

# アクティブ中性子法によるTRU 核種測定技術開発

動燃技報 No.80 (1991) 別刷

1991年12月

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒 319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松 4-33

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

技術開発推進部・技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to : Technology Management Section, Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 4-33, Muramatsu, Tokai-Mura, Nakagun, Ibaraki-Ken 319-11, Japan

© 動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation) 1991



技術報告

# アクティブ中性子法による TRU 核種測定技術開発

大内 優 星野 昌人 助川 泰弘\*  
三代 広昭 横山 絃一郎

東海事業所環境施設部  
\*原子力技術㈱

資料番号：80-2

Development of Non-Destructive Measuring Techniques  
for TRU element in Waste by Active Neutron Method.

Masaru Ohuchi Masato Hoshino Yasuhiro Sukegawa  
Hiroaki Miyo Kouichiro Yokoyama  
(Nuclear Waste Treatment Division, Tokai Works.  
\* Nuclear Engineering Corporation)

TRU廃棄物を区分管理するためには、TRU核種を極低濃度領域まで測定できる非破壊測定技術としてアクティブ中性子法が有効とされている。Pu廃棄物処理開発施設では1990年度よりアクティブ中性子測定装置による測定技術の開発実証を行っている。今回はPu線源、模擬廃棄体等を用いて行った。

装置の特性評価および廃棄物マトリックスによる検出感度への影響を評価したので報告する。

## 1. はじめに

TRU廃棄物はMOX燃料加工施設、再処理施設等から種々の廃棄物形態およびTRU濃度のものが発生している。原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会は「放射性廃棄物処理処分方策」(昭和60年10月8日)の中でTRU廃棄物については「含まれる核種、その放射能レベル等を勘案して適切な区分を行い、その区分に応じた合理的な処理処分方法を採用することが重要である。」としている。この区分管理を実施するためには、TRU核種の測定技術開発が重要な課題である。廃棄物中のTRU核種量の測定について破壊分析は作業の繁雑さおよびサンプリング信頼性の点から困難であるため、各種の非破壊測定(NDA: Non Destructive Assay)手法についての研究開発が行われており、なかでもTRU核種を極低濃度領域まで測定できるアクティブ中性子法が有効とされている。東海事業所 環境施設部ブルトニウム廃棄物処理開発施設(以下PWTFという)では平成2年3月にパッシブ・アクティブ中性子測定装置(Passive・Active Neutron System 以下PAN装置という)を設置し、同年4月より、本装置による測定技術の開発実証を進めてきた。これまでに、ブルトニウム線源、模擬廃棄体等を用い装置

の特性評価および廃棄物マトリックスによる検出感度への影響評価を行っており、本報告では、これまでに得られた成果について述べる。

## 2. 試験方法

### 2.1 アクティブ中性子法の測定原理

TRU核種を含む廃棄物に中性子を照射すると、核分裂性TRU核種( $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Pu}$ など)が核分裂して中性子を放出する。この核分裂中性子の発生量はTRUの存在量に比例するのでそれを計測することでTRU核種の存在量が測定できる。核分裂を誘発させるための中性子と、核分裂によって生じた中性子とは中性子照射から核分裂までの時間差と発生中性子のエネルギー差とを利用して区別する。このため、中性子をパルス状に一定間隔で繰り返し照射し、照射中性子が発生していない間に核分裂中性子を計測する。この測定原理はアクティブ即発中性子法として分類されるもので、DDT法(Differential Die-Away Technique)と呼ばれている。測定概念を図1に示す。

### 2.2 PAN装置概要

装置の断面構造と外観をそれぞれ図2および写真

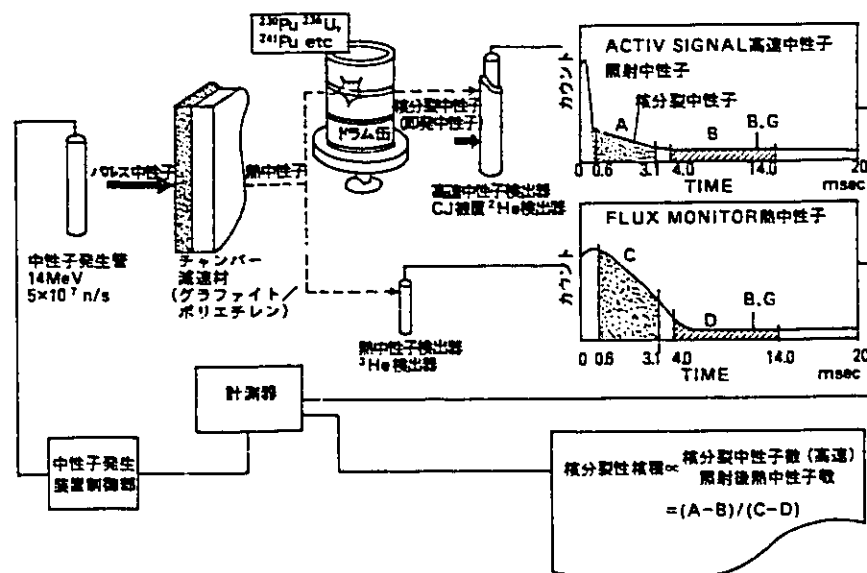


図1 アクティブ即発中性子法測定概念

1 また中性子計測系のブロックフローを図3に示す。本装置は、分析容器、中性子発生装置、中性子検出系データ処理系などから構成され、200ℓドラム缶を1本ずつ分析容器内に収納して廃棄物に含まれているTRU核種濃度を定量する。ドラム缶の出し入れ時は電動で装置扉の開閉が行える構造となっている。

(1) 分析容器

分析容器は被測定物を黒鉛(10cm)とポリエチレン(20cm)の中性子減速体で囲む箱型構造で、TRU核種の分散、偏在による影響を少なくするため、ドラム缶回転機構ならびに中性子被ばくに対する安全性向上の観点から装置扉にはインタロックが設けら

れている。

(2) 中性子発生装置

中性子発生装置は、重水素と三重水素とのD-T反応で生じる中性子をパルス状に繰り返し発生させるもので、中性子発生管と高圧電源、制御装置とから構成される。このうち中性子発生管のみ、分析容器内に設置されている。中性子発生装置としての性能は次のとおりであり、パルス発生条件の多様性や発生管の寿命など、優れた特徴をもっている。なお本中性子発生装置は、PAN装置用として米国ロスアラモス研究所で開発されたもので別名ゼータト

