

英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業
廃炉加速化研究プログラム

**「可搬型加速器X線源・中性子源によるその場燃料デブリ元素分析
および地球統計学手法を用いた
迅速な燃料デブリ性状分布の推定手法の開発」**

文科省 英知事業 成果報告会

令和3年3月10日

研究代表者：上坂 充

東京大学大学院工学系研究科・原子力専攻・教授

芝 知宙

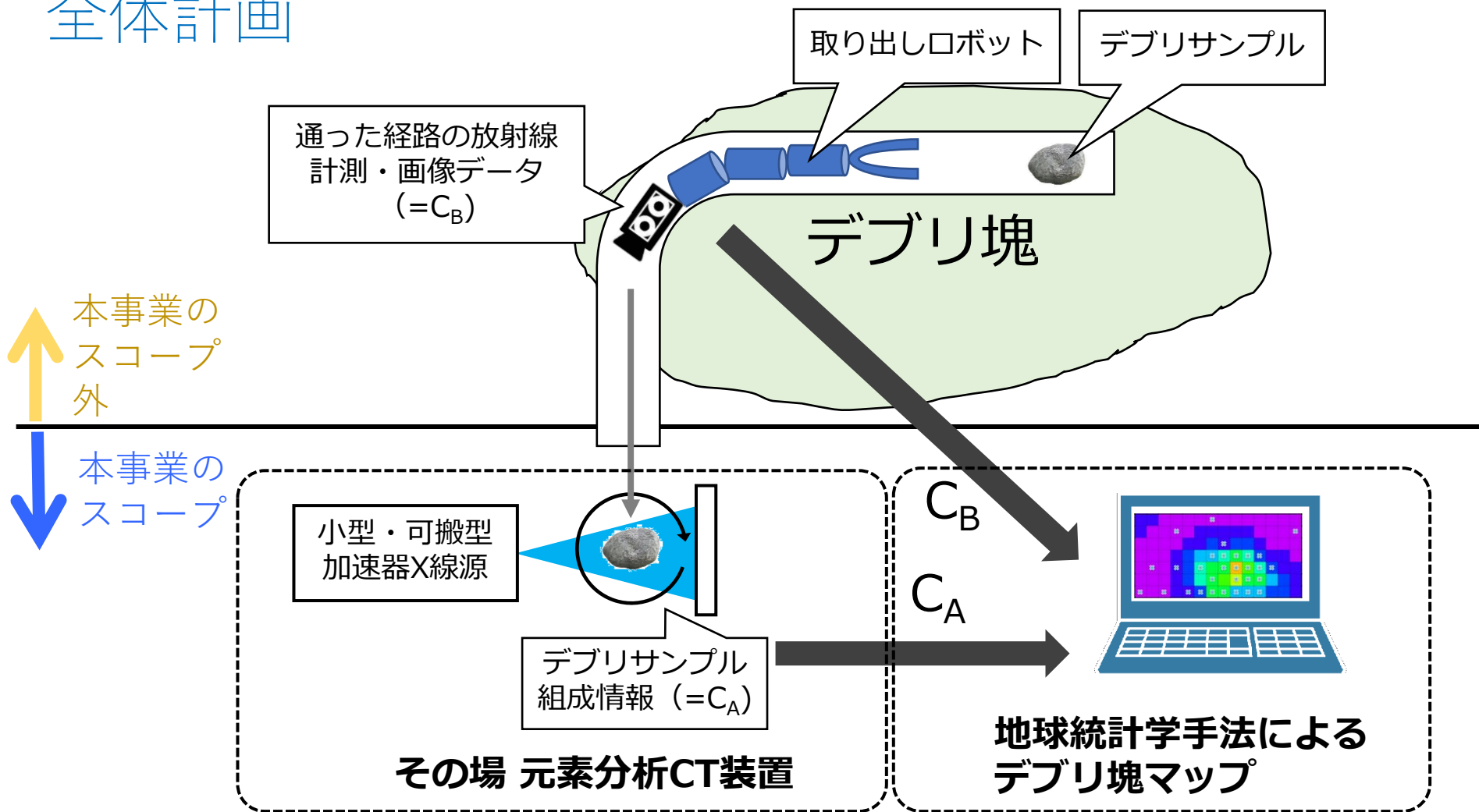
日本原子力研究開発機構

研究目標

福島第一原子力発電所の廃炉に伴う燃料デブリ取り出し作業に関して、炉内に存在する燃料**デブリの塊の全体の物理・化学的な性状が不確か**であることが取り出し作業の障害となると予想される。その物理・化学的な性状を把握することはデブリ取り出しの迅速化や作業安全性、計量管理に資すると考えられる。

本課題では、**燃料デブリ塊の性状分布の作成を目的**としたシステムの提案と実証を行う。本システムは、サンプリングされてきた燃料デブリ小片について、**小型・可搬型加速を用いた元素分析**を行い、その結果を**クリギングと呼ばれる地球統計学手法**に適用することによって、その場で炉内部のデブリ塊の性状分布推定を行うシステムを開発することを目的としている。

全体計画



デブリ塊の物理・化学指標*分布がその場で得られる！

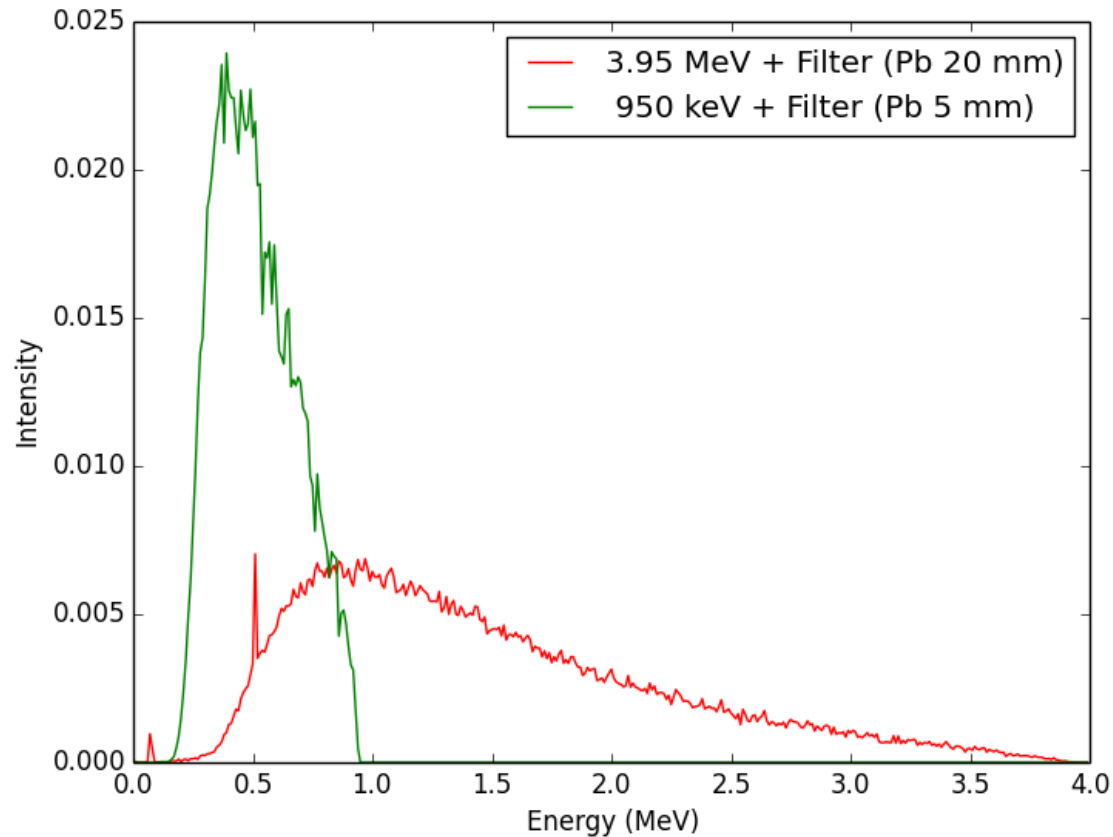
*放射能、微細構造、化学組成、U・Pu含有率、燃焼度など

→作業員の被曝低減化、取り出し作業のしやすさ（デブリの硬さ）、計量管理等、これらの情報を間接的に得られる！

その場燃料デブリ元素 分析手法の開発

二色X線CT

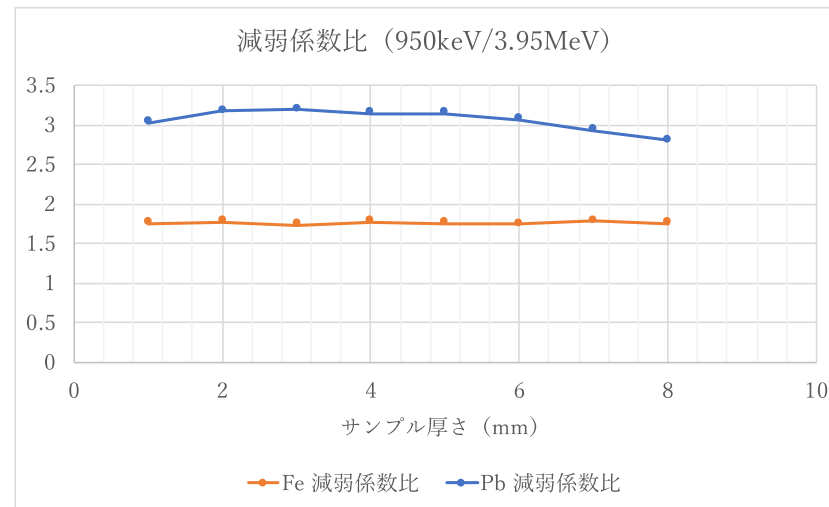
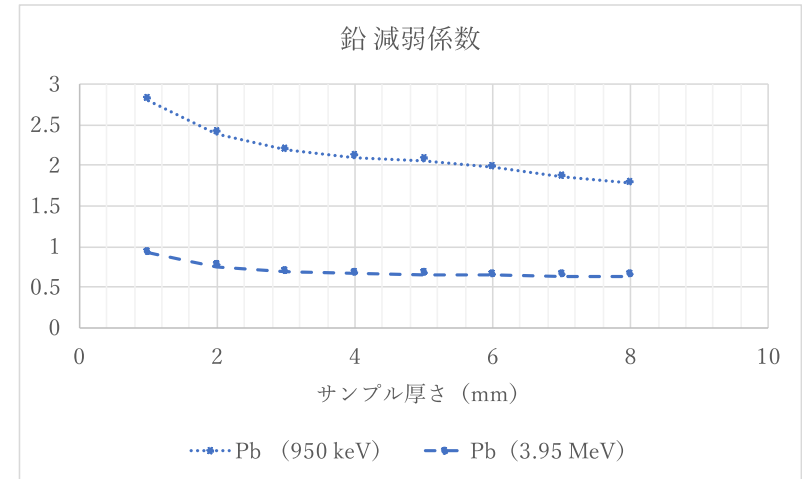
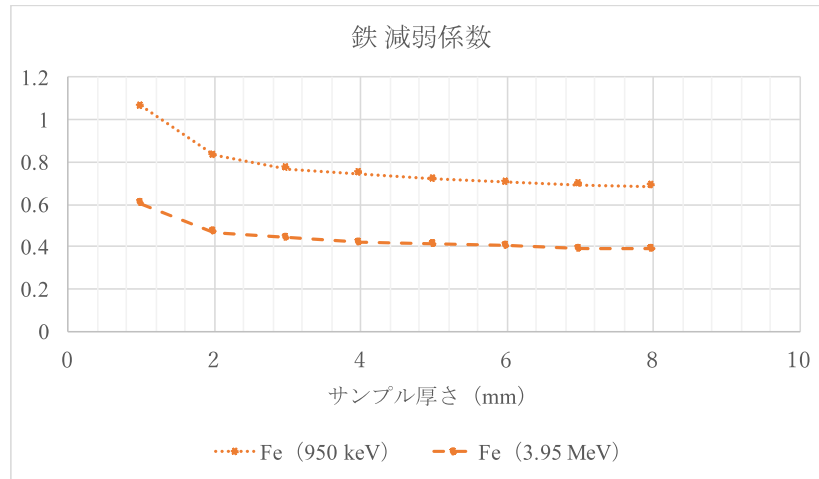
二色X線CTの原理



