

TN841-77-59

本資料は 年 月 日付で登録区分、
変更する。
2001. 6. - 6

[技術情報室]

中性子照射非破壊測定装置による核物質の定量

Nondestructive Assay of Nuclear Material by Isotopic Source Assay System

1977年11月

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2001



TN841-77-59

1977年11月

中性子照射非破壊測定装置による核物質の定量

実施責任者 中村 久*

報告者 舛井仁一

坪谷 隆夫 **

期間 1976年1月1日～1977年4月1日

目的 スクラップ、および廃棄物中のプルトニウム測定装置の開発を目的とする。

要旨 核燃料に含まれる核物質の分析技術は従来有効な手法として破壊分析法があるが、核燃料サイクルの過程には破壊分析の適用が難しいことも多い。特に各施設で発生する核物質を含んだスクラップや廃棄物は破壊分析を適用することが難しく、核物質の計量管理や保障措置上より簡便で適用性の広い非破壊分析技術の開発が必要とされている。

アクティブ中性子核分裂法は一般にパッシブ法より感度が高く、高速中性子を用いれば透過性が高いので大きな試料や高濃縮の試料の分析が可能とされているが、この手法に関する我が国の報告例はほとんど無い。そのためにインテルコム・ラドテック社から中性子照射非破壊測定装置（ISAS）を購入し、アクティブ分析法による実験検討を行った。対象核物質として密封した濃縮ウラン、プルトニウムを用い、くり返し測定による計数値の再現性や日内、日間変動、幾何学的条件の影響、濃縮度の影響、等について検討した。また、模擬焼却灰、鉛や水、ポリエチレン、ビニルバック等の含水素物質を含む均質、非均質系試料を用いて実験を行いマトリックスの影響を検討した。その結果、核物質（ UO_2 、 PuO_2 粉末）およびこれらの核物質が均一化された状態のスクラップについては定量可能であることを確認した。

* 現在 三重県環境保全事業団

** 現在 核燃料開発本部・計画課

目 次

I. 序	1
II. 測定方法	1
II.1 測定装置の機構	1
II.2 測定方法	4
III. 実 驗	6
III.1 測定系の影響	6
III.2 幾何学的条件の影響	10
III.3 濃縮度の影響	11
III.4 マトリックスの影響	20
III.5 再 現 性	30
IV. 考 察	33
V. 結 論	34
VI. 参考文献	34

I. 序

スクラップや廃棄物中の核物質を非破壊で分析する方法は二種類に大別され、対象とする核物質自身が放出するガンマ線や中性子線等を、密封容器の外から計測して核物質を定量するパッシブ分析法（Passive Assay）と、外部から中性子、高エネルギーガンマ線等を照射して適当な核反応を誘起し、発生する放射線を測定することで核物質を分析するアクティブ分析法（Active Assay）がある。

本装置は4個のプラスチック検出器と Cf-252 中性子線源を内蔵し、自発核分裂を利用するパッシブ法と Cf-252 中性子線源の自発核分裂中性子の照射による、ウラン、プルトニウムの核分裂を利用するアクティブ法とが可能である。これらの方により、密封された濃縮ウラン、プルトニウム等の定量について検討した結果を報告する。

II. 測 定 方 法

II.1 測定装置の機構

この装置は中性子線源を内蔵する中性子遮蔽容器、およびコリメータ、試料を乗せるキャリアを操作するコントローラ、プラスチックシンチレータ、光電子増倍管からなる検出部、ディスクリミネータ、コインシデンス回路等からなる電子回路部、データー収集部から構成されている。装置の概略を図 II.1.1 に示し、装備されている主要機器について簡単に説明する。

1. 中性子線源 Cf-252 13.4 mCi (25 μg)

General Nuclear Properties of Cf-252

Physical Properties $^{252}\text{Cf}_2\text{O}_3$

Nuclear Properties

Mode of decay

Alpha emission 96.9 %

Spontaneous fission 3.1 %

Half-life

Alpha decay $2.731 \pm 0.007 \text{ yr}$

Spontaneous fission $85.5 \pm 0.5 \text{ yr}$

Effective (d and SF) $2.646 \pm 0.004 \text{ yr}$

Neutron emission rate $5.6 \times 10^7 \text{n/sec} - 25 \mu\text{g}$

Average neutron energy 2.348 Mev

Fig II 1.1

Isotopic source assay system

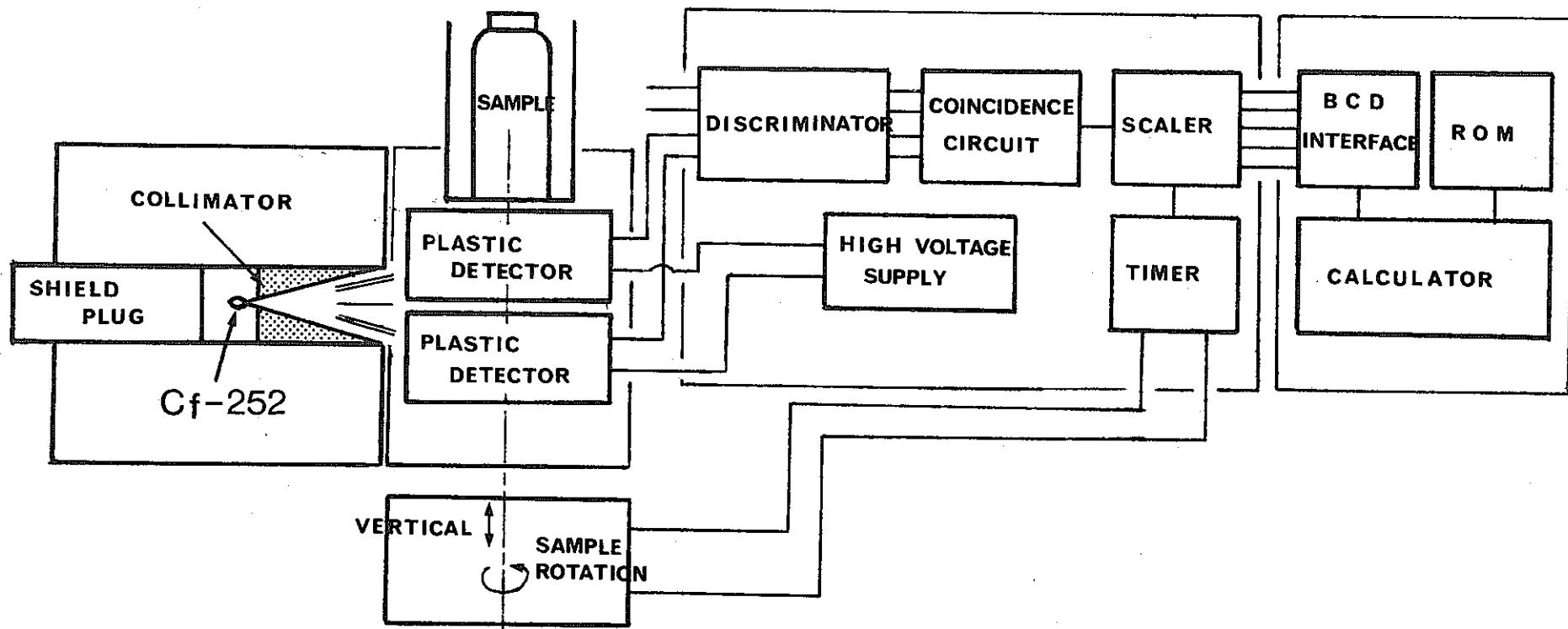
SOURCE CONTAINER
and COLLIMATOR

F M D

ELECTRIC CIRCUIT

DATA
ACCUMULATION

-2-



SAMPLE SCANNING
CONTROLLER

自発核分裂により放出される中性子を II. 1. 1 表に示す。

Table II. 1. 1. Neutrons from Spontaneous Fission of ^{252}Cf

Energy Mev	Neutrons/(sec) (g of nuclide)
0 - 0.5	2.8×10^{11}
0.5 - 1.0	3.7×10^{11}
1.0 - 2.0	7.6×10^{11}
2.0 - 3.0	4.6×10^{11}
3.0 - 4.0	2.8×10^{11}
4.0 - 5.0	1.6×10^{11}
5.0 - 6.0	5.6×10^{10}
6.0 - 7.0	4.0×10^{10}
7.0 - 8.0	1.3×10^{10}
8.0 - 10.0	9.9×10^9
10.0 - 13.0	2.2×10^9
Total	2.4×10^{12}

2. 中性子遮蔽容器、およびコリメータ

水浸漬ポリエチレン樹脂充填ステンレス容器と中性子ビーム調整用コリメータから構成されている。

3. 核分裂同時検出器

プラスチックシンチレータ

Nuclear Enterprises 社	NE 102	4 体
光電子増倍管 R C A 社	9813B	4 本

4. 電子回路部

独立 4 回路ディスクリミネータ	E G & G 社
コインシデンス回路	I R T "
スケーラ、タイマー	E R C "
高圧安定化電源	B A I "

5. データ収集部

小型計算機 HP 9820A

11203A BCD インターフェース

II.2 測定方法

試料を乗せたキャリアは、測定を始めると回転（8 rpm）しながら一定速度（4.9 cm/min）で垂直に移動する。試料の移動に従って計数率は増大し、中性子照射面の中心で最大となる。中心を通過して離れるに従い計数率は減少し、ついには自然計数まで減少する。この様子を図 II.2.1 に示す。図の中で、核分裂性物質が容器の下部に偏在している場合の計数率の変化を A に容器の上部に偏在している場合の計数率の変化を B に示す。上下の自然計数領域を容器が通過していれば、容器内における核分裂性物質の高さ方向の位置にかかわらず、計測数は同一となる。試料が最上部から最下部まで一往復するのに要する時間は 150～180 秒である。

この装置で核分裂性物質を定量するには標準試料が必要である。測定対象となる試料に物理的、化学的性質の類似した試料を数個用意し、標準試料として測定する。その結果から計測数と核分裂性物質量との関係式（較正曲線）を求めておく。次に対象となる試料を測定し、較正曲線と比較することによって核分裂性物質を定量する。

核分裂により、平均 2.5 個の中性子と約 7 個のフィッショングンマー線が同時に放出される。装置の内蔵する 4 個のプラスチック検出器の中で 3 個がこれらの放射線を同時計数すると計数機器に記録される。計数率は次式で表わされる。

$$R = a (1 - e^{-bU})$$

この式で R は正味の計数率 (counts/sec)，a は中性子源強度、検出効率、増倍効果、試料表面積に関係する比例定数、b は試料の巨視的吸収断面積と半径の積に比例する。e は試料内での中性子自己吸収を示す。

