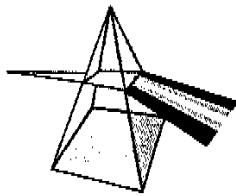


## 【技術報告】

## アクティブ中性子法によるTRU核種測定技術開発 —マトリクス補正—



黒木亮一郎 鈴木 敏\* 田所 秀明\*  
薄井 和也 入之内董徳 安 隆己

東海事業所 環境施設部  
\*原子力技術課

資料番号：103-5

Development of Non-Destructive Assay Technique for TRU Nuclide in Waste by Active Neutron Method  
—Matrix Correction—

Ryuichi KUROKI Satoshi SUZUKI\* Hideaki TADOKORO\*  
Kazuya USUI Shigenori IRINOUCHI Takami YASU  
Waste Plants Operation Division, Tokai Works  
\* Nuclear Engineering Corporation

現在、超ウラン元素(TRU)を含む放射性廃棄物（以下、TRU廃棄物という）については、放射能濃度により適切に区分管理することが考えられている。このため、TRU核種を極めて低い濃度まで測定する必要がある。それに有効な技術として考えられるアクティブ中性子法による各種実証試験をプルトニウム廃棄物処理開発施設(PWTF)で実施してきた。この中で検出感度への影響因子としては主に、廃棄物マトリクス（廃棄物構成材）の性状であることが確認された。それを補正するために、マトリクスの吸収能（中性子吸収断面積）および減速能（水素密度）を用いた評価手法を開発、適用した。

ここではその補正方法および適用結果を報告する。

*Concerning a management of the TRU waste, an active neutron method is available for NDA (Non-Destructive Assay) technique to measure TRU nuclides.*

*We have developed a measurement technique with the PAN system (Passive Active Neutron system) at PWTF (Pu Contaminated Waste Treatment Facility) since 1990. In this experiment, it was confirmed that the waste matrix affects the detection sensitivity. In order to correct the effect, we designed a correction technique with absorption (macroscopic absorption cross section) and moderation (hydrogen density) of the waste matrix, and evaluated its applicability. The waste matrix used in this evaluation experiment consisted of air, paper, cloth, polyethylene, asphalt, vinyl chloride and polystyrene.*

*The error of the detection sensitivity was 90% at a maximum before the correction. The error was improved to  $\pm 20\%$  after corrections.*

*This correction technique is described in this paper.*

## キーワード

TRU廃棄物、アクティブ中性子法、廃棄物マトリクス、プルトニウム廃棄物処理開発施設(PWTF)、吸収能、減速能、補正

TRU Waste Management, NDA, Active Neutron Method, Waste Matrix, PWTF, Moderation, Absorption, Correction, PAN System

## 1. はじめに

超ウラン元素(TRU)を含む放射性廃棄物（以下、TRU廃棄物という）として、MOX燃料加工施設、再処理施設等から種々の廃棄物形態および放射能濃度のものが発生する。これらの放射性廃棄物は、含まれるTRU核種の放射能濃度により

区分し、合理的な処分方法をとることが考えられている。現在、全α核種の放射能濃度約1GBq/tをその一応の区分目安値と設定しており、その値以上もしくは以下により、それぞれ深地層処分、浅地層処分が考えられている。

区分管理を目的とする廃棄物中のTRU核種の

測定手法として、破壊分析はその作業の繁雑さおよびサンプリング信頼性の点等から不適切であるため、各種の非破壊分析(NDA:Non Destructive Assay)手法についての研究開発が行われている。この中でも極低濃度領域の測定ができるアクティブ中性子法は、本測定に有効といわれている。

東海事業所環境施設部プルトニウム廃棄物処理開発施設（以下「PWT」）では、平成2年3月にパッシブ・アクティブ中性子測定装置(Passive-Active Neutron System: 以下「PAN装置」という)を設置し、同年4月より測定試験を開始した。

これまでに、PAN装置特性把握、各種廃棄物マトリクス材（廃棄物構成材）の測定感度・精度への影響評価試験、廃棄物マトリクス内の核種偏在および分散による測定感度・精度への影響評価試験を実施した。この一連の試験により、測定感度および精度への影響因子は、廃棄物マトリクスの吸収能および減速能、核種偏在、プルトニウムの自己吸収であることを確認した。

