

# 可搬型 X バンドライナック X 線・中性子源による 福島燃料デブリその場 U/Pu 濃度分析

## ON-SITE FUKUSHIMA FUEL DEBRIS U/Pu DENSITY ANALYSIS BY PORTABLE X-BAND LINAC X-RAY / NEUTRON SOURCES

上坂 充<sup>#, A)</sup>, 三津谷 有貴<sup>A)</sup>, 芝 知宙<sup>B)</sup>  
Mitsuru Uesaka<sup>#, A)</sup>, Yuki Mitsuya<sup>A)</sup>, Tomooki Shiba<sup>B)</sup>  
A) University of Tokyo  
B) JAEA

### Abstract

TEPCO (Tokyo Electric Power Company Holdings) and NDF (Nuclear Damage Compensation and Decommission Facilitation Corporation) plan to start mass-extraction of nuclear fuel debris from the Fukushima Daiichi 1st, 2nd and 3rd plants in 2021. Several methods for quantitative nuclear material analysis of debris are investigated and considered. For the purpose, we have proposed to perform dual energy X-ray CT (Computed Tomography) and neutron resonance absorption by portable 950 keV / 3.95 MeV X-band (9.3 GHz) electron linac X-ray / neutron sources. Proof-of-Principle experiments are under way. Updated achievement is presented.

### 1. はじめに

2011 年の東京電力福島第一原子力発電所事故によって生じた燃料デブリの取り出し開始が 2021 年から予定されており、安全で効率的な臨界管理・計量管理の観点から取り出した燃料デブリサンプルの性状(特に U/Pu 濃度)を把握することが求められている。

本研究の目的は、福島 1F 燃料デブリに含まれるウランおよびプルトニウム同位体のその場非破壊成分分析のための、可搬型 950 keV/3.95 MeV X 線・中性子源[1]による 2 色 X 線 CT と近距離中性子共鳴透過分析法(NRTA)の組み合わせによる、その場 U/Pu 濃度評価法の開発と実証である[2,3]。3.95 MeV X バンドライナックの Pulsed Neutron Source およびヘリウム 3 ガス中性子検出器を用いた短距離中性子飛行時間(TOF)測定を行う。

可搬型 950 keV/3.95 MeV X 線・中性子源を東電福島第一原子力発電所ユニット 1,2,3 の格納容器外側に持ち込み、溶融炉心から取り出されてきた燃料デブリをその場で X 線・中性子源分析を行う(図 1)。

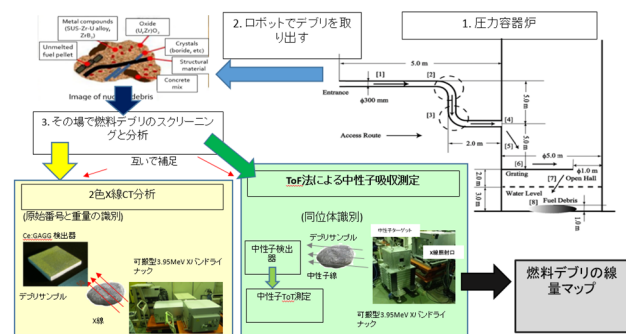


Figure 1: In situ X-ray and neutron analysis of fuel debris at Fukushima 1F.

# uesaka@tokai.t.u-tokyo.ac.jp

2 色 X 線 CT によって、ある程度の誤差をもって、燃料デブリの原子番号の 3 次元分布が得られる。その後 NRTA を行って、U/Pu と推定させる箇所がそれらであるか判定する。これによって、燃料デブリ中の U/Pu の濃度が評価できる。そのスキームを図 2 に示す。

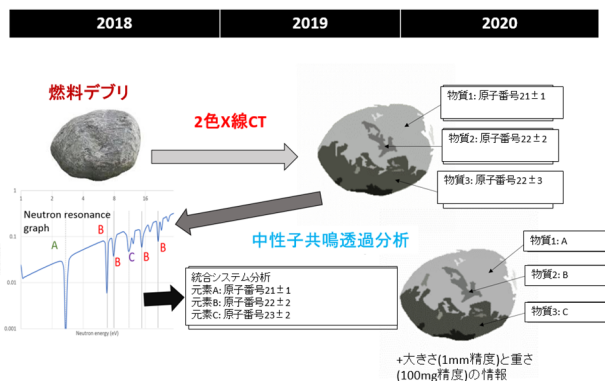


Figure 2: Evaluation of U / Pu concentration in fuel debris by two-color X-ray CT and neutron resonance absorption.

