

## 可搬型 X バンドライナック X 線・中性子源による福島ユニット缶入り燃料デブリの U 濃度検査/仕分け

### U-DENSITY ANALYSIS AND CLASSIFICATION OF FUKUSHIMA FUEL DEBRIS IN UNIT CAN BY PORTABLE X-BAND LINAC X-RAY/NEUTRON SOURCES

上坂 充<sup>#, A)</sup>, 土橋克宏<sup>A)</sup>, 叶野翔<sup>A)</sup>, 阿部弘亮<sup>A)</sup>, 芝 知宙<sup>B)</sup>, 草野譲一<sup>C)</sup>

Mitsuru Uesaka<sup>#, A)</sup>, Katsuhiro Dobashi<sup>A)</sup>, Sho Kano<sup>A)</sup>, Hiroaki Abe<sup>A)</sup>, Tomoaki Shiba<sup>B)</sup>, Jyoichi Kusano<sup>C)</sup>

<sup>A)</sup> Nuclear Professional School, University of Tokyo

<sup>B)</sup> Japan Atomic Energy Agency

<sup>C)</sup> Accutera Inc.

#### Abstract

TEPCO (Tokyo Electric Power Company Holdings) and NDF (Nuclear Damage Compensation and Decommission Facilitation Corporation) plan to start mass-extraction of nuclear fuel debris from the Fukushima Daiichi 1<sup>st</sup>, 2<sup>nd</sup> and 3<sup>rd</sup> plants in 2024. We have successfully performed Proof-of-Principle experiments via dual energy X-ray CT (Computed Tomography) and NRTA (Neutron Resonance Transmission Absorption) by portable 950 keV / 3.95 MeV X-band (9.3 GHz) electron linac X-ray / neutron sources. By using model fuel debris samples, we can evaluate Pb(model of U)/Zr/Fe/concrete and their mixtures via measured X-ray attenuation coefficients by CT and verify the existence of W(U)/In(Pu) by NRTA. We are going to design a practical system which can on-site and quickly evaluate U-amount and density in debris and classify U-contained or non-U debris for safe and reasonable storage.

#### 1. はじめに

東京電力福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた中長期ロードマップによれば、2021年には燃料デブリ取り出しが始まる。しかしながら、実際の燃料デブリ取り出し作業に伴う問題点としては、対象とする燃料デブリ塊全体の性状が不確かであり、また燃料デブリ塊全体としてどのような放射能分布を持つか不明であるために、取り出し作業自体が難航すると予想される。このような状況であるからして、炉内に存在する燃料デブリ塊についての、例えば放射能分布などの物理・化学的性状の詳細なマッピングを得ることは、今後の取り出し作業の効率化に大きく資すると考えられる。また、燃料デブリ塊の U・Pu 含有率等の分布を得ることはまた、計量管理への応用も大きく期待できる。燃料デブリの計量管理では収納缶単位の核物質重量評価を想定しており、事前に燃料デブリ塊の性状マッピングが把握できていれば、収納缶に燃料デブリを入れた段階で大凡の核物質重量を推定できる。さらに非破壊検査を組み合わせることによりさらに信頼度が高い重量を数値的に推定することができる。

2024 年の本格取り出しに備え、上記ユニット缶入り燃料デブリを格納容器直外のその場で、迅速に U 濃度約 5% 以上か未満を判定し、以上であれば核物質、未満であれば放射性廃棄物と仕分けできる装置システムを実現する。装置は可搬型 950keV/3.95MeV X 線・中性子源 (950keV:50kgx3 箱)、および 2 色 X 線 CT (空間分解能 0.5mm) ステージ、1mTOF (高速) 中性子共鳴透過分析 (Neutron Resonance Transmission Analysis; NRTA) 装置 (1 時間)、解析コンピュータよりなる[1-3]。

#### 2. 模擬収納缶入り模擬デブリ 2 色 X 線 CT 元素分析

3.95MeV と 0.95MeV の X 線源を用いて、燃料デブリを模したワーク 4 種類について、CT 画像中の輝度値による材質の弁別を試みるためのデータの収集を行った。実験方法を以下に述べる。

##### 2.1 模擬燃料デブリワーク(試料)について

下記の 4 種のワークを高さ方向に重ねて撮影を実施  
ワーク1: Fe/Zr コの字型のものを組み合わせたもの  
ワーク2: L11 N 1611、側面に Pb を張り付け  
ワーク3: C10 conc/sus/Zr 2014、側面に Pb を張り付け  
ワーク4: conc/Zr #1 2014、側面に Pb を張り付け