本報では、上記因子のうち200ℓドラム缶を対象とした廃棄物マトリクスの吸収能および減速能による影響の補正方法と、その適用性評価結果を示す。

## 2. PAN装置概要

一連の試験に用いた、PAN装置の断面を図1に、中性子計測系のブロックダイヤグラムを図2に、装置外観を写真1に示す。

装置の基本仕様を以下に示す。

### (1) 測定対象物

200ℓドラム缶まで測定可能である。本試験では200ℓ廃棄物ドラム缶を用いた。

### (2) 分析容器(図1)

体系外への中性子の漏洩を防ぐために、厚さ10cmのグラファイトと、高速中性子を減速させるために、厚さ20cmのポリエチレンを6面に配した箱型で、ドラム缶回転機構を有している。

### (3) 中性子発生装置

D-T反応による14MeV中性子を強度 $5 \times 10^7$ n/secで発生するものであり、分析容器内側に設置されている(図1)。詳細仕様は以下のとおりである。

型式	：変圧器型
中性子発生数	： $10^6$ n/pulse
中性子発生周波数	：50Hz
バルス発生幅	： $5\mu\text{sec} \sim 10\mu\text{sec}$
ターゲット	： ${}^3\text{He}$ 222GBq

(1991年5月現在)

### (4) 中性子検出系

廃棄物中に含まれるTRU核種の核分裂中性子(即発中性子)検出用として、カドミウムで被覆された20本の ${}^3\text{He}$ 検出器(以下、シールド検出器という)、および分析容器内の熱中性子検出用として、1本の ${}^3\text{He}$ 検出器(以下、FM: フラックスモニタという)を設置している。各計測回路系は、中性子の時間応答の測定が行えるものとなっている(図2)。

### (5) 装置寸法・重量

寸法：1,380W×1,380D×1,830H  
重量：約6ton

## 3. 測定原理

### 3.1 アクティブ中性子法測定原理

中性子減速体(ポリエチレン)で囲まれた分析

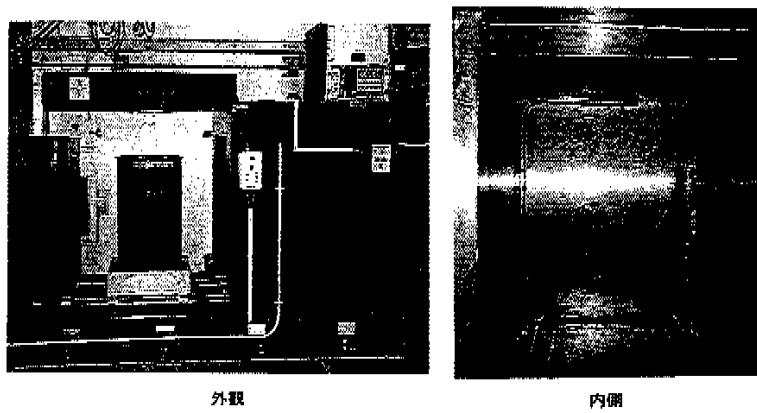


写真1 PAN装置外観

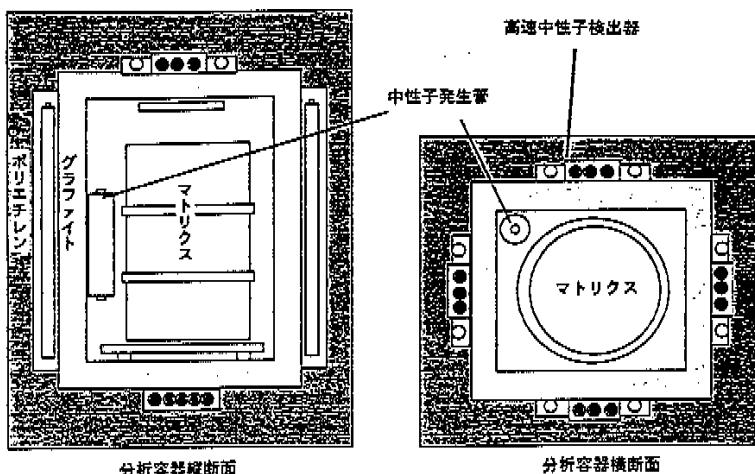


図 1 PAN 装置の断面図

容器内で、中性子発生装置により発生させた高速中性子を、パルス状に照射すると、高速中性子は短時間で減速して、熱中性子になる。この熱中性子は、TRU廃棄物中の核分裂性核種 ( $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Pu}$  等) の核分裂を誘起し、即発中性子（高速中性子）を放出する。この即発中性子の発生量は核分裂性核種の存在量に比例するので、それを計測することにより、核分裂性核種を定量することができる。