U/Pu の濃度が評価できれば、臨界管理と、臨界を防ぐ収納法が明確になる。

上記を 2019, 2020 年に実証し、2021 年からの本格取り出しと収納に適用したい。

### 2. 2 色 X 線 CT による原子番号分布評価

#### 2.1 燃料デブリ検査の目的

原子炉から取り出した燃料デブリ小片(直径数 mm を想定)中の U/Pu 濃度を現場で測定することにより、効率的な燃料デブリ処理が可能となる。本研究では、950 keV/3.95 MeV X 線源の高エネルギー性と可搬性を生かし、重金属を多く含む高遮蔽能な燃料デブリを対象

とした、現場での検査手法を提案する。

燃料デブリに含まれる元素の種類はある程度推定されており、UやPuの他にはZr, Fe, Caなどが含有されると推定されている。(図3)

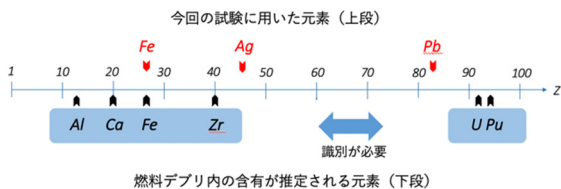


Figure 3: Relationship between substances estimated to be contained in fuel debris and atomic numbers of alternative substances used in this study.

本研究では核分裂性物質 U/Pu を Pb で、非核分裂性物質 Zr, Feなどを Ag と Fe で模擬し、評価を行った。

## 2.2 950 keV/3.95 MeV X線源を使用した2色X線CTの原理

2色X線による撮像は、原子番号Z、電子密度ρの物質に対して2種のエネルギー $E_l$ ,  $E_h$ のX線を照射し、投影(線減弱係数)  $\mu_l$ ,  $\mu_h$ を得るとすると、以下のように定式化できる。

$$\begin{aligned}\mu_l &= f(E_l, Z, \rho) \\ \mu_h &= f(E_h, Z, \rho)\end{aligned}$$

2色X線による物質識別の基本原理は、 $\mu$ に関する連立方程式を解き、Zを求めることに他ならない。しかし、この連立方程式を解析的に解くのは困難であるため、近似的解法を用いる。この解法では、 $\mu_l/\mu_h$ が物質固有の値を示すことを利用し、 $\mu_l/\mu_h$ の値に関するデータベースを事前に用意しておくことで、それと実験データを照合させることにより物質推定を行う。

本研究では2色のX線として950 keV/3.95 MeV X線源の2つのエネルギースペクトルのX線を使用するが、その $\mu_l/\mu_h$ の値を便宜的に950/3.95値と呼ぶ。

## 2.3 金属フィルタ最適化試験

効果的な2色X線撮像をするために、2つのエネルギースペクトルに関して

**条件1:**線質硬化を抑制するために、低エネルギー成分が除去されていること

**条件2:**両スペクトルの分布に差があること

**条件3:**素早い撮像に必要な線量が確保されていることの3つを両立させる必要がある。

今回はX線源にPbフィルタ導入し、条件1~3の観点からフィルタの最適な厚み条件の取得を目的とした試験を行った。Pbフィルタは5mmずつ厚みを増やし、1mm~8mmまで1mmごとに厚みを変えたPb, Ag, Feに対して950 keV/3.95 MeV X線源それぞれで撮像を行った。

