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)国立研究開発法人 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
(研究期間)平成25年度~27年度

1. 研究の背景とねらい

福島第一原子力発電所の事故によって核燃料集合体は溶融し、デブリを形成していると考えら れる。廃止措置を行うためには、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確 認しながら作業を進める必要がある(図1の左)。このために必要な未臨界監視システムは、廃止 措置に必要な技術として位置付けられている。

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できる。核分裂事象は、 放出される即発中性子の測定からモニターできるが、未臨界状態から放出される即発中性子数は 少ないため、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容易ではな いと考えられる。したがって、未臨界状態を監視するためには、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。

²⁵²Cf の自発核分裂では、核分裂に伴って高エネルギーの即発ガンマ線(6 MeV~20 MeV)が放 出されることがわかっている[1]。このガンマ線のエネルギーは、¹³⁷Cs などの核分裂生成物から 放出されるガンマ線(最大でも6 MeV 程度)に比べてはるかに高く、異なったエネルギー特性を 有する。n + ²³⁵U反応でも、このようなガンマ線が存在すれば、未臨界監視に利用できる可能性 がある。本研究では、この高エネルギーガンマ線領域に感度を有する未臨界監視検出器を開発す ることで問題の解決を目指す。²⁵²Cf の測定では、8 MeV を超えた領域にも巨大共鳴振動に伴うガ ンマ線成分が観測され、高エネルギー領域のエネルギースペクトル成分に増大が見られる。一方、 ²³⁵U(n_{th}, f)の中性子入射核分裂の即発ガンマ線は 7 MeV 程度までしか測定されていない。本研究 では、²³⁵U(n_{th}, f)において 7 MeV 以上のガンマ線エネルギースペクトルを測定し、7~20 MeV 領域 のガンマ線の収率を決定することを目的とする。



図1 未臨界監視(左)と、監視検出器(右)の概念図

高エネルギーガンマ線を検出する未臨界監視ガンマ線検出器の概念図を 図1(右)に示す。高エ ネルギーガンマ線をシンチレーション検出器で検出する。ここで低エネルギーの環境ガンマ線を 十分に落とすため、検出器のまわりを鉄などの遮蔽体で囲む。これにより、シンチレーション検 出器自体が環境ガンマ線の影響を低減する一方で、監視すべき高エネルギーガンマ線はシンチレ ータに到達する。本研究では、未臨界監視検出器の感度を計算により決定し、環境ガンマ線のス ペクトルを考慮して検出器の設計指標を与える。 2. これまでの研究成果

(1) 核分裂高エネルギーガンマ線スペクトルの測定

²³⁵U(n_{th},f) における即発ガンマ線のエネルギースペクトルを取得するため、図1(左)に示す核 分裂高エネルギーガンマ線測定装置を開発した。装置は、(a)核分裂片を検出するための核分裂片 検出器、(b)ガンマ線検出器、および(c)データ収集装置から構成した。核分裂片検出器(a)は、多 芯線比例計数管(Multi-Wire Proportional Counter)2台から構成した。この検出器は、約3~6 Torr の CF₄ガスで動作させ、中心の導電性薄膜(カソード電極)をワイヤー面(グランド電極)で挟ん だ構造とし、核分裂片の入射位置を検出できるようにした。MWPC の信号の立ち上がり時間 5 ns の高速信号を得た。中性子ビームを用いた実際の実験では計数率 55 kHz でデータ取得を行った。

ガンマ線検出器(b)は、高エネルギーのガンマ線に対して高い検出効率を有する必要がある。そ こで直径 4 インチ×厚さ5 インチの LaBr₃(Ce)検出器を開発した。これは、これまで作成された LaBr₃(Ce)結晶として最大の容量となった。また、NaI(T1)検出器に比べ、高速パルスが得られる。 実際の実験では 30kHz の計数率でデータ取得が行えた。LaBr₃(Ce)検出器は、ガンマ線の他、高速 の中性子にも感度がある。核分裂ガンマ線と即発中性子を分離するため MWPC 信号をスタート、 LaBr₃(Ce)信号をストップとする飛行時間(TOF)分析を行うことで両者の分離を行った。データ収 集では、デジタルデータ処理を行ってパルスのパイルアップ事象の影響を除いた。

20 MeV 領域までのガンマ線高エネルギースペクトルを導出するため、この領域に至るまでのガ ンマ線に対する検出器の応答を知る必要がある。このため、原子力機構タンデム加速器からの2.6 MeV の陽子ビームを用い、¹¹B(p, γ)¹²C 反応の実験を行いて¹²C を 18.36 MeV に共鳴励起させ、こ こからの脱励起によるガンマ線のエネルギースペクトルを観測した。このスペクトルを図2に示 す。図の赤線は、GEANT4[2]によるシミュレーションである。高エネルギー領域までの応答をよく 説明できており、アンフォールディング法によるスペクトルの導出に信頼性を与えた。



図 1 開発した核分裂高エネルギー ガンマ線スペクトルの測定装置。

図 2⁻¹¹B(p, γ)¹²C反応による2本の ガンマ線の検出スペクトル。GEANT4 コードと比較した。 中性子ビームを用いた実験は、フランス・グルノーブルのラウエランジェバン研究所(ILL)に ある研究用原子炉(High Flux Reactor)からの中性子ビーム(PF1B コース)を用いて行った。中 性子フラックスは、約 1×10⁸ (n/s/cm²)となるようビーム上流に中性子コリメータを設置した(ϕ 20 mmt^{*}-A)。²³⁵U標的(110 μ g/cm²、濃縮度 99.93%)は、ベルギーの IRMM 研究所から借用した。 正味の測定時間として 437 時間(18.2 日)を達した。