照射した高速中性子および、その中性子が減速した熱中性子ならびに、核分裂によって生じた即発中性子とは、中性子照射から核分裂までの時間

差と、発生中性子のエネルギー差（高速中性子か熱中性子）とを利用して区別する。このため、中性子をパルス状に一定間隔で繰り返し照射し、パルスとパルスの間（照射高速中性子が発生していない微小時間）に、即発中性子を計測する。

この測定原理はアクティブ即発中性子法と分類されるもので、DDT (Differential Die-away Technique)と呼ばれている。

測定概念を図 3 に示す。

### 3.2 測定評価アルゴリズム

アクティブ中性子計測により得られた計数値か

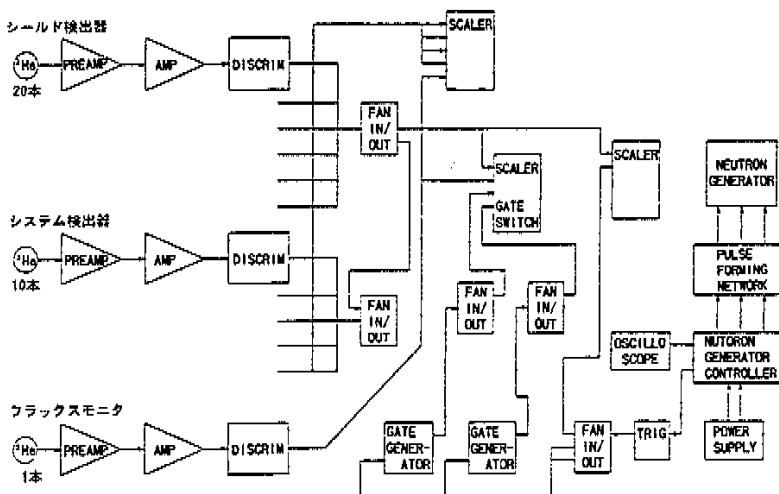


図 2 中性子計測系のブロックダイアグラム

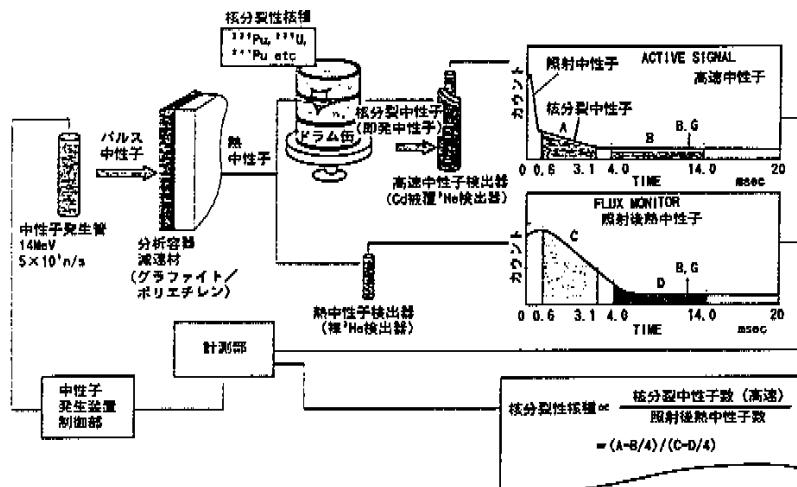


図3 アクティブ中性子測定概念

ら、 $^{239}\text{Pu}$  実効質量（核分裂核種量を $^{239}\text{Pu}$ で換算したもの）は以下の式により求められる。

$$\begin{aligned} ^{239}\text{Pu} \text{ 実効質量} &= \text{ネットカウント} \times C.F. \times S.A. \\ &\times N.D. \times K \end{aligned} \quad \dots \dots \dots (1)$$

