

報告番号	※ 甲 第 11063 号
------	---------------

主 論 文 の 要 旨

論文題目 環境微粒子中核物質同位体比迅速分析法の
開発

氏 名 能 任 琢 真

論 文 内 容 の 要 旨

原子力利用の世界的な広がりに対し、核物質の平和利用、兵器転用防止が重要な課題として挙げられ、核不拡散・核セキュリティ・保障措置の取り組みは重要な位置付けを担っている。中でも、国際原子力機関（IAEA）では原子力に関する検認活動である保障措置の一環として環境試料分析を行っている。これは、査察対象施設の壁や床などを専用の布で拭き取り採取された試料を分析することで、原子力活動により環境中に漏洩した核物質を測定し、未申告活動の発見に繋げるものであり、特に個々の微粒子について分析を行うパーティクル分析では、小さいものでは試料粒径が 1 μm 未満の微粒子の分析が行われている。

パーティクル分析では、多数の微粒子の中から核物質を含有する微粒子を探し、さらにウランやプルトニウムの同位体比を分析することで核物質の起源や目的を調べる必要があるため、分析は大別してスクリーニングと同位体分析に分けることが出来る。現在、スクリーニングに固体飛跡検出器を用いたフィッシュントラック(Fission Track : FT)法を、同位体分析に表面電離型質量分析(Thermal Ionization Mass Spectrometry : TIMS)を用いた FT-TIMS が特にサブマイクロメートル微粒子への感度が高く有効な手法として適用されているものの、試料操作が煩雑であり、分析に多くの時間を要するため、より迅速で効率的な分析が求められている。

そこで、本研究では原子核乾板を用いたスクリーニング及び事前評価と、レーザー共鳴イオン化質量分析法 (Resonance Ionization Mass Spectrometry : RIMS) を用いた同位体分析による迅速分析法を提案・開発した。ここで、スクリーニングに用いる原子核乾板は、荷電粒子の 3 次元飛跡を記録・読み出し可能な固体飛跡検出器であり、飛跡の形状から荷電粒子の情報を得ることが可能である。そこで本研究では、プルトニウムから放出される α 粒子と、熱中性子照射により生じる核分裂片を記録し、これらの比を読み出すことでプルトニウム同位体比を評価する事前評価法の開発を行った。

また、RIMS は原子のエネルギー準位間に相当する波長のレーザー光を入射することにより、選択的に励起・イオン化し、質量分析により同位体比分析を行う手法であ

り、前処理なしに同重体干渉を抑えた分析が可能になる。さらに、単原子化にレーザーアブレーション等を使用することで、試料の選択を容易にすることができる。一方、高精度・高確度な分析では、質量差別効果等の補正が必要であるが、本研究では試料操作の手間を省き、核種によらない補正が可能な補正法として、システムのパラメーターの変動との相関を利用する逐次補正法の開発を行い、核物質分析への適用性を評価した。

本論文は全5章から構成され、以下に各章毎の要約を記す。

第1章 序論

本章では、本研究の背景、目的及び本論文の構成について述べる。保障措置における環境試料分析法の位置付けと、現在使われている分析法について概説し、課題としてサブマイクロメートル微粒子分析の迅速化・効率化が必要であることを挙げた。さらに、原子核乾板の概説と、RIMSの課題について述べ、これらの技術を用いたスクリーニング及び事前評価と同位体分析による迅速分析法を提案し、同位体比の確度10%未満かつ既存のFT-TIMS法とくらべて迅速であることを目標値とした。

第2章 環境微粒子中核物質同位体比迅速分析法の原理

本章では、第1章で提案した迅速分析法について、より詳細な分析手法について述べた。分析手順はFig. 1に示すように、原子核乾板によるスクリーニングおよび事前評価により兵器級プルトニウムを発見し、優先的にRIMSで同位体比分析を行うことで測定の迅速化・効率化を目指す。プルトニウムは、ウランの燃焼により生成されるが、燃焼度が大きくなるにつれ ^{240}Pu 存在比が増加し、プルトニウムグレードが低下する特徴を持つ。特に ^{240}Pu 存在比が7%未満であり、主要な同位体が ^{239}Pu となるものは兵器級プルトニウムと区分され、保障措置上重要であり、早期発見が可能になることで効率的な分析が期待できる。また、この時 α 粒子は $^{239,240}\text{Pu}$ からの放出が主であり、核分裂片は ^{239}Pu が主である。

そこで、FTと α Tの比から求まる評価値 R_{240} を定義し、使用済燃料組成データベースSFCOMPOに登録されているPu同位体比に適用し、評価値が ^{240}Pu 存在比と相関があることを確認した。さらに、プルトニウム生成後、 ^{241}Pu の崩壊により α 崩壊核種である ^{241}Am が増加し、評価値に与える影響を求めたところ、評価値は総じて大きくなる傾向がみられ、また適切な閾値を設けることで兵器級・燃料級・原子炉級プルトニウムを過小評価することなく評価が可能であることを示した(Fig. 2)。同様に、微粒子中にプルトニウムとウランが混在している場合の評価値の変化を求め、 ^{235}U が熱中性子と相互作用することで発生するフ

