

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 10 日現在

機関番号：14301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24760714

研究課題名(和文) 使用済核燃料中の核種非破壊分析への中性子共鳴吸収法の適用に関する研究

研究課題名(英文) Study on application of neutron resonance densitometry to non-destructive assay for spent nuclear fuel

研究代表者

堀 順一 (Hori, Jun-ichi)

京都大学・原子炉実験所・助教

研究者番号：30362411

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、パルス中性子源を用いた核種非破壊分析法として、従来の透過中性子法と共鳴分光法を組み合わせたself-indication法という新たな分析法を考案し、その実証試験及び評価を行った。実証試験によって核種の実効厚さを3%以内で決定できることを示した。さらに、不純物が含まれる使用済核燃料のような混合試料に対しても、本手法を適用すれば対象核種の共鳴吸収量を高感度に測定できることを示した。

研究成果の概要(英文)：In this study, we proposed a new concept of the "self-indication method" combined with neutron resonance transmission analysis and neutron resonance capture analysis for non-destructive assay using a pulsed neutron source. It was confirmed that the effective thickness of target nuclide can be determined within 3% accuracy by experimental validation. Moreover, the results indicated that the self-indication method has a high-sensitivity for assaying target nuclide in a mixture material such as spent nuclear fuels.

研究分野：核データ

キーワード：核燃料物質 共鳴 パルス中性子 中性子飛行時間法 中性子捕獲ガンマ線

### 1. 研究開始当初の背景

使用済核燃料の再処理工場やウラン・プルトニウム混合酸化物(MOX)燃料加工工場等の核燃料関連施設から排出される放射性廃棄物には、多種の放射性核種が含まれている。燃料体中に含まれる核種を定量することは、燃料の再処理工程、燃料製造工程及び廃棄物管理工程における臨界管理、保証措置上の管理、廃棄物管理を適切に行うために非常に重要な課題である。分析対象核種は、核分裂性核種(Pu-239, U-235, 238等)、マイナーアクチノイド(MA)核種(Np-237, Am-241, 243等)、長寿命核分裂生成(LLFP)核種(I-129, Tc-99等)のように多岐に渡る。そのため精密な核種分析を行うときは、サンプリングによる破壊分析測定を行うことが一般的であるが、適時性の観点からは測定対象に有意な物理的又は化学的な影響を与えない非破壊分析測定法の開発が必要とされている。

### 2. 研究の目的

そこで本研究では、中性子共鳴吸収を用いた非破壊分析法の開発を行った。熱外中性子エネルギー領域では、核種固有の共鳴エネルギーを有する中性子が原子核に強く吸収され複合核をつくる共鳴現象が起こり、中性子全断面積は共鳴エネルギー近傍で極大値を持つ。核種によっては中性子共鳴吸収断面積は数万 barn にも及ぶものがあり、一般的な中性子散乱断面積が数 barn 程度であることに比べると、非常に高い感度を有する手法である。透過中性子のエネルギースペクトルを中性子飛行時間分析法(TOF法)によって測定すると、TOF スペクトル上の共鳴エネルギーに谷間が形成され、共鳴吸収量から対象核種の含有量を定量することが可能になる。また、共鳴吸収と共に放出される捕獲ガンマ線も同時に測定した場合、TOF スペクトル上の共鳴エネルギーにピークが形成され、共鳴ピーク面積から対象核種の含有量を定量することが可能となり、分析能力は更に向上する。透過中性子法と中性子共鳴吸収分光法を組み合わせた分析法を開発し、核燃料物質又は模擬物質を用いた実験的検証を行うことにより、定量精度及び適用範囲を明らかにすることを目的とした。

### 3. 研究の方法

本研究では京都大学原子炉実験所の電子線形加速器(京大炉ライナック)を用いて検証実験を行った。京大炉ライナックでは、約30MeVまで加速したパルス電子ビームを重金属ターゲットに照射し、ターゲット周りを軽水減速材で取り囲むことにより白色中性子場を生成する。発生したパルス中性子ビームは、直径24mmにコリメートされ、中性子飛行管を通してターゲットから約12m離れた位置の被検体に導かれた。

