

高速中性子照射環境における長期照射量測定法の開発に関する研究

A study on fast neutron dosimetry in long-term irradiation

2009年7月

名古屋大学大学院工学研究科

量子工学専攻

伊藤主税

要旨

原子炉において燃料・材料の照射試験を実施する場合、試験用集合体そのものの装荷の影響は言うに及ばず、運転サイクルごとの燃料交換による炉心構成の変更、原子炉の運転に伴う燃料の燃焼や制御棒の運用等により時々刻々変化していく核特性を精度よく把握すること、すなわち、中性子照射場としての特性を正確に把握することが不可欠である。

核分裂炉のドシメトリーは、軽水炉圧力容器材の中性子照射脆化に対する健全性評価のためのサーベイランス試験とこれに関連する照射試験における中性子フルエンス及びエネルギースペクトル、He 生成量、構造材の原子弾き出し損傷量等を評価するための研究として進んできた。これに加え、次世代の核燃料サイクルの中核を担う高速増殖炉や核融合、加速器をターゲットとした高速中性子場の評価がドシメトリー研究の牽引役の一端を担っている。

実測ベースの中性子ドシメトリーでは、多重放射化箔法をドシメータに用いて、測定した反応率から中性子スペクトルを求め、評価対象のウィンドウを用いて原子炉運転履歴で時間積分し、中性子照射量等を評価する。しかしながら、次世代の原子力システムである高速炉や核融合炉開発、軽水炉の寿命評価では、長期間の中性子照射に対する評価が重要となり、反応生成物として、長半減期核種または安定核種を用いるドシメータの採用がドシメトリーの精度を確保する上で重要となる。特に、原子炉運転開始まで遡っての積算線量評価(レトロスペクティブドシメトリー)のためには、30年～60年もの長期照射となるが、ドシメータの反応生成物の半減期の数倍も経つと概ね飽和に達してしまい、照射終了近傍の中性子束情報しか持たないことになり、ドシメータからは積算線量情報が得られなくなる。このレンジでドシメータが飽和せず、積算線量情報を維持できるのは、高速中性子場においては、 $^{93}\text{Nb}(n,n')^{93\text{m}}\text{Nb}$ (半減期 16.4年)がほぼ唯一である(^{238}U 等の核分裂反応(核分裂生成物として ^{137}Cs (半減期 30年)を用いる)もあるが、核燃料物質であるため、その使用は法的・技術的に煩雑となる。)

そこで、本研究では、Nb ドシメータの実用化を阻む問題点を解決するとともに、反応生成物の減衰による飽和が原理的に生じない安定核種を対象にしたドシメトリー法として He 蓄積法の導入、さらには、希ガスである Xe、Kr を用いることにより、固体ドシ

メータの装荷が困難な状況やリアルタイムでの測定に道を拓くガスドシメトリー法の開発について実験研究を行い、高速中性子環境での数年から数十年間の長期間を対象とした中性子積算線量を評価する手法を提案・開発した。

本論文は、本編全 5 章と付録から構成される。

第 1 章では、本研究の背景、目的及び本論文の構成について述べる。高速炉の中性子ドシメトリーについて概説し、現状の技術レベルについて述べ、今後の展開における課題として、長期照射量の評価とリアルタイム・短時間計測を挙げる。その上で、本研究は、前者の課題に対して、中性子反応生成物として長半減期核種や安定核種を選定し、既存の研究課題を整理して、高速中性子場の長期積算線量計測技術を提案する。

第 2 章では、半減期 16.4 年で数十年もの長期照射量測定に適し、 10^5 eV オーダの高速炉スペクトルの中性子計測に適する $^{93}\text{Nb}(n,n')$ 反応生成物である $^{93\text{m}}\text{Nb}$ による中性子照射量測定法を確立し、高速実験炉「常陽」の照射試験に適用した。本手法は、不純物 Ta の放射化物 (^{182}Ta : $T_{1/2} = 114\text{d}$) の γ 線で励起されることによる特性 X 線が測定を妨害し、既往技術では長期間の冷却により ^{182}Ta を減衰させるしかなかったが、この妨害 X 線による影響の程度を定量的に評価する手法を考案した。Nb ドシメータの反応率測定については、ドシメータを溶解・乾燥固化処理することにより、低エネルギーの特性 X 線を高精度で測定するとともに、誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) でその重量を精度良く求め、反応率測定値を得た。この手法を「常陽」のドシメトリーに適用し、反応率を測定して 0.1 MeV 以上の高速中性子照射量を求め、多重放射化箔法による中性子スペクトルから求めた高速中性子照射量と比較し、両者の測定誤差以下で一致した。これらより、Nb ドシメータによる高速中性子照射量測定法の信頼性が確認でき、高速中性子照射量が精度良く測定できることを確認した。

第 3 章では、反応生成物の半減期により、中性子照射量測定時間の上限が制限される放射化箔法に対して、反応生成物として安定核種である He を用いる He 蓄積法を導入した。高速中性子照射量測定用の He 蓄積型中性子照射量モニタ (HAFM) の素子として ^9Be を選択し、HAFM の He 生成量を測定する質量分析装置を作成し、He 含有標準試料による校正法を開発して、He 測定誤差 5 % を達成した。本手法を「弥生」の標準中性子場にいける高速中性子照射量測定に適用し、 ^9Be 素子 HAFM により測定誤差 7 % で高速中性子照射量が測定できることを実証した。しかし、中性子スペクト

ルが低エネルギー側に若干シフトする実機高速炉である「常陽」の高速中性子照射量測定では、16 ~ 17 % 過大な測定結果となり、He 生成量測定値から中性子照射量求めるために必要な、1 群縮約した ${}^9\text{Be}$ の He 生成断面積(すなわち、断面積と中性子束及びスペクトル)の評価精度を向上させる必要があることを明らかにした。

第 4 章では、ガスを用いた中性子照射量の測定法を提案し、炉容器内や炉利用気周辺の狭隘部において固体のドシメータの照射・取出しというプロセスに制限されないドシメトリ法を検討した。中性子捕獲反応により複数の安定同位体を有するガスの同位体比が変化することに着目し、反応率の逆数に対して短時間の照射であれば、隣り合う同位体の存在比の変化量(初期の同位体と照射後の同位体比の差)がその中性子照射量に比例することを初めて示し、Xe ガスの安定同位体を用いることにより、数年～数十年オーダの長期照射量を測定する手法を試みた。将来の実用化を念頭に置いて、多量のキャリアガス中に微量の Xe ガスを添加し、その同位体比を高精度で分析するため、レーザ共鳴イオン化質量分析法(RIMS)を用いて、ppt オーダの微量 Xe ガスの同位体比を分析できる装置を開発した。これを用いて、原理実証実験として、「常陽」の炉内クリープ破断試験で試料の破断に伴いカバーガス中に放出される Xe タグガスの分析に適用し、その同位体比を分析して、試料がクリープ破断するまでの中性子照射量測定を初めて試みた。その結果、原子炉内での約 1 年間の中性照射において、 $(8.4 \pm 0.7) \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ までの中性子照射量が測定でき、本手法による中性子照射量の測定原理が実証できた。今回の実験での比較的良好なケースから類推し、測定対象のガス(ガスドシメータ)の放出に伴う誤差要因(放出前のバックグラウンド等)を回避できれば、測定誤差約 10 % ($\sim 1 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$) で中性子照射量を測定できる見通しを得た。

本手法の実用化に当たっては、タグガスの初期組成の適切な設定と正確な値(誤差を含む)の把握が必要であり、今回の実験のような「ドシメトリ用の」ガスを炉容器内に放出する方法は、実験誤差の拡大を招くので、例えば、専用のガスループを設置する等ドシメトリ法を具体化していくことが必要である。そうして、実験誤差を低減させていく中で、中性子断面積や輸送計算の精度についても検討課題に挙げていき、ドシメトリ手法として確立していくことが今後の課題となる。

第 5 章では、本研究のまとめと今後の展開について述べる。本研究では、高速中性子ドシメトリにおいて数年～数十年の長期照射量を実測する方法の開発を行った。

具体的には、長期照射量測定のパテンシャルを有する Nb ドシメータの実用化を妨げる妨害 X 線の問題に取り組むとともに、核変換生成物として飽和・減衰の生じない安定核種に着目し、 ^9Be 素子を用いた He 蓄積型中性子フルーエンスモニタを開発し、さらに、高速炉の計装にも用いている希ガスに着目し、中性子照射による Xe ガスの同位体組成変化から中性子照射量を測定するガスドシメトリを提案し、その原理を実証した。

今後の展開として、専用のドシメータを用いずに原子炉運転開始以降の原子炉構造材の積算中性子照射量や He 損傷、弾き出し損傷の蓄積量を測定する技術への発展について、原子構造材中の不純物 Nb の測定や構造材中の He 原子数の直接測定がその候補であり、本研究を発展させていくことにより、それらの要求に応えられる技術体系の構築が期待できることを述べた。

ガスドシメトリにおける同様の具体例として、燃料破損による放出された Xe ガス FP の同位体比を分析することにより、破損した燃料プロファイルを把握する具体的な手法を提唱し、これらを含めて、個々の章で述べた精度向上等の課題を解決しつつ、中性子ドシメトリ技術が展開してくことを期待される。

付録では、燃料から放出される Xe ガス FP を同位体分析することにより、当該燃料の燃焼度を直接推定する方法について、具体化について検討し、予備的な実験を実施した結果を報告し、開発に向けた課題について述べる。

