JAEA-Technology
2015-001

核鑑識研究開発成果報告書

Report on Research and Development of Nuclear Forensics Technologies

大久保 綾子　木村 祥紀　篠原 伸夫　戸田 暢史
舟竹 良雄　綿引 優　桜井 聡　久野 祐輔

Ayako OKUBO, Yoshiki KIMURA, Nobuo SHINOHARA, Nobufumi TODA
Yoshio FUNATAKE, Masaru WATAHIKI, Satoshi SAKURAI and Yusuke KUNO

核不拡散・核セキュリティ総合支援センター

Integrated Support Center for Nuclear Nonproliferation and Nuclear Security

March 2015

Japan Atomic Energy Agency　日本原子力研究開発機構

JAEA-Technology

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ（http://www.jaea.go.jp）
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 研究成果管理課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2 番地4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Institutional Repository Section,
Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department,
Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2015

JAEA-Technology 2015-001

核鑑識研究開発成果報告書

日本原子力研究開発機構
核不拡散・核セキュリティ総合支援センター

大久保 綾子、木村 祥紀、篠原 伸夫、戸田 暢史、舟竹 良雄、
綿引 優[+1]、桜井 聡[+2]、久野 祐輔

（2015 年 1 月 7 日　受理）

核鑑識とは、捜査当局によって押収、採取された放射性物質について、ウランやプルトニウムなどの核物質や関連する物質の組成、物理・化学的形態等を分析し、その物品の出所、履歴、輸送経路、目的等を分析・解析する技術的手段である。核鑑識活動には、対象物質のサンプリング、採取したサンプルの分析、分析結果とデータベースや数値シミュレーションとの比較による解析といった活動が含まれる。核鑑識技術により、不正取引及びテロ等で使用された核物質の起源を特定できるため、犯人を特定し、刑事訴追できる可能性が高まり、核テロ等に対する抑止効果が向上するとともに、核鑑識に関する国際的なネットワークを構成することにより、グローバルな核セキュリティ体制強化に貢献できる。

本報告書は、日本原子力研究開発機構において平成 23～25 年度に実施した核鑑識研究開発、すなわち核鑑識に必要な基本的分析技術開発の成果をまとめたものである。それらは、①核物質の同位体組成を分析する技術、②その核物質に含まれる不純物を測定する技術、③ウランとその壊変核種であるトリウムの同位体比からウランの精製年代を測定する技術、④粒子の形状を電子顕微鏡撮影して画像データとする技術である。さらに、⑤核物質を分析して得られた実測データをライブラリのデータベースに蓄積されているデータと照合して核物質の出所・履歴などを明らかにするためのプロトタイプ核鑑識ライブラリを開発した。本報告書には核鑑識の世界的動向や日本で技術開発を開始した経緯も記述した。また、本研究開発を実施する上で効果的に機能した国際共同研究についても言及した。平成 26 年度以降は核鑑識技術の高度化を図るとともに、核鑑識国際コミュニティへの協力を継続している。

原子力科学研究所(駐在)：〒319-1195　茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4
+1 安全研究・防災支援部門　原子力緊急時支援センター
+2 国際室

JAEA-Technology 2015-001

Report on Research and Development of Nuclear Forensics Technologies

Ayako OKUBO, Yoshiki KIMURA, Nobuo SHINOHARA, Nobufumi TODA,
Yoshio FUNATAKE, Masaru WATAHIKI[+1], Satoshi SAKURAI[+2] and Yusuke KUNO

Integrated Support Center for Nuclear Nonproliferation and Nuclear Security
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 7, 2015)

Nuclear forensics (NF) is the analysis of intercepted illicit nuclear or radioactive material and any associated material to provide evidence for nuclear attribution by determining origin, history, transit routes and purpose of such material. The NF activity includes sampling of the illicit material, analysis of the samples and evaluation of the attribution by comparing the analyzed data with database or numerical simulation. Because the NF technologies specify the origin of the illegal nuclear materials, it becomes possible to identify and indict offenders, hence to enhance deterrent effect against such terrorism. Worldwide network on NF can contribute to strengthen global nuclear security regime.

In this paper, the results of research and development of fundamental NF technologies performed in JAEA during the fiscal term of 2011-2013 were reported, namely techniques (1) to analyze isotopic composition of nuclear material, (2) to identify the impurities contained in the material, (3) to determine the age of the purified material by measuring the isotopic ratio of daughter thorium to parent uranium, (4) to make image data by observing particle shapes with electron microscope, and (5) to evaluate its evidence by prototype NF library for comparison of the analyzed data with database. International trend and Japan's situation on NF are depicted in this paper. Effective international cooperation to develop these technologies is also mentioned here. On the basis of our present results, further enhancement of the NF technologies has continued from 2014 including contribution to the international NF community.

Keywords: Nuclear Forensics, Signature, Radiochemical Analysis, Isotopic Composition, Impurity, Age Determination, Database, IAEA, GICNT, ITWG

+1 Nuclear Emergency Assistance and Training Center, Sector of Nuclear Safety Research and Emergency Preparedness
+2 Office of International Affairs

目次

1. まえがき ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 1
1.1 核鑑識とは ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 1
1.2 経緯 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 1
1.3 国際協力 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2
1.3.1 IAEA の役割 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2
1.3.2 GICNT の役割 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3
1.3.3 ITWG の役割 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3
2. 研究計画 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 4
2.1 はじめに ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 4
2.2 研究目的 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 4
2.3 研究内容 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 5
2.3.1 元素及び同位体の組成分分析 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 5
2.3.2 核燃料物質の年代測定 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 5
2.3.3 粒子形状分析 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 5
2.3.4 核鑑識ライブラリ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 5
2.3.5 国際共同研究 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 6
2.4 研究工程及び研究推移 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 6
2.5 研究体制 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 8
3. 研究内容及び成果 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 8
3.1 元素及び同位体の組成分析 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 8
3.1.1 質量分析装置の整備 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 8
3.1.2 ウランの同位体組成分析 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 9
3.1.3 ウランの分離・精製と不純物の組成分析 ・・・・・・・・・・・・・・・ 11
3.1.4 不純物の組成分析値の信頼性評価 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 24
3.2 核燃料物質の年代測定 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 28
3.2.1 原理 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 28
3.2.2 分析法開発の目標と課題 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 28
3.2.3 分離精製及び測定法確立のための検討実験 ・・・・・・・・・・・・・・ 28
3.2.4 検討実験の結果と考察 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 31
3.2.5 分析法の高度化 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 31
3.2.6 共同試料分析 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 32
3.2.7 分析法及び結果の評価 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 33
3.2.8 今後の課題と展望 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 33
3.3 粒子形状分析 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 33
3.3.1 粒子形状分析技術の概要 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 33

3.3.2 透過型電子顕微鏡の整備 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 34
3.3.3 透過型電子顕微鏡を用いた粒子形状分析法の検討 ・・・・・・・・・ 35
3.3.4 走査型電子顕微鏡を用いた人形峠ウランサンプルの分析・・・・・・・ 37
3.3.5 まとめと今後の課題 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 37
3.4 核鑑識ライブラリ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 38
3.4.1 国内核鑑識ライブラリ開発の概要 ・・・・・・・・・・・・・・・・・ 38
3.4.2 核鑑識ライブラリの概念検討 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 39
3.4.3 核鑑識ライブラリにおける核物質データベース開発 ・・・・・・・・ 40
3.4.4 属性評価における評価ツールの検討 ・・・・・・・・・・・・・・・・ 43
3.4.5 原子力機構における核物質に係る分析データ等の収集・・・・・・・・ 44
3.4.6 核鑑識ライブラリに係る国際机上演習への参加 ・・・・・・・・・・ 44
3.4.7 核鑑識ライブラリ開発のまとめと今後の展望 ・・・・・・・・・・・・ 44
3.5 核鑑識の国際体制 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 45
3.5.1 国際体制 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 45
3.5.2 国際会合への参加 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 46
4. まとめ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 49
4.1 ウラン同位体比と不純物の組成分析 ・・・・・・・・・・・・・・・・・ 49
4.2 核燃料物質の年代測定 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 49
4.3 粒子形状分析 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 50
4.4 核鑑識ライブラリ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 50
4.5 総括 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 50
4.5.1 技術開発状況(平成 23～25 年度)・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 50
4.5.2 今後の計画 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 51
5. あとがき ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 53
謝辞 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 53
参考文献 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 54
付録-1 核鑑識技術用語説明 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 110
付録-2 核鑑識ライブラリ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 117

Contents

1. Introduction ・・・

3.3.1 Outline of particle shape analysis ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 33
3.3.2 Preparation of transmission electron microscope ・・・・・・・・・・・・ 34
3.3.3 Particle analysis by transmission electron microscope ・・・・・・・・・・ 35
3.3.4 Analysis of Ningyo-toge uranium by transmission electron microscope ・・・ 37
3.3.5 Summary and future task ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 37
3.4 Nuclear forensics library ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 38
3.4.1 Outline of development of national nuclear forensics library ・・・・・・・ 38
3.4.2 Concept of nuclear forensics library ・・・・・・・・・・・・・・・・ 39
3.4.3 Development of nuclear material database for nuclear forensics library ・・・ 40
3.4.4 Survey of evaluation tool for seizure analysis ・・・・・・・・・・・・ 43
3.4.5 Collection of analysis data on nuclear materials at JAEA ・・・・・・・・・ 44
3.4.6 International tabletop exercise for nuclear forensics library ・・・・・・・・ 44
3.4.7 Summary and future plan ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 44
3.5 International regime of nuclear forensics ・・・・・・・・・・・・・・・・ 45
3.5.1 International regime ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 45
3.5.2 Participation in international meetings ・・・・・・・・・・・・・・・ 46
4. Conclusion ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 49
4.1 Analyses of uranium isotopic ratio and impurity content ・・・・・・・・・・ 49
4.2 Age determination of nuclear fuel material ・・・・・・・・・・・・・・・ 49
4.3 Analysis of particle shape ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 50
4.4 Nuclear forensics library ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 50
4.5 Summary ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 50
4.5.1 Status of technology development (2011-2013) ・・・・・・・・・・・・ 50
4.5.2 Future plan ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 51
5. Final notes ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 53
Acknowledgments ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 53
References ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 54
Appendix-1 Lexicon of nuclear forensics ・・・・・・・・・・・・・・・・・ 110
Appendix-2 Nuclear forensics library ・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 117

1. まえがき

1.1 核鑑識とは

国際原子力機関(IAEA)では「核鑑識」について、「違法核物質・放射性物質及びその他の物質を分析し、『核の属性割出し』のために必要な証拠を提供することである」としている[1)]。ここで『核の属性割出し』とは、「違法活動に利用された核物質・放射性物質の出所、移転ルートを特定し、最終的にはこのような活動を行ったものを刑事的に起訴する上で役立てるプロセス」である。すなわち、捜査当局によって押収、採取された核物質及び放射性物質について、核物質、放射性物質及び関連する物質の組成、物理・化学的形態等を分析し、その物品の出所、履歴、輸送経路、目的等を分析・解析する技術的手段が核鑑識である。核鑑識活動には、対象物質のサンプリング、採取したサンプルの分析、分析結果とデータベースや数値シミュレーションとの比較による解析といった活動が含まれる。核鑑識活動の対象として、不正取引として押収された核物質等(pre detonation)や、核や放射性物質を伴う破壊行為の残骸から採取された核物質等(post detonation)が想定されている。また核鑑識は指紋や DNA などを対象とする伝統的鑑識(捜査当局による鑑識分析)と協力して不正行為に対処しなければならない(図 1 参照)。

IAEA は核鑑識分析手法として、核物質の同位体組成、不純物、粒子形状、年代を測定する技術を提案している。また分析結果を評価するためのデータベースの整備も核鑑識には不可欠なものとして開発の対象としている。日本原子力研究開発機構(原子力機構)では、質量分析装置や電子顕微鏡、さらにデータベース用コンピュータを新たに設置して、IAEA が提唱する核鑑識技術の開発研究を進めている。このような研究開発を通して、国内外の核セキュリティ体制の強化に貢献している。

1.2 経緯

米国オバマ大統領は 2009 年(平成 21 年)4 月 5 日プラハでの演説において、平和で安全な「核兵器のない世界」に向けた現実的且つ具体的な方途を追求することを宣言した。この大統領の演説を受けて、2010 年(平成 22 年)4 月にアメリカのワシントンで開催された第 1 回核セキュリティ・サミットにおいて、当時の我が国の鳩山首相は、核物質の測定、検知及び核鑑識に係る技術の開発について、ナショナル・ステートメントとして「核物質計量管理の高度化に資する測定技術や不正に取引及びテロ等で使用された核物質の起源(国・施設)の特定に資する核検知・核鑑識技術の開発の実施に関し、合意が得られたが、今後、3 年後を目途により正確で厳格な核物質の検知・鑑識技術を確立し、これを国際社会と共有することにより、国際社会に対して一層貢献していく所存である」と表明した[注1)]。この鑑識技術確立に向けての課題は、①国内法執行体制の整備、国内法の整備、②核鑑識活動実施計画の作成、③核鑑識ラボラトリの設置、分析体制、分析機器の整備、分析人材育成、④核鑑識分析、解析における参照情報(データベース)の整備、⑤核鑑識分析技術の確立、高度化、シグネチャ[注2)]分析技術の開発、及び⑥国際社会との共有、ネットワーク化である。

[注1)] [参考] 第 1 回核セキュリティ・サミットにおける日本のナショナル・ステートメントでは、アジア諸国を始めとする各国の核セキュリティ強化のためのセンターを設置することも表明され、2010 年 12 月 27 日、核不拡散・核セキュリティ総合支援センターが原子力機構に設立された。核鑑識技術開発は、同センターに依託された文部科学省核セキュリティ補助金事業の一環として実施している。

[注2)] 付録 1 核鑑識技術用語説明を参照。

核鑑識に必要なさまざまな経験・知見を有している原子力機構は、シグネチャ分析技術やデータベースなどの核鑑識技術開発を行うことで国内及び国際的な核セキュリティ体制の強化に貢献することとし、平成 23 年度から技術開発を開始した。

原子力機構における核鑑識の研究では、不法取引や破壊行為の際に押収された核物質や放射性物質を分析する技術を開発している。これらの物質の出所、履歴、輸送経路、目的を明らかにするのが核鑑識技術であり、押収された物質が自分の国に起源があるか否かも検証する。それは、測定されたデータが、犯罪を裁く法廷での証拠となることもあるからである。そのため、分析の信頼性を確保するための品質保証・品質管理が重要となる。このような核テロなどの脅威に対抗するための核鑑識体制の整備は、世界中で進められている[注3)]。

1.3 国際協力

欧米では核物質にからむ多くの不正行為が発生しており、米国 FBI や EC 超ウラン研究所を中心に犯罪捜査にあたっている。日本でもこのような不正事象発生時には初動捜査及び迅速かつ詳細な核鑑識分析が要求される。同時に、各国が不正行為に関する情報を交換して、押収された物質の起源を解明し、あるいは必要に応じて分析試料を共有して更なる情報を得て、核鑑識情報の確度を高めることは極めて有効である。

核鑑識は世界レベルの核セキュリティ強化の一翼を担うことができるため、核鑑識対応を真にグローバル的に展開するためには、各国が核鑑識ラボラトリを構築するとともに、データ照合等のための情報共有や試料交換のため国際協力体制を確立することが不可欠となる。

1.3.1 IAEA の役割

IAEA は、テロリスト等による核物質や放射性物質の悪用が想定されるケースについて、①核兵器の盗取、②盗取された核物質を用いた核爆発装置の製造、③放射性物質の発散装置(いわゆる「汚い爆弾」)の製造、④原子力施設や放射性物質の輸送等に対する妨害破壊行為の 4 つを想定している。核セキュリティとは、これらの脅威が現実のものとならないように講じられる措置のことである。IAEA は、核物質及びその他の放射性物質の許可を受けない使用、輸送及び所有に関係する事例について、各国から提供された情報を共有する「不法取引データベース(Illicit Trafficking Database：ITDB)」を運用している。

IAEA は、世界税関機構(World Customs Organization)、欧州警察組織(Europol)及び国際刑事警察機構(Interpol)と協力し、放射性物質の不注意な移動及び不法取引に関する 3 つの技術

注3) [参考] 核テロの脅威

「IAEA の核セキュリティ計画 2010-2013」(GOV/2009/54-GC (53)/18)に、「核物質又はその他の放射性物質が悪意のある行為で使用されるかもしれないというリスクは、依然として高く、国際平和及びセキュリティ に対する深刻な脅威と見なされる。核セキュリティに対する責任は完全に各国にあり、核セキュリティのための適切で有効な国のシステムが、原子力エネルギーの平和利用を促進し、核テロリズムと闘う世界的な努力の強化に不可欠であることが認識される」と記載されている。

また、2010 年 4 月の核セキュリティ・サミットのコミュニケには、「核テロリズムは、国際安全保障に対する最も挑戦的な脅威の一つであり、強固な核セキュリティ措置は、テロリスト、犯罪者又はその他の権限のない者による核物質の取得を防止する上で最も効果的な手段である」旨記載されている。

文書(TECDOC) [注4)]を発行した。また核鑑識国際技術作業部会(ITWG、後述)と米国エネルギー省(DOE)の支援を受けて、ローレンス・リバモア国立研究所、パシフィック・ノースウェスト国立研究所によって作成された「核物質鑑識活動及び核的属性割り出しのためのモデル活動計画」に基づいて、IAEA は核鑑識に関する技術指針を 2006 年に作成したが、ここでは ITWG 核鑑識研究所が過去 10 年にわたって蓄積した経験を反映している [1)]。IAEA が発行した核鑑識を含む核セキュリティ・シリーズ文書体系を図 2 に示す。

IAEA は人材育成にも重点を置き、「放射性物質を伴う犯罪と核鑑識」に関する 5 日間の包括的なトレーニングプログラムを作成し、2009 年にはシンガポール、インド、カナダにて、2010 年にはアルゼンチンで実施している。2012 年には分析技術に係るトレーニングを米国で実施したが、これには原子力機構からも参加している。また 2013 年には、IAEA 核セキュリティ国際会議がウィーンで開催され、核鑑識技術セッションにて各国の技術開発状況が発表された。2014 年 10 月には IAEA 主催による核鑑識国際会議が開催された。

1.3.2 GICNT の役割

2006 年 7 月の G8 サンクトペテルブルク・サミットでの議論を受けて発足した核テロリズムに対抗するためのグローバル・イニシアティブ (GICNT)では、「原則に関する声明」において、日本を含む GICNT の参加国は、国内法及び国際法に従って核テロに関連する「不法に所持された核物質その他の放射性物質又はそれら物質を使用する装置に関し、捜索、差押え及び安全な管理を確立する能力を向上させること」と表明して自発的な措置をとるものとしている。さらに 2010 年の GICNT 全体会合では核検知と核鑑識を核セキュリティ体制構築の優先分野とし、現在でも核テロリズムに対抗するための検討を続けている。

1.3.3 ITWG の役割

ITWG (核鑑識国際技術作業部会)は、冷戦後の核物質の違法移転に対処するために、G8 核不拡散専門家グループ(NPEG: Non-Proliferation Experts Group)の後援を受けて、1996 年(平成 8 年)に核鑑識技術の開発、共通の手法や技術を提供するために設立されたワーキンググループである。核鑑識技術向上のために、ラウンドロビン・エクササイズ(国際比較試験)を実施している(第 1 回 1999 年、第 2 回 2002 年、第 3 回 2010 年)。2014 年には第 4 回となる低濃縮ウランを対象とする国際比較試験が実施され、これには原子力機構も参加した。現在、5 つのタスクグループ(Communication [核鑑識分野の教育・普及]、Evidence [証拠]、Exercises [国際比較試験]、Guidelines [ガイドライン作成]、National Nuclear Forensics Libraries [データベース作成])を設置し、国際協力プログラムを実施している。

2014 年にハーグで開催された核セキュリティ・サミットや、IAEA、GICNT 及び ITWG が最新情報を交換して、核鑑識に関する国際コミュニティを構築しているのが現状である(図 3 参照)。

注4) 「放射性物質の不注意な移動及び不法取引の防止」(IAEA-TECDOC-1311、2002 年 9 月)、「国境における放射性物質の発見」(IAEA-TECDOC-1312、2002 年 9 月)及び「放射性物質の不注意な移動または不法取引を含む事件の対応」(IAEA-TECDOC-1313、2002 年 9 月)。

2. 研究計画

2.1 はじめに

核鑑識技術開発のための研究開発の基盤となる目標は以下の通りである。

我が国の知見、技術に基づく国際貢献

核セキュリティ・サミット(2010 年 4 月)における核鑑識技術の開発に関する日本声明を履行し、核テロ対策の強化を図ることを目的として、核鑑識技術開発に着手し、核物質の起源等を特定するための技術開発を行い、3 年後を目標に、その技術を国内に確立する。また、技術開発にあたっては、計量管理・保障措置における測定・分析の経験・知見を生かすとともに、多様な核燃料サイクル施設、核物質を保有する我が国の特徴を生かし、既存の核鑑識技術の高度化を図り、それらの技術を国際社会と共有し、国際的な核セキュリティ体制の強化に貢献する。

核鑑識国際ネットワーク構築による核テロの抑止

前述の核セキュリティ・サミットの共同コミュニケでは、核セキュリティ向上のための具体的な措置として、核鑑識等の技術開発に関する国際協力及び情報共有の重要性が指摘されている。欧州においては、冷戦後の核物質の不正移転に対処するため 1990 年代より核鑑識に取り組んでおり、また、米国においては、核テロの脅威の高まりを受けて、国家核鑑識技術センターを設置し、同センターを中心に核鑑識に関する活動を実施している。我が国も、核鑑識の技術開発を実施し、本分野で先行している欧米諸国とともに、核鑑識に関する国際的なネットワークを構成し、核テロに対する抑止効果を高めていくことにより、核セキュリティの強化を図る。

我が国の安全保障、治安維持

IAEA の報告等によると核テロの脅威は依然として高く、我が国の安全保障、治安維持の観点から、核物質の不正取引や核テロが国内で発生した場合に、犯人を特定し、刑事訴追するための技術を国内で確立する必要がある。

我が国に対する疑念が生じた場合の払拭

将来、核物質の不正取引等が第３国で発生し、多様な原子力施設と核物質を保有する我が国がその核物質の起源であるとの疑いがかけられ可能性がある。この場合、我が国の原子力活動に対する信頼低下を招くことが予想されることから、このような事態に対処するため核鑑識技術を独自に保有する必要がある。

2.2 研究目的

核鑑識技術は、冷戦後の 1990 年代より急激に増加している核物質等の不正取引に対抗するために、欧米の超ウラン元素研究所(EU)、ローレンス・リバモア国立研究所(米国)、サバンナリバー国立研究所(米国)といった研究所を中心に、技術開発が行われてきた。現在、ITWG、IAEA を中心に、核鑑識技術の普及や分析技術の高度化、データベースの整備等が進められている。

本研究開発においては、核物質等の起源、輸送経路等を特定するために必須の技術である、①核物質等及び不純物の元素・同位体組成分析、②ウラン等の年代測定技術を国内に確立するとともに、我が国の知見等を生かし、起源等を特定するための新たな特徴(シグネチャ)を解明する分析手法を開発し、既存技術の高度化を図り核鑑識技術とする。また、核鑑識分析における要素技術として③粒子形状分析に着手し、核物質の起源等の特定に有効な分析技術を開発する。更に、核鑑識においては、分析結果を解析し、起源等を特定する

ためにはデータベースの充実と属性を評価する手法の開発が極めて重要であることから、④データベースの整備、属性評価手法の開発を行う。

2.3 研究内容

2.3.1 元素及び同位体の組成分分析

核鑑識における組成分析とは、採取した試料のウラン、プルトニウム、超ウラン元素等の元素及び同位体組成分析を行い、その同位体比より、核物質が照射された原子炉のタイプといった核物質の起源等を特定する技術である(図 4 参照)。^{232}U などの従来の計量管理では分析対象となっていない同位体の組成分析も必要となるため、分析のための技術開発が求められる。このため 2011 年(平成 23 年)には表面電離型質量分析装置(TIMS)を設置し、本試験を実施している。

さらに、新しいシグネチャとなる可能性のある微量元素(不純物)の測定技術開発を実施する。ここでは、採取した試料の不純物組成を分析し、不純物組成パターンより、核物質が取り扱われた原子力施設を特定することによって起源等を特定する技術を開発する(図 5 参照)。計量管理では測定していないウランやプルトニウム以外の元素測定が必要となるため、原子力機構が所有する誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS)を用いる試験分析手順等を開発し、確立する。また、新たなシグネチャとなる可能性のある微量の元素の測定技術の開発を行う。

2.3.2 核燃料物質の年代測定

放射性壊変によって生成する娘核種と親核種との存在比率を正確に測定することにより、ウランやプルトニウムが分離、処理された時期を特定し、原子力施設等の操業期間と比較して、対象施設を絞り込むのが年代測定技術である(図 6 参照)。原子力機構では保障措置環境試料分析の一環で、プルトニウム及び MOX 粒子の年代を特定する技術開発を実施しているが、より技術的に難しいウランの年代測定技術の開発を行う。

2.3.3 粒子形状分析

原子力施設によっては、取り扱われる核物質の粒子の形状、寸法が異なることを利用して、粒子形状等を観察することにより、核物質の起源等を特定する粒子形状分析技術を開発する(図 7 参照)。原子力機構では保障措置環境試料分析の一環で、粒子の形状等の観察を行っているが、核鑑識ではより細密に形状を記録するとともに、多様な粒子サンプルの形状等の分析を行い、施設特有の特徴(シグネチャ)の特定を行う必要がある。このため平成 24 年度には透過型電子顕微鏡(TEM)を設置して、粒子形状分析技術の開発を実施する。

2.3.4 核鑑識ライブラリ

核鑑識分析の結果得られた同位体組成、不純物組成等から、核物質の起源等を特定するために、核鑑識データベースを整備するとともに、そのためのプログラム制作、分析結果から属性を評価する手法を開発する。核鑑識ライブラリは、「核鑑識において押収物質の分析データを元にその出所や履歴といった『属性』の特定をサポートする、核物質及びその他放射性物質に係る様々なデータを格納する情報基盤 」と定義されており、核鑑識活動における核鑑識ライブラリの位置づけは最も重要な要素のひとつとなっている(図 8 参照)。

2.3.5 国際共同研究

核鑑識は世界レベルの核セキュリティ強化の一翼を担うことができるため、核鑑識対応を真にグローバル的に展開するためには、各国が核鑑識ラボラトリを構築するとともに、データ照合等のための情報共有や試料交換のため国際協力体制を確立することが不可欠である。原子力機構と米国 DOE との研究協力として、ウラン年代測定(情報交換、分析比較試験)、核燃料の特性分析(分析比較試験に向けた検討、分析比較試験)及び核鑑識ライブラリ開発に向けたデータライブラリ概念の評価(情報交換)について研究協力に関する取決め(Project Action Sheet)を締結して実施中である。また EC-JRC との研究協力についても検討している。

核鑑識のグローバル化に向けて貢献できる国際協力並びに日本の核鑑識体制についても検討することとする。

2.4 研究工程及び研究推移

本研究では、平成 23～25 年度にかけて核鑑識に必要な基本的分析技術を開発し、その開発成果は国内外に発信することにより、核鑑識の国際的活動を支援した。さらに、平成 26～27 年度には開発した基本的分析技術を基盤に、核鑑識ライブラリの高度化を実施するとともに、TEM を用いた高度な核鑑識分析法を開発する。さらに、原子力機構が取扱う核物質を分析してデータベース化を図る。核鑑識技術開発に係る国際協力は、これを継続することとする(表 1 参照)。

平成 23 年度(初年度)の研究概要は次の通り。核物質等の不法取引や核テロ行為の際に、押収又は採取されることが想定される核物質の起源等を特定するため、核鑑識に係る同位体比測定、ウラン年代測定及び不純物分析の技術開発に着手するとともに、表面電離型質量分析装置を整備した。また、核鑑識技術開発に係る米国との研究協力を開始した。核鑑識に関する国際会合に出席して、核鑑識技術の世界動向を調査した。

平成 24 年度の研究開発では、米国との研究協力に基づく同位体比測定、核鑑識データベース構築などの核鑑識に係る技術開発を継続するとともに、TEM を整備し、粒子形状分析技術の開発に着手した。核鑑識に関する国際会合に出席して、核鑑識技術の現状を調査するとともに、世界的な核鑑識体制の構築について討議した。

平成 25 年度には、核鑑識に必要な基本的分析技術を開発した(表 2 参照)。すなわち、①核物質の同位体組成を分析する技術、②その核物質に含まれる不純物を測定する技術、③ウランとその壊変核種であるトリウムの同位体比からウランの精製年代を測定する技術、④粒子の形状を電子顕微鏡撮影して画像データとする技術である。さらに、⑤核物質を分析して得られた実測データをライブラリのデータベースに蓄積されているデータと照合して核物質の出所・履歴などを明らかにするためのプロトタイプ核鑑識ライブラリを開発した。上記の①－③、⑤については ITWG のラウンドロビン・エクササイズのトップレベルの分析結果と同程度の結果を得ることを目指した。開発した技術の評価は米国との情報交換によって行った。

① 同位体組成分析技術

各種試料を分析し、存在比が極めて低い ^{236}U 同位体比の精密測定を実現し、分析手法の改良を行うとともに、我が国で生産されたウランに特徴的なシグネチャを観測できる技術の確立を目指した。

② 不純物測定技術

各種試料を分析し、前年度までに開発した分析手法の改良を行うとともに不純物定量の高

精度化を図り、同位体組成分析と同様に我が国で生産されたウランに特徴的なシグネチャを発見することを目指した。

③ ウラン年代測定

各種試料を分析することにより分析精度の評価を行って $^{230}Th/^{234}U$ 法の改良を行った。また、$^{231}Pa/^{235}U$ による年代測定について分析手法を検討し、米国と共同分析を行って米国と同等の結果を得ることを目指した。

④ 粒子形状分析技術

TEM 等による粒子形状観察技術の開発を行い、我が国で生産されたウランに特徴的な粒子形状観察を可能とすることを目指した。

⑤ ライブラリ開発及びデータベース整備

核鑑識ライブラリのデータシステムの開発を継続するとともに、原子力機構の保有する一部のデータ取込を図った。また、同位体組成、不純物濃度プロフィールなどのデータを検索し、それらから核燃料物質の起源を推定するための属性評価手法の開発を行った。

ITWG が主催した国内核鑑識ライブラリに係る国際机上演習”Galaxy Serpent”(銀河の蛇)に参加した。本演習は、核鑑識ライブラリの構築から実データを用いた押収物質の属性の特定に至る一連の核鑑識評価プロセスを学ぶことを目的とし、Web 上で実施された。はじめに仮想ライブラリ構築用のデータとして 3 基の原子炉(BWR 1 基、PWR 2 基)に関する使用済燃料の同位体組成データが与えられ、独自の核鑑識ライブラリを構築する。その後送られてくる仮想押収物質の同位組成データをライブラリ・データと比較・評価することにより、押収物質の出所となる原子炉を特定するというものである。原子力機構の評価結果は、主催者により正解であることが確認されている。

⑥ 人形峠ウラン試料の分析

本研究で開発した分析手法を実際の核物質へ適用するための試験として、原子力機構人形峠環境技術センターから輸送したウラン試料(人形峠ウラン)の分析を開始した。現在は上記の①同位体組成分析、②不純物分析及び④粒子形状分析を実施し、③年代測定分析を計画中である。

本研究で得られた人形峠ウランに関する実測データは、⑤核鑑識ライブラリのデータベースに格納して、将来の核鑑識活動のために活用する。

⑦ 米国との協力

米国エネルギー省(US-DOE)と核鑑識共同研究(Goal 2)[注5)]を 3 件実施している。

- Program Action Sheet 19 (PAS 19): ウランの年代測定技術の開発

核鑑識の重要な技術であるウランの精製時期を特定する $^{230}Th/^{234}U$ 放射能比を用いたウラン年代測定技術の実証のために、日米間で相互比較試験を行った。2012 年(平成 24 年)1 月 2 日に PAS 署名し、同年 6 月 6-7 日 LANL にて打合せを実施し、相互比較試験の詳細を決定した。さらに、ウラン酸化物の年代測定を実施。2013 年(平成 25 年)8 月 27-28 日に LANL 研究者が来日し、東海にて相互比較試験結果について議論した。現在、スパイク濃度の再測定と最終報告書(学術誌への投稿予定)を作成中である。PAS 計画では 2013 年末まで(2 年間)であるが、報告書作成のため半年程度の延長を検討するとともに、年代測定に関する新規 PAS($^{231}Pa/^{235}U$ 法の開発)を計画中である。

注5) Goal 2: 日米の核セキュリティ作業部会(Nuclear Security Working Group, NSWG)では核検知・核鑑識技術の開発を目標とし、核鑑識に関するウラン年代測定法、核燃料の特性評価手法及びライブラリの研究開発について協力している。

- PAS 20, PAS 29: 核燃料の特性解析

核鑑識のための原子炉燃料の特徴分析手法とその手順を検討した(PAS 20)。PAS20 は 2012 年 1 月 2 日に署名し、同年 7 月 23-24 日 LANL にて打合せを実施した。ここで新規 PAS(相互比較試験)の提案があり、日米間で核燃料の特性解析に関する相互比較試験を計画した(PAS 29)。2013 年 7 月 27 日に PAS29 署名。この共同研究では核物質の核鑑識における分析化学手順と経験の比較を行う。互いの分析技術の詳細を比較し、比較が可能となる LANL 及び原子力機構が保有する核物質をレビューし、その分析を実施して、データ解析と技術改良事項の評価を行った。第 1 回技術会合(2013 年 8 月 27-28 日、原子力機構にて)で核鑑識分析技術の情報交換を実施し、核物質の比較分析用試料を選定するとともに分析項目等を確認した。2014 年 2 月末までに比較分析を双方が終了し、結果の比較評価を実施する予定。PAS29 計画では 1 年間の予定となっている。

- PAS21: 国内核鑑識ライブラリの開発

日本の国家核鑑識ライブラリ開発及び米国が開発した核鑑識のための物質特徴データディクショナリの適用性を検討するための技術協力を実施した。特に、検索アルゴリズムの開発及び分析結果の一致に係わる統計学的評価についての協力を行った。2012 年 1 月 2 日に PAS 署名し、同年 5 月 14～15 日に東海にて打合せを実施。ライブラリ・データ項目を検討し、原子力機構にライブラリ用サーバを整備した(平成 25 年 2 月 8 日)。さら 2014 年 2 月 28 日には同サーバを用いる基本的データ運用システムを完成した。本共同研究は、PAS 計画通り平成 25 年度末(2014 年 3 月末)で終了した。

⑧ EC/JRC(欧州委員会/共同研究センター)との共同研究

欧州委員会は欧州連合(European Union)の政策執行機関であり、法案の提出、決定事項の実施、基本条約の支持、日常の連合の運営を担っている。欧州委員会傘下の共同研究センターの一つである超ウラン元素研究所(The Institute for Transuranium Elements: ITU、ドイツのカールスルーエにある研究所)が核鑑識を担当している。EC/JRC との「核鑑識の分析技術開発に係る共同研究」では、情報交換、ワークショップ開催、人材育成トレーニング、相互比較分析試験、押収試料の相互交換などをテーマとすべく検討している。

⑨ 国際会議への参加

核鑑識に関する国際会合に出席して、核鑑識技術の世界動向を調査するとともに、世界的な核鑑識体制の構築について討議した。平成 23～25 年度に参加した会合の概要は 3.5.3 項に後述する。

2.5 研究体制

原子力機構における核鑑識技術開発の研究体制を図 9 に示す。

3. 研究内容及び成果

3.1 元素及び同位体の組成分析

3.1.1 質量分析装置の整備

3.1.1.1 目的

不正取引等された核物質の起原の特定に資する核検知・核鑑識技術開発に関する研究開発の一環として、各種試験試料中の核燃料物質等の同位体分析等を行うとともに、計量管理では分析対象となっていない同位体の測定技術開発などの成果が期待できることから、平成 23 度に TIMS(表面電離型質量分析装置)を設置した。

3.1.1.2　装置概要

TIMS では、塗布試料を塗布したフィラメントに電流をかけ試料をイオン化し、真空中で電圧により加速、磁場によって曲げることで各同位体の質量毎に振り分ける。本装置には複数の検出器が装備されており、各々の質量別に検出器に入射されてイオン電流となり、この時のイオン数をカウントすることで同位体組成を精密に求める装置である。TIMS の外観写真を図 10～図 14 に示す。

3.1.1.3　装置仕様

原子力科学研究所の第 4 研究棟 321A 号室に据付けて(据付け期間：平成 23 年 2 月 14 日～3 月 16 日)、装置の動作確認した面電離型質量分析計(サーモフィッシャーサイエンティック株式会社製 TRITON Plus)の仕様を表 3 に示す。

3.1.1.4　性能確認

本装置納入検査時の性能は表 4 及び図 15 に示す通りで、括弧内に示す判定基準をすべて満足した。

3.1.1.5　核燃料物質の使用の変更の許可申請

原子力科学研究所第 4 研究棟は、核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律が定める核燃料物質の使用の許可を得ている施設である。

核鑑識技術開発として核燃料物質を取り扱うため、新たに TIMS 及び保管庫を 321A 号室に新設するとともに、309 号室の既設フードで分析試料の調製を行うことを主とする、核燃料物質の使用の許可の変更申請を行い、平成 24 年 3 月 8 日付けにて申請が受理され、同年 7 月 23 日に許可された。

本装置における核燃料物質取扱い許可量は、天然ウラン：1 mg、劣化ウラン：1 mg、トリウム：1 mg、濃縮ウラン(5%未満)： 1 mg、濃縮ウラン(5～20%未満)：1 mg、濃縮ウラン(20%以上)：1 mg、プルトニウム：1 μg、ウラン 233：1 mg である。

3.1.2　ウランの同位体組成分析

3.1.2.1　ウラン同位体分析用標準試料の同位体組成分析

ウラン同位体分析用標準試料を用いて、核鑑識技術開発のために整備した表面電離型質量分析計の測定精度を評価するとともに、応用分析として原子力研究機構人形峠環境技術センターより移送したウラン試料の同位体組成分析を実施した。

(1) ウラン同位体分析用標準試料

ウラン同位体分析用標準試料として用いた NBL 製 U500 及び U050 の認証値 [2)]は表 7～表 10 の通りである。

(2) ウラン同位体標準試料 U500 及び U050 の測定結果

表面電離型質量分析計(TORITON Plus)によるウラン同位体標準試料の測定結果を以下に示す。標準試料は、約 1M HNO_3 に調製された溶液 200 ng をフィラメントへ塗布したものをトータルエバポレーション法(TE 法)にて測定した。

この TE 法とはフィラメントに塗布した元素がイオン化を開始してから蒸発し切るまで検出器で観測し続け、データを全積分することで同位体比を求める方法であり、質量分析に

おける質量弁別効果を補正する必要のない信頼性の高い分析方法である。
(a) U500 の測定結果
ウラン同位体標準試料 U500：試料数 n=10 の測定結果は、$^{235}U/^{238}U$ で変動係数(1 RSD)：0.015%、相対誤差：0.030%であった(表 11、表 12 参照)。
(b) U050 の測定結果
ウラン同位体標準試料 U050：試料数 n=10 の測定結果は、$^{235}U/^{238}U$ で変動係数(1 RSD)：0.016%、相対誤差：0.022%であった(表 13、表 14 参照)。

3.1.2.2 人形峠ウラン試料の同位体組成分析

(1) 重ウラン酸アンモニウム(ADU)試料及びイエローケーキ(YC) 試料

同位体組成分析に使用した試料は、平成 23 年度に人形峠環境技術センターより移送したもので、天然ウランより粗製錬された重ウラン酸アンモニウム(ADU)：①人形峠、②海水抽出、イエローケーキ(YC)：③外国産の 3 試料である。

① 重ウラン酸アンモニウム(ADU)：人形峠ウラン
ウラン含有率(wt%)：66.490、^{235}U 濃縮度(%)：0.711
② 重ウラン酸アンモニウム(ADU)：海水抽出ウラン
ウラン含有率 (wt%)：66.037、^{235}U 濃縮度(%)：0.711
③ イエローケーキ (YC)：外国産ウラン
ウラン含有率 (wt%)：84.323、^{235}U 濃縮度(%)：0.711

(2) ADU 試料及び YC 試料の測定結果

各々の試料から一部を測定試料(a)及び(b)として分取、前処理(溶解、イオン交換分離、乾固)し、精製したウランを 1M HNO_3 に溶解したのち、溶液約 150 ng をフィラメントへ塗布したものを TE 法にて測定した。前処理方法の詳細については、3.1.3.2 分析マニュアル参照。
① 重ウラン酸アンモニウム(ADU)：人形峠ウランの測定結果
前処理を行った測定試料(a1)及び(b1)をフィラメント(n=3)へ塗布し、測定した結果、$^{235}U/^{238}U$ で変動係数(1 RSD)：試料(a1) 0.065%、(b1) 0.055%であった(表 15、表 16 参照)。
② 重ウラン酸アンモニウム(ADU)：海水抽出ウランの測定結果
前処理を行った測定試料(a2)及び (b2)をフィラメント(n=5)へ塗布し、測定した結果、$^{235}U/^{238}U$ で変動係数(1RSD)：試料(a2) 0.038%、(b2) 0.030%であった(表 17、表 18 参照)。
③ イエローケーキ(YC)：外国産ウランの測定結果
前処理を行った測定試料(a3)及び(b3)をフィラメント(n=5)へ塗布し、測定した結果、$^{235}U/^{238}U$ で変動係数(1 RSD)：試料(a3) 0.045%、(b3) 0.016%であった(表 19、表 20 参照)。

(3) 三酸化ウラン(UO_3)、二酸化ウラン(UO_2)、八酸化三ウラン(U_3O_8)及び四フッ化ウラン(UF_4)試料

同位体組成分析に使用した試料は、平成 25 年度に人形峠環境技術センターより移送したもので、試料は 5 試料移送され、3 試料が低濃縮ウラン(0.711%<^{235}U<20%)：化学形態(UO_3、UO_2、UF_4)、2 試料が劣化ウラン(^{235}U≦0.711%)：化学形態(U_3O_8、UO_2)である。
(a) 三酸化ウラン(UO_3)：低濃縮ウラン
ウラン含有率(wt%)：75.420、ウラン 235 濃縮度(%)：1.171
(b) 四フッ化ウラン(UF_4)：低濃縮ウラン
ウラン含有率(wt%)：74.370、ウラン 235 濃縮度(%)：0.996

(c) 八酸化三ウラン(U_3O_8)：劣化ウラン
　　ウラン含有率(wt%)：83.750、ウラン 235 濃縮度(%)：0.241
(d) 二酸化ウラン(UO_2)：劣化ウラン
　　ウラン含有率(wt%)：88.150、ウラン 235 濃縮度(%)：0.650

(4) UO_3、UO_2、U_3O_8 及び UF_4 試料の測定結果

各々の試料一部を測定試料(A)及び(B)に分取、前処理(溶解、イオン交換分離、乾固)し、精製したウランを 1M HNO_3 に溶解したのち、溶液約 150 ng をフィラメントへ塗布したものを TE 法にて測定した。前処理方法の詳細については、3.1.3.2 の分析マニュアルを参照。

(a) 三酸化ウラン(UO_3)：低濃縮ウラン

前処理を行った測定試料(A1)及び(B1)をフィラメント(n=5)へ塗布し、測定した結果、$^{235}U/^{238}U$ で変動係数(1 RSD)：試料(A1) 0.019%、(B1) 0.006%、^{235}U 濃縮度：試料(A1) 1.187%、(B1) 1.186%であった(表 21、表 22 参照)。

(b) 四フッ化ウラン(UF_4)：低濃縮ウラン

前処理を行った測定試料(A2)及び(B2)をフィラメント(n=5)へ塗布し、測定した結果、$^{235}U/^{238}U$ で変動係数(1 RSD)：試料(1)0.033%、(2)0.022%、^{235}U 濃縮度：試料(A2) 1.009%及び(B2) 1.009%であった(表 23、表 24 参照)。

(c) 八酸化三ウラン(U_3O_8)：劣化ウラン

前処理を行った測定試料(A3)及び(B3)をフィラメント(n=5)へ塗布し、測定した結果、$^{235}U/^{238}U$ で変動係数 (1RSD)：試料 (A3) 0.107%、(B3) 0.078%、^{235}U 濃縮度：試料 (A3) 0.244%及び (B3) 0.244%であった(表 25、表 26 参照)。

(d) 二酸化ウラン(UO_2)：劣化ウラン

前処理を行った測定試料(A4)及び(B4)をフィラメント (n=5)へ塗布し、測定した結果、$^{235}U/^{238}U$ で変動係数 (1RSD)：試料 (A4)0.035%及び (B4)0.015%、^{235}U 濃縮度：試料 (A4) 0.575%及び (B4) 0.568%であった(表 27、表 28 参照)。

(5) 分析結果のデータベース化

以上の原子力機構人形峠環境技術センターの重ウラン酸アンモニウム(ADU)及びイエローケーキ(YC)の同位体組成分析結果は、後述の含有不純物分析結果とともに核鑑識ライブラリのデータベースに格納する予定である。

3.1.3 ウランの分離・精製と不純物の組成分析

核物質中のウラン(U)同位体比を TIMS により測定するために必要な U の分離・精製、及び核物質等の試料に含まれる不純物の組成を定量する方法ついて検討し、それらの分析法を作成した。なお本章では多くの元素について言及するため、元素名は元素記号を用いて記述する。

U の分離・精製には、9M HCl 中において形成する U 錯体の分配係数が高いことを利用した陰イオン交換樹脂が従来から用いられているが、U と同様な挙動をとる Fe^{3+}、Co^{2+}等の元素と効率よく分離することが難しい。そこで、その欠点がなく且つ分離操作の簡便性等から最近広く用いられている抽出クロマトグラフィー樹脂(米国アイクローム社製 UTEVA 樹脂)を用いることとした [3,4]。UTEVA 樹脂の理論上の U の最大抽出容量は約 37mg/mL 樹脂であるが、実際に用いる場合には最大抽出容量の 20%を上回らないような使用が勧められている [4]。ここでは樹脂の充填容積を 1 mL としたので U 含有量が約 7.5 mg までの試料に適用

可能である。

不純物の組成分析は、一般的な環境研究・分析分野における分析手法に準じて行うことが可能であり、多種多様な方法が考えられる。それらのなかから前処理操作が簡便で且つ迅速に多元素同時定量が可能な誘導結合プラズマ質量分析装置（ICP-MS)を用いる方法を選択した。元素の定量に当たっては、試料の酸溶解液を前処理せずにそのまま ICP-MS により測定することも可能であるが、ここでは、UTEVA 樹脂による U の分離・精製工程において得られる流出液に不純物元素のほぼ全量が回収されることから、その溶液を分析試料として利用することとした。

分析法を作成する際に検討した元素は、米国試験材料協会（ASTM International)が策定した標準試験法[6]及び国際標準化機構（ISO)が制定した測定手順[7]を参考に選定した 64 元素である。

3.1.3.1 UTEVA 樹脂における元素の溶離プロファイルの検討

分析に用いる UTEVA 樹脂については、U の溶離フラクションに試料中に夾雑する不純物元素が混入せずに U が回収できること、また不純物の溶離フラクションに不純物元素がほぼ全量回収されることを確認する必要がある。

そこで、市販の元素標準液から作製した数種の試料溶液をそれぞれ UTEVA 樹脂カラムに通し、各元素の溶離プロファイルを求めた。検討対象元素(U を含めて 65 元素)を表 29 に示す。

(A) 実験

(a-1) 装置、器具、試薬

・ICP-MS：アジレント・テクノロジー社製 HP4500 型
・分離用樹脂：アイクローム社製 UTEVA 樹脂(粒径 50～100μm)
・分離カラム:ムロマック社製ミニカラム S(内径 5.0～5.5mm)及びリザーバー(5 mL)。分離カラムを図 16 に示す。
・流出液捕集用サンプル瓶：ポリエチレン製瓶(10 mL)あるいはガラス製瓶(9 mL)
・試薬：実験に用いた水は、脱イオン水を超純水製造装置により精製した。硝酸及び塩酸は関東化学(株)製有害金属分析用を、適宜、水で希釈して用いた。
・超純粋製造装置：メルクミリポア社製 Synergy UV 型
・模擬試料溶液：下記の元素標準溶液を適宜希釈して硝酸溶液に調製した。分析に用いた標準溶液の詳細を表 30 に示す。

(B) 実験操作

(b-1) カラムに 0.5M HNO_3 でスラリー状にした UTEVA 樹脂を、樹脂層高が 40 mm になるように充填(樹脂容積、約 1 mL)した。

(b-2) 3M HNO_3 溶液に調製した模擬試料 3 mL をリザーバーに移し、カラムに通した。この時の元素添加量は ICP-MS 測定における感度、分子イオン等の影響を考慮して Ca、Fe、Se、Os について各 600 ng、希土類元素について各 10ng、その他の元素について各 30 ng とした。流出液の流速は自然滴下で 0.22～0.25 mL/min であった。

(b-3) 試料容器を 0.5 mL の 3M HNO_3 で洗い、その洗液をリザーバーの試料溶液に合

わせた。この操作をさらに 2 回行った。

(b-4) 試料溶液が流れ終わった後、リザーバーを 0.2 mL の 3M HNO_3 で洗浄した。この操作を再度行った。

(b-5) 3M HNO_3 を、試料と洗浄液を合わせた流出液が 12 mL になるまで(約 7 mL)流した。なお、Zr と Th を溶離する場合は、さらに 10 mL の 5MHCl を流した。

(b-6) 0.02M HNO_3 を 8 mL 流した。

上記操作における流出液を 1 mL 毎（1 mL/フラクション)に流出液捕集用サンプル瓶に捕集し、0.7M HNO_3 溶液 10 mL とした後、溶液中の元素を ICP-MS により内部標準法を用いて定量した。

なお、測定の際に用いた内標準物質は、測定対象元素と質量数の近いものを選定した。分離操作概要を図 17 に示す。

(C) 実験結果と考察

得られた各元素の溶離プロファイルを原子番号順に幾つかのグループに分けて示す。

(c-1) 2 周期 $_3$Li、$_4$Be、$_5$B 及び第 3 周期 $_{12}$Mg、$_{13}$Al

Li、Be、B、Mg 及び Al に関する溶離プロファイルを図 18 に示す。Li 及び Al はフラクション No.1～No.6 に、Be はフラクション No.1～No.7 に、B はフラクション No.2～No.6 で溶離した。回収率はそれぞれ 106%、110%、105%、98%であった。回収率が 100%を超えたのは、ICP-MS の測定精度に起因すると思われる。なお、Li 及び Al がフラクション No.1 から溶出し、B がフラクション No.2 から溶出するなど元素によって溶離のパターンが異なるように見受けられるが、この差は樹脂上の液量や各フラクションの採取液量の精度に起因する実験誤差であり、元素の特徴を示すものではないと考える。

Mg は全てのフラクションで検出され、回収率は 260%であった。Mg の回収率が 100%を超えたのは、実験器材や実験室環境からの汚染である。使用したカラム(本体、目皿、液止めキャップ)、UTEVA 樹脂及びクリーンルーム用手袋を希硝酸に浸漬して溶出する元素を測定したところ、下記に示す元素がそれぞれの器材から高濃度に検出された。実験に際してはこれらからの汚染に十分注意して行う必要がある。

・カラム(本体：ポリプロピレン製、目皿：ポリエチレン製)：Mg、Al、Zn 等
・カラム液止めキャップ(軟質塩化ビニル製)：Mg、Al、Sn 等
・UTEVA 樹脂(ジアミルアミルホスソン酸/XAD-7)：Mg、Al、Cu 等
・クリーンルーム用手袋(ニトリルゴム製)：Mg、Al、Zn 等

なお、Mg を除くいずれの元素もフラクション No.13 以降の U 分析用フラクションには検出されず、U の分離・精製は満足できるものであった。

Mg 等元素の実験器材からの汚染については、器材を硝酸溶液で十分に洗浄することにより解決することができた。その洗浄方法は後述する分析マニュアルに反映されている。

(c-2) 第 4 周期(2 族～9 族) $_{20}$Ca、$_{21}$Sc、$_{22}$Ti、$_{23}$V、$_{24}$Cr、$_{25}$Mn、$_{26}$Fe、$_{27}$Co

Ca、Sc、Ti、V、Cr、Mn、Fe 及び Co に関する溶離プロファイルを図 19 に示す。Ca、Mn、Fe 及び Co はフラクション No.1№.1 ～No.6№.6 で溶離され、回収率はそれぞれ 98%、101%、97%、99%であった。Sc はフラクション No.2～No.8 で溶離され、回収率は 102％であった。Sc は他の元素の溶離パターンと比べると溶離が幾分遅れる

傾向であった。Ti 及び Cr はフラクション No.2～No.6 で溶離され、回収率はそれぞれ 100%、95%であった。V はフラクション No.1～No.7 で検出され、回収率は 101%であった。なお、いずれの元素もフラクション No.13 以降の U 分析用フラクションには検出されず、U の分離・精製は満足できるものであった。

(c-3) 4 周期(10 族～16 族) $_{28}$Ni、$_{29}$Cu、$_{30}$Zn、$_{31}$Ga、$_{32}$Ge、$_{33}$As、$_{34}$Se

Ni、Cu、Zn、Ga、Ge、As 及び Se に関する溶離プロファイルを図 20 に示す。Ni、Cu、Ga 及び As は、フラクション No.1～No.6 で溶離され、回収率はそれぞれ 101%、104%、101%、98%であった。Zn、Ge 及び Se はフラクション No.2～No.6 で溶離され、回収率はそれぞれ 111%、90%、98%であった。回収率が 100%を超えた原因と Ge の回収率が 90%と低い原因は、ICP-MS の測定精度に因るものと考える。なお、いずれの元素もフラクション No.13 以降の U 分析用フラクションには検出されず、U の分離・精製は満足できるものであった。

(c-4) 5 周期(1 族～9 族) $_{37}$Rb、$_{38}$Sr、$_{39}$Y、$_{40}$Zr、$_{41}$Nb、$_{42}$Mo、$_{44}$Ru、$_{45}$Rh

Rb、Sr、Y、Zr、Nb、Mo、Ru 及び Rh に関する溶離プロファイルを図 21 に示す。Rb、Sr、Ru 及び Rh はフラクション No.1～No.7 で溶離され、回収率はそれぞれ 101%、102%、92%、98%であった。Y はフラクション No.2～No.6 で溶離され、回収率は 96%であった。Zr はフラクション No.5 に最初に検出され、その後フラクション No.15 まで溶離が続き、回収率は 58%であった。Nb はフラクション No.2～No.8 で溶離され、回収率は 97%であった。Mo はフラクション No.2～No.7 で溶離され、回収率は 94%であった。なお、Zr を除くいずれの元素もフラクション No.13 以降の U 分析用フラクションには検出されず、U の分離・精製は満足できるものであった。

Zr については、U 分析用フラクションに検出されたため、塩酸系溶離液で Zr と U とを分離する方法について検討した [3]。検討結果を図 22 に示す。3M HNO_3 に続いて 5M HCl をながすことで、ほぼ 100%の Zr が溶離され、U の分離・精製にはこの操作が有効であることを確認した。

(c-5) 5 周期(10 族～16 族) $_{46}$Pd、$_{47}$Ag、$_{48}$Cd、$_{49}$In、$_{50}$Sn、$_{51}$Sb、$_{52}$Te

Pd、Ag、Cd、In、Sn、Sb 及び Te 溶離プロファイルを図 23 に示す。Pd 及び Te はフラクション No.2～No.7 で溶離され、回収率はそれぞれ 49%、110%であった。Pd の回収率が低い値を示した原因は、硝酸系溶液の模擬試料を調製した際に塩酸濃度が低くなったため不安定になり、カラム壁、樹脂等に吸着し、損失したためと推測する。なお、SPEX 社製の Pd を含む標準溶液のマトリックスは 10% HCl／1% HNO_3 であり、調製後の模擬試料の塩酸濃度は 0.01%である。Ag、In、Sn 及び Sb はフラクション No.1～No.7 で溶離され、回収率はそれぞれ 103%、102%、100%、99%であった。Cd はフラクション No.1～No.6 で溶離され、回収率は 103%であった。なお、いずれの元素もフラクション No.13 以降の U 分析用フラクションには検出されず、U の分離・精製は満足できるものであった。

(c-6) 第 6 周期(1 族～9 族、3 族ランタノイドを除く) $_{55}$Cs、$_{56}$Ba、$_{72}$Hf、$_{73}$Ta、$_{74}$W、$_{75}$Re、$_{76}$Os、$_{77}$Ir

Cs、Ba、Hf、Ta、W、Re、Os 及び Ir に関する溶離プロファイルを図 24 に示す。Cs、W 及び Ir はフラクション No.1～No.7 で溶離され、回収率はそれぞれ 103%、97%、97%であった。Ba はフラクション No.1～No.6 で溶離され、回収率は 104%であった。Hf はフラクション No.2 から溶離され、溶離プロファイルが裾を引いた形となり、フラクション No.11 まで検出され、回収率は 91%であった。Ta はフラクション No.1～

No.8 で溶離され、回収率は 113%であった。回収率が 100%を超えたのは ICP-MS の測定精度に因るものと思われる。Re はフラクション No.2～No.7 で溶離され、回収率は 100%であった。Os はフラクション No.1～No.8 で溶離され、回収率は 86%であった。Os の回収率が若干低い値を示した原因は、硝酸系溶液の模擬試料を調製した際に塩酸濃度が低くなったため不安定になり、容器壁面への吸着等が起き損失したためと推測する。MERCK 社製 Os 標準溶液のマトリックスは 7% HCl であり、調製後の模擬試料の塩酸濃度は 0.007%である。このことに関連した検討として、Os を含む 3M HNO_3 溶液を PMP(ポリメチルペンテン)製メスフラスコに入れて 40 日経過後に測定したところ、溶液中の Os 濃度が約 10%低下し、経時的濃度変化を示した。なお、いずれの元素もフラクション No.13 以降の U 分析用フラクションには検出されず、U の分離・精製は満足できるものであった。

(c-7) 6 周期(10 族～15 族) $_{78}$Pt、$_{79}$Au、$_{80}$Hg、$_{81}$Tl、$_{82}$Pb、$_{83}$Bi

Pt、Au、Hg、Tl、Pb 及び Bi に関する溶離プロファイルを図 25 に示す。Pt 及び Bi はフラクション No.2～No.7 で溶離され、回収率はそれぞれ 98%、102%であった。Au はいずれのフラクションにも検出されなかった。Au が回収されなかった原因は硝酸系溶液の模擬試料を調製した際に塩酸濃度が低くなったため不安定になり、カラム壁、樹脂等に吸着し、損失したためと推測する。なお、SPEX 社製の Au を含む標準溶液のマトリックスは 10% HCl / 1% HNO_3 であり、調製後の模擬試料の塩酸濃度は 0.01%である。Hg はフラクション No.1～No.9 で溶離され、溶離プロファイルは裾を引いた形状となった。回収率は 134%であった。一般に、Hg はメモリー効果や容器への吸着及び揮散に注意が必要で定量が困難であると言われている。今回 Hg の回収率が 100%を超えたのは、先に測定したキャリブレーション用試料中の Hg が試料導入チューブ等へ吸着・脱着したことが原因と推測する。数回の再実験を行ったが、Hg の回収率に再現性はなく 60%～160%の範囲にあり、現行法での Hg の定量は不可能と考える。Tl はフラクション No.1～No.7、Pb はフラクション No.1～No.6 で溶離され、回収率はそれぞれ 101%、102%であった。なお、いずれの元素もフラクション No.13 以降の U 分析用フラクションには検出されず、U の分離・精製は満足できるものであった。

(c-8) 第 6 周期(ランタノイド) $_{57}$La、$_{58}$Ce、$_{59}$Pr、$_{60}$Nd、$_{62}$Sm、$_{63}$Eu、$_{64}$Gd、$_{65}$Tb、$_{66}$Dy、$_{67}$Ho、$_{68}$Er、$_{69}$Tm、$_{70}$Yb、$_{71}$Lu

ランタノイドに関する溶離プロファイルを図 26 に示す。全ての元素がフラクション No.2～No.6 で溶離され、回収率は 100～109%であった。回収率が 100%を超えたのは ICP-MS の測定精度に起因するものと考える。なお、いずれの元素もフラクション No.13 以降の U 分析用フラクションには検出されず、U の分離・精製は満足できるものであった。

(c-9) 7 周期(アクチノイド) $_{90}$Th、$_{92}$U

Th 及び U の溶離プロファイルを図 27 に示す。Th は 0.02M HNO_3 溶離液のフラクション No.15 から溶離され、フラクション No.20 までで 19%が回収された。U は Th と同様にフラクション No.15 から溶離され、フラクション No.16 で 99%が回収された。図に示すように、U 分析用フラクションに Th が混入したことから、塩酸系溶離液で Th と U とを分離する方法について検討した[5]。検討結果を図 28 に示す。5M HCl を流すことで、Th のみがほぼ 100%溶離されたことから、U の分離・精製にこの操作が有効であることを確認した。

(c-10) 結論

以上の検討結果から、ICP-MS により定量可能な元素は、検討した 65 元素のうち、メモリー効果等のため定量結果に再現性が見られなかった Hg を除く 64 元素であり、溶離プロファイルは 5 元素(Mg、Pd、Os、Au、Hg)を除く 60 元素について得られた。得られた溶離プロファイルから、分析操作は、試料溶液 3mL を流した後に 3M HNO_3 を 6 mL(ビーカー洗浄液等を含めると約 8 mL)、次いで 5M HCl を 9 mL 流して不純物元素を回収し、最後に 0.02M HNO_3 を 6 mL 流して精製された U を回収することとした。

3.1.3.2 分析マニュアル（ウランの分離・精製と不純物の組成分析法）

実験により得られた元素の溶離プロファイル及び文献[4-6]を参考に U の分離・精製法と不純物の組成分析法を作成した。概要は以下の通りである。

分析試料に 7M HNO_3 を加えて溶解し、蒸発乾固後 3M HNO_3 溶液に調整する。その溶液を UTEVA 樹脂カラムにとおし、樹脂に吸着している不純物元素を 3M HNO_3 及び 5M HCl で溶離し、次いで U を 0.02M HNO_3 で溶離する。3M HNO_3 及び 5M HCl 溶離液に不純物元素のほぼ全量が回収されるので、それを ICP-MS で測定する。0.02M HNO_3 溶離液には分離・精製された U が回収されるので、その溶液から少量を分取してフィラメントに焼き付け、U の同位体比を TIMS で測定する。

分析所要時間は、分析試料の採取から測定試料の調製まで 5 日である。現況で分析可能な不純物元素は 53 元素である。それらの定量下限を表 31 に示す。Ca、Fe、Se が 100～500μg/g (＝ppm)、その他の元素は 0. 1～十数 ppm の範囲である。文献[8]では ppm レベルの分析値が核鑑識のシグネチャとして用いられているので、本法により得られる分析値は核鑑識に有効に利用できると考える。さらに低い定量下限が必要な場合には、溶液を濃縮して測定する方法、あるいは高質量分解能をもつ二重収束型 ICP-MS を利用することも有効である。

本法における分析値の不確かさについて Cr 分析を例に試算した結果を 3.1.4 項に後述する。

なお、一般的に、カラム操作を行った場合には、樹脂に吸着した元素の全てを回収できずに損失する可能性があるので精確な分析値を得るためにはその損失分を補正する必要がある。補正方法には、分析試料と類似しているマトリックスを持つ標準試料あるいは既知量の元素を添加した試料を十分多数回分析して得られた値を分析試料の回収率とする方法等がある。しかし、本法では前述の溶離プロファイルを求めた実験で殆どの不純物元素がほぼ全量回収されたこと、ICP-MS 測定の不確かさ等を考慮して回収率補正は行わないこととした。

また、核物質中の不純物を ICP-MS で定量する方法として、試料の酸溶解液を UTEVA 樹脂にとおさずにそのまま ICP-MS で測定する方法もある。この方法は、試料溶液中の U 等核物質により装置が汚染される可能性があること、ICP-MS のネブライザーやコーンが詰まらないようにマトリックスの総塩濃度を 0.1%以下として測定すること、標準溶液のマトリックスマッチング等について考慮する必要があるが、分析法としては簡便で迅速に結果を得ることができ、分析工程における元素損失や実験器材等からの汚染の影響を殆ど受けない。

一方、本法は、上記の方法に比べて分析工程における元素損失や実験器材等からの汚染を生じる可能性があり、また回収率の補正を行わないため精確度において劣る。しかし、

測定を妨害するマトリックスを除去できるため定量下限をより低くすることができ、また同一試料から U 同位体比測定と不純物元素の定量を行うので、個々にそれらの分析を行う場合に比べて、分析操作における被ばくのリスク及び発生する廃棄物を低減することが可能である。

どちらの方法を選択するかは、求められる分析値の定量下限、精確さ、緊急性等により決定される。

(A) 装置、器具、試薬

・ICP-MS：アジレント・テクノロジー社製 HP4500 型相当品
・電子天秤：メトラートレド社製 XP504V 型(秤量：520 g、最小表示：0.1 mg)相当品
・超純粋製造装置：メルクミリポア社製 Synergy UV 型相当品
・ホットプレート：オフガス処理装置付きホットプレート
・分離カラム一式：ムロマック社製ミニカラム S(内径 5.0～5.5 mm)(図 16 参照)
・リザーバー：ピペットチップ 5 mL 用に 1 mL 毎に目盛を付けたもの (図 16 参照)
・分離用樹脂：アイクローム社製 UTEVA 樹脂(粒径 50～100μm)
・スパーテル：ポリプロピレン(PP)製ミクロスパーテル
・ピペット類：マイクロピペット1 mL
・メスフラスコ：ポリメチルペンテン(PMP)製 10 mL、50 mL (いずれもクラス A)
・ビーカー: テフロン製 25 mL
・容器: テフロン製 100 mL、蓋付きポリエチレン (あるいはテフロン)製 10 mL
・元素標準溶液：ICP-MS 用標準溶液を適宜希釈する。あるいは、試薬特級から調製する。
・試薬：水は超純水製造装置により精製する。硝酸及び塩酸は試薬特級を用い、適宜水で希釈する。

(B) 分析前の準備

ムロマック社製ミニカラム S あるいはアイクローム社製 UTEVA 樹脂を硝酸溶液に浸漬すると、製造工程で使用される添加剤等に起因する Mg、Al 等の元素が溶出する。そこで、溶出元素が分析結果に影響を及ぼさないように 下記操作に従ってそれら器材を洗浄する。カラム液止めキャップも同様に製造工程で使用される安定剤等に起因する Sn 等の元素が溶出するが、このキャップについては数回の酸洗浄では効果が見られないので、使用の都度接触部分 (カラム先端部分)を 1M HNO_3 と水で洗浄する。

(b-1) カラムの洗浄
① カラムを 1M HNO_3 に数日間浸漬する。
② カラムを新たに調製した 1M HNO_3 に入れ、超音波洗浄器を用いて 15 分間洗浄する。この操作をその都度新たな 1M HNO_3 と交換して、3 回行う。
③ カラムを取り出し、水 5 mL で 3 回洗浄する。
④ 1M $HNO_3$5 mL で 3 回洗浄する。
⑤ 水 5 mL で 3 回洗浄する。
(b-2) UTEVA 樹脂の洗浄
① 樹脂約 10 g を 100 mL テフロン製容器に入れ、0.5M HNO_3 を加えて 1 時間以上浸

した後、デカンテーション法により上澄み液 (微粒子を含む)を捨てる。この操作を数回繰り返し、0.5M HNO_3 溶液中に保存する。

② 上記①の樹脂を樹脂層高が 40 mm (樹脂容量 1 mL)になるように洗浄済みカラムに充填し、水を 5 mL 流す。
この条件での流出液の流速は 0.2～0.3 mL/min である。

③ 3M HNO_3 を 10 mL 流し、次に、水を同量流す。この操作を 3 回行う。
なお、次のコンディショニング操作を直ちに行わない場合には、0.5M HNO_3 を 5 mL 流した後、液止めキャップを取り付けて樹脂を湿潤状態で保存する。

(b-3) UTEVA 樹脂のコンディショニング操作
①3M HNO_3 を 5 mL 流す。
②水を 5 mL 流す。
③5M HCl を 5 mL 流す。
④水を 5 mL 流す。
⑤ 3M HNO_3 を 5 mL 流す。

(C) 分析操作

(c-1) 試料 10～50 mg [注6)]を PP 製ミクロスパーテルで 10 mL 蓋付きテフロン (あるいはポリエチレン)製容器に分取し、電子天秤で精秤する。

