

話題・解説(III)

## 燃料デブリ核特性評価に関わる核データニーズ

### ー中性子照射ガンマ線スペクトル測定ー

一般財団法人電力中央研究所  
原子力技術研究所 燃料炉心領域

名内 泰志

[nauchi@criepi.denken.or.jp](mailto:nauchi@criepi.denken.or.jp)

#### 1. はじめに

東京電力福島第一原子力発電所の 1~3 号機では、崩壊熱の除去が困難となり、燃料が昇温、破損、溶融、移動し、他の物質と一部混合しながら冷却固化した、いわゆる燃料デブリが形成したと考えられている。2018 年の 2 号機の調査ではペDESTALにて上部タイプレート形状のものが発見されており[1]、本来その下部にあった燃料の一部がペDESTALに落下していることは疑いない状況となっている。この燃料デブリをすべて取り出し、安全に保管することが廃炉完了のために重要な課題である。

核物質の管理においては臨界安全の確保が重要である。そもそも原子炉は炉心を臨界にして使うものであり、また制御材の  $B_4C$  も溶融過程で化学変化し一部揮発することが予想されている。しかし現時点で事故後臨界になった証拠は観測されていない。ここで炉心が未臨界に保たれているのは、中性子が減速過多か不足か、あるいは中性子吸収物質とうまく混在しているかの条件によると予想される。減速過多/不足は、例えば礫状の燃料デブリの空間分布などに強く依存し、直接測定することは難しい。一方、吸収材の効き具合であれば後述のように定量評価ができる可能性があり、その定量が臨界管理の保守性の適正化につながる可能性がある。

一方、使用済燃料の輸送・保管・処分にあたっては、核物質がどの容器にどれだけ保管されているかを計量する必要がある。これは核物質の非平和目的での利用を防ぐ保障措置的な意味での基本情報として必要となる。また核燃料の保管、処分にあたっての不確定性を減らし、将来の人類が安全策を講じるための情報としても重要である。保守的評価が求められる臨界安全に比べると、計量是最確評価が必要であり、非破壊測定とし

てはより高度な技術が要求される

筆者は福島第一原子力発電所事故以前より、未臨界度、核物質質量評価の観点で $\gamma$ 線の測定に着目してきたが、同事故以降、燃料デブリへの適用の可能性を検討している。本稿ではそれらを紹介するとともに、 $\gamma$ 線発生データの重要性について記す。

## 2. Capture Credit の理論

BWR では正規の燃料位置より下方に制御棒ドライブシャフト、案内管、駆動機構、炉心下部格子板、圧力容器等、相当量の鋼材が使われている。この鋼材は燃料と明瞭に分離され、識別されない限り、燃料デブリとして扱うことが妥当であろう。一方、鋼材はその熱中性子捕獲断面積が 2.6 b とおおきくはないが、燃料デブリに含まれる成分として物質質量がおおきく、中性子吸収材として働く。したがって鋼材の中性子吸収による負の反応度効果を特定することは臨界安全管理の合理化に有効と考えられる。

燃料デブリを収めたキャニスタの臨界安全設計を TMI-2 に倣うと、炉心に装荷されていた燃料のうち新燃料時点での  $^{235}\text{U}$  濃縮度が最大値をとる  $\text{UO}_2$  が軽水中で最適減速条件で配列している条件を仮定する[2]。この際、被覆管材は無視する。その際の無限増倍率は、燃料のマクロ断面積核分裂断面積  $\Sigma_f$  と燃料+水の捕獲のマクロ断面積  $\Sigma_c$  を用いて

$$k_{inf,new} = \frac{\langle \nu_t \Sigma_f \phi_{new} \rangle}{\langle \Sigma_f \phi_{new} \rangle + \langle \Sigma_c \phi_{new} \rangle} \quad (1)$$

となる。 $\phi_{new}$  は新燃料・最適減速条件の中性子束で、 $\nu_t$  は核分裂あたりの中性子発生数である。 $\langle f \rangle$  は  $f$  を中性子エネルギー、飛行方向、位置で積分した値となる。ここで中性子捕獲反応  $q$  の反応率が得られれば、その無限増倍率は式(2)のように中性子束分布は変化するものの、式(1)の分母を増やすこととなる。

$$k_{inf,q} = \frac{\langle \nu_t \Sigma_f \phi_q \rangle}{\langle \Sigma_f \phi_q \rangle + \langle \Sigma_c \phi_q \rangle + \langle \Sigma_{c,q} \phi_q \rangle} \quad (2)$$

スペクトル変化の効果や、 $\Sigma_{c,q}$  の測定誤差を勘案する正のパラメータを  $\alpha$  とし、また中性子捕獲反応  $q$  が中性子束分布を大きく変更しないと仮定すると、式(1)(2)の逆数の差は

$$\rho_{inf,q} = \frac{1}{k_{inf,new}} - \frac{1}{k_{inf,q}} = -\frac{\alpha \langle \Sigma_{c,q} \phi_q \rangle}{\nu_t \langle \Sigma_f \phi_q \rangle} \quad (3)$$

となる。ここで  $\alpha$  には安全余裕を勘案する因子も含むものとする。式(3)で重要なのは中性子捕獲反応  $q$  と核分裂反応の反応率比が得られれば、それが捕獲反応  $q$  を計測したことによって確認できる負の反応度に相当する、ということである。この負の反応度に応じてキャニスタの稠密保管を可能とすることを、筆者は「Capture Credit (CapC)をとった貯蔵」と命名している[3]。