ここで、

ネットカウント：

即発中性子数(シールド検出器計数値)/入射熱中性子数(FM計数値)-ゼロマス

C.F.：廃棄物マトリクス補正係数

S.A.：プルトニウム自己吸収補正係数

N.D.：核種偏在補正係数

K : 本装置におけるネットカウント当たりの $^{239}\text{Pu}$  実効質量

$$K = \frac{\text{標準線源の } ^{239}\text{Pu 実効質量}}{\left[ \text{空ドラム缶中心に標準線源を設置} \right] - \left[ \text{した場合に得られるネットカウント} \right]}$$

ゼロマス：廃棄物中にTRU核種が存在しない場合のシールド検出器計数値/FM計数値

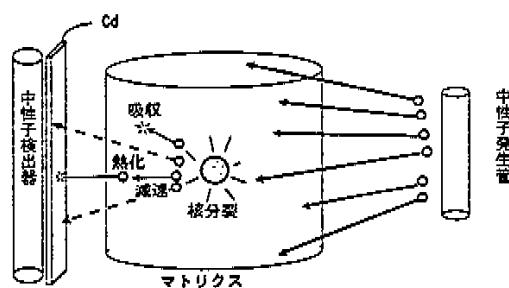
本試験において、プルトニウムの自己吸収による影響は、極低濃度領域の廃棄物と仮定すると無視できる（通常、プルトニウム塊が50gを超えると、自己吸収による影響があるとされる）ことから、(1)式中のS.A.については、S.A.=1とできる。また、核種偏在による影響は、プルトニウムが均一に分布していると仮定すると、同様に無視でき、N.D.=1とできる。このことから(1)式は、

$$^{239}\text{Pu} \text{ 実効質量} = \text{ネットカウント} \times C.F. \times K \quad \dots \dots \dots (2)$$

となる。そこで本実験では(2)式のC.F.について評価を行った。

#### 4. 廃棄物マトリクス影響補正の概念

図4に示すように、廃棄物マトリクスが計数値に与える影響としては、中性子の吸収による減少と、減速された中性子の検出器との無反応化による減少が考えられる。実際に廃棄物マトリクスが計数値に影響を与えた状況を、図5に示す。このように、本来同一のプルトニウム線源を用いているため、計数値はどの廃棄物マトリクスでも等しくなるべきものが、その違いにより計数値に違いが現れる。この違いが存在したままでは、プルトニウム量を正確に評価することが出来なくなるため、その量を補正する必要である。それらを補正するためには、個々の廃棄物マトリクス毎



$$\begin{aligned} \text{核分裂性核種量} &= K \times \text{アクティブ中性子計数} \times \text{マトリクス補正係数} \\ \text{マトリクス補正係数} &= f(\text{吸収}) \times f(\text{減速}) \end{aligned}$$

図4 マトリクスの補正概念

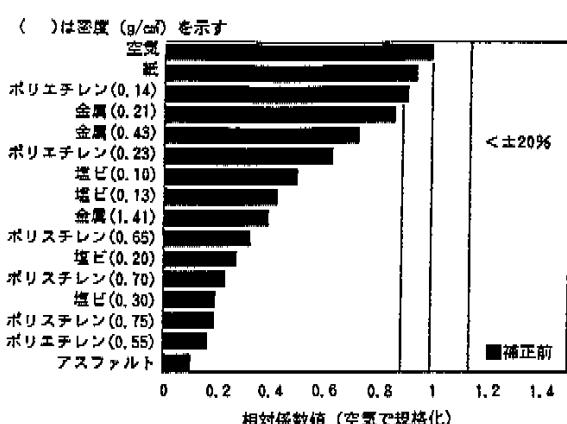


図5 マトリクスの影響

に補正係数をもとめることが必要である。

アクティブ中性子測定での各廃棄物マトリクス補正係数は、空ドラム（空気）と各廃棄物マトリクスの計数値の比により定義することができる。

$$C.F. = \frac{\text{空ドラム缶の計数値}}{\text{廃棄物マトリクスの計数値}}$$

また、補正係数は、前述したとおりマトリクスの吸収能と減速能の関数として表せる。すなわち、

ここで、廃棄物マトリクスの吸収能はその巨視的吸収断面積に比例し、また減速は、軽元素との衝突により生じるが、その中でも特に中性子の質量にはほぼ等しい水素との衝突により、主に減速が生じるため、減速能は廃棄物マトリクスの水素密度に依存すると考えられる。このことからC.F.は、巨視的吸収断面積および、水素密度の関数として表せる。