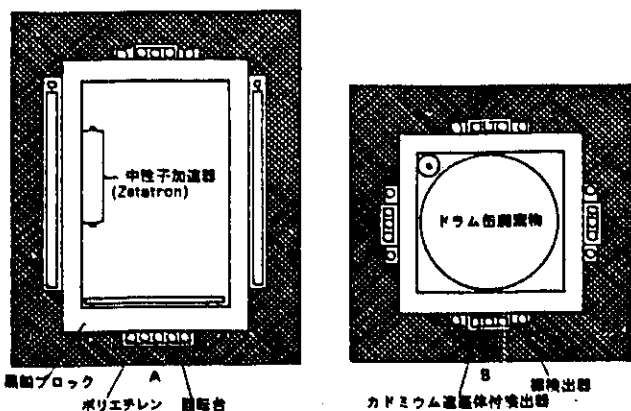


図2 PAN装置の断面構造

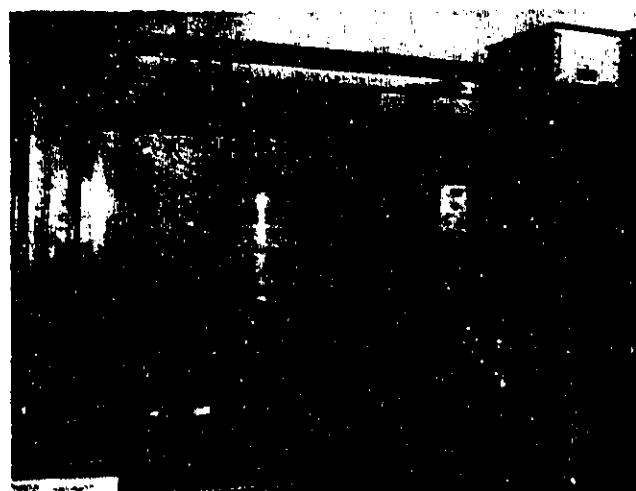


写真1 PAN装置の外観

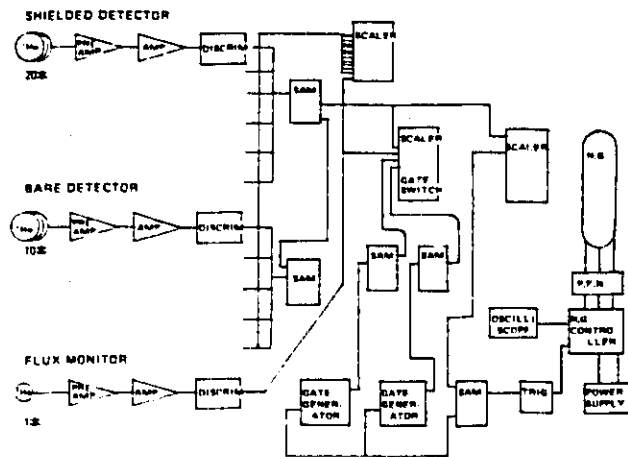


図3 中性子計測系ブロックフロー

ロン(Zetatron)と呼ばれているものである。その構造を図4に示す。

- ・中性子源強度：約  $1 \times 10^6$  n/秒 (14MeV)
- ・パルス時間幅：5 ~ 10  $\mu$ 秒
- ・パルス周波数：50Hz
- ・発生管寿命：約1,000時間

(注) 設計値

(3) 中性子検出系

中性子検出系の検出部は、分析容器内の熱中性子を測定するための<sup>3</sup>He比例計数管(10本)および高速中性子を測定するための、トリウム被覆<sup>3</sup>He比例計数管(20本)ならびに分析容器内の熱中性子束レベル(中性子照射量)をモニタするための<sup>3</sup>He比例計数管(1本)から構成されている。<sup>3</sup>He検出器は分析容器壁(黒鉛+ポリエチレン)中に設置され、プリアンプ、リニアアンプおよびデュアルゲースジェネレーターを経てデータ処理系に接続されている。このように本システムはアクティブ中性子とパッシブ中性子測定が行えるようになっている。さらにパッシブ中性子測定ではすべての中性子( $\alpha, \gamma$ 反応によって放出される中性子と<sup>240</sup>Pu等の自発核分裂によって放出される中性子等)を計測する全中性子法と自発核分裂中性子を選択的に計測する同時計数法が計測システムに組み込まれている。

(4) データ処理系

データ処理系はスケラーとパソコン(NEC 286PC)から構成されている。検出器からの計数は、データ処理系に集められ、演算処理され、TRU核種量としてプリントアウトできる。

2.3 装置特性評価試験

TRU核種測定において基本となる中性子発生強度および分析容器内熱中性子分布ならびにパッシブ

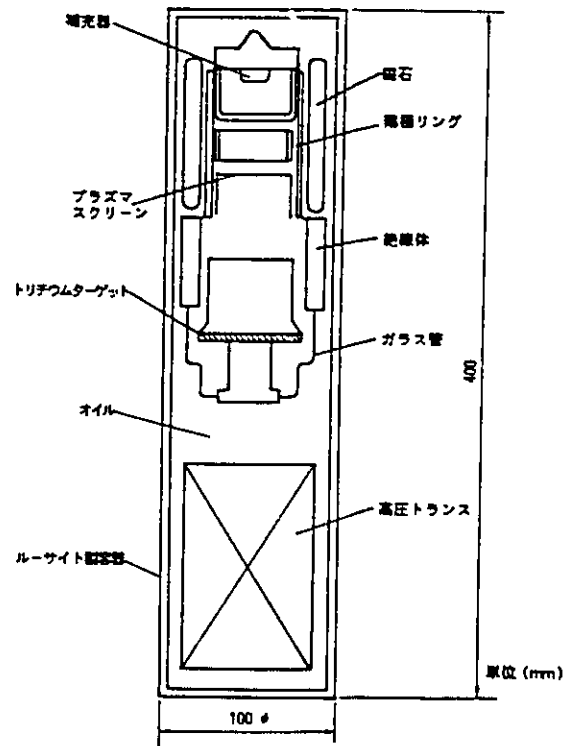


図4 パルス中性子発生装置の加速管構造図

およびアクティブ中性子測定における検出感度分布測定を行った。

(1) 中性子発生強度

中性子発生装置の中性子発生管から発生する高速中性子(14MeV)発生量を銅の安定同位体である<sup>63</sup>Cu(同位体存在比69.2%)を放射化し、<sup>63</sup>Cu(n, 2n)<sup>62</sup>Cu反応で生成する<sup>62</sup>Cuからの消滅 $\gamma$ 線(0.51MeV)をGe $\gamma$ 線波示分析装置で測定し確認した。この反応にはしきい値があり、11.9MeV以上の中性子で起こる。また熱中性子領域で起こる反応の影響を防止するため、銅箔をカドミウム板で被覆し試験を行った。

(2) 分析容器内熱中性子分布

分析容器内の熱中性子束を金の安定元素である<sup>197</sup>Au(存在比100%)を放射化し<sup>197</sup>Au(n,  $\gamma$ )<sup>198</sup>Au反応で生成する<sup>198</sup>Auからの $\gamma$ 線(0.412MeV)をGe $\gamma$ 線波示分析装置で測定し確認した。

(3) 中性子タイムスペクトル

パルス中性子照射後、分析容器内高速中性子および熱中性子の時間変化を各中性子検出器およびフラックスモニタ計数により確認した。なお試験に使用したPu線源形態を図5に示す。

(4) 検出感度分布

PAN装置において、パッシブおよびアクティブ中性子測定を行い、分析容器内の中性子検出感度分布を評価し核種の偏在による影響を把握するととも

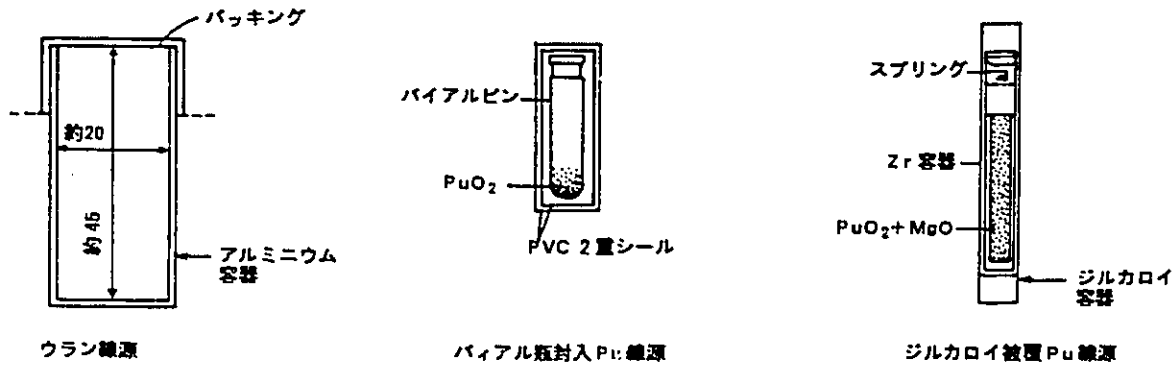


図5

に、廃棄物マトリックス影響評価上の基準とする。測定は空ドラム缶(200ℓ)内に標準Pu線源を配置し、線源を垂直および水平方向に移動して、測定を行い、各位置での計数率を取得する。

(5) 中性子計数と核種量の関係

空ドラム缶中心部にPu線源重量をパラメータとして配置し、バッシブおよびアクティブ中性子測定を行い、各Pu線源の重量に対する中性子計数値を求め、バッシブ測定での計数率と<sup>240</sup>Pu実効質量ならびにアクティブ測定での計数値と<sup>239</sup>Pu実効質量の関係を調べた。