図4, 5は厚みを変えた被写体Agの線減弱係数の取得結果を示す。3.95 MeVではフィルタ20mm以上で、

950 keVではフィルタ5mm以上で線質硬化が抑制できている。(条件1)また、950 keVにより厚いフィルタを導入すると、スペクトルのピークが高エネルギー側にシフトし、3.95 MeVのそれと似通ってしまう。これは条件1からふさわしくない。

以上のような観点から、950 keVへのPbフィルタは5mm、3.95 MeVへのPbフィルタは20mmが適当と判断し、以下の実験はこの条件で行なった。

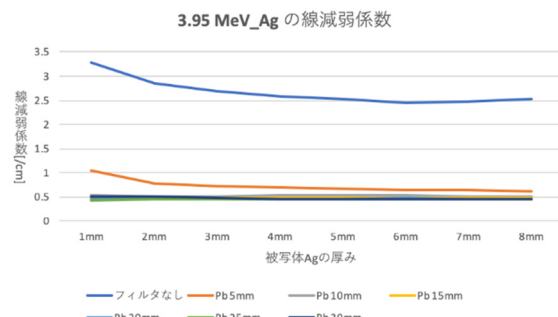


Figure 4: Measurement result of linear attenuation coefficient with 3.95 MeV X-ray source.

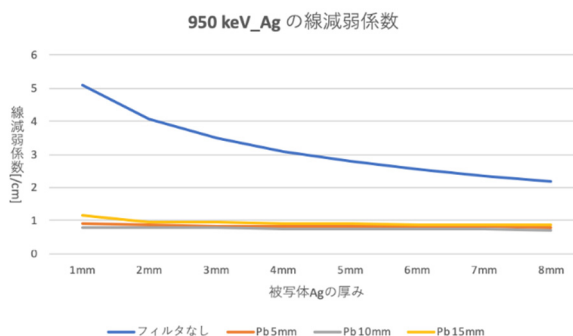


Figure 5: Measurement result of linear attenuation coefficient with 950 keV X-ray source.

## 2.4 950/3.95値取得試験

前述のフィルタ条件のもと、950/3.95値を取得した。(図6)

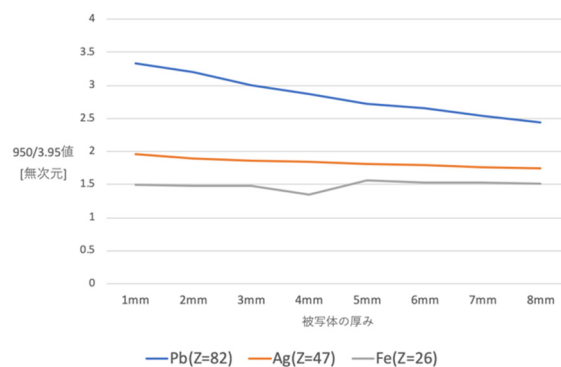


Figure 6: 950 / 3.95 value of Pb, Ag, Fe.

Pbは3.5~2.5, Agは1.9~1.7, Feは1.5という結果が得られ、これはモンテカルロシミュレーションの結果と概ね整合するものであった。

## 2.5 CTによる物質照合試験

Pb, Ag, Fe 単体とそれらを面して一つにしたサンプルに対して2色X線CT試験を行った。その結果を図7,8に示す。

この結果、2色CT値をもとにしたPbとAg・Fe類の識別可能性が示された。この識別精度や定量評価精度はCTの閾値設定に依存し、混合具合により閾値が変化することが判明した。

2色CT値をもとにしたPbとAg・Fe類の識別可能性が示された。この識別精度や定量評価精度はCTの閾値設定に依存し、混合具合により閾値が変化することが判明した。

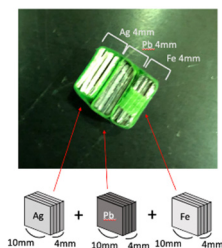


Figure 7: Simulated sample creation with Pb, Ag, Fe.