文献[3]では、5wt%- $^{235}\text{U}$  濃縮度の  $\text{UO}_2$  と鉄を均質混合させた丸棒を水の中で四角格子配置させた体系に対して実効増倍率計算を行い、例えば鉄の捕獲/核分裂数比が 1:1 であ

れば 80%  $\Delta k/k$  以上の負の反応度を確認できることを示している。

### 3. 鋼材-未照射ウラン体系での Neutron Induced Gamma Ray Spectroscopy

CapC のためには  $\langle \Sigma_{c,q} \phi \rangle / \langle \Sigma_f \phi \rangle$  を測定する必要がある。鋼材である  $^{56}\text{Fe}$ 、 $^{58}\text{Ni}$ 、 $^{53}\text{Cr}$  などは高エネルギーの中性子捕獲  $\gamma$  線を生じることが知られる[4]。また電中研は京都大学臨界集合体実験装置 KUCA 共同利用研究において核分裂即発  $\gamma$  線と短寿命 FP  $\gamma$  線を合算したスペクトル測定を行っている<sup>1</sup>[5]。このことから、中性子照射  $\gamma$  線スペクトル測定 (NIGS) を使った  $\langle \Sigma_{c,q} \phi \rangle / \langle \Sigma_f \phi \rangle$  の測定を行うこととした。

KUCA には 3 つの炉心があるが、その一つ、軽水減速型炉心の C 架台を使用した。通常この炉心は 93wt%- $^{235}\text{U}$  濃縮度 U とアルミニウム (Al) の合金燃料板を Al 製フレームに差し込み、集合体として炉心に装荷して使用するが、この実験ではそれに加えてステンレス鋼 SUS-304 板を差しこみ、炉心に装荷し、軽水に冠水させ、未臨界体系を構築した。図 1 に体系図を示す。未臨界体系は  $^{252}\text{Cf}$  中性子源を中心に配置することで駆動し、 $\gamma$  線スペクトルを相対効率 20% の HP-Ge 検出器と BGO シンチレータで検出した。この測定では中性子は軽水で遮蔽され、検出器への進入はほとんどない。

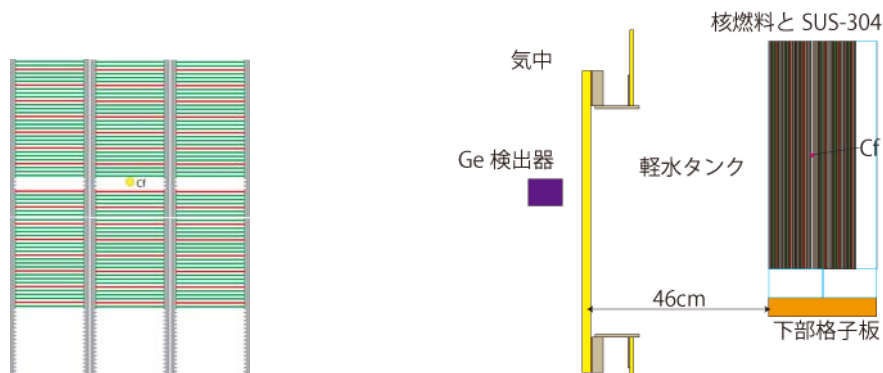


図 1 左: 燃料集合体。フレーム(灰色)に U-Al 燃料板(緑)と SUS-304(赤)を差し込み炉心に装荷。右: 炉心と検出器の位置関係、燃料は冠水条件で使用。

図 2 に HP-Ge の測定スペクトルを示す[6]。同図では捕獲  $\gamma$  線に着目するため定数倍しており鋼材入炉心と鋼材無炉心の計数率の大小関係は実態と異なることを付記する。鋼材なし炉心では  $\text{H}(n, \gamma)$  反応 2.223MeV  $\gamma$  線と  $^{27}\text{Al}(n, \gamma)$  7.724MeV  $\gamma$  線の光電ピーク (PE) ピーク、シングルエスケープ (SE)、ダブルエスケープ (DE) がみられ、それらの間 3~5MeV でエネルギーに対して計数率が指数関数的に減少する、核分裂即発  $\gamma$  線に特徴的な連続スペクトルをなしている。一方、鋼材入炉心では  $^{56}\text{Fe}$  の捕獲  $\gamma$  線のうち 7.631、7.645MeV のものの計数率が  $^{27}\text{Al}$  を凌駕する。この測定で PE として  $^1\text{H}$ 、 $^{27}\text{Al}$ 、 $^{50,52,53}\text{Cr}$ 、 $^{54,56}\text{Fe}$ 、 $^{58,60,62}\text{Ni}$

<sup>1</sup> KUCA の測定では短寿命 FP  $\gamma$  線と核分裂即発  $\gamma$  線を分けずに測定しているため、即発  $\gamma$  線分析 (PGA、もしくは PGAA) とせず、NIGS としている。

が確認された。これらの $\gamma$ 線はいずれも 3.5MeV 以上のエネルギーを持つ。半減期 100 日以上 of FP が放出する崩壊 $\gamma$ 線としては  $^{106}\text{Ru} \rightarrow ^{106}\text{Rh}$  由来のものが最もエネルギーが高く、またその最大エネルギーは 3.402MeV である。すなわち NIGS で得たい $\gamma$ 線のエネルギーは FP  $\gamma$ 線のそれとは重畳しないため、検出器と信号処理回路が FP  $\gamma$ 線の計数率に耐えられれば NIGS は高 Signal to Noise ratio (S/N) 条件の測定が可能な手法といえる。また一般論として、 $\gamma$ 線は高エネルギーほど透過力が大きく、検出器が収納容器の全領域に対し感度をもつという点は  $\langle \Sigma_{c,q} \phi \rangle$ 、 $\langle \Sigma_f \phi \rangle$  測定にとって有利である。