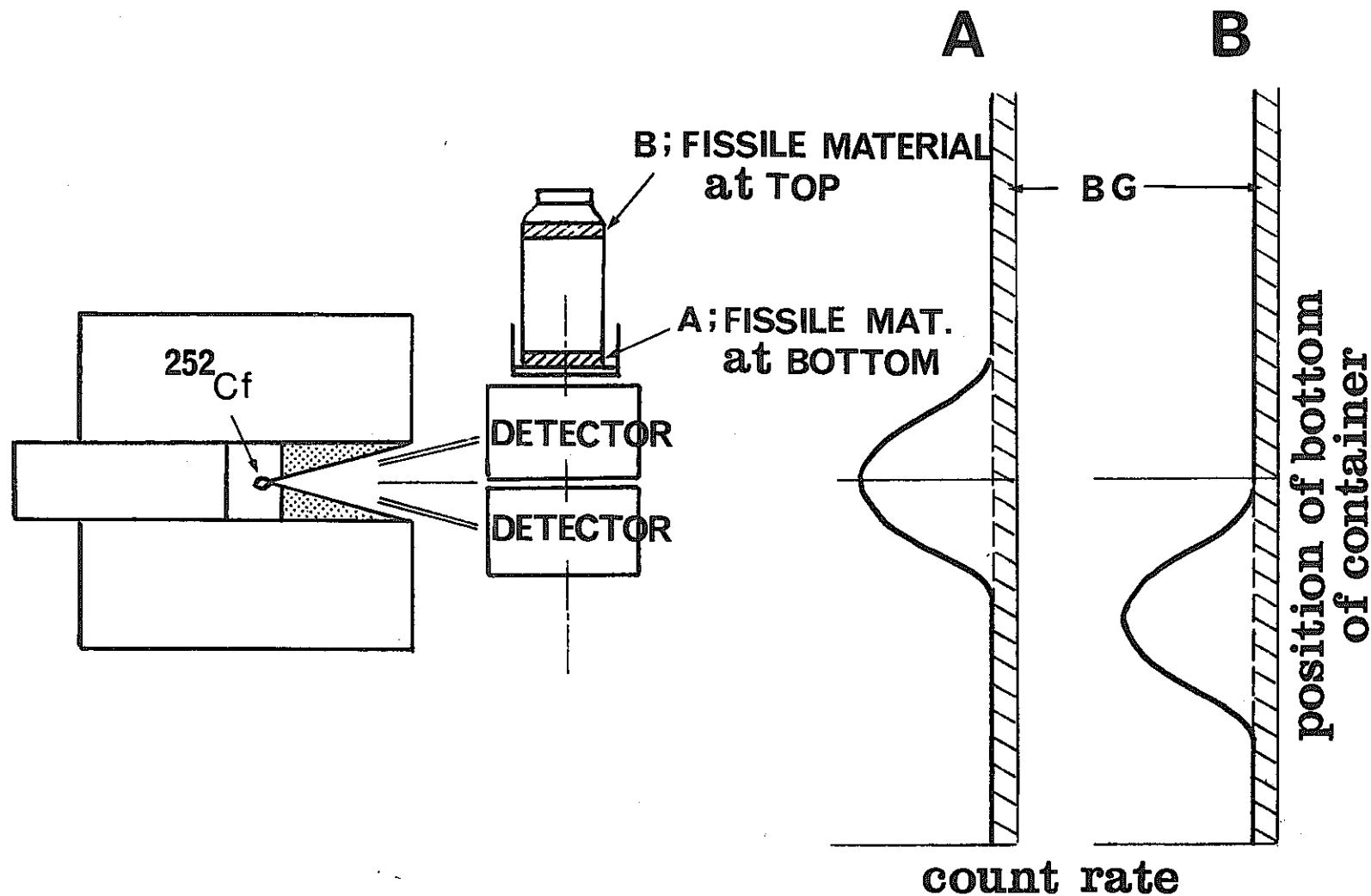


Fig II 2.1 Vertical scan operation

III. 実験

III.1 測定系の影響

各種のくり返し測定を行い、室温や経時変化を伴う再現性試験を行う。

(1) 模擬焼却灰試料の調製

本装置を用いて試験を行ったロッキーフラットテストを参考にし、可燃性廃棄物中に含まれる核物質を定量する目的で模擬焼却灰の調製をした。天然の UO_2 粉末と濃縮度 23 % の UO_2 粉末を、濃縮度が 3, 6, 9, 12 % となるように混合し、これに焼却灰（その組成は黒鉛 51 %, 無水ケイ酸 30 %, 酸化第二鉄 15 %, 酸化マグネシウム 3 %, 酸化アルミニウム 1 %）を加えて混合攪拌し、100 ml ポリビンに封入した。各濃縮度別に組成の同じ試料を 4 個づつ、計 16 試料を準備した。各試料の組成と、天然ウラン、23 % 濃縮ウランの同位体組成を III.1.1 表に示す。

Table III.1-1 天然ウランと 23 % 濃縮ウランの同位体組成 (weight %)

核種	^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U
N - UO_2	0.005	0.714	0.000	99.280
23% - E - UO_2	0.128	23.075	0.173	76.625

模擬焼却灰試料の組成

Sample	濃縮度 (%)	^{235}U (g)	^{238}U (g)	Ash (g)	試料数
3% EUO ₂ -Ash	3.02	0.6	19.4	110	4
6% EUO ₂ -Ash	6.00	1.2	18.8	110	4
9% EUO ₂ -Ash	9.00	1.8	18.1	110	4
12% EUO ₂ -Ash	12.00	2.4	17.5	110	4

(2) 20 回くり返し測定実験

(a) 自然計数の 20 回くり返し測定

測定時間 150.5 秒で自然計数の 20 回くり返し測定を行った。結果を III.1.2 表に示す。

平均値は 20463 カウント、標準偏差は 154 カウント、相対標準偏差は 0.75 % であった。

^{252}Cf の崩壊の統計的性質が計数のバラツキを決定していると仮定すると、自然計数の統計的変動はポアソン分布にしたがう筈であるから、その値は計数値の平方根になる。 $\sqrt{20463} = 143$ (カウント)。ところが標準偏差の推定値は 154 カウントとなってい。したがつて、ポアソン分布以上にバラツキが大きくなっていると思われる。しかし、母集団の標準偏差 σ を区間推定すると、95%の信頼率では $117 < \sigma < 226$ となり、154 はこの区間にはいっている。したがつて、5%の危険率ではポアソン分布以上のバラツキをもつていると結論を下すことはできない。

(b) 模擬焼却灰試料の 20 回くり返し測定

12% EUO_2 - Ash 混合試料 4 個 (^{235}U , 9.6 g) を用い、測定時間 150.5 秒で 20 回くり返し測定をした。自然計数を差し引いて正味計数を求めた結果を III.1.2 表に示す。平均値は 7601 カウントで標準偏差が 226 カウント、相対標準偏差は 2.97 % であった。

この正味計数は、自然計数を含めた総計測数から、別に自然計数を 10 回くり返し測定して求めた平均値 20559 カウントを差し引いたものである。この差の標準偏差は、減数および被減数がそれぞれポアソン分布をしていると仮定すれば、両方の和の平方根として与えられる筈であるから $\sqrt{28160 + 20559} = 221$ (カウント) となる。標準偏差の推定値は 226 カウントであるが、推定手順を使って母集団の標準偏差 σ を区間推定すると、95%の信頼率では $171 < \sigma < 329$ となり、226 カウントはこの区間にはいっている。

Table III.1-2 くり返し測定結果

回数 \ 種類	自然計数	12% EUO_2 - Ash	回数 \ 種類	自然計数	12% EUO_2 - Ash
1	20494	7551	11	20649	7418
2	20683	7603	12	20256	7859
3	20357	7831	13	20592	7574
4	20587	7681	14	20643	7734
5	20465	7590	15	20424	7564
6	20082	7637	16	20454	7092
7	20441	7519	17	20565	7525
8	20334	7551	18	20435	8092
9	20659	7403	19	20442	7575
10	20424	7276	20	20276	7951
			平均	20463	7601
			標準偏差	154	226
			相対標準偏差	0.75%	2.97%

Table III.1-3 日内の平均値変動測定結果

種類	自然 計数				3%EUO ₂ -Ash mixed sample				12%EUO ₂ -Ash mixed sample			
	経過時間 0 (hr)	1	3	6	0	1	3	6	0	1	3	6
室温 回数	16.5 (°C)	18	20	21.5	16	16	17	16	15.5	16	16.5	16
1	20380	20455	20946	20264	992	810	1198	934	7681	7803	7962	7585
2	20681	20799	20831	20328	751	965	1369	625	7592	7521	8058	7791
3	20933	20703	20405	20512	503	823	919	693	7881	7318	7828	7576
4	20987	20583	20801	20597	854	620	965	838	7695	7684	7748	7441
5	20619	20546	20538	20516	713	1051	789	1156	7672	7583	7627	7953
6	20573	20755	20387	20515	800	683	628	1070	7507	7900	7764	7828
7	20893	20685	20392	20584	818	805	1023	963	7188	7457	7580	7745
8	20347	20670	20415	20276	954	599	827	1128	7337	7629	7980	7663
9	20334	20823	20578	20508	745	722	713	1110	7713	7688	8130	7858
10	20312	20620	20710	20424	1011	1019	877	890	7606	7639	8039	7627
平均	20606	20664	20600	20452	814	810	931	941	7587	7622	7872	7707
標準偏差	262	115	208	122	152	160	223	183	200	167	189	155

(3) 日内の平均値変動

自然計数、および試料を測定してから、1時間、3時間、6時間後にそれぞれ10回くり返し測定を行い、その平均値の日内変動を検討した。用いた試料は3% EUO₂-Ash混合試料1個(²³⁵U, 0.6%)と、12% EUO₂-Ash混合試料4個(²³⁵U, 9.6%)で、測定時間は150.5秒である。測定が始まる前に室温を記録した。結果をIII.1.3表に示す。なお、試料の正味計数は一日内での自然計数の変動がないものと仮定して、自然計数の20回くり返し測定の平均値20463カウントを差し引いて求めた。

III.1.3表に示す経過時間ごとの平均値に有意な差があるかどうか、分散分析により検定した。自然計数と3% EUO₂-Ash混合試料では95%の信頼率で差がなかったが、12% EUO₂-Ash混合試料では有意差があった。しかし、経過3時間後のデータを除く三水準については有意差がなかった。

(4) 日間の平均値変動

試料として12% EUO₂-Ash混合試料4個(²³⁵U, 9.6%)を使用し、24日間にわたりて測定を行いその平均値の変動を観察した。測定時間150.5秒で10回くり返し測定し、くり返し測定の前後に自然計数を1回づつ、計2回測定した。結果をIII.1.4表に示す。

分散分析による平均値の差の検定を行うと、最初の測定値と1日後の測定値とでは信頼率95%で差が認められなかつたが、3日後の測定値まで含めると信頼率99%で有意差となつた。経過日数とともに平均計数率が減少する原因として、²⁵²Cfの崩壊による減衰が考えられる。実効半減期が2.65年であるから24日間で約1.7%減少する。したがつて、較正曲線を長期間使用する場合、標準試料による補正が必要となる。

Table III.1-4 日間の平均値変動

経過日数 (日)	くり返し測定 の 平 均 値 (c p s)	標準偏差 (c p s)	経過日数 (日)	くり返し測定 の 平 均 値 (c p s)	標準偏差 (c p s)
0	50.51	1.20	13	48.29	1.54
1	51.59	1.51	16	49.82	1.13
3	49.99	1.02	18	49.22	1.11
6	49.15	1.28	20	48.05	0.87
8	49.92	1.04	22	45.68	1.05
10	48.82	0.80	24	46.64	1.09

III.2 幾何学的条件の影響

キャリア内における試料の配置場所を変えて測定を行い、測定精度に及ぼす影響について検討する。

(1) 試料のスキャニング実験

試料の配置を図III.2.1に示す。水平方向の配置はキャリアの中心（[A]で示す位置）と、[A]を中心として半径7.8mmの円を描き、その円周を16等分した位置（[B]-1から[B]-16で示す位置）である。実験は試料を水平位置[A]と[B]-5に置いてスキャニングした。

(a) パッシブ分析法

試料として、自発核分裂性核種の²⁴²Puを97.93(wt%)含むPuO₂粉末0.1134gを、点線源と考えて使用し、測定時間517秒で10回くり返し測定した。試料を中心（図III.2.1に示す水平位置[A]）に置いて測定した結果、平均計数率が1.07(cps)で相対標準偏差が7%であった。試料をキャリアの壁に接した位置（図III.2.1に示す水平位置[B]-5）に置いて測定した結果、平均計数率が0.99(cps)で相対標準偏差が7%であった。

(b) アクティブ分析法

試料として、核分裂性核種の²³³Uを99.92(wt%)含むU₃O₈粉末1.180gを用い、測定時間388.5秒で10回くり返し測定を行った。試料を水平位置[A]に置いて測定した結果、平均計数率は25.65(cps)で相対標準偏差が4%であった。試料を水平位置[B]-5に置いて測定した結果、平均計数率は24.52(cps)で相対標準偏差が5%であった。アクティブ、およびパッシブ双方の測定結果をIII.2.1表と図III.2.2に示す。III.2.1表に示す10回くり返し測定結果から平均値の差の検定を行うと、パッシブ分析法では有意水準1%で、アクティブ分析法では5%で平均値に差がなかった。

(2) 模擬実験

検出器と線源の位置が固定された状態で、容器を回転させ走査することは応答の一様性の上で利点があると云われている。前節のスキャニング実験において、キャリアの移動に伴って変化する試料の配置と計数率との関係を求めるために、スキャニングをやめ、試料の高さ（変数Yで示す）を変えたり、水平方向の配置（変数Hで示す）を変えて測定した。

