



## TRU廃棄物中Puの非破壊測定試験

大内 優 千葉 皓史  
落合 健一 鈴木 正啓

東海事業所環境工学開発部減容技術開発室

資料番号：61-12

Development of Techniques for Measuring  
Plutonium Contents in TRU Waste by NDA Methods

Masaru Ouchi Kohshi Chiba  
Kenichi Ochiai Masahiro Suzuki  
(Waste Consolidation Technology Development  
Section, Waste Management Technology  
Development Division, Tokai Works.)

MOX燃料製造施設等から発生するTRU廃棄物を合理的に管理するために、廃棄物中のTRU核種を極低濃度領域まで効率よく測定できる技術が必要である。このため非破壊測定技術開発として、パッシブガンマ法及び中性子法による実廃棄物を対象とした測定試験を行い、その適用性を評価したので報告する。

**Key Words:** TRU Waste, NDA Methods, Pu-Contents, Passive-γray, Passive Neutron, Neutron Detector, MOX Fuel, Calibration.

### 1. はじめに

核燃料サイクルの進展に伴いプルトニウム等の超ウラン元素を含む、いわゆるTRU廃棄物が発生する。このTRU廃棄物を処理・処分するに当ってはTRU核種濃度により区分し、合理的に処理・処分する考え方が原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会報告（60年10月）に示されている。区分管理を考えるに当っては、TRU廃棄物中のTRU核種を可能な限り除去することにより、その後の処理処分に係わる負担を軽減するための技術開発ならびに、廃棄物中に含まれるTRU核種及びその濃度を精度よく効率的に測定できる非破壊測定技術開発が重要となる。

東海事業所環境工学開発部減容技術開発室では、このような考え方に準じてMOX燃料製造施設等における将来の区分管理を目指した非破壊測定技術開発を進めており、廃棄物中に含まれるTRU核種か

ら放出されるγ線を測定対象とするパッシブγ法と中性子を測定対象とするパッシブ中性子法についての測定技術開発を昭和56年度より実施し、前者については実廃棄物による測定評価を経ては実証段階にある。また後者については、標準線源等による基礎試験を終え、実廃棄物による測定評価を行っている段階である。

