

# 微小核物質粒子の同位体組成分析 — 目に見えない小さな粒子から隠した核活動を見つけ出す —

宮本ユタカ  
Miyamoto Yutaka

鈴木 大輔  
Suzuki Daisuke

富田 涼平  
Tomita Ryohei

富田 純平  
Tomita Jumpei

安田健一郎  
Yasuda Kenichiro

## 1. はじめに

国際原子力機関（IAEA）は核不拡散条約（NPT）に基づき、核物質が平和目的にのみ利用され、核兵器に転用されていないことを検証するため、査察官が原子力関連施設に立ち入って施設での活動状況を調査している。この立入査察では、査察対象としている核燃料物質の一部を持ち帰る他に、査察官が設備、装置、そして部屋の壁や床等に付着しているちりやほこり等を布等でふき取ってIAEAに持ち帰る。この採取された試料は「環境試料」と呼ばれ、査察施設で取り扱った核物質の極微量粒子が付着していることがある。その量は当然、施設の放射線管理では検出できず、法令違反にも値しない非常にわずかな量である。IAEAは、査察官が持ち帰ったこれらの試料中の核物質粒子の量や同位体組成を分析し、採取場所の情報や査察官が調査した情報と照合して、IAEAに申告していない原子力活動が行われていないことを確認するのである。IAEAが立入査察を行った施設や当事国に対して未申告原子力活動の嫌疑をかけるには、査察試料の分析結果が物的証拠として必須である。最近の例として、IAEAはイランの原子力施設に対して現地査察を行った際、採取した試料からU粒子を検知したことを物的証拠として、核開発疑惑を国際問題にしている（2019年11月12日付朝日新聞等）。

このように得られた分析結果は、未申告原子力活動を判断する有力な物的証拠となり得るので、査察試料に含まれる極微量核物質の分析を正確かつ精度良く行うことが重要である。そのためには、分析室

内で発生するちりや分析試薬の不純物等から、天然に存在するUの混入を防ぐ対策を施す必要がある。そのため、IAEAは半導体を製造する工場のように非常に清浄な空気が室内を循環する専用のクリーンラボを建設し、その施設内でIAEA環境試料の極微量分析を行っている。しかし、査察官が持ち帰ってきた分析対象となる試料の数は非常に多いため、IAEAの分析所だけでは処理するのは困難である。

そこでIAEAは、この活動に協力する米国や英国等10か国の原子力研究機関と2か所の国際機関に対して国際協力を依頼し、分析所の国際ネットワーク「IAEAネットワーク分析所」を構築した。

（国研）日本原子力研究開発機構（原子力機構）では、この保障措置に係る「環境試料」に含まれる核物質の極微量分析技術を開発するため、微量核物質の化学処理と分析が可能なクリーンラボ（高度環境分析研究棟：CLEAR）を建設した。筆者らは、この施設を利用して2004年からIAEAネットワーク分析所の一員としてIAEAから依頼された「環境試料」を分析するだけでなく、極微量分析法の開発を行っており、IAEAの活動に大きく貢献している。これまでに分析した試料数は千試料近くに達している。

未申告の原子力活動を的確に判断するためには、十分な分析処理能力も必要とされるが、査察試料の分析値の正確さや精度が重要である。原子力機構の分析結果の正確さはネットワーク分析所の中でも常に上位を維持しており、IAEAから大きな信頼を得ている。これはIAEA加盟国としてIAEAの査察活動に積極的に協力するという国際貢献の観点以外に

