

2013/12/4

中性子イメージング専門研究会

京大炉ライナックを用いた 非破壊定量分析に関する基礎研究

京都大学原子炉実験所

○堀 順一、佐野 忠史、高橋 佳之、
宇根崎 博信、中島 健

研究の背景

福島第一原子力発電所(1~3号機)では炉心溶融事故により、炉内に核燃料、被覆管材、制御材等が溶融、混合した**燃料溶融物(燃料デブリ)**が**不均一**に存在



適切な管理と廃止措置のためには、燃料デブリ中の核種濃度分布情報が必要
特に、**核燃料物質(U, Pu)の定量**は、**臨界安全、保障措置の観点**から重要

放射性物質の分析・研究施設の基本的な考え方及び立地場所に関する技術的要件(案)

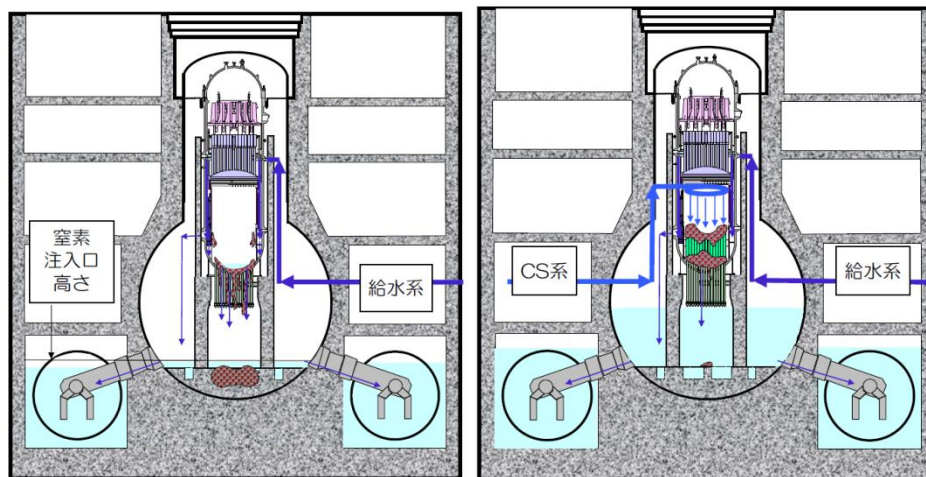
平成25年11月14日
東京電力福島第一原子力発電所
廃炉対策推進会議

1. 放射性物質の分析・研究施設の基本的な考え方

中長期ロードマップに従い、放射性物質の分析・研究に関する技術基盤を確立するとともに、東京電力福島第一原子力発電所の廃炉に向けた研究開発を着実に実施するため、放射性物質の分析・研究施設を整備する。

放射性物質の分析・研究施設では、燃料デブリや放射性廃棄物などに含まれる難測定核種分析手法等の開発や、燃料デブリや汚染水処理後の二次廃棄物等の性状把握、処理・処分技術等の開発等を行う。なお、環境放射線量等の立地環境に鑑みて、施設の一部について、より低線量かつ主要な施設からのアクセスが良好な、他の場所に整備することも同時に検討する。

出典)廃炉対策推進会議議事録より転用



1号機の炉心状況推定図 3号機の炉心状況推定図
出典)東京電力HPより転用

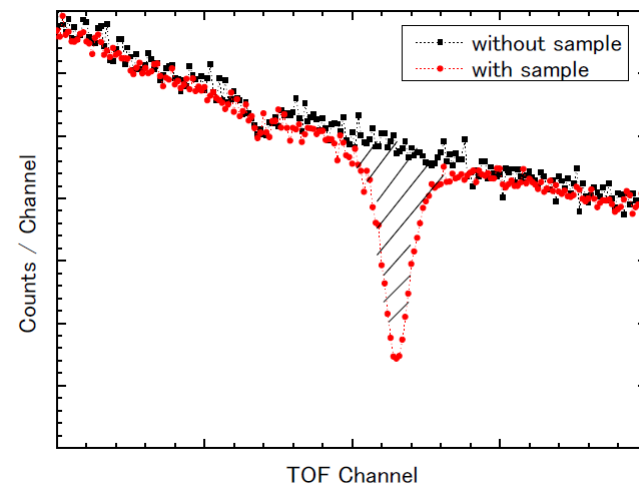
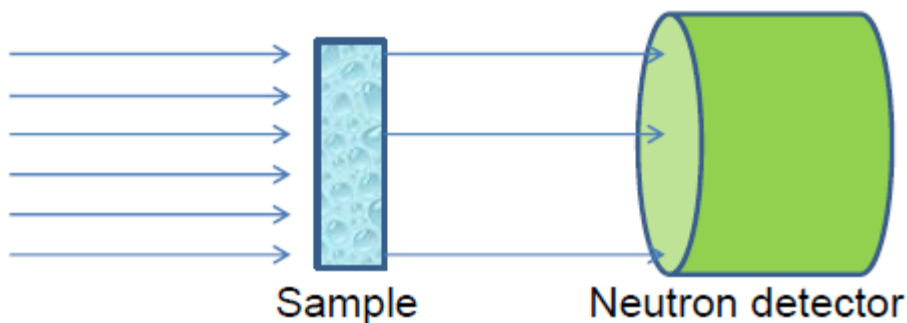
核種固有の共鳴吸収に注目した**パルス中性子**による**非破壊分析手法**の適用を検討

京大炉ライナック：
核燃料物質を使用できる国内唯一の
パルス中性子源施設

Neutron Resonance Densitometry (NRD)

Neutron Resonance Transmission Analysis (NRTA)

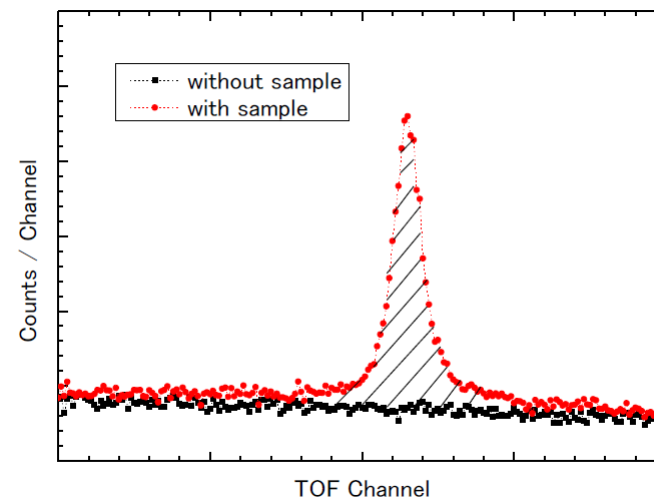
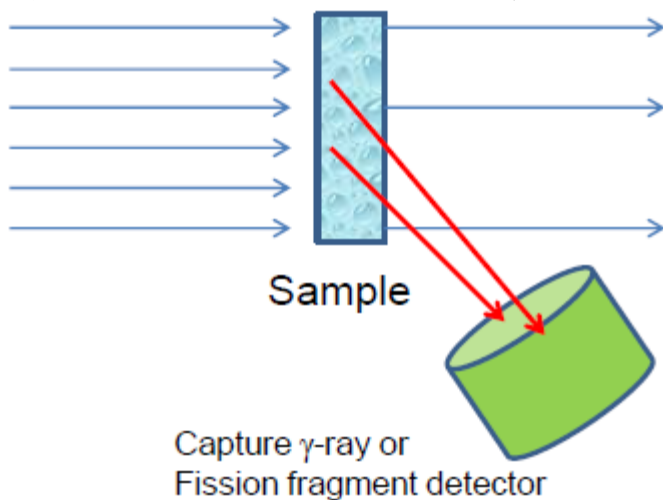
共鳴吸収による透過中性子の変化量から定量する方法