##### 2.2 線源

950keV/3.95MeV X 線源

※プレハードニングのため、950keV 線源では Pb フィルタ 5 mm,

3.95MeV 線源では Pb フィルタ 10 mm を使用

##### 2.3 検出器

Varex XRD1622 AO19 IMG : 2048×2048 画素の検出器を 1732×1552 画素の範囲で使用  
画素ピッチ 200 μ m, 14bit ADCPI200(GOS)、蛍光膜厚約 200 μ m

<sup>#</sup> uesaka@nuclear.jp

## 2.4 撮影幾何条件

<950keV 使用時>

線源－検出器間距離 : 1620mm

線源－対象物間距離 : 1121mm

<3.95MeV 使用時>

線源－検出器間距離 : 1675mm

線源－対象物間距離 : 1193mm

装置構成は Fig. 1 を参照されたい。

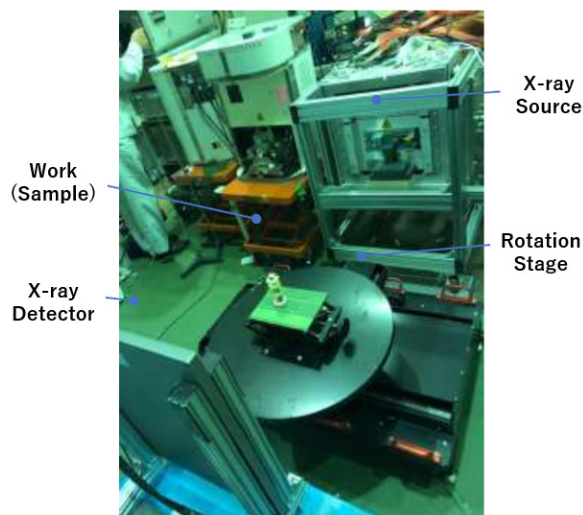


Figure 1: Simulated debris work (sample) 2-color X-ray CT experiment system.

## 2.5 再構成方法

FDK 再構成で実施

## 2.6 測定ケース

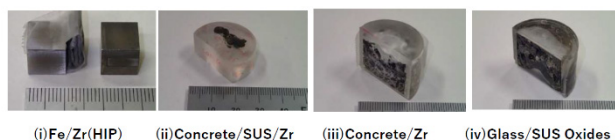


Figure 2: Simulated debris used in the present study.

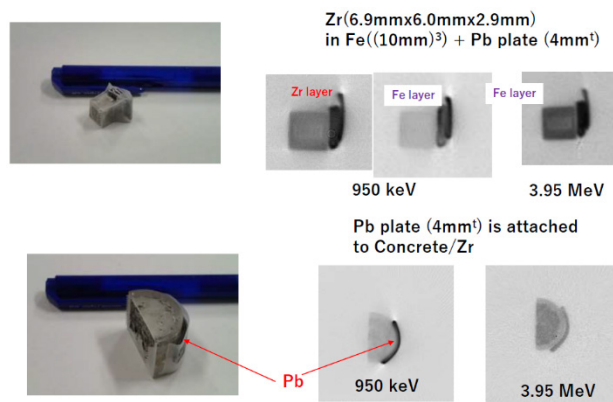


Figure 3: 2-color X-ray CT result of simulated debris (upper: Concrete/Zr+Pb, lower: Fe/Zr+Pb).

また使用したデブリは、東大阿部研作成

①模擬燃料デブリワーク単体での CT 撮影

ビュー数は 180、360、720view の 3 種類で実施

②模擬燃料デブリワークを薄肉缶に収納した状態で CT 撮影

缶の直径は約 200 mm、厚みは約 1.3 mm

ビュー数は 180、360、720 view の 3 種類で実施

③模擬燃料デブリワークを厚肉缶に収納した状態で CT 撮影缶の直径は約 200 mm、厚みは約 10 mm、ビュー数は 180、360、720 view の 3 種類で実施

ここで採用した模擬収納缶(直径 200mm,高さ 300mm,厚肉(10mm)、薄肉(1.3mm))の写真を Fig. 4 に示す。

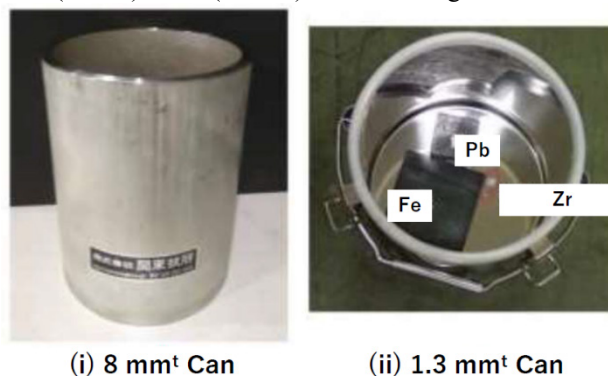


Figure 4: Simulated storage can (diameter 200 mm, height 300 mm, thick wall (10 mm<sup>3</sup>), thin wall (1.3 mm<sup>3</sup>)).

