

令和 3 年 6 月 16 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2017～2020

課題番号：17K07012

研究課題名（和文）燃料デブリ分析に向けた核種濃度分析法の高度化

研究課題名（英文）Improvement of nuclear densitometry technique for identifying the fuel debris

研究代表者

堀 順一（Hori, Jun-ichi）

京都大学・複合原子力科学研究所・准教授

研究者番号：30362411

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,700,000円

研究成果の概要（和文）：燃料デブリ中の核燃料物質を定量するための非破壊分析法として、Self-indication法の適用について研究開発を行った。京都大学複合原子力研究所のライナック施設パルス中性子源を用いて、濃縮度の異なるウラン試料を用いて検証実験を行ったところ、対象核種の共鳴吸収によるピークの計数率の変化と核種濃度の相関性を明らかにした。

さらに、中性子輸送計算によって、適切な厚さのフィルターを通した白色中性子ビームを用いれば、定常中性子源でも計数率の変化量から核燃料物質の含有濃度を推定できる可能性を示唆する結果を得るとともに、中性子イメージングにおいても核種識別可能であることを実験的に示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究ではSelf-indication法が核燃料物質の非破壊分析に有効な手段であることを実験と計算の両面から実証することができた。さらに、Self-indication法が特定の核種に感度を持たせることができる特徴を生かし、定常中性子源を用いた中性子イメージングによっても核種識別できる見通しを得たことにより、福島第一原子力発電所の廃止措置における燃料デブリの核燃料物質の適切な計量管理にも生かすことのできる実用性のある分析手法を示すことが出来たため、その社会的意義は大きいと言える。

研究成果の概要（英文）：We have applied the self-indication method to the non-destructive technique to assay a nuclear fuel material in fuel debris. We carried out the experimental validation for the application of a self-indication method at KURNS-LINAC. The correlation between the change of counting rate and areal density was confirmed. Moreover, it was shown that the estimation of the areal density and the neutron imaging for distinguish the nuclear material using a steady neutron source are feasible.

研究分野：核データ

キーワード：核燃料物質 非破壊分析 共鳴 Self-indication法 中性子イメージング

## 1. 研究開始当初の背景

東日本大震災に伴って起きた福島第一原子力発電所の事故によって、1~3号機では炉心燃料の一部が熔融し、燃料ペレット、被覆管、制御材等の成分が不均一に混合して再度固化した燃料デブリが原子炉圧力容器下部及び原子炉格納容器内に存在していると思われる。今後廃止措置を進めるに当たり、取り出した燃料デブリ中の核燃料物質の計量管理には困難が予想される。燃料デブリは非常に線量が高いので、取り出した燃料デブリ中に含まれる核燃料物質の核種毎の分布状況を非破壊で迅速に分析する技術開発が求められる。

そのような要求に対して、中性子共鳴濃度決定法 (NRD 法: Neutron Resonance Densitometry) と呼ばれる手法が国内外で注目されている。本手法ではパルス中性子源を用いて透過中性子スペクトルを中性子飛行時間法 (TOF 法) によって測定することによって、核種固有の共鳴エネルギーで吸収された中性子量から核種毎の密度情報を導出する方法である。ところが本手法を廃止措置に適用するためには、燃料デブリ中に含まれる多種の不純物の影響を考慮した詳細な共鳴解析と大規模なパルス中性子源施設が必要になるため、非破壊分析技術の実用性を高めるための更なる研究開発が喫緊の課題となっていた。

そこで、燃料デブリに対する核燃料物質の非破壊分析に適した分析技術を開発するため、Self-indication 法に注目した。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を照射し、ビーム下流側に測定対象核種から成る高純度の indicator を設置し、indicator からの反応生成物を検出することによって、間接的に透過中性子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になるため、従来の透過中性子測定に比べて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試料の分析に有効であることが期待される。

## 2. 研究の目的

燃料デブリ分析に適した非破壊分析法を開発するために、Self-indication 法の適用に関する研究開発を実施した。本研究の目的は以下の3つである。

- (1) 核燃料物質に対してパルス中性子源を用いた Self-indication 法の適用試験を行うことによって、本分析手法の特性を把握する。
- (2) シミュレーションによって、汎用性のある定常中性子源を用いた場合においても、Self-indication 法が核種定量に有効であることを示す。
- (3) 模擬物質を用いた中性子イメージング実験を行うことによって、汎用性のある定常中性子源を用いた場合においても、Self-indication 法が核種分布測定に有効であることを示す。

