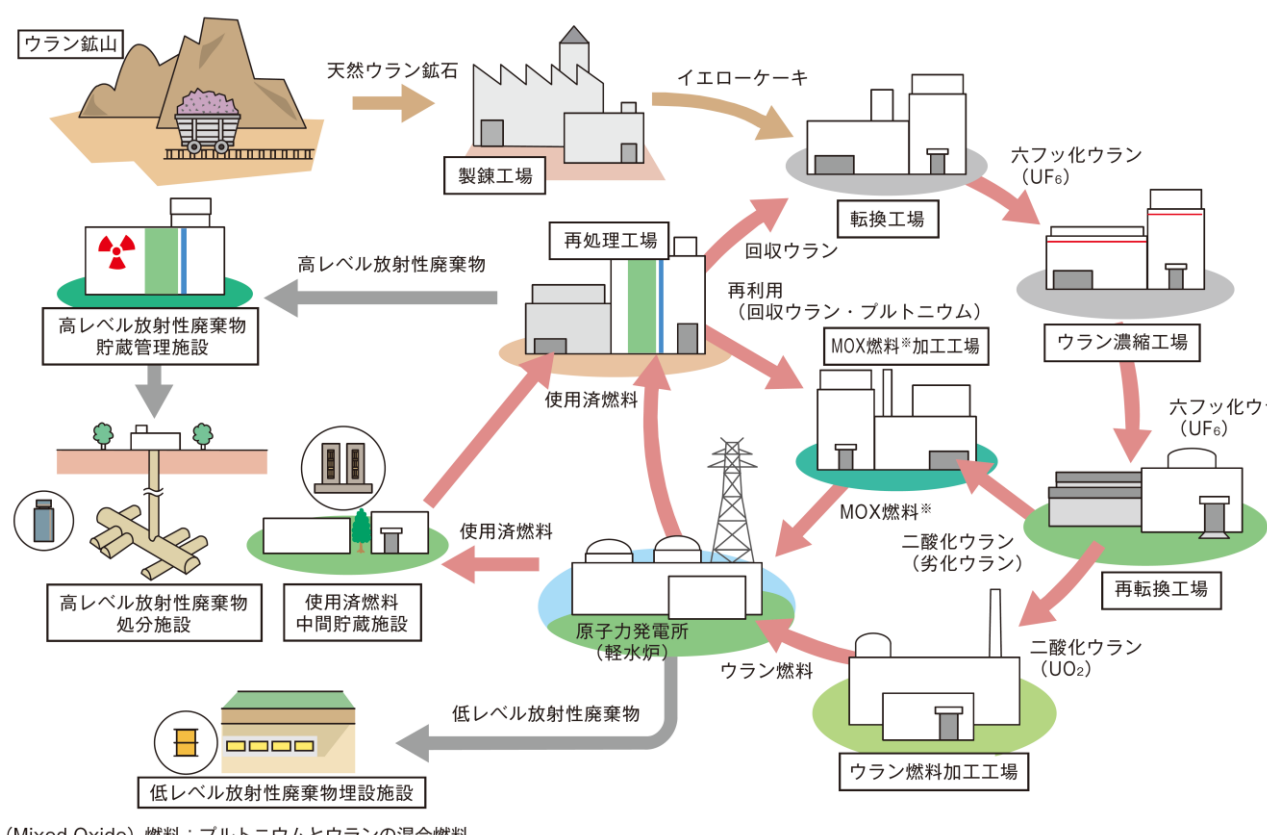
環境試料中に含まれるウラン微粒子の化学状態は、保障措置環境試料分析において重要な情報を持つ

環境試料中の微粒子の化学状態は、その粒子の起源や辿った履歴に関する情報を含んでいる。原子力施設で採取されたウラン微粒子の場合、その化学状態は精錬や濃縮工程で異なると予想されるため、原子力活動の推定において重要な情報を持つ。ただし、環境試料中に含まれるウラン微粒子には、その大きさが1 μm 以下という極めて小さい微粒子が存在し、化学状態を分析した例は希少である。

そこで本研究では、マイクロサンプリングと顕微ラマン分光分析を組み合わせた分析手順により、サブミクロンサイズのウラン微粒子に対する化学状態分析法について検討を行った。

