



核燃料取扱施設における中性子エネルギースペクトル測定法の開発と線量評価に関する検討

大和 愛司 宮部 賢次郎

百瀬 琢磨 岩井 敏*

東海事業所安全管理部 *三菱原子力工業株式会社研究所

資料番号: 65-11

Development of the Neutron Energy Spectrum Estimation Method and Study of Neutron Dosimetry in Nuclear Fuel Facilities

Aiji Yamato Kenjiro Miyabe Takumaro Momose
Setoshi Iwai*

(Health and Safety Division, Tokai Works,

*Mitsubishi Atomic Power Industries Inc.)

プルトニウム燃料製造施設等の核燃料取扱施設では、中性子線による被ばく管理が重要である。本論では、東海・プルトニウム燃料開発施設の代表的な作業環境において、中性子線量当量の評価や遮蔽設計等に有用な中性子エネルギースペクトルを得た。スペクトル測定のため、4種類の球形減速材付³Heスペクトロメータを開発し、ANISN-Wコードによる計算評価と中性子標準場における校正によりエネルギー応答関数を決定した。アンフォールディングにはNEUPACとSAND-IIを用いた。測定の結果、プルトニウムの自発核分裂及びO(α , n)反応によって放出される速中性子のピークとグローブボックス等の遮蔽体の散乱によって生ずる1/E形の減速成分を含むスペクトルを観測した。測定結果に基づき、被ばく管理の観点から中性子線量評価について考察した。

1. 結 論

ウラン・プルトニウム混合酸化物燃料製造施設、プルトニウム転換施設等の核燃料取扱施設では、 γ 線に対する被ばく管理のほか、プルトニウム同位体から自発核分裂及び(α , n)反応により放出される中性子線に対する被ばく管理が重要である。

一方、近年核燃料サイクルの進展とともにプルトニウム利用の拡大や使用済み燃料の高燃焼度化が進むと予想され、これに伴う中性子線による被ばく管理の重要性が改めて認識されている。

一般に、中性子線量の測定には、レムカウンタや種々の個人モニタが使用されているが、それぞれ特有の感度特性(エネルギー応答性)を有しているため、作業環境のエネルギースペクトル等を考慮し適切な測定器を選択すること、及び測定場所の条件に応じた校正を行うことが必要である。

また、ICRP Pub.26の法令取り入れに伴い、実効線量当量による被ばく管理が導入される見込みであるが、実効線量当量あるいは1 cm線量当量による

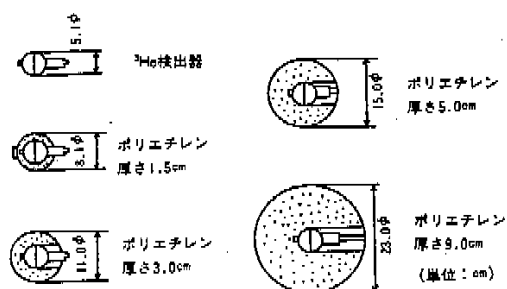
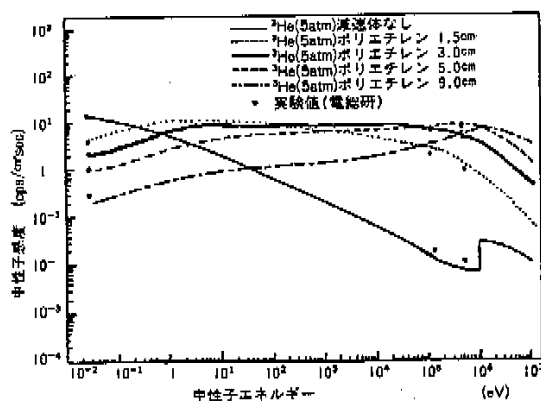
被ばく管理の現場適用には、作業環境におけるエネルギー分布や被ばく方向分布などの情報が不可欠である。

以上のことから作業環境の測定に適用できる中性子スペクトロメータを開発し、動燃東海事業所のプルトニウム燃料開発施設の代表的な作業環境で測定を実施した。さらに、測定結果に基づき作業者の被ばく管理の観点から中性子線量評価法について検討した。