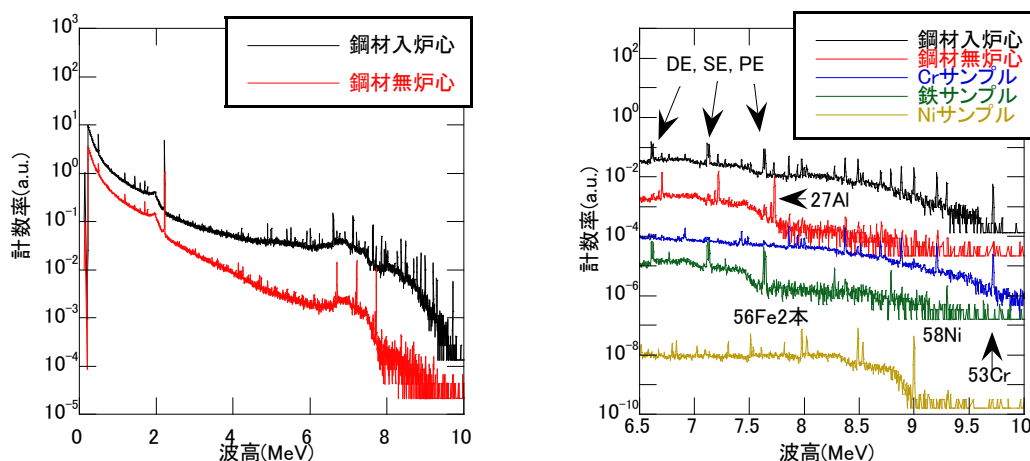


図 2: KUCA-C 架台に U-Al 燃料を装荷したケース(赤)と U-Al 燃料および SUS-304 を装荷した際の $\gamma$ 線スペクトル測定結果。右図は詳細。ピークの核種特定のため  $^{252}\text{Cf} + \text{Cr}$ 、Fe、Ni サンプルでの PGA 測定を実施。

これらの $\gamma$ 線をより感度の高い BGO シンチレータで測定したスペクトルから、

- a) (6-10MeV)/(3-5MeV)の計数率比をとったもの
- b) MCNP コード[7]と FSXLIB-J40 ライブラリ[8]で中性子-光子結合輸送計算を行い、光子生成あたりの検出数を計算評価し、これで 3-10、5-10MeV、6-10MeV の $\gamma$ 線の発生を求めた上で(6-10MeV)/(3-5MeV)の発生率比をとったもの

の二つを、鋼材の捕獲/核分裂反応率比計算値と比較した。この結果、図 3 のように、鋼材の捕獲/核分裂反応率比に対し、計数率比、発生率比が単調増加している[3]。この結果は NIGS のスペクトル測定値を CapC に適用することが可能であることを示している。

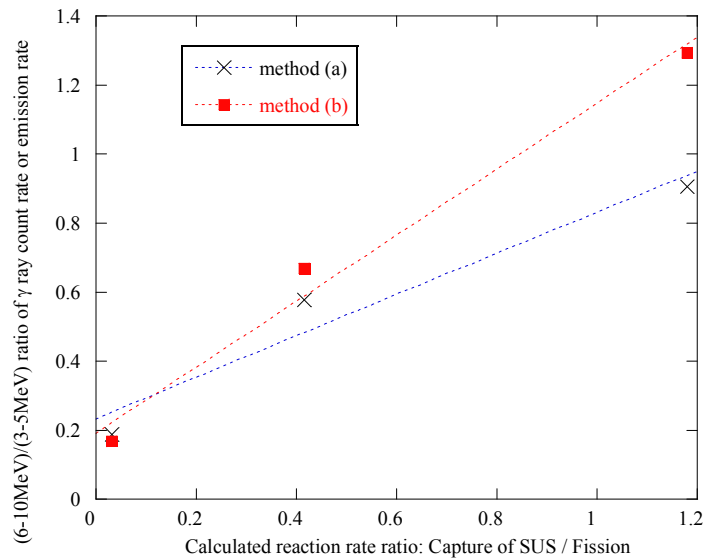


図3  $\langle \Sigma_{c,q} \rangle / \langle \Sigma_f \rangle$  計算値と NIGS による  $\gamma$  線計数率比(黒)、発生率比(赤).

ところで、ここまでのデータ処理では以下の課題を抱えている。

- 1) KUCA の実験では核分裂後の短寿命 FP $\gamma$  線からの  $\gamma$  線も計数率に寄与しているが、ここまでの解析ではその寄与を考慮していない。
- 2) 3~5MeV の  $\gamma$  線発生の主要素が核分裂即発  $\gamma$  線であるという仮定のもとに進めているが、図3のデータ処理では捕獲  $\gamma$  線のコンプトン散乱による連続部の重畳が避けられない。捕獲  $\gamma$  線の低エネルギー  $\gamma$  線も重畳する。
- 2)の解決策としては、 $\gamma$  線の応答関数を  $\gamma$  線発生反応毎に用意して Unfolding をかけることが考えられる。ここで、鋼材無炉心について MCNP コードと FSXLIB-J40 で波高応答を計算し、BGO でのスペクトル測定データと比較した[9] (図4)。ここでは FPGS-90 コードを使い、遅発  $\gamma$  線の寄与も評価している。 $\gamma$  線スペクトルの分解能についてはガウシアンスマリングをかけ実験値とほぼ同じようになるように調整している。これを見ると、核分裂即発  $\gamma$  線に不自然なステップ状の構造が現れ、8-10MeV 領域の応答が大きく、ここは実験値との差異が著しい。unfolding を行うに際、このステップ状の  $\gamma$  線発生スペクトルを用いることは大きな誤差要因となりえる。Verbeke などの評価では 8-10MeV での  $\gamma$  線の発生をないものとし、ステップ状でなく、 $\exp(-1.1 \times E_\gamma)$  という関数を与えていて[10]、KUCA での実験値の模擬性がよりよい。また FSXLIB-J40 では  $^{27}\text{Al}(n, \gamma)$  の明瞭な 7.724MeV  $\gamma$  線が得られていない。 $^{235}\text{U}$  をみると非弾性散乱脱励起と捕獲  $\gamma$  線が 4MeV 以下では有意な成分であるという評価がなされている。