(c-2) 試料を少量の 7M HNO_3 で 25 mL テフロン製ビーカーに移し、3 mL の 7M HNO_3 を加えて軽く振り混ぜ、時計皿で蓋をしてホットプレート上で加温、溶解する。

(c-3) 試料が完全に溶解したのを確認した後、ホットプレート上で蒸発乾固する。

(c-4) 乾固物に 3 mL の 3M HNO_3 を加え、ホットプレート上で短時間加熱し溶解し、室温まで放冷した後、UTEVA カラムにとおす。流出液は 50 mL PMP 製メスフラスコに受ける。なお、UTEVA カラムにとおす U 量は約 7.5mg 以下に調整する必要があるので、適宜試料溶解液の希釈を行う。

(c-5) テフロン製ビーカーを 0.5 mL の 3M HNO_3 で洗浄し、洗浄液を試料溶液に合わせる。この操作を 3 回行う。流出液は同メスフラスコに受ける。 (試料溶液と洗浄液とを合わせた量は 4.5 mL である。)

(c-6) 試料溶液が流れ終わった後、リザーバーを 0.2 mL の 3M HNO_3 で 2 回洗浄する。流出液は同メスフラスコに受ける。

(c-7) 3M HNO_3 を 6 mL 流す。流出液は同メスフラスコに受ける。

(c-8) 5M HCl を 9 mL 流し、新たな 25 mL テフロン製ビーカーに受ける。

(c-9) 0.02M HNO_3 を 6 mL 流し、新たな 25 mL テフロン製ビーカーに受ける。 (TIMS 測定用。操作(c-14)へ。)

(c-10) (c-8)の試料溶液をホットプレート上で蒸発乾固する。

(c-11) 乾固物を 1 mL の 0.7M HNO_3 で溶解し再び乾固する。

(c-12) 乾固物に 3 mL の 0.7M HNO_3 加え、ホットプレート上で短時間加熱溶解する。この

[注6)]天秤の精度、試料の均一性等を考慮し、供試料を 10～50 mg とした。UTEVA 樹脂において、試料に含有する U 量が 7.5 ㎎より多い場合には一部が吸着されないで漏出する可能性があるので、そのような試料を対象とする場合には試料を溶解した後に一定容とし、U 量が 7.5 ㎎以下となるように一部を分取してカラムに通す。なお、TIMS による U 同位体比測定に用いる試料量は 1 測定試料当たり 100～200 ngU である。

溶液を室温まで放冷し、先の 50 mL メスフラスコに移す。テフロン製ビーカーを 0.5 mL の 0.7M HNO_3 で 3 回洗浄し、同メスフラスコに移す。

(c-13)メスフラスコを水でメスアップし､そこから 1 mL [注7)]をマイクロピペットで 10mL PMP 製メスフラスコに移し、内標準を添加した後、0.7M HNO_3 でメスアップして不純物元素を ICP-MS にて測定する。

-U 同位体比を求めるための操作-

(c-14) (c-9)の流出液をホットプレート上で蒸発乾固し、乾固物を 1M HNO_3 で溶解し、100～200 ngU/μL 程度の溶液となるように調整する。

(c-15) その溶液から 1 μL をマイクロピペットで取り、Re フィラメントに焼き付け、TIMS で測定する。

3.1.3.3 不純物分析における測定値の不確かさ

不純物分析における不確かさについて Cr 分析を例に試算した。不純物分析フローを図 29 に、不確かさの要因を表 32 に示す。それらに基づいて、分析供試料 0.05 g、ICP-MS 測定における強度比を 0.05 (約 5 μg/g 試料相当)とした場合の不確かさの試算結果を下記に示す。

(1) 測定試料の調製の不確かさ

(A) 試料秤量の相対不確かさ

(a-1) 天秤の不確かさ：使用した天秤の最小表示 (目量) は 0.0001 g である。天びんの不確かさを 1 目量の 2 倍、分析供試料を 0.05 g とした。

$$\frac{0.0001\ \mathrm{g} \times 2}{0.05\ \mathrm{g}} = 0.004\ \mathrm{RSD}$$

(a-2) 天秤の繰り返し秤量の不確かさ:測定質量に近い標準分銅を用いて 10 回の繰り返し測定を行い，その平均値及び標準偏差を算出した (ここでは、標準分銅の代わりに便宜的に約0.05gの金属片を用いた) 。 実験の結果は､平均値:0.04974 g､標準偏差0.0000516 g であった。

$$\frac{0.0000516\ \mathrm{g}}{0.04974\ \mathrm{g}} = 0.00104\ \mathrm{RSD}$$

従って、試料秤量の相対不確かさは、

$$\sqrt{0.004^2 + 0.00104^2} = 0.00413\ \mathrm{RSD} \quad \cdots \quad (1)$$

(B) 50mL メスフラスコのメスアップの相対不確かさ

メスフラスコの仕様書に書かれた「誤差」より求めた絶対不確かさと、10 回のメスアップの繰り返しより求めた絶対不確かさと、実験室の温度の影響の絶対不確かさを合成し、相対値とした。

(b-1) 目盛線の絶対不確かさ：仕様書に書かれている「誤差」は、50 mL メスフラスコの場合には±0.06 mL である。矩形分布と仮定して算出した。

$$\frac{0.06\ \mathrm{mL}}{\sqrt{3}} = 0.03464\ \mathrm{mL}$$

(b-2) メスアップの絶対不確かさ： メスフラスコの容量は標線まで入れた超純水の質量と

[注7)] 定量下限を下げたい場合には、分取量を多くする。例えば、メスアップした試料溶液から 9 mL を分取し、内標準を 1 mL 添加すれば、検出下限を 9 倍下げることができる。

同一と仮定した。メスフラスコの質量を標線まで超純水を入れた時の質量から差し引き、容量とした。この操作を 10 回繰り返し測定した。実験の結果は、平均値：49.78982 g、標準偏差：0.02568 g (= mL)であった。なお、用いた天秤の不確かさは考慮していない。

(b-3) 実験室の温度の影響の絶対不確かさ：メスフラスコの補正時の温度と測定時の温度差が 4℃、水の体積膨張率を 2.1×10^{-4}/℃、温度分布を矩形分布と仮定して算出した。

$$\frac{50\ \text{mL} \times 4\ ℃ \times (2.1\times10^{-4}/℃)}{\sqrt{3}} = 0.02425\ \text{mL}$$

従って、50 mL メスフラスコのメスアップの相対不確かさは、

$$\frac{\sqrt{(0.03464\ \text{mL})^2 + (0.02568\ \text{mL})^2 + (0.02425\ \text{mL})^2}}{50\ \text{mL}} = 0.00099\ \text{RSD} \quad \cdots (2)$$

以下、メスフラスコの不確かさは、仕様書に記載されている値、実験値等を用いて同様に算出した。

(C) 0.1～1 mL 容量可変ピペットによる 1mL 分取の相対不確かさ

ピペットの仕様書に書かれた「正確度」より求めた絶対不確かさと、10 回の分取の繰り返しより求めた絶対不確かさと、実験室の温度の影響の絶対不確かさを合成し、相対値とした。

(c-1) 目盛の絶対不確かさ：仕様書に書かれている「正確度」は、1 mL 分取の場合には±0.6%である。矩形分布と仮定して算出した。

$$\frac{0.01\ \text{mL} \times 0.6\%}{\sqrt{3}} = 0.00346\ \text{mL}$$

(c-2) 分取の絶対不確かさ：分取操作時の不確かさは 10 回の繰り返し実験により求めた。ピペットの容量は、ピペットで超純水を 1 mL 採取し、吐出させ、その吐出された超純水の容量とした。また、水の容量は、水の質量と同じであると仮定した。実験の結果は、平均値 0.99929 g、標準偏差 0.00160 g (＝mL)であった。なお、用いた天秤の不確かさは考慮していない。

(c-3) 実験室の温度の影響の絶対不確かさ：ピペットの検定時の温度と測定時の温度差が 4℃、水の体積膨張率を 2.1×10^{-4}/℃、温度分布を矩形分布と仮定して算出した。

$$\frac{1\ \text{mL} \times 4℃ \times (2.1\times10^{-4}/℃)}{\sqrt{3}} = 0.00049\ \text{mL}$$

従って、0.1～1 mL 容量可変ピペットによる 1 mL 分取の相対不確かさは、

$$\frac{\sqrt{(0.003464\ \text{mL})^2 + (0.00160\ \text{mL})^2 + (0.00049\ \text{mL})^2}}{1\ \text{mL}} = 0.00384\ \text{RSD} \quad \cdots (3)$$

以下、ピペットの不確かさは、それぞれの仕様書に記載されている値、実験値等を用いて同様に算出した。

(D) 10mL メスフラスコのメスアップの不確かさ

(d-1) 目盛線の絶対不確かさ：

$$\frac{0.04\ \text{mL}}{\sqrt{3}} = 0.02309\ \text{mL}$$

(d-2) メスアップの絶対不確かさ：平均値 9.98344 g、標準偏差 0.01881g (=mL)

(d-3) 実験室の温度の影響の絶対不確かさ：

$$\frac{10\ \mathrm{mL} \times 4℃ \times (2.1 \times 10^{-4}/℃)}{\sqrt{3}} = 0.00485\ \mathrm{mL}$$

従って、10mL メスフラスコのメスアップの相対不確かさは、

$$\frac{\sqrt{(0.0231\ \mathrm{mL})^2 + (0.01881\ \mathrm{mL})^2 + (0.00485\ \mathrm{mL})^2}}{10\ \mathrm{mL}} = 0.00302\ \mathrm{RSD} \quad \cdots (4)$$

(2) 検量線用標準液の不確かさ

検量線標準液の相対不確かさは、(1)検量線中間標準液の不確かさと、(2)検量線標準液 0～5 ng/mL の濃度毎の不確かさにより算出した。 標準液の調製は表 33 の通りである。

(A) 検量線用中間標準液の不確かさ

(a-1) 中間標準液 10 ng/mL の相対不確かさ

① Cr 標準原液 10 mg/L の相対不確かさ：証明書の値 9.85 ± 0.05 mg/L (k=2)より相対不確かさは、

$$\frac{\frac{0.05\ \mathrm{mg/mL}}{2}}{9.85\ \mathrm{mg/mL}} = 0.00254\ \mathrm{RSD}$$

② 0.01～0.1 mL 容量可変ピペットによる 0.1 mL 分取の相対不確かさ

②-1 目盛の絶対不確かさ：

$$\frac{0.1\ \mathrm{mL} \times 0.8\%}{\sqrt{3}} = 0.00046\ \mathrm{mL}$$

②-2 分取の絶対不確かさ：平均値 0.09993g、標準偏差 0.00007g (＝mL)

②-3 実験室の温度の影響の絶対不確かさ：

$$\frac{0.1\ \mathrm{mL} \times 4℃ \times (2.1 \times 10^{-4}/℃)}{\sqrt{3}} = 0.00005\ \mathrm{mL}$$

従って、0.01～0.1 mL 容量可変ピペットによる 0.1 mL 分取の相対不確かさは、

$$\frac{\sqrt{(0.00046\ \mathrm{mL})^2 + (0.00007\ \mathrm{mL})^2 + (0.00005\ \mathrm{mL})^2}}{0.1\ \mathrm{mL}} = 0.00468\ \mathrm{RSD}$$

③ 100 mL メスフラスコのメスアップの相対不確かさ：

③-1 目盛線の絶対不確かさ：

$$\frac{0.10\ \mathrm{mL}}{\sqrt{3}} = 0.05774\ \mathrm{mL}$$

③-2 メスアップの絶対不確かさ：平均値 99.52884 g、標準偏差 0.07652 g (＝mL)

③-3 実験室の温度の影響による不確かさ：

$$\frac{100\ \mathrm{mL} \times 4℃ \times (2.1 \times 10^{-4}/℃)}{\sqrt{3}} = 0.04850\ \mathrm{mL}$$

従って、100 mL メスフラスコのメスアップの相対不確かさは、

$$\frac{\sqrt{(0.05774\ \mathrm{mL})^2 + (0.07652\ \mathrm{mL})^2 + (0.04850\ \mathrm{mL})^2}}{10\ \mathrm{mL}} = 0.00107\ \mathrm{RSD}$$

(a-2) 中間標準液 100 ng/mL の不確かさ

① Cr 標準原液 10 mg/L の相対不確かさ：上記の(2)(A)(a-1)①項と同じ、0.00254 RSD

② 0.1～1 mL 容量可変ピペットによる 1 mL 分取の相対不確かさ：上記の(3)式の値と同じ、0.00384 RSD
③ 100 mL メスフラスコのメスアップの相対不確かさ：上記の(2)(A)(a-1)③項と同じ、0.00107 RSD

(B) 検量線用標準液 0～5 ng/mL の不確かさ
(b-1) 容量可変ピペットの不確かさ
① 0.1～1 mL 容量可変ピペットによる 0.25 mL 及び 0.5 mL 分取の相対不確かさ
①-1 目盛の絶対不確かさ：

$$\frac{0.25\ \mathrm{mL} \times 3\%}{\sqrt{3}} = 0.00433\ \mathrm{mL}$$

(*0.25 mL の「正確度」が仕様書に記載されていなかったので、安全をみて 0.1 mL の「正確度」±3%を用いた。)

$$\frac{0.5\ \mathrm{mL} \times 1.0\%}{\sqrt{3}} = 0.00289\ \mathrm{mL}$$

①-2 分取の絶対不確かさ：
0.25 mL：平均値 0.25007g、標準偏差 0.00024g (=mL)
0.5 mL：平均値 0.49859g、標準偏差 0.00039g (=mL)
①-3 実験室の温度の影響の絶対不確かさ
0.25 mL：

$$\frac{0.25\ \mathrm{mL} \times 1℃ \times (2.1 \times 10^{-4}/℃)}{\sqrt{3}} = 0.00003\ \mathrm{mL}$$

0.5mL：

$$\frac{0.5\ \mathrm{mL} \times 1.0\%}{\sqrt{3}} = 0.00289\ \mathrm{mL}$$

従って、0.1～1 mL 容量可変ピペットによる 0.25 mL 及び 0.5 mL 分取のそれぞれの相対不確かさは、
・0.25 mL：

$$\frac{\sqrt{(0.00433\ \mathrm{mL})^2 + (0.00024\ \mathrm{mL})^2 + (0.00003\ \mathrm{mL})^2}}{0.25\ \mathrm{mL}} = 0.01735\ \mathrm{RSD}$$

・0.5mL：

$$\frac{\sqrt{(0.00289\ \mathrm{mL})^2 + (0.00039\ \mathrm{mL})^2 + (0.00024\ \mathrm{mL})^2}}{0.5\ \mathrm{mL}} = 0.00585\ \mathrm{RSD}$$

② 0.5～2.5 mL 容量可変ピペットによる 2.5 mL 分取の相対不確かさ
②-1 目盛の絶対不確かさ：

$$\frac{2.5\ \mathrm{mL} \times 0.6\%}{\sqrt{3}} = 0.00866\ \mathrm{mL}$$

②-2 分取の絶対不確かさ：平均値 2.4911 g、標準偏差 0.00481g (＝mL)
②-3 実験室の温度の影響の絶対不確かさ：

$$\frac{2.5\ \mathrm{mL} \times 4℃ \times (2.1 \times 10^{-4}/℃)}{\sqrt{3}} = 0.00121\ \mathrm{mL}$$

従って、0.5～2.5 mL 容量可変ピペットによる 2.5 mL 分取の相対不確かさは、

$$\frac{\sqrt{(0.00866\ \mathrm{mL})^2 + (0.00481\ \mathrm{mL})^2 + (0.00121\ \mathrm{mL})^2}}{2.5\ \mathrm{mL}} = 0.00399\ \mathrm{RSD}$$

③ 0.5-5 mL 容量可変ピペットによる 5 mL 分取の相対不確かさ

③-1　目盛の絶対不確かさ：

$$\frac{5\ \mathrm{mL} \times 0.6\%}{\sqrt{3}} = 0.01732\ \mathrm{mL}$$

③-2　分取の絶対不確かさ：平均値 4.9954 g、標準偏差 0.01567 g　(＝mL)

③-3　実験室の温度の影響の絶対不確かさ：

$$\frac{5.0\ \mathrm{mL} \times 4℃ \times (2.1 \times 10^{-4}/℃)}{\sqrt{3}} = 0.00242\ \mathrm{mL}$$

従って、0.5～5 mL 容量可変ピペットによる 5 mL 分取の相対不確かさは、

$$\frac{\sqrt{(0.01732\ \mathrm{mL})^2 + (0.01567\ \mathrm{mL})^2 + (0.00242\ \mathrm{mL})^2}}{5\ \mathrm{mL}} = 0.00470\ \mathrm{RSD}$$

(b-2) 50 mL メスフラスコのメスアップの相対不確かさ

上記の(2)式の値と同じ、0.00099 RSD

これらの結果から検量線用標準液 0～5 ng/mL の合成相対不確かさを算出した。結果を表 34 に示す。なお、表中の不確かさはパーセント表記である。この表より、検量線用標準液の相対不確かさは、安全をみて一番大きい値を採用した。

検量線用標準液の相対不確かさ：0.01821　RSD・・・ (5)

(3) 検量線から求めた濃度の不確かさ

検量線用試料溶液の Cr 測定結果を表 35 に示す。この測定結果に基づき、次式より検量線 ($y=a+bx$)と不確かさ (u_x)を求めた。

検量線：　$a = \bar{y} - b\bar{x}$

不確かさ：$b = \dfrac{\sum_i ((x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y}))}{\sum_i (x_i - \bar{x})^2}$

$$u_x = \frac{S_{y/x}}{b}\sqrt{\frac{1}{n} + \frac{1}{m} + \frac{(y_u - \bar{y})^2}{b^2 \cdot \sum (x_i - \bar{x})^2}} \qquad s_{y/x} = \sqrt{\frac{\sum_i (y_i - y_{est})^2}{n-2}}$$

ここで、

a：検量線の切片

b：検量線の傾き

$\bar{x}$：検量線標準液の各濃度の平均値

$\bar{y}$：検量線縦軸測定値の平均値

x_i：検量線標準液の各濃度

y_i：検量線標準液の測定値

u_x：測定濃度の不確かさ

$S_{y/x}$：検量線縦軸測定値の不確かさ

n：測定試料の測定の繰り返し数

m：検量線の濃度数

y_u：測定試料の測定値

y_{est}：y=a+bx に濃度 x を代入して得られた強度 y の推定値

計算の結果、式　$y = 0.00648 + 0.09565\,x$　を得た。

ここで、試料の ICP-MS による測定結果を強度比　(y) 0.05 と仮定し、その濃度 (x) を上式より求めたところ、0.4550 ng/mL と算出され、また、測定試料濃度の不確かさ (u_x) は、0.01394 ng/mL となった。

従って、検量線による測定濃度の相対不確かさは、

$$\frac{0.01394\ (\mathrm{ng/mL})}{0.4550\ (\mathrm{ng/mL})} = 0.03064\ \mathrm{RSD} \quad \cdots \quad (6)$$

(4)　ICP-MS の繰り返し測定の不確かさ

測定濃度に近い試料を用いて 10 回の繰り返し測定を行い，その平均値及び標準偏差を算出した。実験の結果は、平均値：0.5066 ng/mL、標準偏差 0.01901 ng/mL であった。

$$\frac{0.01901\ (\mathrm{ng/mL})}{0.5066\ (\mathrm{ng/mL})} = 0.03752\ \mathrm{mL} \quad \cdots \quad (7)$$

(5)　拡張不確かさ

合成標準相対不確かさ (u) は、上記の測定試料の調製の不確かさ ((1)～(4) 式の値)、検量線用標準溶液の不確かさ ((5) 式の値)、検量線から求めた濃度の不確かさ ((6) 式の値) 及び ICP-MS の繰り返し測定の不確かさ ((7) 式の値)を合成して求めた。

$$u = \sqrt{(1)^2 + (2)^2 + (3)^2 + (4)^2 + (5)^2 + (6)^2 + (7)^2}$$

$$= \sqrt{0.00413^2 + 0.00099^2 + 0.00384^2 + 0.00302^2 + 0.01820^2 + 0.03064^2 + 0.03752^2}$$

$$= 0.05215\ \mathrm{RSD}$$

ここで、分析供試料を 0.05g とすると、分析試料中の Cr 濃度及びその不確かさは、

試料中の Cr 濃度：

$$\frac{0.4550\ \mathrm{ng/mL} \times 50\ \mathrm{mL} \times 10\ (\text{希釈倍率})}{0.05\ \mathrm{g}} = 4.550\ \mu\mathrm{g/g}$$

不確かさ (u)：

$$4.550\ \mu\mathrm{g/g} \times 0.05215\ \mathrm{RSD} = 0.2373\ \mu\mathrm{g/g}$$

拡張不確かさは、包含係数 k=2 として、

$$U = k \times u = 2 \times 0.2373\ \mu\mathrm{g/g} = 0.4746\ \mu\mathrm{g/g}$$

従って、分析結果は、

$4.6 \pm 0.5\ \mu\mathrm{g/g}$　　(k=2)

相対の拡張不確かさ (%)は、

$$\frac{0.5\ (\mu\mathrm{g/g})}{4.6\ (\mu\mathrm{g/g})} = 0.109 \quad \mathrm{RSD} = 11\ (\%)$$

3.1.4　不純物の組成分析値の信頼性評価

作成した分析法の妥当性を確認するため、標準添加回収試験及び実試料への適用試験を実施した。

(1) 標準添加回収試験

実試料に既知量の元素を添加した試料を分析し、それらの回収率を求めた。試験は、当初検討対象とした 64 元素 (3.1.3 項参照) のうちメモリー効果等のため定量結果に再現性が見られない Hg を除く、63 元素について行った。

また、分析工程における実験器具内壁への元素の吸着損失等による分析結果への影響をみるため、従来使用している樹脂製の実験器具（ビーカーとメスフラスコ)をガラス製に変更した場合の分析も実施した。

(A) 分析試料

実試料を硝酸で溶解した溶液に元素標準液を添加して分析試料とした。

① 試料：人形峠環境技術センターから入手した試料

人形峠ウラン NU(バッチ番号 : SYPYJ231、化学形態:ADU、U 含有率 (wt%) : 66.490、U-235 (%) : 0.711)

②元素標準液：下記の元素標準液を硝酸で希釈し、混合標準液を作製した。

・米国 SPEX 社混合標準液；

XSTC-1 (Sc, Y, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu) (5% HNO_3 溶液)

XSTC-7 (Au, Ir, Pd, Pt, Rh, Ru, Sn, Te, Hf, Sb) (10% HCl/1% HNO_3 溶液)

XSTC-8 (B, C, Ge, Mo, Nb, P, S, Si, Ta, Ti, W, Zr, Re) (H_2O/trHF 溶液)

XSTC-13 (Ag, Al, As, Ba, Be, Bi, Ca, Cd, Co, Cr, Cs, Cu, Fe, Ga, In, K, Li, Mg, Mn, Na, Ni, Pb, Rb, Se, Sr, Th, Tl, V, Zn, U, Hg) (5% HNO_3 溶液)

・米国 SPEX 社製 Sc、Ca、Fe、Se 各標準液 (2% HNO_3 溶液)

・独国メルク社製 Os 標準液 (7% HCl 溶液)

(B) 分析操作

① 試料溶解液 3 mL(実試料約 10mg 相当)と混合元素標準液 1 mL(Ca、Fe、Se は 5000～20000ng、その他の元素は各 200ng 含有)をビーカーに取り乾固した。

② 乾固物に 7M HNO_3 を 0.5 mL 加えて溶解した後、再び乾固した。この操作をさらに 2 回行った。

③ 乾固物に 3M HNO_3 を 3 mL 加え、ホットプレート上で短時間加熱・溶解し、カラムにとおした。流出液は 50 mL メスフラスコに受けた。

④ ビーカーを 0.5 mL の 3M HNO_3 で 3 回洗浄し、洗液をカラムにとおした。流出液を同メスフラスコに受けた。

⑤ 試料溶液が流れ終わった後、リザーバーを 0.2 mL の 3M HNO_3 で 2 回洗浄した。流出液を同メスフラスコに受けた。

⑥ 3M HNO_3 を 6 mL 流し、同メスフラスコに受けた。

⑦ さらに 5M HCl を 9 mL 流し、ビーカーに受けた。

⑧ ⑦の溶液を乾固した後、0.7M HNO_3 約 1 mL を加え再び乾固した。

⑨ 乾固物に 3 mL の 0.7M HNO_3 を加え、ホットプレート上で短時間加熱・溶解した。溶解液を⑥のメスフラスコに移した。

⑩ ビーカーを 0.5 mL の 0.7M HNO_3 で洗浄し、洗液を同メスフラスコに移した。この操作をさらに 2 回行った。

⑪ メスフラスコを水でメスアップし、ここから 5 mL を 50 mL メスフラスコに分取して内標準を添加後、0.7M HNO_3 でメスアップして ICP-MS で測定した。

(C) 結果と考察

分析結果を表 36 に示す。B 及び Os の回収率が低いのは、乾固操作時の揮散によるものと考えられる。なお、ガラス製器具を用いた場合の B の回収率はガラス器具(ホウケイ酸ガラス)から B が溶出して定量範囲を大幅に超えたため求めなかった。その他の回収率 80%以下の元素は、器具内壁への吸着、加水分解などの化学変化によるコロイドの生成等により損失したと推測される。

本法における定量可能元素を、回収率 80～120%、且つ器具からの溶出あるいは分析環境からの汚染の影響が見られない元素とすると、樹脂製器具を利用した場合は 53 元素(表 37 参照)、ガラス製器具の場合は 46 元素である。なお、Pd 及び Pt は樹脂製器具では回収率が 80%以下なので定量不可とされるが、ガラス製器具の場合の回収率は 80%を上回るので、これら元素を定量する場合にはガラス製器具で分析を行うこととする。

(2) 実試料への適用試験

人形峠環境技術センターから入手した化学形態の異なる実試料への適用試験を実施した。本適用試験では、1 試料につき 2 分析試料を用意し、同時に分析した。

(A) 分析試料と分析供試料

人形峠環境技術センターから入手した 7 種の試料 (ADU、イエローケーキ、U_3O_8、UO_2、UF_4)について分析した。

(B) 分析操作

(b-1) 試料をポリプロピレン (PP) 製ミクロスパーテルで 9 mL 蓋付きテフロン製瓶に分取し、電子天秤で精秤した。

(b-2) 試料に 7M HNO_3 を 3 mL 加え、ホットプレート上で加熱後、一晩放置した。

(b-3) 試料溶解液を 20 mL テフロン製ビーカーに移し、さらに少量の 7M HNO_3 でテフロン製瓶を洗浄し、溶解液に合わせた。

(b-4) ホットプレート上で、溶解液を蒸発乾固した。

(b-5) 乾固物に 3 mL の 3M HNO_3 を加えて短時間加熱後、10 mL ポリメチルペンテン (PMP) 製メスフラスコ (クラス A) に移し、3M HNO_3 でメスアップした[注8)]。

(b-6) さらに、この溶液から分析供試料中の U が 7.5 mg を超さない量 (1.7～3.7 mL)を定量ピペットでリザーバーに移した。次いで分析供試料と合わせた量が 4.5 mL となるように 3M HNO_3 [注9)]をリザーバーの溶液に加え (2.8～0.8 mL)、UTEVA 樹脂カラムに通した。

(b-7) 試料溶液がながれ終わった後、リザーバーを 0.2 mL の 3M HNO_3 で洗浄した。この操作を再度行った。

(b-8) 6 mL の 3M HNO_3 を流し、50 mL の PMP 製メスフラスコに受けた【フラクション 1】。

(b-9) 続いて、5M HCl を 9 mL を流し、20 mL テフロン製ビーカーに受けた【フラクション 2】。以下、操作(b-11)に続く。

注8) 分析マニュアルでは、分析試料溶液 3 mL を短時間加熱後カラムにとおす。本実験では試料に含有する U 量を考慮し、希釈した。

注9) 分析マニュアルでは、分析試料溶液 3 mL、ビーカー洗浄液として 1.5 mL の 3M HNO_3 (0.5 mL で 3 回洗浄)としている。本実験ではビーカーを用いなかったので、分析試料溶液と 3M HNO_3 洗浄液を合わせた量が 4.5 mL となるように 3M HNO_3 を添加した。

(b-10) さらに、6 mL の 0.02M HNO_3 を流し、20 mL テフロン製ビーカーに受けた【フラクション 3】。以下、操作(b-12)に続く。

(b-11) 【フラクション 2】の処理

①溶液をホットプレート上で乾固した。

②乾固物に 1 mL の 0.7M HNO_3 を加えて溶解した後、再び乾固した。

③乾固物に 3 mL の 0.7M HNO_3 を加え、ホットプレート上で短時間加熱し溶解した。

④溶解液を操作(b-8)【フラクション 1】のメスフラスコに移した。

⑤テフロン製ビーカーを 0.5 mL の 0.7M HNO_3 で洗浄し、メスフラスコに移した。この操作をさらに 2 回行った。

⑥メスフラスコを水でメスアップし、そこから 1 mL を分取して 10 mL の PMP 製メスフラスコに移し、内標準を添加した後、0.7M HNO_3 でメスアップし、ICP-MS で測定した。

(b-12)【フラクション 3】の処理

①溶液をホットプレート上で乾固した。

②乾固後、少量の 1M HNO_3 で溶解し 50 mL の PMP 製メスフラスコに移した。

③少量の 1M HNO_3 でビーカーを洗浄した。この操作をさらに 2 回行った後、1M HNO_3 でメスアップした。

④定量ピペットでその溶液の 1 μL を Re フィラメントに塗布し、TIMS で測定した。

(C) 結果と考察

分析の結果、検出された元素の一覧を、分析試料と分析供試料の情報とともに表 38 に示す。なお、人形峠 NU ウラン(バッチ番号 : SYPYJ231、ADU) 試料については分析法の妥当性を確認するため繰り返し分析を実施した。不純物分析結果の一部を図 30 に図示する。

本分析結果を以下のように評価した。

(c-1)人形峠ウラン NU (バッチ No. SYPYJ231、ADU)

1 回目の 2 試料(分析番号 1-1、1-2)の分析結果は、Ni に約 25%の差が見られたが、他の元素については検出下限を考慮すると全て一致した。繰り返し分析 (同 1-3、1-4)の分析結果は、検出下限等を考慮すると全ての元素について一致した。 1 回目の分析結果と繰り返し分析の結果は良く一致しており、本法における繰り返し精度は満足できることを確認した。

(c-2)海水抽出ウラン NU (バッチ No. SYOYCJ04 、ADU)

2 試料 (分析番号 2-1、2-2)の分析結果は、Cr に約 30%の差が見られたが、他の元素については一致した。なお、表中の元素以外に海水起源と思われる Na が高濃度で検出された。

(c-3)外国産ウラン NU (バッチ No. SYPYT001 、YC)

2 試料 (分析番号 3-1、3-2) の分析結果は一致した。

(c-4)人形峠ウラン DU (バッチ No. PDU59J1K、U_3O_8)

分析番号 4-1 の分析結果は分析番号 4-2 のそれらに比べて全ての元素が少し高めであったが、W を除きほぼ一致した。W については約 2 倍の違いがあり、試料中に不均一に存在していた可能性が高い。

(c-5)人形峠ウラン DU (バッチ No. S-22-2K、UO_2)

2 試料(分析番号 5-1、5-2)の分析結果は、いずれの元素も検出されなかった。

(c-6)人形峠ウラン EU (バッチ No. PC40352K、UO_3)

2 試料 (分析番号 6-1、6-2)の分析結果は、いずれの元素も検出されなかった。

(c-7)人形峠ウラン EU (バッチ No. CTFEU6K、UF_4)

試料(分析番号 7-1、7-2)を硝酸で溶解したところ、容器底部に少量の黒色不溶解物が残存

した。不溶解物の量は 2 試料間で差が見られ、試料中に不均一に存在していたと推測される。そのまま分析を続けたところ、分析結果に数十%の差が見られた。なお、不溶解物は塩酸にも溶解しなかった。今後、試料溶解法及び試料採取法について検討する必要がある。

3.2 核燃料物質の年代測定

3.2.1 原理

核燃料に用いられるウランは、原料となるウラン鉱物などを分離精製することで得られる。分離精製過程では、トリウムを含む他の元素は不純物として除かれるため、分離精製が完全に行われた場合、精製を経たウラン溶液中にトリウムは含まれないと仮定できる。したがって、精製後に ^{234}U の壊変で新たに生じる ^{230}Th の量は、精製からの経過時間と ^{234}U の壊変率に応じて増加していく。精製後の閉鎖性が保たれた場合、精製後の経過時間(t)と精製後に生じた ^{230}Th の量と試料に含まれる ^{234}U の量の比(R)は、次の関係式で表すことができる。ここで、λ_{234U} と λ_{230Th} は、^{234}U 及び ^{230}Th の壊変率を表す。

$$t = \frac{1}{\lambda_{234U}-\lambda_{230Th}} * ln\left[1+\frac{R(\lambda_{234U}-\lambda_{230Th})}{\lambda_{234U}}\right] \qquad \cdots (8)$$

上記の通り、①精製後の閉鎖性が保たれていること、②精製時にトリウムが残存していない、という仮定が成立する場合、試料中の ^{230}Th/^{234}U 比から精製後の経過時間を Model Age として求めることができる。ウラン試料中の ^{230}Th/^{234}U 比と精製後の経過時間(Model age)の関係を図 31 に示す。

3.2.2 分析法開発の目的と課題

(1) 目的

核鑑識における年代測定データは、法廷での証拠となりうる正確さと精度が要求される。DOE と原子力機構の間の共同研究「ウラン精製年代測定法の開発に関する協力」では、分析手法に関する調査と情報交換及び同一試料を対象にした研究所間の分析結果の比較(共同試料分析)を行い、^{230}Th/^{234}U 比を正確かつ高精度に測定するための分析能力の改善を目的として計画された。原子力機構では、この共同研究のタスクを実施するために、天然ウラン溶液を用いて検討実験を行い、ウラン精製年代測定法のための分析法の確立に取り組んだ。

(2) 課題

分析対象物のウラン試料は、精製後の経過時間が数十年であり、長半減期の ^{234}U(2.46×10^5 年)から生成される ^{230}Th の含有量は極めて少ない。したがって、トリウムの分離精製法は高回収率であることが望ましい。また、ウラン試料中の ^{230}Th/^{238}U 比は 10^{-9} ～10^{-10} であるため、高精度に ^{230}Th を測定するためには、予め測定試料中のウランを十分に除く必要がある。さらに、将来的に核鑑識データベース作成のためには、多数の試料を効率よく分析できる方法を確立しておく必要がある。以上より、開発課題として「高回収率・高分離能であり、可能な限り処理効率の高い分析法の確立」が抽出された。

3.2.3 分離精製及び測定法確立のための検討実験

3.2.3.1 ウラン溶液中のトリウムの分離精製法の検討

本研究の質量分析測定を行う原子力機構の高度環境分析研究棟は、ウランの年間受け入れ許可量が 10^{-6} g のオーダーと低いため、測定試料中(トリウムフラクション)へのウランの

混入率を極力抑えることが望ましい。そこで、既知濃度の天然ウラン溶液をイオン交換法で分離精製して得られたトリウムフラクションに、人工放射性核種の ^{233}U を添加し、その溶液について $^{238}U/^{233}U$ 比を TIMS で測定して、ウランの混入率((9)式)を見積もった。

$$\text{ウラン混入率} = \frac{\text{トリウムフラクション中の } ^{238}\text{U (g)}}{\text{分離前試料溶液中の } ^{238}\text{U (g)}} \quad \cdots\cdots \quad (9)$$

(1) 装置、試薬、器具

① 装置

TIMS：サーモフィッシャーサイエンティフィック社製 TRITON

② 試薬

テフロン製器具の洗浄には、アルカリ性界面活性剤エキストラ MA02(メルク製)、有害金属測定用硝酸(和光純薬製)を用いた。イオン交換樹脂の洗浄には、高純度塩酸 Tamapure AA-100(多摩化学工業製)、高純度水酸化ナトリウム溶液 Ultrapure(関東化学)を用いた。試料の分離精製には、高純度塩酸 Tamapure AA-100(多摩化学工業製)、高純度硝酸 Tamapure AA-100(多摩化学工業製)を用いた。すべての操作について、超純水製造装置(ミリポア製)で精製した超純水(Milli-Q water: MQW)を使用した。

③ 器具

分離カラム：

石英製のカラムに石英製ウールを詰めた後、第１カラムには陰イオン交換樹脂 CA08P(三菱化学製)を 0.5 mL、第２カラムには陰イオン交換樹脂 CA08Y(三菱化学製)を 0.05 mL 充填した。イオン交換樹脂からのトリウムのコンタミネーションを最小に抑えるために、イオン交換樹脂は使用前に、0.1M HCl、MQW、0.1M 水酸化ナトリウム、MQW を通過させて洗浄した。また、使用する樹脂の量も極力抑えた。カラムの流速はそれぞれ、0.1 mL/min (第１カラム)、0.005 mL/min(第２カラム)であった。

その他の器具：

溶離液の捕集にはテフロン製ビーカー(サビレックス製)を使用した。試薬の保存容器にはテフロン製瓶(ナルゲン製)を用いた。ICP-MS 測定フラクションは、1.5 mL 容量のサンプルチューブ(アズワン製)に保管した。器具は使用前に、アルカリ性界面活性剤で洗浄した後、2M HNO_3 溶液に浸漬して洗浄した。

(2) 分離操作

(I) 8M 硝酸カラム−8M 硝酸カラム

第１カラム(CA08P:0.5 mL)：8M 硝酸カラム

①カラムに 9M HCl を 1 mL、MQW を 2 mL、8M HNO_3 を 2 mL を流してコンディショニングした。

②8M HNO_3 溶液に調整した試料(JAERI-U4：10 μg-U)0.5 mL を流して、樹脂にトリウムを吸着させた。

③2 mL の 8M HNO_3 を流して、カラムに残存する試料溶液を洗浄した。

④9M HCl を 2 mL を流して、トリウムを溶離させた。溶離液はテフロンビーカーに受けて回収した。

⑤試料をホットプレート(80℃)でドライアップした。

⑥第２カラムによる分離のために、試料を 8M HNO_3 溶液(0.1 mL)に調整した。

第２カラム（CA08P:0.05 mL）：8M 硝酸カラム

第一カラムと同様の手順で、使用する試薬の量を 1/5 に変更してトリウムを分離精製した。精製したトリウムフラクションに ^{233}U を 10 pg 添加した後、ドライアップをして、TIMS 測定試料とした。

(II) 9M 塩酸カラム−8M 硝酸カラム

第１カラム（CA08P:0.5 mL）：9M 塩酸カラム

①カラムに塩酸を 2 mL 流してコンディショニングした。

②9M HCl 溶液に調整した試料（JAERI-U4：10 μg-U）0.5 mL を流し、カラムを通過するトリウムをテフロンビーカーに受けて回収した。

③9M HCl を 2 mL を流し、カラムに残存する試料溶液を洗浄した。

④テフロンビーカーに回収した試料をホットプレート（80℃）でドライアップした。

⑤第２カラムによる分離のために、試料を 8M HNO_3 溶液（0.1 mL）に調整した。

第２カラム（CA08P:0.05 mL）：8 M 硝酸カラム

上記（I）の第２カラムと同様の手順でトリウムを分離精製した。精製したトリウムフラクションに ^{233}U を 10 pg 添加した後、ドライアップをして、TIMS 測定試料とした。

(3) 試料の塗布

ウラン同位体比の測定にはダブルフィラメントを用いた。2%溶液に調整した測定試料（1 μL）を塗布した。

(4) 測定

測定は、TIMS の二次電子増倍管を使用して、^{238}U/^{233}U 比を測定した。

3.2.3.2 表面電離型質量分析計（TIMS）によるトリウム同位体比測定についての検討実験

(1) 装置、試薬、器具

①装置

TIMS：サーモフィッシャーサイエンティフィック社製 TRITON

②試薬

試料の調整には超高純度塩酸及び超高純度硝酸 Tamapure AA-100（多摩化学工業製）を使用した。TIMS 測定のアクチベーターとしてコロイダルグラファイト（PELCO 製）を MQW で希釈して用いた。

(2) 試料の塗布

トリウム同位体比の測定にはシングルフィラメントを用いた。フィラメントにアクチベーターとして、コロイドダルグラファイト溶液を 1 μL 塗布した後、2% HNO_3 溶液に調整した測定試料（1 μL）を塗布した。試料は、9 M 塩酸カラム－8M 硝酸カラムを用いて、天然ウラン溶液（JAERI-U4）＋^{229}Th スパイク混合溶液を分離したトリウムフラクションを用いた。1 試料あたり、3 pg の ^{230}Th と ^{229}Th を含む。

(3) 測定

TIMS の二次電子増倍管（SEM）に RPQ(Retarding Potential Quadrupole Lens)を機能させて、^{230}Th/^{229}Th 比を測定した。測定メソッドの検討では、RPQ を適用しなかった場合と適用した

場合について、ウラン標準物質 U-500（^{238}U = 60,000 cps）測定時のピークを質量 233～239 の範囲でスキャンした結果を比較した。検討の結果、RPQ を適用した場合の方がノイズは少ないことを確認した（図 32）。

RPQ はマス・フィルターであり、一般的には、質量数が近く且つ存在比が大きい元素からのテーリングの影響を抑える目的で使用される。U-500 を用いた検討実験の結果から、RPQ の適用により、測定対象外の同位体からの影響（ノイズ）を低減できると判断した。

3.2.4 検討実験の結果と考察

①ウラン溶液中のトリウムの分離精製法の検討

陰イオン交換法でトリウムを分離精製する場合、9M 塩酸カラムまたは 8M 硝酸カラムが一般的に用いられてきた。ウランの混入率を極力抑える方法として、(I) 8M 硝酸カラムで 2 回分離した場合と、(II) 9M 塩酸カラム及び 8M 硝酸カラムで 1 回ずつ分離した場合を比較した。

その結果、(I)のウランの混入率は 10^{-5} であったのに対して、(II) の混入率は 10^{-8} と低く抑えられることを確認した。8M 硝酸カラムには、ウランとトリウムの両方が吸着するのに対して、9M 塩酸カラムでは、ウランのみが吸着される。(II) の方法では、第一カラムの 9M 塩酸カラムによって、ウランが効率的に除去されたために、トリウムフラクションへのウランの混入率が 10^{-8} と低く抑えられたと考えられる。本研究では、(II) の方法をトリウムの精製に適用する（図 33）。

②TIMS によるトリウム同位体比測定

トリウム同位体の質量分析測定については、高精度かつ迅速な高分解能 ICP-MS による方法が主流である。しかし、メモリー効果の問題から、高度環境分析研究棟で微量元素分析に用いられている ICP-MS に高濃度の試料を導入することはできない。一方で、TIMS による測定は時間を要するが、メモリー効果がなく、比較的に高濃度の試料を測定することができる。そこで、TIMS によるトリウム同位体比測定について検討実験を行った。

TIMS 測定におけるイオン化効率が 0.1%程度と低いトリウムを高精度に測定するために、アクチベーターとしてグラファイトをフィラメントに塗布する方法を検討した。その結果、3 pg のトリウムを測定した場合、グラファイトを塗布しなかった試料では、測定カウントが得られなかったが、塗布した試料では、1%程度の精度で同位体比測定が可能な測定カウント（^{230}Th: 500 cps、^{229}Th: 500 cps）を得ることができた。この結果から、精製後 30 年経過した天然ウラン溶液中の ^{230}Th を 1% 以下の精度で測定する場合、およそ 0.5 mg のウランが必要であることが推定された。

3.2.5 分析法の高度化

① テフロンカラムの作成

微量分析実験に用いる場合、耐薬品性・耐熱性・元素の溶出及び吸着の回避などの観点から、テフロンは優れた材質である。微量分析に適したテフロンカラムの既製品は無く、多くの研究室では、熱処理によるカラム成形を行っている。しかし、成形のばらつきが大きく流速も安定しない問題点があった。

これに対して、テフロンチューブとコネクターを用いて構成することで、個体差の少ないカラムを作成した(図 34)。コネクターは、強度の面で優れている PTFE テフロン製であるが、この材質は PFA テフロンに比べて、元素が吸着しやすい表面構造を持つ。このため、コネ

クター内にテフロンチューブ(PFA テフロン製)を貫通させることで、試料とコネクターの接触を抑えた。

作成したテフロンカラムは、耐薬品性の高さを活かして、混酸を用いた厳密な洗浄方法の適用が可能である。また、試料通液の流速は、試料が溶出する先端カラム部分の長さを変えることで調節できた。市販のカラムは、最小でも 2 mL 程度の容量であるが、自作のカラムの容量は 0.10 mL まで減少させることができ、後述の操作ブランクの低減化に貢献した。また、流速は市販品の 1/10 程度であり、高い分離能が得られた。

② 操作ブランクの低減化

測定対象物質が微量の場合、操作ブランクを極力低く抑える必要がある。検討実験の結果、高純度試薬の使用及び微量金属測定用の器具洗浄を適用した場合、トリウムに関する最大のブランク源は陰イオン交換樹脂であることが分かった。塩酸溶液系において、トリウムはイオン交換樹脂に吸着されないことが知られている。しかし、実際には 100 pg 程度の ^{232}Th が定常的にブランク試料中に検出された。この原因としては、塩酸溶液系においてトリウムはイオン交換樹脂の官能基に吸着されないが、スチレン骨格や官能基の立体構造に物理的に捉えられているトリウムが存在し、微量分析においては、それらのトリウムが影響する可能性が考えられた。

この問題を解決するために、イオン交換樹脂の洗浄方法を改良した。通常行われる希薄塩酸による洗浄に加えて、高純度の希薄水酸化ナトリウム(ultrapure、関東化学)による洗浄を適用することで、樹脂の収縮と膨潤を繰り返させて、立体構造に捉えられたトリウムの除去を試みた。水酸化ナトリウムは精製が困難な試薬であり、微量分析ではその使用が避けられる場合が多い。今回は高純度の試薬を入手し、使用する濃度を検討した結果、水酸化ナトリウムからのコンンタミネーションを抑えた上で、樹脂の洗浄を行うことができた。

③高分解能 ICP-MS によるトリウム同位体の測定

トリウム同位体の測定には、高精度かつ迅速な高分解能 ICP-MS による方法が主流である。一般的に、分析対象元素濃度が高いほど高精度な測定が容易となるが、トリウムは吸着性が高く、ICP-MS の分析ライン内に残存しやすい性質 (メモリー効果) があるため、分析精度を維持しながら、分析試料中のトリウム濃度を抑えた設定が、定常的な分析のためには有効である。高分解能 ICP-MS(ELEMENT, Thermo Fisher Scientific) の測定メソッドを検討した結果、各同位体当たりの測定時間を 5 ms に設定し、400 サイクルの測定を 5 回繰り返した場合、10 pg/mL のトリウムを 1%以下の精度で測定できることを確認した。1 試料あたりの測定時間は 5 分間であった。精製後 30 年経過した天然ウラン溶液中の ^{230}Th を、高分解能 ICP-MS で 1% 以下の精度で測定するために必要なウラン量は、約 1.5 mg と計算された。

3.2.6 共同試料分析

測定対象物としては、ウラン同位体標準物質の CRM U-050(National Brunswick Laboratory) が選定された。この試料については、精製時期が公表されておらず、共同試料分析はブラインドテストとして実施された。

原子力機構による U-050 の精製推定時期は、1957 年 7 月 31 日 ±7.3 月と算出された。共同分析結果を表 39 及び図 35 に示す。この結果は、DOE 側の研究グループ(ロスアラモス国立研究所(LANL)・ローレンスリバモア国立研究所(LLNL))の結果とも誤差の範囲で一致した。推定結果の誤差については、LLNL が提出した結果が最も小さかった。これは、LLNL の試

料の分析数 (n = 8) が、他のグループの試料の分析(LANL (n = 4)、原子力機構 (n = 3)) よりも多かったことによる。３グループ間の推定結果は誤差の範囲で一致したが、LLNL から提供された文献資料に基づいた U-050 の精製時期は、1958 年 6 月から 11 月とされており、今回の推定結果は１年以上古い年代の推定結果となった。この原因としては、当初のウランの精製が不完全であり、精製後のウラン中にトリウムが残存していたためと考えられた。

3.2.7 分析法及び結果の評価

分析法については、各研究グループともに陰イオン交換分離法を適用したが、原子力機構は高い分離能が得られる自作のカラムを使用したため、他グループよりも分離ステップを一段少なくできた。また、分析時間も他グループの半分程度に抑えることができた。これらのことは、データベース作成時など、多数の試料を分析する際に、分析作業の効率化に貢献する。

測定法については、DOE は、ウラン・トリウム共に高分解能 ICP-MS によって測定を行った。一方で、原子力機構はウランについては、高濃度で存在する ^{238}U による ICP-MS へのメモリーを避けるために、TIMS によって測定を行った。精製後の経過時間が数十年のウラン試料中の $^{230}Th/^{238}U$ 比は 10^{-9}～10^{-10} であるため、定常的に分析を行っていく場合、分析装置の使い分けが必要と判断した。

共同試料分析結果については、精製時期の推定結果が誤差の範囲で一致したことから、各研究グループの分析能力は、今後、比較評価を行っていくために十分であるとの認識に至った。最も高精度な推定結果を提出した LLNL は、n = 8 の測定結果に基づいて推定を行った。これに対して、LANL と原子力機構は n = 3 の測定結果を用いており、精度を上げるためには、より多数の試料を測定する必要があると考えられた。

3.2.8 今後の課題と展望

DOE-原子力機構間の共同研究として、ウランの年代測定に関する技術の確立と、各研究グループ間の技術の評価を行った。共同試料分析として、U-050 についてウラン・トリウム同位体の分析と、それに基づく年代測定を行った結果、各研究グループの結果は誤差の範囲で一致した。しかし、文献資料に基づく精製時期とは一致せず、その原因として、精製当初におけるトリウムの残存が考えられた。ウラン - トリウム年代測定法の適用条件としては、①精製後の閉鎖性が保たれていること②精製時にトリウムが残存していないこと、が挙げられるが、今回の試料は②の条件をクリアできていないことになる。現在のところ、残存トリウムの量を推定する手法は確立していないが、残存した ^{230}Th から壊変する ^{226}Ra のペアを用いた精製年代測定法が検討されている。今後は、残存トリウム量の推定法について検討すると共に、その他の壊変系列のペア(^{235}U-^{231}Pa, ^{230}Th-^{226}Ra)についても、年代測定法を確立し、^{234}U-^{230}Th 年代測定法の結果と合わせて、推定結果のクロスチェックを行う予定である。

3.3 粒子形状分析

3.3.1 粒子形状分析技術の概要

核物質粒子の形状は、当該物質が製造された施設やプロセスによって異なることから、粒子形状の情報は押収物質の属性評価に資するデータとして非常に有効であると考えられる。実際の核鑑識活動においても、押収物質の同位体、不純物分析と年代測定に並び、粒子形状分析の有効性が確認されている [9]。

原子力機構では保障措置環境分析の一環で核物質粒子形状等の観察を行っているが、核鑑識ではより細密に粒子形状を分析するとともに、多様な核物質粒子サンプルの分析を行い、施設や製造プロセス特有の特徴（シグネチャ）の特定を行う必要がある。このため透過型電子顕微鏡（TEM）を整備して、粒子形状分析技術の開発を実施した。平成 23 年度から平成 25 年度における粒子形状分析技術開発は、以下の項目についての開発を実施した。

① TEM の整備
② TEM を用いた粒子形状分析法の検討
③ TEM を用いた人形峠ウランサンプルの分析

3.3.2 透過型電子顕微鏡の整備

(1) 目的

本装置は、不正取引等された核物質の起源の特定に資する核鑑識技術開発に関する研究開発の一環として、各種試験試料中の核燃料物質等の粒子分析を行うために必要な装置である。本装置を導入により、核燃料粒子の微細構造、結合状態などの情報を得ることが可能となり、核物質の起源の特定に係る成果が期待できる。

(2) 装置概要

高電圧で加速した電子線を試料に照射し、試料を透過、または散乱した電子を CCD (Charge Coupled Device) 検出器で検出し、透過電子像、散乱電子像などを取得する。また、電子回折像による結晶構造の分析や、透過電子のエネルギーを分光法により解析することで試料の構成元素や化学結合状態などを分析することが可能である。

(3) 設置場所

原子力科学研究所　第 4 研究棟 3 階　308 号室

(4) 据付設置・装置動作確認試験期間

平成 24 年 12 月 1 日～平成 25 年 2 月 28 日

(5) 装置仕様

① 装置名称

透過型電子顕微鏡（Transmission Electron Microscopy: TEM）

② メーカー、型番

日本電子株式会社　JEM-2100F

③ 装置構成

- 電界放出型電子顕微鏡（図 36）
- アクティブ除振装置
- 防磁装置
- 冷却水循環装置
- イオンクリーナー
- 試料ホルダ予備排気装置

④ 電子顕微鏡仕様・性能

- 観察可能像
  高分解能格子像観察，走査透過像観察，電子回折像観察，反射電子像観察

- 像観察の空間分解能
  TEM 粒子像分解能： ≦ 0.23 nm
  TEM 格子像分解能： ≦ 0.10 nm
- 電子銃
  加速電圧：80, 100, 120, 160, 200 kV で設定可能
- 結像系
  倍率：高倍率で×2 k～1,500 k 以上、低倍率で×50～6,000 倍以上。
- 電子線エネルギー損失スペクトル分光器(EELS)系
  分解能：≦ 0.4eV
  分析モード：STEM（走査透過電子顕微鏡）像に対応した EELS マッピング、EELS スペクトラムイメージング

(6) 性能試験

メーカーによる性能試験の結果、(5)項における仕様・性能をすべて満足することを確認した。像観察の空間分解能の試験結果を図 37 及び図 38 に示す。

3.3.3 透過型電子顕微鏡を用いた粒子形状分析法の検討

平成 23 年度から平成 25 年度における TEM を用いた粒子形状分析法の検討では、当初人形峠ウランサンプルに基づく検討を行う予定となっており、それに伴い TEM の設置室及び電子顕微鏡における核燃料使用許可の変更申請を試みたが、原子力規制庁の規制基準の改訂などにより、当該期間内での変更申請が不可能となったため、本件ではウランサンプルの模擬コールド試料による分析法の検討を行い、人形峠ウランサンプルを用いた粒子形状分析法の検討については核燃料の使用が可能な走査型電子顕微鏡（SEM）を使用することとした（3.3.4 項）。本件における検討項目は以下となっている。

(1) 試料作成法の検討
(2) TEM による粒子形状観察の実施
(3) 粒子形状分析パラメータの検討

(1) 試料作成法の検討

ウランサンプルの模擬コールド試料として、酸化セリウム CeO_2 粒子（マイクロサイズ及びナノサイズ粒子）、酸化タングステン WO_3 粒子、酸化アルミニウム Al_2O_3 粒子（マイクロサイズ及びナノサイズ粒子）を使用した。酸化セリウムは二酸化ウランと同じ結晶構造を持っており、一般に二酸化ウランの模擬コールド試料として用いられるものである。また、酸化タングステンは三酸化ウランの模擬試料となる。

粒子状試料の TEM 像観察の場合、グリッド状メッシュに試料粉末を載せる。本件においてはナノサイズ粒子を取り扱うことから、カーボン支持膜付マイクログリッドを使用し、粉末試料の載せ方として最も簡便なふりかけ法と懸濁法で試料を作成し[12]、TEM 像を観察した。ふりかけ法においては、ミクロスパーテルで取り分けた極少量の粉末試料をマイクログリッドに直接ふりかけ、毛羽立たせた脱脂綿または綿棒で余分な試料を掃き取ることで試料とする。また懸濁法においては、ミクロスパーテルで粉末試料を 10ml バイアル瓶に取り分け、純水で試料を分散し、ろ紙上でマイクログリッドに分散溶液を滴下・乾燥させて試料とする。なお、分散溶液の濃度は瓶ごしに天井の蛍光灯がぼんやり見える程度の濃度を目安とする[12]。

模擬コールド試料の TEM 像観察の結果の詳細については次項で述べる。試料作成におけるふりかけ法と懸濁法について、いずれの方法で試料を作成した場合も全ての模擬コールド試料について粒子形状を判別することが可能であることを確認した。ふりかけ法は比較的簡便に試料を作成出来るが、ナノサイズ粒子の試料について静電力により実際の粒子よりも大きい凝集粒子が多く発生してしまい（図 39）、粒子サイズ等について誤った判定を導く恐れがあることが分かった。一方、懸濁法においては分散溶媒を用いることでふりかけ法で凝集が発生していたナノサイズ粒子についても凝集粒子が発生せず、正確な粒子分析を行うことが可能である。しかし、本件で検討を行った模擬コールド試料のうち、酸化セリウム CeO_2 のナノサイズ粒子試料について、蒸留水による分散溶液を滴下・乾固した粒子像周辺に試料溶解跡と見られる像が確認され、粒子形状分析の結果に影響が出る可能性があることが分かった（図 40）。この溶解跡については、酸化セリウム CeO_2 は水に溶解しないため、試料に含まれる不純物が原因として考えられる。そのため、ふりかけ法あるいは水以外の分散溶媒を用いた懸濁法で試料を作成する必要があると考えられる。また、懸濁法は分散溶液の乾固操作が必要となるため、ふりかけ法と比較して試料観察までに時間を要する。

(2) 透過型電子顕微鏡による粒子形状観察の実施

本件におけるウランサンプルの模擬コールド試料の TEM 像による粒子形状観察の結果を図 39～図 46 に示す。いずれの像においても、TEM 像観察前準備操作である照射系軸調整、倍率調整、絞り調整、非点補正等を適切に行うことで、粒子形状を明確に判別できる像を得られることを確認した。ただし、マイクロサイズ粒子（粒径＞100nm）の試料については、粒子サイズが大きく電子線が試料粒子を十分に透過できないことから、粒子外周形状以外の微細構造分析が行うことが出来ない。そのため、集束イオンビーム（FIB）等を使用した粒子の薄膜化加工が必要となる [10]。一方、ナノサイズ粒子（粒径＜数十 nm）については粒子の内部構造等の分析も可能である。

(3) 粒子形状分析パラメータの検討

核物質の粒子形状を分析する際に、顕微鏡画像を元に粒子形状を特徴付ける定量的な形状パラメータを算出し、形状パラメータを比較することで粒子形状を分析する。TEM や SEM 像はグレースケールとなるため、一般的な粒子形状パラメータは下記となる [11]。

- 面積
- 周囲長
- 粒子径（最大/最小/平均）
- 縦横比
- 粒子傾き
- 直円度
- 円形度
- その他の形状ファクター

これらの形状パラメータを顕微鏡画像で観察できる粒子すべてについて適用し、各粒子のパラメータ分布や多変量解析手法等を用いて試料毎の粒子形状の差異を分析する [13]。上記パラメータのうち、面積、円形度、アスペクト比による画像比較ついては、核鑑識ライブラリにおける簡易画像マッチングソフトウェアの開発で検討を行っている（付録 5.5 参照）。また、その他の形状パラメータも含めた核鑑識を目的とした粒子画像分析ツールの開発を

平成 26 年度以降に進める予定である。

3.3.4 走査型電子顕微鏡を用いた人形峠ウランサンプルの分析

本技術開発事業機関内での TEM の設置室及び電子顕微鏡における核燃料使用許可の変更申請が不可能となったため、人形峠ウランサンプルを用いた SEM による粒子形状分析の検討試験を行った。本検討試験において使用した SEM は日本電子株式会社製ショットキー電解放出形走査電子顕微鏡 JSM-7800F である。

試験試料として、人形峠環境技術センターに保管されている ADU 及び UO_2 の 4 試料と、TEM との分解能比較のために CeO_2 ナノサイズ粒子の計 5 試料を選定した。なお試料はいずれも粉体で、ADU は国産及び中国産試料を使用し、UO_2 は低濃縮ウラン及び劣化ウラン試料を使用した。試料作成について、カーボン円形プレート上に極微量の試料粉末をカーボン両面テープで固定し、SEM 用観察試料とした。

本件における人形峠ウランサンプルの SEM 像による粒子形状観察の結果を図 47～図 51 に示す。いずれのウランサンプルについても、チャージアップ等を起こさずに明瞭な観察像が得られることを確認した。粒子サイズ等の粒子形状パラメータについても分析可能である。本件で使用した ADU 試料については、産地によって粒子形状や粒子表面状態、粒径等が大きく異なり、差異を容易に判別できることを確認した。一方、UO_2 試料については濃縮度の異なる 2 試料間で差異を判別することが困難であった。これは、２つの UO_2 試料が同じ製造プロセスで製造された試料であることが原因であると考えられる。TEM との分解能比較のために CeO_2 ナノサイズ粒子について、SEM を用いて観察した。SEM による観察結果から、ナノサイズ粒子が凝集している像が確認されたが（図 51）、SEM は TEM よりも最高倍率が低くなるため、ナノサイズ粒子毎の粒子形状を明確に観察することが困難であることが分かった。そのため、ナノサイズ粒子の実試料の場合は TEM を使用した粒子分析を行う必要があると考えられる。

3.3.5 まとめと今後の課題

核物質粒子の形状は、当該物質が製造された施設やプロセスによって異なることから、粒子形状の情報は押収物質の属性評価に資するデータとして非常に有効であることが確認されている。原子力機構では、核鑑識技術開発のために TEM を整備して、粒子形状分析技術の開発を実施した。平成 23 年度から平成 25 年度における粒子形状分析技術開発は、以下の項目についての開発を実施した。

① TEM の整備
② TEM を用いた粒子形状分析法の検討
③ SEM を用いた人形峠ウランサンプルの分析

①TEM の整備では、電解放出型透過電子顕微鏡 JEM-2100F を整備し、メーカーによる性能試験を完了した。②TEM を用いた粒子形状分析法の検討ではウランサンプルの模擬コールド試料を用いて粉末サンプルについて 2 種類の試料作成法を確立し、TEM による粒子像の観察で粒子の特徴を分析し判別が可能であることを確認した。また、粒子形状を定量的に特徴づける形状パラメータについて検討を行った。③SEM を用いた人形峠ウランサンプルの分析では、SEM による実ウラン試料の観察と顕微鏡像による粒子形状分析が可能であることを確認した。

以上の検討結果から、TEM 及び SEM による核鑑識における粒子形状分析技術について、基本的な技術の開発を行った。一般的には SEM を用いた分析の方が簡便・迅速な分析を行

うことが可能であるが、試料によっては超高倍率での粒子像観察が必要となることから、TEM もまた高度な粒子形状分析技術として非常に重要である。また、粒子形状のみで差異を判別することが困難なケースの場合、粒子の結晶構造や構成元素分布などを分析することで試料間の判別が可能となると考えられる。これら内部構造は TEM を用いることで分析が可能であるが、集束イオンビームやイオンミリングなどの手法で粒子を薄膜化加工する必要があるため、平成 26 年度以降については粒子試料の薄膜化加工技術の開発と、内部構造分析法の開発を進める予定である。

3.4 核鑑識ライブラリ

3.4.1 国内核鑑識ライブラリ開発の概要

核鑑識活動において、押収物質の分析などで得られた同位体、不純物などのデータは、既存の核物質またはその他放射性物質に関する過去に行われた同様の分析データと比較・照合される。それらの中から合致するものが見つかった場合、該当物質に関連する情報から押収物質の出所・履歴や本来の使用目的といった属性が特定される。一般に、核鑑識ライブラリは核鑑識活動において既存の核物質またはその他放射性物質の分析データ及び関連する情報の参照元となる情報基盤であるとされており [15)]、その位置付けは核鑑識活動全体において最も重要な要素のひとつである（図 8 参照）。

各国の核鑑識実施体制整備に向けた国際的な取り組みとしては、核テロリズムに対抗する GICNT や ITWG、IAEA 主催の国際会議、専門家会合、トレーニングコースなどが挙げられる。いずれの取り組みにおいても核鑑識ライブラリの重要性が強く認識されており、核鑑識ライブラリの解説文書や開発のガイドラインなどが発行されている [15,16)]。核鑑識ライブラリ開発の方向性に関しては、IAEA などを中心とした国際的な管理体制下の一元的な国際核鑑識ライブラリの可能性も議論されたが、核物質等の分析データや関連する情報の機微性からその国際共有が非常に困難であることから、現在は各国が国内すべての核物質及びその他放射性物質のデータを蓄積する国内核鑑識ライブラリ(National Nuclear Forensics Library: NNFL)を構築し、他国からのデータ照会に応じるという NNFL-POC(Point of Contact)という概念が国際的に最もコンセンサスを得ている。この概念に従い、米国やカナダなどでは核物質を対象とした核鑑識ライブラリの開発が進められており、データ収集とライブラリの運用が既に開始されている [17)]。また、モロッコやウクライナでは ITWG、GICNT などの支援により国内核鑑識ライブラリ開発が開始されており、ASEAN では EC-JRC 及び UNICRI(国連地域間犯罪司法研究所)の支援の元、放射性物質に係る核鑑識ライブラリ開発のプロジェクトが開始されている [18,19)]。一方で、ロシアなどでは既存の核物質に係るデータベースを活用し、核鑑識ライブラリを新規に開発しないという方向性が打ち出されている。

原子力機構においては、国際的に最もコンセンサスを得た国内核鑑識ライブラリの概念に従ってライブラリ開発を進めている。しかし、国内すべての核物質及びその他放射性物質の情報を一元的に集約・管理する国内核鑑識ライブラリを、一事業者である原子力機構が開発することは現実的に不可能である。そのため、原子力機構が過去から現在にわたって取り扱った核物質及びその他の放射性物質の分析データ等を元にして、国内核鑑識ライブラリのプロトタイプの開発を行い、さらに原子力機構内物質の実データを用いたプロトタイプの運用試験と改良を行うこととした。核鑑識ライブラリに関する IAEA などのガイドラインでは、国内核鑑識ライブラリに格納されるデータ項目などは特に規定されておらず、核鑑識活動による分析データ等に基づいて押収物質の属性を特定するという目的を達成できるものであるとされている。また、国内核鑑識ライブラリの規模や開発における複雑性

などは各国が保有する核物質の種類、核燃料サイクルスケールなどに大きく依存することが示されており、ウラン鉱山から燃料製造、原子炉、再処理、最終処分まで試験施設も含めてフルスケールで核燃料サイクル施設を保有する我が国においては、国内核鑑識ライブラリは大規模かつその開発は最も複雑になると考えられる。原子力機構は原子力に係る国内唯一の総合原子力研究機関であり、フルスケールで核燃料サイクル施設を保有していることから、原子力機構における対象物質のデータを元に開発したプロトタイプは、将来の実運用段階における国内核鑑識ライブラリに近いものとなることが期待される。

平成 23 年度から平成 25 年度における国内核鑑識ライブラリのプロトタイプ開発は、ライブラリに格納すべき対象物質のうち核物質のみに注目し、以下の項目について開発を実施した。

① 核鑑識ライブラリの概念検討
② 核鑑識ライブラリにおける核物質データベース開発
③ 属性評価のための簡易的な評価ツールの検討
④ 原子力機構が関与する核物質に係る分析データ等の収集

また、平成 25 年度において ITWG の核鑑識ライブラリワーキンググループが主催した核鑑識ライブラリに係る国際机上演習「銀河の蛇 (Galaxy Serpent)」に参加した。

3.4.2 核鑑識ライブラリの概念検討

核鑑識ライブラリは核鑑識活動において既存の核物質またはその他の放射性物質の分析データ及び関連する情報の参照元となる情報基盤であり、一般的にライブラリを構成する主要な要素は核物質などの情報を蓄積するデータベースであるとされている [18)]。核鑑識ライブラリを構成する要素を検討するにあたり、ライブラリを「図書館」に見立てることで、その概念検討を行った。図書館は一般に図書を保管しそれを利用者へ提供する施設または機関と定義されており、その機能からライブラリは図書に相当する情報を保管し利用者へ提供するシステムであると捉えることが出来る。そして、その最も重要な構成要素として、図書館の本棚に相当するデータベースを挙げることができる。図書館においては、利用者が必要な図書を簡便に探し出し、また図書を管理しやすくするために、目的に応じて適切に分類された本棚に収納されている。ライブラリにおいても、その目的や格納する情報の種類に応じて適切な構造のデータベースを構築することで、大規模かつ複雑なデータを効率的に取り扱うことが可能となると考えられる。さらに、ライブラリを構成するもう一つの重要な要素として、図書館に設置されている図書情報端末に相当するデータ操作機能を挙げることができる。図書館では、利用者が図書の収納位置を検索したり、あるいは管理者が図書の位置等の情報を適切に管理したりすることで迅速かつ効率的な図書の管理が行われている。これはライブラリにおいても同様で、情報の集合体であるデータベースに格納されている情報を効率的に検索・管理する機能が必要不可欠であり、データベースとデータ操作機能は常にひとつのパッケージとすべきである。また、データ操作機能についてはデータベースに含まれるデータ項目及びデータ構造を最適化して設計される必要がある。以上の検討から、核物質等の情報を格納するデータベース及びデータ操作機能の開発が、核鑑識ライブラリ開発の最も重要な開発項目として挙げることができる。平成 23 年度から平成 25 年度における核鑑識ライブラリ開発においては、格納対象物質のうち核物質のみに注目し、核物質データベース及び付随するデータ操作機能の開発を実施した。