ウラン微粒子の化学形

核燃料サイクルにおけるウランの加工工程



精錬・転換・濃縮過程で化学形が異なり保障措置上有用な情報を持つ

課題

1 μm 以下の極めて小さい微粒子に対して、その化学状態を分析するにはどのような方法が良いか？

2. 目的

環境試料中の粒形1 μm 以下の単一ウラン微粒子に対して化学状態を明らかにするために、顕微ラマン分光測定時の分析条件を最適化し、本法の有効性を検証する。

3. 実験

走査型電子顕微鏡-X線検出(SEM-EDX)によりウラン微粒子を検出し、単体分離後に顕微ラマン分光分析

拭き取り試料

微粒子の回収

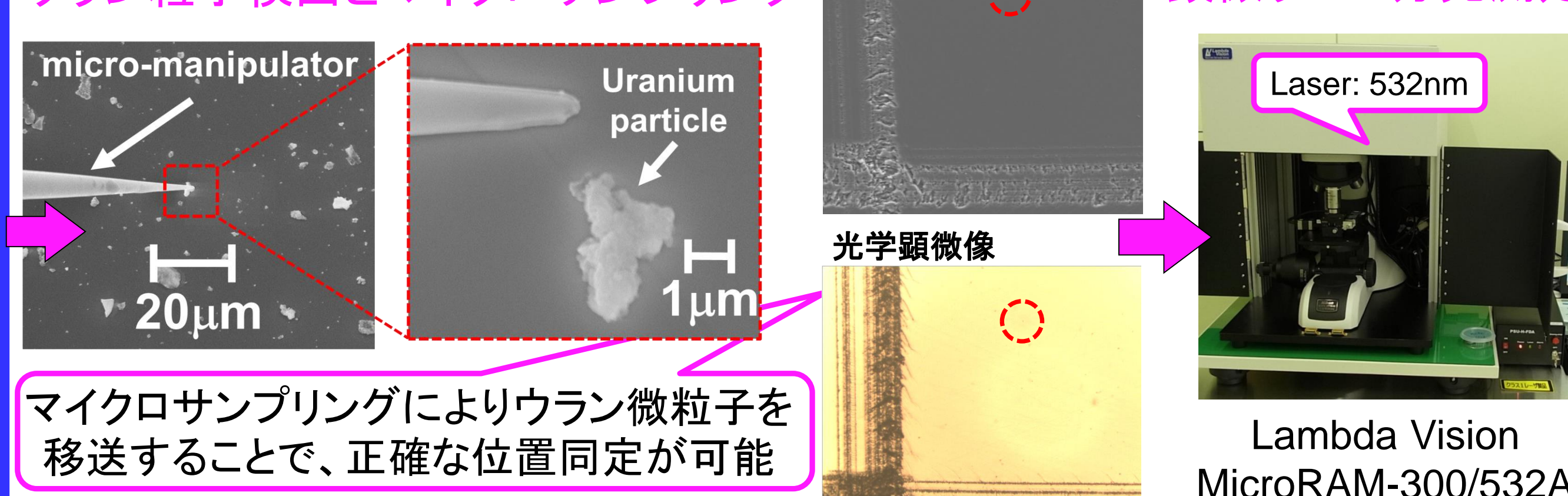
SEM-EDX測定



ウラン粒子検出とマイクロサンプリング

電子顕微鏡

顕微ラマン分光測定



保障措置環境試料分析とは？

原子力施設内外で採取された環境試料中の核物質(ウランやプルトニウムなど)の同位体比を分析

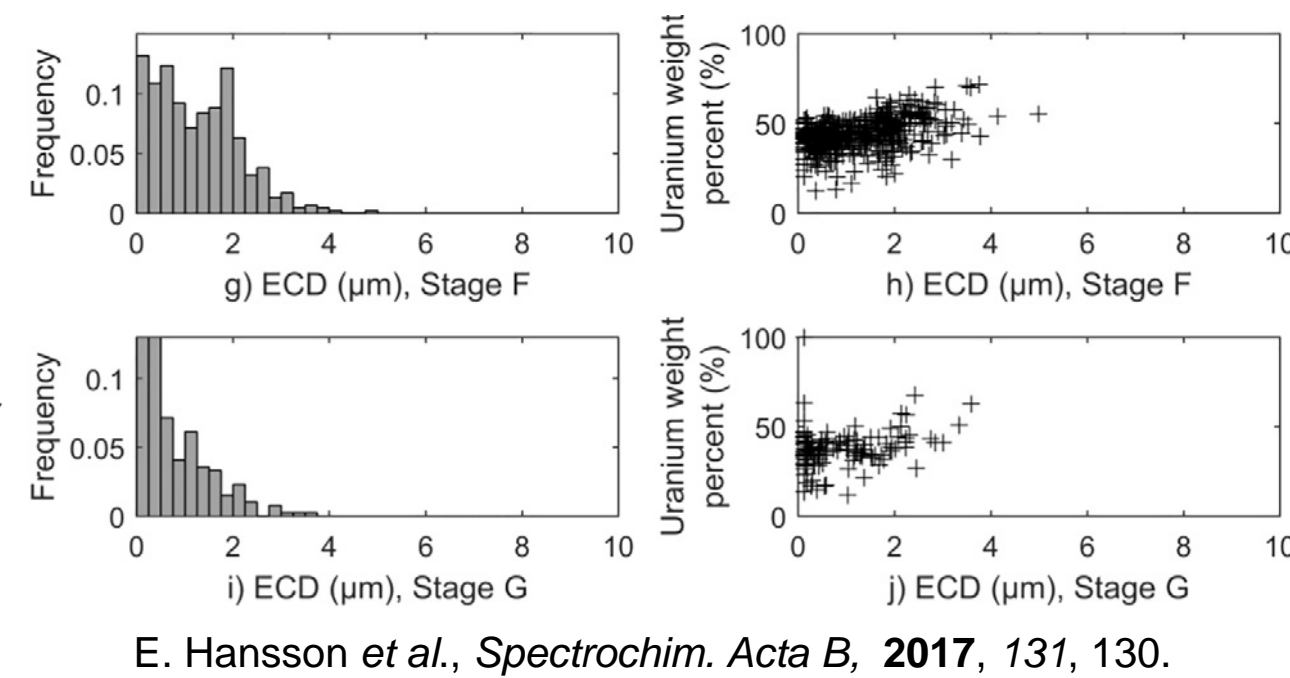


<https://www.iaea.org/newscenter/news/swipe-check-collecting-and-analysing-environmental-samples-nuclear-verification>
S. Boulyga et al., J. Anal. At. Spectrom. 2015, 30, 1469.

施設で行われる原子力活動(ウラン濃縮, 再処理, 核兵器開発等)を推定し, 未申告原子力活動を検知

原子力施設から放出されたウラン微粒子の粒形分布

原子力施設内で採取されたウラン微粒子の粒形分布の一例