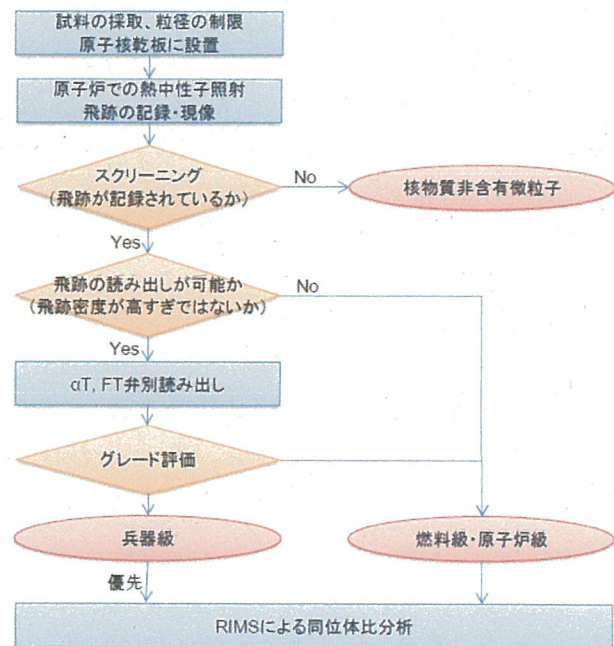


Fig. 1 迅速分析法フローチャート

イッシュントラックの増加により評価値が小さくなることを確認した。

また、RIMS の核物質含有微粒子への適用性を検討した。特に、粒径 $1\ \mu\text{m}$ の PuO_2 の場合、レーザーアブレーションやイオンスパッタリングによるパルス原子源と、パルスレーザーの組み合わせによる高イオン化効率と、高輸送効率・高検出効率の質量分析計により収率 1% が得られた場合、1 試料あたり 20 分程度で分析が可能であることが見積もられた。

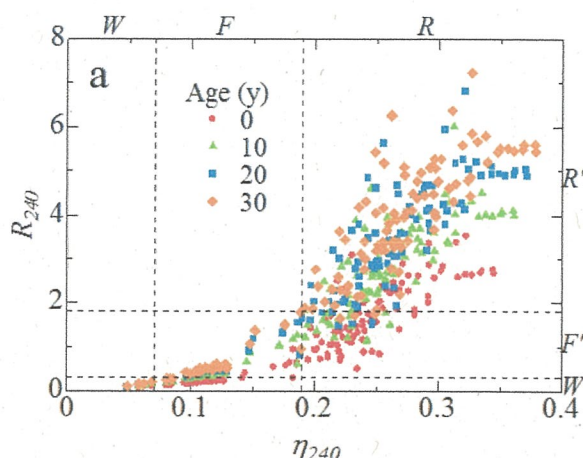


Fig. 2 ^{240}Pu 同位体比 η_{240} と評価値 R_{240}

第3章 原子核乾板を用いた事前評価法の開発

本章では、原子核乾板を用いた α 粒子飛跡 (Alpha Track : αT) 読み出しによる基礎実験と、モデル計算により事前評価法に関する検討を行った。基礎実験では、近年開発された 3 種類の原子核乾板 (OPERA フィルム、Neutron Gamma Image TrAcker (NGITA) 乾板、Nano Image Tracker (NIT)) にウラン鉱石から作った試料より放出される α 粒子を記録させ、断層像自動撮影システムと、飛跡読み取りアルゴリズムにより自動解析を行った。また、試料の α 線スペクトル測定値を使い、原子核乾板に入射する α 粒子のエネルギーを粒子・重イオン輸送計算コード PHITS により計算し、イオン飛程シミュレーションソフト SRIM で得られたエネルギーと飛跡長の関係から飛跡長分布を求めた。実験値と計算値を比較した所、NIT から読み出した飛跡の分布が最も計算値と一致しており、 $14\ \mu\text{m}$ 以上で良い一致を見せた (Fig. 3)。一方、プルトニウムから放出される $5.1 - 5.5\ \text{MeV}$ の α 粒子が NIT 中に記録する飛跡の長さは $25 - 28\ \mu\text{m}$ であり、核分裂片は Heavy Fission Fragment と Light Fission Fragment の平均値でそれぞれ $14\ \mu\text{m}$ 、 $16\ \mu\text{m}$ であることから、NIT に事前評価法への適用可能性があることを示した。

モデル計算では、微粒子から放出される荷電粒子が作る飛跡を模擬し、記録した飛跡数と読み出し可能な飛跡数の関係を求め、そこから事前評価可能な Pu 含有量について検討した。 $14\ \mu\text{m}$ の飛跡では 300 本記録させると読み出しが飽和し、 α 粒子の照射期間を 10 日間、熱中性子フルエンスを $6 \times 10^{13}\ \text{cm}^{-2}$ とすることで、 $\sim 130\ \text{fg}$ の兵器級プルトニウムの評価が可能であることを示した。

