

超伝導転移端マイクロカロリメータによる 燃料デブリの核種分析に係る研究

—高分解能測定実験及びシミュレーション計算—
(共同研究)

Research for Spectroscopy of Fuel Debris using Superconducting Phase
Transition Edge Sensor Microcalorimeter
-Measurement Experiment and Simulated Calculation-
(Joint Research)

高崎 浩司 安宗 貴志 大西 貴士 中村 圭佑
石見 明洋 伊藤 主税 逢坂 正彦 大野 雅史
畠山 修一 高橋 浩之 前畑 京介 前田 亮
R. M. Thushara Damayanthi 杉田 武志

Koji TAKASAKI, Takashi YASUMUNE, Takashi OHNISHI, Keisuke NAKAMURA
Akihiro ISHIMI, Chikara ITO, Masahiko OHSAKA, Masashi OHONO,
Shuichi HATAKEYAMA, Hiroyuki TAKAHASHI, Keisuke MAEHATA, Makoto MAEDA
R. M. Thushara Damayanthi and Takeshi SUGITA

大洗研究開発センター
大洗研福島技術開発特別チーム

Fukushima Project Team
Oarai Research and Development Center

January 2014

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Research

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp>)
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail: ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,
Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail: ird-support@jaea.go.jp

超伝導転移端マイクロカロリメータによる燃料デブリの核種分析に係る研究
— 高分解能測定実験及びシミュレーション計算 —
(共同研究)

日本原子力研究開発機構 大洗研究開発センター
大洗研福島技術開発特別チーム

高崎 浩司、安宗 貴志^{*1}、大西 貴士^{*2}、中村 圭佑^{*3}、石見 明洋、伊藤 主税、
逢坂 正彦、大野 雅史^{*1}、畠山 修一^{*1}、高橋 浩之^{*1}、前畑 京介^{*2}、前田 亮^{*2}、
R. M. Thushara Damayanthi^{*3}、杉田 武志^{*4}

(2013 年 10 月 30 日受理)

東京電力(株)福島第一原子力発電所事故において、炉内燃料は部分的又は全体的に熔融していると見られており、燃料集合体を 1 単位とする通常の計量管理手法の適用は困難と考えられている。このため、廃炉措置において炉内燃料の取出から貯蔵を行うまでの透明性を確保し、かつ合理的に計量管理を実施できる手法を構築する必要がある。

本研究では、計量管理のための核物質定量の技術の一つとして、従来のゲルマニウム半導体検出器に比べ優れたエネルギー分解能を有する超伝導転移端マイクロカロリメータ (TES 検出器) を適用した燃料デブリ中の核燃料物質及び核分裂生成等の分析手法を検討する。高分解能分析の特性を活用し、燃料デブリ中の核燃料物質及び核分裂生成物のスペクトル分析による詳細な情報が期待できる。

本報告書では、TES 検出器の原理、日本原子力研究開発機構での測定試験の状況、シミュレーション計算コード EGS5 による実験データの解析及び燃料デブリの収納キャニスタの高分解能測定のシミュレーション計算について報告する。

本報告書は、東京大学及び九州大学が日本原子力研究開発機構との「超伝導転移端センサを用いた燃料デブリの核種分析に係る研究 (共同研究)」契約により実施した研究成果に関するものである。
大洗研究開発センター：〒311-1393 茨城県東茨城郡大洗町成田町 4002

+1 安全管理部

+2 福島燃料材料試験部

+3 核燃料サイクル工学研究所 放射線管理部

*1 東京大学大学院工学系研究科 国際原子力専攻

*2 九州大学大学院工学研究院 エネルギー量子工学部門

*3 東京大学大学院工学系研究科 (平成24年度まで)、理化学研究所 (平成25年度から)

*4 有限会社 科学システム研究所

**Research for Spectroscopy of Fuel Debris using Superconducting Phase
Transition Edge Sensor Microcalorimeter
- Measurement Experiment and Simulated Calculation -
(Joint Research)**

Koji TAKASAKI, Takashi YASUMUNE⁺¹, Takashi OHNISHI⁺², Keisuke NAKAMURA⁺³,
Akihiro ISHIMI, Chikara ITO, Masahiko OHSAKA, Masashi OHONO^{*1},
Shuichi HATAKEYAMA^{*1}, Hiroyuki TAKAHASHI^{*1}, Keisuke MAEHATA^{*2},
Makoto MAEDA^{*2}, R. M. Thushara Damayanthi^{*3} and Takeshi SUGITA^{*4}

Fukushima Project Team,
Oarai Research and Development Center,
Japan Atomic Energy Agency
Oarai-machi, Higashiibaraki-gun, Ibaraki-ken

(Received October 30, 2013)

In the Fukushima Daiichi nuclear power plant, it is assumed that the core fuels melted partially or wholly, and the normal technique of accounting for a fuel assembly is not applicable. Therefore, it is necessary to develop the transparent and rational technique of accounting in the process of collection and storage of fuel debris.

In this research, an application of the superconducting phase Transition Edge Sensor (TES) microcalorimeter is studied for the accounting of nuclear materials in the fuel debris. It is expected that the detailed information of nuclear materials and fission products in fuel debris is obtained by using a high-resolution characteristic of TES microcalorimeter.

In this report, the principle of TES microcalorimeter, the measurement experiment using TES microcalorimeter in JAEA, and the simulated calculation using the EGS5 code system are summarized.

Keywords: Fukushima Daiichi, Debris, Superconducting Phase Transition Edge Sensor, TES, EGS Code

This work was performed by the University of Tokyo and the Kyusyu University under contract with Japan Atomic Energy Agency.

+ 1 Health and Safety Department

+ 2 Fukushima Fuels and Materials Department

+ 3 Radiation Protection Department, Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories

* 1 University of Tokyo

* 2 Kyushu University

* 3 University of Tokyo(To March 2013), RIKEN(Since April 2013)

* 4 Science System Laboratory Limited Private Company

目 次

1. 序論 -----	1
2. TES 検出器について-----	2
2.1 TES 検出器の原理 -----	2
2.2 冷凍機 -----	2
2.3 TES 検出器の開発状況 -----	3
3. 原子力機構における TES 検出器に係る研究開発-----	4
3.1 L-X 線検出用の TES 検出器の開発 (九州大学との共同研究) -----	4
3.2 γ 線検出用の TES 検出器の開発 (東京大学との共同研究) -----	5
4. 燃料デブリの高分解能測定について-----	6
4.1 TES 検出器による燃料デブリの高分解能測定について-----	6
4.2 TES 検出器による測定実験-----	6
4.3 燃料デブリの測定に係る計算シミュレーション -----	7
5. 結論 -----	11
謝辞 -----	12
参考文献 -----	12

Contents

1. Introduction -----	1
2. Outline of TES Microcalorimeter -----	2
2.1 Principle of TES Microcalorimeter -----	2
2.2 Refrigeration system -----	2
2.3 Developmental Status of TES Microcalorimeter -----	3
3. Development of TES Microcalorimeter in JAEA -----	4
3.1 TES Microcalorimeter for Measurement of L-X ray from plutonium -----	4
3.2 TES Microcalorimeter for Measurement of Gamma ray from plutonium -----	5
4. Study for measurement of Fuel Debris using TES microcalorimeter -----	6
4.1 Concept -----	6
4.2 Measurement Experiments using TES microcalorimeter -----	6
4.3 Simulation for Measurement of Fuel Debris -----	7
5. Concluding Remarks -----	11
Acknowledgements -----	12
References -----	12

表リスト

Table 4-1	大洗研究開発センターにおける測定試験の工程-----	13
Table 4-2	核燃料サイクル工学研究所における測定試験の工程-----	13
Table 4-3	Pu 等に係る L-X 線の測定試験に使用した線源-----	13
Table 4-4	硝酸 Pu 溶液試料のピーク計数比-----	14
Table 4-5	福島第一原子力発電所 2 号炉の事故から 10 年経過後の放射エネルギー-----	15
Table 4-6	EGS5 計算コードによるモンテカルロ計算の回数-----	15

図リスト

Fig. 2-1	超伝導転移端マイクロカロリメータの原理-----	16
Fig. 3-1	L-X 線検出用 TES 検出器-----	16
Fig. 3-2	TES 検出器及び G-M 冷凍機を搭載した ^3He - ^4He 希釈冷凍機-----	17
Fig. 3-3	液体ヘリウム供給式の ^3He - ^4He 希釈冷凍機-----	17
Fig. 3-4	平成 20 年度の Pu 等の測定試験結果-----	18
Fig. 3-5	パルス管冷凍機搭載 ^3He - ^4He 希釈冷凍機及び MOX の測定スペクトル-----	19
Fig. 4-1	TES 素子及び振動対策を強化した新型 2ch-TES マウント-----	19
Fig. 4-2	Pu 試料の TES 検出器及び Ge 検出器の測定スペクトル (0~140keV) -----	20
Fig. 4-3	Pu 試料の TES 検出器及び Ge 検出器の測定スペクトル (25~70keV) -----	20
Fig. 4-4	Pu 試料の TES 検出器及び Ge 検出器の測定スペクトル (60~150keV) -----	21
Fig. 4-5	Pu・Am の L-X 線の測定装置類の設置状況-----	21
Fig. 4-6	^{241}Am の L-X 線エネルギースペクトル-----	22
Fig. 4-7	^{238}Pu の L-X 線エネルギースペクトル-----	22
Fig. 4-8	^{239}Pu の L-X 線エネルギースペクトル-----	23
Fig. 4-9	Am・Pu 混在時の L-X 線エネルギースペクトル-----	23
Fig. 4-10	測定試験の分析に係るシミュレーション計算の流れ-----	24
Fig. 4-11	TES 検出器のシミュレーション計算体系-----	24
Fig. 4-12	測定スペクトルと計算スペクトルの比較 (10 keV~150 keV) -----	25
Fig. 4-13	測定スペクトルと計算スペクトルの比較 (20 keV~25 keV) -----	25
Fig. 4-14	測定スペクトルと計算スペクトルの比較 (25 keV~45 keV) -----	26
Fig. 4-15	測定スペクトルと計算スペクトルの比較 (50 keV~65 keV) -----	26
Fig. 4-16	測定スペクトルと計算スペクトルの比較 (80 keV~150 keV) -----	27
Fig. 4-17	TMI-2 の 3 種類の燃料デブリの収納キャニスタ -----	27
Fig. 4-18	TMI-2 の燃料キャニスタの測定を模擬した計算体系-----	28
Fig. 4-19	仮想の燃料デブリからの光子発生分布 ($^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$, その他核種) -----	29

Fig. 4-20 仮想の燃料デブリからの光子発生分布 (^{239}Pu)	29
Fig. 4-21 仮想の燃料デブリからの光子発生分布 (^{241}Pu)	30
Fig. 4-22 仮想の燃料デブリからの光子発生分布 (^{235}U)	30
Fig. 4-23 仮想の燃料デブリからの光子発生分布 (^{237}U)	31
Fig. 4-24 仮想の燃料デブリからの光子発生分布 (^{241}Am)	31
Fig. 4-25 TES 検出器で計数される光子スペクトル ($^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$)	32
Fig. 4-26 TES 検出器で計数される光子スペクトルの拡大図 ($^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$)	32
Fig. 4-27 TES 検出器で計数される光子スペクトル (その他核種)	33
Fig. 4-28 Pu 等のピーク及び分解能 50eV の光子スペクトル	33

This is a blank page.

1. 序論

東京電力(株)福島第一原子力発電所事故において、炉内燃料は部分的又は全体的に溶融していると見られており、燃料集合体を1単位とする通常の計量管理手法の適用は困難と考えられている。このため、廃炉措置において炉内燃料の取出から貯蔵を行うまでの透明性を確保し、かつ合理的に計量管理を実施できる手法を構築する必要がある。

国の廃止措置等の研究開発計画^{1),2)}には「燃料デブリに係る計量管理方策の構築」が示されており、原子力機構においても核物質定量評価に係る研究開発を進めている。燃料デブリに係る計量管理方策の一つとして、燃料デブリに随伴する核分裂生成物（FP）の γ 線を測定し、燃焼度から核燃料物質（Pu等）の量を推定する方法（以下、「随伴FP γ 線測定法」という。）が原子力機構内で検討されている。

一方、近年、大学及び原子力機構において、従来のゲルマニウム半導体検出器（以下、「Ge検出器」という。）に比べて優れたエネルギー分解能の光子計測を検出原理とする超伝導転移端マイクロカロリメータ（Superconducting Phase Transition Edge Sensor Microcalorimeter：以下、「TES検出器」という。）の開発が進められており、随伴FP γ 線測定法の開発において、高分解能測定により γ 線測定への影響などに係る多くの知見が得られる可能性がある。

本研究ではTES検出器の高分解能特性を利用し、 γ 線スペクトロスコピーによる非破壊分析での燃料デブリ中のPu等及びFPの測定への適用を検討する。TES検出器による γ 線の高分解能測定により、随伴FP γ 線測定法に係るFP及びPu等の測定に係る核種（妨害核種）の影響などの新たな知見が期待できるとともに、Pu等の直接測定の可能性も考えられる。

随伴FP γ 線測定法の研究開発は、原子力科学研究所福島技術開発特別チームの計量管理技術開発グループが取りまとめを行い、大洗研究開発センター福島技術開発特別チームでは燃料材料特性解明グループが随伴FP γ 線測定法の開発のためのFPの移行挙動の調査を担当し、検知機器技術開発グループがTES検出器を用いた燃料デブリの核種分析に係る研究を担当している。また、平成23年度先行基礎工学研究でTES検出器に係る研究について共同研究を行ってきた東京大学及び九州大学と新たに共同研究契約を締結（平成24年10月1日）し、TES検出器による燃料デブリ測定に係る両大学との共同研究体制を構築した。

2. TES 検出器について

2.1 TES 検出器の原理

近年、高分解能分光分析が可能な新しい放射線測定器として、TES 検出器の研究開発が宇宙開発や原子力等の分野で進められている。

TES 検出器は、特定の温度範囲において、わずかな温度上昇で電気抵抗が急激に変化する超伝導体の特性を利用して光子のエネルギーを測定する。Fig. 2-1 に TES 検出器の検出原理を示す。TES 検出器のセンサ部は約 0.1 K (-273.05°C) 程度まで冷却され、常伝導状態と超伝導状態の転移端の間において、定電圧バイアス下での電熱フィードバック (ETF : **E**lectro **T**hermal **F**eedback)により一定のバイアスポイントの温度に維持されている。

X 線や γ 線が TES 検出器のセンサ部の吸収体(Absorber)に入射すると吸収体及び TES 素子の温度(T)の上昇とともに、TES 素子の電気抵抗(R)が急激に変化する。吸収体及び TES 素子は熱リンク (Thermal Link)通じて冷却されており、上昇した温度は再びバイアスポイントの温度に戻る。吸収体に入射した放射線のエネルギーによって、温度上昇が異なり、この微少な温度変化を電流パルスとして検出する。定電圧バイアス下で TES 素子を駆動させる場合、この急激な電気抵抗の変化による電流変化を高感度な磁気センサである SQUID (超伝導量子干渉計 : **S**uperconducting **Q**uantum **I**nterference **D**evice) で読み取ることにより、高感度かつ低ノイズに放射線の入射信号を検出している。

2.2 冷凍機

TES 検出器を作動させるために、センサ部を極低温の超伝導状態まで冷却する必要がある。冷凍機として、 ^3He - ^4He 希釈冷凍機や断熱消磁冷凍機 (ADR) が使用される。また、液体ヘリウム循環型の冷凍機として、ギフォード・マクマホン(G-M)冷凍機又はパルス管冷凍機を搭載した ^3He - ^4He 希釈冷凍機が使用されている。液体ヘリウム循環型の冷凍機では、はじめに G-M 冷凍機又はパルス管冷凍機によりセンサ部を約 4K (-269.15°C) まで冷却し、さらに、 ^3He - ^4He 希釈冷凍機により約 0.1K (-273.05°C) まで冷却している。

(a) ^3He - ^4He 希釈冷凍機

低温で ^3He 及び ^4He の混合相と ^3He のみの相の 2 層に分離している状態において、 ^3He と ^4He の蒸気圧の違いを利用し、 ^3He のみの相から ^3He 及び ^4He の混合相に ^3He を選択的に蒸発させることで冷却する。現在、連続的に 0.1K 以下の極低温を生成する唯一の方法とされる。液体ヘリウム循環式の G-M 冷凍機やパルス管冷凍機と組み合わせることで、現在、数週間の連続冷却が可能となっている。

(b) 断熱消磁冷凍機 (ADR : **A**diabatic **D**emagnetization **R**efrigerator)

断熱状態に置かれた常磁性塩の磁気熱量効果による冷却を使用し、数時間の冷却が可能である。希釈冷凍機と違ってガスの流入がなく高い安定性がある。また、無重力下でも使用できることから、人工衛星などに搭載する TES 検出器で利用される。

(c) ギフォード・マクマホン (G-M) 冷凍機

G-M 冷凍機は、ピストンをシリンダ内部で往復移動させてヘリウムガスの断熱圧縮・膨張を繰り返し、冷却する。4K の極低温まで冷却することが可能である。圧縮機には空調機で実績のあるロータリー等の圧縮機が使われ、信頼性が高く長寿命と言われている。

(d) パルス管冷凍機

パルス管冷凍機は、G-M 冷凍機からシリンダ (パルス管) 中のピストンを取り除いた形状であり、シリンダの外部からの周期的な圧力パルスにより、シリンダ中のガスを仮想的なガスのピストンとして作動させて冷却する。このため冷凍部のシリンダに可動部を持たない特徴がある。G-M 冷凍機と同じく 4K の極低温まで冷却が可能である。

2.3 TES 検出器の開発状況

TES 検出器は Ge 検出器に比べ、優れたエネルギー分解能を有し、これまでの放射線測定器では不可能であった高分解能の測定が実現されつつある。現在、TES 検出器について、エネルギー分解能の向上や検出効率の向上に係る開発が進められている。

TES 検出器の一つのセンサ部の有感面積は $0.3\text{ mm} \times 0.3\text{ mm} \sim 0.5\text{ mm} \times 0.5\text{ mm}$ 程度で、有感面積が小さいことから、一つのセンサでは放射線の検出効率が非常に低い。このため、有感面積を広くするために、多数のセンサを並べるアレイ化が研究されている。

また、実用的な TES 検出器の冷凍機として、液体ヘリウムの消費が無く、長時間の連続稼働が可能な G-M 冷凍機又はパルス管冷凍機搭載の ^3He - ^4He 希釈冷凍機の開発が行われている。これらの冷凍機では機械的振動がノイズとしてエネルギー分解能に影響することから、冷凍機やセンサ部において振動低減化の改良が進められている。

3. 原子力機構における TES 検出器に係る研究開発

TES 検出器による放射線の高分解能測定に潜在的な可能性があることから、原子力機構ではこれまで先行基礎工学研究課題として大学との共同研究により放射線管理部門を中心に研究開発を行ってきた。

