

令和3年度
原子力規制庁技術基盤グループ-原子力機構安全研究・防災支援部門
合同研究成果報告会

原子力機構保障措置分析化学研究Grの研究概要 及び

高水素化物生成比を示す高濃縮ウラン粒子 に対するSIMS-APMの最適化

令和3年11月2日

国立研究開発法人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
保障措置分析化学研究グループ

富田 涼平、富田 純平、安田 健一郎、鈴木 大輔、宮本 ユタカ

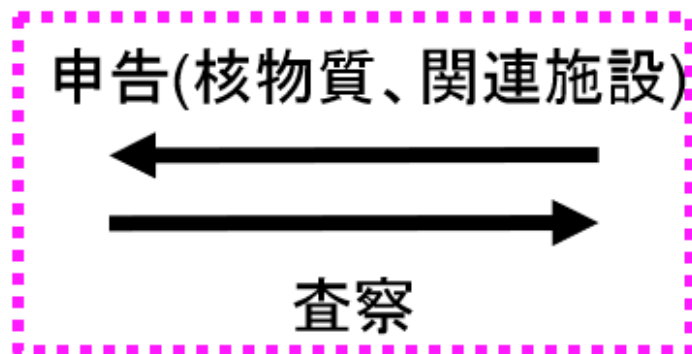


保障措置とは～背景～

核兵器不拡散条約(NPT)



IAEA



保障措置



NPT加盟非核兵器保有国

しかし...

