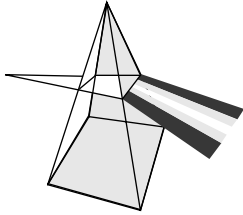


## 【技術報告】

# パッシブ中性子同時計数法による廃棄物コンテナ中Puの測定技術開発

## マトリックス効果補正式及び検量線の作成



館野 久夫 後藤 安志 小林 茂\*

東海事業所 プルトニウム燃料センター 環境保全部  
\*原子力技術株式会社

資料番号：10 - 6

Development of Technology to Assay Plutonium in Waste Containers Using the Passive Neutron Coincidence Method

- Creation of Correlated Equations for Matrix Effects and Plutonium Calibration for Waste Containers -

Hisao TATENO Yasushi GOTO Shigeru KOBAYASHI\*

Waste Management Division, Plutonium Fuel Center, Tokai Works

\*Nuclear Technology & Engineering Co., LTD.

東海事業所プルトニウム燃料センターは、廃棄物コンテナ中のプルトニウムを精度よく測定するために、パッシブ中性子同時計数法と高分解能線スペクトル分析法を備えたハイブリッド型のWaste Container Assay System (WCAS) 1号機を導入し特性試験を行った。

本機器の主要な誤差因子である廃棄物母材(マトリックス)効果の補正式及び検量線を求め、マトリックス効果補正式は $\pm 2.7\%$  ( $2\sigma$ )、検量線は $\pm 2.8\%$  ( $2\sigma$ )の誤差でフィッティングすることができた。その結果、WCAS 1号機は5～10%の精度でプルトニウム量を測定できる見通しを得た。

*The Plutonium Fuel Center at Tokai Works has developed a hybrid-type waste container assay system (WCAS)#1. The system utilizes the passive neutron coincidence method and high-resolution spectrometer accurately to assay the quantity of plutonium in waste containers. The center has also performed characterization examinations of this equipment.*

*The examinations revealed that the matrix effects correction equation and the plutonium calibration equation, these were the main assay uncertainty factors of this equipment, were within  $\pm 2.7\%$  ( $2\sigma$ ) error and  $\pm 2.8\%$  ( $2\sigma$ ) error, respectively. Consequently, this system was able to assay the quantity of plutonium within an accuracy of 5-10%.*

### キーワード

WCAS, Pu, 廃棄物コンテナ, パッシブ中性子同時計数法, 高分解能線スペクトル分析法, マトリックス効果補正式, 検量線

WCAS, Pu, Waste Container, Passive Neutron Coincidence Method, High-resolution Spectrometer, Matrix Effects Correction Equation, Pu Calibration Equation



館野 久夫



後藤 安志



小林 茂

### 1. はじめに

放射性固体廃棄物に含まれるプルトニウム量(以下、Pu量)の測定は、核物質計量管理・保障措置上必要である上に、取扱い時の安全性及び処理・処分にかかわる安全評価の上でも重要である。

放射性固体廃棄物の収納容器は200ドラム缶とコンテナ(1280mm<sup>L</sup> × 1280mm<sup>W</sup> × 1056mm<sup>H</sup>)に大別される。ドラム缶に収納した放射性固体廃棄物に含まれるPu量を測定する廃棄物ドラム非破壊測定装置(Waste Drum Assay System ; 以下、WDAS)は、既に実用化している<sup>1)</sup>。

東海事業所プルトニウム燃料センターは、WDASの使用実績を踏まえ、コンテナに収納した放射性固体廃棄物に含まれるPu量の測定用として廃棄物コンテナ非破壊測定装置(Waste Container Assay System; 以下、WCAS)を導入した。WCAS 1号機の導入に当たり、Pu量の測定精度は5～10%を目標とした。

このWCAS 1号機はプルトニウム燃料第三開発室に設置し、特性試験後、国及びIAEAのアクセプタンステストを経て計量管理機器及び査察機器として運用を開始した。

本報では、WCAS 1号機の概要と特性試験のうち放射性固体廃棄物に含まれるPu量測定の主要誤差因子である廃棄物母材(以下、マトリックス)による中性子散乱・吸収(以下、マトリックス効果)の補正式、及び検量線の作成とその試験方法について報告する。