2.4 廃棄物マトリックスの検出感度への影響評価

本試験は廃棄物マトリックス中の中性子吸収材、中性子減速材が検出感度、精度に及ぼす影響を評価した。測定は実機廃棄物を模擬した廃棄体を作製し、廃棄体中心部にPu線源を配置して、バッシブおよびアクティブ中性子測定により中性子計数を求め評価した。試験に用いた模擬廃棄体仕様を表1に、また成分組成を表2に示す。

表1 模擬廃棄体仕様

模擬廃棄物の種類	仕様
200ℓ廃棄物ドラム(空ドラム)	JIS(M)級 1体 JIS(H)級 1体
ポリエチレン廃棄体(発泡ポリエチレン)	27 kg ρ=0.135g/cm <sup>3</sup> 1体
(ポリエチレンチューブ)	46.1kg ρ=0.231g/cm <sup>3</sup> 1体
(ポリエチレンペレット)	110.7kg ρ=0.554g/cm <sup>3</sup> 1体
紙廃棄体(キムタオル)	9 kg ρ=0.045g/cm <sup>3</sup> 1体
(キムタオル+プリンタ用紙のシュレツダ)	26.2kg ρ=0.13 g/cm <sup>3</sup> 1体
(プリンタ用紙)	95.1kg ρ=0.476g/cm <sup>3</sup> 1体
布ウェス(ウェス)	39.8kg ρ=0.199g/cm <sup>3</sup> 1体
金属廃棄体(スチールワール)	28.6kg ρ=0.143g/cm <sup>3</sup> 1体 42.7kg ρ=0.214g/cm <sup>3</sup> 1体 85.8kg ρ=0.429g/cm <sup>3</sup> 1体
塩化ビニール(塩化ビニールチューブ)	59.7kg ρ=0.298g/cm <sup>3</sup> 1体
セメント固化体(普通ポルトランドセメント+川砂)	441.0kg ρ=2.2 g/cm <sup>3</sup> 1体
アスファルト固化体(A-Dコンパウンド)	208.0kg ρ=1.0 g/cm <sup>3</sup> 1体
人工鉱物(マイクロ波固化体)	約41.4kg/1本 8本詰 1体 総重量 331.4kg
金属屑塊	110.0kg 1体
紙(プリンタ用紙シュレツダ)	8.73kg ρ=0.044 g/cm <sup>3</sup> 1体 1.8 kg ρ=0.009 g/cm <sup>3</sup> 5.4 kg ρ=0.027 g/cm <sup>3</sup> 10.8 kg ρ=0.054 g/cm <sup>3</sup> 21.6 kg ρ=0.108 g/cm <sup>3</sup> 43.2 kg ρ=0.216 g/cm <sup>3</sup>
含有塩化ビニールシート断片物	

表2 模擬廃棄体 成分表

試料	成分(%)	H	C	N	Cl	S	O	Ca	Mg	Mn	P	Fe	Ni	Co	Zn	Mg	Di	Ti	Al	H <sub>2</sub> O 水分	灰分	その他
Al				79.51			23.01															Al 0.92 Ca 0.93
プリンタ用紙	8.2	40.1	<0.1	<0.1	<0.1	46.0														1.7	6.0	
キムタオル	6.1	42.1	0.2	<0.1	<0.1	46.5														1.9	1.2	
布	6.8	42.4	<0.1	<0.1	<0.1	49.7														1.2	0.3	
発泡ポリエチレン	11.0	85.3	0.7	<0.1	<0.1	0.3														0.5	14.2	
ポリエチレンチューブ	15.2	84.4	<0.1	<0.1	<0.1															<0.1	<0.1	
ポリエチレンペレット	14.44	85.54																				0.01
スチールワール		0.18				0.016		0.03	0.96	0.022	0.01	0.01	0.07	0.702								
塩化ビニール	7.0	56.0		12.0																0.2	0.1	
セメント						40.70	12.10	26.63	0.06		<0.01	<0.05	<0.05	2.90	0.72	<0.05	0.25	3.25	3.88	0.10	0.90	0.7
アスファルト	11.2	81.6	0.4	<0.1	3.0															<0.1		
人工鉱物 (マイクロ波固化体)						66.49	2.06	23.01							3.64	19.1			0.1			
金属屑塊		0.072				0.032		0.9	7.8	0.048		0.1	17.1	71.95								
ビートケース	8.58	82.2	1.08			41.0														11.2	1.8	Al 0.07 Ni 0.03
ドラム缶内蔵廃棄体 人工鉱物	0.032	0.277		0.19		29.59	1.3	19.53	0.07			3.34	6.35	24.98	12.18							
塩化ビニール	7.0	49.8		32.0																		

表3 銅箔の放射化データ

No	条件	銅箔重量 (W:g)	照射時間 (T:sec)	照射終了より測定開始までの時間 (T <sub>1</sub> :sec)	照射終了より測定終了までの時間 (T <sub>2</sub> :sec)	0.511MeV のNet count (600sec)	中性子発生量 (n/sec)
1	Cd板 No1	1.13	200	280	880	1024.4	$7.7 \times 10^4$
2	Cd板 No2	1.20	200	280	880	474.7	$3.4 \times 10^4$
3	Cd板 No2	1.12	200	280	880	323.9	$2.5 \times 10^4$
4	Cd板 No2	1.10	200	280	880	927.3	$7.2 \times 10^4$

3. 試験結果

3.1 装置特性評価試験

(1) 中性子発生強度

中性子発生装置の中性子発生管から発生する高速中性子強度は発生管ターゲット部において最大 $7.7 \times 10^5$  n/秒であった。この値は発生装置の仕様を満足するものである。放射化分析による測定データを表3に示す。

(2) 分析容器内熱中性子分布

分析容器内各部(上、下、および中心部)の熱中性子束は、中心部において最も高く $2.2 \times 10^3$  (n/sec (cm<sup>2</sup>))であった。この値は発生する高速中性子数に比べ低く、高速中性子数に対する熱中性子数は $2.9 \times 10^{-4}$ であった。また空ドラム缶内熱中性子束分布は、中心部を基準とした場合、上部で約10%、下部で約20%低い値となった。しかし、ドラム缶全体の変動幅は±12%以下である。なお分析容器減速系での高速中性子の熱化率は約 $1/10^3$ であった。放射化分析により求めたドラム缶内熱中性子束分布を図6に示す。

(3) 中性子タイムスペクトル

パルス中性子照射後、分析容器内照射中性子は約0.45m秒で消滅し、その後熱中性子が現われるが約8m秒で消滅する。一方核分裂による即発中性子は、中性子照射後約3m秒間、そして熱中性子は約12m秒間分析容器内に存在した後、消滅して行くことが、各中性子検出器の計数信号の観測により明らかとなった。実際の各検出器からの中性子計数信号の時間変化を写真2に、またこれを概念的に図示したものを図7に示す。

(4) 検出感度分布

アクティブ中性子測定によって求めた装置の検出感度分布を図8に、またパッシブ中性子測定における全中性子法および同時計数法での検出感度分布を

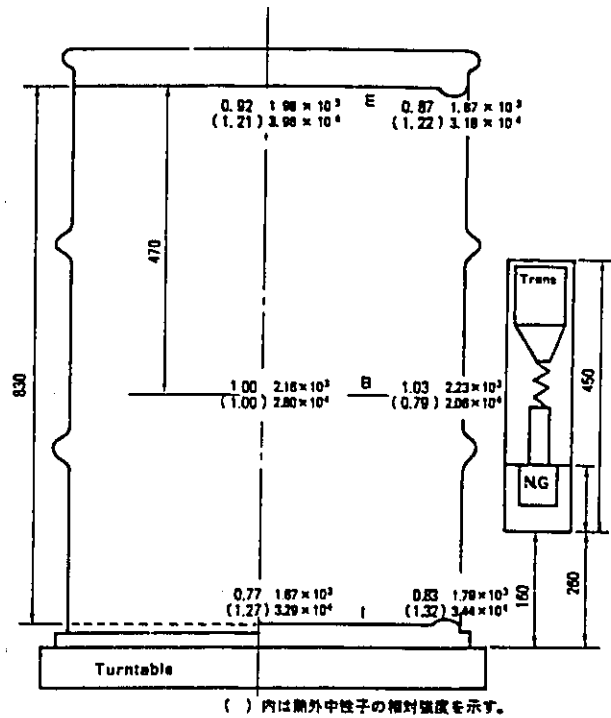


図6 ドラム缶内熱中性子束の相対強度分布

図9,10に示す。なおCd被覆検出器(高速中性子対象)での全中性子法による検出感度分布を図11に示す。

① アクティブ中性子法

図8よりドラム缶中心部に標準Pu線波を置いて測定したときの中性子係数を基準に、各線源位置での計数比を求め相対感度を比較してみるとドラム缶上部で2~12%、下部で13~22%低くなっている。これは熱中性子束の偏在によるものである。しかし、ドラム缶全体としての変動幅は約±11%である。なおこのデータは熱中性子束分布(図6)データと同じ傾向を示すものであった。