複数の未知核種から成る試料の場合、TOFスペクトルに観測されるdipは複雑な構造を持つ。
→ 核種の同定と定量が困難。

Neutron Resonance Capture Analysis (NRCA)

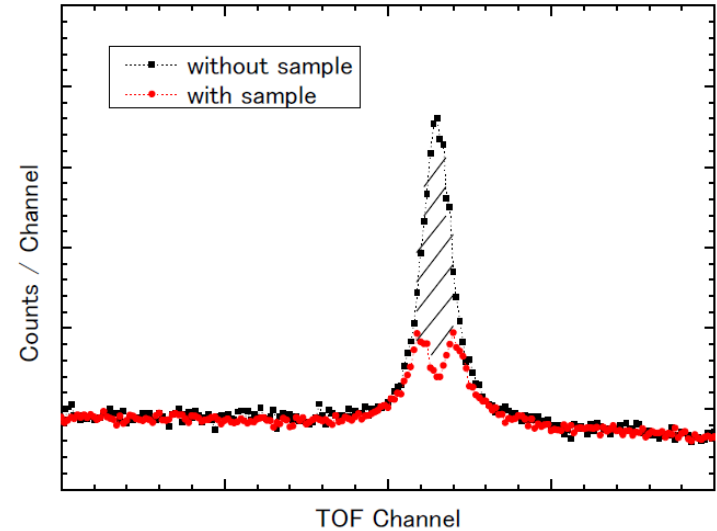
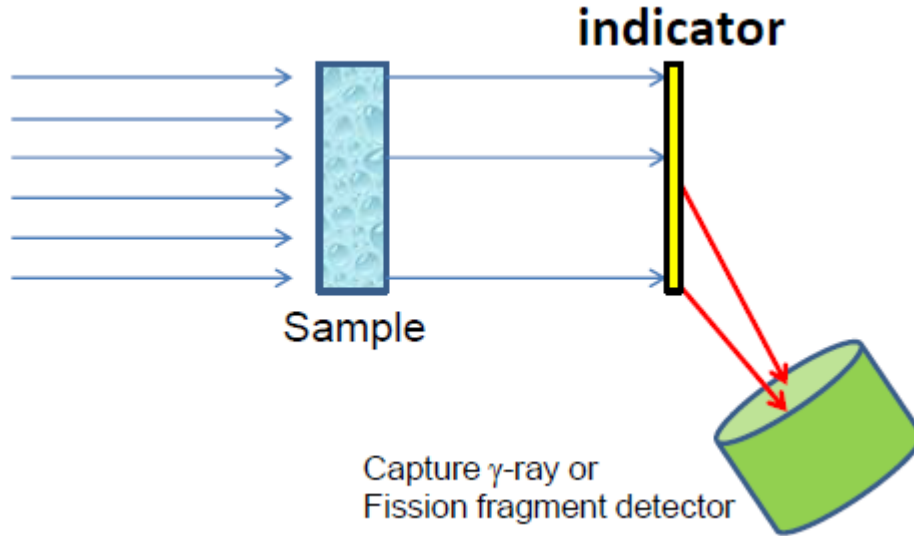
共鳴吸収からの反応生成物(捕獲ガンマ線等)の変化量から定量する方法



放射能を有する試料の場合、崩壊 γ 線によってバックグラウンド、dead time大 → 測定が困難

新たな定量手法を提案

Self-indication method



測定対象核種から成るindicatorを試料下流側に配置

Indicatorからの反応生成物を測定することによって間接的に透過中性子を測定

- ・測定対象の共鳴部分のみ高感度な測定が可能 → 不純物の影響を低減
- ・試料から離れた位置での測定が可能 → 試料自身の放射能の影響 無

本研究の目的

- ・燃料デブリのように放射能が高く複数核種から成る試料の分析にSelf-indication法が有効であることを実験的に検証
- ・核種選択型中性子イメージングへのSelf-indication法の適用の可能性を検討