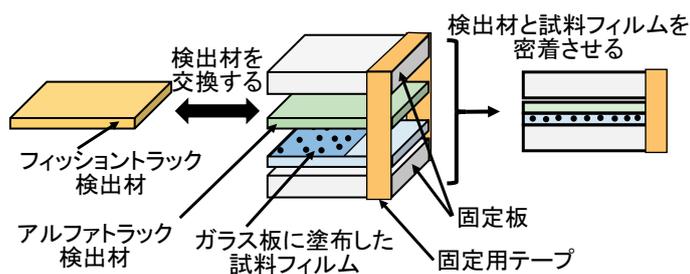


図1 1枚の試料フィルムに対して2種類のトラック検出材交換可能なトラック照射体

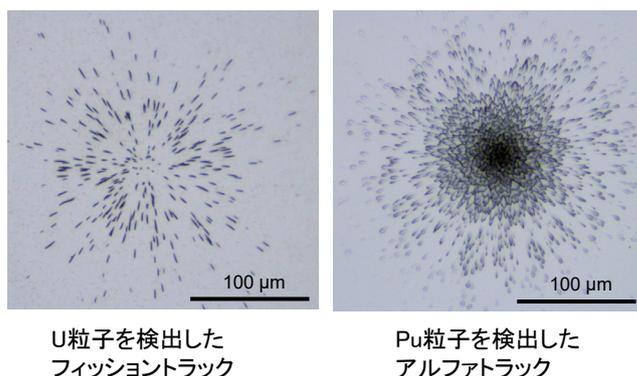


図2 UとPu粒子を検出したトラック像

も、IAEAから分析能力が認められることで、万が一、我が国における原子力活動に対して未申告活動の疑義が生じた場合でも、原子力機構の高い分析技術により、その未申告活動の疑義を再検証することが可能である事を意味する。

IAEA査察官によって採取された「環境試料」には、UやPuを含む粒子が複数存在しており、その量は全体でng（10億分の1g）からfg（1000兆分の1g）と、非常にわずかな量である。これら極微量元素の量や同位体組成を高感度に分析するには、大きく分けて2つの方法を用いる。「環境試料」全体を化学分離して誘導結合プラズマ質量分析装置（ICP-MS）を用いる方法では、試料全体を分析するので核物質の量が超極微量であっても鋭敏に検出することができる。また、2次イオン質量分析装置（SIMS）を用いる方法では、直径が数 $\mu\text{m}$ の粒子に対して、U同位体組成を個別に分析できる。

しかし、非常に微細なPu粒子や使用済み核燃料のように、試料中にUとPuが混在する核物質粒子に対しては、それぞれの元素を識別して両元素の同位体組成を正確に分析できる分析法を開発する必要

があった。

トラック法（飛跡法）はSIMSによる分析法と同様に、極微量核物質粒子を比較的簡単な方法で検出できる方法の1つである。この方法では、試料に含まれているUの核分裂反応や、Puの放射性崩壊によって放出された荷電粒子が、プラスチック製の検出材に衝突した際に傷（トラック）を作る。この傷を観察することで、これらの核物質粒子の位置を視覚的に特定することができる。

まず、ちりが付着している布試料から粒子だけを回収するため、吸引ポンプを使ってプラスチック（ポリカーボネイト）製のフィルタ上に集める。その後、そのフィルタを有機溶剤で溶かし、試料台に薄く塗布した後、乾燥させて捕集した粒子が埋め込まれた薄いフィルムを作る。Uの核分裂反応や、Puの放射性崩壊により核物質粒子から放出された高エネルギーの荷電粒子を高感度に選択的に検出する検出材を図1に示すように順番に密着させた。

その後、核物質の原子核が原子核反応によって放出された高エネルギー粒子が検出材に作ったトラック（図2）が指し示す場所の試料フィルムを切り出

すことで、目的とする核物質粒子だけを回収することができる。

## 2. U と Pu の粒子弁別

U 粒子の検出には、フィッシュントラック法を用いる。この方法は、検出材をフィルムに密着させた状態で研究用原子炉により中性子を照射する。U 同位体  $^{235}\text{U}$  は原子核内にその中性子を取り込み、核分裂反応によって原子核が2つに分裂する。この核分裂生成物粒子が検出材に衝突した際に作るトラックを粒子検出に利用するのである。

一方、Pu 粒子に対しては、 $\alpha$  トラック法を用いる。Pu 同位体  $^{239}\text{Pu}$  が  $\alpha$  崩壊する際、Pu 粒子から  $\alpha$  粒子が放出される。その粒子に対して高感度に反応する検出材を用いることで、U 粒子の場合と類似したトラックが生じて、Pu 粒子の位置を探ることができる。

これまで U と Pu の同位体組成を分析するには、複数の試料フィルムを使って U 分析と Pu 分析用として、それぞれに粒子フィルムを準備して同位体組成を分析していた。それに対して、本法では1枚の試料フィルムに対して U 粒子分析用と Pu 分析用の検出材だけを交換することで、U と Pu 両方について複数の粒子位置を探ることが可能となった。

位置を特定した数  $\mu\text{m}$  以下の非常に微細な Pu 及び U 粒子の中から、同位体組成を分析する試料をフィルムから切り出さなければならないのだが、検出材と試料フィルムの位置精度が  $\mu\text{m}$  の単位で合っていないければ、目的とする粒子を確実に回収できない。トラック像を観察しやすくするために温かい水酸化ナトリウム水溶液でトラックを広げるのだが、その際に検出材全体が数十  $\mu\text{m}$  ほど縮む。そのため、化学処理した検出材を試料フィルムに重ね合わせても、検出材のトラックは粒径が数  $\mu\text{m}$  の核物質粒子の位置を正確に示さない。そこで、熱による検出材の収縮でずれたトラック位置を正確に補正できる工夫を施した。化学処理前の段階でレーザーを使って複数の印をフィルムと検出材の同じ箇所につけておく。化学処理後に印の位置を再度読み取ることで、この試料フィルムとの位置のずれを正確に補正するのである。電動ステージを導入して正確な位置情報を読み取ると共に、化学処理前後の検出材の変形の