異なるX線スペクトルの線源でそれぞれCTを取る。
→2つの画像間に、元素による違いが現れる。

線源弱係数の測定

- 東大の950keV・3.95MeV X線源を用いて、予め物質の線減弱係数を測定する。
→元素識別のルックアップテーブルとして準備
- 実際に実験を行って、東大のX線源に対する減弱係数の測定を行った。



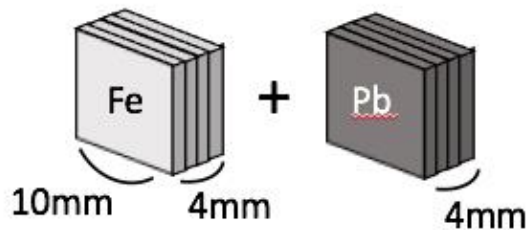
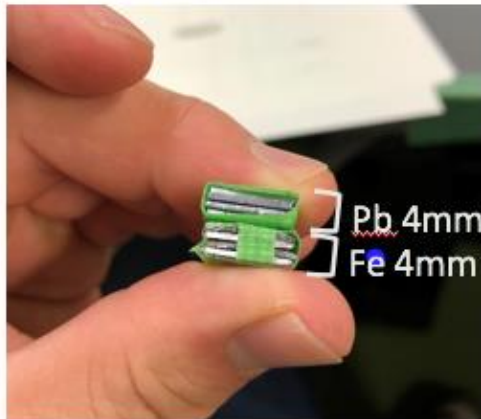
減弱係数比

Pb : 3.06

Fe : 1.76

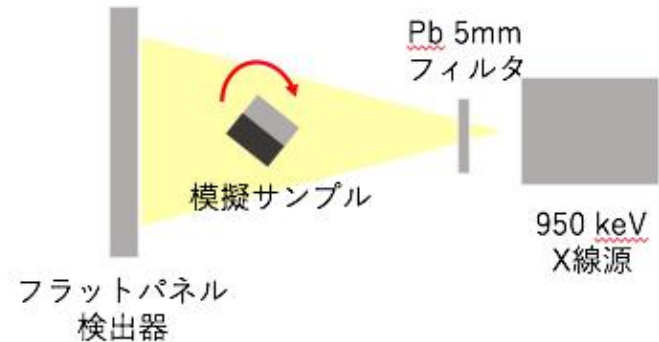
二色X線CTの実験

1



直径8mmのボーリングサンプルを想定し、サンプルを作成。PbはU/Pu類を模擬。

2

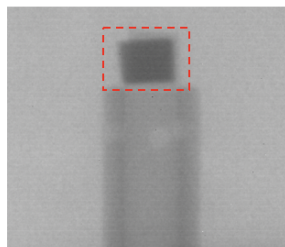


- 950keV X線源
- Perkin Elmer製 フラットパネルディテクター XRD1622
- Pb5mmのフィルタ：ビームハードニング抑止のため

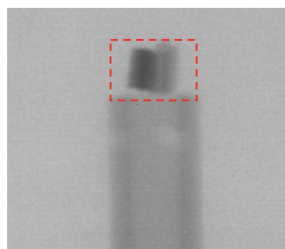
サンプルを2度ずつ回転させながら、フルサイクルでCT撮像。

二色X線CTの実験

3



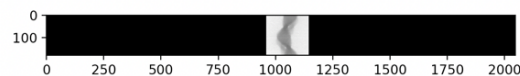
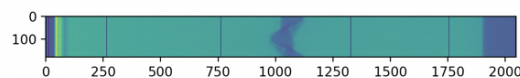
回転角 0度



回転角 90度

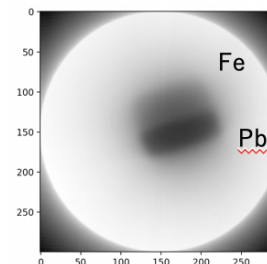
単純透過画像。一枚の画像だけでも、FeとPbのX線減弱能力の違いがはっきりでている。

4

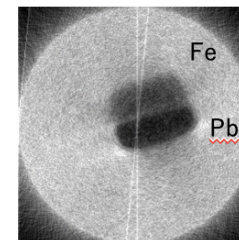


CT再構成。ファンビームから（上）
パラレルビームに変換し（下）、
サイノグラムを作成。

5



単純な逆投影



Ram-Lak フィルタでFBP

サンプルの断面図を再構成。
PbとFeの分布に関する視覚的かつ
定量的な把握が可能。

これを950keV、3.95MeVの両X線源について行い、
両者の画像から元素識別を実施する。

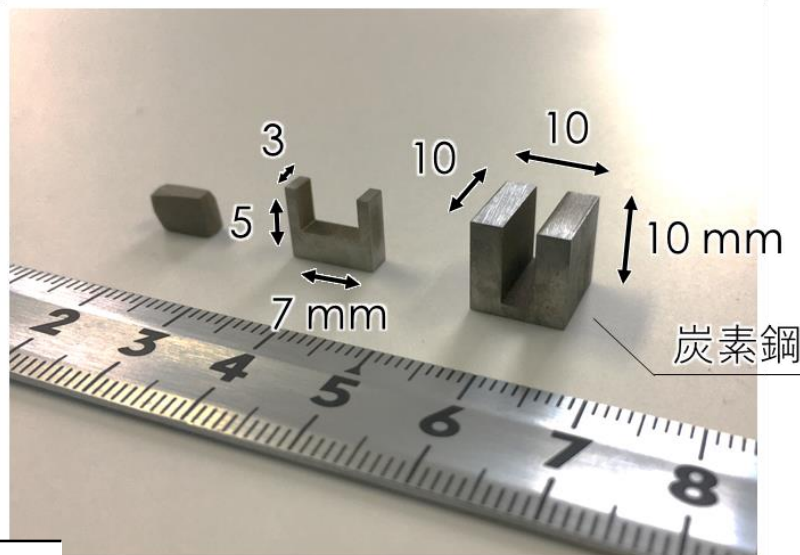
特性X線2色 (Co60(1.25MeV), Ir192(370keV)) X線CT(Fe/Ag/Pb 1-8mmt)で の評価

- **Beam Harding**(重く厚い部分は低エネルギーX線は散乱され、その部分は実際より高元素番号に評価されてしまう)によって、数百keV以下のX線では高元素番号の過大評価の誤差が顕著。
- 単体試料より3層試料の方がBeam Hardingの影響が出やすい。
- 再構成計算手法でも差が出る。低高空間周波数成分の重みが変わる。
- **特性X線2色CTでFeとU/Puの識別は可能**と考えられる。

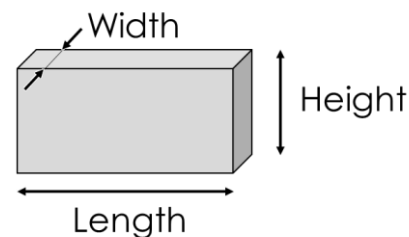
試料作製：模擬燃料デブリ試験片①

模擬燃料デブリ

B_4C CeO_2 -1 CeO_2 -2 Zr-1 Zr-2



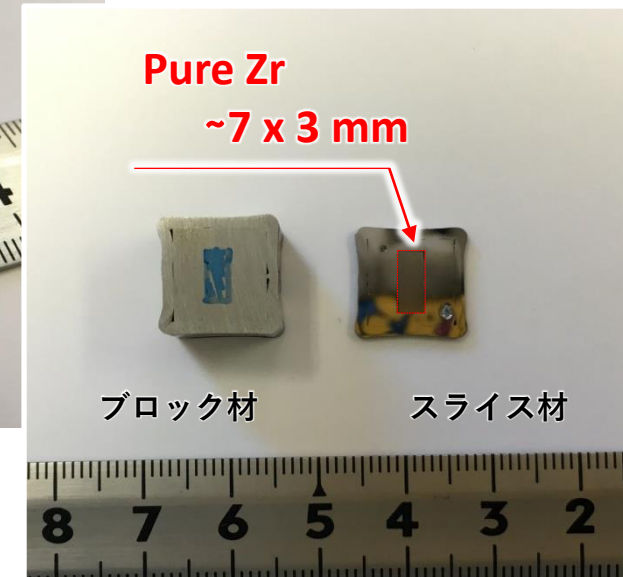
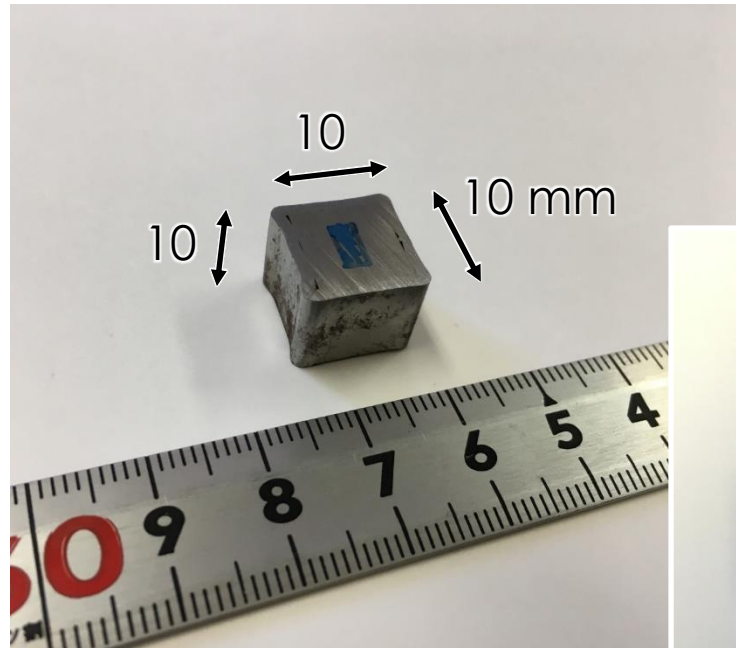
(mm)	B_4C	CeO_2 -1	CeO_2 -2	Zr-1	Zr-2
Length	7.25	6.45	7.10	6.90	6.90
Width	5.10	2.90	2.50	2.95	5.05
Height	3.30	4.80	4.80	5.05	3.10



進捗

- 角状のFeブロックに B_4C 、 CeO_2 、Zrが配置された模擬燃料デブリ試験片を作製した。
- 上記試料は、2色X線CT試験に提供した。

試料作製：模擬燃料デブリ試験片②

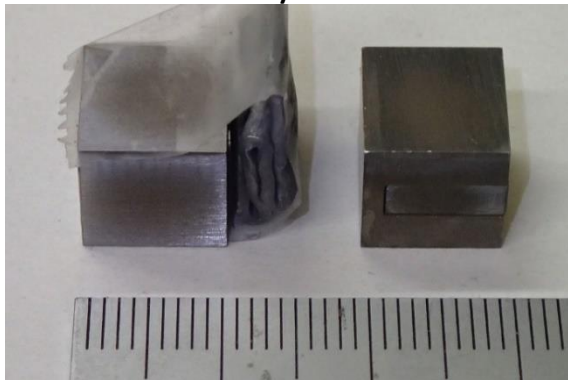


進捗

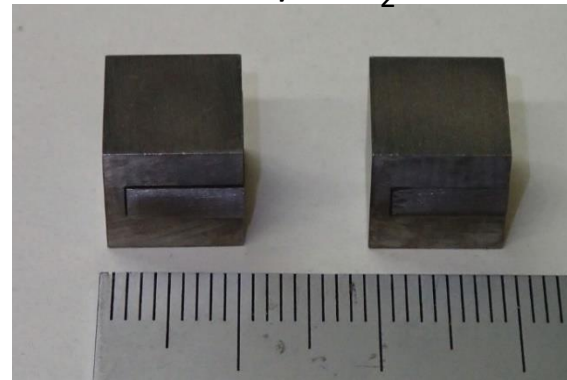
- 角状のFeブロック中にZrが配置された模擬燃料デブリ試験片を作製した。
概ね、目標寸法の模擬デブリ(Zr)を角状Fe中に埋め込んだ試料を作製した。
- 上記試料は、2色X線CT試験に提供した。