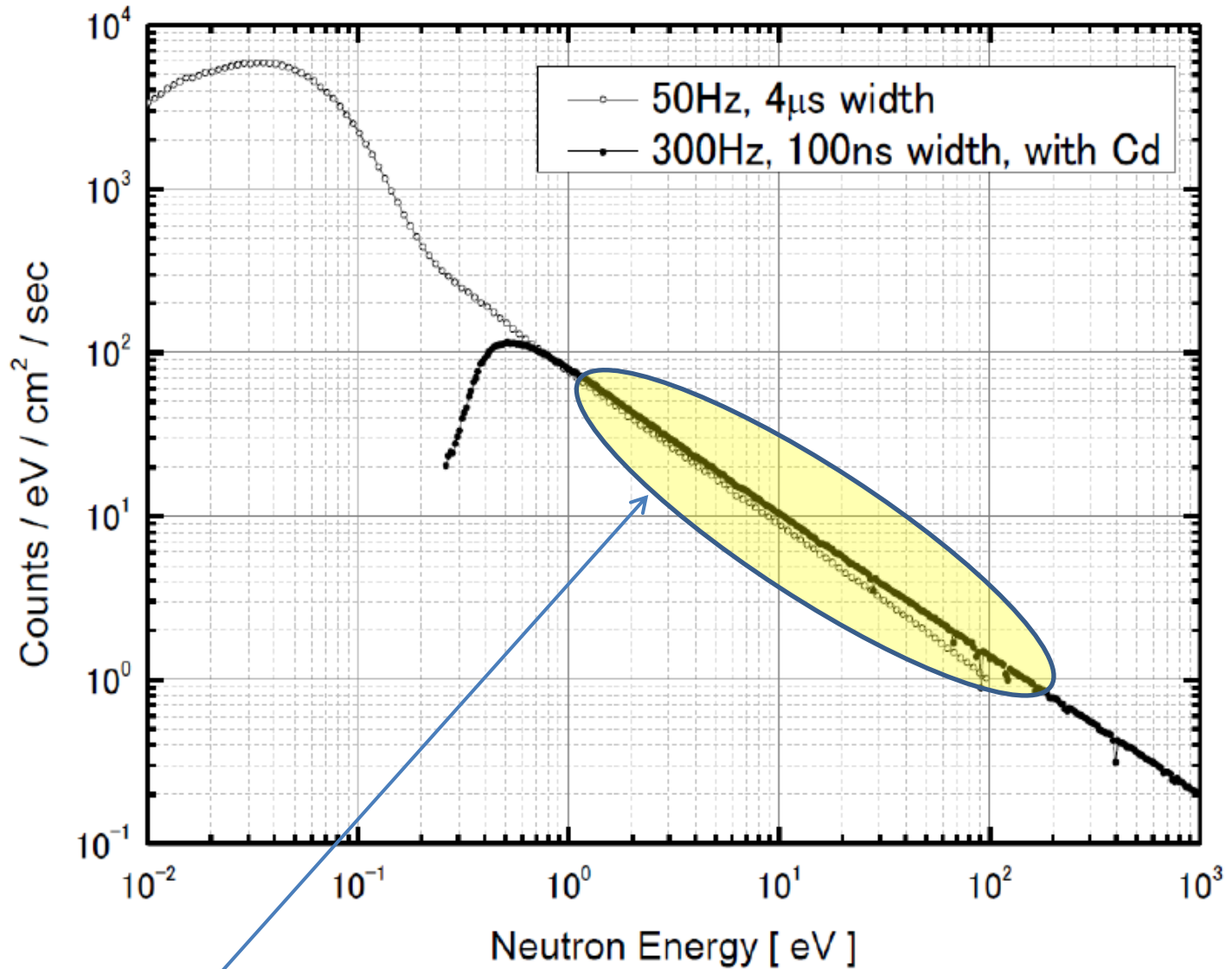
実験

京都大学原子炉実験所電子ライナック

京大炉ライナックのスペック

京大炉ライナックのスペック			
周波数帯域	バンド(1300.8MHz)		
加速管	2本(No.1:2.500m,No.2:1.845m)		
運転モード	定常モード(Longモード)	過渡モード(Shortモード)	
		MOSFET	アバランシェ
パルス幅	0.1~4.0 μ s	33・47・68・100 ns	2・5・10・15・22 ns +シングルバンチ
エネルギー	6~32MeV (低エネルギー可)	30~46 MeV	
繰り返し	1~100 Hz (間引き運転で1 Hz未満も可能)	1~300 Hz (間引き運転で1 Hz未満も可能)	
ピーク電流	~0.55A	~6A	
平均電流	最大200 μ A前後	最大100 μ A前後	
出力	~6 kW	~3 kW	

中性子フラックス(L=12.7m)



(特徴)パルス幅を狭くしてもロングモードと同等なフラックスが得られる
→ 熱外中性子領域のイメージングに最適

実験① Self-indication法の検証実験

1) 厚さが既知のAu箔

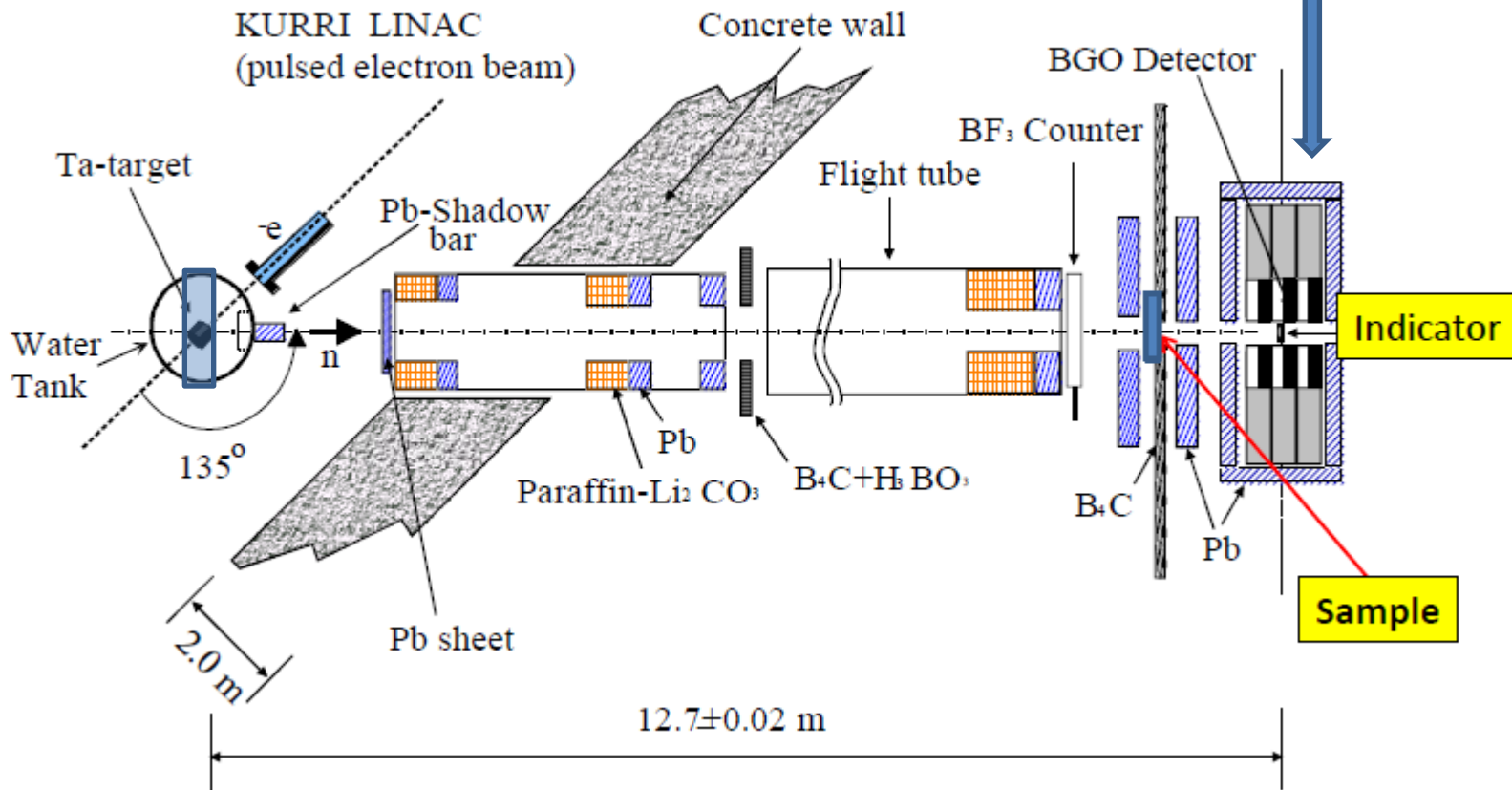
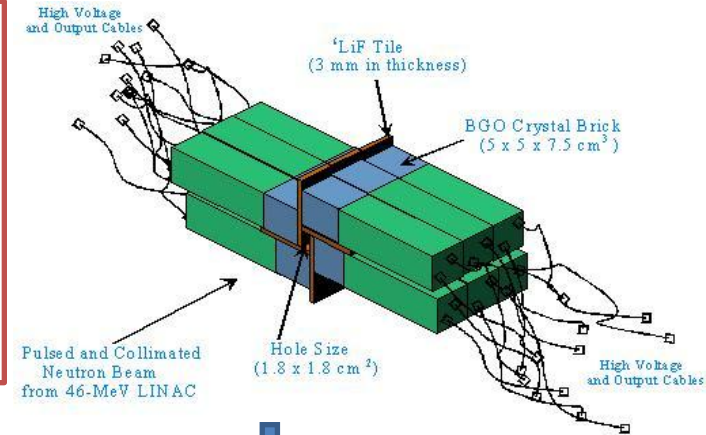
Sample: Au 10, 20, 30, 40, 50 μm t,

Indicator: thick ^{10}B 8mmt (NRTA) or Au 50 μm t(Self-indication)

