

連載講座

超低レベル放射能測定の現状と展望（第6回）

核不拡散のための極微量核種分析

篠原伸夫

Reprinted from
RADIOISOTOPES, Vol.55, No.9
September 2006



Japan Radioisotope Association

<http://www.jrias.or.jp/>

連載講座



超低レベル放射能測定の実況と展望（第6回）

核不拡散のための極微量核種分析[†]

篠原伸夫

独立行政法人 日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究部門 環境・原子力微量分析研究グループ
319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

Key Words : CTBT, international monitoring system, radionuclide monitoring station, environmental radioactivity, IAEA, safeguard, environmental sample analysis, swipe sample, bulk swipe analysis, particle swipe analysis, non-proliferation, ultralow level radioactivity

1. はじめに

包括的核実験禁止条約（Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty, CTBT）機関準備委員会は、条約遵守を検証するための国際監視体制の整備を進めている。日本原子力研究開発機構（以下、原子力機構）は、核兵器を究極的に廃絶し、原子力の平和利用を推進する国の基本的な政策に基づき、CTBT に関して、条約遵守を検証するための国際・国内体制のうち放射性核種に係わる施設・システム等の整備・開発を行っている。条約議定書に記載された国際監視制度（International Monitoring System, IMS）のうち、原子力機構では沖縄監視観測所（RN37）、高崎監視観測所（RN38）及び東海公認実験施設（RL11）の整備・運用を行うとともに、国内データセンター（National Data Center, NDC）に係わる技術開発研究も実施している¹⁾。

一方、国際原子力機関（International Atomic Energy Agency, IAEA）は、保障措置強化策の一環として、環境試料分析法の導入を 1995 年に決定した。これは、世界各国の原子力施設の内外から環境試料を採取し、その中に含まれる極微量のウラン及びプルトニウムの同位体比を測定することによって、未申告活動の痕跡等を探知するものである。我が国では、IAEA の保障措置強化策に的確に対応し、自らも環境試料分析技術を通じて未申告活動を検知するのに必要な能力を確保することとしている。原子力機構は、このような IAEA の保障措置強化策の一つである環境試料分析に対応するため、国からの委託を受けて極微量核物質の分析技術の開発を行っている。この目的のためにクリーンルーム施設である高度環境分析研究棟（Clean Laboratory for Environmental Analysis and Research, CLEAR）を整備・運用し、環境試料中に含まれる極微量核物質の基本的な分析技術を開発している。

本報告書では、まず原子力機構における CTBT 検証制度に関連する核不拡散技術開発研究の状況について報告する。その主題は、(i) CTBT 検証制度の概要、(ii) RN37, RN38 並びに RL11 の整備及び運用、(iii) 放射性核種データのための NDC の整備である。次に、

[†] Present Status and Prospects of Ultralow Level Radioactivity Measurements (6).

Ultra-trace Analyses of the Nuclides Related to Nuclear Nonproliferation.

Nobuo SHINOHARA : Japan Atomic Energy Agency, Nuclear Science and Engineering Directorate, Research Group for Analytical Science, 2-4, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki Pref. 319-1195, Japan.

(iv) 保障措置に係わる環境試料分析の技術開発の状況とともに、極微量の核物質を対象とするスワイプ試料の (v) パルク分析, (vi) パーティクル分析, (vii) ホットセル試料分析に係わる技術を紹介する。このような CTBT 超高感度放射能測定技術開発や CLEAR における核物質の極微量分析は、核不拡散のための国際貢献として意義がある。

2. CTBT のための超高感度放射能測定

2.1 CTBT 検証制度

現在、条約署名国をメンバーとする CTBT 機関準備委員会において、国際検証体制の整備が進められている。2006 年 4 月 12 日現在の条約署名国は 176 か国、批准国は 132 か国である。条約の発効には原子力開発利用能力を有する 44 か国が批准することが必要要件であるが、この内、34 か国が批准している。未署名国はインド、パキスタン、北朝鮮であり、未批准国は中国、コロンビア、エジプト、インドネシア、イラン、イスラエル、米国である。日本は 1996 年 9 月に署名し、1997 年 7 月に批准している。CTBT 機関準備委員会の 2006 年予算は約