本報告では、上記2法のこれまでの研究開発の成果について紹介する。

### 2. 試験方法

#### 2.1 試験装置と測定システム

MOX燃料製造施設から発生するTRU廃棄物中のPu量の測定手法の開発試験に用いた、パッシブγ線及び中性子測定装置システムのブロック図を図1及び図2に示す。

(1) パッシブγ線測定装置は、Ge(Li)検出器、多重

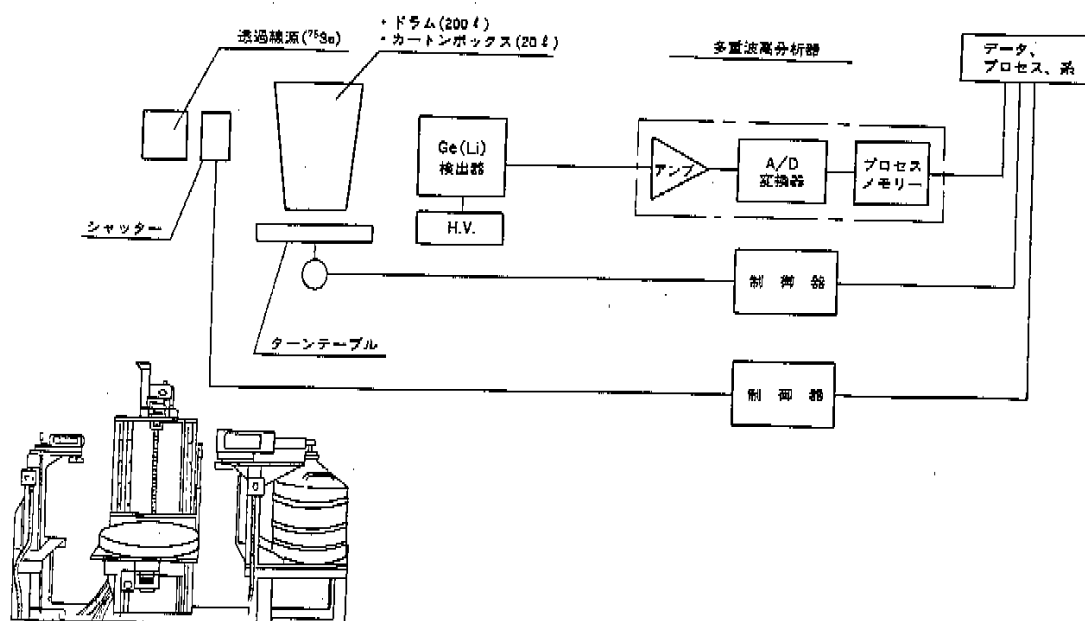


図1 パッシブγ線測定装置システムのブロックダイアグラム

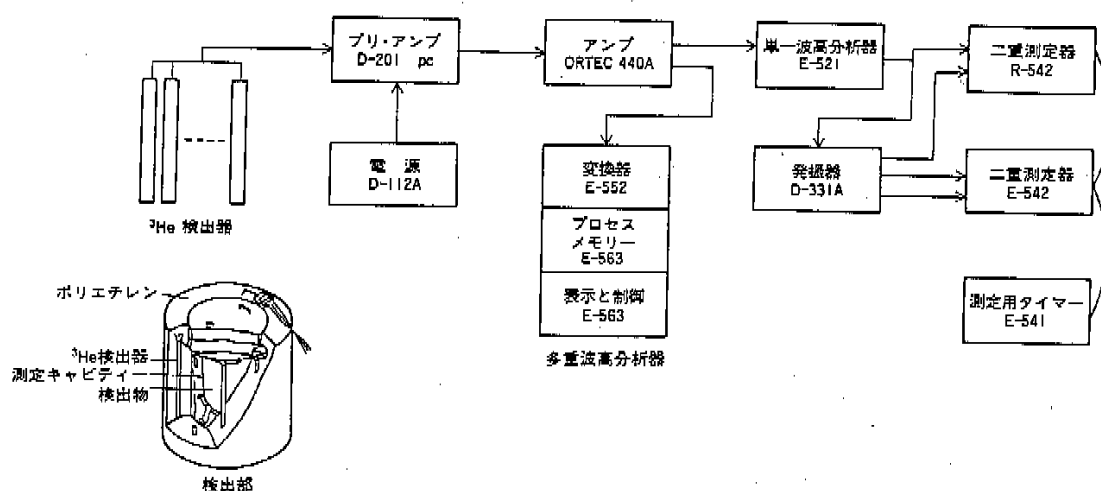


図2 パッシブ中性子測定装置システムのブロックダイアグラム

波高分析器、廃棄物を回転昇降するためのターンテーブル、廃棄物によるγ線吸収を補正するための透過線源等で構成されている。被測定物はターンテーブル上に載せ回転昇降させる、このとき廃棄物に含まれるTRU核種から放出されるγ線をGe(Li)検出器で検出し、これを波高分析器により分析、測定するものである。また、廃棄物自身のγ線吸収による補正が可能なように透過線源が設置されており、

自動的に吸収補正が行われるシステムとなっている。

(2) パッシブ中性子測定装置は測定キャビティ内に格納され、廃棄物に含まれる $^{240}\text{Pu}$ 等の自発核分裂で放出される自発中性子と $(\alpha, n)$ 反応により放出される中性子とがあるが、本システムは、これらを識別して計測できる測定回路を有するものである。