模擬デブリサンプル

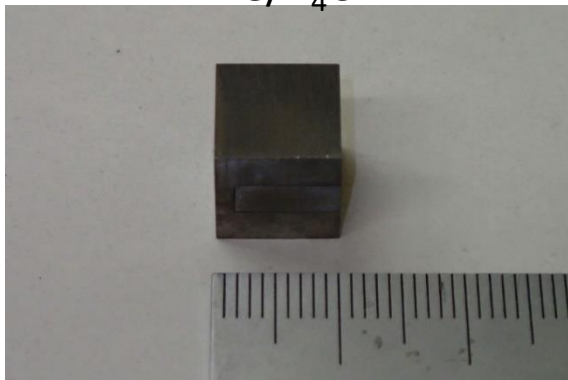
Fe/Zr



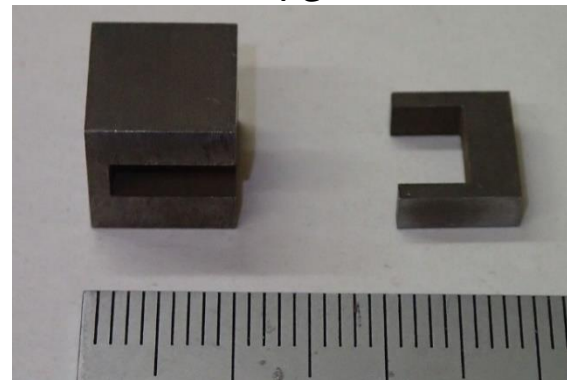
Fe/CeO₂



Fe/B₄C

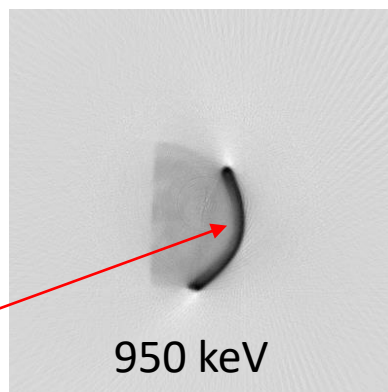
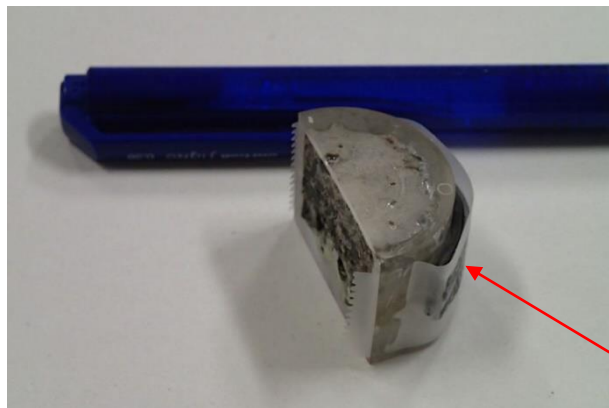