#### 5. 廃棄物マトリクス補正係数の評価試験方法

マトリクス中に核種が均一に分布するときの補正係数を標準線源を用いた測定および、計算によりもとめ、吸収能および減速能との関係を評価する。

マトリクス補正係数をその試験体ごとに実測データよりもとめるため、マトリクス内24カ所について標準線源を設置し、アクティブ計数値を取得する。得られた計数値から、それぞれのマトリクスの体積加重平均値をもとめ、また同様にして、

空ドラム缶の体積加重平均値をもとめる。それらの比を測定から求めた廃棄物マトリクス補正係数(C.F.)とする。

$$C.F. = \frac{\text{空ドラム缶の体積加重平均値}}{\text{マトリクスの体積加重平均値}} \quad \dots \dots \dots (5)$$

また、廃棄物マトリクス補正係数は(3)、(4)式で表されることから、それと、吸収能および減速能との関係を評価する。

今回の試験では、核分裂の誘発に寄与する熱中性子(中性子発生装置により発生した高速中性子が、分析容器により減速された熱中性子)の廃棄物マトリクスによる吸収と、即発中性子のそれによる減速により、主に計数値に影響を与えると仮定する。これらの現象は、本測定法においては、独立した現象として扱うことができるため、(4)式は

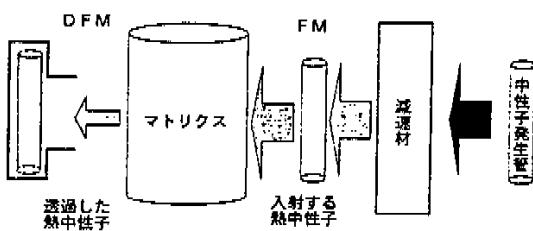
$$C.F. = f_1 \{ \text{吸收能 (巨視的吸收斷面積)} \} \\ \times f_2 \{ \text{減速能 (水素密度)} \} \quad \dots \dots \dots (6)$$

と表わすことができる。そこで本実験では、(6)式の  $f_1$ 、 $f_2$ について独立に評価し、最終的にC.F.をもとめた。

## 5.1 廃棄物マトリクス吸収能評価試験

照射中性子は、分析容器により減速され熱中性子となり、廃棄物マトリクスに入射し、その内部で吸収され、残りが漏れ出る。このとき、廃棄物マトリクスに入射する熱中性子とそこから漏れ出る熱中性子との比は、廃棄物マトリクスの吸収能に依存すると考えられる。この概念図を図6に示す。

ここでは、廃棄物マトリクスへ入射する熱中性子を計測するため、分析容器内上部に設置されたフランクスモニタを用い、マトリクスから漏れ出



$$\text{巨視的吸収断面積} = f \left( \frac{\text{入射する熱中性子}}{\text{透過した熱中性子}} \right) \\ = f \left( \frac{\text{F M計数値}}{\text{D E M計数値}} \right)$$

図 6 吸収能評価概念

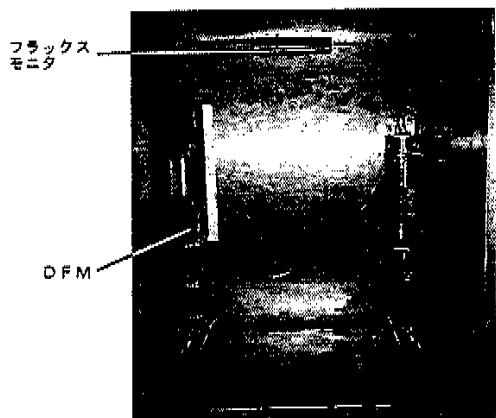


写真2 DFMの設置状況

る熱中性子を計測するため、カドミウム(Cd)コリメータを付加した<sup>3</sup>He比例計数管（ドラムフラックスモニタ；以下「DFM」という）を設置した。設置状況を写真2に示す。

DFMに用いたCdコリメータは、マトリクス内部を通過してマトリクスの外へ漏れ出る熱中性子だけを計測できるよう、<sup>3</sup>He比例計数管をCdの箱で覆い、また一方向から入射する熱中性子だけを計測できるように、Cdの箱の一面に窓を開けた。窓を開けただけでは広範囲から熱中性子が入射してしまうので、窓部に筒状のCdを付加し、熱中性子の入射範囲を制限した。また、ドラム缶表面で散乱し<sup>3</sup>He比例計数管に入射する熱中性子を低減するため、Cdの板をCdの箱の周辺に付加した。その状況を図7に示す。