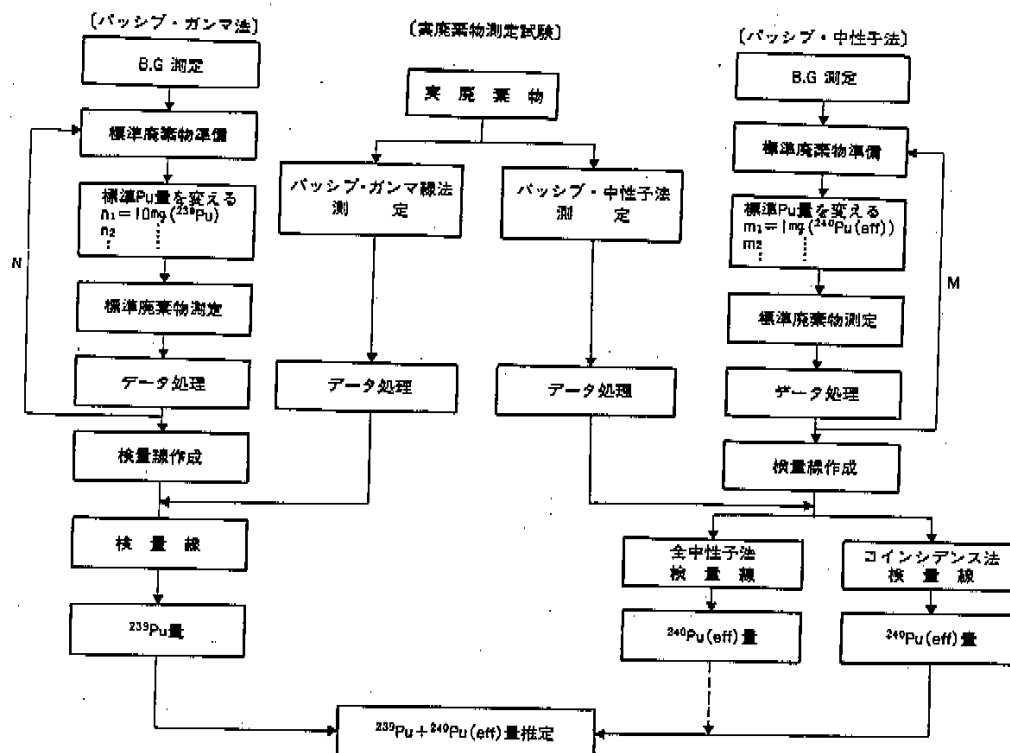


図3 TRU廃棄物中のPu量測定試験標準フロー

## 2.2 測定手順

TRU廃棄物中のPu量測定試験標準フローを図3に示す。

代表的なPu組成のPuO<sub>2</sub>粉末を一定秤量し、作成した標準Pu試料(表1)を廃棄容器に一定条件で配置し、標準廃棄物とした。これを廃棄物マトリックス、標準Pu試料のPu量、幾何学的配置等を変化させて、それぞれの測定装置でγ線または中性子線を測定し、パッシブγ法及びパッシブ中性子法について個別に検量線を作成した。なお、パッシブ中性子法については、測定キャビティから放出されるすべての中性子を対象とする全中性子計数法と自発核分裂中性子のみを測定する同時計数法について、それぞれ作成した。

実廃棄物測定試験は、MOX燃料製造に伴って発生した可燃性、不燃性(フィルタを含む)廃棄物で20ℓカートンボックスまたは200ℓ鋼製ドラムに収納したものを測定対象とし、それぞれの廃棄物をそれぞれの測定装置で測定し、検量線よりPu量を推定評価した。また、廃棄物種類、密度、廃棄物マトリッ

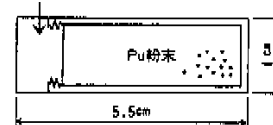
表1 標準Pu試料(一例)

| 標準Pu試料        |                             |                                |               |
|---------------|-----------------------------|--------------------------------|---------------|
| 標準Pu試料<br>No. | PuO <sub>2</sub> 重量<br>(mg) | <sup>240</sup> Pu(eff)<br>(mg) | 測定時間<br>(sec) |
| 1-3           | 1,000                       | 519.6                          | 500           |
| 1-2           | 668                         | 347.1                          | 500           |
| 2-8           | 912                         | 194.1                          | 500           |
| 3-1           | 117                         | 10.3                           | 1,000         |

| 備考 標準Pu組成 |                   |                   |                   |                   |                   |
|-----------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|
| 資料No.     | <sup>238</sup> Pu | <sup>239</sup> Pu | <sup>240</sup> Pu | <sup>241</sup> Pu | <sup>242</sup> Pu |
| 1         | 0.095%            | 40.546%           | 48.113%           | 5.789%            | 5.454%            |
| 2         | 0.112             | 76.771            | 20.383            | 2.104%            | 0.628             |
| 3         | 0.617             | 90.879            | 8.601             | 0.431             | 0.070             |

標準Pu収納瓶



クス等によるPu測定評価上の影響についても検討した。

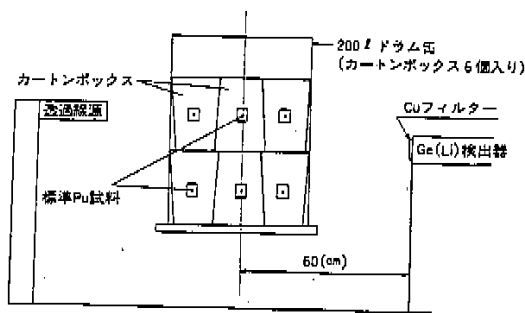


図4 ドラム缶測定

### 3. 試験結果

#### 3.1 パッシブγ線測定評価試験

##### (1) 検量線の作成

標準Pu試料（ $\text{PuO}_2$ で約10mg～4g）をカートンボックスの中心に配置したもの、ならびにこれを200ℓ鋼製ドラム缶に収納したものを図4のようにセットして $^{239}\text{Pu}$ からのγ線（413.7KeV）を計数し、標

