

原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブ  
若手原子力研究プログラム 事後評価総合所見

研究開発課題名：PGA を用いた次世代高燃焼度燃料用エルビウム濃度測定法の研究	
研究代表者（研究機関名）：高松輝久（株式会社原子力エンジニアリング） 再委託先研究責任者（研究機関名）：佐野忠史（国立大学法人京都大学）	
研究期間及び予算額：平成21年度～平成22年度（2年計画） 19 百万円	
項目	要 約
1. 研究開発の概要	<ul style="list-style-type: none"> <li>次世代の革新的原子力技術として提案されているエルビウム入り高燃焼度燃料の製造に必要な高精度非破壊エルビウム濃度測定装置の実現を目指し、燃料製造現場で使用できる放射性同位体などの小型中性子源を用いた、中性子即発ガンマ線分析(PGA)法によるエルビウム濃度測定手法を開発することを目的とする。</li> </ul>
2. 総合評価	<div style="display: flex; align-items: center;"> <div style="border: 1px solid black; padding: 2px 5px; margin-right: 10px;"><b>A</b></div> <div> <ul style="list-style-type: none"> <li>モンテカルロ解析と中性子即発ガンマ線分析(PGA)試験を実施し、ウラン中に含まれるエルビウムの濃度を測定できることを原理的に実証し、エルビウム入り高燃焼度燃料製造用エルビウム濃度測定装置の実用化への道を切り拓く、優れた成果を挙げている。</li> </ul> <p>S) 極めて優れた成果が挙げられている  <b>A) 優れた成果が挙げられている</b>            B) 一部を除き、相応の成果が挙げられている            C) 部分的な成果に留まっている            D) 成果がほとんど挙げられていない</p> </div> </div>
3. その他	<ul style="list-style-type: none"> <li>本研究開発成果である原理検証を論文として公表することを期待したい。</li> <li>実用化に向け、更なる進展に期待したい。</li> </ul>

<p>1. 目的・目標</p>	<p>次世代の革新的原子力技術として提案されているエルビア入り高燃焼度燃料のために、本研究では即発ガンマ線分析(PGA)を利用したウラン試料中のエルビア濃度測定手法について検討する。PGAは一般的に中性子源として研究用原子炉を用いるため装置が大規模になり応用が限られたが、本研究では Cf-252 や D-T 中性子源などの小型装置を採用する。本研究の開発目標をまとめると以下ようになる。</p> <p>①Cf-252 や D-T 中性子源などの小型中性子源を用いた PGA は一般的でないため、これらの小型中性子源を用いた PGA がエルビア試料に適用可能なことを確認する。</p> <p>②ウラン試料は中性子自己遮蔽が強い。このような試料に含まれるエルビアが検認できるかについて明らかにする。</p> <p>③ウラン試料からは、ウラン自身や中性子照射で生成した FP からガンマ線が発生する。これらが PGA に与える影響について調べる。</p> <p>④最終的に、測定の精度を向上するための手法について検討したうえで、PGA 測定を用いたエルビア濃度測定法の実現性を評価する。</p>
<p>2. 研究成果</p>	<p><b>【研究開発項目 1. 小型中性子源を用いた PGA 試験】</b>  <b>[得られた成果]</b></p> <p>(1) 予備試験</p> <p>平成 21 年度においては、予備実験として、まず Cf-252 中性子源と実施項目「測定試料の検討」で作成した酸化ビスマス母材試料を用いて PGA 試験を実施した。照射場は実施項目「モンテカルロ計算による検討」の検討結果に従い、ポリエチレンブロック(厚さ 5cm)を中性子減速材として、鉛ブロック(厚さ 15cm)をガンマ線遮蔽材としてそれぞれ用いた。酸化ビスマス母材試料には、試料中に含まれるエルビア量が異なる(最大 2.4g から最少 0.05g まで) 6 種類を用いた。それぞれ、重量比で 10%から 0.2%に相当する。1 回の測定時間は 3,000 秒で同じ測定を 3 回(合計 9,000 秒)行った。Ge 検出器で観測されたガンマ線スペクトルを分析した結果、エルビア量が多くなるに従って 184keV 領域にピークが現れており、Er-167 の即発ガンマ線を測定に成功した。この測定結果のカウント数から統計的に想定される誤差(1<math>\sigma</math>)を評価したところ、184keV の信号で 0.38g であった。</p> <p>さらに、D-T 中性子源を用いた予備試験を実施した。D-T 中性子源は Cf-252 中性子源と比較して中性子発生率が 3 から 4 桁程度高い。これを有効に使うことで測定精度向上が期待できる。しかし一方で、Ge 検出器設置位置での中性子束が大きすぎると、検出器の放射化によるノイズ増加や、ガンマ線過多による飽和(デッドタイム)の影響により正確な測定ができなくなるという問題がある。この信号強度の増加とノイズ低減のバランスを取るため検討した結果、ポリエチレン減速材厚さは</p>