102.5 百万ドルであり、このうち日本の分担金は約 19.7% を占め、米国に次いで 2 番目となっている。条約発効時期は未定であるが、現在の予算規模を維持して 2007 ～ 2009 年に技術的な国際検証体制を確立する計画になっている。2002 年からは発効前の運用体制について、その意義・目的に関して具体的検討を開始している。

CTBT の IMS は、地震波、放射性核種、水中音響、微気圧振動を監視する四つの技術を利用した世界 321 か所の観測所及び 16 か所の公認実験施設から構成され、更にその測定結果を世界的情報通信基盤 (Global Communications Infrastructure, GCI) により国際データセンター (International Data Center, IDC) に送り、そこから各国の NDC へ配信して、核爆発実験が実施されたか否かを監視する仕組みであり、現在その整備が進められている。図 1 に CTBT 検証制度の仕組みを示す。このうちの世界 80 か所に整備される放射性核種監視観測所は、核実験で大気中に放出される特有の微量放射性核種を高感度の観測システムで検出するものである。地下核実験の場合、地震波の監視により異

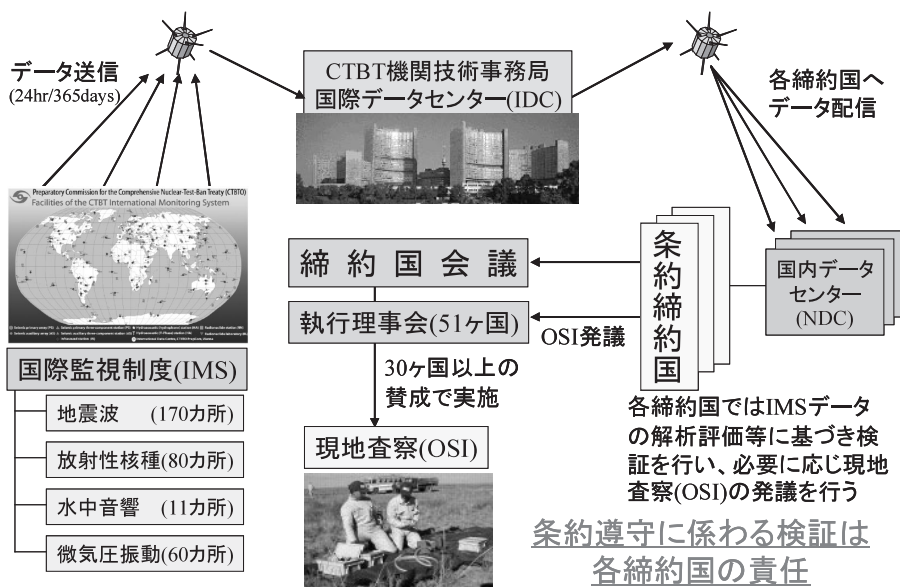


図1 CTBT 検証制度の仕組み

日本国内のCTBT観測所及び放射性核種実験施設



図2 日本国内のCTBT観測所及び放射性核種実験施設

常検知を行い、更に大気中に放出された放射性核種を監視することにより総合的な評価を行う。放射性核種観測の結果、異常が認められる場合には、公認実験施設で更に詳細な分析が行われることになる。このうち原子力機構では放射性核種に関する観測所及び放射性核種実験施設の整備・運用を担当している。図2に日本国内のCTBT観測所と放射性核種実験施設の位置を示す。

2・2 CTBTにおける超高感度放射能測定

放射性核種監視ネットワークの設計では、「1 kt (キロトン) 相当の核爆発 (広島での原爆は、約 15 ～ 20 kt と推定されている) をほぼ 14 日以内に 90% 以上の確率で探知する」という基準に基づき、核実験後 10 日前後で最も放射能の強い核種である ^{140}Ba ($2 \times 10^{15} \text{ Bq}$) 及び ^{133}Xe ($1 \times 10^{15} \text{ Bq}$) を放出源核種として、大気中、水中、地下での核爆発におけるこれら放射性核種

の全地球規模での大気輸送計算 (シミュレーション) を行い、観測所の数、場所、更には観測方法とその感度等の最低技術要件を詳細に定めている。

2・3 RN37, RN38 並びに RL11 の整備及び運用

2・3・1 高崎放射性核種監視観測所 (RN38)

