核物質標準の国内調達に向けて

保障措置上不可欠な核物質標準をいかに確保するか

日本原子力研究開発機構 鈴木 徹,

日本原子力研究開発機構・東京大学 久野 祐輔

核燃料サイクル施設の長期的安定運転には、保障措置上の要求を満たすことが不可欠であるが、そのためには的確な計量管理が基礎をなす。そこでは、核物質の計量管理(保障措置)のための「分析」が非常に重要な役割を担っている。特にIAEAとの協定下で要求されている「国際標準レベルでの測定による報告」を実行していくためには、分析を高い品質で維持していくことが必須となる。そこでキーとなるのが「核物質標準」である。しかし、一部の核物質標準は近年、海外からの入手が極めて困難な状況に陥っており、その国内調達の必要性がクローズアップされてきた。本稿では、計量・保障措置分析における核物質標準の役割、国際的動向、国内調達に向けた動き等について解説する。

I. IAEA 保障措置体制における破壊分析の位置づけ

核燃料サイクル施設の長期的安定運転には、IAEA 保障措置協定の要求を満たすことが不可欠である。そのためには核物質の計量管理を的確に実施していくことが基本となるが、そこでは「計量・保障措置分析」が非常に重要な役割を果たしている¹⁾。

同保障措置協定に基づくIAEAの査察においては、核物質使用者により定められた「計量管理」が適切に行われているかを確認することが基本となる。計量管理とは、ある施設の一定区域に現在どのような核物質がどれだけ現存し、それ以前の一定期間にどれだけ核物質の受入れ・払出しがなされたかを厳格に管理する手法であり、いわば核物質の帳簿による管理である。保障措置は、この帳簿管理を繰り返し確認することにより、核物質の転用がないことをチェックしていく作業である。これは、施設からの計量管理報告をうけて当事国がIAEAに確認の報告をするステップと、さらに当事国からの報告内容が妥当であるかどうかをIAEAが確認するステップからなる。

この査察・チェック作業において、当事国およびIAEAは、非破壊測定(NDA)およびサンプリング作業による破壊分析(DA)を行う。NDAは適時性の点から重要であり、ガンマ線スペクトルや中性子測定法などさ

まざまな装置が導入されているが、適用範囲および精度において限界がある。すなわち、多量の核物質の抜取りの有無を短時間で検知するには適しているが、少量を分割して抜き取る場合の検出には不十分である。

施設側が行う計量管理システムにおけるわずかな偏りによる欠損(バイアス欠損)の有無を検出するためにはDAは不可欠である。具体的には、次のような考え方に基づく。(1)施設は可能な限り精確な(偏りとばらつきが両方小さい)手法による計量分析—DAをベースに計量報告を行う。(2)査察側は、ランダム的にサンプリングした試料を同じく上記のような精確な手法(DA)で分析する。(3)この両者がDAの不確かさの範囲内(小さな誤差)で一致すれば、バイアス欠損がないであろうとの結論が得られるわけである。すなわち査察側がすべての試料を検証分析するのではなく、ランダムに分析を実施するだけでバイアス欠損の有無が確認できるというものであり、このような方法を「オペレータ測定システムの検認(検証)」という²⁾。

ここで重要となるのが、分析の精確さの維持である。仮に施設側、査察側の一方または両者のDA能力に問題があった場合、このような考え方は成立しなくなるからである。すなわち、施設側の計量分析を精確に保つことは、当該国の精確な申告を行うという目的だけでなく、「計量管理をベースとする保障措置」の考え方を成立させるために大きな意味を持つ訳である。

この観点から、IAEAとの協定(日本—IAEA保障措置協定)INFCIRC 255の55条では、「報告の作成に用いられる記録の基礎となる測定の体系は、最新の国際標準に合致するもの、またはこれと質的に同等なものとする」

Towards Accomplishment of Domestic Supply of Nuclear Reference Materials for Safeguards Analysis : Toru SUZUKI, Yusuke KUNO.