(a) パッシブ分析法

試料として、スキャニング実験で用いたPuO₂粉末0.1134gを使用し、測定時間517秒で5回くり返し測定し、平均計数率(cps)を求めた。結果をIII.2.2表に示す。この表で、試料を水平位置[A]に置き、試料の高さ(Y)を変数にして測定した結果から、計数率の最も高い位置をY=0(mm)とした。変数Yはこの水平面から試料までの

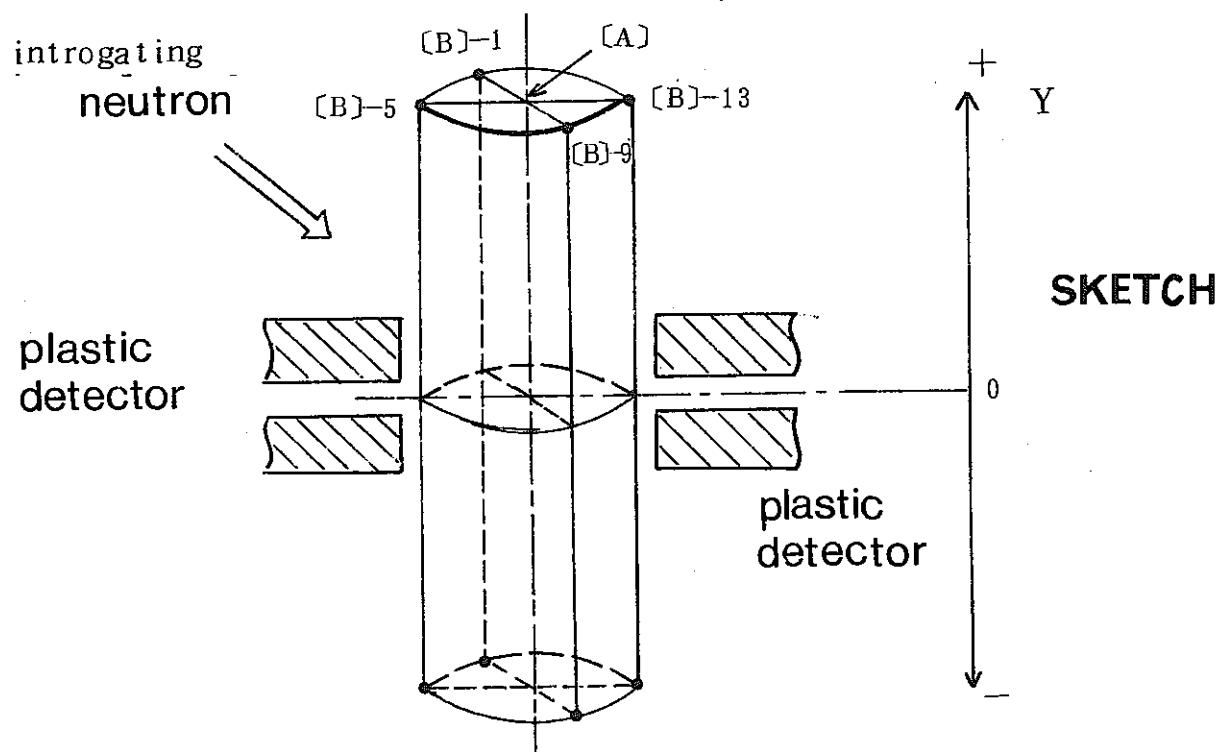
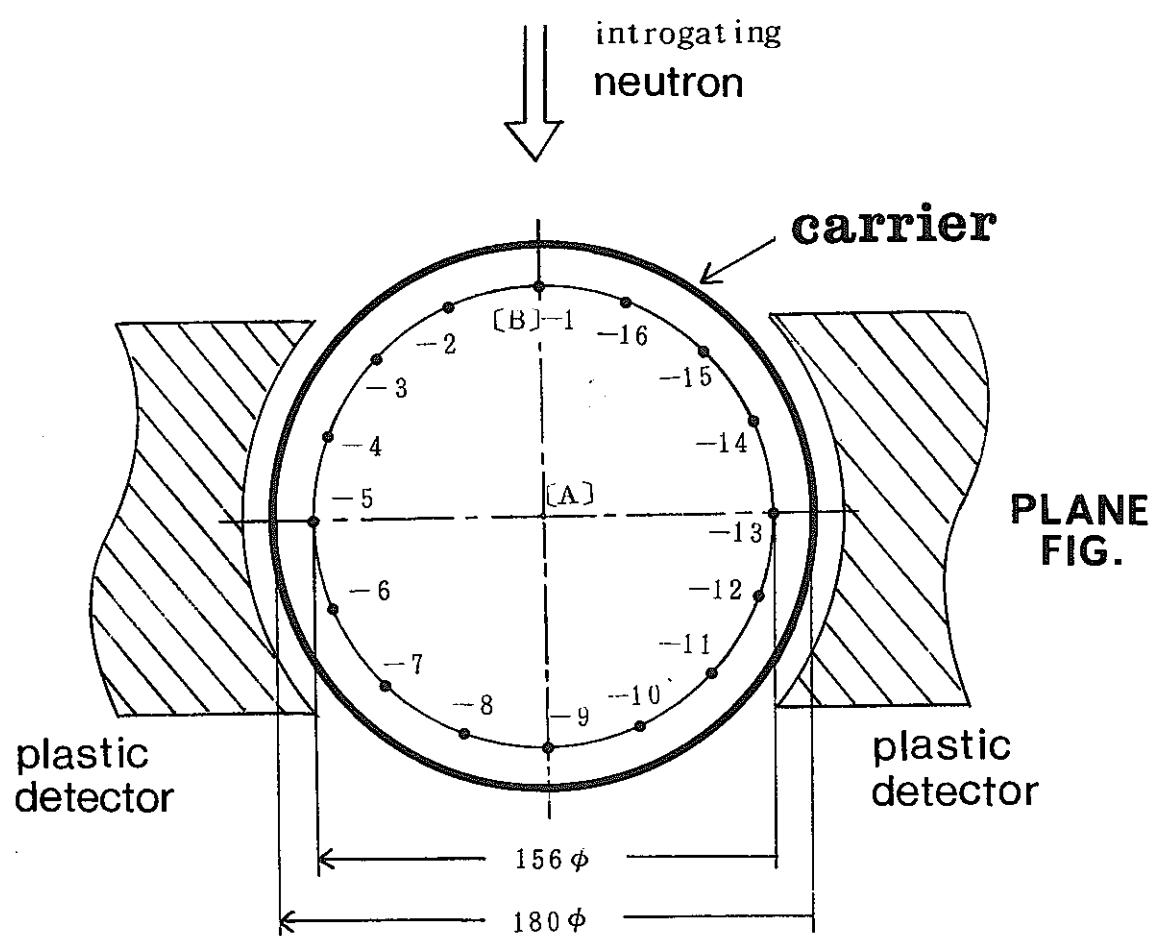


Fig III 2.1 **Position of sample**

Table III.2.1 幾何学的条件の影響測定結果

(Passive Assay)

試料の配置 回数	[A]	[B] - 5
1	1.17 (cps)	1.03 (cps)
2	1.13	1.02
3	1.12	0.97
4	1.09	1.04
5	0.96	1.06
6	0.99	1.03
7	1.01	0.99
8	1.19	0.85
9	1.00	0.87
10	1.08	1.04
平均	1.07	0.99
標準偏差	0.08	0.07
相対標準偏差(%)	7	7

(Active Assay)

試料の配置 回数	[A]	[B] - 5
1	24.27 (cps)	24.52 (cps)
2	26.88	23.92
3	26.34	25.87
4	27.10	22.22
5	26.24	23.27
6	25.01	23.32
7	26.65	24.64
8	24.15	25.62
9	24.49	25.79
10	25.41	26.04
平均	25.65	24.52
標準偏差	1.13	1.32
相対標準偏差(%)	4	5

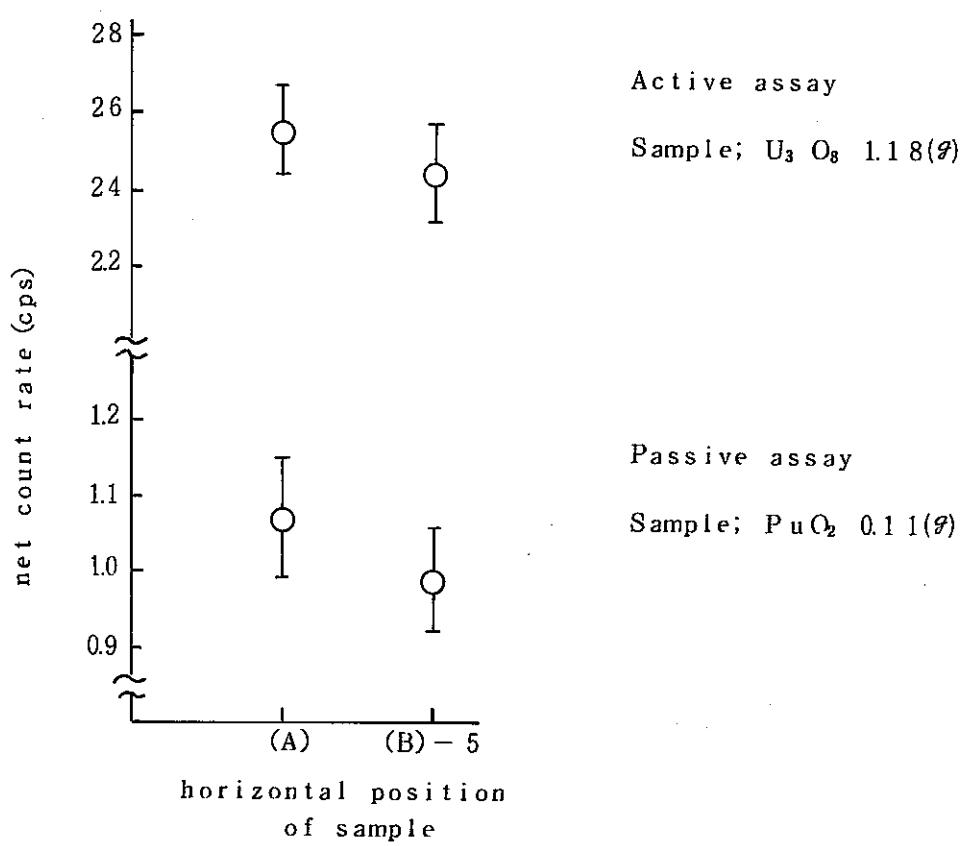


Fig III.2.2 Effects of geometry

垂直距離を示し、試料が $Y = 0$ の水平面より上にある場合はプラスで、下にある場合はマイナスで表わした。

試料を水平位置 [A] と [B]-5 にそれぞれ置いてスキャニングすると、垂直線上、および半径 7.8 mm の円筒形表面をらせん状に試料は移動する。らせん状に移動する試料の配置と計数率との関係を求めるために、次のような仮定をした。図 III.2.1 に示す立体図で、半径 7.8 mm の円筒形表面における計数率分布は、 $Y = 0$ の水平面を中心として上下対象である。また、水平位置 [B]-5 と [B]-13 を結ぶ垂直面、および [B]-1 と [B]-9 を結ぶ垂直面を中心として、前後、左右とも対象である。この仮定から、同一計数率を示す位置を線で結んで円筒形表面の計数率分布を図示すると図 III.2.3 のようになる。スキャニングすると、キャリアは 1 回転で約 6.1 mm 高さ方向に移動する。これを図示すると、図 III.2.3 に示す斜線が試料の通過位置となる。同一計数率を示す位置を結ぶ曲線と試料の通過線との交点は、試料の移動に伴って変化する計数率を示している。この交点を試料の高さ(Y)と計数率との関係で図示すると、図 III.2.4 に示す実線のようになる。なお、図 III.2.4 に示す点線は水平位置 [A] における試料の高さと計数率との関係を示す。

(b) アクティブ分析法

スキャニング実験で用いた U_3O_8 粉末 1.18 g を用いて、パッシブ分析法と同様の実験を行った。測定時間は 400 秒で、各位置について 1 回測定した。結果を III.2.3 表に示す。試料を水平位置 [B]-5 に置いてスキャニングした場合の、試料の配置と計数率との関係を求めるために、III.2.3 表に示す実験結果から、半径 7.8 mm の円筒形表面における計数率分布は、 $Y = 0$ の水平面を中心として上下対象であると仮定した。この仮定に基づき、同一計数率を示す位置を線で結んで図示したものが図 III.2.5 である。図の中で、斜線は試料の通過線を示す。この通過線と同一計数率を結ぶ曲線との交点を、試料の高さ(Y)と計数率との関係で示すと、図 III.2.6 の実線のようになる。図 III.2.6 に示す点線は、水平位置 [A] における試料の高さと計数率との関係を示している。

