

令和4年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業

原子力システム研究開発事業

可搬型 950keV/3.95MeV X線・中性子源による
福島燃料デブリウラン濃度評価・仕分けと
レギュラトリサイエンス

成果報告書

令和5年3月

国立大学法人 東京大学

本報告書は、文部科学省の原子力システム研究開発事業による委託業務として、国立大学法人 東京大学が実施した令和 2 年度～令和 4 年度「可搬型 950keV/3.95MeVX 線・中性子源による福島燃料デブリウラン濃度評価・仕分けとレギュラトリーサイエンス」の成果を取りまとめたものです。

目次

概略	v
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	2-1
3. 業務の実施内容および成果	
3.1 2色X線CT・中性子実験	3-1
3.1.1 2色X線CT 数値解析【R2-R4】（再委託先：福島大学 R3-R4）	3-1
3.1.2 模擬デブリでの2色X線CTとNRTA【R2-R4】	3-36
3.1.3 実機装置システムの基本設計【R4】	3-52
3.2 成分溶融混合模擬燃料デブリの製作【R2-R3】	3-54
3.3 X線・中性子検出器の性能向上【R2-R4】	3-55
3.4 直線加速器の規制に関する検討【R2-R4】	3-58
3.5 研究推進【R2-R4】	3-59
4. 結言	4-1

表一覧

表 3-1	模擬燃料デブリ一覧	3-7
表 3-2	測定ケース一覧	3-7
表 3-3	実験条件	3-22
表 3-4	実験ケース一覧	3-23
表 3-5	各実験ケースの正解ラベル	3-23
表 3-6	模擬デブリを作成するのに用いられた溶解材	3-37
表 3-7	[950 keV] 各サンプルにおける模擬デブリのボクセル数および模擬デブリ中の Pb 領域のボクセル数	3-42
表 3-8	[3.95 MeV] 各サンプルにおける模擬デブリのボクセル数および模擬デブリ中の Pb 領域のボクセル数	3-45
表 3-9	Ta 試料厚さと検出精度の評価	3-49

図一覧

図 2-1	業務全体計画	2-1
図 3-1	2色X線CTシミュレーションによるCT画像輝度値を用いた物質識別の検討	3-3
図 3-2	多クラス分類器の構成	3-3
図 3-3	物質同定に関する作業の流れ	3-6
図 3-4	模擬燃料デブリ	3-7
図 3-5	模擬燃料デブリを縦方向に重ねた状態	3-8
図 3-6	各模擬燃料デブリのCT画像の一例(薄肉缶)	3-10
図 3-7	各模擬燃料デブリのCT画像の一例(厚肉缶)	3-12
図 3-8	0.95 MeV (左) と 3.95 MeV (右) のCTデータの比較	3-13
図 3-9	デブリの位置・角度に依存しない教師データの作成方法	3-14
図 3-10	校正用サンプルのCT画像	3-14
図 3-11	校正用サンプルの教師データの散布図	3-15
図 3-12	ワーク①の教師データの散布図	3-16
図 3-13	ワーク③の教師データの散布図	3-17
図 3-14	ワーク④の教師データの散布図	3-18
図 3-15	ワーク⑤の教師データの散布図	3-19
図 3-16	ワーク②の教師データの散布図	3-20
図 3-17	全模擬燃料デブリの教師データの散布図	3-21
図 3-18	予測精度(ケース1)	3-25
図 3-19	混同行列(ケース1)	3-25
図 3-20	決定境界(ケース1)	3-26
図 3-21	予測精度(ケース2)	3-27
図 3-22	混同行列(ケース2)	3-27
図 3-23	決定境界(ケース2)	3-28
図 3-24	予測精度(ケース3)	3-29

図 3-25	混同行列 (ケース 3)	3-29
図 3-26	決定境界 (ケース 3)	3-30
図 3-27	予測精度 (ケース 4)	3-31
図 3-28	混同行列 (ケース 4)	3-31
図 3-29	決定境界 (ケース 4)	3-32
図 3-30	予測精度 (ケース 4、SVM)	3-33
図 3-31	混同行列 (ケース 4、SVM)	3-33
図 3-32	決定境界 (ケース 4、SVM)	3-34
図 3-33	[950 keV] キャリブレーション用単体金属サンプルの CT 画像、およびその輝度値ヒストグラム	3-39
図 3-34	[950 keV] キャリブレーション用単体金属サンプルの CT 画像の輝度値ヒストグラムと、そこから設定した Pb の弁別閾値	3-40
図 3-35	[950 keV] 3 次元 CT の結果 (全模擬デブリ領域)	3-40
図 3-36	[950 keV] 3 次元 CT の結果 (Pb のみの領域)	3-41
図 3-37	[950 keV] スライス#400 (サンプル 2) における二値化画像 (白色ピクセル: 模擬デブリ領域)	3-41
図 3-38	[950 keV] スライス#400 (サンプル 2) における二値化画像 (白色ピクセル: Pb 領域)	3-42
図 3-39	[3.95 MeV] キャリブレーション用単体金属サンプルの CT 画像、およびその輝度値ヒストグラム	3-43
図 3-40	[3.95 MeV] キャリブレーション用単体金属サンプルの CT 画像の輝度値ヒストグラムと、そこから設定した Pb の弁別閾値	3-43
図 3-41	[3.95 MeV] 3 次元 CT の結果 (全模擬デブリ領域)	3-44
図 3-42	[3.95 MeV] 3 次元 CT の結果 (Pb のみの領域)	3-44
図 3-43	[3.95 MeV] スライス#400 (サンプル 2) における二値化画像 (白色ピクセル: 模擬デブリ領域)	3-45
図 3-44	[3.95 MeV] スライス#400 (サンプル 2) における二値化画像 (白色ピクセル: Pb 領域)	3-45
図 3-45	Ta 試料無しの場合と Ta 試料 3 mm の場合の計数值	3-48
図 3-46	Ta 試料 3 mm の場合の透過率と共鳴吸収ピークのフィッティング	3-48
図 3-47	Cs-137 線源がフラットパネル検出器に生じる局所バックグラウンド画像	3-51
図 3-48	Cs-137 線源 + 950 keV の一様照射によるフラットパネル検出器画像	3-51
図 3-49	2 色 X 線検査システムの実機設計	3-53
図 3-50	NRTA 検査システムの実機設計	3-53
図 3-51	二次元中性子検出器および個別ストリップ読み出し系	3-56
図 3-52	開発した二次元中性子検出器で得られた信号 (Sr-90 β 線源での評価)	3-57

略語一覧

- CT : Computed Tomography (コンピュータ断層撮像)
- NRTA : Neutron Resonance Transmission Analysis (中性子共鳴透過分析)
- TOF : Time of Flight (飛行時間)
- EDS : Energy dispersive X-ray spectroscopy (エネルギー分散型 X 線分光器検出器)
- SEM : Scanning Electron Microscope (走査電子顕微鏡)
- FPGA : Field Programmable Gate Array (フィールド・プログラマブル・ゲート・アレイ)
- GOS : $Gd_2O_3:Pr$ (プラセオジウム賦活酸化ガドリニウム)
-
- LNI : $LiNaI_2$ (ヨウ化リチウムナトリウム)
- GEANT : Geomerty And Tracking (ジオメトリ・飛跡追跡)
- MCCI : Molten Core Concrete Interaction
(熔融炉心・コンクリート相互作用)
- 1F : Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (福島第一原子力発電所)
- SUS : Stainless steel (ステンレス鋼)
- G-GEM : Glass Gas Electron Multiplier (ガラスガス電子増幅器)
-
- SVM : Support Vector Machine (サポートベクタマシン)
- IGZO : Indium-Gallium-Zinc-Oxide (インジウム-ガリウム-亜鉛-酸素)
- TFT : Thin-Film Transistors (薄膜トランジスタ)
- PCV : Primary Containment Vessel (原子炉格納容器)
- NDF : Nuclear Damage Compensation and Decommissioning Facilitation Corporation (原子力損害賠償・廃炉等支援機構)

概略

福島第一原子力発電所において取り出された燃料デブリを現場で分析することによってウランの含有量等が迅速に判定できれば、ウランを含む核廃棄物とそれ以外の放射性廃棄物に仕分けするなどの合理的な保管管理が可能となり、非常に大きなコスト削減になる。また計量管理の面でも資することが可能になる。

本研究では、燃料デブリをその場で成分分析するシステムの開発とその実証を目的とした。特に、可搬型小型加速器 X 線源に基づいた 2 色 X 線 CT、および同加速器に基づく小型中性子源による中性子共鳴透過分析のシステムを提案する。X 線源としては最大エネルギーが 950 keV のものと 3.95 MeV の 2 種類を用いて 3 次元 CT を実施する。また、3.95 MeV 機に Be ターゲットを組みわせることによって中性子源とすることができ、これを用いて短距離 TOF 測定による NRTA システムを提案し、これを用いた試験を実施する。測定に用いる模擬デブリとしては U を模擬した物質と原子炉構造材料を用いて作成する。また、これらのシステムを福島第一原子力発電所の現場において使用するためのレギュラトリエンスを実施する。福島第一原子力発電所の現場環境を模擬した条件下での実証試験を実施する。

X 線 CT における模擬デブリに関しては、原子番号が大きい密度の高い物質ほど X 線の線減弱係数が大きく、したがって U の模擬物質として Pb を選んだ。Pb を、Fe・Zr・コンクリート構成物質である SiO₂ などの原子炉構造材料と熔融混合させて模擬デブリを作成した。この模擬デブリを模擬収納管内に格納して、3 次元コーンビーム CT を実施した。X 線源は 950 keV 機、3.95 MeV 機の 2 色を用いた。この X 線 CT の結果より、Pb の含まれる量の定量的な評価を実施した。また、2 色の異なるエネルギーによる CT 画像の違いを利用して、機械学習的手法を用いた成分分析を実施した。

また、中性子による分析では、U-238 と近い共鳴吸収ピークを有する Ta を模擬物質として用いた。U-238 の共鳴吸収ピークは 6~7 eV に存在するため、比較的遅い中性子の測定となるため短距離の TOF 測定であっても NRTA が可能である。特に本研究では現場の空間的制限を考慮した 1 m の超距離での TOF 測定で NRTA を実施した。模擬デブリとしては、Ta 試料を用いている。Ta-181 は天然存在比 99.9 %で 4 eV 近傍に共鳴吸収ピークを持ち、反応断面積も約 10⁴ barn と U-238 のそれに近い。結果として Ta-181 の共鳴吸収ピークを計測し、超短距離 NRTA の実証に成功した。

また、現場適用型実機システムの基本設計を実施した。現場の測定環境では、空間が制限される。そこで、システムを 3 m 四方の領域に格納するような設計を行った。また、950 keV 機と 3.95 MeV 機の X 線ヘッドを並列に設置して、切り替えを迅速に行うことで、迅速に 2 色 X 線 CT を実施する設計とした。また、3 m 四方の領域に Be ターゲットステーションを設置することで NRTA システムに切り替えることが可能となった。

本研究では X 線・中性子検出器の高性能化を実施した。X 線検出器としては従来のフラットパネル検出器はシンチレータの厚さの点で高いエネルギーの X 線に対して検出効率が低かった。そこで本研究では厚いセラミック GOS シンチレータを用いた X 線フラットパネル検出器を新たに開発し、これを用いて X 線 CT 実験を実施した。また、中性子検出器については、He-3 比例計数管の並列化、および二次元の高分解能な中性子検出器の開発を実施した。

レギュラトリエンスの面では、福島第一原子力発電所の現場における加速器の使用に向け

た協議を関係機関との間で続けてきた。また、福島第一原子力発電所の現場環境を模擬した状態での試験を実施した。福島第一の現場では空間線量が高いと考えられる。この状態が X 線画像に与える影響を評価するために、Cs-137 の線源を用いてバックグラウンド線量のある状態を作り、X 線が生じる画像に対しての影響を定量的に評価した。

また、研究期間を通して、定期的な関係者打ち合わせを実施した。また、研究成果については学会発表を実施した。

1. はじめに

福島第一原子力発電所の廃炉ロードマップにおいては、今後燃料デブリの試験的取り出しが開始され、段階的に取り出し規模を拡大していくことが計画されている。取り出された燃料デブリは、ユニット缶に収納の上、ステンレス製の収納管に収納保管される計画である。1, 2, 3 号機に合計 1800 t 程度ある燃料デブリを取り出すにあたっては、大規模な保管容器と保管面積が必要となると想定されるが、取り出された燃料デブリについてその場でその成分（ウラン含有量等）を迅速に判定することができれば、ウランを含む核廃棄物とそれ以外の放射性廃棄物とに仕分けするなどの合理的な保管管理が可能となり、非常に大きなコスト削減になると考えられる。ウラン含有量を推定することによって、再臨界リスクのない程度で合理的な保管を行い、また計量管理の面でも資することが可能になる。

本研究課題においては、現場において取り出された燃料デブリの成分分析を行うことのできるシステムの開発を目指して、可搬型小型加速器 X 線源に基づく 2 色 X 線 CT、及び同加速器に基づく小型中性子源による中性子共鳴透過分析のシステムを提案する。可搬型小型加速器 X 線源は、X 線エネルギーが最大 950 keV の 950 keV X 線源、及び最大 3.95 MeV の 3.95 MeV X 線源の二種類がある。それぞれを用いて三次元 CT を実施し、直径 200 mm 程度のユニット缶中の模擬燃料デブリに関して 5 分以内での計測実施、10 分以内での成分判定を行うことを目標とする。また、3.95 MeV X 線源はベリリウムターゲットと組み合わせることによって中性子発生装置とすることが可能である。中性子飛行時間 (TOF) 法によって中性子のエネルギーを測定し、ある同位体に特徴的な中性子の共鳴吸収ピークを測定する方法を、中性子共鳴透過分析 (NRTA) という。3.95 MeV 加速器に基づく中性子源による中性子共鳴透過分析 (NRTA) システムを、U-238 の検出に最適化し、中性子飛行時間距離を 1 m に限定した超短距離 NRTA システムを実現し、数 cm の燃料デブリに対して 1 時間以内で測定を行うことを目標とする。この 2 色 X 線 CT と NRTA による測定システムを同時にユニット缶 1 つあたり 1 時間以内で行い、ウランの有無のその場での判定を行い、仕分けをできるシステムの基本設計を行う。

2. 業務計画

2.1 全体計画

本業務の全体計画を図 2-1 に示す。

研究開発項目		R2年度	R3年度	R4年度
(1) 2色X線CT・中性子実験	①2色X線CT数値解析 (R2:東京大学 R3,4:福島大学)		2色X線CTの数値解析	
	②模擬デブリでの2色X線CTとNRTA (東京大学)	模擬デブリを用いた2色X線CTとNRTAの実験		模擬物質の判定精度の評価 現場模擬環境での実証試験
	③実機装置システムの基本設計 (東京大学)			現場適用型実機システム基本設計
(2)成分溶融混合模擬燃料デブリの製作 (東京大学)		模擬デブリの製作と観察、(1)への提供		
(3)X線・中性子検出器の性能向上 (東京大学)		NRTA測定系の高速化		二次元中性子検出器の開発
(4)レギュラトサイエンス (東京大学)		現場試験に関する関係者協議の実施		現場模擬環境での実証試験
(5)研究推進 (東京大学)			関係者打合せ・学会発表	

図 2-1. 業務全体計画

..

3. 業務の実施内容及び成果

3.1 2色 X 線 CT・中性子実験

3.1.1 2色 X 線 CT 数値解析【R2-R4】

【令和2年度及び3年度の成果】（R3 再委託先：福島大学）

令和2年度は、950 keV / 3.95 MeV X線源による2色X線CTの数値解析を、ここまでの1F1, 2, 3号機からの燃料デブリ分析から得られる U/Zr/Fe/Cr/コンクリートの混合比を想定して行った。この結果より、想定した混合比の部分の平均原子番号と、950 keV X線の減弱係数、3.95 MeV X線の減弱係数、およびその比との関係の校正曲線を作成し、実験に活用した。

令和3年度は、燃料デブリ内のウラン含有量を迅速に判定するための技術開発の一環として、モンテカルロ計算コードを用いて、模擬燃料デブリ（単体金属）に対して950keV/3.95MeVのX線を照射した場合のLNIシンチレータの吸収エネルギーを計算した。また、鉛フィルター及びLNIシンチレータの前後にpoint detectorを設置してスペクトルを求めた。また、GEANT4を利用したモンテカルロシミュレーションによって、混合物の模擬燃料デブリに対してCT撮像シミュレーションを実施し、物質密度とCT輝度値（線減弱係数）の相関を確認した。

【令和4年度の成果】（再委託先：福島大学）

[1] はじめに

[1-1] 作業概要

福島第一原子力発電所では、2021年より燃料デブリの試験的取り出しを開始し、その後、段階的に取り出し規模を拡大していくことが計画されている。取り出した燃料デブリは、ユニット缶（直径約200mm、SUSメッシュ）に収納のうえ、ステンレス製の収納缶に収納保管される計画である。燃料デブリは、1,2,3号炉に合計数百から千トン存在すると推定され、全てを保管するには大規模な保管施設が必要である。

燃料デブリについてウランを含む核廃棄物と含まない放射性廃棄物に仕分けすることができれば、それぞれ収納缶格納施設と保管施設に別々に保管することができ、保管施設に係る費用を大幅に削減することができる。

本作業では、燃料デブリ内のウラン含有量を迅速に判定するための技術開発の一環として、950 keV/3.95 MeVの2色X線CTを用いて、燃料デブリに含まれる物質を同定する手法について検討する。

[1-2] 作業項目

本作業では、以下の作業項目を実施する。

物質同定手法の検討（[2]項）

模擬燃料デブリに対する物質同定手法の適用実験（[3]項）

各作業項目の詳細については、次項以降で報告する。

[2] 物質同定手法の検討

[2-1] 多クラス分類による物質同定方法

まず、2色X線CTシミュレーションを実施した。各CT画像から幾つかの位置をサンプリングし、物質の情報（既知の情報）を手動でアノテーションした。また、取り出した位置での0.95 MeVおよび3.95 MeVのCT画像の輝度値を、それぞれ横軸、縦軸にとってプロットし、また物質に応じた配色を行った。これらの結果を図3-1に示す。この結果から、各マテリアルが二次元マップ上で分離されることがわかった。2色X線CTの画像輝度値を特微量に取って機械学習に掛けることで、物質識別が可能になることが示唆された。

燃料デブリの2色X線CTから2つの輝度値（線減弱係数に相当）を得ることができる。この輝度値の組は物質によって異なるので、輝度値の組に対して多クラス分類手法を適用することによって、燃料デブリに含まれる物質を同定できる可能性がある。本作業では、多クラス分類手法の1つであるロジスティック回帰を用いて、燃料デブリのサンプルCTデータセットに対して学習と予測を行う。

多クラス分類器の構成を図3-2に示す。各断面における2色X線CT画像の輝度値分布から0.95 MeVと3.95 MeVのX線エネルギーにおける輝度値の組を取り出し、多クラス分類器に入力する。多クラス分類器は、輝度値の組から物質名を予測する。

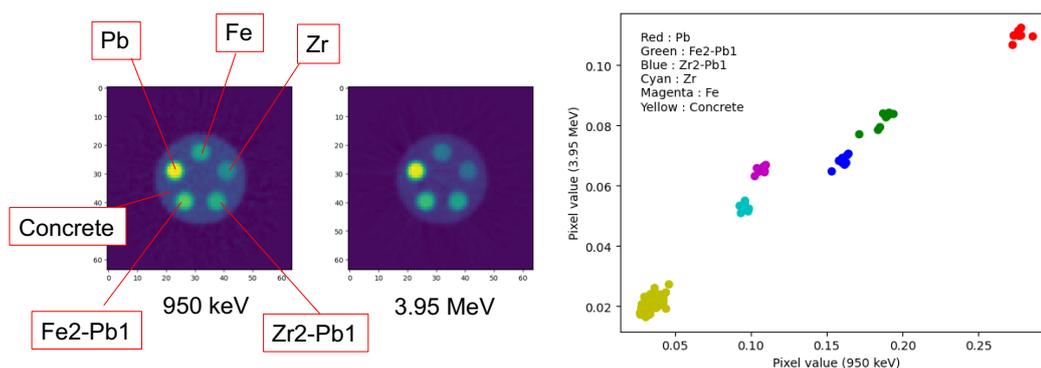


図 3-1 2色X線CTシミュレーションによるCT画像輝度値を用いた物質識別の検討

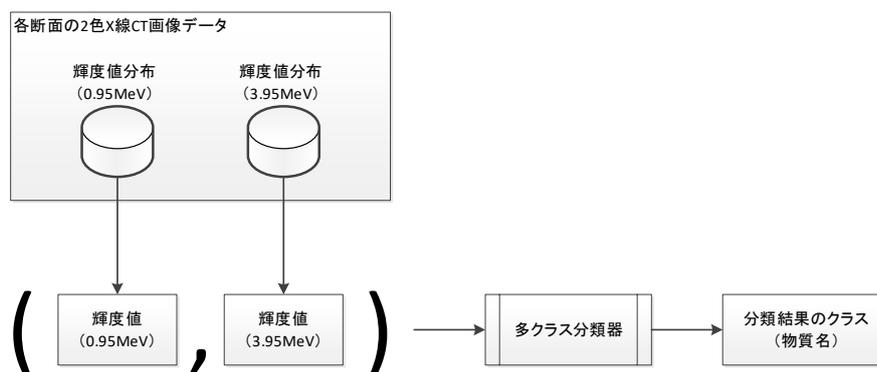


図 3-2 多クラス分類器の構成

[2-2] 物質同定作業の流れ

物質同定に関する作業の流れを図 3-3 に示す。作業は、前処理、学習及び予測プロセスに分けられる。以下に、各プロセスの作業内容を説明する。

(1) 前処理プロセス

燃料デブリの CT データから物質同定に必要となる教師データ（2 種類の X 線エネルギーに対する CT の画素値と正解となる物質名の組）を作成する。教師データの作成については 0 節で説明する。

作成した教師データを訓練用データとテスト用データに 7 : 3 で分割する。訓練用データは学習プロセス、テスト用データは予測プロセスで用いる。

(2) 学習プロセス

訓練用データを多クラス分類器に学習させ、学習済みのパラメータを得る。多クラス分類器のモデルには、ロジスティック回帰を用いる。

(3) 予測プロセス

テスト用データに対して学習済みの多クラス分類器を用いて予測を行う。予測性能を評価するために、以下の指標を用いる。

① 正解率 (Accuracy)

正解率は「正解したサンプル数 / 全サンプル数」で計算する。

② 適合率 (Precision)

分類クラス k の適合率 $Precision_k$ は次式で計算する。適合率の最大値は 1 である。

$$Precision_k = \frac{TP_k}{TP_k + FP_k} \quad \text{式 3.1}$$

ここで、

TP_k : クラス k と予測して正解だったサンプル数

FP_k : クラス k と予測して不正解だったサンプル数

全分類クラスに対する適合率 $Precision_{macro}$ は次式で計算する。

$$Precision_{macro} = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N Precision_k \quad \text{式 3.2}$$

ここで、

N : 全サンプル数

③ 再現率 (Recall)

分類クラス k の再現率 $Recall_k$ は次式で計算する。再現率の最大値は 1 である。

$$Recall_k = \frac{TP_k}{TP_k + FN_k} \quad \text{式 3.3}$$

ここで、

FN_k : クラス k でないと予測して不正解だったサンプル数

全分類クラスに対する再現率 $Recall_{macro}$ は次式で計算する。

$$Recall_{macro} = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N Recall_k \quad \text{式 3.4}$$

④F1 値

分類クラス k の F1 値 $F1_k$ は次式で計算する。F1 値の最大値は 1 である。

$$F1_k = \frac{2}{\frac{1}{Precision_k} + \frac{1}{Recall_k}} \quad \text{式 3.5}$$

全分類クラスに対する F1 値 $F1_{macro}$ は次式で計算する。

$$F1_{macro} = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N F1_k \quad \text{式 3.6}$$