(2009年 4月28日 受理)

と約束されているのである。さらに、INFCIRC 225のパラグラフ75においても、計量分析・測定について、試料の採取、試料の処理と分析、測定器・装置の校正について規定が記載されている。

Ⅱ．核物質分析の品質保証および核物質標準の役割

核物質計量は、原子燃料(ウラン酸化物燃料, ウラン合金燃料, MOX(U/Pu 混合酸化物)燃料, 濃縮ウラン(六フッ化ウラン等), 使用済核燃料, 回収ウラン・プルトニウムなどが対象となるが, 特に, プルトニウム系に関しては, その有意量(1個の核爆発装置の製造の可能性を排除し得ないおおよその核物質質量)が小さい(8 kg)ことによる理由で, 分割的な小量採取を検知するためには高い精確さの分析が求められる。これまでプルトニウムを中心とした核燃料サイクルでは, 日本原子力研究開発機構(以下, 機構という)の再処理施設, プルトニウム燃料製造施設などにおいて高いレベルの計量・保障措置分析技術が確立されてきた。それらにおける分析の品質保証は, ①認証標準物質(Certified Reference Materials; CRM)を用いた機器(および各手順)の校正, ②実試料における繰返し測定, ③品質管理(QC)試料(CRM またはそれに順ずる標準物質)およびブランク試料による確認分析, ④異なった分析法によるクロスチェック, ⑤外部 QC プログラム(共同比較分析等)への定期的な参加による性能チェック, ⑥実際の査察試料(査察作業外)をベースとした共同比較分析, などの実施を基礎としている。分析品質の実績評価における目標値として ITV(International Target Value)2000³⁾と呼ばれる値がある(第1表)。

これは, 当分野の各国の専門家が集まり議論した結果を「核燃料分析のルーチン分析において実際に達成できる目標値」としてまとめたものであるが, 機構における核物質分析は, この ITV 2000を十分満足する性能を有することが確認されている。そのような性能担保への重要な点は, 信頼性の高い標準物質を基準とした精確な

第1表 国際目標値[ITV 2000]
(基本的な DA 技術および求められる分析不確かさ)

	ランダム (%)	システマティック (%)
²³⁵ U 質量分析		
例えば1-2%濃縮度	0.1	0.1
U 滴定分析	0.1	0.1
U 重量法	0.05	0.05
U, Pu 同位体希釈 質量分析法(ホットセル)	0.2	0.2
Pu 滴定法	0.15	0.15
Pu クーロメトリー	0.15	0.15

第2表 国際的に利用されている主な核物質標準(Pu 系)

用途	標準物質名称	組成, 形態	供給元
同位体測定	NBL CRM 128	Pu 239:242=1:1	NBL ^{a)}
	NBL CRM 136	軽水炉 Pu 同位体組成	
プルトニウム濃度分析	NBL CRM 126	プルトニウム金属	NBL
	MP-2		CETAMA ^{b)}
	IRMM-044	Pu-242	IRMM ^{c)}
	IRMM-1029	Pu-U 乾固物 (LSD スパイク)	IRMM

^{a)}New Brunswick Laboratory(米国 DOE 傘下)

^{b)}Commission d'ETablissement des Methodes d'Analyse du CEA(フランス CEA 傘下)

^{c)}Institute for Reference Materials and Measurements(EU 傘下)

分析を実現することである。このためには, 上記にもあるように, 信頼性のある核物質標準が不可欠である。核物質標準は, これまで海外から入手したものによるところが大きかった。近年使用されている代表的なプルトニウム系核物質標準を第2表に示す。

一方, 我が国では, 一部のウラン系核物質標準を除き, 計量・保障措置分析を目的とした標準物質の作製に対してはほとんど取り組まれてこなかった。その背景には, かつて, 海外の核物質標準の供給体制が充実していたこと, プルトニウム系核物質標準のうち, 精確なプルトニウム濃度分析用標準には金属の形態が望ましく, そこのプルトニウムの同位体組成が, 核兵器級のプルトニウム組成に近いこと, すなわち, 非核兵器国として兵器級同位体組成をもつ金属プルトニウムを製造することは, 例え少量であっても核不拡散上容易ではないことが考えられる。しかし, 近年, 核物質の輸送は非常に困難になりつつあり, また海外の核物質標準の製造・供給体制も必ずしも安定しない状況にあり, 特に金属プルトニウム等, いわゆる計量上絶対的な位置づけに当たる1次核物質標準の入手は極めて困難な状況になっている。核燃料サイクルの本格化の時代に, 計量・保障措置分析のベースとなる核物質標準の獲得は, 原子力を推進する国にとっては死活問題といっても過言ではない。このような背景から, 機構では, 核不拡散上問題のない範囲で独自に核物質標準を確保することに取り組んでいる。