図3(a)の黒線は、1台のLaBr₃(Ce)で得られたガンマ線のエネルギースペクトル(横軸はチャンネル数)である。真空散乱槽等からの²⁷A1(n, γ)反応によるピークが観測されているが、これを参照することでゲインの安定性をモニターした。同図(b)は、TOF分析の結果である。ゼロ ns 近傍のピークが²³⁵U(n_{th},f)の即発ガンマ線であり、ここにゲートをかけることで同図(a)の赤線を得た。このうち、時間によらず定常的に入ってくるバックグランドガンマ線を見積もってプロットしたのが同図(c)の青線である。赤線から青線を引くことで、正味のスペクトルを得た。最終的に得られたガンマ線スペクトルを図4(赤点)で示す。これは検出器の応答関数を用いてアフォールディングした後の結果である。10MeVを超える領域で、スペクトルの傾きが緩やかになるのがわかる。これは、核分裂片の巨大双極子振動の成分が重なったためと考えられ、中性子入射核分裂で初めて観測されたことになる。最近の他のデータ[3]に比べても、統計感度を10⁵倍に増加させることで20MeV領域に踏み込んだ。これにより、未臨界監視検出器の動作原理を与える物理現象を見出すことに成功するとともに、検出器の感度評価ができるようになった。



図 3 (a) ガンマ線スペクトル、および (b) TOF スペクトル



図4 本研究で得られたガンマ線スペクトル(赤点:Present)。最近の文献値データ[3]
と比較した(青点:Previous)。

(2) 高ガンマ線環境下における未臨界監視検出器の感度決定

実験で得られた²³⁵U(n_{th},f)のガンマ線のエネルギースペクトルをもとに、デブリ体形で核分裂 反応が進んだ際の未臨界監視検出器の感度、すなわち単位時間あたりの核分裂ガンマ線の計数率 を評価した。これにより、未臨界監視検出器の感度計算法と設計指標を与える方法を確立した。 福島の実際の状況に最適化した検出器を設計するためには、デブリに関する幾何的なデータや材 料の組成を知る必要がある。本研究では、幾何・組成を入力とし、感度を与えるための計算の手 法を開発した。計算の例を図5に示す。計算では直径80 cm、重さ2.6トンの球形のUZr 化合物を 仮定し、これに近接し、厚さ20 cmの遮蔽を施した円筒型のLaBr3(Ce)検出器(直径10.2 cm×長さ 12.7 cm)を考えた。この体系から、核分裂ガンマ線エネルギースペクトル(図4)を一様に放出させ、 検出器に入ったガンマ線を数えたのが図5である。計算は、PHITSコード[5]で行った。横軸は、 検出器に与えるしきい値で、光電子増倍管によってゲイン調整することと等価である。体形内に 1.0W相当の核分裂が生じた場合(3×10¹⁰fissions/s)、2.0MeVのしきい値をかけると5,000cpsと なる。また、バックグランドガンマ線が無くなる6.0MeVのしきい値では62cpsとなる。一方、デ ブリ由来のガンマ線の影響を調べた。55GWd/MtUの燃焼の後、10年が経過した核燃料材料に含ま れる核分裂生成物からのガンマ線のエネルギースペクトルと収量を0RIGENコードで評価して入 力とし、同様の計算を行った結果が図6である。4MeV以上のガンマ線は、現れていないのがわか る。しきい値を2.0MeVとした場合、5.200cpsを得て、1W時の核分裂由来のガンマ線計数率と等 価となる。核分裂ガンマ線の計数率と、バックグランドガンマ線の計数率がほぼ等しい条件をし きい値の設定として提案する。検出器設計の最適化のためのツールができ、実際の状況に対応し たデザインを行うことが可能となった。





<u>3. 今後の展望</u>

本研究により、²³⁵U(n_{th}, f)におけるガンマ線エネルギースペクトルを最大 20.0MeV にわたって 測定した。これにより、従来の方法とは異なる、新たな未臨界監視検出器の動作原理を与えるこ とに成功した。これを受けて、実際に適用可能な検出器の製作を行いたい。これを行うには(1) デブリの位置、(2)形状や組成、(3)アクセスの可否、(4)環境放射線の強さなどの情報が必要とな る。多くは解明に至っていないが、平行してプロジェクトが進められている。これらと連携する ことで情報を集めて条件をそろえ、ふさわしい検出器を提案する。なお、格納容器の外に置く場 合の計算と設計を現在進めている。

<u>4. 参考文献</u>

- [1] H. Van der Ploeg et al., Phys. Rev. C, 52 (1995) 1915.
- [2] S. Agostinelli et al., Nucl. Instrum. Meth. A, 506, 250 (2003).

[3] A. Oberstedt et al., Phys. Rev. C, 87, 051602(R) (2013).

- [4] H. Makii et al., Inter. Conf. Nucl. Data for Sci. Tech. (ND2016), Bruges, Belgium.11-16. Bruges, Belgium (2016).
- [5] http://phits.jaea.go.jp/indexj.html