

論文

岡山大学における核燃料物質の安全管理のための
劣化ウランと天然ウランの鑑別について永松知洋^{1*,2}・花房直志²・金野郁雄²・迫田晃弘¹・花元克巳¹・山岡聖典¹
小野俊朗²¹岡山大学大学院保健学研究科, 〒700-8558 岡山市鹿田町 2-5-1²岡山大学自然生命科学研究支援センター光・放射線情報解析部門鹿田施設, 〒700-8558 岡山市鹿田町 2-5-1
(平成 20 年 10 月 28 日受理)**Discrimination between Depleted Uranium and Natural Uranium in
Uranium Compounds Stored in Okayama University****Nagamatsu Tomohiro^{1*,2}, Hanafusa Tadashi², Ikuo Kinno², Sakoda Akihiro¹, Hanamoto Katsumi¹,
Yamaoka Kiyonori¹, and Ono Toshiro²**Graduate School of Health Sciences, Okayama University,
2-5-1, Shikata-cho, Okayama-shi 700-8558, Japan¹Department of Radiation Research Shikata Laboratory, Advanced Science Research Center, Okayama University,
2-5-1, Shikata-cho, Okayama-shi 700-8558, Japan²

Abstract: In Japan, the Law for the Regulation of Nuclear Source Materials, Nuclear Fuel Materials and Reactors (Regulation Law) controls the nuclear fuel materials such as thorium (Th), uranium (U) and plutonium (Pu). Under the Regulation Law, all related materials and reactors are needed to register to the Government. In Okayama University, many nuclear fuel materials, mainly uranium compounds, are registered and stored in 11 departments, separately. Discrimination between depleted uranium and natural uranium is important for the observance of the Regulation Law and the safety management of the nuclear fuel materials in the Okayama University. However, the discrimination of the two kind of uranium has poorly analyzed. In this study, we analyzed several uranium compounds by using γ -ray spectrometry to determine whether the depleted uranium or not.

Key words: Nuclear Fuel Materials, Depleted Uranium, Natural Uranium, γ -ray Spectrometry

1. 緒言

核燃料物質とは、原子核分裂により高エネルギーを放出するウラン、トリウム、プルトニウムのことを指し、核原料物質とはウラン鉱、トリウム鉱等の核燃料物質の原料となる物質のことをいう。我が国ではこれらを使用する場合は、その種類と数量によって「核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律」(原子炉等規制法)に基づき、文部科学大臣に登録し、承認を得なければならない。岡山大学では自然生命科学研究支援センター光・放射線情報解析部門鹿田施設(以下「鹿田施設」)及び医学部を含む9部局が国際規制物資使用施設として、地球物質科学研究センター及び自然生命科学研究支援セ

ンター放射線情報解析部門津島施設の2部局が核燃料物質使用施設としてその種類と数量ごとにそれぞれ文部科学大臣の承認を得ている。それぞれの部局ではそれらの使用及び保管に関して国際規制物資計量管理責任者のもとで厳重に管理されている。岡山大学では核燃料物質ではウランが最も多く登録されている。ウランは天然ウランと劣化ウランとに厳重に区別されており、各部局で使用できる数量は天然ウランと劣化ウランごとに決められている。原子炉等には天然ウラン中に0.72%存在する²³⁵Uを3-4%まで濃縮した核燃料が用いられる。この濃縮の際に²³⁵U濃度の低いウラン残渣が副産物として生じる[1]。米国原子力規制委員会によると0.71%以下のものが劣化ウランと定義されている。その他、0.64%以