Ⅲ．プルトニウム系分析用核物質標準国内作製に向けての取組み

1. 日本原子力研究開発機構においてプルトニウム系核物質標準の作製試験を開始

現在, 我が国のプルトニウム分析法としては, 主に同位体希釈質量分析法(IDMS)が適用されている。この方法は, 分析対象試料に, それとは大きく同位体組成の異

なるスパイクと呼ばれる標準物質を一定量添加し、添加前後の同位体組成比を質量分析計により測定することにより、試料中の元素量を定量するものである。一般的にはスパイクとして、希少な濃縮同位体元素が用いられるため、その添加量は極微量であるが、核物質分析では、セル等における分析前処理時の希釈操作による誤差を低減させる目的で、入手が比較的容易な濃縮同位体である ^{235}U および ^{239}Pu を用いることにより、スパイク量を多くするとともに、輸送中の安定性を考慮して形態を乾固物にした、LSD(Large Size Dried)スパイクと呼ばれる核物質標準(第1図)が開発され、広く使用されている⁴⁾。

一般に、LSD スパイクは、1本あたりミリグラムオーダーのプルトニウムとウランを含み、プルトニウム金属標準物質とウラン金属標準物質を硝酸で溶解し、それぞれを適切な割合で混合したのち、バイアル瓶に所定量が含まれるように分取・加熱・乾燥して、硝酸塩の形態にすることにより作製される。

機構では、従来から再処理施設でLSD スパイクが使用されていたが、1996年にプルトニウム燃料施設においてもIDMSが導入されたため、スパイクのニーズが急増した。その後、プルトニウム金属標準物質の入手が困難な状況になったことを踏まえ、将来にわたって安定的にスパイクを入手できるようにするため、プルトニウム金属標準物質を使用せずに、第2図に示すフローでLSD スパイクを作製する技術開発を実施している。

LSD スパイクの原料として、プルトニウム燃料施設に保管されている核燃料物質のうち、比較的 ^{239}Pu 組成の高いプルトニウムを含む混合酸化物(MOX)粉末(以下「MOX 粉末」)から、プルトニウムを分離回収精製して、プルトニウム溶液を調製する。ここで溶液中のプルトニウム濃度を、電解時の電気量からファラデーの法則により物質量を求める方法であるクーロメトリー法により定量し、値付けする。ウラン溶液は、現在のところまだ比較的入手が可能なウラン金属標準物質を溶解することにより調製し、プルトニウム溶液と混合したのち、一定量をバイアル瓶に分取し、乾固してLSD スパイクとする。なお、1回のプロセスにより、約500個のLSD スパイクが作製される。

第1図 LSD スパイク外観

第2図 MOX 粉末からのLSD スパイク作製

LSD スパイク中のプルトニウム量は、プルトニウム溶液の定量値を基に、ウラン量は、ウラン金属標準物質の認証値を基に、秤量値、希釈倍率、分取量から算出する。プルトニウム同位体組成比は、プルトニウム溶液の質量分析法(MS)による測定値を、ウラン濃縮度は、ウラン金属標準物質の認証値を用いる。これらの値の妥当性については、製品LSD スパイクの一部を逆IDMS法により分析し、その結果と比較することによって確認する。さらに、国内外の分析所に製品LSD スパイクの一部を配布し、共同分析を行うことにより、最終的な確認を行う。

IDMSにおいて、前記のITV 2000を満足するためには、LSD スパイクに非常に高い信頼性が要求される。そのため、MOX 粉末からLSD スパイクを調製するに当たって、プルトニウムの濃度・同位体組成の値付けの各工程には、細心の注意のもと、可能な限り高い精確さを追及することが重要になる。また、このLSD スパイクに認証値を付与する際には、LSD スパイク作製プロセスにおけるすべての不確かさの要因を評価し、統合的な不確かさを算出することも必要となる。以上のことから、機構では、クーロメトリー法については米国サバンナリバー研究所、質量分析法や分析値の誤差評価手法については米国NBLと共同研究を実施し、それらの技術の確立を図ってきた。これまでに、クーロメトリー法については、0.05%以内という非常に高い分析精度を実現している。

