

日本原子力研究開発機構
安全研究・防災支援部門
安全研究センター 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



○富田涼平、富田純平、蓬田匠、
安田健一郎、鈴木大輔、江坂文孝、宮本ユタカ

0章:目次

1. グループの研究背景、概要

2. パーティクル分析とは

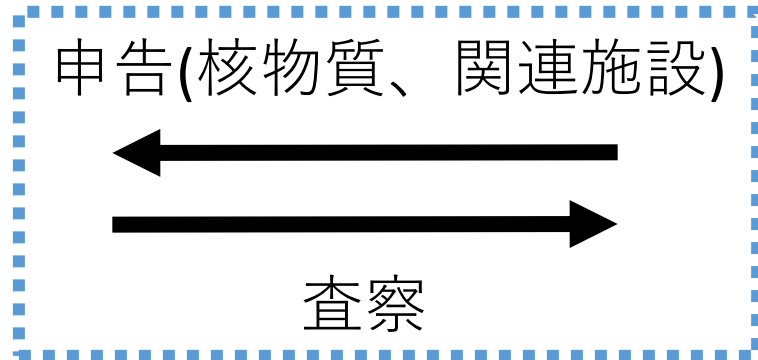
3. 近年の研究内容紹介

1. 環境サンプリング法の導入背景

核兵器不拡散条約(NPT)



IAEA



保障措置



NPT加盟非核兵器保有国

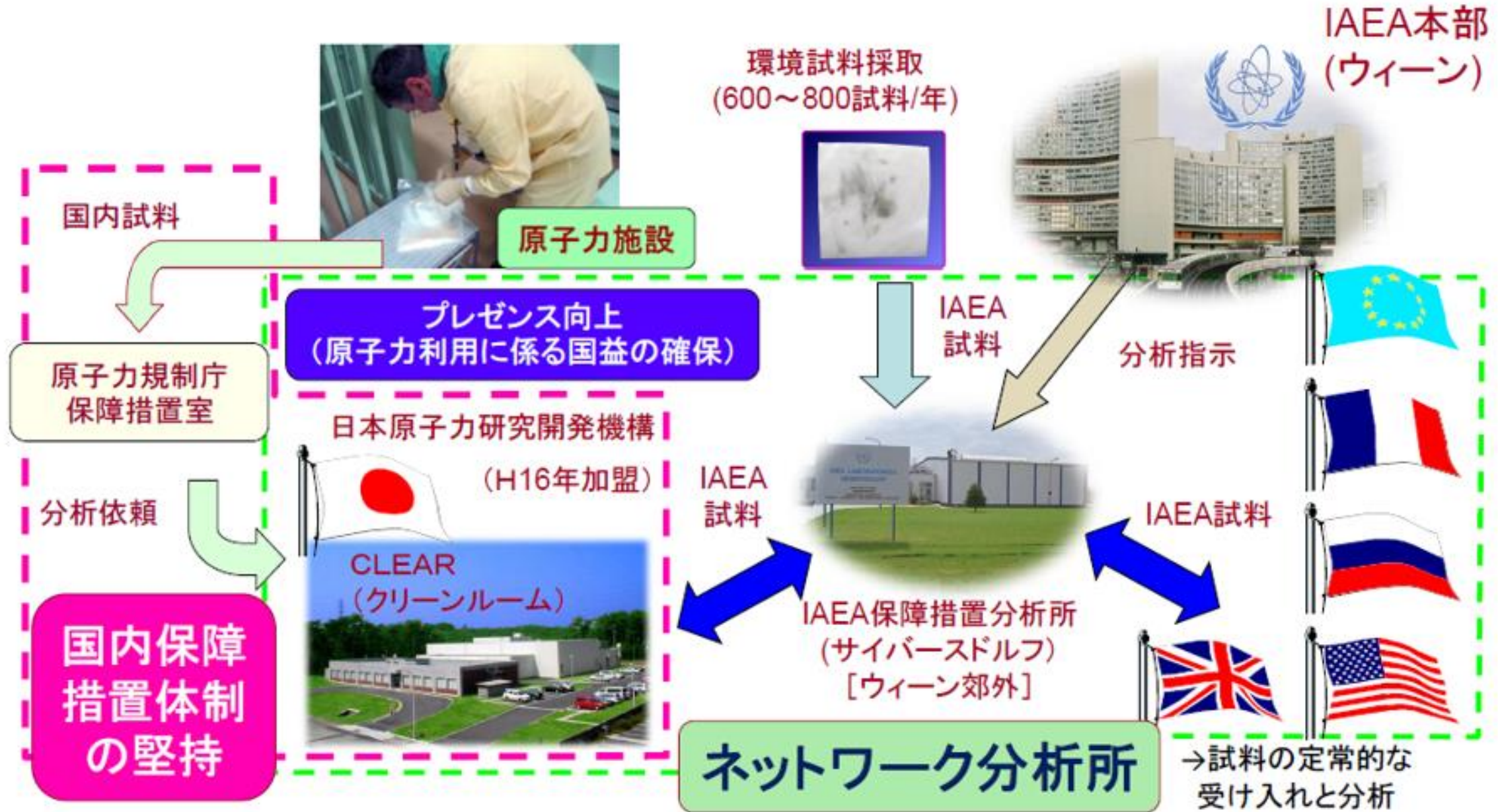
1990年北朝鮮の核開発疑惑
1991年のイラク未申告施設

秘密裡に行われる核開発の痕跡



**未申告の原子力活動の検知能力を高める
保障措置の強化が必要に**

2. 保障措置環境試料分析の位置づけ



国内試料



環境試料採取 (600~800試料/年)



原子力規制庁
保障措置室

プレゼンス向上
(原子力利用に係る国益の確保)

IAEA 試料

分析指示

分析依頼

国内保障
措置体制
の堅持

日本原子力研究開発機構



IAEA 試料

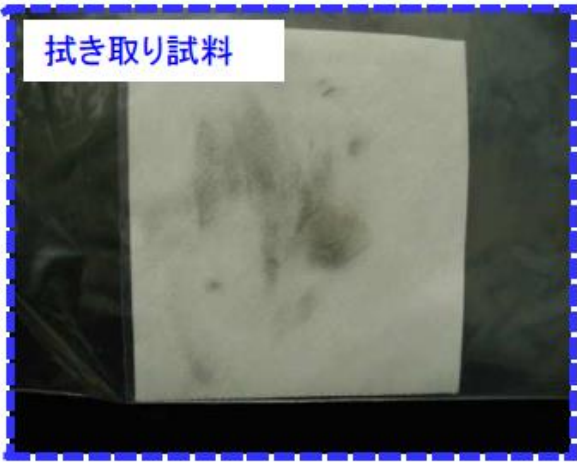
IAEA保障措置分析所
(サイバースドルフ)
[ウィーン郊外]