3.1 L-X 線検出用の TES 検出器の開発^{3), 4), 5), 6)} (九州大学との共同研究)

平成 18 年度から平成 20 年度まで先行基礎工学研究として、九州大学との共同研究により 10～20 keV のエネルギー領域の Pu 及び Am の L-X 線を高分解能で測定し、²⁴¹Am との弁別測定を目的とした研究開発を行った。

Pu の吸入による内部被ばく測定のために Pu の L-X 線が肺モニタ (Ge 検出器) により測定されているが、核燃料施設では²⁴¹Pu の崩壊から生成される²⁴¹Am が随伴していることが多いため、従来の Ge 検出器では分解能が十分でなく、Pu の測定では²⁴¹Am との識別が困難であった。研究開始当時は、10 keV 以下のエネルギー範囲の測定を目的とした TES 検出器は開発されていたが、Pu などの 10keV～20keV のエネルギー範囲の超ウラン元素の L-X 線の測定に適用する目的で開発された TES 検出器はなかった。

研究においては、プルトニウム同位体の L-X 線の実測のために、10keV～20keV の L-X 線光子を毎秒 100 カウント以上の計数率及び半値幅 50eV 以下のエネルギー分解能で検出できる TES 素子の設計・作製を行った。Fig. 3-1 に作製した TES 素子の写真及び仕様を示す。SiNx 膜上に形成された金 (Au) とチタン (Ti) の超伝導薄膜温度計上に、5 μm 厚の金 (Au) のエネルギー吸収体が接続されている。

また、一般的に核燃料物質等を取り扱う施設では、液体ヘリウムを利用する超低温設備の基盤が十分ではないため、液体ヘリウムを消費することなく簡便な操作で TES 検出器を安定に動作させる G-M 冷凍機を搭載した³He-⁴He 希釈冷凍機の開発も行われた。Fig. 3-2 に G-M 冷凍機搭載³He-⁴He 希釈冷凍機を示す。

開発した TES 素子及び超伝導量子干渉計 (SQUID) を実装した G-M 冷凍機搭載³He-⁴He 希釈冷凍機を用いて、²⁴¹Am の L-X 線のスペクトルが半値幅約 50 eV (10～20keV ピーク) のエネルギー分解能で測定された。

また、平成 20 年 3 月に、SII ナノテクノロジー株式会社 (現株式会社日立ハイテクサイエンス) の協力を得て、原子力機構核燃料サイクル工学研究所において、²⁴¹Am、²³⁹Pu 及び²³⁸Pu の測定実験を実施した。

Fig. 3-3 に測定装置の外観を示す。この測定実験では液体ヘリウム消費型冷却の³He-⁴He 希釈冷凍機を使用した。Fig. 3-4 に (a) Ge 検出器と (b) TES 検出器より測定された L-X 線のスペクトルをそれぞれ示す。Ge 検出器の分解能では²⁴¹Am と²³⁹Pu の分離測定は不可能であるが、TES 検出器による高精細な L-X 線スペクトルから²⁴¹Am と²³⁹Pu のそれぞれの L-X 線を分離測定でき、プルトニウム同位体等の L-X 線の精密測定が可能であることが実証できた。

3.2 γ 線検出用のTES検出器の開発⁷⁾ (東京大学との共同研究)

平成 23 年度から平成 25 年度までの予定で、新たに東京大学及び九州大学との共同研究による先行基礎工学研究を実施している。

平成 23 年度は、東京大学において研究開発中である錫 (Sn) を吸収体とした TES 素子について、大洗研究開発センターの燃料材料試験施設 (AGF) で平成 23 年 8 月 22 日～9 月 5 日に測定実験を実施した。Fig. 3-5 に TES 検出部及びパルス管冷凍機搭載 ^3He - ^4He 希釈冷凍機及び TES 素子の写真及び MOX サンプルからの放射線を TES 検出器で測定したエネルギースペクトルを示す。本スペクトルは冷凍機のパルス管の振動による影響を抑えるため、短時間の間パルス管冷凍機を停止させ ^3He - ^4He 希釈冷凍機循環ラインの駆動のみで極低温を維持して得たものである。 ^{241}Am 線源からの γ 線のエネルギーピーク (59.54keV) が明瞭に確認できる他、約 30keV 及び約 35keV の位置に錫の K_α 線 (約 25 keV) 及び K_β 線 (約 29 keV) のエスケープピークも確認された。本スペクトルにおける 59.54keV ピークの半値幅は 450eV 程度であり、すでに Ge 検出器の理論分解能(600 eV 程度)を上回る性能を示しているが、パルス管冷凍機を停止しての短時間での測定のため、検出イベント数が充分ではなく、スペクトルのエネルギー分解能においては統計精度も制限された。次回試験に向けてパルス管冷凍機の振動対策及び TES 素子の改善が進められた。

4. 燃料デブリの高分解能測定について

4.1 TES 検出器による燃料デブリの高分解能測定について

先行基礎工学研究のこれまでの成果からの L-X 線測定用(10~20keV)及び γ 線測定用 (10~150 keV) の TES 検出器による高分解能測定が実証されている。米国スリーマイル島原子力発電所事故やチェルノブイリ原子力発電所事故の処理には適用できなかった遠隔・非破壊の γ 線高分解能計測により、燃料デブリの計量管理手法の開発に有用な情報が得られる可能性がある。

従来の Ge 検出器で燃料デブリを測定した場合、分解能が十分ではないことから、放出率が低い Pu の 0~150 keV にある γ 線は、FP による散乱線等の妨害により検出は困難である。一方、高い分解能の TES 検出器では連続スペクトルである散乱線は分解能の向上とともに、エネルギーチャンネル当たりの計数率は低減し、 γ 線のピーク計数率との S/N 比が良くなる可能性がある。さらに、高線量率であれば有感面積の小さな TES 検出器でも十分適用できる可能性がある。平成 24 年度の研究開発として、TES 検出器での測定実験による Pu 等の測定データの収集を行い、測定データの解析とともに、燃料デブリの収納キャニスタの測定に係る計算シミュレーションの整備及び試算を行った。

4.2 TES 検出器による測定実験

4.2.1 Pu 試料の γ 線の測定試験

大洗研究開発センターにおいて、東京大学が開発中の TES 検出器を用いて、核燃料物質の γ 線を測定対象とする測定試験を実施した。Table 4-1 に平成 24 年度の測定試験の工程を示す。TES 検出器の振動ノイズ対策が強化され、金バンプポストでの吸収体と TES 素子の接続により検出信号の応答も早くなっている。Fig. 4-1 に改良された TES 検出部及び新型 2ch-TES マウントを示す。

TES 検出器を東京大学から照射燃料試験施設に運搬・設置し、冷凍機の起動及び測定システムの調整を行った後、核燃料物質の γ 線スペクトルの計測を行った。線源は硝酸 Pu 溶液の試料を使用した。プルトニウム試料からの γ 線、X 線のスペクトロスコーピーにより ^{239}Pu と思われるピークが検出された。Fig. 4-2~Fig. 4-4 に TES 検出器及び Ge 検出器で測定された Pu 溶液試料の γ 線スペクトルを示す。分解能は 60 keV において約 300eV であり、Ge 検出器では明らかに検出困難な Pu の γ 線スペクトルが検出できている。

4.2.2 Pu 及び Am の L-X 線の測定試験

核燃料サイクル工学研究所の放射線保健室において、九州大学が開発中の TES 検出器を用いて、核燃料物質の L-X 線 (10~25keV) を測定対象とする測定試験を実施した。Table 4-2 に平成 24 年度の測定試験の工程を示す。TES 検出器は L-X 線測定用の Au 吸収体 $5\mu\text{m}$ 搭載 Ti/Au 薄膜温度計 (Ti : 50nm、Au : 120nm、転移温度 : 約 200mK) を使用した。冷凍機は G-M 型冷凍機搭載 ^3He - ^4He 希釈冷凍機を用いた。装置の設置状況を Fig. 4-5 に示す。

冷凍機、TES 検出器及び測定システムを九州大学から放射線保健室に運搬・設置し、冷凍機の起動及び測定システムの調整を行った後、L-X 線スペクトルの計測を行った。線源は肺モニ

タ校正用の ^{241}Am 、 ^{238}Pu 及び ^{239}Pu 密封線源を使用した。Table 4-3 に線源の概略を示す。これら線源を用いて核種毎の L-X 線エネルギースペクトル、及び Am・Pu 混在時の L-X 線エネルギースペクトルの取得を行った。

試験により得られた ^{241}Am 、 ^{238}Pu 及び ^{239}Pu の L-X 線スペクトルを Fig. 4-6～Fig. 4-8 にそれぞれ示す。エネルギー分解能は約 70eV であり微細な L-X 線の成分の弁別に成功した。Fig. 4-9 に Am・Pu 混在時の L-X 線エネルギースペクトルを示す。主要な L-X 線ピークについて、Am と Pu の弁別が可能であり、L-X 線を用いた核種弁別の測定に期待できる結果となった。

4.3 燃料デブリの測定に係る計算シミュレーション

4.3.1 EGS5 計算コードによる TES 検出器の計算シミュレーション

EGS (Electron-Gamma Shower) 計算コードシステムは、電子・光子輸送計算のモンテカルロシミュレーションを行う汎用コードパッケージであり、長年に渡って改良が重ねられ、多くの応用分野で用いられてきた。現在の最新バージョンである EGS5 計算コードは、改良やバグフィックスを集大成したコードであり、放射線検出器の応答計算などにおいて、信頼性及び実績のある計算コードシステムである。

TES 検出器は開発中の段階であることから、高分解能の測定データは十分ではなく、複雑な γ 線スペクトルの理解にはシミュレーション計算での解析が必要である。また、燃料デブリ測定への適用性の評価においても、燃料デブリ収納キャニスタの仕様などが確定されていない現段階では、シミュレーション計算による評価が不可欠である。

4.3.2 EGS5 計算コードによる TES 検出器の測定スペクトルの解析

TES 検出器による測定実験について EGS5 計算コードによる解析を行った。シミュレーション計算は Fig. 4-10 に示すフローで行なう。初めに可能な限り多くの文献から核種毎の X 線と γ 線の光子放出率の一覧表(以下、「光子放出率データ」という)を作成する。次に、作成した光子放出率データを入力データとして、EGS5 計算コードで TES 検出器への付与エネルギーを計算し、付与エネルギースペクトルを作成する。さらに、C++言語で独自に作成したプログラムにより、TES 検出器の応答関数を付与エネルギースペクトルに畳み込み、検出器の応答特性を加味する。

計算により得られたスペクトルは、実験で得られたスペクトルと最大放出率の γ 線のピーク計数値が同じ値になるように規格化する。これら計算作業を測定試料に含まれる核種毎に行ない、その結果を一つにまとめ、試料測定により得られるスペクトルとする。

シミュレーション体系では、希釈冷凍機、試料ホルダ、TES 検出器、溶液試料を模擬した。Fig. 4-11 にシミュレーション計算体系を示す。計算時間短縮のため、線源試料は TES 検出器の吸収体の前面にのみ配置とした。光子放出率データは文献^{8),9)}から作成した。硝酸 Pu 溶液試料では、 ^{239}Pu と ^{241}Am の 2 核種を考慮した。 ^{239}Pu は 4 種類の K-X 線、20 種類の L-X 線、28 種類の γ 線を、 ^{241}Am は 4 種類の K-X 線、21 種類の L-X 線、24 種類の γ 線をそれぞれ仮定した。

硝酸 Pu 溶液試料のシミュレーション計算結果について、Fig. 4-12～Fig. 4-16 に実験とシミ

シミュレーション計算により得られたスペクトルの比較結果を示す。また、Table 4-4 に各ピークの計数比を示す。計数比は、エスケープピークと 94.6 keV のピークを除き、ほぼ誤差範囲内で一致した。エスケープピークについては、線源核種を吸収体鉛直上にのみの配置としたため、実験とシミュレーション計算のずれが他のピークに比べ大きくなったと考えられる。以上より、スペクトル中の主要なピークの起源は Fig. 4-13～Fig. 4-16 中に示した ^{239}Pu と ^{241}Am に由来する X 線および γ 線であるといえる。

4.3.3 燃料デブリの収納キャニスタを模擬したシミュレーション計算の整備

東京電力(株)福島第一原子力発電所の燃料デブリについては、取り出し方法や収納容器などの研究開発が今後進められ、決定されるものと考えられるが、現段階では何も決まっていない。そこで TES 検出器による高分解能測定の実用性を評価するため、米国スリーマイル島原子力発電所 2 号炉 (TMI-2) の燃料デブリの収納キャニスタを模擬した計算体系を構築し、試算を実施した。本評価計算は Ge 検出器による随伴 $\text{FP}\gamma$ 線測定法の開発にも応用可能である。

(1) 計算体系

TMI-2 では 3 種類の燃料デブリの収納キャニスタ¹⁰⁾が使用された。Fig. 4-17 に 3 種類の燃料デブリの収納キャニスタの概略図を示す。キャニスタの基本的な外観は、高さ 3,810mm, 外径 355.6 mm, 厚さ 6.35 mm の 304L ステンレススチール製である。これらのうち炉心熔融物の大きな塊の燃料デブリの収納に使用されたのは燃料 (Fuel) キャニスタ (以下、燃料キャニスタという) である。

TMI-2 の燃料キャニスタの測定を模擬した計算体系を Fig. 4-18 に示す。燃料キャニスタ内部には正方形 (231.78 mm×231.78 mm) の収納部があり、収納部の外側は低密度のコンクリートが充てんされている。さらに燃料キャニスタは遮へい及び冷却のためにステンレス管内の水中に収められているとした。TES 検出器は約 1.1m のコンクリートセルの外側に配置し、鉛コリメータを通して燃料デブリからの γ 線を測定するとした。

線源については、燃料デブリの取り出し開始が事故から 10 年後と想定して、ORIGEN コードで計算評価された東京電力(株)福島第一原子力発電所の 2 号炉の事故から 10 年経過後の放射能¹¹⁾から計算に使用する仮定の燃料デブリを設定した。Table 4-5 に主な核種の炉心燃料の放射能を示す。炉心燃料の破損により揮発性のセシウム及びヨウ素や希ガスなどは燃料デブリ中に全量が存在することは無いと考えられるが、TES 検出器による測定で散乱線の影響が最も大きい条件として全量が存在すると仮定した。

(2) 燃料デブリからの光子

仮定の燃料デブリに含まれるとした 82 核種についての光子発生データを ICRP Publication 107 から抽出し、単位 Bq 当たりの光子発生データを作成した。さらに、単位 Bq 当たりの光子発生データと Table 4-5 の放射能から仮定の燃料デブリからの光子発生データを整備した。仮定の燃料デブリでは ^{137}Cs とその子孫核種の $^{137\text{m}}\text{Ba}$ (半減期 2.55 分) による光子の発生量が圧倒的に多い。 ^{137}Cs と $^{137\text{m}}\text{Ba}$ (以下、「 $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ 」という。) は放射平衡になっており、

^{137m}Ba から 662keV の γ 線が放出されている。Fig. 4-19 に $^{137}\text{Cs}/^{137m}\text{Ba}$ 及び $^{137}\text{Cs}/^{137m}\text{Ba}$ を除く
 その他核種（以下、「その他核種」という）の光子発生分布を示す。モンテカルロ計算で評価
 する場合、 $^{137}\text{Cs}/^{137m}\text{Ba}$ の光子発生量がその他核種よりも相対的に大きいと、必要以上に
 $^{137}\text{Cs}/^{137m}\text{Ba}$ の計算数が多くなることから $^{137}\text{Cs}/^{137m}\text{Ba}$ のみの光子発生データとその他核種の
 光子発生データとに分けて計算を行った。

仮想燃料デブリ中のアクチニド核種の光子の発生数は ^{239}Pu 、 ^{241}Pu 、 ^{235}U 、 ^{237}U 及び ^{241}Am
 が比較的多く、エネルギーが 10~20 keV の L-X 線及び 100keV 付近の γ 線がある。Fig. 4-20~
 Fig. 4-24 に ^{239}Pu 、 ^{241}Pu 、 ^{235}U 、 ^{237}U 及び ^{241}Am の光子発生率の比較を示す。特に β 崩壊核種
 である ^{241}Pu 及びその子孫核種 (^{241}Am 、 ^{237}U) は他の α 崩壊核種に比べて放射能量及び光子
 発生数が比較的多い。事故から 10 年経過後に存在する ^{237}U (半減期 6.75 日) は ^{241}Pu の壊変
 から生成されたものである。

(3) EGS5 計算コードによる燃料キャニスタの TES 検出器での測定の試算

Fig. 4-18 の TMI-2 の燃料キャニスタの測定を模擬した計算体系において、EGS5 計算コード
 を用いて TES 検出器による測定に係る試算を行った。今回の計算体系では、燃料キャニスタ壁
 面のステンレス鋼や水の遮へい効果により γ 線や X 線の減衰があることから、計算効率を考慮
 して、モンテカルロ計算は 40keV 以上の光子を対象とした。ただし、 ^{241}Am については 40keV
 以上で計算した結果、 ^{241}Am の光子の大部分を占める 59.54keV の光子の透過率が低く、計算
 効率が悪いことから、60keV 以上での計算に変更した。また、線源は $^{137}\text{Cs}/^{137m}\text{Ba}$ 、その他核種、
 ^{239}Pu 、 ^{241}Pu 、 ^{235}U 、 ^{237}U 及び ^{241}Am について計算した。

線源・コリメータ体系での輸送計算では、線源からコリメータを通過した所での光子情報を
 求める計算を行った。計算体系は燃料キャニスタ、1,100mm のコンクリート遮へい壁内に配置
 した直径 2.5mm の空洞を持つ直径 200mm の鉛コリメータで構成した。ただし、計算評価上は
 コンクリート遮へい壁に入った光子はそこで停止するとした。今回の計算では、光子発生領域
 はコリメータの中心として上下、左右で 6mm 角として、奥行き方向は線源領域全てとした（体
 積は $0.6 \times 0.6 \times 23.178 = 8.344 \text{ cm}^3$ ）。光子発生方向はコリメータ方向を中心に 0.3 度の範囲として
 発生確率は 6.85388×10^{-6} とした。

次に、TES 検出器での検出について、コリメータ通過後の光子情報を線源として計算を行っ
 た。ただし、光子情報は、 ^{239}Pu 、 ^{241}Pu 、 ^{235}U 、 ^{237}U 及び ^{241}Am 、について 1000 回繰り返し利用
 し、それ以外は 100 回繰り返し利用し、モンテカルロ計算の計算粒子数を増やした。

(4) 試算結果

仮定した燃料キャニスタ中の仮想の燃料デブリから放射される光子について、モンテカルロ
 計算で TES 検出器の応答を評価した。線源強度は燃料デブリ g 当たりで規格し、光子エネルギ
 ー毎の計数率 (cps) を評価した。計算結果を Table 4-6 に示す。