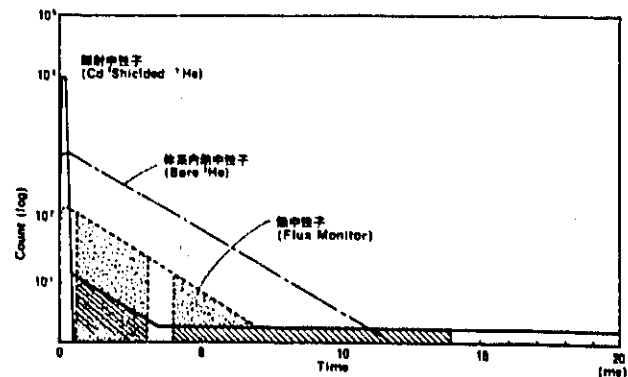
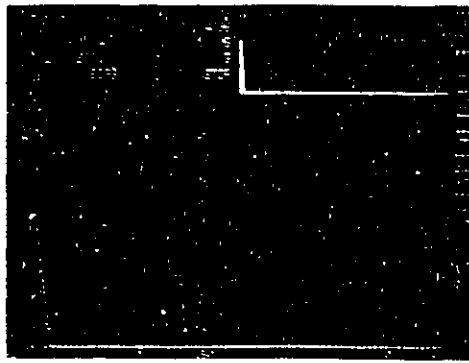
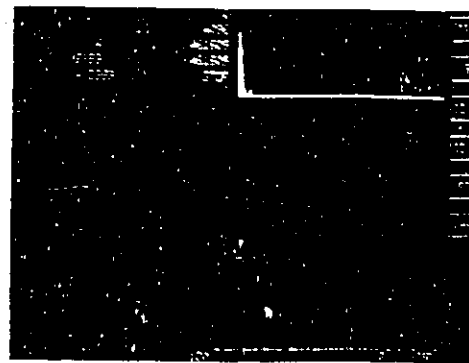


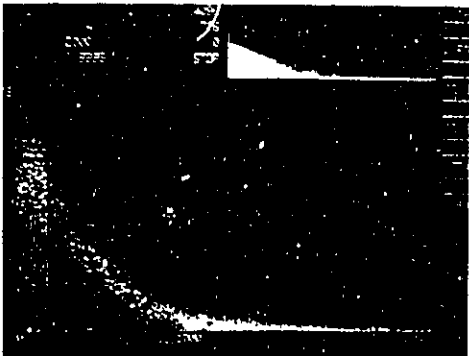
図7 中性子タイムスペクトル概念図



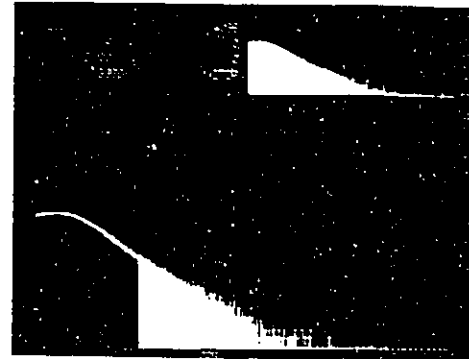
Cd被覆検出器信号 (拡大: 2047ch)



Cd被覆検出器信号 (拡大: 255ch)



フラックスモニタ信号 (拡大: 2047ch)



裸検出器信号 (4095ch)

写真2 各検出器信号のタイムスペクトル (デュアルタイム  $4\mu s$ )

② パッシブ中性子法

図9、10でドラム缶中心部の中性子計数を基準

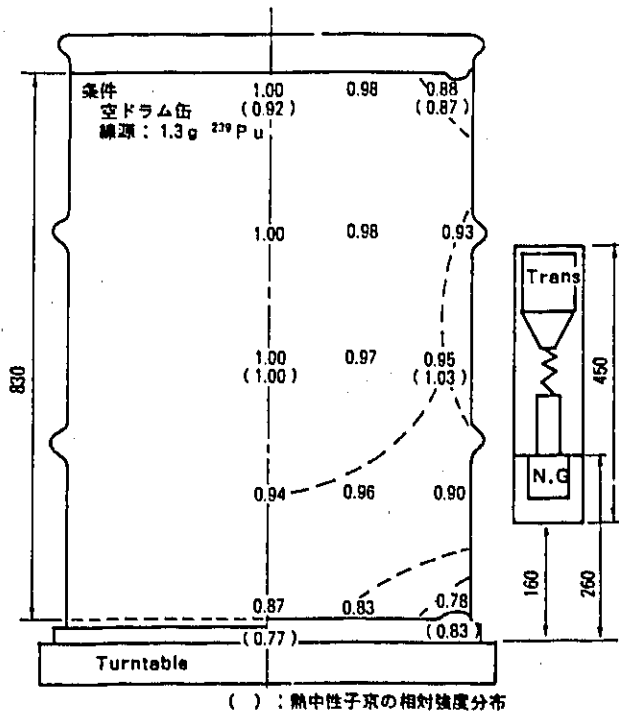


図8 アクティブ中性子法での検出感度分布 (Cd被覆検出器による即発中性子計数の相対比)

とし、円周および高さ方向の各位置における計数比から核種が偏在した場合の検出感度への影響を推定すると全中性子法で $\pm 5\%$ 、同時中性子法で $\pm 10\%$ となる。全中性子法と同時計数法の影響度の違いは、同時計数法の場合、測定システム上常に2個以上の中性子が、ある時間内(ゲート幅)に検出できなければならず、測定体系が2個以上の中性子を検出する確率およびゲート幅内に中性子が入射する確率が存在するためである。すなわち線源と検出器の距離が変わることによって中性子の減速、拡散が生じ、2個以上の中性子があるゲート幅に入る割合が変化するためと考えられる。なおCd被覆検出器での全中性子法による核種偏在による影響は $\pm 5\%$ であった。

(5) 中性子計数と核種量の関係

アクティブ中性子測定における中性子計数(正味即発中性子数/正味フラックスモニタ計数)比と $^{239}\text{Pu}$  (eff) [ $^{239}\text{Pu}(\text{eff}) = ^{239}\text{Pu}$ 実効質量] 量との関係を図12に、 $^{235}\text{U}$ 量との関係を図12に示す。またパッシブ同時計数法における中性子計数と $^{240}\text{Pu}$  (eff) [ $^{240}\text{Pu}(\text{eff}) = ^{240}\text{Pu}$ 実効質量] の関係を図13に示す。

