

次世代核燃料健全性評価のための非破壊分析技術の開発

(受託者) 国立大学法人京都大学

(研究代表者) 中島健 京都大学原子炉実験所教授

(再委託先) 国立大学法人北海道大学、学校法人五島育英会東京都市大学、アールテック株式会社、
国立大学法人名古屋大学、大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構

(研究期間) 平成26年度～29年度

1. 研究の背景とねらい

次世代の原子力システムとして、マイナーアクチニド (MA) を効率良く燃焼し、廃棄物の減容及び有害性の低減を図ることができる「MA 含有 TRU 燃料を用いた高速炉システム」が有望視されている。ところが、最大5%の MA 含有率が想定されている TRU 燃料においては、MA の崩壊熱による発熱量や線量率が高くなるため、燃料の製造、使用、輸送、貯蔵の各プロセスにおいて、厳格な除熱管理と高い放射線場における燃料の健全性評価が必要となる。しかしながら、従来の分析手法は、高い放射線や崩壊熱の発生があるため適用が困難であり、非破壊で核燃料を定量する新たな手法の開発が求められている。

このようなニーズを踏まえ、本事業では、MA 含有 TRU 燃料の健全性評価のために、電子線形加速器によるパルス中性子源を用いた中性子飛行時間 (TOF) 法による共鳴核種測定を中心として、核種濃度及び物性情報 (熱特性、形状等) を定量、可視化する総合的な非破壊分析測定システムを開発し、その有効性を実証することとした。このため、「核種濃度定量・可視化技術の高度化」、「物性値の定量・可視化技術の高度化」、「総合測定システムの開発」を実施し、これらの成果を基に「実証試験に基づく測定システムの総合評価」を行った。

2. これまでの研究成果

2.1 核種濃度定量・可視化技術の高度化

本項では、京都大学原子炉実験所の電子線形加速器 (以下、京大炉ライナック) のパルス中性子源としての性能向上のための「中性子源開発」、核種濃度定量のための「Self-indication 法による核種定量技術の高精度化」、並びに、可視化技術高度化のための「パルス中性子イメージング技術の高度化」の3項目を実施した。

「中性子源開発」では、TOF 法による共鳴核種測定に適した中性子源、コリメータ、測定系までのビームラインの設計のための検討・調査を行うとともに、中性子源・中性子輸送系の改良・性能試験を行った。その結果、試料位置での中性子ビーム強度が、従前と比較し熱中性子束は約10倍、熱外中性子束は約6倍に増強されるなど、本研究に必要な性能を得ることができた。

「Self-indication 法による核種定量技術の高精度化」では、核燃料模擬物質を用いた試験を実施するとともに、核燃料模擬物質中の不純物核種が定量結果に及ぼす影響を低減するための解析手法の高度化について検討を行った。その結果、本手法の有効性を確認するとともに、核燃料核種について精度1%で定量できる見込みを得た。さらに、TRU 燃料を模擬するために、 ^{237}Np 、 ^{93}Zr 、劣化ウラン (DU) を積層した場合についても self-indication 法の測定を行った。その結果、TRU 燃料に対しても self-indication 法が適用可能であることが実証できた。

「パルス中性子イメージング技術の高度化」では、本事業で製作 (2.3 節参照) した高効率・高

時間分解能検出器及び検出回路系の組合せで、熱外中性子領域まで、時間分解 2 次元透過画像測定に有効な検出器システムを完成した。模擬燃料物質の測定では 1 mm サイズの共鳴物質までは、測定データの重心処理により検出・物質同定が可能なことを示した。核燃料被検体の測定では、各被検体の注目領域 (ROI) の TOF スペクトルから高い精度で物質同定ができる事を示した。また、厚さの異なる被検体の中性子透過データから厚さに対する透過率を有意な精度で指数関数表

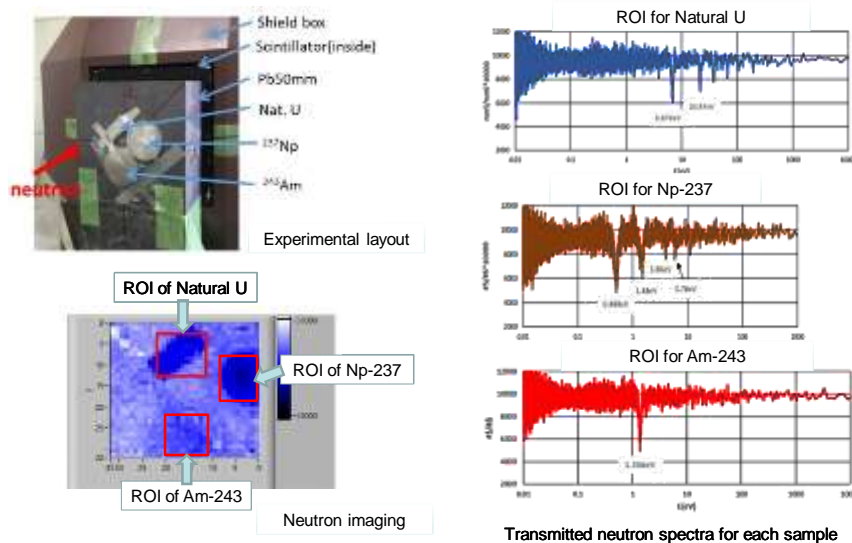


図 1 天然 U, ²³⁷Np, ²⁴³Am の中性子イメージング測定結果 (厚さ 5m の鉛遮蔽体でカバー)