40cmとした。試料は Cf-252 を用いた試験の場合と同じものを用い、測定時間は 1,500 秒とした。Cf-252 での試験に比較するとカウント数が 50 倍程度に増加し、その結果、統計誤差を小さくすることができた。ただし、エルビアのガンマ線に比較してバックグラウンドノイズの割合が大きくなっていることも分かった。この結果から、D-T 中性子源ではカウント数を多く取れる反面、ノイズ対策が重要であるといえる。結果として、Cf-252 での試験に比べて、計測時間、精度ともに向上していることが分かった。

## (2) 模擬燃料を用いた試験

平成 22 年度では実施項目「モンテカルロ計算による検討」にてモンテカルロ計算を用いて照射場の改良を行った結果を反映して PGA 試験を実施した。主な改良点として、試料と線源を近い位置に配置した体系を採用した他に、中性子減速材や遮蔽材に材質や配置を改善した。模擬燃料試料として用いるウラン試料は実施項目「測定試料の検討」で検討した結果を受けて、臨界実験用のウラン板を使用した。これにより、ウラン試料から発生するガンマ線に対して、測定対象であるエルビウム即発ガンマ線の信号強度が十分確保され、ウラン中のエルビアが検認可能であることを検証した。

D-T 中性子源では中性子はパルス状に発生する。実施項目「モンテカルロ計算による検討」で検討しているように、このパルス状に照射される中性子に同期してガンマ線を計数することで、遅発ガンマ線の影響を相対的に小さくすることができる。中性子パルスに同期しない通常の測定法と、適切なタイミングで計数したもので得られたスペクトルを比較したところ、184keV 領域の Er-167 即発ガンマ線のカウント数は 7.9 count/sec から 15.1 count/sec へと 90%増加しており、この手法が試料からの即発ガンマ線の弁別に有効であることが分かった。

ウラン燃料模擬試料中のエルビア検認精度を評価した。ウラン板試料 1 枚と、グラフィイト板試料 1 枚(エルビアあり/なし)だけを試料に用いて実験を行った。これはエルビア濃度で 0.6%に相当する。得られたスペクトルを分析したところ、3,000 秒の測定で得られたスペクトル上でエルビア 0.3g によるスペクトルの違いが確認できた。このときのカウント数から想定される統計的誤差を評価すると、最高 0.09g となった。

まとめとして、平成 21 年度ではウランの中性子吸収を模擬した、酸化ビスマス-酸化ネオジウム混合試料を主に用いて PGA 実験を行い、平成 22 年度の実験でウラン試料(臨界実験用金属ウラン板)を試料として用いて PGA 実験を行った。照射場の体系としては、平成 21 年度の試料-検出器近接体系から、平成 22 年度では試料-線源近接体系へと大きく変

更した。これにより、測定精度が改善していることが確認された。また、パルスの発生する中性子にタイミングを合わせたガンマ線計数により測定精度が向上することが示された。試料中のエルビアの測定精度としては、3,000 秒の測定では統計誤差で 0.09g のエルビア濃度測定精度を達成した。ウラン試料の重量が約 48g であるため、これに対するエルビア濃度に換算すると、約 0.2%の精度となる。以上の平成 22 年度の成果と、平成 21 年度に実施した、ウラン中性子自己遮蔽効果を模擬した試料を用いた試験結果とを合わせて、小型中性子源を用いた PGA によってウラン試料のエルビア含有量分析が可能との予測が得られた。

## 【研究開発項目 2. モンテカルロ計算による検討】

[得られた成果]