## 2.7 測定結果

■CT データ

ワークを 950keV/3.95MeV -X 線源で撮影し、画像再構成を行った。模擬デブリ 4 個むき出しの状態と薄肉缶に収納した状態の 3.95MeVX 線 CT 再構成画像を Fig. 5 に示す。

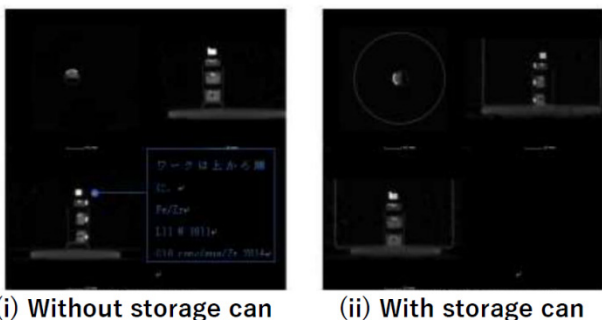


Figure 5: 2-color X-ray CT result of simulated debris (Upper: Concrete/Zr+Pb, Lower: Fe/Zr+Pb).

次に、3.95MeV X線源による、厚肉収納缶入り模擬デブリの3次元CT再構成結果を、それぞれ Fig. 6 に示す。



Figure 6: Reconstruction result of simulated debris in thick-wall storage can using 3.95 MeV CT.

3次元2色X線CT再構成から得られる950keV/3.95MeV X線源における減弱係数/CT値の相対値と、模擬燃料デブリの評価の位置の番号との相関を Fig. 7 に示す。950keV/3.95MeV 制動放射 X線でのCT値では同じ成分でも当然差が出ている。比もとってみたが、誤差の影響が拡大して見えたので、ここでは示していない。U 模擬である Pb は単体で模擬デブリに貼付しているので、明確に識別できる。HIP 加工 Fe/Zr 模擬デブリ (Fig. 7 では試料 1) も成分が混合していないので、明確に識別できる。さらに収納缶は SUS 製で Fe の基準になる。一方、融合混合部では ZrO<sub>2</sub> 主成分部は上記 Zr 単体より CT 値は O<sub>2</sub> の化合の影響で低くなっている。64%<sup>26</sup>Fe-15%<sup>24</sup>Cr-12%<sup>28</sup>Ni-8%<sup>14</sup>Si-1%<sup>42</sup>Mo 部の CT 値は、主に Ni の影響か、Fe より少し大きい。模擬デブリが

異なっても、コンクリート部の CT 値はほぼ同じである。ガラス部/アクリル部はコンクリート部より有意に小さい。

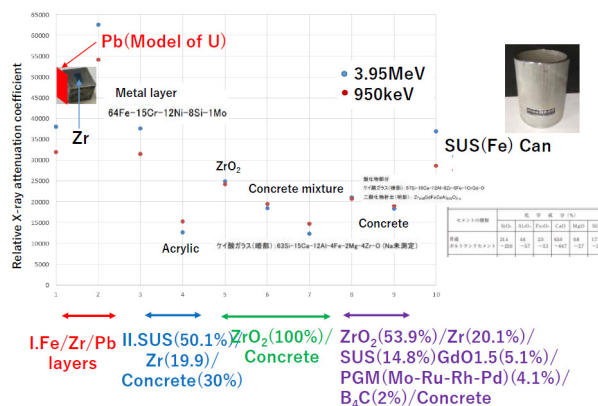


Figure 7: Elemental analysis results of simulated debris in thick-wall storage can using 2-color X-ray CT.