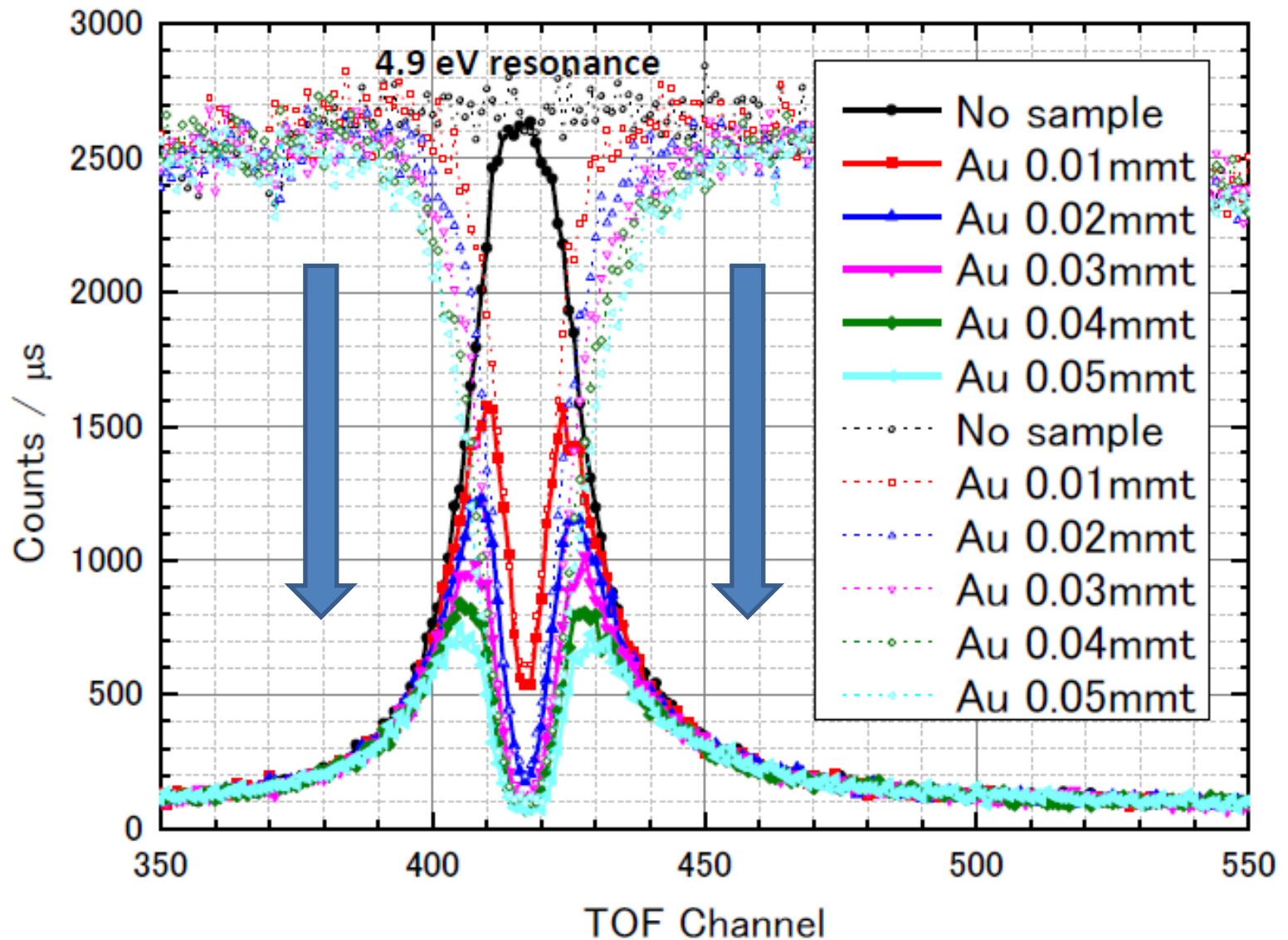
2) 不純物が混入した核燃料物質を模擬

Sample: $^{\text{nat}}\text{U}$ (5g) + ^{237}Np (26MBq, 1g) + ^{243}Am (870MBq, 0.13g)

Indicator: thick ^{10}B 8mmt (NRTA) or $^{\text{nat}}\text{U}$ 5g(Self-indication)



1) Au測定 TOFスペクトル



Self-indication法では非共鳴領域の計数が抑制されていることを確認

定量法

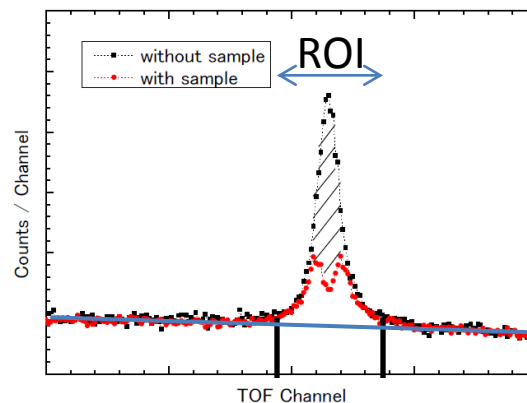
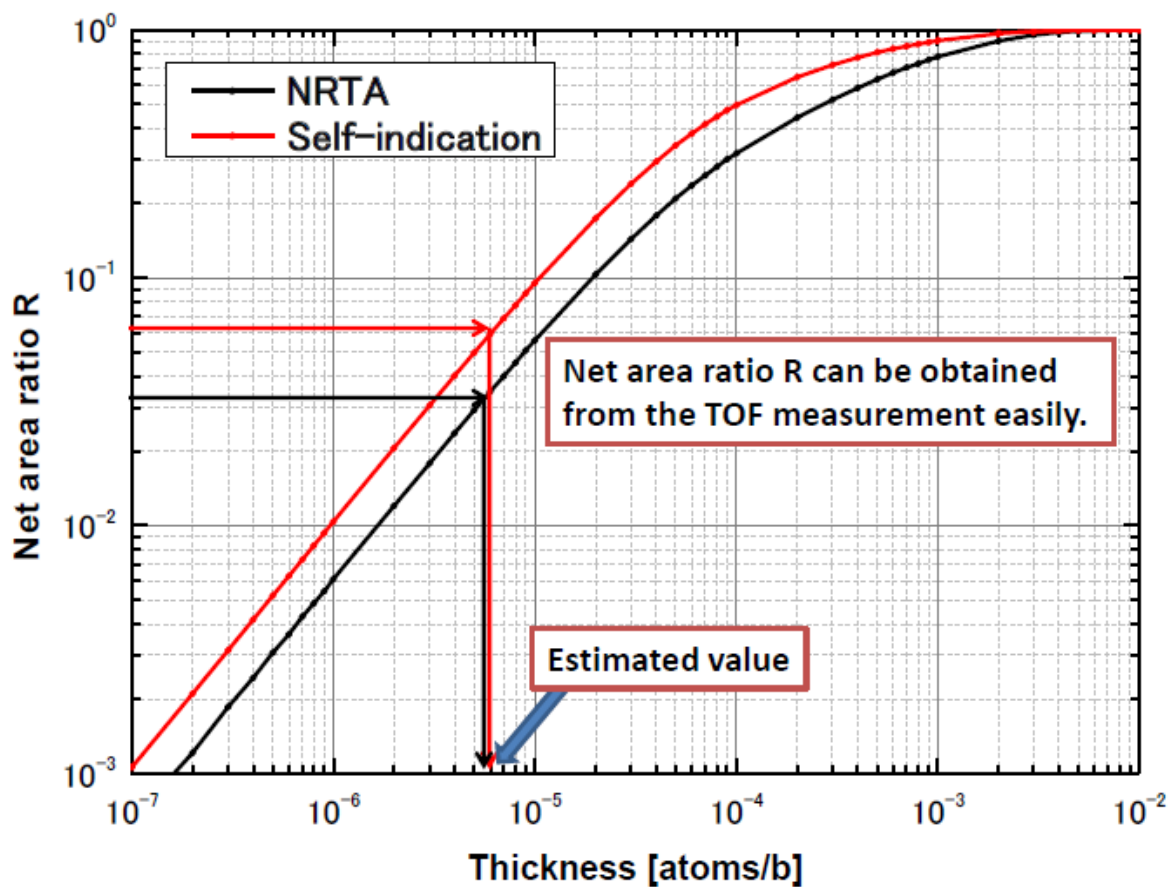
$$R = (C_{Blank} - C_{sample}) / C_{Blank}$$