### (1) 予備解析と照射場設計

本研究で用いる小型中性子源から発生する中性子のエネルギーは、Cf-252 の場合で平均 2.5MeV 程度、D-T 反応の場合で 14MeV である。一般に中性子捕獲反応断面積は熱領域で大きくなるため、中性子を減速して、測定試料での捕獲反応率が高くなるようにする必要がある。小型中性子源を用いた PGA の予備試験を行うにあたり、モンテカルロ計算による中性子輸送計算で、測定試料での中性子束が大きくなるようなポリエチレン減速材厚さについて検討した。Cf-252、D-T 中性子源それぞれについて評価し比較したところ、Cf-252 ではポリエチレン厚さは 5cm 以下が良いことが分かった。D-T 中性子源では薄いほど良い結果であったため、デッドタイムの増加や検出器の劣化の影響がない範囲で最小の減速材厚さが適していると思われる。

平成 21 年度の PGA 試験によって、D-T 中性子源を用いた場合には高エネルギー中性子の効果的な減速が重要であることや、D-T 中性子源の中性子発生率が高すぎる場合に Ge 検出器の計数率が過大になって測定精度に悪影響を与えることが判明した。よって、中性子発生率や試料・検出器の位置関係、ガンマ線遮蔽材を適切に設定しなくてはならない。一方、パルス状の中性子束に同期した計測によって、遅発ガンマ線の影響が小さくなり測定精度が向上する可能性があることも分かった。平成 22 年度では、これらの課題について検討し、測定精度を向上させるような照射場を設計した。

### (2) 予備試験結果を受けた最適化解析

平成 22 年度では、試料位置を実験体系から変更することを検討した。検討結果により、試料位置を変更して試料-線源近接体系とすることで、信号強度を維持しながらウラン崩壊ガンマ線ノイズを低減できる予測を得た。一方で、中性子や即発ガンマ線によるノイズの増加が懸念されることも分かった。

ノイズを低減し測定精度を高める方法としてパルス同期測定が考えられる。D-T 中性子源などではパルス状に中性子を発生させることができるが、中性子減速のために数  $\mu$  sec 程度の時間遅れのあと、中性子が捕獲されて即発ガンマ線が発生する。一方、遅発ガンマ線は時間によらず一定の割合で発生するとみなせる。このときガンマ線測定のタイミングを適切に設定すれば、遅発ガンマ線に対する即発ガンマ線の相対的な強度を高くすることができる。パルス同期測定でどの程度のノイズ低減が見込めるか、またそのための測定遅れ時間と測定時間幅について検討した。その結果、Er-167 信号に対するノイズ成分の比率を低下させ、S/N 比を改善できることが分かった。

照射場の材質についても検討した。鉄原子は高エネルギー中性子に対して高い断面積を持つため、ポリエチレンの水素原子による減速より効率よく中性子を減速できると考えられる。鉄とポリエチレンを組み合わせた減速材で Er-167 の捕獲反応と中性子遮蔽効果に着目して減速材の最適な厚さを検討した。結果として、試料の捕獲反応率を高くするためには鉄厚さ 5 cm 程度が適しており、中性子遮蔽効果の観点では鉄厚さ 20 cm 程度が適していた。2 つの条件を同時に満たすことは難しいが、試料の捕獲反応率については試料周辺領域だけを考慮すればいいため、鉄遮蔽材厚さは 20 cm としながら、試料周辺領域のみポリエチレンとすることで、捕獲反応率と中性子遮蔽という 2 つの要求を同時に満たすことができるという予測を得た。

以上の検討結果を反映し、改良照射場を設計した。試料-線源近接体系を採用し、厚さ 20 cm 程度の鉄素材を D-T 中性子源周辺に配置し、高速中性子を効率的に減速するようにした。試料周辺にはポリエチレンを配置して、熱中性子束が高く試料の中性子捕獲反応を高めた。試料周辺のポリエチレンや鉄から発生するガンマ線を遮蔽するための鉛も配置した。さらに、カドミウム板を中性子遮蔽材として配置した。ここで設計した実験体系を使用して、実施項目「小型中性子源を用いた PGA 試験」において PGA 試験を実施した。

### (3) 測定試料の検討

本研究課題の目的は、PGA の原理を用いてウラン中のエルビア濃度を測定し、その精度を評価することである。しかし、ウランは核物質であり取り扱いには規制がかかるため、簡単に試験を行うことが出来ない。そこで平成 21 年度では予備試験として酸化ウラン以外の物質を粉末母材とし、それに混合したエルビアの濃度測定を行った。

予備試験で用いる試料にどの程度の中性子吸収材を混合すると、ウランの中性子吸収を再現できるかについて MVP コードを用いたモンテカルロ計算によって検討した。混合率を変えてウランの中性子自己遮蔽効果を再現する条件をサーベイした結果、酸化ネオジウム濃度 15.4%が適し