1990年北朝鮮の核開発疑惑
1991年イラクの未申告施設

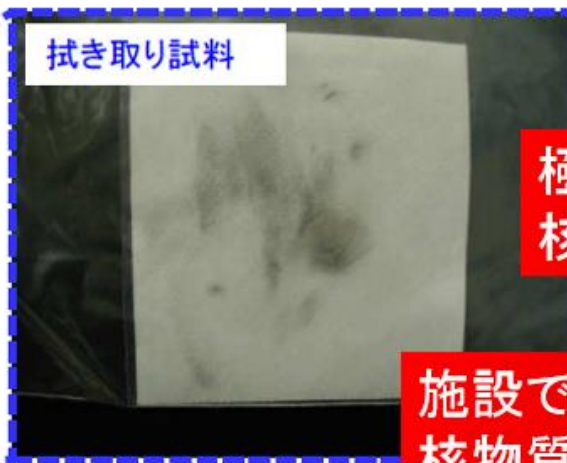
秘密裡に行われる核開発の痕跡

発見

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

保障措置とは～環境サンプリング法～

保障措置強化のために1996年に導入
IAEA査察官が原子力施設で立ち入り検査
施設内部、周辺から環境試料(拭き取り試料)を採取

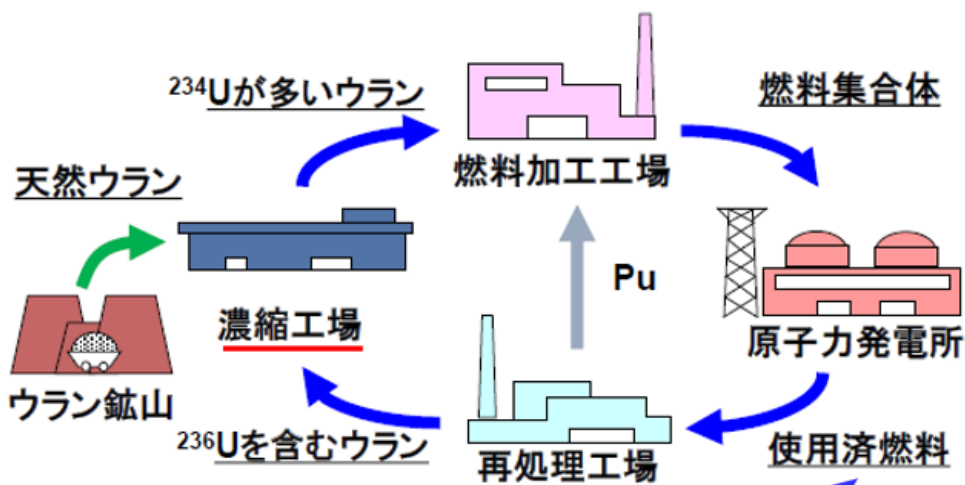


極微量の
核物質を含有

施設で取り扱われている
核物質の特徴を反映

環境試料に含まれる核物質の同位体組成を分析
→未申告の原子力活動、核物質の存在を検知

保障措施とは～同位体比からわかること～



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

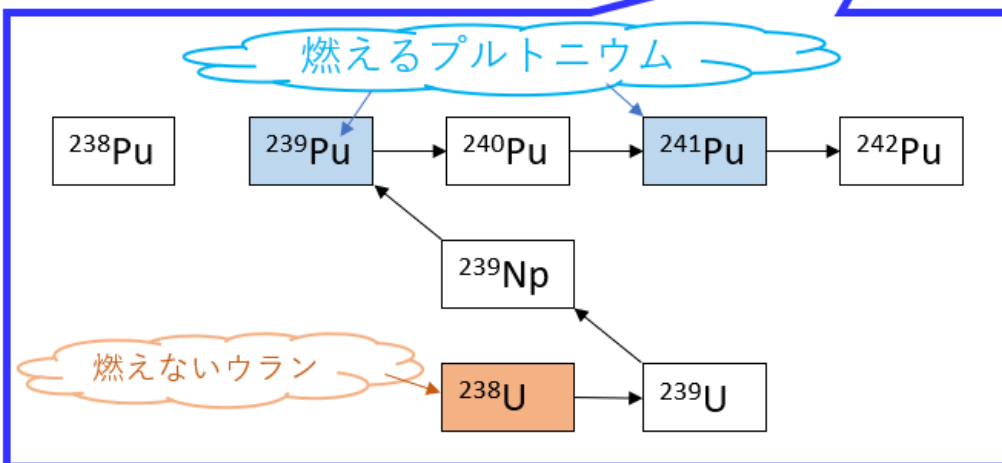
$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$