共鳴近傍にROIを設定

C_{blank} : 上流に試料を置かない測定 of 正味の計数率

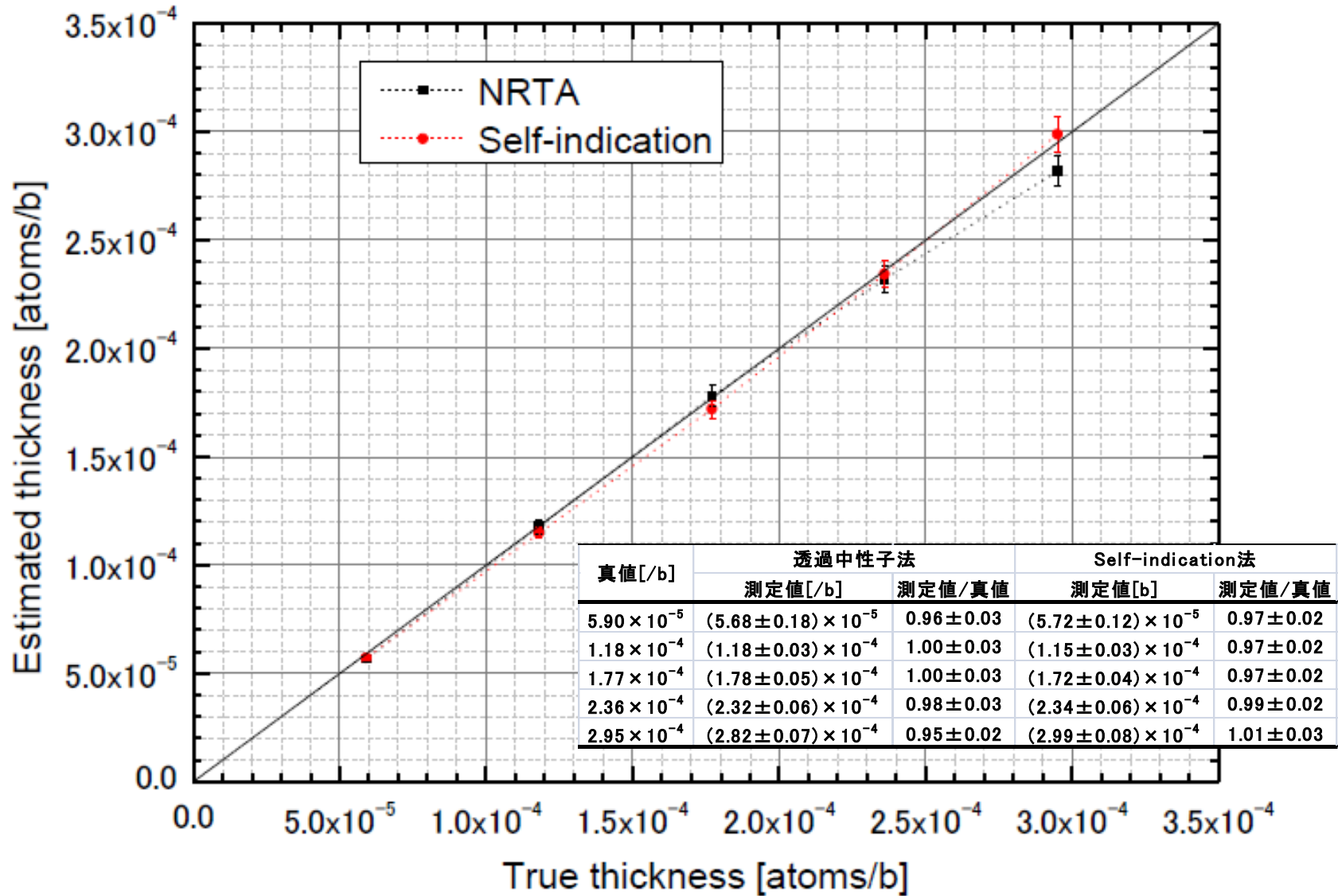
C_{sample} : 上流に試料を置いた測定 of 正味の計数率

Rは全断面積と捕獲断面積が既知なら厚さの関数として求められる。



簡便なArea analysisによって
定量可能 (fitting不要)