## 3. 研究の方法

### (1) 核燃料物質を用いた Self-indication 法の適用試験

実験は京都大学複合原子力科学研究所電子線形加速器 (KURNS-LINAC) にて実施した。LINAC では、約 30MeV まで加速されたパルス電子ビームを水冷式 Ta ターゲットに照射し、制動 X 線の発生と共に ( $\gamma, n$ ) 反応を経て光中性子が得られる。Ta ターゲットはアルミニウム製円筒型容器内の中央部に設置し、これを取り巻く周囲の軽水を高速中性子の減速材として TOF 実験に使用している。軽水によって減速されたパルス中性子は中性子飛行管を通してコリメートされ、ターゲットから約 12m 離れた測定室に導かれる。被検体及び indicator は TOF ビームライン上に設置された。加速器の運転条件は、パルス幅を 100ns または 4 $\mu$ s、繰り返し周波数を 50Hz とした。

被検体には濃縮度の異なるウランアルミ合金を用いた。Indicator には天然ウラン板または濃縮ウラン電着膜を用いた。Indicator として天然ウラン (約 5g) を用いた測定では、indicator を 12 台の Bi<sub>4</sub>Ge<sub>3</sub>O<sub>12</sub> (BGO) 検出器で取り囲み、indicator から放出される中性子捕獲ガンマ線のタイミング信号から TOF スペクトルを取得した。Indicator として濃縮ウラン電着膜 (約 10 $\mu$ g) を用いた測定では、indicator からの核分裂生成物をフィッションチェンバーで検出したタイミング信号から TOF スペクトルを取得した。

測定は被検体を indicator の上流に置いた場合と置かない場合のそれぞれについて行い、TOF スペクトルの比較から indicator での共鳴吸収ピークの減衰率を測定することによって、被検体による共鳴吸収量を概算し、被検体中に含まれる測定対象核種の面密度との相関性取得了した。

### (2) シミュレーションによる解析

シミュレーション計算はモンテカルロ・シミュレーション粒子輸送計算コード MCNP-5 を用いて行った。燃料デブリ中に含まれる核燃料物質のうち重要度の高い Pu-239 の分析を行うための最適な条件を検討した。計算では、直径 10cm の円柱型の軽水モデレータの中央部に点線源を配置し、核分裂中性子を発生させた。更に軽水モデレータ周りには厚さ 100 $\mu$ m の Gd フィルターを配置した。更に線源から 1m 離れた場所に被検体、更に 10cm 離れた場所に indicator として

厚さ  $1 \times 10^{-5}$  (b) の Pu-239 箔を配置した。被検体中の Pu-239 の厚さは  $1 \times 10^{-5} \sim 10^{-2}$  (b) の範囲で変化をさせたときの indicator での反応率の変化を計算によって求めた。さらに、従来の透過中性子測定法を適用した場合の中性子スペクトル変化も求めた。

### (3) 模擬物質を用いた中性子イメージング実験

中性子イメージングに self-indication 法の原理を適用することによって、汎用性のある定常中性子源によっても核種識別できることを検証するための実験を行った。実験は KURNS-LINAC にて実施した。直径 5cm にコリメートされた中性子ビームを被検体に照射し、透過中性子を GEM 型 2 次元中性子検出器を用いて測定した。被検体は、ビーム軸を中心に上流から見て右上に In 板 (0.1mmt)、右下に Ag 板 (1mmt)、左下に Ta 板 (2mmt) を配置した。加速器の運転条件は、パルス幅  $4\mu\text{s}$ 、繰り返し周波数 50Hz、電子の加速エネルギー約 30MeV、平均ビーム電流約  $100\mu\text{A}$  とした。測定は被検体を置かない測定と置いた測定をそれぞれ行った。被検体を置いた測定については、ビーム上流に Cd (0.5mmt) フィルターを置いた測定と Cd (0.5mmt) と In (1mmt) のフィルターを置いた測定もそれぞれ行った。