目次

第 1 章 序論.....	1
1.1 高速中性子スペクトル場の中性子ドシメトリー.....	1
1.1.1 「常陽」の中性子照射場.....	1
1.1.2 中性子照射場の核特性計算.....	3
1.1.3 多重放射化箔法による中性子ドシメトリー.....	4
1.2 長期照射計測への要求と課題.....	7
1.2.1 Nb ドシメータの実用化.....	10
1.2.2 He 蓄積法の導入.....	11
1.2.3 ガスドシメトリー.....	12
1.3 本研究の目的と論文の構成.....	12
第 1 章の参考文献.....	14
第 2 章 Nb ドシメータによる高速中性子照射量測定法の高度化.....	16
2.1 Nb ドシメータによる高速中性子照射量測定.....	16
2.2 ^{93}Nb の反応率測定.....	17
2.2.1 $^{93\text{m}}\text{Nb}$ の放射化量測定.....	17
2.2.2 ^{93}Nb の原子数測定.....	21
2.2.3 $^{93}\text{Nb}(n,n')^{93\text{m}}\text{Nb}$ 反応率測定値の算出.....	22
2.3 妨害 X 線の定量的な評価法の検討.....	22
2.4 実証実験.....	25
2.5 第 2 章のまとめ.....	31
第 2 章の参考文献.....	32
第 3 章 He 蓄積型中性子照射量モニタの開発.....	34
3.1 He 蓄積法.....	34
3.2 HAFM を用いた高速中性子照射量測定法の開発.....	36
3.2.1 He 蓄積型中性子照射量モニタ.....	36
3.2.2 He 蓄積型中性子照射量モニタ測定装置.....	39
3.3 高速中性子スペクトル場における実証実験.....	46
3.3.1 高速中性子源炉「弥生」の標準中性子場での HAFM 実証実験.....	46

3.3.2 高速実験炉「常陽」での HAFM 照射試験	51
3.4 第 3 章のまとめ	57
第 3 章の参考文献	57
第 4 章 レーザ共鳴イオン化質量分析法を用いたガストシメトリー	59
4.1 ガストシメトリー	59
4.2 レーザ共鳴イオン化質量分析法	62
4.2.1 レーザ共鳴イオン化質量分析法を用いた希ガス分析システム	63
4.2.2 装置の高感度化と標準ガス分析実験による性能評価	65
4.3 希ガスの同位体組成変化のモニタによる中性子照射量測定	68
4.3.1 高速実験炉「常陽」の炉内クリーブ破断試験	68
4.3.2 RIMS による Xe タグガスの同位体比分析	70
4.3.3 希ガストシメトリーの適用性検討	75
4.4 第 4 章のまとめ	79
第 4 章の参考文献	80
第 5 章 結論	83
5.1 結論	83
5.2 今後の展望	84
謝辞	87
付録 核分裂生成物ガスの同位体計測による燃料プロファイル診断	89
付録の参考文献	94
本論文を構成している発表論文	95

第1章 序論

本章では、高速中性子ドシメトリー技術の現状を概観し、今後進むべき展開のうち、数年～数十年にわたる長期間の中性子照射量測定技術を選定し、本研究の課題を設定する。

1.1 高速中性子スペクトル場の中性子ドシメトリー

原子炉において燃料・材料の照射試験を実施する場合、試験用集合体そのものの装荷の影響は言うに及ばず、運転サイクルごとの燃料交換による炉心構成の変更、原子炉の運転に伴う燃料の燃焼や制御棒の運用等により時々刻々変化していく核特性を精度よく把握すること、すなわち、中性子照射場としての特性を正確に把握することが不可欠である。

核分裂炉のドシメトリーは、軽水炉圧力容器材の中性子照射脆化に対する健全性評価のためのサーベイランス試験とこれに関連する照射試験における中性子フルエンス及びエネルギースペクトル、He 生成量、構造材の原子弾き出し損傷量等を評価するための研究として進められてきた。これに加え、次世代の核燃料サイクルの中核を担う高速増殖炉や核融合、加速器をターゲットとした高速中性子場の評価がドシメトリー研究の牽引約の一端を担っている。

ここで、高速実験炉「常陽」で行われている高速炉燃料・材料の照射試験で行われている中性子ドシメトリー^[1-4]を取り上げて高速中性子ドシメトリー技術の現状を概説し、将来の課題とそれに対する技術開発の概要を述べる。

1.1.1 「常陽」の中性子照射場

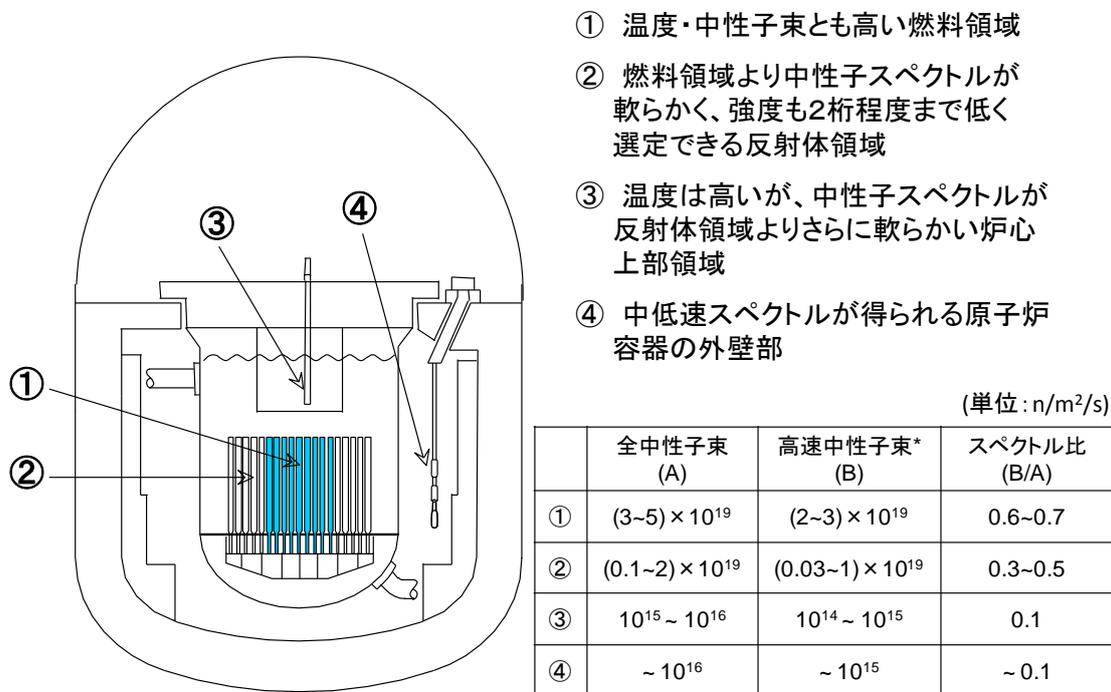
高速実験炉「常陽」では、高速増殖炉実用化のための燃料・材料開発を目的とした広範な照射試験を実施している他、近年は、高速中性子照射場の特徴を生かして、核融合炉材料の照射やマイナーアクチニドの核変換に関する研究、高速炉の破損燃料位置検出に用いるタグガスの放射化断面積の積分テスト等を実施してきた。これら各種照射試験を高精度かつ高信頼度で実施するため、炉心構成マトリックス内を始め

として原子炉容器外周部までの各位置における中性子照射場の特性を評価している。

「常陽」では、それぞれの照射試験に応じて、大きく分けて次の4つの中性子照射場の利用が可能となっている。

- ① 温度、中性子束ともに高い燃料領域
- ② 燃料領域より中性子スペクトルが軟らかく、中性子束も2桁程度まで低くできる反射体領域
- ③ 温度は高いが、中性子スペクトルが反射体領域よりさらに軟らかい炉心上部機構
- ④ 中低速スペクトルが得られる原子炉容器の外周部

これらの照射場は図 1-1 に示すとおりである。



* 中性子エネルギー範囲: $E > 0.1 \text{ MeV}$

図 1-1 高速実験炉「常陽」の中性子照射場

1.1.2 中性子照射場の核特性計算

「常陽」は小型高速炉心であるため中性子の漏洩が大きく、かつ、炉心燃料に比べて核物質量が少ない、あるいは全く含まない照射試験用燃料や材料を炉内に装荷するため、濃縮UとPuの混合酸化物を炉心燃料に用いて運転に必要な反応度を確保している。このため、中性子スペクトルが硬く、燃料領域内では核分裂性物質が燃焼により消費される割合に比べて親物質の転換が少ない(内部転換比が小さい)特徴を持つ。「常陽」の炉心管理計算は、上記の特徴を踏まえ、中性子束の詳細分布や微細なエネルギースペクトルの計算よりも、バルクの炉心特性の把握に重点を置き、各運転サイクルの炉心構成や運転履歴を模擬して核熱流力カップリング計算を行う総合炉心特性評価システムとなっており、燃料領域の中性子束及びスペクトル計算においても本コードが用いられている。

中性子照射量については、後述するドシメトリーによる中性子スペクトルのアジャストメントを行っており、燃料領域においてはバルク計算の炉心管理コードシステムによる中性子照射量と実測ベースの値の比(C/E)は、炉心中心部で 1.00 ± 0.05 程度である。

照射試験用集合体内の中性子照射量評価においては、

- ① 試験用燃料ピンや照射試料を収納するコンパートメント等の内部構造により、非均質性が強い
- ② 制御棒の隣接位置あるいは炉心燃料集合体と径方向反射体の境界に装荷される場合がある

などの理由により、局所的な中性子束勾配やスペクトル変化が大きいため、バルクでの炉心核特性の把握に重点を置いた炉心管理コードシステムでは、個々の試験用燃料ピンや照射試料の照射条件を精度良く評価できない。このため、中性子エネルギーを連続で取扱え、体系の幾何形状を正確に模擬できるモンテカルロ法を導入し、解析精度を向上させている。

また、拡散計算である炉心管理コードシステムでは十分な精度が得られない反射体領域、炉心上部領域、原子炉容器の外壁等における中性子束・ γ 線束については、2次元輸送計算コード DORT^[5]や3次元輸送計算コード TORT^[6]による透過計算により