ていることが分かった。エルビア濃度や試料の厚さといったパラメータを変化させた場合にも、酸化ビスマス之母材とした試料は酸化ウラン試料の特性を良く再現している。これから、酸化ビスマス母材試料は、予備試験に使用する試料に適していると考えられる。

検討結果に従って実際に試料を作成し、小型中性子源を用いた PGA 試験に提供した。

更に平成 22 年度には、燃料模擬試料を用いた PGA 試験に提供するためのウラン試料について検討した。ウラン試料の形態としては、大きく分けて酸化ウランのような粉末状のものと金属のような固形のものと考えられる。ただし、KUCA の運用規則や実験の際の取り扱いの容易さの観点から、粉末試料は密封して使う必要がある。固形試料は密封性と取り扱いの容易さの点で粉末試料より優れている。一方、粉末試料はエルビア濃度をきめ細かく調整できる点で優れているが、実験に使用する際には何らかの容器に密閉する必要があるため、実験中に調整することは難しい。また、多数の試料を準備することも難しいため、実際には粉末試料でも濃度を細かく調整することができず、大きな利点ではないと考えられる。以上の理由により、固形試料が PGA 試験に適していると考えられる。

固形のウランを用いた場合はエルビアと均質に混合することが出来ないため、試料の非均質性が測定に与える影響が懸念される。しかし、均質な試料における中性子の減衰等については、平成 21 年度の研究成果により評価済みである。ウラン試料を用いた PGA 試験の目的である、ウランからの崩壊または FP ガンマ線の評価の観点からは、固形ウランを使用した非均質な試料であっても大きな支障はない。

具体的な固形ウラン試料として、本節では臨界実験でも用いられる金属ウラン板を PGA 試験の試料として用いることを検討し、これらの試料を複数枚組み合わせたときの、ウランに対するエルビア濃度を評価した。ウラン板 1 枚とグラファイト板 20 枚を使用して試料を作成した場合、グラファイト板をエルビア塗布グラファイト板に置換することで、ウラン重量比のエルビア濃度で 0 % から 11 % の試料となることが分かった。このときのエルビア絶対量としては 0 g から 6 g の範囲となる。このエルビア濃度やエルビア量の範囲は、平成 21 年度で採用した試料と比較して大きな違いはなく、PGA 試験に用いる試料として適切であると考えられる。このウラン燃料模擬試料を用いて、PGA 試験を実施した。

#### 【論文、特許等】

[口頭発表]

- 1) 高松 輝久、杉村 直紀、石垣 敏弘、泥谷 雅之、佐野 忠史、林 裁瑛、  
「PGA を用いた次世代高燃焼度燃料用エルビア濃度測定法の研究

	<p>(1) 研究概要とモンテカルロ計算による検討」、日本原子力学会 2010 春の年会、2010 年 3 月</p> <p>2) 佐野 忠史、林 裁瑢、高松 輝久、杉村 直紀、石垣 敏弘、泥谷 雅之、 「PGA を用いた次世代高燃焼度燃料用エルビア濃度測定法の研究 (2) 京都大学原子炉実験所における PGA 実験」、日本原子力学会 2011 年春の年会、2010 年 3 月</p> <p>3) Teruhisa Tkamatsu, Naoki Sugimura, Tadafumi Sano, “Preliminary Experimental Results on Measurement of Erbium Content in Uranium Fuel Using PGAA” , ANS 2010 Winter Meeting, Nov 2010, USA.</p> <p>4) 高松 輝久、杉村 直紀、石垣 敏弘、泥谷 雅之、佐野 忠史、林 裁瑢 「PGA を用いた次世代高燃焼度燃料用エルビア濃度測定法の研究 (3) 中性子照射場の改良」、日本原子力学会 2011 年春の年会</p> <p>5) 佐野 忠史、林 裁瑢、高松 輝久、杉村 直紀、石垣 敏弘、泥谷 雅之 「PGA を用いた次世代高燃焼度燃料用エルビア濃度測定法の研究 (4) ウラン試料を用いた PGA 実験」、日本原子力学会 2011 年春の年会</p> <p>6) Takamatsu, Naoki Sugimura, Tadafumi Sano, “Measurement of Erbium Content in Uranium Fuel Using PGAA with a Compact Neutron Source” , 2011 International Congress on Advances in Nuclear Power Plants, May 2011, France.</p>
--	--