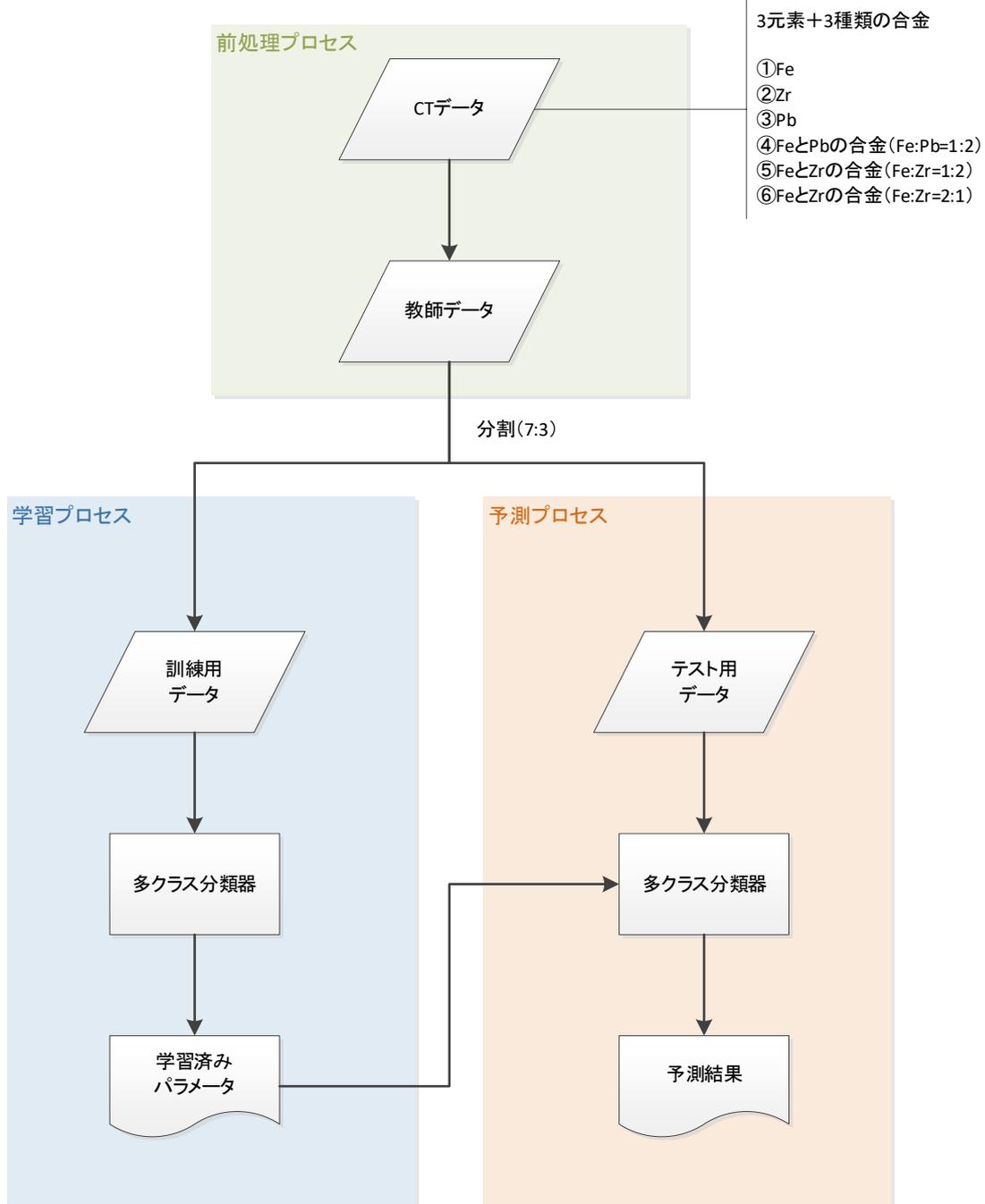


図 3-3 物質同定に関する作業の流れ

[2-3] 教師データの作成

模擬燃料デブリの CT データから物質同定に必要となる教師データ（2 種類の X 線エネルギーに対する CT の画素値と正解となる物質名の組）を作成する。

[2-3-1] 模擬燃料デブリの CT データ

教師データの作成対象となる CT データは、6 種類の模擬燃料デブリ（表 3-1 及び図 3-4）を縦方向に重ねた状態（図 3-5）で 2 種類の収納缶に配置し、2 種類の X 線エネルギーで撮影した CT データである。これらの CT データは、表 3-2 に示す測定ケースごとに撮影されている。

各模擬燃料デブリの CT 画像の一例を図 3-6 に示す。画像全体に大きく広がる円が収納缶、収納缶の中心付近の円状の物体がワークと呼ばれる模擬燃料デブリをエポキシ樹脂で封入したもの、ワーク内の四角い物体が模擬燃料デブリの金属である。

表 3-1 模擬燃料デブリー一覧

No.	試料名	説明
1	校正用サンプル	Fe、Zr 及び Pb が完全に分離した試料
2	ワーク①	Fe と Pb が重量比 1 : 2 で完全に溶解し混合した試料
3	ワーク②	Fe と Pb が重量比 1 : 2 で完全に混合せずに分離した試料
4	ワーク③	Fe と Pb が重量比 2 : 1 で完全に混合せずに分離した試料
5	ワーク④	Fe と Zr が重量比 1 : 2 で完全に溶解し混合した試料
6	ワーク⑤	Fe と Zr が重量比 2 : 1 で完全に溶解し混合した試料

表 3-2 測定ケース一覧

No.	X 線エネルギー	収納缶	撮像体系
1	0.95 MeV	薄肉缶	縦方向に重ねた状態
2	3.95 MeV	同上	同上
3	0.95 MeV	厚肉缶	同上
4	3.95 MeV	同上	同上

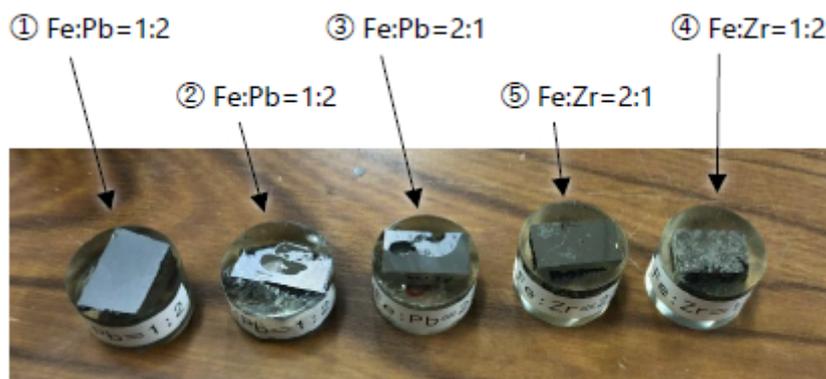


図 3-4 模擬燃料デブリ

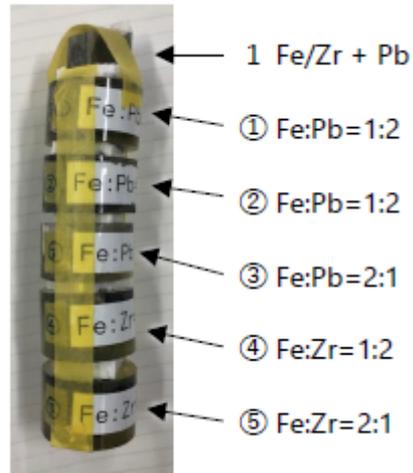
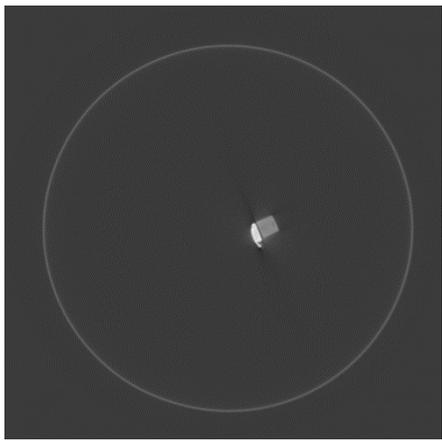
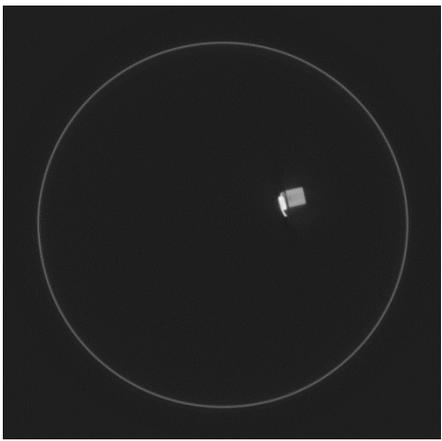
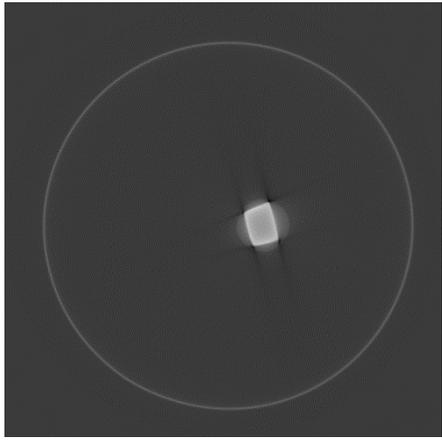
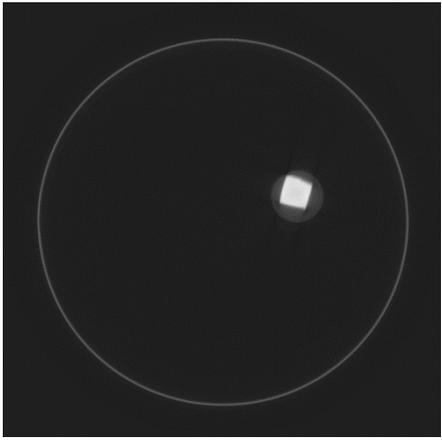
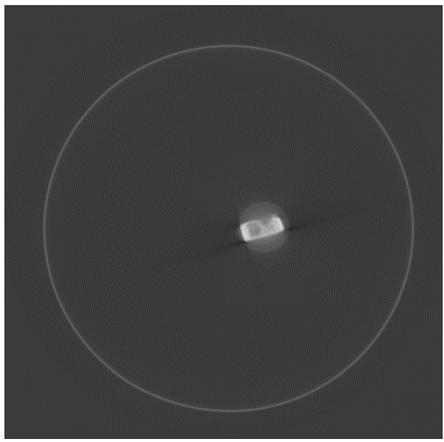
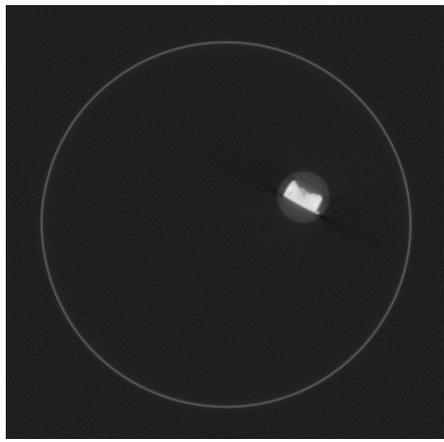
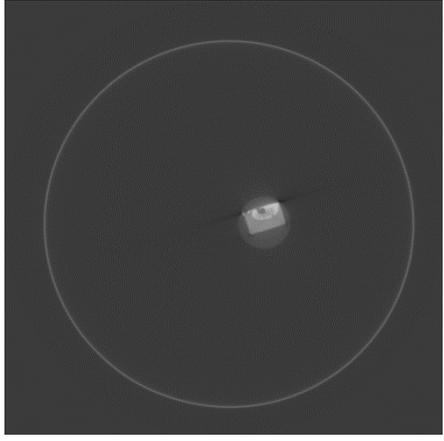
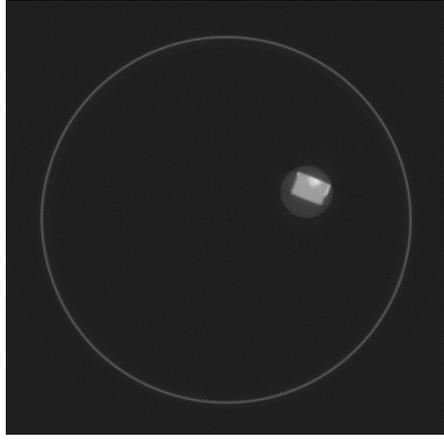
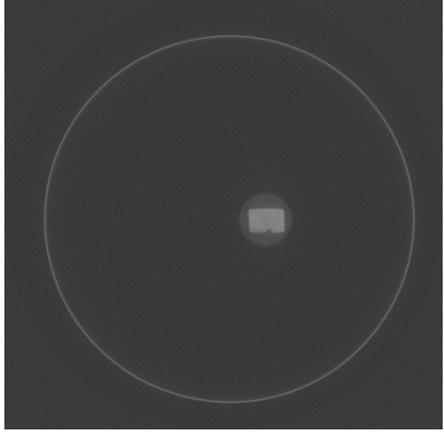
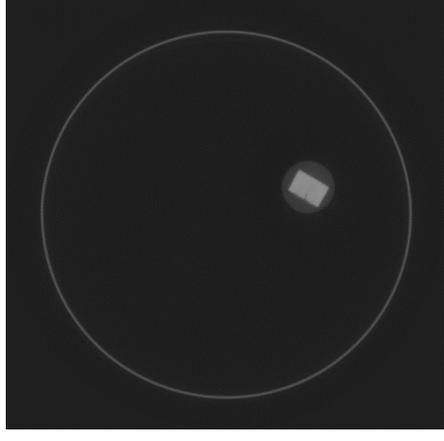


図 3-5 模擬燃料デブリを縦方向に重ねた状態

試料名	スライス 番号	0.95 MeV	3.95 MeV
校正用 サンプル	540		
ワーク ①	470		

試料名	スライス 番号	0.95 MeV	3.95 MeV
ワーク ②	380		
ワーク ③	300		
ワーク ④	210		

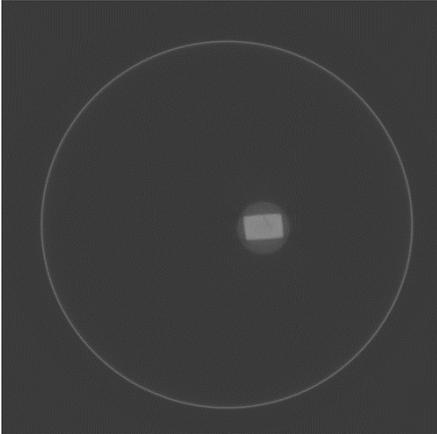
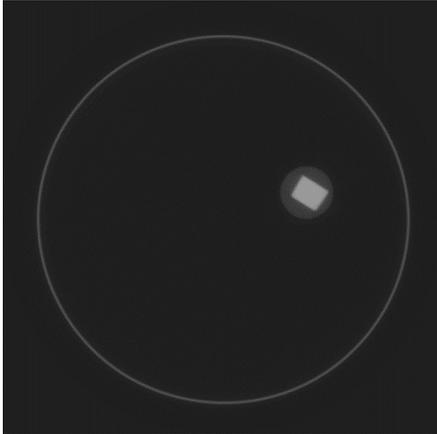
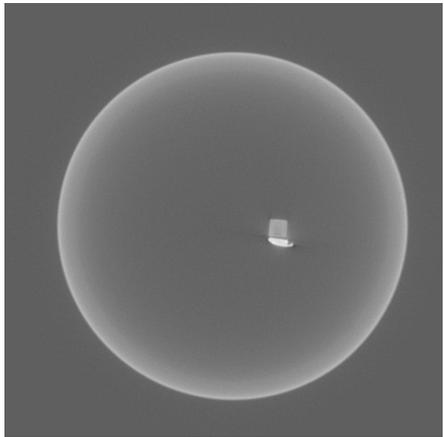
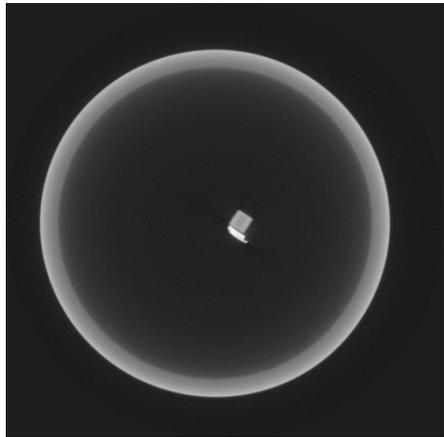
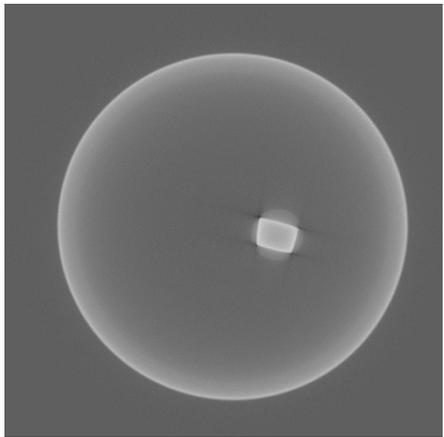
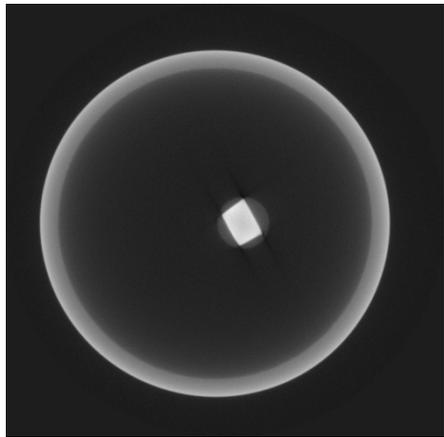
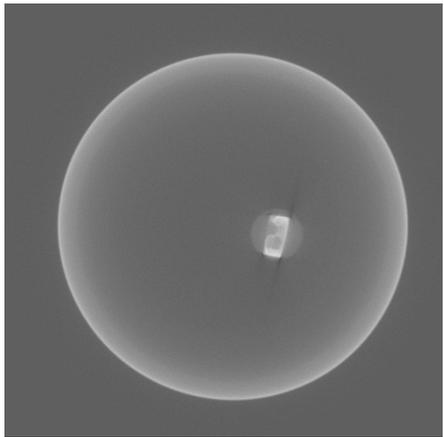
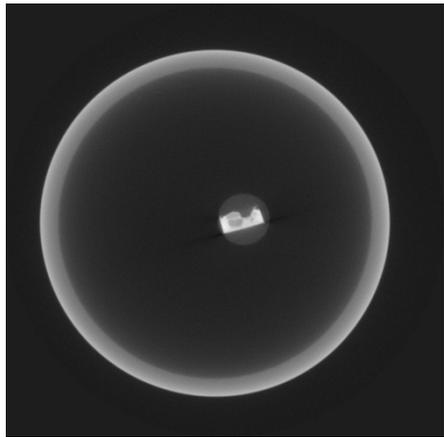
試料名	スライス 番号	0.95 MeV	3.95 MeV
ワーク ⑤	110		

図 3-6 各模擬燃料デブリの CT 画像の一例 (薄肉缶)

試料名	スライス 番号	0.95 MeV	3.95 MeV
校正用 サンプル	540		
ワーク ①	470		
ワーク ②	380		

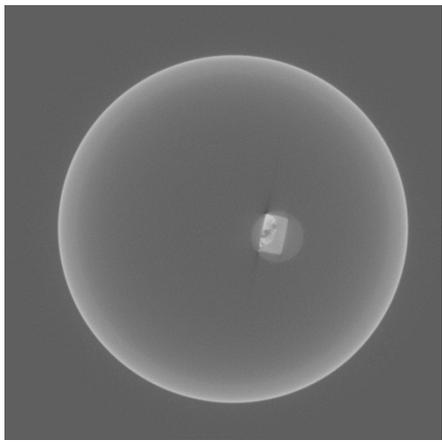
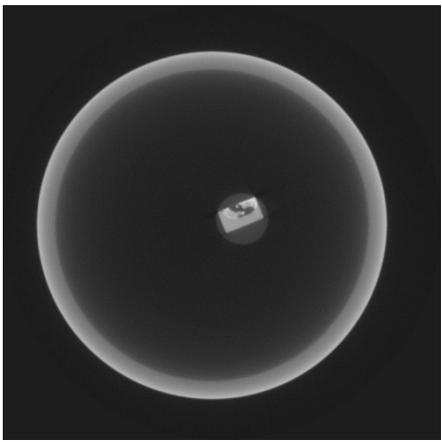
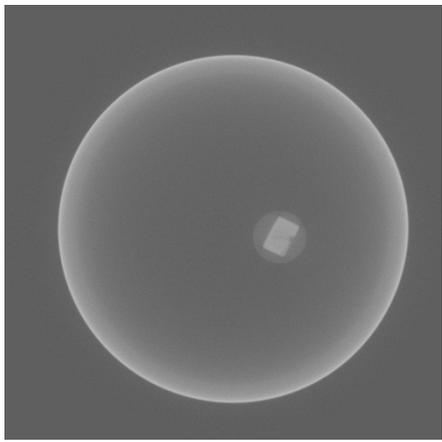
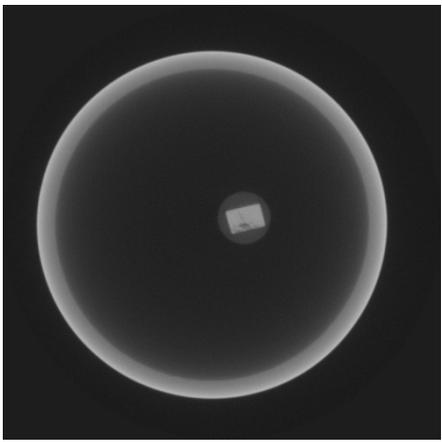
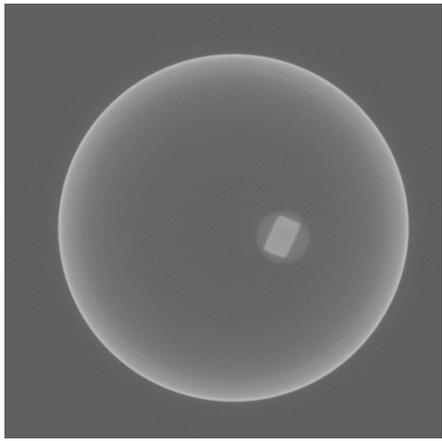
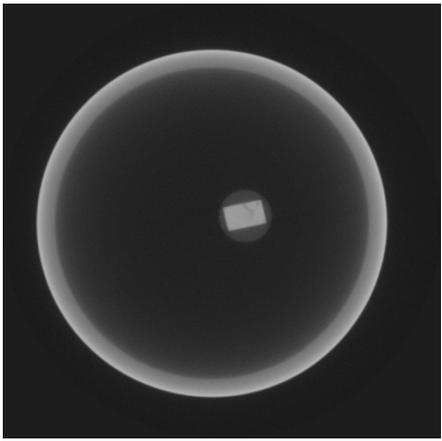
試料名	スライス 番号	0.95 MeV	3.95 MeV
ワーク ③	300		
ワーク ④	210		
ワーク ⑤	110		

図 3-7 各模擬燃料デブリのCT画像の一例（厚肉缶）

[2-3-2] 各 X 線エネルギーの CT 画像の比較

同じ測定ケースについて、2 色の X 線エネルギーの CT 画像の比較を行った。図 3-8 は、収納缶が薄肉缶、撮像体系が模擬燃料デブリを縦方向に重ねた場合における 0.95 MeV と 3.95 MeV の CT 画像の比較結果である。画像全体に大きく広がる円が収納缶、収納缶の中心から右側に位置する円状の物体がワークと呼ばれる模擬燃料デブリをエポキシ樹脂で封入したもの、ワーク内の四角い物体が模擬燃料デブリの金属である。

図より、各 X 線エネルギーにおける模擬燃料デブリの位置が収納缶の中心からの距離で見えて異なっていることが分かる (0.95 MeV のデブリの方が中心に近い)。また、ワーク内の模擬燃料デブリの角度及び大きさも異なっていることが分かる。すなわち、各 X 線エネルギーで CT の撮影条件が一致していないことが分かった。

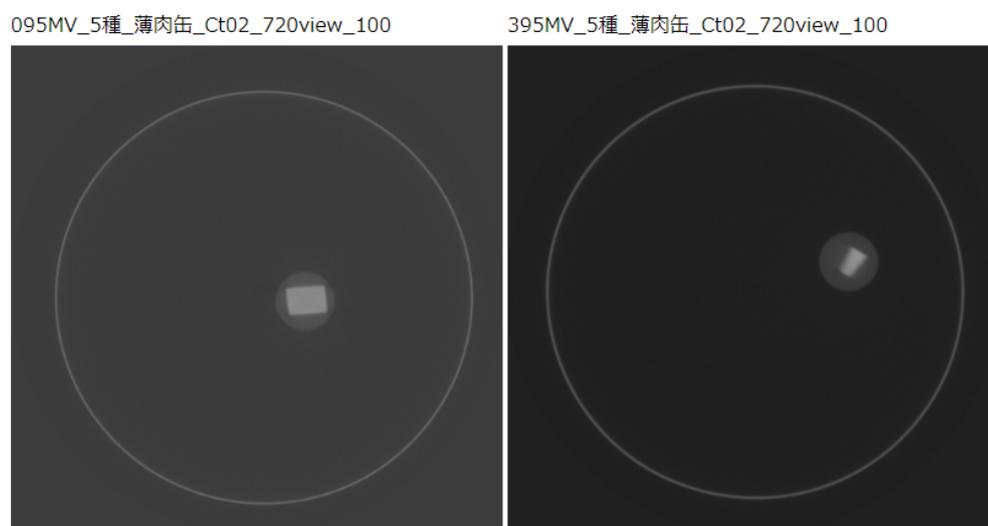


図 3-8 0.95 MeV (左) と 3.95 MeV (右) の CT データの比較

[2-3-3] デブリの位置・角度に依存しない教師データの作成

前項における CT 画像の比較結果より、同じ物体に対して 2 色の X 線による計測はされているが、収納缶と物体の相対位置が固定されていない。このため、たとえ撮影の角度を合わせたとしてもマッチしたデータとは言いがたい。

