

非破壊手法によるウラン・プルトニウム組成比決定法の研究

Research for determination of elemental ratio between Uranium and Plutonium by Non-destructive method

日本原子力研究開発機構 高峰 潤 Jun Takamine 春山 満夫 Mitsuo Haruyama

高瀬 操 Misao Takase

We have not yet known the nondestructive detection method to determine each quantity of the object which Uranium and Plutonium is mixed in, such a waste generated from nuclear fuel cycle facility, and so radioactive intensity of Pu-239 is 10,000 times as much as U-235. Therefore, on radioactive assessment, it is important to precisely quantify each mass. Then we paid attention to the component of delayed and prompt neutron obtained by 14 MeV neutron direct interrogation method and so developed the new method to determine mass ratio between Uranium and Plutonium from those correlations.

Keywords: active neutron, 14MeV neutron, interrogation, fissile, nuclear materials, delayed neutron, prompt neutron, radioactive waste

1. 緒言

再処理工場や MOX 燃料加工工場等の核燃料施設で排出される廃棄物には多種の放射性核種が含まれているが、その中でも特に、ウラン以上の原子番号を持つ核種を正確に定量することは、その物理的、化学的毒性の高さから処分時の評価上最も重要である。特に Pu-239 は、U-235 と同じ核分裂性核種であるが、その比放射能は U-235 の 10000 倍程度であり、廃棄物処分時の評価において、非常に重要度が高い。近年、核分裂性核種を評価するために、アクティブ中性子法を用いて、即発核分裂中性子を測定することが、最も有望視されている。その中で我々は、アクティブ中性子法の改良手法である高速中性子直接問かけ法[1]の研究開発を行ってきた。この手法は、廃棄物自身の減速効果によって減速した中性子による核分裂中性子を測定する手法で、従来のアクティブ中性子法において問題となっていた、

セメント固化体のような中性子の吸収が多い測定対象物における位置感度差の問題を解決し、感度を 2 桁以上向上させた。よって、現在この手法が核分裂性核種の定量に最も有効であると考えられる。しかしながら、この手法だけでは即発中性子が核種毎の特徴を持たないので、Pu-239 と U-235 が混在し、かつ核種組成の情報が機知で無い場合、各々の存在量を決定することができない。これらの組成比が正確に決定できなければ、過大評価による経済損失(過剰な遮や厳しい処分区分等に起因する)あるいは過小評価による安全性の欠如に繋がる恐れがある。

上記の問題を受けて、この手法の解析法をさらに工夫し、核分裂中性子の中の、即発中性子と遅発中性子の両方の計数情報を取り出し、これらを組み合わせることによって、Pu-239 と U-235 の割合を算出することを考案し、測定実験によって、これが可能であることを確認した。本報告では、その新手法と確認実験の結果について紹介する。

連絡先 : 高峰 潤 〒319-19 茨城県那珂郡
東海村白方白根 2-4 日本原子力研究開発機構
原子力科学研究所 TEL : 029-282-6079
E-mail : takamine.jun@jaea.go.jp

2. 即発・遅発中性子計数の抽出法

高速中性子直接問かけ法は、D-T 中性子源から放出される、14MeV 中性子を入射し、廃棄物自身の減速能力によって減速された中性子によって核分裂を誘起し、その即発核分裂中性子を測定することによって、核分裂性核種を評価する手法である。

この手法の測定・解析手法を工夫し、即発中性子計数と遅発中性子計数を取り出すための方法を考案し、その確認実験を行った。実験体系の垂直断面図を図 1-a に、水平断面図を図 1-b に示す。