## 2. 装置の概要

WCAS 1号機は、WDASの知見、経験を基に中性子測定(パッシブ中性子同時計数法)と、線測定(高分解能線スペクトル分析法)が同時に行われるハイブリット型測定装置である。

WCAS 1号機は、Pu量の測定精度向上のためWDASで使用実績があるマトリックス効果を補正する線源付加(Add-A-Source; 以下、AAS)法を組み込んだ<sup>2)</sup>。

なおAAS法とは、<sup>252</sup>Cf中性子線源を用い、廃棄物コンテナの外側に配置した<sup>252</sup>Cfからの中性子測定データを使って、未知のマトリックス効果を補

正する方法である。

### 2.1 概略構造

WCAS 1号機は、測定チェンバ<sup>252</sup>Cf線源貯蔵箱等を備えた本体と、コンピュータ等を収納した操作キャビネットから成り、その外観を図1に示す。

測定対象廃棄物コンテナの測定チェンバへの出し入れは、本体側面に取り付けたドア開閉制御スイッチの操作により行う。測定チェンバ内には、廃棄物コンテナの総重量を量るロードセルを組み込んでいる。

チェンバ内6面に設置された高密度ポリエチレンの中には、計64本の<sup>3</sup>He比例計数管(径:50.8, 内圧:4気圧)が埋め込まれている。チェンバには高密度ポリエチレンの損傷を抑えるためアルミニウム板が内張されている。

本体の両側面には、Pu同位体組成比を得るため、高純度ゲルマニウム(以下、HPGe)検出器4台及び検出器を冷却するための30液体窒素デュワー4台を据え付けている。HPGe検出器は、コンテナからの線を効率よく測定するために高さ方向で1/2、長さ方向で1/3及び2/3の位置に配置している。

<sup>252</sup>Cf線源は、テレフレックス製のケーブル先端に取り付け、チェンバ上部に設置した線源貯蔵箱からフライト管を通してコンテナの側面位置及び底面位置にコンピュータ制御で移動する。