3.4.3 核鑑識ライブラリにおける核物質データベース開発

平成 25 年度完成に向けた国内核鑑識ライブラリのプロトタイプ開発は、ライブラリに格納すべき対象物質のうち核物質に注目し、原子力機構(旧原研、旧サイクル機構含む)が過去から現在までに取り扱った核原料物質及び核燃料物質(以後、総じて核物質と呼ぶ)の分析データ、それらを製造・加工・使用した核燃料サイクル施設及び原子炉等の情報を元にして、核物質データベースの開発を主として実施した。核物質データベースの開発手順は以下のとおりである。

(1) 格納データの予備調査
(2) データ項目の検討
(3) データモデル及びデータ構造設計
(4) モデルデータベースの構築
(5) 核物質データベースの構築

3.4.3.1 格納データの予備調査

はじめに、原子力機構で過去に取り扱った核物質及び核燃料サイクル施設に関するデータの予備調査を行った。調査対象は原子力機構内の関連するデータベース及び公開文献が中心である。この予備調査により、おおまかなデータ項目の種類、様々な形式のデータソースの有用性と、データ収集時における核鑑識としての優先度を評価した。核鑑識ライブラリでは、核物質の分析データや、製造プロセス、製造施設、使用施設、使用原子炉などの情報が格納の対象となり、それらのデータが記載されているデータソースは電子ファイルから文書 (紙資料)など多岐にわたる(表 40 参照)。その中でも、核鑑識ライブラリの最も重要な目的である核物質の特定のために最も有効なデータソースとしては、核燃料の規格データ、品質検査基準データ及び品質検査データが挙げられる。これらのデータには核物質を物理的・化学的に特徴づける情報が含まれており、核鑑識ライブラリの格納データとして非常に有用性が高く、データ収集の優先度は最も高い。一方、米国の核鑑識ライブラリ開発に係る先行事例では保障措置目的で蓄積されている計量管理データが非常に重要であることが示されているが [18]、計量管理では主に保障措置上重要な核分裂性核種の割合や重量などがデータとして蓄積されており、データの内容は限定的なものとなっている。そのため、施設毎のデータ収集の優先度評価においては有用性が高いが、核鑑識ライブラリにおける核物質の特定という目的においてはデータ収集の優先度は比較的低いと考えられる。また、原子力機構(旧原研、旧サイクル機構を含む)では過去 50 年近くに渡り核物質を取り扱っており、本件で格納対象となる核物質の一部については、既にデータが現存していないものやデータが不完全なものがあることが分かった。このような核物質データの取り扱いについては、実試料が現存しているものは再分析によるデータ登録や、原子炉燃焼シミュレーション等を用いて補完する必要がある。このような場合、データの信頼性が問題となることから、データの精度・確度を示す必要があると考えられる。

3.4.3.2 データ項目の検討

核物質データベースにおけるデータ項目の検討にあたり、①核鑑識ライブラリの要求項目、②核鑑識分析における『シグネチャ』という２つの基準に基づいて検討した。

ひとつめの基準である核鑑識ライブラリの要求項目と、要求項目を満たすのに必要となる情報の種類を表 41 に示す。核鑑識ライブラリにおいては、押収物質の特定と、その属性の特定が最も重要な要求項目となる。そのため既存の核物質をカタログ化する必要があり、

核物質の種類を特定する物質特性や、出所・履歴を特定するための製造・使用履歴の情報が必要となる。また、核物質に係る分析サンプル及び分析データの蓄積と解釈もまた核鑑識ライブラリの重要な要求項目であるため、分析サンプルの情報や各種分析データ、分析結果に基づいた解析データなどの情報が必要となる。

ふたつめの基準 (シグネチャ)では、核燃料サイクルにおける処理プロセス毎に、プロセスの製品核物質とそれを特徴付ける (核鑑識分析においてシグネチャとなる)化学的・物理的パラメータを検討することにより、ひとつめの基準であるライブラリの要求項目を元に抽出した必要情報のうち、核物質の種類を特定できる物質特性や分析データについての詳細項目を具体化した。核燃料サイクルの各ステージにおける製品核物質と、それらのシグネチャとなる物質特性の例を表 42 に示す。各ステージにおける核物質を特徴付ける特性は、おおまかに以下の 6 種類に分類される。

- 物理的特性 (密度、色、透明度、脆性など)
- 化学的特性 (化学形、主要元素、化学的均一性など)
- 不純物元素量
- 同位体組成
- 微細構造(粒子形状、粒子サイズ、結晶構造など)
- その他(容器、シリアル番号など)

これらはすべて核鑑識分析において重要なシグネチャとなる可能性があり、ひとつまたは複数の組み合わせにより核物質の種類や属性を評価することができる。

3.4.3.3 データモデル及びデータ構造設計

前項に示したデータ項目検討の結果、本件の核物質データベースに含まれるデータ項目数はおよそ 550 項目にのぼることがわかった(データ項目一覧を付録-2 に示す)。これらのデータ項目を効率的に取り扱うためのデータモデル及びデータ構造について検討した。

データベースとは、特定のテーマに沿ってデータを集めて管理し、容易に検索・抽出などの再利用をできるようにしたものと一般に定義される(狭義にはコンピュータ上で実現されたものを指す)。また、データベースにおけるデータの配置を論理的に規定するものをデータモデルと呼び、用途によって適切なデータモデルを選択する必要がある。一般的なデータモデルのひとつとしてリレーショナルデータモデル(関係モデル)が挙げられる。リレーショナルデータモデルではデータベースに格納するデータ項目を複数の表(テーブル)に分類し、それらの表をデータ項目間の関係(リレーション)で結合することでデータ管理を行うものである。このモデルに基づくリレーショナルデータベース(RDB)は現在様々な用途で使用されており、RDB のためのデータ処理を行うデータベース管理システム(DBMS)やデータ操作言語(SQL 言語)などが広く普及している。RDB は各テーブルのキーとなるデータとリレーションを利用してテーブル間のデータの結合や抽出などのデータの 2 次的加工を容易に行うことができ、核鑑識ライブラリにおいては状況に応じて必要なデータ項目を抽出利用することが想定される最適なデータモデルであると考えられる。

リレーショナルデータモデルに基づき核物質データベースにおけるデータ項目をテーブルに分類した結果、テーブル総数はおよそ 70 テーブルとなった(付録-2　4. 核物質データベースのデータ構造を参照)。また、リレーショナルデータモデルに基づく核物質データベースのデータ構造の概要を図 52 に示す(詳細なデータ構造は付録-2 を参照)。核鑑識の核物質データベースは 2 つの小データベースから構成されている。核燃料・サイクルデータベース(図 52 左)は核燃料の原料となる核物質から製品核燃料に至るプロセス毎に品質検査基準、

製造・加工施設及びプロセスの情報、使用施設などの情報が格納され、主に押収核物質の種類の大まかな特定や出所・履歴といった属性の特定に適用される。一方、サンプル・分析データベース(図 36 右)は核鑑識をはじめ、品質管理、保障措置、研究開発といったあらゆる目的で実施される核物質の分析について、分析サンプル毎のサンプル情報や分析データ、分析に基づく解析データ等を格納し、サンプル単位での核物質の詳細な特定や、各種分析データの蓄積及び解釈に適用されるものである。これら２つの小データベースでは相互に関連するデータが格納される場合が考えられる(例えば、品質検査基準とそれに対応する品質管理分析データなど)。そのような場合には、関連する核物質と分析サンプルに相互リンクを登録することで、小データベース間の相互参照を可能とする構造になっている。

3.4.3.4 モデルデータベースの構築

前項で設計したデータ構造をもとに、データ構造及び基本的なデータ操作機能を備えたモデルデータベースを構築した。3.4.2 項で述べたように、データベースとデータ操作機能はひとつのパッケージ化されてシステムとして開発する必要があり、相互に最適な設計を行うことが非常に重要である。また、実際のデータベースシステム構築後にデータ構造の変更を行うことは開発上非常に非効率的であるため､本件では Microsoft® Office に付属している簡易データベース開発ソフトウェアである Access 2010 を使用して、基本的なデータ操作機能を含めた核物質データベースのモデルシステムを構築することにより、データ構造等の最適化を行った。本モデルデータベースは次の開発ステップである核物質データベースの構築のためのひな形となる。

モデルデータベースでは核燃料・サイクルデータベースとサンプル・分析データベースをそれぞれ独立に構築し、併せてユーザー操作におけるグラフィックインターフェイス(GUI)、データ操作を行うクエリ[注10)]、その他基本的なシステム機能(グラフ表示等)を構築した。モデルデータベースの構築後、実際の核物質に係る分析データを使用して、データ登録、検索、更新、削除といった基本的なデータ操作機能を確認するとともに、データ構造及びデータ操作機能(クエリ及び GUI)の最適化を図った。

3.4.3.5 核物質データベースの構築

前項で構築したモデルデータベースにおけるデータ構造、クエリ及び GUI を基に、実際の核物質データベースを構築した。平成 24 年度中にデータベースを構築するコンピュータサーバ及びデータベース管理システム(DBMS)ソフトウェアを整備し、平成 25 年度にデータベース構築を実施・完了した。これら核鑑識のために整備したコンピュータサーバ及び DBMS ソフトウェアの概要を表 43 に示す。コンピュータサーバについては、原子力機構における計量管理用コンピュータサーバを参考に性能の検討を行った。計量管理用サーバは核物質の数値データを対象とするが、核鑑識ライブラリは数値データのみならず画像データやグラフデータも対象となり、また核物質の特定において数値解析などの機能は必要になることも想定されるため、計量管理サーバと比較して高性能な機器を選定した。また、DBMS ソフトウェアについては汎用性や信頼性などの観点から DBMS のデファクトスタンダード(国際機関や標準化団体による公的な標準ではなく、市場の実勢によって事実上の標

注10) SQL 言語と呼ばれる、リレーショナルデータベースにおけるコンピュータ言語によるデータ操作を行うためのコマンドラインを一般にクエリと呼ぶ。実際のデータ操作は GUI を通してクエリを呼び出して実行し、クエリがユーザーの目に触れることはない。

準とみなされるようになった規格・製品のこと。「de facto」とはラテン語で「事実上の」の意)に位置づけられ、銀行やインフラなどのデータベースシステムにも広く使用されている Oracle Database を選定した。

核物質データベースのスクリーンショット(仮想データを用いた核物質の特定及び属性の特定の手順例)を付録-2 7.核鑑識ライブラリ操作手順に示す。本件の核物質データベースは、原子力機構内のネットワークを経由してPC端末のインターネットブラウザによるデータベース操作を可能にしている。また本件は核鑑識ライブラリのプロトタイプ開発という位置づけではあるが、原子力機構における核物質のデータを取り扱うことから、ユーザー管理や接続端末の制限といったセキュリティ対策も実施している。

3.4.4 属性評価における評価ツールの検討

核鑑識活動において、押収物質の分析によって得られた分析データは核鑑識ライブラリに登録されている既存の核物質等のデータと照合され、その属性が特定される(以後総じて、属性評価と表現する)。核鑑識ライブラリを用いた属性評価の際には、押収物質の同位体、不純物、粒子形状といった様々な分析データが総合的に照合・評価されることから、評価者による押収物質の属性評価をサポートする評価ツールの開発が重要となる。これは警察における指紋照合のためのツールに相当する機能と考えれば理解しやすい。

属性評価における評価ツールとして、①多変量統計解析、②画像解析といったツールが非常に有効であると考えられる。核鑑識活動における分析は質量分析などの化学分析を行うことが多いが、あるサンプルの化学分析で得られた多種多様な分析データを数理科学的な手法で解析する学問領域を計量化学(ケモメトリクス)と呼び、分析化学分野における諸問題を解決する手段として広く用いられている [20]。多変量統計解析や、パターン認識に代表される画像解析は計量化学において最も一般的な手法であり、またそれらの解析に用いられる数理学的手法はデータベースとも親和性がよいことから、核鑑識活動における属性評価においても非常に有効な問題解決手段であると考えられる。これらの評価ツールは核鑑識ライブラリにおけるデータベースシステムと一体となっていることが望ましい。多変量統計解析や画像解析には様々な数理科学的手法が用いられることから核鑑識活動の属性評価において適切な評価手法となるため、平成 23 年度から平成 25 年度においては多変量解析及び画像解析の簡易的な評価ツールを開発した。将来の実際の核鑑識ライブラリのために役立つようにするため、最適な評価ツールをプロトタイプシステムへ実装することを目標としている。

多変量統計解析ツールにおいては、多変量統計解析手法として最も一般的な回帰分析、主成分分析及び判別分析を行う評価ツールを開発し、画像解析ツールについては核物質粒子の形状のマッチング度を定量化する評価ツールを開発した。多変量統計解析における回帰分析は、照射済燃料試験(PIE)における燃焼度に対する試験燃料中に存在する放射性核種の変化傾向などを比較する際等に有効な評価手法と考えられる。主成分分析及び判別分析は、核物質の同位体、不純物といった複数の化学分析データを総合的に比較評価する際に非常に有効な評価手法となることが考えられる。これらの統計解析手法ツールについては、核鑑識ライブラリに係る国際机上演習「銀河の蛇(Galaxy Serpent)」(後述)の模擬核物質データに適用して、属性評価における有効性を確認している。また今後は、その他の統計解析手法ツールの開発と属性評価における有効性の確認及び複数の統計解析手法の組み合わせによる属性評価の信頼性について検討を行う予定である。画像解析ツールについては、粒子画像の2値化(白黒化)と形状評価パラメータによるマッチング度評価を行うツールを開発

し、基本的な形状の模擬粒子画像について定量的なマッチング度評価を行えることを確認している。今後、電子顕微鏡などで撮影した実粒子画像による評価試験と評価ツールの最適化検討を行う予定である。本件において開発した簡易的な多変量統計解析ツール及び画像解析ツールの詳細説明(アルゴリズム)を付録-2 に示す。

3.4.5 原子力機構における核物質に係る分析データ等の収集

3.4.3 項及び 3.4.4 項に示した核物質データベース開発及び属性評価ツールの検討に並行し、原子力機構で過去に取り扱った核物質に係る分析データ等の収集を実施した。平成 23 年度から平成 25 年度に収集したデータの一覧を表 44 に示す。これらは、データソースの信頼性などを確認の上、核物質データベースに順次登録される予定である。

3.4.6 核鑑識ライブラリに係る国際机上演習への参加

原子力機構は、ITWG が 2013 年に開催した核鑑識ライブラリに係る国際机上演習「銀河の蛇(Galaxy Serpent)」に参加した。国際机上演習「銀河の蛇」は、ITWG の国内核鑑識ライブラリワーキンググループ(NNFL Working Group)が 2013 年に初めて開催した Web ベースの国際演習である。本演習は核鑑識ライブラリの構築から分析データをもとにした押収物質の属性評価に至る一連のプロセスについて学ぶことを目的に開催され、原子力機構は核鑑識ライブラリ開発の一環として 2013 年 4 月～6 月に開催されたラウンド 2 の演習に参加した(同ラウンドの他の参加国は英国、韓国、南アフリカである)。演習は Web 上で実施され、はじめに仮想ライブラリ構築用のデータとして 3 基の原子炉(BWR 1 基、PWR 2 基)について、照射済燃料のウラン、超ウラン元素の同位体組成や放射性核種組成のデータが与えられ、その後送られてくる仮想押収物質の分析データを元に押収物質の出所となる原子炉を特定するというものである(表 45)。ライブラリ及び仮想押収核物質のデータは OECD/NEA が運用する使用済燃料同位体組成データベース (SFCOMPO)をソースとしている [21)]。

原子力機構では、先ず簡易的な核鑑識ライブラリを構築し、次に同位体相関比較法と多変量解析手法として一般的な主成分分析(Principal Component Analysis : PCA)を用いて仮想押収物質の属性評価を行った。なお同位体相関比較では、およそ 50 通りの同位体相関グラフを作成し、回帰分析及び目視による評価を行った。属性評価の結果、「80%の信頼水準で仮想押収物質が 1 基の PWR と強い関連性を示し、もう 1 基の PWR と若干の関連性を示すが、BWR とは全く関連がない」という結論を得て、主催者により正解であることが確認されている。同位体相関比較及び主成分分析の例を図 53 及び図 54 に示す。ITWG 主催の国内核鑑識ライブラリに係る国際机上演習へ参加することにより、原子力機構の属性評価に係る能力を確認するとともに、核鑑識ライブラリ構築から属性評価までにおける様々な課題を抽出することができたことから、これらの成果と課題は今後の核鑑識ライブラリ開発に反映される。また、本演習の結果は米国の核物質管理学会誌(JNMM)に投稿し他参加国と合同で JNMM の Special Issue として 2014 年夏に発表された [21)]。

3.4.7 核鑑識ライブラリ開発のまとめと今後の展望

平成 23 年度から平成 25 年度における国内核鑑識ライブラリのプロトタイプ開発では、ライブラリに格納すべき対象物質のうちでも核物質に注目し、以下の項目についての開発を実施した。

① 核鑑識ライブラリの概念検討
② 核鑑識ライブラリにおける核物質データベース開発

③　属性評価における簡易的な評価ツールの検討
④　原子力機構における核物質に係る分析データ等の収集

核鑑識ライブラリにおける核物質データベース及び基本的データ操作システムの開発を完了し、属性評価における評価ツールとして多変量統計解析ツールと簡易画像マッチングツールを開発した。また、平成 25 年度において ITWG の核鑑識ライブラリワーキンググループが主催した核鑑識ライブラリに係る国際机上演習「銀河の蛇(Galaxy Serpent)」に参加し、核鑑識ライブラリの構築から押収物質の属性評価に渡る一連のプロセスについて良好な結果を得た。

核鑑識ライブラリに係る今後の開発項目として、以下を実施する計画で検討を開始している。

- その他放射性物質に係るデータベース
- 属性評価ツールの最適化と核鑑識ライブラリへの実装
- 核鑑識分析及び属性評価に係る知識ベースシステムの開発
- 原子力機構取り扱い物質データの収集(継続)

上記の中で特筆すべき点として、知識ベースシステム開発が挙げられる。核鑑識活動における押収物質の特定と属性評価において、分析化学や核燃料サイクル工学、原子炉工学といった核物質及びその他放射性物質に係る知識に加えて、核鑑識における分析と核鑑識ライブラリを用いた属性評価の経験・知見が非常に重要となる。これらの経験・知見は、実際の核鑑識分析や属性評価、国際机上演習「銀河の蛇」のような演習などによってのみ蓄積することが可能である。そのため、それらを蓄積する知識ベースシステムを開発し、核鑑識ライブラリシステムに実装することで、将来、核鑑識に係る事案が実際に発生した際に効率的かつ迅速な核鑑識分析及び属性評価を可能とすることが期待できる。また、その他放射性物質に係るデータベースについては、既存の放射線源登録システム [22]が登録対象としている線源用放射性物質のみならず、放射性廃棄物なども格納対象とするデータベースを開発し、核物質データベースと統合することで、包括的な核鑑識ライブラリのプロトタイプシステム構築を目指す。

3.5　核鑑識の国際体制

3.5.1　国際体制

核鑑識ライブラリの能力はデータベースに依存するため、各国は国内データ収集を体系化する必要がある。ウランやプルトニウム以外の放射性物質のデータベース化も不可欠となる。核鑑識関連データは機微情報であるため、データ収集メカニズムの確立とともに、核鑑識ラボラトリによる国家的集中的管理が求められる。さらに核鑑識ライブラリにおける押収試料のデータ照合、統計解析、画像解析などの属性評価手法(たとえば伝統的鑑識の指紋照合に相当する)が重要となる。このため、日本ばかりでなく各国が同ライブラリを構築してデータベースを整備することは必須の検討事項である。特に日本が東アジアの核鑑識協力の中心となり、各国と具体的な情報交換ができるようになれば日本のみならず各国の核セキュリティ強化のために大きく貢献できる。

核鑑識データベースに関しては、国際的なデータ照合体制についても検討する必要がある。IAEA の不法移転事案データベース(ITDB)は不法移転関連情報の国際的な蓄積の場になっているが、同様に核鑑識データベース(NFDB)についても最終的には IAEA が管理する方式を採用すべきであろう。各国が IAEA に照会することで迅速かつ効率的な情報収集が可能となると考えられる。しかし、現在は国際的な合意が得られていないため(多国間での情報

共有を好まないことによる)、各国の国内核鑑識ライブラリが他国からの照会に対応する方式(National Nuclear Forensics Library-Point Of Contact, NNFL-POC 方式)が採用されている。

GICNT の「原則に関する声明」においては、日本を含む GICNT の参加国は、国内法及び国際法に従って核テロに関連する「不法に所持された核物質その他の放射性物質又はそれら物質を使用する装置に関し、捜索、差押え及び安全な管理を確立する能力を向上させること」と表明して自発的な措置をとるものとしている。さらに 2010 年(平成 22 年)の GICNT 全体会合では、核検知と核鑑識を核セキュリティ体制構築の優先分野として検討を続けている。

核鑑識ラボラトリには、分析施設、国家核鑑識ライブラリや押収試料保管施設を包含するとともに、証拠能力としての分析結果の品質保証や、データベースと属性評価手法の信頼性を担保するものでなければならない。

核鑑識に関する国際協力を通して、常に最新情報を交換・共有して技術開発に反映させることは、犯罪捜査という核鑑識の性質上重要である。さらに各国の関係機関に核鑑識を理解してもらうための啓蒙活動、あるいは人材育成のためのトレーニングを実施する必要がある。日本は IAEA と協力して国際的な核鑑識トレーニング(IAEA 核鑑識入門地域トレーニングコース、平成 24 年 5 月東海村)を実施している。

また、不正事象発生時に核物質あるいは放射性物質に関する照合業務は核鑑識捜査の基盤であるため、核鑑識ライブラリも整備する必要がある。核鑑識ライブラリのデータ収集・データベース化あるいは押収試料を対象とした鑑識分析では、分析スキームの標準化や国際比較試験などを通したデータの信頼性が求められる。分析技術を確立して維持し、必要に応じて改良するとともに、常に国際水準の維持を目指す品質保証こそが核鑑識の信頼性向上に寄与することになる。

3.5.2 国際会合への参加

核鑑識に関する国際会合に出席して、核鑑識技術の世界動向を調査するとともに、世界的な核鑑識体制の構築について討議した。参加した会合の概要は以下の通り。

(1) 事前調査

●DOE/JAEA 核不拡散・保障措置協力取決めに基づく PCG 会合等[事前協議](米国/ワシントン):平成 22 年 2 月 28 日～3 月 5 日[出張期間、以下同様]:DOE/JAEA 核不拡散・保障措置協力取決めに基づく常設調整グループ(PCG)会合に参加し、わが国の原子力研究開発動向、原子力機構の活動状況、核不拡散科学技術センターの活動状況について報告するとともに、平成 21 年 11 月の日米首脳会談で採択された「核兵器のない世界」に向けた日米共同ステートメントの具体化について議論した。

●ITWG 会合出席[事前調査](オックスフォード、英国)平成 22 年 6 月 27 日～7 月 2 日:第 15 回核鑑識に関する国際技術ワーキンググループ(ITWG-15)会合に出席し、核鑑識技術及び各国の取り組みの現状に関する情報収集を行った。また、同会合において、核鑑識分野における原子力機構の貢献の可能性に関する発表を行った。

(2) 平成 23 年度

●ITWG-16 会合(ウクライナ／キエフ)平成 23 年 6 月 13～19 日:ITWG の第 16 回年次会議(ITWG-16)に出席し、核鑑識技術開発に係る最新動向を調査した。

●GICNT-IAG 会合/プレナリー会合出席(韓国／大田 Daejeon)平成 23 年 6 月 28 日～7 月 1 日:

日本の核鑑識専門家として「核テロリズムに対抗するためのグローバル・イニシアティブ(GICNT)」定期会合(IAG)に出席し、核鑑識分野の国際協力につき議論した。
●第52回INMM年次会合(米国／パームデザート)平成23年7月17日～27日:第52回INMM年次会合に出席し、研究発表及び最新の情報収集、関係者と意見交換を行った。核鑑識に係るセッションでは、FP 同位体の相関を用いる方法などいくつかの新たな技術情報が示されるとともに、使用済み燃料に関するデータベースの話が興味を引いた。さらに、米国DOEとの核不拡散研究協力取決めに基づく打合せをINMM会場及びLANLにて実施した。
●日米核セキュリティ作業グループに係るミーティング参加(米国／ワシントンDC)平成23年11月6～11日：2012年に韓国で開催される第2回核セキュリティ・サミットに向けて、日米核セキュリティ作業グループを設置し、核鑑識並びに核物質の検知及び測定の分野などにおける協力を拡大していくことが決定されたことを受け、日米核セキュリティ作業グループの各分野における今後の計画、核セキュリティ・サミットに向けた成果等について米国DOEと議論を行った。
●核鑑識ライブラリに係るIAEAコンサルタンシー会合、並びにEURATOMと原子力機構の核物質保障措置の研究及び開発に関する協定に基づく専門家会合(オーストリア／ウィーン、ベルギー／ブリュッセル・ゲール、イタリア／イスプラ、ドイツ／カールスルーエ)平成23年11月14～27日：IAEAが主催する核鑑識ライブラリに係るコンサルタンシー会合に出席して核鑑識ライブラリに関する情報を収集した。また、EURATOMにおける核鑑識に係る研究開発状況を調査するとともに、核鑑識に係る研究協力の内容について、EU-JRCのIRMM，ISPRA研究所，ITU，JRC本部において意見交換を行った。核鑑識に関して、技術開発から人材育成まで広汎な協力が可能であり、平成24年1月16日～19日に核鑑識コンサルタンシー会合を、4月には核鑑識トレーニングコースなどを計画し、ITUとも密に情報を共有し、これらトレーニングコースやワークショップの開催でも協力を行うこととした。
●核鑑識に関するARFワークショップ出席(タイ/バンコク)平成23年12月7～10日:タイ、欧州連合、米国が共同開催する「核鑑識に関するアセアン地域フォーラム(ARF)ワークショップ」に出席した。ワークショップはアセアン地域フォーラムのセッションとして、オーストラリア、カンボジア、中国、韓国など19の国及び機関から約70名の参加者で行われ、原子力機構における核鑑識に関する研究開発、研究協力、将来の活動予定について発表するとともに、核鑑識に関する情報収集を行った。また、タイ東部にある代表的な港湾であるレムチャバン港(Laem Chabang Port)関税局において、輸出入貨物の核物質及び放射性物質の検査体制を視察するとともに、密輸が発見された時の机上訓練に参加した。
●GICNT-IAG会合出席 (モロッコ／マラケッシュ)平成24年2月12～18日：核テロリズムに対抗するためのグローバル・イニシアティブ(GICNT)実施・評価グループ(Implementation and Assessment Group: IAG)中間会合に出席し、核鑑識に関する最新情報を収集した。
●核鑑識に係るワークショップ参加(米国/リッチランド)平成24年2月25日～3月8日:IAEA主催の米国DOE HAMMER Training and Education Center (リッチランド)において開催された核鑑識に係る研修に参加した。この研修は、IAEA Nuclear Security SeriesNo.2 “Nuclear Forensics Support”に基づき、核鑑識に係る基礎的な知識の習得を目的としたもので、今回初めて開催された。研修日数は実質7日間で、12か国から24名が参加した。日本からは、原子力機構、警察庁、防衛省から3名が参加した。研修は講義、デモンストレーション (分析機器等の実演)、実習、Homework(シナリオに基づく机上訓練)、分析・測定装置の見学で構成された。参加者は4～5名の5つのグループに分けられ、実習、議論、プレゼンテーションを行った。

(3) 平成 24 年度

●核鑑識分析(ウラン試料の年代測定)法に関する打ち合わせ(米国／ロスアラモス)平成 24 年 6 月 5～9 日：保障措置と核不拡散のための核物質管理の研究開発の協力に係る原子力機構と米国 DOE との協定の基に、ウラン試料の年代測定法に関する行動計画を締結した。この行動計画書のタスク２に基づき、あらかじめ交換した分析法(タスク１)と、タスク３として実施する共同分析に関する計画を、米国、ロスアラモス国立研究所において議論した。また、行動計画書のタスク２に規定されている分析施設の調査も行った。

●「核鑑識科学 20 周年会合」及び「核鑑識国内ライブラリの開発指針に関する IAEA 技術会合」への参加(ドイツ／カールスルーエ、オーストリア／ウィーン)平成 24 年 10 月 11～21 日：超ウラン元素研究所(ITU)主催の「核鑑識科学 20 周年会合」へ参加し、最新の核鑑識技術を調査した。さらに、「核鑑識国内ライブラリの開発指針に関する IAEA 技術会合」へ参加し、IAEA 原子力安全シリーズとして公刊が予定される核鑑識国内ライブラリ開発に関する実施指針を検討した。

●「核鑑識技術の開発指針に関する IAEA 技術会合」への参加(オーストリア／ウィーン)平成 24 年 11 月 4～11 日：「核鑑識に係る実施指針に関する IAEA 技術会合」へ参加し、IAEA 核セキュリティ・シリーズ No.2 として改訂が行われている「捜査支援としての核鑑識」を検討した。

●「日米核セキュリティ作業グループ会合」への参加(米国／サンディア国立研究所)平成 25 年 1 月 28 日～2 月 2 日：「日米核セキュリティ作業グループ会合 (NSWG)」へ参加し、核セキュリティ分野における核鑑識技術開発に係る日米の協力について協議した。

●「GICNT 実施・評価グループ(IAG)会合」への参加(スペイン／マドリッド)平成 25 年 2 月 18 ～24 日：「核テロリズムに対抗するためのグローバル・イニシアティブ(GICNT)実施・評価グループ(IAG)会合」に出席し、核鑑識に関する最新情報を収集した。

●韓国における核鑑識技術開発の調査(韓国／大田 Daejeon)平成 25 年 3 月 12 ～15 日：韓国原子力研究所(KAERI)及び韓国核不拡散研究所(KINAC)を訪問し、核鑑識技術開発に関する情報交換を行い、併せて今後の研究協力について協議した。

(4) 平成 25 年度

●「GICNT 実施・評価グループ(IAG)会合」への参加(メキシコ／メキシコシティー)平成 25 年 5 月 22～26 日：「核テロリズムに対抗するためのグローバル・イニシアティブ(GICNT)実施・評価グループ(IAG)会合」に出席し、核鑑識に関する最新情報を収集した。

●「IAEA 核セキュリティ国際会議」への参加(オーストリア／ウィーン)平成 25 年 6 月 30 日～7 月 7 日：本国際会議に出席し、核鑑識技術セッションの共同議長を担当するとともに、核鑑識に関連する最新情報を収集した。

●核物質管理学会第 54 回年次大会への参加(米国／パームデザート)平成 25 年 7 月 14～20 日：米国核物質管理学会(Institute of Nuclear Material Management: INMM)が主催する第５４回年次大会へ出席し、原子力機構における核鑑識分析技術開発及び核鑑識ライブラリ開発の現状と展望に関する発表を行った。また、核鑑識に係るセッション及び核不拡散・保障措置・核セキュリティに係るその他のセッションに出席した。

●核鑑識に係るアセアン地域フォーラムワークショップへの出席(タイ／バンコク)平成 25 年 9 月 9～13 日：アセアン地域フォーラム主催の第２回核鑑識ワークショップに出席し、原子力機構における核鑑識技術開発の現状と展望を紹介するとともに、核鑑識に関する国際協力などについて各国の専門家と議論した。

●「非従来型脅威-化学・生物・放射性物質・核・爆発物アジア 2013 国際会議」への参加(マレーシア／クアラルンプール)平成 25 年 9 月 23～27 日：原子力機構における核鑑識技術開発の現状を講演するとともに、核セキュリティに関連する最新情報を収集した。
●「第 18 回核鑑識国際技術作業部会(ITWG-18)」への参加(ロシア／サンクトペテルブルグ)平成 25 年 10 月 7～12 日：ITWG-18 に出席し、原子力機構が参加した ITWG 主催の核鑑識ライブラリ国際机上演習の結果を各国と共有するとともに、核鑑識技術開発の最新情報を収集した。
●核鑑識に係る GICNT ワークショップへの出席(イギリス／ロンドン)平成 26 年 1 月 6～11 日：核テロリズムに対するグローバル・イニシアティブ(GICNT)主催の核鑑識に係るワークショップに出席し、放射性物質等で汚染された犯罪現場における探索と鑑識調査に係る各国の経験や、各国の核鑑識実施体制の整備状況及び国際的なサポート枠組みに係る情報を共有した。
●ハーグ核鑑識会合への出席(オランダ／ハーグ)平成 26 年 1 月 22～23 日：オランダ・ハーグでの核セキュリティ・サミットに先立ち、核鑑識に係る今後の国際的な取り組みの方向性を検討するために開催される国際会議「Forensic in Nuclear Security」に出席し同分野の専門家として意見を述べるとともに関係者と意見を交換した。

4. まとめ

4.1 ウラン同位体比と不純物の組成分析

核物質中のウラン同位体比を表面電離型質量分析計(TIMS)により測定するために必要なウランの分離・精製、及び不純物の組成を定量する方法について検討し、それらの分析法を作成した。

分析法は、ウランの分離・精製に抽出クロマトグラフィー用樹脂(アイクローム社製 UTEVA 樹脂)を用い、分離・精製された U の同位体比を TIMS で測定、その分離・精製工程において得られる流出液中の不純物元素を誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS)で測定する方法である。不純物元素として 53 元素が分析可能であり、分析所要時間は分析試料採取から測定試料調製まで 5 日である。

作成した分析法を化学形態等の異なる実試料に適用したところ、1 試料を除き全分析工程において不都合な箇所は見られなかった。1 試料(人形峠 EU、バッチ No. CTFEU6K)については、試料が硝酸で溶解せず容器底部に少量の黒色不溶解物が残存した。不溶解物の量は 2 試料間で差が見られ、試料中に不均一に存在していたと推測される。この試料については、試料溶解法及び試料採取法に関する検討を行う必要がある。

今後、さらに多くの実試料を分析し、分析法の改良を行うとともに、ウラン同位体比、不純物組成パターンの解析等を行い、シグネチャとして有用な元素等を特定する予定である。

4.2 核燃料物質の年代測定

ウラン精製年代測定のための $^{230}Th/^{234}U$ 比分析法を確立した。核鑑識分析対象のウラン試料は精製後の経過時間が数十年であり、長半減期の ^{234}U から生成する ^{230}Th の含有量が極めて少ないため、微量分析に適したテフロンカラムを自作するとともに、9M 塩酸カラム及び 8M 硝酸カラムで 1 回ずつ分離するトリウムの分離精製法を開発した。ここではウランの年代測定精度に影響するウランの混入率を 10^{-8} と低く抑えることができるとともに、TIMS を

用いてトリウムを高精度に測定するためにアクチベーターとしてグラファイトをフィラメントに塗布することで 1%程度の精度でトリウム同位体比測定が可能となった。さらに、年代測定値の信頼性に影響する化学分離操作ブランクの低減化を図るとともに、高分解能 ICP-MS による測定も検討してトリウムを 1%以下の精度で測定できることを確認できた。本研究で開発してウラン年代測定法を日米共同研究に適用し、互いの分析結果が誤差の範囲で一致した。今後は、別の壊変系列ペア(^{235}U-^{231}Pa, ^{230}Th-^{226}Ra)についても年代測定法を確立し、^{234}U-^{230}Th 年代測定法の結果と合わせて、年代推定結果のクロスチェックを行う予定である。

4.3 粒子形状分析

核鑑識技術開発のために TEM を整備して、粒子形状分析技術の開発を実施し、①TEM の整備、②TEM を用いた粒子形状分析法の検討、及び③SEM を用いた人形峠ウランサンプルの分析に関する基本的な技術開発を実施した。その結果、TEM 及び SEM による核鑑識のための粒子形状分析技術において、一般的には SEM を用いた分析の方が簡便・迅速な分析を行うことが可能であるが、試料によっては超高倍率での粒子像観察が必要となることから、TEM もまた高度な粒子形状分析技術として非常に重要であることがわかった。また、粒子形状のみで差異を判別することが困難なケースの場合、粒子の結晶構造や構成元素分布などを分析することで試料間の判別が可能である。これら内部構造は TEM を用いることで分析が可能であるが、集束イオンビームやイオンミリングなどの手法で粒子を薄膜化加工する必要があるため、今後は粒子試料の薄膜化加工技術の開発と、内部構造分析法の開発を進める予定である。

4.4 核鑑識ライブラリ

国内核鑑識ライブラリのプロトタイプを開発した。ライブラリに格納する核物質に関連して、核鑑識ライブラリの概念設計、データベース開発、属性評価ツール及び分析データ等の収集を実施した。ここでは、核物質データベース及び基本的データ操作システム及び属性評価ツールとしての多変量統計解析ツールと簡易画像マッチングツールを開発した。また、ITWG 主催の核鑑識ライブラリに係る国際机上演習「銀河の蛇(Galaxy Serpent)」に参加し、核鑑識ライブラリの構築から押収物質の属性評価について良好な結果を得た。

今後は、放射性物質に係るデータベースの構築、属性評価ツールの最適化と核鑑識ライブラリへの実装、核鑑識分析及び属性評価に係る知識ベースシステムの開発を実施するとともに、原子力機構取り扱い物質データの収集を継続する予定である。

4.5 総括

4.5.1 技術開発状況(平成 23～25 年度)

核鑑識に必要な基本的分析技術を開発した。その対象は、①核物質の同位体組成を分析する技術、②その核物質に含まれる不純物を測定する技術、③粒子の形状を電子顕微鏡撮影して画像データとする技術、④ウランとその壊変核種であるトリウムの同位体比からウランの精製年代を測定する技術、及び⑤核物質を分析して得られた実測データをライブラリのデータベースに蓄積されているデータと照合して核物質の出所・履歴などを明らかにするための属性評価手法である。これら核鑑識分析技術の開発成果を国内外に発信した。さらに、⑥核鑑識の国際的活動を支援した。

① 表面電離型質量分析計(TIMS)を整備し、標準ウラン試料を測定して高精度で同位体

組成を分析できることを確認した。
② イオン交換分離法及び誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS)を用いた不純物元素分析法を検討し、53 元素について分析できる方法を確立した。
開発した方法を用いて、実試料(人形峠ウラン[天然組成ウラン＋低濃縮ウラン])の同位体組成／不純物分析を実施した。
③ 透過型電子顕微鏡(TEM)を整備した。コールドサンプルを用いた粉末の粒子像観察により観察法の最適化を図り、サンプル作成法及びウラン粒子形状観察技術を検討した。
④ ウラン年代測定法として、$^{230}Th/^{234}U$ 同位体比測定法を開発した。ウラン標準試料(CRM U050)を対象とする米国(LLNL)との比較試を実施するとともに、日米の分析方法及び分析データを比較検討した。
⑤ 核鑑識ライブラリのために、核物質の属性の特定に必要なデータ項目の検討及びデータ構造の初期設計を完了するとともに、データ構造評価用のモデルデータベースを構築した。さらに、基本的なデータ操作機能(検索及び可視化)を備えた国内核鑑識ライブラリのプロトタイプを開発した。
実データを用いたプロトタイプの運用テストを実施する目的で、原子力機構が保有する核物質データ収集を開始した(一部の公開データについてはすでに収集済み)。
⑥ 米国や EC/JRC との共同研究を実施するとともに、GICNT、ITWG、IAEA、INMM などの会合に参加し、核鑑識の技術開発指針の策定など国際的連携活動に協力した。

4.5.2 今後の計画

上記基本的分析技術を基盤として、核鑑識ライブラリの高度化を実施するとともに、TEM を用いた高度な核鑑識分析法を開発する。さらに、原子力機構が取扱う核物質を分析してデータベース化を図る。核鑑識技術開発に係る国際協力は、これを継続する。

(1) 核鑑識ライブラリの高度化

・核物質の属性評価手法の高度化：

膨大な核物質分析データ項目から物質の属性を特定する(属性評価する)ための多変量統計解析機能(統計解析評価)や、顕微鏡画像から核物質検索や登録済み画像データ間でのマッチングや差異抽出を行うための画像解析機能(TEM 画像データによる属性評価)をプロトタイプ国内核鑑識ライブラリに組み込む。これらの機能を付加することにより、分析結果などの数値データの統計解析とともに顕微鏡画像などの「目視判断的」解析(画像パターン分析)が可能となる。画像データを数値データと同様に取り扱えるようにするとともに、その有用性を確認するための実証試験を実施する。

核鑑識分析から属性特定までを行う一連の評価過程、すなわち(i)データ検索の検索条件／検索結果、(ii)属性評価に使用したデータ項目、(iii)属性評価作業、 (iv)評価結果を『属性評価記録』 (属性の特定までに必要となった分析項目や分析・属性評価の手順･結果を記録したもの)という形式で知識ベースとして体系的に蓄積する。これらの評価過程のうち、(ii)必要なデータ項目の取捨選択及び (iii)数値データのグラフ化や画像データのマッチング／差異抽出による適切な評価作業は専門的知識が要求されるが、『属性評価記録』に従うことにより評価者の能力に依存しない適切かつ効率的(迅速)な属性評価作業が可能となる。このような知識ベースシステムを基盤とする核鑑識評価システムを開発する。

・放射性物質の核鑑識ライブラリの開発：

医療や産業分野で民生利用される放射性物質(RI)とともに、再処理施設等で発生する複数

の核種の混合物である放射性廃棄物(廃液やスワイプなど)に関する核鑑識ライブラリ(データベース及び属性評価手法)を開発する。RI については既存のデータベースの利用を検討する。放射性廃棄物の属性を特定するためのデータベースは世界的に未整備の状況にあるが、上記の核物質を対象とするプロトタイプ国内核鑑識ライブラリの開発手法を適用してこれを開発する。放射性廃棄物などに含まれる RI に関する最適なデータ項目、データ構造、属性評価手法を検討することは核鑑識上の重要課題の一つであり[注11)]、核物質から独立した放射性物質のデータベースシステムとして構築するが、最終的には双方のデータベースシステムを統合して、総合的な国家核鑑識ライブラリに向けた基盤を開発する。

(2) TEM を用いた高度な核鑑識分析法の開発

核物質の微細組織によるシグネチャ分析法の開発：

現在、電子顕微鏡を用いた核鑑識分析技術として核物質の粒子形状分析技術の確立に向けた技術開発を進めているが、TEM を用いると核物質の結晶構造などの微細組織の分析が可能である。これまで核物質の微細組織をシグネチャとして適用した例はなく[注12)]、また酸化ウランなどの結晶構造等は焼結過程の条件に大きく左右することが知られており、微細組織もまた核物質のシグネチャとして有用性が高いと考えられる。粒子形状分析の場合よりも技術的に困難である結晶構造分析のためのサンプル作成方法及び観察技術を開発する。このためには、FIB(Focused Ion Beam)という機器等を用いてサンプルを薄く(100nm 以下に)削る作業(薄膜化)が必要となるとともに、絞りや試料角度などを調節して回折コントラスト像(欠陥・損傷の観察)、電子回折像(結晶構造の観察)あるいは高分解透過電子像(結晶粒界の観察)を得るための観察技術を適用することになる。

電子エネルギー損失分光法によるシグネチャ分析法の開発：

TEM に附属する電子エネルギー損失分光法(EELS)を使用することにより、核物質に含まれる元素及びそれらの結合状態を分析することが可能である。特に質量分析装置を用いた不純物元素分析技術で分析することが難しい一部の軽元素(水素、炭素、窒素、酸素、フッ素)の分析が可能である。また、核物質に含まれる元素間(例えば、金属元素-軽元素や軽元素-軽元素など)の結合状態を調べることも可能である。これまで、これらの情報を核鑑識分析に応用した例はないが、新たな技術開発として EELS によるシグネチャ分析(軽元素分析と結合状態解析)の可能性を検討する。本技術開発のためにはサンプルを薄膜化する必要があるが、不純物元素の分布状態、あるいはウラン-軽元素や不純物-軽元素間の結合状態などの分析データの取得が期待できる。

(3) 新しい年代測定法の開発及び実試料分析による確証分析

年代測定に関しては、既に $^{230}Th/^{234}U$ 比測定法が開発されているが、核鑑識では多種多様

[注11)] IAEA の核鑑識技術開発指針には、核物質とともに放射性物質（RI）を核鑑識の対象としている。RI は入手の容易さから核物質と同等かそれ以上に不正利用リスクが高いとされている。また、IAEA の不正使用データベース（ITDB）に登録された物質全体のうち約 75%が RI に分類されており、そのうちの 3 分の 1 が『出所不明な放射性物質』に分類されている（2011 年時点）。

[注12)] 核燃料は焼結過程や中性子照射損傷で微細組織が変化することが知られているが、TEM を用いた観察データが極めて少ないことから欧米でもデータベース化に至っていない。IAEA の核鑑識技術開発指針でも TEM によるシグネチャを明確に規定していない。しかし結晶構造などの微細組織情報は核鑑識データとして有用であるため、世界に先駆けて技術開発することは意義がある。

な試料を分析対象とするため必ずしも 1 つの手法では十分でない場合が予想される。特に $^{230}Th/^{234}U$ 比測定の適用にあたっては、ウランの精製時に壊変生成核種 ^{230}Th が完全に分離されていることが理論上の前提であるが、トリウムの分離が不完全であれば年代測定値は不正確な信頼性の低いデータとなってしまう。このため、新たなウラン年代測定法として、$^{231}Pa/^{235}U$ 比測定法を開発することは意義がある。また開発した年代測定法に関しては、実試料分析により技術を検証する。

(4) 国際協力

EC/JRC との核鑑識に関する最新情報交換(ワークショップ開催、AS-2)及びウラン年代測定に関する比較試験($^{230}Th/^{234}U$ 比測定法、AS-3)を、米国とのウラン年代測定法の開発($^{231}Pa/^{235}U$ 比測定法、PAS-19)及び核燃料の特性解析の開発 (PAS-20,29)に関する共同研究を予定している。GICNT、ITWG、IAEA、INMM などの会合に参加し、核鑑識の国際的連携活動への協力を継続するとともに、国際比較試験への参画を通して核鑑識技術の高度化に資する。

5. あとがき

原子力機構では、核鑑識の研究として不法取引や違法行為の際に押収された核物質や放射性物質を分析する技術を開発している。これらの物質の出所、履歴、輸送経路、目的を明らかにするのが核鑑識技術である。押収された物質が自分の国に起源があるか否かも検する。それは、測定されたデータが、犯罪を裁く法廷での証拠となることもあるからである。そのため、分析の信頼性を確保するための品質保証・品質管理が重要となる。このような核鑑識体制の整備は、世界中で進められている。

日本は核鑑識に関する国際協力(米国、欧州、近隣国など)を継続し、常に最新情報を交換・共有して技術開発に反映させることは、犯罪捜査という核鑑識の性質上重要である。さらに各国の関係機関に核鑑識を理解してもらうための啓蒙活動、あるいは人材育成のためのトレーニングを実施する必要がある。日本は IAEA と協力して国際的な核鑑識トレーニング(IAEA 核鑑識入門地域トレーニングコース、平成 24 年 5 月東海村)を実施しているが、今後も継続し、特にアジアを中心とする人材育成を推進すべきである。

核鑑識ライブラリのデータ収集・データベース化あるいは押収試料を対象とした鑑識分析では、分析スキームの標準化や国際比較試験などを通したデータの信頼性が求められる。分析技術を確立して維持し、必要に応じて改良するとともに、常に国際水準の維持を目指す品質保証こそが核鑑識の信頼性向上に寄与することになる。

謝辞

本研究は文部科学省「核セキュリティ強化等推進事業費補助金」により実施したものです。本研究を推進するにあたり、原子力機構の核物質管理科学技術推進部、核不拡散・核セキュリティ総合支援センター、原子力基礎工学研究センター及びプルトニウム燃料技術開発センターの協力を得ました。佐藤兼章氏並びに篠田芳晴氏には分析技術開発を担当していただきました。また米国 DOE の研究者からは多大な助言をいただきました。ここに関係各位のご支援に感謝申し上げます。

参考文献

1) IAEA, “Nuclear Forensics Support,” IAEA Nuclear Security Series NO.2 (2006).
2) TRITON Hardware Manual Revision A – 1250670 (2012).
3) (独)日本原子力研究開発機構,「平成 20～23 年度軽水炉燃焼燃料の核分裂生成核種組成測定試験」平成 21 年度報告書 (2010).
4) T. Yokoyama, A. Makishima and E. Nakamura, “Separation of Thorium and Uranium from Silicate Rock Samples Using Two Commercial Extraction Chromatographic Resins,” Anal. Chem., 71 (1999) 135.
5) E. P. Horowitz, M. L. Dietz, R. Chiarizia, H. Diamond, A. M.Essling, and D. Graczyk, “Separation and Preconcentration of Uranium from Acidic Media by Extraction Chromatography,” Anal. Chim. Acta, 266 (1992) pp.25-37.
6) ASTM C1287-10, “Standard Test Method for Determination of Impurities in Nuclear Grade Uranium Compounds by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry” (ICP-MS による原子炉級 U 化合物中の不純物測定のための標準試験法).
7) ISO 26062:2010: “Nuclear technology - Nuclear fuels - Procedures for the measurement of elemental impurities in uranium- and plutonium-based materials by inductively coupled plasma mass spectrometry” (原子力技術 - 核燃料 - ICP-MS によるウラン及びプルトニウム物質中の不純物元素の測定手順).
8) 久野祐輔, 桜井聡, 堀雅人, “核鑑識技術の確立に向けて”, 日本原子力学会誌, 53 (2011) pp.263-267.
9) K.Mayer, M.Wallenius, I.Ray, “Nuclear forensics –a methodology providing clues on the origin of illicitly trafficked nuclear materials,” *Analyst,* 130, pp.433-441 (2005).
10) 電子顕微鏡学会関東支部（編集）, “電子顕微鏡試料技術集,” (1970).
11) 朝倉健太郎 他, “失敗から学ぶ電子顕微鏡試料作成技法 Q&A,” アグネ承風社 (2006).
12) C.Ruggiero, et al., “Knowledge Capture Toolkit for Nuclear material Forensics,” presentation material by LLNL (2014).
13) D.Ho Mer Lin, et al., “Exploring Spectroscopic and Morphological Data as New Signatures for Uranium Ore Concentrates,” IAEA-CN-218 (2014).
14) Wacker, John F. et. al. “Proposed Framework for National Nuclear Forensics Libraries and International Directions,” PNNL-SA-70589 (2011).
15) IAEA, “Development of National Nuclear Forensics Library,” Draft of IAEA Nuclear Security Series (2013).
16) Private Communication, 2013.
17) Private Communication, 2013.
18) Private Communication, 2014.
19) Heather M. Dion, Private Communication.
20) 尾崎幸洋 他, “化学者のための多変量解析 ケモメトリックス入門,” 講談社 (2002).
21) Borgardt, James D. and Frank M.G. Wong. "Galaxy Serpent: A Web-based Table Top Exercise Utilizing the Concept of Nuclear Forensics Libraries." Journal of Nuclear Materials Management, 42.4 (2014) pp.4-11.
22) 放射線源登録システム, 原子力規制庁 放射線防護対策部 放射線対策・保障措置課 放射線規制室, (https://sengen.nsr.go.jp/Sengen/index.html).

表 1　核鑑識技術開発計画 (平成 23～27 年度)

核鑑識技術	平成23(2011)年度	平成24(2012)年度	平成25(2013)年度	平成26(2014)年度	平成27(2015)年度
全体スケジュール	技術開発・技術の確立			運用・技術の高度化	
核物質等の同位体組成分析技術	設備購入、TIMS 技術開発・予備試験			運用・高度化	
不純物測定技術	技術開発・予備試験			運用・高度化	
粒子形状測定技術		設備購入、TEM 技術開発・予備試験		運用・高度化	
ウラン年代測定	技術開発・予備試験			運用・高度化	
データベース整備、属性評価手法の開発	調査	システム製作 データベースシステム設計・製作	システム改良	データベース運用・データ共有	
会合等への参加	米国等 ITWG,INMM	米国等 ITWG,INMM	米国等 ITWG,INMM	米国等 ITWG,INMM	米国等 ITWG,INMM

表 2　平成 25 年度の核鑑識技術開発計画

核鑑識技術開発ロードマップ(平成25年度)

	平成25年度											
	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月
元素・同位体組成分析	実試料分析											
	標準ウランの分析 ・同位体組成分析 ・不純物分析											
			人形峠ウランの分析・評価 ・人形峠ウラン(NU)の同位体分析 ・形峠ウラン(NU)の不純物分析									
							・人形峠ウラン(LEU)の輸送					
										報告書作成		
ウラン等エージデタミネーション	試料評価・新分析法開発											
	分析結果の評価・分析法の改良 ・230Th/234U法											
					・日米共同分析の比較評価	・分析装置の調整	・分析法の改良					
										新分析法の開発 ・231Pa/235U法の予備検討		
										報告書作成		
粒子形状分析	予備試験・技術開発											
	TEM最適化 ・トレーニング	・動作確認										
			・金単結晶試料観察 ・カーボン・ナノチューブ観察									
						観察技術の開発 ・試料調整方法の検討						
									・UO2模擬試料分析 ・イエローケーキ模擬試料分析			
										・人形峠ウランの分析(＊)		
											報告書作成	
データベース整備	設計・開発											
	設計 ・ライブラリ概念設計 ・国際トレーニング(ITWG)											
			・データベースと操作機能性の検討									
						検索・評価手法の開発 ・データベース設計 ・データ運用システム開発						
										・システム動作確認		
												報告書作成

(＊)ウラン使用許可取得後

表 3　表面電離型質量分析計（TRITON Plus）の仕様

装置構成	
①表面電離型質量分析装置	図 10 参照
②マルチイオンカウンティングパッケージ	図 11 参照
③クライオポンプ	
④冷却水循環装置	
⑤ノイズカットトランス	
⑥サイレントコンプレッサー	
⑦サンプルローディングキット	図 12 参照
⑧フィラメント焼出装置	図 13 参照
⑨試料導入ボックス	図 14 参照
仕様	
①イオン源	表面電離化方式
②回転式サンプルマガジン	1 サンプルマガジン当たり 21 個の試料測定可能
③フィラメント	シングルフィラメント、ダブルフィラメント装着可能
④加速電圧	10 kV（正イオン測定時）
⑤試料導入ボックス接続対応イオン源ハウジング	試料導入ボックス内からのイオン源内部の取扱いが可能
⑥イオン分析部	偏光角 90° 実効起動半径 81 cm
⑦測定質量範囲	3～320
⑧分解能	M/ΔM　＞450（10%谷）
⑨アバンダンス感度	2 ppm 以下（$^{237}U/^{238}U$）
⑩相対マスレンジ	17%（$^{6}Li/^{7}Li$ の同時測定が可能）
⑪ダイナミックズーム	四重極マスフィルタを装備
⑫全自動ターボモレキュラー排気系	
・ロータリーポンプ	モレキュラーシーブトラップ付 5.0 m^3/h
・ターボ分子ポンプ	260 L/min
・イオンポンプ	20 L/sec（分析管及び検出器排気系）

表 3　表面電離型質量分析計（TRITON Plus）の仕様（続き）

仕様	
⑬イオン検出部	
・温度変動幅	±0.01℃以内
・測定モード	コンピュータ制御による正イオン・負イオン選択可能
・検出器構成	ファラデーカップ : 7 基（位置可変式 6 基，位置固定式 1 基）
・マルチイオンカウンティングシステム	位置固定式イオンカウンティング装置 3 基 分離型ダイノード検出器（CCD）2 基 位置固定式低質量側ファラデーカップ　1 基
⑭可変コレクター位置制御	コンピュータ制御
⑮相対マスレンジ	17%
⑯検出器及びアンプ性能（ファラデーカップ及びアンプ仕様）	
・ベースラインノイズ	5×10^{-17}A 以下
・ピーク安定性	±25ppm/30min.以内
・ピーク平坦性	±50ppm 以下
・アンプダイナミックレンジ	+50V/-12V (1011Ω 抵抗装備時)
⑰測定精度（外部精度　1 RSD）	
・^{142}Nd/^{144}Nd に関するトータルエバポレーション法測定	±0.05%以内
・^{235}U/^{238}U に関するトータルエバポレーション法測定	±0.05%以内
・^{86}Sr/^{87}Sr に関する標準測定	±0.0005%以内
・^{143}Nd/^{144}Nd に関する標準測定	±0.0005%以内

表 4　TIMS の性能

項　目	性　能
到達真空度： イオン源部 HV Source Press [mbar] 分析管部 Ion Getter Press [mbar]	 1.60×10^{-8} mbar(5×10^{-8} mbar 以下) 3.27×10^{-9} mbar(5×10^{-9} mbar 以下)
イオン源排気時間： イオン源部の真空排気始動後 1 時間以内の到達真空度	53 分(2×10^{-7} mbar 以下 1 時間以内)
分解能： 2 つのマススペクトル ^{185}Re と ^{187}Re の分解能	490 (450 以上 10%谷) 図 15 参照
外部精度： Nd 標準試料：JNdi-1 を一定量塗布したフィラメント 12 個の同位体比 ^{142}Nd/^{144}Nd をトータルエバポレーション法により測定	サンプル中 10 個の変動係数 0.0022%：1 SD (0.05%：1 RSD) 表 5 参照
装置安定性： Nd 標準試料(JNdi-1)を用いた ^{143}Nd/^{144}Nd の同位体比測定における ^{143}Nd の測定に使用するファラデーカップを移動し、50%ピーク高位置で、スタティック測定を実施した際の変動幅	2.02% 約 6.7 ppm/30 分(±30 ppm/30 分以下) [注釈] 30 ppm = 9% RSD：メーカー規定値 表 6 参照

(　)：判断基準

表 5　Nd 標準試料(Ndi-1)の同位体比 $^{142}Nd/^{144}Nd$ 測定結果

Nd 外部精度（トータルエバポレーション）TRITON Plus　SN00793T	
Ratio / RUN	$^{142}Nd/^{144}Nd$
1	1.1418298
2	1.1418457
3	1.1418416
4	1.1418234
5	1.1418352
6	1.118758
7	1.1418341
8	1.1418696
9	1.1418715
10	1.1418578
11	1.1418981
12	1.1419066

mean (Ext)	1 SD	1 RSD〔%〕	N (M) / N (T)
1.1418559	0.000025	0.002167	10　12

表 6　Nd 標準試料(JNdi-1)の同位体比 $^{143}Nd/^{144}Nd$ 測定結果 (50%ピーク高位置)

Triton **Filename:**
Analysis Data Report **Method Name:**

Sample ID: JNdi-1 **View Mode:** Run-Number-View
Wheel ID: **Evaluation Mode** Dynamic
Run number: 0 **Instrument:**
Comment: **Sample Type:**

Cycle	Time	145Nd	142Nd/144Nd (1)	143Nd/144Nd (2)
435	13:31:36:055	5.3174822E-01	1.1420168E+00	2.3813666E-01
436	13:31:40:253	5.3155466E-01	1.1416241E+00	2.3828873E-01
437	13:31:44:450	5.3157349E-01	1.1417322E+00	2.3908249E-01
438	13:31:48:647	5.3163865E-01	1.1414986E+00	2.3980242E-01
439	13:31:52:844	5.3148694E-01	1.1417848E+00	2.4077501E-01
440	13:31:57:041	5.3140228E-01	1.1417751E+00	2.4059818E-01
441	13:32:01:237	5.3127406E-01	1.1420973E+00	2.4086023E-01
442	13:32:05:434	5.3114583E-01	1.1420100E+00	2.4033094E-01
443	13:32:09:631	5.3109010E-01	1.1417494E+00	2.4043690E-01
444	13:32:13:828	5.3099860E-01	1.1419868E+00	2.3905695E-01
445	13:32:18:026	5.3097454E-01	1.1417279E+00	2.3979334E-01
446	13:32:22:223	5.3088877E-01	1.1417505E+00	2.4095929E-01
447	13:32:26:421	5.3084001E-01	1.1417145E+00	2.4183359E-01
448	13:32:30:618	5.3071812E-01	1.1416418E+00	2.4061243E-01
449	13:32:34:815	5.3056526E-01	1.1418389E+00	2.4041328E-01
450	13:32:39:012	5.3047683E-01	1.1419628E+00	2.4072457E-01
***	Cup	C	L3 | L1	L2 | L1
***	Info	tbdgy	N1e tbdgy - St	N1e tbdgy - St
***	Mean	5.6092285E-01	1.1418154E+00	2.4678542E-01
***	StdErr (%)	2.0744264E-01	5.6280606E-04	9.5286850E-02
***	StdErr (abs)	1.1635932E-03	6.4262063E-06	2.3515405E-04
***	StdDev (%)	4.4005229E+00	1.1938919E-02	2.0213393E+00
***	StdDev (abs)	2.4683539E-02	1.3632042E-04	4.9883708E-03
***	Valid Values	450 (450)	450 (450)	450 (450)

表 7　U500 同位体組成

	^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U
Atom Percent:	0.5181	49.696	0.0755	49.711
Uncertainty:	±0.0008	±0.050	±0.0003	±0.050

表 8　U500 同位体比

	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U/^{238U}$	$^{236}U/^{238}U$
normalizing ratio	0.0104220	0.9996980	0.0015190

Triton Hardware Manual[2)]より

表 9　U050 同位体組成

	^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U
Atom Percent:	0.0279	5.010	0.0480	94.915
Uncertainty:	±0.001	±0.005	±0.0002	±0.005

表 10　U050 同位体比

	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U/^{238}U$	$^{236}U/^{238}U$
normalizing ratio	0.0002939	0.0527840	0.0005057

Triton Hardware Manual[2)]より

表 11　U500 の同位体測定結果

	^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U/^{238}U$	$^{236}U/^{238}U$
1	0.5186	49.699	0.0759	49.707	0.0104333	0.9998462	0.0015278
2	0.5187	49.702	0.0761	49.703	0.0104363	0.9999853	0.0015319
3	0.5187	49.703	0.0760	49.702	0.0104365	1.0000194	0.0015286
4	0.5187	49.700	0.0759	49.706	0.0104348	0.9998875	0.0015272
5	0.5187	49.704	0.0761	49.702	0.0104368	1.0000398	0.0015305
6	0.5187	49.707	0.0760	49.699	0.0104364	1.0001663	0.0015285
7	0.5186	49.699	0.0760	49.706	0.0104335	0.9998476	0.0015285
8	0.5187	49.705	0.0759	49.700	0.0104361	1.0000940	0.0015279
9	0.5185	49.699	0.0759	49.706	0.0104311	0.9998524	0.0015268
10	0.5187	49.710	0.0759	49.696	0.0104369	1.0002793	0.0015283
mean	0.5187	49.703	0.0760	49.703	0.0104352	1.0000018	0.0015286
1SD	0.000070	0.003663	0.000074	0.003710	0.000002	0.000148	0.000002
1RSD	0.014%	0.007%	0.098%	0.007%	0.019%	0.015%	0.099%

表 12　U500 の $^{235}U/^{238}U$ 比の測定誤差

	絶対誤差	相対誤差%
$^{235}U/^{238}U$	0.0003038	0.030%

絶対誤差 = B - A
相対誤差(%) = (B - A) / A ×100
A：標準試料の $^{235}U/^{238}U$ 値
B：測定試料の $^{235}U/^{238}U$ 値

表 13　U050 の同位体測定結果

	^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U/^{238}U$	$^{236}U/^{238}U$
1	0.0280	5.011	0.0481	94.913	0.0002946	0.0527907	0.0005072
2	0.0279	5.011	0.0481	94.913	0.0002937	0.0527910	0.0005066
3	0.0279	5.009	0.0481	94.915	0.0002935	0.0527777	0.0005070
4	0.0279	5.011	0.0484	94.913	0.0002937	0.0527933	0.0005094
5	0.0279	5.011	0.0483	94.913	0.0002936	0.0527960	0.0005091
6	0.0279	5.011	0.0482	94.912	0.0002943	0.0528002	0.0005078
7	0.0278	5.012	0.0482	94.912	0.0002931	0.0528071	0.0005074
8	0.0281	5.011	0.0483	94.912	0.0002959	0.0528005	0.0005084
9	0.0280	5.011	0.0482	94.913	0.0002952	0.0527946	0.0005075
10	0.0279	5.012	0.0482	94.912	0.0002945	0.0528040	0.0005075
mean	0.0279	5.011	0.0482	94.913	0.0002942	0.0527955	0.0005078
1SD	0.000082	0.000746	0.000087	0.000789	0.000001	0.000008	0.000001
1RSD	0.295%	0.015%	0.181%	0.001%	0.295%	0.016%	0.181%

表 14　U050 の $^{235}U/^{238}U$ 比の測定誤差

	絶対誤差	相対誤差
$^{235}U/^{238}U$	0.0000115	0.022%

絶対誤差 = B - A
相対誤差(%) = (B-A) / A×100
A：標準試料の $^{235}U/^{238}U$ 値
B：測定試料の $^{235}U/^{238}U$ 値

表 15　重ウラン酸アンモニウム(ADU)：人形峠ウランの同位体測定結果(a1)

	^{234}U	^{235}U	^{238}U	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U/^{238}U$
1	0.0059794	0.72089	99.27313	0.0000602	0.0072617
2	0.0057474	0.72080	99.27346	0.0000579	0.0072607
3	0.0052868	0.72166	99.27306	0.0000533	0.0072694
mean	0.0056712	0.72111	99.27321	0.0000571	0.0072639
1SD	0.000353	0.000471	0.000212	0.000004	0.000005
1RSD	6.216%	0.065%	0.000%	6.216%	0.065%

表 16　重ウラン酸アンモニウム(ADU)：人形峠ウランの同位体測定結果(b1)

	^{234}U	^{235}U	^{238}U	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U/^{238}U$
1	0.0053855	0.72044	99.27417	0.0000542	0.0072571
2	0.0051380	0.71967	99.27519	0.0000518	0.0072493
3	0.0064811	0.72017	99.27335	0.0000653	0.0072544
mean	0.0056682	0.72010	99.27423	0.0000571	0.0072536
1SD	0.000715	0.000390	0.000922	0.000007	0.000004
1RSD	12.610%	0.054%	0.001%	12.611%	0.055%

表 17　重ウラン酸アンモニウム(ADU)：海水抽出ウランの同位体測定結果(a2)

	^{234}U	^{235}U	^{238}U	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U/^{238}U$
1	0.0065265	0.72052	99.27296	0.0000657	0.0072579
2	0.0063037	0.72052	99.27318	0.0000635	0.0072579
3	0.0066259	0.72039	99.27298	0.0000667	0.0072567
4	0.0063100	0.72093	99.27276	0.0000636	0.0072621
5	0.0062223	0.72100	99.27278	0.0000627	0.0072628
mean	0.0063977	0.72067	99.27293	0.0000644	0.0072595
1SD	0.000170	0.000275	0.000172	0.000002	0.000003
1RSD	2.661%	0.038%	0.000%	2.661%	0.038%

表 18　重ウラン酸アンモニウム(ADU)：海水抽出ウランの同位体測定結果(b2)

	^{234}U	^{235}U	^{238}U	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U/^{238}U$
1	0.0070923	0.72134	99.27156	0.0000714	0.0072664
2	0.0061879	0.72113	99.27268	0.0000623	0.0072641
3	0.0062933	0.72087	99.27284	0.0000634	0.0072615
4	0.0064297	0.72084	99.27273	0.0000648	0.0072612
5	0.0063333	0.72092	99.27274	0.0000638	0.0072621
mean	0.0064673	0.72102	99.27251	0.0000651	0.0072630
1SD	0.000360	0.000213	0.000533	0.000004	0.000002
1RSD	5.566%	0.030%	0.001%	5.567%	0.030%

表 19 イエローケーキ(YC)：外国産ウランの同位体測定結果(a3)

	^{234}U	^{235}U	^{238}U	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U/^{238}U$
1	0.0057597	0.72063	99.27361	0.0000580	0.0072590
2	0.0052686	0.72056	99.27417	0.0000531	0.0072583
3	0.0056459	0.71994	99.27441	0.0000569	0.0072521
4	0.0054535	0.72018	99.27437	0.0000549	0.0072544
5	0.0054726	0.72067	99.27386	0.0000551	0.0072594
mean	0.0055200	0.72040	99.27408	0.0000556	0.0072566
1SD	0.000189	0.000320	0.000343	0.000002	0.000003
1RSD	3.428%	0.044%	0.000%	3.428%	0.045%