照射量の評価精度を確保している。「常陽」の核特性評価フローを図 1-2 に示す。

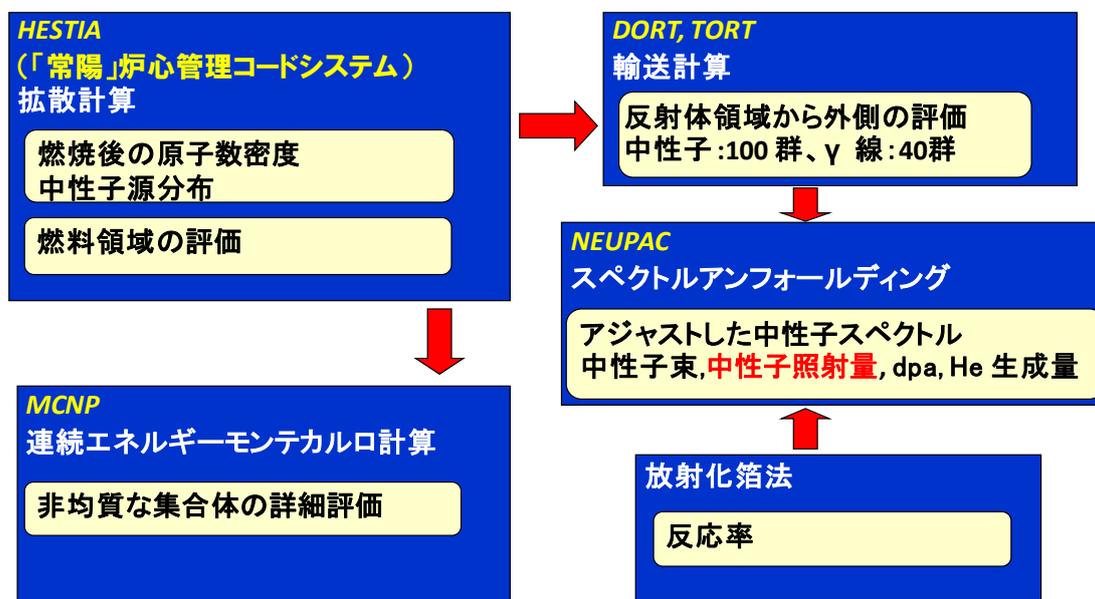


図 1-2 「常陽」の核特性評価フロー

1.1.3 多重放射化箔法による中性子ドシメトリー

実測ベースの中性子ドシメトリーでは、多重放射化箔法をドシメータに用いて、測定した反応率から中性子照射量を評価する。「常陽」における照射試験では、図 1-3 に示すドシメータセットを標準的に用いており、これらは、適用する照射場の中性子スペクトルにも依存するが、図 1-4 に示すように概ね中性子のエネルギーが 100 eV から 20 MeV の範囲をカバーするように選定されている。

「常陽」の照射試験では、各放射化反応の中性子感度に合わせて適切な寸法のワイヤ、箔等にカットしたドシメータをステンレス鋼製のドシメータキャプセルに封入し、試験片とともに照射する。照射試験終了後、各ドシメータの放射化量を高純度 Ge 半導体検出器で測定し、「常陽」プラントデータ収録システム JOYDAS で採取した1時間ごとの原子炉熱出力データを基に反応率を算出する。



金属ワイヤ 箱 Vキャプセル封入型
(U, Np, Sc)

図 1-3 多重放射化箔法のドシメータセット

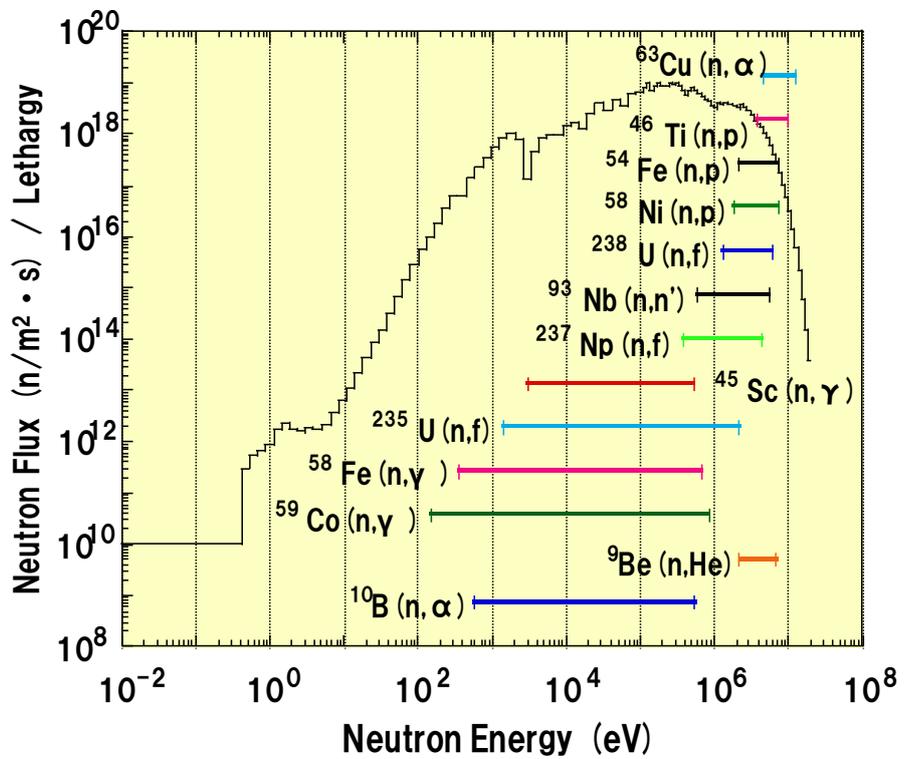


図 1-4 「常陽」炉心の中性子スペクトルとドシメータの 90% 感度範囲

反応率の測定誤差は、放射化反応で 2 ~ 3 % 程度、核分裂反応では、これに核分裂収率の誤差が加算されて 3 ~ 4 % 程度である。誤差の主要因は、Ge 検出器の γ 線検出効率の誤差となっている。これらは、東京大学(弥生炉)や米国 DOE (HEDL) 等国内外の研究機関との相互比較により、実験誤差の範囲内で一致することを確認している。

次に、反応率測定値から中性子束及び中性子スペクトルを得る問題は、 N 個の反応率測定データ R_i ($i = 1, N$) のセットを用いて、

$$R_i = \int_0^{\infty} \sigma_i(E) \varphi(E) dE \quad (1-1)$$

において、反応断面積 $\sigma_i(E)$ を既知として中性子スペクトル $\varphi_i(E)$ を求める逆問題となる。

「常陽」では、別途拡散計算や輸送計算等で求めたスペクトルを初期推定値として、NEUPAC-Jlog^[7]を用いて中性子スペクトルの最適解を求めている。このコードでは、式 1-1 の不定形線型方程式をベイズの定理に基づいて誤差が最少となるように統計的手法で解いて最適スペクトルを得る。これをアジャストメントと言い、同種の確率統計論的なアジャストメントコードとして、正規分布モデルの STAY'SL、NEUPAC-J1、解(中性子スペクトル)の非負性を満足させるために対数正規分布モデルを採用した SAND-II、FERRET、NEUPAC-Jlog 等がよく用いられる。得られた中性子スペクトルから各種ウィンドウ関数を用いて、目的となる高速中性子照射量、原子弾き出し損傷量、He 生成量等を求める。

中性子スペクトルのアジャストメントにおいて重要となる反応断面積には、ENDF/B-V ドシメトリファイル、JENDL-3 ドシメトリファイル、IRDF-90 等から作成した共分散誤差付きの断面積セット(0.00 1eV ~ 20 MeV)を用いている。

中性子スペクトルの解析結果の一例として、反応率の計算値について、初期推定スペクトル(輸送計算コード等による計算値)から求めた値(アジャストメント前の反応率計算値)と NEUPAC-Jlog によるアジャストメントで得られたスペクトルから求めた値(アジャストメント後の反応率計算値)を比較すると、反応率の計算値/測定値は平均でアジャストメント前の 1.46 からアジャストメント後の 1.03 に大きく改善される結果が得られている。これらを踏まえて現状のドシメトリの精度を表 1-1 にまとめる。

表 1-1 「常陽」の照射試験における照射条件評価項目と精度

照射試験	目的・対象	評価項目	評価精度
燃料開発	MOX燃料、MA含有燃料、金属燃料、ショートプロセス燃料等	線出力密度（燃料温度）、燃焼率	5%
材料開発	炉心材料、構造材料、制御棒材料、核融合材料等	原子弾き出し数（dpa）、He生成量	5～10%
核変換技術開発	マイナーアクチニド LLFP	核変換率	10%
サーベイランス試験	原子炉容器、安全容器 炉心支持板等	原子弾き出し数（dpa）、He生成量	10～20%

1.2 長期照射計測への要求と課題

高速増殖炉の開発は、国家基幹技術の一つとして位置付けられ、2025年までに実証炉(JSFR)を建設、2050年までに商業炉を導入するシナリオで研究開発が進められており、現在、日本原子力研究開発機構を中心として実施されている高速増殖炉サイクル実用化研究開発(FaCTプロジェクト)が進行している^[8]。ここで、炉心・燃料の高燃焼度化は、FaCTの主要課題であり、燃料の高燃焼度化、燃料被覆管や制御棒材料等の長寿命化が命題として研究が進められている。また、環境負荷低減の観点からマイナーアクチニドを含有した燃料の開発も行われており、高速実験炉「常陽」等を用いてこれら燃料材料の照射試験が行われている^[9]。これらの試験は、燃料・材料の限界を見極めるため、熔融限界線出力試験のような短時間で高線出力を達成するような試験と高燃焼度・高照射量を達成する長期照射に2極化する傾向にあり、それぞれ、中性子のエネルギー情報とともに、短時間照射では、時間当たりの中性子数(中性子束、核分裂率、線出力密度等)、長期照射では積分中性子数(中性子照射量)が重要で