筆者は unfolding 手法の開発も行っている[11]が、JENDL-4.0 ベースの  $\gamma$  線データの問題点を指摘した後[9]は、応答関数を作成して核分裂数を  $\gamma$  線計数率で求める作業を行っていない。臨界管理の場合は「核分裂率を過大評価してしまうこと」は保守的評価であり、

核分裂即発 $\gamma$ 線に他の成分や、捕獲 $\gamma$ 線のコンプトン散乱成分が重畳することは CapC の利得は減らすと保守性は保てる。その観点で、NIGS は現状でも CapC にとって有用であり、応答関数の適切な評価と Unfolding は CapC の利得の増大のための検討課題である。

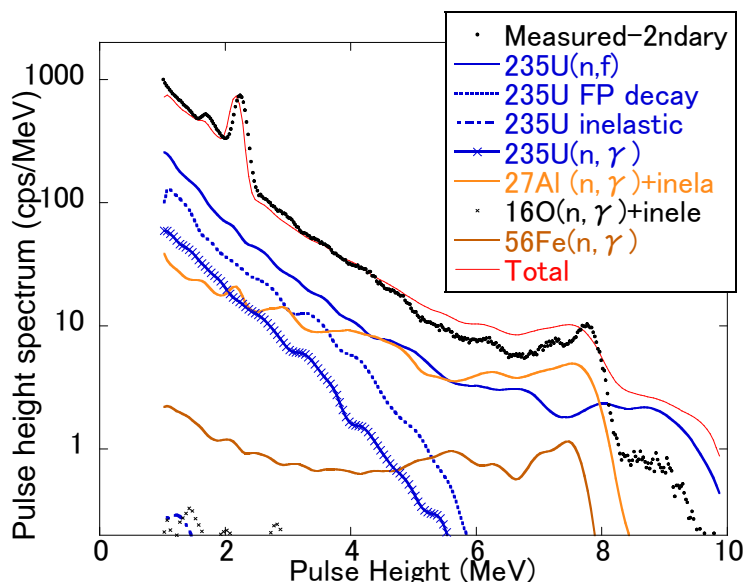


図 4 鋼材無体系での BGO による NIGS 測定スペクトルと MCNP+JENDL-4.0 波高応答計算値の比較。

#### 4. 鋼材以外の CapC について

燃料デブリの臨界安全上、可燃性中性子吸収材として一部の燃料棒に装荷されている<sup>155, 157</sup>Gd や中性子制御材としての<sup>10</sup>B の共存性が重要といわれている。

<sup>155, 157</sup>Gd は炉心で 1~2 サイクル照射中の燃料集合体中に Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-UO<sub>2</sub> の燃料棒の状態に入っているものと、FP として生成した<sup>155</sup>Eu からの $\beta$ 崩壊で生成するものがあるが、後者については燃焼度クレジットの範疇となるので、ここでは前者を取り上げる。<sup>155, 157</sup>Gd は熱中性子吸収断面積が大きく、物質中の中性子の平均自由行程が短い。Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-UO<sub>2</sub> の周りの UO<sub>2</sub> 燃料ペレットにとっては、<sup>155, 157</sup>Gd が均質に混ざれば大きな負の反応度効果が得られるが、ペレットの外に<sup>155, 157</sup>Gd がある場合は通常の集合体として使える程度の負の反応度しか得られない。この反応度は Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-UO<sub>2</sub> の混在状況と軽水の接触状況で大幅に変化してくるものであり、一部の燃料デブリを分析しても、容器全体の安全性の判断は難しい。

燃料デブリ収納容器の外に d-D 中性子源をおいた場合の NIGS の応答を簡易計算した。この計算は一旦 MCNP コードで 2cm×2cm のメッシュ中の核分裂、捕獲反応を計算した上で、核分裂 $\gamma$ 線発生数とスペクトルは文献[10]記載の値、捕獲反応 $\gamma$ 線は熱中性子捕獲

反応のみで発生するとし、そのスペクトルと発生数は文献[4]を用い、各メッシュから検出器への輸送と検出器の応答を計算したものである。結果を図5に示す[12]。高Gd条件と鉾打った条件では6750keVの $\gamma$ 線が見えている。この解析から、NIGSによる $^{157}\text{Gd}$ の負の反応度の確認が期待される。