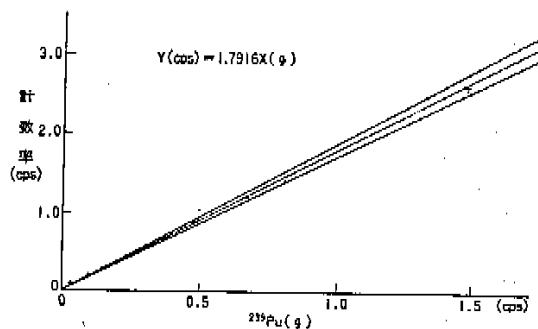


図5 カートンボックス用検量線

準Pu試料中の $^{239}\text{Pu}$ 量との関係を最少二乗法により求め、それぞれの検量線、図5、6を作成した。これら検量線の妥当性を確認するため解析プログラムで計算したPu量変動値を求めた。その値は、図7、8の通りであり、 $^{239}\text{Pu}$ 重量の標準値に対する測定値との差は重量が小さいほど大きくなっているが、これは統計的なバラツキによるものと考えられる。

##### (2) 廃棄物の吸収補正

廃棄物測定においては、廃棄容器及び廃棄物自身によるγ線吸収があり何らかの補正が必要となる。補正には、外部透過線源法と廃棄物密度による方法がある。本試験では、測定対象Pu同位体 $^{239}\text{Pu}$ から放出されるγ線のエネルギーに近いγ線を放出する $^{75}\text{Se}$ （401.0KeV）または $^{133}\text{Ba}$ （356.01KeV）を使用することとした。

##### (3) 実廃棄物測定

Pu同位体から放出されるγ線エネルギー吸収の小さい可燃性廃棄物を対象にカートンボックス約600ヶ、200ℓドラム缶収納物約75本についてそれぞれ測定し、含有Pu量を測定評価した。その結果を図9、