高崎放射性核種監視観測所は、日本国内 10 か所の観測所 (図2 参照) の中で最初に認証を取得した観測所であり、2004 年 2 月に世界 80 か所の観測所のうち 23 番目として認証された。群馬県高崎市の原子力機構高崎量子応用研究所内に設置された放射能観測装置は、大気中の微粒子捕集 (約 $1000 \text{ m}^3/\text{h}$) の後、 γ 線測定 (検出感度: ^{140}Ba で約 $10 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$) をして IDC へのデータ送信までの操作を全自動で行うシステムであり、24 時間連続運転される。観測所の役割は、第一に、 γ 線スペクトルデータ等の計

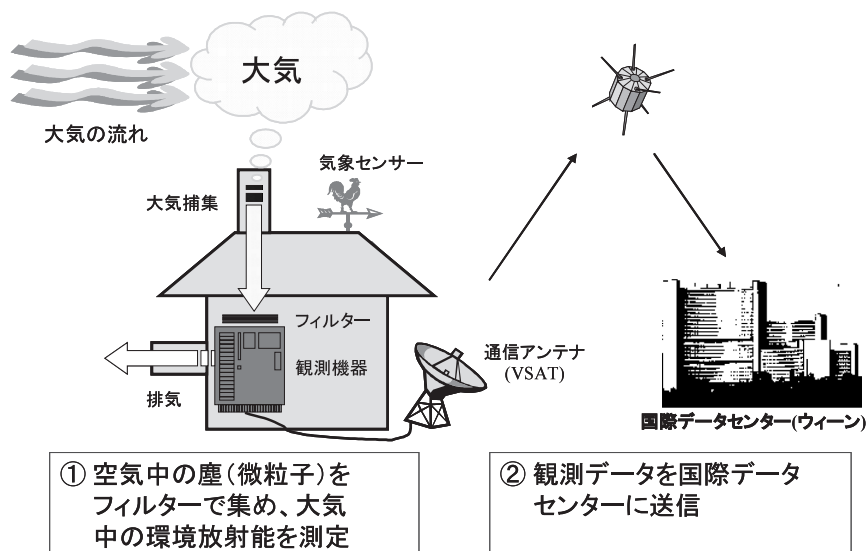


図3 CTBT放射性核種監視観測所の構成



図4 放射性核種監視測定所(RN38)の外観

測データを毎日ウィーンのIDCに送ることである(図1参照)。データ通信には、改ざんや偽りが無いなど、データの信頼性を保証することが求められている。観測所では、スペクトルのデータ解析は行わず、得られたスペクトルデータをGCIによりウィーンへ送信する。IDCで受信する各観測所からのデータ取得率は95%以上が求められるため、トラブルなどで観測所に許容される停止期間は年間で15日以下、連続で7日以内と規定されている。そのため、観測所では、設置された大気集塵機、 γ 線計測機器、衛星通信機器などの観測所機器(全

自動放射性粒子モニタリング装置 Radionuclide Aerosol Sampler/Analyzer, RASA など)を管理・保守し、観測所機能を健全に維持することが重要となっている。図3にCTBT放射性核種監視観測所の構成を示す。また高崎観測所(RN38)の外観を図4に示す。

放射性核種監視観測所のもう一つの重要な役割は、特定のフィルタ試料を決められた手順に基づいて、公認実験施設に送ることである。指定された試料には、レベル5(CTBT関連核種リストー核実験により生じる ^{140}Ba などの特定放射性核種リストーに挙げられている核種が二つ以上認められる場合)に分類された試料が含まれる。レベル5の試料の場合は、当該試料を決められた手順に基づいて、2ないし3分割して複数の公認実験施設に送ることとなるが、試料の分割に際しては汚染がないよう、専門的知識に基づいた細心の注意が必要となる。

2・3・2 沖縄放射性核種監視観測所(RN37)

RN37に関しては、沖縄県国頭郡恩納村にある宇宙航空研究開発機構(Japan Aerospace Exploration Agency, JAXA)が所有する沖縄宇宙通信所「旧148MHz帯送信棟」を改修し、RN38と同じ大気放射性粒子自動計測装置