表 20　イエローケーキ(YC)：外国産ウランの同位体測定結果(b3)

	^{234}U	^{235}U	^{238}U	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U/^{238}U$
1	0.0054819	0.72025	99.27427	0.0000552	0.0072552
2	0.0054185	0.72015	99.27443	0.0000546	0.0072542
3	0.0053210	0.71996	99.27472	0.0000536	0.0072522
4	0.0052538	0.72020	99.27455	0.0000529	0.0072546
5	0.0056404	0.72006	99.27430	0.0000568	0.0072532
mean	0.0054231	0.72012	99.27445	0.0000546	0.0072539
1SD	0.000150	0.000116	0.000186	0.000002	0.000001
1RSD	2.763%	0.016%	0.000%	2.763%	0.016%

表 21　三酸化ウラン(UO_3)：低濃縮ウランの同位体測定結果(A1)

	^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U/^{238}U$	$^{236}U/^{238}U$
1	0.0152	1.186	0.1873	98.611	0.0001541	0.0120317	0.0018994
2	0.0151	1.186	0.1873	98.611	0.0001534	0.0120288	0.0018998
3	0.0149	1.187	0.1873	98.611	0.0001506	0.0120351	0.0018996
4	0.0149	1.187	0.1872	98.611	0.0001516	0.0120330	0.0018981
5	0.0150	1.187	0.1872	98.611	0.0001522	0.0120327	0.0018983
mean	0.0150	1.187	0.1873	98.611	0.0001524	0.0120323	0.0018990
1SD	0.000137	0.000224	0.000080	0.000148	0.000001	0.000002	0.000001
1RSD	0.914%	0.019%	0.043%	0.000%	0.914%	0.019%	0.043%

表 22　三酸化ウラン(UO_3)：低濃縮ウランの同位体測定結果(B1)

	^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U/^{238}U$	$^{236}U/^{238}U$
1	0.0149	1.186	0.1873	98.612	0.0001511	0.0120279	0.0018998
2	0.0150	1.186	0.1872	98.612	0.0001521	0.0120273	0.0018980
3	0.0150	1.186	0.1874	98.611	0.0001524	0.0120280	0.0019005
4	0.0150	1.186	0.1873	98.612	0.0001520	0.0120288	0.0018990
5	0.0150	1.186	0.1872	98.612	0.0001524	0.0120268	0.0018979
mean	0.0150	1.186	0.1873	98.612	0.0001520	0.0120278	0.0018990
1SD	0.000055	0.000072	0.000111	0.000155	0.000001	0.000001	0.000001
1RSD	0.365%	0.006%	0.059%	0.000%	0.365%	0.006%	0.059%

表 23　四フッ化ウラン(UF_4)：低濃縮ウランの同位体測定結果(A2)

	^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U/^{238}U$	$^{236}U/^{238}U$
1	0.0129	1.008	0.2111	98.768	0.0001308	0.0102070	0.0021372
2	0.0131	1.009	0.2111	98.767	0.0001327	0.0102117	0.0021373
3	0.0131	1.009	0.2114	98.767	0.0001326	0.0102143	0.0021402
4	0.0131	1.009	0.2113	98.767	0.0001331	0.0102137	0.0021391
5	0.0130	1.008	0.2112	98.768	0.0001315	0.0102077	0.0021386
mean	0.0131	1.009	0.2112	98.767	0.0001322	0.0102109	0.0021385
1SD	0.000095	0.000328	0.000125	0.000505	0.000001	0.000003	0.000001
1RSD	0.728%	0.033%	0.059%	0.001%	0.729%	0.033%	0.059%

表 24　四フッ化ウラン(UF_4)：低濃縮ウランの同位体測定結果(B2)

	^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U/^{238}U$	$^{236}U/^{238}U$
1	0.0131	1.009	0.2115	98.767	0.0001325	0.0102111	0.0021416
2	0.0130	1.009	0.2116	98.767	0.0001312	0.0102139	0.0021421
3	0.0128	1.009	0.2116	98.767	0.0001297	0.0102121	0.0021421
4	0.0131	1.009	0.2115	98.767	0.0001324	0.0102113	0.0021419
5	0.0130	1.009	0.2115	98.767	0.0001312	0.0102166	0.0021412
mean	0.0130	1.009	0.2115	98.767	0.0001314	0.0102130	0.0021418
1SD	0.000112	0.000223	0.000039	0.000192	0.000001	0.000002	0.000000
1RSD	0.865%	0.022%	0.018%	0.000%	0.865%	0.022%	0.018%

表 25　八酸化三ウラン(U_3O_8)：劣化ウランの同位体測定結果(A3)

	^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U/^{238}U$	$^{236}U/^{238}U$
1	0.0012	0.244	0.0025	99.753	0.0000119	0.0024416	0.0000249
2	0.0008	0.244	0.0025	99.753	0.0000083	0.0024422	0.0000247
3	0.0011	0.244	0.0024	99.753	0.0000106	0.0024420	0.0000242
4	0.0006	0.244	0.0037	99.751	0.0000063	0.0024479	0.0000374
5	0.0011	0.244	0.0024	99.753	0.0000115	0.0024424	0.0000236
mean	0.0010	0.244	0.0027	99.753	0.0000097	0.0024432	0.0000270
1SD	0.000235	0.000260	0.000584	0.000660	0.000002	0.000003	0.000006
1RSD	24.218%	0.107%	21.712%	0.001%	24.218%	0.107%	21.713%

表 26　八酸化三ウラン(U_3O_8)：劣化ウランの同位体測定結果(B3)

	^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U/^{238}U$	$^{236}U/^{238}U$
1	0.0012	0.244	0.0027	99.752	0.0000120	0.0024447	0.0000269
2	0.0011	0.244	0.0026	99.753	0.0000110	0.0024424	0.0000256
3	0.0012	0.243	0.0026	99.753	0.0000117	0.0024410	0.0000263
4	0.0012	0.244	0.0025	99.753	0.0000119	0.0024436	0.0000250
5	0.0011	0.243	0.0025	99.753	0.0000115	0.0024399	0.0000252
mean	0.0012	0.244	0.0026	99.753	0.0000116	0.0024423	0.0000258
1SD	0.000041	0.000190	0.000078	0.000255	0.000000	0.000002	0.000001
1RSD	3.555%	0.078%	3.037%	0.000%	3.555%	0.078%	3.037%

表 27　二酸化ウラン(UO_2)：劣化ウランの同位体測定結果(A4)

	^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U/^{238}U$	$^{236}U/^{238}U$
1	0.0080	0.575	0.1143	99.303	0.0000803	0.0057922	0.0011511
2	0.0081	0.575	0.1144	99.302	0.0000818	0.0057933	0.0011518
3	0.0080	0.575	0.1144	99.302	0.0000805	0.0057951	0.0011518
4	0.0078	0.575	0.1143	99.302	0.0000790	0.0057948	0.0011512
5	0.0081	0.575	0.1143	99.303	0.0000814	0.0057901	0.0011512
mean	0.0080	0.575	0.1143	99.302	0.0000806	0.0057931	0.0011514
1SD	0.000109	0.000201	0.000035	0.000197	0.000001	0.000002	0.000000
1RSD	1.360%	0.035%	0.031%	0.000%	1.360%	0.035%	0.031%

表 28　二酸化ウラン(UO_2)：劣化ウランの同位体測定結果(B4)

	^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U	$^{234}U/^{238}U$	$^{235}U/^{238}U$	$^{236}U/^{238}U$
1	0.0078	0.568	0.1133	99.311	0.0000786	0.0057201	0.0011405
2	0.0076	0.568	0.1131	99.311	0.0000769	0.0057183	0.0011386
3	0.0078	0.568	0.1130	99.311	0.0000785	0.0057183	0.0011382
4	0.0080	0.568	0.1132	99.311	0.0000802	0.0057198	0.0011402
5	0.0079	0.568	0.1131	99.311	0.0000791	0.0057194	0.0011391
mean	0.0078	0.568	0.1131	99.311	0.0000787	0.0057192	0.0011393
1SD	0.000117	0.000084	0.000099	0.000266	0.000001	0.000001	0.000001
1RSD	1.497%	0.015%	0.087%	0.000%	1.497%	0.015%	0.087%

表 29　不純物分析の検討対象元素

周期＼族	1族	2族	3族	4族	5族	6族	7族	8族	9族	10族	11族	12族	13族	14族	15族	16族	17族	18族
第1周期	~~1H~~																	2He
第2周期	3Li	4Be											5B	~~6C~~	~~7N~~	~~8O~~	~~9F~~	10Ne
第3周期	~~11Na~~	12Mg											13Al	14Si	15P	16S	~~17Cl~~	18Ar
第4周期	~~19K~~	20Ca	21Sc	22Ti	23V	24Cr	25Mn	26Fe	27Co	28Ni	29Cu	30Zn	31Ga	32Ge	33As	34Se	35Br	36Kr
第5周期	37Rb	38Sr	39Y	40Zr	41Nb	42Mo	~~43Tc~~	44Ru	45Rh	46Pd	47Ag	48Cd	49In	50Sn	51Sb	52Te	~~53I~~	54Xe
第6周期	55Cs	56Ba	ランタノイド	72Hf	73Ta	74W	75Re	76Os	77Ir	78Pt	79Au	80Hg	81Tl	82Pb	83Bi	~~84Po~~	~~85At~~	~~86Rn~~
第7周期	~~87Fr~~	~~88Ra~~	アクチノイド															

ランタノイド	57La	58Ce	59Pr	60Nd	~~61Pm~~	62Sm	63Eu	64Gd	65Tb	66Dy	67Ho	68Er	69Tm	70Yb	71Lu
アクチノイド	~~89Ac~~	90Th	~~91Pa~~	92U											

× ：ICP-MSで測定不可
＼：ICP-MSで測定可能だが検討対象元素から除外

表 30　不純物の組成分析のために用いた標準溶液

標準溶液名	元素数 （元素名）	ラベル値及び マトリックス
a) 米国 SPEX 社混合標準溶液 XSTC-1	16 元素 （希土類元素：Sc, Y, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu）	10 mg/L, 5% HNO_3 溶液
b) 米国 SPEX 社混合標準溶液 XSTC-7	10 元素 (Au, Ir, Pd, Pt, Rh, Ru, Sn, Te, Hf, Sb）	10 mg/L, 10% HCl/1% HNO_3 溶液
c) 米国 SPEX 社混合標準溶液 XSTC-8	13 元素 （B, C, Ge, Mo, Nb, P ,S, Si, Ta, Ti, W, Zr, Re）	10 mg/L, H_2O/trHF 溶液
d) 米国 SPEX 社混合標準溶液 XSTC-13	31 元素 （Ag, Al, As, Ba, Be, Bi, Ca, Cd, Co, Cr, Cs, Cu, Fe, Ga, In, K, Li, Mg, Mn, Na, Ni, Pb, Rb, Se, Sr, Th, Tl, V, Zn, U, Hg）	10 mg/L, 5% HNO_3 溶液
e) 米国 SPEX 社混合標準溶液 XSTC-125	11 元素 （Al, Ca, Cr, Cu, Fe, K, Mg, Mn, Na, Ni, Zn）	1 mg/L, 5% HNO_3 溶液
f) 米国 SPEX 社製 Sc 標準溶液	1 元素 （Sc）	1000 μg/mL, 2% HNO_3 溶液
g) 米国 SPEX 社製 Ca 標準溶液	1 元素 （Ca）	1000 μg/mL, 2% HNO_3 溶液
h) 米国 SPEX 社製 Fe 標準溶液	1 元素 （Fe）	1000 μg/mL, 2% HNO_3 溶液
i) 米国 SPEX 社製 Se 標準溶液	1 元素 （Se）	1000 μg/mL, 2% HNO_3 溶液
j) 独国メルク社製 Os 標準溶液(ヘキサクロロオスミウム酸(IV)アンモニウム）	1 元素 （Os）	1000 μg/mL, 7% HCl 溶液

表 31　分析可能元素とそれらの定量下限

元素	測定質量数 (m/z)	ICP-MSの定量下限*1 (ng/ml)	定量下限*2 (μg/g)	元素	測定質量数 (m/z)	ICP-MSの定量下限*1 (ng/ml)	定量下限*2 (μg/g)
Li	7	0.05	3	Sn	118	0.06	3
Be	9	0.02	1	Sb	121	0.02	1
Ca	43	10	500	Te	125	0.2	10
Sc	45	0.005	0.3	Cs	133	0.01	0.5
Ti	47	0.3	15	Ba	137	0.06	3
V	51	0.02	1	La	139	0.004	0.2
Cr	52	0.1	5	Ce	140	0.005	0.3
Mn	55	0.07	4	Pr	141	0.002	0.1
Fe	57	2	100	Nd	146	0.01	0.5
Co	59	0.02	1	Sm	147	0.02	1
Ni	60	0.05	3	Eu	153	0.003	0.2
Cu	63	0.03	2	Gd	157	0.007	0.4
Zn	66	0.3	15	Tb	159	0.004	0.2
Ga	69	0.03	2	Dy	163	0.005	0.3
Ge	74	0.2	10	Ho	165	0.001	0.1
As	75	0.08	4	Er	166	0.003	0.2
Se	82	2	100	Tm	169	0.003	0.2
Rb	85	0.02	1	Yb	172	0.003	0.2
Sr	88	0.02	1	Lu	175	0.003	0.2
Y	89	0.003	0.2	Hf	178	0.008	0.4
Nb	93	0.03	2	W	182	0.01	0.5
Mo	95	0.04	2	Re	185	0.01	0.5
Ru	101	0.02	1	Ir	193	0.003	0.2
Rh	103	0.01	0.5	Tl	205	0.02	1
Ag	107	0.02	1	Pb	208	0.03	2
Cd	111	0.06	3	Bi	209	0.02	1
In	115	0.01	0.5				

*1: ブランク溶液を測定した際に得られる信号強度の標準偏差の10倍に相当する信号強度を与える濃度
*2: 分析供試料を10mgとしたとき

表 32　不確かさの要因

1) 測定試料の調製の不確かさ			
(1)試料秤量の不確かさ	①天秤の不確かさ	②天秤の繰り返し秤量の不確かさ	
(2)50mlメスフラスコのメスアップの不確かさ	①目盛線の不確かさ	②メスアップの不確かさ	③実験室の温度の影響の不確かさ
(3)0.1～1ml容量可変ピペットの不確かさ	①目盛の不確かさ	②分取の不確かさ	③実験室の温度の影響の不確かさ
(4)10mlメスフラスコのメスアップの不確かさ	①目盛線の不確かさ	②メスアップの不確かさ	③実験室の温度の影響の不確かさ
2) 検量線用標準液の不確かさ			
(1)検量線用中間標準液の不確かさ			
(1)-1中間標準液10ng/mlの不確かさ	①標準原液の不確かさ	②0.01～0.1mll容量可変ピペットの不確かさ ②-1目盛の不確かさ ②-2分取の不確かさ ②-3実験室の温度の影響の不確かさ	③100mlメスフラスコのメスアップの不確かさ ③-1目盛線の不確かさ ③-2メスアップの不確かさ ③-3実験室の温度の影響の不確かさ
(1)-2中間標準液100ng/mlの不確かさ	①標準原液の不確かさ	②0.1～1ml容量可変ピペットの不確かさ ②-1目盛の不確かさ ②-2分取の不確かさ ②-3実験室の温度の影響の不確かさ	③100mlメスフラスコのメスアップの不確かさ ③-1目盛線の不確かさ ③-2メスアップの不確かさ ③-3実験室の温度の影響の不確かさ
(2)検量線用標準液0～5ng/mlの不確かさ	①容量可変ピペットの不確かさ ①-1 0.1～1ml容量可変ピペットの不確かさ ①-1-1目盛の不確かさ ①-1-2分取の不確かさ ①-1-3実験室の温度の影響の不確かさ ①-2 0.5～2.5ml容量可変ピペットの不確かさ ①-2-1目盛の不確かさ ①-2-2分取の不確かさ ①-2-3実験室の温度の影響の不確かさ ①-3 0.5-5ml容量可変ピペットの不確かさ ①-3-1目盛の不確かさ ①-3-2分取の不確かさ ①-3-3実験室の温度の影響の不確かさ	②50mlメスフラスコのメスアップの不確かさ ②-1目盛線の不確かさ ②-2メスアップの不確かさ ②-3実験室の温度の影響の不確かさ	
3) 検量線から求めた濃度の不確かさ			
4) ICP-MSの繰り返し測定の不確かさ			
要因として取り上げなかった項目	①サンプリング　②カラム操作における回収率　③試薬中の不純物　④使用する器具や環境からの汚染		

表 33　標準液の調製

種類	標準原液 10 mg/L	中間標準液 10 ng/mL	検量線濃度段階　(ng/mL)			
			0	0.05	0.5	1
ピペット採取液量　(mL)	―	0.1	0	0.25	2.5	5
メスフラスコ	―	100	50	50	50	50
不確かさ	証明書	希釈に用いる容量可変ピペット及びメスフラスコ				

種類	標準原液 10 mg/L	中間標準液 100 ng/mL	検量線濃度　(ng/mL)
			5
ピペット採取液量　(mL)	―	1	2.5
メスフラスコ	―	100	50
不確かさ	証明書	希釈に用いる容量可変ピペット及びメスフラスコ	

表 34　検量線用標準液の不確かさ

不確かさ	標準原液 10 mg/L	中間標準液 10 ng/mL	中間標準液 100 ng/mL (5 ng/mL 作製用)	検量線濃度段階 (ng/mL)				
				0	0.05	0.5	1	5
標準液	-	0.254%		-	0.543%			0.473%
ピペット	-	0.468%	0.384%	-	1.735%	0.399%	0.470%	0.399%
メスフラスコ	-	0.107%	0.107%	0.099				
合成相対不確かさ	0.254%	0.543%	0.473%	-	1.821%	0.681%	0.725%	0.627%

表 35　Cr 測定結果

検量線標準液濃度 x_i (ng/mL)	0	0.05	0.5	1	5
ICP-MS 強度比　y_u	0.00810	0.0110	0.0538	0.101	0.485

表 36　標準添加回収試験の結果

元素	回収率 (%)		元素	回収率 (%)		元素	回収率 (%)		元素	回収率 (%)	
	樹脂製	ガラス製		樹脂製	ガラス製		樹脂製	ガラス製		樹脂製	ガラス製
Li	99	103	Ga	102	104	Sn	112	119	Tm	102	101
Be	99	105	Ge	96	20	Sb	99	55	Yb	102	103
B	～0	--	As	104	110	Te	99	91	Lu	101	102
Mg	--	--	Se	97	100	Cs	102	102	Hf	96	102
Al	--	--	Rb	103	104	Ba	103	106	Ta	33	0
Ca	112	--	Sr	103	105	La	101	102	W	95	76
Sc	104	102	Y	102	102	Ce	105	104	Re	97	100
Ti	103	--	Zr	75	--	Pr	101	100	Os	～0	～0
V	104	103	Nb	83	32	Nd	102	103	Ir	95	98
Cr	117	129	Mo	98	81	Sm	100	101	Pt	76	108
Mn	108	101	Ru	100	86	Eu	102	100	Au	1	9
Fe	99	101	Rh	96	98	Gd	102	100	Tl	98	102
Co	101	102	Pd	13	90	Tb	101	100	Pb	96	--
Ni	99	113	Ag	102	97	Dy	99	101	Bi	99	101
Cu	101	98	Cd	97	101	Ho	101	101	Th	15	27
Zn	109	--	In	100	100	Er	102	104			

--：器具からの溶出あるいは分析環境からの汚染によりブランク試料に高い数値が検出された。

表 37　定量可能元素　（樹脂製器具を使用した場合）

Li	○	Ga	○	Sn	○	Tm	○
Be	○	Ge	○	Sb	○	Yb	○
B	−−	As	○	Te	○	Lu	○
Mg	−−	Se	○	Cs	○	Hf	○
Al	−−	Rb	○	Ba	○	Ta	−−
Ca	○	Sr	○	La	○	W	○
Sc	○	Y	○	Ce	○	Re	○
Ti	○	Zr	−−	Pr	○	Os	−−
V	○	Nb	○	Nd	○	Ir	○
Cr	○	Mo	○	Sm	○	Pt	−−
Mn	○	Ru	○	Eu	○	Au	−−
Fe	○	Rh	○	Gd	○	Tl	○
Co	○	Pd	−−	Tb	○	Pb	○
Ni	○	Ag	○	Dy	○	Bi	○
Cu	○	Cd	○	Ho	○	Th	−−
Zn	○	In	○	Er	○		

表 38 実試料の分析結果

［μg/g］

試料	バッチNo.	化学形態	ウラン含有量 (wt%)	U235 (%)	分析番号	採取量 (mg)	分析供試料*1 (mg)	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	As	Nb	Mo	Sn	W	Pb
人形峠NU	SYPYJ231	ADU*2	66.490	天然 0.711	1-1	33.5	10.05	48	*	*	*	390	1.2	7.3	*	*	7.2	*	66	*	*	1.7
					1-2	38.9	11.67	48	*	*	*	380	1.2	5.5	*	*	7.5	*	64	2.8	*	*
					1-3	36.7	11.01	47	*	*	*	390	*	4.8	*	*	7.0	*	61	*	*	*
					1-4	37.7	10.93	47	*	*	*	390	1.1	5.0	*	*	7.1	*	61	*	*	*
海水抽出NU	SYOYCJ04	ADU*2	66.037	天然 0.711	2-1	27.1	8.13	2500	25	7.0	*	*	*	30	33	40	*	*	3.0	*	*	*
					2-2	24.5	7.35	2500	25	5.0	*	*	*	29	32	39	*	*	3.1	*	*	*
外国産NU	SYPYT001	YC*3	84.323	天然 0.711	3-1	26.0	7.80	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	12	*	*	*
					3-2	38.3	8.81	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	12	*	*	*
人形峠DU	PDU59J1K	U_3O_8	83.750	劣化 0.241	4-1	33.1	8.94	*	*	7.9	*	*	1.8	6.3	3.9	*	*	*	*	*	21	*
					4-2	51.8	8.81	*	*	6.5	*	*	1.7	5.9	2.8	*	*	*	*	*	11	*
人形峠DU	S-22-2K	UO_2	88.150	劣化 0.650	5-1	39.6	8.32	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*
					5-2	47.3	8.04	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*
人形峠EU	PC40352K	UO_3	75.420	濃縮 1.171	6-1	30.1	9.93	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*
					6-2	26.5	9.81	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*
人形峠EU	CTFEU6K	UF_4	74.370	濃縮 0.996	7-1	29.8	9.83	*	*	800	53	2100	7.0	3900	15	*	*	8.9	5.1	*	*	*
					7-2	34.2	9.58	*	1.8	1100	63	2700	8.0	5200	17	*	*	7.2	15	*	*	*

*1：採取試料を溶解し、その溶液の一部を分析に供した。
*2：重ウラン酸アンモニウム $(NH_4)_2U_2O_7$
*3：イエローケーキ
＊：検出下限以下

表 39　ウラン標準物質 U-050 の精製年代推定結果

研究グループ	精製年代推定結果（±誤差）
ロスアラモス国立研究所 (LANL)	1956年 6月 22日　（±365 日）
ローレンスリバモア国立研究所 (LLNL)	1957年 3月 5日　（±30 日）
日本原子力研究開発機構 (JAEA)	1957年 7月 31日　（±218 日）

表 40　核鑑識ライブラリにおける核物質データベースのデータソース

データソースの種類	データ内容
報告書、論文、申請書など	● 核燃料の規格 ● 核燃料の品質検査基準及び検査データ ● 燃料使用施設(臨界集合体・研究炉等)の情報 ● 燃料製造施設・製造プロセスの情報
データベース	● 核燃料の照射後試験データ ● 計量管理データ
シミュレーション	● 照射済燃料中の核種組成など

表 41 核鑑識ライブラリの要求項目とそれを満たすのに必要な情報の種類

要求項目	必要となる情報
核物質の属性 （出所・履歴など）の特定	• 製造・使用履歴 （製造・使用施設、製造プロセス、製造期間、使用目的、輸送・保管履歴、他） • 核物質の外観（形状、寸法など） • 核物質の特性（元素、同位体、化学形態、物理形態など） • 容器の情報
サンプル・分析データの 蓄積と解釈	• 分析サンプルの情報（回収・輸送・保管の履歴など） • 分析の情報（分析目的、分析者、機関、施設、日時、手法、機器など） • 分析データ （形状、化学分析、物理形態分析、元素、同位体、微細構造、放射能、分析精度など） • 分析データに基づく解析データ（燃焼度解析、年代測定など）

表 42　シグネチャとなる核物質特性の例

Process	Target Material	Material Key Caracteristics					
		Physical	Chemical	Elemental	Isotopic	Microscopic	Others
Uranium Mining/Miling	Uranium Ore (Powder)	Density, Radioactivity, Friability, Reflected Color, Tyransmitted Color, Absorbancy	Chemical Form/Compound, Homogeneity	Fe, Zr, As, V, Ti, Cr, Y, K, Ca, Ce, U, P, H, O, Th…	U234/U235/(U236)/U238	Crystal Structure, Powder Av., Max., Min. Sizes, Powder Shape Homogeneity, Powder Aspect Ratio	
Uranium Smelting	ADU, SDU	Density, Radioactivity, Reflected Color, Tyransmitted Color, Absorbancy	Chemical Form/Compound, Homogeneity, Water Amount	U, V (V2O5), P (PO4), F, Mo, S (SO4), Fe, As, C (CO3), Ca, Na, B, K, Ti, Zr, Si (SiO2), Mg, Th, Ra, H2O…	U234/U235/(U236)/U238, U234/Th230, U235/Pa231, (U236/Th232)	Powder Av., Max., Min. Sizes, Powder Shape Homogeneity, Powder Aspect Ratio	Container (Drum)
Uranium Conversion/Enrichment	UO3, UO2, UF4, UF6, U3O8, U-Metal	Density, Radioactivity, Reflected Color, Tyransmitted Color, Absorbancy	Chemical Form/Compound, Homogeneity	F, Al, Ba, Bl, Ca, Ce, Cr, Fe, K, La, Mg, Mn, Mo, Na, Nb, Nd, Ni, P, Pb, Pr, Sr, Th, Tl, W, Y, Yb, Ru, Zn, Zr, Dy, Dr, Hf, Ho, La, Tb, B, U…	U234/U235/(U236)/U238, U234/Th230, U235/Pa231, (U236/Th232)	Powder Av., Max., Min. Sizes, Powder Shape Homogeneity, Powder Aspect Ratio	Container
Uranium Reconversion	ADU, UO2, U-Metal	Density, Radioactivity, Reflected Color, Tyransmitted Color, Absorbancy	Chemical Form/Compound, Homogeneity	F, Al, Ba, Bl, Ca, Ce, Cr, Fe, K, La, Mg, Mn, Mo, Na, Nb, Nd, Ni, P, Pb, Pr, Sr, Th, Tl, W, Y, Yb, Ru, Zn, Zr, Dy, Dr, Hf, Ho, La, Tb, B, U…	U234/U235/(U236)/U238, U234/Th230, U235/Pa231, (U236/Th232)	Powder Av., Max., Min. Sizes, Powder Shape Homogeneity, Powder Aspect Ratio, Weld	Container
Uranium Fuel Fabrication	UO2 Powder, Pellet, Cladding	Dimension, Density, Radioactivity, Reflected Color, Tyransmitted Color, Absorbancy, Cladding, O/M, Porosity、Mecanical Property, Corrosion	Chemical Form/Compound, Homogeneity, Inclusions (Organic Substance), Water Amount	U [Gd (Gd2O3), F, Al, Ba, Bl, Ca, Ce, Cr, Fe, K, La, Mg, Mn, Mo, Na, Nb, Nd, Ni, P, Pb, Pr, Sr, Th, Tl, W, Y, Yb, Ru, Zn, Zr, Dy, Dr, Hf, Ho, La, Tb, B, U …], Cladding [Sn, Fe, Cr, Ni, Fe+Cr, Fe+Cr+Ni, O, Al, B, Ca, Cd, C, Co, Cu, Hf, H, Mg, Mn, Mo, Ni, Nb, N, Si, Ti, W, U...]	U234/U235/(U236)/U238, U234/Th230, U235/Pa231, (U236/Th232), O16/O18	Surface Roughness, Weld	Container, Model No., Serial No., He Pressure (Rod)

表 42　シグネチャとなる核物質特性の例 (続き)

Process	Target Material	Material Key Caracteristics					
		Physical	Chemical	Elemental	Isotopic	Microscopic	Others
Uranium Fresh Fuel Assembly	Fresh Fuel Components	Dimension, Density, Radioactivity, Reflected Color, Tyransmitted Color, Absorbancy, Cladding, O/M, Porosity、Mecanical Property, Corrosion	Chemical Form/Compound, Homogeneity, Inclusions (Organic Substance), Water Amount	U [Gd (Gd2O3), F, Al, Ba, Bl, Ca, Ce, Cr, Fe, K, La, Mg, Mn, Mo, Na, Nb, Nd, Ni, P, Pb, Pr, Sr, Th, Tl, W, Y, Yb, Ru, Zn, Zr, Dy, Dr, Hf, Ho, La, Tb, B, U …], Other Components [Sn, Fe, Cr, Ni, Fe+Cr, Fe+Cr+Ni, O, Al, B, Ca, Cd, C, Co, Cu, Hf, H, Mg, Mn, Mo, Ni, Nb, N, Si, Ti, W, U...]	U234/U235/(U236)/U238, U234/Th230, U235/Pa231, (U236/Th232), O16/O18	Surface Roughness, Weld	Container (Cask), Model No., Serial No., He Pressure (Rod)
Spent Fuel	Spent Fuel Components, Cask	Dimension, Density, Radioactivity, Reflected Color, Tyransmitted Color, Absorbancy, Porosity、Corrosion, Decay Heat		U, Pu, Np, Am, Cm, Ce, B, Kr, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, In, Sn, Sb, Te, I, Xe, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Tl, Dy, Clad (Fe, Co...)	U234/U235/U236/U238, Pu238/Pu239/Pu240/Pu241/Pu242, Pu241/Am241, Pu238/U234, Pu240/U236, Pu239/U235, Clad (Fe59, Co60)		Container (Cask), Model No., Serial No.
Reprocessing	UO3, UO2, PuO2, MOX, Actinides	Density, Radioactivity, Reflected Color, Tyransmitted Color, Absorbancy, Decay Heat	Chemical Form/Compound, Homogeneity, Inclusions (Organic Substance), Water Amount	U, Pu, Np, Am, Cm, F, Cl, Cr, Ni, Ti, Dy, Ed, Gd, Sm, Fe, Ni, Cd, Co, B, Ag, Mn, Si, Al, Ns, Sn, Cu, Pb, V, Mg, Mo, Zn, C, S, P, Eu, Sm, Sr, Ca, Li, Na …	U234/U235/U236/U238, Pu238/Pu239/Pu240/Pu241/Pu242, Pu241/Am241, Pu238/U234, Pu240/U236, Pu239/U235	Powder Av., Max., Min. Sizes, Powder Shape Homogeneity, Powder Aspect Ratio	Container
MOX Fuel Fabrication	MOX Powder, Pellet, Cladding	Dimension, Density, Radioactivity, Reflected Color, Tyransmitted Color, Absorbancy, Cladding, O/M, Porosity、Mecanical Property, Corrosion, Decay Heat	Chemical Form/Compound, Inclusions (Organic Substance), Water Amount	U, Pu, Np, Am, Cm, F, Cl, Cr, Ni, Ti, Dy, Ed, Gd, Sm, Fe, Ni, Cd, Co, B, Ag, Mn, Si, Al, Ns, Sn, Cu, Pb, V, Mg, Mo, Zn, C, S, P, Eu, Sm, Sr, Ca, Li, Na …	U234/U235/U236/U238, Pu238/Pu239/Pu240/Pu241/Pu242, Pu241/Am241, Pu238/U234, Pu240/U236, Pu239/U235	Surface Roughness, Powder Av., Max., Min. Sizes, Powder Shape Homogeneity, Powder Aspect Ratio, Plutonium Spot	Container, Model No., Serial No., He Pressure (Rod)
Nuclear Waste	TRU, FP, Hul, Liquid Waste, Other Solid Waste	Density, Radioactivity, Reflected Color, Tyransmitted Color, Absorbancy, Corrosion, Decay Heat	Chemical Form/Compound, Homogeneity, Inclusions (Organic Substance)	Si, U, Pu, Np, Am, Cm, Ce, B, Kr, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, In, Sn, Sb, Te, I, Xe, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Tl, Dy, Hul [Sn, Fe, Cr, Ni, Fe+Cr, Fe+Cr+Ni, O, Al, B, Ca, Cd, C, Co, Cu, Hf, H, Mg, Mn, Mo, Ni, Nb, N, Si, Ti, W, U...]	U234/U235/U236/U238, Pu238/Pu239/Pu240/Pu241/Pu242, Pu241/Am241, Pu238/U234, Pu240/U236, Pu239/U235		Container (Cask)

表 43　コンピュータサーバ及び DBMS ソフトウェアの概要

コンピュータサーバ	
ベースユニット	DELL PowerEdge T620
CPU	Intel Xeon E5-2690 (2.90GHz, 8Cores)×2
RAM	16GB×6
HDD	900GB×5 (RAID 6, 実効容量：2.7TB)
OS	Microsoft Windows Server 2008 SP1
DBMS ソフトウェア	
Oracle Database Standard Edition	

表 44　平成 23 年度から平成 25 年度に収集したデータの一覧

データソースの種類	データ内容
報告書、論文、申請書など	● 臨界集合体・研究炉の情報(炉心パラメータ等) ● 臨界集合体・研究炉の核燃料規格パラメータ ● ふげんの核燃料品質検査基準(核燃料設計許可申請書) ● 人形峠研究開発センターにおける下記原料・製品核物質の品質検査データ － 人形峠ウラン鉱石 － ウラン精錬・転換プロセスの原料及び製品ウラン物質(イエローケーキ、UF_6) － 再処理回収ウラン転換プロセスの原料及び製品ウラン物質(UO_3, UF_6)
データベース	● 核燃料の照射後試験データ(SFCOMPO)

表 45　国際机上演習「銀河の蛇」(2013 年)の演習スケジュール

フェーズ1 核鑑識ライブラリ構築		フェーズ2 押収物の出所評価
4月	5月	6月
ライブラリ構築用 データ送付 ×	押収物質分析データ送付 ×	レポート提出 ×
ライブラリ構築 (2-3週間)		押収物照合・比較評価 (2-3週間)

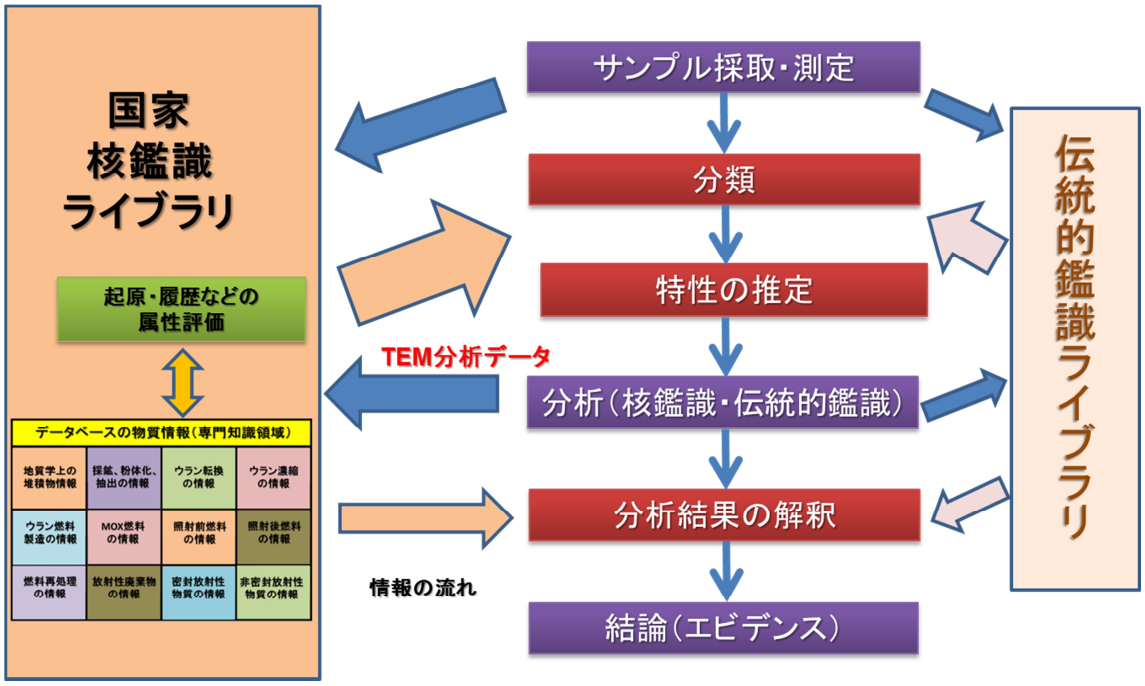


図 1　核鑑識と伝統的鑑識のプロセス

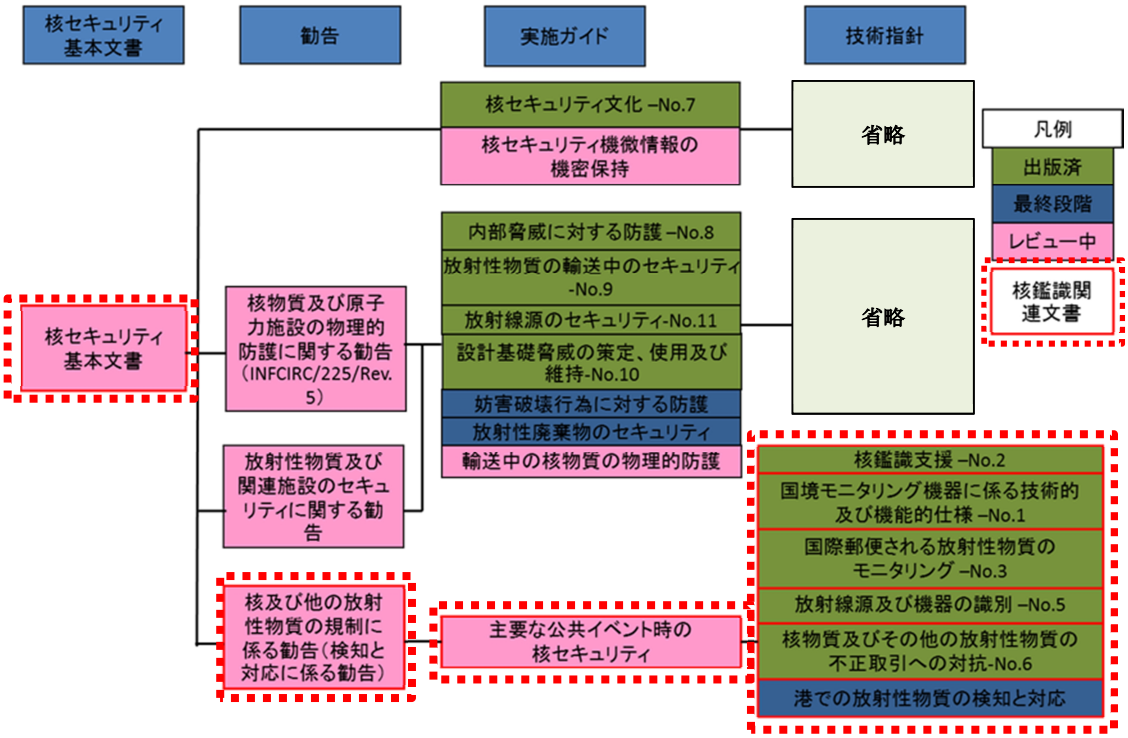


図 2　IAEA 核セキュリティ・シリーズ文書体系

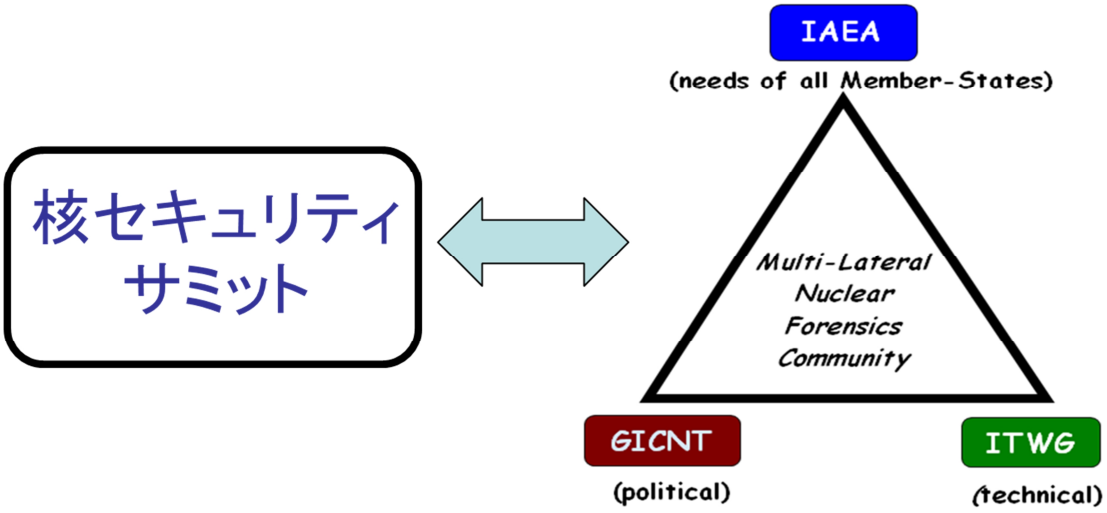


図 3　核鑑識に関する国際コミュニティ

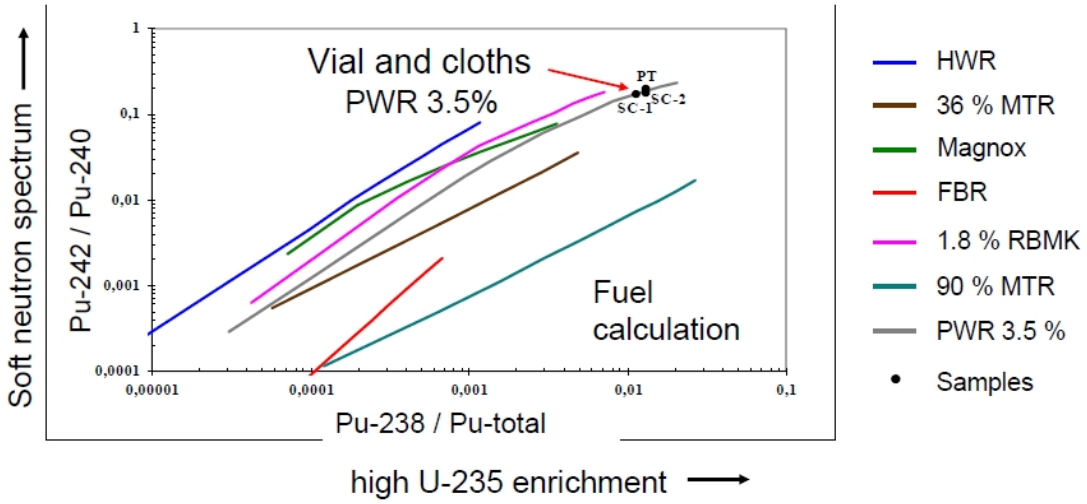


図 4　同位体組成により原子炉の炉型を特定

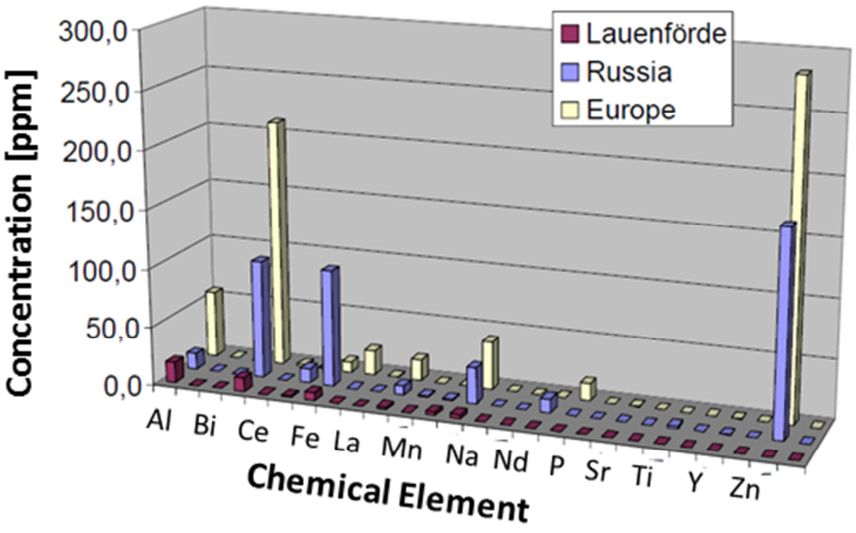


図 5　欧州とロシアの施設の不純物組成の違い

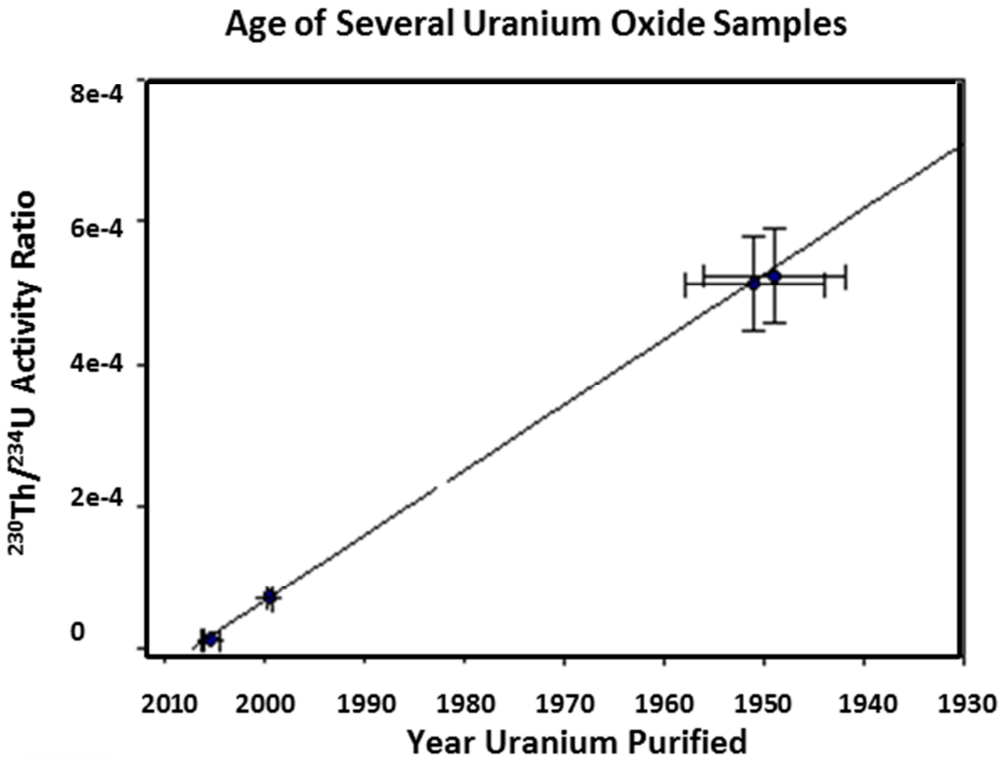


図 6　^{234}U と娘核種の ^{230}Th の比と生成時期

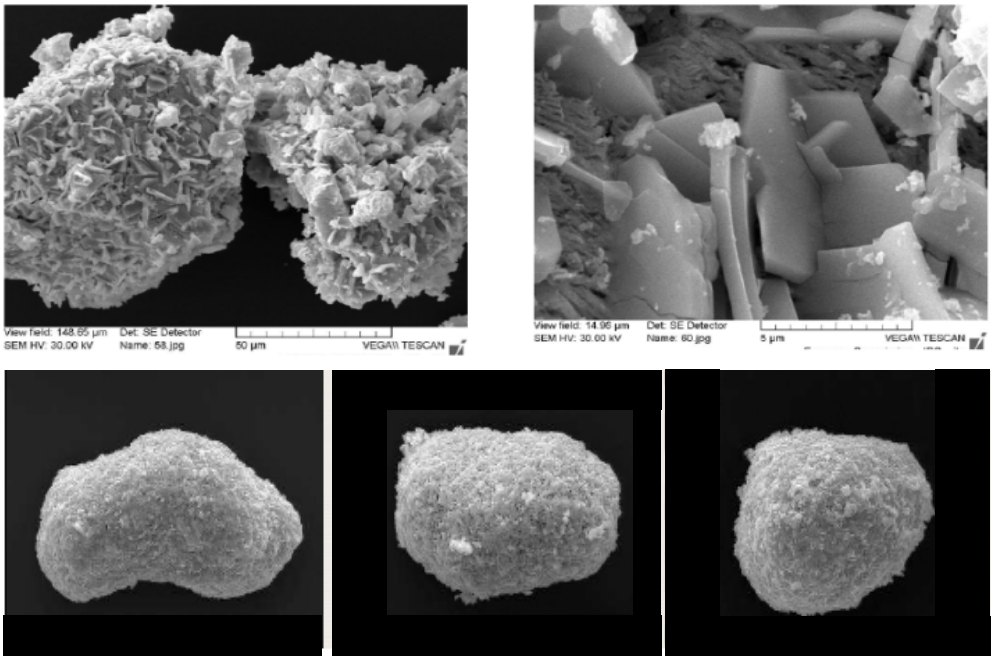


図 7　ウラン粒子形状の違い

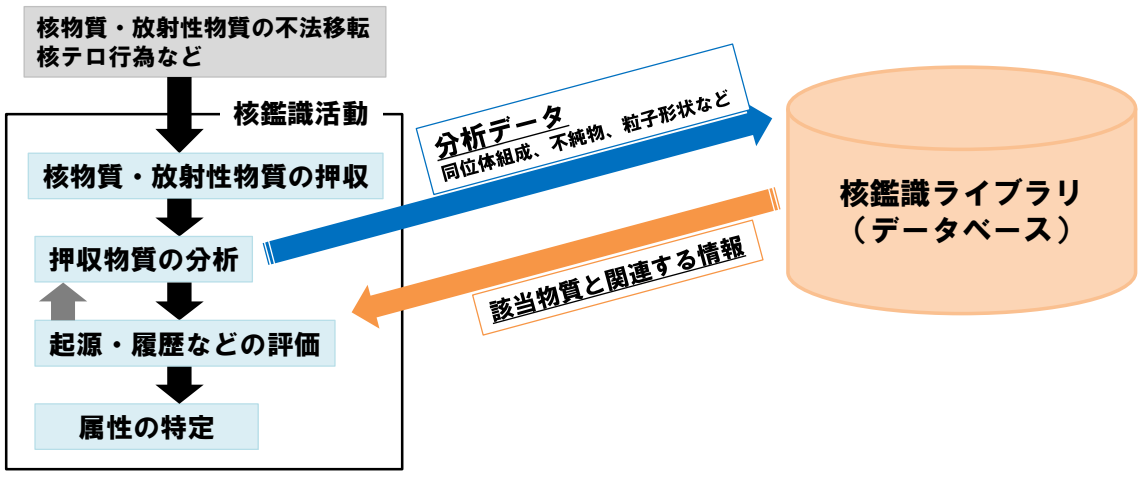


図 8　核鑑識活動におけるライブラリの位置付け

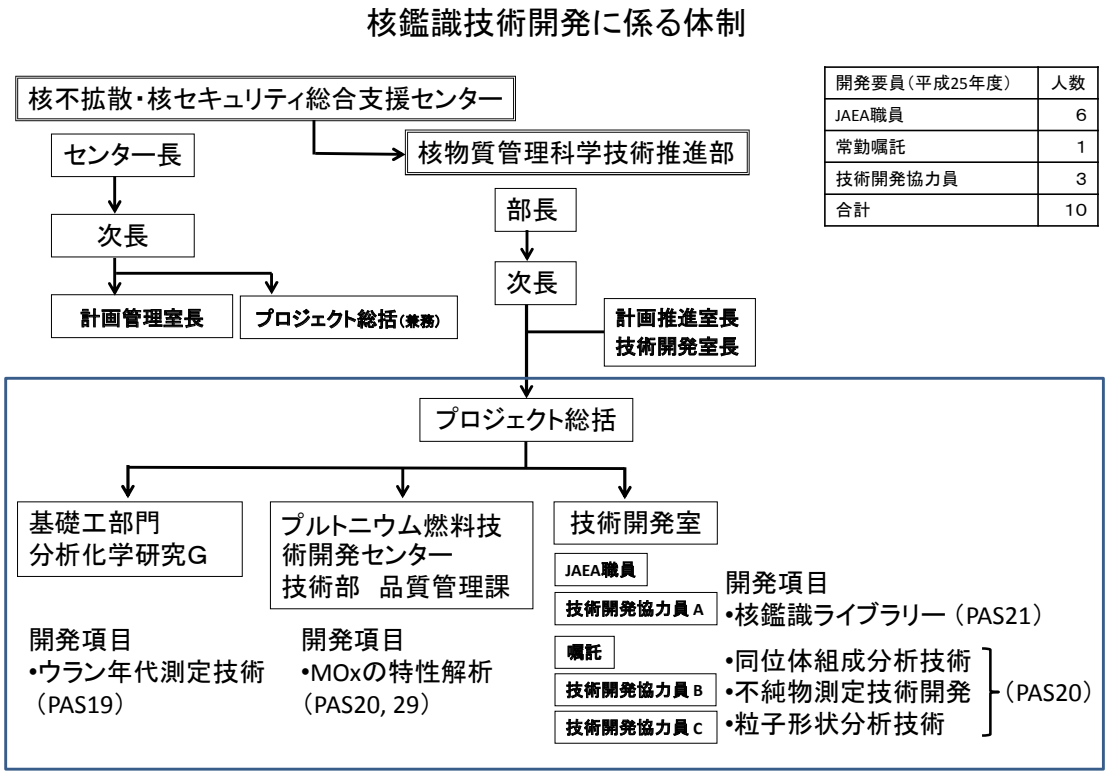


図 9　平成 25 年度の核鑑識研究開発体制図

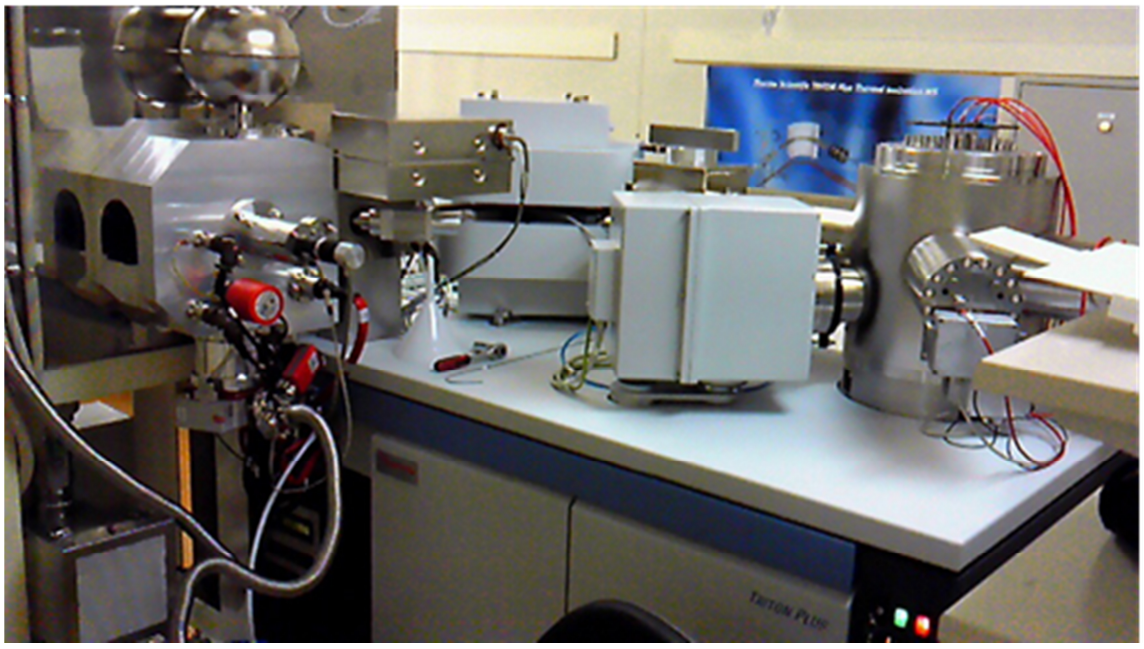


図 10　表面電離型質量分析計外観

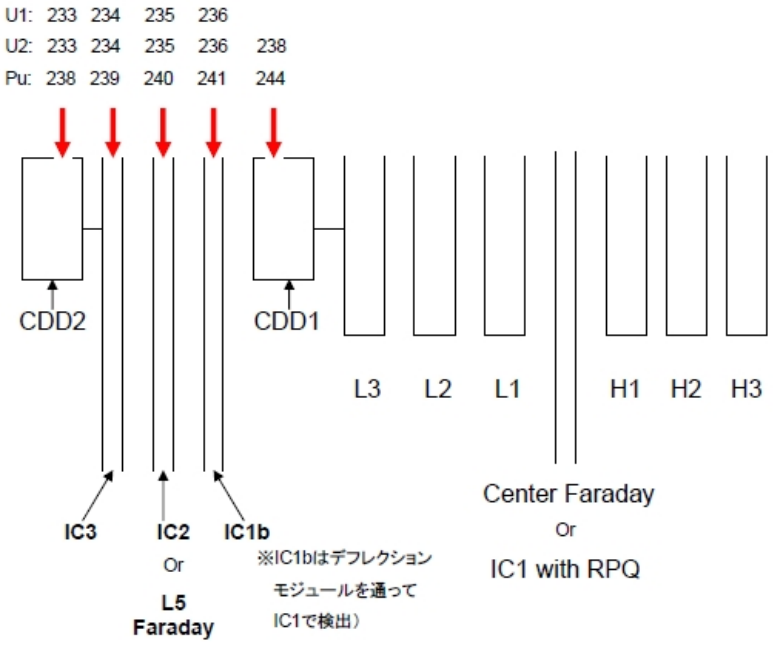


図 11　マルチイオンカウンティングシステム測定同位体

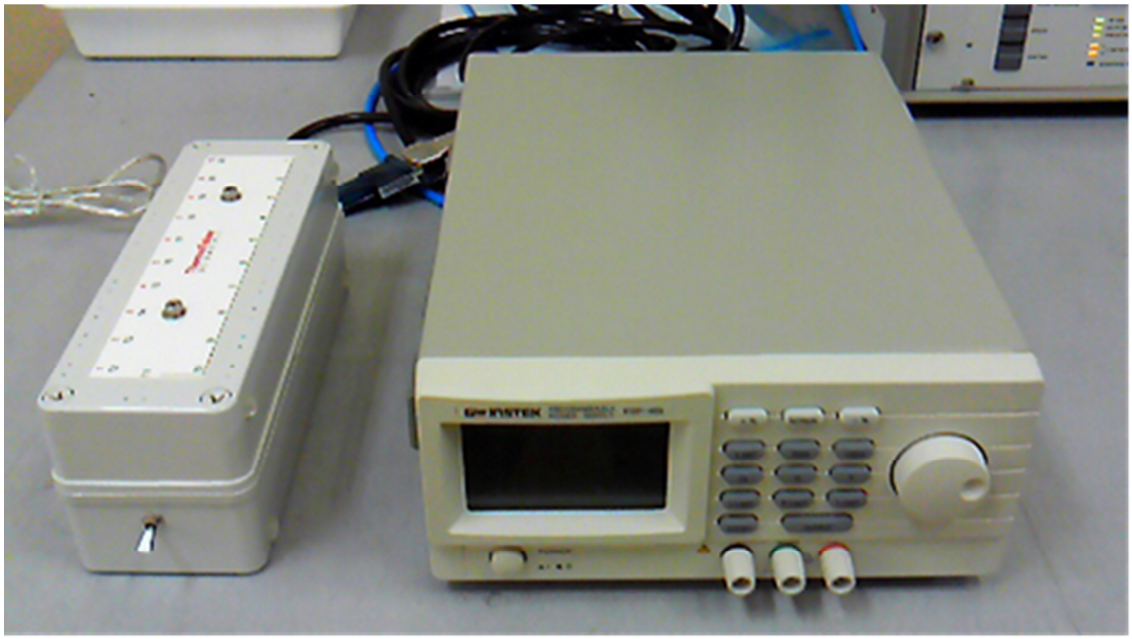


図 12　サンプルローディングキット

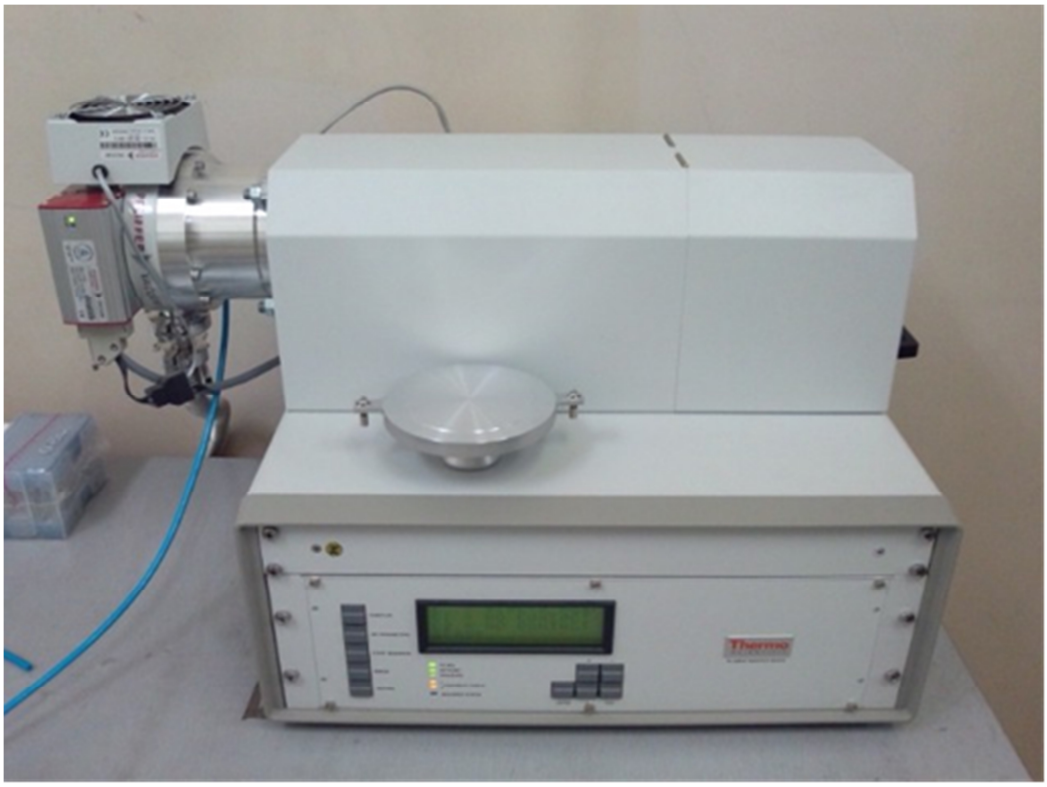


図 13　フィラメント焼出し装置

図 14　試料導入ボックス

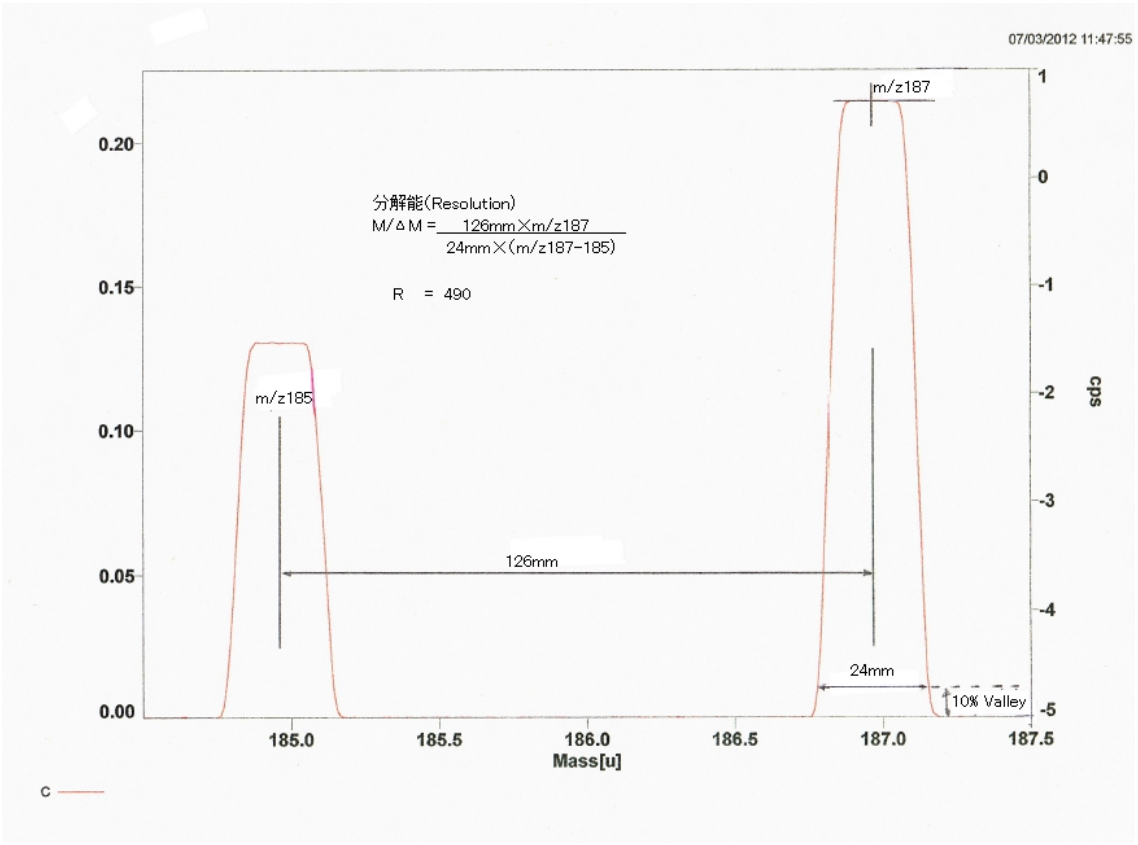
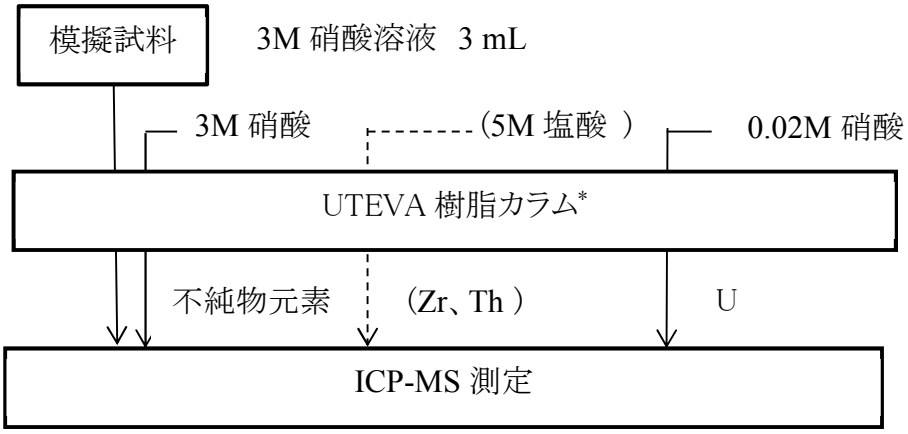


図 15　^{185}Re,^{187}Re スペクトル

図 16　分離カラム



*：UTEVA 樹脂カラム：ミニカラム S (φ5.0～5.5 mm)、UTEVA 樹脂 (粒径 50～100 μm)、樹脂充填量 1mL (充填高さ 40 mm)