そこで、図 3-9 に示すように、同一素材の輝度値を一度プールし、そこからランダムサンプリングを行う。抽出された輝度値は、同一素材、同一エネルギーで測定された実現可能な値であり、実際にノイズに従ったデータであると考えられる。2 色分の輝度値を組み合わせるものを教師データとして、多クラス分類の入力とする。

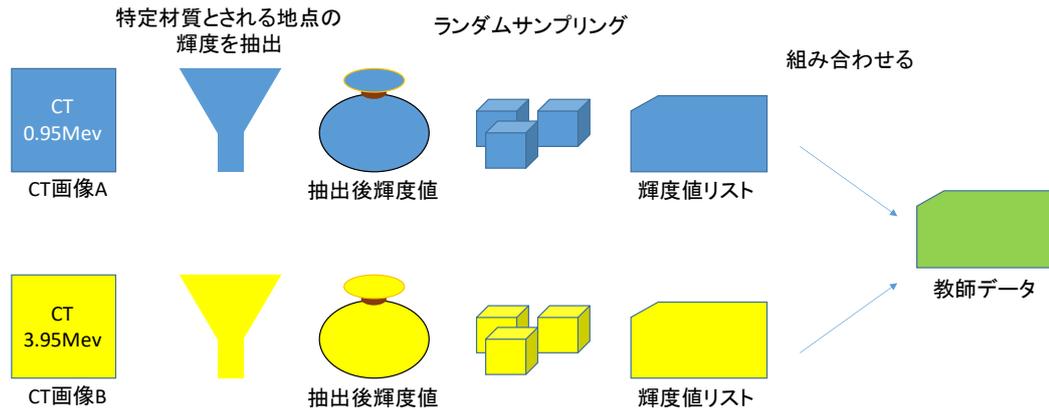


図 3-9 デブリの位置・角度に依存しない教師データの作成方法

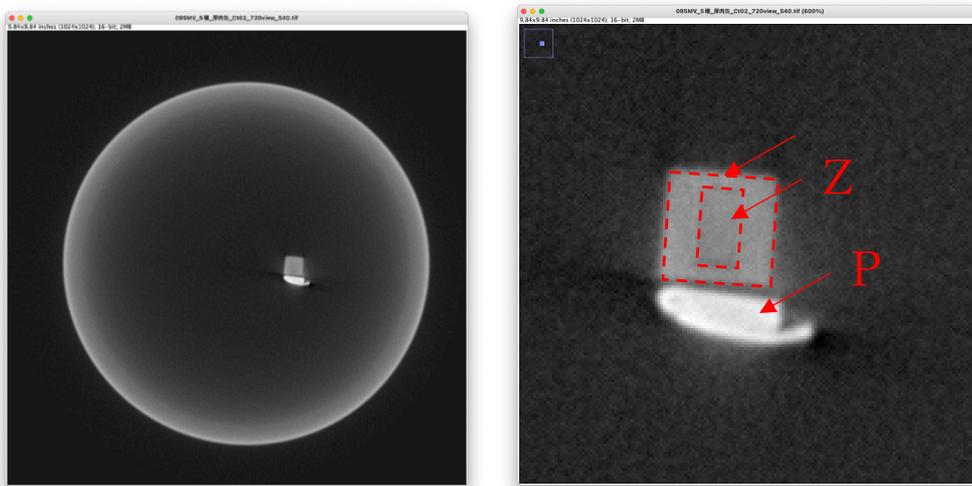


図 3-10 校正用サンプルの CT 画像

CT 画像からどのピクセルが各材質に相当するかの判断については、令和 2 年度および令和 3 年度報告書の記述（図 3-10）を参照し、目視により判別を行った。特に「校正用サンプル」については CT 画像に映る形状を手掛かりとした。

[2-3-4] 教師データの確認

各模擬燃料デブリ及び全模擬燃料デブリを対象として教師データ作成した。作成した教師データを確認するために、0.95 MeV 及び 3.95 MeV の輝度値の散布図を描画した。教師データを作成する際のランダムサンプリング数は、模擬燃料デブリに含まれる各材質について 25,000 件である。

(1) 校正用サンプル

校正用サンプルの教師データの散布図を図 3-11 に示す。散布図は、収納缶が薄肉缶、厚肉缶、薄肉缶と厚肉缶を混ぜ合わせたケースの 3 種類を図示している。図の横軸が 0.95 MeV の輝度値、縦軸が 3.95 MeV の輝度値である。散布図の各点は、赤が Pb、緑が Fe、オレンジが Zr、青色が Other である。Other は、Pb、Fe 及び Zr 以外の材質（空気、エポキ

シ充填剤、収納缶)を示している。ただし、Other には、教師データを作成する際に、本当はPb、FeまたはZrなのに、そうでないとしたデータやアーチファクトが含まれている可能性がある。

図より、Pb (赤) は、どの収納缶でも他の材質とあまり重なっていないので分類が容易であると推定される。一方、Fe (緑) と Zr (オレンジ) は重なっているので分類が難しいと推定される。

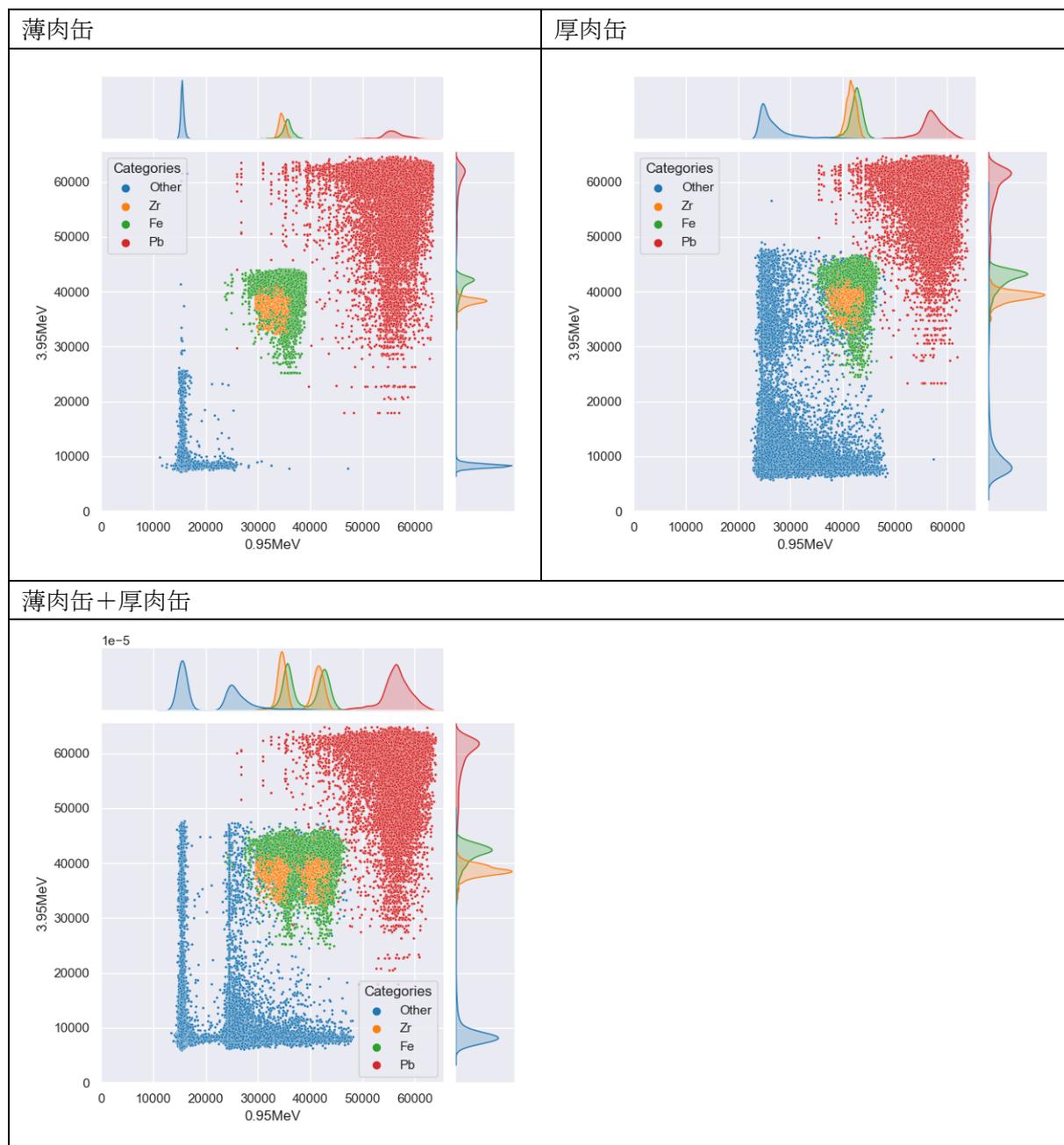


図 3-11 校正用サンプルの教師データの散布図

(2) ワーク①

ワーク①の教師データの散布図を図 3-12 に示す。ワーク①は、Fe と Pb が重量比 1 : 2 で完全に溶解し混合した試料である。図では、融合した Fe と Pb の合金を「Fe1Pb2」としてピンクでプロットしている。青の Other は、Fe1Pb2 以外の材質（空気、エポキシ充填剤、収納缶）である。図より、Fe1Pb2 と Other の分類は可能であると推定される。

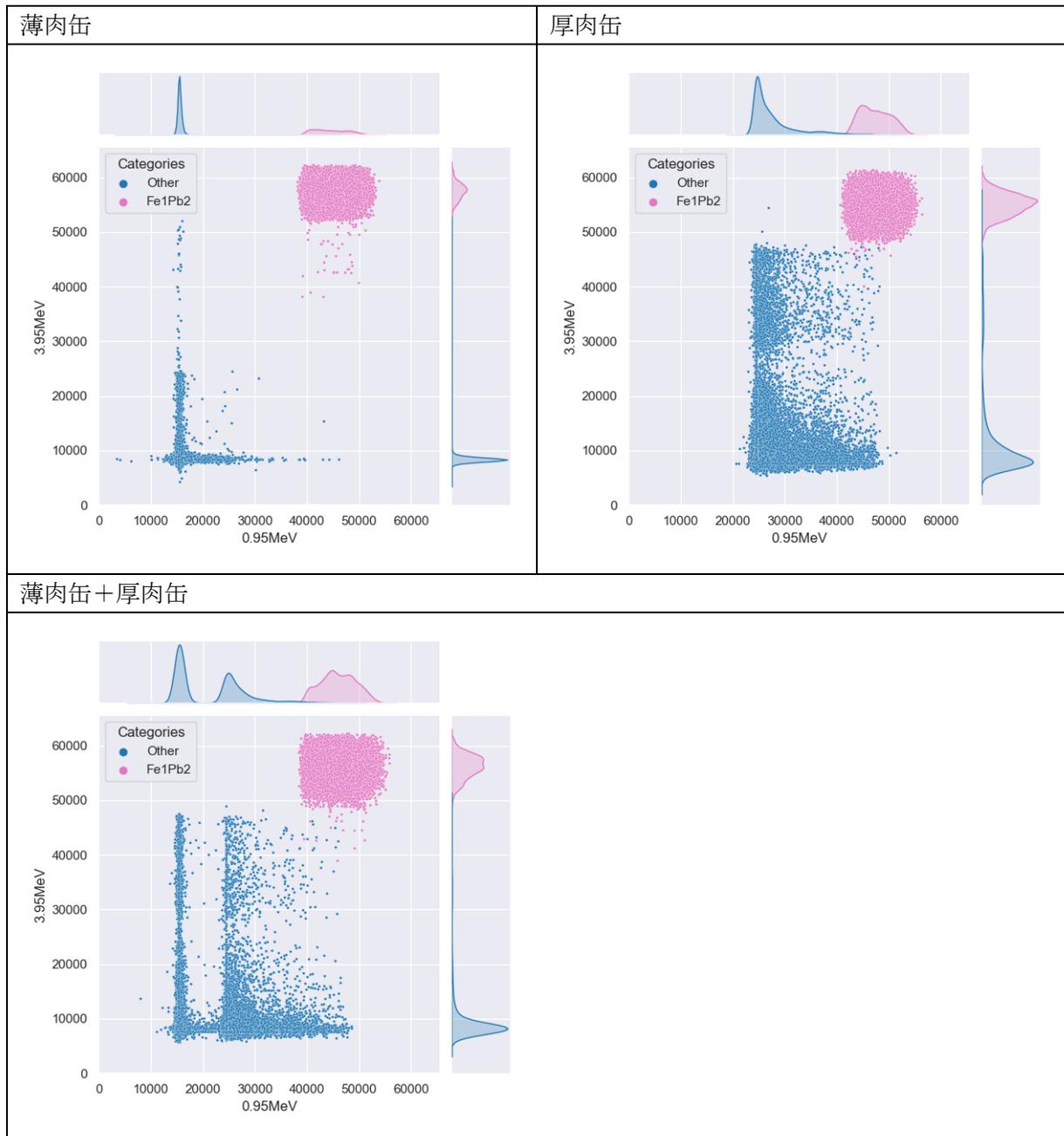


図 3-112 ワーク①の教師データの散布図

(3) ワーク③

ワーク③の教師データの散布図を図 3-13 に示す。ワーク③は、Fe と Pb が重量比 2 : 1 で完全に混合せずに分離した試料である。ワーク②と同様に、Pb (赤) と Fe (緑) が重なっており、分類が難しいと推定される。

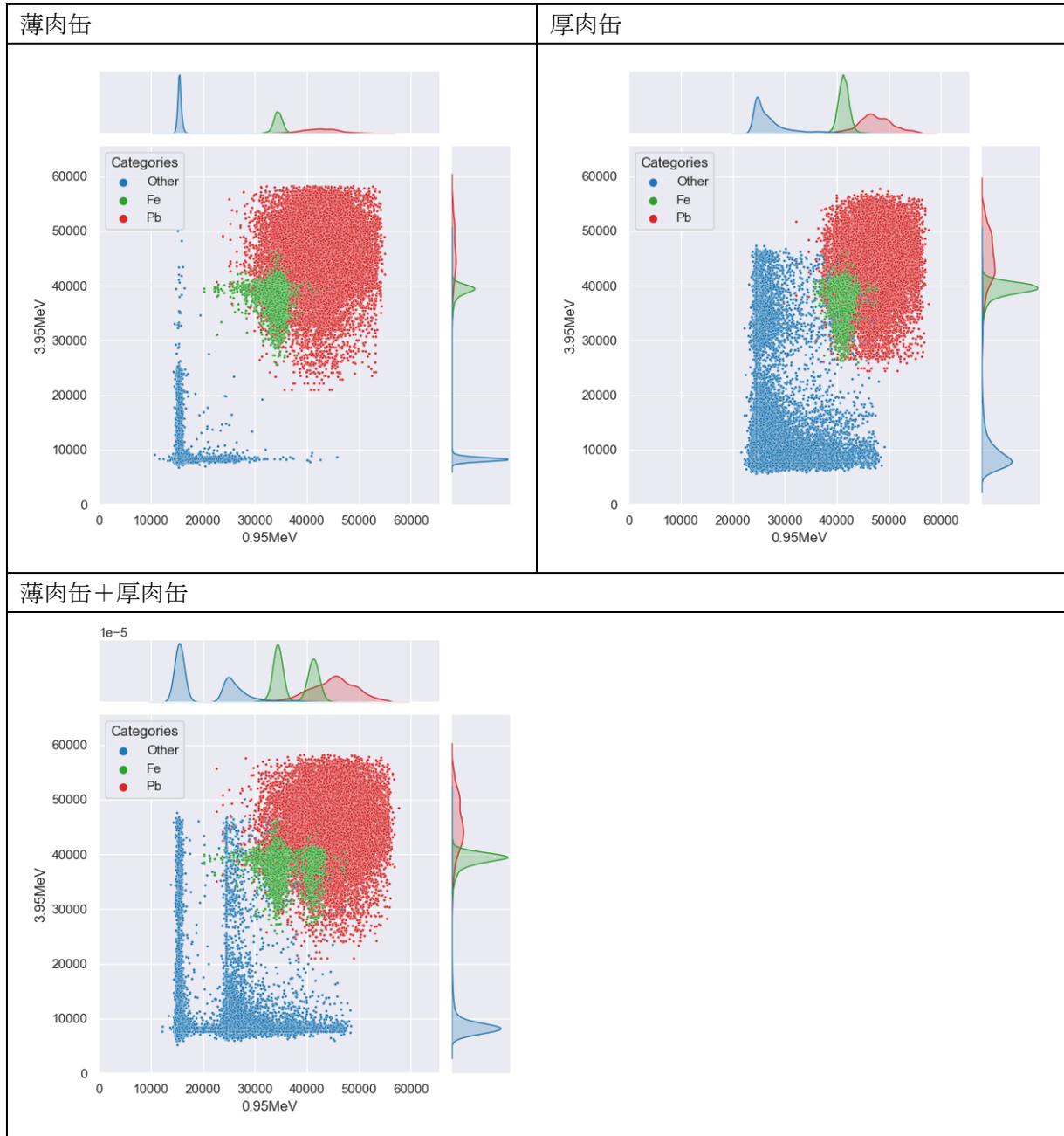


図 3-13 ワーク③の教師データの散布図

(4) ワーク④

ワーク④の教師データの散布図を図 3-14 に示す。ワーク④は、Fe と Zr が重量比 1 : 2 で完全に溶解し混合した試料である。図では、融合した Fe と Zr の合金を「Fe1Zr2」として水色でプロットしている。青の Other は、Fe1Zr2 以外の材質（空気、エポキシ充填剤、収納缶）である。図より、Fe1Zr2 と Other の分類は可能であると推定される。

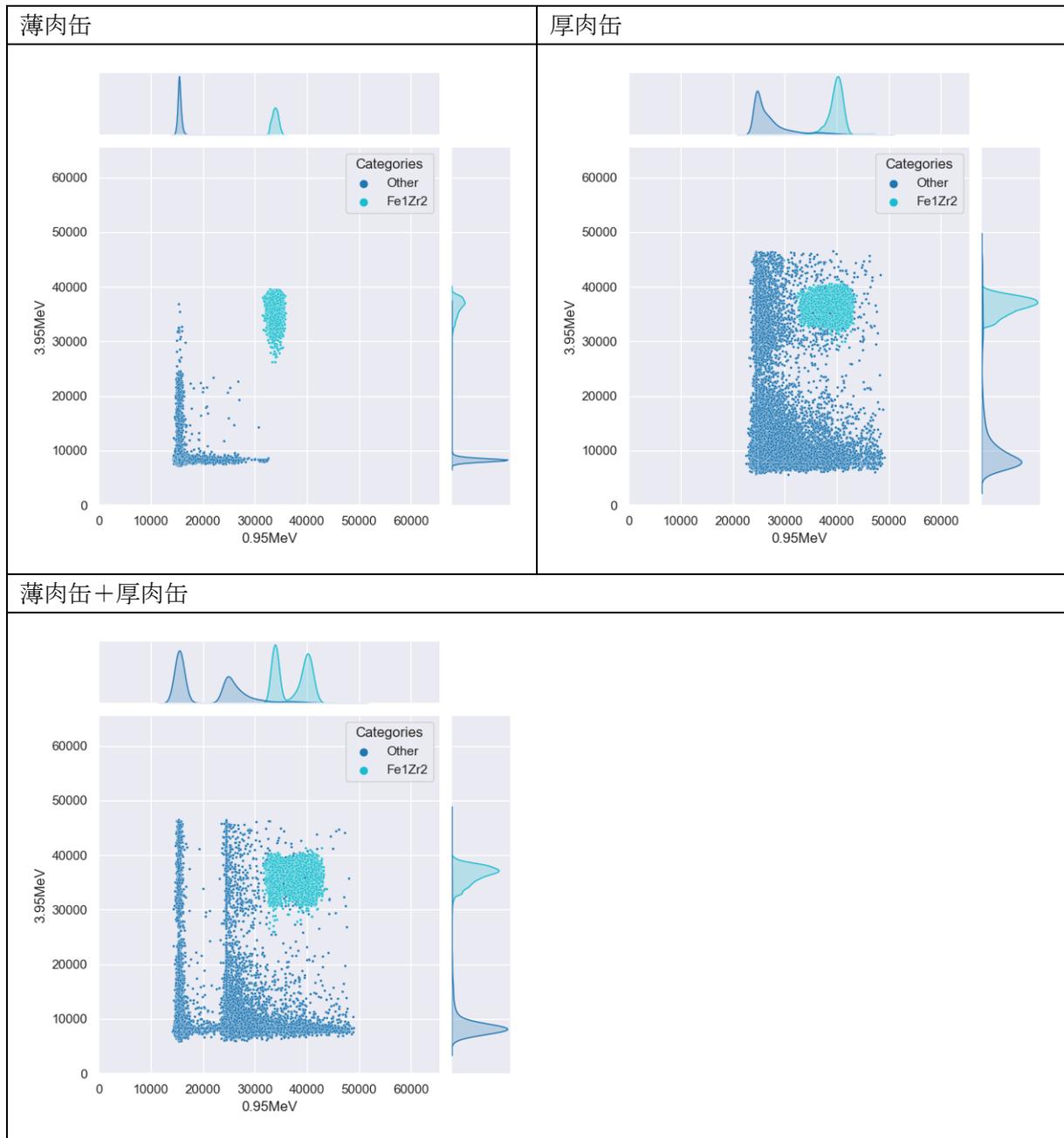


図 3-14 ワーク④の教師データの散布図

(5) ワーク⑤

ワーク⑤の教師データの散布図を図 3-15 に示す。ワーク⑤は、Fe と Zr が重量比 2 : 1 で完全に溶融し混合した試料である。図では、融合した Fe と Zr の合金を「Fe2Zr1」として茶色でプロットしている。青の Other は、Fe2Zr1 以外の材質（空気、エポキシ充填剤、収納缶）である。図より、Fe2Zr1 と Other の分類は可能であると推定される。

