保障措置分析化学研究グループの概要と研究成果

日本原子力研究開発機構　原子力安全・防災研究所
安全研究センター　保障措置分析化学研究グループ

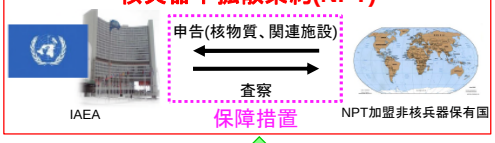
保障措置環境試料分析とは

未申告の原子力活動の検知を目的とし、原子力施設に対する査察で採取された環境試料に含まれる極微量核物質(ウランやプルトニウム)の同位体組成を分析する。

研究背景と概要

1. 環境サンプリング法の導入背景

核兵器不拡散条約(NPT)

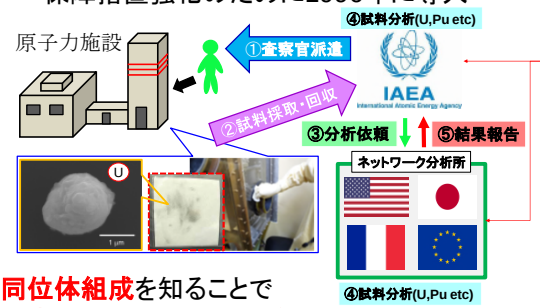


1990年北朝鮮の核開発疑惑
1991年イラクの未申告施設
発覚

保障措置の強化が必要に

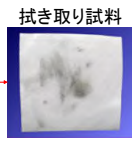
2. 環境サンプリング法

保障措置強化のために1996年に導入



同位体組成を知ることで
未申告の原子力活動を検知する

3. 環境試料の取り扱い



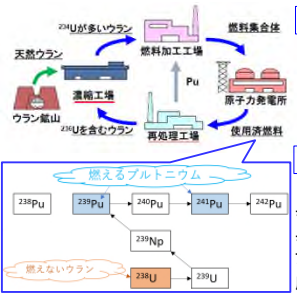
試料中のU、Puは極微量で外界からの影響を受けやすい

自然界からの混入を避ける
他の分析試料との相互汚染を避ける

室内の清浄度が確保されたクリーンルーム内で分析

通常の実験室での分析

4. ウランやプルトニウム同位体比の特徴



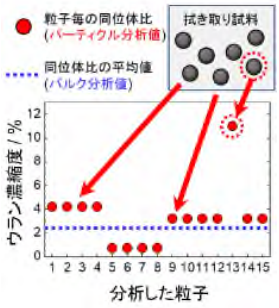
ウラン(U)の場合

^{235}U:軽水炉燃料2-4%
兵器級90%以上
^{234}U:濃縮の情報
^{236}U:再処理の情報

プルトニウム(Pu)の場合

^{240}Pu/^{239}Pu
兵器級(現在):0.06前後
兵器級(1960年以前):0.01≧
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



環境試料の分析方法

バルク分析

拭き取り試料を丸ごと化学処理
元素ごとに化学分離が可能
Puを高感度で測定可能

パーティクル分析

付着した粒子をそのまま分析
粒子毎に同位体比が得られる
特徴的な同位体組成も検知

6. 我が国における保障措置の位置づけ

国際貢献と国内保障措置能力の堅持を両立

研究成果紹介

マルチコレクタ型ICP-MS(MC-ICP-MS)による高感度^{236}U/^{238}U比測定手法の開発

(Tomita et al., *J. Am. Soc. Mass Spectrom.* 2024, 35, 1178-1183.)

1. 背景

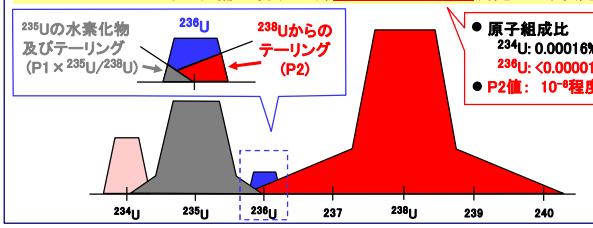
^{236}Uは^{235}Uへの中性子照射により生成されるため、保障措置上重要な核種である。しかし、サブngのUに含まれる10^{-17} g程度の^{236}U(^{236}U/^{238}U: 10^{-7}程度)を精度良く測定することは困難であるため、高感度測定法の開発が必要である。

2. ^{236}U/^{238}U比測定の課題

^{236}U/^{238}U比の測定・評価方法

$$\left(\frac{^{236}U}{^{238}U}\right) = R \times \left(\frac{^{236}U}{^{238}U}\right)_{net} = R \times \left\{\left(\frac{^{236}U}{^{238}U}\right)_{meas.} - P1 \times \left(\frac{^{235}U}{^{238}U}\right)_{meas.} - P2\right\}$$