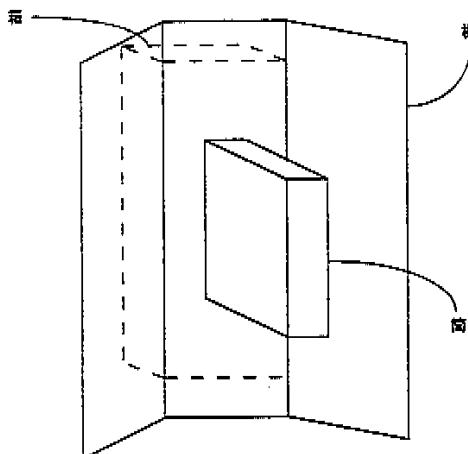


図7 Cdコリメータ

これらを用い、種々の廃棄物マトリクスについて

$$\text{吸収指数} = \text{FM計数値}/\text{DFM計数値} \dots\dots\dots(7)$$

を取得し、吸収指数と各廃棄物マトリクスの吸収能（巨視的吸収断面積）との関係を調査した。

### 5.2 廃棄物マトリクス減速能評価試験

廃棄物マトリクスの中性子減速能を評価する方法として、その外に中性子源を設置する方法について検討する。

分析容器内に付加中性子線源(<sup>252</sup>Cf)および廃棄物マトリクス詰めドラム缶を設置したとき、付加中性子線源から放出された高速中性子は、マトリクスにより減速され、減少する。このとき、高速中性子が減少する割合（以下「減少比」という）は、廃棄物マトリクスの減速能に依存すると考えられる。よって、減少比とその減速能との関係を関数として評価することにより、減少比から廃棄物マトリクスの減速能を評価することができる。その概念図を図8に示す。

本試験では、分析容器内に付加中性子線源およびマトリクスを設置し、シールド検出器により高速中性子を計測する。それらの設置状況を図9に示す。

空ドラム缶では高速中性子の減速を無視できることから、空ドラム缶で得られた計数値を基準にとり、減少比を、

$$\text{減少比} = \frac{\left[ \begin{array}{l} \text{マトリクス詰め} \\ \text{ドラム缶の計数値} \end{array} \right]}{\left( \begin{array}{l} \text{空ドラム缶での計数値} \end{array} \right)} \dots\dots\dots(8)$$

とし、廃棄物マトリクスの減速能との関係を評価する。

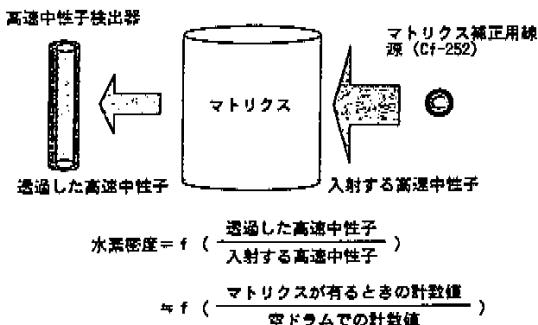


図8 マトリクス補正用線源による水素密度評価の概念

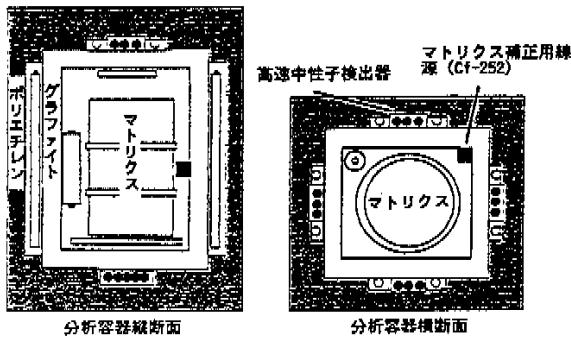


図9 マトリクス補正用線源 (Cf-252) 設置場所

## 6. 試験結果

### 6.1 廃棄物マトリクス吸収能評価試験結果

本実験で吸収能を評価する上で用いた廃棄物マトリクスは、空気、紙(密度: 0.05, 0.13, 0.48)、布(密度: 0.2)、ポリエチレン(密度: 0.14, 0.23, 0.55)、アスファルト(密度: 1.04)、塩化ビニル(密度: 0.1, 0.13, 0.2, 0.3)およびポリスチレン(密度: 0.65, 0.7, 0.75)である。(8)式で示したマトリクス詰めドラム缶の計数値、および空ドラム缶での計数値を、個々の廃棄物マトリクスについて取得し、それにより求めた減少比と、各廃棄物マトリクスの減速能(水素密度)の関係を図11に示す。ここで得られたデータにより減少比に対する減速能(水素密度)の関係をもとめる。減速能(水素密度)を $y_2$ 、減少比を $x_2$ とし、対数式を用いて回帰分析を行うと決定係数0.996により、