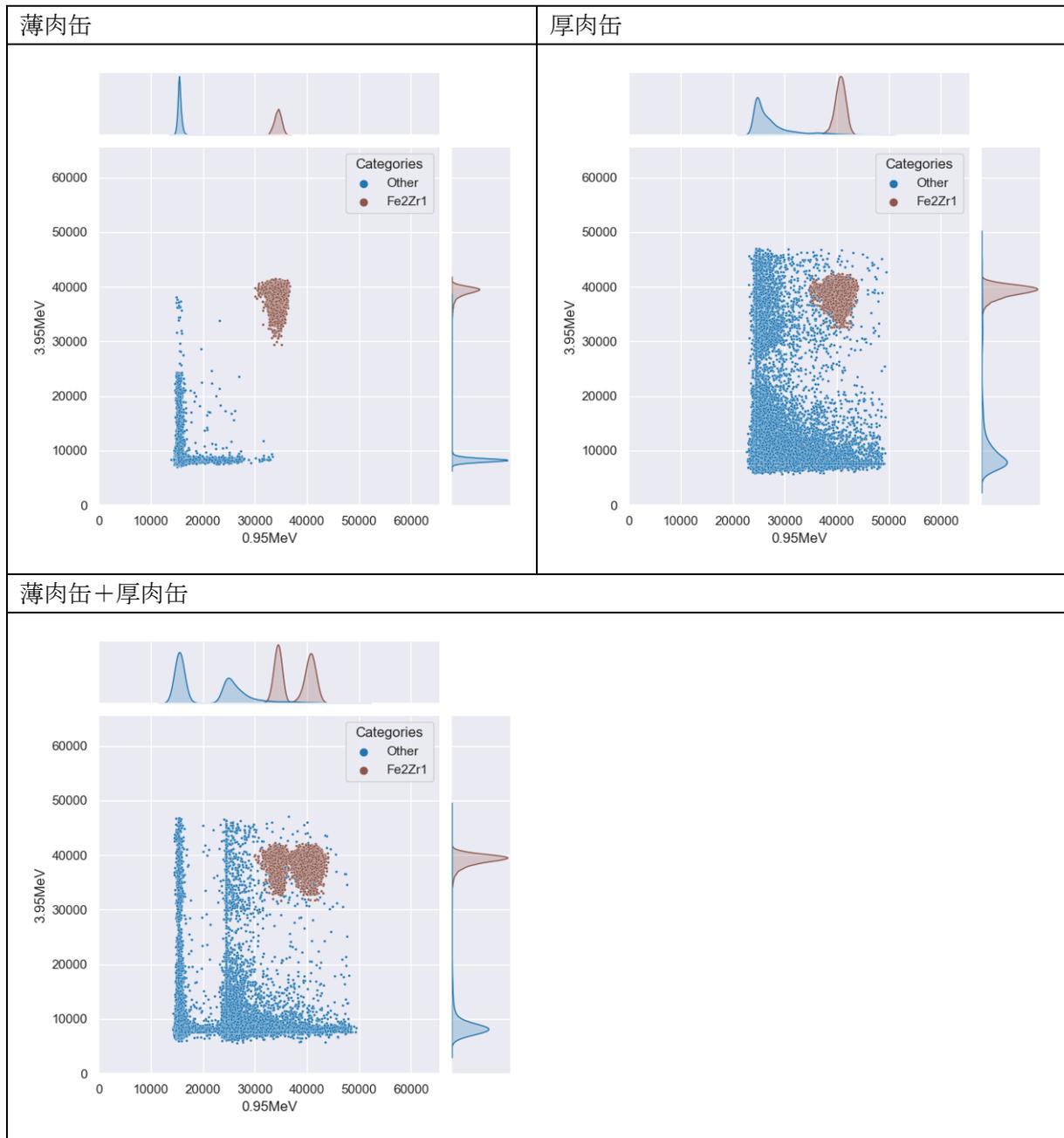


図 3-15 ワーク⑤の教師データの散布図

(6) ワーク②

ワーク②の教師データの散布図を図 3-16 に示す。ワーク②は、Fe と Pb が重量比 1 : 2 で完全に混合せずに分離した試料である。図より、Pb (赤) と Fe (緑) が重なっていることが分かる。これは、一部の Fe と Pb が混合しており、混合した材質を Fe または Pb として教師データを作成しているためである。ワーク②では、校正用サンプルと比較して、Fe と Pb の分類が難しくなると推定される。

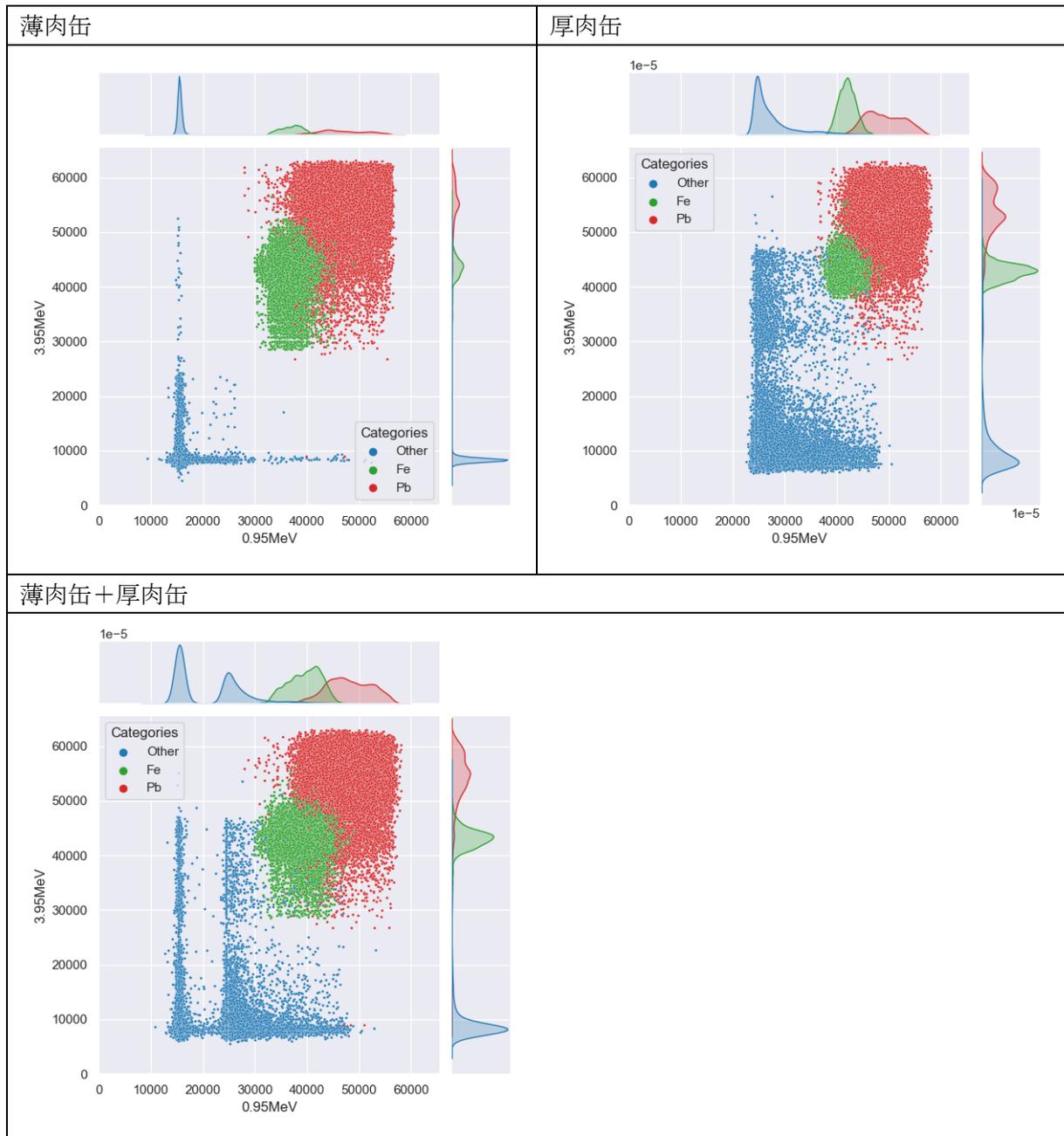


図 3-16 ワーク②の教師データの散布図

(7) 全模擬燃料デブリ

全模擬燃料デブリの教師データの散布図を図 3-17 に示す。Fe1Pb2（ピンク）は Pb（赤）に内包されている。また、Fe（緑）、Zr（オレンジ）、Fe1Zr2（水色）、Fe2Zr1（茶）は互いに重なり合っている。これらの材質の分類は難しいと推定される。

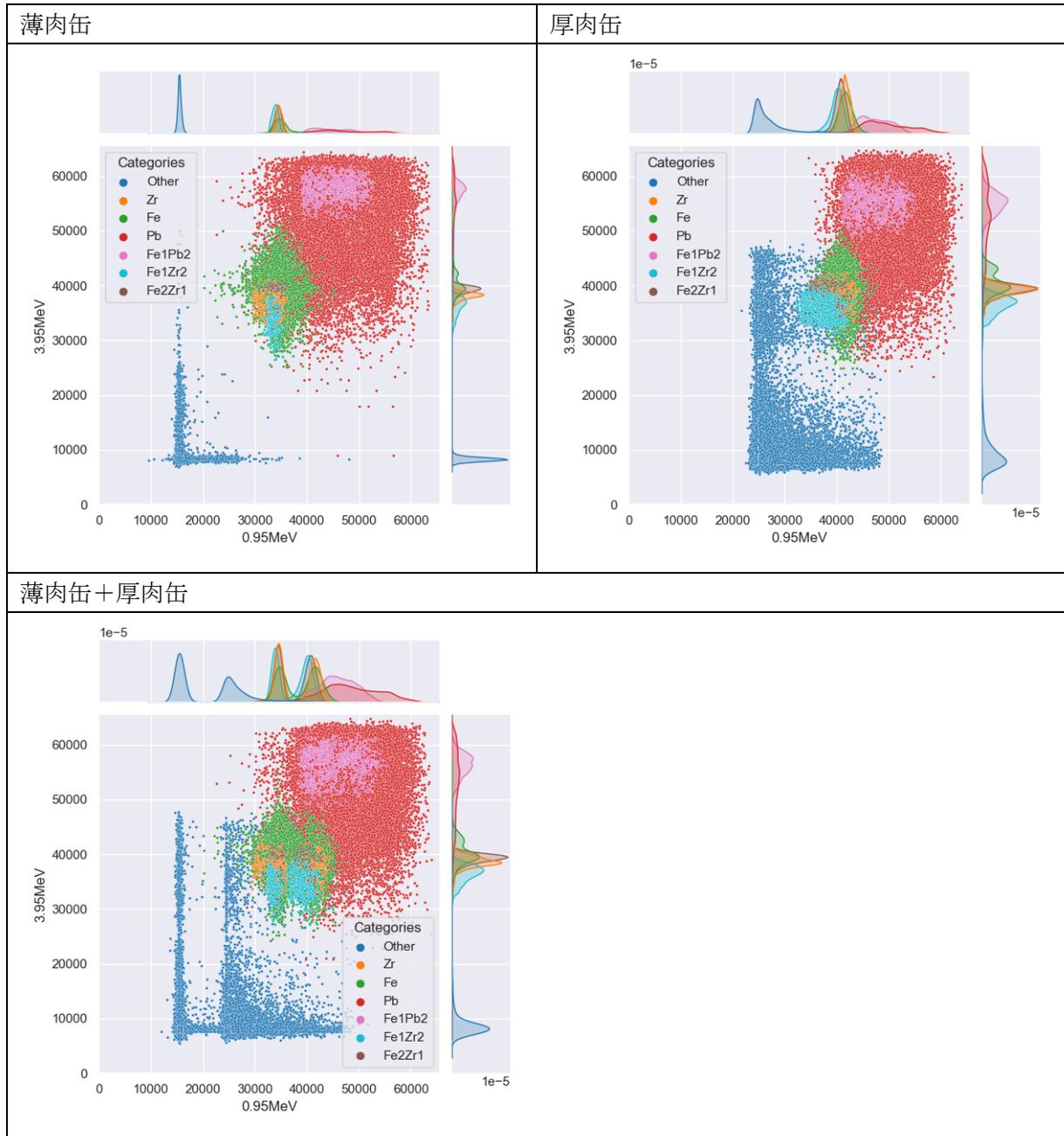


図 3-17 全模擬燃料デブリの教師データの散布図

[3] 模擬燃料デブリに対する物質同定手法の適用実験

[3-1] 実験条件

前章で説明した物質同定手法を用いて、模擬燃料デブリの CT 画像に含まれる物質を分類する実験を行った。実験条件を表 3-3、実験ケースを表 3-4 に示す。教師データは、[2] で作成したデータを用いた。各実験ケースでは、教師データを訓練用とテスト用に 7 : 3 で分割し、訓練用データを学習と検証、テスト用データを予測に用いた。分類器のモデルはロジスティック回帰である。計算には、scikit-learn の LogisticRegression¹ を使用した。

ハイパーパラメータについては、正則化強度の逆数 C をグリッドサーチし、最も予測精度の高い値を採用した。正則化強度の逆数 C 以外のハイパーパラメータについてはデフォルト値を用いた。

クロスバリデーションには k 分割交差検証を用いた。

表 3-3 実験条件

大項目	小項目	設定値	備考
教師データ	CT データ	模擬燃料デブリの CT データからランダムにサンプリング	教師データの作成方法については 0 節参照
	特徴ベクトル	① 0.95 MeV の輝度値 ② 3.95 MeV の輝度値	輝度値は線減弱係数に相当する
	正解ラベル	ケースによって異なる (表 3-5 参照)	Other は Pb、Fe 及び Zr 以外の材質 (空気、エポキシ充填剤、収納缶)
	データ数	ケースによって異なる (表 3-4 参照)	各材質について 25,000 件
	訓練用とテスト用の分割割合	7 : 3	訓練用データは学習と検証、テスト用データは予測に用いる
分類器	モデル	ロジスティック回帰	scikit-learn の LogisticRegression ¹ を使用
ハイパーパラメータ	正則化強度の逆数 C	ケースによって異なる (表 3-4 参照)	$C=10^{-4} \sim 10^4$ (対数間隔) のうち、最も予測精度の高いパラメータを使用した
	ペナルティ項	12	損失関数に L2 正則化項 (各特徴ベクトルの重みパラメータの 2 乗の総和) を追加する (デフォルト値)
	ソルバー	lbfgs	L-BFGS (デフォルト値)
クロスバリデーション	手法	k 分割交差検証	訓練用データを k 個に分割し、 $k-1$ 個を学習、残りの 1

¹ sklearn.linear_model.LogisticRegression: https://scikit-learn.org/stable/modules/generated/sklearn.linear_model.LogisticRegression.html

大項目	小項目	設定値	備考
			個を検証に用いる。全ての分割したデータが検証に用いられるまでk回繰り返す
	分割数	5	

表 3-4 実験ケース一覧

ケース No.	試料名	収納缶	正規化強度逆数 C	サンプル数
1	校正用サンプル	薄肉缶	0.1	100,000
2	同上	厚肉缶	0.01	同上
3	同上	薄肉缶+厚肉缶	100.0	同上
4	校正用サンプル+ワーク①~⑤	薄肉缶	計算中	175,000

表 3-5 各実験ケースの正解ラベル

ケース No.	正解ラベルの材質名	説明
1~3	①Pb ②Fe ③Zr ④Other	①鉛 ②鉄 ③ジルコニウム ④上記以外の材質（空気、充填剤、収納缶）
4	①Pb ②Fe ③Zr ④Fe1Pb2 ⑤Fe1Zr2 ⑥Fe2Zr1 ⑦Other	①鉛 ②鉄 ③ジルコニウム ④鉄と鉛の合金（組成比 1:2） ⑤鉄とジルコニウムの合金（組成比 1:2） ⑥鉄とジルコニウムの合金（組成比 2:1） ⑦上記以外の材質（空気、充填剤、収納缶）

[3-2] 実験結果

[3-2-1] ケース 1

ケース 1 は、薄肉缶に配置した校正用サンプルの CT 画像に含まれる材質（4 種類）を分類するケースである。以下に、予測精度、混同行列及び決定境界を示す。

(1) 予測精度

ケース 1 の予測精度を図 3-18 に示す。図の 3~6 行目は各分類クラスについて、左から分類クラス名、適合率（precision）、再現率（recall）、F1 値（f1-score）、サンプル数（support）を示す。また、8 行目は正解率（accuracy）、9 行目は全分類クラスの適合率、再現率及び F1 値の平均値（macro avg）であり、右端の数値は予測に用いた全サンプル

ル数を示す。

ケース 1 の正解率は 0.934600 (約 93%) である。30,000 件のサンプルに対して約 93% が正解しているので、予測精度は高いと判断できる。

分類対象の材質別に見ると、Pb の F1 値は 0.993078 と高く、ほぼ正解していることが分かる。一方、Fe の F1 値は 0.860852、Zr の F1 値は 0.884334 で Pb よりも低下しているが、比較的高い値であると言える (F1 値の最大値は 1)。

行番号	評価結果				
1		precision	recall	f1-score	support
2					
3	Fe	0.939738	0.794183	0.860852	7599
4	Other	1.000000	0.999732	0.999866	7475
5	Pb	1.000000	0.986252	0.993078	7492
6	Zr	0.819298	0.960586	0.884334	7434
7					
8	accuracy			0.934600	30000
9	macro avg	0.939759	0.935189	0.934533	30000

図 3-18 予測精度 (ケース 1)

(2) 混同行列

ケース 1 の混同行列を図 3-19 に示す。図の横軸が予測結果の材質名、縦軸が正解の材質名であり、各マス目の数値が振り分けられたサンプル数である。図より、予測結果と正解の材質名が一致しているマス目 (対角線上のマス目) のサンプル数が多いことが分かる (全て 6 千件以上)。一方、Zr と予測して正解が Fe のサンプルは 1,564 件 (右上のマス目)、Fe と予測して正解が Zr のサンプルは 293 件 (左下のマス目) であり、Fe と Zr を取り違えているサンプルが多いことが分かる。

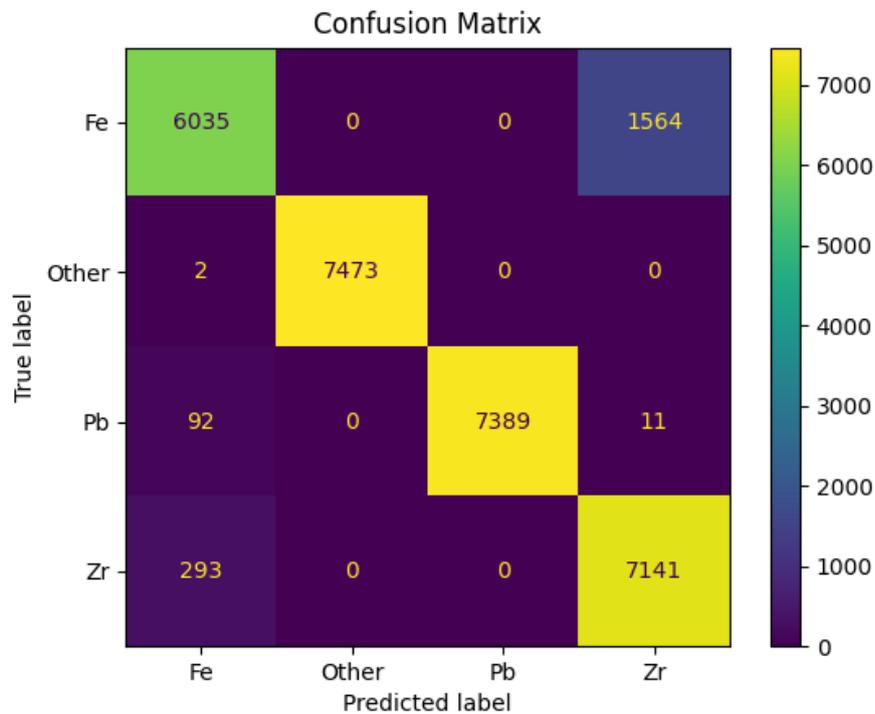


図 3-19 混同行列 (ケース 1)

(3) 決定境界

ケース 1 の決定境界を図 3-20 に示す。図の横軸が標準化した 0.95 MeV の輝度値、縦軸が標準化した 3.95 MeV の輝度値であり、各点が予測に用いたサンプルの散布図（正解の材質について色分け）、背景の塗り潰しが各材質の予測範囲（予測結果の材質について色分け）を示している。予測範囲の境界は決定境界と呼ばれている。点と背景の塗り潰し色が同系色であるサンプルは予測が正解、同系色でないサンプルは予測が不正解であることを示す。本実験で用いているロジスティック回帰は、線形分離可能な問題のみを解くことができるモデルなので、決定境界が直線で構成される。

図より、Pb（赤）及び Other（青）については、多くのサンプルについて点と背景が同系色であり、正しく分類できている。一方、Fe（緑）と Zr（オレンジ）については、決定境界が両者のサンプル点群を通過するやや左上がりの直線となっている。Zr の予測範囲（薄いオレンジ）には Fe（緑）の点も多く含まれており、Fe を Zr と間違えて分類しているサンプルが多いことが分かる。

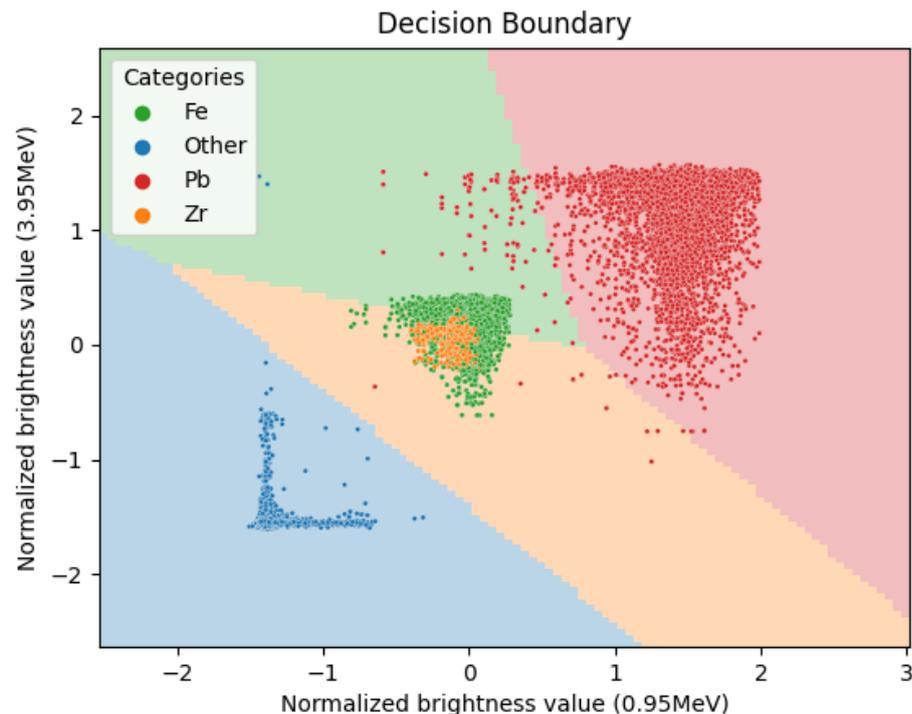


図 3-20 決定境界（ケース 1）

[3-2-2] ケース 2

ケース 2 は、厚肉缶に配置した校正用サンプルの CT 画像に含まれる材質（4 種類）を分類するケースである。以下に、予測精度、混同行列及び決定境界を示す。

(1) 予測精度

ケース 2 の予測精度を図 3-21 に示す。図の見方はケース 1 と同じである。ケース 2 の正解率は 0.921800（約 92%）である。ケース 1 に対して正解率が 1%程度低下しており、厚肉缶の方が薄肉缶より若干予測が難しいことが分かる。

行番号	評価結果				
1		precision	recall	f1-score	support
2					
3	Fe	0.891409	0.806948	0.847078	7599
4	Other	0.999864	0.981672	0.990684	7475
5	Pb	1.000000	0.986919	0.993417	7492
6	Zr	0.809490	0.913371	0.858299	7434
7					
8	accuracy			0.921800	30000
9	macro avg	0.925191	0.922228	0.922370	30000

図 3-21 予測精度 (ケース 2)

(2) 混同行列

ケース 2 の混同行列を図 3-22 に示す。ケース 1 と比較すると、Fe と予測して正解が Zr のサンプルが 644 件、Zr と予測して正解が Other のサンプルが 121 件に増加している。厚肉缶の場合は、薄肉缶と比較して、Fe と Zr、Zr と Other (Pb、Fe 及び Zr 以外の材質) の分類が難しくなっていることが分かる。

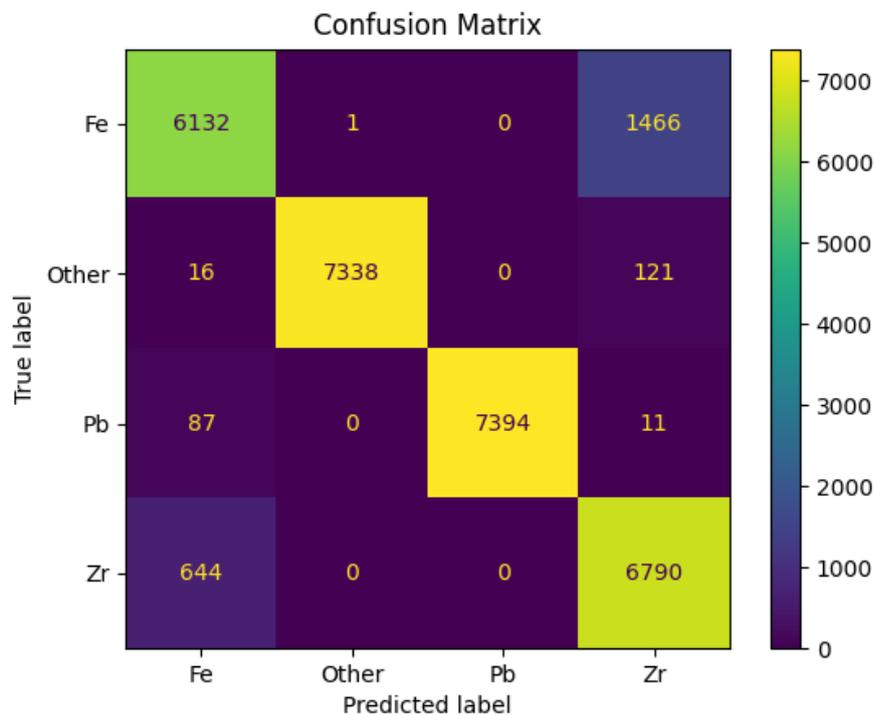


図 3-22 混同行列 (ケース 2)