2. 測 定

2.1 中性子スペクトロメータ

東京大学原子核研究所の球形減速材付中性子スペクトロメータ¹⁾を参考として感度の異なる2種類の球形減速材付³He中性子スペクトロメータを開発した。検出器には、封入ガス圧がそれぞれ5atmと0.1atmの直径2インチの球形³He検出器を使用し、減速材はポリエチレンで形状及び厚さは図1の通りである。

図1 球形減速材付 ^3He スペクトロメータの断面図図2 球形減速材付 ^3He 検出器のエネルギー応答関数

本スペクトロメータは、裸の検出器及び4種類の減速材を用いることにより、中性子感度の異なる5個の計数値が得られる。球形の検出器を選択した理由は、感度の方向依存性が少ないこと及びエネルギー応答関数の計算評価がANISNのアジョイント計算²⁾で精度よくできるためである。検出器の感度のエネルギー応答関数は、ANISN-Wを用いたアジョイント計算により作成し、電子技術総合研究所の熱中性子標準場及び単色中性子標準場における校正結果に基づき規格化、修正した。本結果の例を図2に示す。なお、これらの応答関数は東京大学原子核研究所の4種類の簡易型中性子校正場³⁾において検証した結果、実験値とよく一致した。球形減速材付 ^3He 中性子スペクトロメータの計数値からスペクトルへのアンフォールディングは、上記の応答関数を用いてSAND-II⁴⁾及びNEUPAC⁵⁾コードにより図3に示す手順で実施した。初期推定スペクトルには、DOT3.5コードによる酸化プルトニウム原料缶の周辺スペクトル計算結果を用いた。

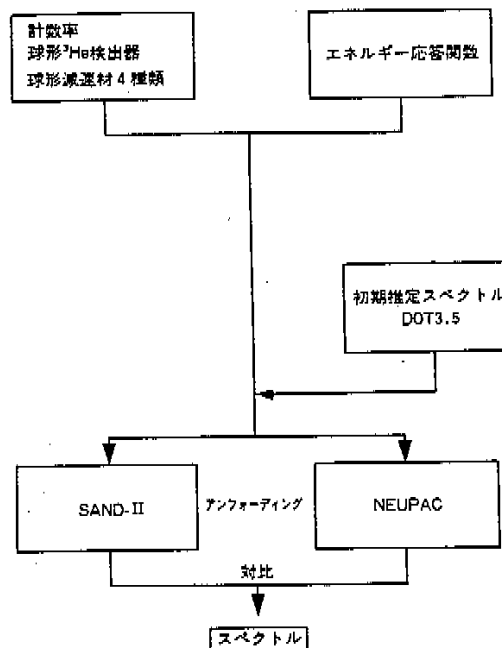


図3 アンフォールディング方法

2.2 測定場所及び測定法

プルトニウム燃料開発施設では、高速炉(FBR)「常陽」及び新型転換炉(ATR)「ふげん」用のウラン-プルトニウム混合酸化物燃料の製造を行っている。ウラン及びプルトニウムはグローブボックス内で取扱われているが、プルトニウム燃料の取扱いに際し、プルトニウムの自発核分裂及び酸化プルトニウム中の酸素と α 線の $^{17}\text{O}(\alpha, n)^{20}\text{Ne}$ 及び $^{18}\text{O}(\alpha, n)^{21}\text{Ne}$ 反応により放出される中性子線の被ばく管理が重要である。例としてここ数年のプルトニウム燃料開発施設における全身被ばく線量の推移をみると、表1に示すように γ 線の被ばくに比べ、中性子線の被ばくが同等かわずかに上回っている。

本施設におけるスペクトルの測定ポイントとして、図4に示すFBRとATRの燃料製造工程を通じて

表1 プルトニウム燃料開発施設における被ばく線量

年度	作業者数 (のべ)	有意検出 者数	集団被ばく線量 (man·Sv)		
			γ	中性子	合計
1982	584	266	0.26	0.27	0.53
1983	721	254	0.28	0.30	0.58
1984	692	279	0.32	0.38	0.70
1985	660	220	0.28	0.31	0.59
1986	762	231	0.21	0.20	0.41