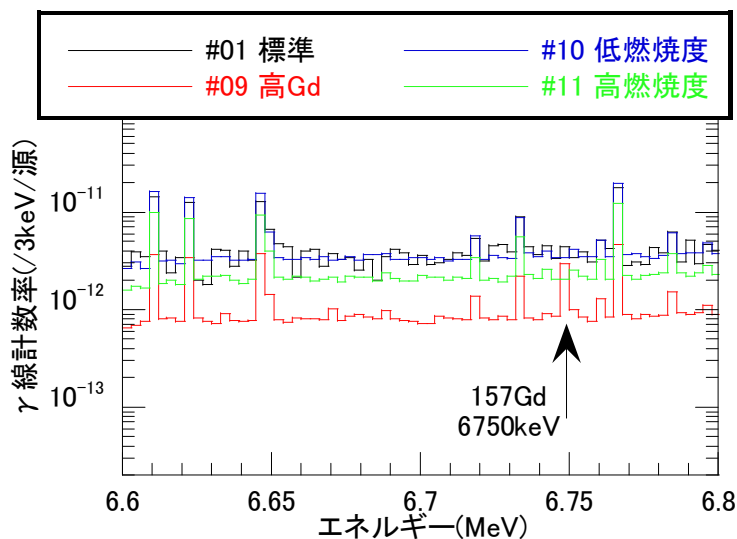


図5 燃料デブリ収納容器に対するNIGSの応答計算値～ $^{157}\text{Gd}$ に着目 [12].

一方で、この解析の根拠とした文献[4]では、 $^{155}\text{Gd}$ の中性子捕獲 $\gamma$ 線発生数を評価していない。 $^{155}\text{Gd}$ についてはJ-PARC ANNRI施設での測定データも報告されており [13]、これらがNIGSにとって使いやすい形で評価、整備されることを希望する。

$^{10}\text{B}$ については $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ 反応で第一励起状態を経由するものが96%と多く、その脱励起 $\gamma$ 線はエネルギーが477keVとなる。この $\gamma$ 線はFP $\gamma$ 線の代表である $^{137}\text{Cs}$ よりもエネルギーが低いため、NIGSでも高S/N測定はできない。NIGSに用いる中性子源の強度が大きく、FP $\gamma$ 線計数率に対して有意な計数率が得られる条件でのみCapCが可能となる。

## 5. 残留濃縮度と燃焼度測定の可能性

上述のNIGSの応答計算においては、燃焼度依存性も計算している。その結果を図6に示す。この図では、低燃焼度条件では見えないものの、平均的な燃焼度、高燃焼度では $^{240}\text{Pu}(n, \gamma)$  3.945 MeV, またいずれのケースも $^{238}\text{U}(n, \gamma)$  4.060 MeV  $\gamma$ 線が測定出来る可能性が示唆されている。 $^{240}\text{Pu} / ^{238}\text{U}$ 比は燃焼度に対し線形性のよい指標であり、また核分裂即発 $\gamma$ 線と $^{238}\text{U}$ 中性子捕獲反応の比は fissile の残留濃縮度の指標として期待できる。



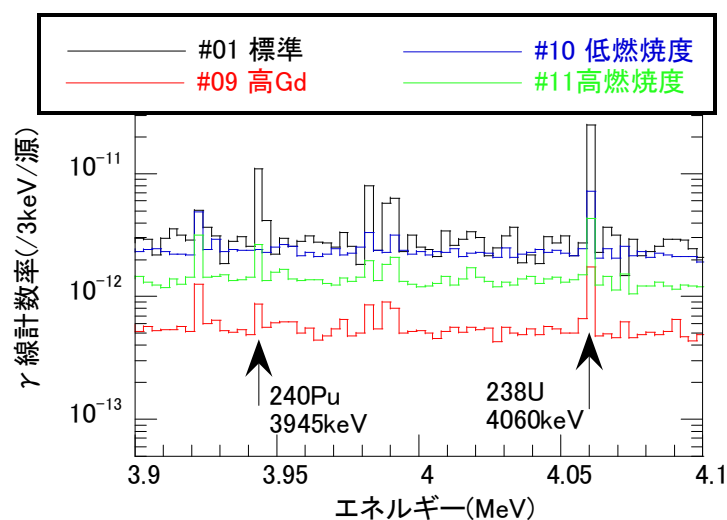


図 6 燃料デブリ収納容器に対する NIGS の応答計算値～ $^{238}\text{U}$ - $^{240}\text{Pu}$  に着目 [12].

$^{238}\text{U}(n, \gamma)$   $\gamma$  線測定は微分試料に対しては原子炉施設を使った例がある[14]が、燃料デブリへの適用性を考えると増倍体系での測定が必要である。しかし、MCNP-5 と FSXLIB-J40 を用いた計算ではこの 4060 keV  $\gamma$  線の放出がモデル化されていないことがわかった[15]。このため、KUCA のポリエチレン減速架台のうち、A 架台にて実験を行った。ここでは臨界炉心を組む際に通常用いる 93wt% $^{235}\text{U}$  濃縮度の U-Al 板と、天然ウラン板とポリエチレン板を交互に組み、平均濃縮度 5.4%の体系を作成した。これを  $^{252}\text{Cf}$  で駆動し、炉外に配置した前述の HP-Ge 検出器で  $\gamma$  線スペクトル測定を行った。結果を図 7 に示す。Al(n,  $\gamma$ ) 反応に代表されるバックグラウンドと分離し、また連続型の核分裂  $\gamma$  線スペクトルよりも有意な統計量で 4060keV  $\gamma$  線を測定することができた[15]。これは図 6 のように  $^{240}\text{Pu}$  /  $^{238}\text{U}$  比の取得を目指す、あるいは濃縮度の評価をスペクトルから行う技術の開発に一步近づいたこととなる。またこの測定では統計精度が不十分ながら、短寿命 FP  $\gamma$  線を測定することができた。短寿命  $\gamma$  線の分離ピークの計数は核分裂率に比例するものであり、前述の核分裂即発  $\gamma$  線の計数へのコンプトン散乱重畳の除去の考慮=Unfolding が不要となるなどで核分裂核種の特定に連続スペクトルよりも有利な点がある。この短寿命 FP  $\gamma$  線測定は CapC、残留濃縮度決定にも有用と考えられる。