(3) 決定境界

ケース 2 の決定境界を図 3-23 に示す。決定境界の形状はケース 1 と同様である。ただ

し、Other（青）については、サンプル点がケース1よりも広い範囲に分布して Zr の予測範囲（薄いオレンジ）にも含まれているため、Zr と間違えて分類しているサンプルも見られる。

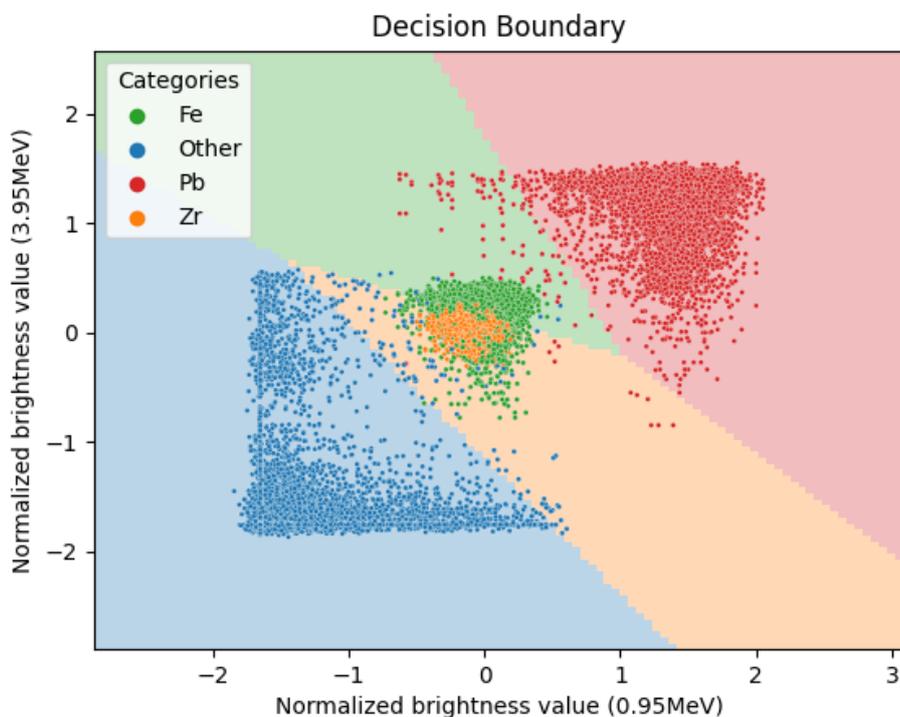


図 3-23 決定境界（ケース2）

[3-2-3] ケース3

ケース3は、薄肉缶と厚肉缶のそれぞれに配置した校正用サンプルのCT画像に含まれる材質（4種類）を分類するケースである。以下に、予測精度、混同行列及び決定境界を示す。

(1) 予測精度

ケース3の予測精度を図3-24に示す。図の見方はケース1と同じである。ケース3の正解率は0.906567（約91%）である。ケース1に対して約2%、ケース2に対して約1%正解率が低下しており、薄肉缶と厚肉缶が混在した状態では予測が難しくなっていることが分かる。

行番号	評価結果				
1		precision	recall	f1-score	support
2					
3	Fe	0.845430	0.780234	0.811525	7599
4	Other	0.997981	0.991706	0.994833	7475
5	Pb	0.999462	0.992392	0.995915	7492
6	Zr	0.790640	0.863600	0.825511	7434
7					
8	accuracy			0.906567	30000
9	macro avg	0.908378	0.906983	0.906946	30000

図 3-24 予測精度 (ケース 3)

(2) 混同行列

ケース 3 の混同行列を図 3-25 に示す。ケース 1 及び 2 と比較すると、Fe と予測して正解が Zr のサンプルが 1,012 件に増加しており、薄肉缶と厚肉缶が混在した状態では Fe と Zr の分類がさらに難しくなっていることが分かる。

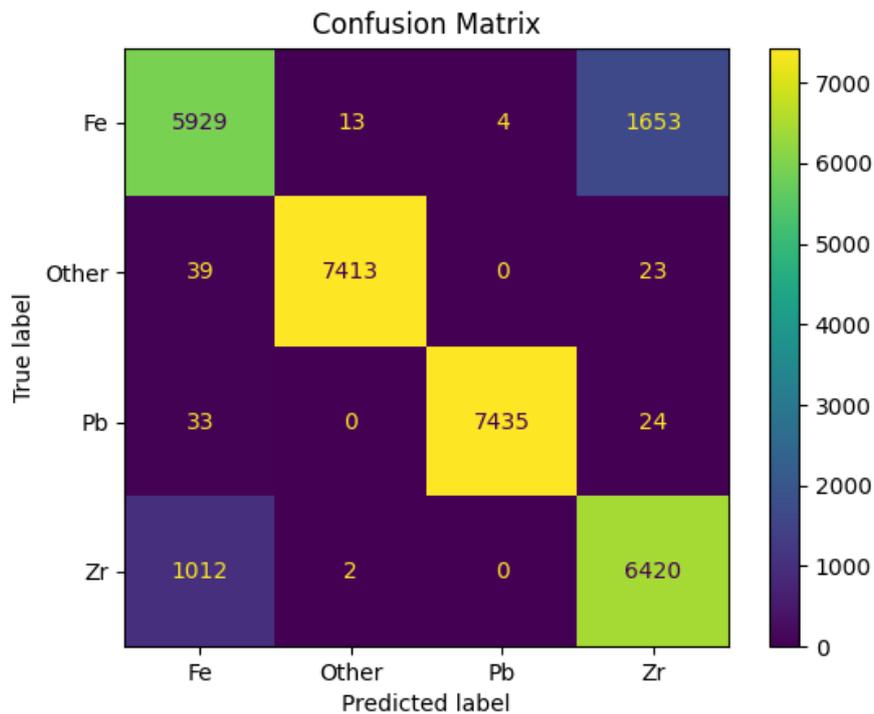


図 3-25 混同行列 (ケース 3)

(3) 決定境界

ケース 3 の決定境界を図 3-26 に示す。ケース 1 及びケース 2 と同様に、Fe (緑) と Zr (オレンジ) を直線で分離しているため、Fe と Zr を取り違えているサンプルが多く見られる。

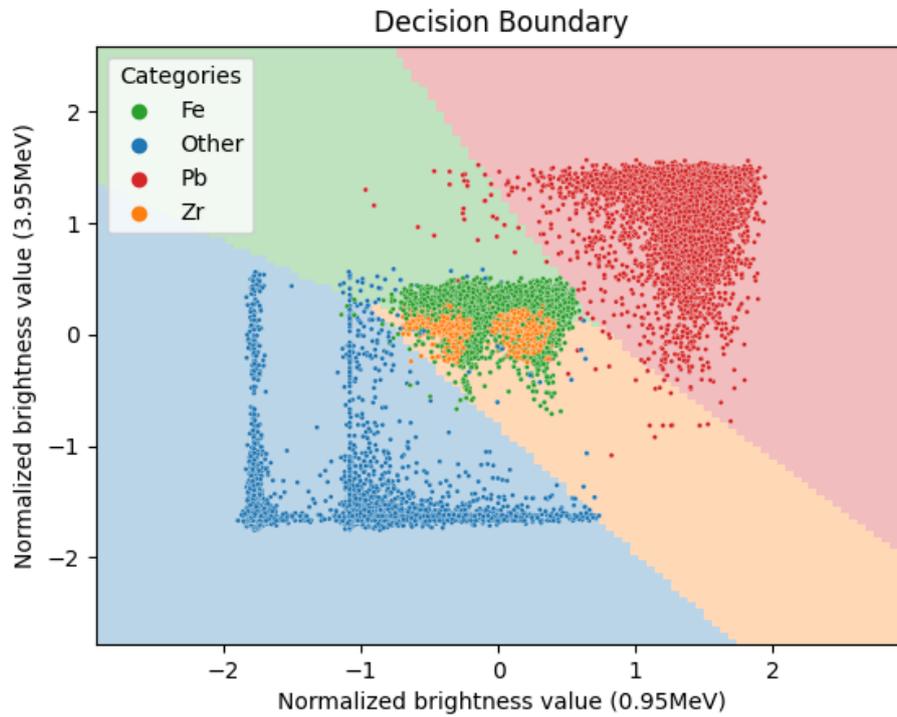


図 3-26 決定境界 (ケース 3)

[3-2-4] ケース 4

ケース 4 は、薄肉缶に配置した全模擬燃料デブリの CT 画像に含まれる材質 (7 種類) を分類するケースである。以下に、予測精度、混同行列及び決定境界を示す。

(1) 予測精度

ケース 4 の予測精度を図 3-27 に示す。図の見方はケース 1 と同様である。ケース 4 の正解率は 0.677143 (約 68%) である。ケース 1 に対して正解率が約 25%低下しており、Pb、Fe 及び Pb の合金を含んだケースでは分類が難しい結果となった。

行番号	評価結果				
1		precision	recall	f1-score	support
2					
3	Fe	0.550185	0.581880	0.565589	7395
4	Fe1Pb2	0.700719	0.839433	0.763829	7542
5	Fe1Zr2	0.685067	0.737126	0.710144	7593
6	Fe2Zr1	0.520024	0.465666	0.491346	7529
7	Other	0.999865	1.000000	0.999932	7405
8	Pb	0.774052	0.606149	0.679888	7579
9	Zr	0.516033	0.511466	0.513739	7457
10					
11	accuracy			0.677143	52500
12	macro avg	0.677992	0.677388	0.674924	52500

図 3-27 予測精度 (ケース 4)

(2) 混同行列

ケース 4 の混同行列を図 3-28 に示す。予測が不正解のサンプルに注目すると、Fe と予測して正解が Fe2Zr1 (鉄とジルコニウムが 2:1 で融合した合金) のサンプルが 2,373 件、Fe1Pb2 (鉄と鉛が 1:2 で融合した合金) と予測して正解が Pb のサンプルが 2,703 件と多い。

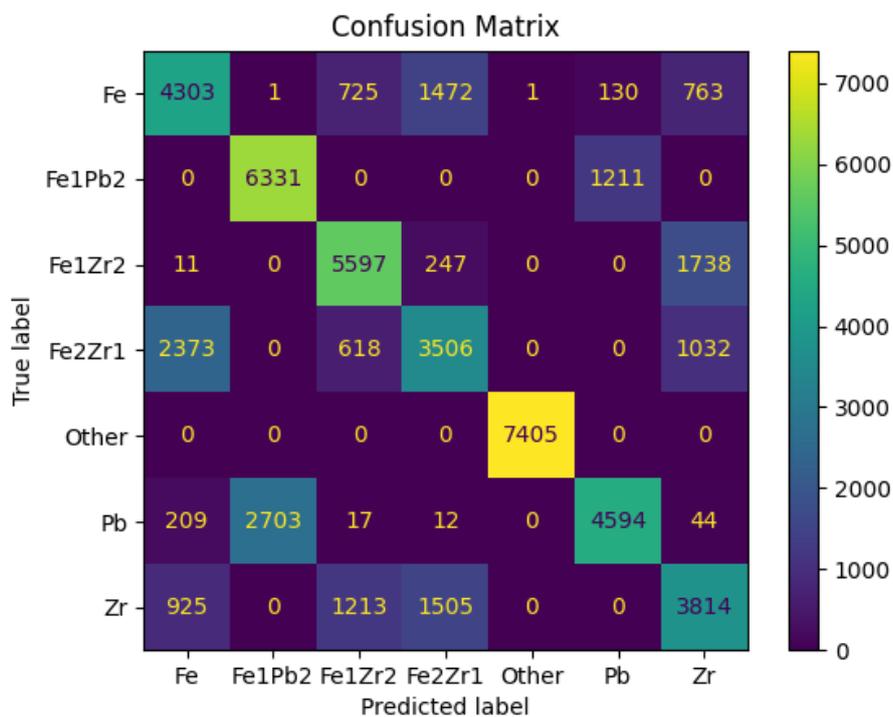


図 3-28 混同行列 (ケース 4)

(3) 決定境界

ケース 4 の決定境界を図 3-29 に示す。Fe1Pb2（ピンク）が追加されたことによって、Pb（赤）と Fe1Pb2 のサンプル点群の中に決定境界が生成され、Fe1Pb2 の予測範囲（薄いピンク）に多くの Pb（赤）のサンプル点が含まれている。また、中央付近の Fe（緑）、Zr（オレンジ）、Fe1Zr2（水色）、Fe2Zr1（茶）はサンプル点が互いに重なり合っており、直線の決定境界で分離するのは困難であることが分かる。

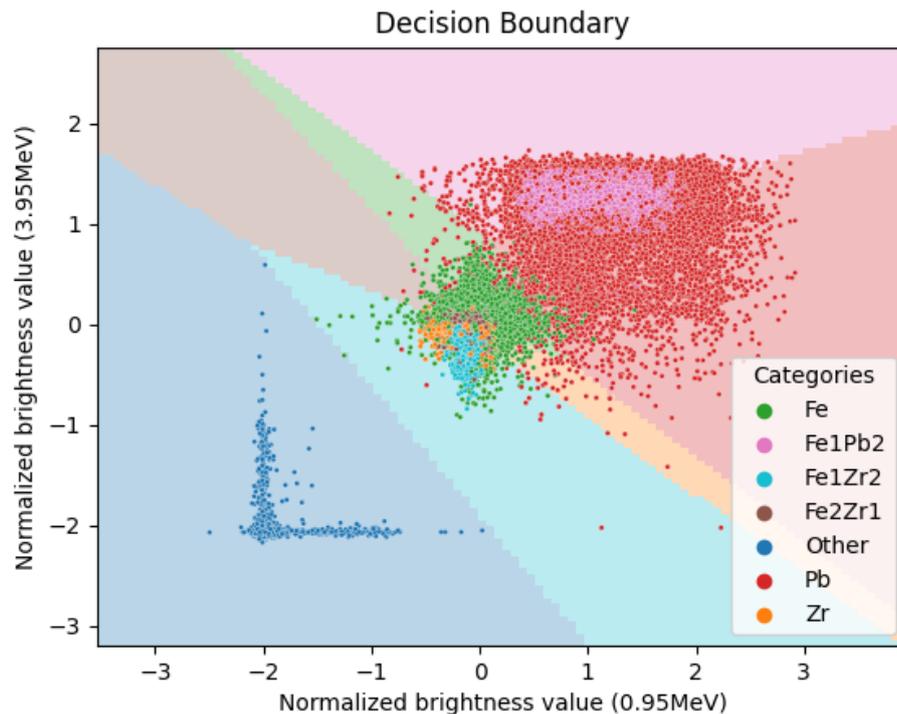


図 3-29 決定境界（ケース 4）

[3-3] 高級なモデルの適用

前節の実験結果より、線形分離可能な問題のみを解くことができるロジスティック回帰では、特にケース 4 のような複雑な問題を解くことが困難であることが分かった。そこで、線形分離不可能な問題にも適用できるサポートベクタマシン (SVM) のような高級なモデルの適用性を調査した。実験条件は、前節のケース 4 と同様である。計算には scikit-learn の `svm.SVC`² を使用した。

以下に、SVM を適用した場合の予測結果、混同行列及び決定境界を示す。

(1) 予測精度

SVM を用いた場合におけるケース 4 の予測精度を図 3-30 に示す。図の見方は前節と同様である。

正解率は 0.752990（約 75 %）であり、ロジスティック回帰を用いた場合に対して約 8 % 向上した。従って、本作業が対象とする物質同定問題に SVM を適用することは有効である

² sklearn.svm.SVC: <https://scikit-learn.org/stable/modules/generated/sklearn.svm.SVC.html>

と言える。

行番号	評価結果				
1		precision	recall	f1-score	support
2					
3	Fe	0.846360	0.512508	0.638423	7395
4	Fe1Pb2	0.780822	0.937152	0.851874	7542
5	Fe1Zr2	0.681579	0.834716	0.750414	7593
6	Fe2Zr1	0.635122	0.617745	0.626313	7529
7	Other	0.999730	1.000000	0.999865	7405
8	Pb	0.905172	0.706558	0.793627	7579
9	Zr	0.545706	0.660453	0.597622	7457
10					
11	accuracy			0.752990	52500
12	macro avg	0.770642	0.752733	0.751163	52500

図 3-30 予測精度 (ケース 4、SVM)

(2) 混同行列

SVM を用いた場合におけるケース 4 の混同行列を図 3-31 に示す。ロジスティック回帰を用いた場合と同様に、Fe と Pb、Fe と Zr の合金に対する分類が不正解となっているサンプルが多く、特に Pb を Fe1Pb2 と予測したサンプルが 1,984 件、Fe2Zr1 を Zr と予測したサンプルが 1,835 件、Fe を Fe2Zr1 と予測したサンプルが 1,838 件と多い。

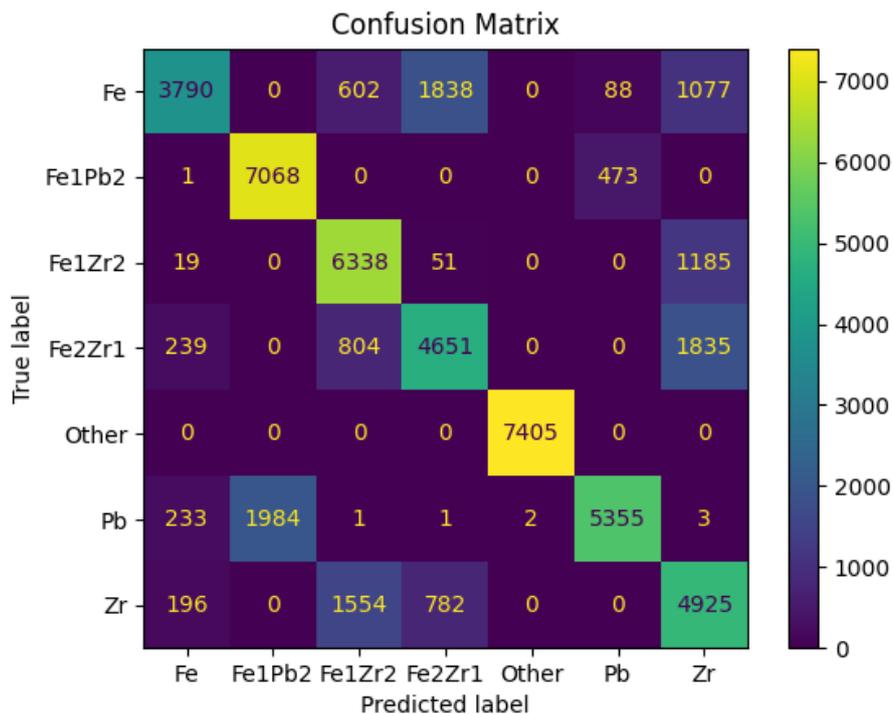


図 3-31 混同行列 (ケース 4、SVM)

(3) 決定境界

SVM を用いた場合におけるケース 4 の決定境界を図 3-32 に示す。SVM では決定境界が直線に限定されないため、中央付近の Fe (緑)、Zr (オレンジ)、Fe1Zr2 (水色) をロジスティック回帰より精度よく分離できている。Fe1Pb2 (ピンク) については、Pb (赤) に完全に含まれているので、SVM でも分離が難しいと考えられる。Fe2Zr1 (茶) についても同様である。

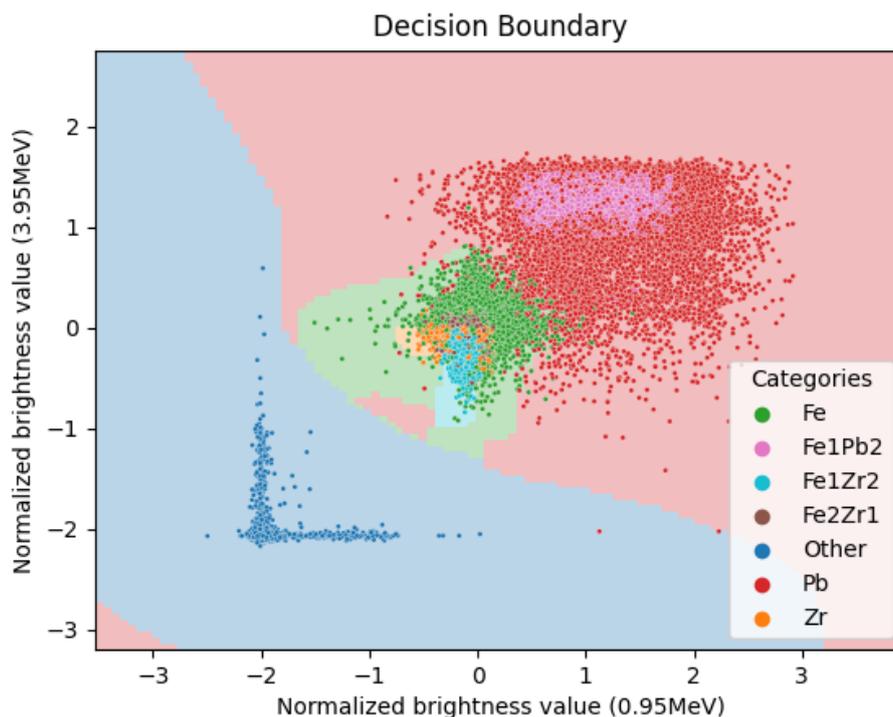


図 3-32 決定境界 (ケース 4、SVM)

[3-4] 実験結果のまとめ

実験結果を整理すると以下ようになる。

(1) 校正用サンプルの CT 画像に含まれる材質 (4 種類) を分類する実験 (ケース 1~3)

各ケースの正解率は約 91 %~93 %であり、予測精度が高いと言える
薄肉缶、厚肉缶、薄肉缶と厚肉缶が混在のケースの順番で予測精度が徐々に低下していく
Pb の予測精度が高い (F1 値は 0.99 以上)
Fe と Zr の予測精度は Pb よりもやや低下する (F1 値は約 0.81~0.88)

(2) 全模擬燃料デブリの CT 画像に含まれる材質 (7 種類) を分類する実験 (ケース 4)

ロジスティック回帰を用いた場合の正解率は約 67 %である
SVM を用いた場合の正解率は約 75 %である (ロジスティック回帰より約 8 %向上)
分類対象に Fe と Pb、Fe と Zr の合金を含めると予測精度が大きく低下する。

[4] おわりに

[4-1] 作業の成果

(1) 物質同定手法の検討

燃料デブリの CT 画像に含まれる物質を分類する手法として、機械学習の多クラス分類器（ロジスティック回帰）を用いて 2 色の X 線エネルギーの輝度値から物質を同定する手法を検討した。提供された模擬燃料デブリの CT 画像の調査では、2 色の X 線エネルギーに関する撮像条件（デブリの位置及び角度）が異なっており、同一地点における 2 色の X 線エネルギーに対する輝度値を抽出することが難しいことが分かった。そこで、2 色で同一の材質の輝度値を一旦プールしておき、そこからランダムサンプリングで抽出した 2 色分の輝度値を組み合わせたものを教師データとして多クラス分類器の入力とする方法を採用した。この方法によって、燃料デブリの位置及び角度に依存しない解析が可能となった。

(2) 模擬燃料デブリに対する物質同定手法の適用実験

校正用サンプルに含まれる材質（4 種類）を分類する実験ケースでは、正解率が約 91～93 %であり、本物質同定手法の予測精度が高いことを確認した。材質別で見ると、Pb の予測精度が高く、輝度値の似ている Fe と Zr の予測精度はやや低下した。しかしながら、実際の燃料デブリに含まれる材質の分類では、Fe と Zr よりも原子番号が Pb と近い U の分類が重要になるので、Fe や Zr よりも Pb の予測精度の高い分類器の方が有効であると考えられる。

Fe と Pb 及び Fe と Zr の合金が含まれる材質（7 種類）を分類する実験ケースでは、特に合金と合金を構成する材質の分類が難しく、正解率が約 67 %に低下した。これは、線形分離可能な問題のみを扱うロジスティック回帰では、輝度値の似ている材質を分離することが難しいためである。本作業では、線形分離不可能な問題を扱うことのできるサポートベクタマシン（SVM）を用いることによって正解率が 75 %に向上することを確認した。