兵器級(現在): 0.06前後

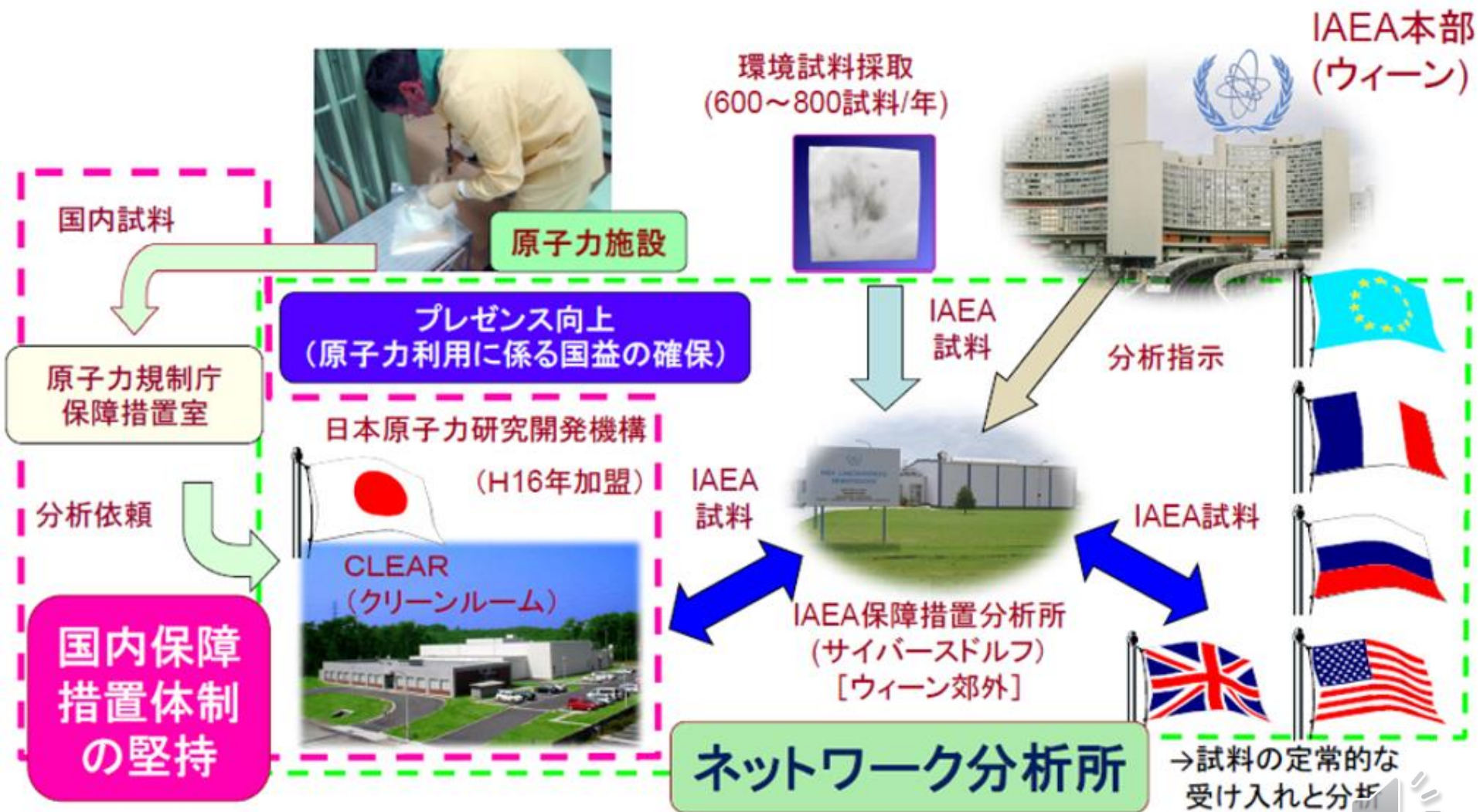
兵器級(1960年以前): 0.01以下

フォールアウト: 0.176 ± 0.014

原子炉級: 0.2~0.5



保障措置とは～IAEAとネットワーク分析所～



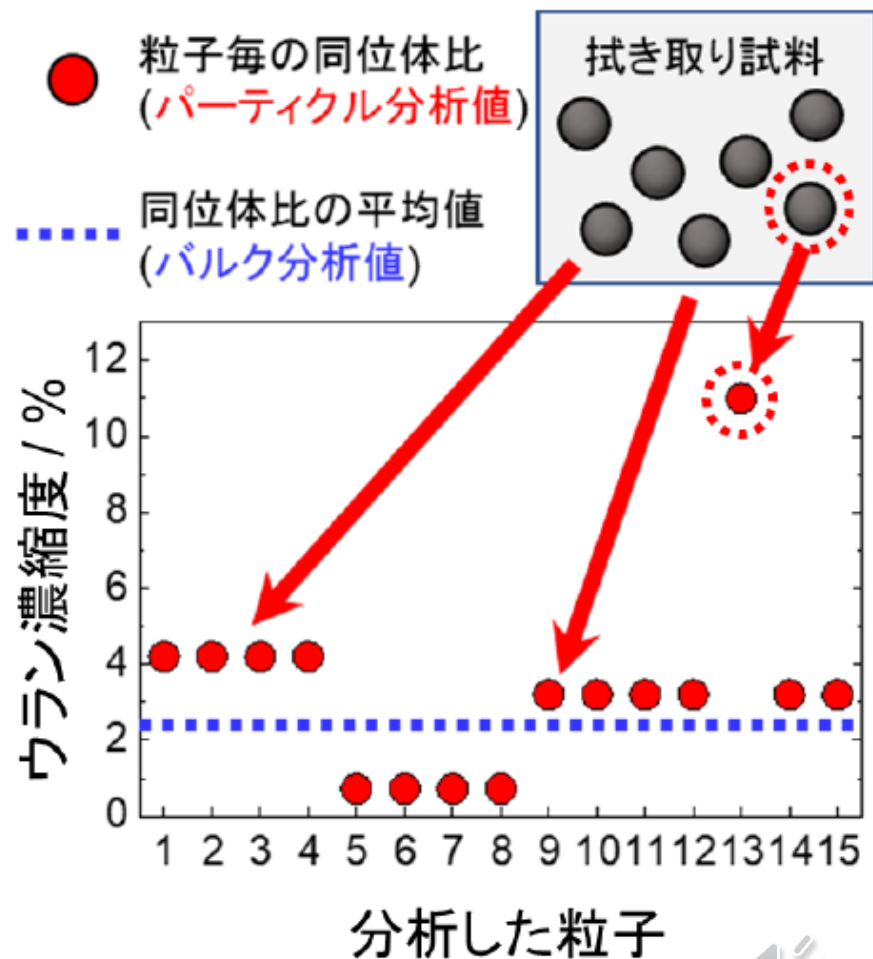
保障措置とは～分析手法～

①バルク分析

- 拭き取り試料1枚を丸ごと化学処理
- 核物質の種類、量、同位体比を測定
- 試料全体の量、同位体比を得る
- 超極微量(10^{-15} g)の人工ウラン (U-233,U-236) も測定可能
- 化学分離によって高感度の測定