### 3. 中性子共鳴透過分析(Nuclear Resonance Transmission Analysis, NRTA)

3.95 MeV X バンドライナックベースの X 線源システムとベリリウムターゲットを組み合わせることにより、小型で可搬なパルス中性子源を構成できる。3.95 MeV 小型中性子源で発生できる中性子線のパルス幅は 1~4 μs と比較的短いため、約数メートルという近距離での TOF(Time Of Flight)測定が可能である。Figure 8, 9, 10 に X バンド電子ライナックベースの中性子源の模式図を示す。おおよその合計サイズは 1 m<sup>2</sup> (中性子飛行経路を含まない)であり、非常に小型で高い可搬性のあるパルス中性子源システムである。

TOF 測定を用いて、サンプル物質に含まれる同位体の実験データで特定された共鳴ピークを使用して、提案している NRTA のシステムの実現可能性をテストした。実験では、安全上の理由から、サンプルとして核燃料デブリの代わりに非放射性ダミー材料 (W と In、20mmx80mmx0.6mm) を使用した。これらのダミーサンプルには <sup>238</sup>U および <sup>240</sup>Pu と同様の中性子エネルギー吸収値がある。同位体検出実験の材料は、純インジウム及びタングステンの金属板サンプルであり、それらの同位体は中性子吸収エネルギーが比較的低いために選択した。JENDL からの参照によると、インジウムは、プルトニウム同位体の 0.1-5 eV の範囲の共鳴値に近い中性子共鳴ピーク断面積の値を持っている。また、タングステンは、ウラン同位体の 6~50 eV までの範囲の共鳴値に近い中性子共鳴ピーク断面積の値を持っている。したがって、小型中性子源で容易に測定可能である。

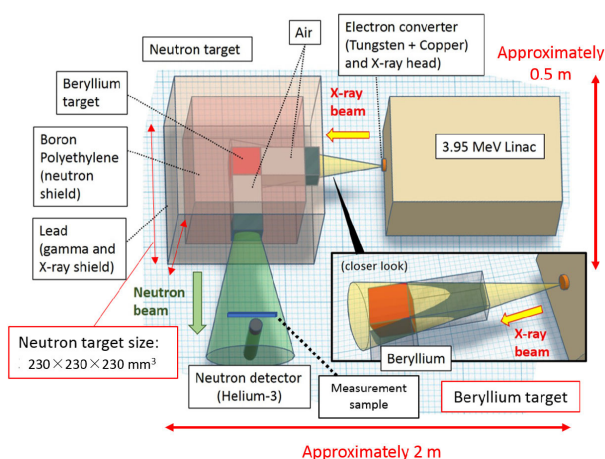


Figure 8: System diagram of X-band electron linac-based compact neutron source.

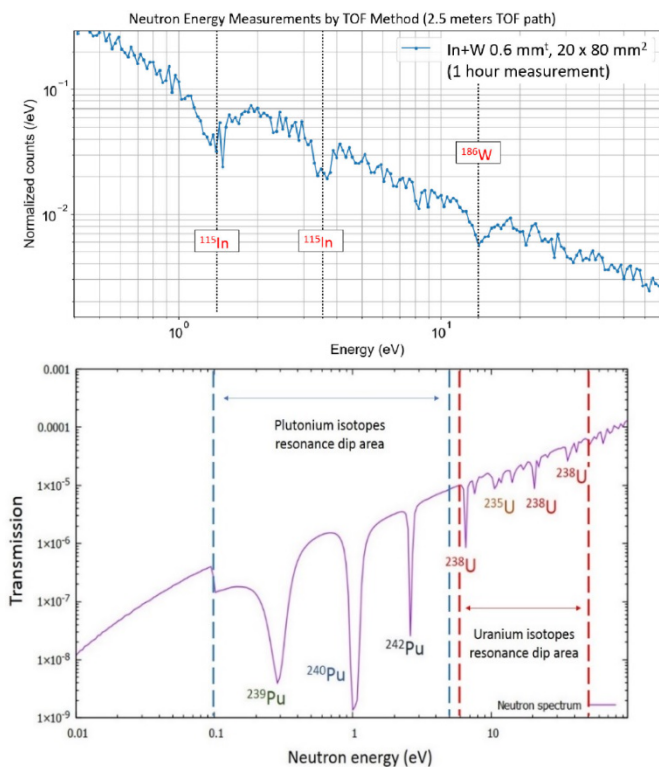
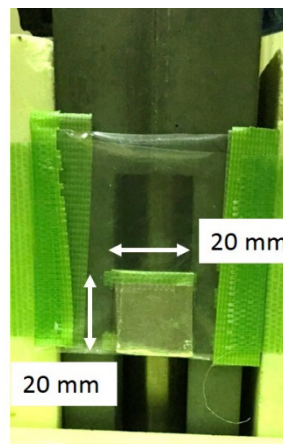


Figure 9: Neutron absorption measurement results of In(Pu simulated)/W(U simulated) large area sheet sample (top).