① バイアル瓶封入Pu線源を用いた場合、アクティブ中性子計数と $^{239}\text{Pu}$  (eff)量との間には直線



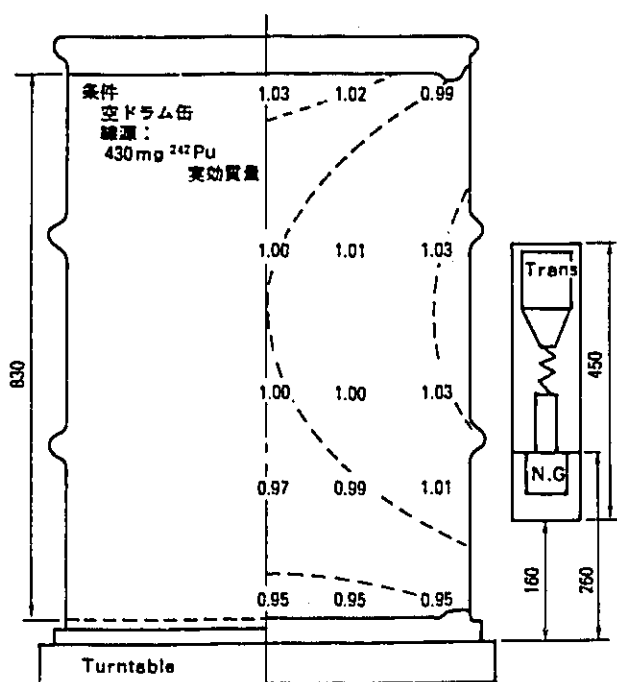


図9 パッシブ全中性子法での検出感度分布 (Cd被覆検出器と裸検出器の全中性子計数の相対比)

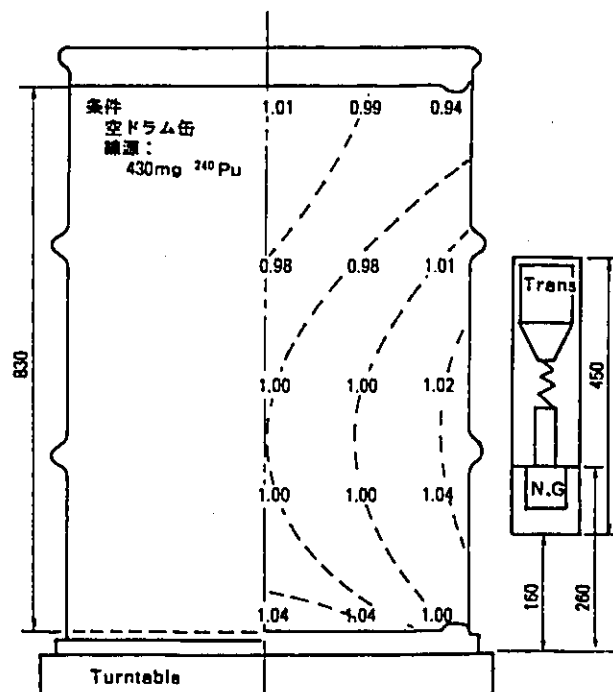


図11 Cd被覆検出器によるパッシブ全中性子法での検出感度分布(自発核分裂中性子による計数(高速中性子)の相対比)

性はなく、 $^{239}\text{Pu}$  (eff)量が増加するにつれて中性子計数は飽和する傾向がみられた。これはPu線源の自己吸収効果によるものである。すなわち、熱中性

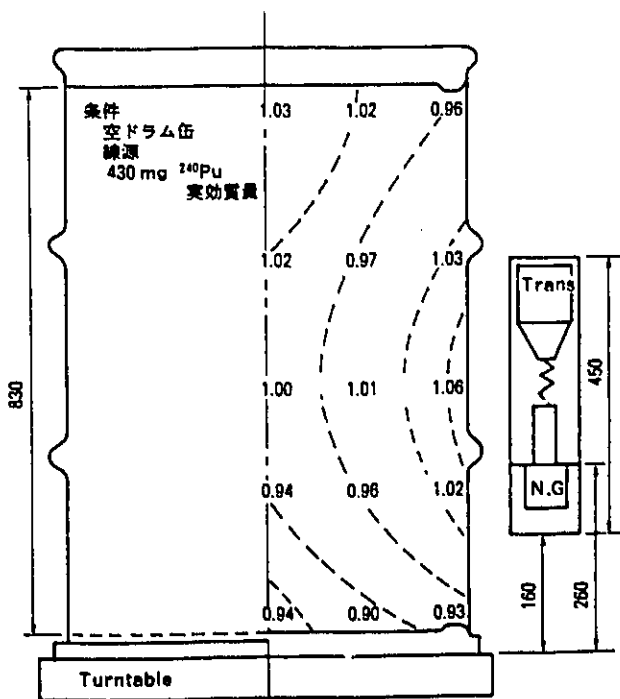


図10 パッシブ同時計数法での検出感度分布 (Cd被覆検出器と裸検出器の同時計数の相対比)

$\rho$ とPu線源の核反応は線源表面でのみ起こっているものと考えられる。このことは線源重量とその表面積の関係からも裏付けができる(図12)。したがって廃棄物中にPuが塊状で存在する場合、このPu自身のもつ自己吸収の影響を補正することが重要となる。

② 次にジルカロイ被覆Pu線源を使用した場合、 $^{239}\text{Pu}$  (eff)量に対するアクティブ中性子計数は、 $^{239}\text{Pu}$  (eff)量が約300mg付近まで直線性が得られるが、これを超えると徐々に自己吸収による影響がみられる(図12)。これはジルカロイ被覆

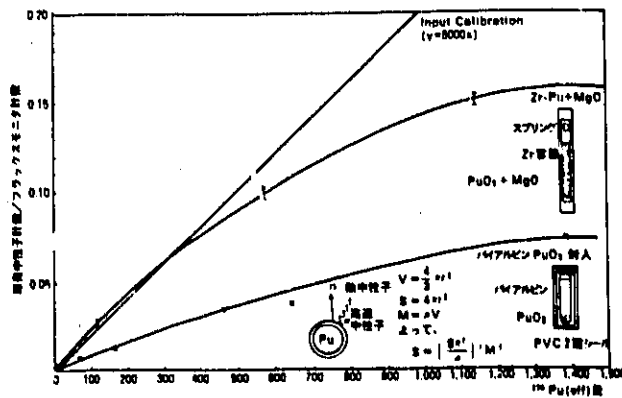


図12 アクティブ中性子計数と $^{239}\text{Pu}$  (eff)量の相関

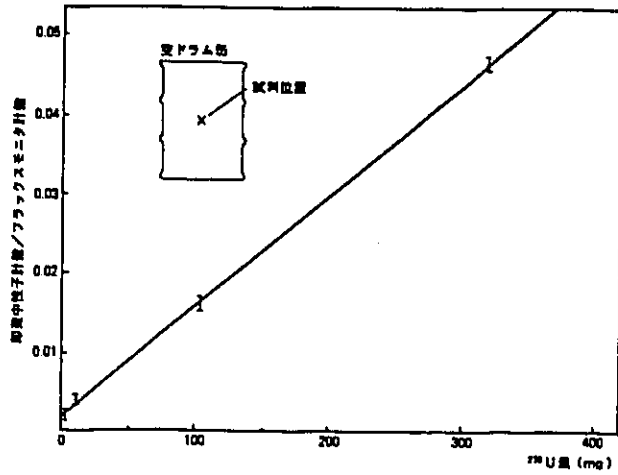


図13 アクティブ中性子計数と<sup>235</sup>U量の相関

Pu線源の内容積が一定となっており、酸化プルトニウム(PuO<sub>2</sub>)に対する間隙材(MgO)の比がPuO<sub>2</sub>量がふえると相対的に小さくなり、自己吸収の影響が出るためである。なお自己吸収の影響が顕著に現われる<sup>239</sup>Pu (eff)の高密度は約0.15g/cm<sup>3</sup>と計算された。

③ 一方、<sup>235</sup>U量とアクティブ中性子計数との間には、直線性が得られており、ウラン線源による自己吸収の影響は認められなかった。これはウラン線源中の<sup>235</sup>U量は<sup>238</sup>Uに比べて極めて少なく、かつ<sup>238</sup>Uがジルカロイ被覆Pu線源に使用した間隙材(MgO)の効果を果たしたためと考えられる。(図13)

④ パッシブ同時計数法における、中性子計数率と<sup>240</sup>Pu (eff)量には直線性がある。これは自発核分裂性核種から放出される中性子は1~5 MeVのエネルギーをもった高速中性子で、熱中性子のようにPuによる自己吸収が少ないためと考えられる。(図14)