示できることを示し、核燃料物質の定量測定に有効なデータを取得できた。核燃料物質とともに存在する MA の測定ではガンマ線遮蔽のために 50mm 厚さの鉛を通して中性子測定が必要となるが、その条件下でも天然 U, ²³⁷Np, ²⁴³Am の被検体のエネルギー分解 2 次元画像化測定により、それぞれの物質の位置・形状を測定することができた (図 1)。

2.2 物性値の定量・可視化技術の高度化

本項では、密度分布等の物性値の可視化のための「中性子・X 線イメージングによる形状測定」、温度特性評価のための「ドップラ効果を利用した温度分布測定」の 2 項目を実施した。

「中性子・X 線イメージングによる形状測定」では、2 次元空間分解可能な飛行時間分析型中性子検出器を用いる場合において、情報の空間分布の把握を改善するためには、X 線或いは中性子による高精細透過画像に空間分解能の粗い時間分解イメージをマッピングする方法を開発した。そのために、基本データとなる中性子による高精細透過画像を得るため、中性子-光コンバータと高空間分解能デジタルカメラを組み合わせた高空間分解能型中性子検出器 (GEM 検出器) を用いた測定システムを試作し、測定試験を実施した。また、視野の異なる高解像度と低解像度の画像に関し、輝度値を元にしたマッピング及び位置合わせを行う手法について検討し、低空間解像度中性子解析情報を 3 次元マッピングする相手となる X 線による高精細な内部構造モデルを作成する

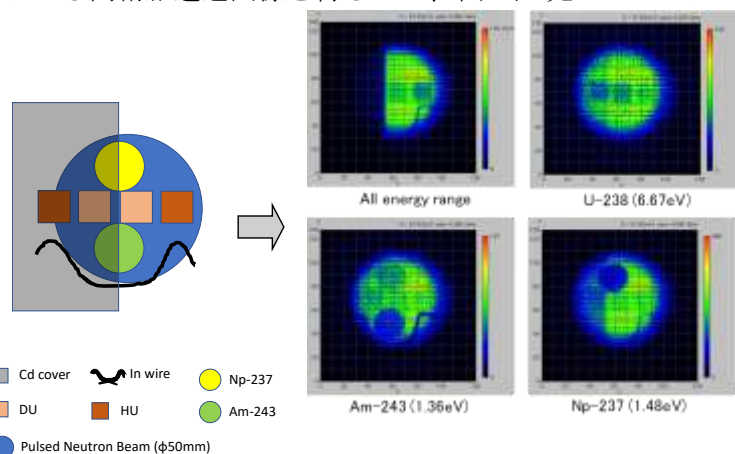


図 2 中性子吸収体 (Cd) 下の核種の中性子イメージング 対象核種 : ²³⁸U (劣化 U), ²³⁷Np, ²⁴³Am

ための高エネルギーX線 CT 装置を開発した。これらの知見を基に、X線 CT による内部構造モデルを元にした高解像度イメージと中性子による低解像度イメージにより相乗イメージングを行い、得られた元素分布情報を高分解能に3次元ボリュームモデル化する手法を開発した。これまで中性子分光法を用いた3次元 CT 画像の取得には膨大な時間を費やしていたが、本手法を用いることで大幅な測定時間の短縮が可能となった。また、核燃料物質の定量及びその形状把握に向けて、京大ライナックの12m測定室に高空間分解能型中性子検出器を用いたイメージング装置を整備し、模擬燃料被検体等を用いて空間分解能の評価を行った。実証試験では、模擬燃料、核燃料物質及びMA核種に対する中性子イメージングを実施した。さらに試験の結果、形状測定のための高空間分解能型検出器でも核種弁別型中性子イメージングも可能であることが明らかになり、これまでは不可能であった中性子吸収体の陰に隠れた被検体の中性子イメージングに成功した(図2)。

「ドップラ効果を利用した温度分布測定」では、ドップラ効果を測定することで被検体内部の温度分布を評価するために、実験室への架台の設置、昇温装置の作成を行った。昇温装置については性能試験及びドップラ効果測定の予備試験で得られた知見及びデータを基に改良を行った。最終年度にバルク被検体に対するドップラ効果測定を実施し、予め求めた計量曲線と比較することで温度評価が可能であることを示した。また、本事業で開発したマッピング技術と組み合わせることで被検体内部の温度分布のイメージングができる見通しを得た。また、透過中性子束を測定することで被検体の熱膨張を観測することができ、他分野への応用が期待できる。