図 17　分離操作概要

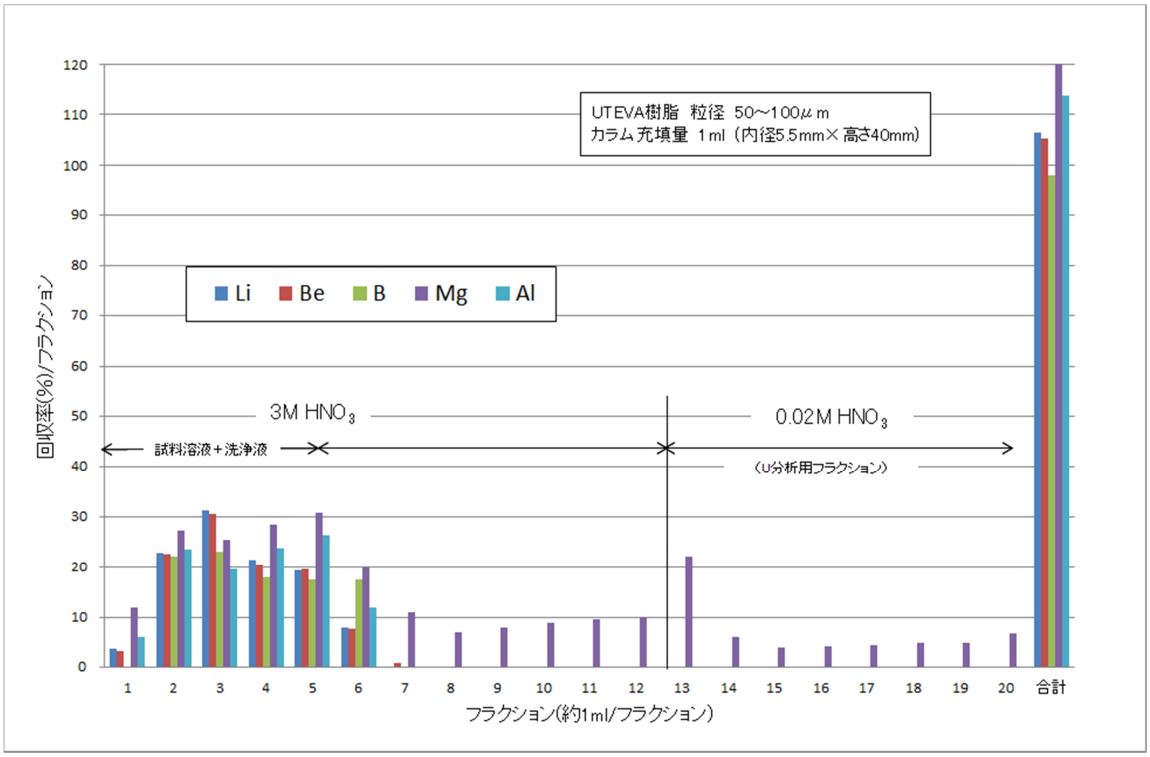


図 18　溶離プロファイル(1)

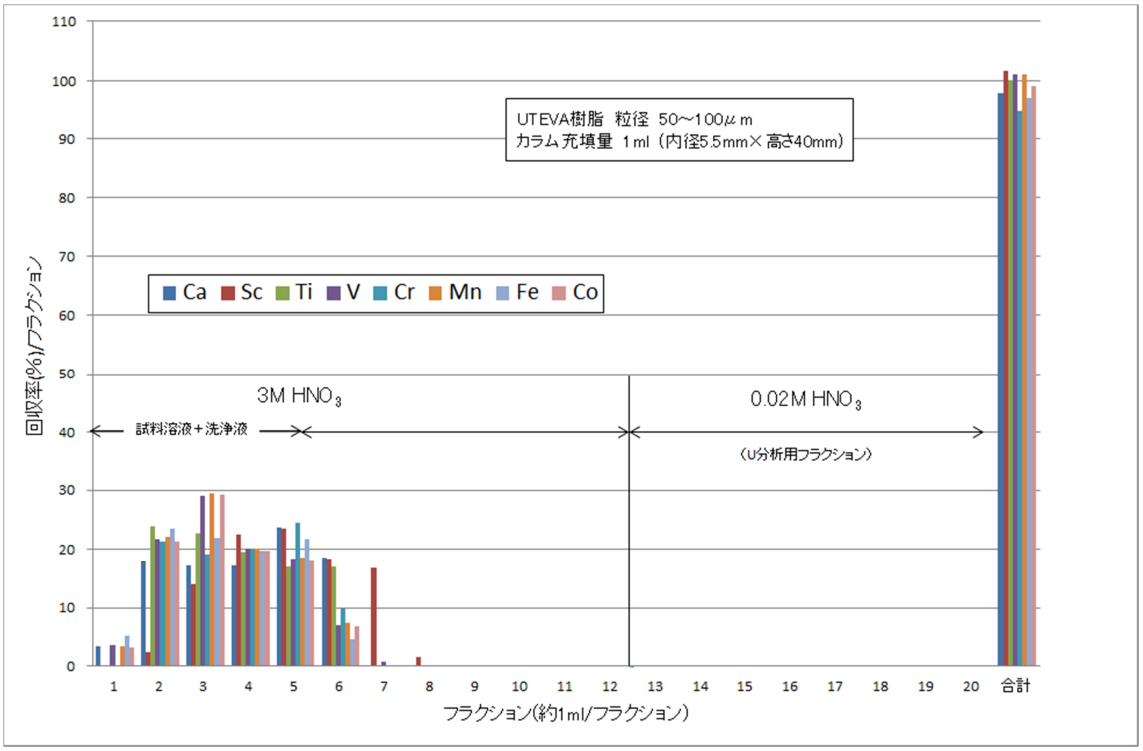


図 19　溶離プロファイル(2)

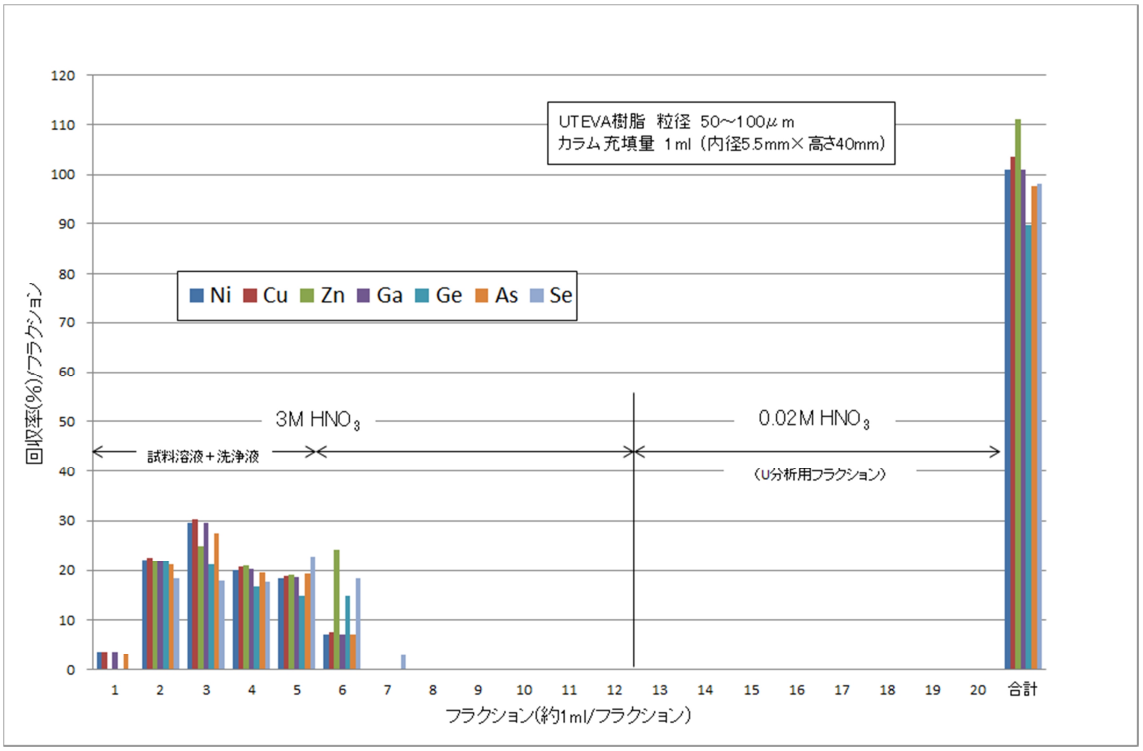


図 20　溶離プロファイル(3)

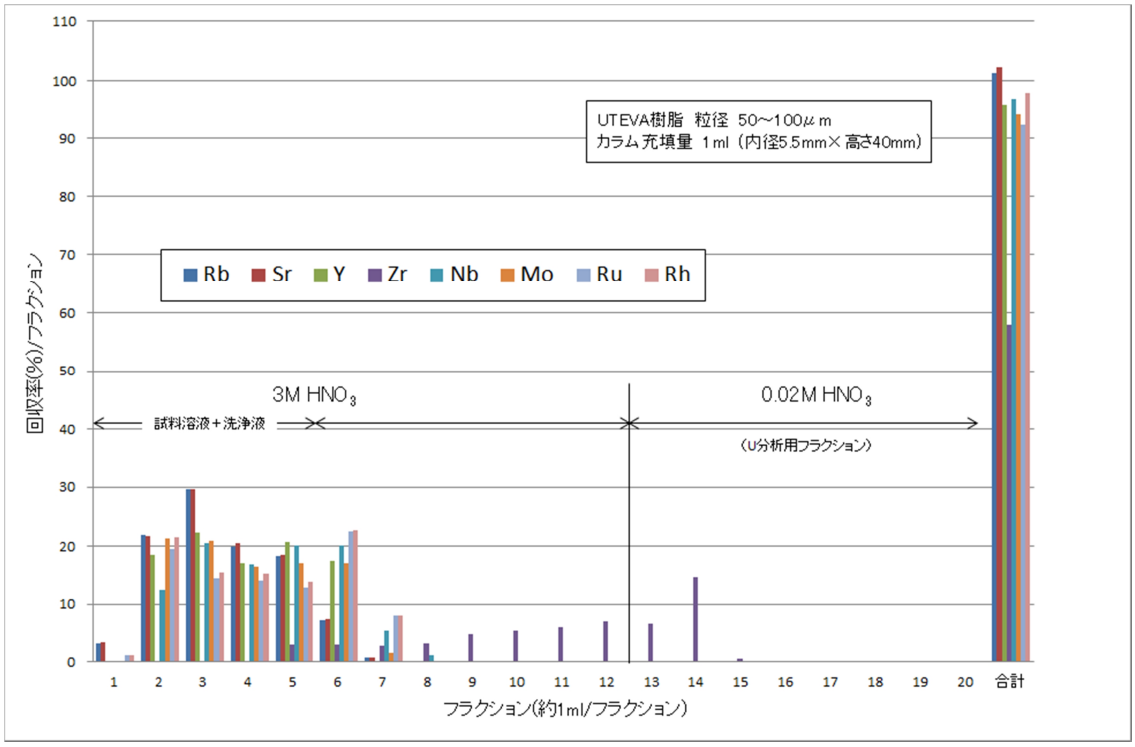


図 21　溶離プロファイル(4)

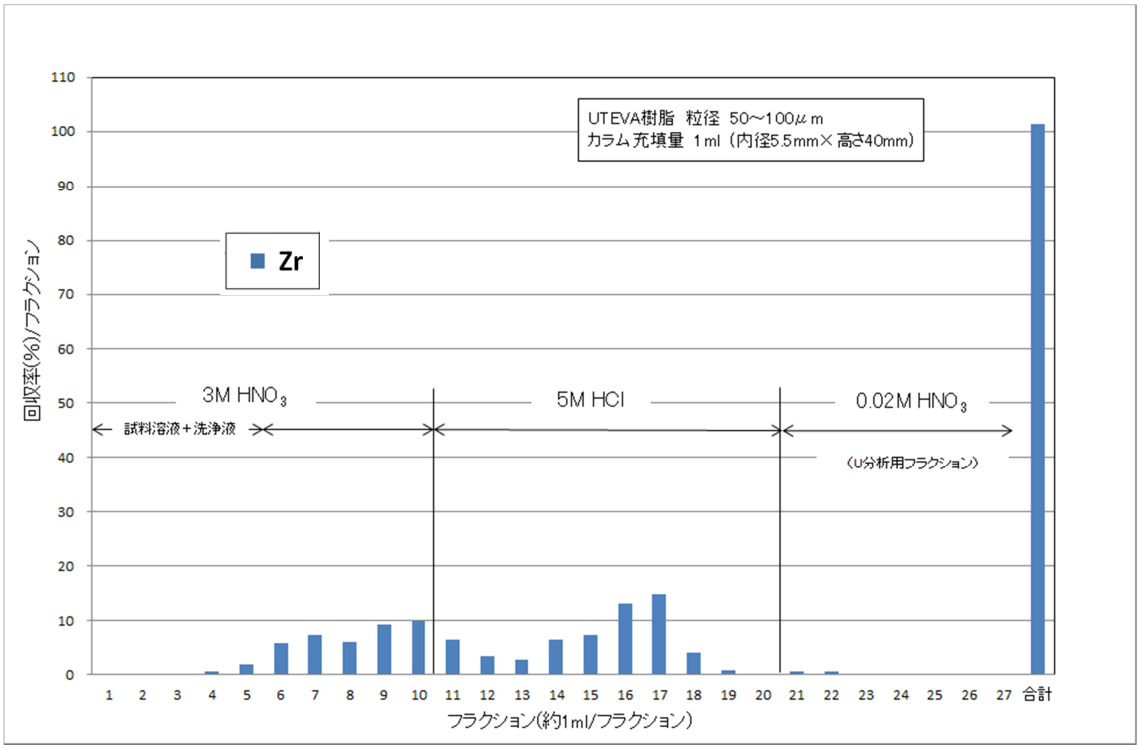


図 22　溶離プロファイル(5)

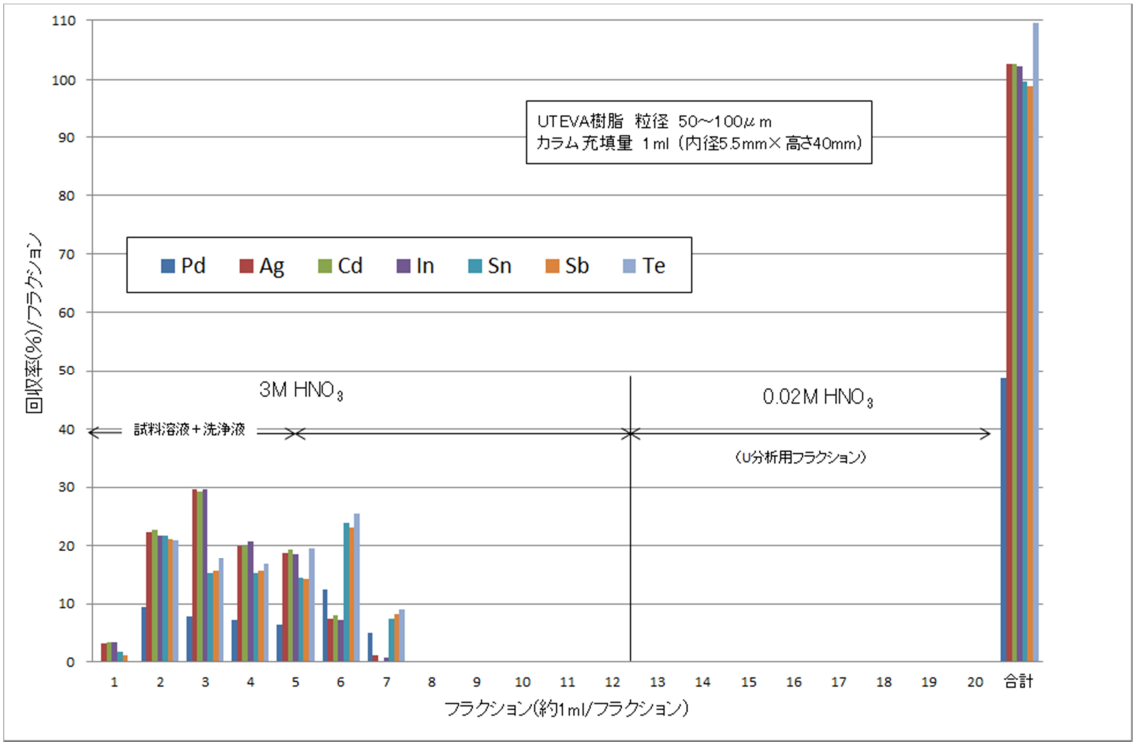


図 23　溶離プロファイル(6)

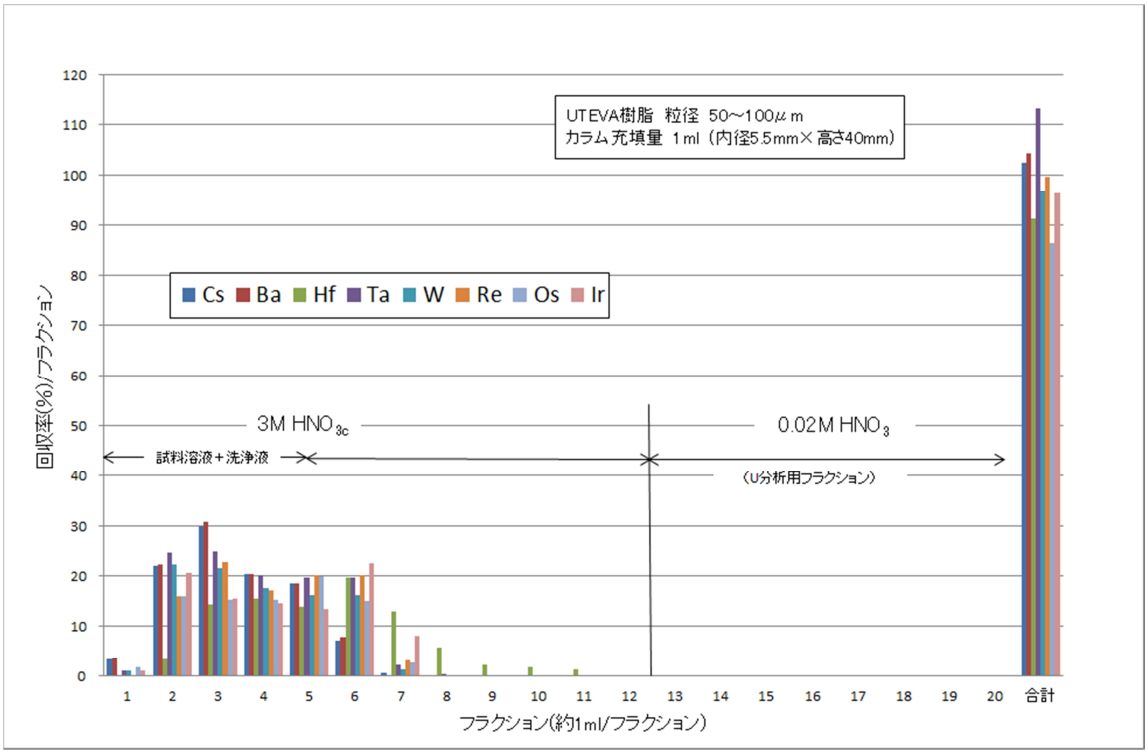


図 24　溶離プロファイル(7)

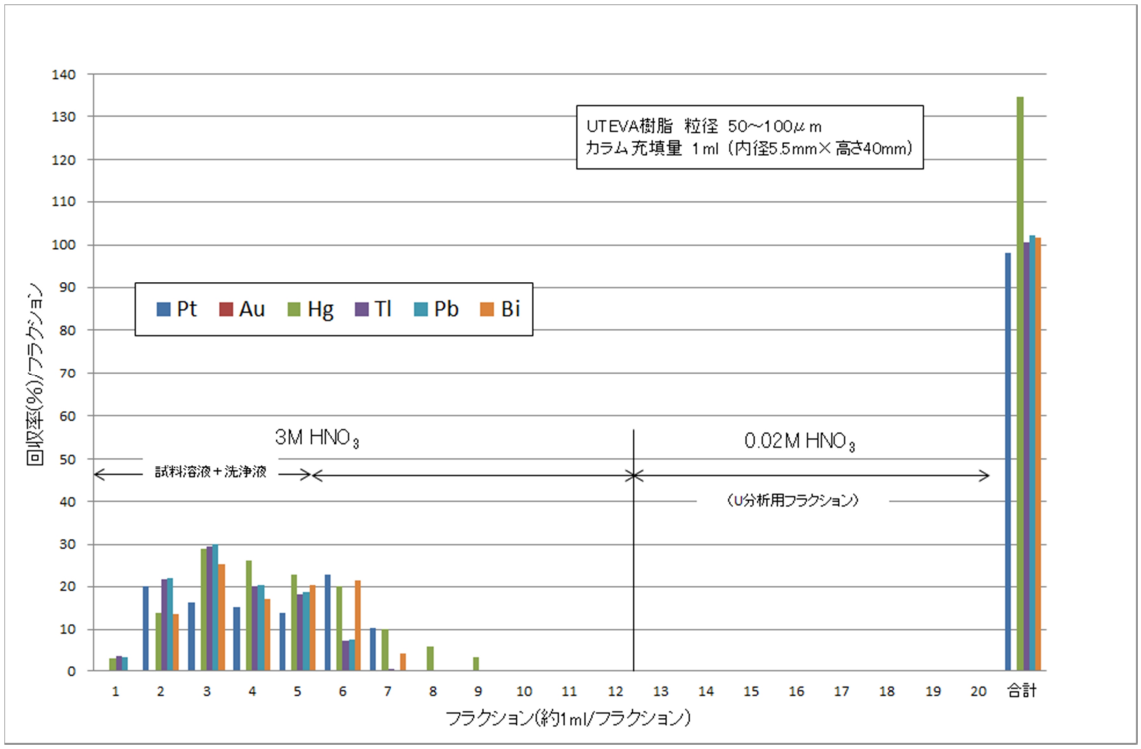


図 25　溶離プロファイル(8)

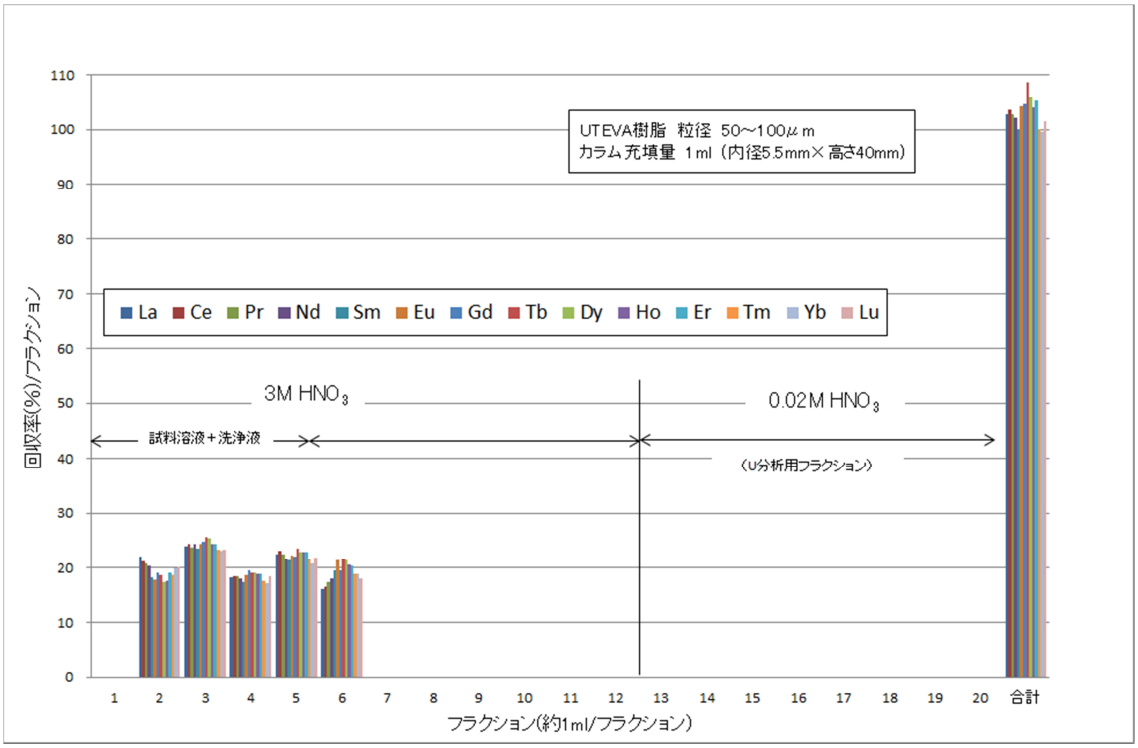


図 26　溶離プロファイル(9)

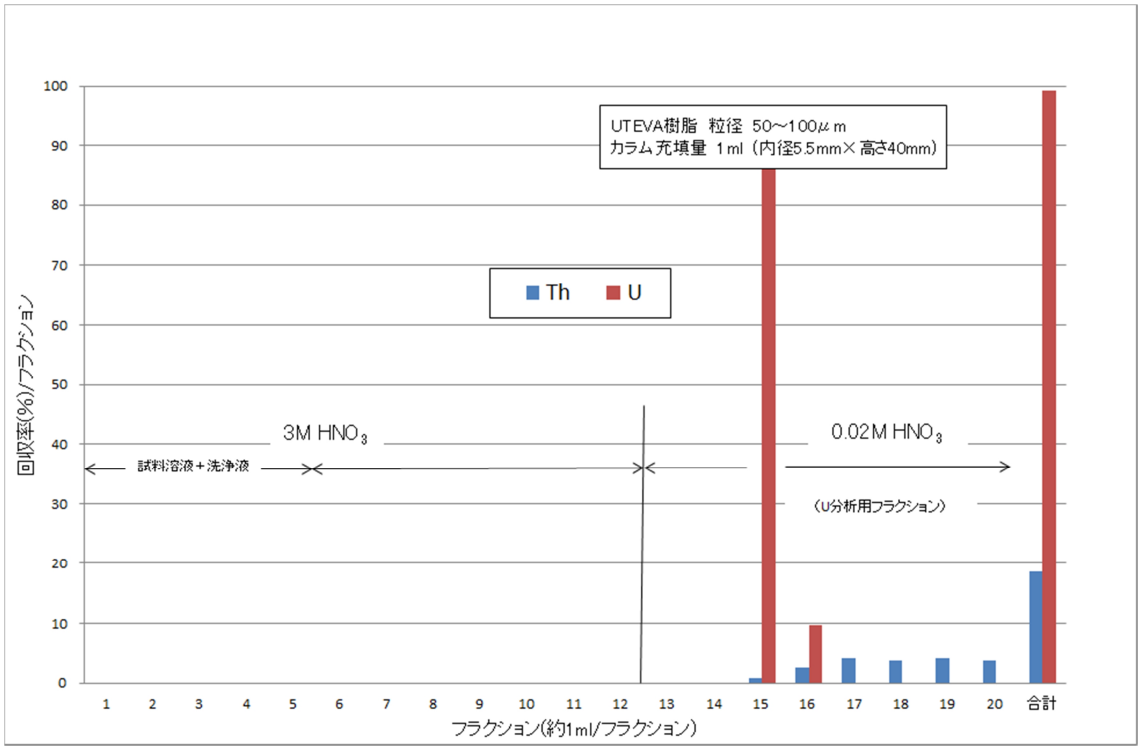


図 27　溶離プロファイル(10)

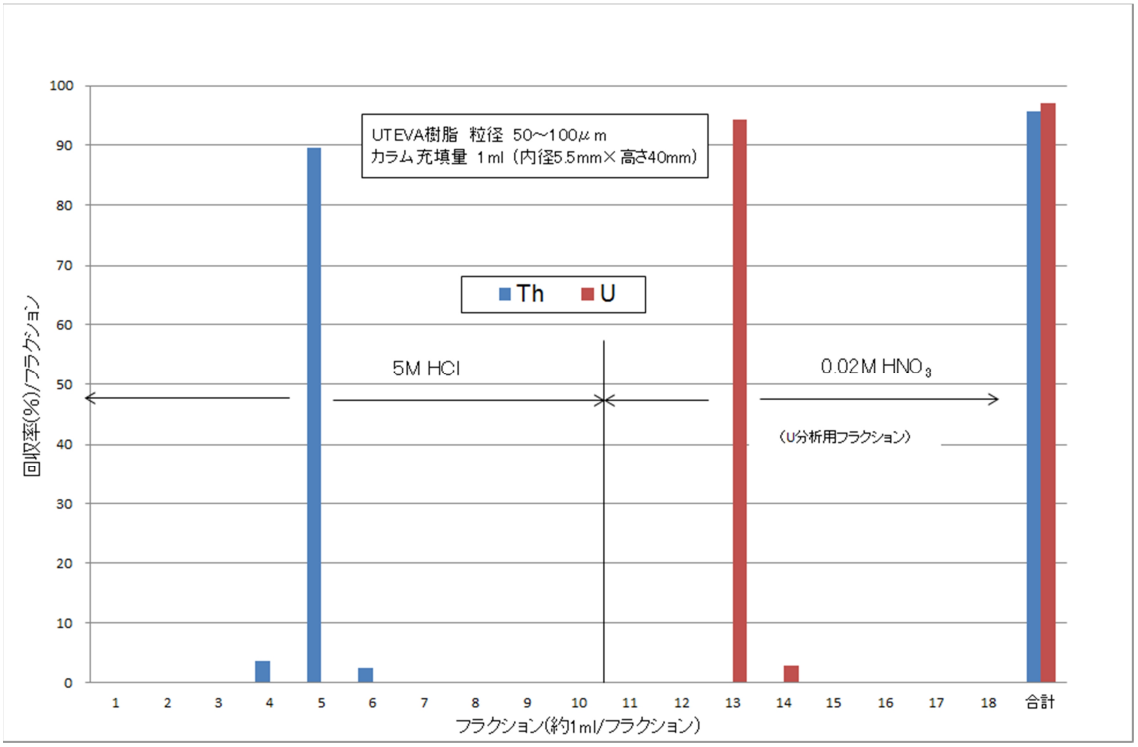


図 28　溶離プロファイル(11)

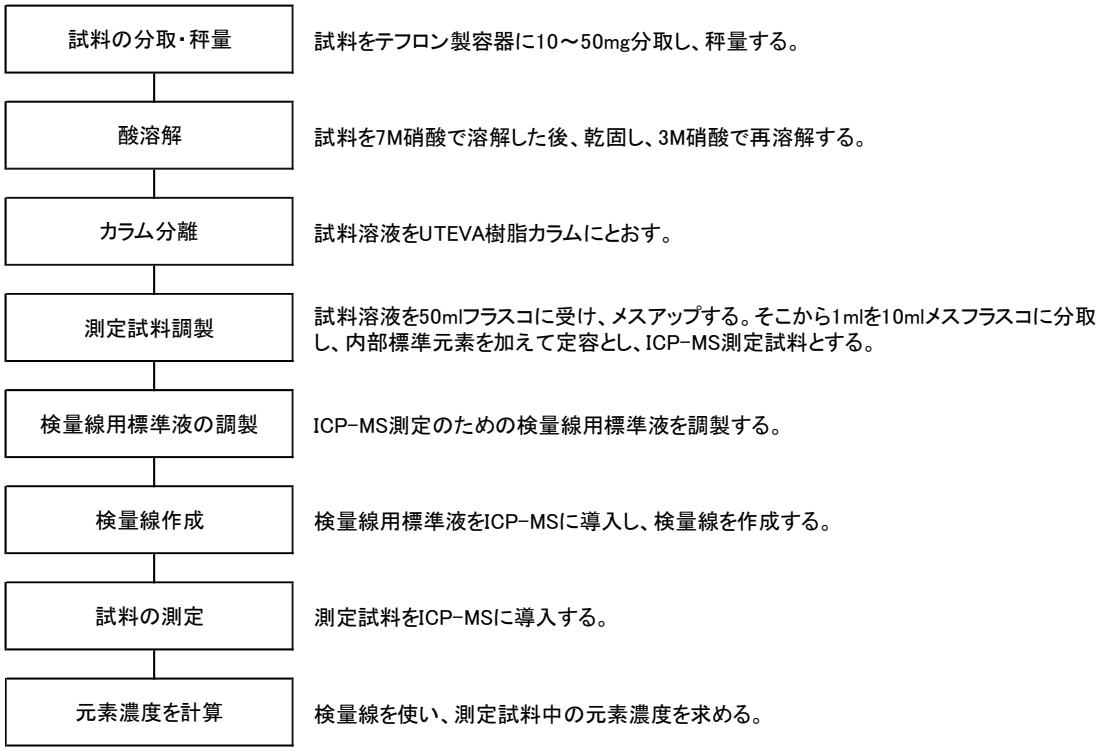


図 29　不純物分析フロー

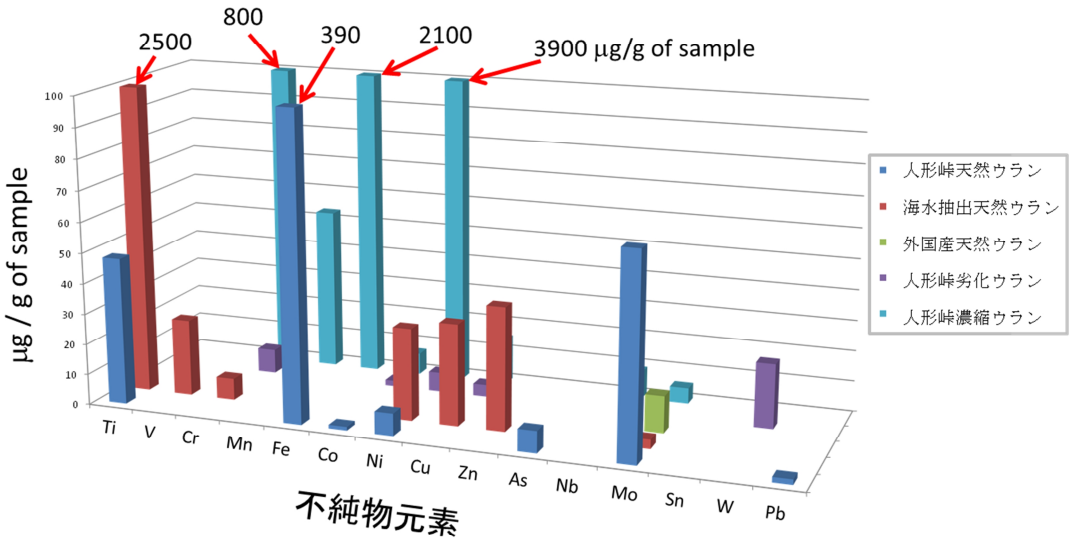


図 30　ウラン試料に含まれる不純物の分析結果

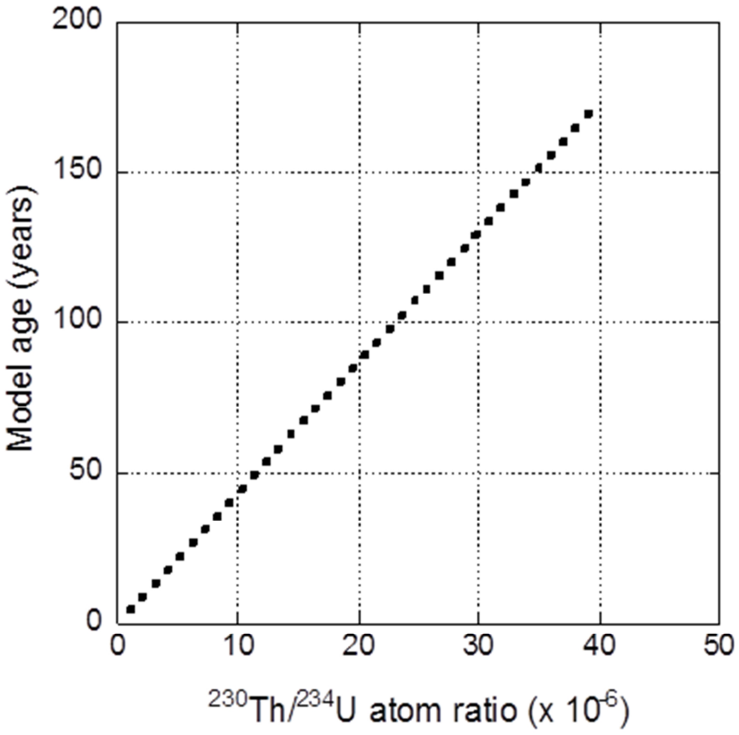


図 31　試料中の $^{230}Th/^{234}U$ 比と精製後の経過時間(Model age)の関係

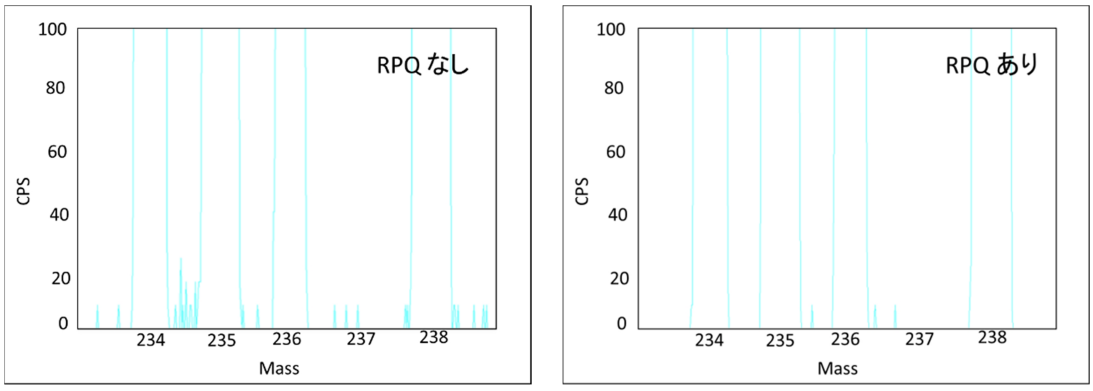
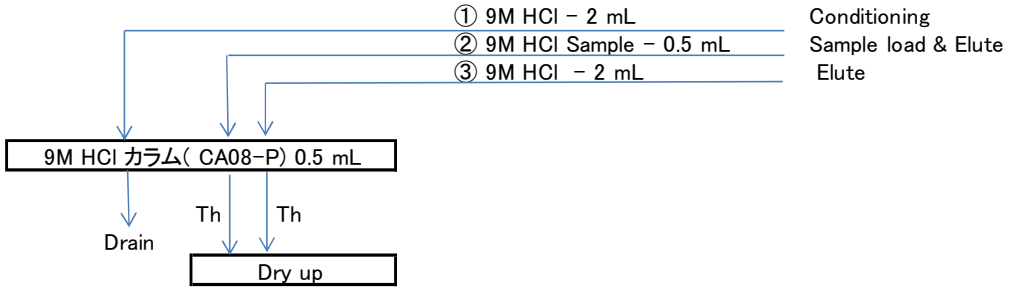


図 32　TIMS による U-500 測定におけるノイズの影響：

左図：RPQ なし、右図：RPQ あり

1. 9M HCl カラム



2. 8M HNO_3 カラム

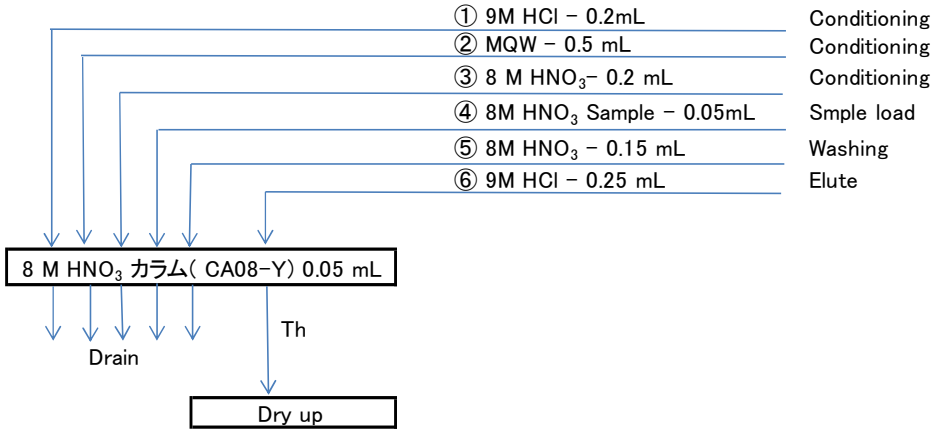


図 33　推奨されるトリウムの陰イオン交換分離精製スキーム

図 34　作成したテフロンカラム

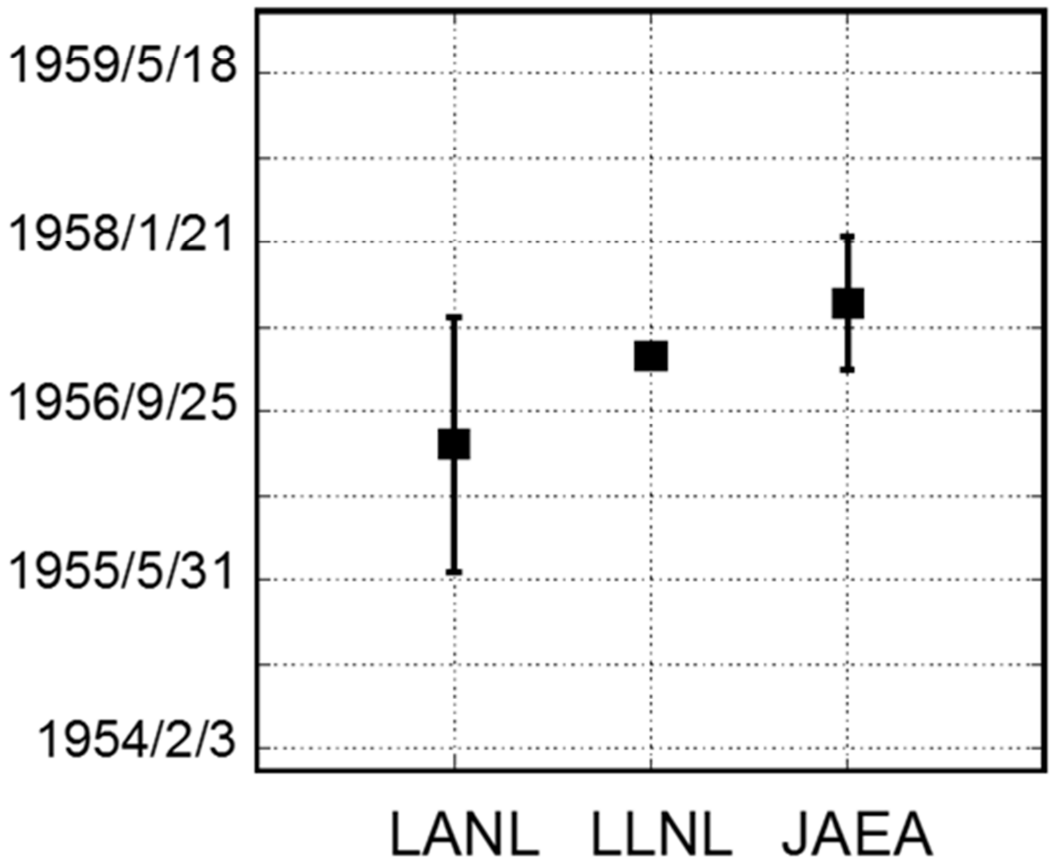


図 35　ウラン標準物質 U-050 の精製年代推定結果

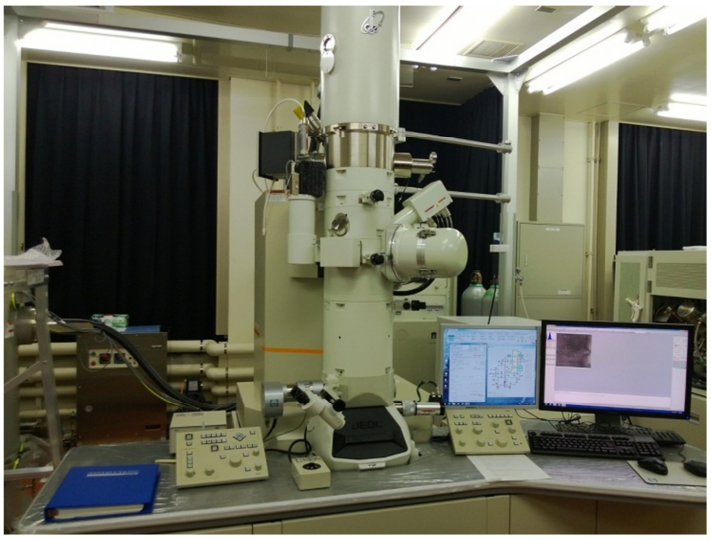


図 36　透過型電子顕微鏡外観

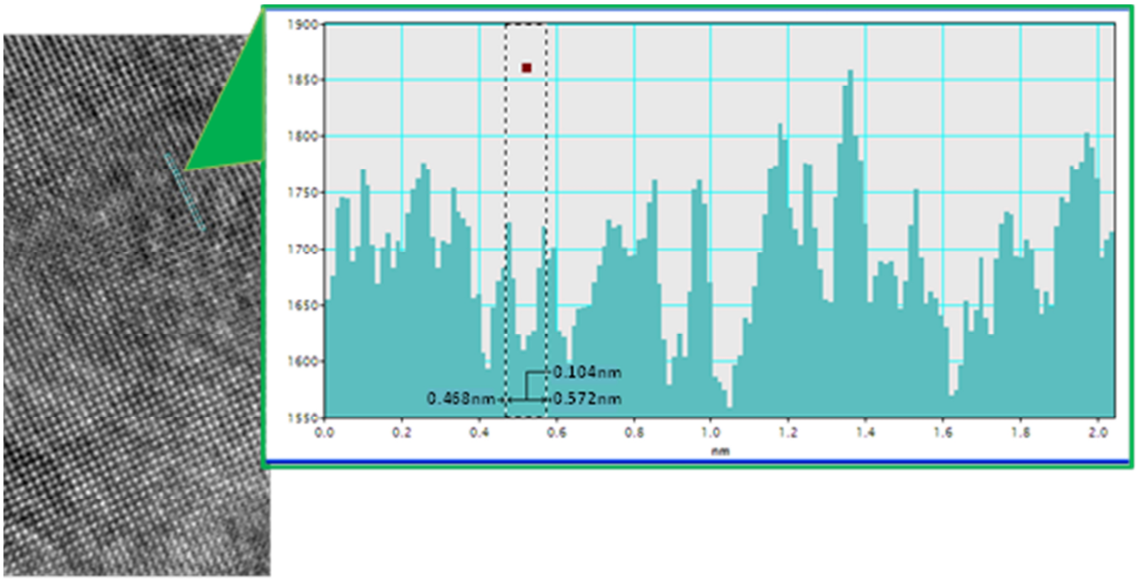
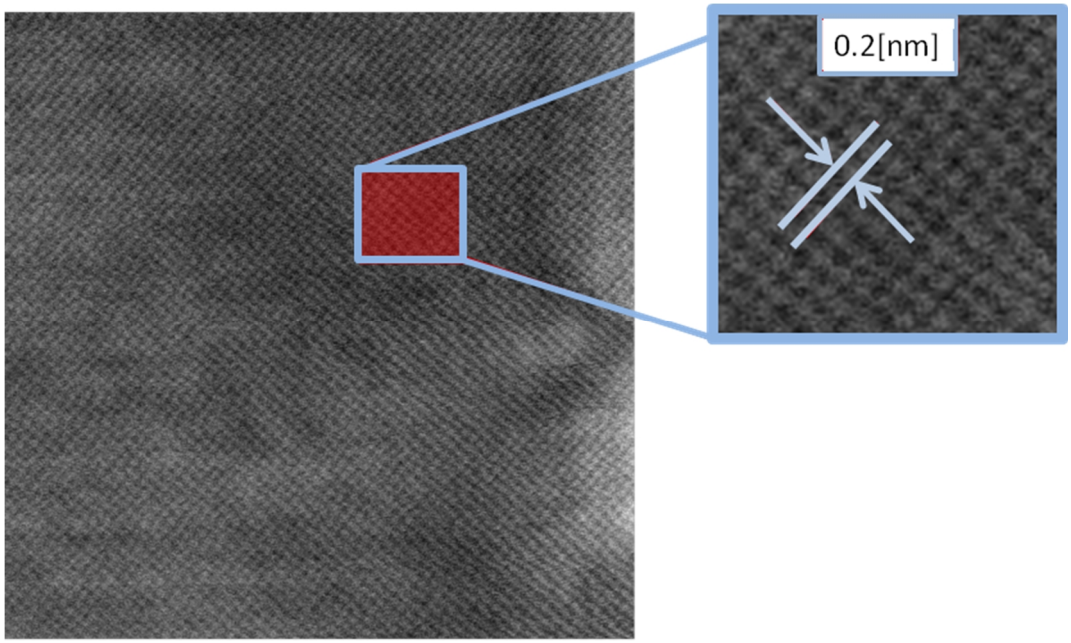
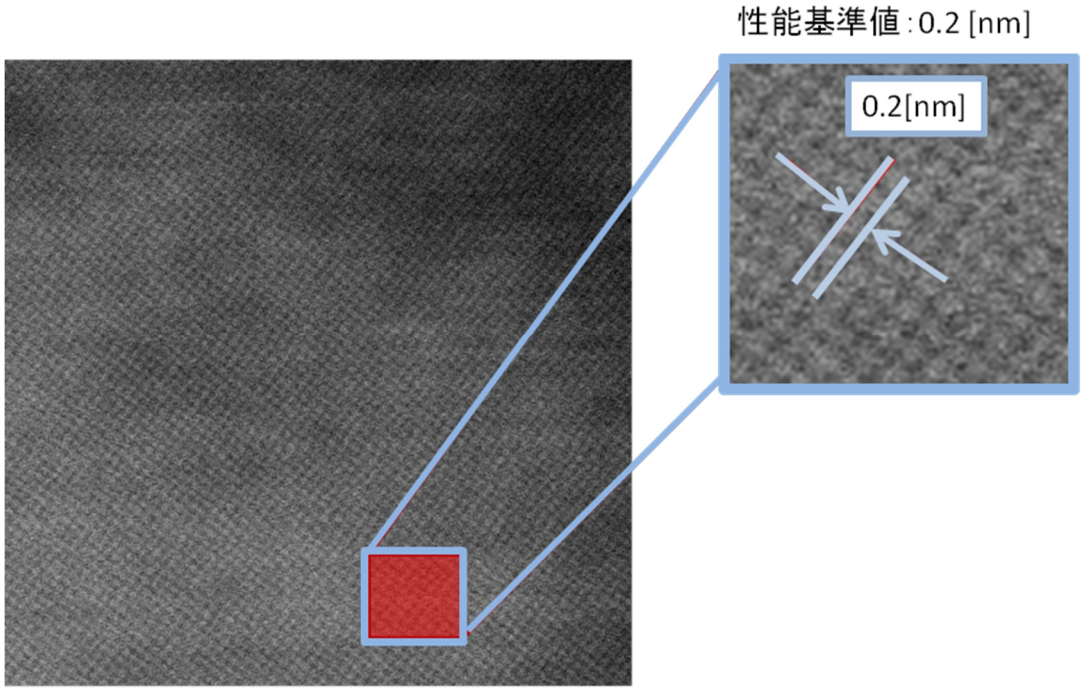