Fe

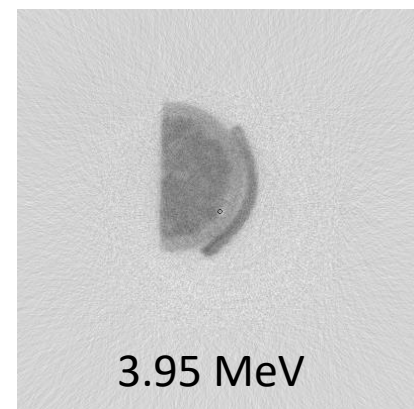


模擬燃料デブリの2色X線CT実験・解析

コンクリート・ジルコニウム混合物を
樹脂でモールド
モールドに鉛板を貼り付け



950 keV

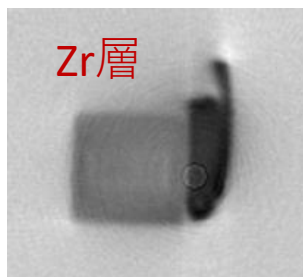


3.95 MeV

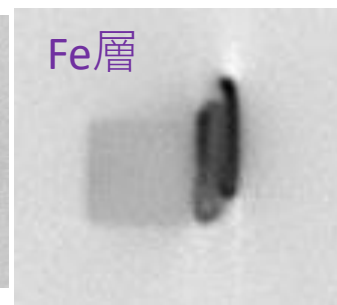
鉛



10mm角の鉄の内部にジルコニウム
(6.9mm × 6.0mm × 2.9mm)
外側に鉛板4mmを貼り付け

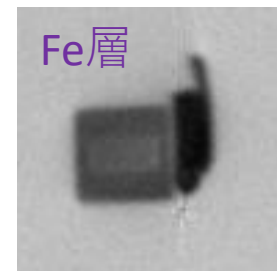


Zr層



Fe層

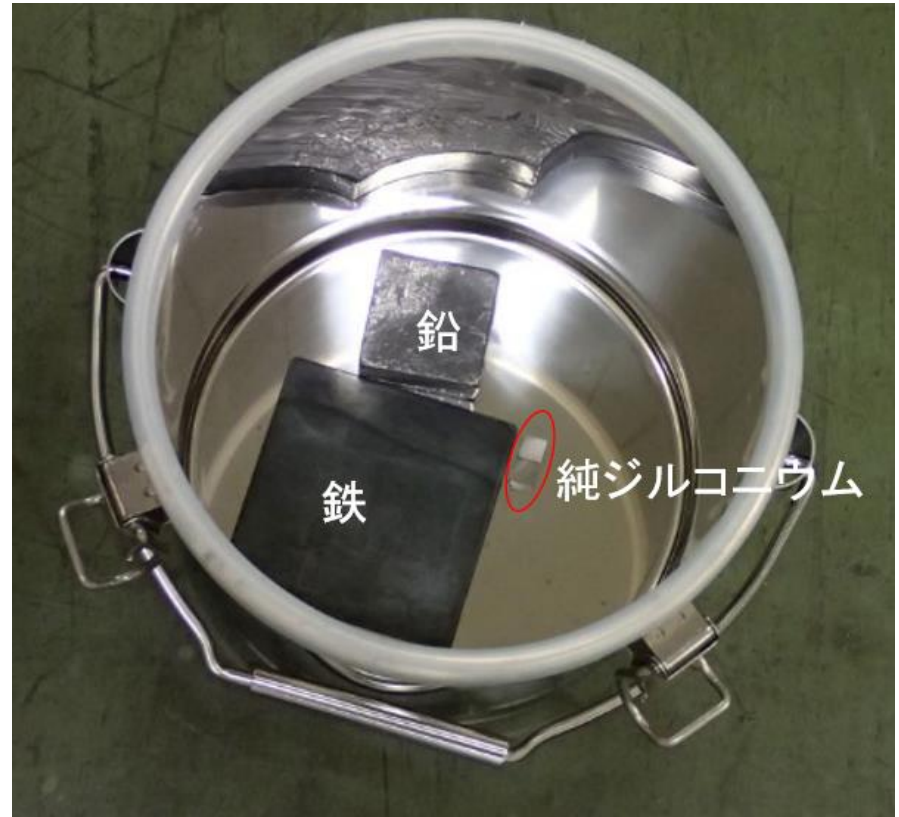
950 keV



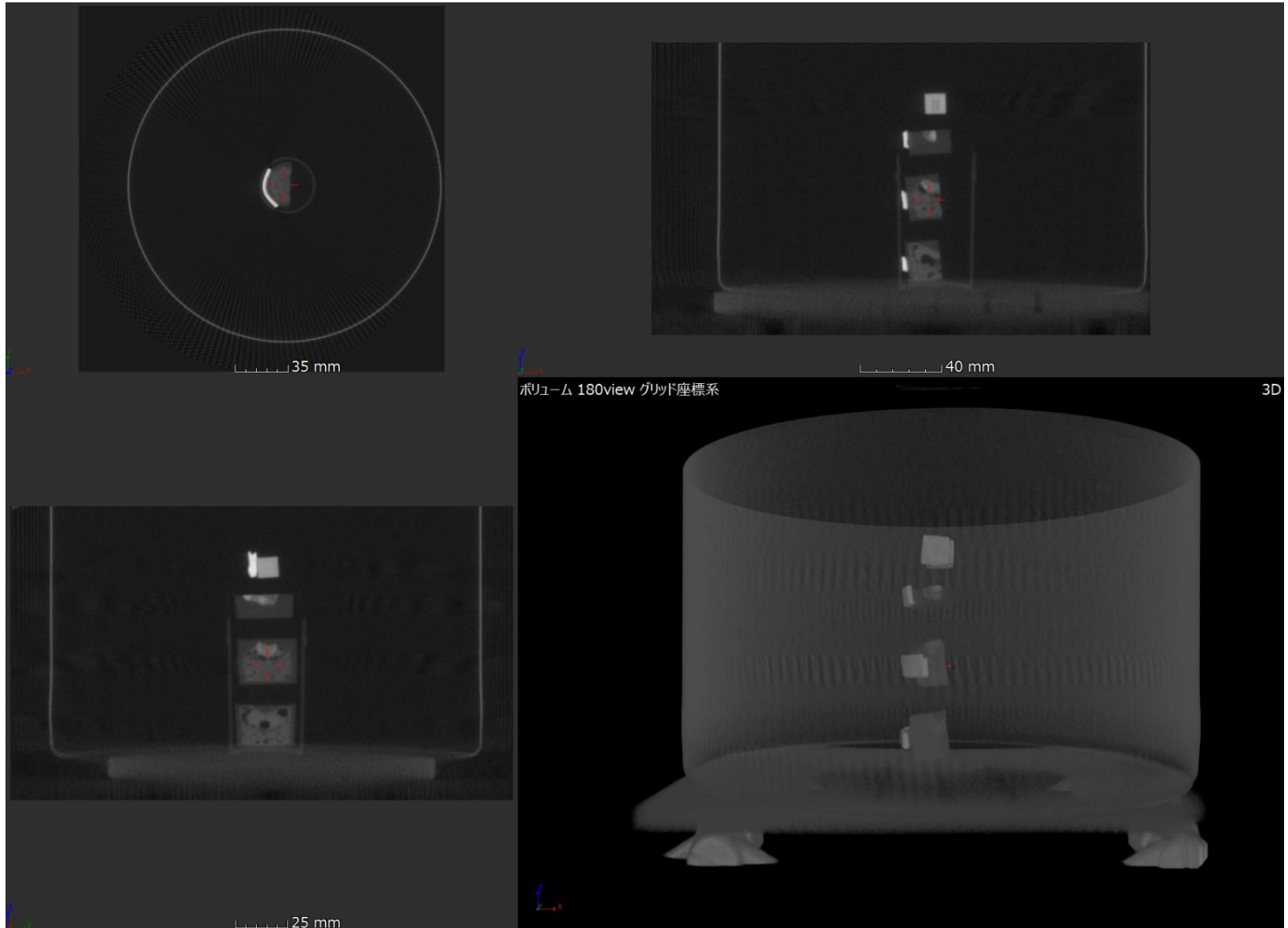
Fe層

3.95 MeV

模擬200mm直径収納缶燃料デブリ

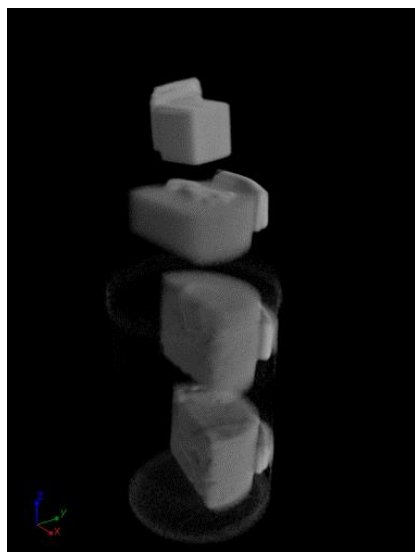


3.95MeV X線源による収納缶内CT結果

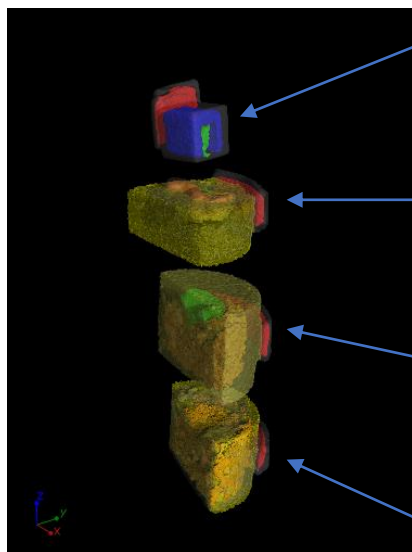


3.95MeV X線源による収納缶内CT結果

ワーク4種(収容缶なし) 3.95MV線源、22min撮影データ



ボリュームレンダリング画像

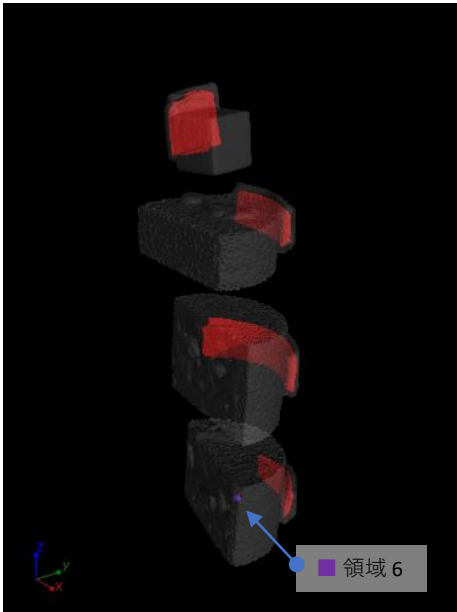


カラーマップ画像

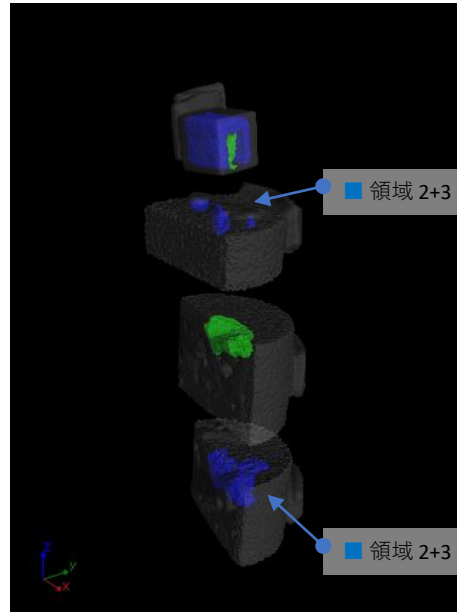
ワーク1. Pb + (Fe + Zr)	
総体積	1115.48mm ³
領域 1 Pb	輝度範囲 45044~65535、体積 235.60mm ³
領域 2 Fe	輝度範囲 38175~43522、体積 361.21mm ³
領域 3 Zr	輝度範囲 32633~39100、体積 103.01mm ³
未確定体積	415.66mm ³
ワーク2. C10 conc/sus/Zr 2014 (Fe 50wt% + Zr 20wt% + コンクリート 30wt%)	
総体積	5216.57mm ³
領域 1 Pb	輝度範囲 41261~57855、体積 161.77mm ³
領域 2+3 Fe+Zr	輝度範囲 28197~38789、体積 68.86mm ³
領域 4 コンクリート	輝度範囲 19637~25919、体積 207.32mm ³
領域 5 包埋樹脂	輝度範囲 9328~19366、体積4591.19mm ³
未確定体積	187.43mm ³
ワーク3. conc/Zr #1 2014 (Zr 100wt% + コンクリート + 包埋樹脂)	
総体積	8427.31mm ³
領域 1 Pb	輝度範囲 38042~59085、体積 338.56mm ³
領域 3 Zr	輝度範囲 19242~29666、体積 216.90mm ³
領域 4 コンクリート	輝度範囲 14184~20914、体積1855.54mm ³
領域 5 包埋樹脂	輝度範囲 11210~33092、体積5559.03mm ³
未確定体積	457.28mm ³
ワーク4. L11 N 1611 (Fe 15wt% + Zr 75wt% + (Gd + PGM 10wt%) + コンクリート + 包埋樹脂)	
総体積	7899.75mm ³
領域 1 Pb	輝度範囲 42211~61792、体積 142.18mm ³
領域 2+3 Fe+Zr	輝度範囲 18794~22303、体積 292.09mm ³
領域 4 コンクリート	輝度範囲 14534~22303、体積2616.57mm ³
領域 5 包埋樹脂	輝度範囲 7896~22378、体積3332.18mm ³
領域 6 Gd+PGM	輝度範囲 29788~41801、体積 1.89mm ³
未確定体積	1514.84mm ³

3.95MeV X線源による収納缶内CT結果

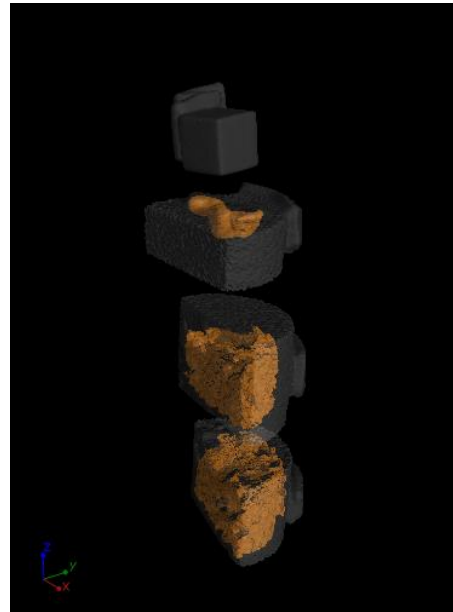
ワーク4種(収容缶なし) 3.95MV線源、22min撮影データ



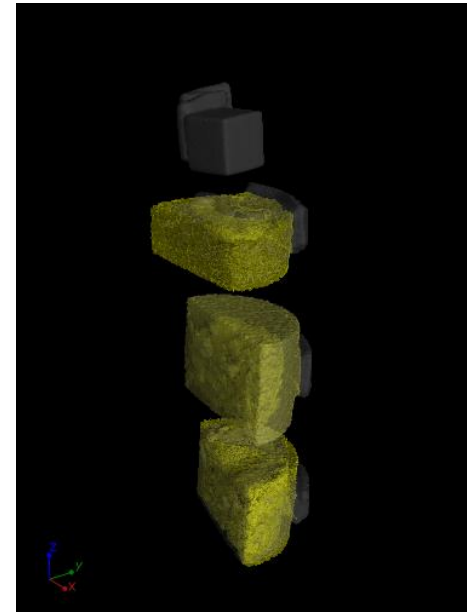
■ 領域 1 Pb
■ 領域 6 Gd+PGM



■ 領域 2 Fe
■ 領域 3 Zr
■ 領域 2+3 Fe+Zr



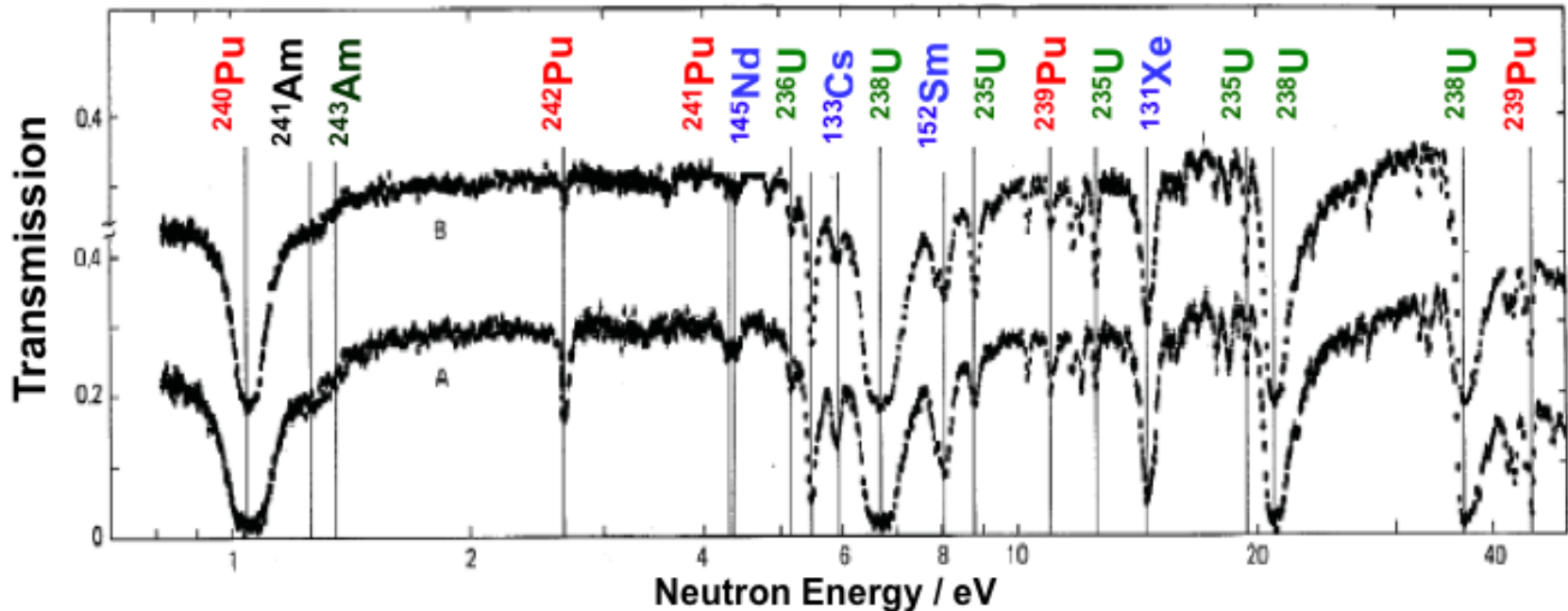
■ 領域 4 コンクリート



■ 領域 5 包埋樹脂

中性子による分析

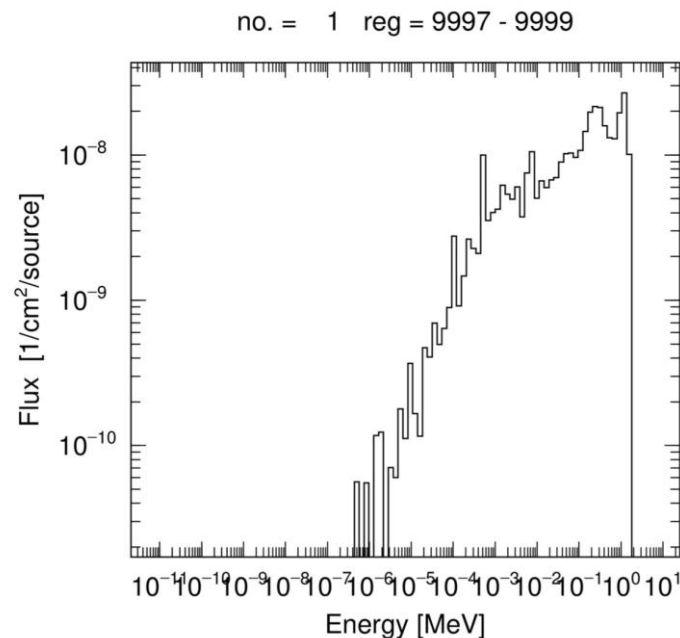
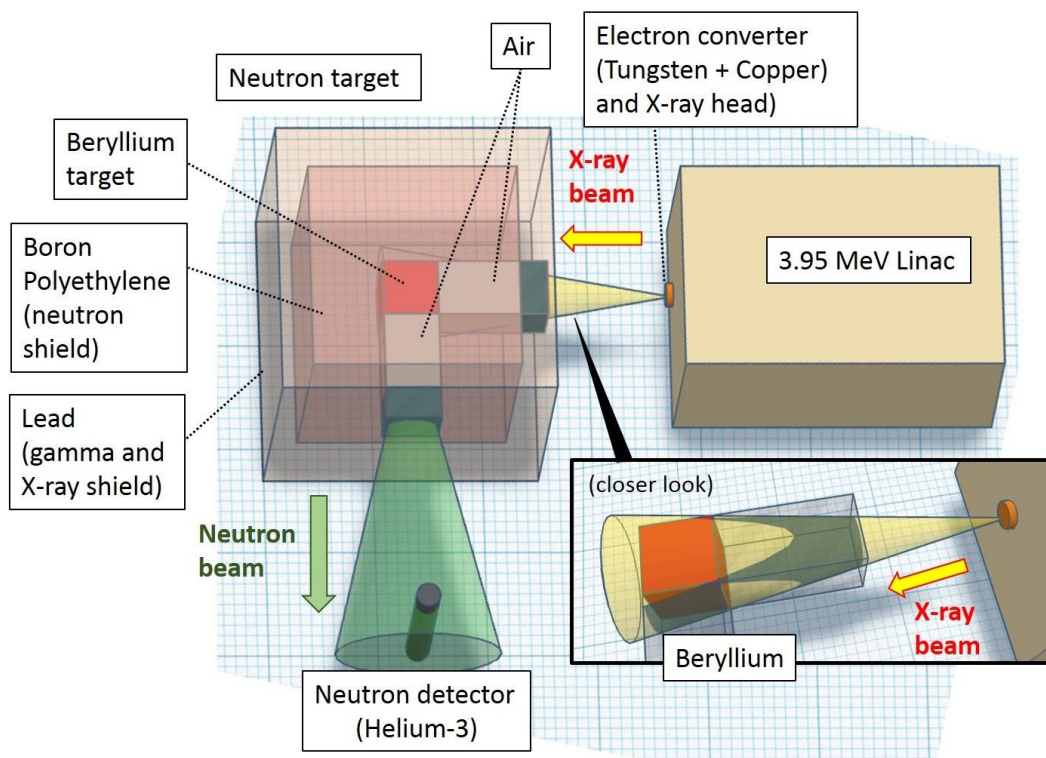
元素分析手法 - 中性子による分析