今回の仮定した線源条件では、Table 4-6 に示す通り、燃料キャニスタの壁やコリメータを通
 過し、TES 検出器で検出された光子は、 $^{137}\text{Cs}/^{137m}\text{Ba}$ 等の FP の光子数が圧倒的に多く、 ^{239}Pu や
 ^{241}Am 等の光子の数は少なかった。

$^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ について、Fig. 4-25 に分解能が 50eV と 500eV のスペクトルを示す。 $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ の γ 線による散乱線は、低エネルギー領域に影響している。分解能の向上とともに、検出ピークも高くなるが、散乱線の変動レベルも高くなる。 $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ の 50~300keV のエネルギー範囲を拡大したスペクトルを Fig. 4-26 に示す。今回の試算では、50eV の分解能の場合、 $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ による散乱線の計数率は約 10^{-6} cps のレベルとなった。

その他の核種について、Fig. 4-27 に分解能が 50eV と 500eV のスペクトルを示す。その他核種においては ^{134}Cs の影響が大きい。その他核種による散乱線の計数率は 50eV の分解能の場合、約 10^{-7} cps のレベルとなった。

Fig. 4-28 に ^{239}Pu 、 ^{241}Pu 、 ^{235}U 、 ^{237}U 及び ^{241}Am のそれぞれの γ 線ピークとこれらの核種を合成した分解能 50eV のスペクトルを示す。Pu 等の光子は ^{237}U の 208.0keV と ^{241}Am の 103keV のピークが顕著であるが、それらのピークの計数率は 10^{-10} cps のレベルである。

今回の試算において単純比較では Pu 等のピークは FP による散乱線の計数率よりも約 3~4 桁低く、燃料キャニスタの直接測定による Pu 等の光子の検出は困難な結果となった。ただし、仮想の燃料デブリとして、放射性セシウムが全量存在するなど、過大な線源条件及び遮へい条件での試算であり、今後、現実的な条件での評価を検討するとともに、燃料デブリ片試料の直接測定などの TES 検出器に適した測定について検討する予定である。

5. 結論

TES 検出器による Pu 試料の測定実験を行うとともに、計算シミュレーションによる測定結果の分析を行った。また、燃料デブリ測定に係るシミュレーション計算の試算を行った。

大洗研究開発センターにおいて東京大学の TES 検出器を用いて、硝酸 Pu 溶液の試料からの γ 線、X 線のスペクトロスコピーを行い、 ^{239}Pu と思われるピークを検出した。分解能は 60 keV において約 300eV であり、Ge 検出器では検出困難な Pu の γ 線スペクトルが検出できている。

核燃料サイクル工学研究所において九州大学の TES 検出器を用いて、Pu 及び ^{241}Am 線源の L-X 線を測定した。エネルギー分解能は 20 keV において約 70eV であり、微細な L-X 線の成分の弁別に成功した。主要な L-X 線ピークについて、Am と Pu の弁別が可能であり、L-X 線を用いた核種弁別の測定に期待が持てる結果となった。

大洗研究開発センターでの TES 検出器による測定試験で得られたスペクトルについて、EGS5 コードを用いてモンテカルロ計算を行い、十分にシミュレート可能であることを確認した。EGS5 コードを用いることで高分解能の TES 検出器で得られる精細なスペクトルの理解が容易になると考えられる。さらに今回作成した体系は測定結果を良く再現しており、燃料デブリ測定への適用性の評価をする上でも十分使用可能である。

EGS5 計算コードを用いて、米国スリーマイル島原子力発電所 2 号炉 (TMI-2) の燃料キャニスタを模擬した計算体系を構築し、TES 検出器による東京電力(株)福島第一原子力発電所の仮想の燃料デブリの測定について試算を行った。今回構築した計算体系は Ge 検出器を用いる随伴 $\text{FP}\gamma$ 線測定法の開発への応用も可能である。試算の結果、キャニスタの遮へいや放射性セシウム等の散乱線の影響が大きく、50eV の分解能での測定において Pu 等のピークは散乱線の計数率よりも約 3~4 桁低いことから、燃料キャニスタの直接測定による Pu 等の光子の検出は困難な結果となった。今後、現実的な条件での評価を検討するとともに、燃料デブリ片試料の直接測定などの TES 検出器に適した測定について検討する予定である。

謝辞

本報告書の作成に当たり、TESの測定実験の実施に多大な協力を頂いた大洗研究開発センター及び核燃料サイクル工学研究所の諸氏、TMI-2収納キャニスタの γ 線測定に係る貴重な助言を頂いた核物質管理科学技術推進部の相楽博士（現東京工業大学）及び諸氏、その他関係各位に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 原子力災害対策本部 政府・東京電力中長期対策会議：“東京電力（株）福島第一原子力発電所 1～4 号機の廃止措置等に向けた研究開発計画について”，平成 23 年 12 月 21 日。
- 2) 原子力災害対策本部 政府・東京電力中長期対策会議：“東京電力（株）福島第一原子力発電所 1～4 号機の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ”，平成 23 年 12 月 21 日。
- 3) （編）研究協力課：“先行基礎工学研究に関する平成 18 年度研究概要報告”，JAEA-Review 2007-028, pp.135-138 (2007)。
- 4) （編）研究協力課：“先行基礎工学研究に関する平成 19 年度研究概要報告”，JAEA-Review 2008-042, pp.131-138 (2008)。
- 5) （編）研究協力課：“先行基礎工学研究に関する平成 20 年度研究概要報告”，JAEA-Review 2009-021, pp.129-134 (2009)。
- 6) K. Maehata, K. Nakamura, T. Yasumune, K. Ishibashi, K. Takasaki, K. Tanaka, A. Odawara : “Development of a TES Microcalorimeter for Spectroscopic Measurement of LX-rays Emitted by Transuranium Elements”, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 47, pp.308-313(2010)。
- 7) （編）研究協力課：“先行基礎工学研究に関する平成 23 年度研究概要報告”，JAEA-Review 2012-031, pp.112-114 (2012)。
- 8) M.C. Lépy, B. Dvchemin, J. Morel : “Comparison of experimental and theoretical LX - ray emission probabilities of ^{241}Am , ^{239}Pu and ^{240}Pu ”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A353 pp.10-15 (1994)。
- 9) Laboratoire National Henri Becquerel : Recommended data, available from http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm (accessed 2012-12-04)。
- 10) DOE : “TMI Fuel Characteristics for Disposal Criticality Analysis”, DOE/SNF/REP-084(2003)。
- 11) 西原 健司, 岩元 大樹, 須山 賢也：“福島第一原子力発電所の燃料組成評価”，JAEA-Data/Code 2012-018 (2012)。

Table 4-1 大洗研究開発センターにおける測定試験の工程

期間	内容
H24. 9.27～10.16	測定装置類の搬入・設置、冷却・装置調整
H24.10. 2～10. 4	装置調整、Pu 試料測定試験（線源：Pu 試料）
H24.10. 9～10.10	装置調整、Pu・FP 混在試料測定（線源：Pu・FP 試料）
H24.11.11～11.16	昇温、装置搬出

Table 4-2 核燃料サイクル工学研究所における測定試験の工程

期間	内容
H24.11.12	測定装置類の搬入・設置
H24.11.13～11.30	第一回測定試験（線源： ^{241}Am 、 ^{238}Pu ）
H24.11.30～12.13	第二回測定試験（線源： ^{239}Pu ）
H25. 1.18～ 2. 1	第三回測定試験（線源： ^{241}Am ・ ^{238}Pu 、 ^{239}Pu 混在）
H25. 2.12～ 2.25	第四回測定試験（線源： ^{239}Pu ）

Table 4-3 Pu 等に係る L-X 線の測定試験に使用した線源

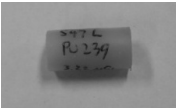
核種	形状	線源強度 [kBq]	
	点線源		
^{241}Am		370	
^{238}Pu	リンパ型 	119.14	(合計)
		32.86	184.63
		32.63	
^{239}Pu		71.78	(合計)
		19.72	111.33
		19.83	

Table 4-4 硝酸 Pu 溶液試料のピーク計数比

エネルギー範囲(keV)	関連 X 線・ γ 線	計数比(実験/シミュレーション)	
12.7 - 15.0	$^{239}\text{Pu}(\text{U } L_{\alpha 1,2})$ $^{241}\text{Am}(\text{Np } L_{\alpha 1,2})$	1.05	± 0.03
15.0 - 18.9	$^{239}\text{Pu}(\text{U } L_{\eta}, \text{U } L_{\beta 1,2,3,6})$ $^{241}\text{Am}(\text{Np } L_{\beta 1,2,3,4})$	1.18	± 0.02
18.9 - 21.9	$^{239}\text{Pu}(\text{U } L_{\gamma 1,2,3,6})$ $^{241}\text{Am}(\text{Np } L_{\gamma 1,3,6,8})$	0.94	± 0.03
25.9 - 26.8	Sn エスケープ ($^{239}\text{Pu } \gamma$ 線:51.6 keV) $^{241}\text{Am}(\gamma_{2,1})$	0.86	± 0.08
30.0 - 31.5	Sn エスケープ ($^{241}\text{Am } \gamma$ 線:59.5 keV)	1.42	± 0.10
33.5 - 34.9	Sn エスケープ ($^{241}\text{Am } \gamma$ 線:59.5 keV)	1.20	± 0.05
51.4 - 52.0	$^{239}\text{Pu}(\gamma_{4,1})$	1.16	± 0.15
59.0 - 60.2	$^{241}\text{Am}(\gamma_{2,0})$	1.11	± 0.03
94.2 - 95.1	$^{239}\text{Pu}(\text{U } K_{\alpha 2})$	5.07	± 1.20
97.4 - 99.2	$^{239}\text{Pu}(\text{U } K_{\alpha 1}, \gamma_{8,4})$	1.44	± 0.48
109.6 - 111.6	$^{239}\text{Pu}(\text{U } K_{\beta 1})$	1.71	± 0.99
128.3 - 129.7	$^{239}\text{Pu}(\gamma_{7,0})$	1.57	± 0.95

Table 4-5 福島第一原子力発電所 2 号炉の事故から 10 年経過後の放射能量

No.	Nuclide	Activity (GBq/Core)	No.	Nuclide	Activity (GBq/Core)	No.	Nuclide	Activity (GBq/Core)
1	¹¹⁰ Ag	3.45	29	¹²⁹ I	7.51×10	57	²²⁰ Rn	5.20×10
2	^{110m} Ag	2.54×10 ²	30	⁸⁵ Kr	1.63×10 ⁷	58	¹⁰⁶ Ru	9.94×10 ⁵
3	²⁴¹ Am	3.98×10 ⁶	31	⁵⁴ Mn	3.33×10	59	¹²⁵ Sb	1.47×10 ⁶
4	²⁴² Am	1.67×10 ⁴	32	^{93m} Nb	2.77×10 ³	60	¹²⁶ Sb	2.08×10 ²
5	^{242m} Am	1.67×10 ⁴	33	⁵⁹ Ni	9.89×10	61	^{126m} Sb	1.49×10 ³
6	²⁴³ Am	2.97×10 ⁴	34	⁶³ Ni	1.39×10 ⁴	62	⁷⁹ Se	9.04×10
7	¹³³ Ba	1.55×10	35	²³⁷ Np	6.61×10 ²	63	¹⁵¹ Sm	8.34×10 ⁵
8	^{137m} Ba	1.92×10 ⁸	36	²³⁸ Np	8.37×10	64	^{119m} Sn	7.11×10 ²
9	²¹² Bi	5.20×10	37	²³⁹ Np	2.97×10 ⁴	65	¹²¹ Sn	4.16×10 ³
10	¹⁴ C	2.44×10 ²	38	²³³ Pa	6.61×10 ²	66	^{121m} Sn	5.25×10 ³
11	^{113m} Cd	3.66×10 ⁴	39	²³⁴ Pa	1.44	67	¹²⁶ Sn	1.49×10 ³
12	¹⁴⁴ Ce	3.20×10 ⁵	40	^{234m} Pa	1.11×10 ³	68	⁹⁰ Sr	1.50×10 ⁸
13	²⁴² Cm	1.38×10 ⁴	41	²¹² Pb	5.20×10	69	⁹⁹ Tc	3.34×10 ⁴
14	²⁴³ Cm	1.98×10 ⁴	42	¹⁰⁷ Pd	2.27×10 ²	70	^{125m} Te	5.44×10 ⁵
15	²⁴⁴ Cm	2.19×10 ⁶	43	¹⁴⁶ Pm	1.16×10 ³	71	²²⁸ Th	5.20×10
16	²⁴⁵ Cm	3.62×10 ²	44	¹⁴⁷ Pm	3.12×10 ⁷	72	²³¹ Th	1.36×10 ²
17	²⁴⁶ Cm	5.89×10	45	²¹² Po	3.33×10	73	²³⁴ Th	1.11×10 ³
18	⁶⁰ Co	9.69×10 ²	46	²¹⁶ Po	5.20×10	74	²⁰⁸ Tl	1.87×10
19	¹³⁴ Cs	9.63×10 ⁶	47	¹⁴⁴ Pr	3.20×10 ⁵	75	²³² U	5.12×10
20	¹³⁵ Cs	1.14×10 ³	48	^{144m} Pr	4.84×10 ³	76	²³⁴ U	3.05×10 ²
21	¹³⁷ Cs	2.03×10 ⁸	49	²³⁶ Pu	8.81	77	²³⁵ U	1.36×10 ²
22	¹⁵² Eu	5.38×10 ³	50	²³⁸ Pu	4.68×10 ⁶	78	²³⁶ U	7.16×10 ²
23	¹⁵⁴ Eu	4.66×10 ⁶	51	²³⁹ Pu	8.95×10 ⁵	79	²³⁷ U	4.27×10 ³
24	¹⁵⁵ Eu	1.83×10 ⁶	52	²⁴⁰ Pu	1.04×10 ⁶	80	²³⁸ U	1.11×10 ³
25	⁵⁵ Fe	3.66×10 ⁴	53	²⁴¹ Pu	1.74×10 ⁸	81	⁹⁰ Y	1.50×10 ⁸
26	¹⁵³ Gd	2.18	54	²⁴² Pu	3.41×10 ³	82	⁹³ Zr	4.77×10 ³
27	³ H	7.11×10 ⁵	55	²²⁴ Ra	5.20×10			
28	^{166m} Ho	3.27	56	¹⁰⁶ Rh	9.94×10 ⁵			

Table 4-6 EGS5 計算コードによるモンテカルロ計算の回数

	光子発生総数 (40keV 以上)	コリメータを通過する光子数 (計算回数)	TES 検出器での検出数 (繰り返し計算回数)
¹³⁷ Cs/ ^{137m} Ba	1.72×10 ⁸	62,616 (5×10 ⁸)	5,095 (100)
¹³⁷ Cs 等以外	3.51×10 ⁷	64,625 (5×10 ⁸)	4,893 (100)
²³⁹ Pu	5.37×10 ²	4,035 (1×10 ⁹)	6,571 (1000)
²⁴¹ Pu	2.48×10 ³	203 (1×10 ⁹)	497 (1000)
²³⁵ U	1.30×10 ²	2,253 (1×10 ⁹)	7,842 (1000)
²³⁷ U	4.92×10 ³	1,365 (1×10 ⁹)	3,371 (1000)
²⁴¹ Am	2.25×10 ³ *	4,489 (2×10 ⁹)	8,999 (1000)