本研究では被検体から放出される中性子捕獲ガンマ線測定のための検出器を新たに

整備し、透過中性子と同時に即発ガンマ線を測定するためのシステムを構築した。研究を進める中で、透過中性子法に中性子共鳴分光法を組み合わせた self-indication 法という分析法を新たに考案し、その実証試験を行った。

self-indication 法とは、複数核種から成る被検体に対して、中性子ビームの下流側に測定対象核種から成る高純度の indicator を設置し、indicator から放出される中性子捕獲ガンマ線をリアルタイムで測定することによって、間接的に透過中性子のエネルギー分布を測定する方法である。本手法を適用することにより、測定対象核種の共鳴エネルギーの中性子を選択的に高感度で測定することが可能となるため、従来の透過中性子測定に比べ信号対ノイズ比が大きく改善し、多数の共鳴核種が存在している混合核種から成る被検体の分析に有効であることが期待される。

検証実験は、模擬物質として金、銀の箔状試料から成る被検体、及び、天然ウラン板と密封 MA 試料(Np-237, Am-243)を重ね合わせた被検体を用いて行った。測定は透過中性子測定と共に indicator からの捕獲ガンマ線を TOF 法によって測定することによって行った。主要な共鳴領域に対する計数率の変化から核種の実効的な厚さを定量した。

また、モンテカルロ・シミュレーション計算により、BWR-MOX ペレットを模擬して self-indication 法を適用した場合の I-129 の定量の可能性、及び、核燃料物質定量の適用範囲についての検討を行った。

### 4. 研究成果

#### (1) 模擬物質(金箔)を用いた検証実験

厚さの異なる金箔試料(10, 20, 30, 40, 50  $\mu\text{m}$ )に対して、透過中性子測定と indicator による捕獲ガンマ線測定を行い、金の 4.9eV 共鳴吸収量の変化からそれぞれの試料の厚さを非破壊で定量した。両手法によって得られた透過中性子 TOF スペクトルを図1に示す。図1から、self-indication 法を用いた測定では、従来の透過中性子法に比べて測定対象核種の共鳴近傍の検出感度が抑制されていることが分かる。厚さの測定値と真の厚さの関係を図2に示す。self-indication 法を用いた測定では3%以内の精度で厚さを定量できており、従来の透過中性子法と遜色ない定量能力を有することを実験によって確認した。次に、被検体に不純物核種が入っている場合を模擬するために、厚さ10 $\mu\text{m}$ の金箔に不純物として厚さ50 $\mu\text{m}$ の銀箔を重ね合わせた試料に対して実験を行った。このときの透過中性子数の変化量を縦軸、中性子 TOF を横軸として表したグラフを図3に示す。金の 4.9eV 共鳴の近傍には銀の 5.0eV 共鳴による計数率の変化が観測されているが、self-indication 法を適用した場合、従来の透過中性子法に比べて不純物の銀の影響が