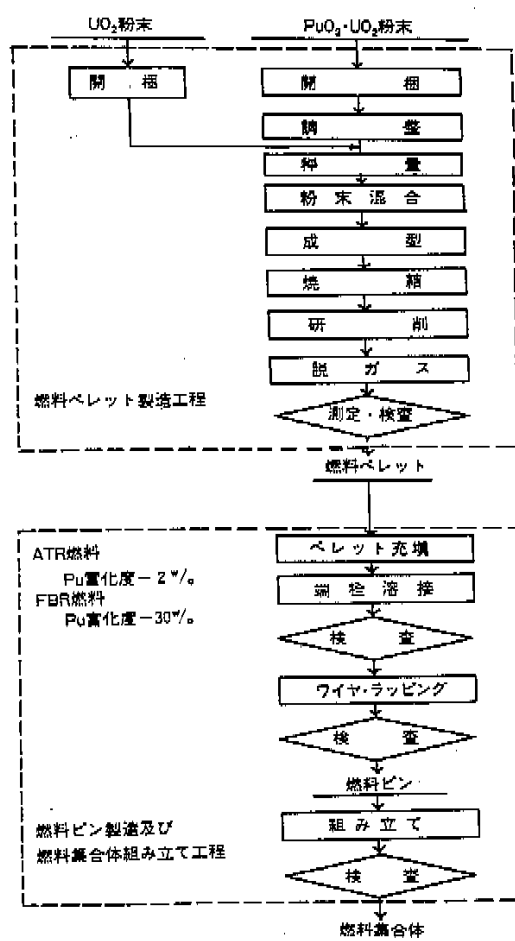


図4 Pu-U混合酸化物燃料製造工程

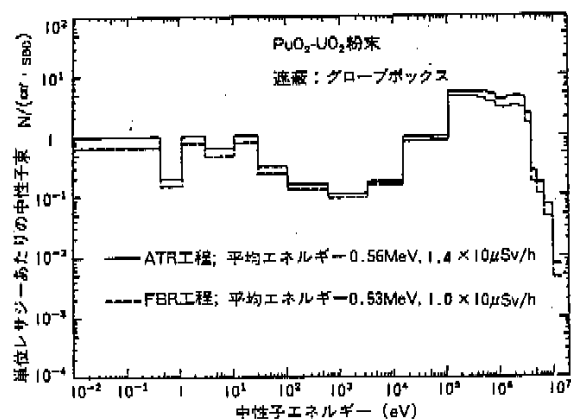


図5 プルトニウム燃料開発施設における中性子エネルギースペクトル

燃料の組成、形状、遮蔽条件の異なる場所で、かつ作業者の中性子線による被ばくが大きい代表的な作業環境を合計15点選定した。表2にその一部を示す。各測定点では、スペクトル測定の際に、電離箱によるγ線量率及びレムカウンタによる中性子線量当量率を測定した。

2.3 スペクトル測定結果

ATR及びFBR燃料製造工程のうち、燃料粉末を取扱う工程におけるスペクトル測定例を図5に示す。今回測定したほとんどの場所では、本例のように1～2 MeVにピークを有し、数10 KeV以下では1/E型の散乱成分を含むエネルギースペクトルであった。また、作業現場で中性子遮蔽材としてグローブボックス表面に取り付けられている厚さ35mmの含鉛アクリル板の効果を確かめるため、厚さを変えて測定した結果を図6に示す。アクリル板により、数100 keV領域の中性子が特に減速されるとともに、板1

表2 測定場所及び線量率（代表例）

工 程	線 源	遮蔽、測定位置	中性子線量当量率*1 ($\times 10^4 \mu\text{Sv/h}$)	γ照射線量率*2 (mR/h)
ATR 工程 粉 末 混 合	PuO ₂ +UO ₂ 粉末	グローブボックス グローブボックス表面より50cm	1.4	1.2
ATR 工程 ペレット検査	PuO ₂ +UO ₂ ペレット	グローブボックス+アクリル35mm、 グローブボックス表面より63cm	1.3	1.0
FBR 工程 原料粉末秤量	PuO ₂ 粉末	グローブボックス グローブボックス表面より63cm	5.2	2.0
FBR 工程 焼 結	PuO ₂ +UO ₂ ペレット	焼結炉 表面より40cm	1.5	0.22
FBR 工程 集合体組立	PuO ₂ +UO ₂ 燃料集合体	集合体表面より80cm	2.0	0.66