## 4. 研究成果

### (1) 核燃料物質を用いた Self-indication 法の適用実験

Indicator として天然ウラン板を用いた場合、被検体であるウランアルミニウム合金の U-235 濃度が増えるにつれて共鳴吸収ピーク面積が減少していく様子が観測された。このときのピーク面積の減少割合をあらかじめ計算で求めた計量曲線と比較したところ、劣化ウラン (DU) においては良い一致を示したが、一部の共鳴では、高濃縮ウラン (HU) では差異が見られた。この現象は不純物である U-235 の核分裂の共鳴が測定対象核種である U-238 の共鳴とのオーバーラップが原因で生じていることが明らかとなった。

Indicator として高濃縮ウラン電着膜を用いた場合に得られた TOF スペクトルの一例を図 1 に示す。U-235 の 1.1, 3.1, 7.0, 9.7eV 共鳴による吸収が観測された。上流に高濃縮ウランアルミニウム合金を置いた場合は、置かない場合に比べて熱外中性子領域では約 15% の計数率の減少が見られることを確認した。このように、僅かに  $10\mu\text{g}$  程度の indicator であっても、self-indication 法を適用すれば、厚さ  $1.5 \times 10^{-5}$  (b) の U-235 の被検体に対して有意な計数率の変化が観測可能であることを実験的に確かめることができた。

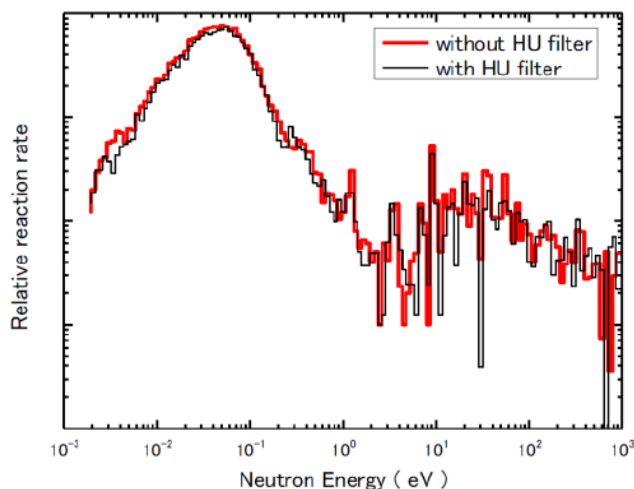


図 1 上流に高濃縮ウラン (HU) アルミニウム合金がある場合とない場合の TOF スペクトルの比較 (U-235 電着膜を indicator として使用)

### (2) シミュレーションによる解析

軽水モデレータ周りに Gd フィルターを置いた場合と置かない場合の中性子スペクトルの比較を、JENDL-4.0 から引用した Pu-239 の断面積データと共に図 2 に示す。図 2 のように厚さ 100mm の Gd フィルターを設置することによって、Pu-239 の第一共鳴の計数率変化を際立たせることが可能である。

厚さの異なる Pu-239 被検体を透過した中性子スペクトルの比較を図 3 に、indicator における反応率の中性子エネルギー依存性を図 4 に示す。

従来の透過中性子スペクトル測定に比べて、self-indication 法を用いた測定の方が Pu-239 の面密度に対する感度が大きいことが分かる。透過中性子数と indicator での反応数の積分量と被検体中の Pu-239 の面密度の関係を図 5 に示す。従来の測定法に比べて self-indication 法では積分量の変化割合が急激であり、面密度  $1 \times 10^{-1}$  (b) の面密度に対しては、積分量の変化の感度が約 1 桁上回ることが分かった。