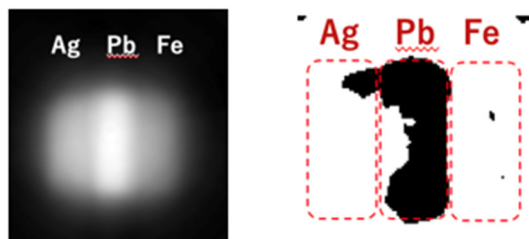


Figure 8: Identification result of Pb region (black is Pb) by CT reconstruction cross section and two-color X-ray of simulated sample.

## 3. 中性子共鳴吸収によるU/Puの判定

### 3.1 U/Puのダミー試料による原理実証

3.95 MeVのXバンドライナックのパルス中性子源を用いた近距離NRTAの体系を図9に示す。実験パラメータは2.5mのTOF距離、2.5マイクロ秒のライナックパルス幅、2cm中性子減速材、ヘリウム3中性子検出器で1~2時間以内の測定時間とした。TOFの距離、検出器遮蔽、およびデジタル信号処理を調整して、X線/ガンマ線からのノイズを減少させ、そして信号対ノイズ比を9:1に設定した。この設定では、1時間の中性子TOF測定で、最大70eVの観測可能な中性子エネルギースペクトルが得られる。NRTAの実験では、選択した模擬試料はインジウムとタングステンの純金属である。その理由は、この2つの元素内の同位体は、中性子エネルギー吸収が、ウランやプルトニウムの同位体と同じ中性子エネルギー領域にあることにある。中性子TOF測定結果より、1時間で $100 \times 100 \times 0.6 \text{ mm}^3$ から(図10)、2時間で $20 \times 20 \times 1.2 \text{ mm}^3$ のサンプルサイズの、インジウムおよび

タングステンによる中性子吸収が観測された。観測された吸収は、In-115では1.5eVと3.5eV、W-186では14.2eVにある。これらの値は特定の同位体の中性子エネルギー吸収データに関するJENDLからの参照と一致します。特に $20 \times 20 \times 1.2 \text{ mm}^3$ が現システム体系での測定可能な最小サイズの目安となった。

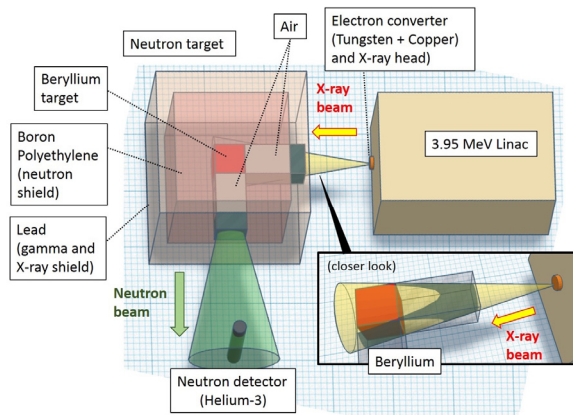


Figure 9: 3.95 MeV X-band linac neutron source 2.5 m TOF system.

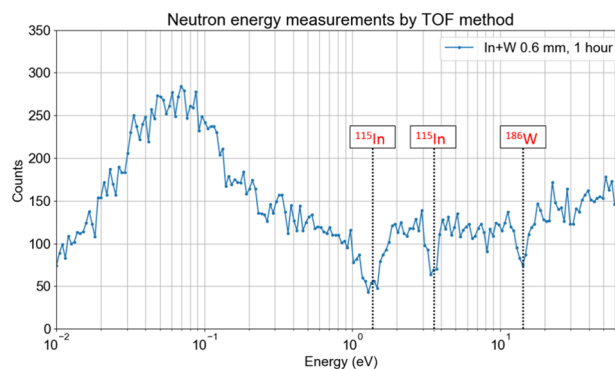


Figure 10: Neutron resonance absorption measurement results of W (U simulation) and In (Pu simulation).