3.2 廃棄物マトリックスの検出感度への影響評価

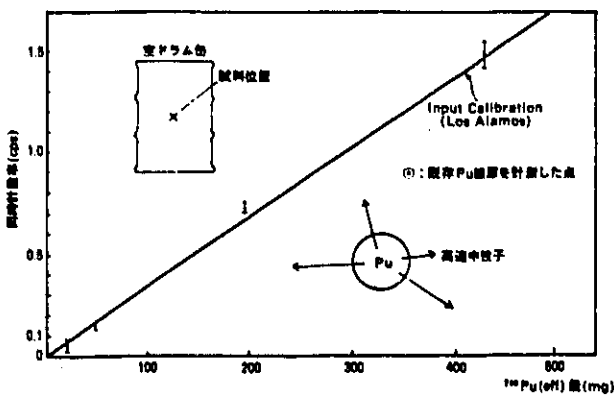


図14 パッシブ計測における計数と<sup>240</sup>Pu (eff)量の関係

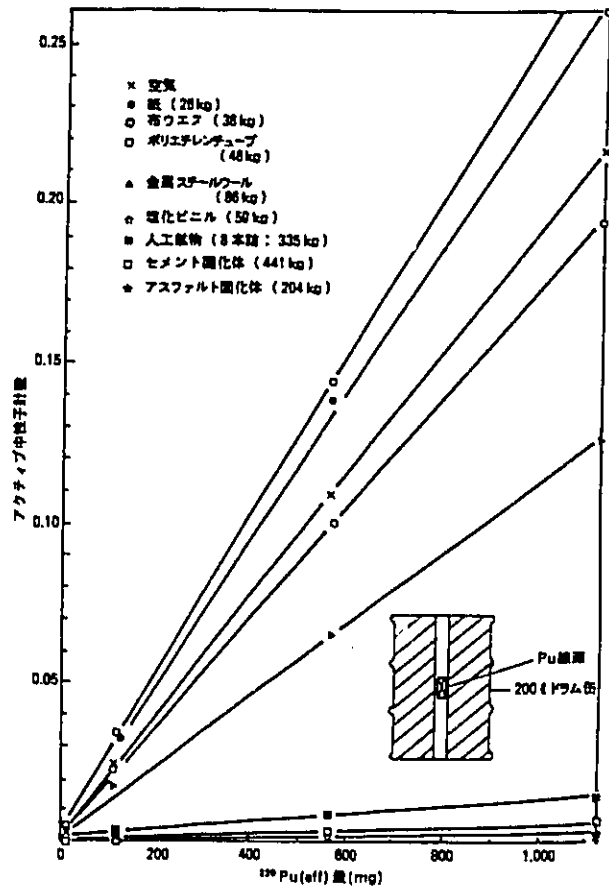


図15 <sup>239</sup>Pu (eff)量に対する中性子計数

(1) アクティブ中性子測定法

各廃棄物マトリックスの<sup>239</sup>Pu (eff)量に対するアクティブ中性子計数の関係を図15に、また廃棄物マトリックスが紙の場合、その検出限界値を推定し、求めたものを図16に示す。ここで図中のアクティブ中性子計数は以下の通り定義した。

$$\text{アクティブ中性子計数} = \left( \frac{\text{正味即発中性子計数}}{\text{正味フラックスモニタ計数}} \right) - \text{Zero Mass}$$

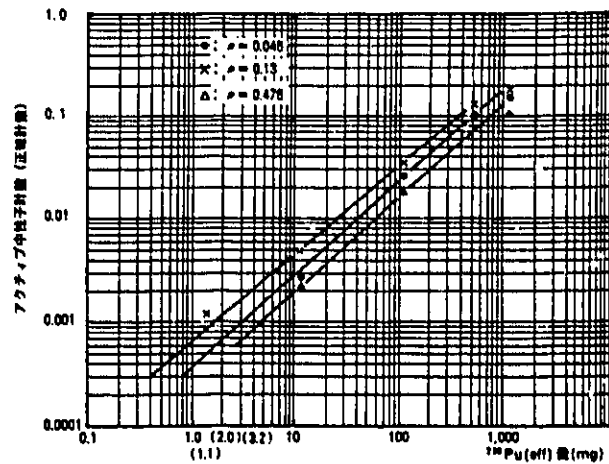


図16 紙マトリックス中での<sup>239</sup>Pu (eff)検出限界値(推定)

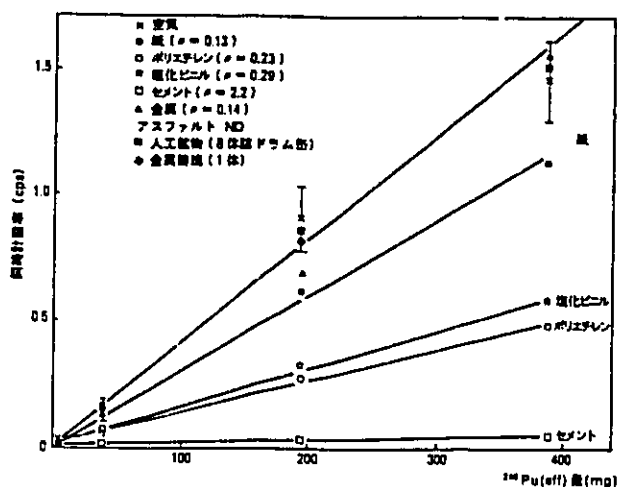


図17 各廃棄物マトリックスでの<sup>240</sup>Pu(eff)量に対する同時計数率

ただし、Zero Massとは、測定対象マトリックス内に核種が存在しない場合の正味フラックスモニタ計数に対する正味即発中性子計数の割合である。

図15より、紙および布マトリックスの場合、空ドラム缶より、高いアクティブ中性子計数を示し、人工鉱物、セメント固化体、塩化ビニール、アスファルト固化体、金属鋳塊では、空ドラム缶の中性子計数に比べ10%以下となっている。さらにアスファルト固化体では<sup>239</sup>Pu(eff)量に対する有意な中性子計数が得られなかった。また紙マトリックス廃棄体について検出限界値を求めると嵩密度0.13g/cm<sup>3</sup>の場合で約1 mg<sup>239</sup>Pu(eff)となった。

(2) バッシュ中性子測定法

各廃棄物マトリックスの<sup>240</sup>Pu(eff)量に対するバッシュ同時中性子計数の関係を図17に、また廃棄物マトリックスが紙の場合、その検出限界値を推定し求めたものを図18に示す。図17より金属、人工鉱物、金属鋳塊では空ドラム缶と同等の中性子同時計数となっている。また、塩化ビニール、ポリエチレンマトリックスでは、空ドラム缶の中性子計数率に比べ50%以下になり、さらにセメント固化体においては5%以下、アスファルトに至っては約0.1%となっている。紙マトリックス廃棄体について検出限界値を求めると嵩密度0.13g/cm<sup>3</sup>の場合で約5.5 mg<sup>240</sup>Pu(eff)となった。

4. 評価検討

4.1 アクティブ中性子測定法

(1) 廃棄物マトリックスによる影響について

廃棄物マトリックス嵩密度に対する中性子計数値(即発中性子計数/フラックスモニタ計数)の関係を図19に、各廃棄物マトリックスでの分析容器内熱

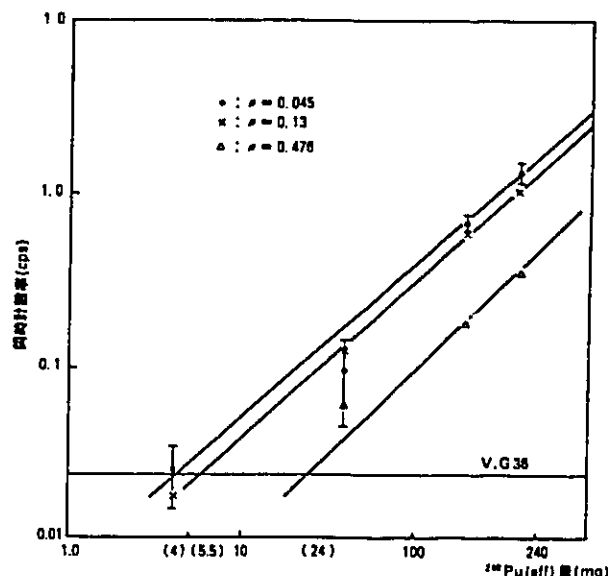


図18 紙マトリックス中での<sup>240</sup>Pu(eff)検出限界値(推定)