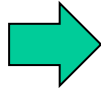
②パーティクル分析

- 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
- 化学分離をしないため短時間で分析可能

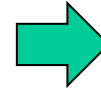
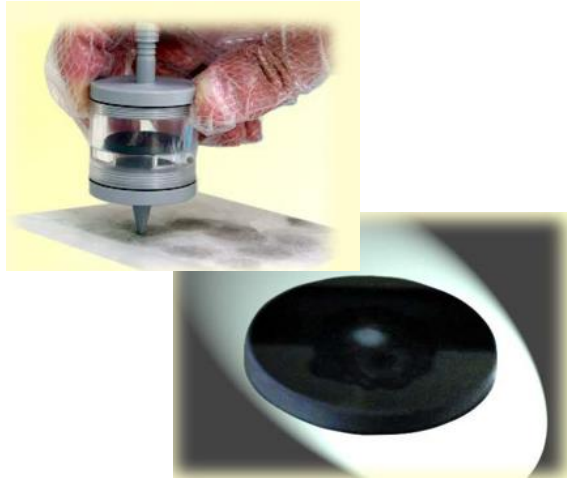


研究内容~SIMS分析とは~

①試料



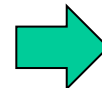
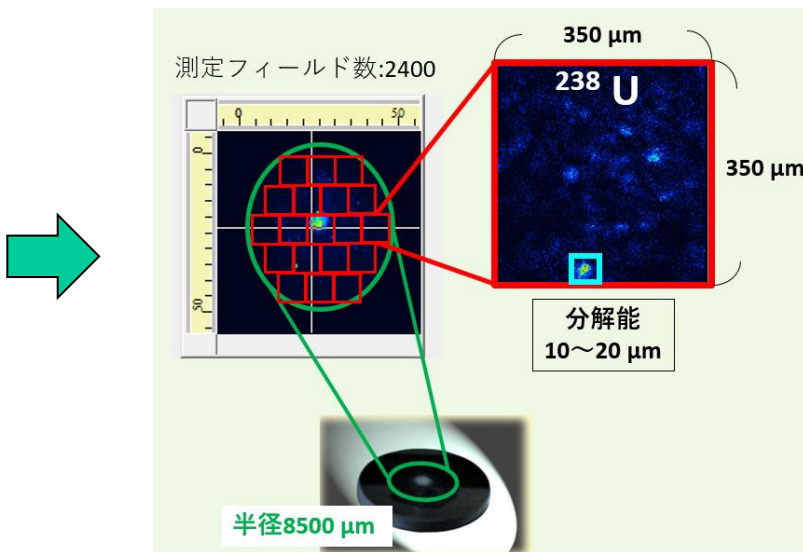
②粒子回収