機構と日本原燃株は、LSD スパイクに関する共同研究の中で、このフローに基づき実際に LSD スパイクを作製し、六ヶ所再処理工場で実試料を用いて、IRMM 製の LSD スパイクとの並行分析を実施した。その結果、両者の差は認められておらず、MOX 粉末から作製した LSD スパイクが、計量・保障措置分析に十分使用できる見通しを得た。現在、国内外の分析所による共同分析を実施中であり、並行分析の結果とあわせて、この LSD スパイクの信頼性を最終的に確認する計画である。

今後、六ヶ所再処理施設と MOX 燃料加工施設が本格稼働することにより、LSD スパイクの消費量が大幅に増加することが予想されている。加えて、将来 LSD スパイクまたはその原料となる認証標準物質が海外から入手できなくなるリスクも考慮すると、国内で LSD スパイクを入手できるようにすることに対するニーズは大きい。そのため、まず、この LSD スパイク作製技術を確立し活用することが期待されている。

2. 原子力学会特別専門委員会における取組み

核物質標準のユーザーである産業界(日本原燃株等)、分析標準の認証に関する専門家(産業技術総合研究所および分析関連の大学)、核物質分析専門家(核物質管理センター)と共に、核物質標準の国内作製にむけ議論することは必要かつ有益である。また同時に、原子力産業界を視野においた計量・保障措置分析の品質保証維持向上のための施策を考えることは重要である。長期的に安定した計量・保障措置分析の品質レベルを維持する体制を構築することを目的に、日本原子力学会に核物質管理学会協賛のもと「計量保障措置分析品質保証」特別専門委員会(委員長 松本史朗埼玉大学名誉教授)が設けられた(2007年2月設立)。

本専門委員会を中心として、第3図に示すように、国内核物質計量・保障措置における品質保証支援について

第3図 国内における計量・保障措置品質向上への支援取組み

国内での基盤作りを図るとともに、核物質標準の国内作製体系確立について、学会の場により議論を重ね、また、それらを関連産業界へ反映させるために活動を展開している(これまでの委員会活動については学会ホームページ参照⁵⁾)。

3. 国内認証に向けて

MOX 粉末から作製した LSD スパイクは、上述のように、共同分析などによってその信頼性を確保することにより、核物質分析用に使用しても問題を生じるようなことはない。しかしながら、この LSD スパイクのように、国内で作製した核物質標準は、その用途が核物質の計量・保障措置分析という国際的に重要な位置づけを持つものであるという観点で、現在、海外機関から頒布されている核物質標準と同等またはそれに匹敵する品質であることを国内外に示すことが重要となる。そのためには、作製する標準物質を、より信頼性の高い認証標準物質(1つ以上の指定された特性について、計量学的に妥当な手順によって値付けされ、指定された特性の値およびその不確かさ、並びに計量学的トレーサビリティを記述した認証書がついている標準物質)とし、さらに認証標準物質の生産に関する国際的な規格を満足していることを対外的に示すこと(その規格に対する認定を取得すること)が、最も有効であり、特に、核物質標準が持つ役割の重要性を考慮すると、その意義は非常に大きい。

認証標準物質を生産するための要求事項は、ISO 17025「試験所及び校正機関の能力に関する一般要求事項」および ISO GUIDE 34「標準物質生産者の能力に関する一般要求事項」に定められており、それらを満足することが必要となる。具体的には、適切な品質システムを運営し、値づけや不確かさ評価を行うための技術的な能力を有していることが求められる。

上記の専門委員会では、国内の分析所で認証核物質標準を作製するために、まず ISO 17025の要求事項に対して、どのような課題があるかを検討している。例えば、試験所で使用する分析手法は基本的に公定法を用いるという要求事項があるが、現在国内で実施している IDMS によるプルトニウム分析法の手順は、公定法である国際規格(ISO)と若干の違いがある。そのため、その違いが分析の精確さに及ぼす影響について議論がされた。その結果、計量・保障措置分析上問題がないことが確認されたため、今後、国内の手順の統一化を図り、それを公定法とすることが検討されている。これにより、国内のプルトニウム分析所が ISO 17025を取得するための環境の一つが整備されることになる。