ネットワーク分析所

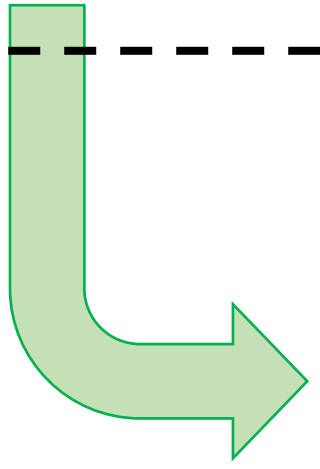
→試料の定常的な受け入れと分析

3. 環境サンプリング法(環境試料分析法)



試料中(極微量)
ウラン(U)
プルトニウム(Pu)

通常の実験室では精確な分析が困難



クリーンルーム内で
外界からの混入を避ける



NWAL

試料に含まれる核物質の
同位体組成や量を分析

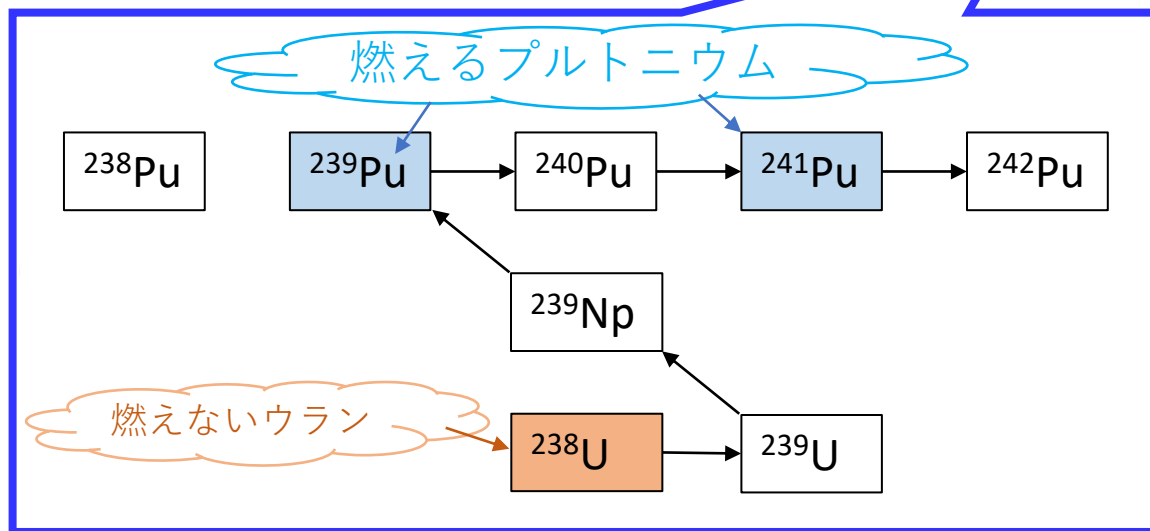
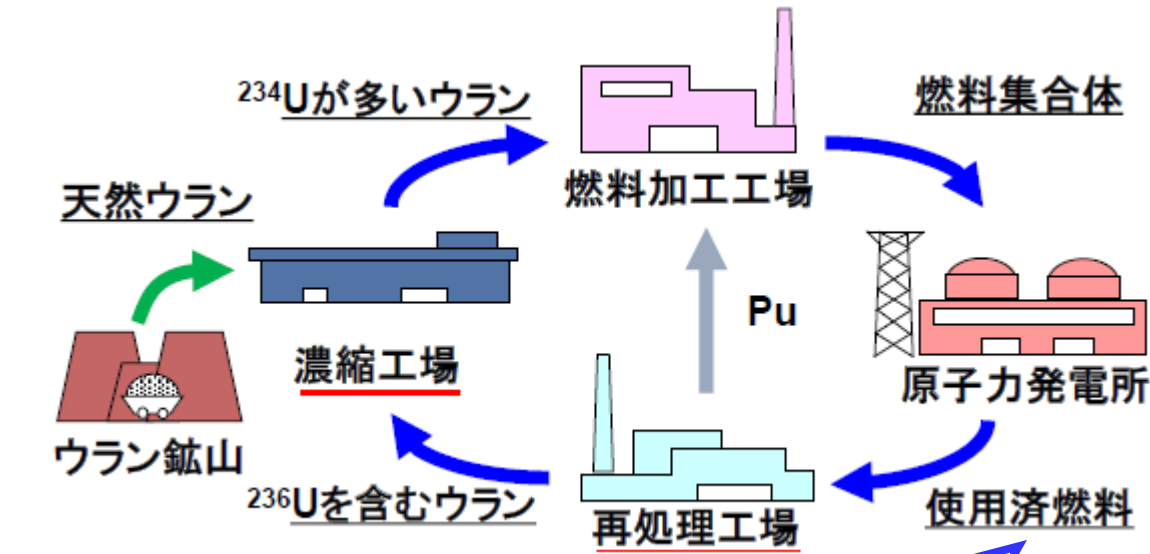