操作キャビネットは、AASの制御及び測定データを収集するためのコンピュータシステム、中性

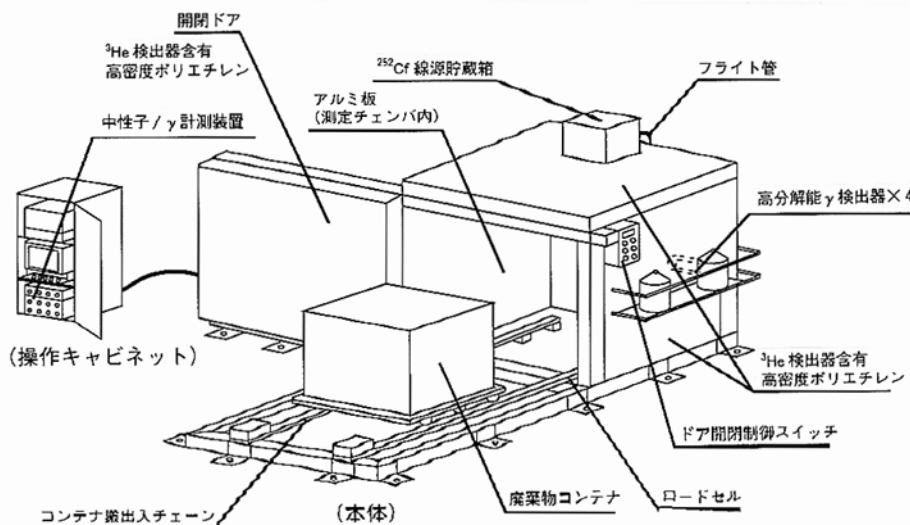


図1 WCAS 1号機の外観

子計数機器及び線計数機器を収納している。

## 2.2 測定原理

廃棄物コンテナ内の偶数Pu核種( $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ )から発生した自発核分裂性中性子(同時に2個以上の中中性子が発生)及び( $\gamma$ , n)反応で生じる単一中性子は、高密度ポリエチレン中で減速され熱中性子となる。熱中性子は $^3\text{He}$ 比例計数管内で $^3\text{He}$ 原子と反応し、その結果電気パルスが発生させる。これらのパルスは増幅器/弁別器で計数可能な形状に成型された後、中性子計数器へ送られる。中性子計数器の同時計数回路では全計数パルスから同時性中性子パルスを分別し、分別されたReal Countがコンピュータに送られReal Rateに変換される。

Real Rateは、図2に示すようにAAS法によってAAS補正係数(Correction Factor; 以下、CF)でマトリックス効果が補正される。

補正後のReal Rateは検量線を使ってPu実効質量(以下、 $^{240}\text{Pu eff}$ )に換算される。 $^{240}\text{Pu eff}$ は、中性子発生割合から $^{240}\text{Pu}$ 以外の核種を $^{240}\text{Pu}$ 量に

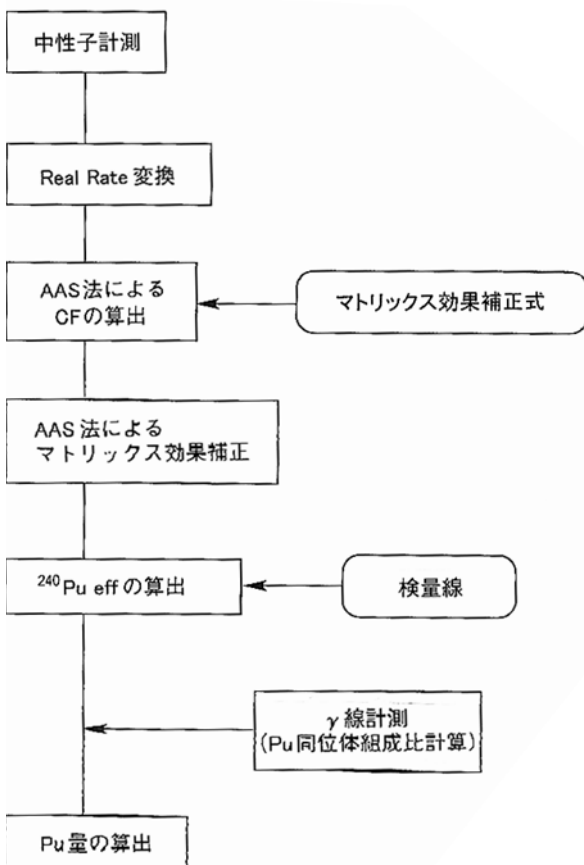


図2 測定概略フロー

換算したものである<sup>3)</sup>。

また、同時にHPGe検出器で得られた線スペクトルによりPu同位体組成比が計算され $^{240}\text{Pu eff}$ からPu量に変換する。

WCAS 1号機で使用するマトリックス効果補正及びPu量の算出アルゴリズムを以下に示す。

### (1) マトリックス効果補正

#### 1) マトリックス効果補正式の作成

マトリックス効果を補正するには、模擬廃棄物の種類や密度をパラメータにした試験で、マトリックス効果補正式 $y = f(x)$ を作成する。

まず、AAS perturbation(以下、AAS pert.)  $x$ とVolume Average perturbation(以下、Vol. Ave. pert.)  $y$ を求める。