[4-2] 今後の課題

(1) 2 色でデブリの位置が同一の測定データへの適用

本作業で提供された模擬燃料デブリの CT 画像では同一地点における 2 色の X 線エネルギーに対する輝度値を抽出できなかったため、2 色で同一材質の輝度値を一旦プールしてからランダムサンプリングによって 2 色分の輝度値の組を抽出する方法を用いた。この方法では、多くの輝度値の組み合わせを学習できるが、輝度値の位置情報が失われているので、CT 画像の指定した位置の材質を予測することができない。今後は、2 色の X 線エネルギーでデブリの位置が同一の測定データを用意し、同一地点における 2 色の輝度値の組に対して材質を分類予測する実験を行う必要がある。

(2) 高級なモデルの検討

本作業では、線形分離不可能な問題を扱うことのできる高級なモデルのサポートベクタマシン（SVM）を用いることによって予測精度が向上することを確認した。SVM 以外にも以下のようなモデルを用いることにより、さらに予測精度を向上できる可能性がある。

- ・決定木
- ・ランダムフォレスト
- ・ニューラルネットワーク

3.1.2 模擬デブリでの 2 色 X 線 CT と NRTA 【R2-R4】

【令和 2 年度及び令和 3 年度の成果】

令和 2 年度は、1F1, 2, 3 号機からの燃料デブリ分析に基づく、模擬燃料デブリにて、2 色 X 線 CT と NRTA を行った。1, 2, 3 号機から想定 of 模擬燃料デブリを用いて、950 keV/3.95 MeV X 線源による 2 色 X 線 CT と最短距離 NRTA の実験を、現有測定系を用いて行った。

令和 3 年度は、燃料デブリ取り出し時の収納管として、薄肉収納管及び厚肉収納管を想定して実験を実施した。令和 3 年度の 2 色 X 線 CT 実験に利用した模擬燃料デブリは、大型の金属熔融混合物サンプル及び MCCI 模擬試料である。また、NRTA では、He-3 中性子検出器の本数を増加させることによって、従来よりも短時間での測定でも中性子カウント数が多くなり統計誤差が減ることによって、高速に測定をすることが可能となった。この測定系を用いて、U-238 と近い中性子共鳴吸収ピークを保有する Ta を模擬デブリとして、NRTA 測定を実施した。

【令和 4 年度の成果】

[1] 模擬デブリの定量評価 (2 色 X 線 CT)

令和 4 年度も燃料デブリ分析試験を推進した。引き続き、従来の FPD および新規開発した FPD を用いて、2 色 X 線 CT の実験を実施した。

また、これまでに得られた 2 色 X 線 CT の結果より、模擬燃料デブリ中の U 模擬物質である Pb の量の定量評価を行った。

Pb の量の定量評価は、各燃料デブリ中に U 模擬物質である Pb がどの程度の割合で含まれるかを、3 次元 CT の結果を用いて定量分析をすることによって実施した。U のような原子番号が大きく密度の大きい物質は、X 線に対して線減弱係数が高いため、CT 画像中では対応する部分の輝度値が高く生じる。特に U の密度は 19.05 g/cm^3 ほどと非常に大きい。したがって、他の原子炉材料である Fe や Zr、またコンクリートといった物質とは画像上で大きく分離されて識別ができると考えられる。X 線 CT において U を模擬する物質としては、同様に密度の大きな Pb を用いた。Pb の密度は 11.34 g/cm^3 ほどであり、U に比較すると密度は小さい。そのため、Fe (密度 7.87 g/cm^3) や Zr (密度 6.52 g/cm^3) に近くなり、U に比べると Pb はこれらの物質との弁別の精度が落ちると考えられるが、しかしながらこれは保守的な評価となるため、ベンチマークにおける模擬物質としては適していると考えられる。

定量評価のプロセスとしては、まず 3 次元 CT の結果を用いて、この結果から U 模擬物質である Pb がどの程度の画像輝度値を有するかを、輝度値のヒストグラムから求め、これを以て Pb と識別される閾値を設定した。この際は模擬デブリではなく、キャリブレーション用に配置した単体金属のサンプルを用いて閾値設定を行った。その後、すべての CT スライスについて、この閾値を超えた部分を 1、それ以外を 0 とするような二値化処理を実施した。これを行うことによって、Pb だけの領域を抽出することができる。この Pb だけの領域のボクセル数をカウントすることによって、模擬デブリ中に含まれる Pb の体積を求めることができる。また、同様のプロセスによって、模擬デブリだけの領域を抽出し、その体

積を求めた。この際は、Pb の場合よりも閾値を下げて、空気や燃料デブリを固定しているレジン等の軽い物質を除外し、Fe・Zr・Pb といった物質を含むような閾値を設定して、模擬デブリの領域だけを抽出するように設定した。この模擬デブリの体積もまたそのボクセル数をカウントすることによって求めた。このようにして得られた Pb のみの領域の体積と、模擬デブリのみの領域の体積の比を取ることによって、Pb の含まれる体積比率を定量的に評価した。体積比率からは物質の密度を用いて質量濃度に変換することができるため、体積比率での評価は濃度評価に相当する。

模擬デブリはすべて、燃料デブリが保管されると考えられる収納管を模擬して作成した、模擬収納管に配置した状態で測定されている。X 線検出器としては、PerkinElmer 社製の XRD1622 フラットパネル検出器を用いている。また、X 線源は、950 keV 機にプレハードニングフィルタとして Pb 5 mm をその前面に設置したものと、3.95 MeV 機に同じくプレハードニングフィルタとして Pb 20 mm をその前面に設置したものとを用いた。模擬デブリとしては、サンプル 1~5 を用いているが、それぞれ表 3-6 のような溶解材の比率から作られたものである。表 A が示す値は元となる溶解材の組成比を示すものであり、模擬デブリはこの溶解されたものの一部を取り出して作られている。したがって模擬デブリの質量は表 3-6 に示す溶解材質量の和よりも小さい。また、均質な混合とは限らないため、模擬デブリの組成比が溶解材の質量比になるとも限らない。

表 3-6 模擬デブリを作成するのに用いられた溶解材

サンプル番号 (質量比)	Fe	Pb	Zr
1 (Fe:Pb=1:2)	171 g (21.7 cm ³)	380 g (33.5 cm ³)	
2 (Fe:Pb=1:2)	171 g (21.7 cm ³)	380 g (33.5 cm ³)	
3 (Fe:Pb=2:1)	450 g (51.2 cm ³)	242 g (21.3 cm ³)	
4 (Fe:Zr=1:2)	169 g (21.5 cm ³)		339 g (52.0 cm ³)
5 (Fe:Zr=2:1)	341 g (43.3 cm ³)		172 g (26.4 cm ³)

(1) 950 keV X 線源を用いた場合

まず、950 keV X 線源を用いた CT 再構成結果より、Pb の定量評価を実施した。キャリアブレーション用サンプルに該当する CT スライス画像より、この画像中の輝度値のヒストグラムを作成した。図 3-33 にその CT スライス画像を示す。また、図 3-34 にこの画像の輝度値ヒストグラムを示す。このヒストグラムには、輝度値の低い順に背景領域、Zr 領域、Fe 領域、Pb 領域が存在している。Zr 領域と Fe 領域は、密度が近いためにほとんどヒストグラム中でピークが重なり合っている。このヒストグラムにおいて、Fe・Zr 領域

と Pb 領域をよく分離する閾値として、二つのピークの間である輝度値=50000 を設定した。よって、輝度値 50000 を閾値として二値化処理を実施すると、U 模擬物質である Pb だけを抽出することができる。また、空気やレジンといった背景領域と、Fe・Zr・Pb の領域を弁別する閾値もこのヒストグラムから求めた。これはヒストグラムより、背景領域のピークと、Fe・Zr 領域のピークの間となる輝度値=36000 を閾値として設定した。この閾値を用いて二値化処理を実施すると、模擬デブリ全体の領域を抽出することができる。図 3-35 には全模擬デブリ領域を抽出した 3 次元 CT の結果を示す。また、図 3-36 には、Pb のみの領域を抽出した 3 次元 CT の結果を示す。

3 次元 CT の結果は縦方向には 600 スライス存在する。この各スライス画像について、模擬デブリの存在する領域での二値化後の白色ピクセル数をカウントすることによって、3 次元的なボクセル数すなわち体積を求めることができる。図 3-37、3-38 にそれぞれ二値化後のスライス画像の例を示す。図 3-37 では模擬デブリ全体が、図 3-38 では模擬デブリ中の Pb に対応する領域のみが白色ピクセルとして表されている。それぞれのサンプルについて、この各スライスの白色ピクセル領域を、模擬デブリ全体と、模擬デブリ中の Pb 領域とで、それぞれカウントし合計した。この結果を表 3-7 に示す。表 3-7 はボクセル数を示すが、ボクセルの 1 辺は $244 \mu\text{m}$ であり体積に変換可能である。この結果より、サンプル 1 の Pb 体積比率が 15.3 %、サンプル 2 の Pb 体積比率が 18.6 %と求められている。サンプル 1 および 2 はどちらも同じ溶解プロセスによって作られたものである。サンプル 1, 2 の溶解材自体の Pb の体積比は 60.6 %であるが、これに比較して過小評価となっている。まず、元の溶解材がすべて用いられてデブリが作成されたのではないこと、また、混合も均質ではないがゆえに、サンプル中の金属の混合比率は、必ずしも元の溶解材の体積比率通りの比率とはならない。そのような前提を考慮する必要はあるものの、過小評価の主たる理由は別にあり、それはビームハードニングによるものであると考えられる。950 keV 機では X 線は最大 950 keV のエネルギーを持つが、実行的なエネルギー（ピーク値）はそれよりも低いいため、このような低いエネルギーの X 線が大きく吸収されてビームの線質が硬化するビームハードニングが生じ、厚い Pb の領域ではその内部では線減弱係数が過小評価されてしまい、二値化時に Pb 判定の閾値を下回る領域が増えてしまったことが考えられる。このようなビームハードニングの影響は、現状設置しているプレハードニングフィルタ (Pb 5 mm) よりも厚いものを設置することで軽減することが可能である。また、次に示す 3.95 MeV 機の結果では、X 線のエネルギーがより高いため、ビームハードニングの影響が小さくなり、この傾向は改善される。サンプル 3 については、溶解材の時点で Pb の体積比率はサンプル 1, 2 よりも小さく、950 keV 機の CT での体積比率の評価値でもその傾向が表れている。サンプル 4, 5 に関しては、これらは元の溶解材の時点で Pb を含んでいないため、サンプルにも Pb は含まれず、CT からの体積比率の評価結果も 0 %となっている。

(2) 3.95 MeV X 線源を用いた場合

また、3.95 MeV X 線源を用いた CT 再構成結果より、Pb の定量評価を実施した。950 keV の場合と同様にして、キャリブレーション用サンプルに該当する CT スライス画像よ

り、この画像中の輝度値のヒストグラムを作成した。図 3-39 にそのスライス画像を、図 3-40 に画像輝度値のヒストグラムを示す。このヒストグラムより、Fe・Zr 領域と Pb 領域をよく分離する閾値として、ピークの間となる輝度値=49000 を設定した。この輝度値を閾値として二値化処理を施すと、3.95 MeV 機で撮像したケースでの U 模擬物質である Pb だけの領域を抽出することができる。また、950 keV の場合と同様に、空気やレジンといった背景領域と模擬デブリの領域を弁別する閾値として、輝度値=26985 を設定した。この閾値を用いて二値化処理を施すことにより、模擬デブリ全体の領域を抽出することができる。図 3-41 には模擬デブリ全体領域を抽出した 3 次元 CT の結果を示す。また、図 3-42 には、模擬デブリ中の Pb の領域のみを抽出した 3 次元 CT の結果を示す。

950 keV の場合と同様に、この 3 次元 CT の各スライスについて、白色ピクセルの数をカウントし、各々のサンプルに対応するスライス領域でそれらを合算することによって、模擬デブリのボクセル数（体積）および模擬デブリ中の Pb 領域のボクセル数を算出した。例として、図 3-43 はスライス#400 における模擬デブリ全体の二値化画像を、図 3-44 にはスライス#400 における模擬デブリ中の Pb 領域のみの二値化画像を示す。各サンプル領域においてボクセル数を算出した結果を表 3-8 に示す。この結果より、サンプル 1 の Pb 体積比率は 76.5 %、サンプル 2 の Pb 体積比率は 48.4 %となった。サンプル 1, 2 において、溶解材の時点での Pb の体積比率は 60.6 %であった。サンプル 1 のほうではこれよりも体積比率の評価値が大きく、サンプル 2 のほうでは小さい値となった。この理由として考えられるのは、溶解材から模擬デブリサンプルを作る際に、混合が不均質であったことや、サンプル 1 のほうでは Pb が多く入り、サンプル 2 では Pb が少なく入ったためであると考えられる。いずれにせよ、ビームハードニングに起因する過小評価の影響は 950 keV のケースと比較すると大幅に改善されるといえる。また、サンプル 3 については溶解材の時点で Pb の体積比率がサンプル 1, 2 よりも小さく、サンプルでの体積比率もやはり小さくなっていると考えられるが、CT による体積比率の評価結果においてもサンプル 1, 2 の場合よりも Pb の体積比率が小さいという評価結果になっていた。また、サンプル 4, 5 では溶解材の時点で Pb を含んでおらず、サンプルでの評価結果も Pb は含有率 0 %という結果になった。

以上の定量評価の議論は U の模擬物質として Pb を用いたものになるが、基本的にはこの議論が U に対しても適用できる。以上より、U の量および濃度に関する判定精度・限界の評価を行った。

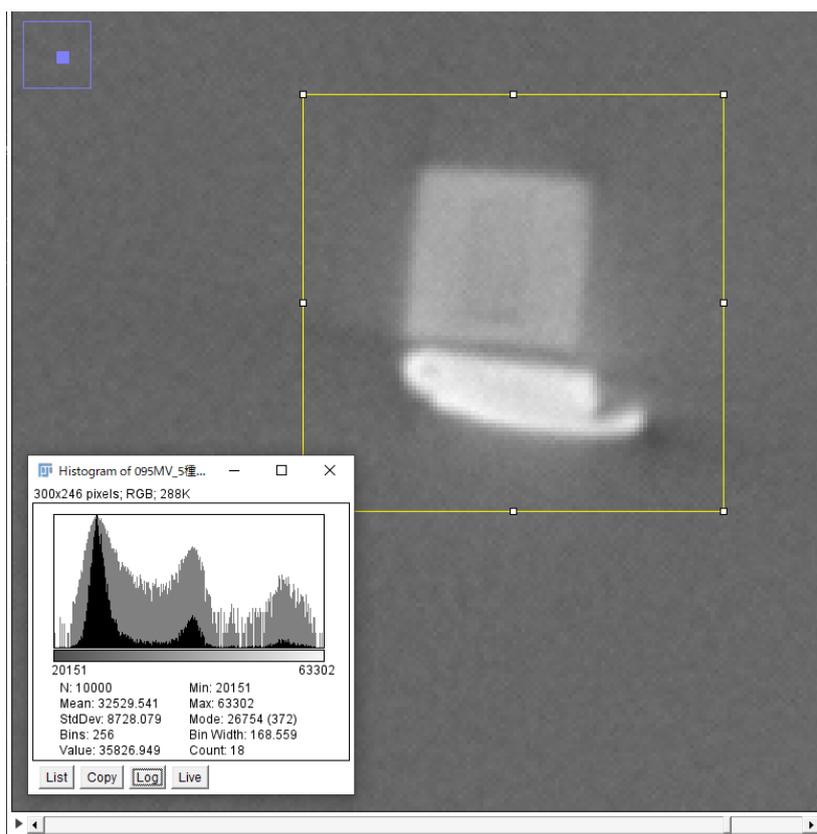


図 3-33 [950 keV] キャリブレーション用単体金属サンプルの CT 画像、およびその輝度値ヒストグラム

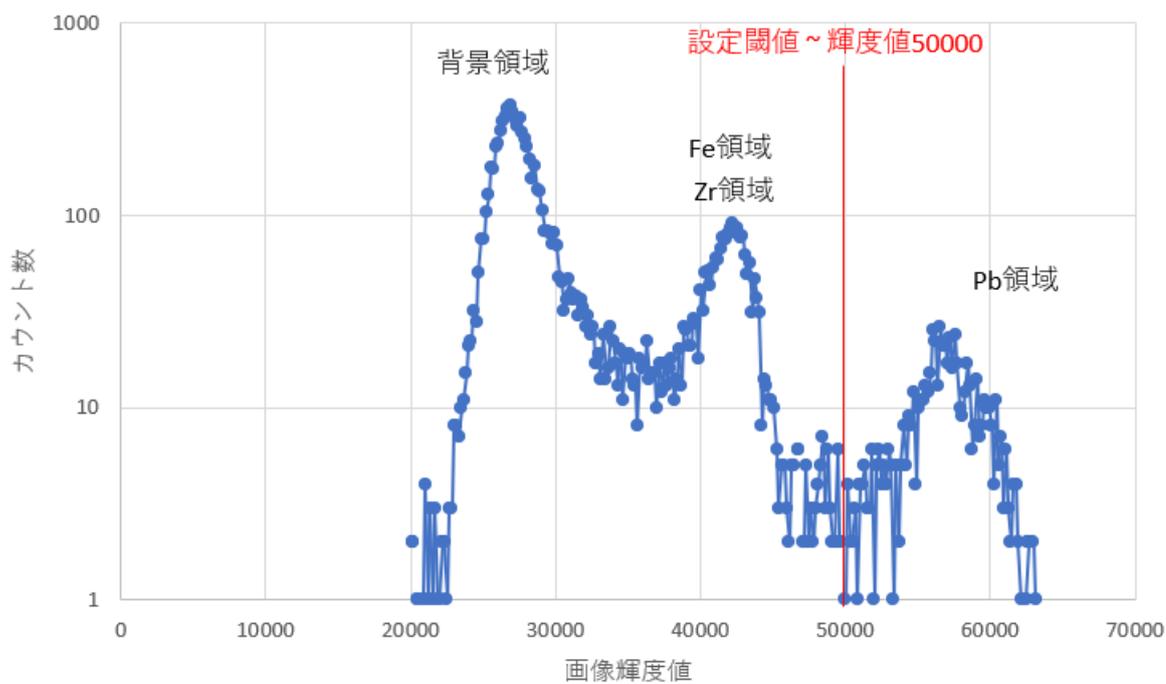


図 3-34 [950 keV] キャリブレーション用単体金属サンプルの CT 画像の輝度値ヒストグラムと、そこから設定した Pb の弁別閾値

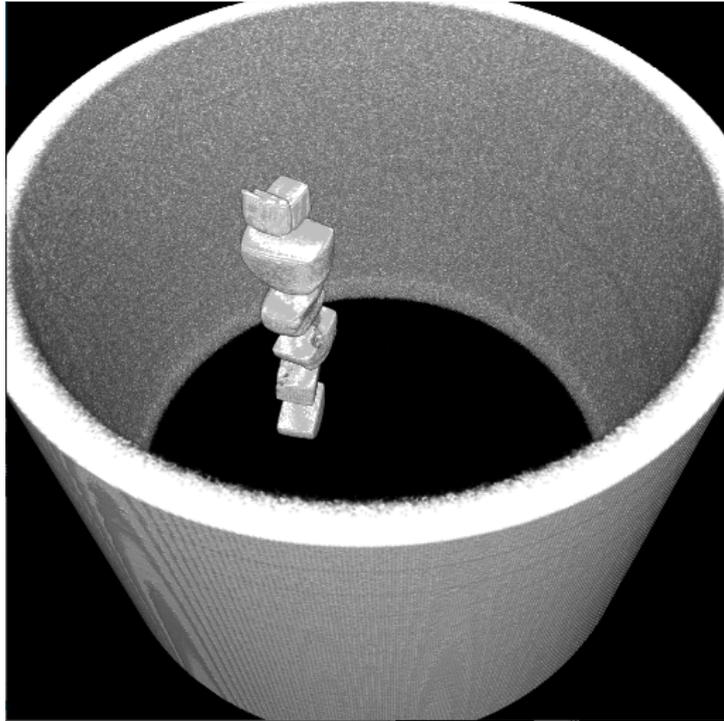


図 3-35 [950 keV] 3次元 CT の結果 (全模擬デブリ領域)



図 3-36 [950 keV] 3次元 CT の結果 (Pb のみの領域)

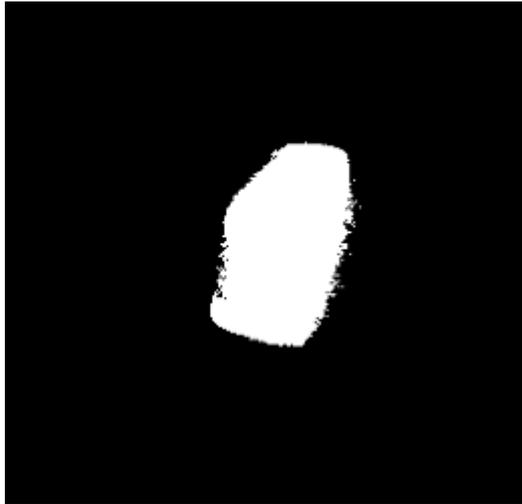


図 3-37 [950 keV] スライス#400 (サンプル 2) における二値化画像 (白色ピクセル: 模擬デブリ領域)

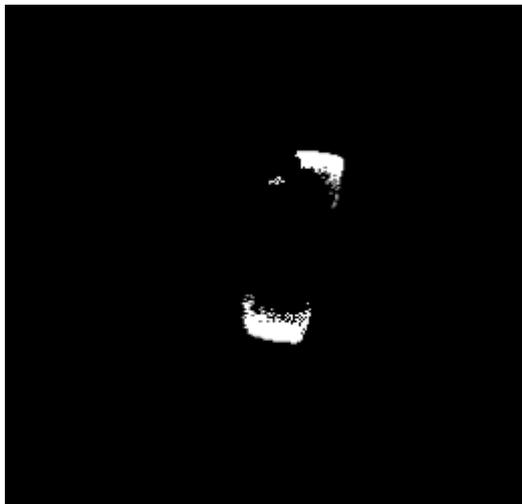


図 3-38 [950 keV] スライス#400 (サンプル 2) における二値化画像 (白色ピクセル: Pb 領域)

表 3-7 [950 keV] 各サンプルにおける
模擬デブリのボクセル数および模擬デブリ中の Pb 領域のボクセル数

サンプル番号	模擬デブリ全体	Pb 領域	Pb 領域の体積比率
1	402922	61856	15.3 %
2	319160	59241	18.6 %
3	230067	11454	4.98 %
4	198059	0	0.0 %
5	261626	0	0.0 %