図 37　TEM 像分解能（性能基準値：0.10 nm）



（明視野像）



（暗視野像）

図 38　STEM 像分解能（性能基準値：0.23nm）

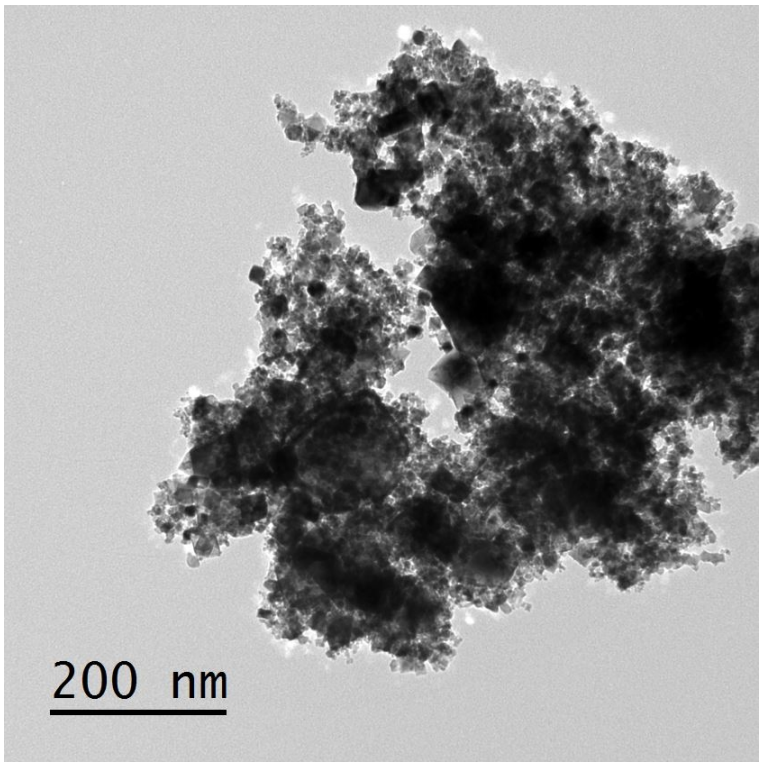


図 39　TEM 像（CeO_2 ナノ粒子、ふりかけ法）

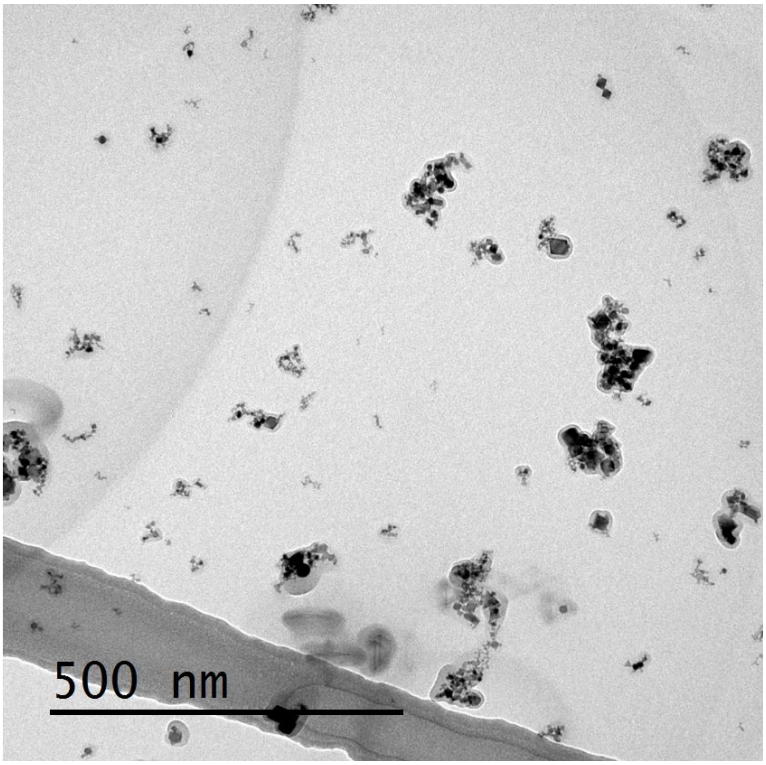


図 40　TEM 像（CeO_2 ナノ粒子、懸濁法）

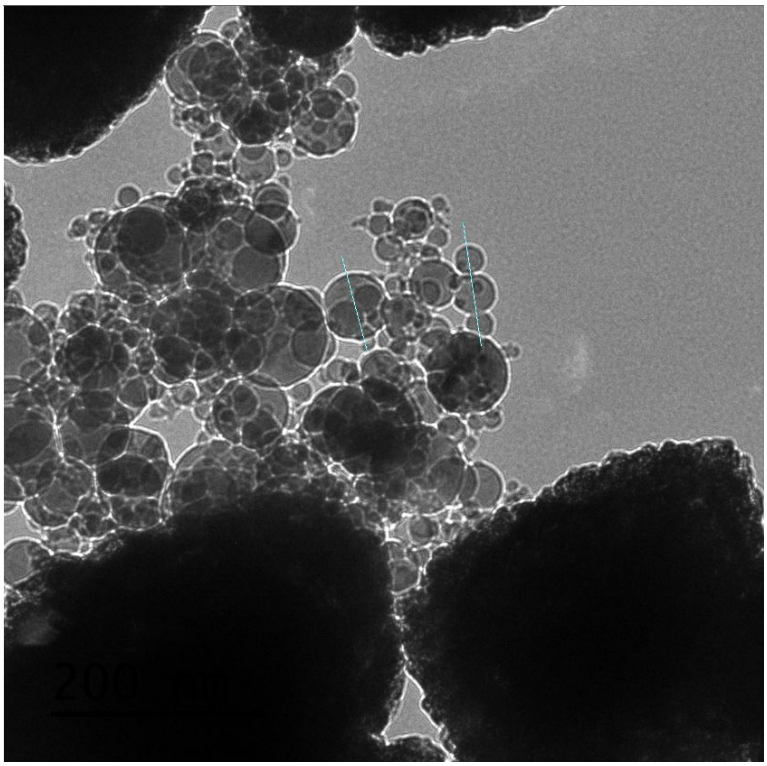


図 41　TEM 像（Al_2O_3 ナノ粒子、ふりかけ法）

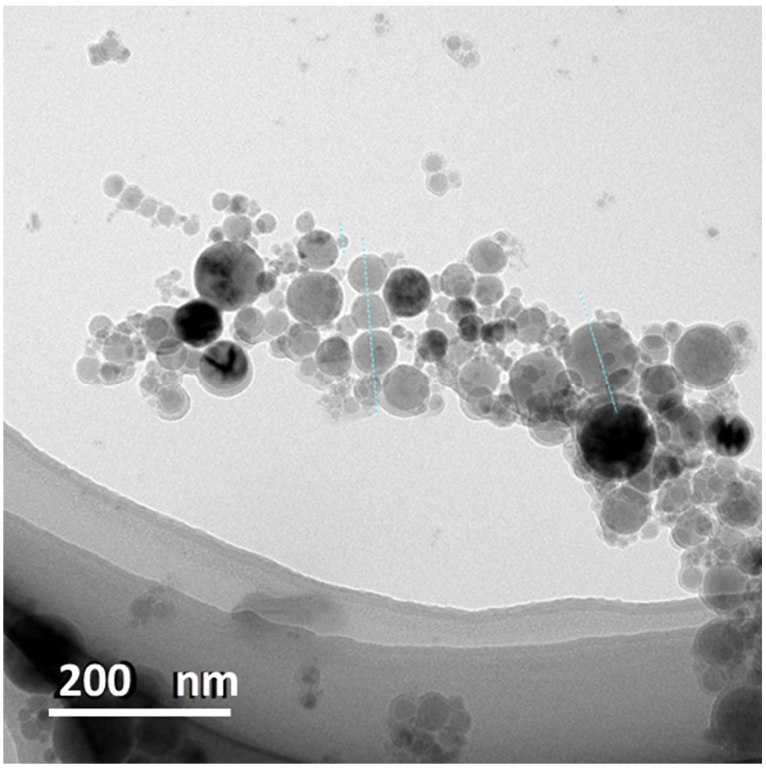


図 42　TEM 像（Al_2O_3 ナノ粒子、懸濁法）

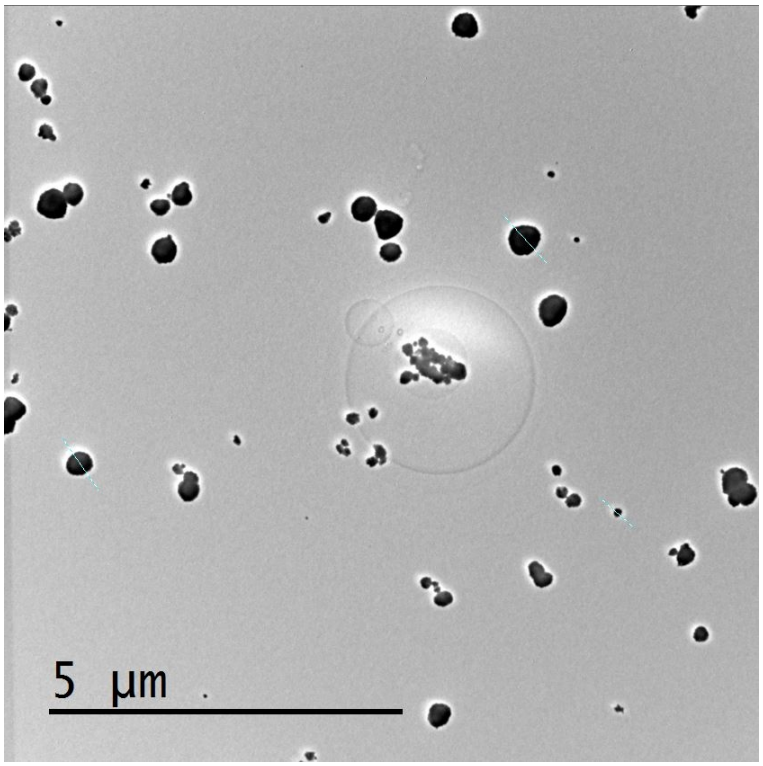


図 43　TEM 像（CeO_2 マイクロ粒子、ふりかけ法）

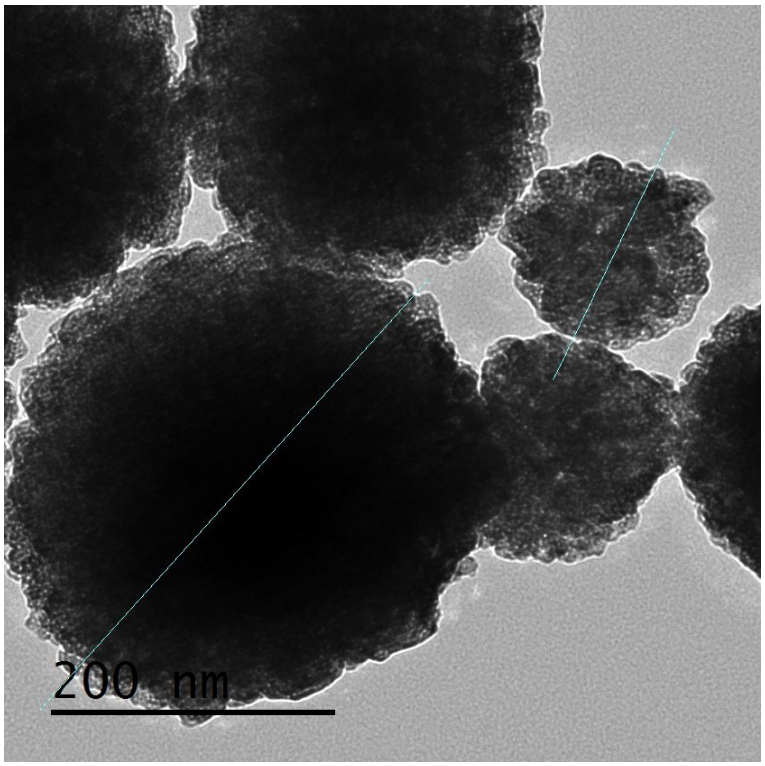


図 44　TEM 像（CeO_2 マイクロ粒子、懸濁法）

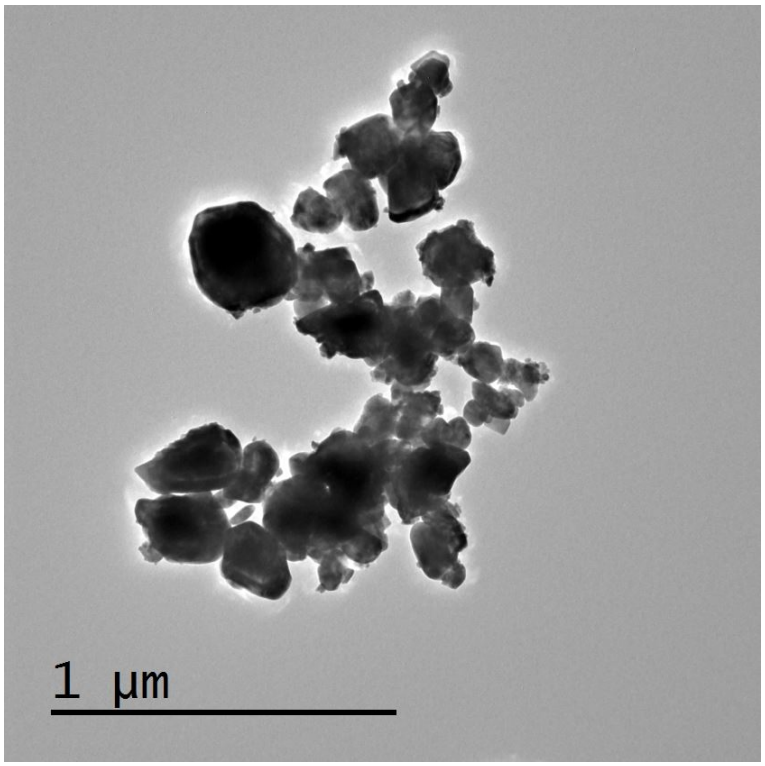


図 45　TEM 像（WO_3 マイクロ粒子、ふりかけ法）

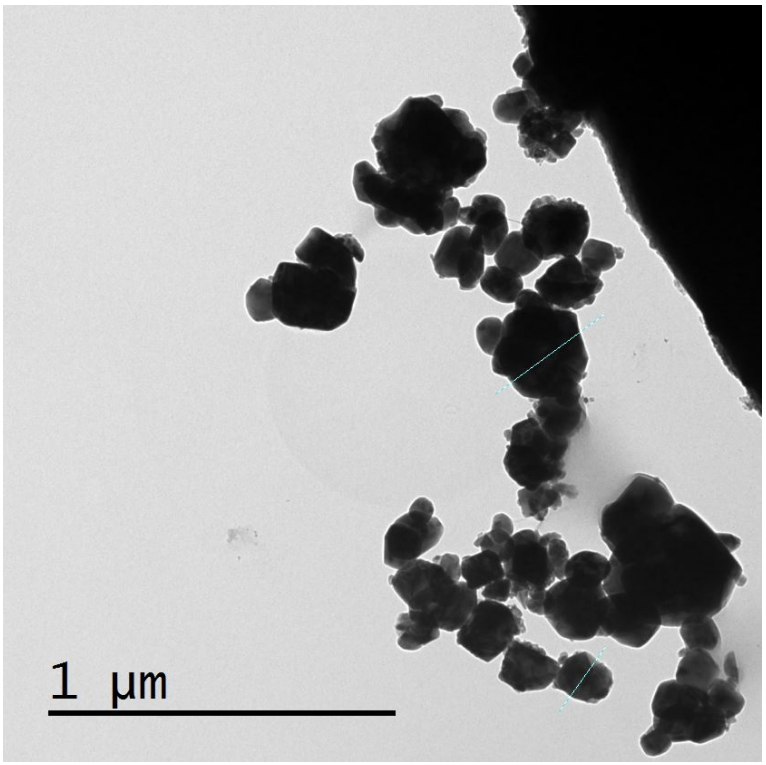


図 46　TEM 像（WO_3 マイクロ粒子、懸濁法）

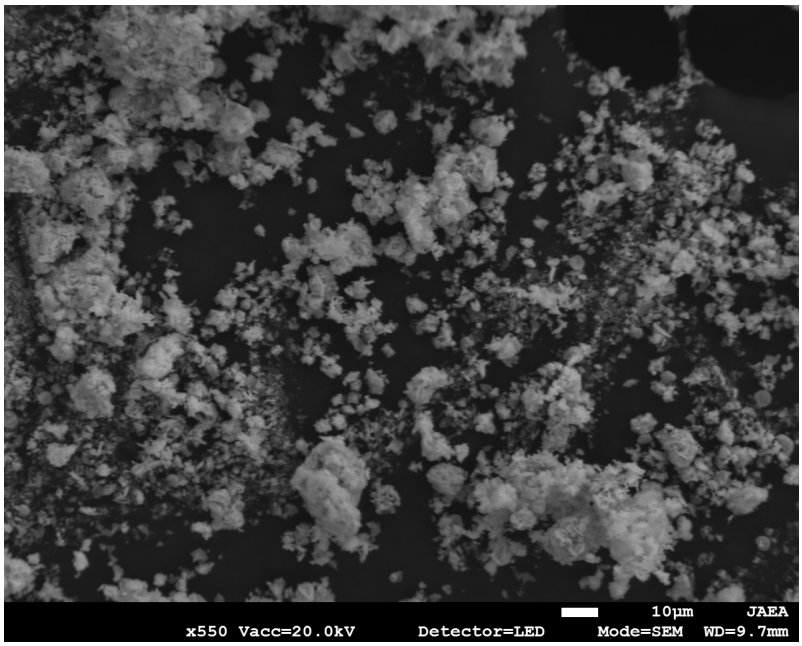


図 47　SEM 像（国産 ADU）

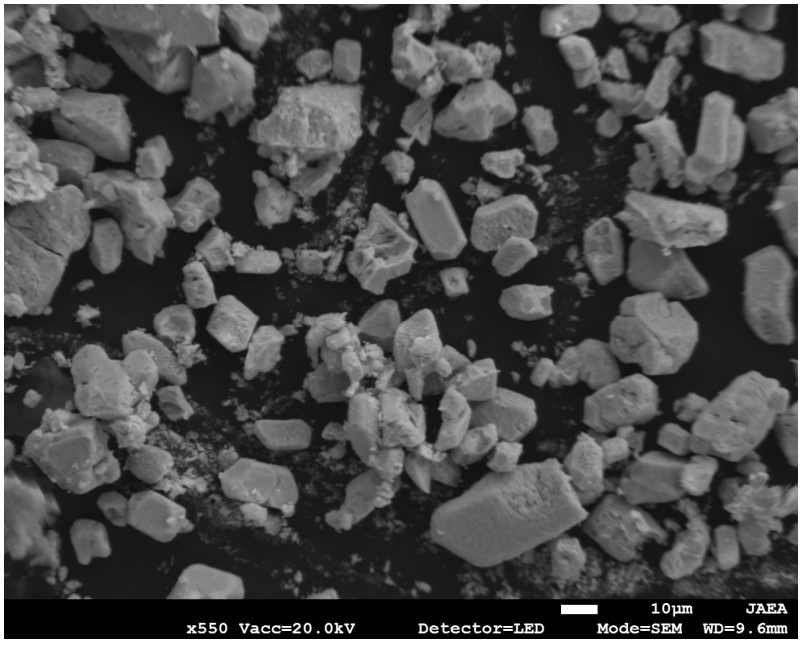


図 48　SEM 像（中国産 ADU）

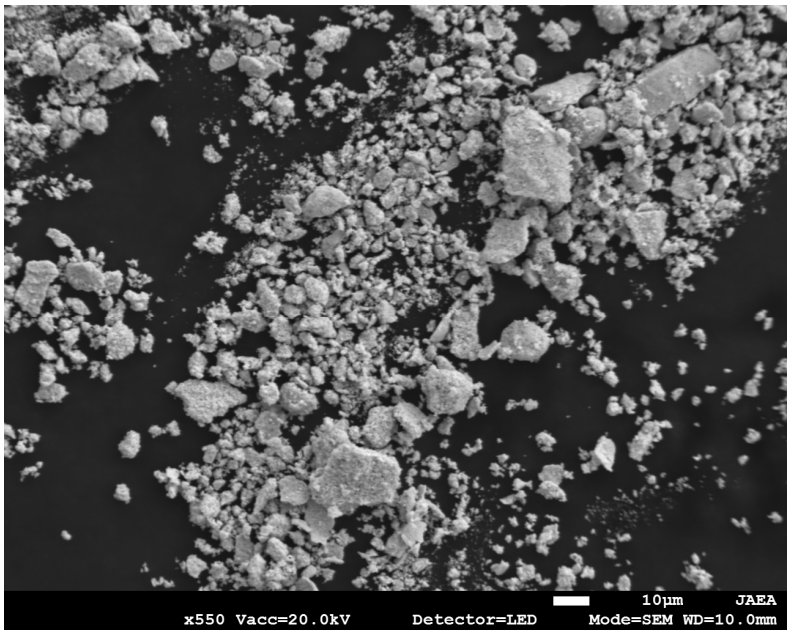


図 49　SEM 像（劣化ウラン UO_2）

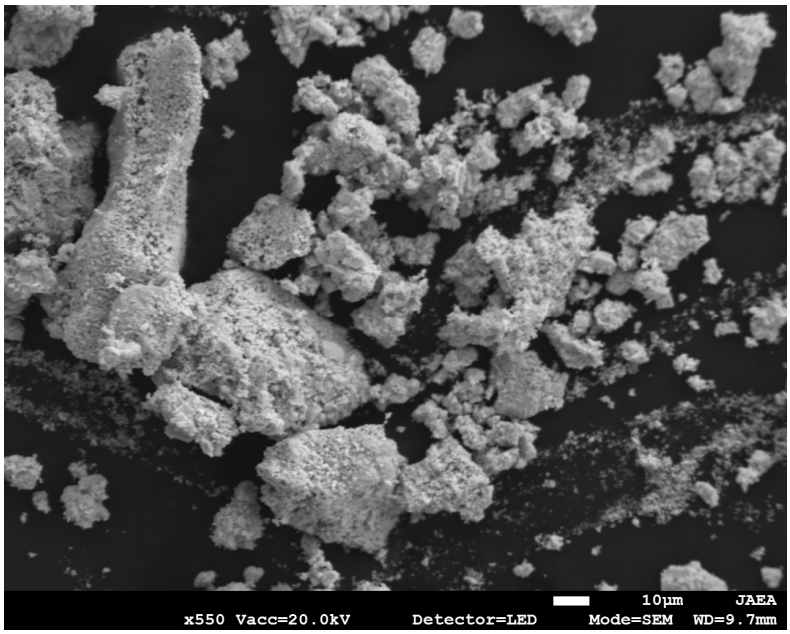


図 50　SEM 像（低濃縮ウラン UO_2）

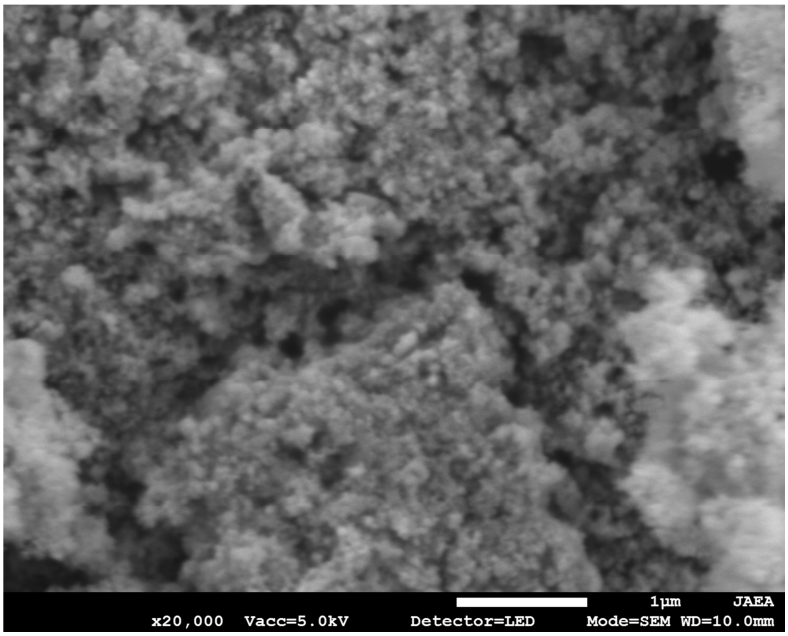


図 51　SEM 像（CeO_2 ナノ粒子）

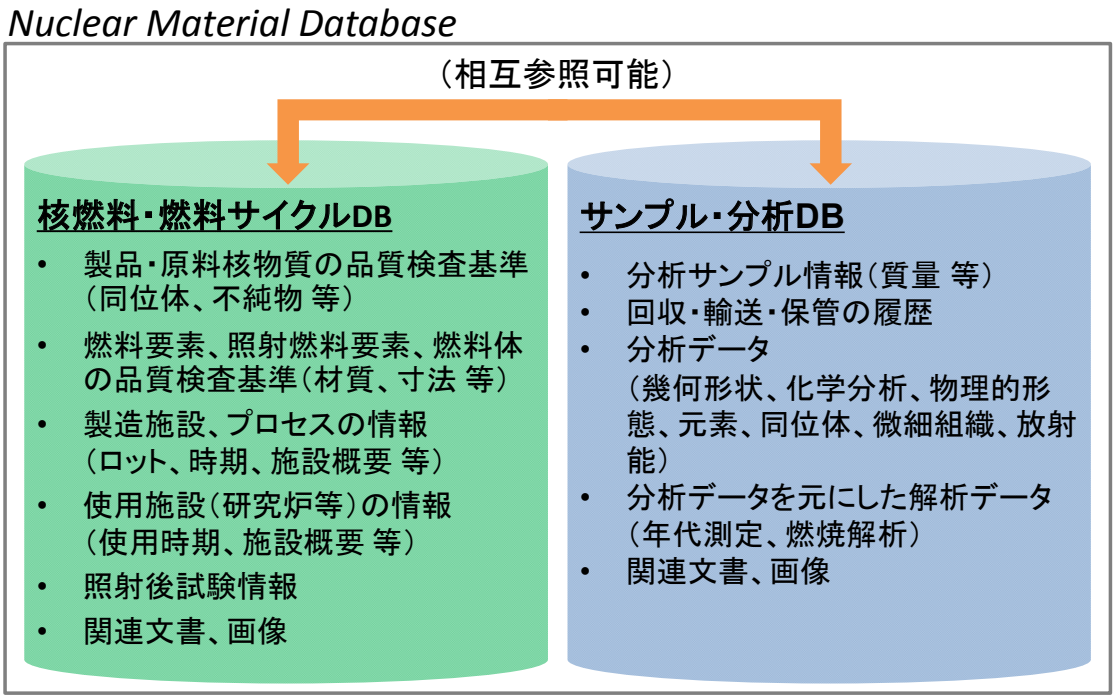


図 52　核物質データベースのデータ構造概要

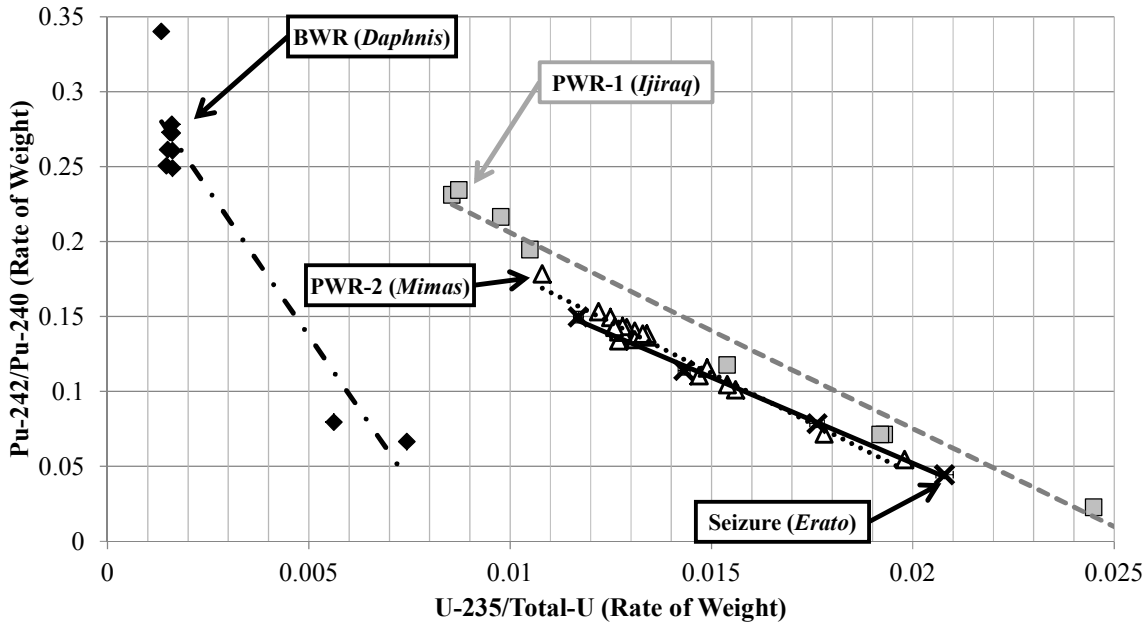


図 53　同位体相関比較法による属性評価の例

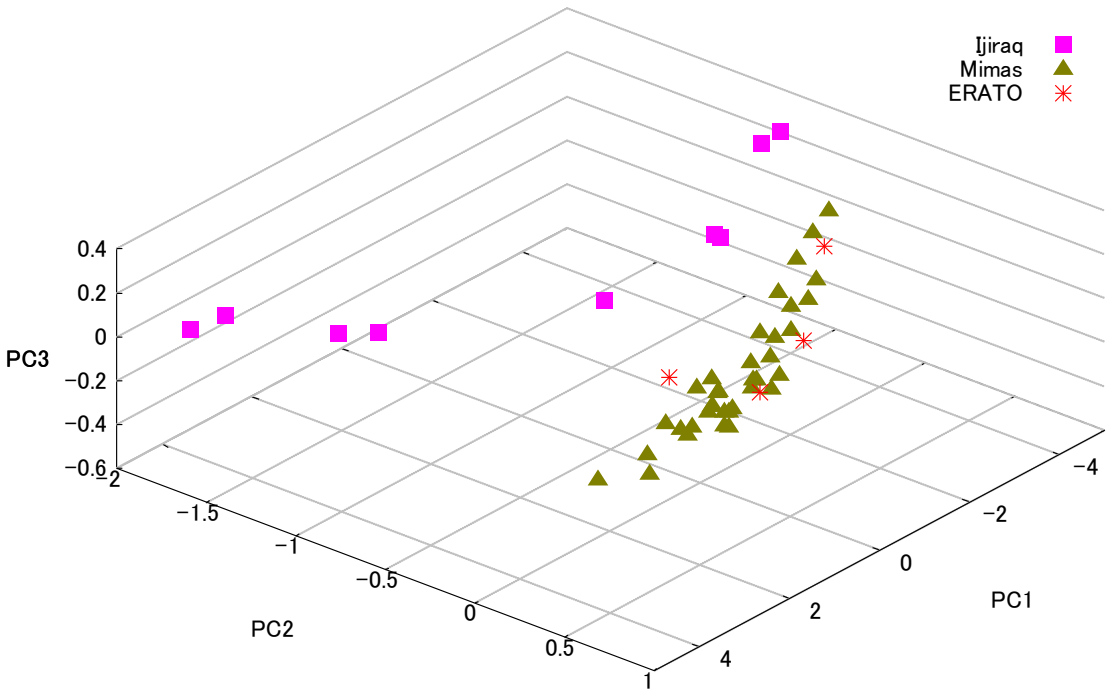


図 54　主成分分析法による属性評価の例

付録-1　核鑑識技術用語説明

イオン交換分離法

イオン交換樹脂中に固定されたイオンと溶液中のイオン（交換されるイオン）との吸着の差を利用することにより、溶液中に含まれる各イオンを分離する方法。核鑑識での不純物分析では、イオン交換樹脂としてアイクローム社 UTEVA 樹脂を、分離液として硝酸を使用して分離・精製している。

ウラン標準試料

ウランの同位体組成（濃縮度）を正確に測定する目的で、予め質量分析装置を校正するために用いられるウランの認証標準物質。米国の国立標準技術研究所（National Institute of Standards and Technology、NIST）が取り扱っている。

回折コントラスト像

入射電子は試料中の構成原子によって散乱される。対物絞りで止められた散乱電子は、あたかも試料に吸収があるかのように作用する。これを散乱吸収という。散乱の大きさの違いによって像にコンラストがつくことを散乱コンラストという。透過型電子顕微鏡（TEM）画像における散乱コントラストのうち、試料が結晶の場合には、角度に関して連続的に分布している散乱波は、ブラッグ反射を起こして非連続的に分布する回折波となる。試料の場所（位置）によって回折条件が変わるために回折波の強さが変化して、像にコントラストがつくことをという。なお、ブラッグ反射とは、結晶に電子線、X 線などが入射したとき、結晶面間隔、波長によって決まる特定の方向に反射を起こす現象である。

核鑑識

捜査当局によって押収、採取された核物質及び放射性物質について、核物質、放射性物質及び関連する物質の組成、物理・化学的形態等を分析し、その物品の出所、履歴、輸送経路、目的等を分析・解析する技術的手段。核鑑識活動には、対象物質のサンプリング、採取したサンプルの分析、分析結果とデータベースや数値シミュレーションとの比較による解析といった活動が含まれる。核鑑識活動の対象としては、不正取引として押収された核物質等（pre detonation）や、核や放射性物質を伴う破壊行為の残骸から採取された核物質等（post detonation）が想定されている。

画像解析

計算機の応用として、画像を自由に加工あるいは編集するだけでなく、画像から様々な情報を定量的に抽出できる機能。一般に、画像処理にはC 言語などが用いられている。

欠陥・損傷

理想的な結晶では、原子は規則正しい格子をつくって並んでいて、このような結晶は完全結晶と呼ばれる。この規則性が乱れたものを格子欠陥と呼ぶ。格子欠陥には点状、線状、面状のものがある。材料が中性子やγ線などエネルギーを持った放射線の照射を受けたときに生じる損傷を照射損傷という。核鑑識の観点からは、照射済燃料などは格子欠陥や中性子照射損傷を観察できると考えられるので、欠陥・損傷の度合いはシグネチャとして有効であると期待される。

結晶粒界

金属，セラミックスなどの固体材料は、大きな塊が全て同じ原子配列を持っているわけではなく、配列の向きが異なる領域(これを結晶粒と言う)が多数集まった構造を持つ数多くの結晶の粒の集合体である。隣接する結晶粒の相が同じときには、両者の界面を結晶粒界という。両者の相が異なるときには異相界面または異相境界という。

高分解能透過電子像

球面収差の小さい対物レンズを用いた透過電子顕微鏡で、薄い試料からの透過波と回折波を干渉させて格子像や結晶構造像を得る手法を高分解能透過電子顕微鏡法(High-Resolution Electron Microscopy)といい、得られる画像が高分解能透過電子像である。原子力機構で整備した透過型電子顕微鏡(TEM)を用いることにより、この手法を核鑑識に適用できる。

シグネチャ(signature)

“固有の特徴”の意であるが、核鑑識の分野では“シグネチャ”と言うのが一般的である。正確な解釈・説明を可能にする情報のこと。

属性評価手法

核鑑識分析において、分析した各種のデータをもとに、押収物質の起源(出所)や履歴、本来の使用目的などの「属性」を特定するために行う、既存の核物質等のデータとの照合や解析に関する手順を総称して属性評価手法と呼ぶ。分析データの種類やデータ照合の結果によっては、多種多様な解析が必要となる。

多変量統計解析法

複数のデータ項目(変量)をもとに、これらの変量間の相互関連を統計的に分析する技法の総称を多変量(統計)解析法と呼ぶ。最も有名なものでは、複数の変量で特定の 1 変量を説明する回帰分析も多変量解析法のひとつである。その他には、複数の変量からサンプルの特徴を最もあらわす総合得点的な変量(主成分)を合成してサンプル間の差異や類似性を分析する主成分分析法や、サンプルをグループ分けするための基準を求め、その基準から変

量の関係性を求める判別分析法、変量の類似度（距離）を元に段階的にサンプルを分類するクラスター分析法など様々な手法が存在する。また、これらを複数組み合わせた分析法も存在する。核鑑識分析で得られた様々な種類の分析データ（数値データ、非数値データ）からは、物質間の差異や類似点などを定量的に分析することができるため、多変量統計解析法は強力な属性評価手法の一つとして核鑑識に適用できる。

（多変量統計解析の応用例：ある商品に対しては様々な評価や結果があり、売上高や利益率、顧客満足度や商品特性など、その商品に関する評価データは、すべて何らかの原因があって作り上げられる。これらの評価データのうち、売上高は商品力や価格、販売促進、販売経路などのマーケティングが関わり、利益率は原価や一般管理費、商品特性は原材料や製造方法などに関係するため、原因は多岐にわたる。このため企業では、これらの多くの変数から成るデータを同時に評価できる多変量統計解析法を用いて、その商品の問題を解決しようとしている。）

知識ベース

事実や常識、経験などの知識をコンピュータが解読できる形にしてデータベースにしたもの。ナレッジベースとも呼ばれる。過去にはJAERIとJNCが共同で開発した、知識ベースを含む原子炉材料データベースシステムがある。この知識ベースシステムでは、材料の専門家などが、①材料の数値データを検索して、②検索結果から任意のデータ項目の組み合わせでグラフを作成し、③グラフから新しい知見を得るという流れにおける、「検索条件」、「検索結果」、「作成したグラフ」、「新しい知見のメモ」を使用データとリンク付けて登録しておき、登録されている手順を追うことで、専門家以外の人でも同様の評価を行うことが可能なシステムになっている。核鑑識では、①ある押収物質を分析して、②分析データをもとに核物質を検索、③核物質を特定するために追加の分析を行って 2 次分析データで再検索、④適切な分析データ項目を用いてグラフなどを作成し属性を特定するという流れにおける、「検索条件」、「検索結果」、「追加分析の方法やそれを選択した理由のメモ」、「属性の特定に必要となったグラフ」などを登録しておく知識ベースシステムがライブラリの開発に有効であると考えられる。

データ構造

データの集合（データベース）をコンピュータ上で効率的に扱うために、適切に系統立ててデータを格納する形式のことをデータ構造と呼ぶ。データベース開発において、データ構造をどのように設計するかが、データを検索・抽出する際のパフォーマンスに大きく影響する。そのため、データベースで取り扱うデータの種類や量によってデータ構造の設計が最も大きな課題となる。

データベース

特定の目的で収集したデータを集約管理し、容易に検索・抽出などの再利用をできるようにしたもの。通常は、コンピュータ上に実現されたものをデータベースと呼び、コンピュータ上でデータベースを管理するためのシステムをデータベース管理システム（Database Management System：DBMS）という。

電子エネルギー損失分光法（Electron Energy-Loss Spectroscopy、EELS）

電子が薄片試料を透過する際に原子との相互作用により失うエネルギーを測定することによって、物質の構成元素や電子構造を分析する手法。電子を試料に入射すると電子準位に応じて異なるエネルギーの相互作用が発生し、そのスペクトルを解析することにより試料を構成する原子固有の電子状態を知ることができる。近年の技術の進歩により、エネルギー分解能は 0.2 eV、空間分解能は数 nm での高分解能測定が可能である。これは、放射光を用いた分析に匹敵する。

電子回折

電子回折または電子線回折（electron diffraction）は、試料に電子を当てて干渉パターンを観察することで、物質を研究するのに使われる技法。粒子と波動の二重性によって起こる現象である。

透過型電子顕微鏡（Transmission Electron Microscope、TEM）

電子顕微鏡の一種であり、薄膜状の試料に電子線を照射し、試料を透過した電子線を結像レンズ系で拡大する電子顕微鏡。可視像にするためには、結像レンズ系の下に置いた蛍光スクリーンで光に変換する。試料を電子が透過する必要があるので、100kV～1000kV に加速された電子線を使う。薄膜試料内部の形態、結晶構造、組成、電子状態などの情報が得られ、分解能は 0.1～0.2 nm である。物理学、化学、工学、生物学、医学などで幅広く用いられている。

統計解析

統計学により、経験的に得られたバラツキのあるデータから、応用数学の手法を用いて数値上の性質や規則性あるいは不規則性を見いだすことができる。統計解析は、データの解釈を行う上での根拠を提供する手法であり、幅広い分野で応用されている。核鑑識では、分析して得られたデータとライブラリのデータベースを統計解析して、押収された物品の出所や履歴などを推定することになる。

表面電離型質量分析計（TIMS）

一般に、質量分析計とは、イオン源に導入した試料を正または負の電荷をもつイオンに変

換・加速し、磁場又は電場を通過させることでイオンをその質量によって分離、直接検出する装置である。ウランなどの元素の同位体(化学的性質は同一で質量が異なる)の存在度を高精度で測定することが可能である。TIMS は金属フィラメント(レニウムやタングステン等)に目的元素を直接塗布し、真空下で加熱することでイオン化を行う。この際、目的元素以外の元素が共存するとイオン化を著しく妨害するため、TIMS による測定はその前処理段階として，非常に高純度で目的元素のみを分離・抽出する技術が必要となる。

不純物元素分析

ウランなどの核物質に含まれる不純物元素は、その核物質の素性(製造施設、地域、など)を反映している。正確に分析した不純物含有量や組成は、核鑑識上の有力なデータとなる。

プロトタイプ国内核鑑識ライブラリ

核鑑識の分析データを照合するための、核物質及び放射性物質のデータベースと属性評価手法(データ検索や統計解析の機能)をパッケージ化したものを核鑑識ライブラリと呼ぶ。自国で製造・使用している核物質や放射性物質の情報を集約し、押収物質が国内由来のものかどうかを特定することを目的とした、「国家核鑑識ライブラリ(National Nuclear Forensics Library: NNFL)」を各国が各々開発することが国際的に最も普及した考え方となっている。現在原子力機構では、機構が保有する核物質データをもとにして、将来日本が構築する国家核鑑識ライブラリの原型となるプロトタイプ・ライブラリを開発している。

誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS)

霧化した試料溶液をアルゴンガスとともにプラズマ光源部に導入して元素をイオン化し、発生したイオンを質量分析部で検出する装置。周期表上のほとんどすべての元素を同時に測定可能であり、サブ ng/L(ppt)の濃度レベルで測定できる。

AS (Action Sheet)

欧州委員会/共同研究センターと原子力機構の間の研究協力に関する取り決め。現在 AS-2(核鑑識に関する情報交換)及び AS-3(核鑑識のための年代測定比較試験)についての研究協力を検討している。

EC/JRC(European Commission/Joint research Center、欧州委員会/共同研究センター)

欧州委員会は欧州連合(European Union)の政策執行機関であり、法案の提出、決定事項の実施、基本条約の支持、日常の連合の運営を担っている。欧州委員会傘下の共同研究センターの一つである超ウラン元素研究所(The Institute for Transuranium Elements: ITU、ドイツのカールスルーエにある研究所)が核鑑識を担当している。高レベル放射性物質の使用・貯蔵に関わるリスクから欧州市民を保護するための科学的基盤を構築するが JRC-ITU の一つの

役割となっている。

FIB（Focused Ion Beam、収束イオンビーム）
きわめて細く集束したイオンビームを試料表面で走査することにより、発生した二次電子などを検出して顕微鏡像を観察したり、試料表面を加工したりすることのできる装置。核鑑識では、試料を 100nm 以下に薄く削る作業（薄膜化）に FIB を用いる。

GICNT（Global Initiative to Combat Nuclear Terrorism、核テロに対抗するグローバル・イニシアティブ）
核テロの防止、検知、対応に関する能力を国際的に強化することを目的とした国際パートナーシップで、現在、84 カ国と IAEA、EU、Interpol（国際刑事警察機構）及び UNODC（United Nation Office of Drugs and Crime、国連薬物犯罪事務所）が参加している。設立は 2006 年 7 月で、提唱国である米国とロシアが共同議長を務めている。これまで、高級レベル会合（プレナリー会合）を 8 回開催しているのに加え、国際的ワークショップ、演習を行っている。

INMM（Institute of Nuclear Materials Management、核物質管理学会）
米国に本部を置き、核物質の管理に携わる管理者、技術者、研究者等で組織された専門家による国際的な非営利団体で、核物質管理の分野における新しい概念、手法、技術、機器等の研究開発を促進している。この学会は、核燃料サイクル施設における核物質管理技術の適用、監査、数学、統計、物理、化学、保障措置等の技術を含め、世界中の核物質管理実務を進歩させるための科学的、教育的な組織として 1958 年（昭和 33 年）に設立された。設立以来、学会は元来の基本的役割であった核物質管理技術の向上に加え、国際保障措置、核不拡散と軍縮、核物質防護、核物質輸送、廃棄物管理の問題にまでその役割が拡大されている。アジアやヨーロッパからの学会 員登録を含めると会員総数約 1,000 名の国際的な学会となっている。なお、INMM 日本支部は、世界で初めての支部として 1976 年に設立された。

ITWG（Nuclear Smuggling International Technical Working Group、核物質の違法移転に関わる国際技術ワーキンググループ）
冷戦後の核物質の違法移転に対処するために、G8 核不拡散専門家グループ（NPEG：Non-Proliferation Experts Group）の後援を受けて、1996 年に核鑑識技術の開発、共通の手法や技術を提供するために設立されたワーキンググループ。核鑑識モデル行動計画を作成して、これが IAEA 核セキュリティ・シリーズ No. 2「核鑑識サポート」に反映されている。また、核鑑識技術向上のために、ラウンドロビン・エクササイズ（国際比較試験）を実施（1999 年、2002 年、2010 年）している。現在、以下の 5 つのタスクグループを設置し、国際協力プログラムを実施している。

・Communication & Outreach	核鑑識分野の教育・普及
・Evidence Collection	演習
・Exercises	ラウンドロビン・エクササイズ
・Guidelines	ガイドライン作成
・National Nuclear Forensics Libraries	データベース作成

PAS (Project Action Sheet)

米国 DOE と原子力機構の間の研究協力に関する取り決め。これまでに PAS-19（核鑑識のための年代測定技術にかかる協力）、PAS-20/29［新規］（核鑑識のための核燃料の特性解析の分野にかかる協力）及び PAS-21（核鑑識ライブラリの分野にかかる協力）を実施している。

^{231}Pa/^{235}U 比年代測定法

親核種 ^{235}U とその壊変生成核種 ^{231}Pa の原子数比を正確に測定することにより、ウランの精製時期（^{231}Pa を分離した年代）を推定する手法。

^{235}U［半減期 145,700 年］ → ^{231}Th［半減期 25.52 時間］ → ^{231}Pa［半減期 32,769 年］

^{230}Th/^{234}U 比年代測定法

親核種 ^{234}U と娘核種 ^{230}Th の原子数比を正確に測定することにより、ウランの精製時期（^{230}Th を分離した年代）を推定する手法。

^{234}U［半減期 245,700 年］ → ^{230}Th［半減期 75,380 年］

付録-2　核鑑識ライブラリ

1.　核燃料・燃料サイクルデータベース

テーブル	キー（主キー：*）	データ型	長さ	単位	値	説明
原子炉・臨界集合体（REACTOR_CRITICAL_ASSEMBLY）	*REA_ID	number		－		原子炉ID
	REA_NAM	varchar2	255	－		原子炉名
	REA_ACR	varchar2	255	－		原子炉名短縮形
	MAX_POW	number		MW		最大熱出力
	AV_THE_FLU	number		n/cm^2/s		平均熱中性子束
	MAX_THE_FLU	number		n/cm^2/s		最大熱中性子束
	AV_FAS_FLU	number		n/cm^2/s		平均高速中性子束
	MAX_FAS_FLU	number		n/cm^2/s		最大高速中性子束
	REF_MAT_ID	number		－		反射体物質ID
	MOD_MAT_ID	number		－		減速材物質ID
	COO_MAT_ID	number		－		冷却材物質ID
	REA_ADD	varchar2	255	－		住所
	REA_LON	varchar2	255	－	DDMMSS E/W	経度
	REA_LAT	varchar2	255	－	DDMMSS N/S	緯度
	REA_MAN_ID	number		－		製造機関ID
	REA_OWN_ID	number		－		所有機関ID
	REA_OPE_ID	number		－		運転機関ID
	FIR_CRI_DAT	date		－	YYMMDD	初臨界達成日
	STA_ORE_DAT	date		－	YYMMDD	通常運転開始日
	END_OPE_DAT	date		－	YYMMDD	運転終了日
	STA_DES_DAT	date		－	YYMMDD	解体開始日
	END_DES_DAT	date		－	YYMMDD	解体終了日
	REA_COM	varchar2	1024	－		コメント
燃料体（FUEL_ASSEMBLY）	*FUE_ASS_ID	number		－		燃料体ID
	LOA_REA_ID	number		－		装荷原子炉ID
	FUE_ASS_TYP_ID	number		－		燃料型・燃料配列ID
	FUE_ROD_PLA_PIT	number		mm		燃料棒/板ピッチ
	FUE_ROD_PLA_NUM	number		－		燃料棒/板数
	FUE_ELE_PER_ROD	number		－		燃料棒あたりの燃料要素数
	FUE_ASS_TOT_LEN	number		mm		燃料体全長
	EFF_FUE_LEN	number		mm		燃料有効長
	CLA_OUT_RAD	number		mm		燃料被覆管外径
	CLA_THI	number		mm		燃料被覆材厚
	FUE_ASS_OPP_SID_DIS	number		mm		集合体外寸法（対辺間距離）
	CLA_MAT_ID	number		－		被覆材料ID
	OTH_COM_MAT_ID1	number		－		燃料体主要構造材料ID①
	OTH_COM_MAT_ID2	number		－		燃料体主要構造材料ID②
	OTH_COM_MAT_ID3	number		－		燃料体主要構造材料ID③
	WIR_GRI_SPA	number		－	ワイヤスペーサ/グリッドスペーサ	ワイヤスペーサ/グリッドスペーサ
	SPA_MAT_ID	number		－		スペーサ材料ID
	ASS_COM_ID	number		－		組立機関ID
	ASS_COM	varchar2	1024	－		コメント

燃料要素 (FUEL_ELEMENT)	*FUE_ELE_ID	number		−		燃料要素ID
	FUE_ASS_ID	number		−		燃料体ID
	FUE_ELE_SHA_ID	number		−		燃料形状ID
	FUE_ELE_MAN_ID	number		−		製造機関ID
	FUE_ELE_THE_DEN	number		g/cc		理論密度 (g/cc)
	FUE_ELE_DEN	number		%T.D.		密度 (% T.D.)
	FUE_ELE_GEO1	number		mm	直径(球)、高さ(その他)	ジオメトリ①
	FUE_ELE_GEO2	number		mm	幅(平板, 八橋), 直径(円柱), 外径(円筒)	ジオメトリ②
	FUE_ELE_GEO3	number		mm	厚み(平板, 八橋), 内径(円筒)	ジオメトリ③
	FUE_ELE_MAX_DEN	number		%T.D.		最大密度 (% T.D.)
	FUE_ELE_MIN_DEN	number		%T.D.		最小密度 (% T.D.)
	FUE_ELE_MAX_GEO1	number		mm	直径(球)、高さ(その他)	最大ジオメトリ①
	FUE_ELE_MIN_GEO1	number		mm	直径(球)、高さ(その他)	最小ジオメトリ①
	FUE_ELE_MAX_GEO2	number		mm	幅(平板, 八橋), 直径(円柱), 外径(円筒)	最大ジオメトリ②
	FUE_ELE_MIN_GEO2	number		mm	幅(平板, 八橋), 直径(円柱), 外径(円筒)	最小ジオメトリ②
	FUE_ELE_MAX_GEO3	number		mm	厚み(平板, 八橋), 内径(円筒)	最大ジオメトリ③
	FUE_ELE_MIN_GEO3	number		mm	厚み(平板, 八橋), 内径(円筒)	最小ジオメトリ③
	FUE_ELE_OTH_GEO	varchar2	1024	−		複雑形状説明
	FUE_ELE_SUR_ROU	varchar2	255	−	粗さ区分	表面粗さ
	FUE_ELE_MAX_PU_SPO	number		μm		プルトニウムスポット最大径
	FUE_ELE_POR	number		%		空隙率
	U_SOL_CON	number		g/L		ウラン溶液濃度
	PU_SOL_CON	number		g/L		プルトニウム溶液濃度
	FUE_ELE_STA_MAN_DAT	date		−	YYMMDD	製造開始日
	FUE_ELE_END_MAN_DAT	date		−	YYMMDD	製造終了日
	FUE_ELE_COM	varchar2	1024	−		コメント
照射燃料要素 (IRRAD_ELEMENT)	*IRR_ELE_ID	number		−		照射燃料要素ID
	LOA_REA_ID	number		−		装荷原子炉ID
	CAP_NAM_ID	varchar2	255	−		カプセル名/ID
	IRR_ELE_NAM_ID	varchar2	255	−		照射燃料要素名/ID
	IRR_ELE_SHA_ID	number		−		照射燃料要素形状ID
	IRR_ELE_MAN_ID	number		−		製造機関ID
	IRR_ELE_THE_DEN	number		g/cc		理論密度 (g/cc)
	IRR_ELE_DEN	number		%T.D.		密度 (% T.D.)
	IRR_ELE_GEO1	number		mm	高さ	ジオメトリ①
	IRR_ELE_GEO2	number		mm	幅(平板, 八橋), 直径(円柱), 外径(円筒)	ジオメトリ②
	IRR_ELE_GEO3	number		mm	厚み(平板, 八橋), 内径(円筒)	ジオメトリ③
	IRR_ELE_MAX_DEN	number		%T.D.		最大密度 (% T.D.)
	IRR_ELE_MIN_DEN	number		%T.D.		最小密度 (% T.D.)
	IRR_ELE_MAX_GEO1	number		mm	高さ	最大ジオメトリ①
	IRR_ELE_MIN_GEO1	number		mm	高さ	最小ジオメトリ①
	IRR_ELE_MAX_GEO2	number		mm	幅(平板, 八橋), 直径(円柱), 外径(円筒)	最大ジオメトリ②
	IRR_ELE_MIN_GEO2	number		mm	幅(平板, 八橋), 直径(円柱), 外径(円筒)	最小ジオメトリ②
	IRR_ELE_MAX_GEO3	number		mm	厚み(平板, 八橋), 内径(円筒)	最大ジオメトリ③
	IRR_ELE_MIN_GEO3	number		mm	厚み(平板, 八橋), 内径(円筒)	最小ジオメトリ③
	IRR_ELE_OTH_GEO	varchar2	1024	−	湾曲半径(八橋), 円筒半径(円筒用八橋), ディッシュ径, ディッシュ深さ, チャンファ高(ペレット)	複雑形状説明
	IRR_ELE_SUR_ROU	varchar2	255	−	粗さ区分	表面粗さ
	IRR_ELE_MAX_PU_SPO	number		μm		プルトニウムスポット最大径
	IRR_ELE_POR	number		%		空隙率
	IRR_ELE_STA_IRR_DAT	date		−	YYMMDD	照射開始日
	IRR_ELE_END_IRR_DAT	date		−	YYMMDD	照射終了日
	IRR_ELE_PIE_FAC_ID	number		−		照射後試験施設ID
	IRR_ELE_COM	varchar2	1024	−		コメント

原料核物質 (RAW_NUCL_MAT)	*RAW_NUC_MAT_ID	number		−		原料核物質ID
	FUE_ELE_ID	number		−		燃料要素ID
	IRR_ELE_ID	number		−		照射燃料要素ID
	PAR_PRO_ID	number		−		親プロセスID
	PAR_NUC_MAT_ID	number		−		親核物質ID
	RAW_NUC_MAT_CHE_FOR_ID	number		−		化学形態ID
	RAW_NUC_MAT_PHY_FOR_ID	number		−		物理形態ID
	U_ENR	number		%		ウラン濃縮度
	MAX_U_ENR	number		%		ウラン濃縮度最大値
	MIN_U_ENR	number		%		ウラン濃縮度最小値
	FIS_FRA	number		%		Fissile割合
	MAX_FIS_FRA	number		%		Fissile割合最大値
	MIN_FIS_FRA	number		%		Fissile割合最小値
	FIS_PU_ENR	number		%		Fissileプルトニウム富加度
	MAX_FIS_PU_ENR	number		%		Fissileプルトニウム富加度最大値
	MIN_FIS_PU_ENR	number		%		Fissileプルトニウム富加度最小値
	MAX_OM_RAT	number		−		O/M比最大値
	MIN_OM_RAT	number		−		O/M比最小値
	GD_CON	number		%		ガドリニウム濃度
	MAX_GD_CON	number		%		ガドリニウム濃度最大値
	MIN_GD_CON	number		%		ガドリニウム濃度最小値
	MAX_TOT_IMP	number		ppm		不純物合計最大値
	RAW_NUC_MAT_COM	varchar2	1024	−		コメント
原料核物質不純物 (RAW_NUCL_MAT_IMPURITY)	*RAW_NUC_MAT_ID	number		−		原料核物質ID
	*IMP_ELE_ID	number		−		不純物元素ID
	IMP_PRE_ID	number		−		不純物元素含有値接頭コードID
	IMP_CON	number		ppm		不純物元素含有値
	IMP_COM	varchar2	1024	−		コメント
原料核物質粒子 (RAW_NUCL_MAT_PARTICLE)	*RAW_NUC_MAT_PAR_ID	number		−		原料核物質粒子ID
	RAW_NUC_MAT_ID	number		−		原料核物質ID
	PAR_SHA_ID	number		−		粒子形状ID
	PAR_ASP_RAT	number		−	1以下の値	粒子縦横比
	AV_GRA_SIZ	number		μm		平均粒径
	MAX_GRA_SIZ	number		μm		最大粒径
	MIN_GRA_SIZ	number		μm		最小粒径
	AV_SPE_SUR	number		cm^2/g		平均比表面積
	MAX_SPE_SUR	number		cm^2/g		最大比表面積
	MIN_SPE_SUR	number		cm^2/g		最小比表面積
	SHA_HOM	number	1	−	0:No,1:Yes	形状均一性
	ASP_RAT_HOM	number	1	−	0:No,1:Yes	縦横比均一性
	RAW_NUC_MAT_PAR_COM	varchar2	1024	−		コメント
プロセス (PROCESS)	*PRO_ID	number		−		プロセスID
	PRO_NAM_ROT_ID	varchar2	255	−		プロセス名/ロット番号
	PRO_TYP_ID	number		−		プロセスタイプID
	PRO_FAC_ID	number		−		施設ID
	PRO_STA_DAT	date		−	YYMMDD	プロセス開始日
	PRO_END_DAT	date		−	YYMMDD	プロセス終了日
	FOR_PRO_ID	number		−		前プロセスID
	PRO_COM	varchar2	1024	−		コメント

サイクル施設 (CYCLE_FACILITY)	*CYC_FAC_ID	number		−		サイクル施設ID
	CYC_FAC_NAM	varchar2	255	−		サイクル施設名
	CYC_FAC_ADD	varchar2	255	−		住所
	CYC_FAC_LON	varchar2	255	−	DDMMSS E/W	経度
	CYC_FAC_LAT	varchar2	255	−	DDMMSS N/S	緯度
	CYC_FAC_OWN_ID	number		−		所有機関ID
	FAC_STA_DAT	date		−	YYMMDD	運転開始日
	FAC_OPE_END_DAT	date		−	YYMMDD	運転終了日
	FAC_CLO_DAT	date		−	YYMMDD	施設閉鎖日
	CYC_FAC_COM	varchar2	1024	−		コメント
照射後分析施設 (PIE_FACILITY)	*PIE_FAC_ID	number		−		照射後分析施設ID
	PIE_FAC_NAM	varchar2	255	−		照射後分析施設名
	PIE_FAC_OWN_ID	number		−		照射後分析施設保有機関ID
	PIE_FAC_ADD	varchar2	255	−		照射後分析施設住所
燃焼データ (BURNUP_DATA)	*BUR_DAT_ID	number		−		燃焼データID
	REA_ID	number		−		原子炉ID
	MEA_CAL	number	1	−	Y(測定値)/N(計算値)	測定値/計算値
	X_DEN_ISO_ELE_ID	number		−		X分母同位体元素ID
	X_NUM_ISO_ELE_ID	number		−		X分子同位体元素ID
	X_DEN_ISO_MAS_NUM	number		−		X分母同位体質量数
	X_NUM_ISO_MAS_NUM	number		−		X分子同位体質量数
	Y_DEN_ISO_ELE_ID	number		−		Y分母同位体元素ID
	Y_NUM_ISO_ELE_ID	number		−		Y分子同位体元素ID
	Y_DEN_ISO_MAS_NUM	number		−		Y分母同位体質量数
	Y_NUM_ISO_MAS_NUM	number		−		Y分子同位体質量数
	X5_COE	number		−		X^5項係数
	X4_COE	number		−		X^4項係数
	X3_COE	number		−		X^3項係数
	X2_COE	number		−		X^2項係数
	X1_COE	number		−		X項係数
	CON_TER	number		−		定数項
	DET_COE	number		−		決定係数
	MAX_X	number		−		X最大値
	MIN_X	number		−		X最小値
	MAX_Y	number		−		Y最大値
	MIN_Y	number		−		Y最小値
	MAX_BUR	number		MWd/t		燃焼度最大値
	MIN_BUR	number		MWd/t		燃焼度最小値
	CAL_COD	varchar2	255	−		計算コード
	CAL_LIB	varchar2	255	−		断面積ライブラリ
	BUR_COM	varchar2	1024	−		コメント

2. サンプル・分析データベース

テーブル	キー（主キー：*）	データ型	長さ	単位	値	説明
サンプル（SAMPLE）	*SAM_ID	number		−		サンプルID
	OTH_SAM_ID	varchar2	255	−		機関内サンプルID
	SAM_OWN_ID	number		−		所有者ID
	SAM_ARC_ID	number		−		保管施設ID
	SAM_COLN_ID	number		−		回収ID
	SAM_PHY_FOR_ID	number		−		サンプル物理形態ID
	SAM_MAS	number		g		サンプル質量
	SAM_MAS_UNC	number		−		質量不確かさ
	SAM_MAS_UNC_SIG_LEV	varchar2	255	−	1sigma, 2sigma, 3sigma	不確かさシグマレベル
	SAM_MAS_UNC_TYP_ID	number		−		不確かさ種類ID
	SAM_CON_ID	number		−		容器ID
	SAM_RAW_NUC_MAT_ID	number		−		参照原料核物質ID
	SAM_COM	varchar2	1024	−		コメント
サンプル所有者（SAMPLE_OWNER）	*SAM_OWN_ID	number		−		サンプル所有者ID
	SAM_OWN_NAM	varchar2	255	−		サンプル所有者名
	SAM_OWN_FUR	varchar2	255			サンプル所有者名振り仮名
	SAM_OWN_POC	varchar2	255	−	住所、電話番号、メールアドレスなど	サンプル所有者連絡先
	SAM_OWN_COM_AGE_ID	number		−		所属機関ID
サンプル保管施設（SAMPLE_ARCHIVE）	*SAM_ARC_ID	number		−		保管施設ID
	SAM_ARC_NAM	varchar2	255	−		保管施設名
	SAM_ARC_ADD	varchar2	255	−		住所
	SAM_ARC_LON	varchar2	255	−	DDMMSS,E/W	経度
	SAM_ARC_LAT	varchar2	255	−	DDMMSS,N/S	緯度
	SAM_ARC_COM_AGE_ID	number		−		保管施設保有機関ID
	SAM_ARC_DAT	date		−	YYMMDD	保管開始日
	FOR_ARC_ID	number		−		前保管施設ID
	FOR_TRA_ID	number		−		前保管施設からの輸送手段ID
	SAM_ARC_COM	varchar2	1024	−		コメント
サンプル回収（SAMPLE_COLLECTION）	*SAM_COLN_ID	number		−		回収ID
	SAM_COLN_LOC_NAM	varchar2	255	−		回収場所名
	SAM_COLN_LOC_ADD	varchar2	255	−		住所
	SAM_COLN_LOC_LON	varchar2	255	−	DDMMSS,E/W	経度
	SAM_COLN_LOC_LAT	varchar2	255	−	DDMMSS,N/S	緯度
	SAM_COLN_SIT_ID	number		−		回収状況ID
	SAM_COLN_DAT	date		−	YYMMDD	回収日
	SAM_COLN_TIM	date		−	HHMMSS	回収時間
	SAM_COLR_ID	number		−		回収者ID
	FIR_ARC_ID	number		−		回収後保管施設ID
	FIR_TRA_ID	number		−		回収後輸送手段ID
	SAM_COLN_COM	varchar2	1024	−		コメント

サンプル容器 (SAMPLE_CONTAINER)	*SAM_CON_ID	number		−		容器ID
	SAM_CON_SER	varchar2	255	−		シリアル番号
	SAM_CON_SHA_ID	number		−		容器形状ID
	SAM_CON_GEO1	number		mm	直径(球)、高さ(その他)	ジオメトリ①
	SAM_CON_GEO2	number		mm	幅(平板, 八橋、直方体), 直径(円柱), 外径(円筒)	ジオメトリ②
	SAM_CON_GEO3	number		mm	厚み(平板, 八橋、直方体), 内径(円筒)	ジオメトリ③
	SAM_CON_OTH_GEO	varchar2	1024	−		不規則形状ジオメトリ
	SAM_CON_TOT_MAS	number		g		容器＋サンプル質量
	SAM_CON_MAS	number		g		容器質量
	SAM_CON_MAS_UNC	number		−		容器質量不確かさ
	SAM_CON_MAS_UNC_SIG_LEV	varchar2	255	−	1sigma, 2sigma, 3sigma	不確かさシグマレベル
	SAM_CON_MAS_UNC_TYP_ID	number		−		不確かさ種類ID
	SAM_CON_MAS_MAI_MAT_ID	number		−		容器構成主物質
	SAM_CON_SUR_DOS	number		Sv/h		容器表面線量
	SAM_CON_1M_DOS	number		Sv/h		容器1m線量
	OTH_CON_MAT	varchar2	255	−		容器内他物質
	PAR_CON_ID	number		−		親容器ID
	SAM_CON_COM	varchar2	1024	−		コメント
サンプル回収者 (SAMPLE_COLLECTOR)	*SAM_COLR_ID	number		−		回収者ID
	SAM_COLR_NAM	varchar2	255	−		回収者名
	SAM_COLR_FUR	varchar2	255			回収者名振り仮名
	SAM_COLR_POC	varchar2	255	−	住所、電話番号、メールアドレスなど	回収者連絡先
	SAM_COLR_COM_AGE_ID	number		−		所属機関ID

テーブル	キー（主キー:*）	データ型	長さ	単位	値	説明
サンプル形状分析（SAMPLE_SHAPE_MEASUREMENT）	*SAM_SHA_MEA_ID	number		−		サンプル形状分析ID
	SAM_ID	number		−		サンプルID
	SAM_SHA_ID	number		−		サンプル形状ID
	SAM_GEO1	number		mm		ジオメトリ①
	SAM_GEO2	number		mm		ジオメトリ②
	SAM_GEO3	number		mm		ジオメトリ③
	SAM_OTH_GEO	varchar2	255	−		不規則形状ジオメトリ
	SAM_SHA_MEA_COM	varchar2	1024	−		コメント
同位体分析（ISOTOPE_MEASUREMENT）	*ISO_MEA_ID	number		−		同位体分析ID
	ISO_MEA_STA_DAT	date		−	YYMMDD	分析開始日
	ISO_MEA_END_DAT	date		−	YYMMDD	分析終了日
	ISO_MEA_FAC_ID	number		−		分析施設ID
	ISO_MEA_ANA_ID	number		−		分析者ID
	SAM_ID	number		−		サンプルID
	ISO_MEA_DEN_ELE_ID	number		−		分母元素ID
	ISO_MEA_DEN_MAS_NUM	number		−		分母質量数
	ISO_MEA_NUM_ELE_ID	number				分子元素ID
	ISO_MEA_NUM_MAS_NUM	number				分子質量数
	ISO_MEA_RAT_VAL	number		−		分析値
	ISO_MEA_RAT_UNC	number		−		不確かさ
	ISO_MEA_RAT_UNC_SIG_LEV	varchar2	255	−	1sigma, 2sigma, 3sigma	不確かさシグマレベル
	ISO_MEA_RAT_UNC_TYP_ID	number		−		不確かさ種類ID
	ISO_MEA_MET_ID	number		−		分析手法ID
	ISO_MEA_DEV_ID	number		−		分析機器ID
	ISO_MEA_OBJ_ID	number		−		分析目的ID
	ISO_MEA_DAT_TYP_ID	integer		−		データタイプID
	ISO_MEA_UNI_ID	integer		−		単位ID
	ISO_MEA_COM	varchar2	1024	−		コメント
元素分析（ELEMENT_MEASUREMENT）	*ELE_MEA_ID	number		−		元素分析ID
	ELE_MEA_STA_DAT	date		−	YYMMDD	分析開始日
	ELE_MEA_END_DAT	date		−	YYMMDD	分析終了日
	ELE_MEA_FAC_ID	number		−		分析施設ID
	ELE_MEA_ANA_ID	number		−		分析者ID
	SAM_ID	number		−		サンプルID
	ELE_MEA_ELE_ID	number		−		元素ID
	ELE_MEA_VAL	number		−		分析値
	ELE_MEA_UNI_ID	number		−		単位ID
	ELE_MEA_UNC	number		−		不確かさ
	ELE_MEA_UNC_SIG_LEV	varchar2	255	−		不確かさシグマレベル
	ELE_MEA_UNC_TYP_ID	number		−		不確かさ種類ID
	ELE_MEA_MET_ID	number		−		分析手法ID
	ELE_MEA_DEV_ID	number		−		分析機器ID
	ELE_MEA_OBJ_ID	number		−		分析目的ID
	ELE_MEA_COM	varchar2	1024	−		コメント

化学分析 (CHEMICAL_MEASUREMENT)	*CHE_MEA_ID	number		−		化学分析ID
	CHE_MEA_STA_DAT	date		−	YYMMDD	分析開始日
	CHE_MEA_END_DAT	date		−	YYMMDD	分析終了日
	CHE_MEA_FAC_ID	number		−		分析施設ID
	CHE_MEA_ANA_ID	number		−		分析者ID
	SAM_ID	number		−		サンプルID
	CHE_FOR_ID	number		−		化学形態ID
	SOL_CON	number		g/L		溶液濃度
	CHE_FOR_HOM	number	1	−	0:No,1:Yes	均一性
	ORG_IMP	number	1	−	0:No,1:Yes	有機不純物
	INO_IMP	number	1	−	0:No,1:Yes	無機不純物
	MOI	number		μL/g		水分量
	CHE_MEA_OBJ_ID	number		−		分析目的ID
	CHE_MEA_COM	varchar2	1024	−		コメント
物理特性分析 (PHYSICAL_MEASUREMENT)	*PHY_MEA_ID	number		−		物理特性分析ID
	PHY_MEA_STA_DAT	date		−		分析開始日
	PHY_MEA_END_DAT	date		−		分析終了日
	PHY_MEA_FAC_ID	number		−		分析施設ID
	PHY_MEA_ANA_ID	number		−		分析者ID
	SAM_ID	number		−		サンプルID
	PHY_MEA_DEN	number		g/cc		密度
	PHY_MEA_REF_COL_ID	number		−		反射光色ID
	PHY_MEA_TRA_COL_ID	number		−		透過光色ID
	PHY_MEA_ABS	number		−		吸光度
	PHY_MEA_SPE_SUR	number		cm^2/g		平均比表面積
	PHY_MEA_OBJ_ID	number		−		分析目的ID
	PHY_MEA_COM	varchar2	1024	−		コメント
顕微分析 (MICRO_MEASUREMENT)	*MIC_MEA_ID	number		−		顕微分析ID
	MIC_MEA_STA_DAT	date		−		分析開始日
	MIC_MEA_END_DAT	date		−		分析終了日
	MIC_MEA_FAC_ID	number		−		分析施設ID
	MIC_MEA_ANA_ID	number		−		分析者ID
	MIC_MEA_DEV_ID	number		−		分析機器ID
	SAM_ID	number		−		サンプルID
	MIC_MEA_PAR_SHA_ID	number		−		粒子形状ID
	MIC_MEA_PAR_ASP_RAT	number		−	1以下の値	粒子縦横比
	MIC_MEA_AV_GRA_SIZ	number		μm		粒子平均サイズ
	MIC_MEA_MAX_GRA_SIZ	number		μm		粒子最大サイズ
	MIC_MEA_MIN_GRA_SIZ	number		μm		粒子最小サイズ
	MIC_MEA_SHA_HOM	number	1	−	0:No,1:Yes	粒子形状均一性
	MIC_MEA_PAR_ASP_RAT_HOM	number	1	−	0:No,1:Yes	粒子縦横比均一性
	MIC_MEA_POR	number		%	焼結体の場合	空隙率
	MIC_MEA_MAX_PU_SPO	number		μm	焼結体の場合	プルトニウムスポット最大径
	MIC_MEA_SUR_ROU	number		μm	最大高さ	表面粗さ
	MIC_MEA_OBJ_ID	number		−		分析目的ID
	MIC_MEA_COM	varchar2	1024	−		コメント

放射線計測 (RADIO_MEASUREMENT)	*RAD_MEA_ID	number		−		放射線計測ID
	SAM_ID	number		−		サンプルID
	ALP_DET_RAT	number		cps		アルファ線検出率
	ALP_MEA_TIM	number		sec		アルファ線測定時間
	ALP_DEV_ID	number		−		アルファ線分析機器ID
	BET_DET_RAT	number		cps		ベータ線検出率
	BET_MEA_TIM	number		sec		ベータ線測定時間
	BET_DEV_ID	number		−		ベータ線分析機器ID
	GAM_DET_RAT	number		cps		ガンマ線検出率
	GAM_MEA_TIM	number		sec		ガンマ線測定時間
	GAM_DEV_ID	number		−		ガンマ線分析機器ID
	NEU_DET_RAT	number		cps		中性子線検出率
	NEU_MEA_TIM	number		sec		中性子線測定時間
	NEU_DEV_ID	number		−		中性子線分析機器ID
	SPE_RAD	number		Bq/g		比放射能
	ONE_M_DOS	number		Sv/h		1m線量
	SUR_DOS	number		Sv/h		表面線量
	RAD_MEA_COM	varchar2	1024	−		コメント
分析施設 (MEASUREMENT_FACILITY)	*MEA_FAC_ID	number		−		分析施設ID
	MEA_FAC_NAM	varchar2	255	−		分析施設名
	MEA_FAC_COM_AGE_ID	number		−		分析施設保有機関ID
	MEA_FAC_ADD	varchar2	255	−		分析施設住所
分析者 (MEASUREMENT_ANALYST)	*MEA_ANA_ID	number		−		分析者ID
	MEA_ANA_NAM	varchar2	255	−		分析者名
	MEA_ANA_FUR	varchar2	255			分析者名振り仮名
	MEA_ANA_POC	varchar2	255	−	住所、電話番号、メールアドレスなど	分析者連絡先
	MEA_ANA_COM_AGE_ID	number		−		分析者所属機関ID

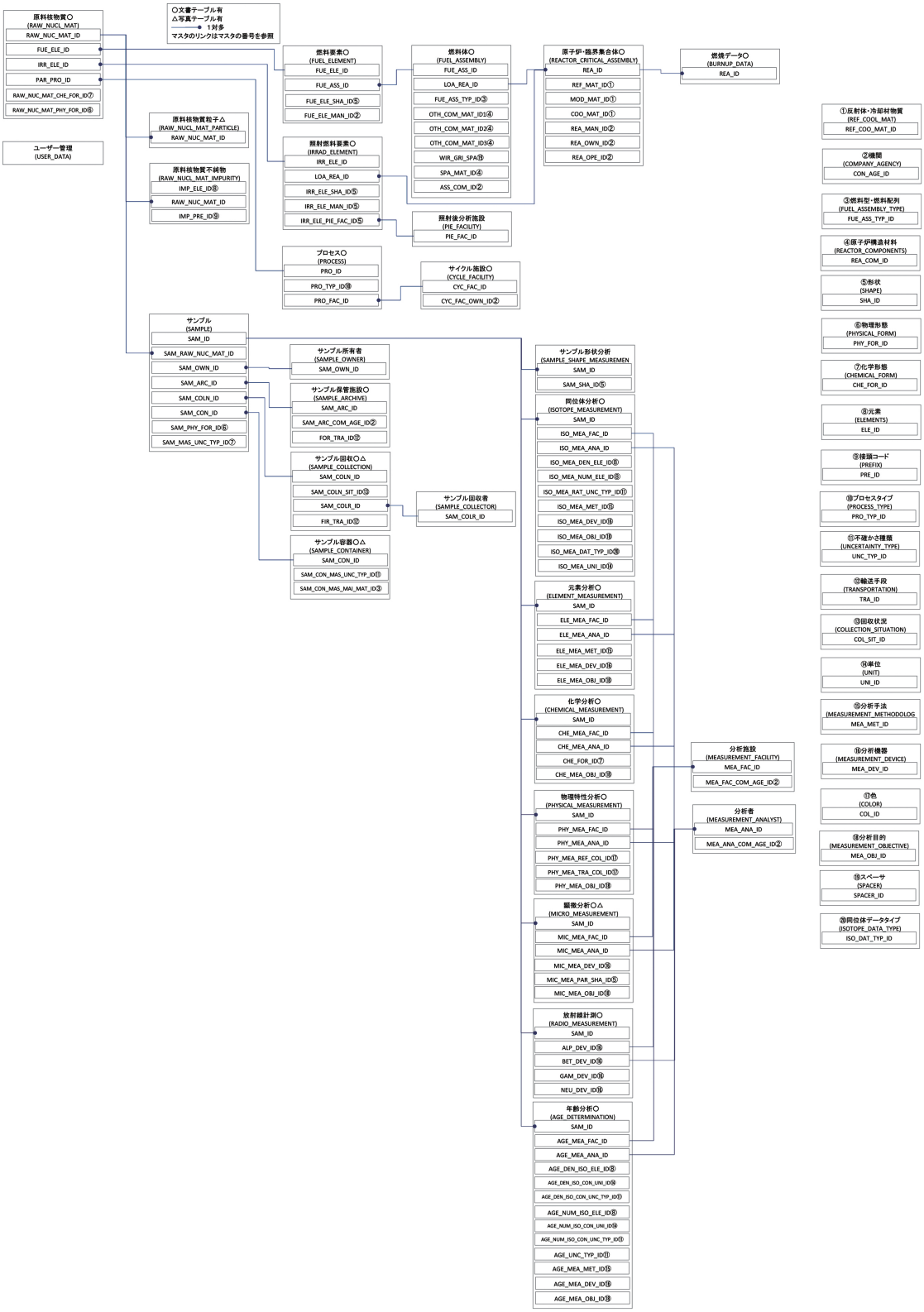
年齢分析 (AGE_DETERMINATION)	*AGE_DET_ID	number		−		年齢分析ID
	SAM_ID	number		−		サンプルID
	AGE_MEA_STA_DAT	date		−	YYMMDD	分析開始日
	AGE_MEA_END_DAT	date		−	YYMMDD	分析終了日
	AGE_MEA_FAC_ID	number				分析施設ID
	AGE_MEA_ANA_ID	number		−		分析者ID
	AGE_DEN_ISO_ELE_ID	number		−		分母同位体元素ID
	AGE_DEN_ISO_MAS_NUM	number		−		分母同位体質量数
	AGE_DEN_ISO_CON	number		−		分母同位体濃度
	AGE_DEN_ISO_CON_UNI_ID	number		−		分母同位体濃度単位ID
	AGE_DEN_ISO_CON_UNC	number		−		濃度不確かさ
	AGE_DEN_ISO_CON_UNC_SIG_LEV	varchar2	255	−	1sigma, 2sigma, 3sigma	濃度不確かさシグマレベル
	AGE_DEN_ISO_CON_UNC_TYP_ID	number		−		濃度不確かさタイプID
	AGE_NUM_ISO_ELE_ID	number		−		分子同位体元素ID
	AGE_NUM_ISO_MAS_NUM_ID	number		−		分子同位体質量数
	AGE_NUM_ISO_CON	number		−		分子同位体濃度
	AGE_NUM_ISO_CON_UNI_ID	number		−		分子同位体濃度単位ID
	AGE_NUM_ISO_CON_UNC	number		−		濃度不確かさ
	AGE_NUM_ISO_CON_UNC_SIG_LEV	varchar2	255	−	1sigma, 2sigma, 3sigma	濃度不確かさシグマレベル
	AGE_NUM_ISO_CON_UNC_TYP_ID	number		−		濃度不確かさタイプID
	AGE_ISO_RAT_VAL	number		−		同位体比
	EST_AGE	number		d		年齢
	AGE_UNC	number		−		年齢不確かさ
	AGE_UNC_SIG_LEV	varchar2	255	−	1sigma, 2sigma, 3sigma	年齢不確かさシグマレベル
	AGE_UNC_TYP_ID	number		−		年齢不確かさタイプID
	AGE_REF_DAT	date		−	YYMMDD	年齢基準日
	AGE_MEA_MET_ID	number		−		分析手法ID
	AGE_MEA_DEV_ID	number		−		分析機器ID
	AGE_MEA_OBJ_ID	number		−		分析目的ID
	DET_COM	varchar2	1024	−		コメント
	HALF_LIFEE	number		−		半減期
	DECAY_MODE_IDE	number		−		崩壊モード

3. データマスタ

テーブル	キー(主キー:*)	データ型	長さ	単位	値	説明
反射体・冷却材物質 (REF_COOL_MAT)	*REF_COO_MAT_ID	number		−		反射体・冷却材物質ID
	REF_COO_MAT_NAM	varchar2	255	−	軽水、重水、炭素、ヘリウム、ナトリウムなど	反射体・冷却材物質名
	REF_COO_MAT_FOR	varchar2	255	−		反射体・冷却材物質化学式
機関(COMPANY_AGENCY)	*CON_AGE_ID	number		−		機関ID
	COM_AGE_NAM	varchar2	255	−		機関名
	COM_AGE_ACR	varchar2	255	−		名称短縮形
	COM_AGE_POC	varchar2	255	−	住所、電話番号、メールアドレスなど	代表連絡先
燃料型・燃料配列 (FUEL_ASSEMBLY_TYPE)	*FUE_ASS_TYP_ID	number		−		燃料型・燃料配列ID
	FUE_ASS_TYP	varchar2	255	−	溶液、ウラン棒、MTR、正三角配列、正方配列など	燃料型・燃料配列
原子炉構造材料 (REACTOR_COMPONENTS)	*REA_COM_ID	number		−		原子炉構造材料ID
	REA_COM_TYP	varchar2	255	−	ステンレス、アルミ合金、ジルカロイなど	原子炉構造材料物質種類
	REA_COM_STA_ID	varchar2	255	−		原子炉構造材料規格番号
形状(SHAPE)	*SHA_ID	number		−		形状ID
	SHA	varchar2	255	−	球、円柱、円筒、平板、直方体、八橋、複雑形状など	
	SHA_GEO01	varchar2	255	−		
	SHA_GEO02	varchar2	255	−		
	SHA_GEO03	varchar2	255	−		
	SHA_OTH_GEO	varchar2	1024	−		形状
物理形態 (PHYSICAL_FORM)	*PHY_FOR_ID	number		−		物理形態ID
	PHY_FOR	varchar2	255	−	固体、液体、気体、粉末、ゲル、繊維など	物理形態
化学形態 (CHEMICAL_FORM)	*CHE_FOR_ID	number		−		化学形態ID
	CHE_FOR_TYP	varchar2	255	−	酸化物、金属、混合物、炭化物、窒化物など	化学形態種類
	CHE_FOR	varchar2	255	−		化学式
元素(ELEMENTS)	*ELE_ID	number		−		元素ID
	ELE_SYM	varchar2	255	−		元素記号
接頭コード(PREFIX)	*PRE_ID	number		−		接頭コードID
	PRE	varchar2	255	−	>, <, =>, <=, =, NULLなど	接頭コード記号

プロセスタイプ （PROCESS_TYPE）	*PRO_TYP_ID	number		−		プロセスタイプID
	PRO_TYP	varchar2	255	−	精錬、転換、濃縮、再転換、燃料製造、再処理など	プロセスタイプ
不確かさ種類 （UNCERTAINTY_TYPE）	*UNC_TYP_ID	number		−		不確かさ種類ID
	UNC_TYP	varchar2	255	−	標準偏差など	不確かさ種類
輸送手段 （TRANSPORTATION）	*TRA_ID	number		−		輸送手段ID
	TRA	varchar2	255	−	飛行機、トラック、電車など	輸送手段
回収状況 （COLLECTION_SITUATION）	*COL_SIT_ID	number		−		回収状況ID
	COL_SIT	varchar2	255	−	不正取引、放置、爆発現場、計量管理、品質検査など	回収状況
単位(UNIT)	*UNI_ID	number		−		単位ID
	UNI	varchar2	255	−	g, m, sec, ppm, cps, Sv/h, g/cc, %など	単位
分析手法 （MEASUREMENT_METHODOLOGY）	*MEA_MET_ID	number		−		分析手法ID
	MEA_MET	varchar2	255	−	TIMS、ICPMS、GCMS、TEM、SEM、αスペクトロメトリなど	分析手法
分析機器 （MEASUREMENT_DEVICE）	*MEA_DEV_ID	number		−		分析機器ID
	MEA_DEV_TYP	varchar2	255	−	ICP-MS(四重極)、TIMS(シングル)、TEM-EDSなど	分析機器種類
	MEA_DEV_MOD	varchar2	255	−		分析機器型番
	MEA_DEV_COM	varchar2	255	−	付加機能など	分析機器その他説明
色(COLOR)	*COL_ID	number		−		色ID
	COL	varchar2	255	−		色
分析目的 （MEASUREMENT_OBJECTIVE）	*MEA_OBJ_ID	number		−		分析目的ID
	MEA_OBJ	varchar2	255	−	核鑑識、計量管理、品質検査、研究など	分析目的
スペーサ(SPACER)	*SPACER_ID	number		−		スペーサID
	SPACER	varchar2	255	−		スペーサ
同位体データタイプ （ISOTOPE_DATA_TYPE）	*ISO_DAT_TYP_ID	number		−		データタイプID
	ISO_DAT_TYP	varchar2	255	−		データタイプ
ユーザー管理 （USER_DATA）	*USER_ID	varchar2	16	−		ユーザID
	PASSWD	varchar2	255	−	暗号化	パスワード
	USER_NAME	varchar2	255	−		ユーザ名
	USER_LEVEL	number		−	1:管理,2:サイクル、サンプルのみ変更可,3:閲覧のみ	ユーザレベル