大幅に低減されていることを確認した。本結果は、Self-indication 法は、不純物が混在する被検体の非破壊定量に有力な手法であることを示している。

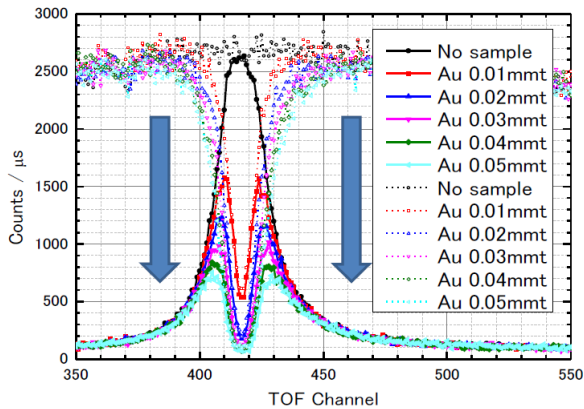


図 1 金の 4.9eV 共鳴近傍の TOF スペクトルの比較

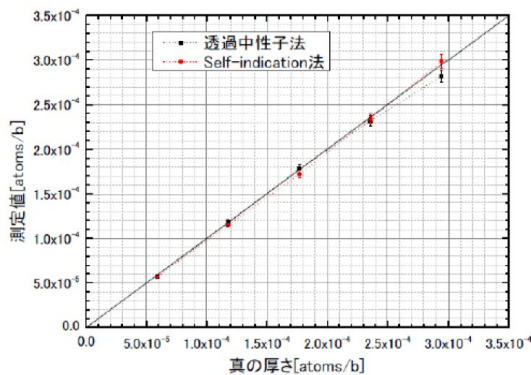


図 2 金箔に対する厚さの定量結果の比較

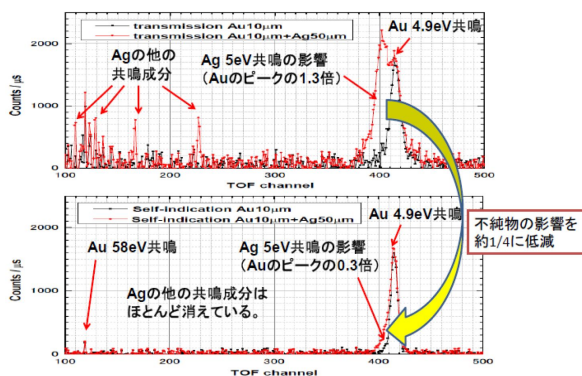


図 3 混合試料に対する透過中性子 TOF スペクトルの計数率変化の比較

(2) 天然ウラン試料を用いた検証実験

10×20mm, 重量 5.8g の天然ウラン板に対する透過中性子 TOF スペクトルを、透過中性子法及び self-indication 法を用いて測定した。indicator としては測定対象試料と同一の寸法の天然ウラン板を用いた。

不純物として MA 核種が含まれている状況を模擬するために、Np-237 密封試料(1g), Am-243 密封試料(130mg)を天然ウラン板に積

層した混合試料についても TOF スペクトルを測定した。なお、本実験で用いた密封 MA 試料は直径 30mm のアルミニウム円板容器に封入されたものを用いた。

透過中性子法及び self-indication 法によって測定された中性子透過 TOF スペクトルを図 4 に示す。図 4 では、U-238 の主要な共鳴吸収による凹みが観測されている(青線)が、不純物として MA 核種が混入することによって、Np-237, Am-243 の共鳴吸収による凹みも重なり合って観測されている(赤線)。また、不純物核種の共鳴以外の吸収の寄与によって、赤線の TOF スペクトルが青線に比べて全体的に低くなっていることが分かる。一方、self-indication 法による測定では、図 5 に示すように不純物核種の混在の有無に寄らず U-238 の共鳴部分には同様の凹みが観測されており、不純物核種の影響をほとんど受けずに測定対象核種による共鳴吸収量を定量できることが分かった。