- ・ 同位体によって中性子のエネルギーごとに異なる吸収ピークを有する
→ サンプル透過中性子のエネルギーを測定することで内部の核物質測定ができる
(中性子共鳴透過分析, NRTA)
- ・ ウランやプルトニウムは比較的低い中性子エネルギーにも共鳴を持つ
→ 小型中性子源システムによる短距離TOFで識別が可能

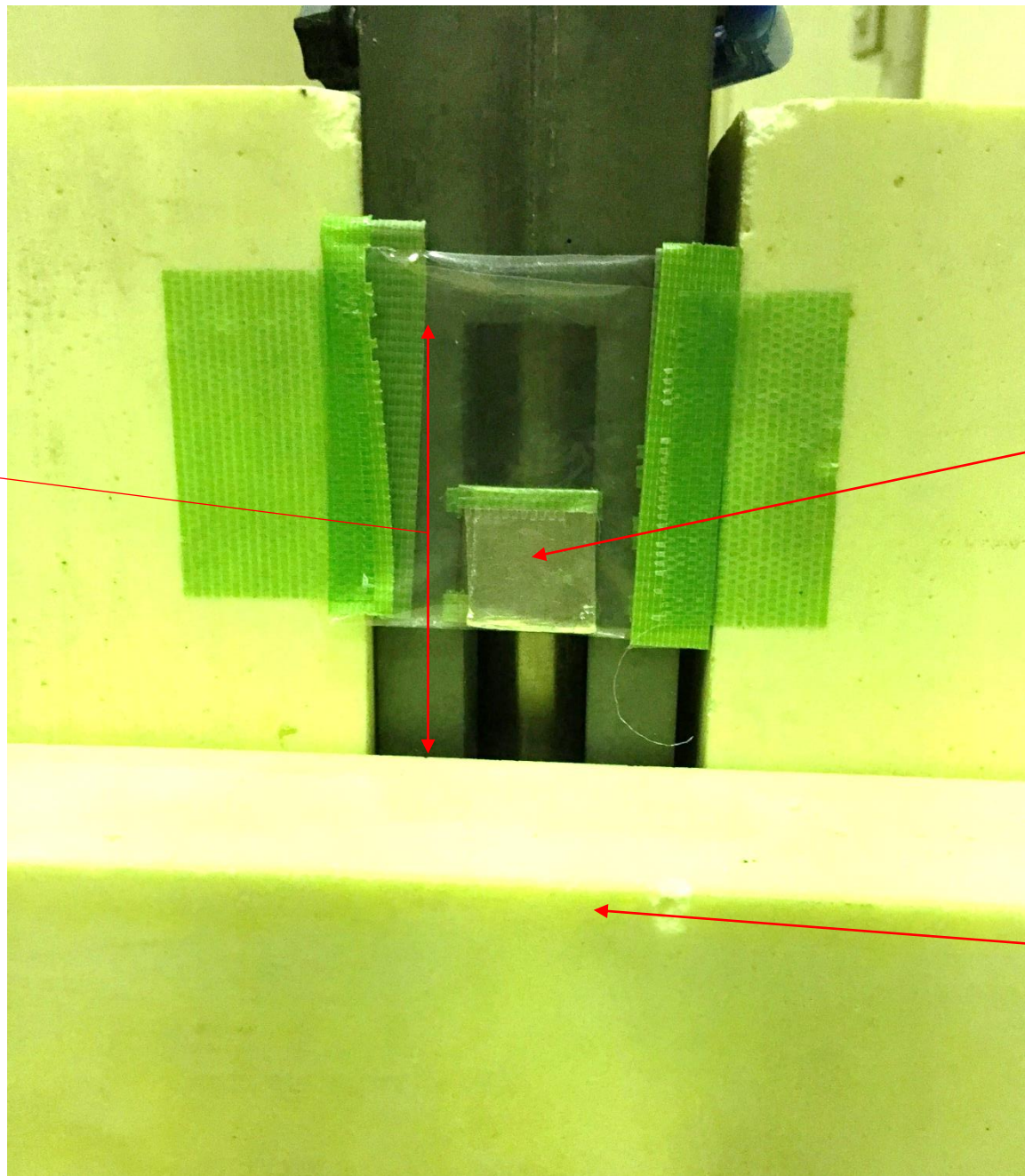
3.95MeV X線源 + ベリリウムによる中性子源

光核反応による中性子発生



最大中性子生成率 3.38×10^7 n/s
(計算値)

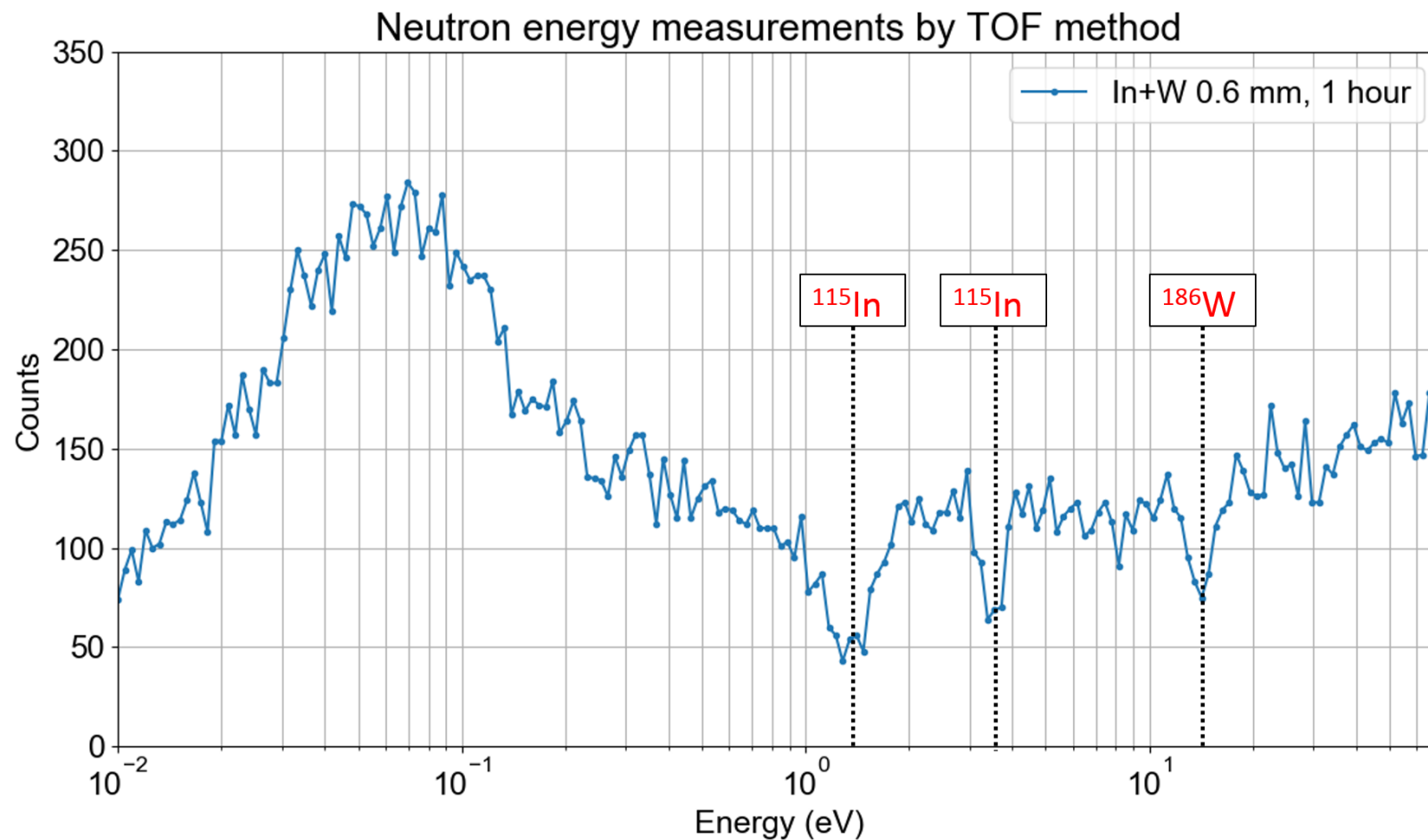
Detector
window



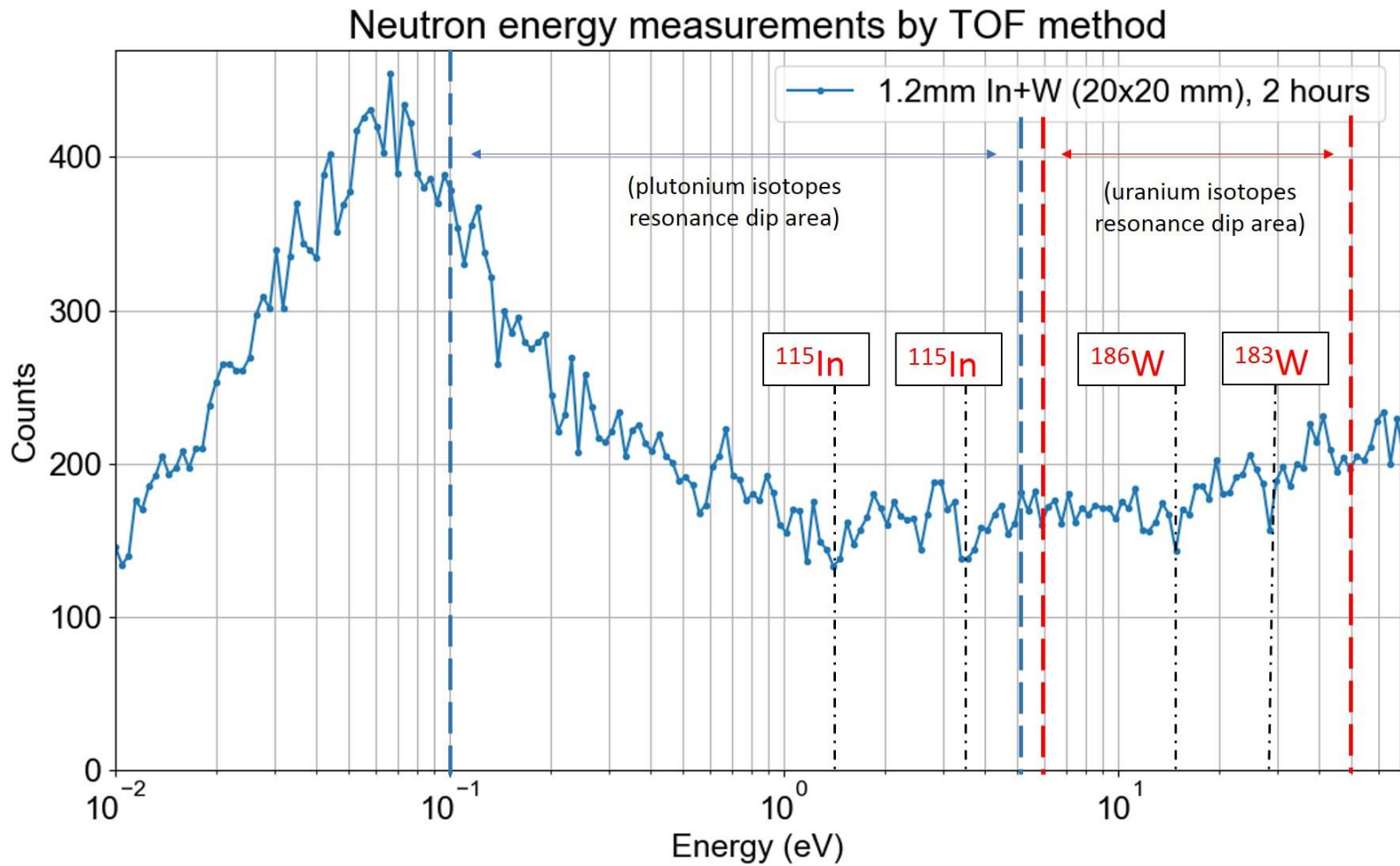
20x20
mm
sample
(indium+
tungsten)