以上の結果から、スキャニングすることによって試料の配置場所による影響が小さくなることを確認した。また、スクラップや廃棄物中の核物質に焦点をあてた場合、核物質の水平方向、あるいは高さ方向の偏在そのものによる影響はほとんどないものと考えられる。

III.3 濃縮度による影響

^{238}U は 1 MeV 以上のエネルギーをもつ中性子によって核分裂する。この節では、3 種類の濃縮ウランを用いて測定を行い、 ^{238}U による影響を検討する。

濃縮度が 4, 12, 23% の UO_2 粉末をそれぞれ 250 ml ポリビンに入れ、測定時間

Table III.2.2 Position of sample vs net count rate (Passive)

H Y(μm) \ (A)	(B) - 1	(B) - 2	(B) - 3	(B) - 4	(B) - 5	(B) - 6	(B) - 7	(B) - 8	(B) - 9	(B) - 10	(B) - 11	(B) - 12	(B) - 13	(B) - 14	(B) - 15	(B) - 16
224	0.34				0.19		0.28		0.24							
152	0.71				0.68		0.54		0.57							
125	1.16															
94	1.57				1.39	1.45	1.25	1.09	0.99							
34	1.86				2.22	2.11	1.68	1.35	1.23							
14	1.94															
-7	2.00	1.35	1.59	1.87	2.16	2.34	2.19	1.73	1.48	1.34	1.44	1.95	2.34	2.44	2.38	1.89
-16	1.96															
-32	1.95					2.12	1.87	1.64	1.31	1.31						
-57	1.76					1.77	1.64	1.41	1.04	1.10						
-95	1.52															
-135	1.09															
-176	0.59															
-236	0.22															
-288	0.19															

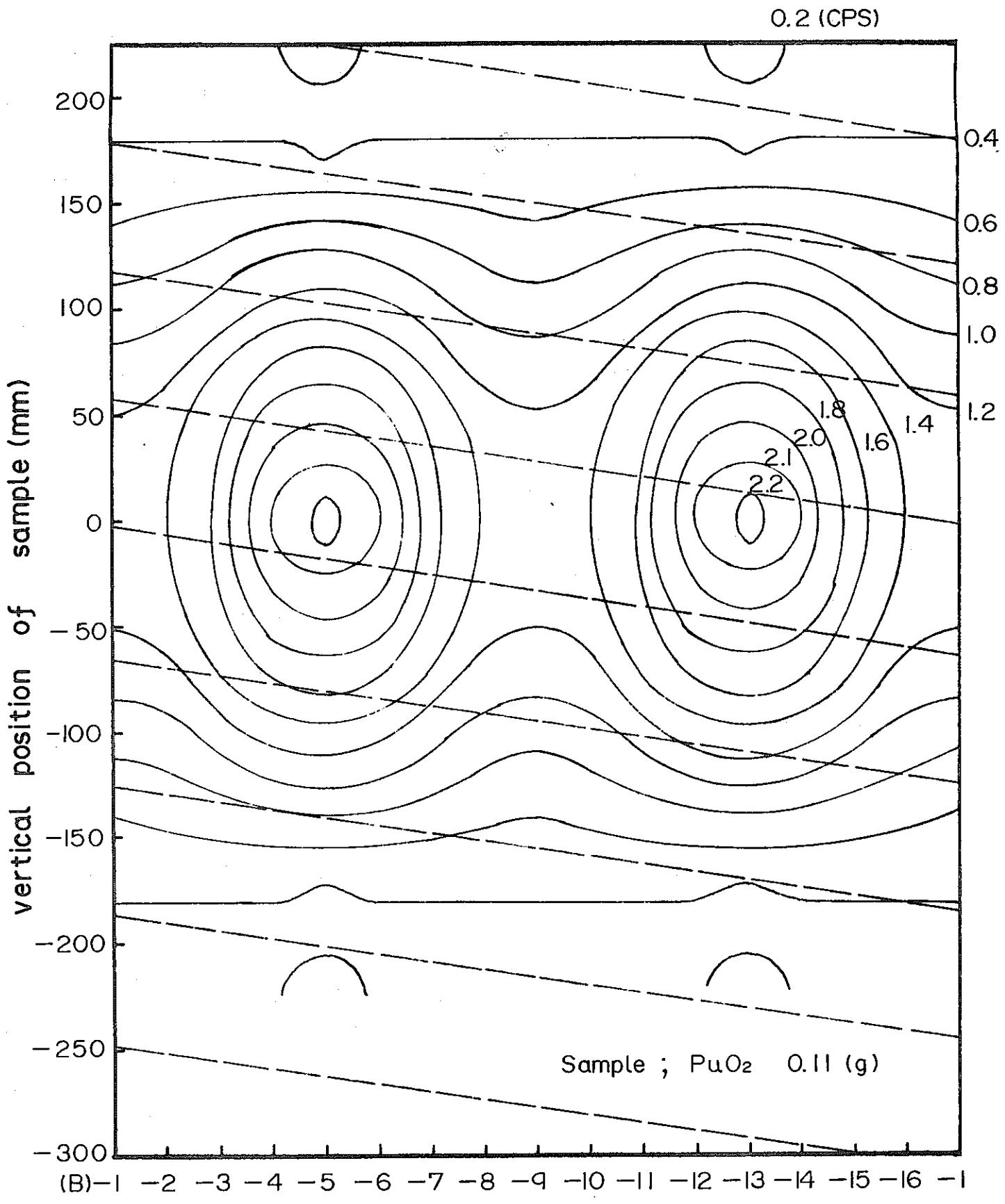


Fig III.2.3 Distribution of net count rate

(Passive assay)

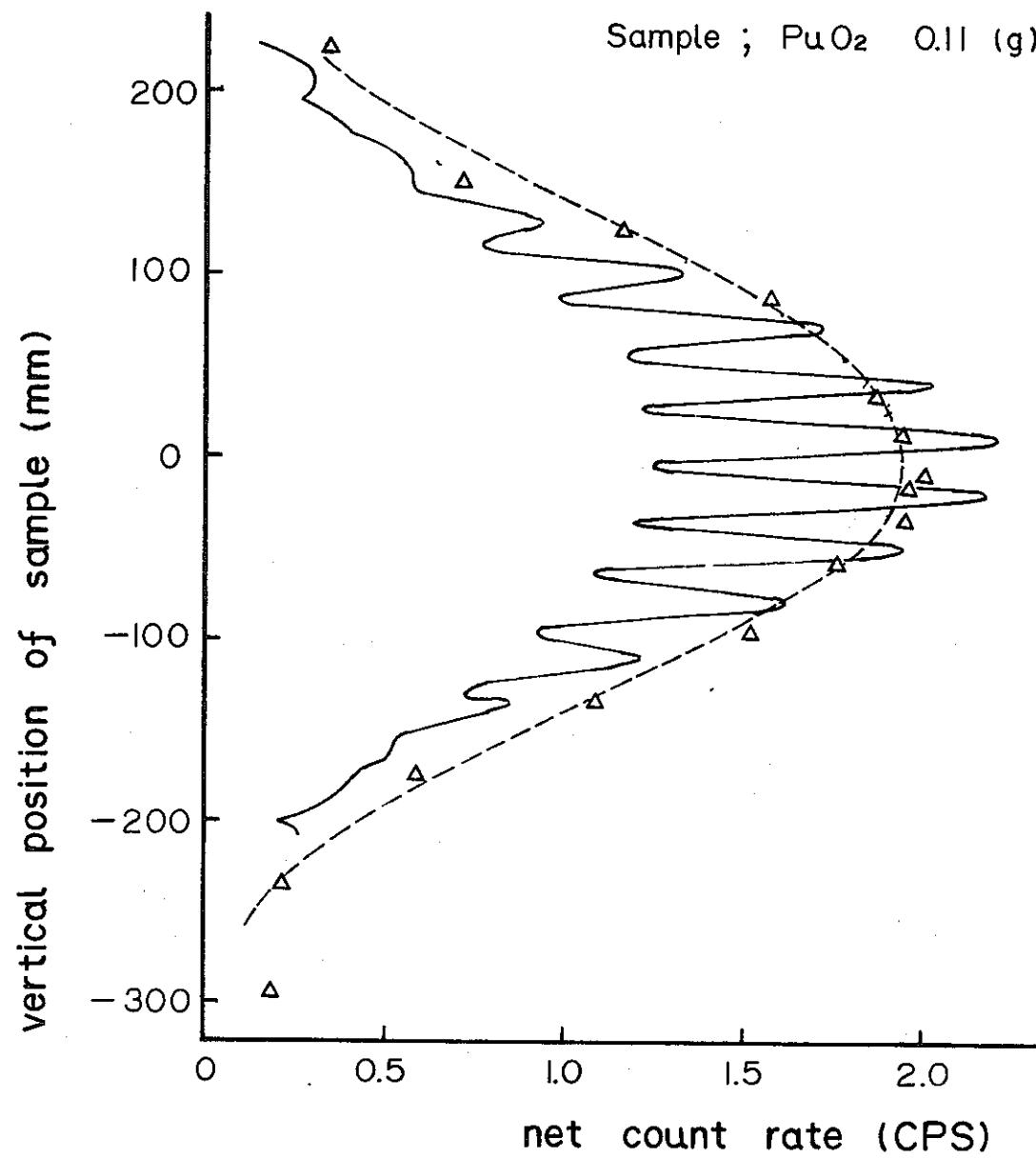
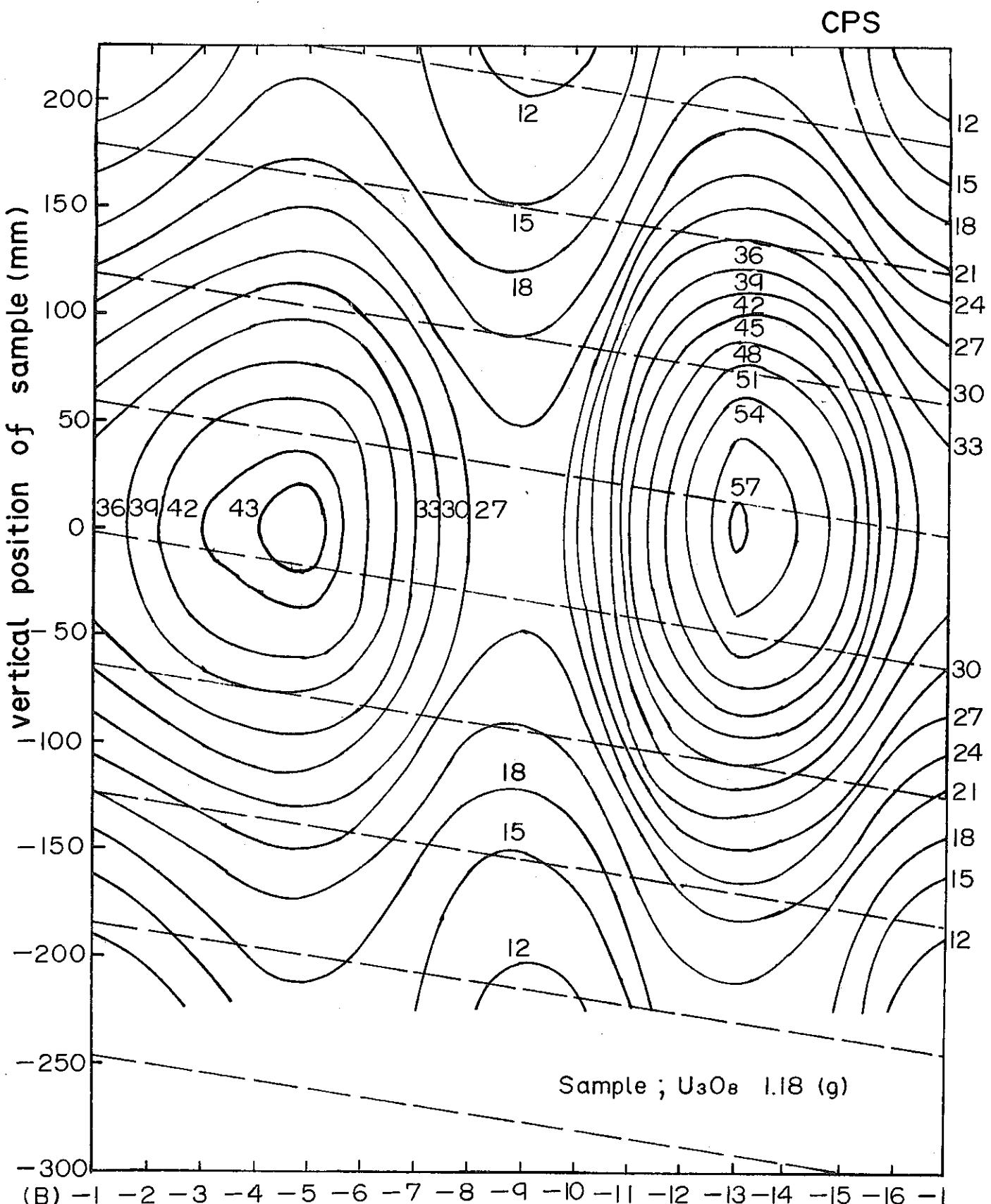


