

資料紹介(そのII)

(以下は非公式に資料を紹介するものでありますが、内容の確認、引用の可否、引用の仕方など全て原典にもどって御判断下さい。)

Proceedings of the Symposium on the Calorimetric Assay of Plutonium. Oct 24~25, 1973

MLM-2177

カロリメトリによるプルトニウム測定についてのシンポジウム  
論文集

田村 務(原研)

プルトニウムはSafeguardsの面から、もっとも厳重な計量管理を要求されている核物質である。管理の基礎となる計量技術としてカロリメトリがすぐれており、1973年にMound研究所で最初のシンポジウムが開かれた。出席者はAEC、政府研究機関、産業界からの38名である。発表された論文はカロリメトリの原理、構造、Puの定量への応用、Puのアイソトープ比の決定、将来のPu燃料の計量の問題などに関連する12編である。AECのW.C.Martelsは、序文で、1973年のAECのPuのin processにおける規制値はMUF(Material Unaccounted for)が2か月で全取扱Pu量の0.5%というきびしいものであると述べている。カロリメトリはPuの計量でこのような精度を維持するのに役立つ。以下発表論文の内容を簡単に紹介する。

1. Nondestructive assay guides for special material control J.E. Glancy Directorate of Regulatory standards U.S. AEC

USAECは燃料処理、取扱いの各段階で必要となる特殊核物質(SNM)の計量技術に関して多くのRegulatory guidesを作成している。カロリメトリについてのRegulatory guideは1974年に完成の予定である。

2. Fundamentals of Calorimetric Assay W.W. Rodenburg Monsanto Research Corporation

Mound Laboratory; Miamisburg, Ohio

この論文はカロリメトリーによるPuの計量の特徴、原理、カロリメータの構造など一般的事項とMound研究所におけるPu計量の実施例を述べている。

まずこの方法の利点として、(1)核物質を容器に入れたまま取扱うので、危険が少なくない。(2)放射線の測定の場合にはPuサンプルおよび容器の吸収が問題となるが、このような影響はない。(3)カロリメータの操作は簡単である。(4)熱測定の精度は非常によい。また、信頼性も高い。一方欠点としてはPuのアイソトープ比が予め知られていなければ、それぞれのアイソトープの重量を求められない。

測定では、 $^{239}\text{Pu}$ の場合、 $\alpha$ 崩壊で放出される5.2MeVのエネルギーを熱として検出する。 $\text{Pu}$ の場合いづれの核種も $\gamma$ 線の放出量は少ないので、 $\gamma$ 線がすべてカロリメータ内部で吸収されないとしても問題とならない。発生する熱量は

$$P = 2.11933 \times 10^3 \times Q / T_{1/2} \cdot A \text{ (Specific power)}$$

ここにQは一回の崩壊にともなう放出エネルギー(MeV)  $T_{1/2}$ は半減期(年)、Aはisotopeの原子重(kg)である。種々のアイソトープを含んでいるときは、そのアイソトープの割合とspecific powerを乗じたものの和である。通常のPu燃料では $^{239}\text{Pu}$ のほか、 $^{238}\text{Pu}$ 、 $^{240}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Pu}$ 、 $^{242}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Am}$ などを含んでいる。これらのアイソトープのspecific power、典型的な燃料体のPuアイソトープ成分比、各アイソトープの発生熱量はつぎの表で与えられる。

Nuclide	Specific power (w/g)	WR. Abundance (%)	Heat (%)	FBR		British		LWR		Recycle	
				A	H	A	H	A	H	A	H
$^{238}\text{Pu}$	0.569	0.01	4	0.05	9	0.1	19	0.2	23	0.5	36
$^{239}\text{Pu}$	0.001931	93.5	75	86.7	56	90.2	57	75.7	30	65	16
$^{240}\text{Pu}$	0.007093	6.0	18	11.5	27	8.5	19	18.4	27	24	2.2
$^{241}\text{Pu}$	0.00362	0.5	1	1.5	2	1.0	1	4.6	3	8	4
$^{242}\text{Pu}$	0.00012	0.03	—	0.2	—	0.2	—	1.1	—	2.5	—
$^{241}\text{Am}$	0.1145	0.05	2	0.15	6	0.1	4	0.7	17	1.5	2.2
		100.1		100.1		100.1		100.7		101.5	