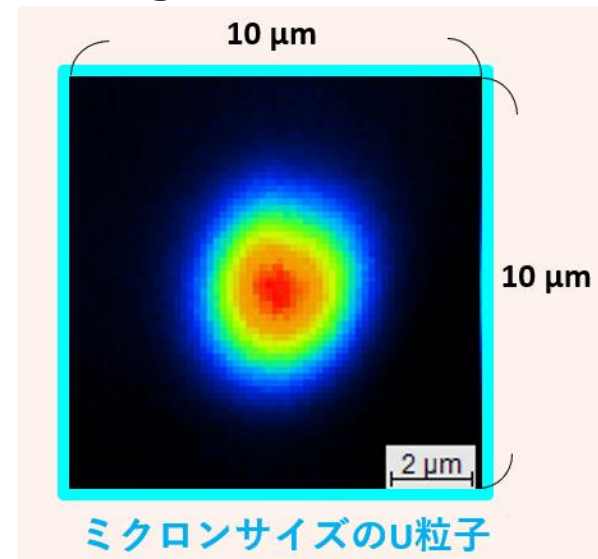
③装置導入



④APM(粒子位置、濃縮度の特定)

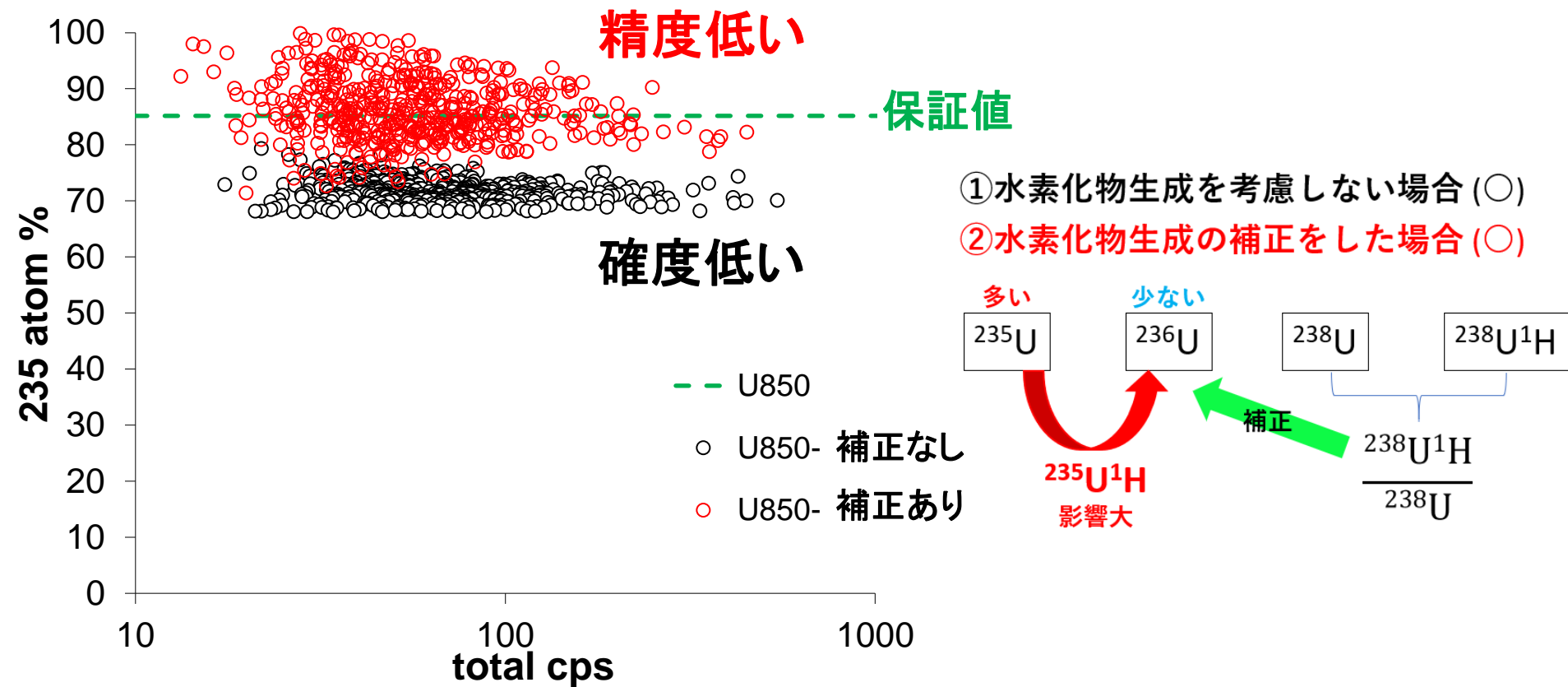


⑤精密分析



研究内容~SIMS分析で見られる問題~

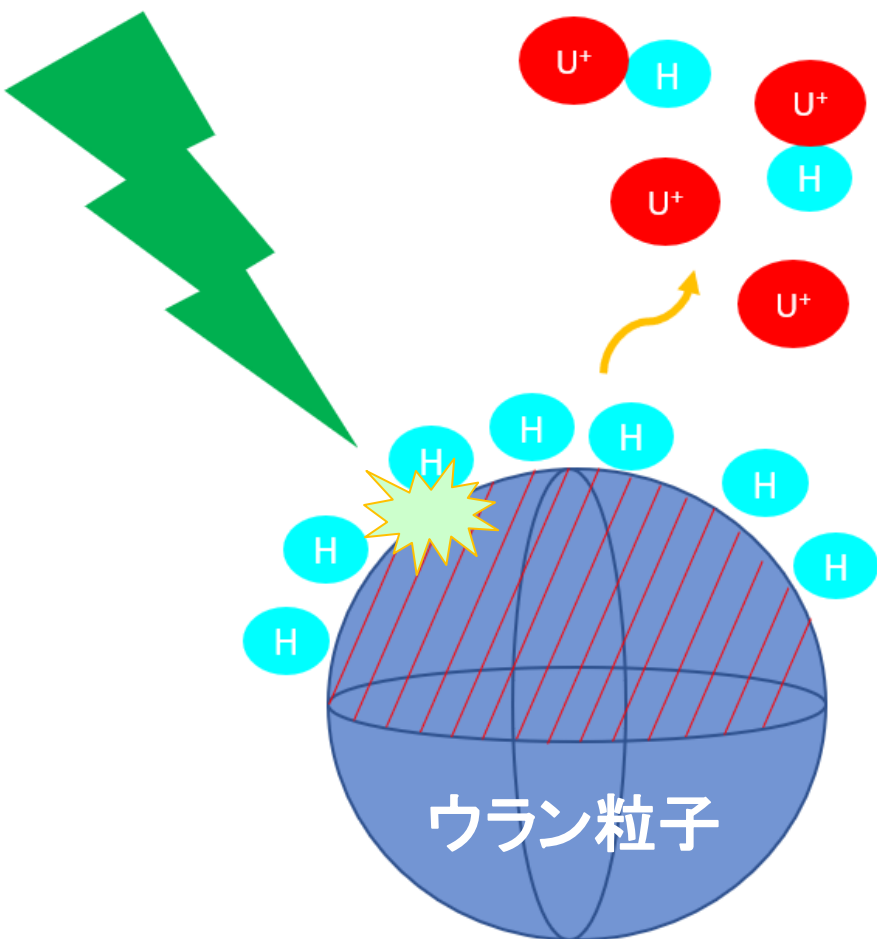
高水素化物生成比を示すウラン標準粒子に対するAPM



