

新たな未臨界監視検出器をめざ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ウンド信号に隠れ、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。

^{252}Cf の自発核分裂における観測において、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、 ^{137}Cs 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。 $n + ^{235}\text{U}$ 反応においても、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。 ^{252}Cf 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、 $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$ 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、 $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$ 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。

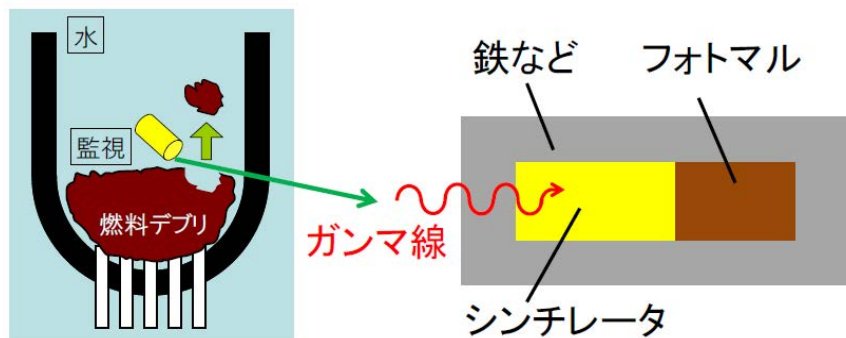


図1 未臨界監視(左)と、監視検出器(右)の概念図

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

$^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$ における即発ガンマ線のエネルギースペクトルおよび収率を取得するため、研究用原子炉からの中性子ビームを用いた実験が必要となる。実際には、フランス・グルノーブルのラウランジェバン研究所 (ILL) にある High Flux Reactor からの中性子ビームを用いた実験を想定し、このための実験装置の開発を行った。装置の模式図を図2に示す。装置は、(a)核分裂片を検出する核分裂片検出器、(b)ガンマ線検出器、および(c)データ収集装置から構成される。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 CF_4 ガスで動作させるもので、中心の薄膜カソードをワイヤー面(グラウンド電極)で挟んだ構造とした。MWPCの性能試験を行ったところ、立ち上がり時間約5 nsの高速のパルス特性を有した。これにより、核分裂片を高い計数率(100kHz相当)で測定できることがわかった。

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。このため、直径4インチ×厚さ5インチの $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 検出器を開発した。これは、 $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 検出器としては、現在の作成技術で最大の大きさの結晶となった。この検出器は、高速パルスが得られることから高い時間分解能が得られる特徴がある。核分裂にともなって放出されるガンマ線と即発中性子を分離するため、核分裂事象をスタートとする飛行時間分析を行う設計とした。もう一つの特徴は、高いエネルギー分解能を有していることである。実際に開発した検出器を ^{60}Co ガンマ線源(1332.5および1173.2keV)によって試験したところ、エネルギー分解能2.4%を達成した。実際の測定では、周囲の材料が中性子を捕獲した際に放出されるガンマ線のバックグラウンド発生を抑制する必要がある。検出器のエネルギー分解能が高ければ、ガンマ線エネルギーからバックグラウンドの発生起源となる核種(材料)を容易に同定できる。これにより、実験開始の直後から最適な遮蔽材の配置を決定できることが可能となった。ガンマ線のエネルギースペクトルを決定するため、開発した $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 検出器のガンマ線エネルギーに対する全吸収エネルギー効率を決定する必要がある。20 MeV領域におけるガンマ線の効率を決定するため、原子力機構タンデム加速器で得られる2.6 MeVの陽子ビームを用いて $^{11}\text{B}(p, \gamma)^{12}\text{C}$ の反応実験を行った。 ^{12}C を18.37 MeVに共鳴励起させることで、脱励起によるガンマ線のエネルギーを最大18.37 MeVまで観測することができた。低エネルギー側での ^{60}Co および ^{137}Cs 線源を用いた絶対値の効率測定と組み合わせることで、高エネルギーに至るまでの効率曲線を求めている。