この表は原論文のTable 1とTable 2と合わせたものである。specific powerは論文6から引用した。

Recycle の場合には  $^{238}\text{Pu}$  と  $^{241}\text{Am}$  が大きい熱源となることがこの表からも伺える。もっとも普通のカロリメータは恒温槽、熱量読取装置、電気的熱源あるいは放射能熱源から成り立っている。測定試料が熱平衡に達するまでの時間を十分にとることによって、測定精度を上げることができる。0.01%を得るには3~13時間を、0.1%では0.4~8時間を必要とする。平衡を早めるために試料の preheat を行うこともある。

Mound 研究所と原子炉間の Pu 燃料の送受に使用されている測定では両者での計量誤差は2年間で0.026%であった。目的に応じて、種々のカロリメータが使用されている。非常に強い中性子を発生する Pu 試料の計量には manipulator 付きのカロリメータがある。 $10^{11}\text{ n/sec}$  の中性子に対しても十分な測定精度が得られている。

1mW~40Wの標準熱源も製作され、他の事業所のカロリメータの較正に利用されている。商業ベースでカロリメータを製作している4か所が紹介されている。

### 3. The determination of Plutonium Isotopic Composition by Mass Spectrometry and Alpha Spectrometry, and Americium Content by Radiocounting

Charles F. Pietri

New Brunswick Laboratory

U.S. Atomic Energy Commission

New Brunswick, New Jersey

この研究所では主として、質量分析と  $\alpha$ ,  $\gamma$  計測で、アイソトープの成分を決定している。質量分析に先立って化学分離を行っている。質量分析の較正では NBS の標準試料を用いている。

### 4. Plutonium Isotopic Measurements by Gamma-ray Spectrometry

Raymond Gunnink

Lawrence Livermore Laboratory

University of California,

Livermore, California

$^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  からの  $\gamma$  線を測定することによって、非破壊で Pu のアイソトープ成分比を測定する方法を述べている。 $\gamma$  線検出には 1 cc の高分解能 Ge 検出器を用いている。スペクトルの測定とデータの解析には 12 ビット、12kw のミニ・コンピュータを使用

している。測定試料はこれまで液状であったが固体のものも試験している。Pu および  $^{241}\text{Am}$  から放出される特徴的な  $\gamma$  線としてつぎのものを同定に使用する。

$^{238}\text{Pu}$	43, 99, 152
$^{239}\text{Pu}$	51, 129,
$^{240}\text{Pu}$	45, 104 (160)
$^{241}\text{Pu}$	148 $^{237}\text{U}$ (KX)
$^{241}\text{Am}$	59

再処理から期間の少ない試料では 40~50 keV 附近の  $\gamma$  ピークが用いられるが古い試料では  $^{241}\text{Am}$  の 59 keV  $\gamma$  線のために、これらの  $\gamma$  線は使用できない。この場合には 100 keV 附近の  $\gamma$  ピークを利用する。測定されたスペクトルはピークと連続分布で近似し、それぞれの成分を求め。成分の決定精度は測定時間に依存する。

新しい試料に対する測定精度の例を次表に示す。

Nuclide	Abundance (%)	Ave. Computed		error (%)	precision (%)
		10min	60min		
$^{238}\text{Pu}$	0.008	5.6	2.7	2.0	
$^{239}\text{Pu}$	93.46	0.048	0.05	0.032	
$^{240}\text{Pu}$	5.88	0.75	0.40	0.043	
$^{241}\text{Pu}$	0.65	0.96	0.38	0.37	
Total		0.16	0.11	0.22	

質量分析の結果とも 1% の範囲で一致する。固体試料では高いエネルギーの  $\gamma$  線を用いる (論文 5 参照)。

## 5. Nondestructive measurement of Plutonium Isotopic and Americium Concentrations using Gamma-ray Spectrometry

F.X. Haas

Monsanto Research Corporation

Mound Laboratory, Miamisburg, Ohio

この著者は  $\gamma$  線の検出に 60 cc の Ge(Li) 検出器を用いている。100 keV 以上で、10 keV 以内で隣り合う  $\gamma$  線の組みの peak 値を比較することにより、アイントープ成分比を求めている。

それらの組合せと成分比の計算式はつぎのとおりである。

$^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	153/144	$1010.3 \frac{I_{153}}{I_{144}}$
$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	642/640	$153600 \frac{I_{642}}{I_{640}}$
$^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	208/203	$6237 \frac{I_{208}}{I_{203}} - 0.0373 \frac{I_{662}}{I_{659}}$
	148/144	$8527 \frac{I_{148}}{I_{144}}$
$^{241}\text{Am}/^{239}\text{Pu}$	662/659	$4875 \frac{I_{662}}{I_{659}}$
	722/717	$1563 \frac{I_{722}}{I_{717}}$