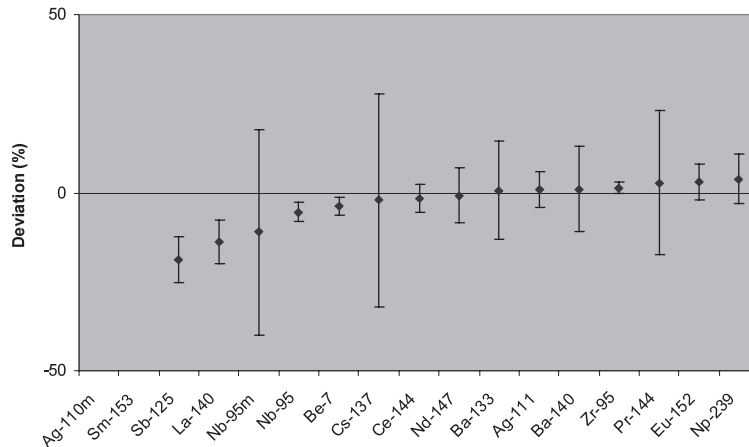


図5 2004年国際比較試験における東海公認実験施設（RL11）の分析結果
（Ag-110m と Sm-153 は未報告）

（RASA）を設置して CTBT 沖縄放射性核種観測所とする準備が進められている。このために 2004 年 9 月に原子力機構と CTBT 機関との間で基盤整備契約を締結した。2006 年度中に観測機器を設置して初期試験を実施し、運用を開始する予定である。

2・3・3 東海公認実験施設（RL11）

CTBT 公認放射性核種実験施設（公認実験施設）では、世界 80 か所に設置される放射性核種監視観測所の大气粒子捕集フィルタ試料等について、観測所の品質管理のための詳細分析、核爆発起源の核分裂生成（fission products, FP）核種の有無を検証するための詳細測定、観測所の品質管理、標準試料の作成、分析技術の開発等を行う。茨城県東海村にある原子力機構原子力科学研究所は、条約議定書に記載されている世界 16 か所の CTBT 関連研究所の一つ（RL 11）である。公認実験施設の技術要件については CTBT 機関によって厳密に定められており、例えば高純度 Ge 検出器による γ 線測定に関して、検出限界（minimum detectable activity, MDA, for ^{140}Ba ）は ≤ 24 mBq でなければならない。また公認実験施設の測定技術の熟達度評価として、CTBT 機関が主催する国際相互比較試験に参加することが義務付けられている。2004 年国際比較試験における RL11 の分析結

果を図 5 に示す。ここでは 17 種類の放射性核種（0.01 ～ 7.3 Bq）について、CTBT 機関の参照値と RL11 の測定値の差異を示した。これらの比較試験対象核種のうち、24 mBq 以下のものは $^{95\text{m}}\text{Nb}$ (12 mBq), $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (13 mBq), ^{133}Ba (23 mBq) 及び ^{137}Cs (10 mBq) である。RL11 の分析結果は、CTBT 機関暫定技術事務局により、最も優れたものであるとの評価を得ており、現在、CTBT 機関準備委員会の認証に向けて準備を進めている。

2・3・4 国内データセンター（NDC）

IMS から得られるデータを IDC から受信して解析評価し、各締約国が責任を有する条約遵守に係わる判断に関し、技術的評価を行う機関が NDC である。その規模や役割に関しては、条約上何ら義務規定はなく各締約国の裁量に任されており、各国の判断に応じて整備することとなっている。原子力機構の NDC では、IDC から世界中の観測所で測定された放射性核種データを受信して試験的に解析評価するとともに、大気拡散モデルコード（Worldwide Version of System for Prediction of Environmental Emergency Dose Information, WSPEEDI）を用いた放出源情報推定のためのシステム開発を行っている。NDC では、このような γ 線解析技術や大気拡散バックトラッキングなど、NDC 整備

に必要な研究技術開発も行っている。

3. 保障措置のための環境試料分析

3.1 環境試料分析技術の開発

IAEA における実際の環境試料分析は、IAEA 自身が保有する保障措置分析所 (IAEA-SAL) の他、高度な分析能力を有することが IAEA により認定された、欧米諸国を中心とする分析所 (ネットワーク分析所) で分担して実施されている。2002 年には、IAEA の専門家による現地調査の結果、旧原研 (現在の原子力機構) の分析技術は、施設や品質管理体制も含めて、極めて高いレベルにあると評価され、これを受けて、IAEA は原子力機構をネットワーク分析所として認定することを決定した。