核分裂ガンマ線を測定するため、核分裂片およびガンマ線検出器を高い計測率で測定する必要がある。高計数率での測定の場合、パルスのパイルアップの影響を知る必要がある。本研究では、信号波形がパイルアップを示した場合、別処理によって波形を別途記録することでパイルアップ信号を除去(あるいは利用)できるデータ収集装置を開発した。テストの結果、パイルアップ処理に成功しており、実際の実験のデータ収集において機能している。

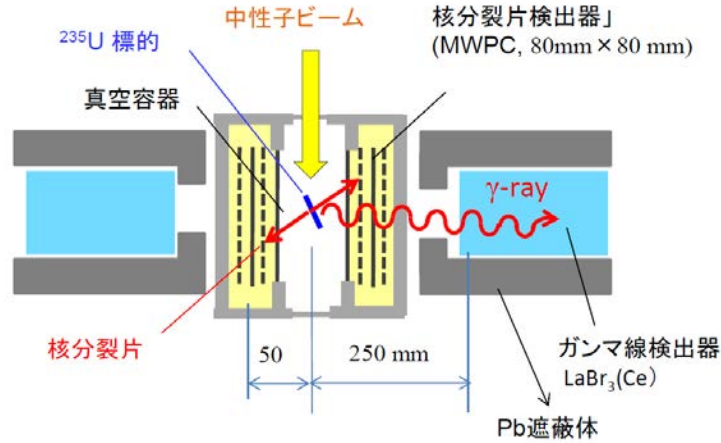


図2 開発した実験装置の概念図

本実験のため、グルノーブル ILL の High Flux Reactor から供給される中性子ビームを用いた実験を提案し、31 日間のマシンタイムが受理された。実験は、平成 27 年 10 月 13 日～11 月 12 日で実行することができ、現在も実験を遂行している。本実験に必要な濃縮 ^{235}U 標的 ($110 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 、濃縮度 99.93%) は、ベルギーの IRMM 研究所から借用した。実験ビームラインとして、PF1B を利用した。中性子フラックスは、約 1×10^8 ($\text{n}/\text{s}/\text{cm}^2$) となるようビーム上流に中性子コリメータを設置した。

図3に得られたスペクトルの例を示す。左図で、横軸は MWPC - $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 間の時間差スペクトル、縦軸は $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ のパルス波高を表す。核分裂で発生する即発ガンマ線と即発中性子がきれいに分かれている。図3の右は、ガンマ線にゲートをかけ、バックグランド補正をした後のパルス波高スペクトルである。20MeV 領域までのガンマ線スペクトルが得られつつある。現在、データを蓄積している。

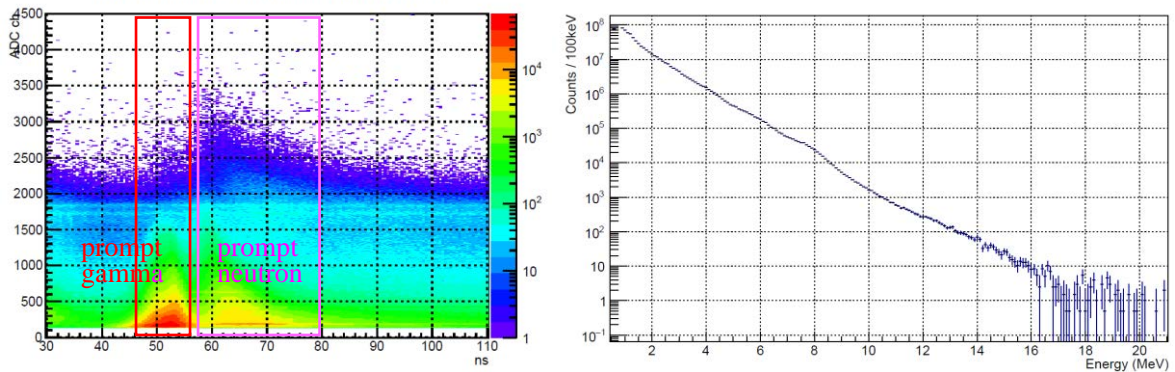


図3 グルノーブル ILL で行ったデータの例。【左図】 MWPC と $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ の時間差(横軸)と $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ のパルス波高スペクトル (縦軸)。【右図】 バックグランド補正後の $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ のガンマ線パルス波高スペクトル。