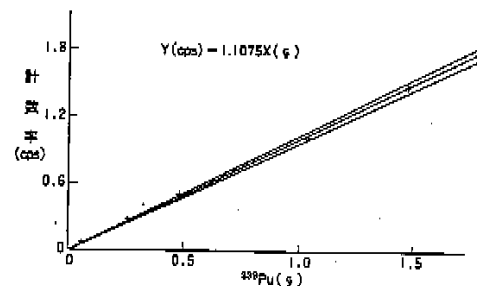


図6 200ℓドラム缶用検量線

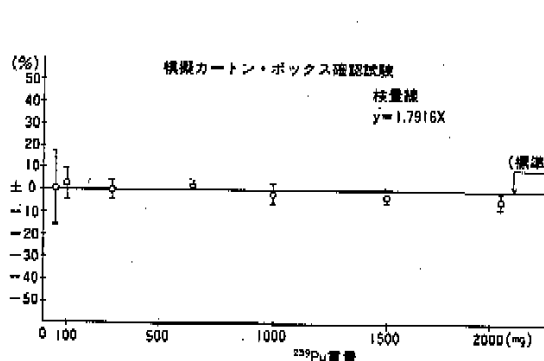


図7 標準値に対する測定値の差

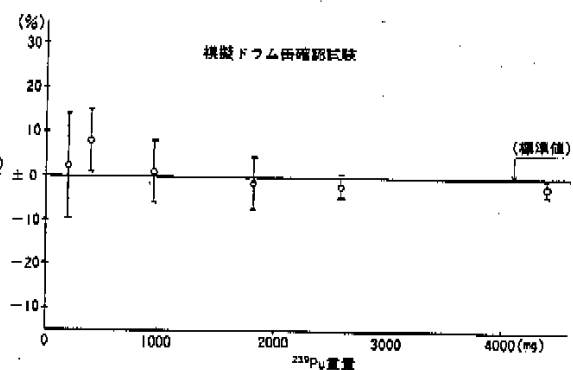
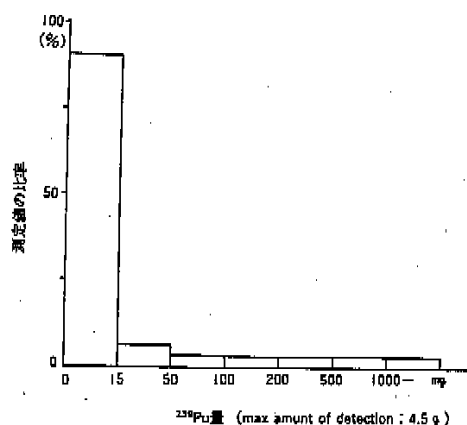
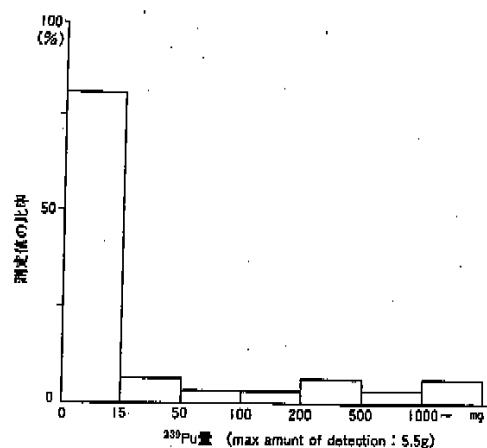


図8 標準値に対する測定値の差

図9 20 l カートンボックス中の $^{239}\text{Pu}$ 量測定結果図10 200 l ドラム缶中の $^{239}\text{Pu}$ 量測定結果

10に示す。測定に供した廃棄物の中に含まれるPu量は、ほとんどが $15\text{mg } ^{239}\text{Pu}$ 以下であることを示している。また、カートンボックス廃棄物については、表面での線量率測定を行い $^{239}\text{Pu}$ 量との関係についても調べた。図11からは表面線量率と $^{239}\text{Pu}$ 量との相関性が得られていることがわかる。

#### (4) 検出限界値の評価

バックグラウンドからの検出限界値の評価標準Pu試料を用いて $^{239}\text{Pu}$ の $\gamma$ 線ピーク領域を求め、その領域でのバックグラウンドを測定し、これを(1)式に代行し検出限界計数率(CPS)を算出する。この計数率を(2)式または検量線に代入し $^{239}\text{Pu}$ の限界量を求めることができる。

#### 検出限界計数率(CPS)

$$= \frac{K}{2} \left\{ \frac{K}{T_s} + \left( \frac{K}{T_s} \right)^2 + 4 \text{Nb} \left( \frac{1}{T_s} + \frac{1}{T_b} \right) \right\} \dots (1)$$

K : 標準偏差に対する倍数

$T_s$  : 試料の測定時間 (sec)

$T_b$  : B.G 測定時間 (sec)

Nb : B.G 計数率(cps)

$$^{239}\text{Pu 重量 (g)} = \frac{C}{A_s \cdot f \cdot I} \dots (2)$$

C : 検出限界計数率(cps)

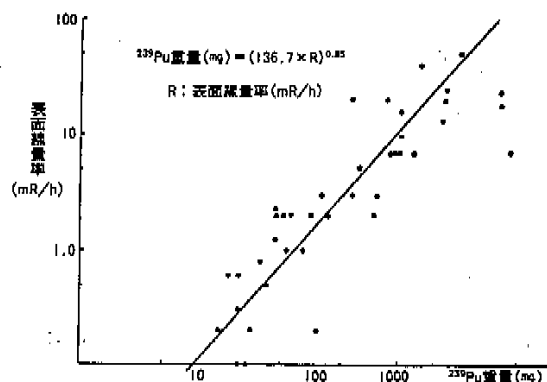
$A_s$  : 413.7KeVのCuフィルターの透過率

f : 413.7KeVの効率

I : 413.7KeVの1g当りの $\gamma$ 線放出率

このように計算上から求めたカートンボックス及びドラム缶測定における検出限界曲線と標準Pu試料を使って実測した検出限界曲線との関係を図12、13に示した。そして、これらは一定条件下でよく一致することがわかる。また、実測検出限界曲線からの検出限界値は、廃棄物容器、廃棄物の $\gamma$ 線吸収によりカートンボックスにおいて約 $15\text{mg } ^{239}\text{Pu}$ であり、また、ドラム缶廃棄物については約 $30\text{mg } ^{239}\text{Pu}$ 付近である。このため測定時間については、それぞれ1,000秒または2,000秒が必要である。