下と定義している場合もあるが、最も一般的な劣化ウランの ^{235}U の含有率は 0.2 - 0.3% である [2, 3]。劣化ウランは民生用として広く世界中で使用されている [4]。大学等の研究施設では、ウラン試薬（酢酸ウラニル、硝酸ウラニル）として電子顕微鏡用試料の染色に盛んに使用されてきた。これらの中には原子炉等規制法制定（1957 年）以前から購入、使用されていたものも含まれている。天然ウランか劣化ウランかはその試薬のラベル等では判定不能で、多くのものは推定により劣化ウランとされ登録されている。2005 年の文部科学省原子力規制室の通達により、全国で未登録の核燃料物質等の調査が行われ、岡山大学でも未登録の核燃料物質が発見された。その後 2008 年にも未登録の核燃料物質の発見されたことから、全学で徹底した調査が行われ、次々と核燃料物質が発見されるに至った。部局により承認されている天然ウランあるいは劣化ウランの数量を超える場合も考えられ、天然ウランか劣化ウランかを適正に鑑別することが岡山大学での核燃料物質の安全管理に重要である。本研究では、鹿田施設及び医学部で保管されているウラン試薬について γ 線スペクトロメトリーにより天然ウランと劣化ウランの鑑別を行った結果について報告する。

2. 材料と方法

今回、測定の対象としたウラン試薬は、鹿田施設保管の 6 種類、医学部保管の 22 種類の計 28 種類で

ある。内訳は酢酸ウラニル 19 本、硝酸ウラニル 9 本である。鑑別には、それぞれのウラン試薬の γ 線スペクトルを解析することによる簡易鑑別法を用いた [5]。

1. γ 線スペクトロメトリー

ウラン試薬は、容器ごとにポリ袋に入れて n 型同軸型高純度 Ge 半導体検出器 (GMX-15200-P, Seiko EG&G Ortec) 及び 4096 波高分析器 (Seiko EG&G, MCA7800) で測定、分析した。試料は検出器の先端から 10cm の距離で測定した。検出器の遮へい体は鉛厚 10cm、銅厚 5mm、アクリル樹脂厚 5mm である。解析には DS-P100/w (Seiko EG&G) ソフトウェアを用いた。

2. 天然ウランと劣化ウランの判別法

ウランには ^{238}U , ^{235}U , ^{234}U の 3 種類の同位体がある。その天然同位体存在比はそれぞれ 99.27%, 0.72%, 0.0055% であり、半減期はそれぞれ 4.468×10^9 年, 7.038×10^8 年, 2.457×10^5 年である [6]。同位体存在比と半減期から天然ウラン中の同位体の放射能比は ^{235}U を 1 とすると ^{238}U は 21.72 となる。従ってウラン試料中の ^{238}U に対する ^{235}U の存在比が有意に低いものは劣化ウランと判別できることになる。同一試料に放射能が等しい核種が複数存在する場合は、放出される γ 線の光電ピークの計数率 (R) をその γ 線の放出率 (B) で割った値 (R/B 値) は γ 線エネルギーの関数として表すことができる。すなわち R/B 値を γ 線エネルギーに対してプロットすると同一曲