Boron
block

インジウム+タングステン 100x100x0.6mm³厚

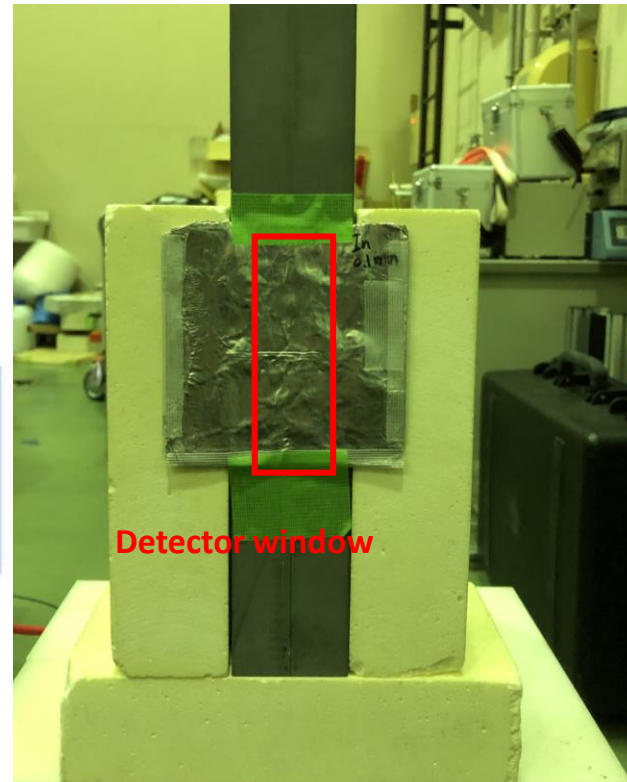
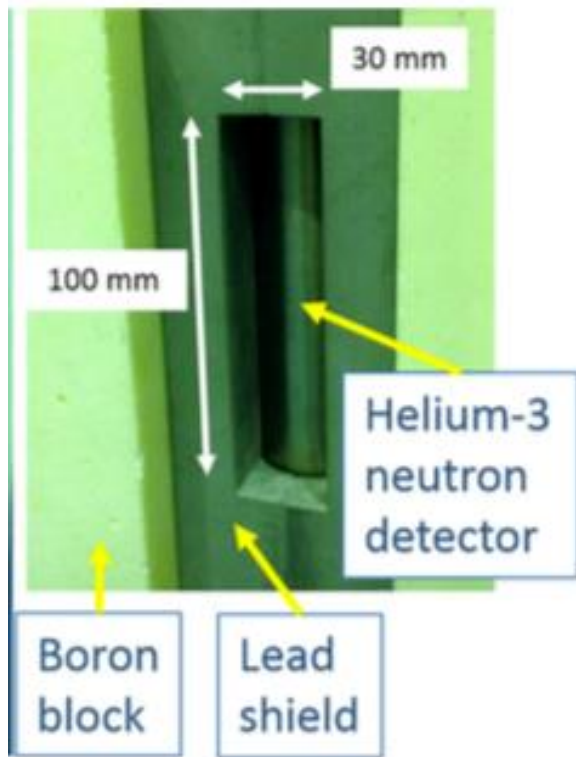


1.2mm厚, 20mm × 20mmサンプル

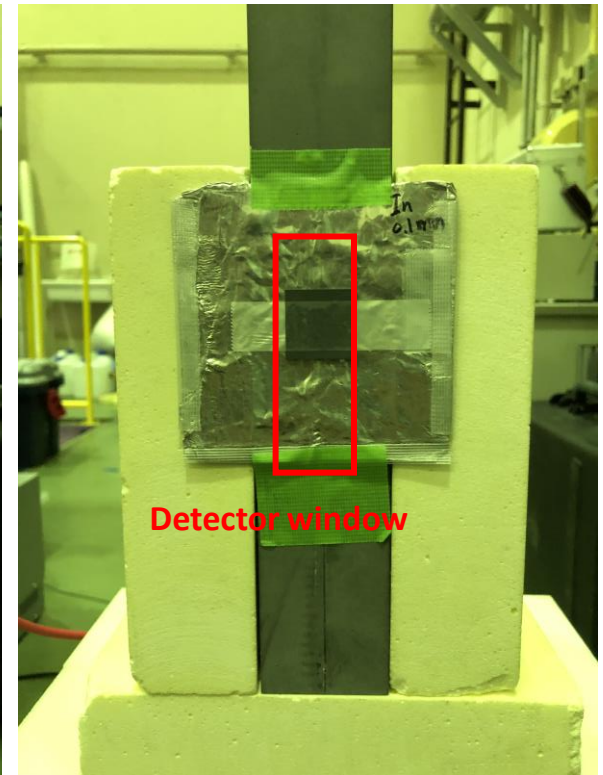


臨界安全のための注入Bの影響の評価

U/Pu模擬試料にB試料を添付し、
中性子共鳴吸収TOR測定を実施。
中性子共鳴の井戸波形への影響を評価。

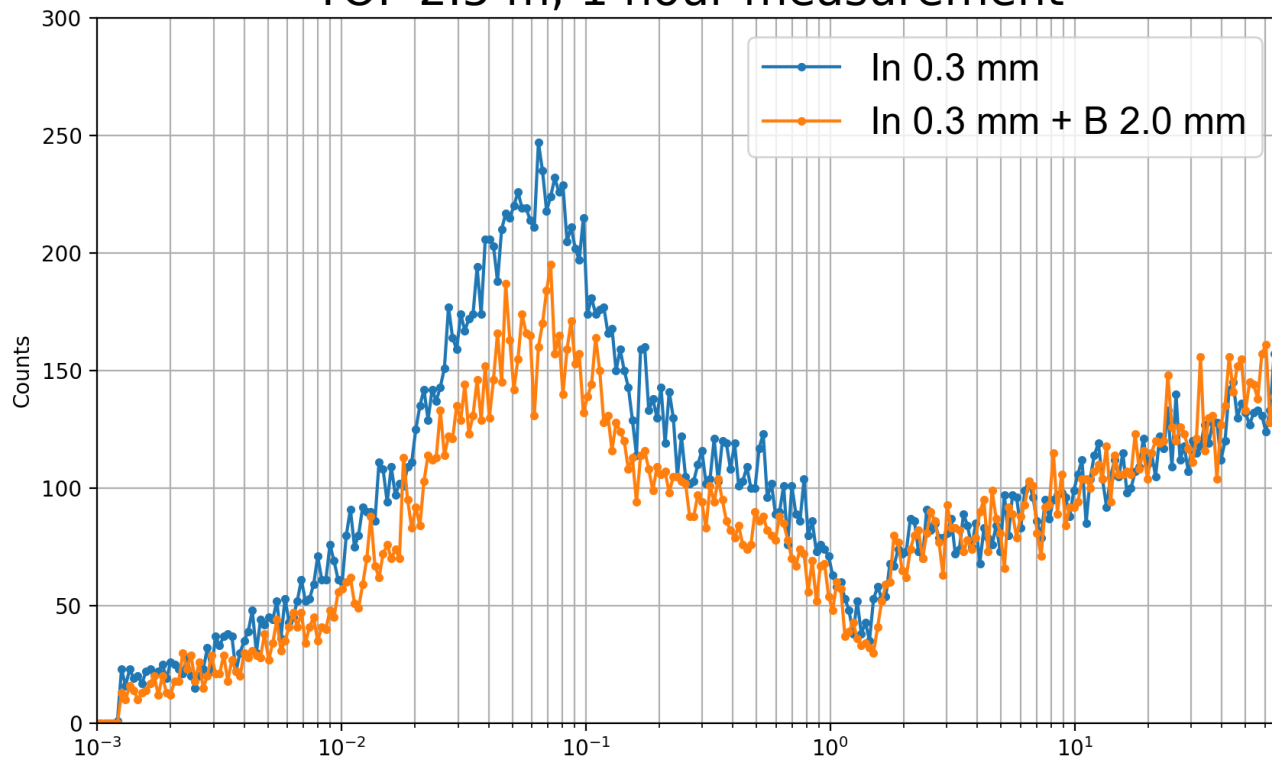


Indium 0.3 mm^t

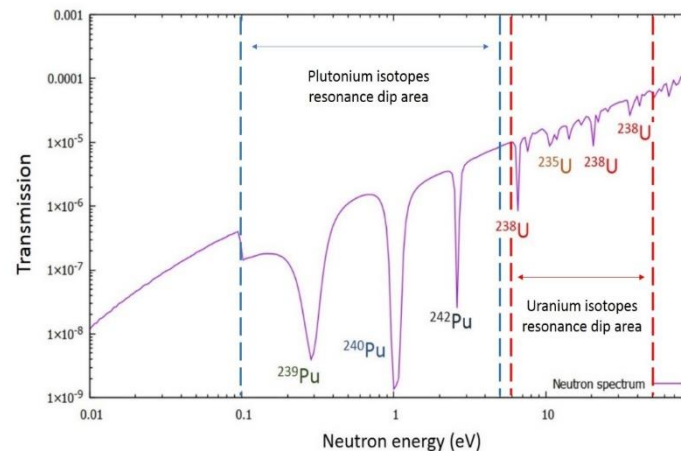


Indium 0.3 mm^t
Boron 2.0 mm^t

TOF 2.5 m, 1 hour measurement



NRTA simulation spectrum of Uranium-Plutonium mix sample



Bによる中性子吸収は
1eV以下で顕著。

Uの吸収にはほとんど
影響なし。

Puの吸収の井戸は浅く見える。

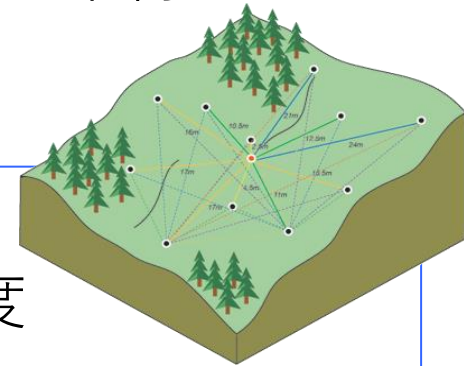
燃料デブリ用3次元クリギング手法の開発と応用

燃料デブリ用3次元クリギング手法の開発

燃料デブリの安全な取り出しに資するために、燃料デブリ内の物理・化学指標の分布（マップ）を推定する、地球統計学手法のコードを開発する。具体的には、**クリギングと呼ばれる手法**を用いて、**デブリの性状マップ**を作成する。加えて、このクリギングを燃料デブリの**計量管理に用いる方策**を検討する。

クリギングとは

- 空間的に離散したデータの内外挿手法で、鉱山採掘技術から発達
 - 限られたボーリング・サンプリング点から、山という大きなスケールの鉱床の分布を推定する必要があった
- 地球物理など、様々な分野で使用されている、近年特に発達した統計学の一分野で、原子力への応用例もある
 - 廃止措置を行った原子力施設の空間線量率分布、etc



使用方法

- デブリ塊中のある物理・化学的な指標Aの濃度 (C_A とする) を知るためにサンプリングを行う。
- サンプリング点の内外挿にクリギングを用いる。
 - Aのサンプリング点のみの情報で C_A の分布を推定
→通常クリギング
 - 精度を上げようとした時に、欲しいAと相関を持つ量Bを組み合わせて、そのBの濃度 (C_B とする) の分布情報 (=ソフトデータ) を補助的に使い、 C_A のより確からしい分布を求める
→外生ドリフト・クリギング