Fig III.2.4 Effects of geometry (Passive)

Table III.2.3 Position of sample vs net count rate (Active)

H Y (mm) \ A	(A)	(B)-1	(B)-2	(B)-3	(B)-4	(B)-5	(B)-6	(B)-7	(B)-8	(B)-9	(B)-10	(B)-11	(B)-12	(B)-13	(B)-14	(B)-15	(B)-16
225	7.0	8.5	9.7	11.2	12.4	10.4	13.1	9.8	9.5	9.6	10.2	14.2	19.6	19.6	18.5	14.9	10.7
195	15.7																
177	13.8	17.4	18.0	22.2	20.7	19.3	20.0	15.8	13.9	14.0	15.7	28.1	26.3	25.9	21.7	15.6	
167	20.5																
135	21.2	23.0	26.2	30.2	32.2	29.1	26.8	19.2	18.0	20.0	28.9	33.7	36.7	34.0	30.0	22.9	
121	29.1																
95	26.5	30.3	32.2	35.0	37.0	32.9	27.1	21.2	22.5	24.9	34.0	42.1	45.7	42.9	38.5	29.8	
88	35.2																
56	38.8	31.2	35.1	37.9	38.5	39.0	39.1	30.1	28.7	25.2	28.8	40.3	47.5	55.0	53.7	46.1	37.2
26	40.9	32.6	36.7	39.7	41.2	40.6	37.1	31.0	25.9	24.7	27.2	40.2	50.3	52.6	51.5	44.6	37.0
-6	41.0	33.0	35.2	39.6	38.0	39.1	38.2	32.1	27.1	23.8	29.1	40.8	49.5	55.5	51.4	42.4	35.9
-35	37.6																
-64	36.9																
-95	29.9																
-105																	
-134	28.7																
-145																	
-173	21.7																
-185																	
-215	13.0																
-235	6.4																
-253																	
-287	4.0																



horizontal position of sample
 Fig III.2.5 Distribution of net count rate
 (Active assay)

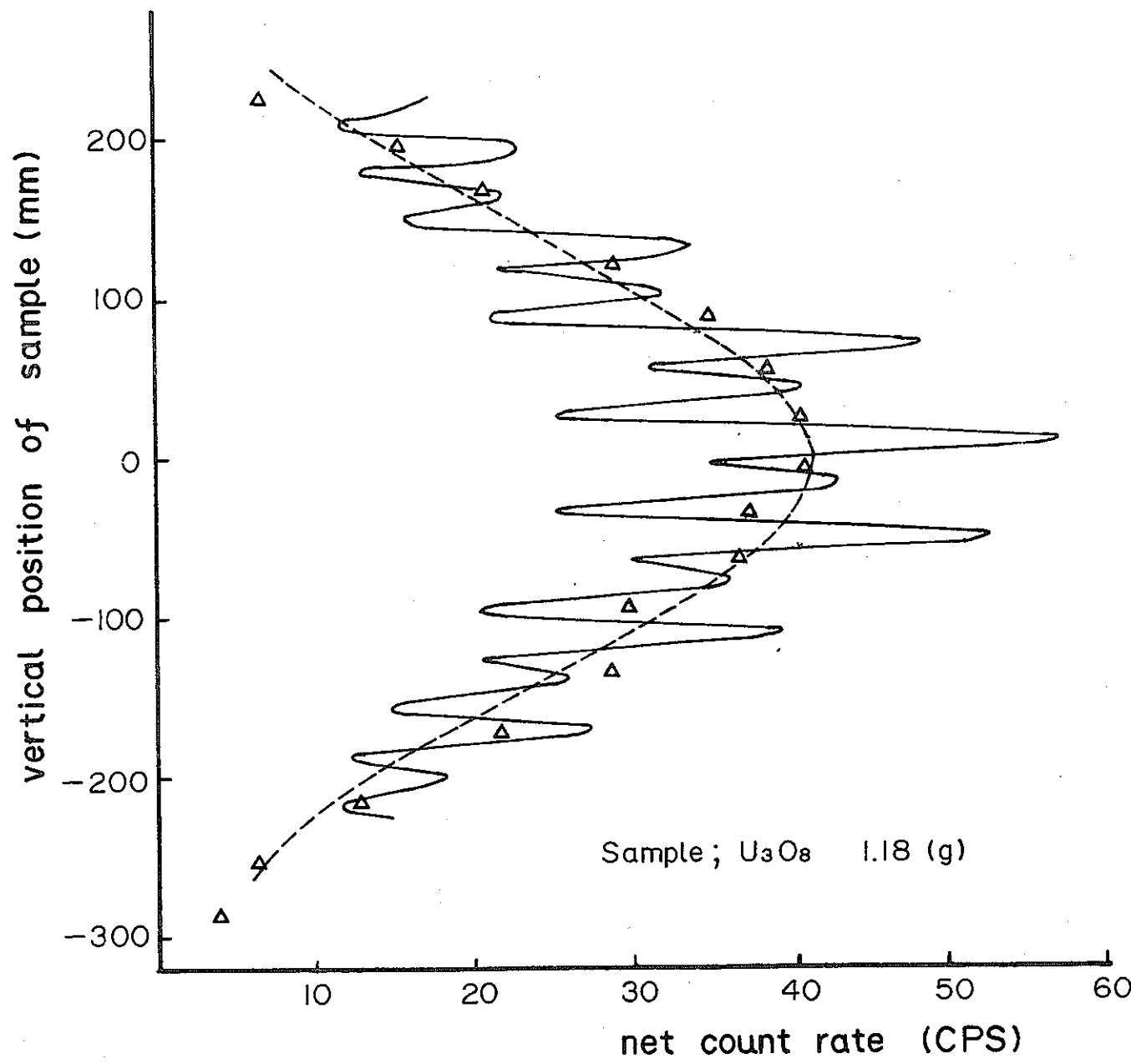


Fig III.2.6 Effects of geometry (Active)

150.5秒で10回くり返し測定をした。各試料に含まれる核物質の重量を表III.3.1に示す。結果を平均計測数で示すと、4, 12, 23%濃縮ウランでそれぞれ7465, 5811, 5343カウントであり、標準偏差が316, 238, 129カウントであった。

また、厚さ12mmのB₄Cで遮蔽し、高速中性子による照射試験や、この濃縮ウラン粉末を硝酸で溶解し、蒸留水を加えて1250mlとし、2mlポリビンに入れて測定することも行った。各測定結果をIII.3.2表に示し、試料中に含まれる²³⁸Uの重量と平均計数率との関係を図III.3.1に示す。

図III.3.1から、濃縮ウラン粉末に関して、3個の測定点を通る一次関数を最小二乗法で推定すると

$$(\text{without } B_4C) \quad Y = 0.070X + 33.532$$

$$(\text{with } B_4C) \quad Y = 0.028X + 2.082$$

$$\text{※ } Y = \text{cps}, X = ^{238}\text{Uの重量}(\text{g})$$

を得る。したがって、B₄Cを使用しないで照射した場合、²³⁵U 1gを測定したときに得る計測数に相当する²³⁸Uの重量は約50gである。またB₄Cを用いて測定すると、²³⁵U 1gが²³⁸U 約8gに相当することになる。水溶液に関しては、²³⁸Uの影響について明確な結論は得られなかった。以上の結果から、特に低濃縮ウランを測定する場合、標準試料と対象試料の濃縮度はできるだけ類似している必要がある。

Table III.3.1 濃縮ウラン粉末試料

濃縮度 (%)	²³⁵ U (g)	²³⁸ U (g)
4.00	9.6	230
12.01	9.6	70
23.07	9.6	32

III.4 マトリックスの影響

測定系に影響を与える異質物質としては、核分裂の結果放出される放射線に影響を与える物質と、照射する中性子を減速あるいは吸収する物質である。これらの物質が存在する有意性の評価は、中性子との相互作用の場合、その物質の断面積と容器中に存在する核分裂性物質の断面積との比から求められる。

Table III.3.2 濃縮度による影響測定結果

測定方法 試料 回数	without B ₄ O			with B ₄ O			without B ₄ O		
	4% EU 粉 末	12% EU 粉 末	23% EU 粉 末	4% EU 粉 末	12% EU 粉 末	23% EU 粉 末	4% EU 水溶液	12% EU 水溶液	23% EU 水溶液
1	7666	5417	5199	1543	831	300	9941	9941	10394
2	7903	5640	5402	1268	700	368	10695	10695	10899
3	7588	5460	5272	1016	805	391	10542	10542	10934
4	7657	6034	5344	1145	752	283	10740	10740	10777
5	7825	5757	5144	1301	916	185	10660	10660	10644
6	7343	6044	5315	1312	699	469	10835	10835	10526
7	6892	6065	5519	1224	769	760	10459	10459	10583
8	7264	5865	5463	1483	481	222	10826	10826	10718
9	7274	5861	5258	1182	603	344	10198	10198	10560
10	7237	5965	5512	1164	723	427	10490	10490	10524
平均	7465	5811	5343	1264	728	375	10539	10539	10656
標準偏差	316	238	129	158	122	161	286	286	175