原子力機構原子力科学研究所では、CLEAR (浮遊粒子に関する清浄度は、クリーンルーム: ISO Class 5~7, クリーンフード及びクリーンベンチ: ISO Class 4) という清浄度の高い環境下において、極微量のウラン及びプルトニウムの同位体比を高精度に分析する技術の開発を進めている。更に燃料サイクル安全工学研究施設 (Nuclear Fuel Cycle Safety Engineering Research Facility, NUCEF) において、ホットセル試料の分析技術の開発も実施している。ここでは、放射線計測により環境試料を採取したスワイプ試料 (IAEA スワイプ材: Texwipe-304) のスクリーニングを行い、放射能として 1Bq 程度のウランあるいはプルトニウムを含む試料は CLEAR においてバルク分析やパーティクル分析を行っている。これ以上の量の核物質を含む試料については、原則としてホットセル試料として扱い、その分析は NUCEF で行う。環境試料分析の流れを図 6 に示した。

3.1.1 バルク分析

バルク分析では、スワイプ試料をマッフル炉で灰化したのちフッ化水素酸や過塩素酸を用いて酸分解し、イオン交換法によりウランとプルトニウムを分離・精製し、誘導結合プラズマ型質量スペクトロメータ (Inductively Coupled

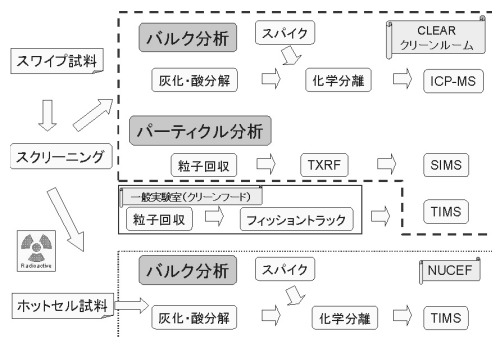


図6 保障措置環境試料分析の流れ

Plasma-Mass Spectrometer, ICP-MS) を用いてウランとプルトニウムの定量と同位体組成を測定する。正確な分析を可能とするため、ICP-MS の測定については装置運転条件の最適化と妨害元素の影響を評価し、それに適した高い回収率と除染係数が得られる化学処理スキームを開発した²⁾⁻⁴⁾。

原子力機構は、これらの分析技術を検証するため、標準物質測定研究所 (Institute for Reference Material Measurement, IRMM) が主催する国際共同分析に毎年参加している。試料は約 100 ng のウランを含む 4 種類の模擬海水であり、これを分離・精製したのち同位体分析を行った。その結果、原子力機構は参加 21 機関中で最も好成績であった。

分析操作全体に係わるウランのプロセスブランクは 5~10 pg である。プロセスブランクへ寄与する因子を図 7 に示した。試薬に含まれる不純物 (メーカー保証値からの推定値) と蒸発乾固の際にテフロン容器から溶出するウランの寄与が大きいことがわかる。同図には、現在 IAEA がスワイプ材として使用している Texwipe-304 に不純物として含まれるウランの量 (1~5 ng) も併せて示した。この量はプロセスブランクの 100 倍以上であるため、スワイプ試料に含まれるウラン量が少ない場合には、正確な分析結果を得ることが困難になる。そこで、スワイプ材から粒子を選択的に回収する真空吸引法を考案するとともに、Texwipe-304 に替わ

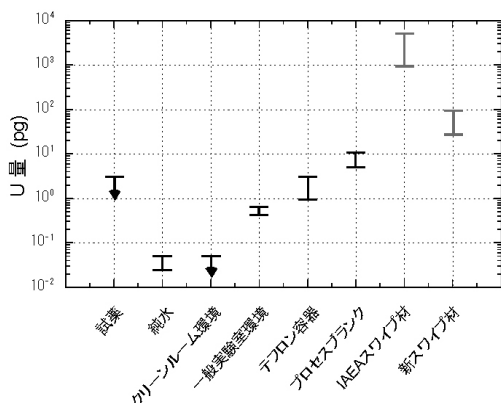


図7 ウランのプロセスブランクとその起源並びにスワイプ材中のウラン量

りうるスワイプ材を検討した。高温（550℃）で灰化することが可能であり、しかもウラン不純物が少ない（約 50 pg）人工繊維製のスワイプ材（Exlan）をメーカーと共同試作した。この新しいスワイプ材は IAEA に提供され、現在各ネットワーク分析所にて試験評価されている。