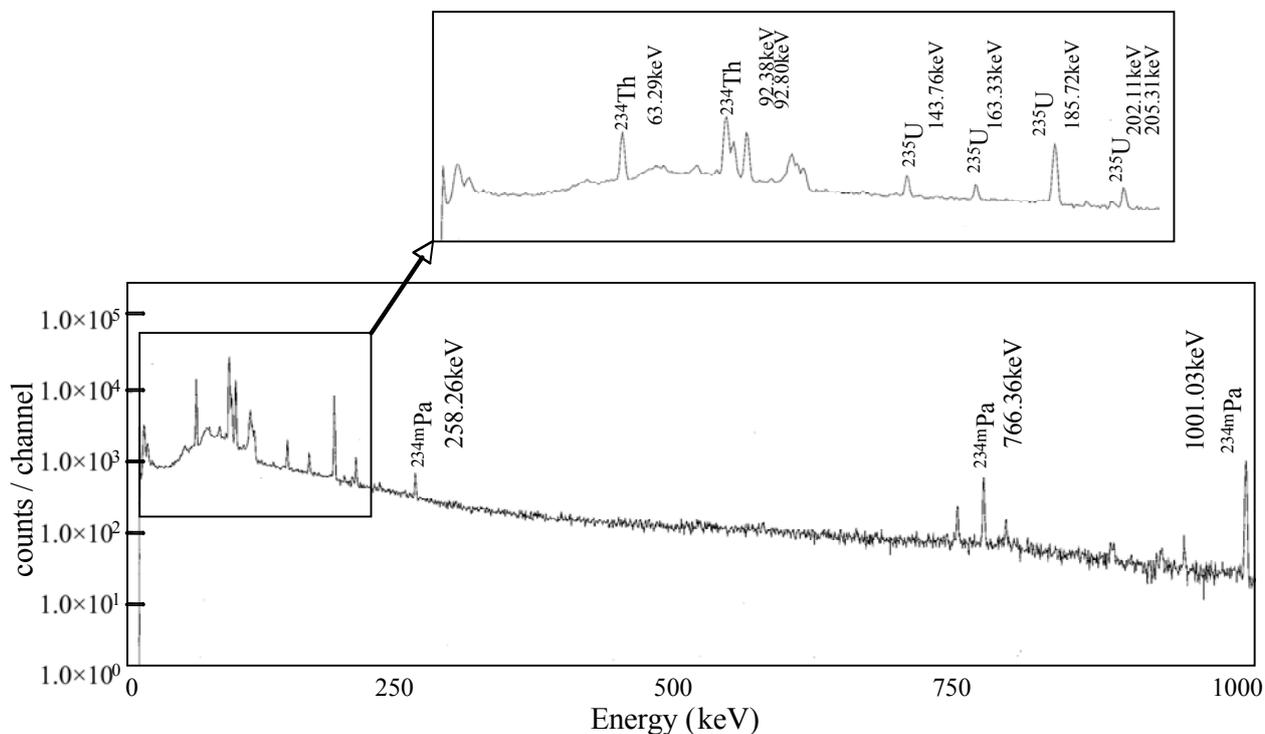


図1 ウラン試薬(酢酸ウラニル)の γ 線スペクトル

線に乗る。天然ウランでは ^{238}U とその娘核種である ^{234}Th 及び $^{234\text{m}}\text{Pa}$ は放射平衡にあり、それらの放射能は等しい [7]。天然ウランの場合は ^{235}U についてのR/B値を21.72倍した値は ^{234}Th と $^{234\text{m}}\text{Pa}$ についてプロットした曲線上にあるか近接しているが、劣化ウランの場合は曲線の下側に位置される。さらに、天然ウランの場合は ^{235}U についてプロットすると $^{234\text{m}}\text{Pa}$ についてプロットした曲線と同一の傾きとなるが、劣化ウランの場合は ^{234}Th についてプロットした曲線の傾きに沿って位置する [5]。

3. 結果と考察

図1にGe半導体検出器による γ 線スペクトルを示す。解析に用いた ^{235}U に由来する4種類の光電ピーク及び ^{234}Th と $^{234\text{m}}\text{Pa}$ に由来する5種類の光電ピークを示す。医学部保管のウラン試薬22種類(酢酸ウラニル13種類, 硝酸ウラニル9種類), 鹿田施設保管のウラン試薬6種類(酢酸ウラニル6種類)について測定したところ, 医学部保管の1種類のみが天然ウランと判別され, 残りの27種類は劣化ウランと判別された。医学部では4種類が天然ウランと識別されていたが, 測定の結果すべてが劣化ウランであることがわかった。しかし, この反対に劣化ウランとされていたものが天然ウランであることがわかったものが1種類あった