分析結果をIAEAに報告

IAEA

未申告の原子力活動、
核物質の存在を検知

4. ウランやプルトニウム同位体比の特徴



段階毎に同位体組成が変化

ウラン(U)の場合

U-235:軽水炉燃料2-4%

兵器級90%以上

U-234:濃縮の情報

U-236:再処理の情報



プルトニウム(Pu)の場合

$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$

兵器級(現在):0.06前後

兵器級(1960年以前):0.01以下

フォールアウト: 0.176 ± 0.014

原子炉級:0.2~0.5

5. バルク分析とパーティクル分析

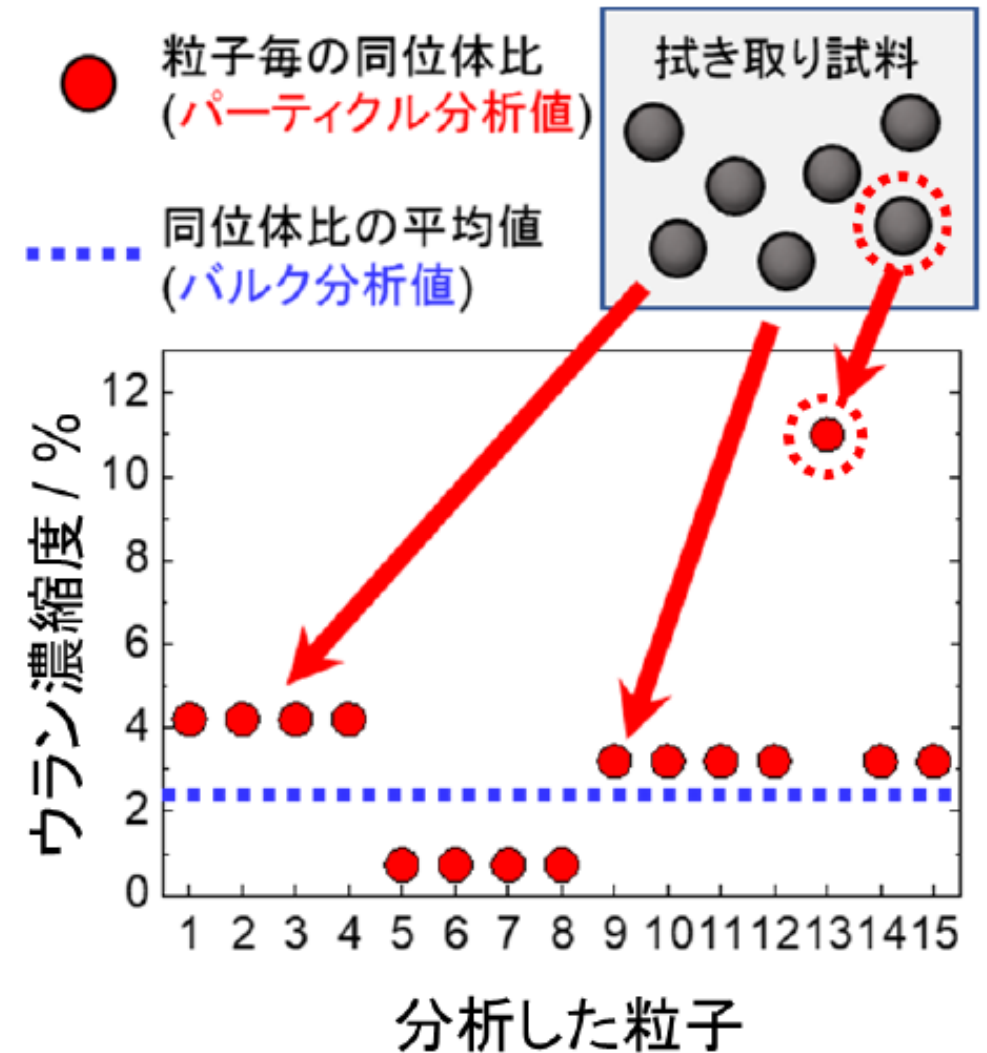
保障措置環境試料分析における極微量分析の手法

① バルク分析

- ・ 拭き取りを行った布1枚を丸ごと化学処理
- ・ 核物質の種類、量、同位体比を測定
- ・ 試料に付着した全体の量、同位体比が得られる
- ・ 超極微量(10^{-15} g)の人工ウラン(U-233,U-236)も測定可能
- ・ Puを化学分離すること、高感度の測定が可能

② パーティクル分析

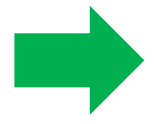
- ・ 試料中の粒子毎に同位体比が得られる
- ・ 拭き取り試料の同位体比分布が得られる
- ・ 特徴的な同位体組成を持つ粒子も逃さずに検知可能



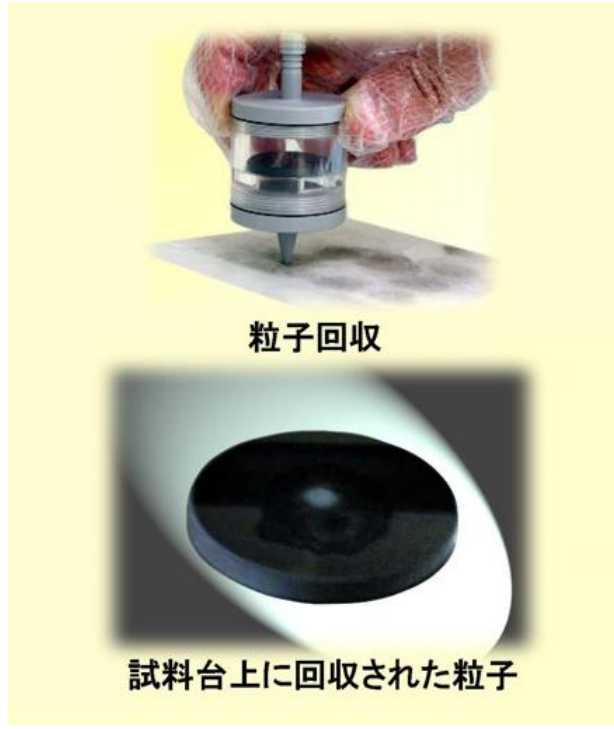
2章:パーティクル分析とは

1. パーティクル分析の手順

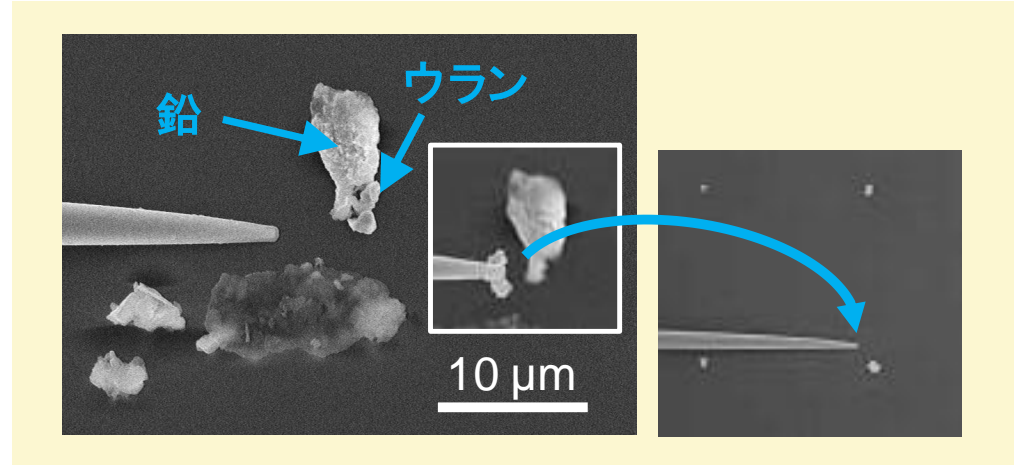
①スワイプ試料



②粒子回収
(インパクター法)



