新たな未臨界監視検出器を目指した核分裂高エネルギーガンマ線の測定

受託者 独立行政法人 日本原子力研究開発機構 研究代表者 西尾 勝久 先端基礎研究センター 研究開発期間 平成25年度~27年度

1. 研究開発の背景とねらい

本課題では、福島第一原子力発電所で溶融した燃料デブリを取り出す際に必要な技術である未臨界監視検出器を新たな物理観測量に基づいて設計することを目的とする。

福島第一原子力発電所の廃止措置のためにはデブリを解体する必要があるが、体系が未臨界で あることを監視しながら作業を進める必要がある(図1の左)。未臨界度は、デブリ内で生ずる 核分裂事象の頻度を観測することで検知する。核分裂で放出される即発中性子をモニターする場 合、未臨界状態から放出される中性子の数は少なく、このため中性子の検出信号は環境ガンマ線 によるバックグランド信号に隠れ、目的を達成することは困難と考えられる。未臨界モニターを 開発するためには、これら環境ガンマ線と異なる特徴を有し、核分裂事象に由来する放射線を検 出する必要がある。十分時間経過した使用済核燃料から放出されるガンマ線のエネルギーは最大 でも高々6MeV程度である。本研究では、核分裂に伴って放出される高エネルギーの即発ガンマ線 (6~20 MeV)に着目した。カリフォルニウム252(²⁵²Cf)の自発核分裂を用いた実験では20 MeVまで の測定例があり、核分裂片の巨大共鳴による高エネルギー成分が含まれている[1]。同様に、ウラ ン235の熱中性子核分裂²³⁵U(n_{th},f)でも高エネルギーガンマ線を観測することができれば、未臨 界監視検出器として利用できると考えた。²³⁵U(n_{th},f)では、最大で 7 MeVまでのガンマ線しか測 定された例がない[2]。そこで本研究は、高エネルギー領域までのガンマ線エネルギースペクトル を測定し、新しい物理現象にもとづく未臨界監視検出器を設計することを目的とする。

未臨界監視検出器の概念図を 図1 (右)に示す。高エネルギーガンマ線検出器としてシンチレ ーション検出器を想定する。デブリ周囲は、極めて高い線量のガンマ線場であるが、この環境ガ ンマ線を十分なレベルに落とすためにシンチレーション検出器の周りを遮蔽体で囲む。これによ り環境ガンマ線を大幅に遮断する一方で、監視すべき高エネルギーガンマ線はシンチレータ本体 に到達できる。



図1 本研究で提案する高エネルギーガンマ線を検出する未臨界監視検出器

2. 研究開発成果

2. 1研究内容

本研究では、²³⁵U(n_{th}, f)で生じるガンマ線を高エネルギー領域まで測定し、6~20 MeV までのガ ンマ線の収率を明らかにする。さらに、福島デブリ周辺におけるバックグランドガンマ線の線量 およびエネルギー分布を想定し、未臨界監視検出器の基本デザインを提案することを目標に掲げ る。本研究を進めるため、①「核分裂高エネルギーガンマ線スペクトルの測定」、②「高ガンマ 線量環境下における未臨界監視検出器の感度決定」、③「研究推進」の項目を立てた。

「核分裂高エネルギーガンマ線スペクトルの測定」を行う測定装置の概念図を図2に示す。実 験は、京都大学原子炉実験所の研究炉(KUR)における中性子導管施設等を想定する。真空容器中 心に濃縮²³⁵U標的を設置する。中性子入射核分裂で生成する核分裂片を2台の核分裂片検出器で検 出する。核分裂片検出器として、多芯線比例計数管(Multi-Wire Proportional Counter: MWPC) を設計した。MWPCは早いタイミング信号が得られるため、高い計数率条件で効率よく測定できる こと、荷電粒子だけに応答するので核分裂片を容易に検出できるとともに、放射線による検出器 の性能劣化がない特徴がある。ガンマ線検出器としてLaBr₃(Ce)結晶のシンチレーション検出器を 選んだ。この検出器からの電気パルス信号の立ち上がり時間は約25 ns と高速であり、また100 ナ ノ秒の短いパルス幅が得られる特徴がある。同じく無機シンチレーター結晶に属するNaI(T1)検 出器では1μs 程度のパルス幅である。このため、LaBr₃(Ce)の方が1桁高い計数率でのデータ取 得が可能となる。ガンマ線検出器は、核分裂にともなう即発中性子に対しても感度を有する。即 発中性子と核分裂ガンマ線を分離するため、核分裂片検出器とシンチレーション検出器との間で 飛行時間分析を行う。このため、MWPCはもとより、ガンマ線検出器も信号特性の早いLaBr₃(Ce)検 出器を用いる必要があり、LaBr₃(Ce)を用いればこの条件を満たすことができる。