中性子フラックスモニタ計数の関係を図20に示す。図19より空気マトリックスに対する相対感度は嵩密度0.1~0.4g/cm<sup>3</sup>の紙布ポリエチレンにおいて1.0を超え、0.2g/cm<sup>3</sup>付近において最大ピークを示している。これは分析容器内に測定対象廃棄物が置かれた時、照射中性子の分析容器および廃棄物マトリックスによる熱化率が最大となる条件設定を意図した減速材等の設計を行っていることが確認された。

ポリエチレンマトリックスでは、嵩密度0.2g/cm<sup>3</sup>付近までは空気マトリックスよりよい感度を示すが、これを超えると相対的に感度も落ち、約0.5g/cm<sup>3</sup>以上では、相対感度が0.1を下廻るようになっている。これは、ポリエチレン自身低密度領域では減速材として作用し、ある密度以上になると中性子消滅作用をもつことによるものと考えられる。一方、

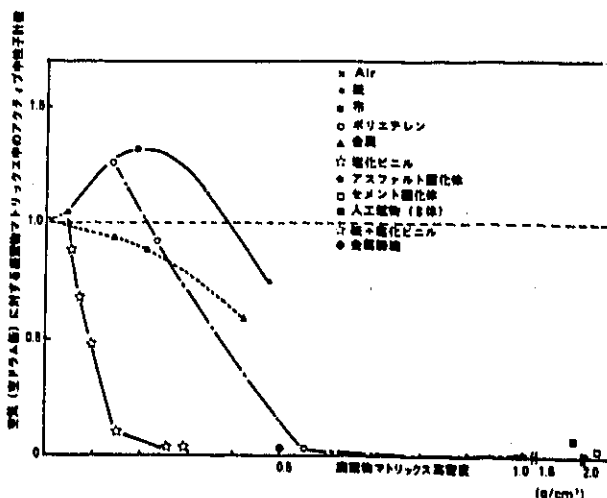


図19 廃棄物マトリックス嵩密度に対する(即発中性子計数値/フラックスモニタ)計数値との関係

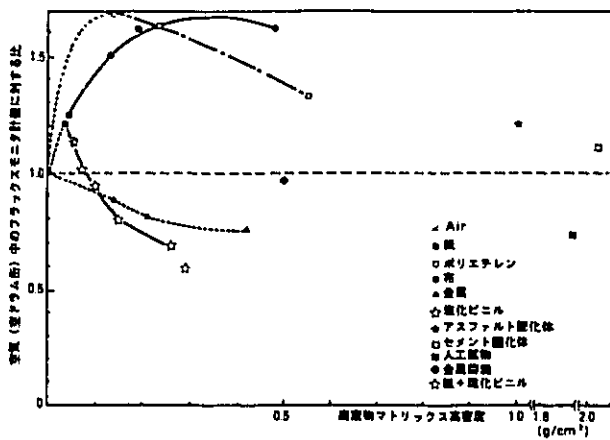


図20 各廃棄物マトリックス嵩密度変化に対応した熱中性子束(フラックスモニタ計数)の変化

金属および塩化ビニールと紙の混合マトリックス廃棄体では熱中性子吸収断面積が比較的大きい鉄、塩素に起因する熱中性子吸収傾向が認められた。各廃棄物マトリックスの分析容器内フラックスモニタ計数の変化(図20)から、各マトリックスによる中性子減速および吸収傾向が評価できる。すなわち、空気中のフラックスモニタ計数に対する相対比が1.0を超えているマトリックスについては、中性子減速成分を含み、1.0を下廻っているマトリックスでは吸収成分が含まれていることが判別できる。なおここで空気マトリックスを基準としたフラックスモニタ計数比とアクティブ中性子計数比が異なった傾向を示しているが、これは分析容器内と廃棄物マトリックス中の熱中性子束が違っているためである。

(2) 廃棄物マトリックス中の影響因子

中性子減速成分として水素に、また吸収成分として塩素に着目し、アクティブ中性子計数と廃棄物マ

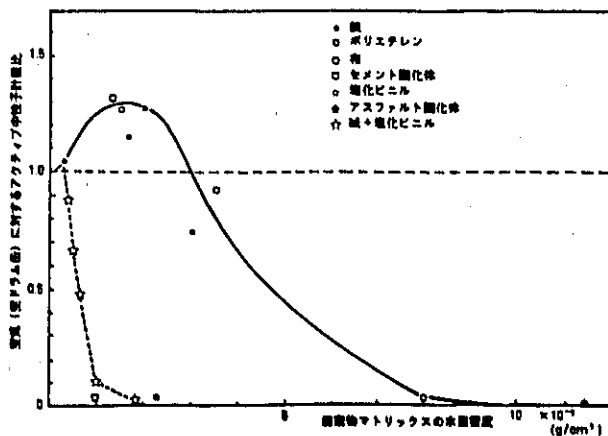


図21 廃棄物マトリックス中の水素密度に対するアクティブ中性子計数との関係

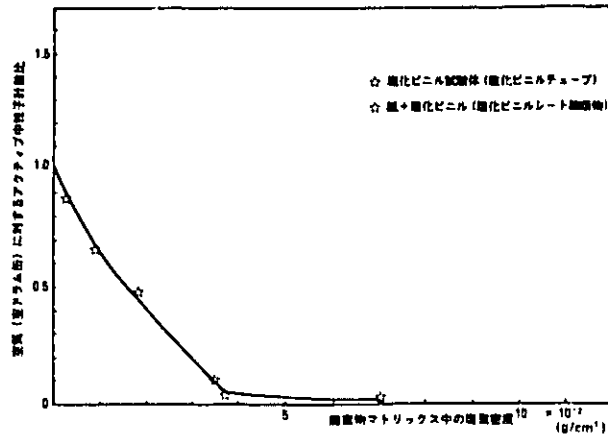


図22 廃棄物マトリックス中の塩素密度に対するアクティブ中性子計数との関係

トリックス中の水素密度および塩素密度との関係をそれぞれ図21、22に示す。廃棄物マトリックス中の水素密度に対するアクティブ中性子計数との関係から紙、布、ポリエチレン、アスファルト廃棄体については、同一線上にフィッティングされた。これはアクティブ中性子計数が廃棄物マトリックス中の水素密度に依存することを示すものである。一方、中性子減速材と吸収材が混在する場合、中性子減速材を含むマトリックスから分岐しその割合によってアクティブ中性子計数が変化する。

塩素密度に対するアクティブ中性子計数との関係より、塩化ビニール廃棄体および紙と塩化ビニールの混合体とも同一線上にフィッティングされることから、中性子吸収材が含まれる場合、その吸収材成分の量にアクティブ中性子計数が依存することがわかる。また吸収材については、その成分の中性子吸収断面積に依存してその影響度が変わる。

4.2 バッシブ中性子測定法

(1) 廃棄物マトリックスによる影響について

バッシブ同時中性子計数法による廃棄物マトリックス嵩密度に対する同時中性子計数との関係を図23に廃棄物マトリックス中の水素密度に対する同時中性子計数の関係を図24に示す。

バッシブ中性子測定では、自発核分裂からの高速中性子を分析容器の減速材で熱化し計測するため図25のように中性子吸収材を含むマトリックスについては空気中の減速と同じかまたはそれ以上の値となる。

廃棄物マトリックスの水素密度に対するバッシブ同時中性子計数との関係から、それら減速・消滅は水素密度に依存していることがわかる。また塩化ビニールおよび紙と塩化ビニール混合廃棄体において