3.1.2 パーティクル分析

パーティクル分析では、二次イオン質量スペクトロメータ（Secondary Ion Mass Spectrometer, SIMS）を用いて、粒径 $1\mu\text{m}$ 程度までの粒子のウラン同位体比の測定法を確立した⁵⁾。また、粒子の効果的な回収法として、吸引により粒子をスワイプ材から直接試料台に捕集するインパクター法を開発した。これは他の手法（超音波法や低温灰化法）に比べて、スワイプ材の繊維の混入が少なく、試料台に粒子が適度に分

散するという優れた特徴を有している。更に、粒子のスクリーニングに全反射蛍光 X 線分析装置（Total Reflection X-Ray Fluorescence, TXRF）を適用し、ウランの検出限界として数十 pg を達成した。TXRF 及び SIMS による標準試料の測定例を図 8 に示した。

SIMS では測定が困難なウラン濃縮工場で採取されるウラン微粒子のような $1\mu\text{m}$ 以下の粒子の分析に対応するため、フィッシュントラック表面電離型質量スペクトロメトリ（Fission Track-Thermal Ionization Mass Spectrometry, FT-TIMS）による分析方法を開発している。分析の手順は以下の通りである。吸引捕集によりポリカーボネート製のメンブランフィルタ（孔径： $0.2\mu\text{m}$ ）に粒子を回収し、溶剤で溶解したのちフィルム（膜厚： $7\sim 10\mu\text{m}$ ）に調製してトラック検出器とする。これを熱中性子で照射したのちエッチング処理を行い、形成されたフィッシュントラックを顕微鏡で観察する（図 9 参照）。フィッシュントラックを含む小片をレーザービームによって切り出し、これを TIMS 用のレニウムフィラメントに乗せて質量スペクトルを測定する。

3.1.3 ホットセル試料分析

少量の試料を扱うための改良を図ることにより、ホットセル試料のバルク分析技術を開発した。試料の汚染を防止するため小型のクリーンボックス内で化学処理を行い、ウランとプルトニウムの分離・精製には、微粒のイオン交換樹

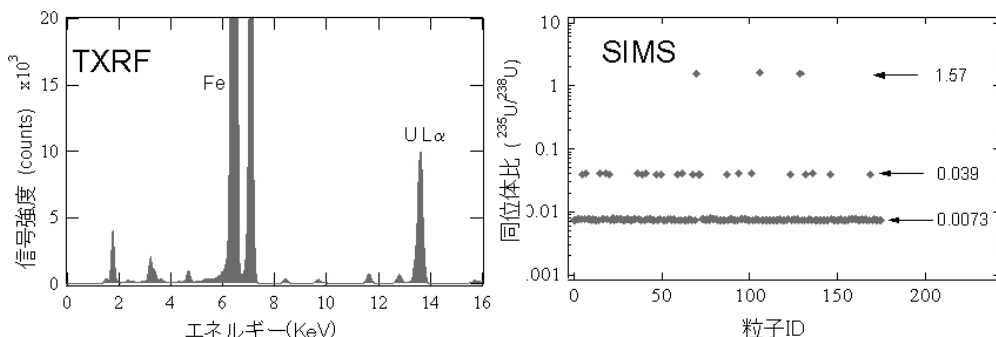


図8 TXRF と SIMS による標準試料の測定例

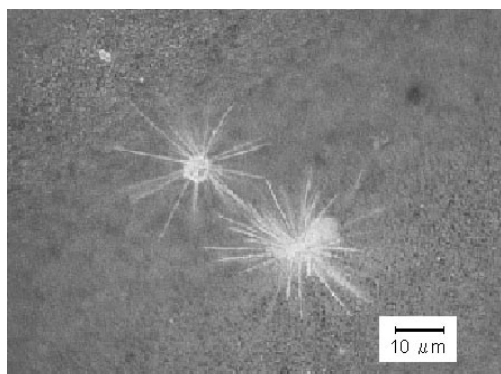


図9 ポリカーボネートフィルム上に形成されたフィッシュボントラックの顕微鏡写真

脂 (ϕ 25 μm) を入れた小容量カラム (50 μL) を用いた。ウランについては 5 ~ 10 000 ng の範囲の試料量で、プルトニウムについては 0.01 ~ 100 ng で、正確な分析値が得られ (誤差 1% 以内), ウランとプルトニウムのプロセスブランクはそれぞれ 0.03 ng 及び 0.02 pg 以下であった。