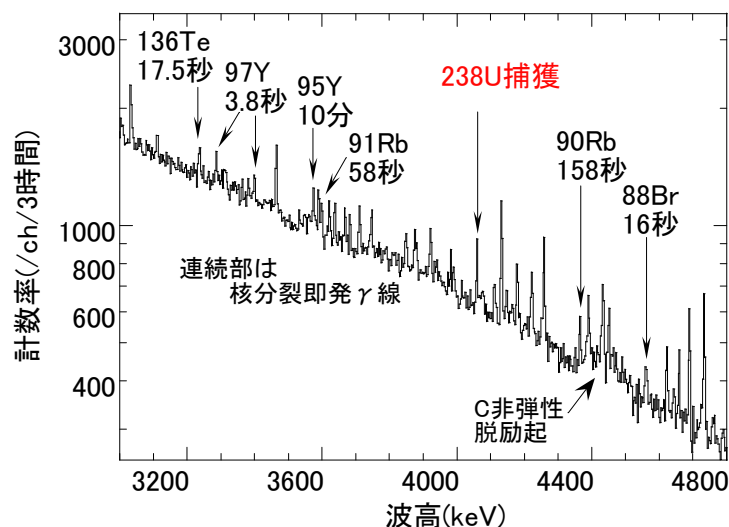


図 7: 平均  $^{235}\text{U}$  濃縮度 5.4wt%体系での NIGS の結果。

この短寿命 FP  $\gamma$  線を測定し核分裂核種分析に用いる遅発  $\gamma$  線分光(DGA)が知られている[16]。従来の実験では HP-Ge 検出器を中性子に晒さないため検出器か試料の移送を必要とした。このためごく短寿命の FP  $\gamma$  線の測定は難しい。今回照射中の  $\gamma$  線スペクトルが得られたことにより、より短寿命の  $\gamma$  線が測定できる、すなわち情報量が増えたこととなる<sup>2</sup>。DGA は少なくとも U:Pu の核分裂比が求まることが期待されており、統計量が十二分に取れば  $^{235}\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Pu}$  の比率の取得への可能性がある。先述の  $^{240}\text{Pu}/^{238}\text{U}$  の捕獲  $\gamma$  線計数率比もあわせると、より確からしい燃焼度評価が期待できる。このため Pu サンプルを使った基礎実験の可能性を JAEA 殿と検討中である。また、基礎となる  $^{235}\text{U}$  の短寿命の FP  $\gamma$  線の測定も KUCA で計画中である。

## 6. 計量への適用の検討

従来の計量手法は、多くが、①内容物が組成と性状がある範囲の中にあるものとわかっている、②reference 物質が用意できる、という状況でのみ使えるものである。燃料デブリの場合、①②に難点があるなか、NIGS は  $^{235}\text{U}$ 、 $^{238}\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{240}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Pu}$  を得られる可能性があるという点で、現時点でも他の候補手法を補完しえるものとしての期待されている。

以下では NIGS と重量測定のみで計量が可能かどうかについて大風呂敷をひろげてみたい。NIGS での重量測定の基本は  $\langle \sum_{c,q1} \phi \rangle / \langle \sum_{c,q2} \phi \rangle$  から  $\langle N_{c,q1} \rangle / \langle N_{c,q2} \rangle$  を推定していき、この測定できる核種を増やし、最終的に測定重量を按分し、U、Pu の質量を決めるというものである。  $\langle \sum_{c,q1} \phi \rangle / \langle \sum_{c,q2} \phi \rangle$  から  $\langle N_{c,q1} \rangle / \langle N_{c,q2} \rangle$  を推定する過程で中性子束の一様性や適切な微分断面積を与えられるのか？という課題があるが、燃料デブリが均質配置

<sup>2</sup> 従来型の短寿命 FP  $\gamma$  線測定は核分裂即発  $\gamma$  線という高計数率のバックグラウンドを除外しており、S/N は従来型の測定の方がよい。

しているという前提の中で $\gamma$ 線スペクトルデータと整合する $\langle N_{c,q1} \rangle / \langle N_{c,q2} \rangle$ のパターンを決めていくという作業に一般化できる。

収納容器に入れられる物質のうち重量として主要な物質は燃料系(U+Pu)、鋼材、ジルコニア、コンクリート、軽水であろう<sup>3</sup>。燃料系は重量の90%以上を占める $^{238}\text{U}(n, \gamma)$ が測定可能なことが判明している。鋼材については、熱中性子が燃料デブリ中にあれば測定可能である。コンクリートはSi、Mg、Ca、Alと酸素、水素の混合体であり、図2のように $\text{Al}(n, \gamma)$ を検出できれば評価できる可能性があるが、Alと同程度に中性子吸収断面積の小さいSi、Mg、Caからの $\gamma$ 線発生データも今後調査してみたい。