なお、可燃物の焼却処理後の焼却灰中の $^{239}\text{Pu}$ 測定値の比較においてもこの値はよく一致しており、この検出限界値は妥当なものであることが確認されている。

図11 可燃性廃棄物カートンボックスにおける $^{239}\text{Pu}$ 重量と表面線量率の関係 (パッシング線法)

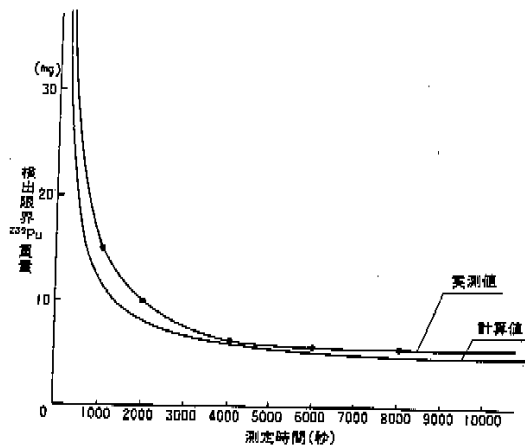


図12 カートンボックス測定における検出限界曲線

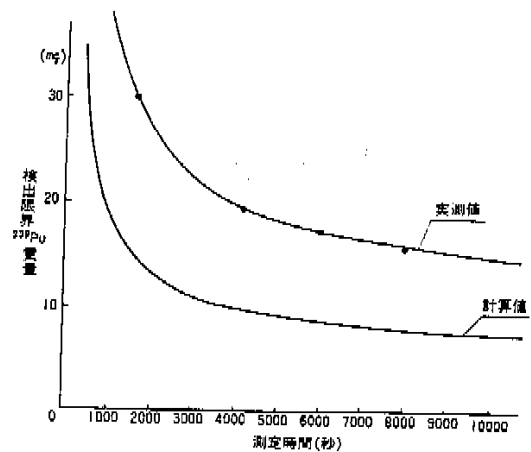


図13 ドラム缶測定における検出限界曲線

### 3.2 パッシブ中性子測定試験

廃棄物から放出される中性子は、 $(\alpha, n)$  反応による中性子及び自発核分裂 (S, F) 中性子が源である。いわゆる全中性子計数法は、これらを含みにして計るもので、同時計数法では、S, F による中性子と  $(\alpha, n)$  反応により発生した中性子とを区別して計数することができる。廃棄物が標準試料と同じ同位体組成である場合には、全中性子計数法は計数時間も短く、不均一性の影響も少なく優れた測定方法である。

本試験では、20ℓ カートンボックスサイズ廃棄物用のパッシブ中性子測定装置を試作、これを用いて MOX 燃料製造施設から発生する廃棄物を模擬した試料で試験装置の測定性能の評価を行った。また、実廃棄物による測定を行い廃棄物マトリックス等に

よる  $(\alpha, n)$  反応の影響とパッシブ中性子法の適用性評価を行った。

#### (1) 試験装置の試作・評価

##### ① 試験装置

試作した試験装置の検出部を図14に示す。測定キャビティは直径42cm、高さ46cmの円筒状で周囲のポリエチレン中に10本の $^3\text{He}$ 検出器(1"径×18"長、4気圧)を配置したものであり、測定回路は全中性子計数及び同時計数が可能な設計になっている。

##### ② 試験

20ℓ カートンボックス中に紙、塩化ビニル、鉄片及び人工鉱物等をマトリックスとして  $\text{PuO}_2$  ( $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}=86/12/2$ ) 及び  $^{252}\text{Cf}$  を入れて試験をした。試験パラメータには、廃棄物の種類、密度及び線源位置を選び、測定誤差、検出下限値を求めた。

##### ③ 試験結果

全中性子計数法及び同時計数法において、廃棄物がない状態での測定キャビティ内の中性子相対感度は図15、16のようになり、廃棄物種類及び密度による中性子検出効率の変動中は、それぞれ  $\pm 6\%$  及び  $\pm 0.3\%$  であった。更に、線源位置の変化が加わった場合の計数率の変動率は  $\pm 16\%$  であり、同時計数法によるそれは  $\pm 27\%$  である。また、中性子バックグラウンド計数値が十分低い場合、1,000秒測定での検出下限値は、全中性子計数法で約 1 mg ( $^{240}\text{Pu}(\text{eff})$ )、同時計数法で約 3 mg ( $^{240}\text{Pu}(\text{eff})$ ) であった。なお、廃棄物種類及び密度の変