* ²⁴¹Am については、放出割合の大きい 59.5keV の光子の透過効率が悪く、計算効率の向上ために 60 keV 以上を計算対象とした。

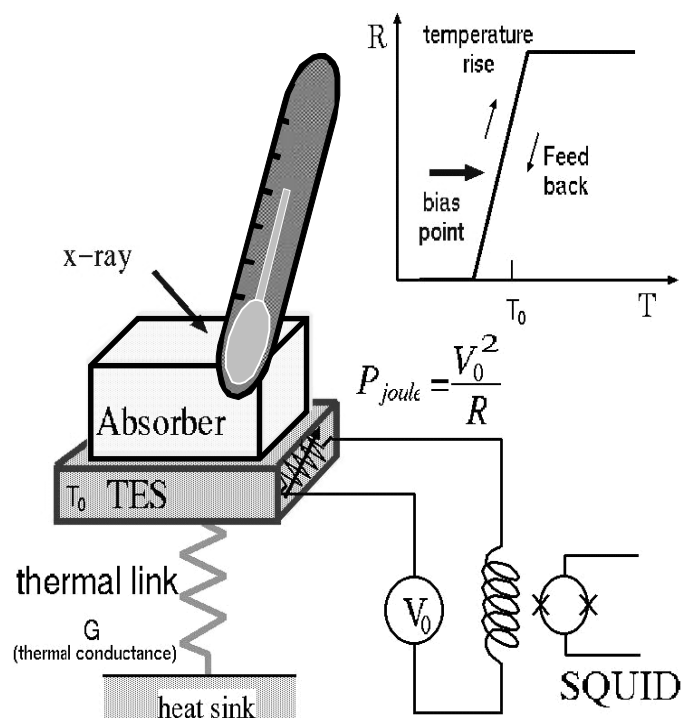


Fig. 2-1 超伝導転移端マイクロカロリメータの原理

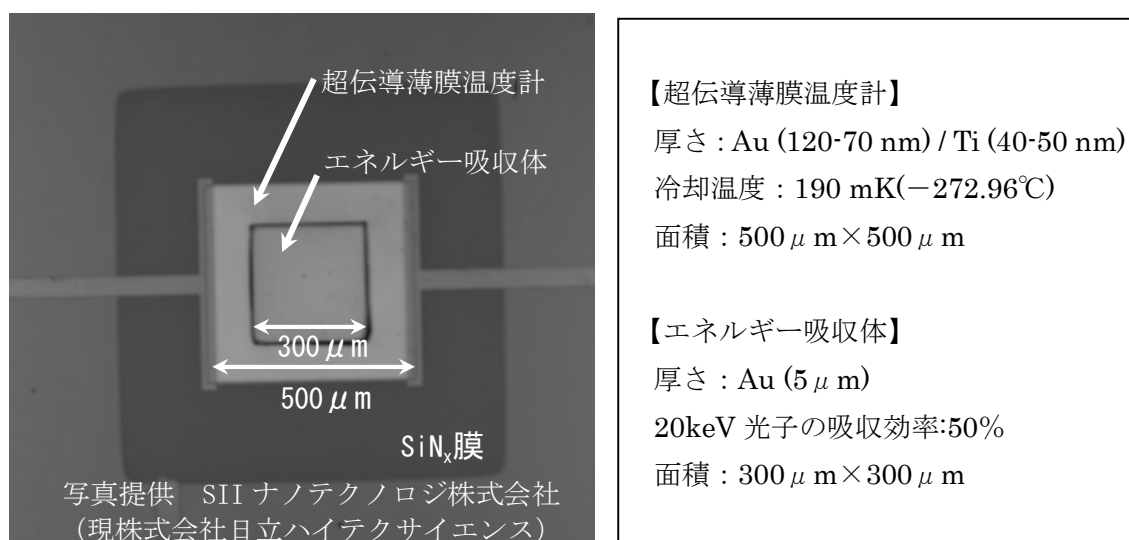


Fig. 3-1 L-X 線検出用 TES 検出器

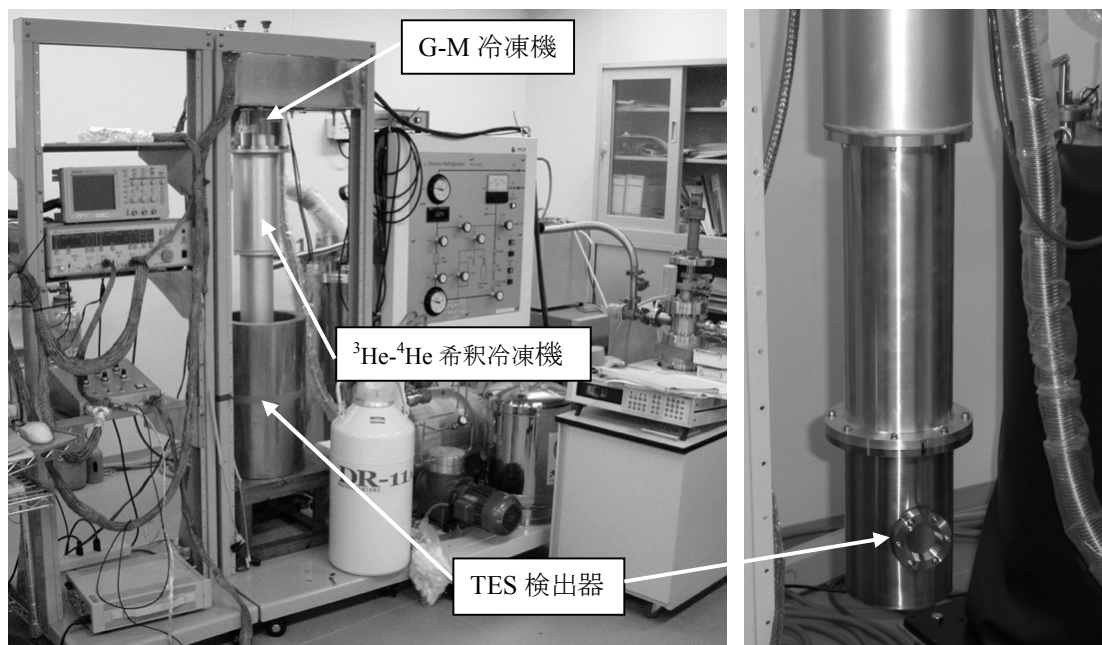


Fig. 3-2 TES 検出器及び G-M 冷凍機を搭載した ^3He - ^4He 希釈冷凍機
(九州大学)

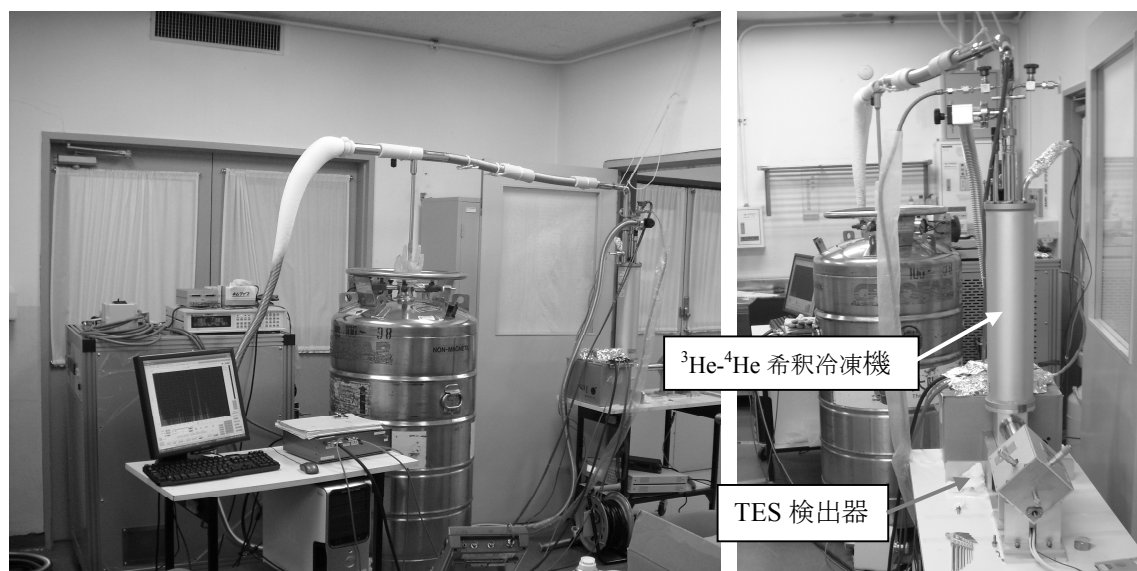
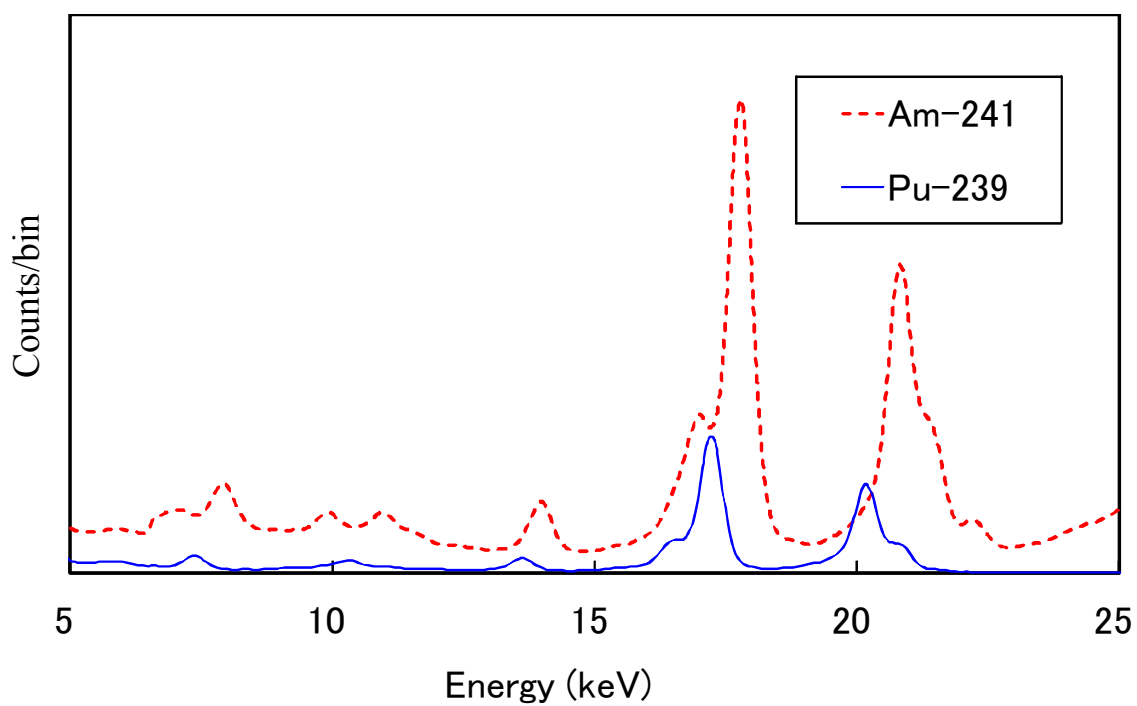
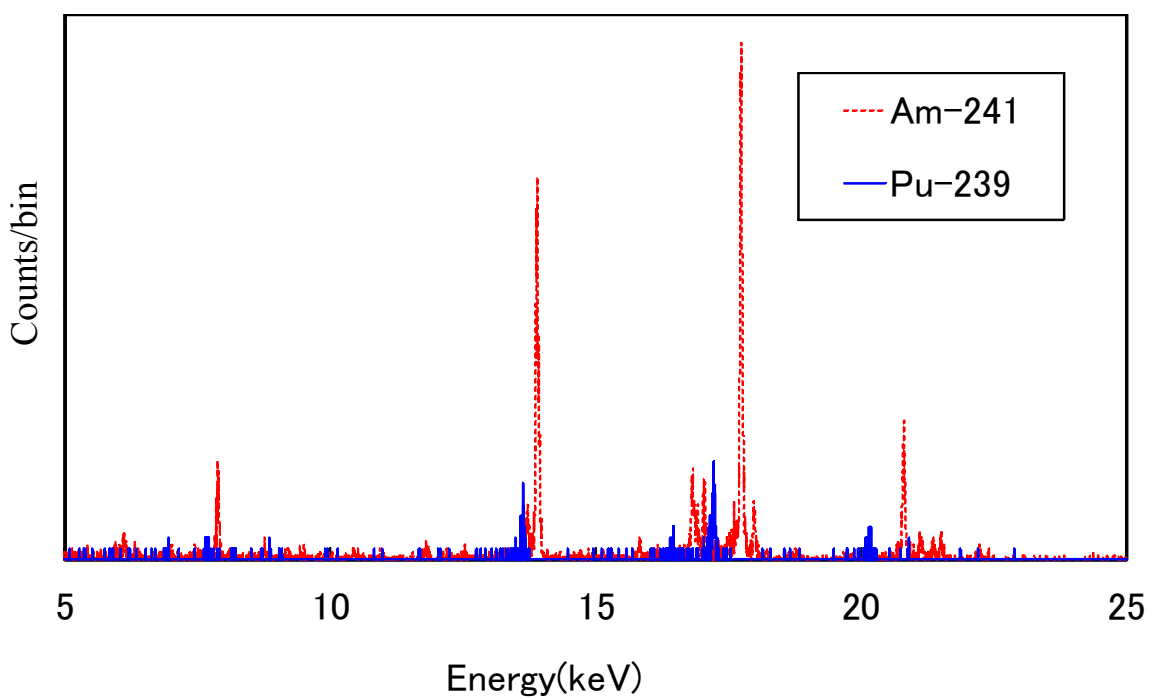


Fig. 3-3 液体ヘリウム供給式の ^3He - ^4He 希釈冷凍機
(SII ナノテクノロジー株式会社〔現株式会社日立ハイテクサイエンス〕)



(a) Ge半導体検出器によるスペクトル



(b) TES検出器によるスペクトル

Fig. 3-4 平成 20 年度の Pu 等の測定試験結果

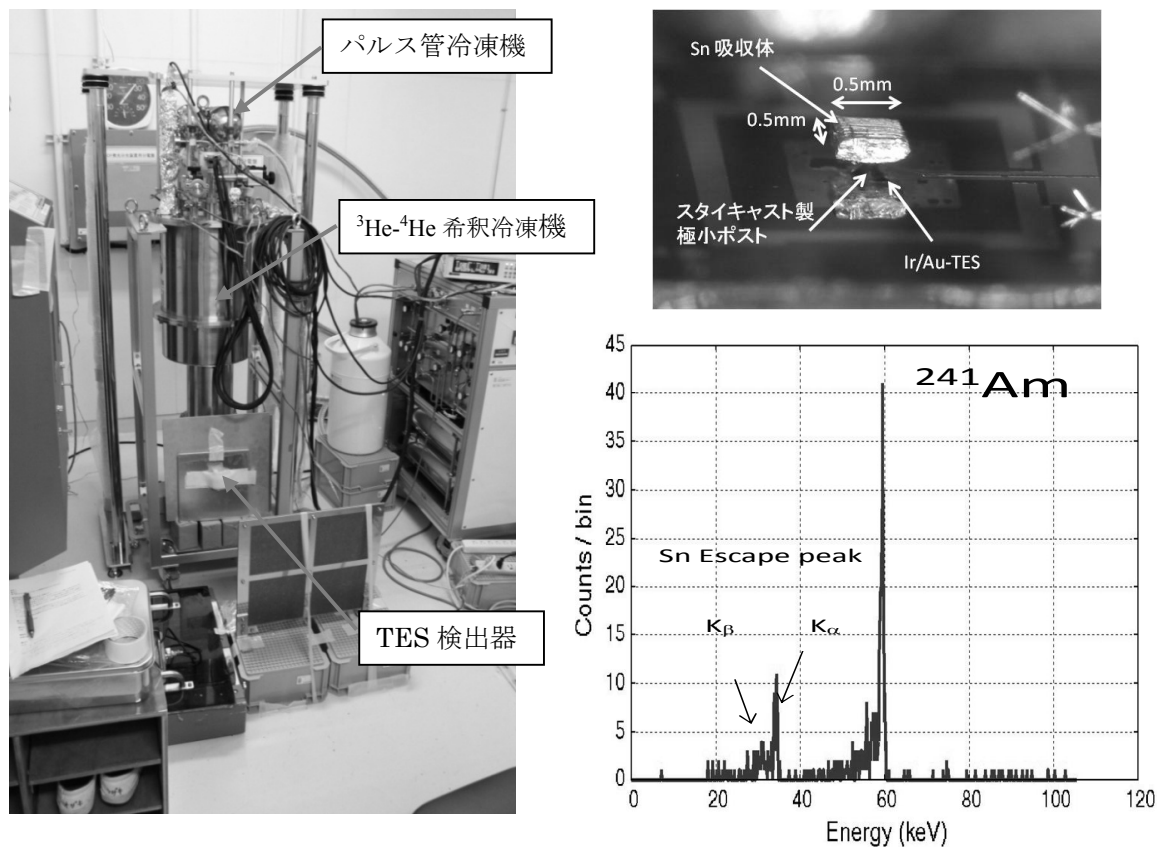


Fig. 3-5 パルス管冷凍機搭載 ^3He - ^4He 希釈冷凍機及び MOX の測定スペクトル (東京大学)

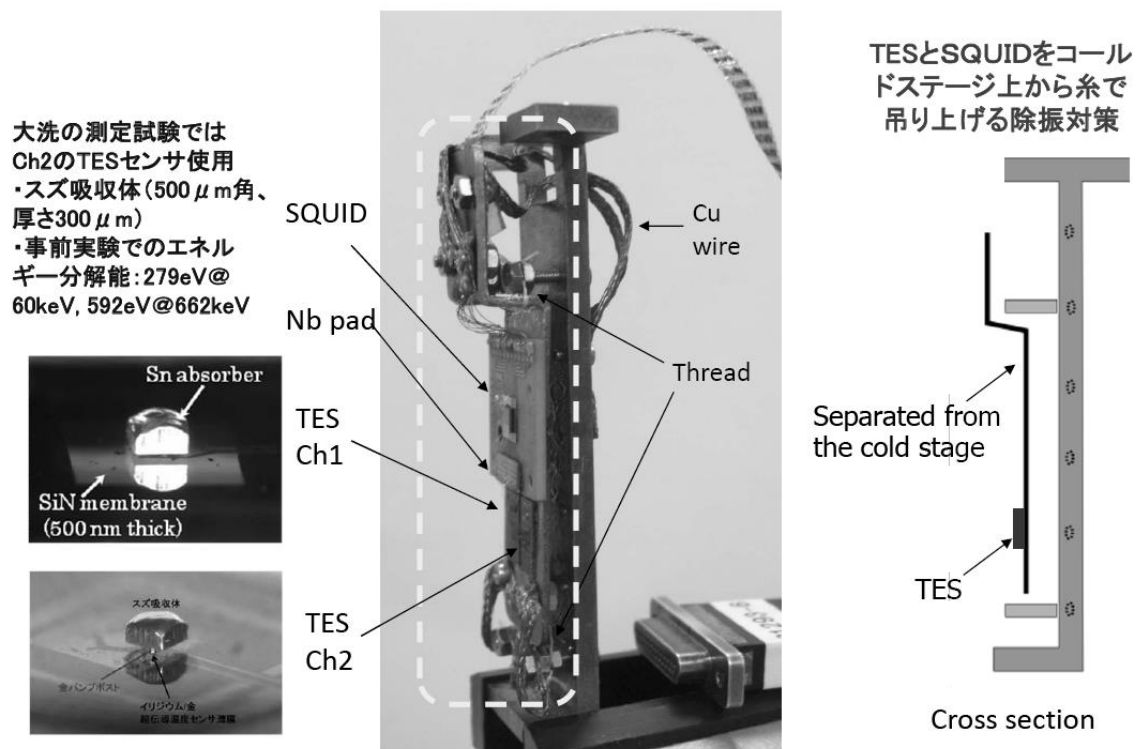


Fig. 4-1 TES 素子及び振動対策を強化した新型 2ch-TES マウント

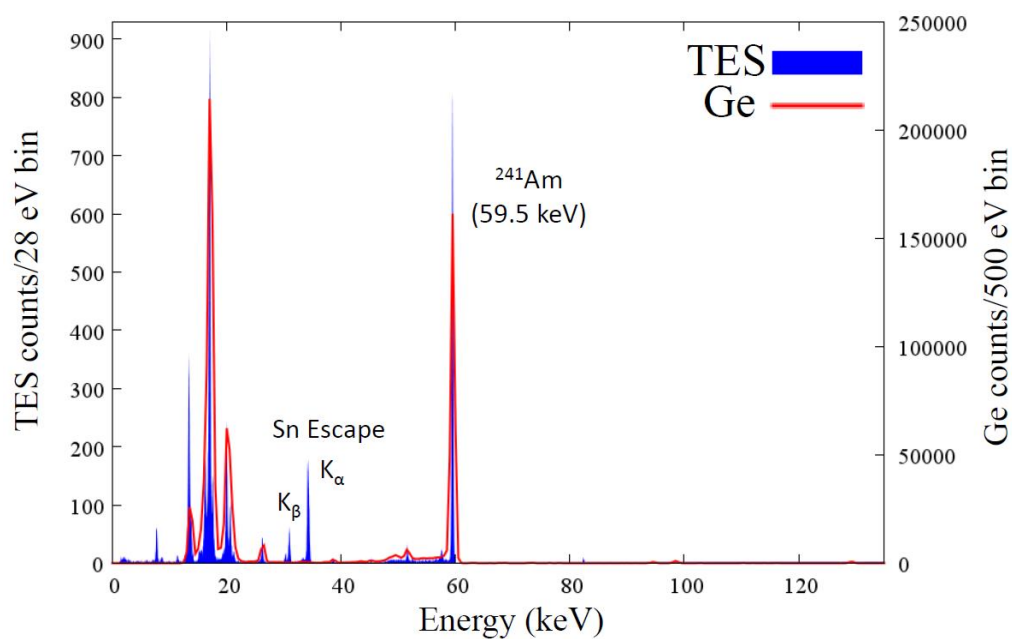


Fig. 4-2 Pu 試料の TES 検出器及び Ge 検出器の測定スペクトル (0~140keV)