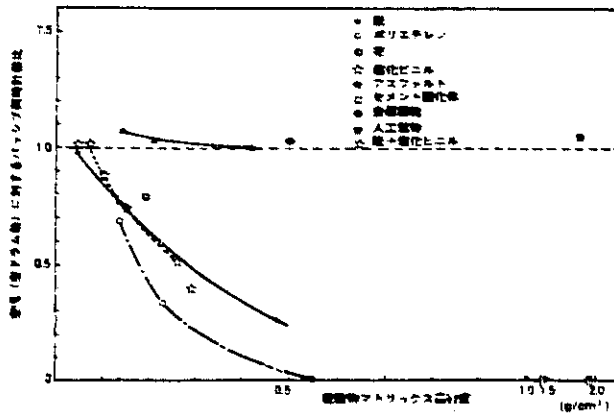


図23 廃棄物マトリックス高密度に対するパッシブ同時計数との関係

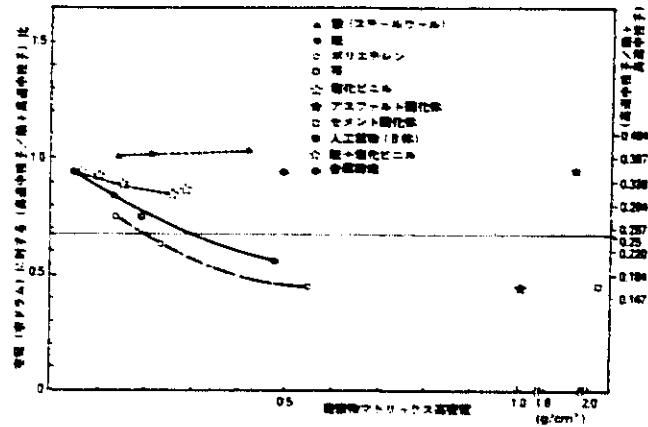


図25 各廃棄物マトリックス高密度による中性子の減速割合

も同様に水素密度に依存していることから、パッシブ中性子測定では吸収材による影響は小さくマトリックス中の減速材密度に依存していることがわかる。

(2) 廃棄物マトリックスによる減速

パッシブ中性子測定による「Cd被覆検出器計数率/全検出器計数」の空気マトリックスとの相対比と廃棄物マトリックス高密度との関係を図25に示す。ここで「Cd被覆検出器計数/全検出器計数」の比はマトリックスによる中性子の減速割合(熱化率)を示している。すなわちCd被覆検出器計数は高速中性子だけを計測したものであり、全検出器計数はCd被覆検出器計数とCd被覆のない検出器計数(熱中性子計数)との総和であり、全中性子数に対する高速中性子の比率を示している。

図25より金属マトリックス廃棄体は減速効果がなく、さらに人工鉱物、金属鋳塊についても中性子に対する減速能力はないといえる。図25と図19の廃棄

物マトリックス高密度とアクティブ中性子計数の関係からアクティブ中性子測定における空気マトリックスとの相対比1.0のしきい値は「高速中性子/熱中性子+高速中性子」比約0.25である。これより、パッシブ中性子計数を用い「高速中性子/熱中性子+高速中性子」比を空気での値と比較することにより、パッシブおよびアクティブ中性子測定での廃棄物マトリックスによる減速の影響を補正することは可能となる。

5. まとめ

PAN装置によるPu線源および模擬廃棄体等を用いた測定試験を行い、装置特性および廃棄物マトリックスによる検出感度、精度への影響を評価し廃棄物中のTRU核種測定法としての適用性の評価を行った。その結果以下のことを確認した。また、廃棄物マトリックスによる影響の評価結果を表4にまとめた。

(1) アクティブ中性子測定での分析容器内に配置したドラム缶(空気マトリックス)の検出感度は熱中性子束分布に依存し、その変動幅は約±11%である。

(2) パッシブ中性子測定での分析容器内に配置したドラム缶(空気マトリックス)の検出感度の変動幅は同時中性子計数法で約±10%、全中性子法で約±5%である。

(3) Pu等TRU核種が塊状で廃棄物中に存在する場合、熱中性子吸収が大きく、核種の定量に影響を与える。

(4) アクティブ中性子測定では、廃棄物マトリックス中の中性子吸収材、減速材の量によって検出感度、精度に及ぼす影響は大きい。

(5) パッシブ中性子測定では、廃棄物マトリックス

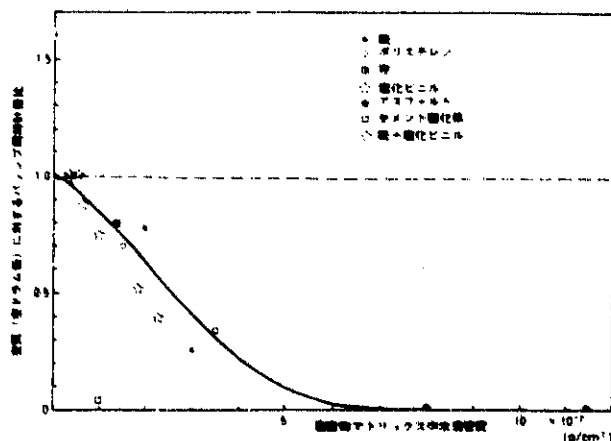


図24 廃棄物マトリックス中の水素密度に対するパッシブ同時計数との関係

表4 廃棄物マトリックスによる影響評価

$\rho$ : 高密度 (g/cm<sup>3</sup>)

マトリックス	空気 (空ドラム缶)	紙 ( $\rho=0.13$ )	布 ( $\rho=0.2$ )	ポリエチレン ( $\rho=0.23$ )	金属 ( $\rho=0.21$ )	塩化ビニール ( $\rho=0.298$ )	紙( $\rho=0.644$ ) -塩化ビニール ( $\rho=0.054$ )	セメント固体化 ( $\rho=2.2$ )	アスファルト固体化 ( $\rho=1.02$ )	人工石綿混入 ( $\rho=1.68$ )	金属鋼塊 (100kg/ 200g $\pm$ 0.5)
減速効果 [高速中性子 +低-高速中性子]	基準 (1.0)	中 (0.84)	中 (0.75)	中 (0.62)	- (1.02)	中 (0.87)	小 (0.92)	大 (0.46)	大 (0.45)	小 (0.90)	小 (0.92)
吸収効果 [監視的断面限 beam/200#]	基準 (0.03)	小 (0.56)	小 (0.87)	中 (2.34)	中 (2.03)	大 (8.27)	中 (3.76)	大 (2.74)	大 (7.88)	大 (7.65)	大 (5.36)
アクティブ計測 検出限界値 239Pu(eff)B.G36	$\approx 6$ mg	1	4	3	8	300	40	180	5g前後	70	500
パッシブ計測 検出限界値 240Pu(eff)B.G36	$\approx 3.5$ mg	5.5	6	8	4.5	14	6	160	評価不能	8	5.5

ス中の中性子減速材の量による影響は大きい、吸収材の含有量には影響されない。ただし減速材と吸収材が混在する場合、その割合により中性子吸収の影響があると考えられる。

(6) アスファルト廃棄体における空気中との相対感度はアクティブ中性子測定で約0.3%、パッシブ中性子測定で約0.1%である。したがって、アスファルト廃棄体中の低濃度Pu量等を測定評価することは現状では難しい。

(7) 廃棄物マトリックスの判別および影響補正には、アクティブ中性子測定での分析容器内フラックスモニタ計数およびパッシブ中性子測定での「高速中性子/熱中性子+高速中性子」比と各測定でのマトリックスによる影響度を併用することで可能となる。

以上の通りPAN装置の特性評価ならびに廃棄物

マトリックスによる検出感度等への影響について確認したが、今後は核種偏在、マトリックスの混在および廃棄物の不均質性等による影響をさらに実廃棄物に近い条件で評価し確認する。またマトリックス中の減速材、吸収材廃棄物組成等をパラメータとして計算コードによるマトリックスの影響を評価し現象を理論的に解明し、これらの影響を適切に補正し高感度、高精度で測定しうる測定評価システムにして行く予定である。

#### 参考文献

- 1) The Los Alamos Second-Generation System for Passive and Active Neutron Assays of Drum-Size Containers. LA-10774-MSUC-15, 1986, 9
- 2) アクティブ中性子法によるTRU核種測定技術開発(1) TN8410 91-156
- 3) 廃棄物中のTRU核種測定技術に係る研究 共同研究報告書 PNC ZY 1216 91-002