あり、高速中性子ドシメトリーの重要性が再認識されるとともに、照射時間のレンジの拡大に適合したドシメトリー手法の高度化が求められている。

長期照射に対する中性子ドシメトリーは、高速炉のみならず、軽水炉を含めた多くの既存炉の寿命評価等やその後の運転終了後の廃止措置で重要な原子炉構造材料の中性子照射量の評価に有用である。また、「常陽」では、反射体領域の中性子や炉心上部を有効利用する等、「常陽」の高いポテンシャルを積極的に展開することで、FBR 開発だけでなく、原子力産業・一般産業にも貢献することが可能であり、多様化する中性子利用ニーズに応えるべく、「常陽」では照射機能の拡大と多様化方策が検討されている^[10]。具体的な方策案は、図 1-5 に示す原子炉運転の自動化、低中速中性子照射場、照射温度範囲の拡大、中性子ビーム孔等の設置等であり、これらの中性子環境を高精度で診断する技術も併せて開発しなければならない。

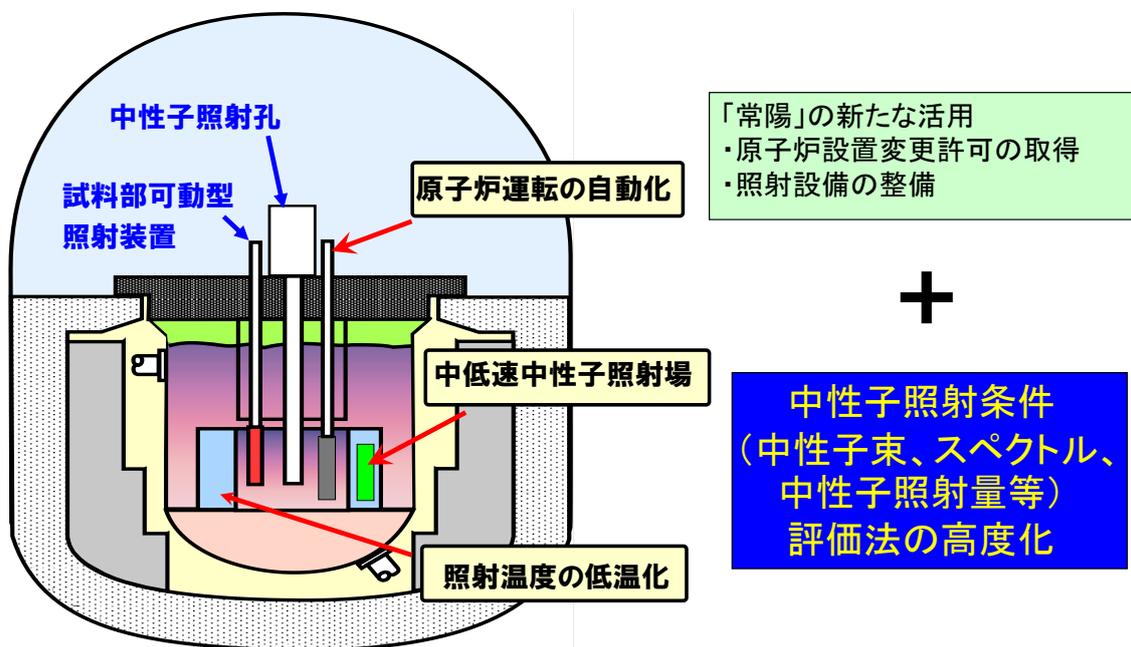


図 1-5 「常陽」の照射機能拡大方策と照射条件評価法の高度化

ここで、長期照射に対してドシメトリー技術を振り返ると、放射化箔法は、中性子反応生成物として放射性核種を用いるため、時間が経つにつれてその崩壊による減衰と中性子反応による生成がバランスし(飽和)、長期照射の積分情報を実測することが不可能である。主な放射化箔の反応生成核種と半減期は、 ^{46}Sc : 84d、 ^{54}Mn : 312d、 ^{59}Fe : 45d、 ^{58}Co : 71d、 ^{60}Co : 5.27y、 ^{182}Ta : 114d 等であり、飽和せずに積分情報を保有できる期間の限界を半減期の3倍程度とすると、 ^{60}Co で15年、その他は1年前後のオーダーまでしか積分照射量を測定できない。その他、核分裂箔は、長半減期の核分裂生成物を測定対象に選択することでこの問題は回避できるが(例えば、Fissile(n,f) ^{137}Cs (30.07y)等)、核分裂箔は、照射時間とともに、中性子捕獲反応で生成するマイナーアクチノイド Am、Cm 等からの核分裂生成物の寄与が無視できず、誤差が増大して長期間の中性照射量測定に対しては測定精度が低下する。

さらに、多重放射化箔法では、放射化箔の装荷・照射・取出し・放射線計測というプロセスが必要である。そのため、当然ながら、ドシメータが未装荷な既存炉における原子炉構造材の運転開始時からの積算中性子照射量評価は不可能である。また、サーベイランス試験や供用中の中間検査等ではその時点での照射量を測定したいが、先だって十分な数のドシメータを照射しておかない限り、安易にドシメータを取り出すことができない。また、取り出す場合の手間は前述のとおりである。さらには、高速炉では、燃料破損診断等、希ガスをを用いた計装を取り入れているが、これに関する中性子照射量の測定には、別途ドシメータを照射しなければならず、特に照射量を正確に把握しなければならない長期照射量の把握において、手間が増大することになる。

これらの現状に対して、既存の中性子照射量測定法、すなわち、放射化箔法によりある短時間内における平均中性子束を測定し、これを原子炉の運転履歴で積分する方法(すなわち、中性子束が実測されていない時間レンジへの外挿)による長期照射量の評価誤差の増大を抑制し、原子炉の運転期間である数十年オーダーの長期照射量において表 1-1 に示したような測定精度を確保し、原子力プラントの現場で実際に適用できる「技術」を提案していく必要がある。

これらの課題に対し、本研究では、図 1-6 に示すように、高速中性子ドシメトリーにおいて、測定時間を長期化し、手法を拡大(多様化)するための技術開発を提案・実施する。

赤太字 本論文における研究の範囲
 赤細字 本論文の付録にて基礎的な検討と予備実験を報告

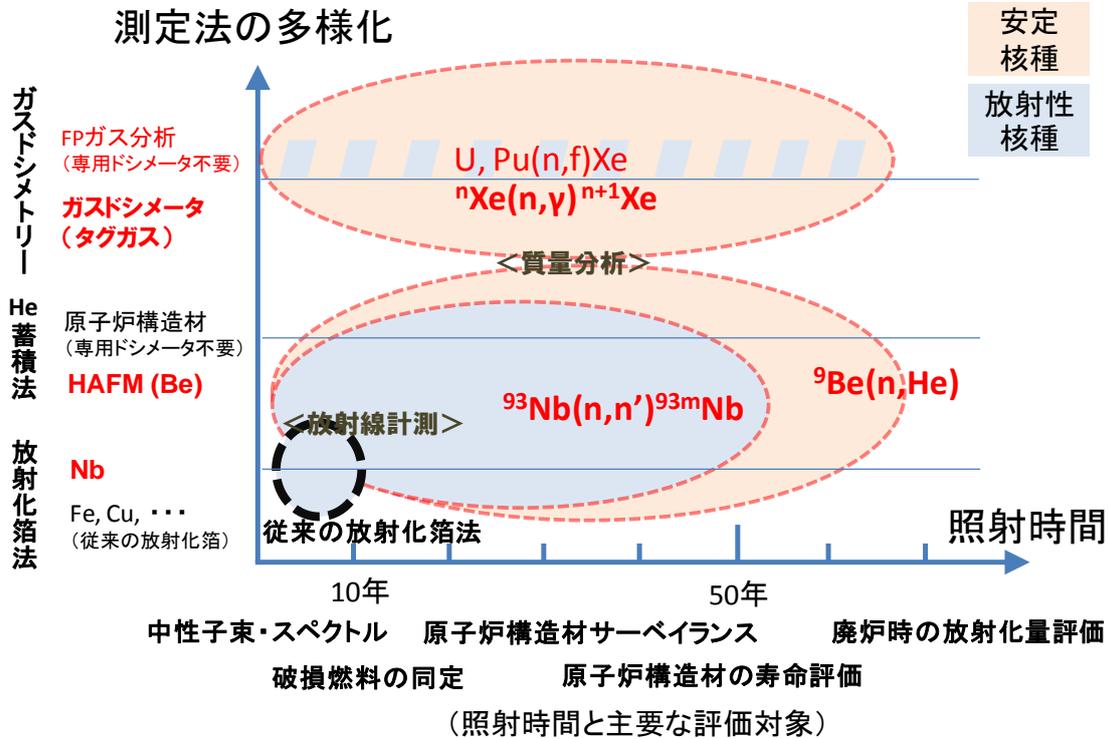


図 1-6 高速中性子ドシメトリーにおける測定対象範囲(時間、手法)の拡大

1.2.1 Nbドシメータの実用化

$^{93}\text{Nb}(n,n')^{93\text{m}}\text{Nb}$ 反応は、閾エネルギーが 30keV と比較的 low、長期照射における 0.1 MeV 以上の高速中性子照射量モニタとしてほぼ唯一満足できるドシメータであるが^[11]、断面積の精度が不十分であること、放射化量測定における軟 X 線スペクトロメトリーに課題があり、研究ベースに留まっている。しかしながら、 $^{93\text{m}}\text{Nb}$ が放出する 16.6 keV、18.6 keV の特性 X 線の定量分析における課題である自己吸収については、ドシメータを溶解して濾紙で回収または乾燥固化させることで回避し、Ta 不純物の放射化核種である ^{182}Ta (半減期 114 日)の γ 線による妨害が実用上の課題であり、ドシメータの高純度化を図るとともに、半減期の差を利用してその影響を低減させる等の工夫がなされているが、この影響を定量的に評価することが Nbドシメータの実用化に重要である。また、NbをAlとの合金とすることにより、Taの影響や箔の脆化を抑制する提案も

なされている^[12]。これらの測定技術の進捗に伴い、 $^{93}\text{Nb}(n,n')^{93\text{m}}\text{Nb}$ の積分テストも行われ、断面積データも整備されつつある^[13]。原子炉構造材からサンプルを切り出し、サンプル中の ^{93}Nb を誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) で合わせて定量することにより、専用の Nb ドシメータに頼らずレトロスペクティブドシメトリーが可能となる。