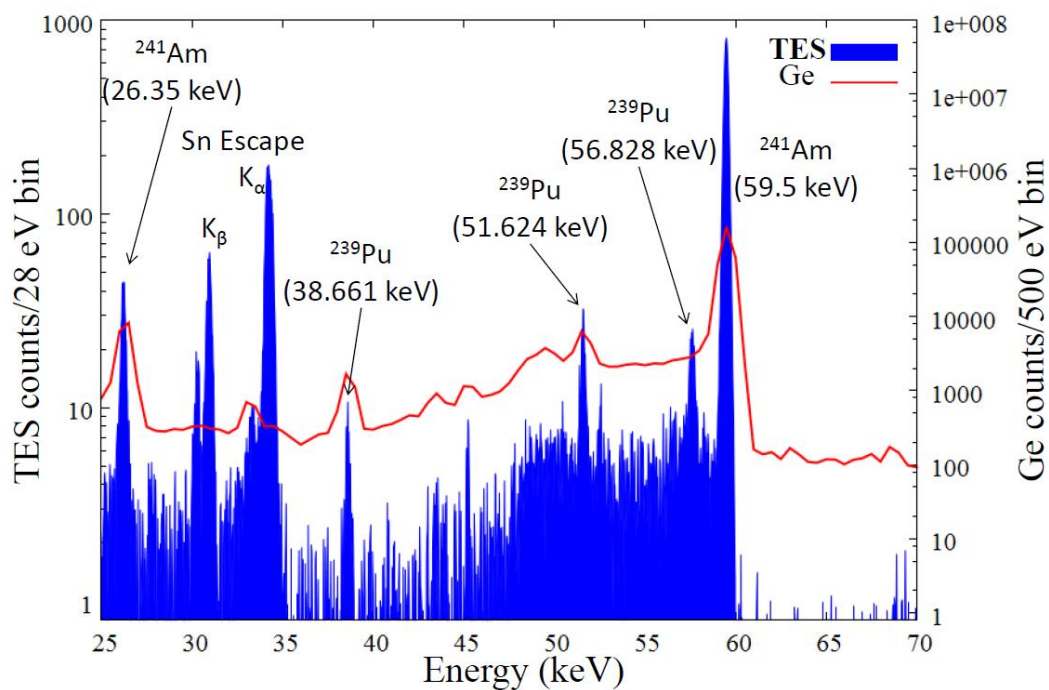


Fig. 4-3 Pu 試料の TES 検出器及び Ge 検出器の測定スペクトル (25~70keV)

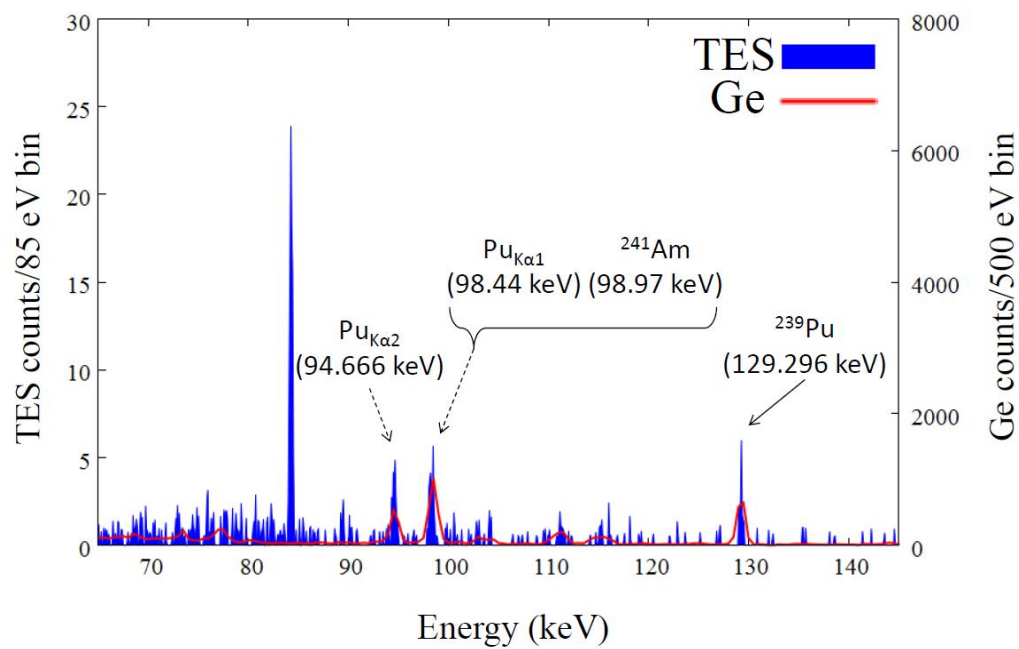


Fig. 4-4 Pu 試料の TES 検出器及び Ge 検出器の測定スペクトル (60～150keV)

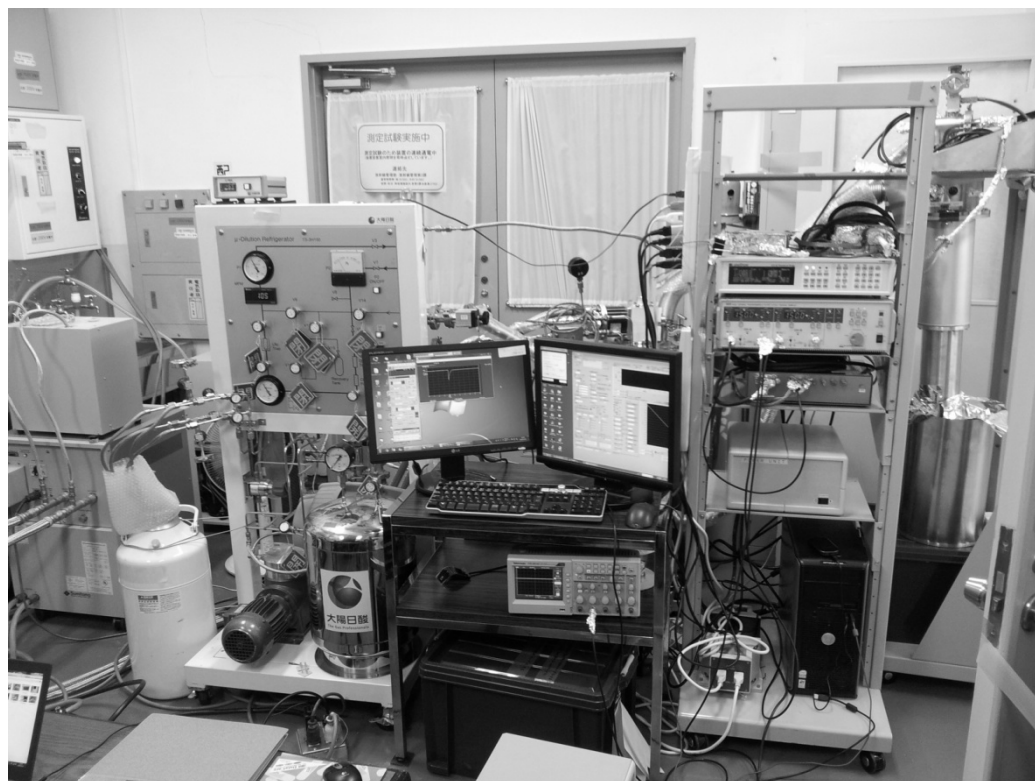
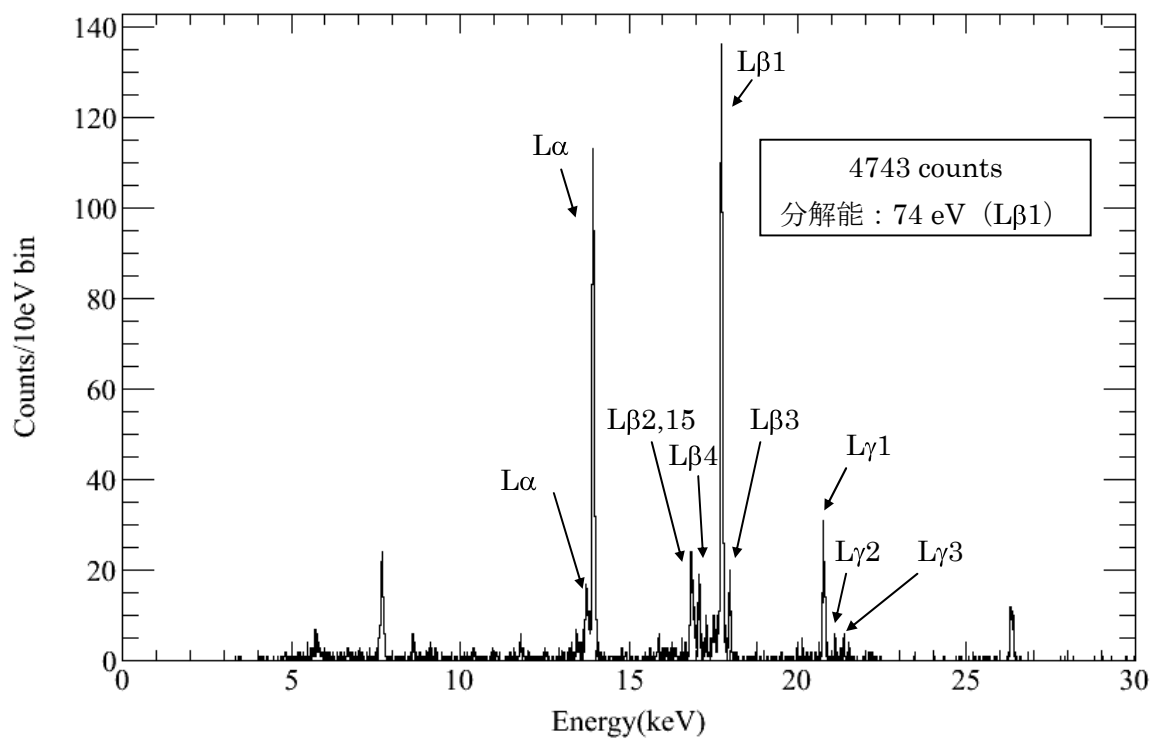
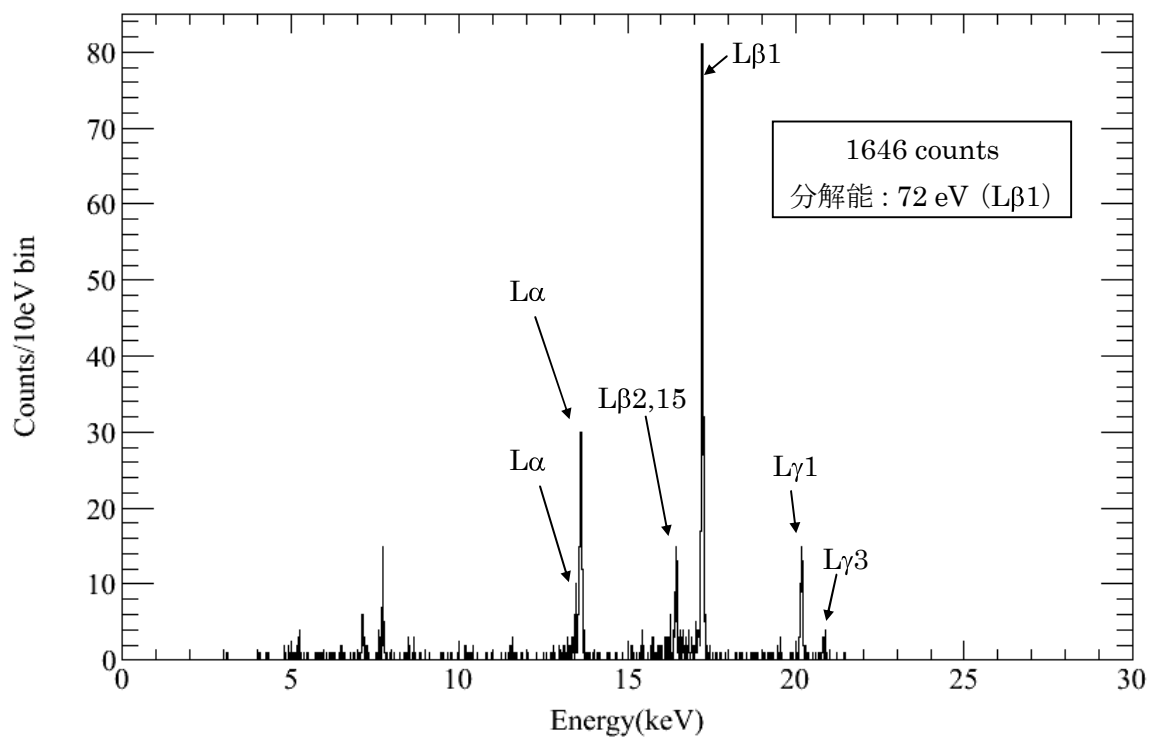


Fig. 4-5 Pu・Am の L-X 線の測定装置類の設置状況

Fig. 4-6 ^{241}Am の L-X 線エネルギースペクトルFig. 4-7 ^{238}Pu の L-X 線エネルギースペクトル

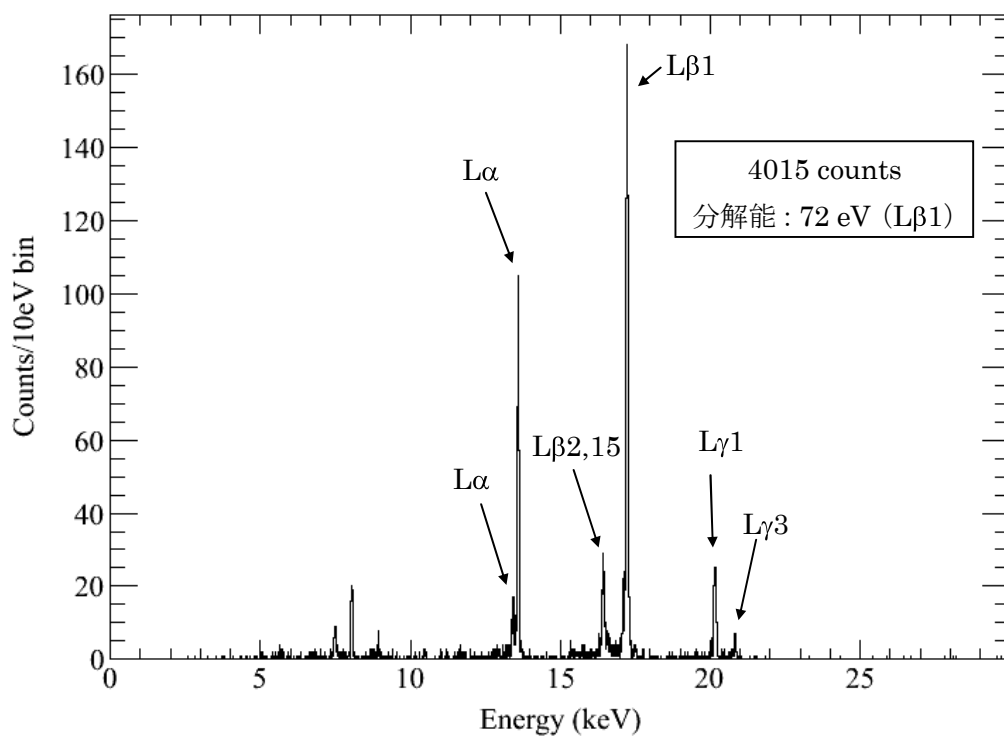
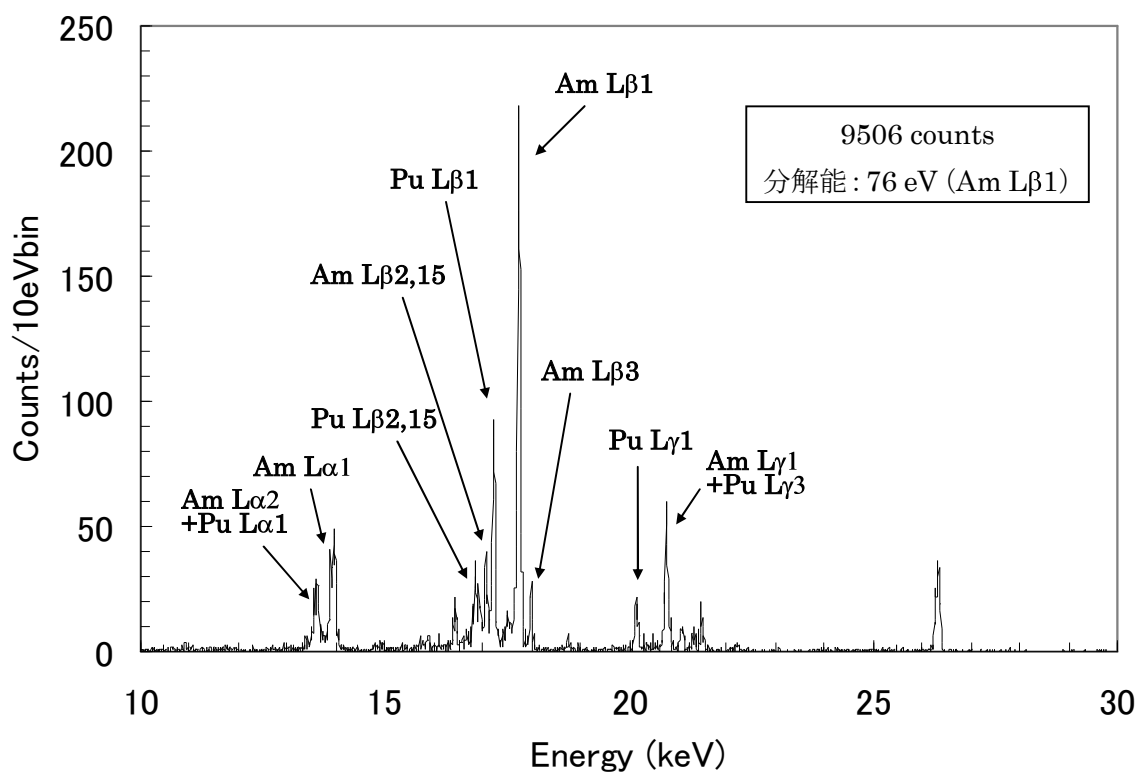
Fig. 4-8 ^{239}Pu の L-X 線エネルギースペクトル