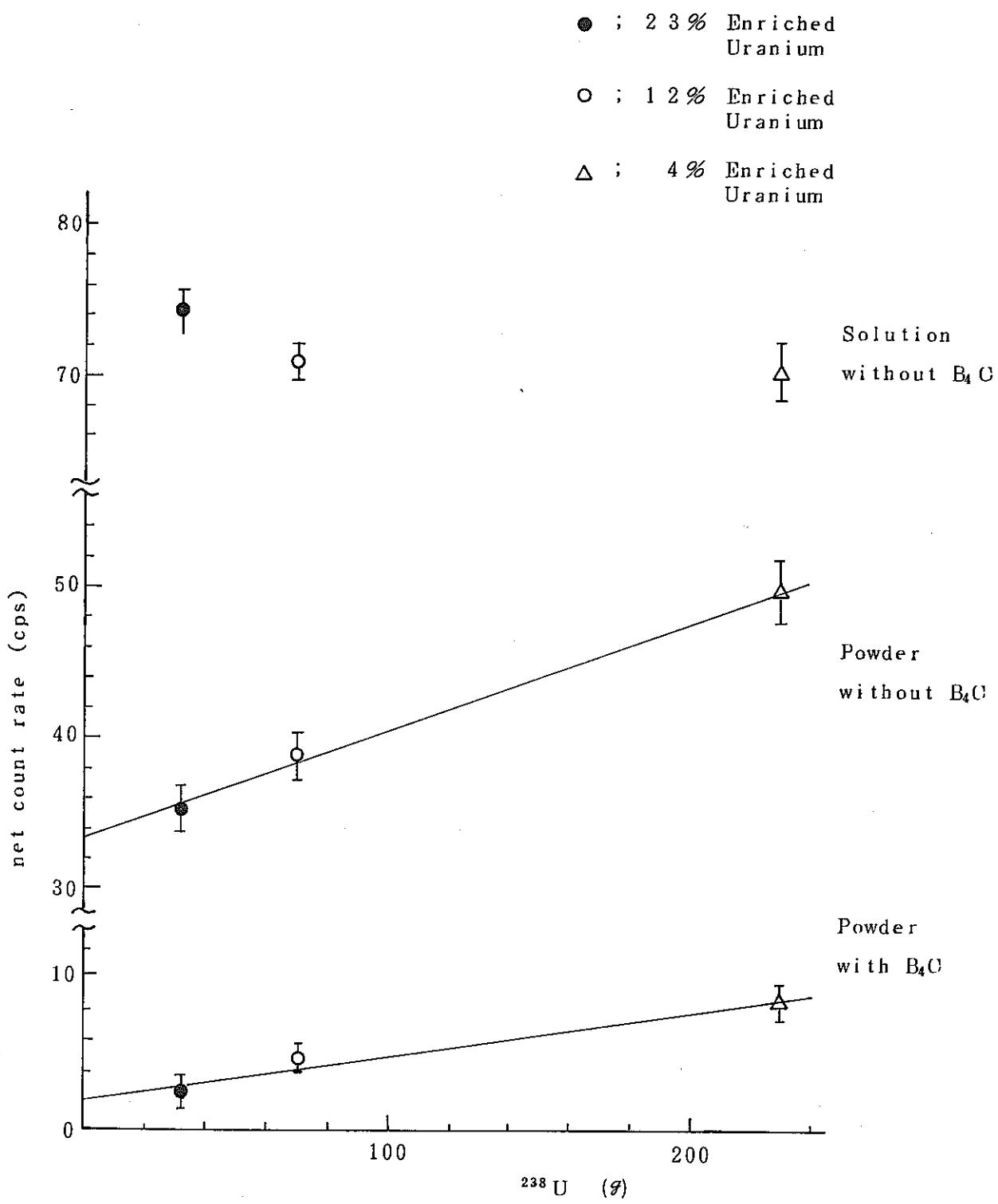


Fig III.3.1 濃縮度による影響

$$R = \frac{N_1 \sigma_1}{N_f \sigma_f}$$

ここで N_1 = 異質物質の単位体積当りの原子数

σ_1 = 異質物質の断面積

N_f = 核分裂性物質の単位体積当りの原子数

σ_f = 核分裂性物質の断面積

この効果の大きさは、各物質の分布や容器内における中性子エネルギーに依存する。

この節では、核物質と種々のマトリックスとを均質、あるいは非均質な状態に分布させて測定を行い、その影響について検討する。

(1) 均質系

濃縮度 23% の UO_2 粉末を硝酸で溶解し、蒸留水を加えて容量を 550 ml に調整し、溶解しているウランの重量を変えて測定した。測定時間 150.5 秒 10 回くり返し測定し平均計数率を求めた。結果を III.4.1 表に示し、 ^{235}U の重量と平均計数率との関係を図 III.4.1 に示す。

濃縮度 23% UO_2 粉末 43.28 g を硝酸で溶解して 500 ml ポリビンに入れ、これに蒸留水を 50 ml づつ順に加えて攪拌混合し、測定時間 575.6 秒で各々 1 回測定した。加えた蒸留水の重量と計数率との関係を III.4.2 表と図 III.4.2 に示す。

Table III.4.1 均質系実験結果

ウランの重量 (g)	^{235}U (g)	平均計数率 (c p s)	標準偏差 (c p s)
8.66	2.0	21.80	1.16
17.31	4.0	41.83	1.41
25.97	6.0	58.84	0.45
34.63	8.0	74.62	0.98
43.28	10.0	90.19	0.97

Table III.4.2 均質系実験結果

加えた蒸留水 (g)	計数率 (c p s)	加えた蒸留水 (g)	計数率 (c p s)
0	43.09	199	68.62
49	48.84	249	76.95
99	53.21	300	82.18
149	61.35	349	87.61

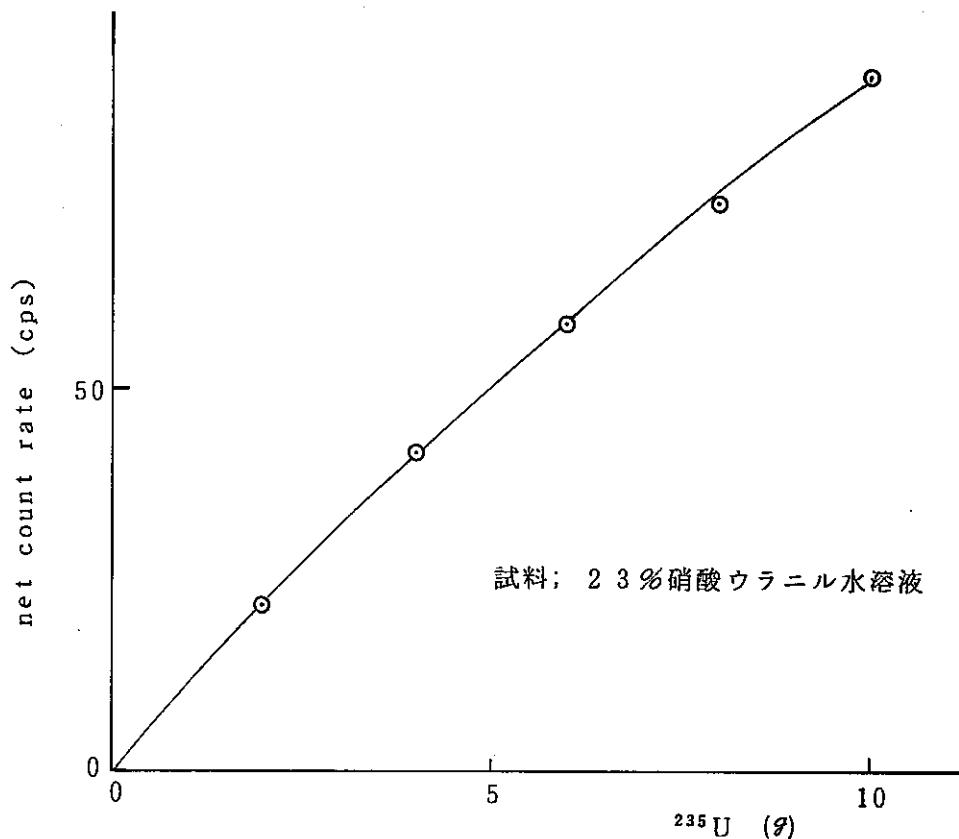


Fig III.4.1 均質系実験

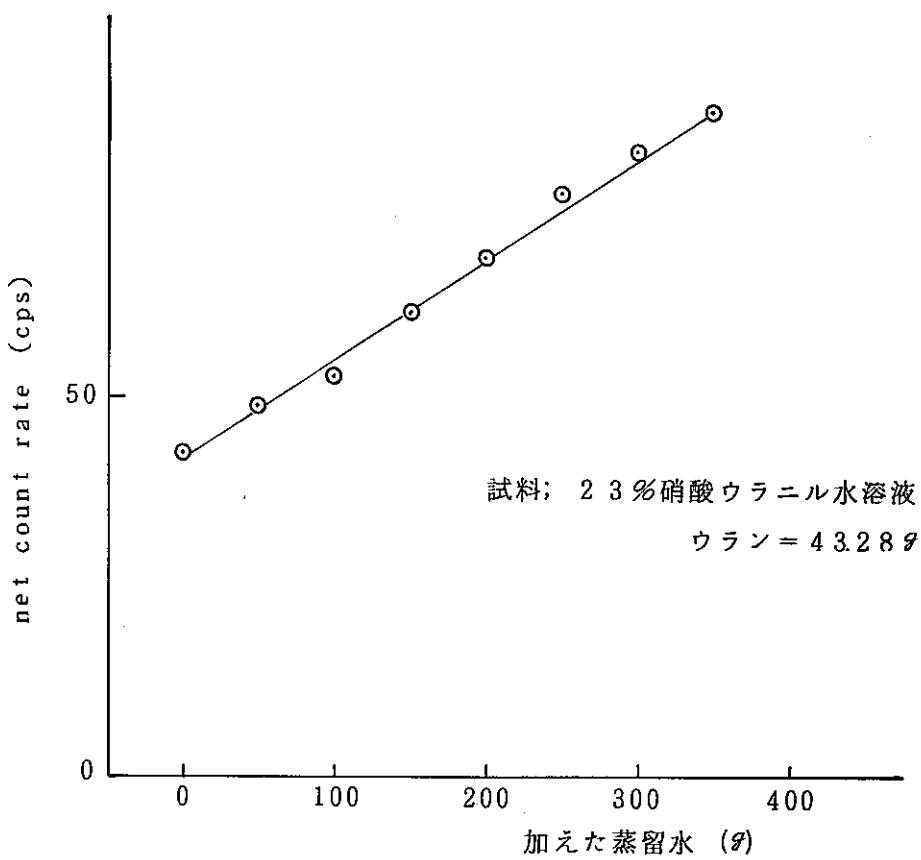


Fig III.4.2 均質系実験

水は吸収、および散乱断面積が大きく、これらは共に照射する中性子に影響を与える。核物質と水が均質に混合している場合、中性子は水素原子と衝突して減速し、その結果計測数が増えると考えられる。図III.4.2では、水が10%増えることによって約3%計数率が増えている。したがって、水溶液中の核物質を定量するには、容量を一定にする必要がある。

(2) 非均質系

(a) 水素含有物質、および鉛の影響

濃縮度23%の UO_2 粉末34.7g($^{235}\text{U}, 80\%$)を250mlポリビンに入れ、その周囲を種々のマトリックスで囲んで測定を行い、マトリックスの厚さによる影響を検討した。マトリックスとしてはポリエチレン、ビニルバッグ、鉛を使用した。ビニルバッグと鉛については、厚さ12mmのB₄Oでキャリアを詰み、高速中性子による照射を行う実験や、パッシブ分析法による測定も行った。パッシブ分析法による測定で用いた試料は、 ^{240}Pu と ^{242}Pu で合計0.74gである。測定時間520秒で2回くり返し測定し、その平均計数率を求めた。実験結果をIII.4.3表と図III.4.3に示す。

図III.4.3から三種類の実験について、計数率と鉛厚との関係はほぼ同様の傾向を示している。このことは、計数率の減少する最大の要因が鉛によるフィッショングンマー線吸収によるものと考えられる。また、ポリエチレンやビニルバッグなどの水素含有物質については、照射する中性子のエネルギーや中性子束に影響を及ぼし複雑となる。

(b) 水、模擬焼却灰による影響

マトリックスの容積や分布と同じ状態にして測定した。濃縮度23%の UO_2 粉末24.894g($^{235}\text{U}, 50.10\%$)を100mlポリビンに入れ試料とした。図III.4.4に示すように、試料を厚さ4mmの塩ビ製台に固定し、内径10.4mmのアルミ缶内に据え付けた。この中に同一容積となるように水や焼却灰を詰め、測定時間575.6秒で2回くり返し測定を行いその平均値を求めた。使用したマトリックスの重量を表III.4.4に示す。また濃縮度23%の UO_2 粉末124.52g($^{235}\text{U}, 25.06\%$)についても同様の実験をした。結果をIII.4.5表と図III.4.5に示す。III.4.5表から、3種類の測定の標準偏差はそれぞれ7.0, 9.11%であった。しかし、マトリックスとして水を除く6種類の不純物について考えると、その平均値は15.93, 106.32, 50.51(cps)となり、相対標準偏差は15.4, 8%となる。

この装置をスクラップや廃棄物中の核物質測定に適用するためには、その中に含まれる不純物の種類が明らかでなければならない。不純物の種類ごとに標準試料を調製することになるが、しかし、多量の標準試料を所持する必要はない。 ^{252}Cf の自発核分裂中性子に対する不純物の吸収、および散乱断面積、あるいはガンマー線吸収係数などの類

似した不純物については、標準試料として1種類だけ用意すればよいことになる。更に試料に含まれる不純物の偏在や密度の変化による影響は、その分布や密度を変えて測定することによりはつきりするだろう。