表1 ウラン試薬の γ 線スペクトロメトリーによる鑑別

	化合物名	メーカー	部局名	ウランの種類		劣化度
				解析前(推定)	解析後	
1	硝酸ウラニル	W	医学部	劣化	劣化	低
2	硝酸ウラニル	W	医学部	劣化	劣化	低
3	硝酸ウラニル	W	医学部	劣化	劣化	低
4	硝酸ウラニル	W	医学部	劣化	劣化	低
5	硝酸ウラニル	W	医学部	劣化	劣化	低
6	硝酸ウラニル	W	医学部	劣化	劣化	低
7	硝酸ウラニル	W	医学部	劣化	劣化	低
8	硝酸ウラニル	W	医学部	劣化	劣化	低
9	酢酸ウラニル	M	医学部	劣化	天然	-
10	酢酸ウラニル	M	医学部	劣化	劣化	高
11	酢酸ウラニル	M	医学部	劣化	劣化	高
12	酢酸ウラニル	M	医学部	劣化	劣化	高
13	酢酸ウラニル	M	医学部	劣化	劣化	高
14	酢酸ウラニル	Ka	医学部	劣化	劣化	高
15	硝酸ウラニル	Ka	医学部	劣化	劣化	低
16	酢酸ウラニル	Ki	医学部	劣化	劣化	高
17	酢酸ウラニル	Ki	医学部	劣化	劣化	高
18	酢酸ウラニル	T	医学部	天然	劣化	高
19	酢酸ウラニル	T	医学部	天然	劣化	高
20	酢酸ウラニル	I	医学部	天然	劣化	高
21	酢酸ウラニル	不明	医学部	劣化	劣化	高
22	酢酸ウラニル	不明	医学部	天然	劣化	高
23	酢酸ウラニル	W	鹿田施設	劣化	劣化	低
24	酢酸ウラニル	Ki	鹿田施設	劣化	劣化	高
25	酢酸ウラニル	I	鹿田施設	劣化	劣化	低
26	酢酸ウラニル	I	鹿田施設	劣化	劣化	低
27	酢酸ウラニル	I	鹿田施設	劣化	劣化	低
28	酢酸ウラニル	I	鹿田施設	劣化	劣化	低