度合いを一括で計算処理できるように工夫した。これらのハードウェア及びソフトウェアに組み込んだ工夫によって、測定したい核物質粒子の位置を  $3\mu\text{m}$  以下の誤差で正しく求めることができるようになった。この位置補正システムを用いることによって、同位体組成を測定したい粒子を含むフィルムを効率的かつ正確に切り出すことが可能となった。

次に選び取った核物質を含む粒子に対して、Pu や U の同位体組成を表面電離型質量分析装置 (TIMS : Thermal Ionization Mass Spectrometry) で測定した。このとき、粒子に Pu と U の両方の元素が混在している場合にも対応して、それぞれの元素の同位体組成を測定する必要がある。これまでは、Pu と U それぞれの同位体組成分析用に測定試料を分けて準備し、Pu, U それぞれに複数の同位体を順番に1個の検出器で測定していた。なぜなら、この測定では、測定粒子を真空中で高温に加熱してイオン化させながら同位体組成を測定するので、どちらか1つの元素の測定を長時間続けると試料がすべてイオン化されてなくなってしまふからである。

そこで、筆者らは同位体組成の測定方法にも工夫を施し、試料の加熱温度をゆっくりと連続的に上げながら同位体比を測定する方法 (連続加熱昇温法) を適用した。この方法を用いることで、1つの試料から Pu と U 両方の同位体組成を1度に測定することが可能となった。

更に、複数の高感度な検出器を備えたマルチコレクタ型表面電離質量分析装置 (MC-TIMS) を用いることで、複数の同位体を精度良く (既存分析法の2~3倍向上)、同時に測定することを可能にした。この測定技術を環境試料の分析に用いたところ、核物質粒子1粒から Pu と U の両方についてそれぞれの同位体組成を測定することに成功した。この測定方法を用いることで、これまで U 中に存在する割合が低いため測定の不確かさが大きかった U 同位体 ( $^{234}\text{U}$  及び  $^{236}\text{U}$ ) や 1000 兆分の 1 g の超微量 Pu 同位体についても、高感度の検出器を使うことで不確かさを2~6%に抑えて、精度良く測定することが可能となった。

前記の試料前処理技術及び測定法を利用して IAEA による分析能力の評価試験を受け、受領した3試料に対して十分な精度 (不確かさ: 1~5%) で同位体組成の分析結果を報告した。IAEA はその測

定結果が正確であると評価し、原子力機構はこの能力評価試験に令和3年12月7日付で合格した。これを受けて、今後、IAEAからの依頼により本法による試料分析も実施していくこととなる。それによって、原子力機構はIAEAが各国に分析を依頼している主要な分析技術、すなわち、筆者らが既に実施している化学分離を伴う化学分析技術、大型2次イオン質量分析装置（LG-SIMS：Large Geometry Secondary Ionization Mass Spectrometry）を用いた粒子分析技術、そして本法、3つの技術すべてを実施できる能力を持つ数少ない重要な分析所となった。原子力機構は、この分析法を含む高感度な分析能力を有する高い開発能力を持つ研究機関としてIAEAに評価されるだけでなく、ネットワーク分析所としてIAEAの活動に対して積極的に貢献していることから、IAEAより感謝状が令和4年3月3日に贈られた。

### 3. 研究の意義と今後の予定

本研究で開発したIAEA査察試料分析のための極微小核物質粒子の同位体組成分析技術は、今後、IAEAから依頼される保障措置環境試料の同位体組成分析に適用する。トラック試料の中性子照射に原子力機構の研究炉（JRR-3）を利用すると共に、短時間で正確かつ精度良い同位体組成分析結果を得るために、核物質粒子の判別や測定試料作成の自動化技術を開発し、それをIAEAの保障措置活動で必要となる極微量核物質分析に適用していく方針である。我々の分析能力の向上に対し、IAEAは査察能力の強化につながるとして原子力機構に大きな期待を寄せている。

#### 謝辞

本内容は原子力規制庁受託事業「軽水炉等改良技術確証試験等委託費（保障措置環境試料分析調査）事業」の成果の一部が含まれています。

（（国研）日本原子力研究開発機構）