4. 核物質データベースのデータ構造



5. 核鑑識ライブラリのアルゴリズム

5.1 年代解析

親核種と娘核種の数量比による年代変化を利用し年代測定を行う。この年代解析の流れを付録図 1 に示す。

(1) 年代解析の計算式

ESTIMATED_AGE = $t = \frac{1}{\lambda_P - \lambda_D} \cdot \ ln\left[1 + \frac{R(\lambda_P - \lambda_D)}{\lambda_D}\right]$

λ_P・・・親核種の壊変定数
λ_D・・・娘核種の壊変定数
R・・・現在の娘核種と親核種の原子数比

(2) 入出力パラメータ

年代解析における入力パラメータを付録表 1 に、また出力パラメータを付録表 2 に示す。

5.2 回帰分析

データベースプログラムで作成されたデータ検索結果ファイルの目的変数、説明変数から、単相関、多項式相関、対数相関の各係数を算出する。この回帰解析の流れを付録図 2 に示す。

(1) 回帰分析の数式化

(a) 回帰モデルの導出

単回帰分析　$Y = aX+b$

Y：目的変数
X：説明変数
a,b：回帰係数

重回帰分析　$Y_i = \alpha_0 + \alpha_1 X_{i1} + \alpha_2 X_{i2} + \cdots \alpha_j X_{ij}$

Y_i：目的変数
α_0：回帰係数
α_j：偏回帰係数
X_{ij}：説明変数

(b) 偏回帰係数の推定法

従属変数の実測値と推定値との差 (残差)$e_i = y_i - f_i$に着目。この 2 乗和が最小になるように独立変数にかけられる重み a_j (偏回帰係数と呼ぶ)及び定数項 a_0 を定める。具体的には Q を最小にする係数 $a_0, a_1, a_2, \cdots, a_j$を求める。この手法を最小二乗法と呼ぶ。

$$Q = \sum_{i=1}^{n} e_i^2 = \sum_{i=1}^{n} \left(Y_i - \widehat{Y_i}\right)^2$$

独立変数が 2 個の場合、

$$Q = \sum_{i=1}^{n} \{Y_i - (a_0 + a_1 X_{i1} + a_2 X_{i2})\}^2$$

まず、上式をa_0, a_1, a_2で偏微分して 0 とおく。

$$\frac{\partial Q}{\partial a_0} = -2\sum_{i=1}^{n} \{Y_i - (a_0 + a_1 X_{i1} + a_2 X_{i2})\} = 0$$
$$\frac{\partial Q}{\partial a_1} = -2\sum_{i=1}^{n} X_{i1}\{Y_i - (a_0 + a_1 X_{i1} + a_2 X_{i2})\} = 0$$
$$\frac{\partial Q}{\partial a_2} = -2\sum_{i=1}^{n} X_{i2}\{Y_i - (a_0 + a_1 X_{i1} + a_2 X_{i2})\} = 0$$

上式に、変数 Y, X_1, X_2の平均値を$\overline{Y}, \overline{X_1}, \overline{X_2}$としたときの関係式

$$a_0 = \overline{Y} - a_1\overline{X_1} - a_2\overline{X_2}$$

及び、独立変数X_i, X_j間の変動・共変動

$$s_{ij} = \sum_{k=1}^{n} \left(X_{ki} - \overline{X_i}\right)\left(X_{kj} - \overline{X_j}\right)$$

及び、独立変数X_iと従属変数 Y の共変動

$$s_{iy} = \sum_{k=1}^{n}\left(X_{ki} - \overline{X_i}\right)\left(Y_k - \overline{Y}\right)$$

を代入して整理すると、

$$a_1 s_{11} + a_2 s_{12} = s_{1y}$$
$$a_1 s_{21} + a_2 s_{22} = s_{2y}$$

という連立方程式 (正規方程式)が得られる。これらを解くことにより偏回帰係数a_1, a_2及び定数項 a_0 が求まる。

(c) 重相関係数・決定係数

重相関係数は実測値と推定値の直線的な関係を測り、1 に近いほどふたつの関係が強く、モデル式の当てはまりが良いことを示す。また、Y の実測値の平均周りの変動S_tのうち回帰式によって説明される変動 (推定値の平均周りの変動)S_rの割合r^2を考える。具体的な式は以下の通りである。

$$S_t = \sum_{i=1}^{n}\left(Y_i - \overline{Y}\right)$$
$$S_r = \sum_{i=1}^{n}\left(\hat{Y}_i - \overline{Y}\right)$$
$$r^2 = \frac{S_t}{S_r}$$

r^2のことを決定係数 (寄与率ともいう)という。決定係数は 0～1 の値をとり、1 に近づくほど回帰式への当てはまりが良いことを意味し、すべての実測値がモデル式上に乗るとき、1 の値をとる。なお、決定係数の値は重相関係数の 2 乗と一致する。

(d) 多項式回帰の導出

多項式回帰は、重回帰分析の特別な場合である。n 個の独立変数 $X_1, X_2, \cdots, X_n$を用いて，従属変数 Y を予測する重回帰式は以下のように表される。

$$\hat{Y} = \alpha_0 + \alpha_1 X_1 + \alpha_2 X_2 + \cdots + \alpha_n X_n$$

$\hat{Y}$：従属変数の予測値
α_0：回帰定数
α_j：偏回帰係数
Xj：説明変数

多項式回帰では、独立変数が 1 個(X とする)であり、X の n 次多項式による従属変数 Y の予測式が以下のように表される。

$$\hat{Y} = \alpha_0 + \alpha_1 X + \alpha_2 X^2 + \cdots + \alpha_n X^n$$

すなわち，重回帰式では n 個の変数が使われるが、多項式回帰では 1 個の独立変数の n 個のべき乗 X^i (i=1,2,…,n) が使われるという違いがある。次数の高い多項式を使えば、データ中の独立変数の動く範囲内ではあてはまりはよくなる。しかし、その範囲以外では全く使用に堪えない予測式ができる。次数はあまり高くしないほうがよい。また、データ点が m 組あるとき，m−1 次式は完全に各点を通る。m−1 次以上の多項式にはあてはめできない。

(e) 半対数線型モデルの導出

回帰分析で用いられるモデルの関数型が、非線形関数であっても適当な変換を施すことによって標準的な線型モデルに直すことができれば、線形最小二乗法が適用可能である。今回は底が e の指数関数を対数化した半対数線型モデルを利用する。具体的な式は以下の通りである。

$$y = a\mathrm{e}^{bx}$$
$$\ln y = \ln(a \cdot \mathrm{e}^{bx}) = \ln a + \ln \mathrm{e}^{bx} = \ln a + bx$$

y：目的変数
x：説明変数
a：切片
b：回帰変数

e：Napier 数
ln：自然対数 (e の対数)
このとき Y= ln$y$,A= ln$a$とすると Y = A+ bxとなり、標準的な線型モデルに帰着する。
また、多項式の場合、

$$y = e^{a+bx+cx^2}$$

$$\ln y = a + bx + cx^2$$

このとき Y= ln yとすると$Y = a + bx + cx^2$となり、(d)で説明した多項式回帰に帰着する。

(2) 入出力ファイル
回帰分析における入力パラメータを付録表 3 に、また出力パラメータを付録表 4 に示す。
(3) 入出力フォーマット
① 入力フォーマット
入力フォーマットを付録図 3 に示す。入力 CSV ファイルのデータ入力規則を以下に示す。
・A 列・・・データ名
・B 列・・・目的変数値(Y)
・C 列・・・説明変数値(X)
※１行、１列目はデータの説明行であり、実データは２行、２列目以降に入力する。
② 出力フォーマット
出力フォーマットを付録図 4 に示す。出力 CSV ファイルのデータ表示順を以下に示す。(左側に標準型、右側に半対数型)
・重相関係数
・決定係数
・偏回帰係数
・予測結果(目的変数(Y)、推計値、残差)

5.3 主成分分析

データベースプログラムで作成されたデータ検索結果ファイルの説明変量から、各成分(第１主成分、第２主成分、…)の固有値、累積寄与率、固有ベクトル、負荷量ベクトル、主成分スコア及び相関行列を算出する。この流れ図を付録図 5 に示す。

(1) 主成分分析の数式化
(a) 相関行列の導出
主成分分析を数式化する準備として、データの標準化と相関行列について説明する。

① もとのデータ行列

$$X=\begin{bmatrix} x_{11} & \cdots & x_{1n} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ x_{N1} & \cdots & x_{Nn} \end{bmatrix}$$

→変量
↓個体
x_{ij}：個体 i の変量 j についての測定量
n ：変量の数
N ：個体の数
② 標準化データ行列

$$Z=\begin{bmatrix} z_{11} & \cdots & z_{1n} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ z_{N1} & \cdots & z_{Nn} \end{bmatrix}$$

$z_{ij} = \frac{x_{ij}-\overline{x_j}}{s_j}$ 標準値
$\overline{x_j} = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N} x_{ij}$ 変数 j の平均値

$S_j = \sqrt{\frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}(x_{ij} - \overline{x_j})^2}$　　変量 j の標準偏差

③　相関係数

$$r_{jk} = \frac{\frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}(x_{ij} - \overline{x_j})(x_{ik} - \overline{x_{jk}})}{Sj \cdot S_k}$$

$$= \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}\frac{(x_{ij} - \overline{x_j})}{S_j} \cdot \frac{(x_{ik} - \overline{x_k})}{S_k}$$

$$= \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N} z_{ij} \cdot z_{ik}$$

④　相関行列

→変量

$$R = \begin{bmatrix} r_{11} & \cdots & r_{1n} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ r_{N1} & \cdots & r_{Nn} \end{bmatrix} \downarrow \text{変量}$$

(i)　相関行列は n×n の正方行列

(ii)　対角線は 1　$r_{jj} = 1\ (j = 1 \sim n)$

(iii)　$r_{jk} = r_{kj}$　したがって相関行列は対称行列である。

$R = R'$

(b) 第一主成分の導出

もとの n 個の変量の変動を最も良く代表するように第一主成分を求める。

これは、以下に定義するV_1 (構造係数の二乗和)の最大化として数式化できる。

$$V_1 = \sum_{j=1}^{n} a_{j1}^2 = a_1' a_1$$

そのためには

$$a_j = \frac{\frac{1}{n}Z' f_j}{S_{fj}} = \frac{Rw_j}{\sqrt{w_j' R w_j}}$$

a_j：第 j 主成分の構造係数

w_j：第 j 主成分の重みベクトル(負荷量ベクトル)

を使い、またV_1を最大化する第一主成分の重みベクトルW_1は以下の固有方程式の最大固有値 λ に対応する固有ベクトル w (最大固有ベクトル)で数式化できる。

Rw=λw

(c) 第二主成分の導出

第二主成分は第一主成分と無相関であるという条件のもとで、もとの n 個の変量をなるべく良く代表するように求める。

これは、C を第一主成分と第二主成分の相関係数として

$$\mathrm{C} = \frac{\frac{1}{N} f_1' f_2}{(s_{f1} \cdot s_{f2})}$$

$$V_2 = \sum_{j=1}^{n} a_{j2}^2 = a_2' a_2$$

を最大化することに帰着する。また、C=0 の条件を満足し、V_2を最大化する第二主成分の重みベクトルは Rw=λw の二番目に大きな固有値に対応する固有ベクトルである。

(d) M 組の主成分

以上のことから、もとの n 組の変量の変動をなるべく良く代表するような m 組の主成分は、Rw=λw なる固有方程式の固有ベクトルを固有値の大きな順に$w_1, w_2, \cdots w_m$とすれば

$f_j = Zw_j$ (j=1～m)により第 j 主成分スコアf_jが求められる。各主成分は数学的には直交する

成分として得られ、また一般的に固有ベクトルの自乗和が 1 になるように標準化されている。

(e) 主成分の負荷量

負荷量は、その主成分がなにを表しているかを解釈するときの手がかりであり、新しい方向である主成分ともとの変量との相関係数である。

$$\text{負荷量} = \sqrt{\textit{固有値}} \times \textit{固有ベクトル} = \sqrt{\lambda} w_j$$

(f) 主成分の寄与率

寄与率は、主成分が元のデータの情報をどのくらい保持しているかを示す。これは情報の損失という観点から定義する。固有方程式の性質から次の関係が成立する。

$$\text{trace } (R) = \text{trace } (\Lambda)$$

ここで $\Lambda = \begin{bmatrix} \lambda_1 & & 0 \\ & \ddots & \\ 0 & & \lambda_n \end{bmatrix}$ とする。すなわち、次の関係が成立する。

$$\sum_{j=1}^{n} \lambda_j = n$$

$w_j' w_j = 1$の場合、$S_f^2 = w_j' R w_j = \lambda_j$が成立するので、$\lambda_j$は第 j 主成分の分散に相当する。したがって上記の式は、主成分の分散の和がもとの変量の分散の和に等しくなることを示している。そこで

$$\text{第 j 成分の寄与率} = 100 \times \frac{\lambda_j}{n}$$

が成立する。また、第一主成分から第 j 主成分までで、データのどのくらいを説明できたかを見るために累積寄与率を使用することもできる。

$$\text{第一主成分から第 j 主成分までの累積寄与率} = \frac{\lambda_1 + \cdots + \lambda_j}{\text{trace } (R)} \times 100 = \frac{\lambda_1 + \cdots + \lambda_j}{n} \times 100 = 100$$

(g) 主成分の数

主成分分析を行う場合、相関行列 *R* が正値ならば理論的には n 個の主成分が存在する。最大固有値を持つ主成分がもっとも大きな説明力(情報量)を有していると考えると、一般に相関行列から固有値を求めた場合は、固有値が 1 以上の主成分について注目し、1 未満の主成分は捨て去ってよい。(相関行列から固有値を求めた場合は、各項目が 1 という情報量をもつという前提があるため、固有値が 1 未満の主成分は項目 1 個分の情報量すら持ち合わせていない、と解釈されるためである。)

また、累積寄与率から基準を求めてもよい。このときの累積寄与率は任意である。例えば、80%以上や 95%以上または 99%以上になる最小の n 個の主成分を求める。

(2) 入出力ファイル

主成分分析における入力パラメータを付録表 5 に、また出力パラメータを付録表 6 に示す。

(3) 入出力フォーマット

① 入力フォーマット

入力フォーマットを付録図 6 に示す。入力 CSV ファイルのデータ入力規則を以下に示す。

・A 列・・・データ名

・B 列以降・・・説明変量値(X)

※１行、１列目はデータの説明行であり、実データは２行、２列目以降に入力する。

② 出力フォーマット

出力フォーマットを付録図 7 に示す。出力 CSV ファイルのデータ表示順を以下に示す。

・固有値
・累積寄与率(%)
・固有ベクトル
・負荷量ベクトル
・主成分スコア
・相関行列

5.4 判別分析

主成分分析結果(説明変量、群(判別済のデータは判別結果、未判別のデータは未入力))から、未判別データの判別を行い、さらに判別係数、F 値、判別スコア及び的中率を算出する。この流れ図を付録図 8 に示す。

(1) 判別分析の原理

判別分析は、個体の特性から、その個体がどの群に属するかを判別する手法である。これは、重回帰分析における従属変数が、離散量になったモデルだといえる。例えば、付録図 9 のように判別対象が 2 群の場合、予測される変数が 0 か 1 の 2 値データになったものと考えればよい。要約すれば、判別分析は、目的変数が質的変数で、説明変数は量的変数の(重)回帰分析ともいえる。(線形判別関数を使う場合)

(2) 線形判別関数の導出

(a) 線形判別関数の使用方法

多変量データ$x_1, x_2 \cdots x_n$があるとする。この説明変量$x_1, x_2 \cdots x_n$ はいずれも量的データであり、この変量に適当な重み$w_1, w_2, \cdots w_n$をつけ目的変量fを得る。

$$f = w_1 x_1 + w_2 x_2 + \cdots w_n x_n + w_0 = 0$$

上式は、重回帰分析の推定モデルと同じ形である。このとき、得られる目的変量fが区分わけを示す質的データであるとき、この式を線形判別式という。重回帰式では、説明変量も目的変量も量的データを扱ったが、判別分析においては、説明変量は量的データであるが、得られる目的変量はどの母集団に属するのか示す質的データを扱う。

また、判別関数　$f = w_0 + w_1 x_1 + w_2 x_2 = 0$　(変量が 2 つの場合)
のとき、x_1を X, x_2を Y とすると

$$Y = -\frac{w_0}{w_2} - \frac{w_1}{w_2} X$$

が成り立つ。判別関数に各データ(x_{i1}, x_{i2})を代入した値を判別スコアといい、判別スコアが正のとき第一群、負のとき第二群と判別される。

(b) 定数項w_0の算出

2 群の判別分析とは、重回帰分析によって得られた直線の方程式を各群の群平均の中点を通るように定数項を調節したものである。したがって定数項は下式で表される。

$w_0 = -[w_1 q_1 + w_2 q_2 + \cdots w_n q_n]$
w_n：判別係数
q_n：説明変量ごとの (1 群の平均値+2 群の平均値)÷2

(c) F 値の算出

個々の説明変数が判別に有意に寄与しているかを判定する一つの指標として F 値がある。F 値が高いほど判別に有意に寄与している。

$$\text{F 値} = \frac{\text{回帰平方和/説明変数の数}}{\text{残差平方和/ (サンプル数−説明変数の数−1)}} = \frac{\text{平均回帰平方和}}{\text{平均残差平方和}}$$

$$\text{F 値} = \frac{\sum (Y_i - \bar{Y})^2 / n}{\sum \left(Y_i - \hat{Y}_i\right)^2 / (i - n - 1)}$$

Y_i：群の質的変数
$\bar{Y}$：質的変数Y_iの平均値
$\hat{Y}_i$：質的変数Y_iの予測値
i：サンプル数
n：説明変数

(3) 入出力ファイル
判別分析における入力パラメータを付録表 7 に、また出力パラメータを付録表 8 に示す。

(4) 入出力フォーマット
① 入力フォーマット
入力フォーマットを付録図 10 に示す。入力 CSV ファイルのデータ入力規則を以下に示す。
・A 列・・・データ名
・B 列・・・群 (判別済の群は 1 もしくは 2 に振り分ける。未判別のデータは未入力 (スペース)とする。)
・C 列・・・説明変数１
・D 列・・・説明変数２
※１行、１列目はデータの説明行であり、実データは２行、２列目以降に入力する。

② 出力フォーマット
出力フォーマットを付録図 11 に示す。出力 CSV ファイルのデータ表示順を以下に示す。
・偏回帰係数
・F 値
・判別スコア
・群判定 (判別スコア≧0 のとき、1 群、判別スコア<0 のとき、2 群とする。)
・的中率 (分析前と分析後の群判定の一致率)

5.5 画像マッチング
２枚の画像から、各画像の面積、円形度、アスペクト比を算出し、さらに２画像の一致度 (比較パラメータ)を求める。この流れ図を付録図 12 に示す。
(1) 処理手順
画像マッチング処理フローチャートを付録図 13 に示す。

(処理０) 画像及び倍率の読み込み
(a) 画像
・画像は、１ピクセル８ビットのグレースケール
得られる情報
・各方向のピクセル数
・１ピクセルのビット数
・各ピクセルの値
(b) 倍率
・１ピクセル当たりの長さ (nm)

(処理１)
(a) 画像の２値化(輝度が 256 段階で 128 以上の場合、255 (白)とし、128 以内の場合、0 (黒)とする。)
(b) 図形の重心の算出(別記②)

(c) 図形の主軸の方向の算出(別記③)
(d) 重心を中心に、③で求めた(－θ)だけ回転させる。
重心を(x_0,y_0)とすると
$X = (x - x_0)\cos\theta + (y - y_0)\sin\theta + x_0$
$Y = -(x - x_0)\sin\theta + (y - y_0)\cos\theta + y_0$

(処理２)形状特徴パラメータの算出
(a) 面積(別記①)
(b) 円形度(別記④⑤)
(c) アスペクト比(別記⑥)

(処理３)比較
(a) 面積：倍率(b)を乗じ、同じスケールにしたもの
$S=b^2S$
(b) 円形度(R : roundness)
(c) アスペクト比(A : Aspect ratio)
(d) 比較パラメータ
$$\frac{S_i}{S}+\frac{R_i}{R}+\frac{A_i}{A}$$
この値が最大の画像を選ぶ

(別記)モーメント特徴
M(p, q)：pq 次モーメント
$$M(p,q)=\sum_{i,j} i^p \cdot j^q = \sum_{j=0}^{i_{max}-1}\sum_{i=0}^{j_{max}-1} i^p \cdot j^q$$
i : x 軸で黒画素のある位置
j : y 軸で黒画素のある位置

① 面積
$M(0,0)=\sum_{i,j} i^0 \cdot j^0 = \sum_{i,j} 1$：図形の面積

② 重心
$M(1,0)=\sum_{i,j} i$： x 軸での 1 次モーメント
$M(0,1)=\sum j$：Y軸での 1 次モーメント
$M(1,0)\,/\,M(0,0)$：重心の x 軸上の位置
$M(0,1)\,/\,M(0,0)$：重心の y 軸上の位置

③ 図形の主軸の方向
$$tan^2\theta + \frac{M(2,0)-M(0,2)}{M(1,1)}tan\theta - 1 = 0$$
$x = \tan\theta$
$$a = \frac{M(2,0)-M(0,2)}{M(1,1)}$$
とすると
$$x^2 + ax - 1 = 0$$
$$x = \frac{-a \pm \sqrt{a^2+4}}{2}$$
よって、$\theta = tan^{-1}x$より求まる。

$M(1,1) = \sum_{i,j} i \cdot j$
$M(2,0) = \sum_{i,j} i^2$
$M(0,2) = \sum_{i,j} j^2$
θ に$\frac{180}{\pi}$を乗じれば、ラジアンから度に変換される。
$(-90° < \theta < 90°$の範囲)

④ 周囲長
・黒画素の上下左右斜めの画素を調べ、１ヶ所でも白画素があれば、その画素は周囲長の一部になる。
$L = \sum_{i,j}$ (上の条件を満たした画素)
周囲長の特徴として物体の輪郭線の画素数を数えるが、斜め方向はデジタル図形特有の誤差が生じるので$\sqrt{2}$倍することで補正している。

⑤ 円形度
面積 S=M (0,0)、周囲長を L とすると、
$\frac{4\pi S}{L^2}$
が円形度になる。(円の場合、最大で 1、正方形の場合、0.79 ($\frac{\pi}{4}$)正三角形の場合、0.60 ($\frac{\pi\sqrt{3}}{4}$)となり、複雑な図形ほど 0 に近くなる。)

⑥ 外接長方形(アスペクト比)
もっとも左の黒画素の x 方向の番号をx_s
もっとも右の黒画素の x 方向の番号をx_e
もっとも下の黒画素の y 方向の番号をy_s
もっとも上の黒画素の y 方向の番号をy_e
とすると外接長方形は
$(x_s - 1 \sim x_e + 1,\ y_s - 1 \sim y_e + 1)$
になる。
アスペクト比=$\frac{y_e - y_s + 1}{x_e - x_s + 1}$

(2) 入出力ファイル
画像マッチングにおける入力パラメータを付録表 9 に、また出力パラメータを付録表 10 に示す。

(3) 入出力フォーマット
① 入力フォーマット
入力フォーマットを付録図 14 に示す。入力 CSV ファイルのデータ入力規則を以下に示す。
・A 列 1 行目・・・標本画像(固定)
・A 列 2 行目・・・フォルダ名(固定)
・A 列 3 行目・・・ファイル名(固定)
・A 列 5 行目・・・比較画像(固定)
・A 列 6 行目・・・フォルダ名(固定)
・A 列 7 行目・・・ファイル名(固定)
・B 列 2 行目・・・標本画像が格納されているフォルダ名
・B 列 3 行目・・・標本画像ファイル名
・B 列 6 行目・・・比較画像が格納されているフォルダ名

・B 列 3 行目以降・・・比較画像ファイル名
・C 列・・・倍率(nm)

② 出力フォーマット
③ 出力フォーマットを付録図 15 に示す。出力 CSV ファイルのデータ表示順を以下に示す。
・画像ファイル名
・面積
・円形度
・アスペクト比
・比較パラメータ(%)

6. ITWG 核鑑識ライブラリ机上演習報告書

GARAXY SERPENT REPORT

URSA Galaxy (Japan Team)
June, 24, 2013

- Reactor Data: Daphins (BWR), Ijiraq (PWR) and Mimas (PWR)
- Seized Material: Erato

1. Methodology
   Isotope correlations and principal component analysis (PCA)

2. Findings and Confidence Level
   Erato is strongly consistent with Mimas reactor and there are consistency with Ijiraq reactor in somewhat. It has no consistency with Daphins reactor.
   Confidence Level: 80%

3. Discussions
   The isotope correlations of the seized material and the reactor were compared and evaluated based on degree of coincidence;

Grade	Degree of Coincidence
A	90 – 100%
B	70 – 90 %
C	30 – 70 %
D	0 – 30 %

   The degree of coincidence was valued by visual estimation. The results of the comparison on isotope correlations mentioned in the guideline of this exercise are summarized in **Table 1**.
   Daphnis reactor shows completely different trends in all correlations and it was concluded as no related with the seized material. In contrast, other two PWRs show very similar isotope correlations with the seized material. It was difficult to distinguish the two reactors definitely, and additional comparisons are made for other 45 isotope correlations (**Table 2**).
   Mimas reactor shows stronger association than Ijiraq in 25 of the 45 items (see **Table 3**). Moreover, Mimas shows comparatively stronger association even in the 11 of the 20 items which has the same comparative grade among the reactors (namely, the pairs of A-A, B-B and C-C). Therefore, Mimas reactor shows stronger association than Ijiraq in 36/45 items. Eventually, it was concluded that the seized material is associated with Mimas reactor with 80% of confidence level. The Ijiraq also shows some consistency but there is no isotope correlation to show clearly stronger association than Mimas. Some examples of the isotope correlations graph are summarized in the appendix of this report.
   Principal component analysis (PCA) on the isotope compositions of the seized material and the PWRs was made to confirm the result of comparison by isotope correlations. **Figure 1** shows the PCA score of the plutonium isotope compositions.
   It was confirmed that the seized material (ERATO) has clearly stronger association with Mimas than Ijiraq.

4. Other Comments
   JAEA (Japan Team in this exercise) has been developing the proto-type NNFL of Japan from last year and the findings through this exercise were applied to the development. Especially, it was recognized that quantitative measure of coincidence to support comparative data evaluation is very important, which will be added into our NNFL system in the next development.

Table 1: Comparison of isotope correlations with Erato (1)

Data Type	Daphnis	Ijiraq	Mimas
U-235% vs. U236%	D	B	B
Pu/U-238 vs. U-235%	D	B	B
U-235% vs. Pu/U	D	B	C
U-235% vs. Pu-240/Pu-239	D	C	D
U-235% vs. Pu-241/Pu-240	D	D	B
U-235% vs. Pu-241/Pu-240	D	D	B
U-235% vs. Pu-242/Pu-240	D	C	A
U-235% vs. Pu-242/Pu-241	D	C	A

Table 2: Comparison of isotope correlations with Erato (2)

Data Type	Ijiraq	Mimas
Am-241 vs. Cs-137	B	A
Am-241 vs. Pu-238	C	B
Am-241 vs. Pu-239	B	A
Am-241 vs. Pu-240	B	B
Am-241 vs. Pu-241	C	B
Am-241 vs. Pu-242	C	B
Am-241 vs. U-235	B	B
Am-241 vs. U-238	A	A
Am-241 vs. Burnup via Nd-148	B	B
Cs-137 vs. Pu-238	B	A
Cs-137 vs. Pu-239	B	A
Cs-137 vs. Pu-240	A	A
Cs-137 vs. Pu-241	B	A
Cs-137 vs. Pu-242	B	A
Cs-137 vs. U-235	A	A
Cs-137 vs. U-238	A	A
Cs-137 vs. Burnup via Nd-148	B	A
Pu-238 vs. Pu-239	B	A
Pu-238 vs. Pu-240	B	A
Pu-238 vs. Pu-241	B	A
Pu-238 vs. Pu-242	C	A
Pu-238 vs. U-235	B	A
Pu-238 vs. U-238	A	A
Pu-238 vs. Burnup via Nd-148	B	A
Pu-239 vs. Pu-240	C	B
Pu-239 vs. Pu-241	C	B
Pu-239 vs. Pu-242	D	C
Pu-239 vs. U-235	C	B
Pu-239 vs. U-238	A	A

Table 2: (continued)

Data Type	Ijiraq	Mimas
Pu-239 vs. Burnup via Nd-148	C	A
Pu-240 vs. Pu-241	B	A
Pu-240 vs. Pu-242	B	A
Pu-240 vs. U-235	A	A
Pu-240 vs. U-238	A	A
Pu-240 vs. Burnup via Nd-148	A	A
Pu-241 vs. Pu-242	D	A
Pu-241 vs. U-235	B	B
Pu-241 vs. U-238	A	A
Pu-241 vs. Burnup via Nd-148	B	B
Pu-242 vs. U-235	B	A
Pu-242 vs. U-238	A	A
Pu-242 vs. Burnup via Nd-148	B	B
U-235 vs. U-238	A	A
U-235 vs. Burnup via Nd-148	B	B
U-238 vs. Burnup via Nd-148	C	C

Table 3: Summary of the comparison given in Table 2

Result of comparison	No. of items
Fitting to Mimas is better than that to Ijiraq	25
Fitting to Mimas is equal to that of Ijiraq	20
Fitting to Ijiraq is better than that to Mimas	0
Total	45

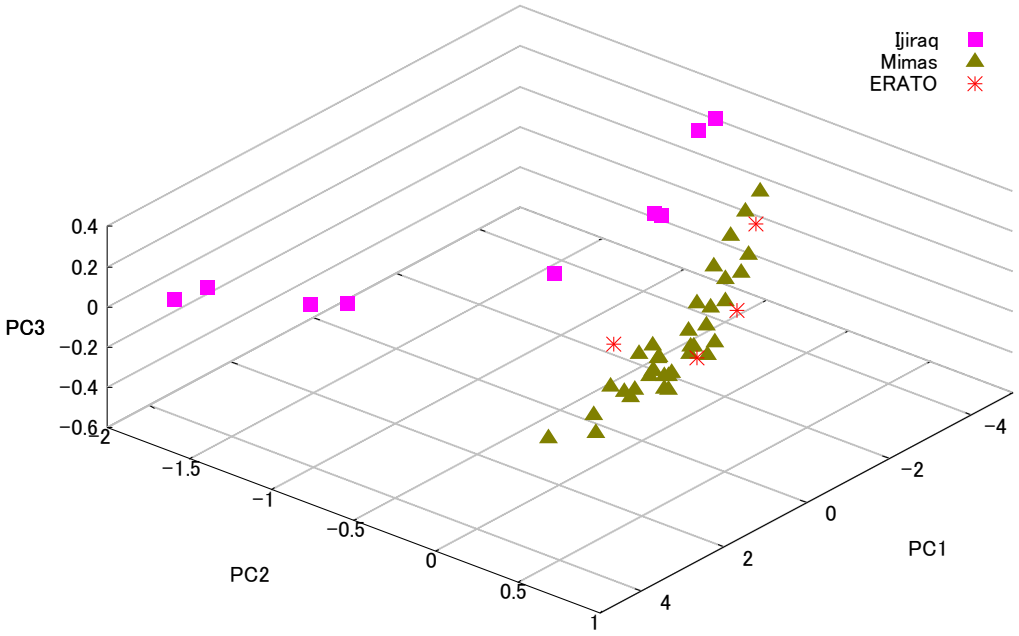


Fig.1: PCA score of plutonium isotope compositions
(explanatory variable of ^{238}Pu (%), ^{239}Pu (%), ^{240}Pu (%), ^{241}Pu (%), ^{242}Pu (%) were used)

付録表 1　年代解析の入力パラメータ

No.	項　　目	説　　明
1	プログラム実行ファイル (nendaicalc.exe)	プログラムを実行するファイル
2	同位体比測定値 (ATOM_RATIO_VAL)	現在の娘核種と親核種の原子数比(R)
3	親核種の壊変定数 (DECAY_C_P)	親核種の半減期(λ_P, year^{-1})
4	娘核種の壊変定数 (DECAY_C_D)	娘核種の半減期(λ_D, year^{-1})

付録表 2　年代解析の出力パラメータ

No.	項　　目	説　　明
1	ESTIMATED_AGE	年代評価値(year)

付録表 3　回帰分析の入力パラメータ

No.	項　　目	説　　明
1	プログラム実行ファイル (jukaiki.exe)	プログラムを実行するファイル
2	入力ファイル名(.CSV)	データ検索結果の CSV ファイル名
3	多項式の次数(標準)	標準型の多項式次数(半角数字)
4	多項式の次数(対数)	対数型の多項式次数(半角数字)

付録表 4　回帰分析の出力パラメータ

No.	項　　目	説　　明
1	分析結果ファイル (.CSV)	重相関係数、決定係数、偏回帰係数 及び予測結果

付録表 5　主成分分析の入力パラメータ

No.	項　　目	説　　明
1	プログラム実行ファイル (syuseibun.exe)	プログラムを実行するファイル
2	入力ファイル名(.CSV)	データ検索結果の CSV ファイル名

付録表 6　主成分分析の出力パラメータ

No.	項　　目	説　　明
1	分析結果ファイル(.CSV)	固有値、累積寄与率、固有ベクトル、 負荷量ベクトル、主成分スコア及び相関行列

付録表 7　判別分析の入力パラメータ

No.	項　　目	説　　明
1	プログラム実行ファイル (hanbetsu.exe)	プログラムを実行するファイル
2	入力ファイル名 (.CSV)	主成分分析結果からグループ分けした CSV ファイル名

付録表 8　判別分析の出力パラメータ

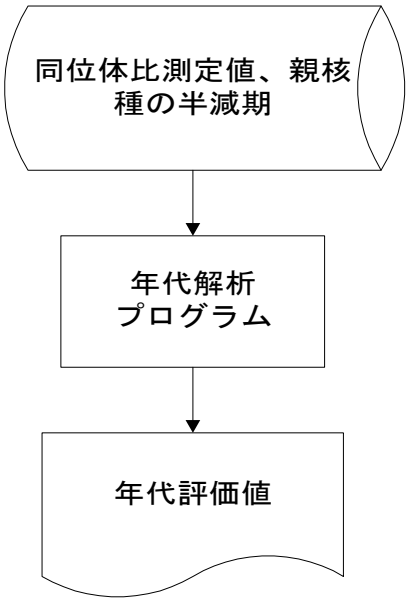
No.	項　　目	説　　明
1	分析結果ファイル (.CSV)	判別係数、F 値、判別スコア、群判定 及び的中率

付録表 9　画像マッチングの入力パラメータ

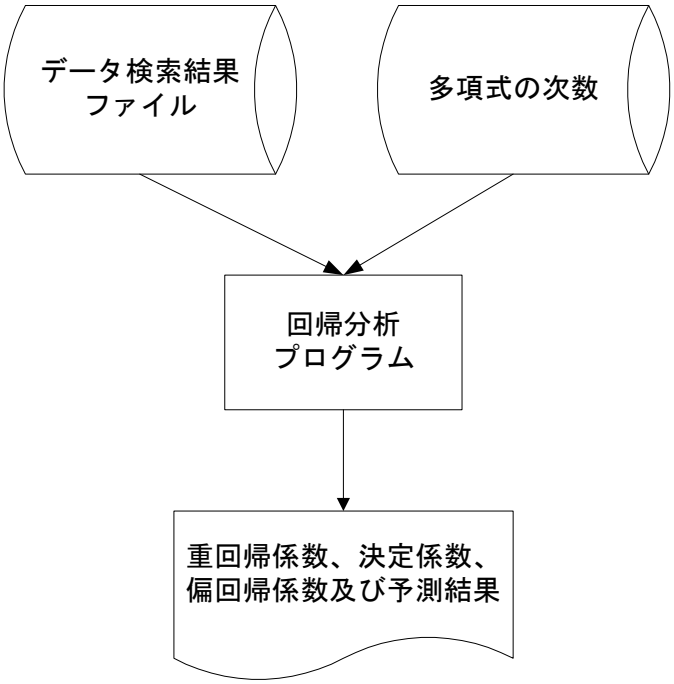
No.	項　　目	説　　明
1	プログラム実行ファイル (gazoh_matching.exe)	プログラムを実行するファイル
2	入力ファイル名 (.CSV)	画像マッチングに必要な情報を入力した CSV ファイル名

付録表 10　画像マッチングの出力パラメータ

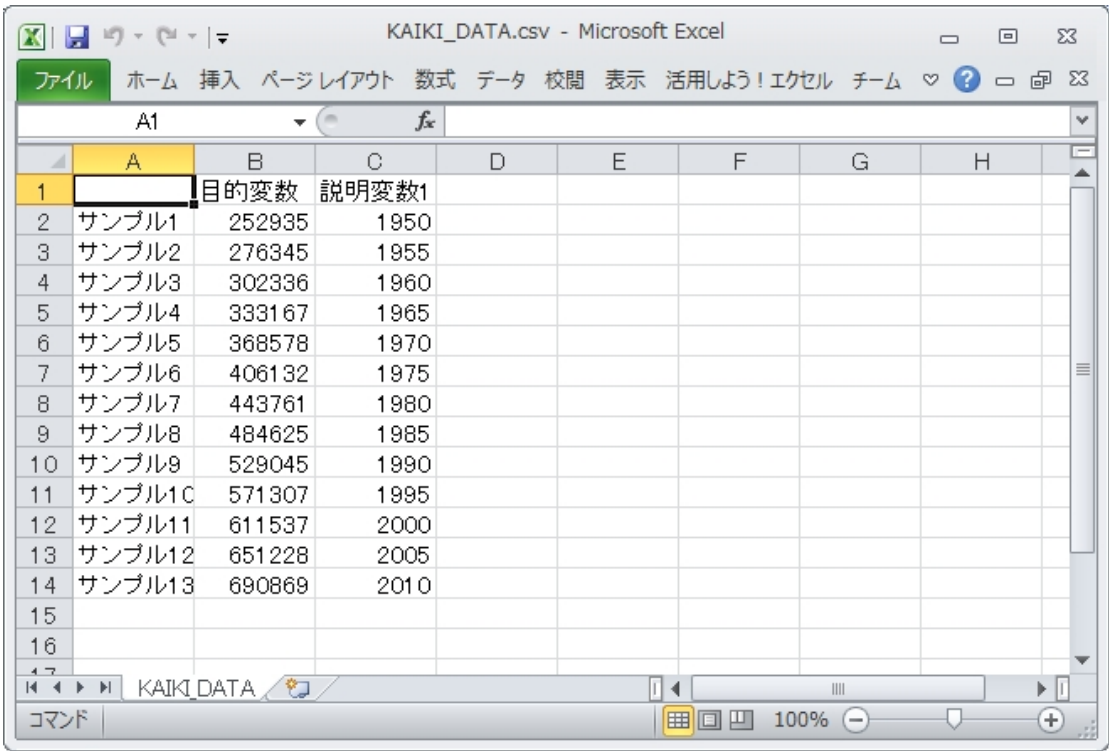
No.	項　　目	説明
1	マッチング結果ファイル (.CSV)	面積、円形度、アスペクト比 及び比較パラメータ



付録図 1　年代解析の概要

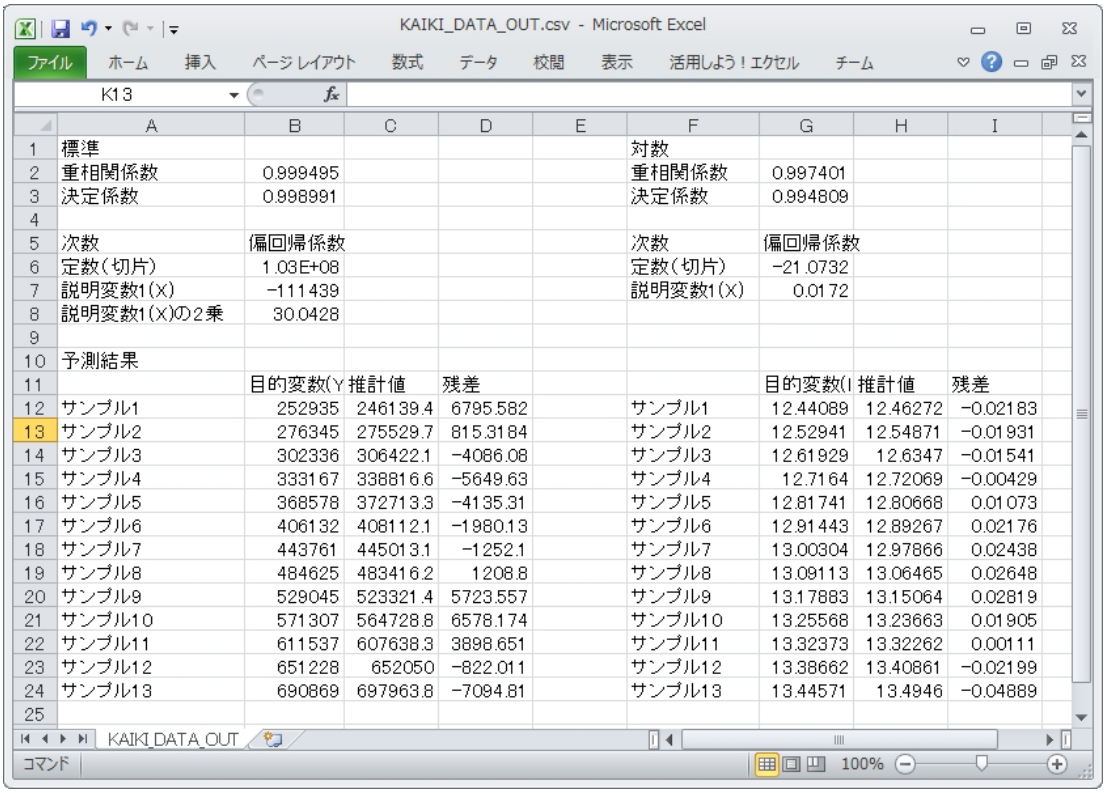


付録図 2　回帰分析の概要



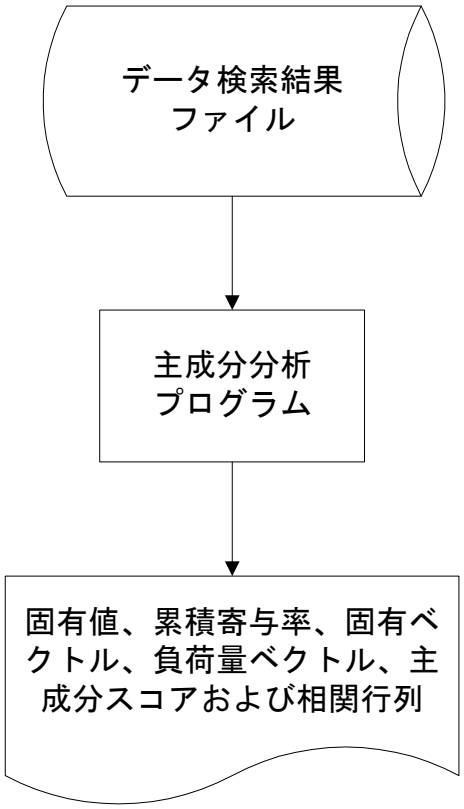
	A	B	C
1		目的変数	説明変数1
2	サンプル1	252935	1950
3	サンプル2	276345	1955
4	サンプル3	302336	1960
5	サンプル4	333167	1965
6	サンプル5	368578	1970
7	サンプル6	406132	1975
8	サンプル7	443761	1980
9	サンプル8	484625	1985
10	サンプル9	529045	1990
11	サンプル10	571307	1995
12	サンプル11	611537	2000
13	サンプル12	651228	2005
14	サンプル13	690869	2010
15			
16			

付録図 3　回帰分析のための入力フォーマット

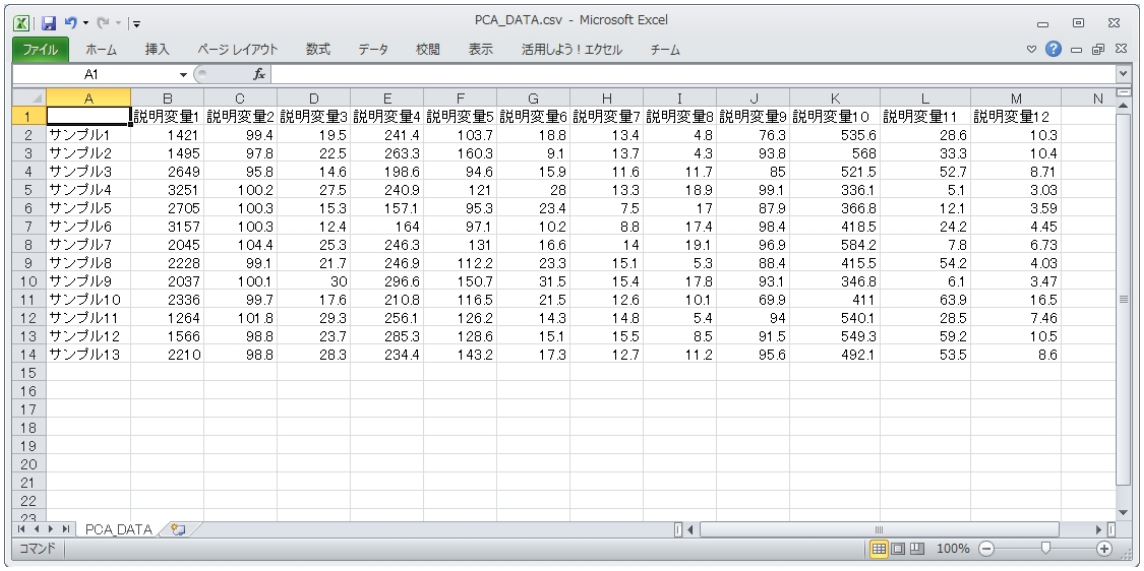


	A	B	C	D	E	F	G	H	I
1	標準					対数			
2	重相関係数	0.999495				重相関係数	0.997401		
3	決定係数	0.998991				決定係数	0.994809		
4									
5	次数	偏回帰係数				次数	偏回帰係数		
6	定数(切片)	1.03E+08				定数(切片)	-21.0732		
7	説明変数1(X)	-111439				説明変数1(X)	0.0172		
8	説明変数1(X)の2乗	30.0428							
9									
10	予測結果								
11		目的変数(Y	推計値	残差			目的変数(I	推計値	残差
12	サンプル1	252935	246139.4	6795.582		サンプル1	12.44089	12.46272	-0.02183
13	サンプル2	276345	275529.7	815.3184		サンプル2	12.52941	12.54871	-0.01931
14	サンプル3	302336	306422.1	-4086.08		サンプル3	12.61929	12.6347	-0.01541
15	サンプル4	333167	338816.6	-5649.63		サンプル4	12.7164	12.72069	-0.00429
16	サンプル5	368578	372713.3	-4135.31		サンプル5	12.81741	12.80668	0.01073
17	サンプル6	406132	408112.1	-1980.13		サンプル6	12.91443	12.89267	0.02176
18	サンプル7	443761	445013.1	-1252.1		サンプル7	13.00304	12.97866	0.02438
19	サンプル8	484625	483416.2	1208.8		サンプル8	13.09113	13.06465	0.02648
20	サンプル9	529045	523321.4	5723.557		サンプル9	13.17883	13.15064	0.02819
21	サンプル10	571307	564728.8	6578.174		サンプル10	13.25568	13.23663	0.01905
22	サンプル11	611537	607638.3	3898.651		サンプル11	13.32373	13.32262	0.00111
23	サンプル12	651228	652050	-822.011		サンプル12	13.38662	13.40861	-0.02199
24	サンプル13	690869	697963.8	-7094.81		サンプル13	13.44571	13.4946	-0.04889
25									

付録図 4　回帰分析の出力フォーマット

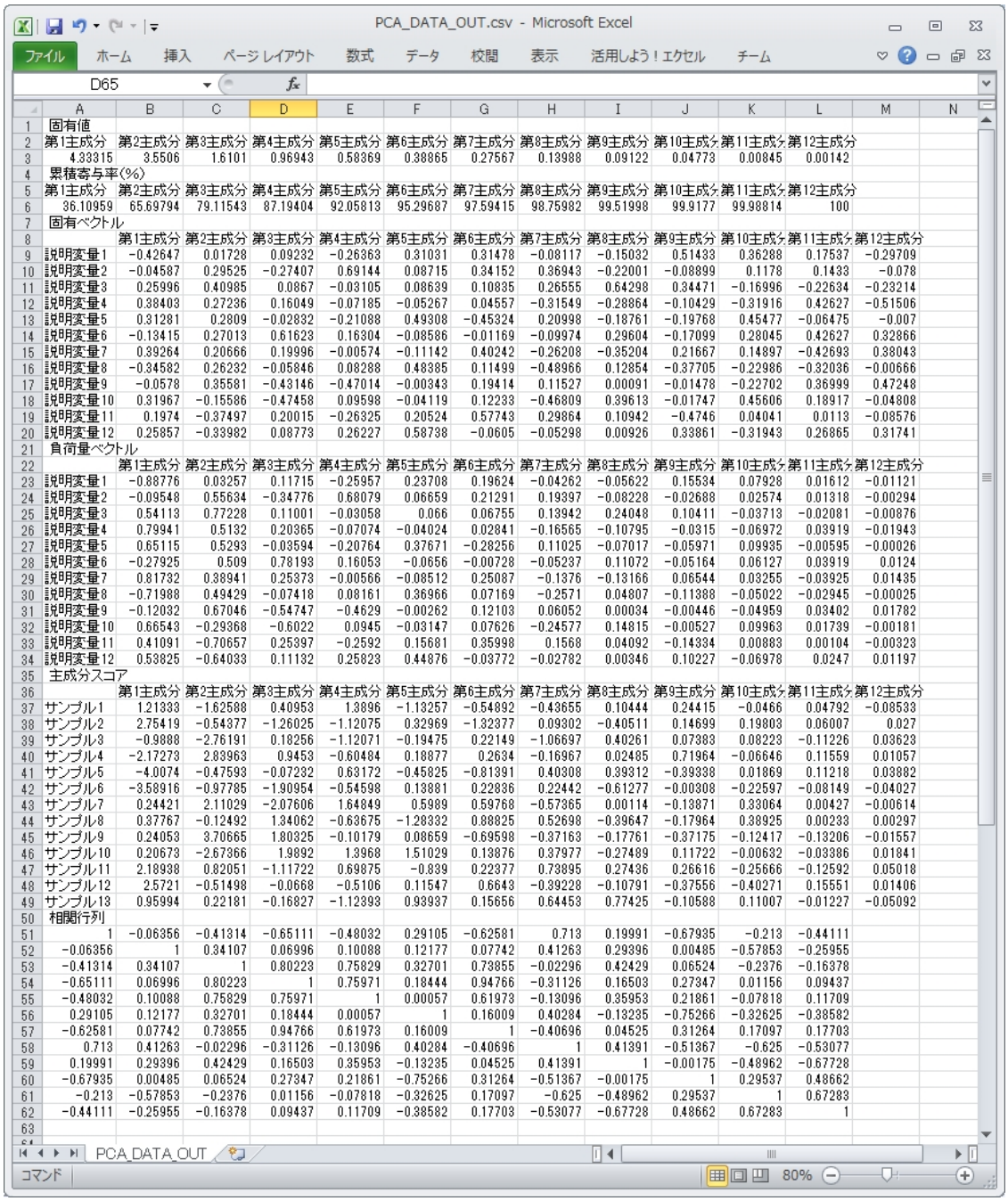


付録図 5　主成分分析の概要



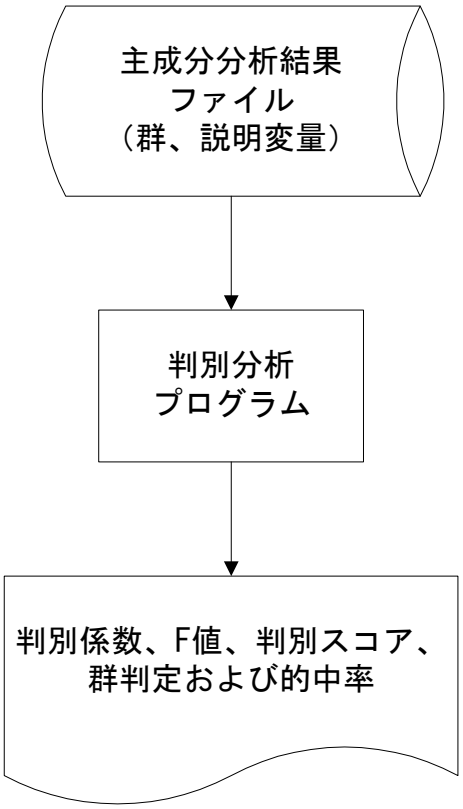
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K	L	M
1		説明変量1	説明変量2	説明変量3	説明変量4	説明変量5	説明変量6	説明変量7	説明変量8	説明変量9	説明変量10	説明変量11	説明変量12
2	サンプル1	1421	99.4	19.5	241.4	103.7	18.8	13.4	4.8	76.3	535.6	28.6	10.3
3	サンプル2	1495	97.8	22.5	263.3	160.3	9.1	13.7	4.3	93.8	568	33.3	10.4
4	サンプル3	2649	95.8	14.6	198.6	94.6	15.9	11.6	11.7	85	521.5	52.7	8.71
5	サンプル4	3251	100.2	27.5	240.9	121	28	13.3	18.9	99.1	336.1	5.1	3.03
6	サンプル5	2705	100.3	15.3	157.1	95.3	23.4	7.5	17	87.9	366.8	12.1	3.59
7	サンプル6	3157	100.3	12.4	164	97.1	10.2	8.8	17.4	98.4	418.5	24.2	4.45
8	サンプル7	2045	104.4	25.3	246.3	131	16.6	14	19.1	96.9	584.2	7.8	6.73
9	サンプル8	2228	99.1	21.7	246.9	112.2	23.3	15.1	5.3	88.4	415.5	54.2	4.03
10	サンプル9	2037	100.1	30	296.6	150.7	31.5	15.4	17.8	93.1	346.8	6.1	3.47
11	サンプル10	2336	99.7	17.6	210.8	116.5	21.5	12.6	10.1	69.9	411	63.9	16.5
12	サンプル11	1264	101.8	29.3	256.1	126.2	14.3	14.8	5.4	94	540.1	28.5	7.46
13	サンプル12	1566	98.8	23.7	285.3	128.6	15.1	15.5	8.5	91.5	549.3	59.2	10.5
14	サンプル13	2210	98.8	28.3	234.4	143.2	17.3	12.7	11.2	95.6	492.1	53.5	8.6

付録図 6　主成分分析のための入力フォーマット

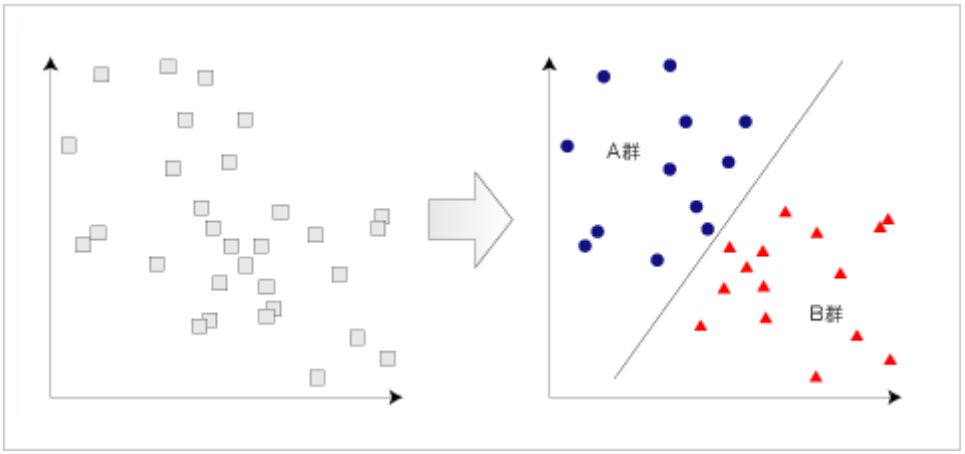


	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K	L	M	N
1	固有値													
2	第1主成分	第2主成分	第3主成分	第4主成分	第5主成分	第6主成分	第7主成分	第8主成分	第9主成分	第10主成分	第11主成分	第12主成分		
3	4.33315	3.5506	1.6101	0.96943	0.58369	0.38865	0.27567	0.13988	0.09122	0.04773	0.00845	0.00142		
4	累積寄与率(%)													
5	第1主成分	第2主成分	第3主成分	第4主成分	第5主成分	第6主成分	第7主成分	第8主成分	第9主成分	第10主成分	第11主成分	第12主成分		
6	36.10959	65.69794	79.11543	87.19404	92.05813	95.29687	97.59415	98.75982	99.51998	99.9177	99.98814	100		
7	固有ベクトル													
8		第1主成分	第2主成分	第3主成分	第4主成分	第5主成分	第6主成分	第7主成分	第8主成分	第9主成分	第10主成分	第11主成分	第12主成分	
9	説明変量1	-0.42647	0.01728	0.09232	-0.26363	0.31031	0.31478	-0.08117	-0.15032	0.51433	0.36288	0.17537	-0.29709	
10	説明変量2	-0.04587	0.29525	-0.27407	0.69144	0.08715	0.34152	0.36943	-0.22001	-0.08899	0.1178	0.1433	-0.078	
11	説明変量3	0.25996	0.40985	0.0867	-0.03105	0.08639	0.10835	0.26555	0.64298	0.34471	-0.16996	-0.22634	-0.23214	
12	説明変量4	0.38403	0.27236	0.16049	-0.07185	-0.05267	0.04557	-0.31549	-0.28864	-0.10429	-0.31916	0.42627	-0.51506	
13	説明変量5	0.31281	0.2809	-0.02832	-0.21088	0.49308	-0.45324	0.20998	-0.18761	-0.19768	0.45477	-0.06475	-0.007	
14	説明変量6	-0.13415	0.27013	0.61623	0.16304	-0.08586	-0.01169	-0.09974	0.29604	-0.17099	0.28045	0.42627	0.32866	
15	説明変量7	0.39264	0.20666	0.19996	-0.00574	-0.11142	0.40242	-0.26208	-0.35204	0.21667	0.14897	-0.42693	0.38043	
16	説明変量8	-0.34582	0.26232	-0.05846	0.08288	0.48385	0.11499	-0.48966	0.12854	-0.37705	-0.22986	-0.32036	-0.00666	
17	説明変量9	-0.0578	0.35581	-0.43146	-0.47014	-0.00343	0.19414	0.11527	0.00091	-0.01478	-0.22702	0.36999	0.47248	
18	説明変量10	0.31967	-0.15586	-0.47458	0.09598	-0.04119	0.12233	-0.46809	0.39613	-0.01747	0.45606	0.18917	-0.04808	
19	説明変量11	0.1974	-0.37497	0.20015	-0.26325	0.20524	0.57743	0.29864	0.10942	-0.4746	0.04041	0.0113	-0.08576	
20	説明変量12	0.25857	-0.33982	0.08773	0.26227	0.58738	-0.0605	-0.05298	0.00926	0.33861	-0.31943	0.26865	0.31741	
21	負荷量ベクトル													
22		第1主成分	第2主成分	第3主成分	第4主成分	第5主成分	第6主成分	第7主成分	第8主成分	第9主成分	第10主成分	第11主成分	第12主成分	
23	説明変量1	-0.88776	0.03257	0.11715	-0.25957	0.23708	0.19624	-0.04262	-0.05622	0.15534	0.07928	0.01612	-0.01121	
24	説明変量2	-0.09548	0.55634	-0.34776	0.68079	0.06659	0.21291	0.19397	-0.08228	-0.02688	0.02574	0.01318	-0.00294	
25	説明変量3	0.54113	0.77228	0.11001	-0.03058	0.066	0.06755	0.13942	0.24048	0.10411	-0.03713	-0.02081	-0.00876	
26	説明変量4	0.79941	0.5132	0.20365	-0.07074	-0.04024	0.02841	-0.16565	-0.10795	-0.0315	-0.06972	0.03919	-0.01943	
27	説明変量5	0.65115	0.5293	-0.03594	-0.20764	0.37671	-0.28256	0.11025	-0.07017	-0.05971	0.09935	-0.00595	-0.00026	
28	説明変量6	-0.27925	0.509	0.78193	0.16053	-0.0656	-0.00728	-0.05237	0.11072	-0.05164	0.06127	0.03919	0.0124	
29	説明変量7	0.81732	0.38941	0.25373	-0.00566	-0.08512	0.25087	-0.1376	-0.13166	0.06544	0.03255	-0.03925	0.01435	
30	説明変量8	-0.71988	0.49429	-0.07418	0.08161	0.36966	0.07169	-0.2571	0.04807	-0.11388	-0.05022	-0.02945	-0.00025	
31	説明変量9	-0.12032	0.67046	-0.54747	-0.4629	-0.00262	0.12103	0.06052	0.00034	-0.00446	-0.04959	0.03402	0.01782	
32	説明変量10	0.66543	-0.29368	-0.6022	0.0945	-0.03147	0.07626	-0.24577	0.14815	-0.00527	0.09963	0.01739	-0.00181	
33	説明変量11	0.41091	-0.70657	0.25397	-0.2592	0.15681	0.35998	0.1568	0.04092	-0.14334	0.00883	0.00104	-0.00323	
34	説明変量12	0.53825	-0.64033	0.11132	0.25823	0.44876	-0.03772	-0.02782	0.00346	0.10227	-0.06978	0.0247	0.01197	
35	主成分スコア													
36		第1主成分	第2主成分	第3主成分	第4主成分	第5主成分	第6主成分	第7主成分	第8主成分	第9主成分	第10主成分	第11主成分	第12主成分	
37	サンプル1	1.21333	-1.62588	0.40953	1.3896	-1.13257	-0.54892	-0.43655	0.10444	0.24415	-0.0466	0.04792	-0.08533	
38	サンプル2	2.75419	-0.54377	-1.26025	-1.12075	0.32969	-1.32377	0.09302	-0.40511	0.14699	0.19803	0.06007	0.027	
39	サンプル3	-0.9888	-2.76191	0.18256	-1.12071	-0.19475	0.22149	-1.06697	0.40261	0.07383	0.08223	-0.11226	0.03623	
40	サンプル4	-2.17273	2.83963	0.9453	-0.60484	0.18877	0.2634	-0.16967	0.02485	0.71964	-0.06646	0.11559	0.01057	
41	サンプル5	-4.0074	-0.47593	-0.07232	0.63172	-0.45825	-0.81391	0.40308	0.39312	-0.39338	0.01869	0.11218	0.03882	
42	サンプル6	-3.58916	-0.97785	-1.90954	-0.54598	0.13881	0.22836	0.22442	-0.61277	-0.00308	-0.22597	-0.08149	-0.04027	
43	サンプル7	0.24421	2.11029	-2.07606	1.64849	0.5989	0.59768	-0.57365	0.00114	-0.13871	0.33064	0.00427	-0.00614	
44	サンプル8	0.37767	-0.12492	1.34062	-0.63675	-1.28332	0.88825	0.52698	-0.39647	-0.17964	0.38925	0.00233	0.00297	
45	サンプル9	0.24053	3.70665	1.80325	-0.10179	0.08659	-0.69598	-0.37163	-0.17761	-0.37175	-0.12417	-0.13206	-0.01557	
46	サンプル10	0.20673	-2.67366	1.9892	1.3968	1.51029	0.13876	0.37977	-0.27489	0.11722	-0.00632	-0.03386	0.01841	
47	サンプル11	2.18938	0.82051	-1.11722	0.69875	-0.839	0.22377	0.73895	0.27436	0.26616	-0.25666	-0.12592	0.05018	
48	サンプル12	2.5721	-0.51498	-0.0668	-0.5106	0.11547	0.6643	-0.39228	-0.10791	-0.37556	-0.40271	0.15551	0.01406	
49	サンプル13	0.95994	0.22181	-0.16827	-1.12393	0.93937	0.15656	0.64453	0.77425	-0.10588	0.11007	-0.01227	-0.05092	
50	相関行列													
51	1	-0.06356	-0.41314	-0.65111	-0.48032	0.29105	-0.62581	0.713	0.19991	-0.67935	-0.213	-0.44111		
52	-0.06356	1	0.34107	0.06996	0.10088	0.12177	0.07742	0.41263	0.29396	0.00485	-0.57853	-0.25955		
53	-0.41314	0.34107	1	0.80223	0.75829	0.32701	0.73855	-0.02296	0.42429	0.06524	-0.2376	-0.16378		
54	-0.65111	0.06996	0.80223	1	0.75971	0.18444	0.94766	-0.31126	0.16503	0.27347	0.01156	0.09437		
55	-0.48032	0.10088	0.75829	0.75971	1	0.00057	0.61973	-0.13096	0.35953	0.21861	-0.07818	0.11709		
56	0.29105	0.12177	0.32701	0.18444	0.00057	1	0.16009	0.40284	-0.13235	-0.75266	-0.32625	-0.38582		
57	-0.62581	0.07742	0.73855	0.94766	0.61973	0.16009	1	-0.40696	0.04525	0.31264	0.17097	0.17703		
58	0.713	0.41263	-0.02296	-0.31126	-0.13096	0.40284	-0.40696	1	0.41391	-0.51367	-0.625	-0.53077		
59	0.19991	0.29396	0.42429	0.16503	0.35953	-0.13235	0.04525	0.41391	1	-0.00175	-0.48962	-0.67728		
60	-0.67935	0.00485	0.06524	0.27347	0.21861	-0.75266	0.31264	-0.51367	-0.00175	1	0.29537	0.48662		
61	-0.213	-0.57853	-0.2376	0.01156	-0.07818	-0.32625	0.17097	-0.625	-0.48962	0.29537	1	0.67283		
62	-0.44111	-0.25955	-0.16378	0.09437	0.11709	-0.38582	0.17703	-0.53077	-0.67728	0.48662	0.67283	1		
63														

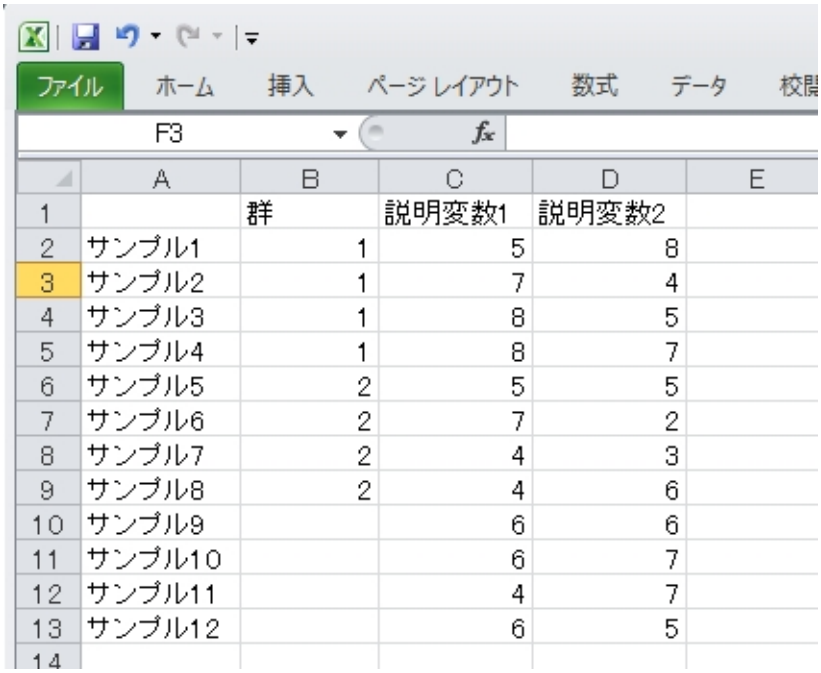
付録図 7　主成分分析の出力フォーマット



付録図 8　判別分析の概要



付録図 9　判別分析の例

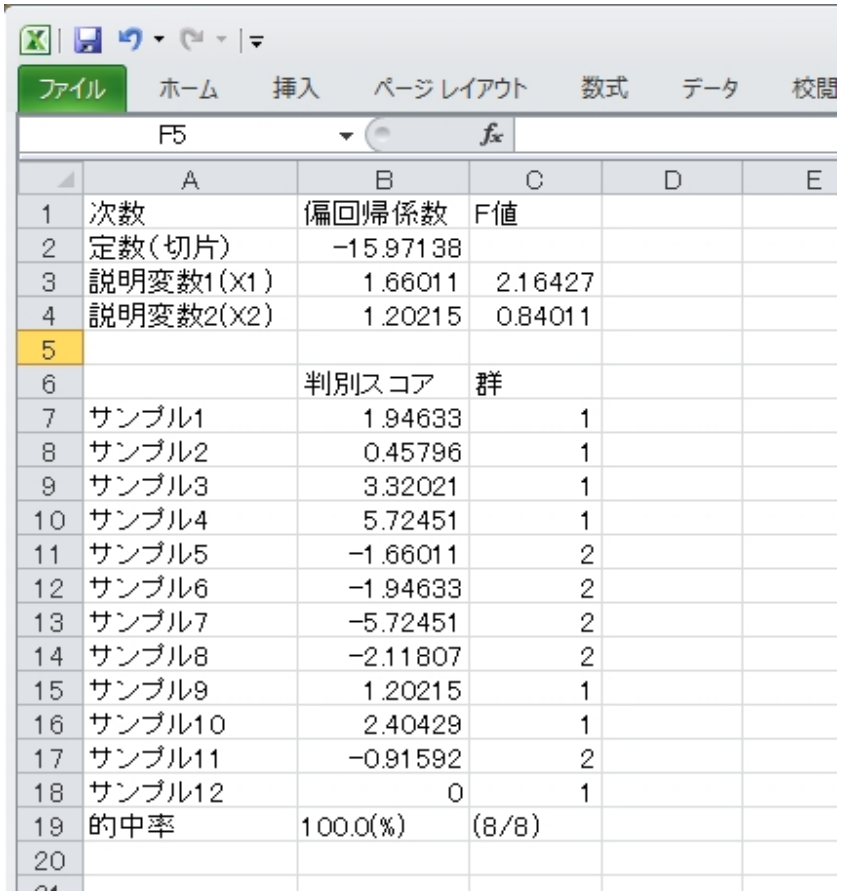


ファイル　ホーム　挿入　ページ レイアウト　数式　データ　校閲

F3

	A	B	C	D	E
1		群	説明変数1	説明変数2	
2	サンブル1	1	5	8	
3	サンブル2	1	7	4	
4	サンブル3	1	8	5	
5	サンブル4	1	8	7	
6	サンブル5	2	5	5	
7	サンブル6	2	7	2	
8	サンブル7	2	4	3	
9	サンブル8	2	4	6	
10	サンブル9		6	6	
11	サンブル10		6	7	
12	サンブル11		4	7	
13	サンブル12		6	5	
14					