Fig. 4-9 Am・Pu 混在時の L-X 線エネルギースペクトル

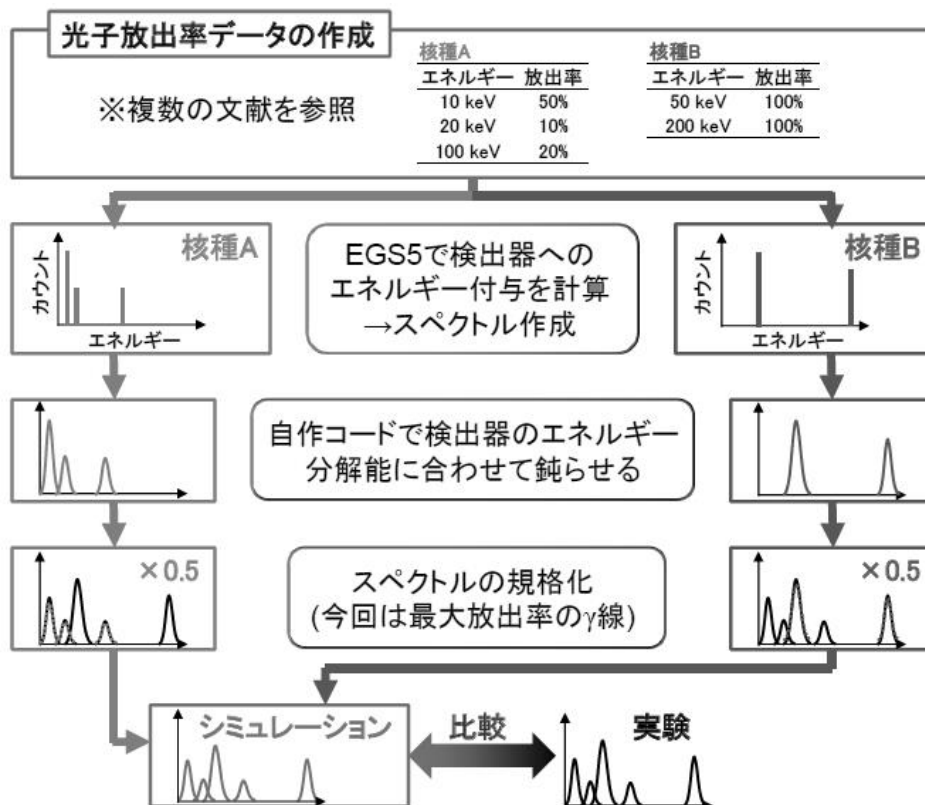


Fig. 4-10 測定試験の分析に係るシミュレーション計算の流れ

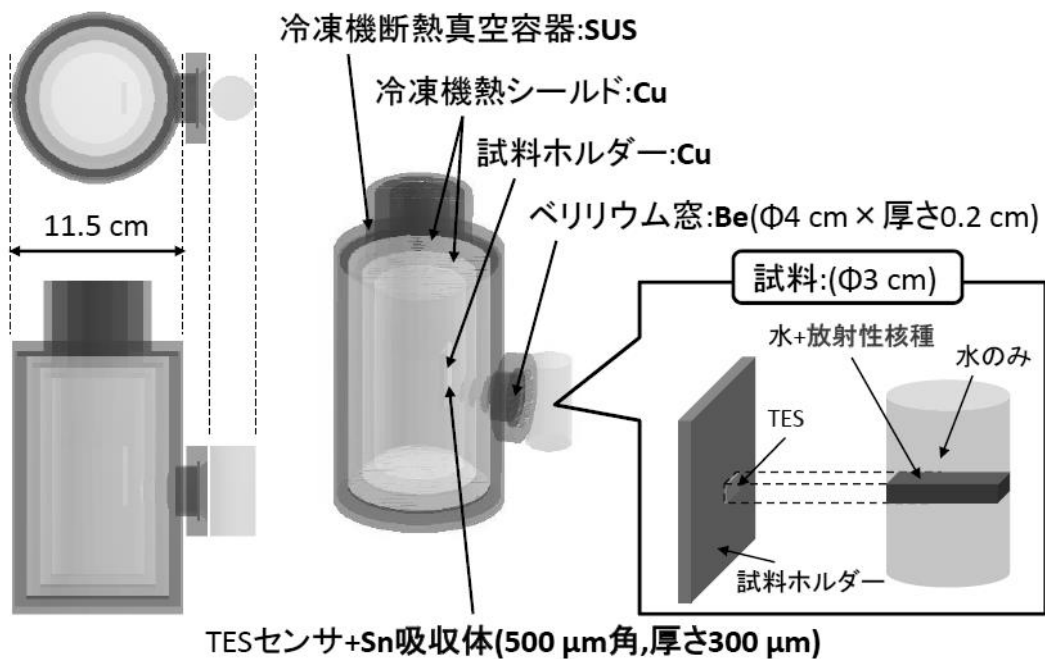


Fig. 4-11 TES 検出器のシミュレーション計算体系

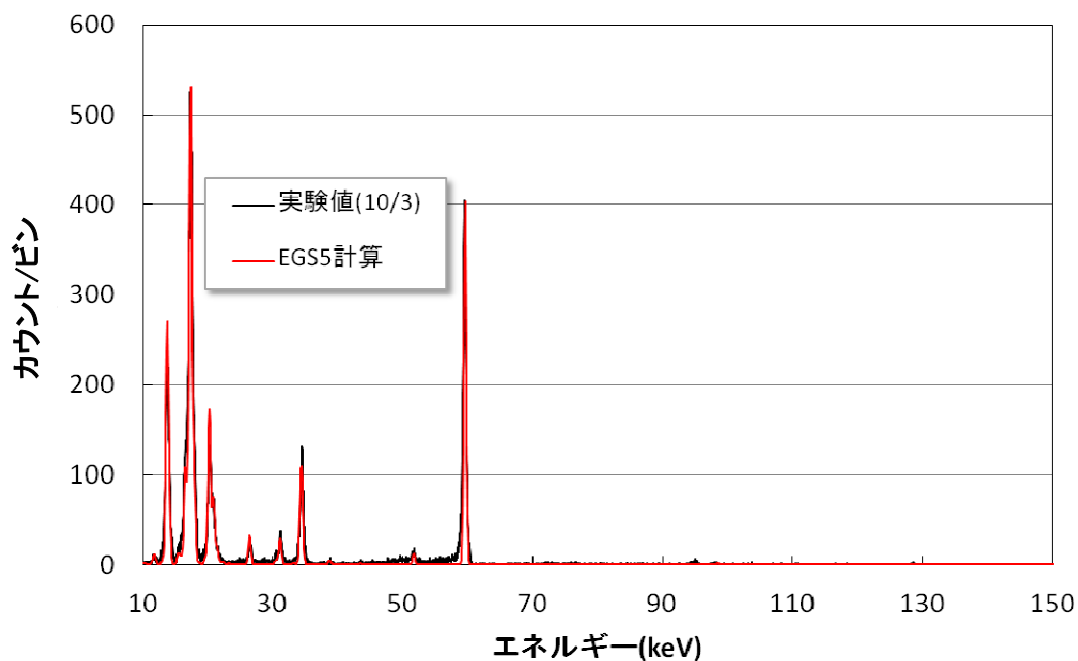


Fig. 4-12 測定スペクトルと計算スペクトルの比較(10 keV～150 keV)
(エネルギー範囲 10 keV から 150 keV の拡大図およびピーク同定結果)

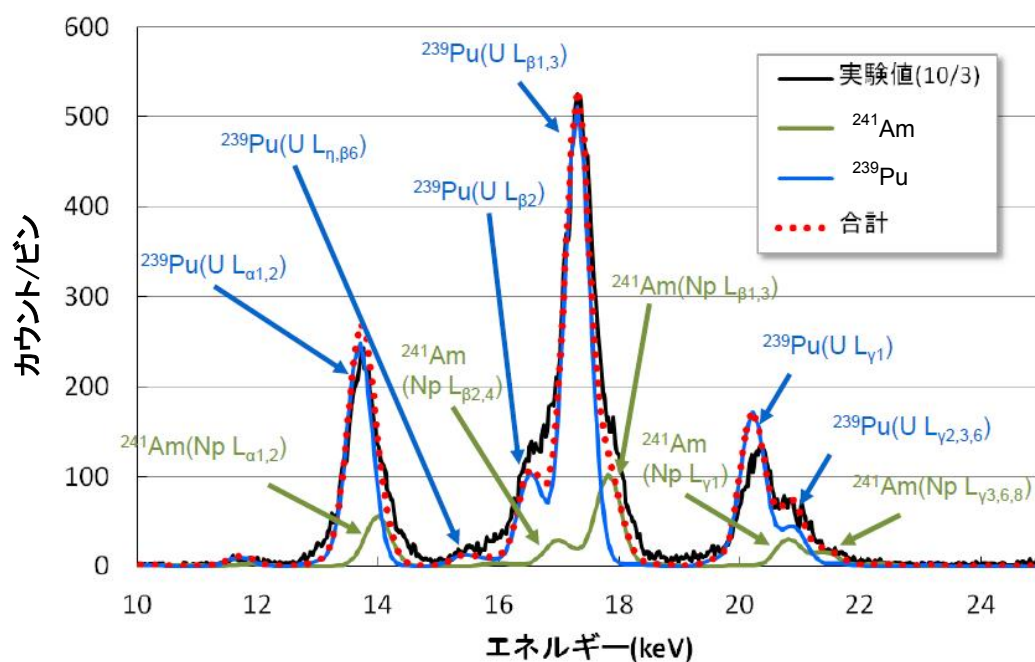


Fig. 4-13 測定スペクトルと計算スペクトルの比較 (20 keV～25 keV)
(エネルギー範囲 20 keV から 25 keV の拡大図およびピーク同定結果)

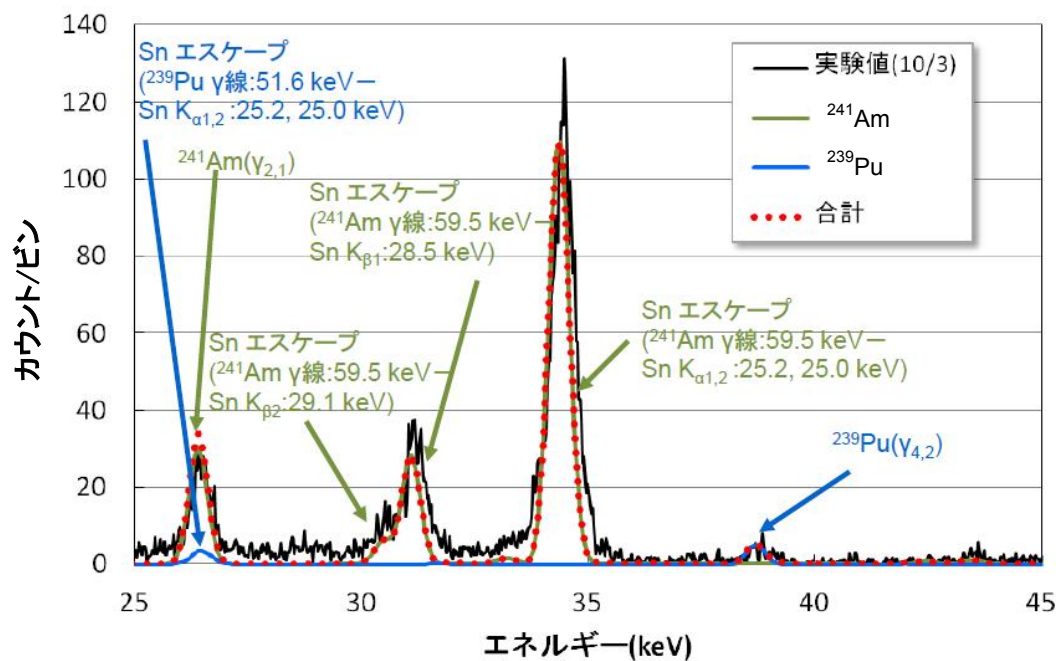


Fig. 4-14 測定スペクトルと計算スペクトルの比較 (25 keV～45 keV)
(エネルギー範囲 25 keV から 45 keV の拡大図およびピーク同定結果)

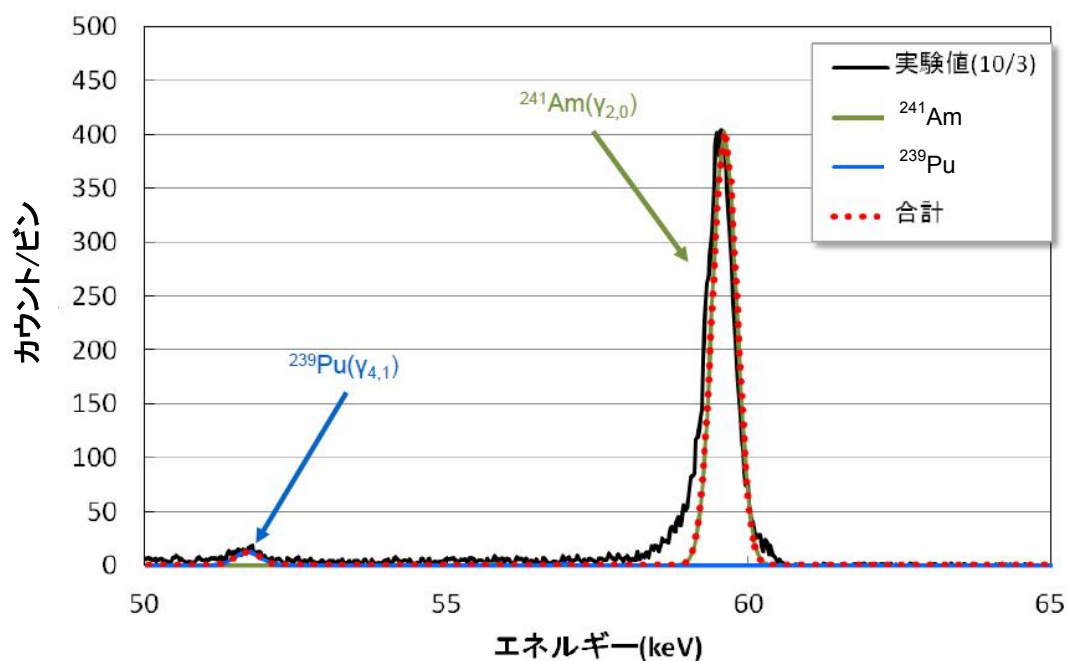


Fig. 4-15 測定スペクトルと計算スペクトルの比較 (50 keV～65 keV)
(エネルギー範囲 50 keV から 65 keV の拡大図およびピーク同定結果)

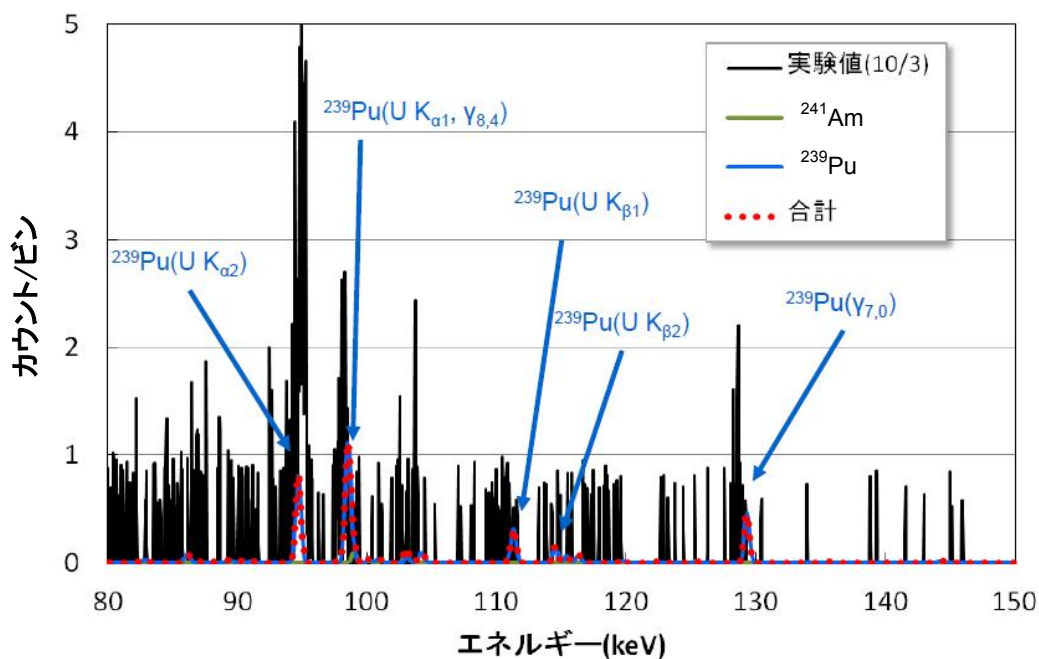


Fig. 4-16 測定スペクトルと計算スペクトルの比較 (80 keV～150 keV)
(エネルギー範囲 80 keV から 150 keV の拡大図およびピーク同定結果)