1.2.2 He 蓄積法の導入

He 生成反応を利用し、ドシメータ内 (金属試料内またはドシメータ素子が封入されたキャプセル内) に蓄積させた He の原子数を質量分析計で定量分析する手法で^[14]、このドシメータを He 蓄積型中性子フルーエンスモニタ (HAFM) という。米国パシフィックノースウェスト国立研究所 (PNNL) において開発され、熱中性子計測用の B、Li 素子が軽水炉の圧力容器サーベイランスに、Fe、Cu 等の金属試料が FFTF 等の高速中性子照射量の測定に用いられてきた。国内では、九州大学を筆頭に核融合中性子計測や核融合中性子による He 生成反応断面積の測定等に導入され^[15]、「常陽」では、照射試験用の中性子照射量モニタとして、低エネルギー用の B 素子の他、材料損傷等の指標の1つとして用いられる MeV オーダの高速中性子モニタとして Be を導入する。Be は、ASTM Standard でも提案はなされているものの、モニタとしての使用実績の報告はないが、核分裂スペクトルで 2 MeV くらいから感度を有し、断面積も Fe、Cu より 3 桁大きいという利点があり、感度範囲が数 MeV 以上で高エネルギー側に寄りすぎている Fe、Cu に換えて、核分裂炉における実効的な高速中性子照射量の測定に HAFM を適用しようというものである。

また、本手法は、サンプルを加熱溶解してサンプル中の He を放出させて定量分析するものであるため、材料開発やサーベイランス試験において、中性子照射量を経て最終的に評価したい項目の1つである He 生成量 (表 1-1 参照) をドシメータ (HAFM) 不要で直接測定できる。具体的には、評価対象の原子炉構造材料のサンプル照射を行うか、実機の原子炉構造材の一部を採取し、この試料中の He 原子数を測定する。原子炉鋼材中の He は、Ni の 2 段反応や Be → Li の 2 段反応等、複雑かつ多様な過程で生成し、かつ、B 等の不純物濃度にも依存し、精度良く計算することが困難である。He 蓄積法は、誤差要因となる計算を介さずに He 生成量を直接測定できる手法として、今後期待できる。

1.2.3 ガスドシメトリー

放射化箔や HAFM は固体ドシメータであり、装荷・取り出し・計測というステップを経る必要があるため迅速性に欠け、特に液体金属ナトリウム高速炉での実験は、ドシメータの装荷、取り出し手順は煩瑣である。ここに、気体をドシメータとして用いるアイデアがあり、狭隘部に装荷して照射でき、遠隔、オンライン等の利点を生ずることができて、放射線誘起したガスをキャビティリングダウン (CRD) レーザ分光により計測する手法が提案されている^[16]。

長期照射ドシメトリーの観点からは、元来、複数の試料を区別して同定するための Kr、Xe タグガス(試料ごとに同位体比を変え、タグガスの同位体分析により試料を特定する。)が中性子反応によりその組成比が変化することを利用する方法がある。Kr、Xe の放射化生成物には適当な長半減期核種が存在しないが、安定核種は複数存在するので、それらの同位体比を分析し、照射前の同位体比からの変化量を求めることにより、中性子照射量を見積もることが可能になる。「常陽」で燃料被覆管材料の炉内クリープ破断試験において、試料の破断により炉容器内に放出され、カバーガスに移行したタグガスの同位体比を分析する研究では、試料内にタグガスは数 cm^3 しか封入できず、カバーガス空間で 6 桁程度稀釈されるので、微量元素の同位体分析に適したレーザ共鳴イオン化質量分析法^[17-19]を用いることにより、この困難を解決できる可能性がある。

1.3 本研究の目的と論文の構成

本研究では、高速中性子ドシメトリーにおいて、現状の技術から測定時間を長期化し、さらに、手法を多様化するための技術を提案する。具体的には、放射化箔法の延長として、数十年間にわたる 0.1 MeV 以上の高速中性子照射量測定な Nb ドシメータを実用化させる。さらに、長期照射量の測定精度を低下させないための方策として、核変換生成物として安定核種を用いたドシメトリー法を提案する。まず、He 蓄積法を導入し、Be 素子を用いた高速中性子ドシメトリーを新しく試みる。さらに、ガスを用いたドシメトリーを考案し、複数の同位体を持つガスの組成が中性子照射により変化することに着目し、ドシメトリー法としての可能性を検討する。これらを通じて、数年～数十年オーダの長期間の中性子照射量を測定できる技術を提案し、その可能性を追究する

ことが本研究の目的である。

本論文は5章から構成されている。第1章では、高速炉の中性子ドシメトリーについて概説し、現状の技術レベルについて述べ、今後の展開における課題として、長期照射量の評価とリアルタイム・短時間計測を挙げた。その上で、本研究は、前者の課題に対して、中性子反応生成物として長半減期核種や安定核種を選定し、これらを計測することによる高速中性子の積算線量計測技術を提案し、本研究の目的と意義を述べた。

第2章では、半減期16.4年で数十年もの長期照射量測定に適し、 10^5 eV オーダの高速炉スペクトルの中性子計測に適する $^{93}\text{Nb}(n,n')$ 反応生成物である $^{93\text{m}}\text{Nb}$ による中性子照射量測定法の確立について述べる。本手法においては、不純物Taの放射化物(^{182}Ta :T1/2=114d)の γ 線で励起されることによる特性X線が測定を妨害し、先行研究では冷却期間において ^{182}Ta を減衰させたが、この妨害X線による影響の度合いを定量的に評価する手法を考案するとともに、ターゲットの ^{93}Nb をICP-MSで定量する方法を導入し、原子炉の余寿命評価に資する原子炉構造材料中の不純物Nbを用いたドシメトリー法の実用化の見通しを立てる。

第3章では、中性子によるHe生成反応((n,α) 反応等)で生成されるHeを蓄積し、照射後にHe数をカウントして中性子照射量を求めるHe蓄積法の開発について述べる。低エネルギー中子に感度を有するBドシメータを高速炉ドシメトリーに導入、実用化するとともに、高速中性子の評価用として初めてBeドシメータを選択し、「弥生」と「常陽」での実験により、その精度と適用性について議論する。

第4章では、ガスを用いたドシメトリー法を提案し、前章までの固体ドシメータ(装荷するスペースと装荷・取出し作業が必要)では測定が困難あるいは不可能な状況でのドシメトリー、さらにはリアルタイム・in-situ測定への可能性を拓く新手法について述べる。もんじゅの破損燃料位置検出法(FFDL)や常陽の照射試験で用いているタグガス(同位体比を人工的に調製したKr、Xe混合ガス)の組成(同位体比)が、中性子照射によって変化することにより着目し、その微小の同位体比の変化をレーザ共鳴イオン化質量分析法(RIMS)で検出することを試みる。

第5章では、結論として、本研究を通じて得られた成果、知見についてまとめ、今後の高速中性子環境診断の高度化の展開について述べる。

第 1 章の参考文献

- [1] T. Aoyama, C. Ito and S. Suzuki, “Current Status and Upgrading Activity of Reactor Material Dosimetry in the Experimental Fast Reactor “JOYO”,” Reactor Dosimetry, World Scientific (1998) 302 - 310
- [2] T. Aoyama, et al., “Characterization of neutron field in the experimental fast reactor JOYO for fuel and structural material irradiation test,” Nuclear Engineering and Design, **228** (2004) 21 - 34
- [3] S. Maeda, et al., “Charactrization of Neutron Fields in the Experimental Fast Reactor Joyo MK-III Core,” 13th International Symposium on Reactor Dosimetry, 25 - 30 May 2008, Akersloot, The Netherlands
- [4] Y. Ohkawachi, et al , “Core Management and Fast Neutron Field characterization of JOYO,” Preceedings of 2005 JAEA-KAERI Joint Seminar on Advanced Irradiation and PIE Technologies (2005) S2-3-1 - 14
- [5] W. A. Rhoades and R. L. Childs, “DORT Two-dimensional Discrete Ordinates Transport Code,” CCC-484 (1989)
- [6] W. A. Rhoades, D. B. Simpson, “The TORT Three-dimensional Discrete Ordinates Neutron/Photon Transport Code (TORT Version 3),” ORNL/TM-13221 (1997)
- [7] M. Nakazawa and A. Sekiguchi, “The Basic Reports of JI-Unfolding Code “NEUPAC”,” UTNL-R0096 (1981)
- [8] M. Hishida, et al., “Progress on the Plant Design Concept of Sodium-Cooled Fast Reactor,” Journal of Nuclear Science and Technology, **44**, [3] (2007) 303 - 308
- [9] T. Soga, et al., “Irradiation Test of Fuel Containing Minor Actinides in the Experimental Fast Reactor Joyo,” Journal of Power and Energy Systems, **2**, [2] (2008) 07-0578
- [10] S. Maeda, et al., “Enhancement of Irradiation Capability of the Experimental Fast Reactor Joyo,” 13th International Symposium on Reactor Dosimetry, 25 - 30 May 2008, Akersloot, The Netherlands
- [11] American Society for Testing and Materials, “2008 Annual Book of ASTM Standards,” **12.02** (1994) E1297-02