*1 Studsvik 2202D

*2 NESCO 808

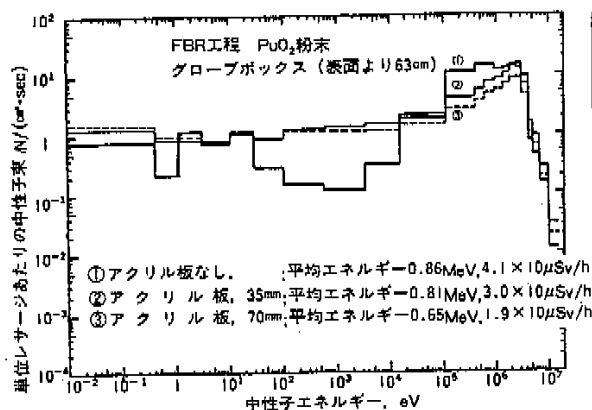


図6 含鉛アクリル板による遮蔽効果

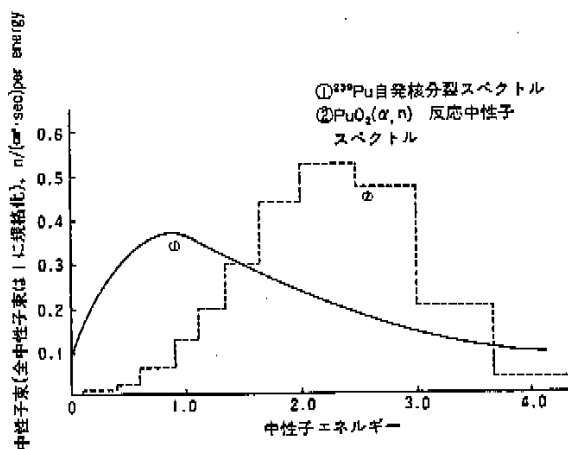


図7 ²³⁹Pu自発核分裂及びPuO₂(α, n)反応による中性子スペクトル

枚あたり中性子線量を約30%程度減少させる効果があることがわかった。

3. 考 察

3.1 プルトニウム燃料開発施設の中性子エネルギースペクトル

前述したように、ウラン・プルトニウム混合酸化燃料からの中性子は、プルトニウムの自発核分裂及び主としてPuO₂中での¹⁷O (α, n)²⁰Ne、¹⁸O (α, n)²¹Ne 反応によって放出されるもので、そのエネルギーは図7に示すように、それぞれ700keV～1MeV及び2～3MeVにピークがあり、数10eV～数MeVの範囲にわたる連続スペクトルであることが知られている¹⁰⁾。今回の測定では、これらの過程を経て生じる速中性子線のピークと散乱成分が混在したエネルギースペクトルが得られた。ほぼ予想通りの結果となった。当初、中性子線のエネルギーは線源の組成、形が遮蔽条件、壁面や床からの散乱条件等によ

中性子エネルギー 個人線量計	10 ⁻²	10 ⁰	10 ²	10 ⁴	10 ⁶ (eV)
フィルム・ バッジ	熱中性子	NTA			
固体飛跡検出器					
アルベド線量計					

図8 中性子個人線量計の測定可能エネルギー範囲

って変わるため、測定の場合でかなりの差異がみられると予想されたが、実際には、全工程を通じてプルトニウムの富化度や燃料の形状による顕著な差異はみられず、グローブボックス表面に取り付けられている遮蔽体がスペクトルに最も影響することがわかった。

3.2 中性子線量評価

今回の測定結果より、プルトニウム燃料を取り扱う施設の作業環境において被ばく管理上評価すべき中性子線は、熱領域から数MeVのエネルギー領域に分布していることが確認された。特に、線量当量のうち15keV以上の速中性子線の寄与する割合が90%以上を占め、高速中性子線に対しては十分な評価精度を確保する必要があることが明らかになった。

一般に、中性子線による被ばく線量の測定には種々の線量計が用いられるが、種類によってそれぞれ使用できるエネルギーの範囲などがあり、使用条件に応じて適切な線量計を選択しなければならない。例として代表的な個人線量計と運用可能なエネルギー範囲を図8に示す。熱中性子用のフィルムバッジは熱中性子領域にしか感度を持たず、NTAフィルムバッジ及び固体飛跡検出器はそれぞれ数100keV以上しか有効な感度を持たないのに対し、人体から反射される中性子を利用するアルベド線量計は熱外及び中速領域に感度があるなど、測定場所のエネルギースペクトルを考慮して、これらの使い分けを行う必要がある。また、それぞれの線量計は特有のエネルギー応答性を有しており、作業フィールドでの校正あるいはフィールドと同じスペクトルの標準照射場で校正を行う必要がある。