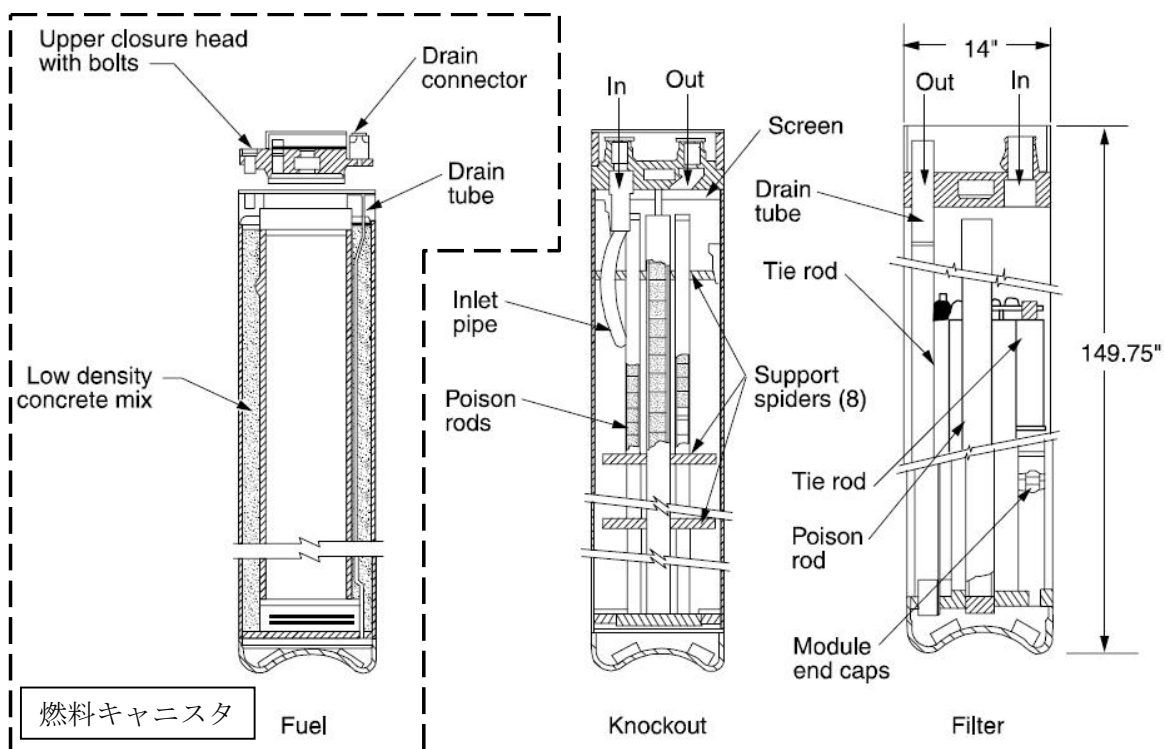


Fig. 4-17 TMI-2 の 3 種類の燃料デブリの収納キャニスタ

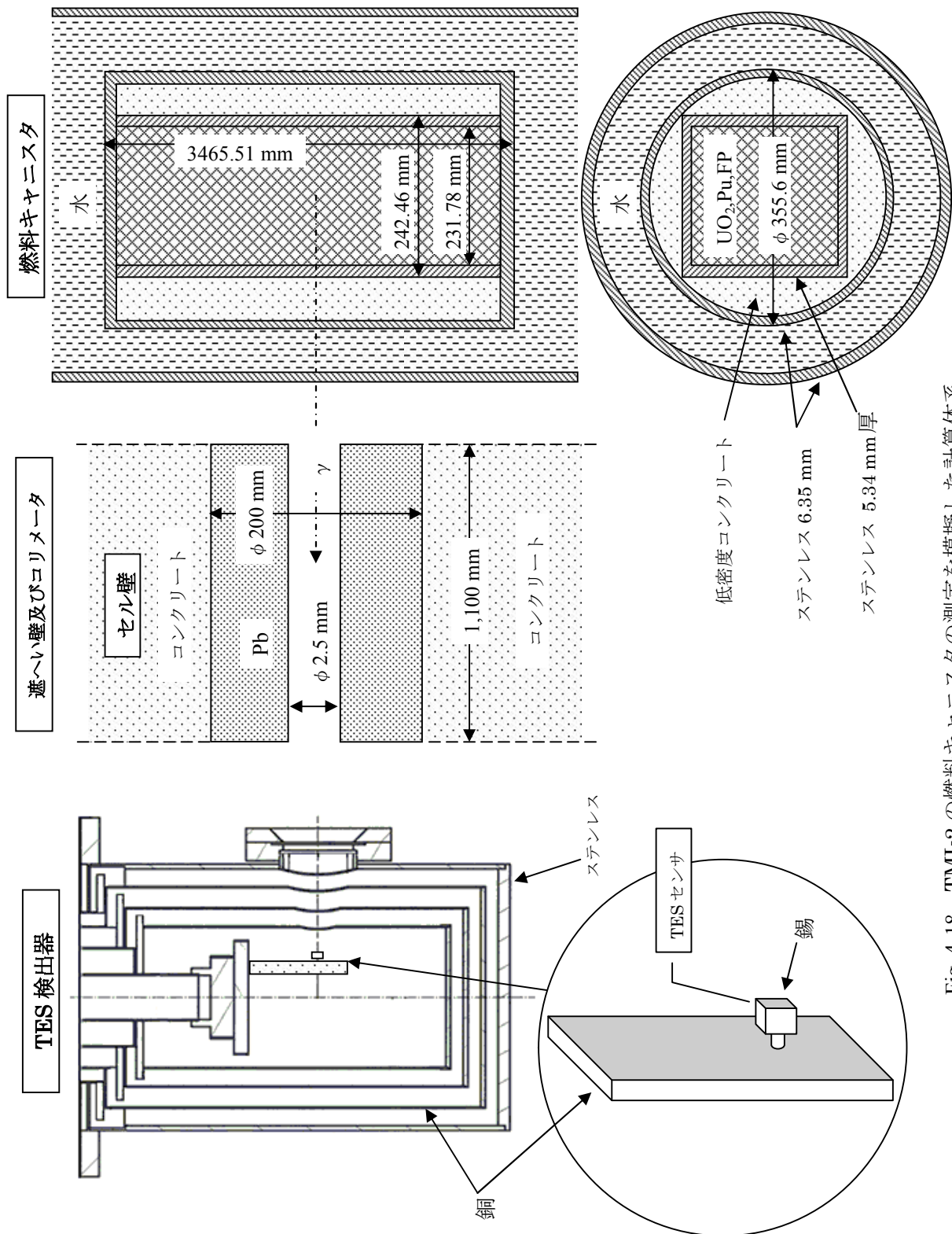


Fig. 4-18 TMI-2 の燃料キヤニスタの測定を模擬した計算体系

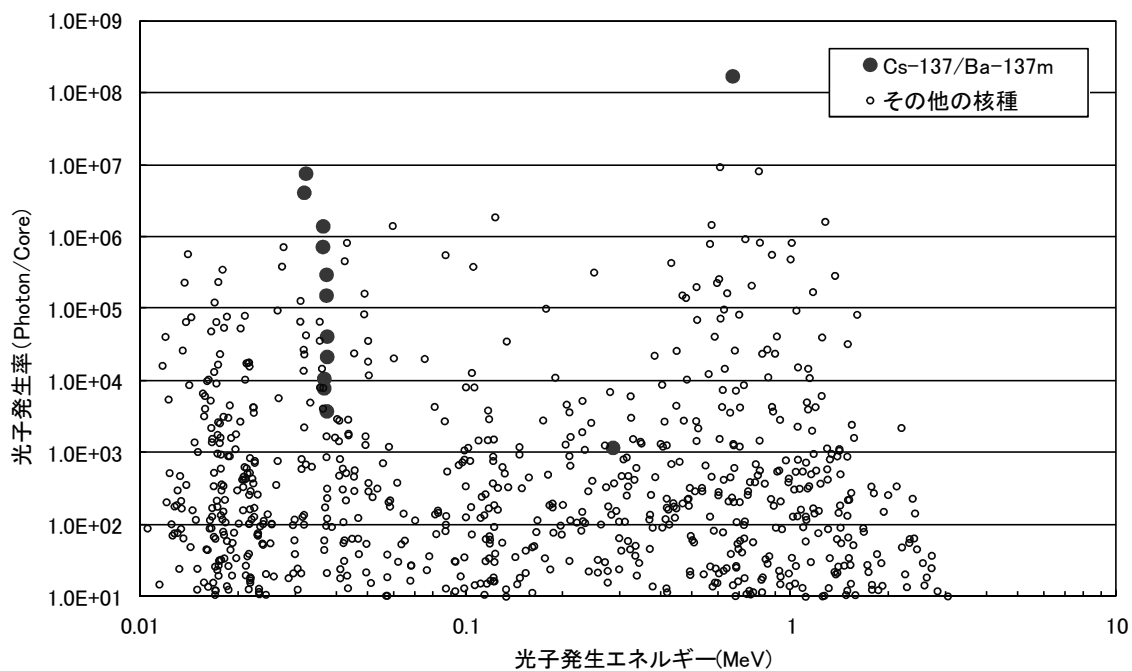


Fig. 4-19 仮想の燃料デブリからの光子発生分布 ($^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$, その他核種)

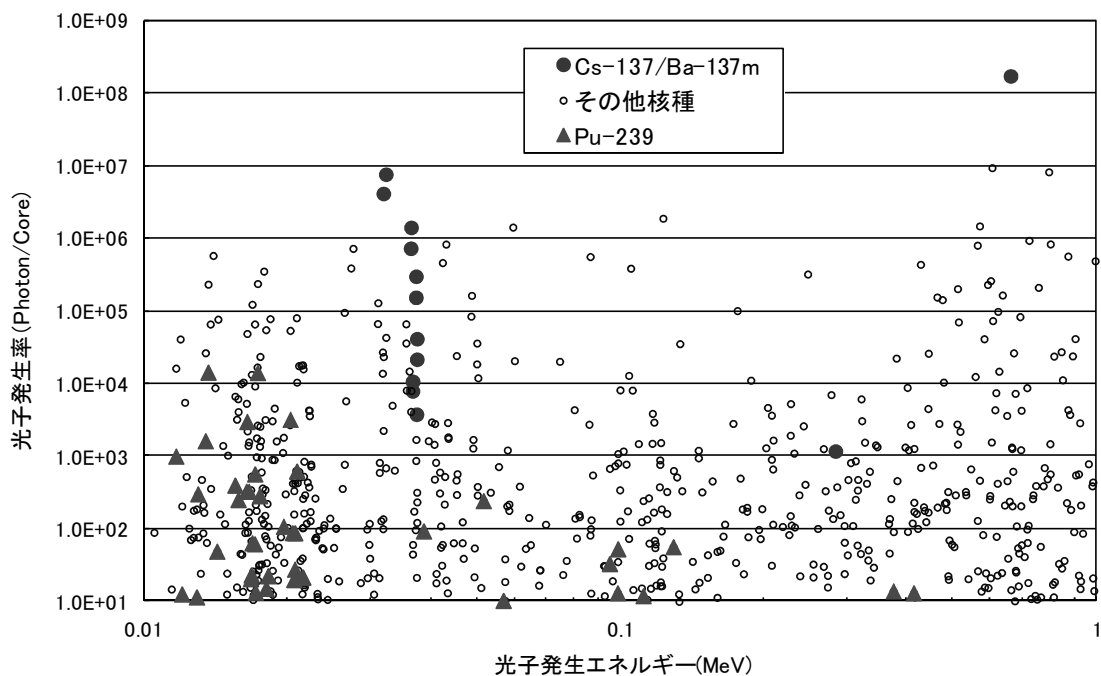


Fig. 4-20 仮想の燃料デブリからの光子発生分布 (^{239}Pu)

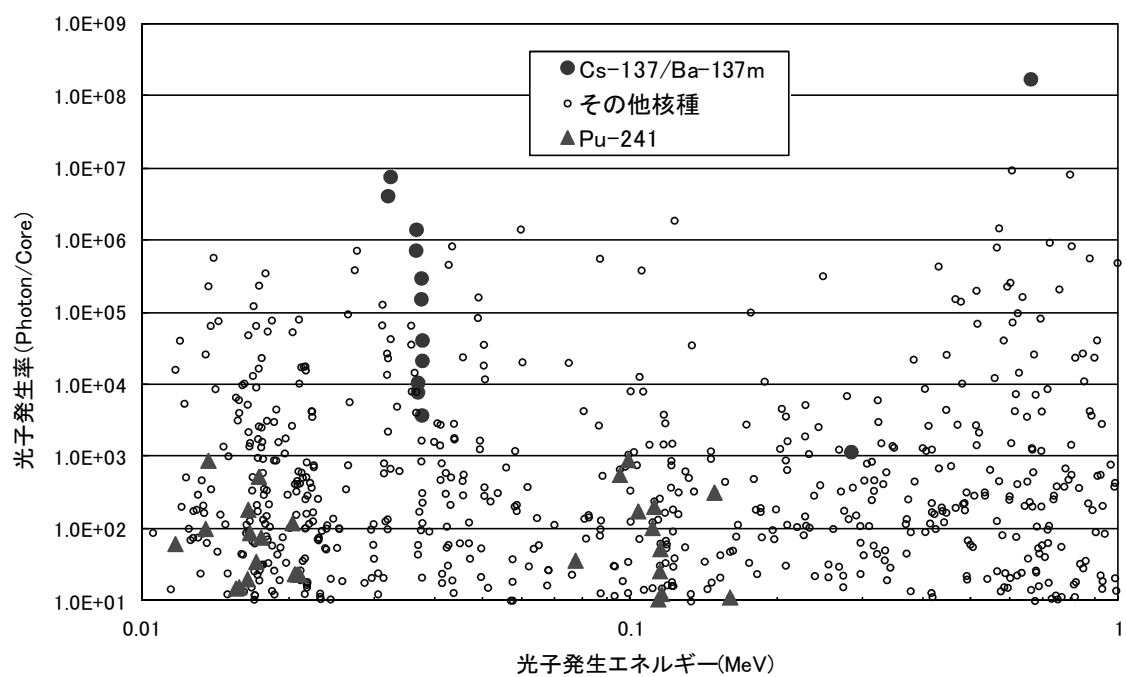


Fig. 4-21 仮想の燃料デブリからの光子発生分布 (^{241}Pu)

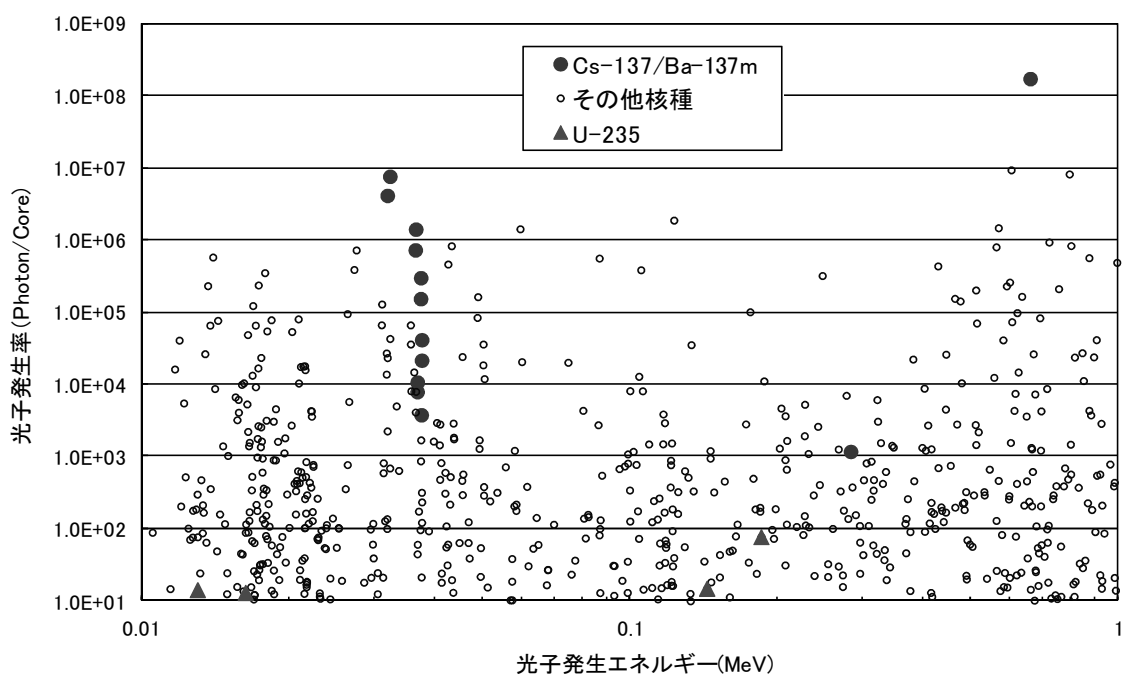


Fig. 4-22 仮想の燃料デブリからの光子発生分布 (^{235}U)

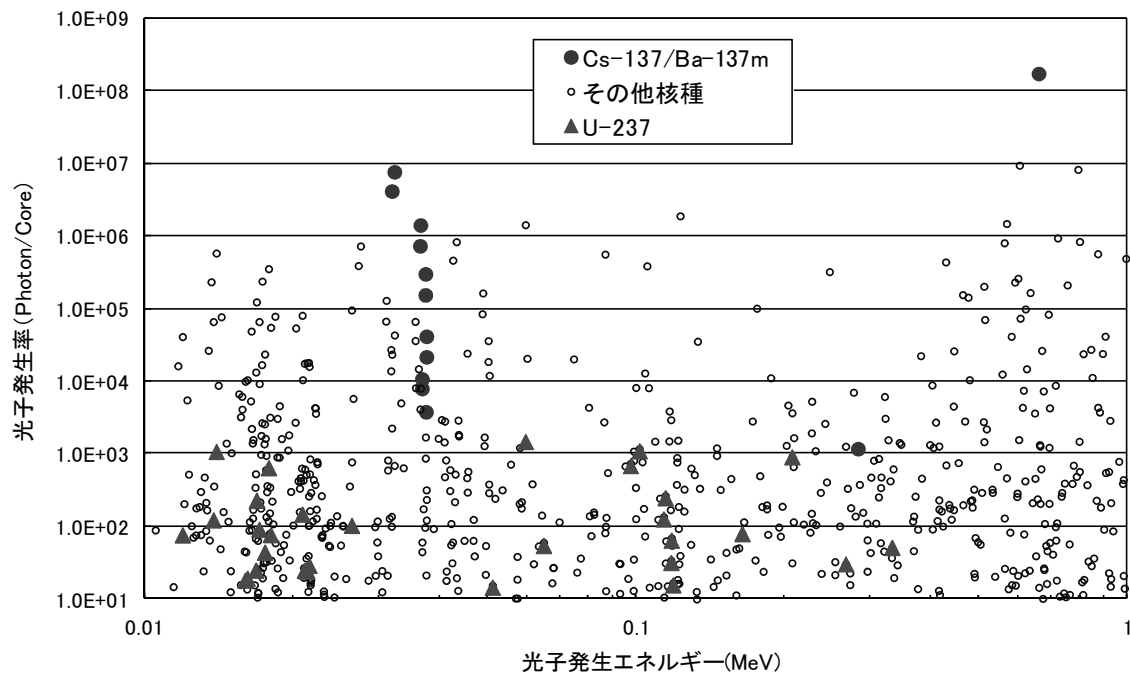


Fig. 4-23 仮想の燃料デブリからの光子発生分布 (^{237}U)

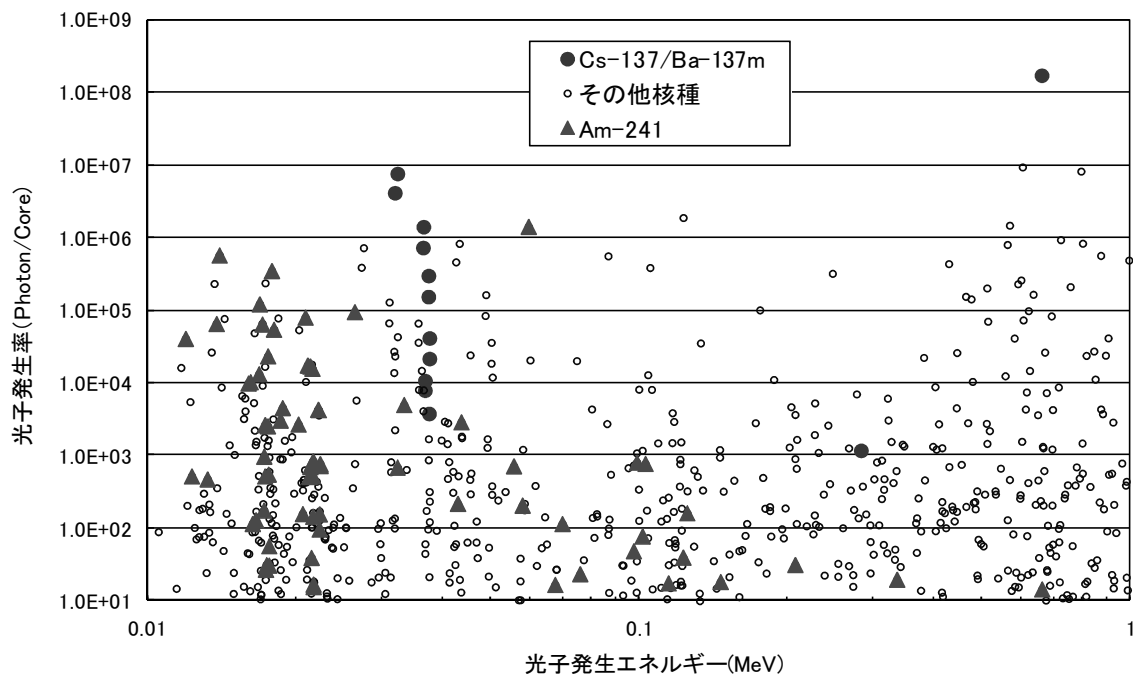


Fig. 4-24 仮想の燃料デブリからの光子発生分布 (^{241}Am)