- [12] J. Wagemans, et al., "Reactor Dosimetry with Niobium," *Journal of ASTM International* (2006) JAI13439
- [13] 桜井淳, "JENDL ドシメトリー・ファイルに収納された $^{93}\text{Nb}(n,n')^{93\text{m}}\text{Nb}$ および $^{199}\text{Hg}(n,n')^{199\text{m}}\text{Hg}$ 反応の中性子断面積", *日本原子力学会誌*, **39**, [3], (1997) 231 - 236
- [14] American Society for Testing and Materials, 2008 Annual Book of ASTM Standards, **12.02** (2008) E910-07
- [15] Y. Takao and Y. Kanda, *Rev. Sci. Instrum.*, **67**, [1] (1996) 198
- [16] H. Tomita, et al., "Feasibility of Cavity Ring-down Laser Spectroscopy for Dose Rate Monitoring on Nuclear Reactor," 13th International Symposium on Reactor Dosimetry, 25 - 30 May 2008, Akersloot, The Netherlands
- [17] M. G. Payne, et al., "Applications of Resonance Ionization Spectroscopy in Atomic and Molecular Physics," *Adv. At. Mol. Phys.*, **17** (1981) 229-274
- [18] C. H. Chen, et al., "Isotopically Selective Counting of Atoms and Molecules Using Resonance Ionization Spectroscopy," *Oxford University Press* (1990) 3
- [19] M. G. Payne, et al, "Applications of Resonance Ionization Mass Spectrometry," *Rev. Sci. Instrum.*, **65** (1994) 2433 - 2459

第2章 Nbドシメータによる高速中性子照射量測定法の高度化

本章では、数十年くらいまでの長期間にわたる高速中性子照射量を測定できるポテンシャルを有しながら、実際の原子力施設の現場における原子炉サーベイランス等では、研究対象止まりであった Nbドシメータについて、その原因の一つである妨害 X 線の影響を定量的に評価する手法を考案し、これに加えて、Nbドシメータの測定に必要な化学処理を含めた実験手順と誤差の評価法を確立し、Nbドシメータによる高速中性子照射量測定法の実用化を目指す。

2.1 Nbドシメータによる高速中性子照射量測定^[1,2]

高速中性子に感度を有する Nbドシメータ^[3]は、 ^{93}Nb の非弾性散乱反応 ($^{93}\text{Nb}(n,n')^{93\text{m}}\text{Nb}$) のしきい値が 30.73 keV と比較的 low、その断面積は図 2-1 に示すとおりで^[4]、そのエネルギー分布が鉄の弾き出し損傷関数^[5]に類似しており、0.1 MeV 以上の高速中性子照射量や鉄の dpa 評価に適している。また、この反応の生成核種である $^{93\text{m}}\text{Nb}$ は半減期が 16.4 年と長く、長期積算型モニタになる。

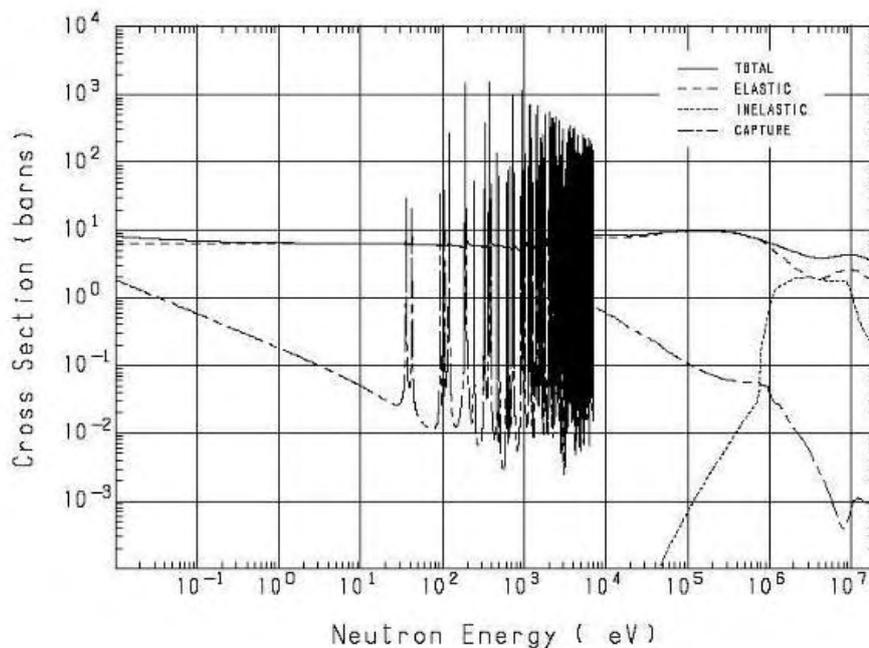


図 2-1 ^{93}Nb の中性子反応断面積

さらに、測定専用の試料(ドシメータ)を用いずに、原子炉容器等の構造材中に含まれる不純物としての Nb の放射化量を測定することにより、原子炉運転開始以降の中性子照射履歴を包含するデータが得られ、原子炉の寿命評価や廃止措置時の放射性廃棄物量評価の精度を飛躍的に向上できる貴重な情報となる。

一方、 ^{93m}Nb の反応率測定には、 ^{93m}Nb が放出する特性 X 線を測定する必要があるが、そのエネルギーが 16.6 keV、18.6 keV と低いため、ワイヤや箔の形状のままではその厚みによる自己吸収効果が大きく、測定精度が低下する。また、Nb には主要な不純物として Ta を含み、その放射化物から放出される γ 線が ^{93}Nb を励起して特性 X 線を放出するが、 ^{93m}Nb が放出するそれと分離できない。

さらに、原子炉構造材中の不純物 Nb の放射化量測定では、ドシメータとは異なり、標的核種である ^{93}Nb の量が不明であるため、 ^{93m}Nb に加えて ^{93}Nb の測定(具体的には、 $^{93m}\text{Nb}/^{93}\text{Nb}$ の測定)を行わなければならない。

そこで、本研究では、照射済の Nb ドシメータを溶解し、乾燥固化処理するとともに、誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS)で ^{93}Nb を定量する手法を確立し、その手法を高速実験炉「常陽」の様々な中性子照射場の $^{93}\text{Nb}(n,n')^{93m}\text{Nb}$ 反応率測定に適用し、その精度を評価した。その上で、Ta の影響の排除に関して、Ta の放射化物による影響を定量的に評価し、半減期の差を利用して Ta の放射化物を減衰させる従来手法で不明確であった、「どれだけの期間をおいて冷却(減衰)させればよいのか」について、定量的な回答法を示し、原子炉プラント等の現場における Nb ドシメータの現実的な実用化を目指した。

2.2 ^{93}Nb の反応率測定^[2]

ここでは、反応生成物である ^{93m}Nb とターゲット核種である ^{93}Nb を定量し、その結果から反応率とその誤差を評価するまでの手順を構築する。

2.2.1 ^{93m}Nb の放射化量測定

Nb の反応率測定では、非弾性散乱反応で生成する ^{93m}Nb が基底状態に遷移するときに放出される特性 X 線の強度を測定する。この特性 X 線のエネルギーは 16.6 keV、

18.6 keV と低いため、ワイヤや箔状のまま測定すると自己吸収の影響が大きく、測定精度が大幅に低下する。そのため、Nb ドシメータを酸で溶解し、さらに乾燥固化させて自己吸収の影響を無視できるレベルまで低減させてから、特性 X 線のピーク強度を測定し、放射化量を求めた。

この放射化量測定フローを図 2-2 に、測定手順の詳細を以下に示す。

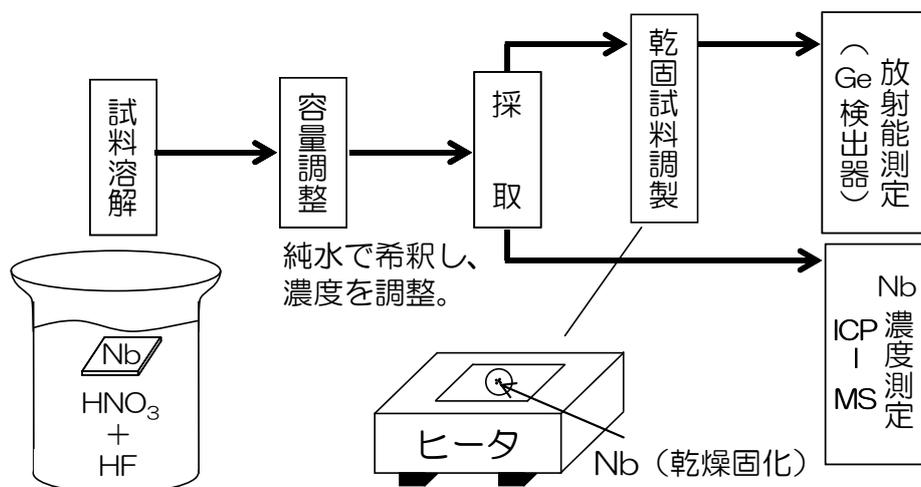


図 2-2 ^{93}Nb の放射化量測定フロー

① 試料の溶解

照射済のワイヤ又は箔状の Nb ドシメータを硝酸とフッ酸の混合溶液で溶解し、これを純水で希釈して $^{93\text{m}}\text{Nb}$ の溶液試料を作製する。精密天秤により溶液の重量を測定する。

② 乾燥固化試料の作製

作製した溶液から 10^{-1} ml 程度を分取する。分取量は、分取時に精密天秤でその重量を測定することにより求める。、分取した溶液をプラスチックフィルムの上に滴下させ、ホットプレートで弱く加熱して乾燥させ、固化試料を作製する。

③ 特性 X 線スペクトル測定

高純度 Ge 半導体検出器を用いて特性 X 線を測定し、得られたスペクトルから ^{93m}Nb が放出する 16.6 keV、18.6 keV の X 線のピーク強度を求める。X 線のスペクトル測定例を図 3 に示す。ピーク強度は、得られたスペクトルのピーク面積としてカウントし、バックグラウンド部分は、ピークをガウス分布(両裾のテイリングの広がりを考慮した補正項を付加したもの)に当てはめてピークの両裾の位置を決定し、ピーク下部のバックグラウンドを直線で仮定し、これを差し引く。得られたピーク強度から、検出器の検出効率、特性 X 線の放出率、溶液重量及び固化試料作成時の分取量を用いて放射能強度を算出し、冷却時間による減衰分を補正して照射終了時の ^{93m}Nb 量を求める。高純度 Ge 半導体検出器の校正については、 ^{93m}Nb の標準溶液からドシメータの場合と同様の手順で乾燥固化試料を作製して測定し、校正値(検出効率)を求めておく。