Table III.4.3 マトリックスの影響実験結果

測定方法 マトリックス マトリックスの厚さ(mm)	Active Assay without B ₄ C			Active Assay with B ₄ C		Passive Assay	
	ビニル バッグ	ポリエ チレン	鉛	ビニル バッグ	鉛	ビニル バッグ	鉛
0	197.9 (cps)	197.9	197.9	27.2	27.2	8.3	8.3
0.1		197.6					
0.2		193.0					
0.3	190.4	192.5					
0.6	186.7	186.0					
1.2	176.2	176.9					
2.4	160.5	167.7					
3.0			166.8		22.4		6.1
5.4	136.5			30.4		7.6	
6.0			145.9		19.5		5.3
9.0			129.0		17.0		4.9
10.2	104.3			31.7		6.8	
14.4	88.9			33.8		6.4	

Table III.4.4 Weights of matrix material

Matrix mat.	H ₂ O	C	CaCO ₃	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	Fe ₂ O ₃
Weight (g)	951	906	772	456	950	1530	1080
Density (g/cm ³)	1.00	0.95	0.81	0.48	1.00	1.61	1.13

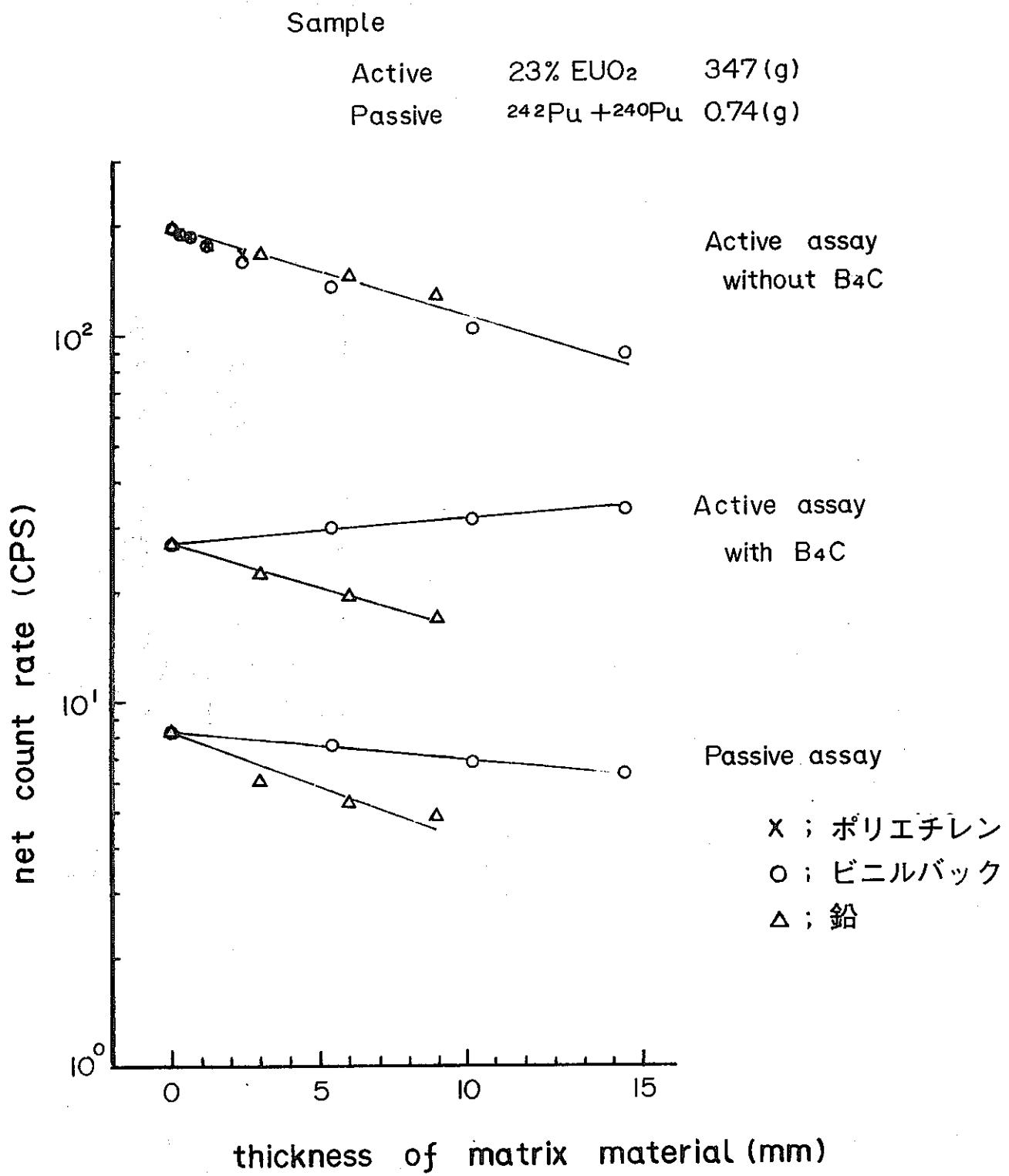


Fig III.4.3 Effects of matrix material

Fig III.4.4 Distribution of matrix material

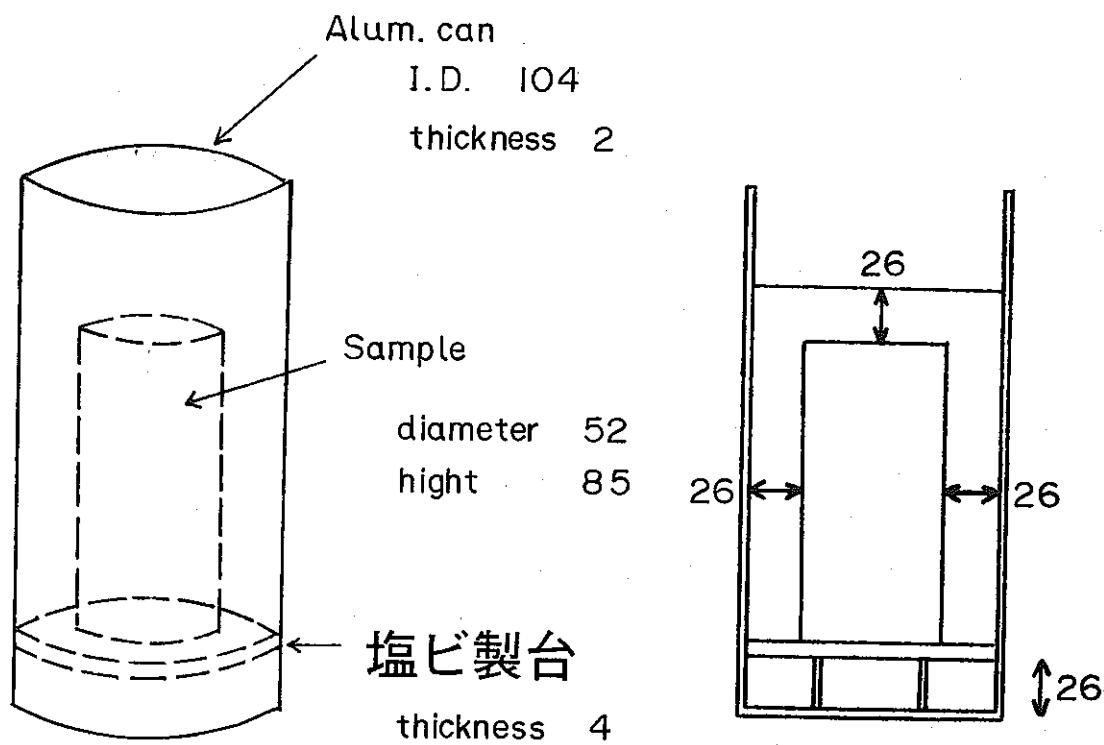


Table III.4.5 マトリックスの影響実験結果

^{235}U (g)	5 0 1 0		2 5 0 6
マトリックス 測定方法	with B_4O	without B_4O	
無し	18.60 (cps)	127.58	63.43
H_2O	58.87	93.15	50.08
C	16.79	103.70	48.21
CaCO_3	15.86	108.31	55.43
MgO	17.22	110.63	55.16
Al_2O_3	19.36	109.92	50.03
SiO_2	12.98	101.15	47.92
Fe_2O_3	13.36	104.19	46.22
平均 (cps)	21.63	107.33	52.06
標準偏差 (cps)	15.22	9.93	5.66
相対標準偏差 (%)	70	9	11

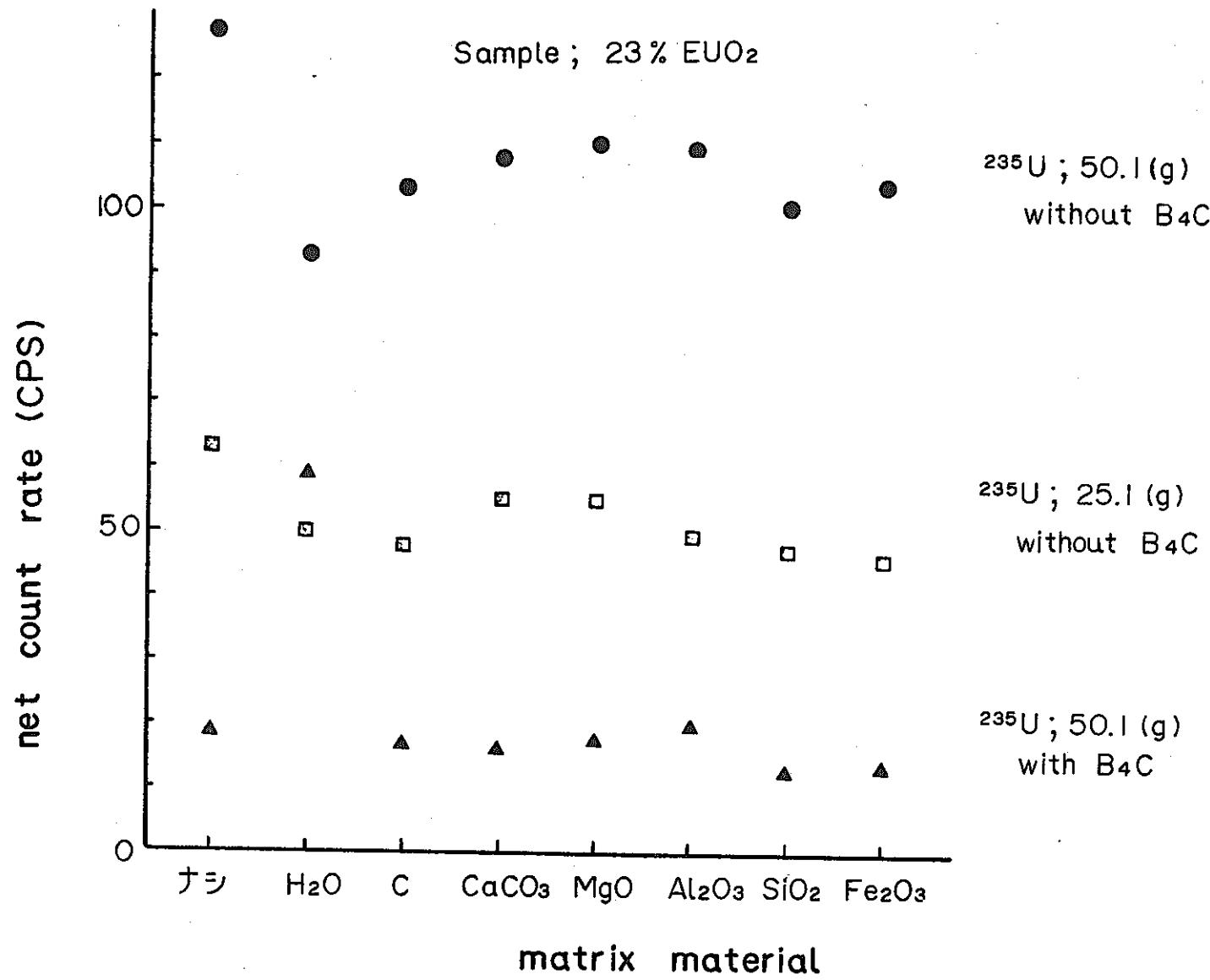


Fig III.4.5 Effects of matrix material

III.5 再現性

(1) 模擬焼却灰による再現性試験

III.1.1 表に示す 3%~12% EUO₂-Ash 混合試料を、測定時間 517 秒で 4 回くり返し測定を行いその平均値を求めた。この結果から ²³⁵U(%)と計測数との関係（較正曲線）を求め、3 週間後に同じ試料を未知試料と仮定して測定し、較正曲線から含まれている ²³⁵U を定量した。各濃縮度ごとに組成の同じ 4 個の試料があるが、その中で 3 個を較正用に用いた。結果を III.5.1 表と図 III.5.1 に示す。