2.3 総合測定システムの開発

本項では、上記の各研究項目の実施に必要となる「検出器システムの開発」、「高解像度化処理回路・多次元データ処理装置の開発」及び「制御システムの開発」を行った。

「検出器システムの開発」では、熱外中性子の検出効率向上を目的として、Liガラスシンチレータを用いた高効率・高時間分解能検出器(5 mmt×32 ch×32 ch)を開発した。更に同検出器と計測ユニットとのマッチングを実施した。また、X線用シンチレーション検出器の校正に用いるエネルギー掃引型パルスX線装置を整備した。その結果、京大ライナックにおいて改良した検出器と256chマルチチャンネル光電子増倍管、2次元測定回路系(LiTA)とのマッチング試験を行い、高エネルギー中性子までの反応確認、特定核種に対応する共鳴吸収という中性子時間分布(TOF)測定に必要な機能を持つことを明らかにした。さらに、LiTAシステムをシリコン受光素子(MPPC)でも使用できるように研究開発し、ピクセルごとにゲインを調整できる改良を行い、開発したシステムが設計通りに動作することを確認した。

「高解像度化処理回路・多次元データ処理装置の開発」では、高空間分解能中性子イメージング装置の画像処理、及び、高効率・高時間分解能中性子イメージング装置等の2次元マッピングを行うための測定回路基板の製作及び高度化を実施した。また、そこで得られた知見をもとに、京都大学原子炉実験所や北海道大学で、パルス中性子源を用いた実験

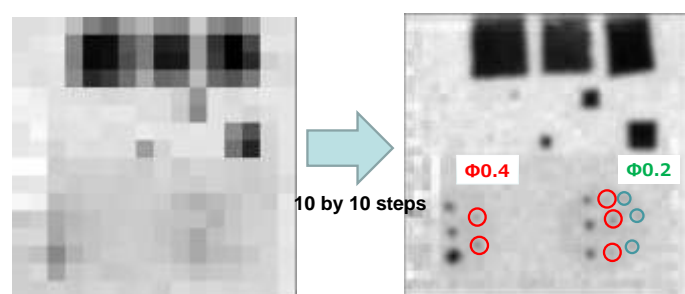


図3 超解像処理によるIn画像の再構成結果
(左：原画像、右：再構成後)

を行い、総合測定システムの性能取得実験を行った。特に、高効率・高時間分解能中性子イメージング装置を用いた中性子共鳴吸収イメージングにおける超解像処理（サブピクセルシフト法）の有用性の評価において、本事業の体系にて撮像した2倍超解像後の画像100枚を用いて再構成計算を行ったところ、当初目標を上回る直径0.2mmのInまで検知することができた（図3）。

「制御システムの開発」では、学会等において調査を実施し、得られた知見を基に総合測定システムの設計を行った。設計に基づき機器の制御に適したワークステーションを選定し整備した。更に総合測定システムの中性子・X線測定装置に適したデータ収集系を選定し整備した。その結果、整備したワークステーション及びデータ収集系を用いて京大ライナックで総合測定システムの制御が可能であることを確認した。

2.4 成果のまとめ（実証試験に基づく測定システムの総合評価）

最終年度に実施した実証試験により、本事業で開発した各要素技術が初期の性能を達成していることを実証した。その中でも、下記の4点は特筆すべき結果である。

- ① 核種濃度定量ではMAやLLFP等の中性子吸収核種の影響を受けずにMA含有TRU燃料内におけるPuの定量が可能となった。
- ② 中性子とX線イメージングの複合解析による3次元元素識別イメージングが可能となり且つ従来の中性子のみを使用する手法に比べ、測定時間が大幅に減少した。
- ③ 中性子イメージングにおいて、重心処理とサブピクセルシフト法を組み合わせることで、当初目標である0.4mmを上回る0.2mmの物体の検知が可能となった。
- ④ 核種弁別型中性子イメージングにおいて、熱中性子吸収体に遮蔽された核燃料物質、MA物質に対する個別の中性子イメージングが可能となった。
- ⑤ また、開発・整備した検出器システムは当初の計画以上の性能が得られた。

以上、本測定システムは当初の予定とおりTRU核燃料の非破壊検査に対し有効であることが実証された。

3. 今後の展望

本事業で開発した測定システムは核燃料物質及びMA、長寿命核分裂生成物（LLFP）を組み合わせられた被検体に対して有効であり、これが実用化できれば、従来の照射後試験では得られなかった核燃料物質の定量や核種組成といった、当該燃料内部の核的・物性的な情報を非破壊で得られるようになり、次世代原子力システムの安全性向上に資することができる。このシステムの実用化に当たっては、さらなる測定精度の向上のための検出器等の改良に加えて、持ち運びが可能となる小型のパルス中性子源の開発が必要となる。パルス中性子源としては、熱外中性子の発生量が多いことと、中性子飛行時間（TOF）法を精度よく実施できるパルス特性を有していることが必要となる。

また、本事業で開発した技術や得られた成果は、福島第一原子力発電所事故で発生した熔融燃料（燃料デブリ）内の核種定量、形状評価にも応用ができるため、福島第一原子力発電所の廃炉措置への貢献が期待できる。