E. Hansson et al., Spectrochim. Acta B, 2017, 131, 130.

環境試料中のウラン微粒子はサブミクロンサイズの微粒子が存在する場合がある

4. 結果と考察

化学形の明確な粒子を用いて測定時のレーザーパワーを最適化

参照試料(U_3O_8 , UO_2)のラマン分光測定時のスペクトル



レーザーパワー0.03 mWを測定に用いることで、サブミクロンサイズの U_3O_8 および UO_2 のラマンスペクトルを取得可能に

参照試料(UO_2)を用いたサブミクロンサイズのウラン微粒子の測定

既往の報告例*では、粒径700 nmまでのラマン分光分析例が存在



*F. Pointurier et al., J. Raman Microscop., 2013, 44, 1753.

*E. A. Stefaniak et al., Analyst, 2014, 139, 668.

最適化した測定条件を用いて、粒径700 nmの以下の UO_2 粒子のラマン分光測定を試みた



すべての粒子から、445, 586, 1150 cm^{-1} の UO_2 の構造に由来するピークを観測

成果

分析条件の最適化により、従来の報告例よりも微小なウラン粒子(粒形0.4 μm)に対して化学形を判別できた

5. 結論

マイクロサンプリング-顕微ラマン分光法におけるラマン分光測定条件を最適化し、サブミクロンサイズのウラン微粒子を検出して化学状態を判別できた。本法はウラン微粒子だけでなく、他の環境試料中の微粒子への適用も可能である。

6. 今後の課題

より微小なウラン微粒子の測定

検出器の高感度化などにより、短時間・極小パワーでの測定を可能に

7. 謝辞

本発表には、原子力規制庁から委託を受けて実施した「保障措置環境分析調査」の成果の一部が含まれる。