## 4. 臨界管理と安全収納

以上実証したように、950 keV/3.95 MeV 2色X線CTとNRTAの組み合わせにより、燃料デブリ中のU/Pu濃度を評価できることがわかった。またU/Puに相当するX線減弱係数、透視画像でのGray値も評価できる。今後燃料デブリの性状分析が行われた後、熔融炉心から燃料デブリの大量取り出しが始まる。その際には、2色X線CTやNRTAの行っている時間はない。実際行えるのは、図11のようなベルトコンベア式のX線透過画像取得のみであろう。上記の詳細分析を事前に行い、U/Puに相当するX線減弱係数、透視画像でのGray値のデータベースを用いて、測定された透視画像でのGray値から迅速にU/Puの存在を判定し、その濃度を評価する。その濃度の指定値を用いて、臨界の可能性のある燃料デブリは小さい缶に、ないものは大きい缶に収納することを提案する。

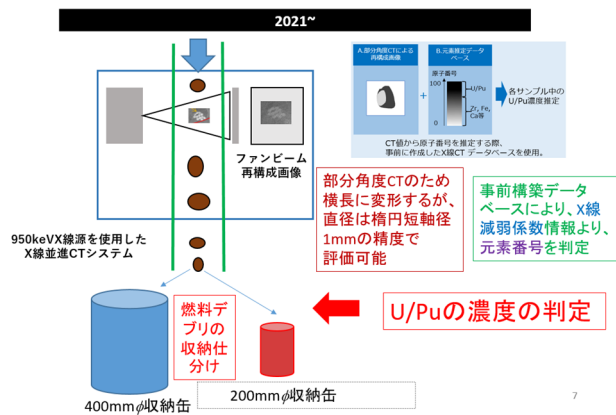


Figure 11: U/Pu concentration determination and criticality management and storage using X-ray and neutron analysis database.

## 5. まとめ

950 keV/3.95 MeV X線源を使用した2色X線CTを行うにあたり、ビームハードニング抑制や効果的な2色X線分析を行うにあたって最適なPbフィルタの厚みに関する条件を求めた。Pb、Ag、Feで構成された燃料デブリ模擬サンプルに対して2色X線CTを行い、PbとAg・Feの物質識別精度とPbの含有量推定精度を評価した。PbとAg・Feの950/3.95値には大小関係や差の比に一定の傾向が見られ、物質識別の可能性が示された。その物質識別精度や量推定精度は閾値の設定に依存し、今後の研究課題となる。

さらに、近距離NRTA法とX線CTスクリーニング法の組み合わせ核デブリ分析システムの提案を行った。2色X線CTでU/Pu、Fe、Zr等を群で識別し、近距離NRTA法は、燃料デブリテスト抽出によるデータベース・核正システム構築、次に本格取り出し時でのデータベース・核正関係を行って、燃料デブリ取り出し時、貯蔵のための臨界評価も組み込むことを提案した。

## 参考文献

- [1] Mitsuru Uesaka, Yuki Mitsuya, Katsuhiro Dobashi, Joichi Kusano, Eiji Yoshida, Yoshinobu Oshima, Masahiro Ishida, "On-site Bridge Inspection by 950 keV / 3.95 MeV Portable X-band Linac X-ray Sources", Bridge Optimization - Inspection and Condition Monitoring, IntechOpen, 2018, DOI: 10.5772/intechopen.82275.
- [2] Issei Ozawa, Junya Fukuoka, Yuki Mitsuya, Katsuhiro Dobashi, Mitsuru Uesaka, Kenji Shimazoe, Hiroyuki Takahashi, Hiroaki Abe, Tomooki Shiba, "Fukushima Nuclear Fuel Debris Component Analysis by Spectral CT Method with Portable High Energy X-Ray Source", Proceedings of 2018 Pacific Basin Nuclear Conference, pp. 257-261, 2018.
- [3] Yudhitya Kusumawati, Issei Ozawa, Yuki Mitsuya, Tomooki Shiba, Mitsuru Uesaka, "X-band electron LINAC-based compact neutron source for nuclear debris on-site screening using short-distance neutron resonance transmission analysis", E-Journal of Advanced Maintenance, Japan Society of Maintenance, 2019, Vol. 11, No. 1, 46-64.