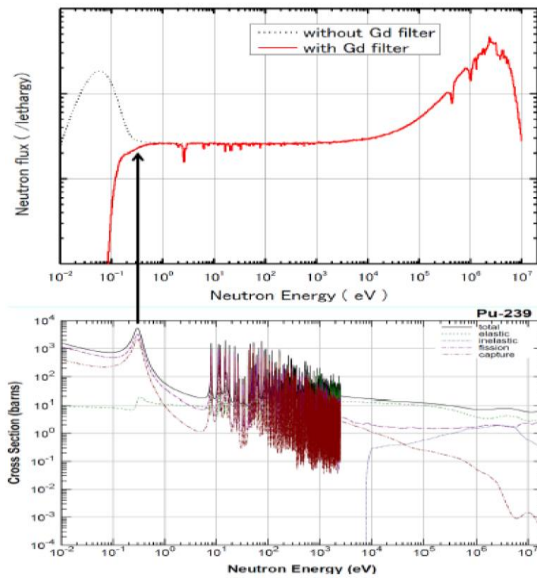


図2 シミュレーション計算で求めたモデレータからの中性子スペクトルの比較

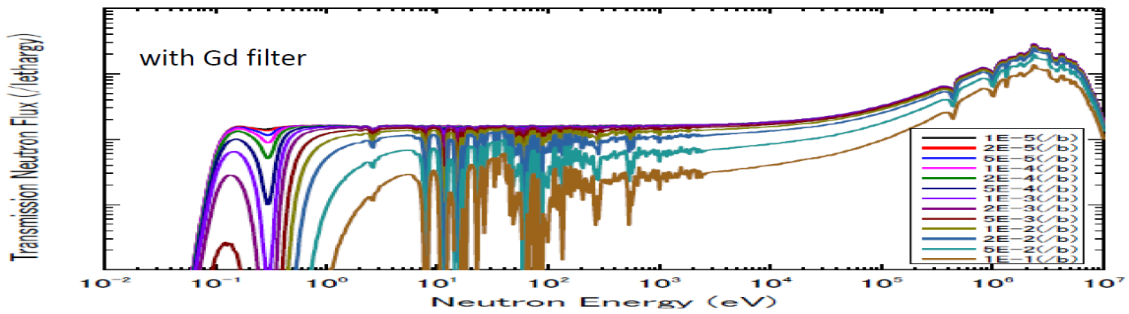


図3 厚さの異なる Pu-239 被検体を透過した中性子スペクトルの比較

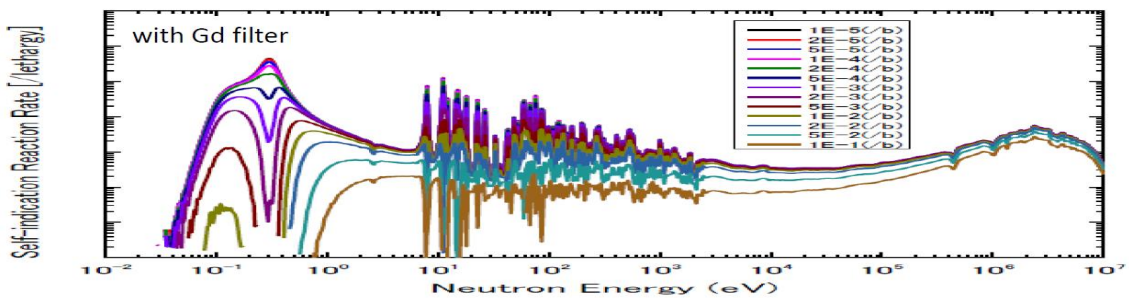


図4 厚さの異なる Pu-239 被検体を通過した中性子による indicator における反応率の比較

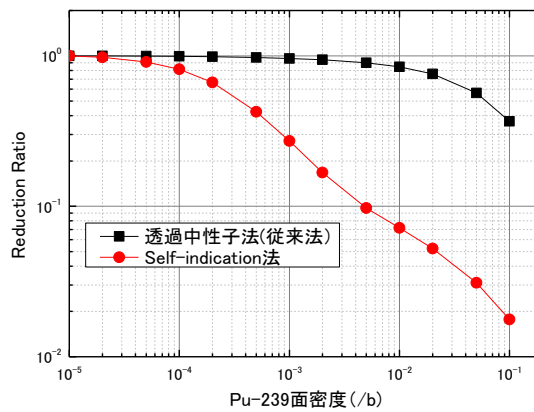


図5 透過中性子法と self-indication 法の積分量変化の比較



### (3) 模擬物質を用いた中性子イメージング実験

被検体を置いた測定に対して、in-115 の 1.457eV 共鳴領域にゲートをかけて得られた 2 次元透過画像を図 6 に示す。右上に In 成分が明瞭に現れており、これは従来の TOF 法を用いた核種識別能力を示す。一方、Cd フィルターを置いた測定と Cd+In フィルターを置いた測定の透過中性子数の比から TOF 情報を用いずに算出した 2 次元透過画像を図 7 に示す。図 6 に比べると In とそれ以外の核種のコントラストは劣るものの、In 成分を識別できることが分かった。この結果は、Cd フィルターによって熱中性子成分を除去し、In フィルターによってあらかじめ In による共鳴吸収を飽和させることで、In と他の核種の共鳴吸収の違いを際立たせることができるため、TOF 情報を使わなくても核種識別が可能であることを示唆している。

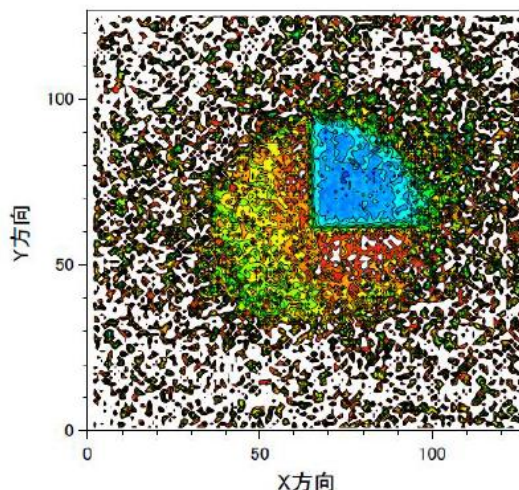


図 6 In 共鳴にゲートをかけて得られた 2 次元透過画像

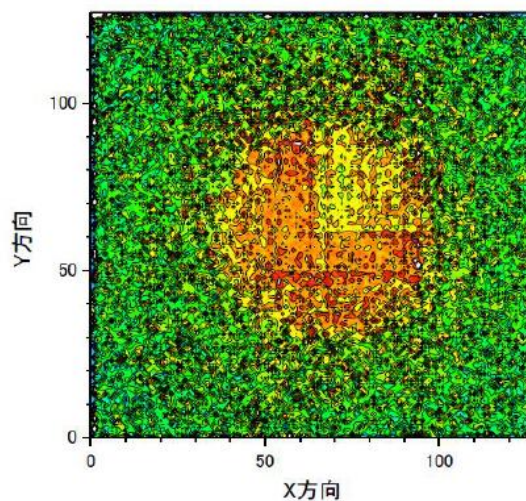


図 7 TOF 情報を用いずに取得した 2 次元透過画像