②-2マイクロマニピュレーション
(走査型電子顕微鏡(SEM))



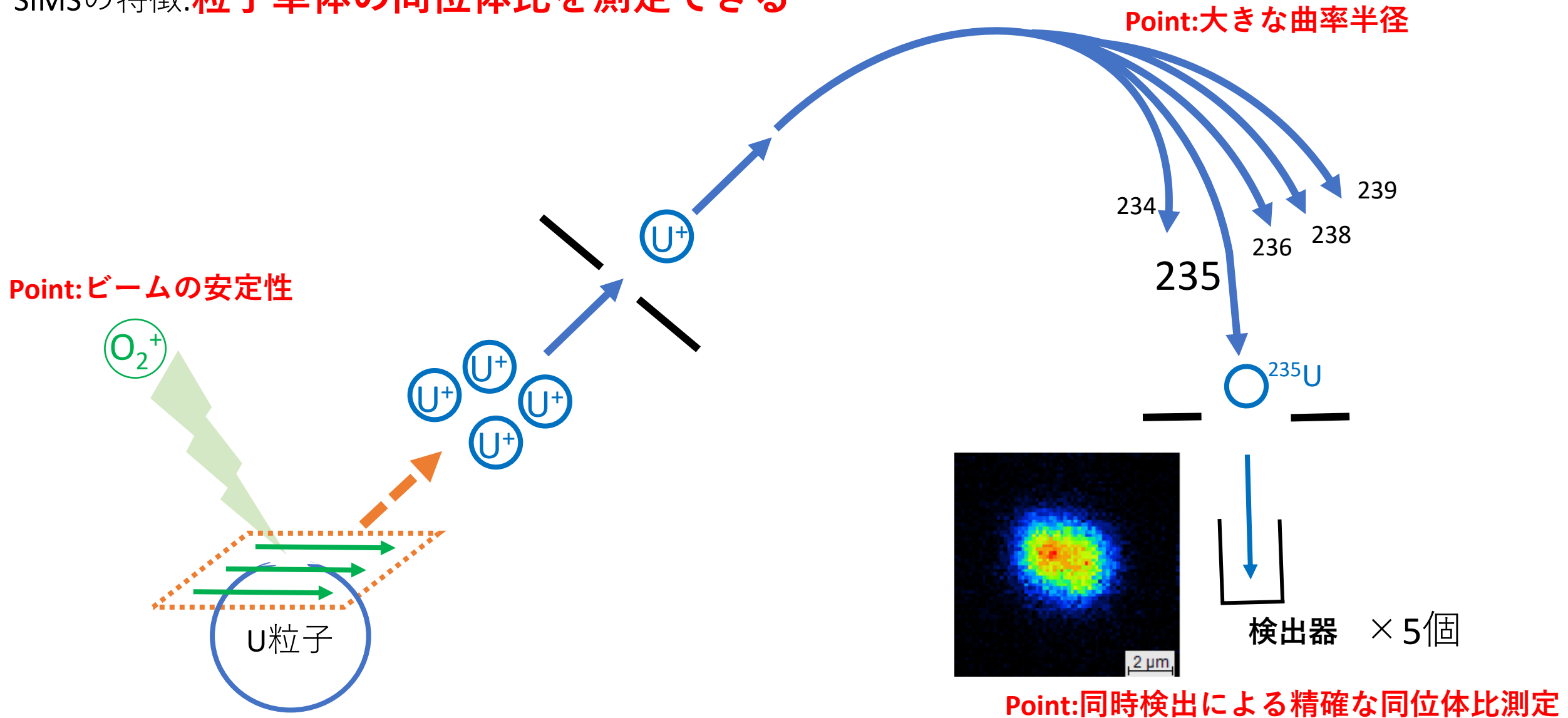
③同位体比分析(SIMS装置)



スクリーニング
+
粒子毎の測定

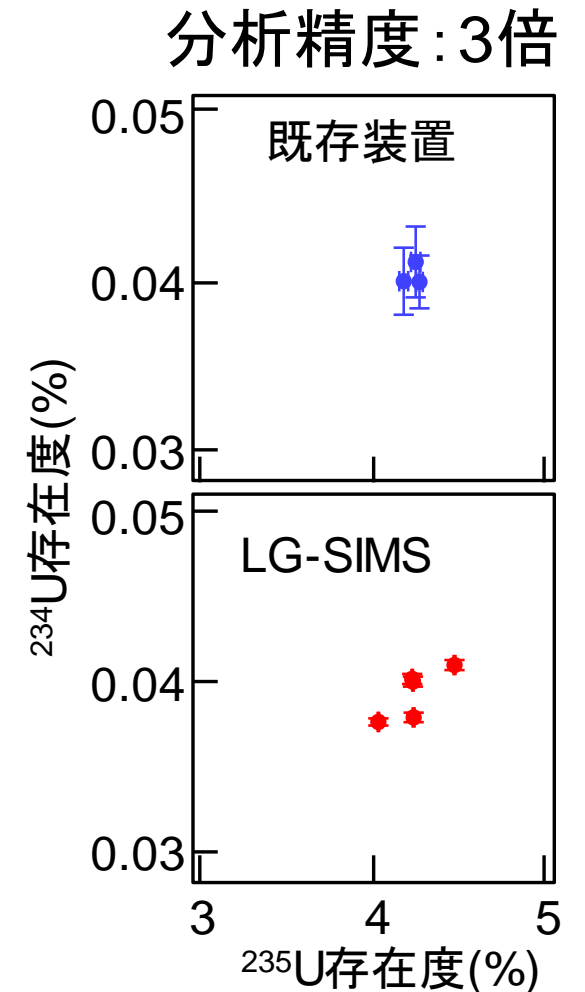
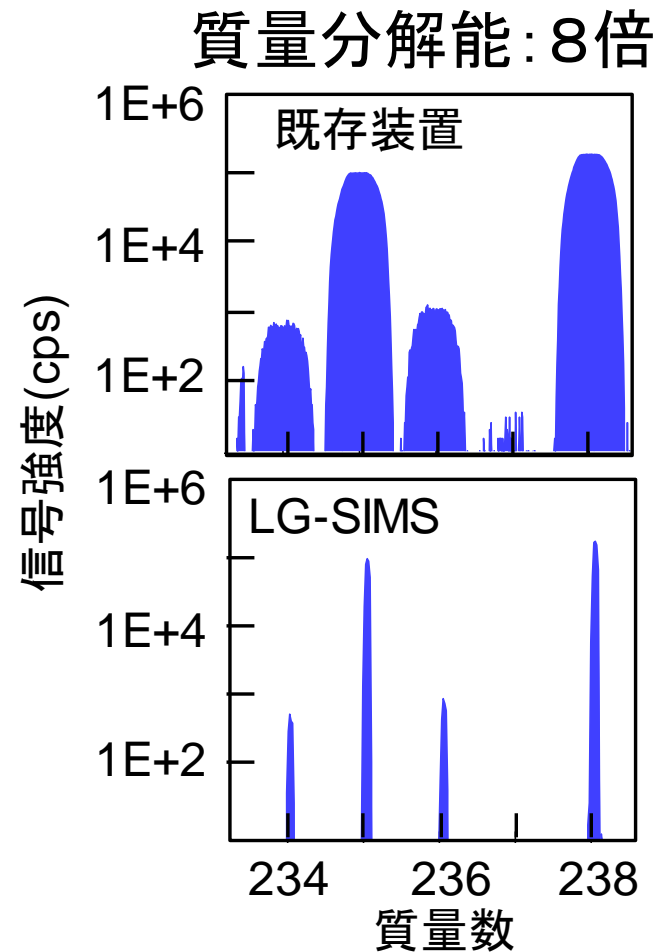
2. 二次イオン質量分析の概要