クリギング計算コードの開発

計算コード開発の目的

- 少ないサンプリングデータから、デブリ内核物質質量分布を得る手法を開発する
 - クリギング手法を適用し、その実行可能性を検討する
- 外生ドリフトデータが所与の場合に、それを取り込んだ外生ドリフトクリギングの有効性を検討する

計算コードが必要とする重要な機能

1. バリオグラム計算
 - ◆ クリギング計算を行う上で重要となるサンプリング間の類似度に関連した指標を計算する
2. クリギング計算
3. 外生ドリフト計算

以上を踏まえて計算コードの開発を行った

テスト計算

製作した計算コードのテスト計算を行った。計算方法と計算条件は以下の通り：

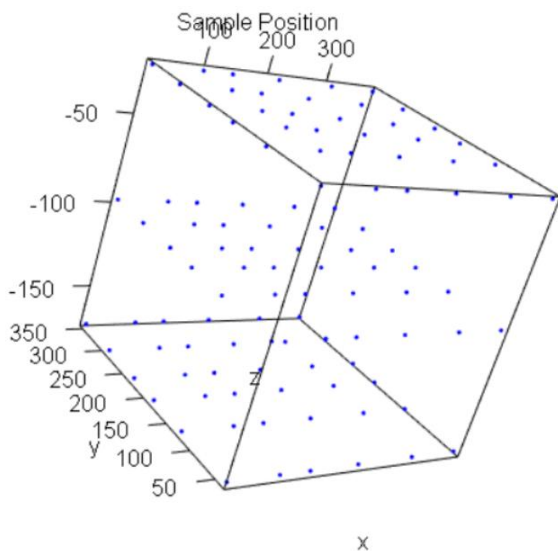
計算方法

- 予め「真値（核物質質量分布）」を用意し、サンプリングデータを作成する
- 別途、外生ドリフトデータ（本検討では数値化された色情報を想定）を用意する
- 外生ドリフトデータ無と有の場合の結果を真値と比較・検討する

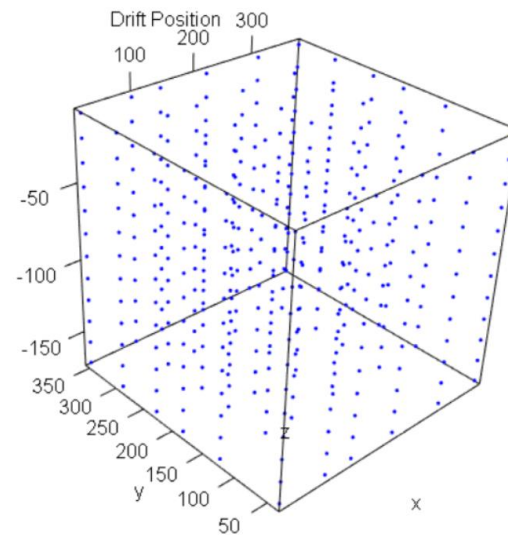
計算条件

- デブリの大きさは $405 \times 405 \times 195$ (cm)
- デブりを $27 \times 27 \times 13 = 9477$ のメッシュに分割する
- サンプリング点を $6 \times 6 \times 3 = 108$ 点とする
- 外生ドリフトデータ点を $6 \times 6 \times 12 = 432$ 点とする
- 球形バリオグラムモデルを用いる

サンプリング点と外生ドリフトデータ点



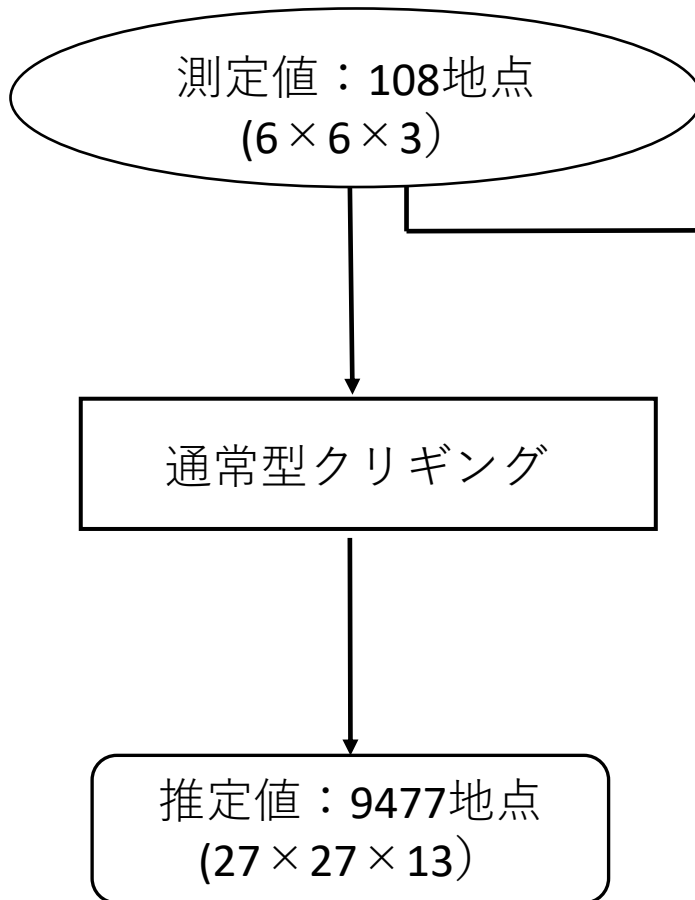
サンプリング点



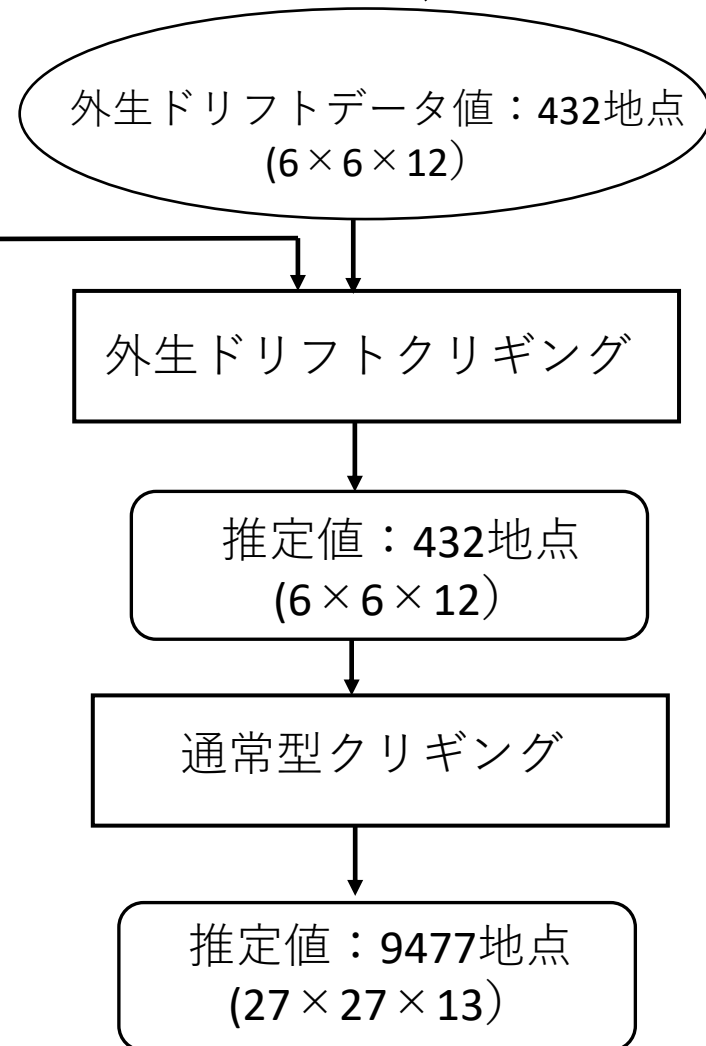
外生ドリフトデータ点

計算ケースと計算の流れ

ケース1 (外生ドリフトデータ
なし)



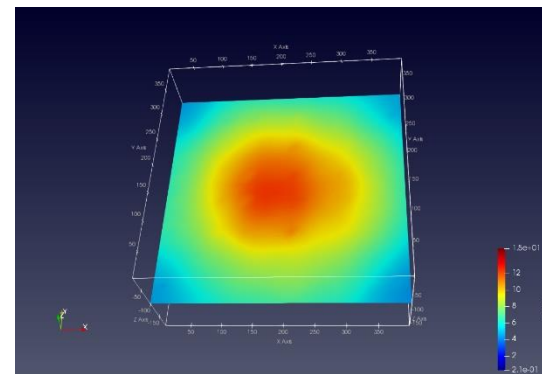
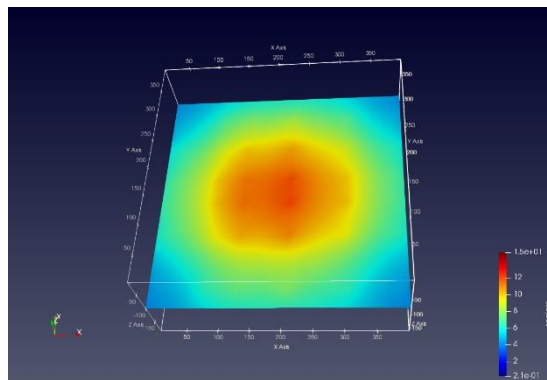
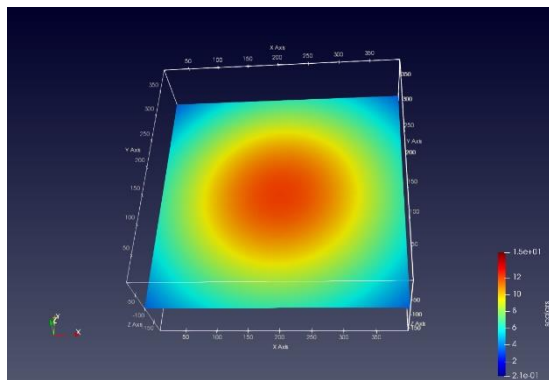
ケース2 (外生ドリフトデータ
あり)