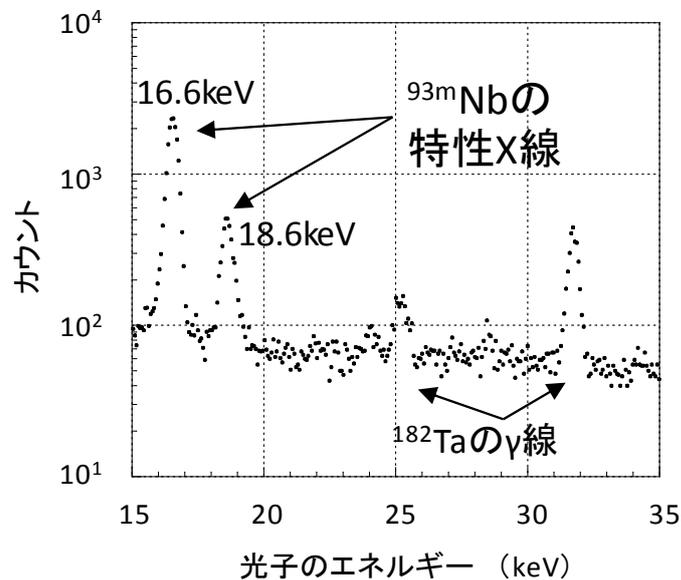


図 2-3 照射済 ^{93m}Nb の光子スペクトル測定結果

表 2-1 ^{93m}Nb の放射化量測定誤差

誤差の種類	誤差要因		誤差(1 σ %)			
統計誤差	放射線計測の誤差	16.6 keV	0.20 ①	0.18 ③	1.08 ⑤	1.93 ⑦
		18.6 keV	0.45 ②			
	Nb 溶液の採取誤差		1.06 ④			
系統誤差	Nb 標準溶液の放射能強度の誤差		1.60 ⑥			

^{93m}Nb の測定に係る誤差の評価結果を表 2-1 に示す。この誤差は、放射線計測の誤差と Nb ドシメータ試料作製に伴う誤差(Nb 溶液の分取時の誤差)に分けられる。放射線計測の誤差については、特性 X 線の自己吸収の影響が生じないように留意しながら、放射線計測の統計誤差が十分小さくなるように、ドシメータの重量、分取量、計測時間を適切に組み合わせ、デイリーの実験で測定可能な 2 万秒以下の測定時間で数万～十萬カウントの X 線ピークを得た。表 2-1 の放射線計測の統計誤差①、②一例ではあるが、前述の調整により概ね 0.5% 以下で測定可能である。16.6 keV と 18.6 keV の量ピークから得られた測定値を誤差の重みを付けて平均することにより、その統計誤差を低減することができる(表 2-1 中③)。

Nb 溶液の採取誤差を評価するため、Nb 標準溶液を用いて乾燥固化させた試料を多数作成し、それぞれ高純度 Ge 半導体検出器で X 線のピーク強度を測定した。これにより得られた測定値のバラツキは、Nb 溶液の採取誤差と放射線計測の統計誤差の和と考えられるので、このバラツキから前述の放射線計測の統計誤差を差し引き(誤差の自乗の差の平方根)、Nb 溶液の採取誤差を求め、1.06 % を得た(表 2-1 中④)

以上が統計誤差であり、その合計(自乗和の平方根)は 1.08 % となった(表 2-11 中⑤)。

系統誤差としては、検出効率の評価において、ソースとなる標準溶液線源の線源強度の誤差(不確かさ)があり、製造元の AEA Technology 社の検定書に記載された線源強度の誤差 1.60 % を採用した(表 2-1 中⑥)。

統計誤差と系統誤差の両者を合計して、 ^{93m}Nb 放射化量の測定誤差は 1/9 % と評価した(表 2-1 中⑦)。

2.2.2 ^{93}Nb の原子数測定

特性 X 線スペクトル測定のために溶液試料を作製することを利用し、ICP-MS でこの溶液試料中の ^{93}Nb 濃度を測定して定量した。ICP-MS の校正は、Nb 標準溶液から実際にドシメータを溶解する場合の濃度範囲の溶液を作製して、ICP-MS でそのイオン強度を測定し、Nb 濃度との関係を求めることにより行った。質量スペクトルの例を図 2-4 に示す。得られた溶液試料中の Nb 濃度と溶液試料の重量から、 ^{93}Nb を定量した。

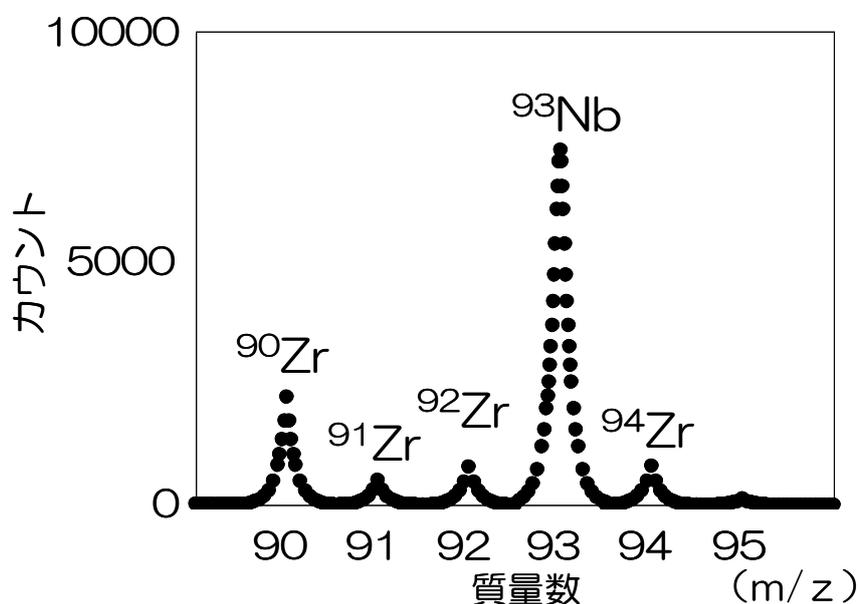


図 2-4 ^{93}Nb の質量スペクトル測定結果

表 2-2 ^{93}Nb 原子数の測定誤差

誤差の種類	誤差要因	誤差(1σ%)		
		0.38 ①	1.23 ③	1.50 ⑤
統計誤差	ICP-MS による濃度測定 of 誤差	0.38 ①	1.23 ③	
	Nb 溶液の採取誤差	1.17 ②		
系統誤差	Nb 標準溶液の重量誤差	0.86 ④		

^{93}Nb 測定に係る誤差の評価結果を表 2-2 に示す。重量測定に係る誤差についても、放射化量測定に係る誤差と同様に、統計誤差と系統誤差に分けて評価した。

まず、統計誤差は、ICP-MS による測定値のバラツキと測定に供される Nb 溶液の採取に係る誤差があり、放射化量測定と同様の手順で誤差を求めた結果、統計誤差は 0.38 % (表 2-2 中①)、Nb 溶液の採取誤差は 1.17 % (表 2-2 中②) で、合わせて 1.23 % (表 2-2 中③) と評価された。ここで、ICP-MS での測定による統計誤差は、放射線計測と同様に、数万カウント以上を計数できるように採取量と測定時間を調製しており、手法として実現可能な値である。

次に、Nb ドシメータを溶解し溶液濃度の調製範囲である 10 ppb ~ 30 ppb の範囲で濃度を変えた数点の標準溶液試料を作製して Nb 濃度を測定し、測定値を最小自乗フィッティングしてこの範囲の校正曲線を作成した。フィッティング式からの測定値のバラツキは 0.86 % (1σ) であり、これを Nb 標準試料の重量誤差(校正の誤差、表 2-2 中④) とした。

これら両者の誤差の自乗和平均により、 ^{93}Nb 測定に係る誤差を 1.5 % と評価した(表 2-2 中⑤)。

2.2.3 $^{93}\text{Nb}(n,n')^{93m}\text{Nb}$ 反応率測定値の算出

前述で得られた ^{93m}Nb 量を ^{93}Nb 量で除して放射化量を求め、原子炉運転履歴データを用いて、 ^{93}Nb 1 原子あたりの $^{93}\text{Nb}(n,n')^{93m}\text{Nb}$ 反応率を算出した。反応率の誤差については、高純度 Ge 半導体検出器システムによる放射能測定に係る誤差と ICP-MS による重量測定に係る誤差に分けて評価結果を足し合わせ、保守的に統計的な誤差以外は単純加算しても、反応率の測定誤差は 4 % となった。これより、化学的な前処理が必要な Nb ドシメータにおいても、その反応率を、放射化箔の 3 ~ 4 % 並みの高精度で測定できることを示した。

2.3 妨害 X 線の定量的な評価法の検討^[2,6]

Nb は、その主要鉱物であるタンタル石、コロンブ石中に Ta と共存しており、Nb 精製後も Ta が不純物として残留しやすい。なお、「常陽」のドシメトリ試験に用いている

Reactor Experiments 社の高純度 Nb 箔の Ta 不純物濃度は 500 wt ppm である。 ^{181}Ta は、 $1/v$ 型の中性子捕獲反応断面積を有し、低エネルギー中性子の寄与が大きい照射場のドシメトリーにおいては、この反応生成物である ^{182}Ta が $^{93\text{m}}\text{Nb}$ の特性 X 線測定を妨害する。具体的には、 ^{182}Ta が放出する γ 線により ^{93}Nb が励起され、16.6 keV と 18.6 keV の特性 X 線を放出し、 $^{93\text{m}}\text{Nb}$ が放出する特性 X 線に加算される。

まず、 ^{182}Ta に起因する妨害 X 線の影響を確認するための実験を行った。ここでは、 ^{182}Ta が多量に含まれる試料として、「常陽」の軟スペクトル場である原子炉安全容器サーベイランス孔で照射した Nb ドシメータを用いた。このドシメータを前述の手順で溶解・乾燥固化処理して特性 X 線を測定し、他方、この Nb ドシメータの溶液に未照射の ^{93}Nb を添加することを新たに試み、これを乾燥固化処理して測定した。これらの結果を図 2-5 に示す。特性 X 線のピーク強度の増加が確認でき、 ^{182}Ta が ^{93}Nb を励起したものであることがわかる。