水素化物生成がAPMの精度、確度を低下させる場合がある

研究内容~問題の原因~

APMのイメージ



表面は大気接触等で変質し易く、
水素化物が発生し易い

+

APMでは
粒子の表面から二次イオンが発生

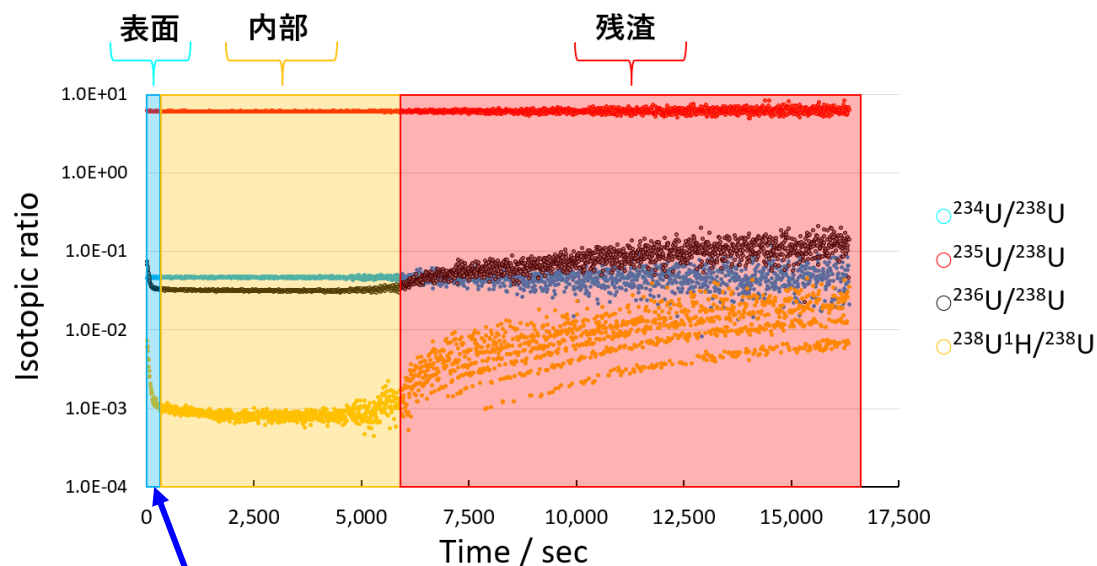
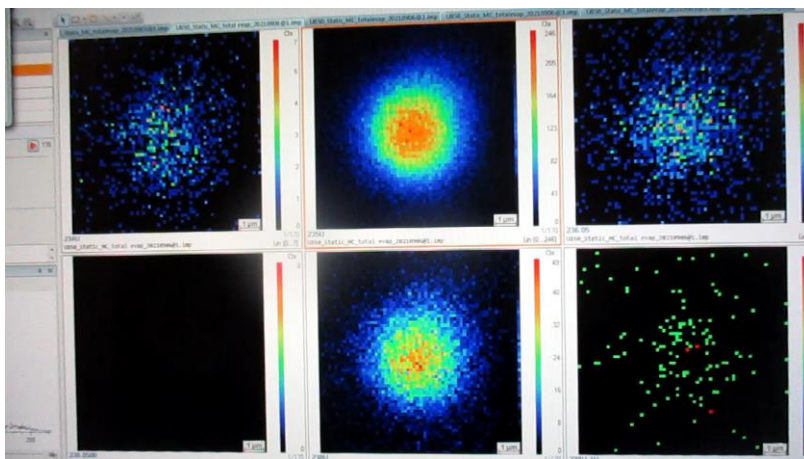