(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

図1に示す概念にもとづいて、未臨界監視検出器の設計を行うため、高エネルギーガンマ線に対する応答を調べた。応答は、PHITS コードによるシミュレーションで行った。ウラン燃料体系を模擬するため、直径 40 cm のウラン・ジルコニウム (密度 $19\text{g}/\text{cm}^3$ 、総重量 5.1 トン) を設置し、

これに近接するように鉄遮蔽（厚さ 20cm）で囲まれた LaBr₃(Ce) 検出器（直径 4 インチ×厚さ 5 インチ）を設置した。ウラン燃料体系全体で核分裂反応が均一に生じると過程してガンマ線を発生させ、燃料体系自身による吸収および鉄材料による遮蔽を経て、LaBr₃(Ce) 検出器に付与されるエネルギースペクトルを調べた。結果を図 4 に示す。図は 1, 5, 10, 18 MeV の単色ガンマ線をそれぞれ 1 本発生させたときの、未臨界検出器における吸収スペクトルを表す。計算では、1, 5, 10, 18MeV の核分裂ガンマ線が検出される確率は、それぞれ 1.5×10^{-8} , 1.3×10^{-6} , 1.7×10^{-6} , 2.3×10^{-6} となった。核分裂生成物の多くは 1MeV 未満にピークを持ち、これら低エネルギーガンマ線に対しては 2 桁感度が下がることがわかる。デブリにおける主要なガンマ線となっている ¹³⁷Cs（半減期 30 年）のガンマ線エネルギーは、0.66MeV であり、このガンマ線に対する感度は極めて低くなる。現在、シミュレーションを通じて監視検出器の概念設計を行っている。

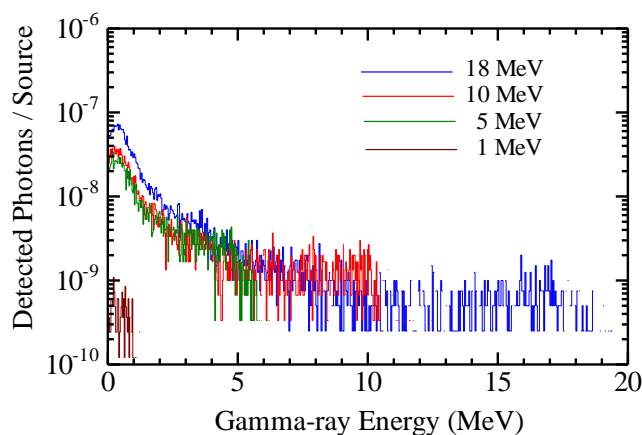


図 4 ウラン燃料体系で発生したガンマ線に対する未臨界監視検出器の応答の計算例

3. 今後の展望

²³⁵U(n_{th}, f) ガンマ線エネルギースペクトルの測定の実験を完了させ、データ解析を行うことで、高エネルギー領域に至るまでのガンマ線エネルギースペクトルを取得する。また、計算シミュレーションによってガンマ線未臨界監視検出器の感度と応答を求め、設計指標を与える。これに必要な環境バックグラウンド量を計算シミュレーションから得る。²³⁵U(n_{th}, f) のガンマ線エネルギースペクトルとして実験データを用いる。

4. 参考文献

[1] H. Van der Ploeg et al., Phys. Rev. C, **52** (1995) 1915.