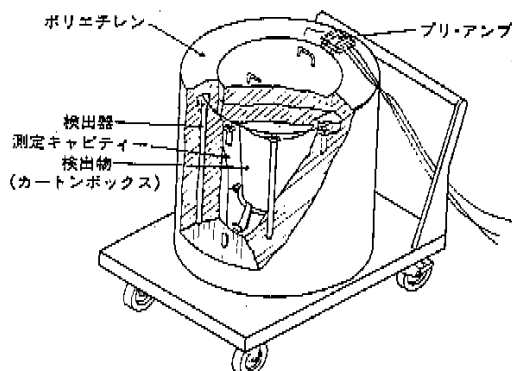


図14 パッシブ中性子測定装置検出体系

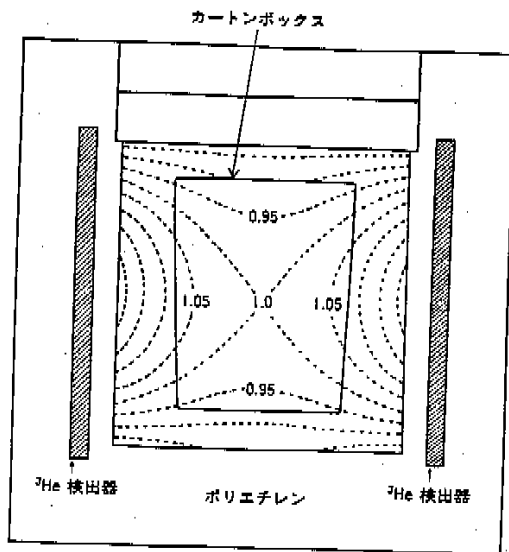


図15 相対感度分布曲線(全中性子計数法)

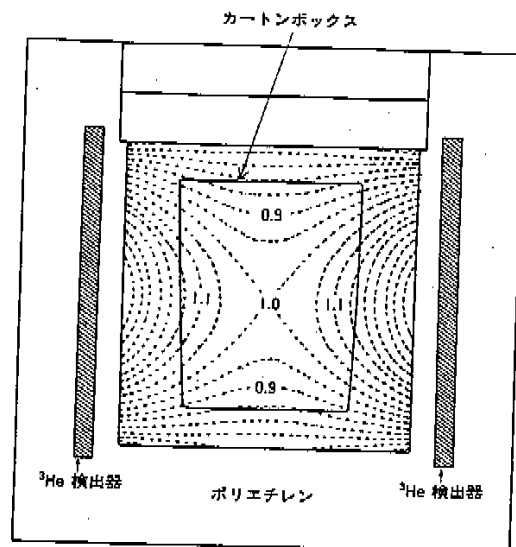


図16 相対感度分布曲線(同時計数法)

化による中性子検出効率の変動巾が小さいのは、廃棄物中の中性子減速効果が検出部のポリエチレン体系のそれより小さいためであると考えられる。

## (2) 実廃棄物による測定試験

実廃棄物測定試験を開始するにあたり、試作した装置の検出効率を改善するために、中性子検出器を更に10本追加し、また、測定器外部からの中性子を低減させるために、ポリエチレンブロックとカドミウム板を組み合わせた遮蔽体を付加させた。

### ① 検出効率の測定

パッシブ中性子測定装置の検出率は、以下の式のごとく表される。

すなわち、

$$f = (S_T / T - B_T) / n_o \quad \dots\dots(3)$$

$$\epsilon = [S_T / (S_c + S_1 - S_2) \cdot (S_1 - S_2) / T - B_c] / n_s \quad \dots\dots(4)$$

$f$  : 全中性子計数法での検出効率

$\epsilon$  : 同時計数法の検出効率

$B_T$  : 全中性子計数法のバックグラウンド計数率

$B_c$  : 同時計数法のバックグラウンド計数率

$n_o$  :  $n_s$  は標準線源の全中性子発生数及び自発核分裂中性子発生率

である。

ここで、バックグラウンド計数率  $B_T, B_c$  はそれぞれ  $B_T : 0.66\text{cps}$ 、 $B_c : 0.005\text{cps}$  が実測され標準 Pu 試料によるキャビティー内でのそれぞれの測定法