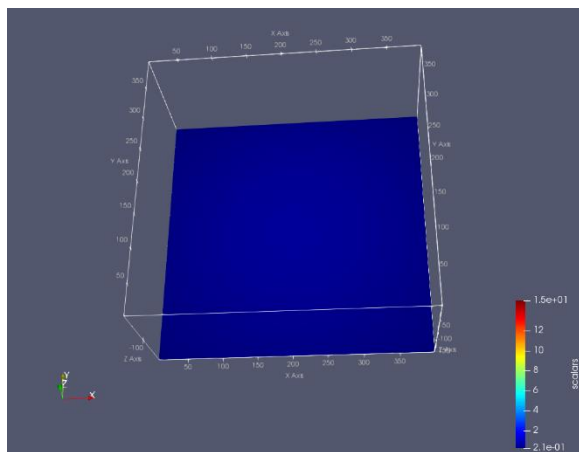
計算結果（例）

デブリ中核物質量の2次元分布図の比較

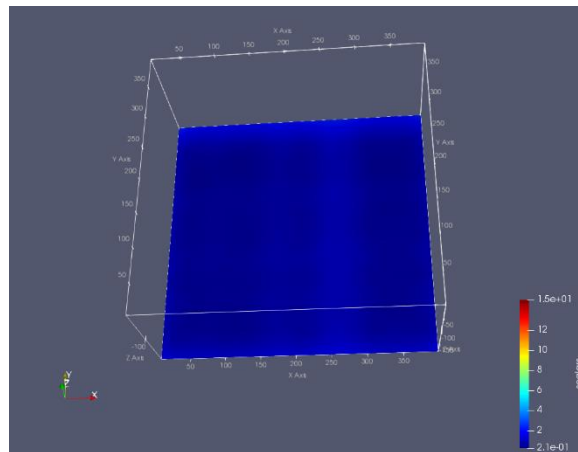
Z=-97.5



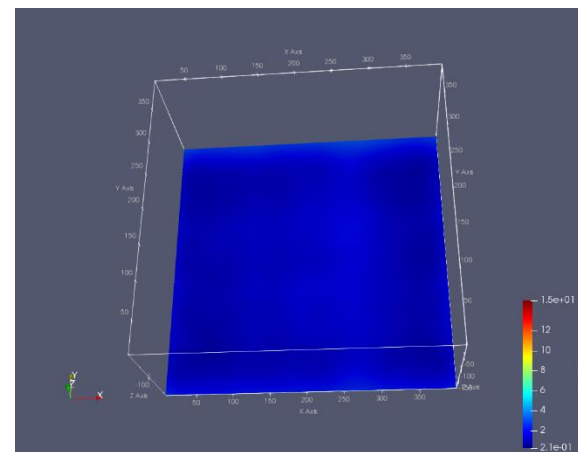
Z=-187.5



真値

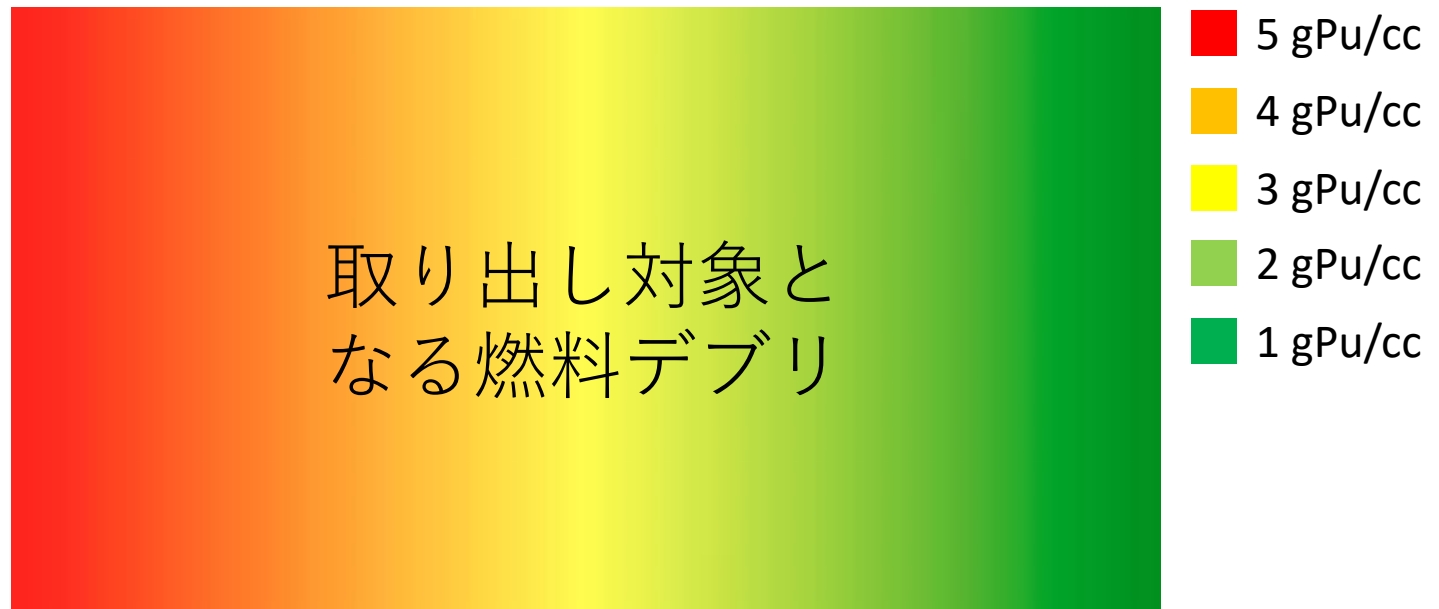


推定値(ケース1)

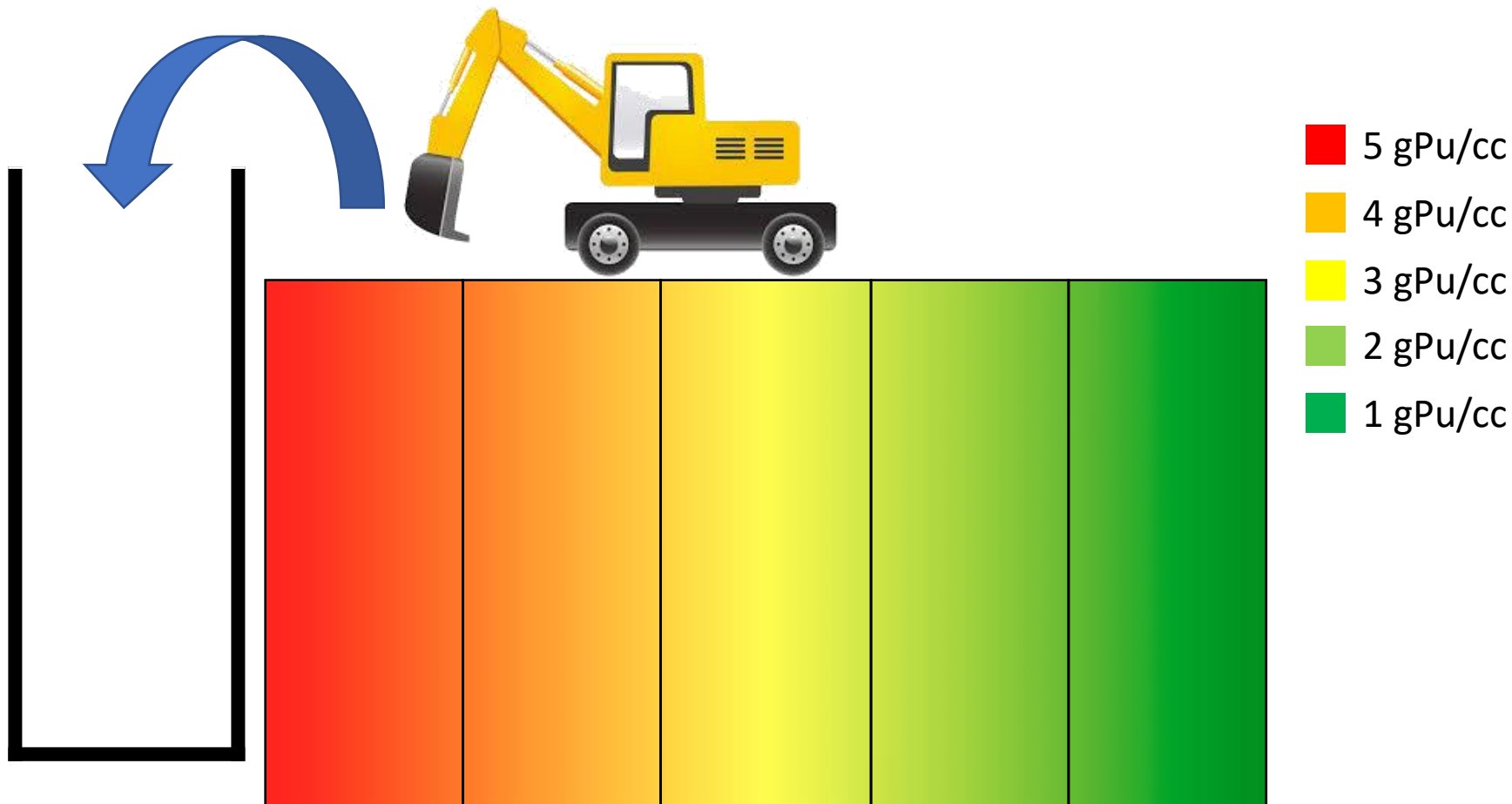


推定値(ケース2)

デブリ性状を踏まえた計量管理手法への適用検討

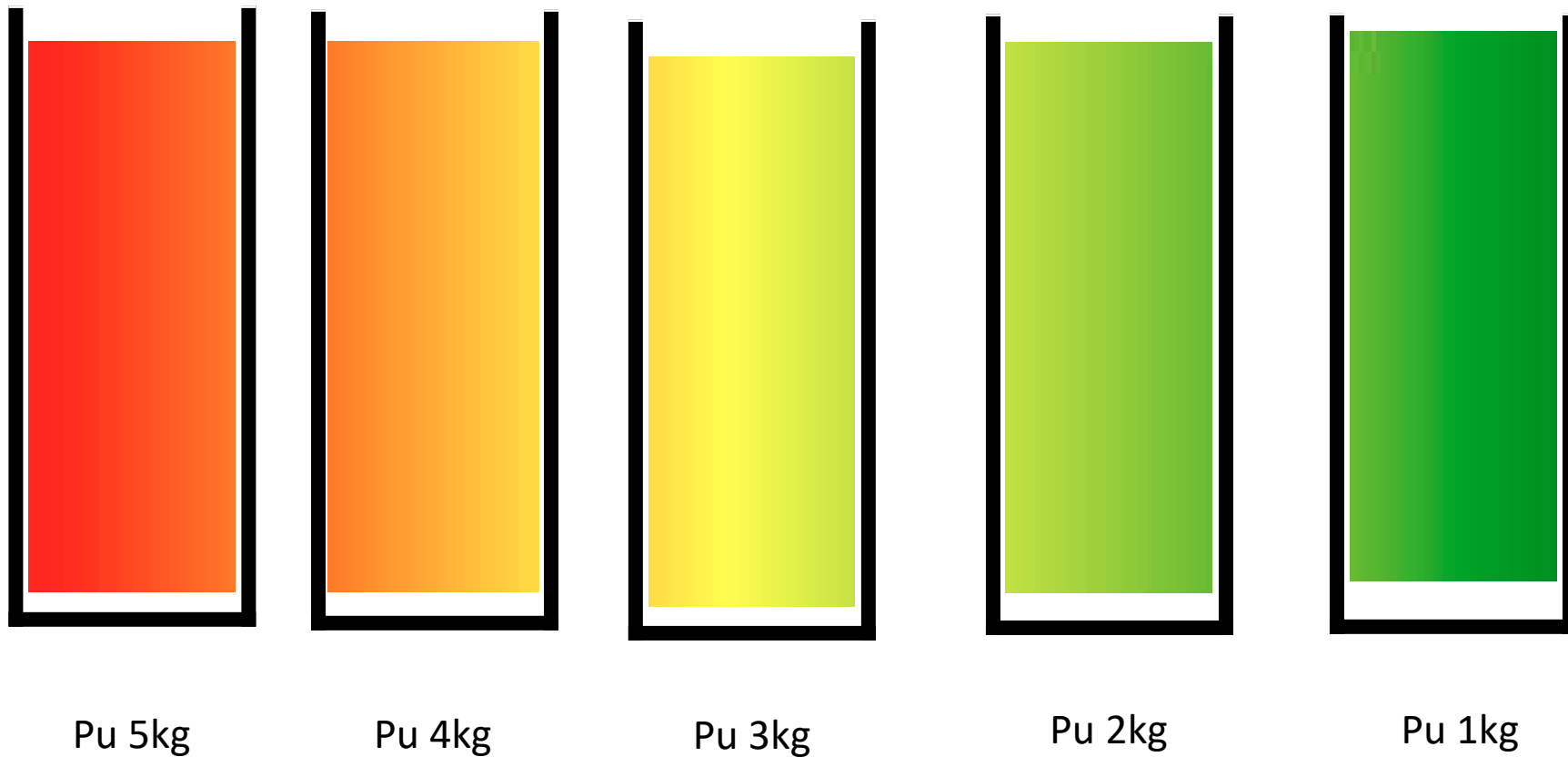


- クリギング計算によりPu含有率の分布が得られた場合を想定
- Uであっても手法は同じ



Pu含有率分布が自明なので、
取出し位置を記録しておくだけ。

仮に収納缶の容積が 1000 cc ならば...



デブリ取出しの時点で大よその核物質量が推定できる



計量管理報告値に用いる

計量管理手法への適用検討結果

計量管理手法	難易度（相対値）	課題	クリギング使用の有無	計量管理値の不確かさ（相対値）
炉心計算	非常に簡便	不確かさが大きい。 MUF が膨大となる可能性	無し	大
核物質質量分布 クリギング	簡便	コアボーリングサンプリングデータが必要	有り（核物質質量分布導出）	中
簡易ガンマ NDA	中程度	Eu-154 の揮発性確認	有り（燃焼度分布導出）	小
簡易中性子 NDA	中程度	中性子吸収剤の影響の排除	有り（燃焼度分布導出）	小
詳細中性子 NDA	難しい	中性子吸収剤の影響の排除	有り（燃焼度分布導出）	非常に小

ご清聴ありがとうございました