実際の廃棄物の多くはドラム缶サイズに処理加工され封入されるが、手始めとして遅発中性子を検出

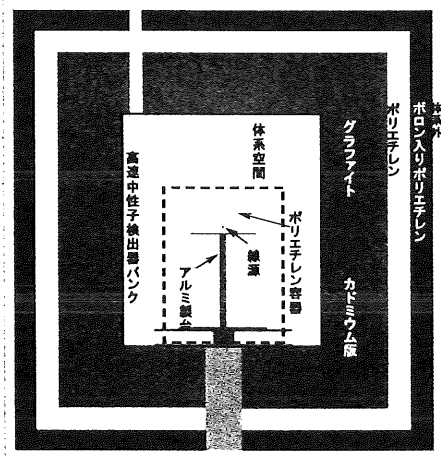


図1-a 新手法の実験体系の垂直方向断面図

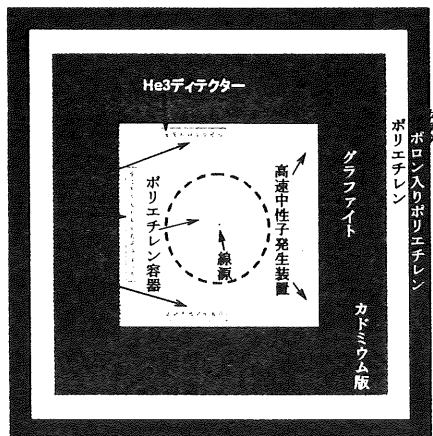


図1-b 新手法の実験体系の水平方向断面図

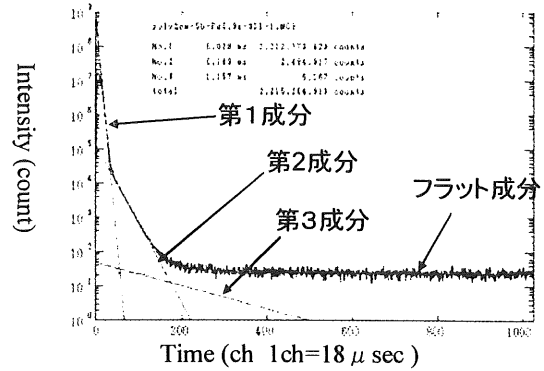


図2 14MeV中性子源を用いたときの高速中性子検出器の応答

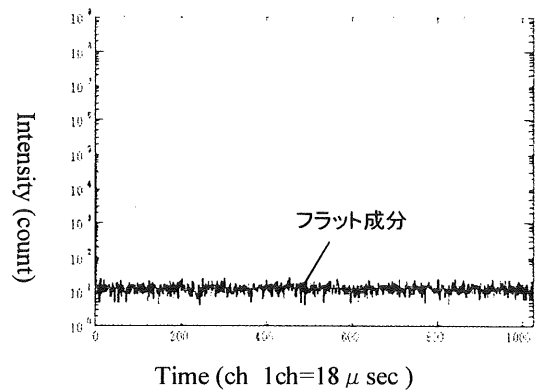


図3 14MeV中性子源を用いない場合の高速中性子検出器の応答

しやすい厚さ 2cm の円筒型ポリエチレン容器 (図 1-a,b 中心部に設置) に、濃縮度 3.4% のウラン試料 47 g (U-235 含有量 1.6g) と Pu-239 が 97% のプルトニウム試料 900mg を封入した。図 1-a,b 中の点線部は、通常廃棄物ドラム缶を設置する部分である。この周辺には 14MeV 中性子源と高速中性子検出器バンクが対面上に設置されている。これらの周辺を内側からカドミウム版、グラファイト層、ポリエチレン層、ボロン入りポリエチレン層が覆っている。

この体系内で 14MeV 中性子源から、 5.5×10^5 (個/パルス) のパルス中性子を 100Hz 500 秒発生させ、高速中性子バンクで捕らえられる、10msec (パルス間隔) 毎の中性子計数の時間変化 (以下中性子計数時間分布とする) を積算した。このデータを、指数関数フィッティングによって解析した結果を図 2 に示す。図 2 を見て解るように、この中性子計数時間分布は 3 つの指数関数成分とフラット成分から構成されていることがわかる。第 1 成分は入射中性子に

よる時間成分、第2成分はポリエチレン内で減速した熱中性子によって引き起こされる、核分裂時に放出される即発中性子によるものである。第3成分についての説明は本報告では省略する[2]。

核分裂時、即発中性子以外にも中性子過剰核となった多くの種類の核分裂片が生成されるので、それらの β 崩壊に伴い、遅発中性子が放出される。核分裂片の半減期は第2成分の死滅時間より十分に長いので、この計数成分は図2のフラット成分中に表れ、このフラット成分中には遅発中性子に加え、 (α, n) 中性子、Pu-239試料にわずかに含まれるPu-240による自発核分裂中性子、及びバックグラウンドが混在していると考えられる。この中から遅発中性子の計数のみを取り出すためには、D-T中性子源を用いずに、高速中性子法と同様の時間、中性子測定を行い、 (α, n) 中性子及び、バックグラウンドが混在している平らな時間成分(図3のフラット成分)を取り、図2のフラット成分からこれを差し引けば、遅発中性子の計数が得られるはずである。そこで、遅発中性子成分を取り出すために、中性子源を用いずに、図2の測定と同じ時間(500秒)中性子を測定した結果を図3に示す。図を見てわかるように、フラット成分のみが現れている。図2のフラット成分の計数が2412(count)に対し、図3では、1238(count)となっている。この1174(count)の差は、[遅発中性子+ (α, n) 中性子+自発核分裂中性子+バックグラウンド]-[(α, n)中性子+自発核分裂中性子+バックグラウンド]=遅発中性子計数である。このようにして、遅発中性子計数と即発中性子計数を取り出すことが可能であることがわかった。