付録図 10　判別分析のための入力フォーマット

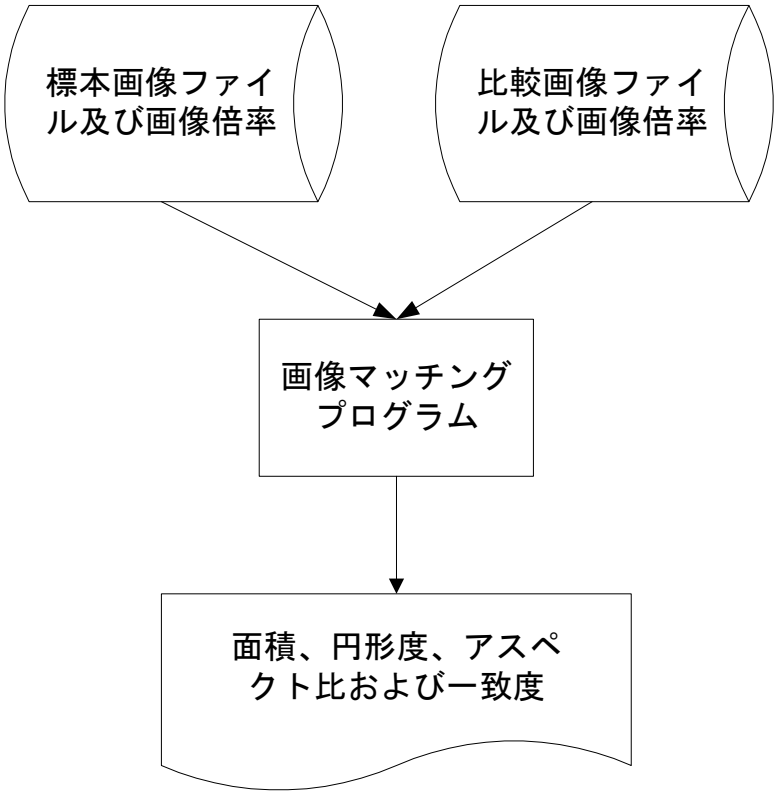


ファイル　ホーム　挿入　ページ レイアウト　数式　データ　校閲

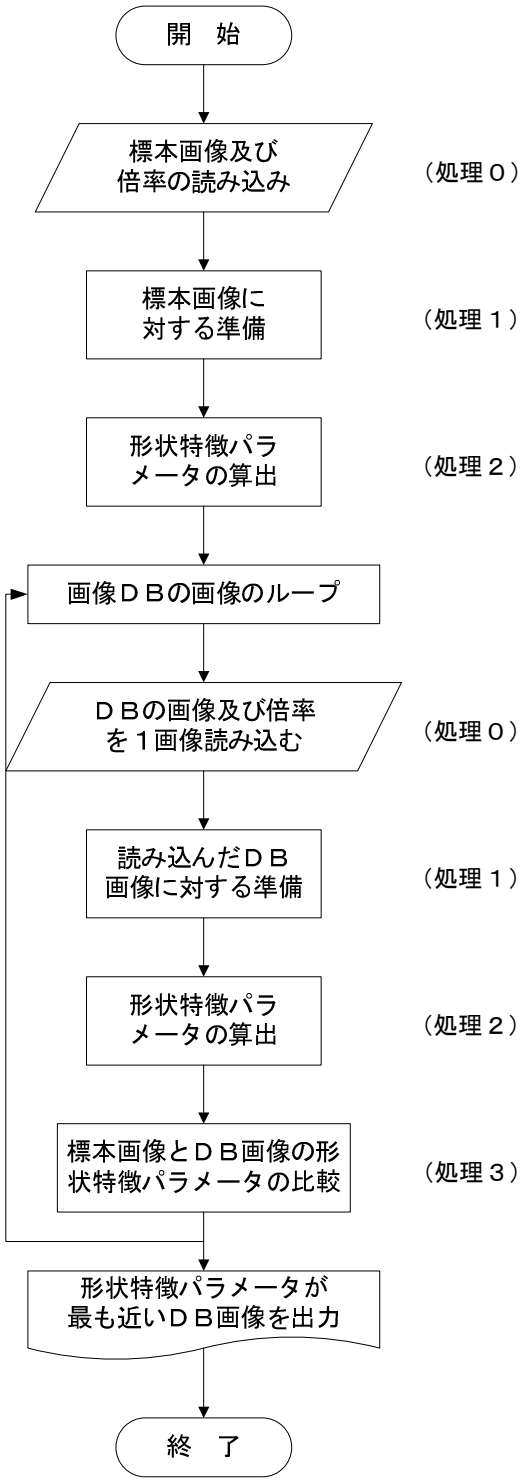
F5

	A	B	C	D	E
1	次数	偏回帰係数	F値		
2	定数(切片)	-15.97138			
3	説明変数1(X1)	1.66011	2.16427		
4	説明変数2(X2)	1.20215	0.84011		
5					
6		判別スコア	群		
7	サンブル1	1.94633	1		
8	サンブル2	0.45796	1		
9	サンブル3	3.32021	1		
10	サンブル4	5.72451	1		
11	サンブル5	-1.66011	2		
12	サンブル6	-1.94633	2		
13	サンブル7	-5.72451	2		
14	サンブル8	-2.11807	2		
15	サンブル9	1.20215	1		
16	サンブル10	2.40429	1		
17	サンブル11	-0.91592	2		
18	サンブル12	0	1		
19	的中率	100.0(%)	(8/8)		
20					

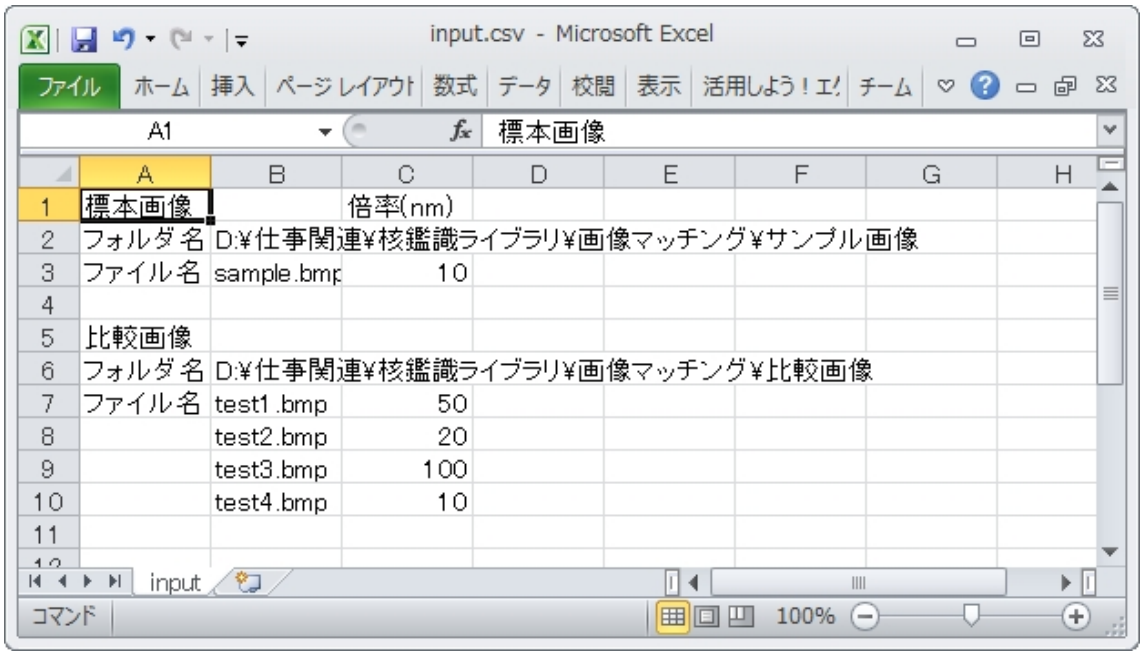
付録図 11　判別分析の出力フォーマット



付録図 12　画像マッチングの概要

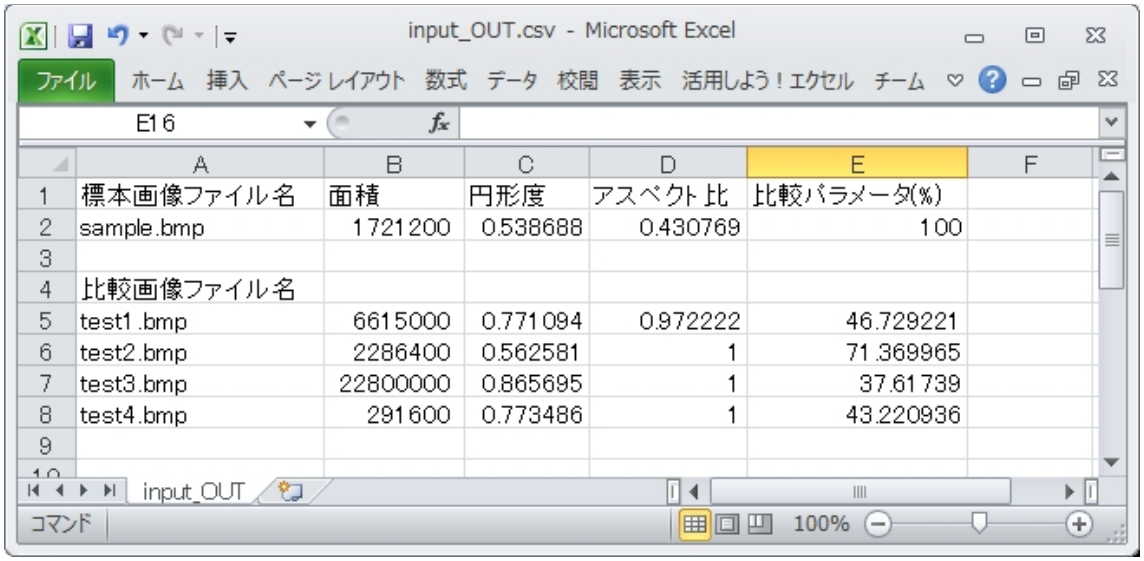


付録図 13　画像マッチング処理のフローチャート



	A	B	C
1	標本画像		倍率(nm)
2	フォルダ名	D:¥仕事関連¥核鑑識ライブラリ¥画像マッチング¥サンプル画像	
3	ファイル名	sample.bmp	10
4			
5	比較画像		
6	フォルダ名	D:¥仕事関連¥核鑑識ライブラリ¥画像マッチング¥比較画像	
7	ファイル名	test1.bmp	50
8		test2.bmp	20
9		test3.bmp	100
10		test4.bmp	10
11			

付録図 14　画像マッチング処理のための入力フォーマット



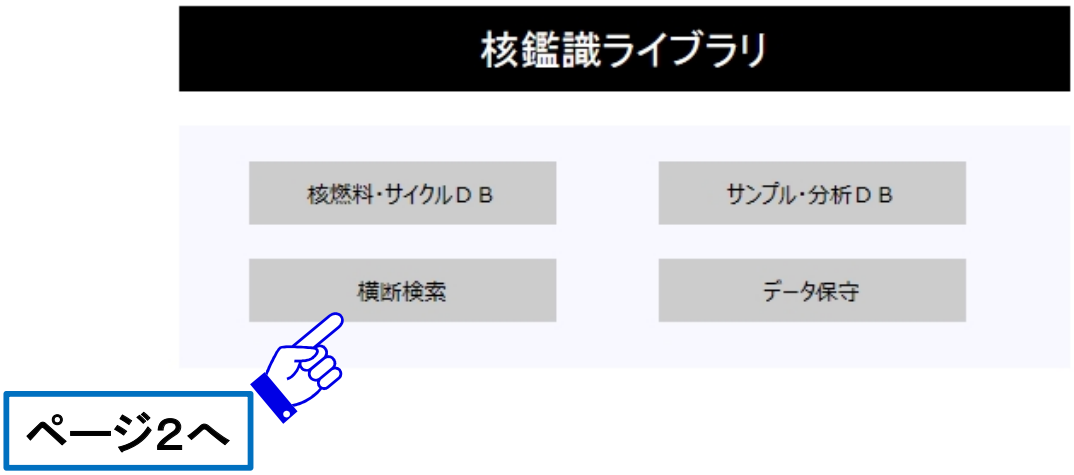
	A	B	C	D	E	F
1	標本画像ファイル名	面積	円形度	アスペクト比	比較パラメータ(%)	
2	sample.bmp	1721200	0.538688	0.430769	100	
3						
4	比較画像ファイル名					
5	test1.bmp	6615000	0.771094	0.972222	46.729221	
6	test2.bmp	2286400	0.562581	1	71.369965	
7	test3.bmp	22800000	0.865695	1	37.61739	
8	test4.bmp	291600	0.773486	1	43.220936	
9						

付録図 15　画像マッチング処理の出力フォーマット

7. 核鑑識ライブラリ操作手順

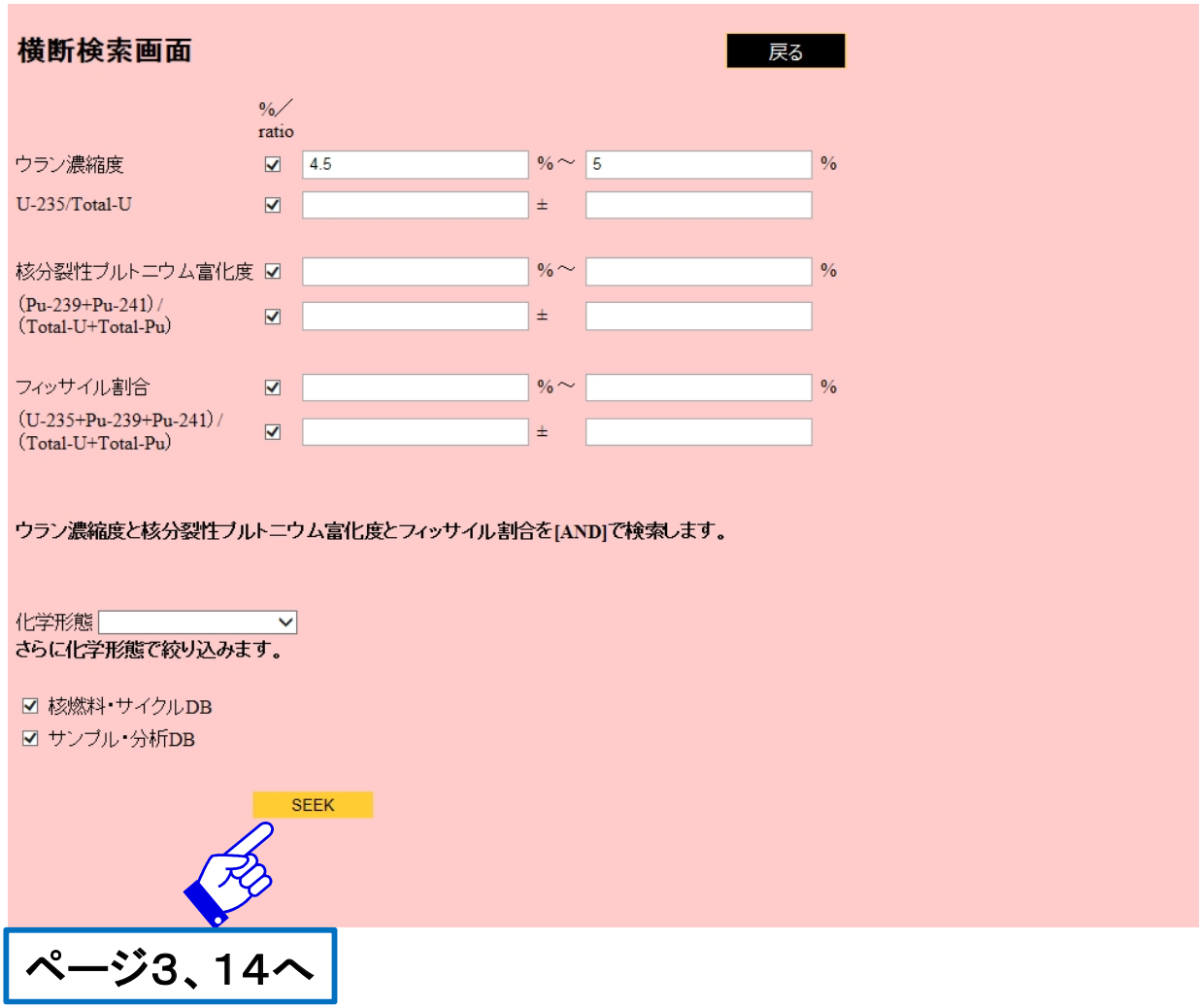
本研究で開発したプロトタイプ核鑑識ライブラリ操作の概要をここに示す。以下の図は核鑑識ライブラリ用コンピュータ画面をスナップショットしたものであり、該当箇所をクリックすると目的のページが表示される。

なおここに示すデータは全て架空のものである。



- ［核鑑識ライブラリスタート画面］：小データベースまたは横断検索を選択する。

ページ1



- ［横断検索画面］：ウラン濃縮度、プルトニウム富化度、フィッサイル割合、化学形態で検索が可能となる。ここではウラン濃縮度4.5～5%で検索する。

ページ2

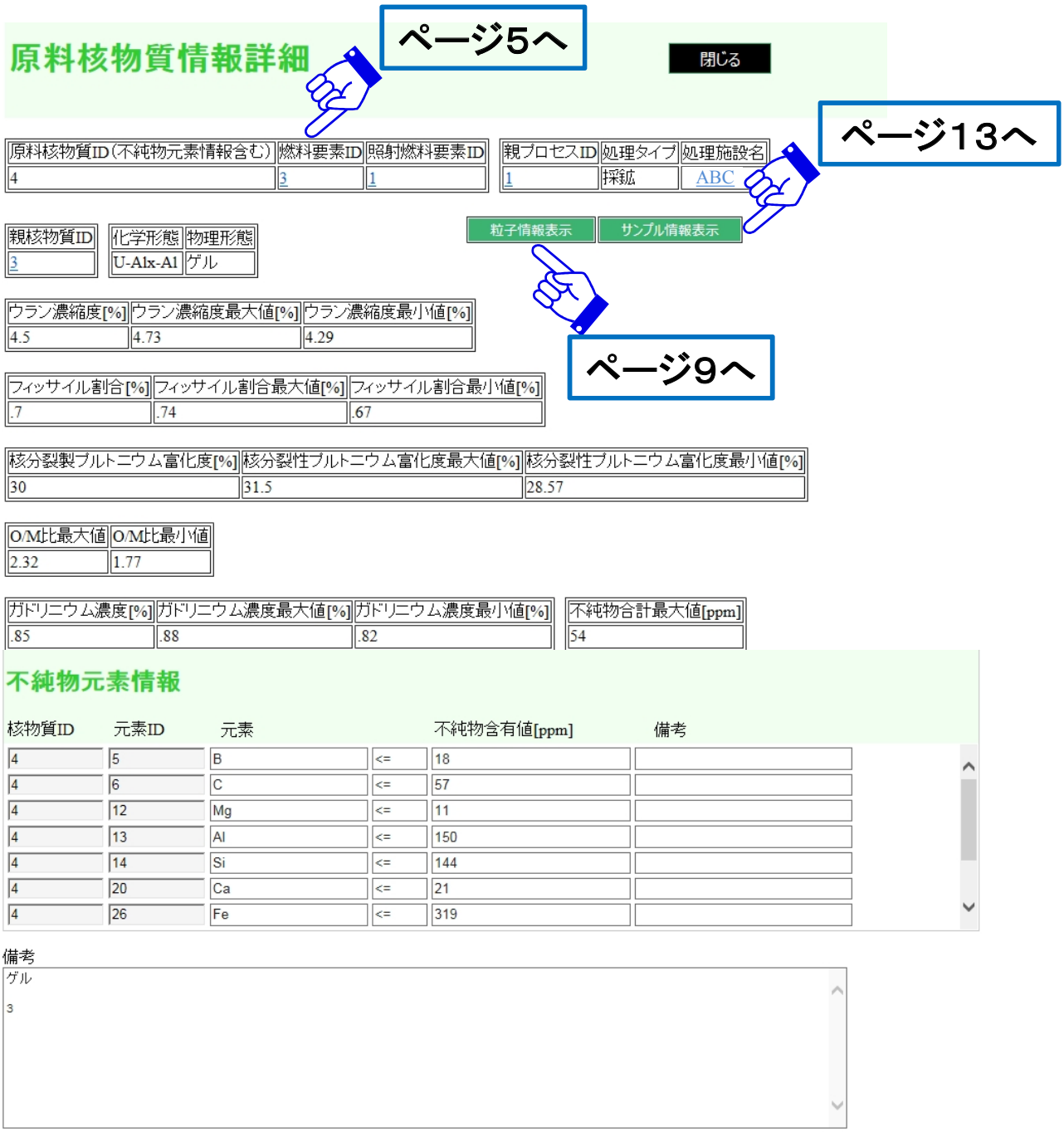
ここに示すデータは全て架空のものである。

ID	親プロセスID・ロット番号		処理タイプ	処理施設名	化学形態	物理形態	ウラン濃縮度[%]		フィッサイル割合[%]		核分裂性プルトニウム富化度[%]		カドリニウム濃度[%]		OM比		燃料要素ID	照射要素ID	元素比較
4	1	ロット番号①	採鉱	ABC	金属 U-Alx-Al	ゲル	4.5	MAX 4.73 MIN 4.29	.7	MAX .74 MIN .67	30	MAX 31.5 MIN 28.57	.85	MAX .88 MIN .82		MAX 2.32 MIN 1.77	3	1	□
5	ロット番号⑤		濃縮	DEF	硫酸塩 UO2SO4(3H2O)	ゾル	5	MAX 5.25 MIN 4.76	.8	MAX .84 MIN .76	35	MAX 36.75 MIN 33.33	.65	MAX .68 MIN .62		MAX 2.42 MIN 1.87	1	3	□

- ［核燃料・サイクルDBの検索結果画面］：結果の絞り込みが可能。原料核物質IDをクリックして詳細を確認する。

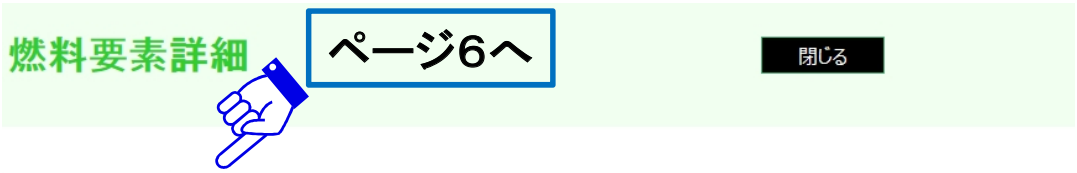
ページ3

ここに示すデータは全て架空のものである。



- ［原料核物質情報詳細画面］：濃縮度や不純物、親プロセス、親物質等の情報が記載されている。当該原料物質を使用する燃料要素、親物質、親プロセスの詳細を遡って確認可能。

ページ4



ここに示すデータは全て架空のものである。

要素ID	燃料体ID	要素形状
3	3	八橋

理論密度[g/cc]	密度[%T.D.]	最大密度[%T.D.]	最小密度[%T.D.]
9	9.18	9.36	8.72
	[g/cc]	[g/cc]	[g/cc]
	.8262	.8424	.7848

ジオメトリ①[mm]	最大ジオメトリ①[mm]	最小ジオメトリ①[mm]	長さ
32	32.64	30.4	

ジオメトリ②[mm]	最大ジオメトリ②[mm]	最小ジオメトリ②[mm]	幅
34	34.68	32.3	

ジオメトリ③[mm]	最大ジオメトリ③[mm]	最小ジオメトリ③[mm]	厚さ
4	4.08	3.8	

複雑形状説明

湾曲半径：　±　[mm]

表面粗さ
3.3

最大プルトニウムスポット径 [μm]	空隙率[%]
33	4.3

ウラン溶液濃度[g/L]	プルトニウム溶液濃度[g/L]
53	63

製造開始日	製造終了日	製造機関
1990/12/27	2013/12/27	GHI

備考

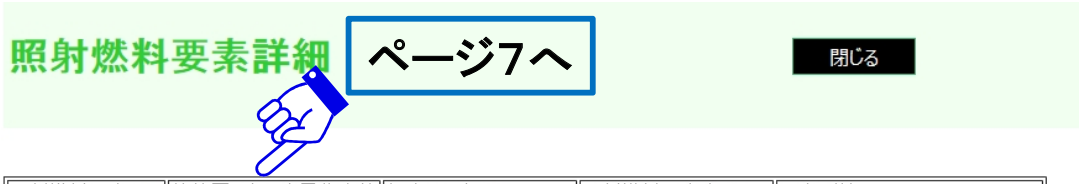
八橋

32, 34, 4

- ［燃料要素詳細画面］：密度、形状情報等が記載されている。当該燃料要素を使用する燃料体の詳細を遡って確認可能。

ページ5

ここに示すデータは全て架空のものである。



照射燃料要素ID	装荷原子炉・臨界集合体	カプセル名/ID	照射燃料要素名/ID	要素形状
1	ABC	カプセル①	要素①	平板

理論密度[g/cc]	密度[%T.D.]	最大密度[%T.D.]	最小密度[%T.D.]
11	11.22	11.44	10.66
	[g/cc]	[g/cc]	[g/cc]
	1.2342	1.2584	1.1726

ジオメトリ①[mm]	最大ジオメトリ①[mm]	最小ジオメトリ①[mm]	平板長さ
21	21.42	19.95	

ジオメトリ②[mm]	最大ジオメトリ②[mm]	最小ジオメトリ②[mm]	平板幅
15	15.3	14.25	

ジオメトリ③[mm]	最大ジオメトリ③[mm]	最小ジオメトリ③[mm]	平板厚さ
2	2.04	1.9	

複雑形状説明

平板

21, 15, 2

表面粗さ
1.5

最大プルトニウムスポット径 [μm]	空隙率[%]
31	4.1

照射開始日	照射終了日	製造機関	照射後試験施設
1990/12/27	2013/12/27	MNO	PQR

備考

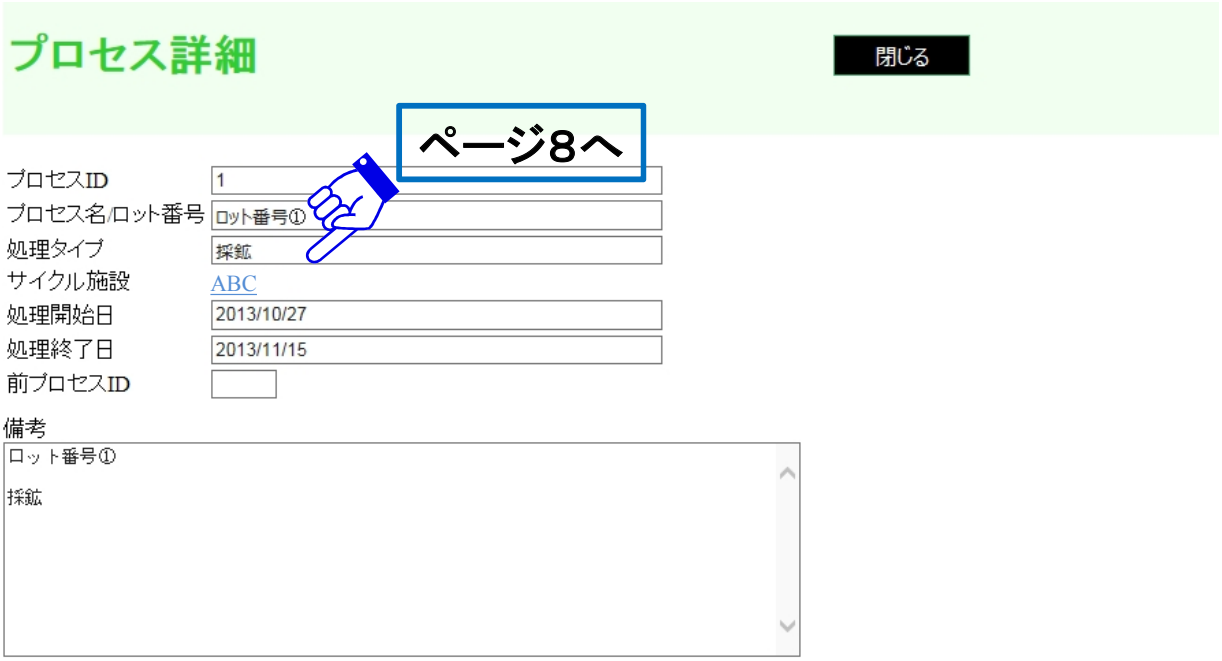
平板

21, 15, 2

- ［照射燃料要素詳細画面］：照射カプセル、密度、形状情報等が記載されている。当該燃料要素を装荷する原子炉等の詳細を遡って確認可能。

ページ6

ここに示すデータは全て架空のものである。



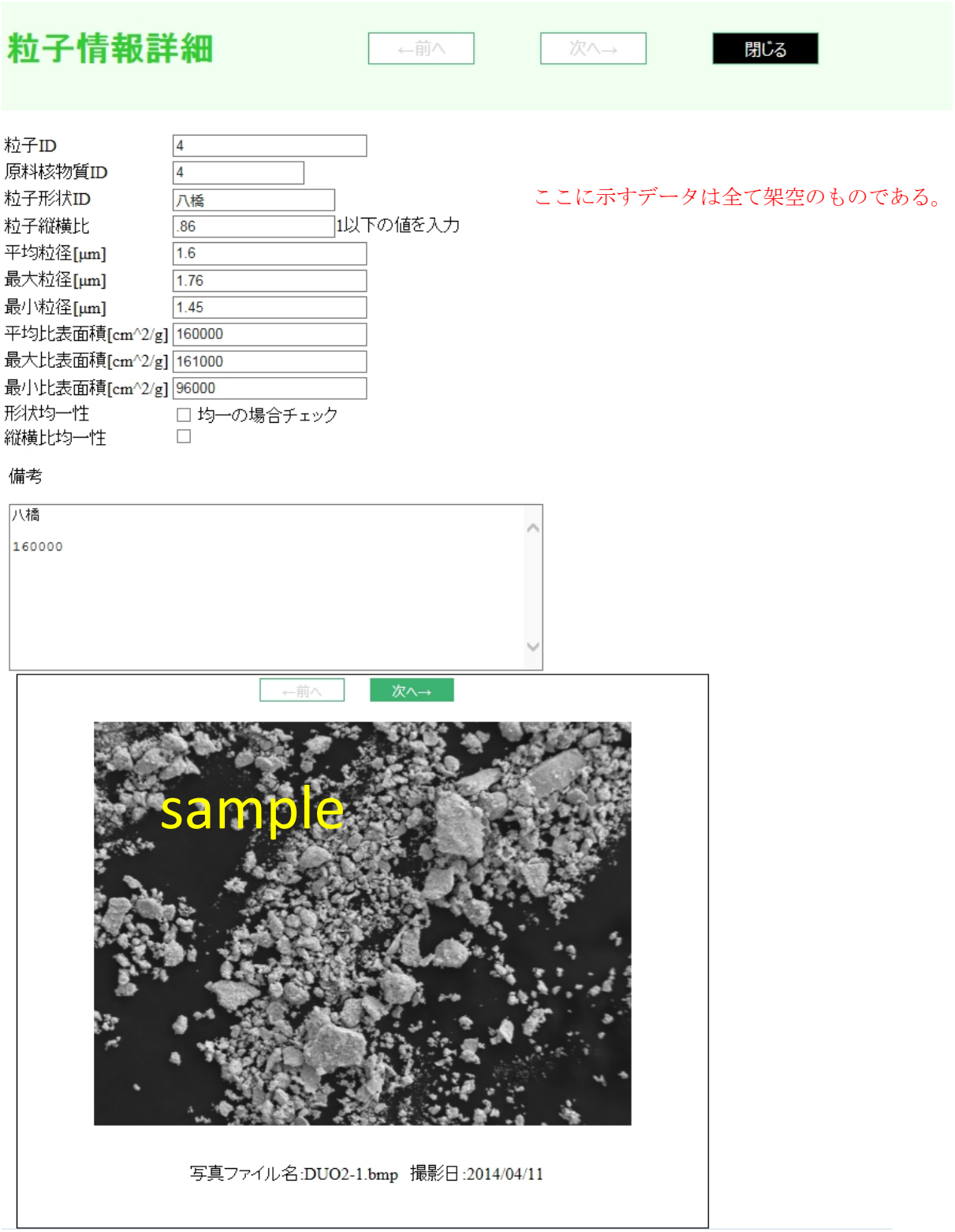
- ［プロセス詳細画面］：プロセス名、処理期間等が記載されている。プロセスを実施した燃料サイクル施設を遡って確認可能。

ページ7

ここに示すデータは全て架空のものである。

- ［サイクル施設詳細画面］：所在地、運転期間等が記載されている。

ページ8



ここに示すデータは全て架空のものである。

- ［原料核物質粒子情報詳細画面］：粒子形状、粒径、顕微鏡像等が記載されている。

ページ9

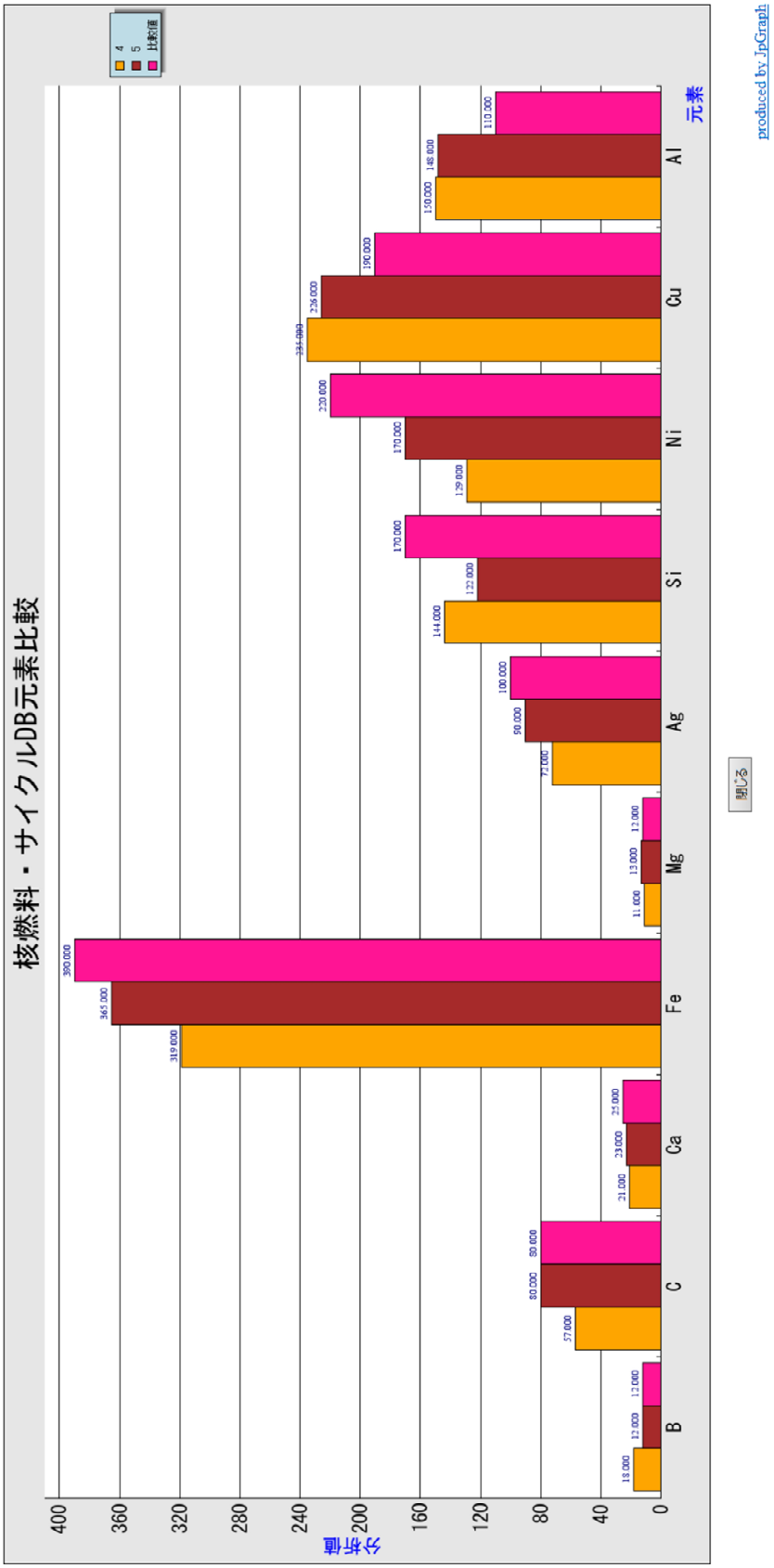
ここに示すデータは全て架空のものである。

- ［核燃料・サイクルDBの検索結果での不純物元素の比較実行の例］

ここに示すデータは全て架空のものである。

- ［不純物元素比較の設定画面］：分析した不純物含有量を比較値として入力する。

ここに示すデータは全て架空のものである。



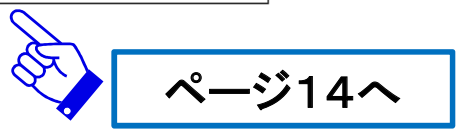
・［不純物元素比較結果の例］：棒グラスはID 4の不純物データ（左）、ID 5の不純物データ（中）及び分析データ（比較値）（右）

ページ12

ここに示すデータは全て架空のものである。

サンプルIDをクリックして詳細を表示。　閉じる

サンプルID	機関内サンプルID
2	機関内②



- ［サンプル・分析DBの検索結果の例］：サンプルIDをクリックでサンプル詳細を表示。

ページ13

サンプル情報詳細　1/3　閉じる

サンプル基本情報

サンプルID	機関内サンプルID	物理形態	質量[g]	質量不確かさ	シグマ	不確かさタイプ
2	機関内②	液体	1178	24	2σ	GUM

参照原料核物質ID
5

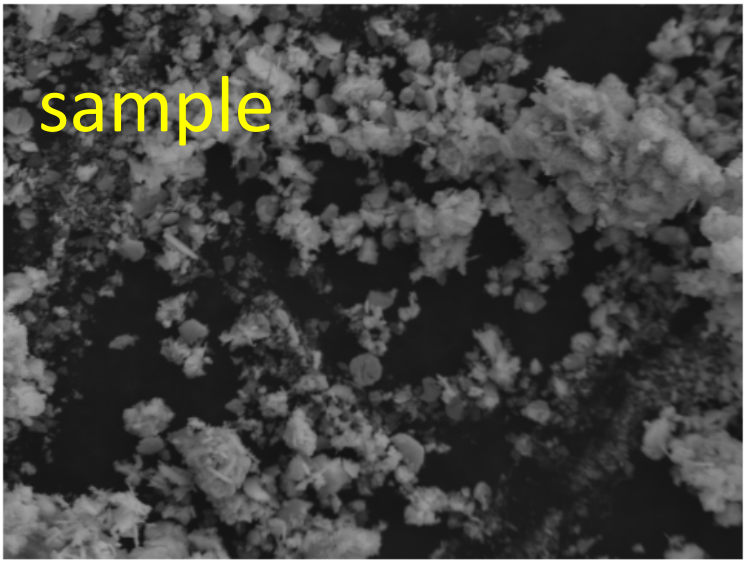
ここに示すデータは全て架空のものである。

備考

液体
1178

登録されているファイルは、ありません。

サンプル写真　←前へ　次へ→



写真ファイル名:JPADU-2.bmp 撮影日:2014/03/31

- ［サンプル詳細画面（1ページ目）］

ページ14

（ページ14続き）

ここに示すデータは全て架空のものである。

- ［サンプル詳細画面（１ページ目続き）］：画面下部のボタンでサンプル関連情報や分析データを表示。

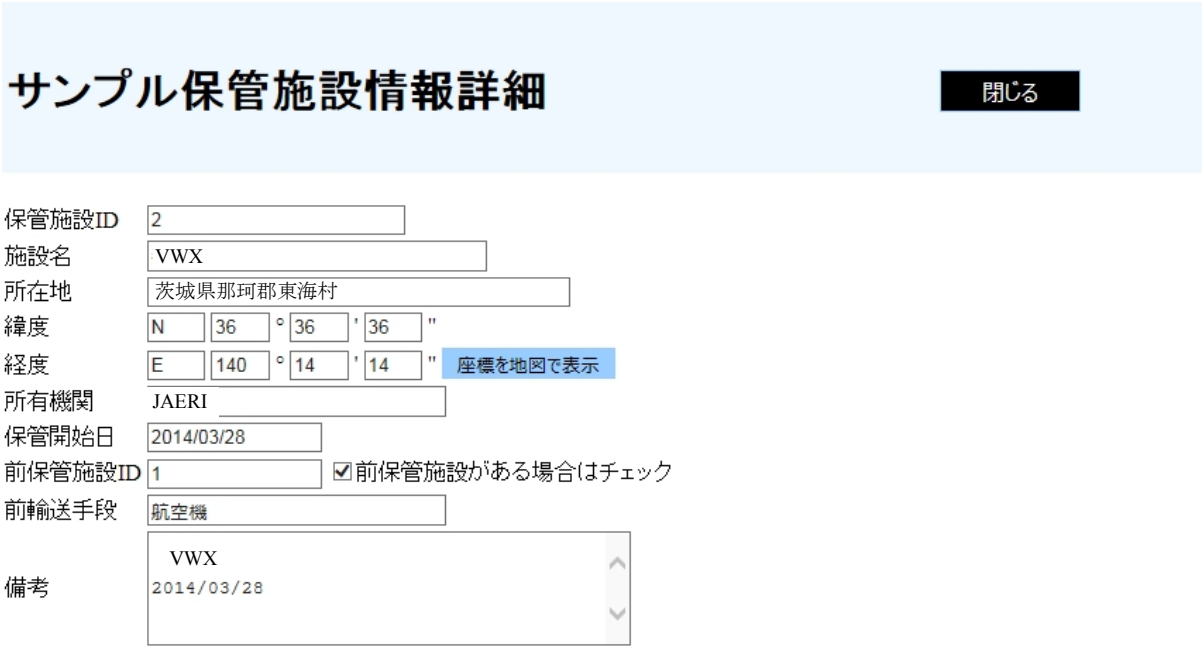
ページ15

ここに示すデータは全て架空のものである。

- ［サンプル所有者情報詳細画面］

ページ16

ここに示すデータは全て架空のものである。



- ［サンプル保管施設情報詳細画面］

ページ17

サンプル情報詳細　2/3　閉じる

ページ19へ

ここに示すデータは全て架空のものである。

サンプル容器

容器ID	容器シリアル番号	形状	サンプルID	〈容器+サンプル〉質量[g]
2	容器②	円筒	2	2201

ジオメトリ①[mm]		ジオメトリ②[mm]		ジオメトリ③[mm]	
円筒外径	150	円筒内径	120	円筒高さ	80

容器主構成物質	複雑形状説明
ステンレス (Stainless Steel)	ディッシュ径： 3.28±0.328 [mm], ディッシュ深さ： 3.28±0.328 [mm], チャンファ高： 3.28±0.328 [mm]

容器質量[g]	質量不確かさ	シグマ	不確かさ種類	表面線量[Sv/h]	1m線量[Sv/h]
1023	6	1σ	std dev	.0056	.000005

容器内他物質	親容器ID
Pu-241	1

備考

容器②
2014/03/28

サンプル容器写真　←前へ　次へ→

写真ファイル名:SAMPLE_06.jpg 撮影日:2014/03/28

サンプル情報　サンプル写真　所有者　保管施設
サンプル容器　回収情報　分析データを表示

- ［サンプル情報詳細画面（２ページ目）］：容器の情報。

ページ18

サンプル容器情報詳細

閉じる

ここに示すデータは全て架空のものである。

容器ID	容器名・シリアル番号	容器形状
2	容器②	円筒

ジオメトリ①[mm]	円筒外径	(容器+サンプル)質量[g]	容器質量[g]
150		2201	1023

ジオメトリ②[mm]	円筒内径	容器質量不確かさ	シグマレベル	不確かさタイプ
120		6	1σ	std dev

ジオメトリ③[mm]	円筒高さ
80	

複雑形状説明

ディッシュ径： 3.28±0.328 [mm], ディッシュ深さ： 3.28±0.328 [mm], チャンファ高： 3.28±0.328 [mm]

容器主構成物質	容器内他物質
ステンレス (Stainless Steel)	Pu-241

容器表面線量[Sv/h]	容器1m線量[Sv/h]	親容器ID
.0056	.000005	1

備考

容器②

2014/03/28

サンプル容器写真

←前へ 次へ→

写真ファイル名:SAMPLE_06.jpg 撮影日:2014/03/28

- ［サンプル容器情報詳細画面］

ページ19

ここに示すデータは全て架空のものである。

- ［サンプル情報詳細画面（３ページ目）］：回収情報。

ページ20

サンプル回収情報詳細

閉じる

ここに示すデータは全て架空のものである。

回収ID	2
回収場所名	倉庫
所在地	茨城県那珂郡東海村
緯度	N 36 ° 36 ' 36 "
経度	E 140 ° 14 ' 14 " 座標を地図で表示
回収者ID	2
回収日時	2014/03/28 11:51:00
回収状況	不法投棄
回収後保管施設ID	4
回収後輸送手段	自動車
備考	倉庫 2014/03/28 11:51

サンプル回収写真

←前へ　次へ→

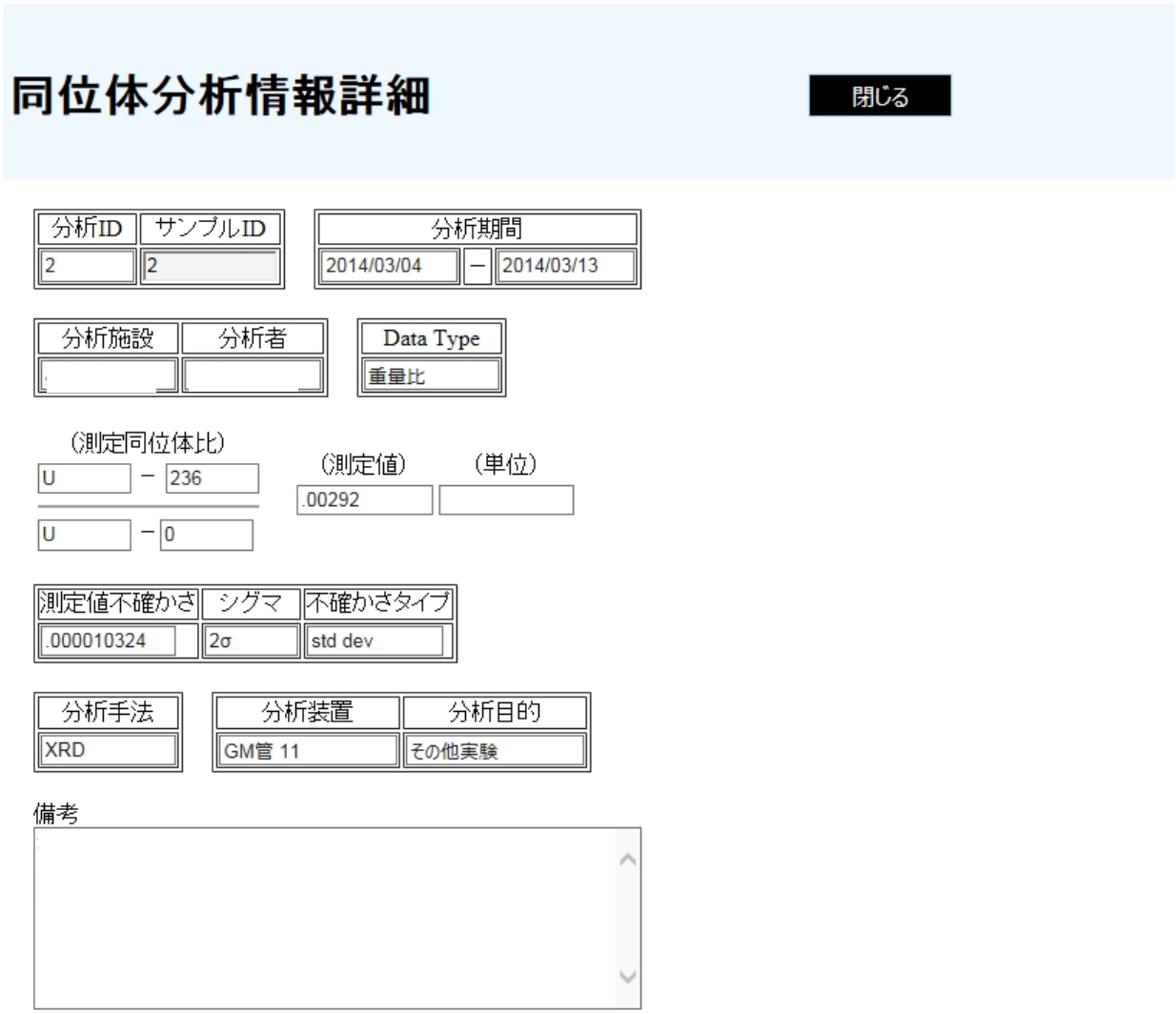
写真ファイル名:COLLECTION_03.jpg 撮影日:2014/03/28

- ［サンプル回収情報詳細画面］

ページ21

- ［分析データ詳細画面（１ページ目）］：各データ詳細を表示可能。

ここに示すデータは全て架空のものである。



- ［同位体分析情報詳細画面］

ページ23

ここに示すデータは全て架空のものである。

- ［元素分析情報詳細画面］

ページ24

ここに示すデータは全て架空のものである。

年代分析情報詳細

閉じる

測定ID	サンプルID
2	2

分析期間		
2014/03/03	–	2014/03/10

分析施設	分析者	半減期(親核)	崩壊モードID
		1.9131	1

測定同位体(分子)			=	測定濃度	単位	測定値不確かさ	シグマ	不確かさタイプ
Ra	–	224		2.50E+01	ppm	2.05E+00	3σ	GUM

測定同位体(分母)			=	測定濃度	単位	測定値不確かさ	シグマ	不確かさタイプ
Th	–	228		1.97E+01	ppm	1.62E+00	1σ	std dev

(測定同位体比)

$$\frac{\text{Ra} - 224}{\text{Th} - 228} = \text{(同位体比測定値)}\ 1.27\text{E+00}$$

年代評価値[days]	評価値不確かさ	シグマ	不確かさタイプ
8.25E+02	2.05E+00	3σ	GUM

年代基準値
2014/03/19

分析手法
GD-MS

分析装置	分析目的
NaI検出器 12	その他実験

備考

- ［年代分析情報詳細画面］

ページ25

ここに示すデータは全て架空のものである。

放射線分析情報詳細

閉じる

分析ID	サンプルID
2	2

アルファ線計数率[cps]	測定時間[sec]	アルファ線測定装置
969	11	NaI検出器 12

ベータ線計数率[cps]	測定時間[sec]	ベータ線測定装置
278	21	電離箱 23

ガンマ線計数率[cps]	測定時間[sec]	ガンマ線測定装置
638	31	GM管 31

中性子線計数率[cps]	測定時間[sec]	中性子線測定装置
209	41	NaI検出器 42

比放射能[Bq/g]	表面線量[Sv/h]	1m線量[Sv/h]
3.512	1.728	.854

備考

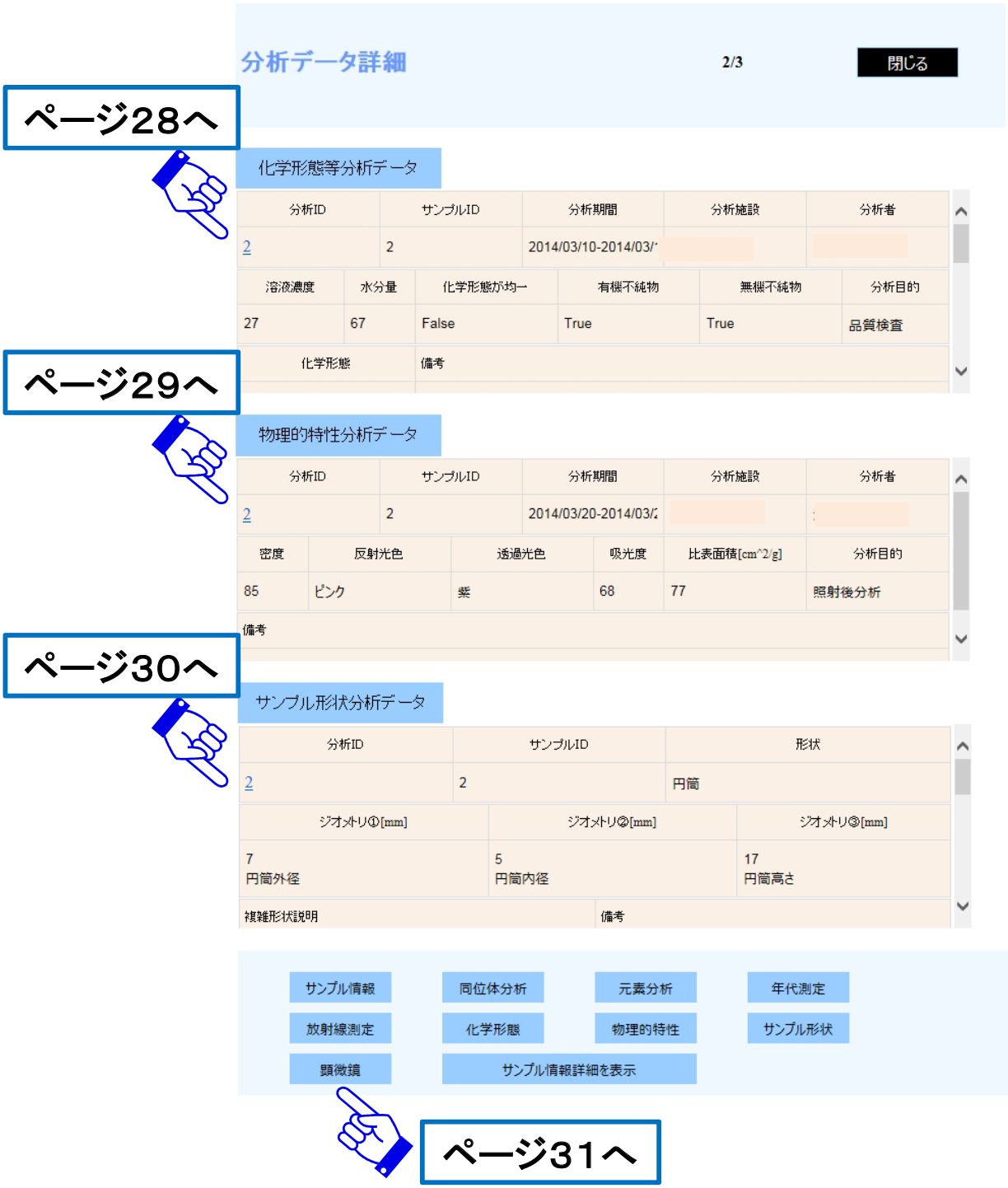
NaI検出器 12

11

- ［放射線分析情報詳細画面］

ページ26

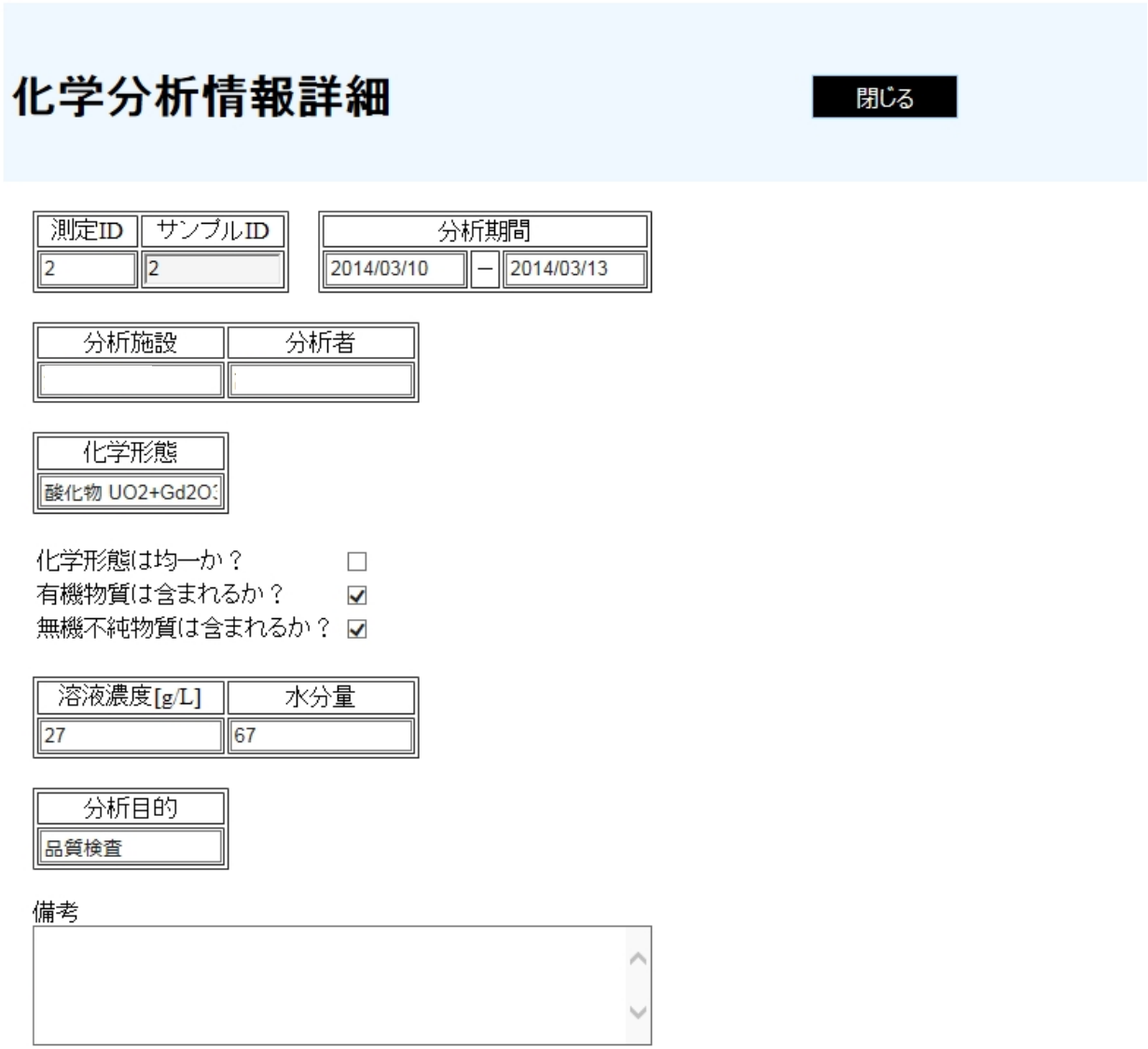
ここに示すデータは全て架空のものである。



- ［分析データ詳細画面（２ページ目）］：各データ詳細を表示可能。

ページ27

ここに示すデータは全て架空のものである。



- ［化学分析情報詳細画面］：化学形態、均一性など。

ページ28

ここに示すデータは全て架空のものである。

- ［物理分析情報詳細画面］：密度、比表面積等。

ページ29

ここに示すデータは全て架空のものである。

- ［サンプル形状情報詳細画面］

- ［分析データ詳細画面（３ページ目）］：各データ詳細を表示可能。

This is a blank page.

国際単位系（SI）

表１．SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表２．基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m^2
体積	立法メートル	m^3
速さ，速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s^2
波数	毎メートル	m^{-1}
密度，質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m^3
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m^2
比体積	立方メートル毎キログラム	m^3/kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m^2
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度(a)，濃度	モル毎立方メートル	mol/m^3
質量濃度	キログラム毎立法メートル	kg/m^3
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m^2
屈折率(b)	（数字の） 1	1
比透磁率(b)	（数字の） 1	1

(a) 量濃度（amount concentration）は臨床化学の分野では物質濃度（substance concentration）ともよばれる。
(b) これらは無次元量あるいは次元１をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の１は通常は表記しない。

表３．固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン(b)	rad	1 (b)	m/m
立体角	ステラジアン(b)	sr(c)	1 (b)	m^2/m^2
周波数	ヘルツ(d)	Hz		s^{-1}
力	ニュートン	N		m kg s^{-2}
圧力，応力	パスカル	Pa	N/m^2	m^{-1} kg s^{-2}
エネルギー，仕事，熱量	ジュール	J	N m	m^2 kg s^{-2}
仕事率，工率，放射束	ワット	W	J/s	m^2 kg s^{-3}
電荷，電気量	クーロン	C		s A
電位差（電圧），起電力	ボルト	V	W/A	m^2 kg s^{-3} A^{-1}
静電容量	ファラド	F	C/V	m^{-2} kg^{-1} s^4 A^2
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m^2 kg s^{-3} A^{-2}
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V	m^{-2} kg^{-1} s^3 A^2
磁束	ウエーバ	Wb	Vs	m^2 kg s^{-2} A^{-1}
磁束密度	テスラ	T	Wb/m^2	kg s^{-2} A^{-1}
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m^2 kg s^{-2} A^{-2}
セルシウス温度	セルシウス度(e)	℃		K
光束	ルーメン	lm	cd sr(c)	cd
照度	ルクス	lx	lm/m^2	m^{-2} cd
放射性核種の放射能(f)	ベクレル(d)	Bq		s^{-1}
吸収線量，比エネルギー分与，カーマ	グレイ	Gy	J/kg	m^2 s^{-2}
線量当量，周辺線量当量，方向性線量当量，個人線量当量	シーベルト(g)	Sv	J/kg	m^2 s^{-2}
酸素活性	カタール	kat		s^{-1} mol

(a)SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
(b)ラジアンとステラジアンは数字の１に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の１は明示されない。
(c)測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
(d)ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。
(e)セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。
(f)放射性核種の放射能（activity referred to a radionuclide）は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
(g)単位シーベルト（PV,2002,70,205）についてはCIPM勧告2（CI-2002）を参照。

表４．単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘度	パスカル秒	Pa s	m^{-1} kg s^{-1}
力のモーメント	ニュートンメートル	N m	m^2 kg s^{-2}
表面張力	ニュートン毎メートル	N/m	kg s^{-2}
角速度	ラジアン毎秒	rad/s	m m^{-1} s^{-1}=s^{-1}
角加速度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s^2	m m^{-1} s^{-2}=s^{-2}
熱流密度，放射照度	ワット毎平方メートル	W/m^2	kg s^{-3}
熱容量，エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m^2 kg s^{-2} K^{-1}
比熱容量，比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m^2 s^{-2} K^{-1}
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	m^2 s^{-2}
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s^{-3} K^{-1}
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m^3	m^{-1} kg s^{-2}
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m kg s^{-3} A^{-1}
電荷密度	クーロン毎立方メートル	C/m^3	m^{-3} sA
表面電荷	クーロン毎平方メートル	C/m^2	m^{-2} sA
電束密度，電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m^2	m^{-2} sA
誘電率	ファラド毎メートル	F/m	m^{-3} kg^{-1} s^4 A^2
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s^{-2} A^{-2}
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	m^2 kg s^{-2} mol^{-1}
モルエントロピー，モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m^2 kg s^{-2} K^{-1} mol^{-1}
照射線量（X線及びγ線）	クーロン毎キログラム	C/kg	kg^{-1} sA
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s	m^2 s^{-3}
放射強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m^4 m^{-2} kg s^{-3}=m^2 kg s^{-3}
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	$W/(m^2$ sr)	m^2 m^{-2} kg s^{-3}=kg s^{-3}
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m^3	m^{-3} s^{-1} mol

表５．SI 接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10^{24}	ヨタ	Y	10^{-1}	デシ	d
10^{21}	ゼタ	Z	10^{-2}	センチ	c
10^{18}	エクサ	E	10^{-3}	ミリ	m
10^{15}	ペタ	P	10^{-6}	マイクロ	μ
10^{12}	テラ	T	10^{-9}	ナノ	n
10^{9}	ギガ	G	10^{-12}	ピコ	p
10^{6}	メガ	M	10^{-15}	フェムト	f
10^{3}	キロ	k	10^{-18}	アト	a
10^{2}	ヘクト	h	10^{-21}	ゼプト	z
10^{1}	デカ	da	10^{-24}	ヨクト	y

表６．SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1h =60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	’	1’=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	”	1”=(1/60)’=(π/648000) rad
ヘクタール	ha	$1ha=1hm^2=10^4m^2$
リットル	L, l	$1L=1l=1dm^3=10^3cm^3=10^{-3}m^3$
トン	t	$1t=10^3$ kg

表７．SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位で表される数値
電子ボルト	eV	$1eV=1.602\ 176\ 53(14)\times10^{-19}J$
ダルトン	Da	$1Da=1.660\ 538\ 86(28)\times10^{-27}kg$
統一原子質量単位	u	1u=1 Da
天文単位	ua	$1ua=1.495\ 978\ 706\ 91(6)\times10^{11}m$

表８．SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100kPa=10^5Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10^{-10}m
海里	M	1 M=1852m
バーン	b	$1\ b=100fm^2=(10^{-12}cm)2=10^{-28}m^2$
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的な関係は、対数量の定義に依存。
ベル	B	
デシベル	dB	

表９．固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
エルグ	erg	$1\ erg=10^{-7}$ J
ダイン	dyn	$1\ dyn=10^{-5}$N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm^{-2}=0.1Pa s
ストークス	St	1 St =$1cm^2$ s^{-1}=$10^{-4}m^2$ s^{-1}
スチルブ	sb	1 sb =1cd cm^{-2}=10^4cd m^{-2}
フォト	ph	1 ph=1cd sr cm^{-2} 10^4lx
ガル	Gal	1 Gal =1cm s^{-2}=$10^{-2}ms^{-2}$
マクスウェル	Mx	1 Mx = 1G cm^2=10^{-8}Wb
ガウス	G	1 G =1Mx cm^{-2} =10^{-4}T
エルステッド(c)	Oe	1 Oe≙ $(10^3/4\pi)$A m^{-1}

(c) ３元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「 ≙ 」は対応関係を示すものである。

表10．SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位で表される数値
キュリー	Ci	$1\ Ci=3.7\times10^{10}Bq$
レントゲン	R	$1\ R = 2.58\times10^{-4}C/kg$
ラド	rad	$1\ rad=1cGy=10^{-2}Gy$
レム	rem	$1\ rem=1\ cSv=10^{-2}Sv$
ガンマ	γ	1 γ =1 nT=10-9T
フェルミ		1フェルミ=1 fm=10-15m
メートル系カラット		1メートル系カラット = 200 mg = 2×10-4kg
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カロリー	cal	1cal=4.1858J（「15℃」カロリー），4.1868J（「IT」カロリー）4.184J（「熱化学」カロリー）
ミクロン	μ	1 μ =1μm=10^{-6}m

（第8版，2006年改訂）