4. まとめ

原子力機構は CTBT 検証技術に係わる超高感度放射能測定が可能な技術的専門機関として重要な役割を担っている。CTBT 監視システムの整備の一環として、高崎では放射性核種監視観測所が既に運用を開始しており、沖縄観測所は 2006 年に観測を開始する。また、世界 80 か所に設置される放射性核種監視観測所を技術的に支援する世界 16 か所の CTBT 関連研究所の一つとして、原子力機構原子力科学研究所に CTBT 東海公認実験施設を整備し、2006 年度中に運用を開始する予定である。CTBT 国内データセンターでは、世界中の放射性核種観測データを収集するとともに、その解析・評価のための技術開発を実施している。

最近の国際情勢の変化に伴い、未申告の原子力活動を検認するための保障措置体制の整備、運用が極めて重要となっている。保障措置環境試料分析は、原子力関連施設の内部及び周辺か

ら採取した試料 (スワイプ、土壌、水、植物など) に含まれるウランやプルトニウムなどの極微量核物質の同位体比分析を行うものである。原子力関連施設内の壁、床や装置表面上の塵などをコットン製の布 (スワイプ材) で拭き取り採取した試料であるスワイプ試料を対象とした分析は、原子力機構などの IAEA ネットワーク分析所で行われている。原子力機構では、環境試料中の核物質の同位体比を分析する方法として、バルク分析やパーティクル分析を用いて試料中の極微量核物質の同位体比を測定している。

CTBT 検証技術及び保障措置環境試料分析は、核軍縮・不拡散体制を支える重要な柱であり、核兵器のない世界を実現するための現実的かつ具体的措置として、極めて重要な意義を有している。今後とも、原子力平和利用に向けた取り組みの一つとして、極微量核種分析の分野において筆者らは更なる努力を続ける所存である。

本報告書は、原子力機構 環境・原子力微量分析研究グループのスタッフによる研究成果をとりまとめたものである。

文 献

- 1) Hirota, N., Houkida, T., Inoue, Y., Kumata, M., Kurosawa, Y., Miyamoto, Y., Nakahara, Y., Oda, T., Shinohara, N., Uchikoshi, T. and Yamamoto, Y., Recent status of research activities for development of CTBT-related technologies in JAERI, JAERI-Review 2003-021 (2003)
- 2) Magara, M., Sakakibara, T., Kurosawa, S., Takahashi, M., Sakurai, S., Hanzawa, Y., Esaka, F., Watanabe, K. and Usuda, S., Isotope ratio measurement of uranium in safeguards environmental samples by Inductively-Coupled Plasma Mass Spectrometry (ICP-MS), *J. Nucl. Sci. Tech.*, **39**, 308-311 (2002)
- 3) Magara, M., Sakakibara, T., Kurosawa, S., Takahashi, M., Sakurai, S., Hanzawa, Y., Esaka, F., Watanabe, K. and Usuda, S., Effects of alkaline

- metals on accuracy of isotope ratio measurement of uranium by ICP-MS, *J. Anal. Atom. Spect.*, **17**, 1157-1160 (2002)
- 4) Takahashi, M., Magara, M., Sakakibara, T., Kurosawa, S., Sakurai, S., Hanzawa, Y., Esaka, F., Watanabe, K., Usuda, S. and Adachi, T., Studies on treatment methods of the safeguards swipe samples for uranium isotope ratio measurement, *J. Nucl. Sci. Tech., Suppl.*, **3**, 568-571 (2002)
- 5) Esaka, F., Watanabe, K., Magara, M., Hanzawa, Y. and Usuda, S., Screening of uranium particles by total-reflection X-ray fluorescence spectrometry for safeguards environmental sample analysis, *J. Trace Microprobe Tech.*, **19**, 487-496 (2001)
-