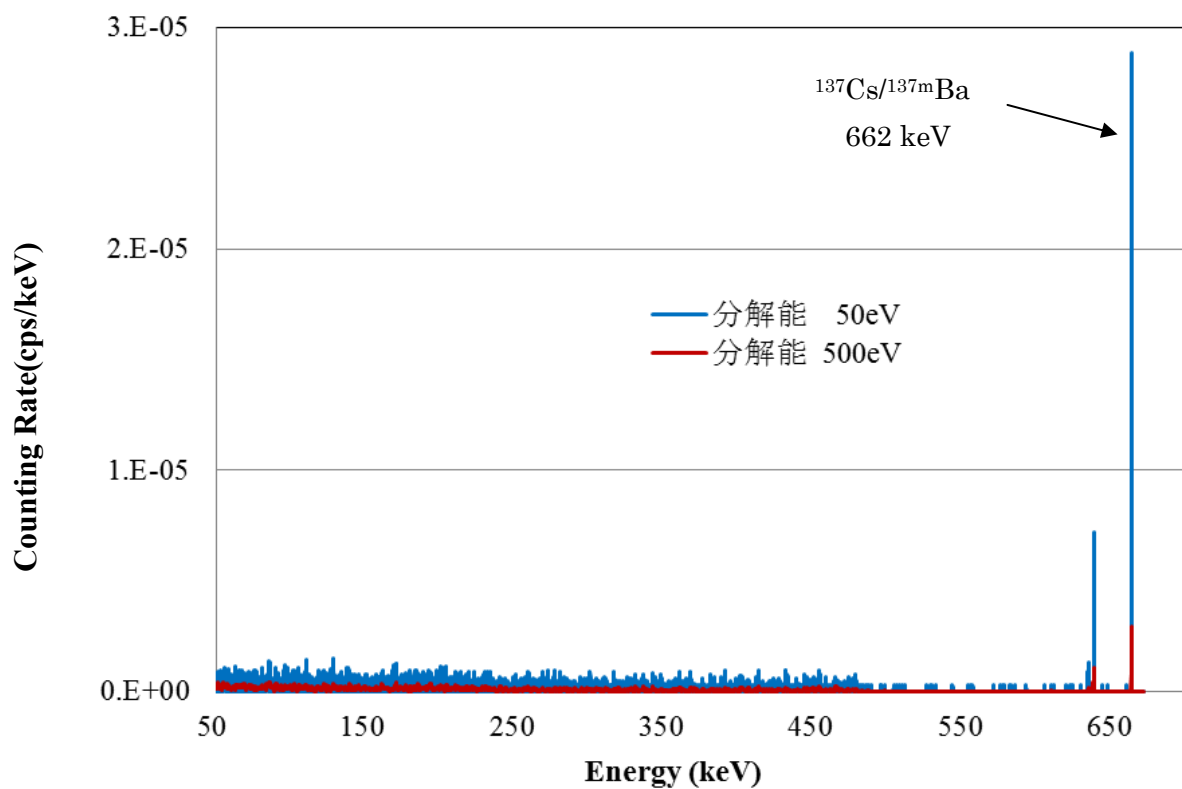


Fig. 4-25 TES 検出器で計数される光子スペクトル ($^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$)
(エネルギー範囲：50～700keV, BIN 幅：20eV)

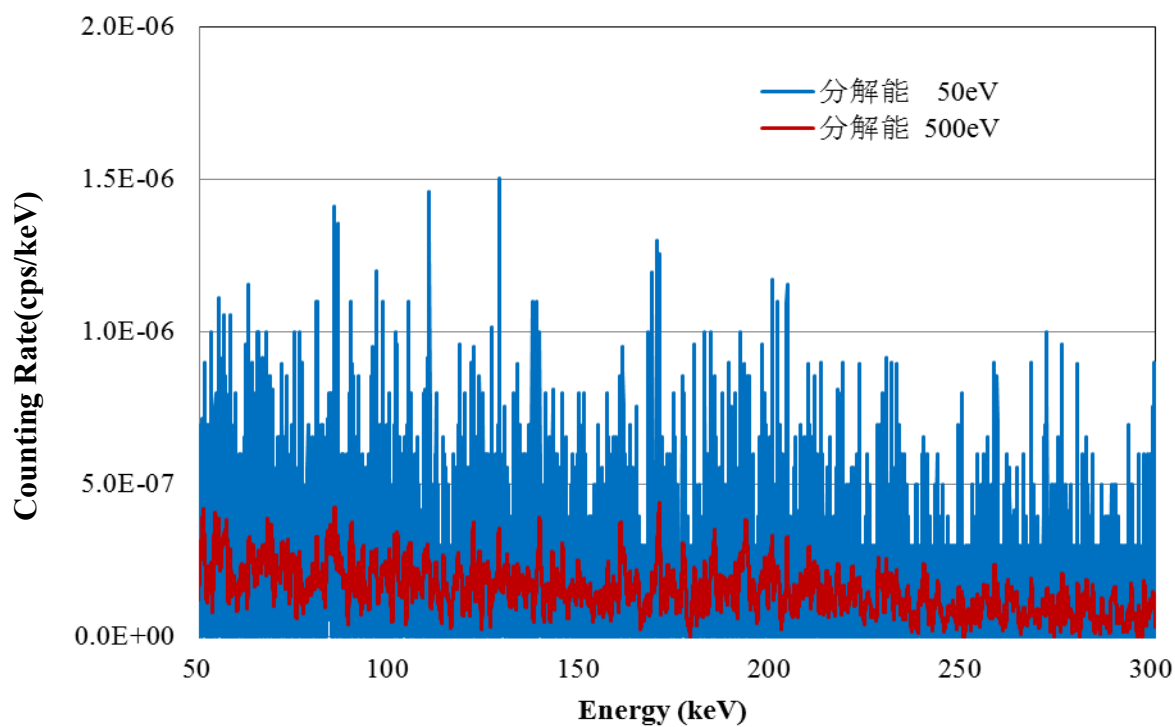


Fig. 4-26 TES 検出器で計数される光子スペクトルの拡大図 ($^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$)
(エネルギー範囲：50～300keV, BIN 幅：20eV)

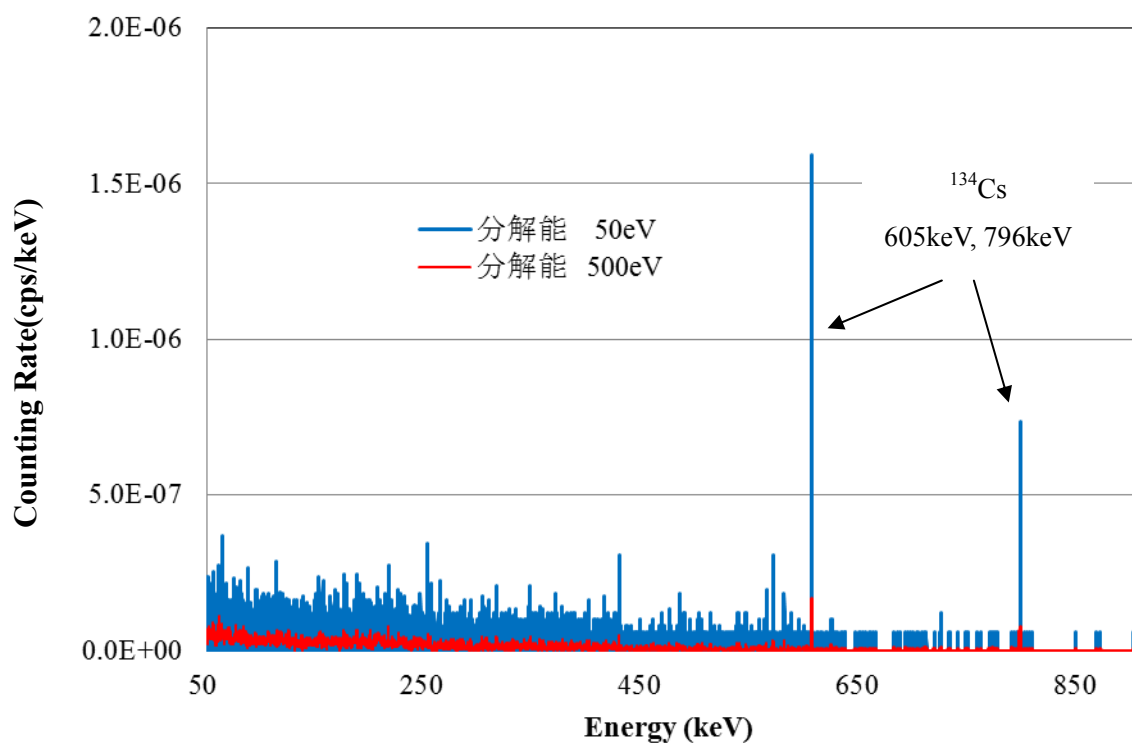


Fig. 4-27 TES 検出器で計数される光子スペクトル（その他核種）
（エネルギー範囲：50～900keV, BIN 幅：20eV）

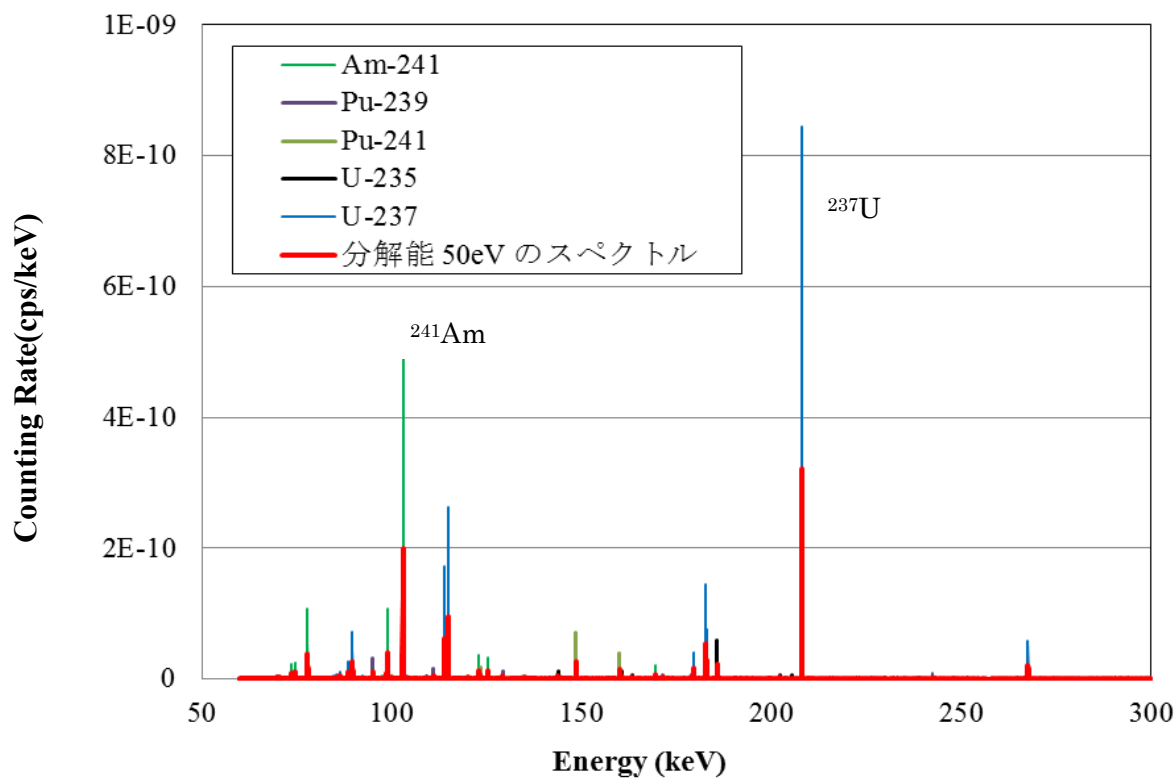


Fig. 4-28 Pu 等のピーク及び分解能 50eV の光子スペクトル
（エネルギー範囲：50～300keV, BIN 幅：20eV）

This is a blank page.

国際単位系（SI）

表 1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質량	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表 2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m ²
体積	立法メートル	m ³
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s ²
波数	毎メートル	m ⁻¹
密度, 質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m ²
比体積	立方メートル毎キログラム	m ³ /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m ²
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 ^(a) , 濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³
質量濃度	キログラム毎立法メートル	kg/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率 ^(b)	(数字の) 1	1
比透磁率 ^(b)	(数字の) 1	1

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。
(b) これらは無次元量あるいは次元 1 をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の 1 は通常は表記しない。

表 3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン ^(b)	rad	1 ^(b)	m/m
立体角	ステラジアン ^(b)	sr ^(c)	1 ^(b)	m ² /m ²
周波数	ヘルツ ^(d)	Hz		s ⁻¹
力	ニュートン	N		m kg s ⁻²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²	m ⁻¹ kg s ⁻²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N m	m ² kg s ⁻²
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s	m ² kg s ⁻³
電荷, 電気量	クーロン	C		s A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻¹
静電容量	ファラド	F	C/V	m ⁻² kg ⁻¹ s ⁴ A ²
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻²
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V	m ⁻² kg ⁻¹ s ³ A ²
磁束	ウェーバ	Wb	Vs	m ² kg s ⁻² A ⁻¹
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²	kg s ⁻² A ⁻¹
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m ² kg s ⁻² A ⁻²
セルシウス度 ^(e)	セルシウス度 ^(e)	°C		K
光束度	ルーメン	lm	cd sr ^(c)	cd
照射度	ルクス	lx	lm/m ²	m ⁻² cd
放射性核種の放射能 ^(f)	ベクレル ^(d)	Bq		s ⁻¹
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	m ² s ⁻²
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト ^(g)	Sv	J/kg	m ² s ⁻²
酸素活性化	カタール	kat		s ⁻¹ mol

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
(b) ラジアンとステラジアンは数字の 1 に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の 1 は明示されない。
(c) 測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
(d) ヘルツは周期現象についてののみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてののみ使用される。
(e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。
(f) 放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
(g) 単位シーベルト (PV.2002,20,705) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表 4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘着力のモーメント	パスカル秒	Pa s	m ⁻¹ kg s ⁻¹
表面張力	ニュートンメートル	N m	m ² kg s ⁻²
角速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg s ⁻²
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ =s ⁻¹
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s ²	m m ⁻¹ s ⁻² =s ⁻²
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg s ⁻³
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m ² kg s ⁻² K ⁻¹
比エネルギー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m ² s ⁻² K ⁻¹
熱伝導率	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² s ⁻²
体積エネルギー	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ K ⁻¹
電界の強さ	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ kg s ⁻²
電荷密度	ジュール毎平方メートル	V/m	m kg s ⁻³ A ⁻¹
表面電荷	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ s A
電束密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
誘電率	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
透磁率	ファラド毎メートル	F/m	m ⁻³ kg ⁻¹ s ⁴ A ²
モルエネルギー	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ⁻²
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル	J/mol	m ² kg s ⁻² mol ⁻¹
照射線量 (X線及びγ線)	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m ² kg s ⁻² K ⁻¹ mol ⁻¹
吸収線量率	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ s A
放射線強度	グレイ毎秒	Gy/s	m ² s ⁻³
放射輝度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ⁴ m ⁻² kg s ⁻³ =m ² kg s ⁻³
酵素活性濃度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m ² sr)	m ² m ⁻² kg s ⁻³ =kg s ⁻³
	カタール毎立方メートル	kat/m ³	m ⁻³ s ⁻¹ mol

表 5. SI 接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10 ²⁴	ヨ	Y	10 ⁻¹	デ	d
10 ²¹	ゼ	Z	10 ⁻²	セ	c
10 ¹⁸	エ	E	10 ⁻³	ミ	m
10 ¹⁵	ペ	P	10 ⁻⁶	マイ	μ
10 ¹²	テ	T	10 ⁻⁹	ナ	n
10 ⁹	ギ	G	10 ⁻¹²	ピ	p
10 ⁶	メ	M	10 ⁻¹⁵	フェ	f
10 ³	キ	k	10 ⁻¹⁸	ア	a
10 ²	ヘ	h	10 ⁻²¹	ゼ	z
10 ¹	デ	da	10 ⁻²⁴	ヨ	y

表 6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1h =60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	′	1′=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	″	1″=(1/60)′=(π/648000) rad
ヘクタール	ha	1ha=1hm ² =10 ⁴ m ²
リットル	L, l	1L=1l=1dm ³ =10 ³ cm ³ =10 ⁻³ m ³
トン	t	1t=10 ³ kg

表 7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位で表される数値
電子ボルト	eV	1eV=1.602 176 53(14)×10 ⁻¹⁹ J
ダルトン	Da	1Da=1.660 538 86(28)×10 ⁻²⁷ kg
統一原子質量単位	u	1u=1 Da
天文単位	ua	1ua=1.495 978 706 91(6)×10 ¹¹ m

表 8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100kPa=10 ⁵ Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 ⁻¹⁰ m
海里	M	1 M=1852m
バイン	b	1 b=100fm ² =(10 ⁻¹² cm)2=10 ⁻²⁸ m ²
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的な関係は、 対数量の定義に依存。
ベレル	B	
デジベール	dB	

表 9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
エル	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm ⁻² =0.1Pa s
ストークス	St	1 St=1cm ² s ⁻¹ =10 ⁻⁴ m ² s ⁻¹
スチルブ	sb	1 sb=1cd cm ⁻² =10 ⁴ cd m ⁻²
フオット	ph	1 ph=1cd sr cm ⁻² 10 ⁴ lx
ガリ	Gal	1 Gal=1cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G cm ² =10 ⁻⁸ Wb
ガウス	G	1 G=1Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T
エルステッド ^(c)	Oe	1 Oe ≡ (10 ³ /4π) A m ⁻¹

(c) 3 元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「 ≡ 」は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位で表される数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R = 2.58×10 ⁻⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 ⁻⁹ T
フェルミ	f	1フェルミ=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット		1メートル系カラット = 200 mg = 2×10 ⁻⁴ kg
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カロリ	cal	1cal=4.1858J (「15°C」カロリー) , 4.1868J (「IT」カロリー) 4.184J (「熱化学」カロリー)
マイクロン	μ	1 μ =1μm=10 ⁻⁶ m