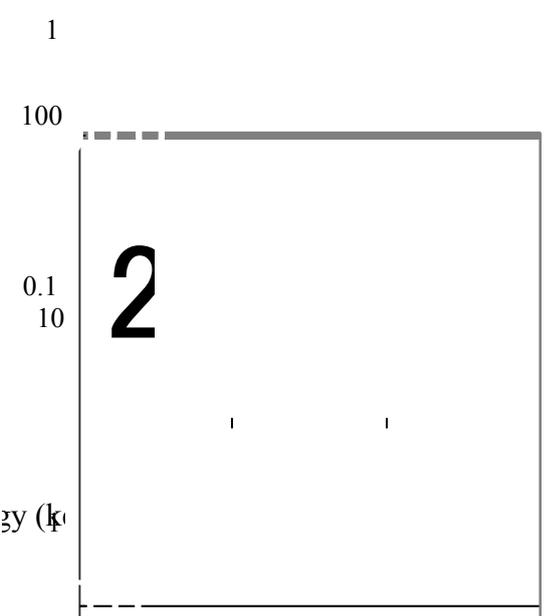
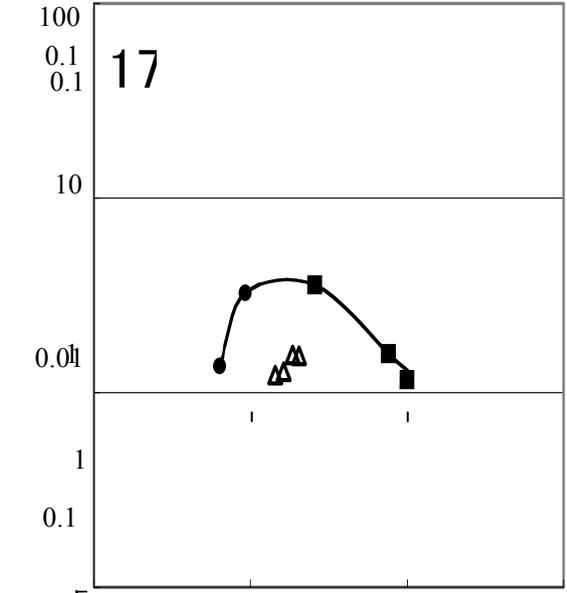
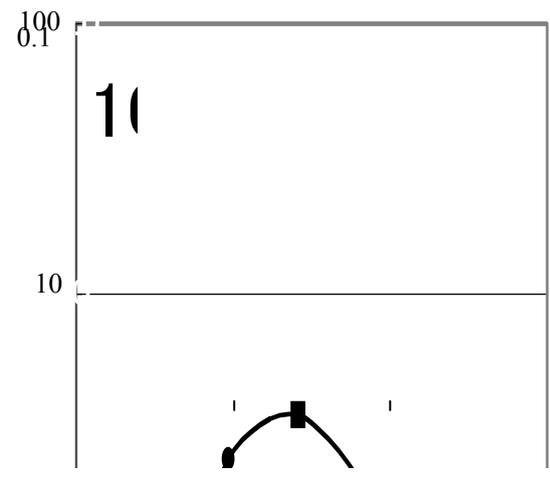
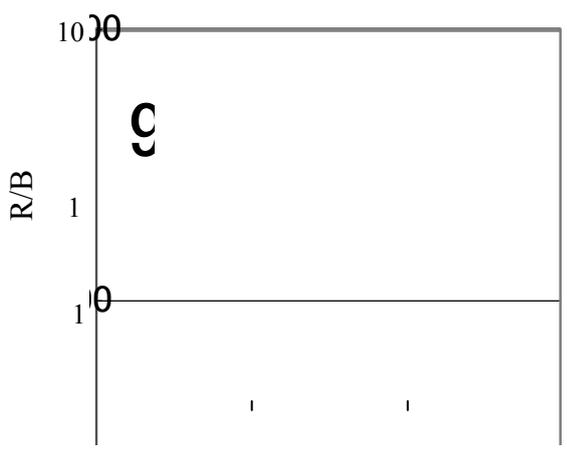
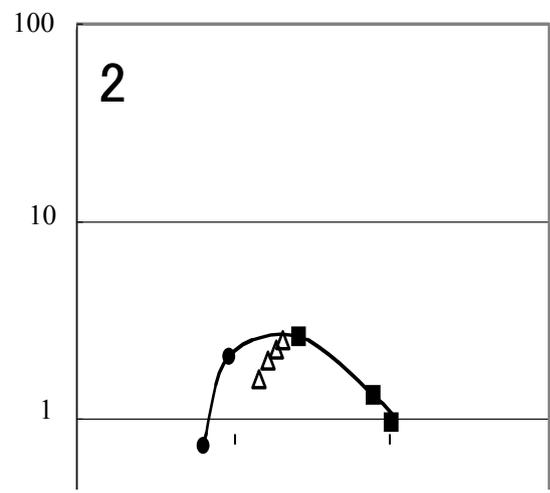
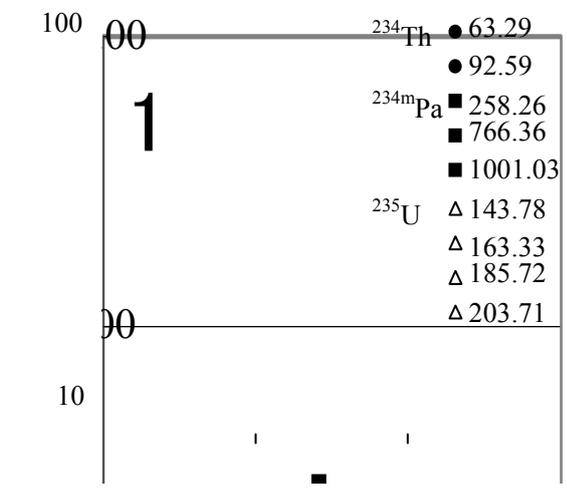
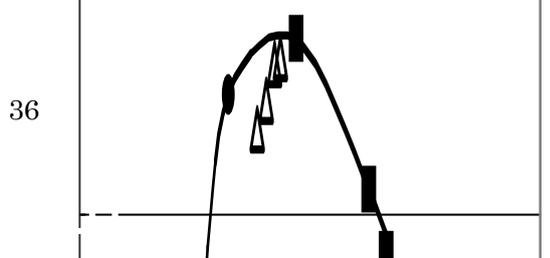


図4 ソノソノ試料のR/B曲線

^{234}Th と $^{234\text{m}}\text{Pa}$ については γ 線光電ピーク計数率 (R)
 ^{235}U については (γ 線光電ピーク計数率 $\times 21.72$)を放
 1, W社(硝酸ウラニル); 2, W社(硝酸ウラニル); 9, M社
 10, M社(酢酸ウラニル); 17, Ki社(酢酸ウラニル); 25,