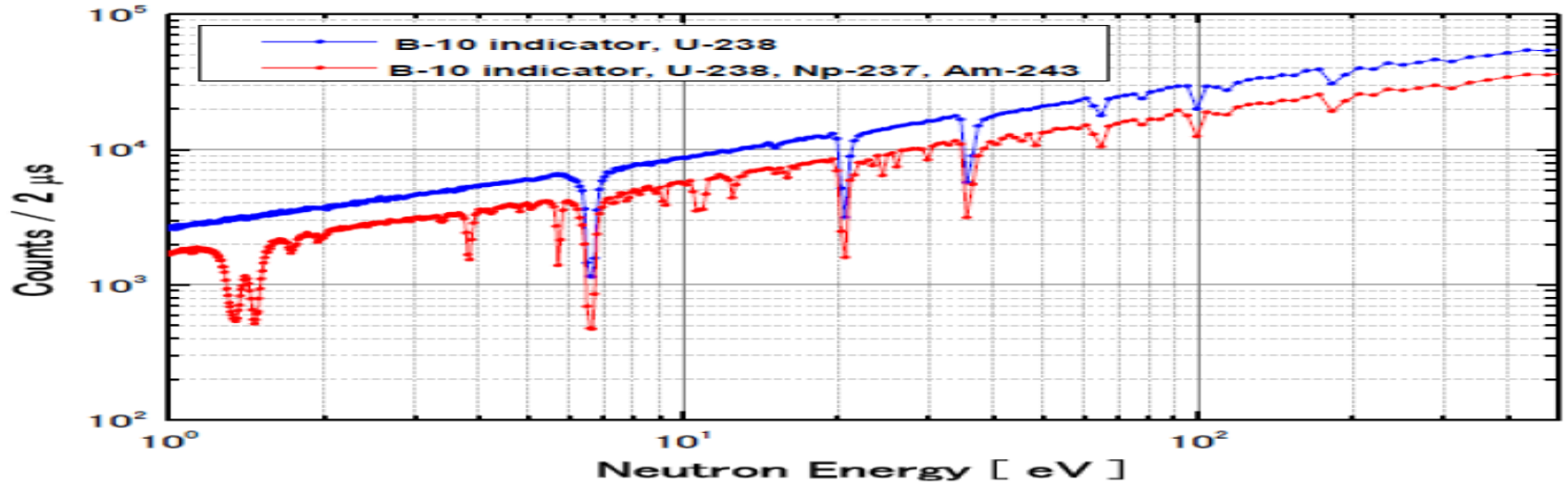
定量結果



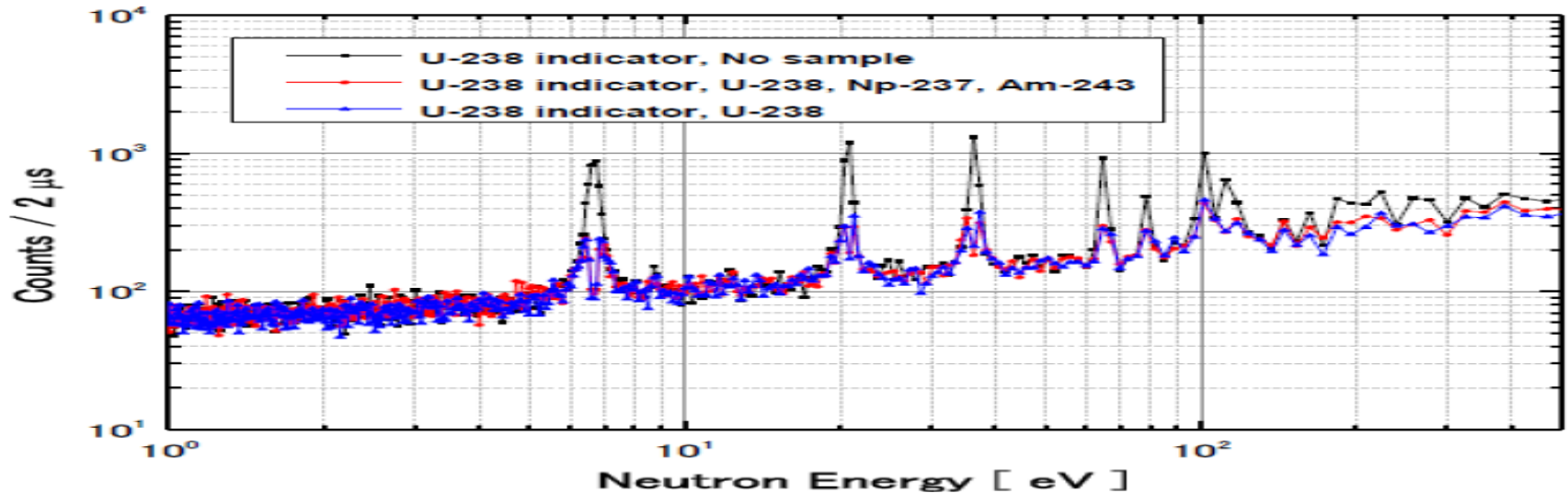
金の4.9 eV共鳴を用いて定量したところ、Self-indication法では3%以内の精度で厚さを決定できた。

2) U測定 TOFスペクトル

NRTA



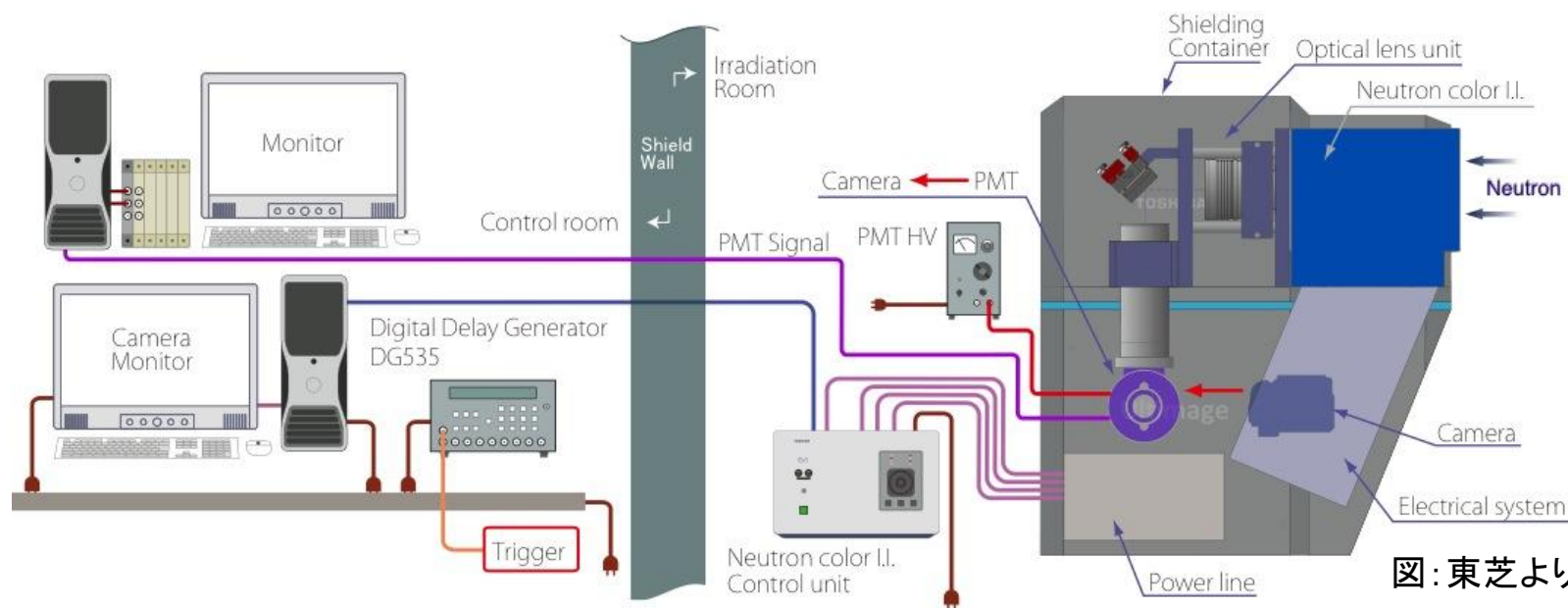
Self-indication



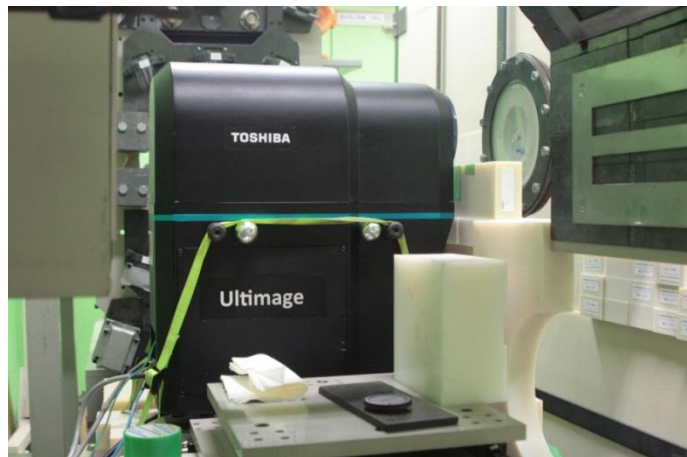
Self-indication法では不純物の ^{237}Np , ^{243}Am の影響をほとんど受けないことを確認¹²

実験② 中性子イメージング予備実験

中性子カラーI.I.によるイメージングに向けた基礎データを得るために中性子I.I.カメラ部分をPMTに変更



図：東芝より提供



中性子カラーI.I.