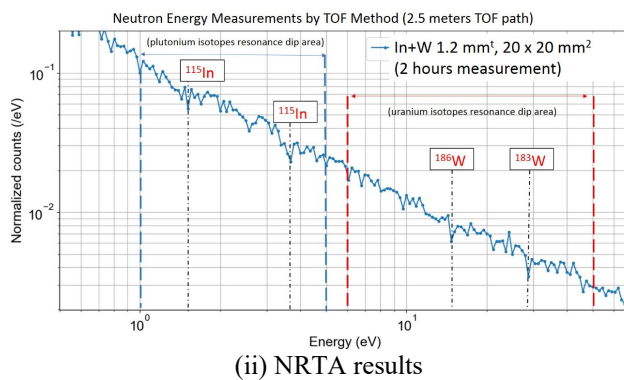
(The lower row shows Pu and U neutron absorption calculation results)

それぞれ 0.1 mm の厚さの板状のサンプルを  $^3\text{He}$  比例計数管の前に配置した。サンプルが検出器の窓より大きいため、有効な検出領域は  $20 \times 80 \text{ mm}^2$  である。インジウムとタングステンの 3 つのプレートをそれぞれ交互に積み重ねて、全体の厚さ 0.6 mm のプレート状の混合サンプルを形成した。得られた混合サンプル測定の中性子スペクトルを Fig. 9 上段に示す。下段に検出された中性子スペクトルには、異なるエネルギーのいくつかの共鳴ピークが表れている。

サンプルがより小さい場合でも、共鳴ピークが引き続き観察できるかどうかを判断するため、シートサンプルではなく、検出領域と固体ブロックに近い、異なるサンプルのサイズと厚さを使用してサイズを徐々に小さくして厚みを増す測定として 1 時間の NRTA を行った。3.95 MeV の X バンド電子ライナックベースのパルス中性子源システムを使用して測定可能なサンプルの最小サイズと重量を決定する。Figure 10 に、最小サイズとして  $20 \times 20 \text{ mm}^2$  厚さ 1.2 mm のサンプルを使用した中性子 TOF 測定のプロットを示す。変動を少なくするために 2 時間測定した。



(i)  $^3\text{He}$  gas neutron detector and W/In samples



(ii) NRTA results

Figure 10: Neutron energy spectrum obtained from the measurement of a sample mixing plate with a thickness of 1.2 mm and a detection area of  $20 \times 20 \text{ mm}^2$  for each of tungsten and tungsten (each isotope resonance peak area can be observed).

システムで数 mm の固体の小さな燃料デブリを測定できるようにするには、中性子数、特にウランとプルトニウムの同位体共鳴ピーク領域での中性子線の強度が必要である。中性子源の強度を向上させるために、中性子としていくつかの方法、ターゲット(ベリリウム)サイズの変更、中性子源のパルス幅の短縮、およびライナックビームパワーの増強により 10 倍までは可能と思われる。システムが小型であることを考慮するのであれば、1 クライストロン

ユニットによる 35 MeV X バンドライナック中性子源( $8 \times 10^{11}$  n/s)が有望である。20×20 mm<sup>2</sup>の 1.2 mm 厚のサンプル検出に 2 時間要することに基づく、強度 4 桁増 ( $3.86 \times 10^7$  から  $8 \times 10^{11}$  n/s へ)で、数 mm の燃料デブリは 10 秒程度で U と Pu の検出を可能と考えられる。

また 1F 現場では臨界安全のため、燃料デブリ収納缶には中性子吸収剤が入られる。その影響を、In の 20mm×80mm×0.3mm シート試料に同じ面積の厚さ 2mm の B シートを貼付して、中性子線吸収を見た結果を Fig. 11 に示す。B に吸収される中性子のエネルギーは 1eV 以下であった。Figure 9 の下段により、U の同位体の吸収は 1eV 以上にあるため、U の測定には B は影響を及ぼさないことがわかった。

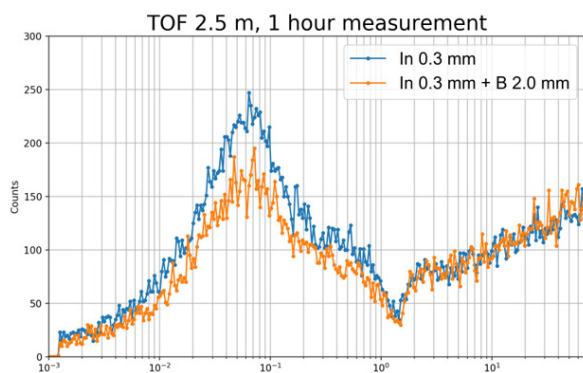


Figure 11: Results of B neutron absorption evaluation test.