の検出率は、全中性子計数法で11%、同時計数法で1.03%と試作装置に較べてそれぞれ約3倍、8倍の改善効果が認められた。

### ② 検量線作成

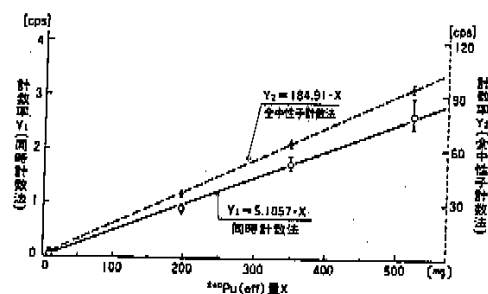
$^{240}\text{Pu}(\text{eff})$  量を求めるために、既知 Pu 試料を空カートン中心部に配置し、これを全中性子計数法及び同時計数法について測定し、 $^{240}\text{Pu}(\text{eff})$  量と計数率の関係を最少二乗法により検量線図17を作成した。

### ③ 検出限界値の検討

バックグラウンドから  $3\sigma$  (レベル) における測定時間と検出限界値の関係を計算より求め図18に示した。これは実測値とよく一致した。

### ④ 実廃棄物測定結果

上記装置に、可燃、難燃、不燃性廃棄物を個別

図17 パッシブ中性子計数法による $^{240}\text{Pu}(\text{eff})$ の検量線

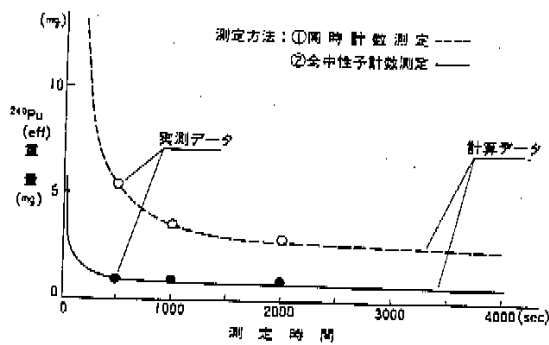


図18 パッシブ中性子法(同時計数と全中性子計数)の測定時間の検出限界 $^{240}\text{Pu}(\text{eff})$ 量との関係

に配置し、これを全中性子計数法及び同時計数法により測定し、廃棄物マトリックスによる影響及び廃棄物中のPu量推定評価を行った。

その結果は図19の通りであり、廃棄物マトリックスによる影響として特にキムタオル、プラスチック等の可燃及び難燃物を含む廃棄物について影響が大きく、廃棄物中のPu量が過大評価されることになる。一方、同時計数法においては、 $(\alpha, n)$ 反応の影響が少なく約 $5\text{ mg }^{240}\text{Pu}(\text{eff})$ を±20%の精度で測定可能であることがわかった。

#### 4. まとめ

これまでの試験結果からパッシブγ線測定法及びパッシブ中性子測定法により、カートンボックス(または200ℓドラム缶)廃棄物中の $^{239}\text{Pu}$ 及び $^{240}\text{Pu}(\text{eff})$ をそれぞれ約15mg(または30mg)、約2～5mgまで測

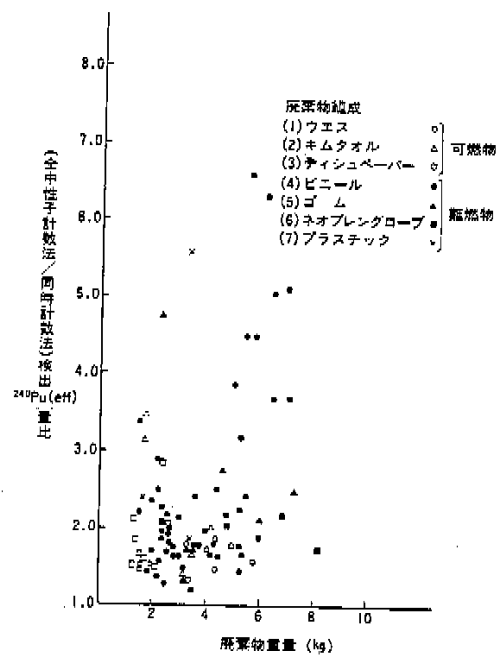


図19 廃棄物マトリックスによる $(\alpha, n)$ 反応影響

定可能であることがわかった。今後本測定法を実用化するためには、測定時間の改善や測定システムの確立が必要であり、短時間で高感度、高精度の測定が期待できる非破壊測定法の検討が必要となろう。今後は、区分管理の考え方を促進するためにもアクティブ中性子測定法等の極低レベルTRU測定技術に関する研究開発は不可欠であり、この分野における早急な検討が望まれる。