SIMSの特徴: **粒子単体の同位体比を測定できる**



3. 大型二次イオン質量分析装置(LG-SIMS)の適応

LG-SIMS装置



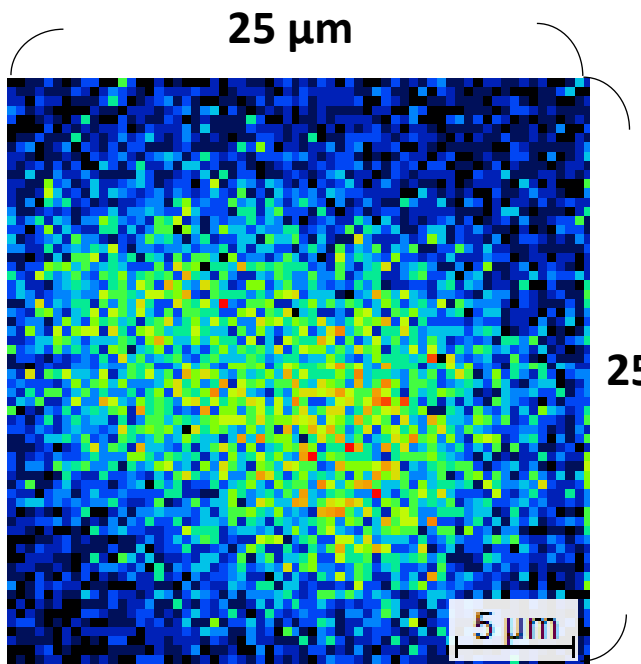
LG-SIMSによって、より精度の高いパーティクル分析が可能に

3章:近年の研究内容(パーティクル分析)