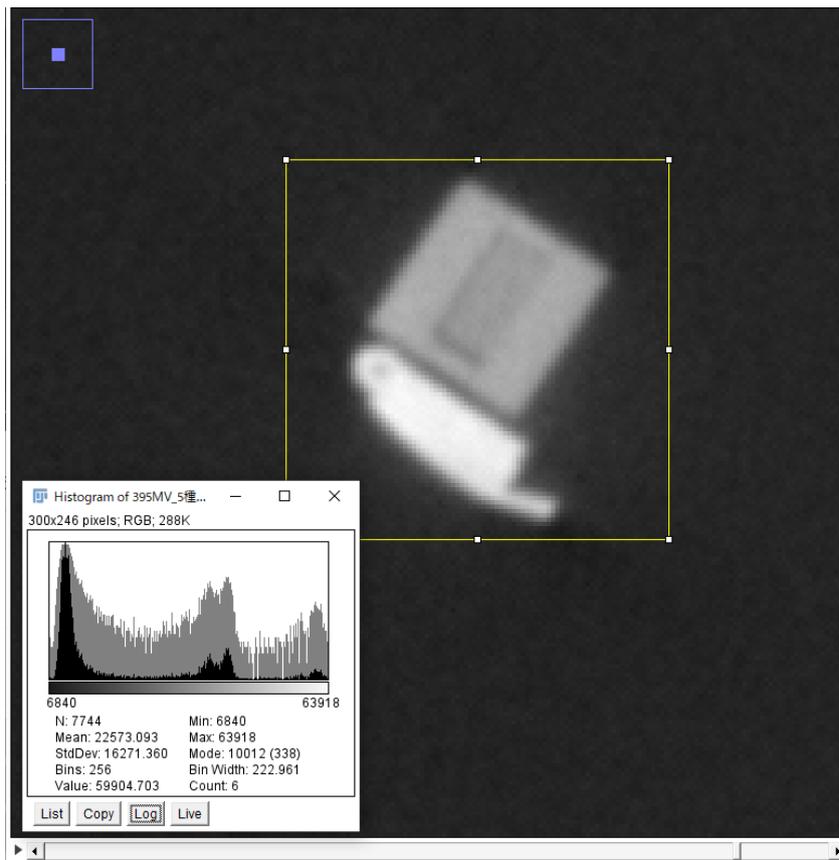


図 3-39 [3.95 MeV] キャリブレーション用単体金属サンプルの CT 画像、およびその輝度値ヒストグラム

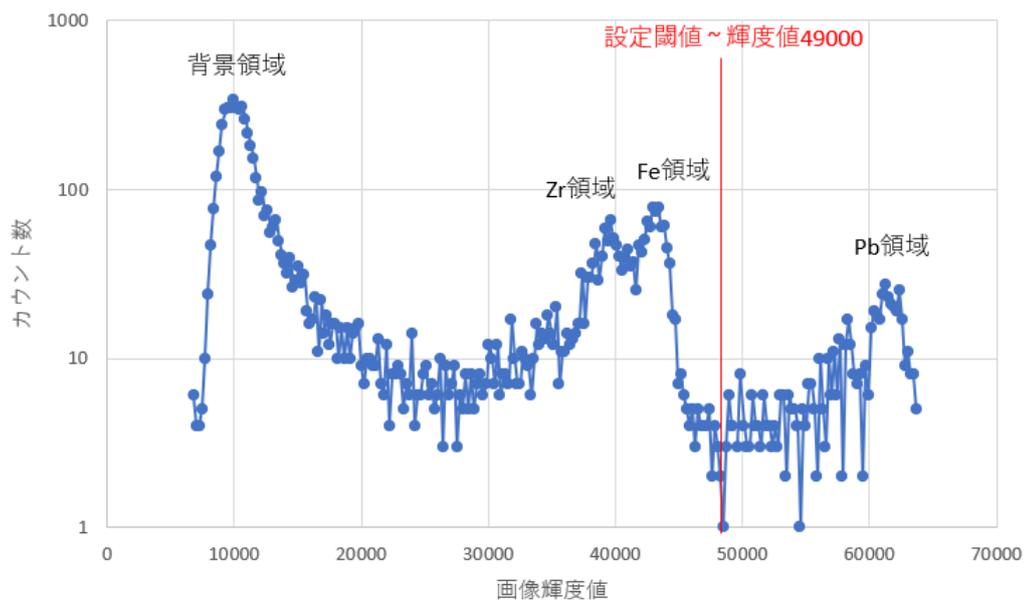


図 3-40 [3.95 MeV] キャリブレーション用単体金属サンプルの CT 画像の輝度値ヒストグラムと、そこから設定した Pb の弁別閾値

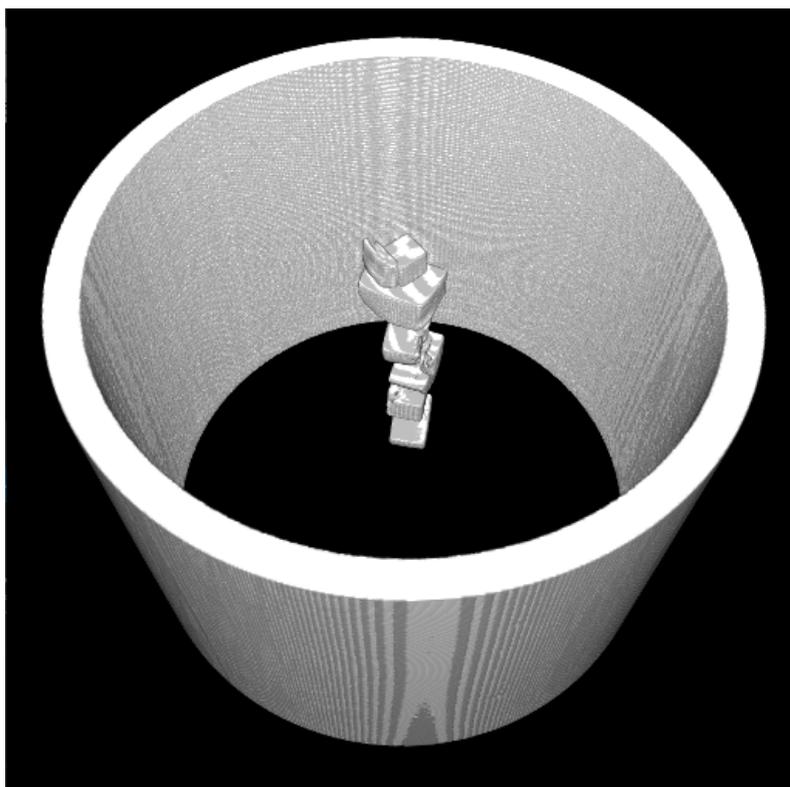


図 3-41 [3.95 MeV] 3次元 CT の結果 (全模擬デブリ領域)

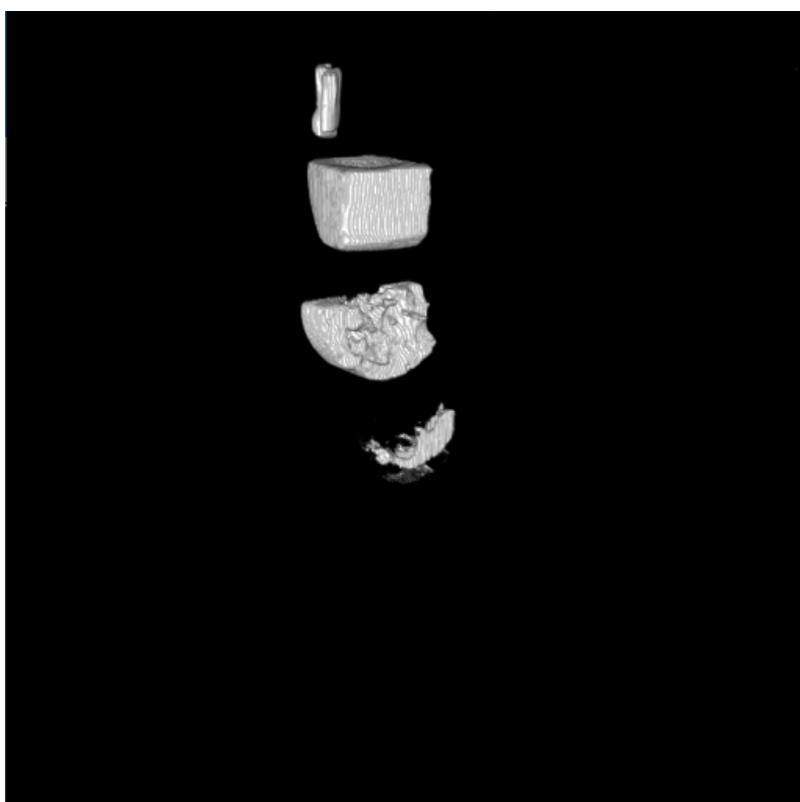


図 3-42 [3.95 MeV] 3次元 CT の結果 (Pb のみの領域)



図 3-43 [3.95 MeV] スライス#400 (サンプル 2) における二値化画像 (白色ピクセル:模擬
デブリ領域)

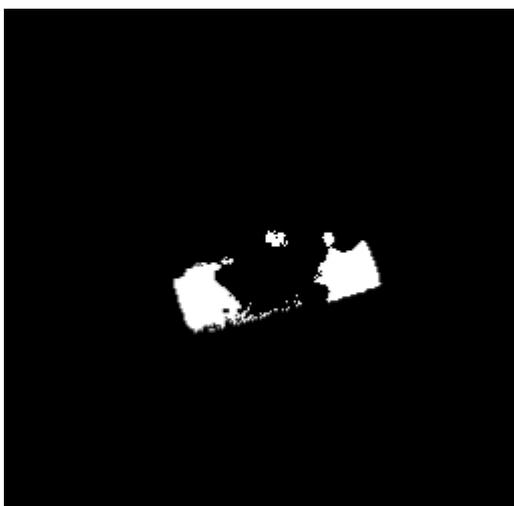


図 3-44 [3.95 MeV] スライス#400 (サンプル 2) における二値化画像 (白色ピクセル:Pb 領
域)

表 3-8 [3.95 MeV] 各サンプルにおける
模擬デブリのボクセル数および模擬デブリ中の Pb 領域のボクセル数

サンプル番号	模擬デブリ全体	Pb 領域	Pb 領域の体積比率
1	357133	273064	76.5 %
2	263986	127657	48.4 %
3	219189	15550	7.09 %
4	198705	0	0.0 %
5	263591	0	0.0 %

[2] 模擬デブリの定量評価 (NRTA)

これまでのNRTAの結果に基づいて模擬デブリの定量評価を行い、U (模擬物質) の判定精度・限界に関する評価を行った。

燃料中の95%を占めるU-238は、6~7 eVの中性子に 10^4 barns 弱の断面積を有している。このU-238に対しては、Ta-181がよい模擬物質となる。Ta-181は、4.3 eVに 10^4 barns程度の断面積を有し、天然存在比が99.9%である。Ta試料は、厚さ3 mmの板とした。He-3中性子比例計数管は、中性子発生点から1 mの距離に設置されている。Ta試料は、この比例計数管の前面に配置している。この距離1 mでの中性子のTime of Flight測定によって、比例計数管によって捕捉された中性子のエネルギーを測定している。比例計数管は B_4C の遮蔽カバーで覆われており、この遮蔽カバーの前面の30 mm×100 mmの開口領域が検出器の有感領域に相当する。また、NRTAの測定時間は60分である。

まず図3-45に、試料の有無による中性子の計数の結果を示している (R2年度測定結果の再掲)。また、この結果から中性子の透過率を求めることができ、これを図3-46に示す (R2年度測定結果の再掲)。この結果に対して、Taによる吸収ピークの形状をガウシアンによってフィッティングを行った。フィッティングの結果も図3-46に示している。その結果として、平均値3.80 eV、標準偏差0.494という結果が得られた。このガウシアン $\pm 3\sigma$ 領域は2.32 eV~5.28 eVとなる。以下の議論ではこのエネルギー領域の計数値を積分した値を計数値として代表させる。このエネルギー領域について、①Ta試料無しの場合と、②Ta試料3 mmの場合とで、図3-45に示す計数値を積分した。この結果、①Ta試料無しの場合、5384カウント、②Ta試料3 mmの場合は3570カウントと求められた。

次に、この結果を用いて、任意の試料厚さに対して期待される計数値を内挿的に求めた。まず、試料通過前、通過後の中性子強度をそれぞれ J_0 、 J と書くと、以下の式が成り立つ。

$$J = J_0 e^{-x/\mu}$$

ここで、ここで x は試料厚さであり、 μ は中性子の巨視的断面積の逆数で長さの次元を持つ値になる。中性子の巨視的断面積は、通常は微視的断面積と原子数密度の積で表される。

着目している領域の中性子のエネルギー幅は小さく、したがって、中性子強度の代わりに検出器での計数値を用いても同様の式が成り立つと考えられる。すなわち、試料の無い場合の計数値を a_0 、試料の厚さが x の場合の計数値を a とすると、

$$a = a_0 e^{-x/\mu}$$

が成り立つ。 μ に関しては、巨視的断面積を直接求める代わりに、今回は実験データからの計算によって実効的に算出した。上記の式にTa試料3 mmの場合と試料が無い場合の計数値を代入することによって、実効的な μ を7.301 mmと求められた。したがって、この結果より、任意の試料厚さ x に対する計数値を内挿的に算出することが可能となった。

次に、計数値とその誤差の評価を行った。まず、ある単一の計数値 a に対する誤差は \sqrt{a} として記述できる。また、ある厚さの試料の計数が a のとき、試料が無い場合の計数 a_0 との差を考えると、計数の差およびその誤差は、

$$a_0 - a \pm \sqrt{(\sqrt{a_0})^2 + (\sqrt{a})^2}$$

として表せる。以上の関係を用いて、任意の試料厚さに対して、試料がない場合との計

数の差とその誤差および相対誤差を評価し、試料厚さに関する検出限界を見積もった。表 3-9 に、各試料厚さにおける計数値とその誤差、0 mm との計数率差とその誤差・相対誤差を示す。試料厚さ 0 mm (試料無し) と 3mm は実験値であり、それ以外は計算によって求めた内挿値である。この結果より、試料厚さが 1 mm では相対誤差が 15%程度と小さく収まっており、判定精度が高いと考えられる。試料厚さがさらに低下し、0.5 mm になると相対誤差は 28.63 %となる。また、0.3 mm になると相対誤差が 47.40 %となり、検出は難しくなる様子が分かる。

上記の議論は、測定時間が 60 分であり、また、検出器の有感面積は 30 mm × 100 mm、試料は有感面積全体を一様な厚さで覆っているという条件の下で行われている。検出限界は計数値 (の差) によって決定されるため、これを左右する測定時間や検出器有感面積、試料の分布の状態は非常に重要である。しかしながら、現実的な燃料デブリでは、大きさ、形状、U-238 の分布は定まっておらず、この議論で想定したケースとは条件が大きく異なる。したがって、上記の議論を発展させて、任意のデブリ中の任意の大きさの U-238 領域について、それが検出可能であるかについては、追加の検討をする必要がある。まず、検出限界は計数値によって一意に決定されることを見た。そこで、たとえば検出器の有感面積を、現在は 3000 mm²であるところを、5 mm × 5 mm の 25 mm²程度の領域に絞り、デブリを細かく観察するケースを考える (これは二次元の中性子イメージング検出器における各 bin ごとの計数での議論にも適用できる)。この場合、検出器の有感面積が 1/120 に低下するため、計数値も 1/120 に低下してしまう。これを補うために、まず、検出器の検出効率向上 (ガス圧増加や奥行き方向へのスタック等の方法による)、加速器出力の向上、Be ターゲットの配置位置や形状の最適化を行うことによって、中性子計数を増やすことを考える。これによって全体として 2 倍程度の計数の増加は可能である。さらに、測定時間を 10 倍にすることを考える。これによって、全体として計数値の低下は抑制でき、もとの計数値の 1/6 程度に留めることができる。この条件であれば、厚さ 3 mm の試料であれば、0 mm との計数値差は 302.3 程度と求められ、したがって相対誤差 25.58 %の精度で検出が可能である。このように、装置や実験条件の現実的なチューニングの範囲で、5 mm×5 mm 程度の面積領域での厚さ 3 mm 程度の U-238 の検出も射程範囲となる見通しとなった。

以上により、NRTA による U の検出精度・限界について定量的な評価を行った。

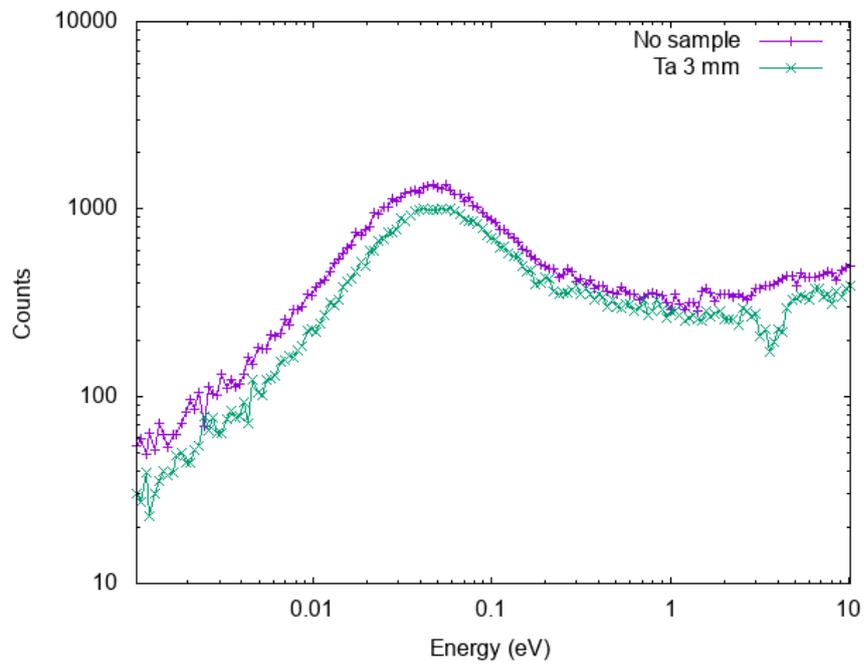


図 3-45. Ta 試料無しの場合と Ta 試料 3 mm の場合の計数值

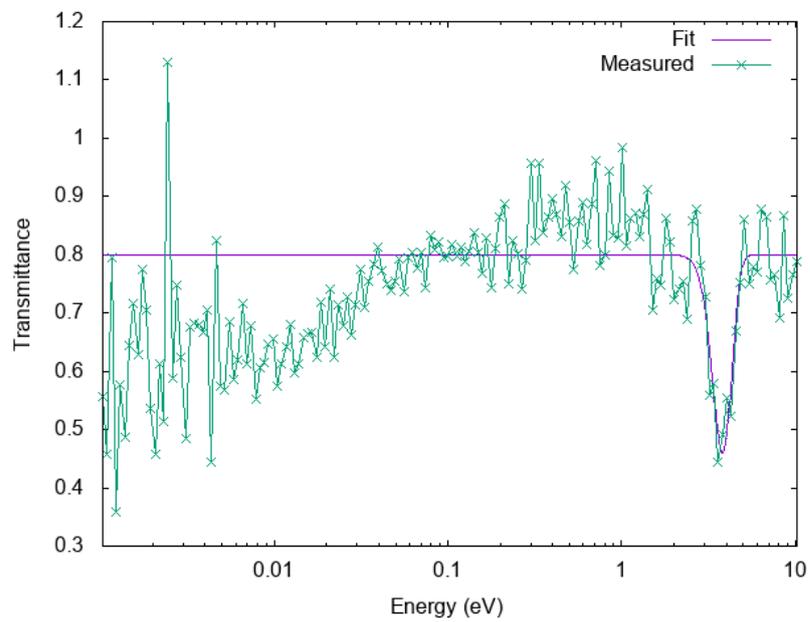


図 3-46. Ta 試料 3 mm の場合の透過率と共鳴吸収ピークのフィッティング

表 3-9. Ta 試料厚さと検出精度の評価

試料厚さ(mm)	計数值	誤差	0mmとの計数值差	計数值差の誤差	相対誤差	備考
0	5384	73.38	-	-	-	実験値
0.3	5167	71.88	216.7	102.7	47.40%	内挿値
0.5	5028	70.91	356.3	102.0	28.63%	内挿値
1	4695	68.52	689.1	100.4	14.57%	内挿値
2	4094	63.98	1290	97.35	7.547%	内挿値
3	3570	59.75	1814	94.63	5.216%	実験値

[3] 福島第一原子力発電所環境を模擬した実証試験

また、東京大学の施設内において、福島第一原子力発電所を模擬した環境における実証試験を実施した。福島第一原子力発電所サイトでは、CT によるデブリ分析実施場所においても、高い空間線量が存在する。したがって、バックグラウンド線量が X 線計測に与える影響の程度を評価する必要がある。令和 4 年度は、Cs-137 によるバックグラウンドのある状況下での試験として、チェックソースを利用してバックグラウンド線量のある状態を作り、この状態での X 線透過撮像および CT 撮像を実施した。使用機材としては、X 線源には 950 keV 加速器 X 線源を用いた。この際、5 mm の Pb のプレハードニングフィルタを X 線射出面に設置し、ビームのプレハードニングを行うようにした。X 線検出器としては、フラットパネル検出器を用いた。本課題で開発を行った、IGZO-TFT に基づいたフォトダイオードアレイと、セラミック GOS シンチレータの組み合わせによるフラットパネル検出器を用いた。この検出器は 1.5 mm の厚いシンチレータを用いているため、従来の市販の X 線フラットパネル検出器に比べて高エネルギー帯の X 線に対する感度が高い点に利点がある。また、バックグラウンド線源としては、Cs-137 のチェックソース（放射能 41.2 kBq, 2005 年 7 月測定）を用いた。

まず Cs-137 のチェックソースが生じる線量率の測定を行った。ガンマ線用サーベイメータに密着した状態で測定したところ、1~2 $\mu\text{Sv/h}$ 程度の線量率が生じた。発電所内の測定サイトで想定される線量率はこれよりもはるかに高い。そこで、加速器 X 線源の強度調整を実施して、加速器のビーム強度を落とすことによって、Cs-137 のバックグラウンドの影響を相対的に高くすることとした。具体的には加速器の定格出力レートである 330 pps を 10 pps にまで低下させた。これによって、Cs-137 のビームに対する相対的な強度は 33 倍となり、局所的に 33~66 $\mu\text{Sv/h}$ 程度の線量率の状況を模擬することができた。

次に、Cs-137 線源がフラットパネル検出器に生じる画像の影響を評価した。図 3-47 にその画像を示す。この測定ではフラットパネル検出器では 100 秒の積算を行った。本研究で利用した Cs-137 線源は放射能が低く、フラットパネル検出器に密着させた状態で測定を行った。そのため、検出器の一部にのみバックグラウンド画像が現れている。この状態での画像への影響は、X 線検出器画像の輝度値として 50 程度であった。そして、Cs-137 線源を密着させた状態で、950 keV X 線源を用いて検出器に一樣照射を行い、Cs-137 の作り出すバックグラウンドと、950 keV X 線源の信号強度の比較を実施した。この際もフラットパネル検出器での積算時間は 100 秒とした。この結果を図 3-48 に示す。この際の画像輝度値は検出器有感領域全体の平均値で 12450 と計算された。したがって、この模擬線量率の Cs-137 が画像に生じる輝度値は、950 keV X 線源の 0.402 %程度といえる。このように、線量率 33~66 $\mu\text{Sv/h}$ 程度の Cs-137 のガンマ線バックグラウンドの影響は殆ど無視できることが確認できた。また、バックグラウンド線量として許容される量はさらに大きく、より高線量なバックグラウンド状況でも測定可能であると考えられる。