3. 即発・遅発中性子計数比と

U-235・Pu-239比の相関関係

全核分裂中性子中の遅発中性子の割合は核種によって異なる。特に、U-235の遅発中性子割合(0.0065)は、Pu-239(0.0021)の3倍以上大きい。したがって測定対象物中のPu-239とU-235の割合は、即発中性子計数と遅発中性子計数の割合に相関関係を持つはずである。

そこで、ポリ容器内のPu試料とU試料の割合を0.1~30程度まで変化させ、前述した実験と同じ手

順の操作(遅発・即発中性子計数の抽出)を繰り返した。横軸に遅発中性子と即発中性子計数の比、縦軸をPuとUの質量比としてプロットした結果を統計誤差(1 σ)と合わせて図4に示す。また、図4中の実線は、理論的な考察から導き出した分数関数(本報告では説明を省略する)を、実験値にフィッティングしたものである。 χ^2 乗検定の結果、R値が約0.99となり、理論値と実験値が良く合っていることがわかった。また、図4を見てわかるように、多くの実験値の統計誤差範囲に、理論値が入っていることがわかる。これらの結果から、Pu-239とU-235の質量比は遅発中性子と即発中性子の計数比に相関があることを確認し、この手法によって質量比を精度良く決定できることがわかった。

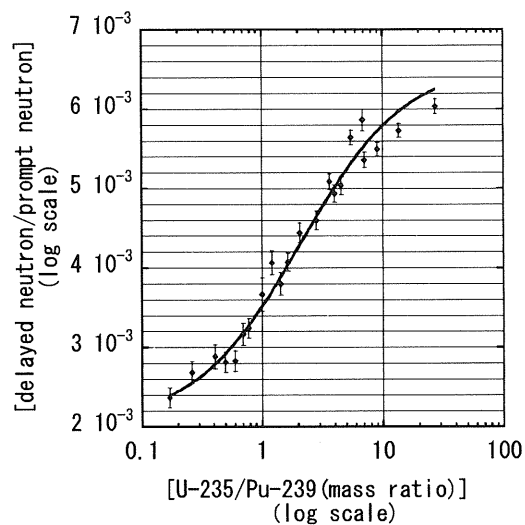


図4 U-235とPu-239の質量比に対する、遅発中性子と即発中性子計数比

4. 結論と今後の課題

実験結果で示したように、遅発中性子計数と即発中性子計数の割合は、U-235とPu-239の存在比に相関関係があることがわかった。これによって、高速中性子直接問かけ法の操作及び解析手法を工夫すれば、U-235とPu-239の存在比を、高い精度で決定できることがわかった。

しかしながら、U-235/Pu-239が5以上のプロットにおいて、統計誤差内に理論式が入っていない。この原因は、測定対象物(ポリエチレン容器)内の

核分裂性物質による自己吸収効果、及びU-238の高速核分裂による遅発中性子を考慮していないことによるものであると考えられる。

したがって今後はこれらを考慮した解析、及び実験を行い、その結果を元に再評価し、統計誤差以外の要因によるフィッティング関数からの乖離を減らす努力が必要である。

更に、セメント固化体、金属廃棄物等のマトリクス中に核分裂性核種が存在する場合、遅発中性子は即発中性子に比べ、放出数が1/100以下であり平均エネルギーも2桁程度低いので、廃棄物放射能評価に有効な検出下限値が得られるかどうか、検証しなければならない。

今後これらの問題が解決されれば、多種多様な廃棄物中のU-235とPu-239の存在比を精密に測定することが可能となり、処分コストの削減や安全な処理・処分に大きく貢献することが期待される。

References

- [1] M. Haruyama, K. Ara, M. Tkase, "High-sensitivity detection of fissile material in a waste drum by direct interrogation of 14 MeV Acc neutrons" Nihon-Genshiryoku-Gakkai Shi (j. At. Energy Soc. Japan), 43[4], 397-404 (2001) [in Japanese]
- [2] M. Haruyama, M. Tkase, H. Tobita "Improvement of Detection Limit in 14MeV Neutron Direct Interrogation Method by Decreasing Background" j. At. Energy Soc. Japan, 45[5], 432-440 (2008)