APMの結果は特に
水素化物の影響を受けやすい

研究内容～解決案と実験～

①変質した表面が粒子全体の何%を占めるか求める

実験: 粒子の全損分析

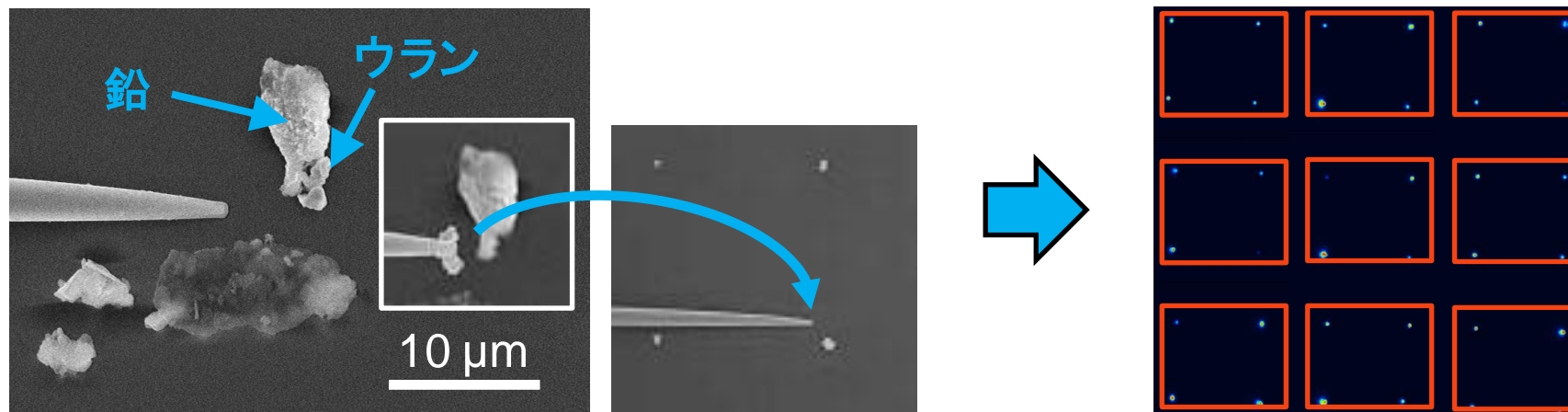


粒子1個の何%が水素化物生成が起こりやすい部分か計算できる

研究内容～解決案と実験～

②粒子表面を測定前に消耗させるスクリーニング手法、条件を求める

実験：粒子のマニピュレーションと①の結果を踏まえたAPM



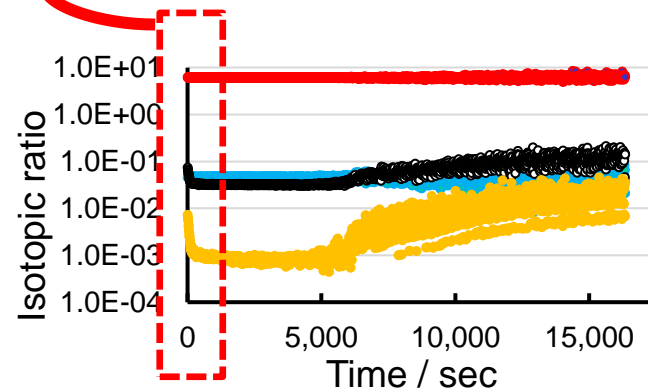
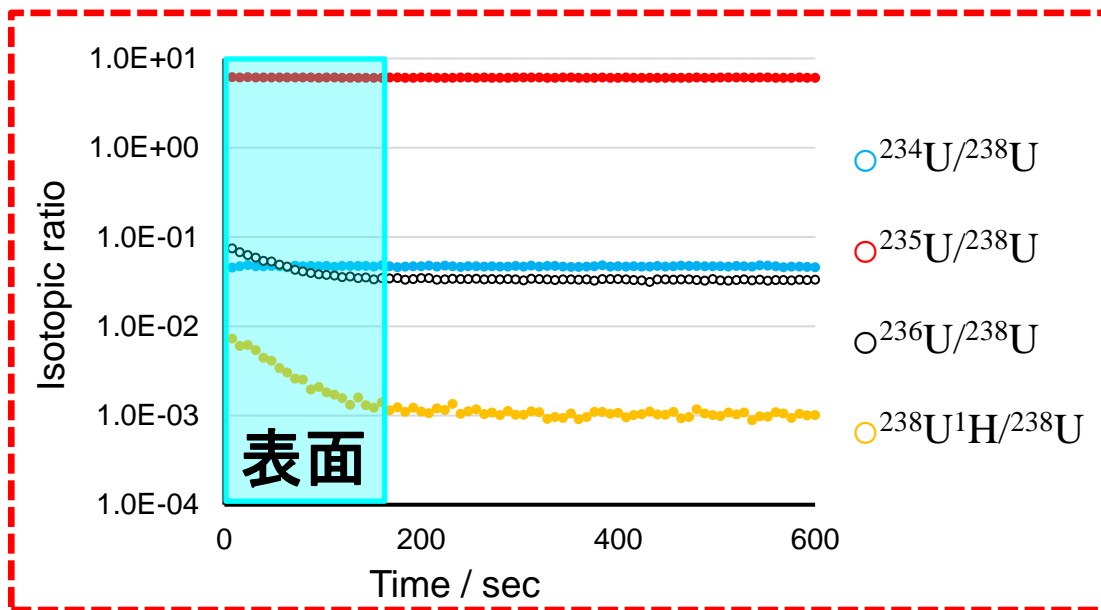
測定領域に収める粒子数をコントロールすることで、
従来より強い一次イオンビームが使える(精度向上)