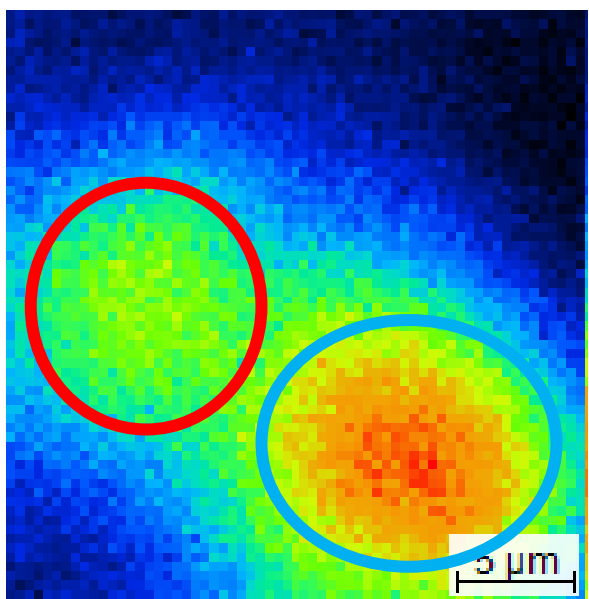
1. パーティクル分析時に見られる粒子のミキシング

粒子のミキシングとは

分析者が目にする
二次イオンイメージ



40 cycleを積算した
二次イオンイメージ



分析後に確認



$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$

全体: 1.97×10^{-1}

左上: 2.44×10^{-1}

右下: 1.56×10^{-1}

異なる同位体比の粒子が混在することで誤った同位体比が得られる

2. ミキシングがAPMに与える影響の評価と低減方法:実験

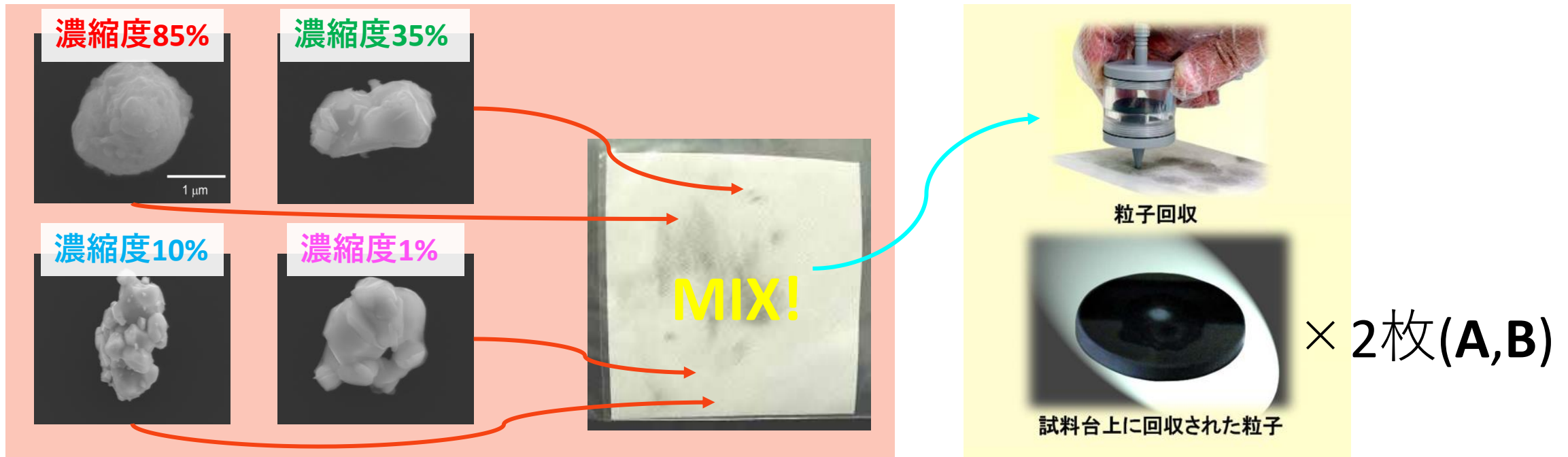
目的

粒子のミキシングが**APM(スクリーニング)**に与える影響を評価、低減方法を模索する。

* Automated Particle Measurement

実験手順①

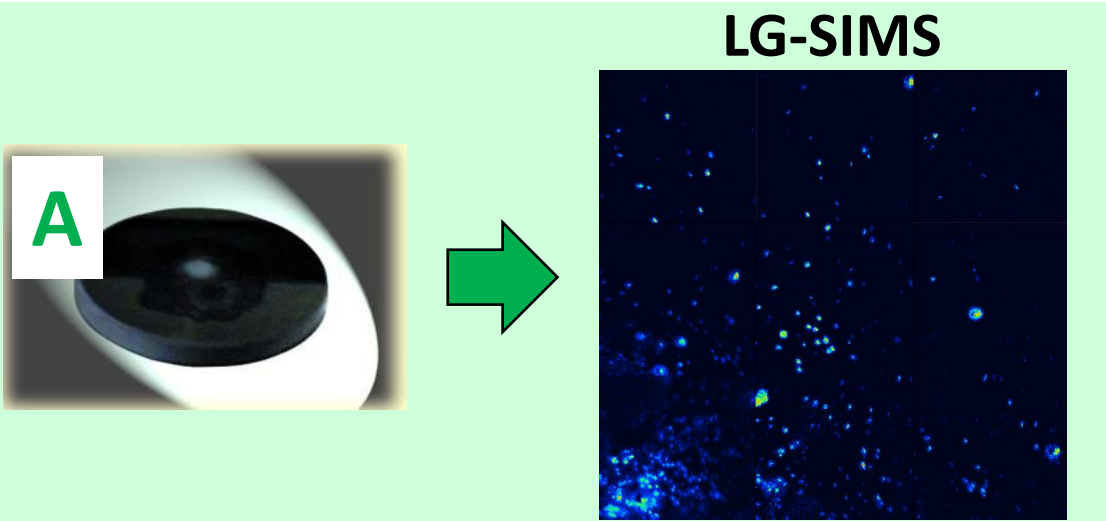
4種の標準ウラン粒子(濃縮度85%,35%,10%,1%)を混合した試料を作成する。