以上により、福島第一原子力発電所を模擬した環境における実証試験の実施に成功した。

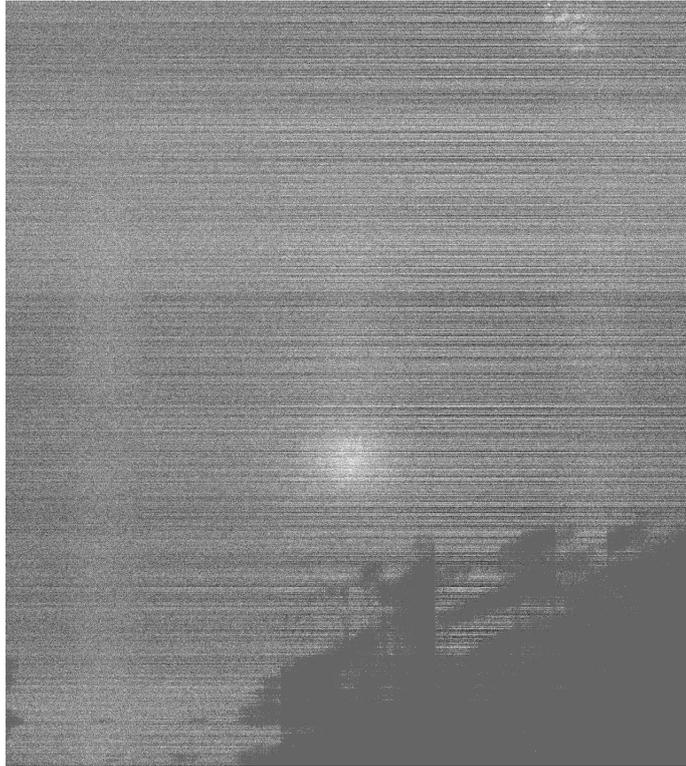


図 3-47 Cs-137 線源がフラットパネル検出器に生じる局所バックグラウンド画像

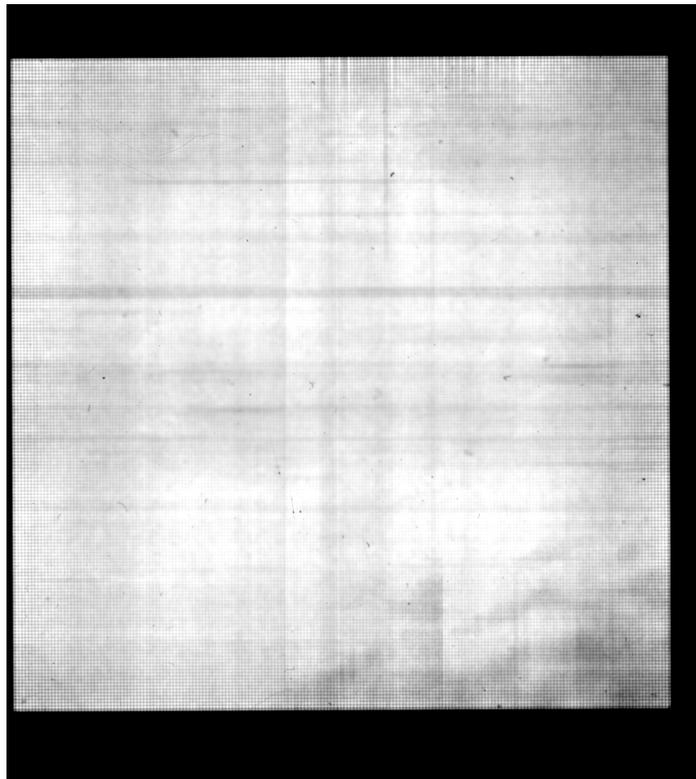


図 3-48 Cs-137 線源 + 950 keV の一様照射によるフラットパネル検出器画像

3.1.3 実機装置システムの基本設計【R4】

令和4年度は、現場適用システムの基本設計を実施した。現場ではまず検査エリア（管理区域）のスペースに制限があると考えられる。現実的には3 m × 3 m程度の領域で検査を行う必要があると考えられる。950 keV、3.95 MeVの加速器システムは、小型で、ユニットごとに分かれており可搬性も高いものとなっている。この二種類のX線源を同時に3 m×3 m程度の領域に収めて検査を行うための基本設計を行った。これを図3-49に示す。まず、加速器システムがユニット（X線ヘッド、高周波ユニット、電源ユニット、冷却水ユニット）ごとに分かれていることを生かして、X線ヘッドのみを検査エリアに収めることとした。それ以外のユニットについては、検査エリア外に配置する。このようにすることで、省スペース化が可能となり、3 m四方の領域に2つのX線源が十分に収まることとなった。収納缶に収められた燃料デブリは自動ステージによって並行移動し、950 keV機、3.95 MeV機の両方での測定を行うことができる。以前の実績では、950 keV機、3.95 MeV機ともに、3次元CTの測定に要する時間は、最速（180投影）で5分、高S/N測定（720投影）で17分であった。したがって、このシステムを用いれば、950 keV / 3.95 MeVの切り替えにかかる時間が殆ど生じないため、10分程度で二色X線CTと成分識別を実施することが可能となった。また、この2色X線CTシステムに加えて中性子発生によるNRTAシステムの基本設計を行った。これを図3-50に示す。NRTAシステムにおいても、2色X線CTの場合と同様のX線源ユニット配置を行う。そして、検査エリア内において、3.95 MeVのX線ヘッドの前に中性子発生ターゲット（Be）を配置することで、中性子を発生させる。また、中性子の飛行距離が約1 mとなる位置に中性子検出器を配置する。これによって、1 mの短距離でのTOF測定を行うことができ、NRTAを実施することができる。X線源の配置にBeのターゲットステーションを設置するだけで中性子発生装置に切り替えることができるため、ここに生じる時間ロスはほとんどない。また、1 mの短距離TOFでは令和2年度の実績で1時間程度の測定でUを模擬した物質の共鳴吸収ピークを確認することができている。したがって、以上より、1時間以内にUの有無を判定するシステムの設計ができた。

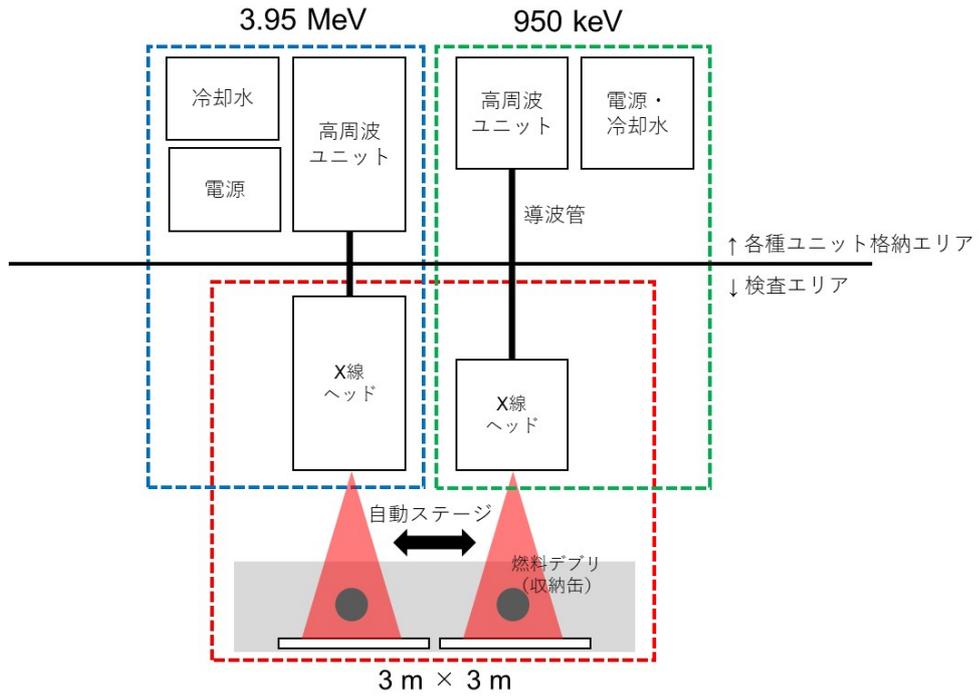


図 3-49 2 色 X 線検査システムの実機設計

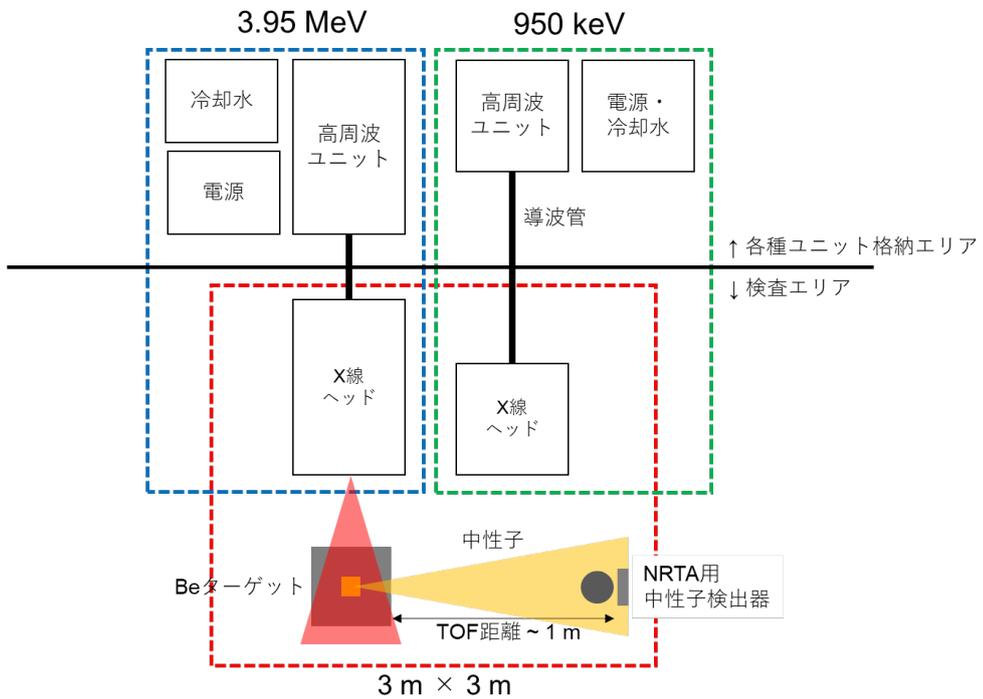


図 3-50 NRTA 検査システムの実機設計

3.2 成分溶融混合模擬燃料デブリの製作【R2-R3】

【令和2年度及び令和3年度の成果】

令和2年度は、1Fの1-3号機の燃料デブリ組成を模擬した模擬デブリを製作し、その内部組織状態を顕微鏡法によって明らかにすること目的とし、1Fの各号機で確認されたPCV内の堆積物、付着物の化学組成を参考とし、その代表組成として、Uリッチ、Fe-Crリッチ、Zrリッチ、混合物の4種を想定し、これらの模擬デブリを作製した。令和2年度は2回の溶解実験を実施し、計9種の模擬デブリ（F1P2、F2P1、F1Z2、F2Z1、Z1P2、Z2P1、F2Z1P1、F1Z2P1、F1Z1P2）を作製した。また、F1P2、F2P1、F1Z2、F2Z1はインゴットより微小試験片を採取し、これらの光学顕微鏡写真やSEM-EDS観察を実施し、試料中の特徴的な微細組織を確認した。これら一連の試料については、2色X線CT分析に供し、微細組織観察結果との相関関係の整理に用いた。

令和3年度は、1Fに大量に存在すると考えられるコンクリートと燃料の混合体であるMCCI（Molten Core Concrete Interaction）に関して、当該物質系に対する2色X線CTにおける元素識別能力について明らかにする必要があり、MCCI系に対する2色X線CTの有用性についての原理実証を図るべく、当該模擬デブリの作製と微細組織特徴の評価を行った。溶解材としてはUを模擬したPbに対して、コンクリートの主要構成物質であるSiO₂とCaOを選択し、これらの混合物の模擬デブリを作成した。これらの内部組織をSEM-EDS等を用いて観察評価を行った。

3.3 X線・中性子検出器の性能向上【R2-R4】

【令和2年度及び令和3年度の成果】

令和2年度は、まず、NRTA測定系の高速化と最適化の検討を行い、高速測定回路システムの設計を行った。具体的には、NRTAにおけるHe-3中性子検出器の信号検出とTOF時間計測を行う回路について、その高速化の検討を行い、最新のFPGAを用いたシステムの設計と回路実装を行った。コンピュータとFPGA間での通信をより高速に行うために、従来のUSB2.0を利用した読み出し回路を更新し、新たにUSB3.0を採用した回路を設計した。FTDI社のUSBインターフェイスチップであるFT600Qを採用した回路とした。また、X線検出器（フラットパネル検出器）の高感度化を実施した。本検出器では、セラミックGOS（Gd₂O₂S:Pr）シンチレータアレイを用いている。シンチレータ全体の有感領域は100 mm角となっている。シンチレータはピクセル状になっており、ピッチは0.5 mmとなっている。シンチレータの厚さは1.5 mm厚になっており、高エネルギーX線に対して高い感度を有するものを開発した。本検出器を用いて測定したSr-90のβ線源による物体の透過画像を取得することに成功し、動作確認を行うことができた。

令和3年度は、NRTA用高速測定回路システムを製作、及び、He-3ガス検出器を組み込み、NRTA測定システムの最適化を行った。He-3中性子比例計数管を従来の1本だけの体系から、3本に増加させた体系によって、検出器を高感度化させることによって高速にNRTAを実施できるシステムを作成した。3本のHe-3中性子比例計数管には、分配回路によって1系統の高圧電源から保護抵抗を介して高電圧が供給される。また一方では、比例計数管に生じた電荷信号は、3系統の比例計数管の出力を分配回路内でまとめて、1系統の前置増幅器及び波形整形器によって読み出すシステムとした。これによって3本の比例計数管によって高いカウントレートでの測定が可能となり、高速測定が行えるシステムとなった。本システムは、3.1.2に示すNRTA実験に供された。また令和3年度は、NRTA測定系に供することのできる二次元中性子検出器の設計・開発を実施した。二次元中性子検出器は、ガラス基板を用いたガス電子増幅器（Glass Gas Electron Multiplier, G-GEM）を検出器として構築した。またその読み出し基板の設計・開発を実施した。読み出しは高分解能で二次元イメージングを実施するために、400 μm微細ピッチのクロスストリップ構造とした。これらはフレキシブルプリント基板製造技術を駆使して作成した。

【令和4年度の成果】

令和4年度は、開発した二次元中性子検出器を用いて、中性子計測に関する評価を実施した。まず、令和3年度までのG-GEM検出器のシステムを改良し、最適化を行った。特に個別読み出し基板の改良設計および作成を行った。また、この読み出し基板からの信号を取得するシステムとして多チャンネル読み出し可能な回路を構築した。個別ストリップ読み出し基板と多チャンネル読み出し回路を組み合わせ、G-GEM検出器の高分解能個別ストリップ読み出し技術を開発した。図3-51にこの全体写真を示す。また、中性子検出技術としては、中性子の捕捉のために検出器のカソードにボロンコンバーターを導入し、B-10との反応により中性子を荷電粒子に変換して中性子を検出する仕組みをとった。この検出器を用いて、β線源で

ある Sr-90 を照射して測定したところ、個別ストリップからプリアンプを介して増幅電荷信号を観察することができた。図 3-52 に、ストリップ電極から得られた Sr-90 の信号を示す。それぞれ、交差するストリップ電極の表側と裏側の 1 本の電極に対して電荷有感型前置増幅器および波形整形器を接続して得られた信号である。開発した検出器が電子増幅器として正常に機能し、また、増幅器と組み合わせた個別ストリップ読み出し基板も正常に動作することが確認できた。これによって、システムの評価を行うことができた。

従来より用いてきた中性子検出器（比例計数管）は直径が 25.4 mm であり、また、細いものでも直径 12.7 mm 程度であった。したがってこれを用いた検出器では位置分解能性は望めない、あるいは低く留まっていた。しかしながら、本研究で開発した中性子検出器は、読み出し基板に 0.5 mm ピッチのストリップを有しており、高い位置分解能での計測を行うことができる。また、隣接するストリップ同士を binning によってまとめることで、分解能を犠牲にしながらも計数を増やすといった測定が柔軟に行えるようになった。これによって、デブリ中の U 領域の粒度に応じて、観察したい分解能精度の設定と、NRTA 測定において必要となる計数量のバランスを取ってのイメージングが可能である。本検出器では、コスト性の観点から内部を Ar ガスで満たして中性子捕捉には B-10 コンバーターを用いているが、B-10 を用いるのではなく内部に加圧した He-3 ガスを充填することによって、比例計数管に近い検出効率に達することも期待できる。以上より、本検出器によって、従来検出器からの性能向上が可能となった。

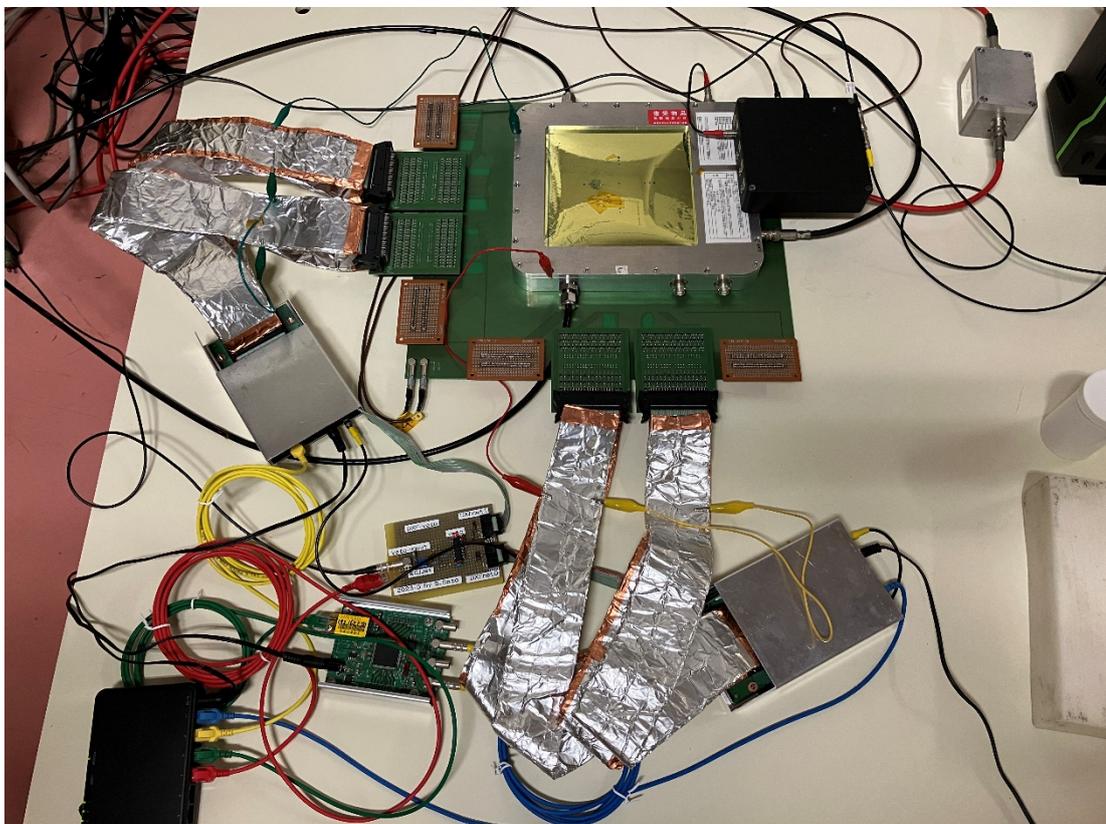
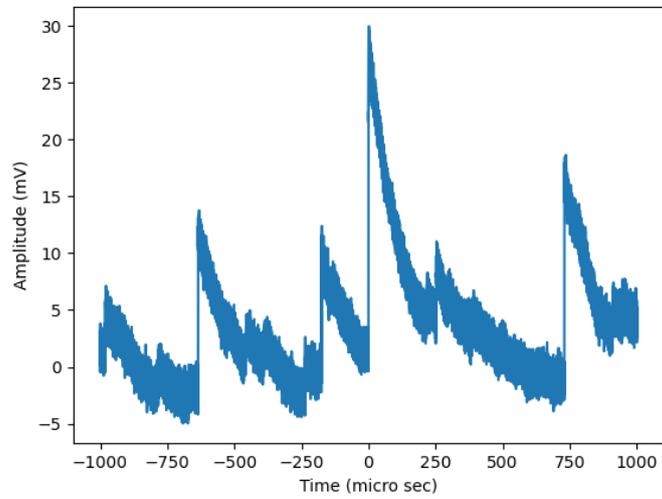
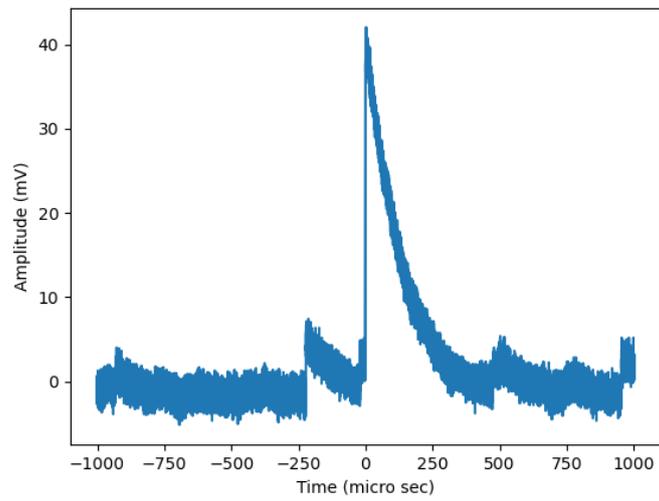


図 3-51 二次元中性子検出器および個別ストリップ読み出し系



(a) Top strip signals



(b) Bottom strip signals

図 3-52 開発した二次元中性子検出器で得られた信号 (Sr-90 β 線源での評価)

3.4 直線加速器の規制に関する検討【R2-R4】

【令和2年度及び令和3年度の成果】

令和2年度は、福島第一原子力発電所サイトでの3.95 MeV X線発生装置の利用を目指しての議論を実施した。放射線障害防止法（許可使用に係る使用の場所の一時変更の届出）においては、第九条に「直線加速装置（4 MeV 以下）の“橋梁又は橋脚”の非破壊検査」が認められている。その“橋梁又は橋脚”の箇所を、“橋梁又は橋脚および原子力施設”へとするような規制緩和の実現を目指し、原子力規制庁に規制の変更に向けて状況の説明を行った。

令和3年度は、直線加速器の福島第一原子力発電所での使用に向けた検討として、原子力規制庁や関連企業と、福島第一原子力発電所での実験に向けた検討・相談を実施してきた。特に、東京電力ホールディングス株式会社と、福島第一原子力発電所内での試験実施について、実施予定場所（建屋）等、実験内容について検討し、模擬デブリを用いたデモンストレーションを行う方向性で協議を進めてきた。また原子力規制庁とは、3.95 MeV 加速器を福島第一原子力発電所において利用するための各種の案について相談を行った。また、3.95 MeV 加速器による中性子発生によるNRTAでの核種同定に関しては、中性子線は様々な核種（対象試料に限らず、装置自体や周辺の物体を構成する物質）に吸収されることによりその核種を放射性核種に変換することが多い。放射化物については、その放射性核種の種類や放射能によって管理が必要となる。そのため、XバンドX線非破壊検査装置(3.95 MeV)を用いて中性子線を発生する際の放射化の影響を予め数値計算等で見積もることは重要である。さらに、数値計算等で見積もった放射化の数値が妥当であるか検証の必要がある。ここでは、放射能測定で感度の良いと金(Au)を用いて、数値計算の結果の妥当性を測定と比較することにより検証した。

【令和4年度の成果】

令和4年度は、直線加速器の福島第一原子力発電所での使用に向けた協議を継続した。東京電力ホールディングス株式会社と打ち合わせを継続して実施した。また、東京大学での施設内において、福島第一原子力発電所の現場環境を模擬した状態での実験を実施した（3.1.2 参照）。

3.5 研究推進【R2-R4】

【令和2年度及び令和3年度の成果】

令和2年度は、本研究を推進するにあたって、研究代表者のもとで、各研究項目間の連携を密にして研究を実施した。連携・協力機関を含めて、定期的な打ち合わせ（日時：2021年2月11日、場所：オンライン、議題：東京大学・NDF間における燃料デブリ分析測定打ち合わせ）を実施し、情報交換をおこない、効率的に研究を進めた。

令和3年度は、本研究を推進するにあたって、研究代表者のもとで、各研究項目間の連携を密にして研究を実施した。東京電力HD株式会社等の連携・協力機関を含めて、定期的な打ち合わせを実施し、情報交換をおこない、効率的に研究を進めた。燃料デブリ分析に関しては、対面・オンラインにより計4回の関係者打ち合わせを実施した。

【令和4年度の成果】

令和4年度は、本研究を推進するにあたって、研究代表者のもとで、各研究項目間の連携を密にして研究を実施した。再委託先の福島大学との2色X線CT数値解析の打ち合わせを2022年7月13日に実施した。また、東京電力ホールディングス株式会社との打ち合わせを2022年8月8日、8月9日、12月20日に実施した。また、本事業の研究成果に関しては、随時国内・国外の学会において発表を行った（[1] M. Hamdan, et al., 2022 IEEE NSS MIC RTSD, Milano, NSS-20-224 [2] A. Mikami, et al., 応用物理学会春季学術講演会, 上智大学, 18p-D411-6）

4. 結言

本研究では、福島第一原子力発電所の現場での燃料デブリ分析を目的として 2 色 X 線 CT および NRTA のシステム開発およびその実証を行った。福島第一原子力発電所において取り出された燃料デブリを現場で分析することによってウランの含有量等が迅速に判定できれば、ウランを含む核廃棄物とそれ以外の放射性廃棄物に仕分けするなどの合理的な保管管理が可能となり、非常に大きなコスト削減になる。また計量管理の面でも資することが可能になる。

本研究では特に、可搬型小型加速器 X 線源に基づいた 2 色 X 線 CT、および同加速器に基づく小型中性子源による NRTA を実施した。測定に用いる模擬デブリとしては U を模擬した物質と原子炉構造材料を用いて作成した。これを用いて、加速器 X 線源によって 3 次元 CT を実施した。CT では模擬デブリを収納缶に格納した状態での測定を行った。また、CT の結果の分析を行い、U 模擬物質の定量評価を行った。機械学習手法による分析も実施した。NRTA では、U 模擬物質の共鳴吸収ピークを計測することができた。現場試験においてはスペースが限られるため、3 m 四方の領域内にシステムを配置するような基本設計を実施した。

X 線検出器および中性子検出器の高性能化に関する研究も実施した。X 線検出器は従来のフラットパネル検出器に比べて厚いシンチレータを有し高エネルギー X 線に対する感度の高いものを新たに開発した。これを用いて X 線 CT の実験を実施した。また、二次元の高分解能中性子検出器の開発を実施した。

これらの分析システムを福島第一原子力発電所の現場において使用するために、関係機関との協議を継続して実施してきた。また、令和 4 年度には、福島第一原子力発電所の現場環境（空間線量）を模擬した条件下での実証試験を実施した。

今後の展望としては、本システムを福島第一原子力発電所内において使用するための協議を継続して行い、実際に現場にシステム一式を設置して X 線 CT および NRTA による分析試験を実施することが望まれる。