+

短時間で①の表面を除去するような測定が可能(確度向上)

研究内容～結果①～

① 変質した表面が粒子全体の何%を占めるか求める



	No.1	No.2	No.3	No.4	No.5
表面割合(%)	3.1	2.4	6.5	8.3	3.4
UH/U減衰率(%)	88	90	95	91	92
$^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 減衰率(%)	55	49	58	53	55

研究内容～結果②～

②粒子表面を測定前に消耗させるスクリーニング手法、条件を求める

②-1: ①を踏まえたAPMの条件設定

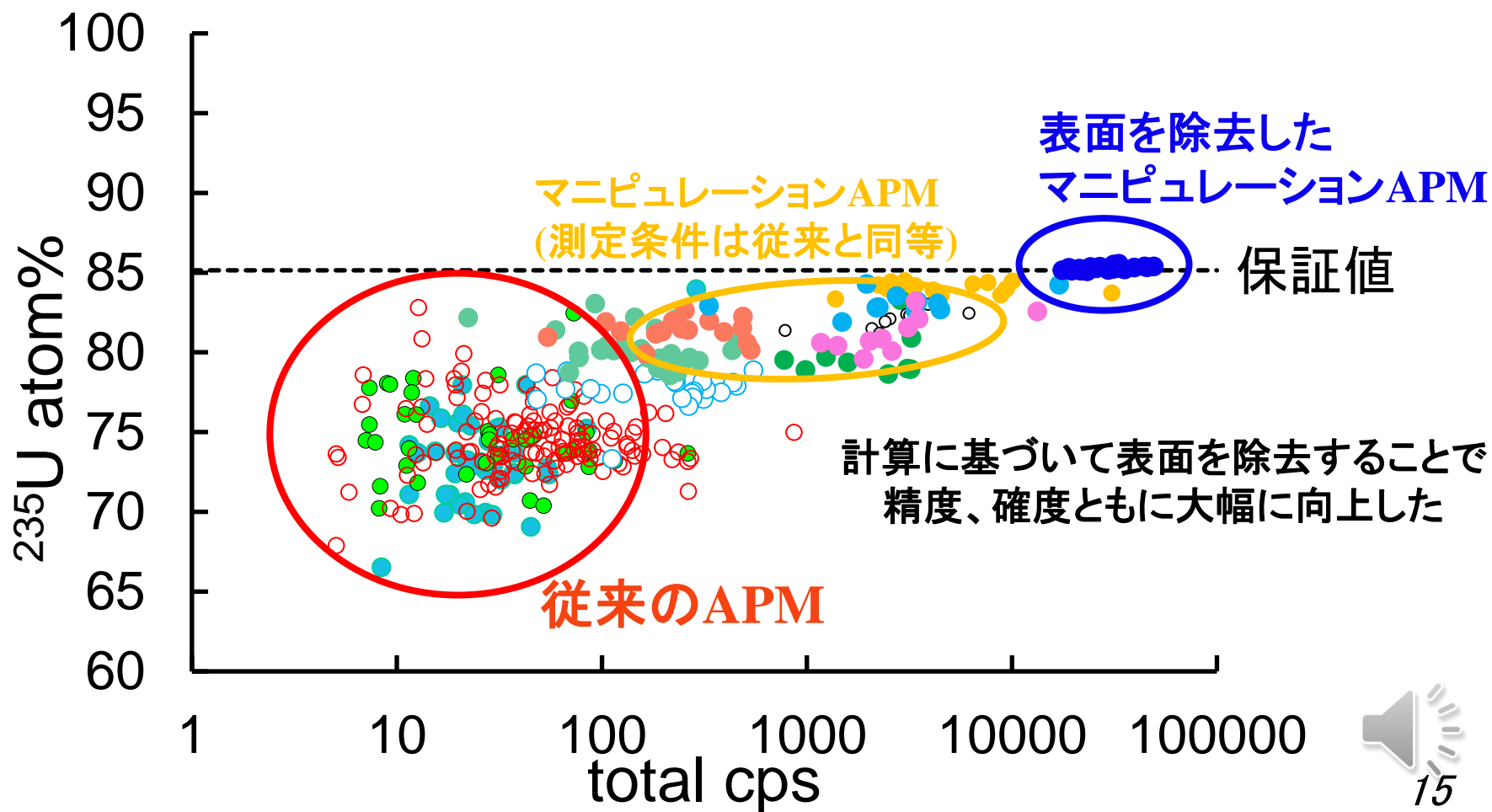
表1: 表面を除去するのに最適なAPM測定条件

APM測定条件-マニピュレーション	測定前照射	測定
一次イオンビーム強度	60 nA	15 nA
単位測定領域(μm^2)	300 × 300	
ビーム照射時間(秒)	120	18

研究内容~結果②~

②粒子表面を測定前に消耗させるスクリーニング手法、条件を求める

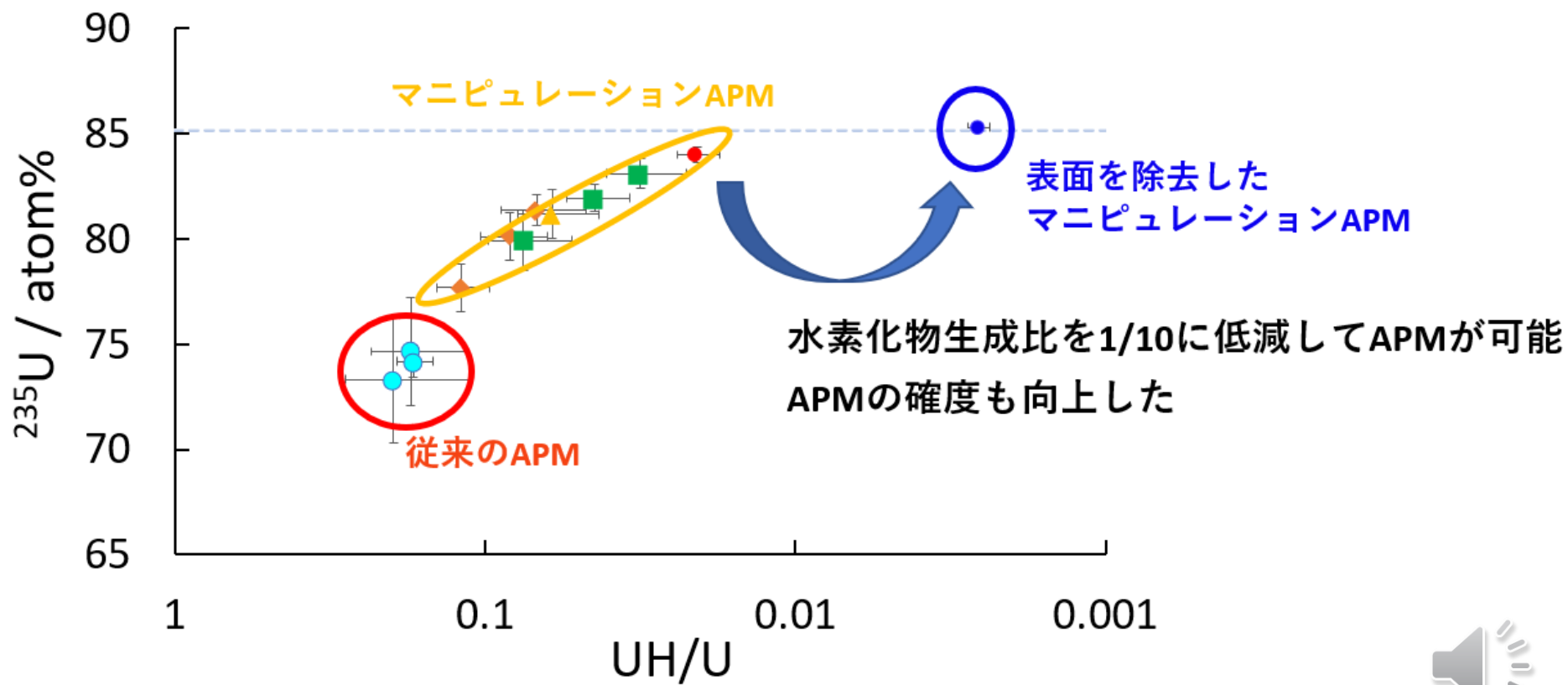
②-2: ②-1の条件によるAPM結果



研究内容～結果②～

②粒子表面を測定前に消耗させるスクリーニング手法、条件を求める

APMにおける ^{235}U atom%とUH/Uの相関関係



結論

- ① 水素化物生成比と同位体比が変化する**表面が**
粒子1個に対して占める割合は3~8%程度であった。
- ② マニピュレーションを施したAPMでは、
従来の方法ではできない高計数率でのAPMが可能である。
これによって短時間で水素化物生成の起こりやすい表面を
除去したAPMが可能であった。
その結果、APMの精度、確度を大幅に向上させた。