以上まとめると、3.95MeV X 線中性子源を使った中性子共鳴吸収による模擬試料 W(U)/Ir(Pu)2.5mTOF で中性子共鳴吸収測定に成功した。測定限界核物質サイズも評価した。中性子吸収剤 B 添加による中性子スペクトルの変化は U/Pu 吸収測定にほとんど影響を及ぼさないことを示した。

#### 4. まとめと今後の展開

成果をまとめると以下である。

2 色 X 線 CT による元素分析につき、実機 cold 模擬デブリにて、MCCI,Zr,Fe,Pb(U/Pb)の成分識別ができた。さらには、模擬収納缶入りの実機 cold 模擬デブリの、2 色 X 線 CT を 5 分程度で実施できた。MCCI,Zr,Fe,Pb(U/Pb)の成分識別ができた。特に、MCCI,Zr,Fe の熔融混合による平均原子番号の変化の挙動が観察できた。今後、Pb を使った、U の模擬熔融混合物の試験が期待される。以上の成果より、次の、実機成分分析/U 濃度 2 色 X 線 CT システムとシナリオが考えられる。1,2,3 号機から試験取り出しされる燃料デブリの性状分析の情報より、各号機の場所からの燃料デブリ中の MCCI,Zr,Fe,U の成分比の可能性範囲を把握する。各号機から取り出されるユニット缶に入った燃料デブリを、950keV/3.95MeV 2 色 X 線 CT 装置による X 線減弱係数および両者比を 10 分程度で求める。測定された X 線減弱係数および比と、号機

場所での成分比情報より、かなりの精度で U の濃度が推定できる。

NRTA に関して、ここまで 20mm×20mm×1mm の W/In 試料で 2 時間掛かっていた。現場迅速測定のため、エネルギー領域を U238 の 6.8eV 周辺のみを絞り込み、測定時間の短縮化をはかる。TOF 距離も 1m 程度の最短距離を決める。厚さ 20cm 程度で 1 時間以内が目標となる。

1,2,3 号機の格納容器直外か隣接建屋で、X 線 CT/中性子分析にして、数 100kg/日の物量で、燃料デブリが収納されたユニット缶内の U 有無を確認し燃料デブリと放射性廃棄物の仕分けができる、Fig. 12 のような実機装置システムを提案できる。

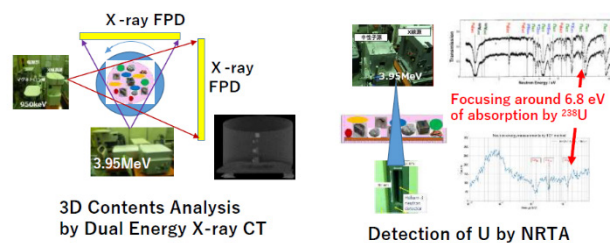


Figure 12: Proposal of in-situ high-speed 2-color X-ray CT/NRTA system.

#### 謝辞

本研究は、文科省日英英知事業「可搬型加速器 X 線源・中性子源によるその場燃料デブリ元素分析および地球統計学手法を用いた迅速な燃料デブリ性状分布の推定手法の開発 (H29-R1)」(JPMX 17D17942926)にて実施された。

#### 参考文献

- [1] I. Ozawa *et al.*, "Fukushima Nuclear Fuel Debris Component Analysis by Spectral CT Method with Portable High Energy X-Ray Source", Proceedings of 2018 Pacific Basin Nuclear Conference, 2018, pp. 257-261.
- [2] Y. Kusumawati *et al.*, "X-band electron LINAC-based compact neutron source for nuclear debris on-site screening using short-distance neutron resonance transmission analysis", E-Journal of Advanced Maintenance, Japan Society of Maintenance, 2019, Vol. 11, No. 1, pp. 46-64.
- [3] M. Uesaka *et al.*, "On-site Quantitative Nuclear Fuel Debris Analysis by Portable 950 keV / 3.95 MeV X-ray / Neutron Sources in Fukushima", Modern Environmental Science and Engineering, MESE20190922-1, 2020.