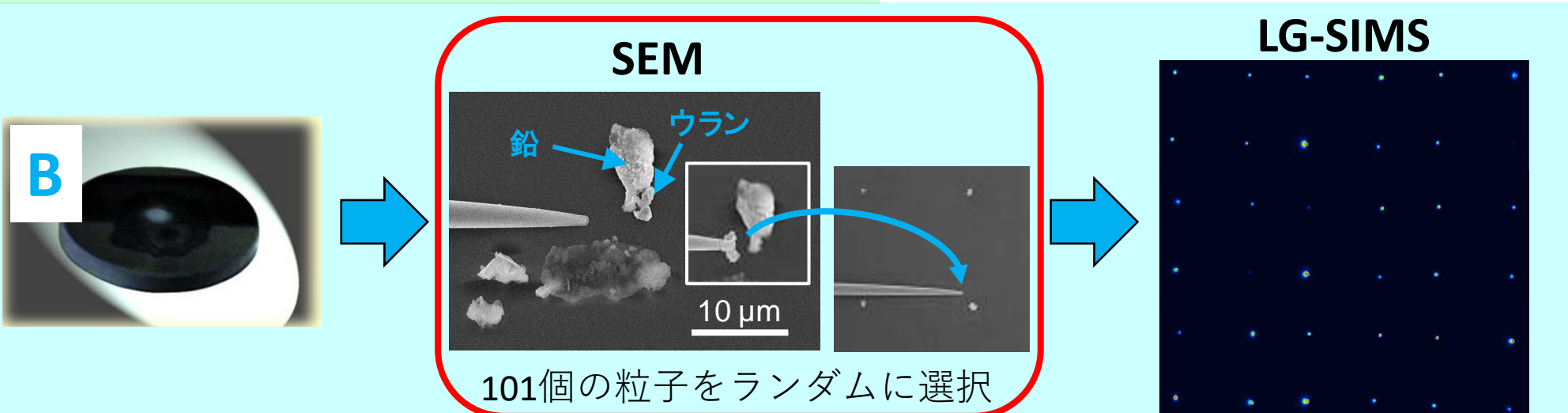
2. ミキシングがAPMに与える影響の評価と低減方法:実験

実験手順②

標準粒子混合試料(A,B)を異なる前処理を施し、**APM**を行う。

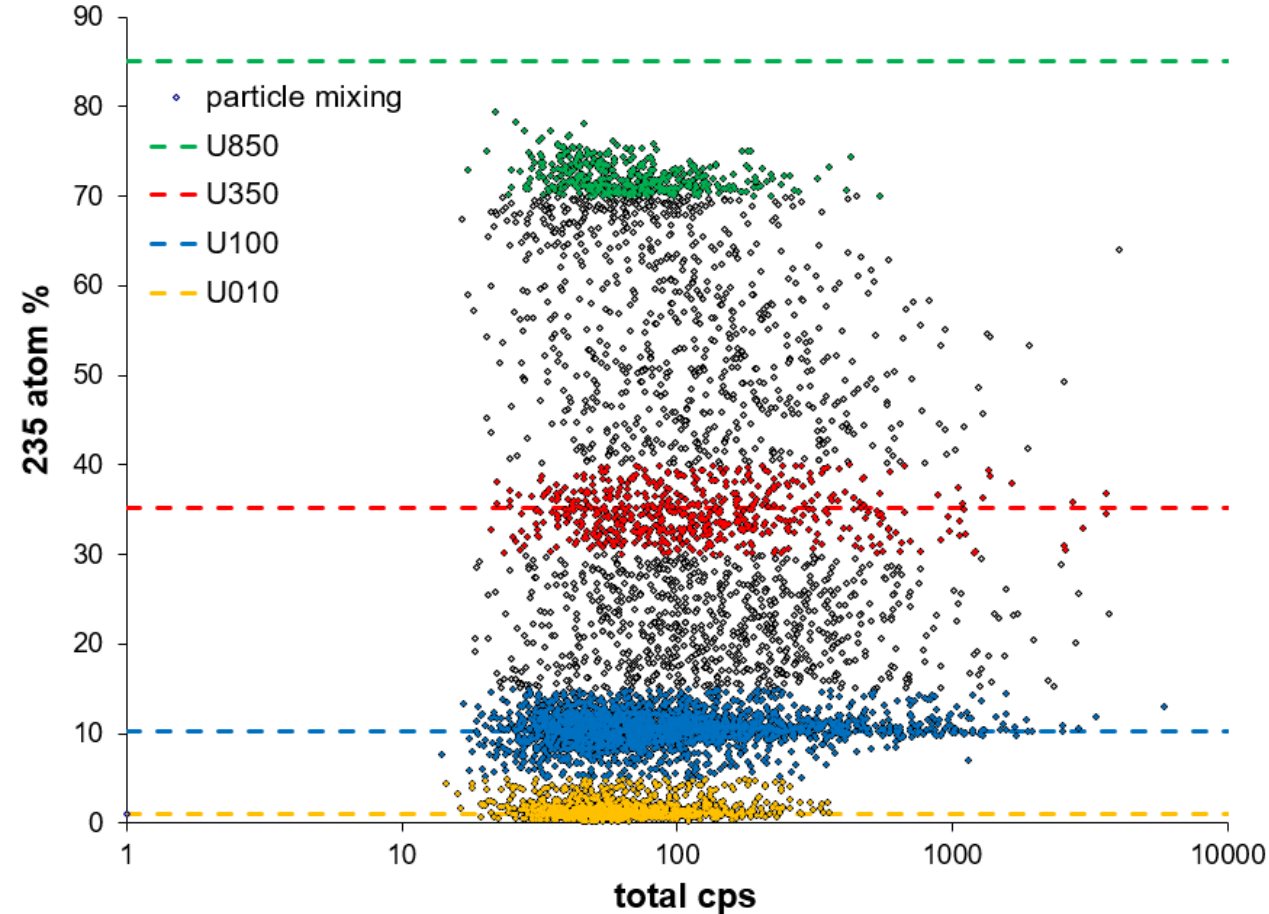


APM測定条件	(A)通常のAPM	(B)マニピュレーションAPM
一次イオンビーム電流値	1.5 nA	15 nA
単位測定領域(μm^2)	350 × 350	500 × 500
測定時間(+測定前照射)	9 s (+2 s)	18 s (+10 s)
APM測定時間	7.5 h	30 min



3. ミキシングがAPMに与える影響の評価と低減方法:結果

(A) 標準ウラン粒子混合試料のAPM結果



① 粒子のミキシング

粒子検出数 5976個
ミキシング粒子数 1946個

検出数の3割が誤った同位体組成を示した

② 想定外の問題

U850クラスター濃縮度が10%程シフト

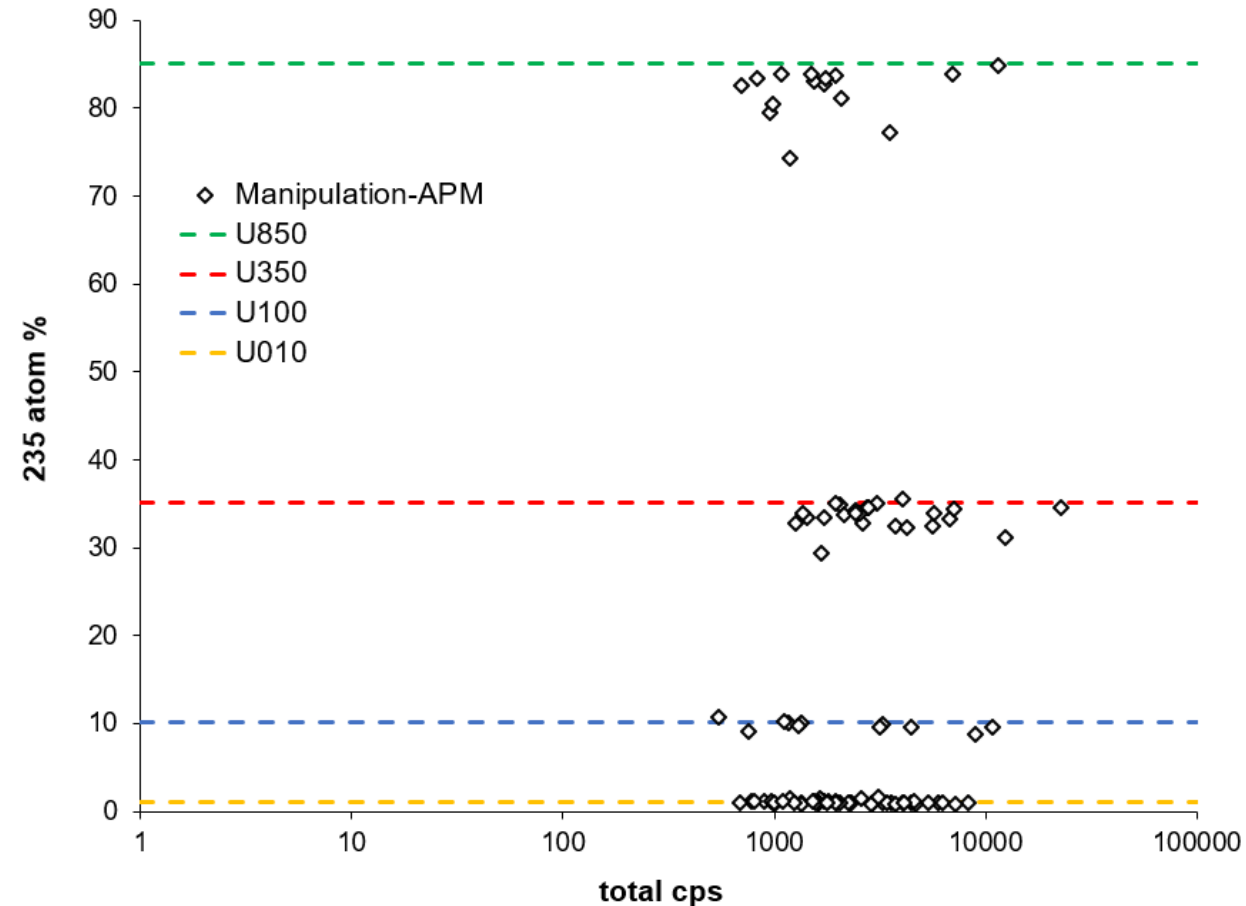
85%
↓
70~75%

ウラン水素化物生成比: 通常: $6.0 \times 10^{-4} \sim 2.0 \times 10^{-3}$
混合標準: $4.3 \times 10^{-2} \sim 5.7 \times 10^{-1}$