この式は巨視的吸収断面積が $0 \sim 4.61 \times 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$ の廃棄物マトリクスについて求めたものであり、これが吸収能評価の適用範囲と考えられる。また、可燃性廃棄物(密度: 0.3)、難燃性廃棄物(密度: 0.23)、アスファルト固化体、人工鉱物および金属鉄塊を含むものである。

### 6.2 廃棄物マトリクス減速能評価試験結果

本実験に於いて用いた廃棄物マトリクスは、空気、紙(密度: 0.13)、布(密度: 0.2)、ポリエチレン(密度: 0.14, 0.23, 0.55)、アスファルト(密度: 1.04)、塩化ビニル(密度: 0.1, 0.13, 0.2, 0.3)およびポリスチレン(密度: 0.65, 0.7, 0.75)である。(8)式で示したマトリクス詰めドラム缶の計数値、および空ドラム缶での計数値を、個々の廃棄物マトリクスについて取得し、それにより求めた減少比と、各廃棄物マトリクスの減速能(水素密度)の関係を図11に示す。ここで得られたデータにより減少比に対する減速能(水素密度)の関係をもとめる。減速能(水素密度)を $y_2$ 、減少比を $x_2$ とし、対数式を用いて回帰分析を行うと決定係数0.996により、

$$y_2 = -1.259 \ln(x_2 - 0.420) - 0.711 \quad \dots \dots \dots \quad (10)$$

の関係を得た。これにより減速能を±15%の誤差で評価できる。この式は、塩化ビニル(0.10)からアスファルトまでの減速能の範囲(水素原子密度:  $0.3 \times 10^{22} \sim 6.9 \times 10^{22} \text{ atoms/cm}^3$ )で求めたものであり、これが減速能評価の適用範囲と考えられる。

### 6.3 廃棄物マトリクス補正係数評価結果

ここまで求めた(9)式および(10)式を用いて、(6)式の関係を多変量解析をすることによりC.F.を求めた。その結果、

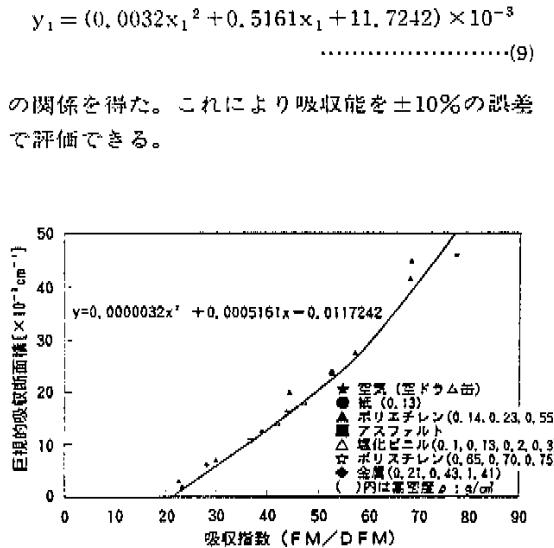


図10 巨視的吸収断面積に対する吸収指数(FM/DFM)