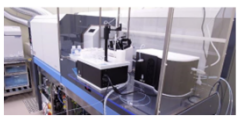
R: ゲインファクター(マスバイアス, 収率)　P1: ^{235}Uの水素化物及びテーリング補正項 (m+1)
P2: ^{238}Uからのテーリング補正項 (m−2)、NBS CRM U0002測定により決定



- 原子組成比
  ^{234}U: 0.00016%　^{235}U: 0.01755%
  ^{236}U: <0.00001%　^{238}U: 99.9823%
- P2値: 10^{-8}程度

従来法による^{236}U/^{238}U比測定

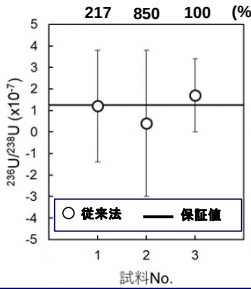
分析装置:
導入系に脱溶媒装置(ESI社製:Apex Ω)を接続した
MC-ICP-MS(Thermo Fisher社製: Neptune-XT)

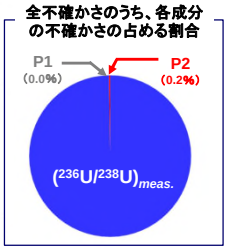


U同位体標準:IRMM184(^{236}U/^{238}U: 1.2410 x10^{-7})

0.1 ng g^{-1}のIRMM184 U同位体標準溶液(2 mL)を測定し、GUM*により不確かさを評価

*Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement

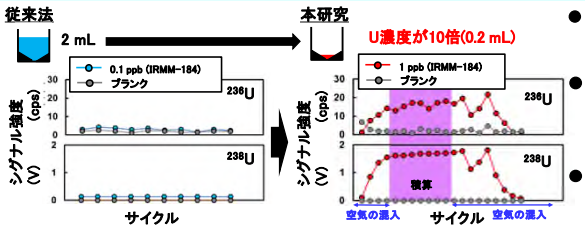




- 拡張不確かさが100%を超え(平均389%)、定量不可
- 不確かさの99.8%が^{236}U/^{238}U測定値の不確かさに由来

高精度測定を実施するためには、^{236}Uのシグナル/ノイズ比の向上が必須

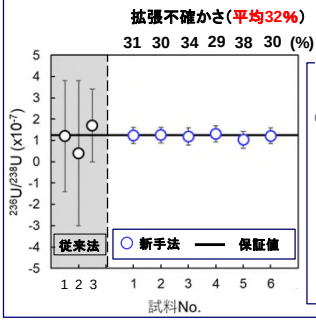
3. 新規な高感度^{236}U/^{238}U比測定手法の原理(全量導入法)

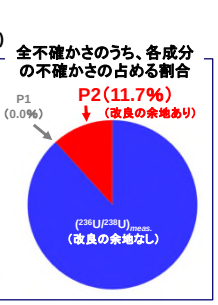


- 高いシグナル強度を得るために、試料溶液の体積を10分の1まで濃縮
- マルチコレクタ型の特徴を生かし、試料溶液の吸入時から全量消耗するまでデータを核種ごとに同時に収集
- 空気混入の影響のない部分のシグナル強度を核種ごとに積算

4. 新手法による^{236}U/^{238}U比測定結果

1 ng g^{-1}のIRMM184 U同位体標準溶液(0.2 mL)の測定



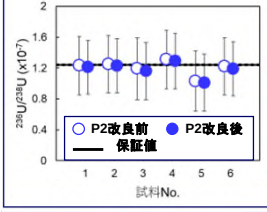


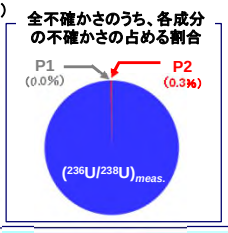
- ^{236}U/^{238}U比は、不確かさの範囲内で保証値と一致
- 不確かさ(平均:32%)が従来法の1/10に低減
  → 高精度測定に成功
- 不確かさの11.7%はP2に由来

P2の不確かさを小さくすれば、更に高精度な測定が可能では？？

改良

CRM U0002のU濃度を
1 ng g^{-1}から10 ng g^{-1}に変更
P2値: (2.59±1.87)x10^{-8}
⇩
(2.80±0.27)x10^{-8}





- ^{236}U/^{238}U比は、不確かさの範囲内で保証値と一致
- P2由来の不確かさは0.3%に低減
- P2評価法の改良により、^{236}U/^{238}U評価値の拡張不確かさが更に1%以上低減

5. まとめ

サブngのUに含まれる極微量の^{236}Uを従来法よりも10倍精度良く測定できる、全量導入法を開発した。今後、U含有量の少ないろ紙の分析や単一U粒子分析へ適用していく。

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