AAS pert.  $x$ は、コンテナ外表面に配置したAAS  $^{252}\text{Cf}$ 線源の廃棄物マトリックスによる中性子吸収割合(マトリックス効果)を表し、(2-1)式で定義する<sup>2)</sup>。

$$x = \left[ \frac{R_{A0}}{R_A} - 1 \right] \quad \dots\dots (2-1)$$

$R_{A0}$  = 空コンテナに配置したAASのReal Rate

$R_A$  = 模擬廃棄物コンテナに配置したAASのReal Rate

Vol. Ave. pert.  $y$ は、コンテナ内に配置したPu標準試料の廃棄物マトリックスによる中性子吸収割合マトリックス効果を表し、(2-2)式で定義する<sup>2)</sup>。

$$y = \left[ \frac{R_{s0}}{R_s} - 1 \right] \quad \dots\dots (2-2)$$

$R_{s0}$ : 空コンテナに配置したPu標準試料のReal Rate

$R_s$ : 模擬廃棄物コンテナに配置したPu標準試料のReal Rate

試験で求めた $(x_i, y_i)$ を座標にプロットし、デミング法により $y = f(x)$ の近似曲線(マトリックス効果補正式)を得る。

$$y = f(x) \quad \dots\dots (2-3)$$

(2-3)式の作成については、3.1項及び4.1項に述べる<sup>2)</sup>。

#### 2) AAS法によるCFの算出

放射性固体廃棄物に含まれるPuからのReal Rateのマトリックス効果を補正するため、(2-3)式から実廃棄物コンテナのCFを以下の手順で求める。

図3に示す実廃棄物コンテナの $R_s$ を計測する。

次にAAS  $^{252}\text{Cf}$ 線源をコンテナ外表面に配

置し ( $R_S + R_A$ ) を計測する。

AAS  $^{252}\text{Cf}$ 線源からのReal Rate( $R_{A\text{ NET}}$ )を、(2-4)式から算出する。

$$R_{A\text{ NET}} = (R_S + R_A) - R_S \quad \dots\dots (2-4)$$

( $R_{A\text{ NET}}$ )を(2-1)式の $R_A$ に代入すると、 $R_{A0}$ は実験により既知であることから $x$ が求まり、(2-3)式の $f(x)$ が計算される。

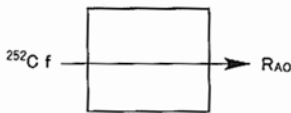
CFを(2-5)式で定義する<sup>2),4)</sup>。

$$CF = 1 + f(x) \quad \dots\dots (2-5)$$

3) AAS法によるマトリックス効果補正

[ $x$  (AAS perturbation)の求め方]

空コンテナ



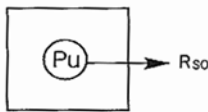
模擬廃棄物コンテナ



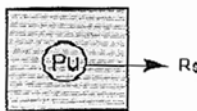
$$x = \frac{R_{A0}}{R_A} - 1$$

[ $y$  (Volume Average perturbation)の求め方]

空コンテナ



模擬廃棄物コンテナ



$$y = \frac{R_{S0}}{R_S} - 1$$

Pu : Pu標準試料

[WGAS #1における放射性固体廃棄物の測定]

実廃棄物コンテナ

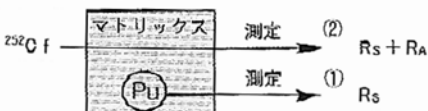


図3 AASキャリブレーション測定原理

実廃棄物コンテナから得られたReal Rate( $R_S$ )のマトリックス効果を(2-6)式で補正する<sup>2)</sup>。

$$R_{\text{corr}} = R_S \times CF \quad \dots\dots (2-6)$$

$R_{\text{corr}}$  = マトリックス効果を補正したReal Rate

(2) Pu量の算出

1)  $^{240}\text{Pu}$  effの算出

(2-6)式の $R_{\text{corr}}$ から検量線を用いて $^{240}\text{Pu}$  effを(2-7)式で算出する。

$$^{240}\text{Pu eff}(g) = R_{\text{corr}} / a \quad \dots\dots (2-7)$$

$a$  : 検量線の傾き(cps/g $^{240}\text{Pu}$  eff)