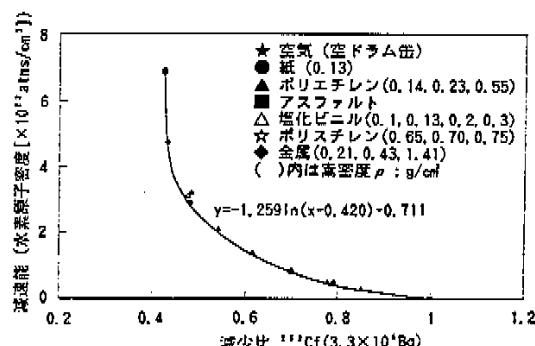


図11 減少比に対する減速能



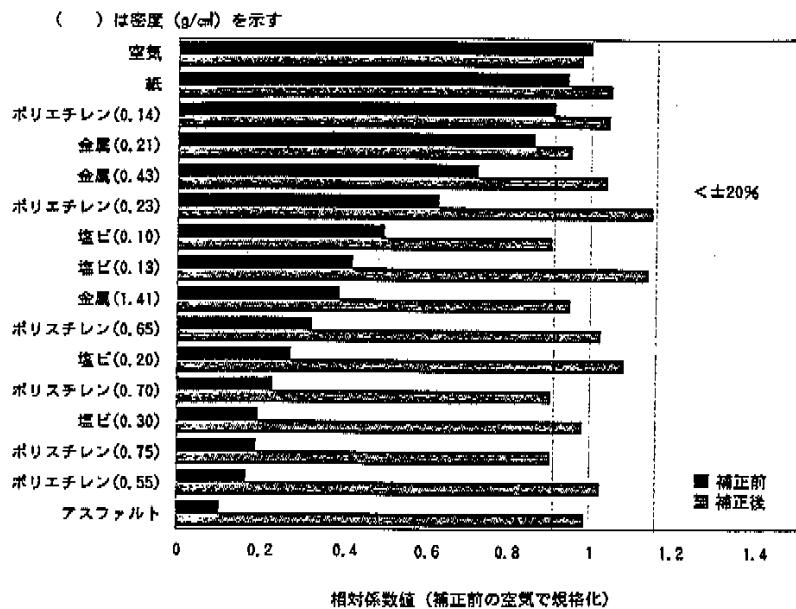


図12 補正係数の評価

各影響因子補正手法を組入れた測定システムの検討を、実用化に向けて行う必要がある。

## 参考文献

- 1) 大内廣、助川泰弘、他：“アクティブ中性子法によるTRU核種測定技術開発”動燃技報、80、P.39、(1991).
- 2) 大内廣、千葉皓史、他：“TRU廃棄物中Puの非破壊測定試験”動燃技報、61、P.81、(1987).
- 3) 助川泰弘、大内廣、他：“アクティブ中性子法によるTRU核種測定技術開発(I)”日本原子力学会「1991年秋の大会」予稿集P.607.
- 4) 萩井和也、助川泰弘、他：“アクティブ中性子法によるTRU核種測定技術開発 (II) - 廃棄物マトリクスの影響補正 - ”日本原子力学会「1994年秋の大会」予稿集（第二分冊）P.229.
- 5) 東村圭輔、田所秀明、他：“アクティブ中性子法によるTRU核種測定技術開発 (III) - 均質マトリクス補正手法の評価 - ”日本原子力学会「1996年春の年会」要旨集P.229.
- 6) ラマーシュ：“原子炉の初等理論”，吉岡書店
- 7) K.H. Beckurts, K. Wirthz: "Neutron Physics" Spring-Verlag Berlin/Göttingen/Heidelberg/New York (1964).
- 8) G. Robert Keeoin: "Physics of Nuclear Kinetics" Addison-Wesley Publishing Company, Inc.
- 9) M.L. Zoolian, a. Gibbs, et al.: "Expert System for Transuranic Waste Assay" WSRCC-RP-89-490, DEC 91.005110 .

動燃技報No103号正誤表

頁	誤	正
P62 表1 マトリクス下から5行目	ポリスチレンB (0.65)	ポリスチレンB ( <u>0.70</u> )
P62 表1 マトリクス下から4行目	ポリスチレンC (0.65)	ポリスチレンC ( <u>0.75</u> )
P65 (和文概要) 上から3行目	ジルカロイ金属粉	ジルカロイ金属粉 ( <u>ファイン</u> )
P66 右上から19行目	バルスフィルタフィルタ	<u>バルスフィルタ</u>
P66 右下から8行目	$\phi 101 \times 150 H$	$\phi 101 \times 150 H$ ( <u>単位:mm</u> )
P66 右下から6行目	$\phi 99 \times 123 H \times 0.3 t$	$\phi 99 \times 123 H \times 0.3 t$ ( <u>単位:mm</u> )
P71 左上から3行目	微少量となるとなる。	<u>微少量となる。</u>

お詫びとともに上記のように追加、訂正させていただきます。