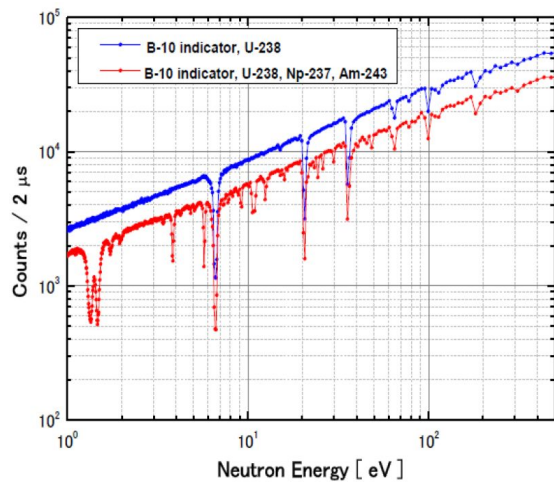


図 4 U-238 試料に MA 核種が混在する場合としない場合の透過中性子法による TOF スペクトルの比較

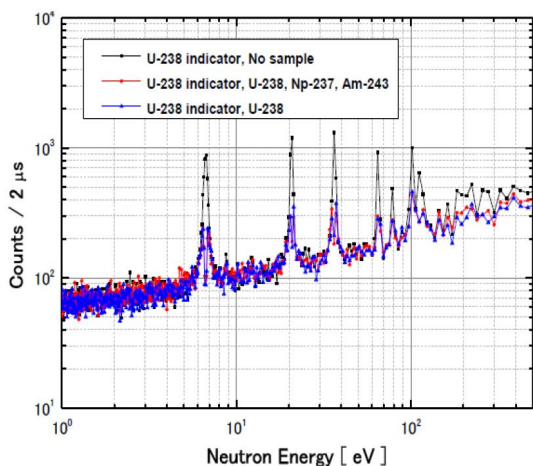


図 5 U-238 試料に MA 核種が混在する場合としない場合の self-indication 法による TOF スペクトルの比較

### (3) self-indication 法の応用に向けた予備計算

self-indication 法による非破壊分析法の有効性を検証するために、数値計算を用いて 0~50 GWd/t まで燃焼した BWR の MOX 燃料ペレットを対象として、indicator 内での中性子束と測定対象核種との反応率を求めた。計算結果の一例として、燃焼度 20GWd/t の MOX 燃料に対して予測される透過中性子スペクトルと self-indication 法による I-129 の捕獲収率の比較を図 6 に示す。図中の緑破線の領域に I-129 の 41eV, 73eV, 75eV 及び 97eV の共鳴ピークが観測されている。本計算結果から、従来の透過中性子法では識別が困難な核種であった I-129 による共鳴吸収を、本手法を用いれば明確に観測可能であることが明らかになった。

また、MOX 燃料中に含まれる Pu-239 の定量に self-indication 法を用いた場合の適用範囲について、数値計算で評価を行ったところ、反応断面積の大きい共鳴と小さい共鳴を組み合わせて定量を行えば、 $10^{-5} \sim 10^{-2}$  (1/b) の実効厚さの範囲で定量が可能になる見通しが得られた。

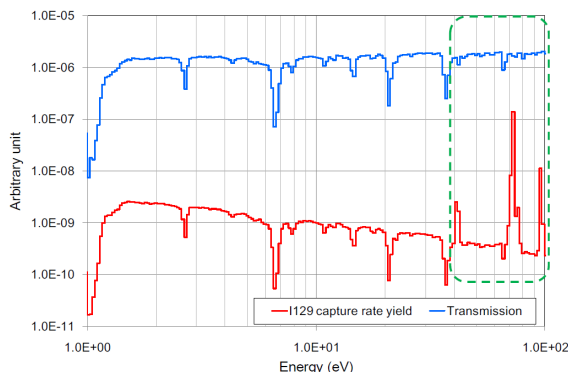


図6 MOX 燃料に対して予測される透過中性子スペクトルと self-indication 法による I-129 の捕獲収率の比較

### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計2件)

J. Hori, T. Sano, Y. Takahashi, H. Unesaki, K. Nakajima, “Development of Nondestructive Assay to Fuel Debris of Fukushima Daiichi NPP (1): Experimental Validation for the Application of a Self-Indication Method,” K. Nakajima (Ed.), *Nuclear Back-end and Transmutation Technology for Waste Disposal*, Springer Tokyo Heidelberg New York Dordrecht London, pp. 21-29 (2014).  
査読有、DOI:10.1007/978-4-431-55111-9

T. Sano, J. Hori, Y. Takahashi, H. Unesaki,

K. Nakajima, “Development of Nondestructive Assay to Fuel Debris of Fukushima Daiichi NPP (2): Numerical Validation for the Application of a Self-Indication Method,” K. Nakajima (Ed.), *Nuclear Back-end and Transmutation Technology for Waste Disposal*, Springer Tokyo Heidelberg New York Dordrecht London, pp. 31-37 (2014).  
査読有、DOI:10.1007/978-4-431-55111-9

[学会発表](計2件)

堀 順一、佐野 忠史、高橋 佳之、宇根崎 博信、中島 健：中性子共鳴吸収を用いた核種定量のための非破壊分析法の開発(1)Self-indication 法の適用性評価のための基礎実験：日本原子力学会 2013 年春の大会予稿集 I34, 2013 年 3 月 27 日、近畿大学(大阪府)

佐野 忠史、堀 順一、高橋 佳之、宇根崎 博信、中島 健：中性子共鳴吸収を用いた核種定量のための非破壊分析法の開発(2)Self-indication 法の応用に向けた予備計算：日本原子力学会 2013 年春の大会予稿集 I35, 2013 年 3 月 27 日、近畿大学(大阪府)

### 6. 研究組織

(1)研究代表者

堀 順一 (HORI JUN-ICHI)

京都大学・原子炉実験所・助教

研究者番号：3 0 3 6 2 4 1 1

(2)研究分担者

該当なし

(3)連携研究者

該当なし