検量線の作成については、3.2項及び4.2項に述べる<sup>2)</sup>。

2) Pu量の算出

Pu量は同時測定した線スペクトルから計算したPu同位体組成比と(2-7)式で得られた $^{240}\text{Pu}$  effから(2-8)式により算出する。

$$Pu(g) = \frac{^{240}\text{Pu eff}(g)}{\{ 2.52 \times ^{238}\text{Pu}(\text{wt}\%) + ^{240}\text{Pu}(\text{wt}\%) + 1.68 \times ^{242}\text{Pu}(\text{wt}\%) \}} \times 100 \quad \dots\dots (2-8)$$

2.52:  $^{240}\text{Pu}$ に対する $^{238}\text{Pu}$ の自発核分裂中性子発生数の比  
1.68:  $^{240}\text{Pu}$ に対する $^{242}\text{Pu}$ の自発核分裂中性子発生数の比

3. 試験方法

3.1 AASキャリブレーション

WCASの測定対象物である廃棄物コンテナは以下の特徴を有する。

容量がドラム缶の約5倍と大きく、廃棄物の重量は約20倍と多い。

マトリックスが多種多様である。

廃棄物コンテナ内で発生する中性子の中には、マトリックスに含まれる水素等に散乱・吸収され計数されないものがある。このマトリックス効果の度合は、マトリックスの種類・密度等に依存する。したがって模擬廃棄物を使って、これらマトリックス効果による補正式を求めた。

(1) マトリックスの調整

実廃棄物コンテナに収納される放射性固体廃棄物は、木片類・プラスチック類・ポリ塩化ビニル(PVC)類及び金属類に分類される。

試験では、AAS pert.値の異なる7基の模擬廃棄物コンテナを用いた。

補正式の誤差を小さくするためには、模擬マトリックスの選定やコンテナ内での密度等が重要で

表1 試験に使用した模擬マトリックス

コンテナ	マトリックス						AAS Pert.
	高密度ポリエチレン	ポリウレタン	ビニルバック	酢酸ビニル	鉄		
					鋼材	線源セツトパイプ	
A	無	無	無	無	無	○	0.000
B	無	無	○	○	○	○	0.179
C	無	○	○	○	○	○	0.266
D	無	○	○	○	○	○	0.418
E	無	○	○	○	○	○	0.451
F	○	○	○	○	○	○	0.764
G	○	○	○	○	○	○	0.870

ある。

使用した模擬マトリックスの種類を表1に示す。

マトリックスは、高密度ポリエチレン、ポリウレタン、ビニルバック、酢酸ビニル及び鉄を選択し、それらの混合体をコンテナ内に均一に分布するようにアレンジした。模擬廃棄物コンテナ内には、短尺燃料棒形状のPu標準試料を収める鉄製の線源パイプを図4に示すように16箇所配置した。

## (2) 試験条件

Pu標準試料の配置は、廃棄物に含まれるPuはコンテナ内に均一に分布していると仮定し、それを模擬するため、コンテナを上面方向から見て16分割した中心位置に、またコンテナの高さ方向についてもその中心位置とし、それぞれのPu標準試