未測定なものはジルコニウムと酸素である。Zrについては熱中性子捕獲反応確率がそもそも小さく、文献[4]を見る限り測定しやすいエネルギーの $\gamma$ 線の放出もないようであるが、文献[18]を見ると高速中性子照射条件では $^{91,92}\text{Zr}$ のガンマ線が見られる可能性がある。これはNIGSにd-D反応中性子源を使えば測定できるようなので、今後この可能性を探りたい。酸素については、 $^{16}\text{O}(n,p)^{16}\text{N} \rightarrow \beta$ 崩壊 $\rightarrow ^{16*}\text{O}$ 脱励起の経路、もしくは $^{16}\text{O}$ 非弾性散乱後の脱励起 $\gamma$ 線を測定するという手段がある。いずれにしても反応の閾値エネルギーがあり、d-D中性子源や核分裂中性子発生スペクトルではこれらの反応を誘導する確率が低いのだが、付加的にAm-Be、14MeV中性子源を使うという手段もありえる。あるいは酸素については $\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{UO}_2$ 、 $\text{ZrO}_2$ 、コンクリート系の酸化物としてだけ存在する、と仮定して、酸素からの $\gamma$ 線を測定を目指さない、という手段もある。

$\gamma$ 線測定で全ての反応率比が評価できれば、その反応率割合を満たす「(燃料系(U+Pu)、鋼材、ジルコニア、コンクリート、軽水)の重量比」を探索し、その比に応じて重量を按分する、NIGS単独での計量が実現する。これを希望し、測定可能な $\gamma$ 線の種類を増やすことにつとめている。

## 7. $\gamma$ 線データの評価の課題と期待

ここまでNIGSの実験データをベースに燃料デブリの臨界管理と計量管理に関する筆者の研究を紹介してきたが、この技術的成立には基本的な「反応毎の $\gamma$ 線発生データ」のデータが集められ、精度良く評価され、使いやすい形で整備されていることが何より肝要である。あらためてNIGSで測定にかかる $\gamma$ 線を並べると

中性子捕獲 $\gamma$ 線

核分裂即発 $\gamma$ 線

短寿命FP崩壊 $\gamma$ 線

非弾性散乱後や $p, \alpha$ 放出後の脱励起 $\gamma$ 線

放射化-崩壊 $\gamma$ 線

<sup>3</sup> GdやBなどの吸収材は重量としては無視しえるほど小さい。

などとなるだろう。

中性子捕獲 $\gamma$ 線については図 4 の計算で  $^{27}\text{Al}$  のピークが出てこなかったことから、JENDL-4.0 の利用をせずに専ら文献[4]を使用している。しかし文献[4]では discrete peak だけを扱っているので、連続スペクトルがあると CapC の利用で課題となる(3.4MeV 以上に有意な計数の連続スペクトルがあるかが課題)。さらに筆者は KUCA の実験という、「反応の大部分は熱中性子によるもの」という仮定が成り立つ場で実験してきたが、例えば文献[18]では  $^{238}\text{U}$  の熱中性子吸収と共鳴吸収で $\gamma$ 線エネルギー毎の発生本数が異なることが報告されている。熱中性子吸収よりも共鳴の影響の大きい核種として  $^{238}\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ 、一部の希土類元素のうち数密度 $\times$ 共鳴吸収断面積の大きいものについては、 $\gamma$ 線発生数/反応数の系統的データの取得、評価を要望する。また文献[4]でも、測定しやすい構造材についても、 $^{53}\text{Cr}$  では $\gamma$ 線発生/吸収データが評価されていない。 $^{56}\text{Fe}$  でもその評価の誤差が 17%に達しているので、この縮減を望んでいる。上述の  $^{155}\text{Gd}$  の評価は言わずもがなである。これと連続スペクトル部も含めた validation を要望する。

核分裂即発 $\gamma$ 線については、図 4 において JENDL-4.0 でスペクトルがステップ状になっている問題を指摘した。言うまでもないが、この状態では Unfolding には利用できない。筆者は文献[10]を参照することが多いが、反応あたりの発生本数の誤差が結構大きく  $^{235}\text{U}$  熱中性子核分裂で  $2.79 \pm 0.31$  などとなる。また 1MeV 以上の本数でみた場合、文献[10]と JENDL-4.0 で 0.217 と 0.281 という違いがある[9]。この誤差は結局 CapC の評価誤差に直結するので、最近の実験データ[19][20]を参照するなど改善にあたってほしい。

短寿命 FP 崩壊 $\gamma$ 線については、筆者もまず統計のよいデータを KUCA の実験でとることを検討しているが、まず比較対象は JENDL/FPY&FPD-2011[21]であろう。実験データの取得と積分比較のデータをすすめていきたい。

非弾性散乱後の脱励起 $\gamma$ 線については、図 7 でも炭素の非弾性散乱-脱励起に見られるように、 $\gamma$ 線スペクトルが重心の運動エネルギーによる揺らぎをうけて広がる可能性がある。また文献[17]で見られるように、中性子エネルギーによってもスペクトル形状が変化する。このため一部は熱中性子でなく高速中性子を使った実験で、スペクトルの系統的評価をすすめていただきたい。

放射化-崩壊 $\gamma$ 線については、半減期が短く放出エネルギーが 3.4MeV 以上のものについてのデータベースを要望する。

解析では中性子- $\gamma$ 線結合輸送解析をベースに、空間メッシュ毎の中性子反応率、 $\gamma$ 線発生率とスペクトル、さらに検出器までの輸送と検出器内でのエネルギー付与が計算できるツールが必要となる。筆者は MCNP コードで多重回の計算を行い、中間ファイル进行处理して response を作成しているが、非弾性散乱後の脱励起 $\gamma$ 線のスペクトルのドップラー広がりなどはまだ考慮していない(PHITS では可能とのこと[22])。究極的には「重量、(燃料系(U+Pu)、鋼材、ジルコニア、コンクリート、軽水)の重量比」という入力に対して