MOX 粉末から作製した LSD スパイクを認証標準物質として位置づけるために、作製に携わっている分析所が、認証標準物質生産に関する規格に対して認定を取得

することが最終的な目標であり、今後も、それらの規格の要求事項を満足するための取組みを行っていく予定である。

IV. 今後の計画

Ⅲ章では、一例としてLSDスパイクと呼ばれる標準物質の作製について示したが、核物質標準の国内作製は、未だ道半ばという段階である。しかし、上述のように、その核物質標準というものの重要性和海外からの調達の困難性を考慮すれば、その必要性は極めて高いといえる。

既述のように、現在のLSDスパイクでは、ウランは金属標準物質を用いているが、今後は、プルトニウム同様、国内で確保できる物質を用い、精確な値付けおよびその認証により、完全なLSDスパイクの国産化を図っていくことが必要である。その他、今後取り組むべき核物質標準には下記のようなものが考えられる。

- (1) 原料標準物質として金属ウラン、金属プルトニウムに代わる核物質基準物質：安定なウラン酸化物、プルトニウム酸化物(高温により調製)など。ただし、保管・使用などに配慮が必要。(安定化についての研究開発を伴う)
 - (2) 溶液形態のU/Pu混合スパイクの作製：必ずしも固体である必要のないニーズに対し適用
 - (3) 異なるニーズに応じたウラン・プルトニウム混合核物質標準(多種多様なスパイク)
 - (4) ウラン、プルトニウム各同位体測定用核物質標準
- 計量・保障措置分析のレベル向上には、核物質標準の作製とともに、Ⅱ章で示した品質保証の充実が重要である。なかでも、核物質標準とともに我が国において困難とされるものに「共同比較分析」が挙げられる。これは、一般に、核物質標準作製ラボラトリーなどにより調製された信頼性の高い物質を用い、核物質標準のユーザーである分析所が分析を共同で実施、調製値(基準値)や他の分析所結果との比較からその性能を評価報告するものである(基本的に結果が報告されるまでユーザーには基準値は知らされない)。これについても、輸送の困難性およびプルトニウム試料の輸送費の高騰から、海外のラボラトリーが主催する共同分析への参加には限界がある。これに代わる国内共同比較分析を定期的に企画実施できるシステムの構築は、上記核物質標準の作製とともに重要である。

V. おわりに

先に述べたとおり我が国においては、核物質標準作製

について、一部のウランを除き、ほとんど取り組まれてこなかった。そればかりか、その重要性についても必ずしも理解されていないのが現実ではないかと考える。たとえばEUでは、ヨーロッパ委員会のもと、ユーラトムが、原子力開発・燃料供給から保障措置まで幅広く取り組んでいるが、そこには、核物質標準および分析の品質保証を専門に扱う研究所(標準物質・測定研究所IRMM)が設置され、EU諸国内の計量・保障措置の核物質標準や共同比較分析のニーズに対応する業務を行っている。米国においてもNBL研究所にて米国内研究所や核施設を対象に同様のサービスを一元的に実施している。原子力発電のみならず、核燃料サイクルという計量・保障措置上非常に重要な施設を多くもつ我が国として、核物質標準の作製を担当する組織を明確にするとともに、そのようなキーとなる分析所・研究所を有することが必要と考える。今回開始された日本原子力学会「計量保障措置分析品質保証」特別専門委員会を中心とした活動を契機に、この重要性について国、関係諸機関、および産業界が認識し、今後、核物質標準作製に本格的に取り組むことができる体制を確立する方向に進むことを切望する。

— 参考資料 —

- 1) 久野祐輔, “国際的な核不拡散における分析の役割”, ぶんせき, No.1, p 11-17 (2003).
- 2) IAEA Safeguards Glossary 6.55 (2001).
- 3) H. Aigner, et al., IAEA STR-327, (2001).
- 4) Y. Kuno, et al., *Trans, Am, Nucl, Soc.*, Winter Meeting, 229 (1989).
- 5) http://www.aesj.or.jp/special/2008_hokoku.htm

著者紹介

鈴木 徹(すずき・とおる)

日本原子力研究開発機構
(専門分野/関心分野)核燃料分析, 保障措置分析

久野祐輔(くの・ゆうすけ)

日本原子力研究開発機構
・東京大学原子力国際専攻
(専門分野/関心分野)核不拡散: 核拡散抵抗性, 保障措置・保障措置分析, 透明性