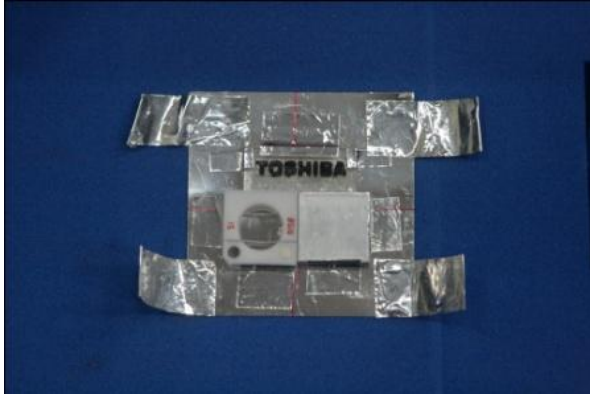
入力反応面： $^{10}\text{B}_4\text{C}$ をアルミニウム基板に蒸着
その上にCsIを形成

出力蛍光面：短残光（約 $5\mu\text{s}$ ） Y_2SiO_5 、ブランキング撮影可

L=10 mのビームラインを使用

- ・ASTMインジケータ撮影
- ・PMT出力のTOF測定

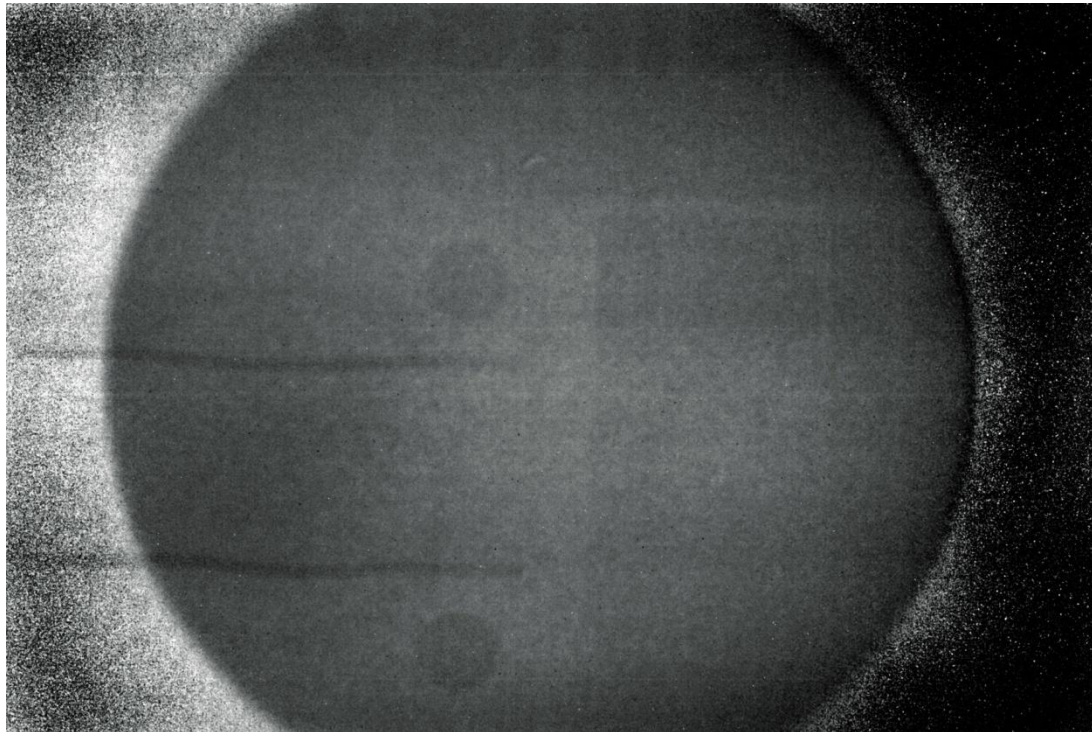
ASTMインジケータ撮影



ASTMサンプル

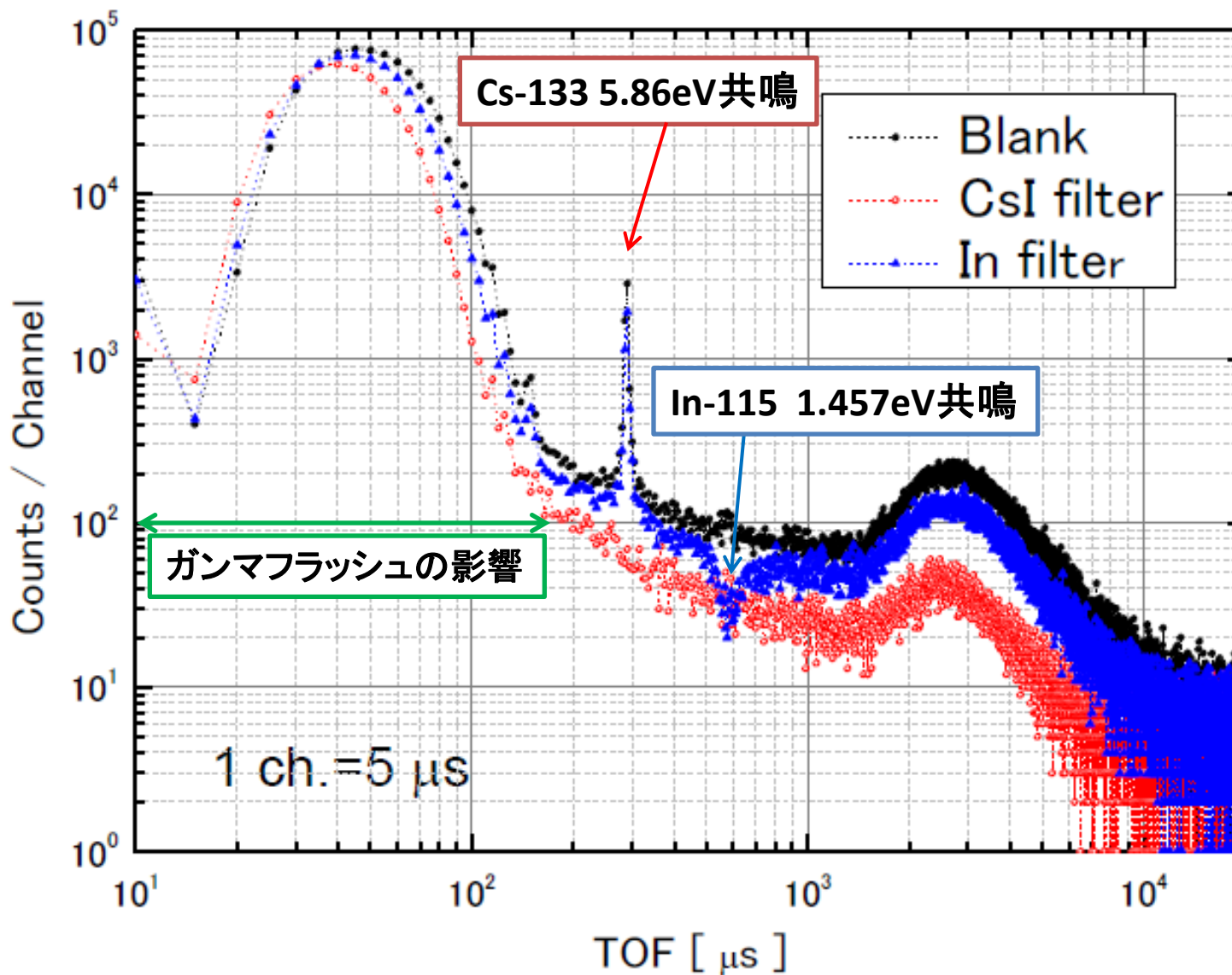
ブランキング機能により
ガンマフラッシュの影響を抑えた
全時間領域を撮影
撮影対象とインジケータなしの
ブランク撮影との比をとる