図2 核分裂高エネルギーガンマ線スペクトル測定装置

2.1 研究開発成果

開発したMWPCを図3(1)に示す。この検出器は、ウラン標的をマウントする中心部分の真空容器と、これをはさむ形で向かい合わせに接続した2台のMWPCで構成される。真空容器とMWPC部分は、 厚さ 2µm のマイラーフィルムで仕切った。MWPCの有感面積を80 mm×80mm とした。MWPCの電極 構造は、負のバイアスを印加する導電性カソード膜とこれを挟む接地されたグリッドから構成し た。グリッドとしてステンレス材を用い、幅30µmのストライプを2mm間隔で並ぶ構造とした。検 出器は約 2 Torr のイソブタンガスで動作させた。²⁵²Cfの自発核分裂片を検出して、MWPCのタイ ミング特性を調べた。ここで得られたカソードの電気パルス信号を図3(2)に示す。立ち上が り時間 3 ns、パルス半値幅 10 ns の高速のタイミング信号を得た。核分裂片1つあたりの動作 時間は20nsと短く、約50MHzの高計数率に耐えられると言える。パルス波高値もノイズレベルに比 べて十分高く、核分裂片の入射に対して100%の効率を得た。



図3 (1)核分裂片検出器と(2)核分裂片のパルス信号

続いて高エネルギーガンマ線検出器の設計を行った。この設計目標として、KURの 5MW 運転時 における利用中性子束 5×10⁷ (n/cm²/s)における6日間の実験を目安とし、20MeVのガンマ線に対 するピーク効率0.05%を超えることを目標値とした。設計は、GEANT4コードを用いて行った。 LaBr₃(Ce)シンチレータの形状を円筒型とし、実際の実験で想定するウラン試料からの間の距離 200mmの位置から、20MeVの単色ガンマ線を放出し、LaBr₃(Ce)検出器で得られるパルス波高スペク トルをシミュレーションした。計算で得られたピーク効率を図4に示す。検出器の幾何学パラメ ータとして、結晶の厚みを横軸に選んだ。また直径3.5インチおよび4.0インチについて計算を行 った。この結果、5インチより厚くしても効率のゲインは少ないことが分かった。直径を増やせば 効率が期待どおりに大きくなるものの、製造における困難さが見込まれるため、直径4.0インチが 適切であると判断した。直径4インチ×厚さ5インチのガンマ線検出器でピーク効率0.06%を得て条 件を満たした。



図 4 LaBr₃(Ce)検出器の20MeVガンマ線に対するピーク効率(計算)

未臨界監視検出器の本体はシンチレーション検出器で構成されるが、環境バックグランドガン マ線を遮蔽するために、検出器の周囲を遮蔽体で囲んだ構造とする(図1)。遮蔽体による環境 ガンマ線の遮蔽効果を調べるシミュレーションを行った。計算では、図5左に示すように、直径4 インチ×厚さ5インチのLaBr₃(Ce)とこれを囲む厚さ200mmの鉄遮蔽体を想定した。単色ガンマ線を 検出器の中心軸方向から入射させ、シンチレーション検出器で検出される割合(%)を求めた。 図5の右に示すように、5MeVより低いエネルギーで効率が急激に低下し、1.0MeV以下のガンマ線 は検出されない。事故後、10年以上経過する例では、線量に占める¹³⁷Cs(半減期30年、ガンマ線 エネルギー0.66MeV)の割合が高いが、このガンマ線は検出されないことがわかる。一方、5MeV を 超えるガンマ線に対して、検出効率はガンマ線エネルギーとともに単調に増加し、未臨界監視検 出器として重要な6MeV以上のガンマ線に対しては、2.7~4.3%となった。



図5 計算による LaBr₃(Ce) 高エネルギーガンマ線検出のピーク効率

<u>3. 今後の展望</u>

設計に基づいて LaBr₃(Ce)による未臨界監視検出器の製作を行い、核分裂高エネルギーガンマ 線スペクトルの測定装置を完成させる。つづいて、¹¹B(p, γ)¹²C 反応を用い、この反応過程で生成 される 18MeV 等のガンマ線を利用してガンマ線検出器の検出効率を決定する。KUR 等からの熱中 性子ビームを用いて、²³⁵U(n_{th},f)反応に伴うガンマ線のエネルギースペクトルを高エネルギー領 域まで測定する。また、高ガンマ線量環境下における未臨界監視検出器の感度決定を行うため、 デブリ周辺におけるバックグランドガンマ線の環境を推定しながら、計算によって感度決定を行 うとともに、未臨界監視検出器の設計を提案する。ここでは、測定で得られたガンマ線のエネル ギースペクトルと収率を入力する。この過程では、使用済み核燃料からのガンマ線スペクトル、 未臨界度や出力と核分裂率との関係、デブリ内での放射線の減衰等を計算コードによって評価す る。

<u>4. 参考文献</u>

(1) Van der Ploeg, H., et al., "Emission of photons in spontaneous fission of ²⁵²Cf", Phys. Rev. C., Vol. 52, p.1915 (1995).

(2) Vandenbosch, R., and Huizenga, J.R., "Nuclear Fission", Academic Press (1973).