(表 1)。ウラン試薬の R/B 曲線を図 2 に示す。劣化ウランは放出される 4 種類の γ 線由来の R/B 値を 21.72 倍した値が、 ^{235}U と放射平衡に達している ^{234}Th から放出される 2 種類の γ 線由来の R/B 値をプロットした点を結ぶ曲線の下に位置すると共に ^{234}Th と同様な曲線の傾きを示す。劣化ウランに関しては大きく分けて 2 種類の R/B 曲線が得られた。図 2 に示すように試料 1, 2, 25 では ^{235}U の γ 線に由来する R/B 値が曲線に近接しており劣化度は低い、すなわち ^{235}U の含有率は比較的高いと判断された。また、試料 10, 17 は ^{235}U の γ 線に由来する R/B 値は大きく曲線より下に位置し、劣化度は高い、すなわち ^{235}U の含有率は低いと判断された。試料 9 については ^{235}U の γ 線に由来する R/B 値をプロットした曲線は $^{234\text{m}}\text{Pa}$ の R/B 値をプロットした曲線に近接し、さらに $^{234\text{m}}\text{Pa}$ と同一の傾きであったことにより、試料 9 は天然ウランの特徴を示していると判断された。W 社のウラン試薬は 9 種類すべてで、また I 社のウラン試薬は 5 種類中 4 種類で劣化度は低いことが判明した。これに加えて W 社のウラン試薬は 9 種類中 8 種類が硝酸ウラニルであった。W 社, Ka 社, I 社以外のメーカーのウラン試薬はいずれも劣化度は高いことがわかった(表 1)。天然ウランには 0.72% の ^{235}U が含まれているが、劣化ウラン中の ^{235}U の割合は核燃料製造工程の違い、あるいは ^{235}U 濃縮度の違いにより多様であることが想定される。Ka 社のウラン試薬には硝酸ウラニルと酢酸ウラニルがあり、このうち劣化度の低い方は硝酸ウラニルであった。このことは、W 社の結果と合わせると硝酸ウラニルについてはすべてで劣化度は低いことが判明した。さらに、試薬メーカーごとに ^{235}U の含有割合、すなわち劣化度がほぼ同一であったことは、試薬メーカーごとに劣化ウランとしての原料の調達先が特定の核燃料製造業者であったと推測された。

γ 線スペクトロメトリー法による本解析は簡易測定であり、 ^{235}U の割合を正確に測定するためには、すなわち劣化度の厳密な判定のためには質量分析法等の測定法が必要である [2]。しかし、本解析はウラン標準試薬が不要で、しかも試薬ビンに入ったままで測定可能であることに利点がある。本解析でこれまで劣化ウランとして登録されていたものが天然ウラン、あるいは天然ウランとして登録されていたものが劣化ウランであったことが判明したことから、岡山大学における核燃料物質の安全管理に寄与するためにも岡山大学で登録、保管されている全てのウラン試薬について改めて解析する必要がある。

謝 辞

岡山大学自然生命科学研究支援センター光・放射線情報解析部門長山田雅夫教授には終始ご指導をいただきお礼申し上げます。また、大学院医歯薬学総合研究科等事務部総務課企画係諸氏には多大なご協力をいただき、ここに謝意を表します。

参考文献

1. International Atomic Energy Agency (IAEA), Depleted Uranium FAQs (2003)
2. D'Ilio S, Violante N, Senofonte O, Petrucci F, Determination of depleted uranium in fish validation of a confirmatory method by dynamic reaction cell inductively coupled plasma mass spectrometry (DRC-ICP-MS). *Analytica Chimica Acta*, 597, 195-202 (2007)
3. Mitchel RE, Sunder S, Depleted uranium dust from fired munitions: physical, chemical and biological properties. *Health Physics*, 87, 57-67 (2004)
4. Betti M, Civil use of depleted uranium, *Journal of Environmental Radioactivity*. 64, 113-119 (2003)
5. Shoji M, Hamajima Y, Takatsuka K, Honoki H, Nakajima T, Kondo T, Nakanishi T, A convenient method for discriminating between natural and depleted uranium by γ -ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 55, 221-227 (2001)
6. 社団法人日本アイソトープ協会, アイソトープ手帳 10 版, 73-74 (2001)
7. 日本アイソトープ協会編, 放射線・アイソトープ講義と実習, 83-95, 丸善, 東京 (1992)