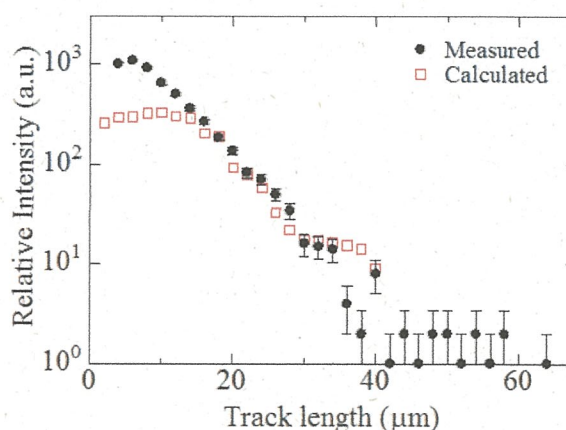


Fig. 3 NIT 中 αT 飛跡長分布

第4章 RIMS を用いた高精度同位体比分析のための補正法の開発

本章では、微量核物質の高精度分析のため、RIMS における逐次補正法の開発を行い、核物質への適用性を検討した。逐次補正法はイオン計数とレーザー出力等複数のパラメーターの相関から、システムの変動による影響を補正する計数補正と、共鳴波

長の同位体シフトによる、同位体毎のイオン化効率の違いが、レーザー波長の変動により受ける影響を補正するイオン化効率補正からなり、後者を行うためには、試験試料の測定の前もしくは後に、同位体比既知の標準試料を使ってイオン化効率の波長依存性を測定する必要がある。

計数補正の基礎実験として、磁場セクター型質量分析計を用いた RIMS においてイッテルビウムの測定を行い、2 色 2 段イオン化スキームにおけるレーザーの照射タイミング差によるイオン化効率の変化をモデル化し(Fig. 4)、またレーザー出力と組み合わせた計数補正が有効であることを示した。

さらに、逐次補正の実証実験として、飛行時間型質量分析計を用いた RIMS において、チタンおよびジルコニウムの 1 色 2 段イオン化による同位体比測定を行い、レーザー出力と実験室の気圧をパラメーターに用いた計数補正と、離調周波数を使ったイオン化効率補正により、チタンにおいては最大の誤差を 11.1% から 1.65% に(Fig. 5)、ジルコニウムでは 3.02% を 1.18% に低減させた。

また、現在報告されている RIMS のウラン・プルトニウムへの適用例では、同位体比の測定において 10% 以上の誤差が見られるが、複数本のレーザーによる多色多段イオン化への適用に向けた課題があるものの、逐次補正法では核種に依らない補正が可能なため、ウラン・プルトニウム分析における確度 \sim 10%の見込が得られた。

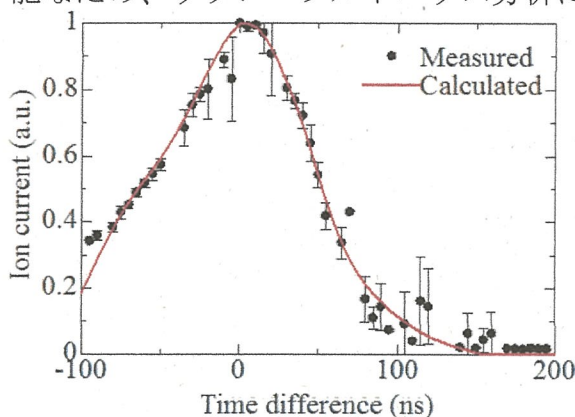


Fig. 4 照射時間差とイオン電流

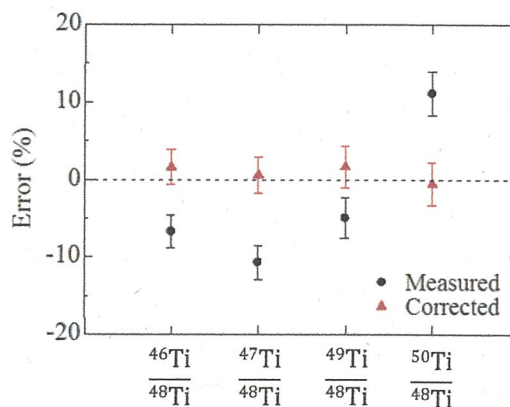


Fig. 5 補正による誤差の変化

第 5 章 結論と今後の展望

本章では、本研究のまとめと、今後の展望について述べる。前章までに開発した内容により、逐次補正法による核物質含有微粒子試料の分析において、事前評価法による \sim 130 fg の兵器級プルトニウム評価と、RIMS による同位体比分析による確度 10% 未満の見込みが得られた。また、分析全体に要する時間として、微粒子数 60 個の測定において、FT-TIMS 法で 21 日と見積もられるところを、迅速分析法により 14 日に短縮可能と見積もられた。

今後の展望として、事前評価法においては、原子核乾板中に記録された α T・FT の弁別読み出し及びプルトニウムグレード評価の実証と、RIMS においては、レーザーアブレーション等の適用や複数のレーザーを用いた場合における逐次補正法の適用と、ウラン・プルトニウムの高確度分析の実証により、迅速分析法を実証し、環境試料分析の迅速化に繋がることが期待される。