撮影時間: 各30分



明確ではないが、インジケータの形状を確認

PMT出力のTOFスペクトル



入力反応面の発光体CsIがself-indicatorとして機能していることを確認

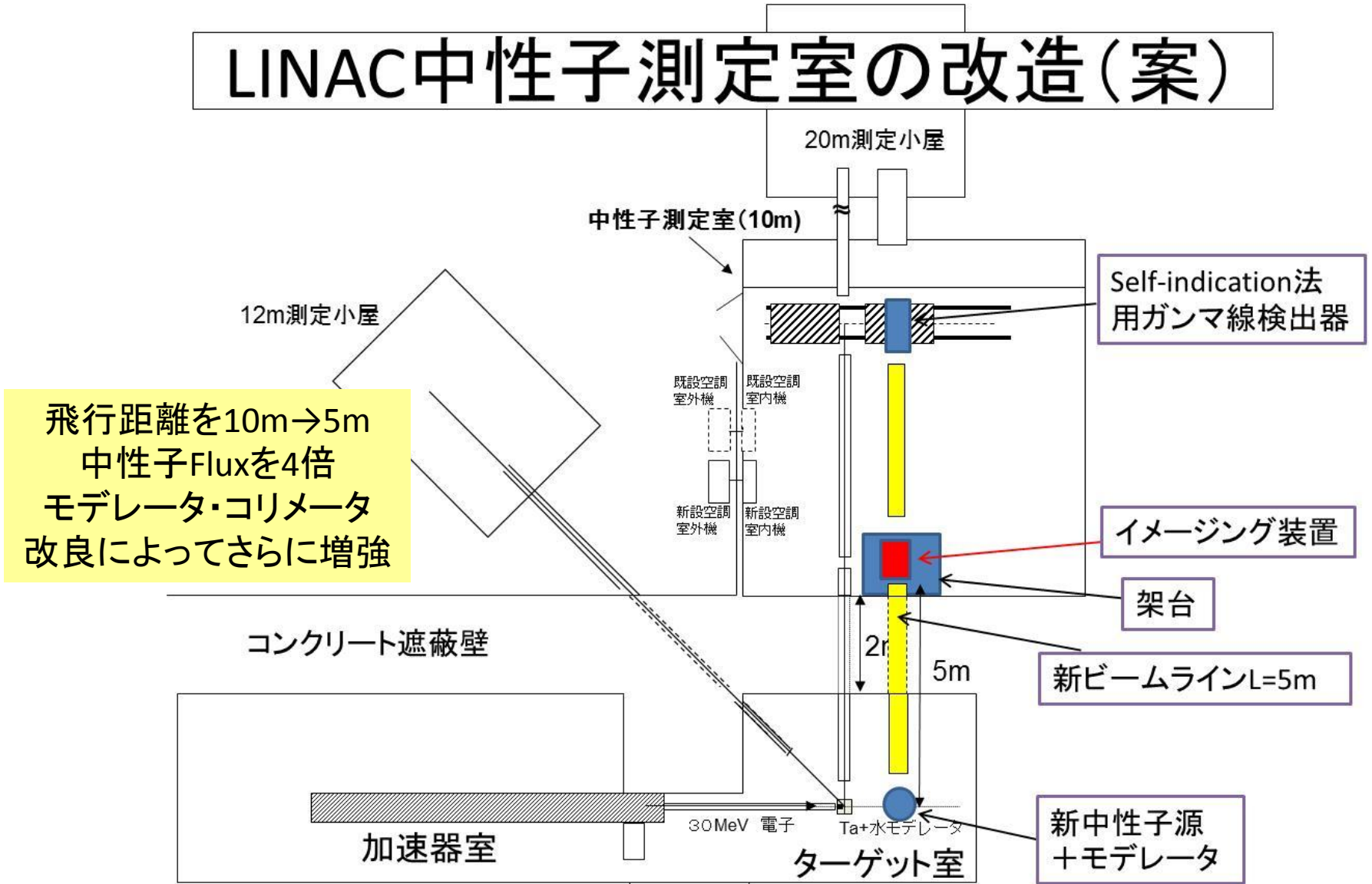
可視化に向けた見積り

	Blank	In	Cs			
ROI	各サンプルでのROI counts			Blank/Cs	Blank/In	In/Cs
Cs peak	1.08E+04	7.88E+03	2.33E+03	4.7	1.4	3.4
In dip	8.23E+03	5.60E+03	2.82E+03	2.9	1.5	2.0
All(>40ch)	1.70E+05	1.09E+05	4.37E+04	3.9	1.6	2.5

- Blank測定(サンプルなし)の場合、Cs peak領域のphoton数は全領域の約6%
→ **中性子fluxを20倍**にすれば、共鳴領域のphoton数も全領域のphoton数と同等
→ インジケータと同程度の画像を得ることが可能であると考えられる

Cs (Self-indication) と In (NRTA) を比較すると、Blankとの輝度比は $4.7/1.5 = \text{約}3$ 倍に向上している。核燃料物質 (Pu-239等) を入力反応面に利用できれば、Self-indication法により核燃料物質を選択的にイメージングする装置を開発できるかもしれない。

LINAC中性子測定室の改造(案)



飛行距離を10m→5m
中性子Fluxを4倍
モデレータ・コリメータ
改良によってさらに増強

Self-indication法
用ガンマ線検出器

イメージング装置

架台

新ビームラインL=5m

新中性子源
+ モデレータ

まとめ

- Self-indication法の検証実験
 - 厚さが既知の金箔の厚さを簡便なArea analysisによって3%以内の精度で決定できた。
 - 核燃料中にMA等不純物が混入してもSelf-indication法を用いれば不純物の影響が少ないことを確認した。
- 中性子イメージング予備実験
 - ASTMインジケータの形状を認識することができた。
 - 中性子カラーI.I.のPMT出力のTOFスペクトルを測定した。その結果、入力反応面のCsIのCs-133起因の共鳴ピークを観測した。Csの共鳴ピークを用いれば、Inの共鳴dipと比べて約3倍の輝度比の画像となる見通しを得た。今後中性子フラックス増強のため、5mビームラインの整備を進める予定である。