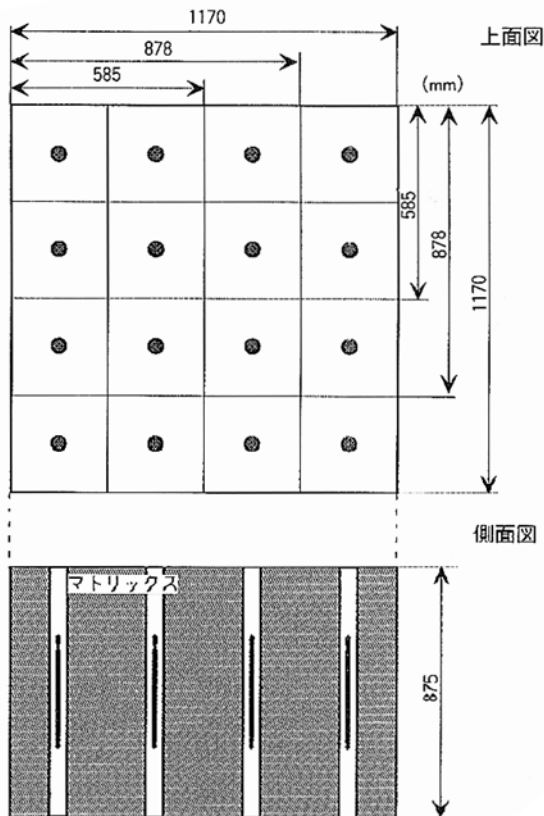


図4 AASキャリブレーションPu標準試料の位置

料がその体積を代表するものとした。またPu標準試料の選定は、試料の中性子増倍にかかわる誤差を考慮した。

Pu標準試料の配置を図4に示す。

Pu標準試料

16g / コンテナ (1g × 16本)

測定時間

Pu標準試料：1000秒 (100秒 × 10回)

AAS：500秒 (100秒 × 5回) × 2 Position

繰返し測定回数

各測定時間 × 3回

## 3.2 Puキャリブレーション

廃棄物に含まれる少量のPuは、コンテナ内に均一に分布していると仮定する。よって、中性子増倍はゼロに等しいため、同時計数法におけるReal RateとPu量は相関があると見なすことができる。

空コンテナ内に、Pu量が既知のPu標準試料を配置して測定したReal Rateと<sup>240</sup>Pu effの相関一次式を検量線といい、これを求めることが本試験の目的である。

### (1) 試験条件

Pu標準線源は空コンテナをPu標準線源の数量に応じて、上面方向から見て16分割及び4分割しその中心位置に、またコンテナ高さ方向についてもその中心位置に配置した。

Pu標準試料の選定は、想定される実廃棄物コンテナ中のPu量が0～100g程度であることからPuキャリブレーションによる検量線は120g/コンテナまでのPu標準線源を用いて作成した。

Pu標準試料の配置を図5に示す。

Pu標準試料

a：16g/コンテナ (1g × 16本)

b：48g/コンテナ (12g × 4本)

c：96g/コンテナ (12g × 8本)

d：120g/コンテナ (12g × 10本)

各測定時間：1200秒 (60秒 × 20回)

## 4. 試験結果

### 4.1 AASキャリブレーション

7基のコンテナを用いて算出した7個のAAS pert.xとVol. Ave. pert.yを表2に示す。AAS pert.はAASの側面位置データ及び底面位置データを平均した。