この方法ではGe(Li) 検出器の効率のエネルギーによる変化を非常に小さくできる。しかしながら、 $^{241}\text{Pu}$  同定で  $I_{208}$  は  $^{241}\text{Am}$  から寄与が、 $^{241}\text{Am}/^{239}\text{Pu}$  では  $I_{662}$  に  $^{137}\text{Cs}$  が、 $I_{722}$  に  $^{95}\text{Zr}$  (723 keV) が寄与する。データ処理に計算機による fitting を行っていないので論文4のような精度は得られていないが、定常的な測定では十分役立つ。

## 6. Calorimetry at Dow Rocky Flats

F.L. Oetting

Dow Chemical USA

Rocky Flats Division, Golden, Colorado

カロリメトリによるPuの同定の向上のために  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  の半減期をカロリメトリによって測定し、 $\alpha$  計測よりも1%短い半減期を得ている。これまでの2槽式のカロリメータに加えて、8槽式のカロリメータ3台を製作し、21か所のPuを一度に同定できるよう整備中である。

## 7. Calorimetry of Plutonium Recycle Fuels : Applications, Incentives and Needs

Dennis M. Bishop and Ira N. Taylor

General Electric Company

Boiling Water Reactor System Department

Plutonium Fuel Development, San Jose, California

軽水炉用 Pu 燃料の製作におけるカロリメトリの経験について述べてある。種々の照射歴をもつ燃料体の再処理 Pu 燃料はアイソトープ成分比が異なる。Safeguards と再処理工程管理のために、それに適した Pu の計量法を開発すべきであることを強調している。appendiceとして Table A1~4 (下記)は参考になる。

Table A1 Calorimeter Feed Material Inspection  
Calculation Data

Table A2 Relative Isotopic Heat Contribution vs  
Plutonium Burnup

Table A3 Calorimetry measurement Error vs  
Current Isotopic Measurement Capability

Table A4 Calorimetry Measurement Error vs  
Future Isotopic Measurement Capability

#### 8. Calorimetry at Babcock & Wilcox / NUMEC

S.C.Nattsas and R.N.Kubik The Babcock & Wilcox  
Company

Industrial System Section

Lynchburg Research Center, Lynchburg, Virginia

B/Wの系列会社の Nuclear Material Equipment Corporation では Pu 計量用のカロリメータを製作した。このシステムは  $^{239}\text{Pu}$  の計量で  $900 \pm 2\text{g}$ ,  $0.2239 \pm 0.0004\text{g}$  の結果を得ている。

#### 9. Calorimetric Verification of Plutonium Inventory for Safeguards Surveys

Roy B.Crouch, Jr.

Division of Nuclear Materials and Waste

Management, Albuquerque, New Mexico

中性子あるいは  $\gamma$  線非破壊計測や化学分析によって、scrap や waste 中の Pu を計量することは現状では困難である。しかしながらカロリメトリではこのような試料に対しても 0.1% 程度の精度を維持することも可能である。焼却炉からの灰中の Pu について他の非破壊法や化学分析によ

る計量精度と比較検討を行っている。

10. Small, Fast-Response Calorimeters developed at Argonne National Laboratory for the Nondestructive Assay of Plutonium Fuel Rods

N.S. Beyer, R.N. Lewis, and R.B. Perry, Argonne National Laboratory, Argonne Illinois

ANLで Zero Power Pu Reactor の燃料棒のPuの計量管理にカロリメータを使用している。3種類のPu燃料F型(13%Pu), G型(26%Pu) H型(16%Pu) から成る燃料棒(3/8" dia. × 6" 長さ)の計量で、カロリメトリと $\gamma$ (Ge),  $\gamma$ (NaI), 中性子, 化学分離の方法で行った結果とを比較した。

カロリメトリ	$\gamma$ (Ge)	$\gamma$ (NaI)	N
26.51±0.03	26.42±0.04	26.62±0.02	26.26±0.07
化学分析			
26.48±0.04			

カロリメトリにおける問題点はアイトープ比を他の方法で予め測定しておかなければならない点である。

11. R and D Effort at Mound Laboratory in the Calorimetric assay of Plutonium

W.W. Strohm

Monsanto Research Corporation

Mound Laboratory Miamisburg, Ohio

カロリメトリによるPuの計量の精度について検討しPuの成分比から考えて、 $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ の半減期と specific power の決定精度を向上させる必要がある点を強調している。