(2) プルトニウム試料による再現性試験

フィッサイル 50% の PuO₂ 粉末 4.32g を試料として、パッシブ分析法、およびアクティブ分析法に関し、約 1 月にわたって実験を行いその再現性を求めた。プルトニウムの同位体組成を III.5.2 表に示す。較正用標準試料としては、フィッサイル 83% の PuO₂ 粉末 26.01g を用い、測定時間 150.5 秒で 5 回くり返し測定し、平均計数率を求めた。結果を III.5.3 表に示す。

初日の測定結果は、パッシブ分析法の平均計測数が 2266 カウント、自然計数が 375 カウントであった。したがって、正味の計測数は $2266 - 375 = 1891$ (カウント) となる。計数のバラツキが核分裂による統計現象だけで決まるとすれば、標準偏差として $\sqrt{2266 + 375} = 51$ (カウント) が得られ、相対標準偏差は 2.7% となる。また、この日のアクティブ分析法による平均計測数は 23289 カウントであり、自然計数は 17828 カウントであった。したがって正味の計測数は $23289 - 17828 - 1891 = 3570$ (カウント) となる。核分裂の統計現象による計数のバラツキを標準偏差で示すと、 $\sqrt{23289 + 17828 + 2266 + 375} = 209$ (カウント) となり、相対標準偏差は 5.9% が得られる。

経過日数と平均計数率、および統計的標準偏差を図示すると図 III.5.2 のようになる。17 個のデータの平均はアクティブ分析法で 22.98 (cps)、パッシブ分析法では 12.79 (cps) であった。

Table III.5.1 再現性実験結果

Sample	^{235}U (g) actual	^{235}U (%) measured	measured actual
3%EUO ₂ -Ash	0.60	0.64 ± 0.07	1.07 ± 0.12
	1.20	1.20 ± 0.07	1.00 ± 0.06
	2.40	2.30 ± 0.10	0.96 ± 0.04
6%EUO ₂ -Ash	1.20	1.16 ± 0.07	0.97 ± 0.06
	2.40	2.33 ± 0.09	0.97 ± 0.04
	4.80	5.06 ± 0.07	1.05 ± 0.04
9%EUO ₂ -Ash	1.80	1.78 ± 0.08	0.99 ± 0.04
	3.60	3.57 ± 0.10	0.99 ± 0.03
	7.20	7.21 ± 0.13	1.00 ± 0.02
12%EUO ₂ -Ash	2.39	2.36 ± 0.08	0.99 ± 0.03
	4.78	4.48 ± 0.11	0.94 ± 0.02
	9.57	9.47 ± 0.14	0.99 ± 0.01

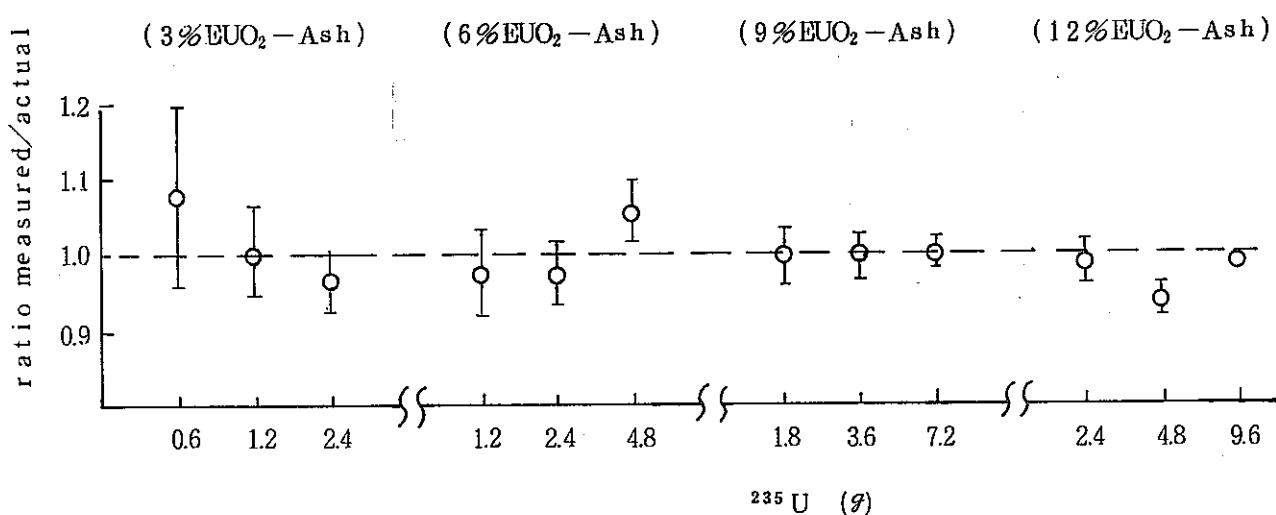


Fig. III.5.1 Ratio of the measured uranium to the actual value for the active mode operation

Table III.5.2 PuO₂ 粉末試料の同位体組成

nuclide	weight (%)	weight (g)
Pu-238	0.1252	0.005
-239	39.2094	1.694
-240	46.7623	2.020
-241	8.6822	0.375
-242	5.2210	0.226
Total		4.32

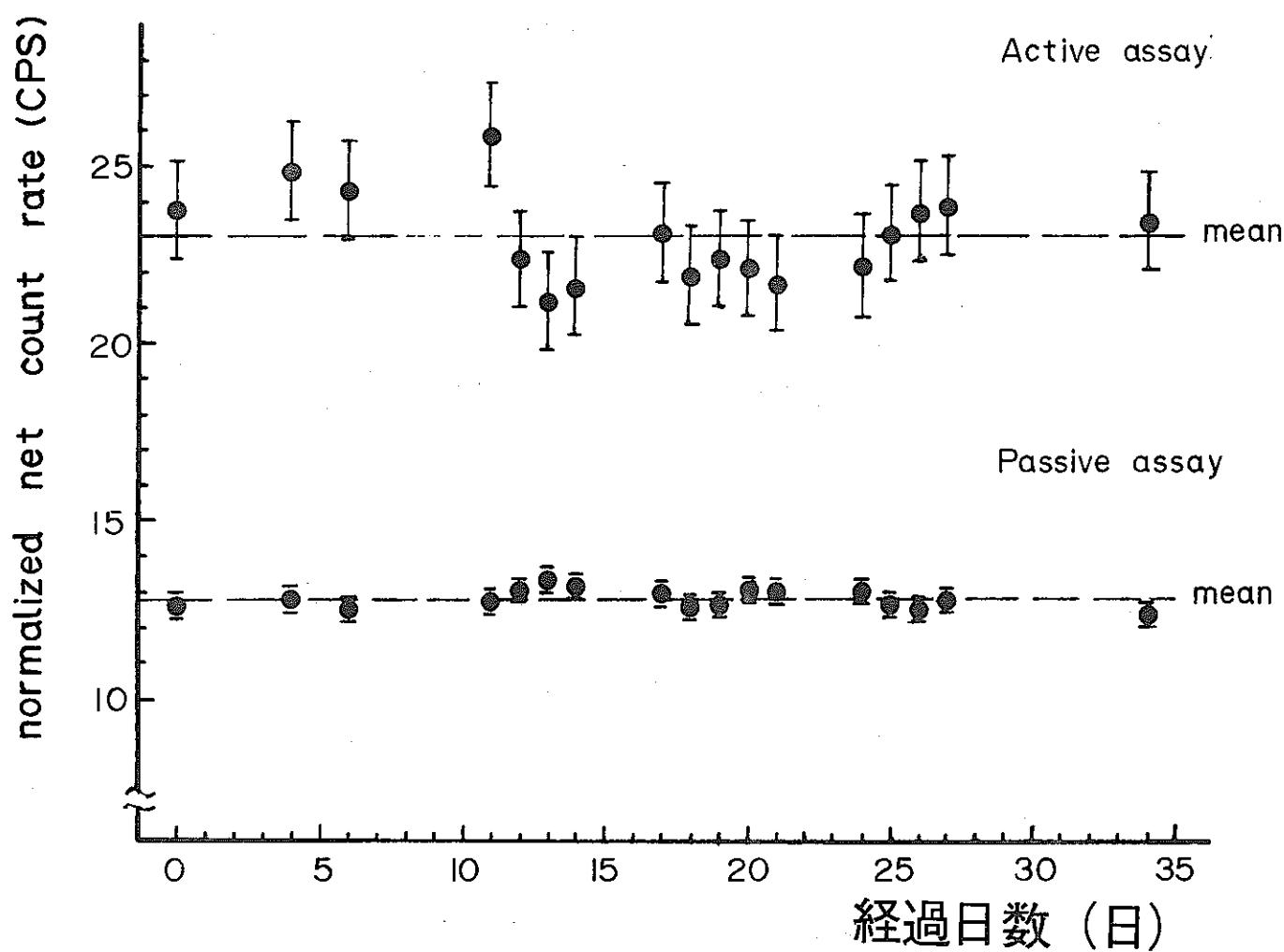


Fig III.5.2 Active and Passive measurements for plutonium

Table III.5.3 プルトニウム試料の再現性実験結果

経過日数(日)	Active Assay	Passive Assay	経過日数(日)	Active Assay	Passive Assay
0	23.72(cps)	12.57(cps)	19	22.39	12.58
4	24.83	12.76	20	22.02	13.05
6	24.32	12.54	21	21.64	13.02
11	25.82	12.71	24	22.12	13.02
12	22.37	13.03	25	23.05	12.63
13	21.16	13.30	26	23.62	12.51
14	21.61	13.14	27	23.80	12.76
17	23.08	12.94	34	23.32	12.35
18	21.85	12.57	平均(cps)	22.98	12.79
			標準偏差(cps)	1.27	0.27
			相対標準偏差(%)	5.5	2.1

IV. 考察

中性子線源として ^{252}Cf を用いると ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu のような核分裂性物質 (fissile material) とともに ^{238}U などの潜在核燃料物質 (fertile material) にも核分裂が誘起される。したがって核分裂性物質だけを分析するには、潜在核燃料物質の核分裂断面積が固有の中性子エネルギー依存性があることをを利用して線源を選ぶか、減速材の使用によって照射中性子エネルギーを変化させる必要がある。また雑多な異質物質が不均一に混合している廃棄物の分析では、異質物質による照射中性子吸収、あるいは減速効果や、フィッショングンマーライン遮蔽効果が一様でないので、対象試料に物理的、化学的に類似した標準試料が必要となりその調製方法や精度が問題となってくる。

V. 結 論

本試験では比較的少量の濃縮ウランやプルトニウムを試料として実験をした結果、濃縮度や同位体組成の類似した核物質や内容のわかつているマトリックスを含む廃棄物を対象とした場合、この装置が適用できることを確認した。最適条件で測定するとその誤差は 50 ‰ の核分裂性物質を含むならば ±0.7% (1σ) であり、10 ‰ 含むならば ±2%，1 ‰ ならば ±10%，0.1 ‰ ならば ±100% である。今後更に他の非破壊分析技術との組み合せから、 ^{235}U , ^{239}Pu などの核種を定量できる手法を確立し、廃棄物中の Pu-U 混合試料に発展させる必要がある。

VI. 参考文献

1. Applications of Californium-252, Proceedings of the American Nuclear Society National Topical Meeting September 11-13, 1972, CONF-720902.
2. G.Robert Keepin et, Nuclear Analysis Research and Development, LA-4994-PR(1972)
3. R.A.Forster, D.B.Smith, H.O.Menlove, Error Analysis of a ^{252}Cf Fuel-Rod-Assay System. LA-5317(1974)
4. Guide for Fabricating and Handling ^{252}Cf Sources. U.S.Atomic Energy Commission, SRO-153 (1971)
5. D.H.Stoddard, H.E.Hootman, ^{252}Cf Shielding Guide, DP-1246(1971)
6. S.Yiftah, D.Okrent, P.A.Moldauer, Fast Reactor Cross Sections, Nuclear Physics, Volume4, 1960.
7. Neutron Cross Sections, Supplement #2, BNL-325
8. 石森富太郎編, 原子炉工学講座 3 = 原子炉物理, 培風館