AAS pert.とVol. Ave. pert.は表2のデータから(2-3)式にフィッティングして、その係数を求めた。

図6に両変数(x<sub>i</sub>, y<sub>i</sub>)をプロットして作図した

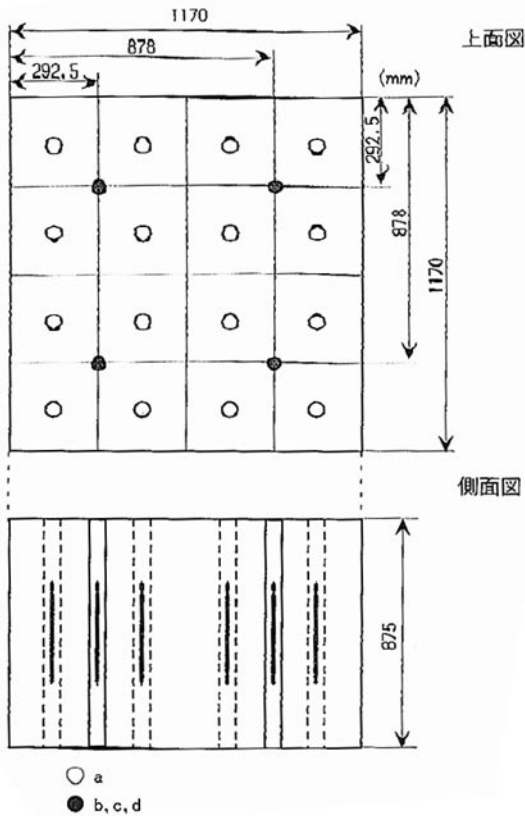


図5 PuキャリブレーションPu標準試料の位置

AASキャリブレーションカーブ(マトリックス効果補正式)を示す。その結果得られた回帰係数a, b, cを表3に示す。

AASキャリブレーションカーブの誤差を残差平方和で求めると±2.7%(2)である。

また、求められたマトリックス効果補正式を使ったCFの精度評価のため、模擬廃棄物の入ったコンテナを製作し、実廃棄物コンテナと同じ測定体系でReal Rateを求めた。模擬廃棄物コンテナは、中性子吸収材の量(AAS pert.)をパラメータとして空コンテナを含み7基のコンテナを測定した。

測定条件を以下に示す。

模擬廃棄物コンテナ

AAS pert. : 0.00, 0.19, 0.28, 0.40, 0.43, 0.74, 0.86

Pu標準試料

16g / コンテナ (1g × 16本)

測定時間

Pu標準試料 : 1000秒 (100秒 × 10回)

AAS : 500秒 (100秒 × 5回) × 2 Position

7基の模擬廃棄物コンテナのReal Rate(CF補正前後)を、図7に示す。

その結果、Real Rateは空コンテナに対し±4%以内に補正された。

表2 AASキャリブレーション測定結果

コンテナ	AAS Perturbation (x)		Volume Average Perturbation (y)	
A	0.000	±0.004	0.000	±0.038
B	0.179	±0.004	0.134	±0.041
C	0.266	±0.005	0.271	±0.047
D	0.418	±0.004	0.659	±0.055
E	0.451	±0.006	0.771	±0.057
F	0.764	±0.006	2.242	±0.143
G	0.870	±0.006	2.910	±0.154

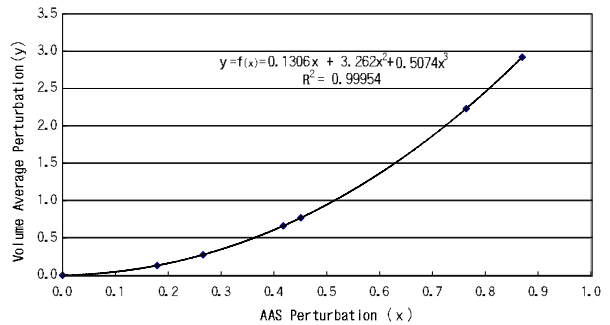


図6 AASキャリブレーションカーブ

表3 AASキャリブレーションカーブ係数

回帰係数	$y = ax+bx^2+cx^3$
a	$0.1306 \pm 0.0367$
b	$3.2620 \pm 0.1489$
c	$0.5074 \pm 0.1325$

表4 PuキャリブレーションPu標準試料測定結果

標準線源	Pu量(g) (核減衰補正後)	<sup>240</sup> Pu eff (g)	Real Rate (CPS)	σ (CPS)
120g-Pu	122.4	44.77	475.38	7.41
96g-Pu	97.9	35.80	376.53	5.76
48g-Pu	49.0	17.92	189.02	3.91
16g-Pu	17.4	6.36	65.61	1.12
	17.4	6.36	66.03	0.73

#### 4.2 Puキャリブレーション

Pu標準試料測定におけるReal Rate及びPu標準試料の<sup>240</sup>Pu effを表4に、検量線を図8に示す。

本試験において使用したPu標準試料は最大が12gで細長い形状のため中性子増倍はないものとした。したがって、検量線は(2-7)式で表され、傾きは10.57が得られた。