動燃東海事業所では、作業者の中性子被ばく管理のためにアルベド型TLDバッジによる個人被ばく線量の測定やレムカウンタによる線量測定を実施している。TLDバッジは、プルトニウム燃料開発施設の代表的な作業環境において、中性子レムカウンタを用いてin-situ校正を行い、TLD発光量から被ば

線量(Sv)を求める換算式を決定している。また、今回の結果より表3に示すように、スペクトルから算出した線量当量と ^{252}Cf 線源によって校正されているレムカウンタの指示値とは、 $-35\% \sim +45\%$ の範囲で比較的良好に一致しており、レムカウンタによる測定結果は、通常の放射線管理にはほぼ十分な精度であることが確認された。

一方、実効線量当量あるいは1 cm 線量当量の評価には、放射線の種類や線量その他、エネルギー分布、被ばく方向分布などの情報が必要である。しかし、個々の作業員あるいは作業場所、作業形態毎にこれらの情報をすべて把握することは不可能であるため、あらかじめスペクトル測定や方向分布の測定等を実施し、線量当量と線量計の指示値との関係を明らかにしておく等の方法が实际的である。今回の結果は、そのための基礎データとして有用であると考えられる。

4. まとめ

作業環境測定に適用できる中性子エネルギースペクトロメータを開発し、プルトニウム燃料開発施設におけるスペクトル測定を行った。得られたスペクトルは、測定場所によって顕著な差異はなく、プルトニウムの自発核分裂及び $^{17}\text{O}(\alpha, n)^{20}\text{Ne}$ 及び $^{18}\text{O}(\alpha, n)^{21}\text{Ne}$ 反応によって放出される中性子それぞれ数100keVと2~3 MeVのピークと、グローブボックス等の遮蔽体の散乱によって生ずる1/E形の減速成分が観測された。

本測定の結果、作業環境における代表的なスペクトルが明らかになり、線量当量の90%以上は線源からの直接成分である数10keV以上の速中性子線によることがわかった。また、作業環境の測定に用いているレムカウンタの測定値は、スペクトル測定から得られた線量当量とよく一致することが確かめられた。

表3 中性子スペクトルから算出した線量当量とレムカウンタによる測定値の比較

測定 No.	平均エネルギー (MeV)	比 $\left(\frac{\text{レムカウンタ}}{\text{スペクトロメータ}}\right)$
1	0.45	0.69
2	0.59	0.66
3	0.46	1.18
4	0.56	0.96
5	0.65	0.79
6	0.52	0.94
7	0.50	0.95
8	0.81	1.43
9	0.86	1.28
10	0.65	1.05
11	0.41	1.05
12	0.53	1.00
13	0.39	1.41
14	0.72	1.01
15	0.76	0.94

これらの結果は核燃料取扱施設における中性子実効線量当量評価法の確立に寄与するものと考えられる。

参考文献

- 1) Y. Uwamino et al: Nucl. Instr. Meths. A239 (1985) 299
- 2) G.E. Hansen et al: Nucl. Sci. Eng. 22 (1965) 315
- 3) T. Nakamura et al: Development of Simple Neutron Reference calibration Field and Its Evaluation (1986) INS-T-453
- 4) W.N. Meelroy et al: A Computer-Automated Iterative Method for Neutron Flux Spectra Determination by Foil Activation: AFWL-TR-67-41, vol. 1 thorough IV. Air Force Weapons Lab.
- 5) T. Taniguchi et al: Neutron Unfolding Package Code "NEUPAC-83" NEUT Research Report 83-10
- 6) H.S. Bailey et al, Nuclear Technology vol. 17 (1973) 217
- 7) M.G. Zimmerman et al, BNWL-1855 (1975)
- 8) 宮部賢次郎他: $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ (Cu) 蛍光体を利用した TLD バッチによる中性子線量評価に関する検討: PNC N841 84-48 (1984) 社内資料