以上の研究から、self-indication 法は indicator を適切に選択すれば核燃料物質の非破壊定量に有効な手法であり、熱中性子成分を適切なフィルターで除去すれば、TOF 情報を用いずに検出されるイベント数の変化から、被検体中に含まれる測定対象核種の面密度を概算する見通しを得た。さらに、測定対象核種をフィルターとして活用すれば、定常中性子ビームの 2 次元透過画像から核種弁別が可能であることを示した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 堀 順一、佐野 忠史、高橋 佳之、八島 浩、李 在洪
2. 発表標題 Self-indication法を用いた中性子共鳴濃度測定の高度化
3. 学会等名 日本原子力学会2019年秋の大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 堀 順一、佐野 忠史、高橋 佳之、八島 浩
2. 発表標題 定常中性子源を用いたSelf-indication法の核物質検知への適用性研究
3. 学会等名 日本原子力学会2020年春の年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Jun-ichi Hori, Tadafumi Sano, Yoshiyuki Yakahashi, Daisuke Ito, Jaehong Lee, Naoya Abe, Ken Nakajima
2. 発表標題 Improvement of a Non-destructive Nuclide Assay using a Self-indication Method
3. 学会等名 IEEE/NSS 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
連携研究者	佐野 忠史  (Sano Tadafumi)  (10523152)	近畿大学・原子力研究所・准教授    (34419)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
連携研究者	高橋 佳之  (Takahashi Yoshiyuki)  (40579273)	京都大学・複合原子力科学研究所・助教    (14301)	
連携研究者	八島 浩  (Yashima Hiroshi)  (40378972)	京都大学・複合原子力科学研究所・助教    (14301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関