$^{235}\text{U}^1\text{H}$ を ^{236}U と合わせて検出
→ → ^{235}U の存在率が見かけ上低下した

3. ミキシングがAPMに与える影響の評価と低減方法:結果

(B) マニピュレーションAPMの結果



① 粒子のミキシング

粒子検出数 101個
 参照値±5%に収まらない粒子 4個

試料に含まれるクラスターを正確に把握

② 水素化物生成比の問題

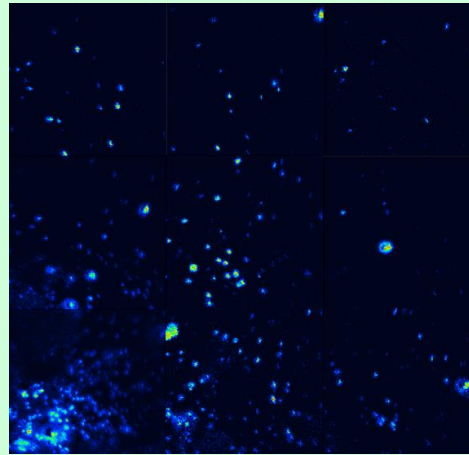
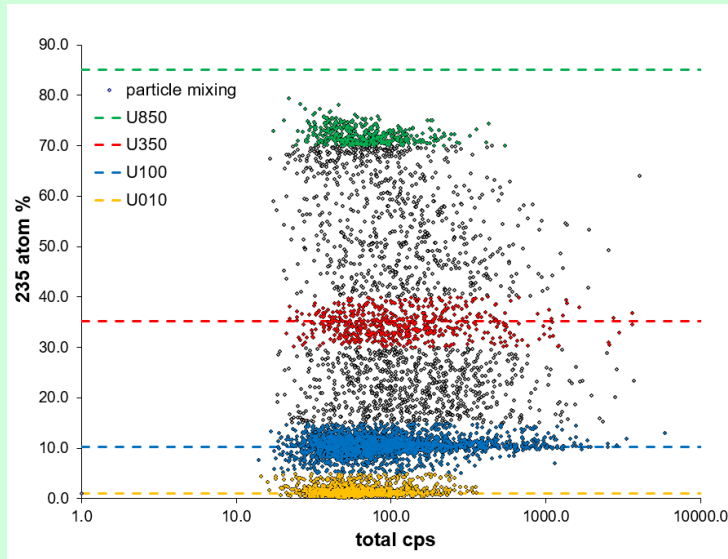
通常: $6.0 \times 10^{-4} \sim 2.0 \times 10^{-3}$
 ウラン水素化物生成比: 混合標準: $4.3 \times 10^{-2} \sim 5.7 \times 10^{-1}$
 Mani-APM: $9.4 \times 10^{-3} \sim 3.7 \times 10^{-2}$

**測定前照射時間を長く設定できるので
 水素化物生成比も改善**

ミキシングが起こらない+APMの範囲を狭い領域に限定
 電流値増加に伴う分解能の低下が問題を起こさない
 測定時間の設定を柔軟にできる

4. ミキシングがAPMに与える影響の評価と低減方法:まとめ

通常のAPM



メリット:

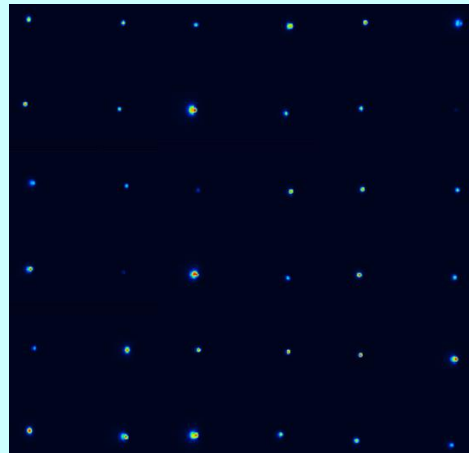
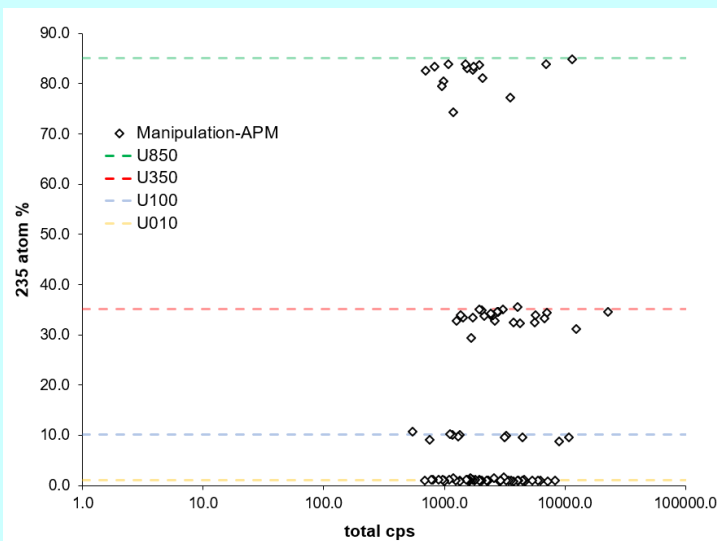
一度のAPMで大量の粒子を検出できるため、取りこぼしが少ない。

デメリット:

粒子が密集してミキシングを起こす可能性がある

高い電流値を要するため分解能を高めることが難しい

マニピュレーションAPM



メリット:

粒子間距離が確保されているためミキシングが起こらない

電流値の増加に伴う分解能の低下に影響を受けない

測定前照射時間等の設定を任意に延ばすことが可能

デメリット:

試料内に極微数存在する粒子を取りこぼす可能性がある

5. ミキシングがAPMに与える影響の評価と低減方法:結論

マニピュレーションAPMの成果

- ①粒子のミキシングを排除することでAPMで精確なスクリーニング結果を得ることに成功した。
- ②測定前照射時間を長く設定してもAPM総分析時間が30分で抑えられ、水素化物生成比が高い試料でも同位体組成を正しく把握できた。

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。