また、検量線の誤差を残差平方和で求めると±2.8%(2)である。

#### 5. おわりに

WCAS 1号機のマトリックス効果補正式及び検量線を求める試験を行い以下の結果を得た。

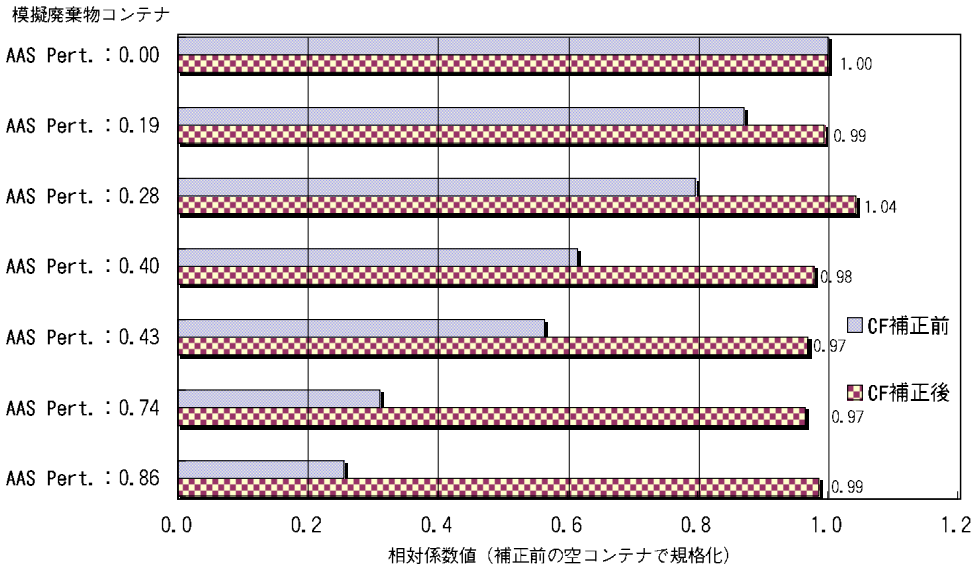


図7 補正係数の評価

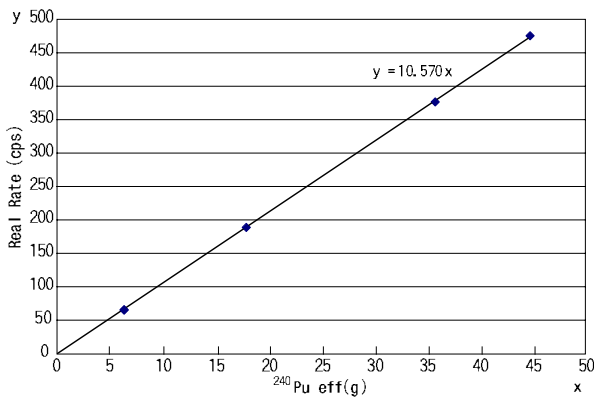


図8 検量線

- (1) マトリックス効果補正式として $y = f(x) = 0.1306x + 3.2620x^2 + 0.5074x^3$ を得、そのフィッティング誤差は $\pm 2.7\%$ (2)であった。これにより補正式誤差及び計測誤差を含むCFは、約 $\pm 4\%$ の精度が確保できる見通しを得た。

- (2) 検量線として $R_{\text{corr}} = 10.57 \times m$ を得、そのフィッティング誤差は $\pm 2.8\%$ (2)であった。
- (3) WCAS 1号機のPu量測定精度は、誤差の大部分が、CFの誤差と検量線のフィッティング誤差であることから目標の5~10%を達成できる見通しを得た。
- (4) 模擬廃棄物マトリックスの選定、これらのコンテナ内への配置及びPu標準試料の配置等の試験条件の妥当性を確認できた。

## 参考文献

- 1) 寺門 茂, 古川 登 他: “プルトニウムの非破壊測定技術の開発(1)”, 原子力学会「1996春の年会」要旨集, p.704 (1996).
- 2) H.O.Menlove, J.Baca, et al.: WDAS Operation Manual Including the Add-A-Source Function, LA-12292-M (1992).
- 3) N.Ensslin: Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Chapter 16: Principles of Neutron Coincidence Counting, NUREG/CR-5550, LA-UR-90-732 (1991).
- 4) D.R.Mayo, H.O.Menlove, et al.: Nondestructive Assay Tests of High-Efficiency Neutron Counter(HENC)for Waste Assay and Possible Scenario, LA-13418-MS, UC-700 (1998).