中性子-光子結合輸送計算から応答関数を大量に用意し、スペクトルマッチングで NIGS の測定データと合致する組成、各物質量を定めることが望ましい。

ここまで、KUCA 共同利用の箇所を除くと、NIGS の概念設計、実験企画とデータ分析、計算解析を筆者単独で進めてきているが、基礎データの測定、評価、データライブラリの作成、計算コードの改良、より実燃料デブリに近い試験体を用いてのデモ実験等、研究の拡大が必要な時期に来ていると感ずる。ご興味のある方は筆者にお気軽にご連絡下さい。

## 参考文献

- [1] 東京電力ホールディングス <http://irid.or.jp/wp-content/uploads/2018/02/20180201.pdf> (2019/1/14 閲覧).
- [2] G. M. Jacks, *TMI-2 Defueling Canisters Final Design Technical Report*, EGG-TMI-6744, May 1985.
- [3] Yasushi Nauchi, Hirokazu Ohta, Hironobu Unesaki, Tadafumi Sano & Takahiro Yagi "Concept of capture credit based on neutron-induced gamma ray spectroscopy", *Journal of Nuclear Science and Technology* 52(7-8),1074-1084, 2015.
- [4] Thermal Neutron Capture  $\gamma$ 's (CapGam), <https://www.nndc.bnl.gov/capgam/>, (2019/1/14 閲覧).
- [5] 名内泰志、亀山高範、宇根崎博信、三澤毅「KUCA-C 架台での  $\gamma$  線スペクトル測定による未臨界増倍率の評価」日本原子力学会 2010 年秋の大会。
- [6] 名内泰志、太田宏一、宇根崎博信、佐野忠史、高橋佳之「未臨界体系における構造材の中性子捕獲反応のガンマ線測定による定量(3)」日本原子力学会 2014 年春の年会。
- [7] X-5 Monte Carlo Team, MCNPTM – A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5, LA-UR-03-1987, Los Alamos National Laboratory (LANL) (2003).
- [8] K. Shibata, O. Iwamoto, T. Nakagawa, et al., "JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering", *J. Nucl. Sci. Technol.* 48(1), pp. 1-30 (2011).
- [9] Y. NAUCHI, H. OHTA, H. UNESAKI, T. MISAWA, T. SANO, T. YAGI, T. KAMEYAMA, "Estimation of Reaction Rate in Subcritical System by Gamma Ray Spectrum Measurement", *Proc 2012 Nuclear Data Symposium*.
- [10] J. M. Verbeke, C. Hagmann, D. Wright, UCRL-AR-228518, Lawrence Livermore National Laboratory, 2010.
- [11] Y. NAUCHI, S. Iwasaki, "Convergence of unfolded spectrum with response function for single radiation based on Bayes' theorem", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. Section A, Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 735, 437-443, 2014.
- [12] 名内泰志「福島第一原子力発電所における燃料デブリ中の核燃料物質定量に関する候補技術の特性研究 (5) -アクティブ  $\gamma$  法-」日本原子力学会 2017 年春の年会。

- [13] P. K. Das, K. Hagiwara, T. Tanaka, et al., "Measurement of relative intensity of the discrete  $\gamma$  rays from the thermal neutron capture reaction  $^{155,157}\text{Gd}(n,\gamma)$  using ANNRI detector (JPARC)" *Proceedings of Science*, 045, published on line Jan 1 2017.
- [14] G.L.Molnar, T. Belgya, *NIM-B* 213(2004) 389-393.
- [15] 名内泰志、佐野忠史、佐藤駿介、鈴木求、太田宏一、宇根崎博信「未臨界体系での  $^{238}\text{U}$  中性子捕獲  $\gamma$  線の検出」日本原子力学会 2018 春の年会
- [16] Koizumi M, Rossi F, Rodriguez DC et al. "Delayed gamma-ray spectroscopy combined with active neutron interrogation for nuclear security and safeguards", *EPJ Web Conf* 146 09018, 2017.
- [17] Kazuya OHGAMA, Masayuki IGASHIRA and Toshiro OHSAKI, "Measurement of keV-Neutron Capture Cross Sections and Capture Gamma-Ray Spectra of  $^{91,92}\text{Zr}$ ", *Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY*, Vol. 42, No. 4, p. 333–340 (April 2005).
- [18] Harada H, Goko S, Kimura A et al. Study of neutron capture reactions using  $4\pi$  Ge spectrometer, *Journal of the Korean Physical Society*. 2011;59(2):1547-1552.
- [19] Oberstedt S, Billnert R, Gatera A et al. Prompt fission  $\gamma$ -ray spectra characteristics - a first summary, *Physics Procedia*. 2015;64: 83 – 90.
- [20] Makii H, Nishio K, Hirose K, et al. Measurement of high-energy prompt gamma-rays from neutron induced fission of U-235, *EPJ Web of Conferences*. 2017;146:04036.
- [21] Katakura J, JENDL FP Decay Data File 2011 and Fission Yields Data File 2011. Tokai, Ibarakai, Japan: Japan atomic energy agency;2012 (JAEA-Data/Code 2011-025).
- [22] Tatsuhiko Ogawa, Shintaro Hashimoto, Tatsuhiko Sato, Koji Niita, "Development of gamma de-excitation model for prediction of prompt gamma-rays and isomer production based on energy-dependent level structure treatment" *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B Beam Interactions with Materials and Atoms* 325:35–42, 2014.