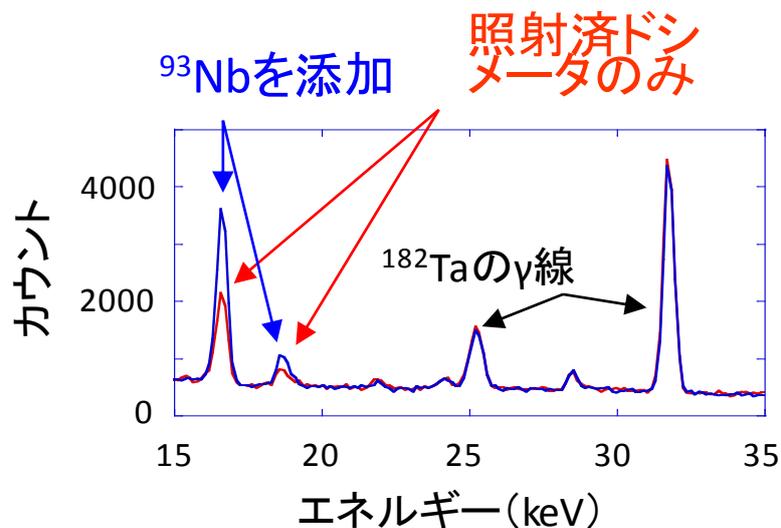


図 2-5 ^{182}Ta による妨害 X 線の影響

^{182}Ta の半減期は 114 日であり、 $^{93\text{m}}\text{Nb}$ の 16.4 年と比べて大幅に短いので、適切な冷却期間を置いて ^{182}Ta を減衰させてから $^{93\text{m}}\text{Nb}$ を測定する必要がある。 $^{93\text{m}}\text{Nb}$ の重量が同一になるように作製した照射済 Nb のみの試料と未照射 Nb を添加した試料の X

線ピーク強度の差は、 ^{182}Ta が ^{93}Nb を励起したものによる差なので、両試料のピーク強度を定期的にモニタする。 ^{182}Ta による ^{93}Nb の励起の影響が無視できるレベルまで ^{182}Ta が減衰すれば、両試料の特性 X 線強度は一致し、 $^{93\text{m}}\text{Nb}$ から放出された特性 X 線によるもののみと見なすことができる。

さらに、 ^{182}Ta に起因する特性 X 線の強度を計算し、これを差し引くことにより、 ^{182}Ta に起因する特性 X 線が残留している状態でも、 $^{93\text{m}}\text{Nb}$ から放出される特性 X 線のみの強度を求めることが可能になることを見出した。図 2-6 に示すように、前述の実験を定量的に行うと、 ^{93}Nb 重量をパラメタとした特性 X 線強度データが取得できるので、 ^{93}Nb 重量を変えた複数のデータから、 ^{93}Nb が 0、すなわち ^{182}Ta の影響が生じない (^{182}Ta が放出する γ 線が励起させる対象である ^{93}Nb が存在しない) 条件での特性 X 線強度を外挿することができる新たな結果が得られた。これより、妨害 X 線の影響が無視できるレベル (例えば 1% 未満等) まで ^{182}Ta が減衰するまでの時間も評価できる。

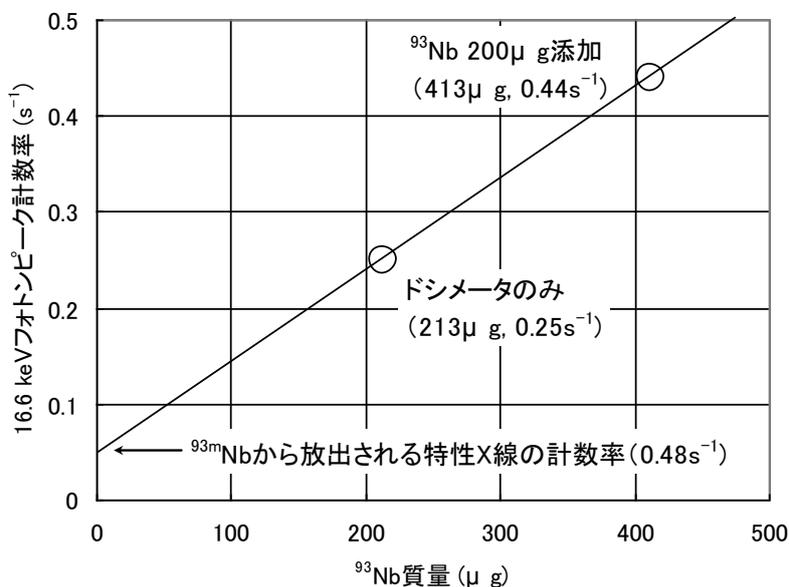


図 2-6 $^{93\text{m}}\text{Nb}$ からの特性 X 線強度の外挿

2.4 実証実験^[2]

「常陽」の中性子照射場で Nb ドシメータを照射し、反応率を測定して 0.1 MeV 以上の高速中性子照射量を求め、高速炉ドシメトリへの適用性を評価した。

本照射試験では、Reactor Experiments 社製の高純度 Nb 箔(厚さ 2.5 μ m、純度 99.9 %、Ta 不純物含有量 500 ppm)を用い、数 mm 四方の寸法に調製した。この Nb ドシメータを、図 2-7、図 2-8 に示すように、炉中心の軸方向炉中心レベル及び燃料領域上端部、燃料領域部の外周にある反射体領域、さらのその外側に位置する炉内燃料貯蔵ラックに装荷して、定格出力換算で 117 日間照射した。

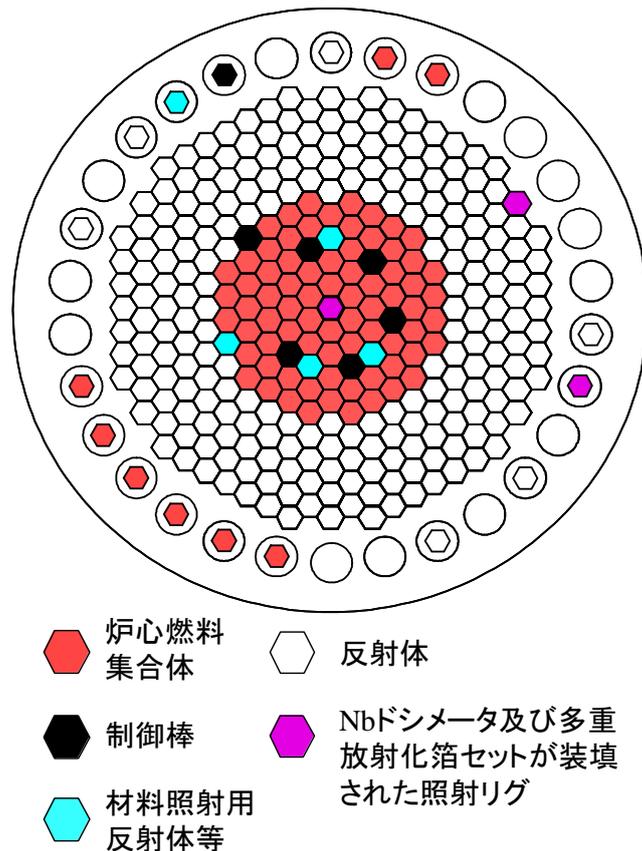


図 2-7 Nbドシメータ及び多重放射化箔セットの照射位置(炉心構成図)

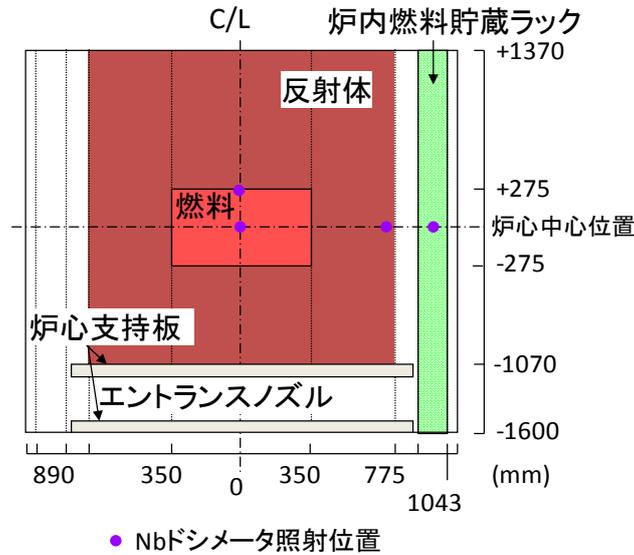


図 2-8 Nbドシメータ及び多重放射化箔セットの照射位置(断面図)

照射位置における中性子照射量等の照射条件は、Nb ドシメータと同時に照射した放射化箔を用いて、従来から「常陽」で実施している放射化箔法^[7]により評価した。放射化箔は、「常陽」の照射試験で標準的に使用しているドシメータセットを用いた。本試験に用いた箔の反応形式は、 $^{63}\text{Cu}(n,\alpha)$ 、 $^{46}\text{Ti}(n,p)$ 、 $^{54}\text{Fe}(n,p)$ 、 $^{58}\text{Ni}(n,p)$ 、 $^{237}\text{Np}(n,f)$ 、 $^{235}\text{U}(n,f)$ 、 $^{58}\text{Fe}(n,\gamma)$ 及び $^{45}\text{Sc}(n,\gamma)$ であり、高速炉内の中性子の主要なエネルギー範囲をカバーするように選定している。

ドシメータの照射から中性子照射量を算出するまでの流れを図 2-9 に示す。照射後、炉内から取り出したドシメータの放射化量を高純度 Ge 半導体検出器で測定し、これと原子炉運転履歴データから反応率を測定した。この反応率測定値と断面積セットを用い、2次元輸送計算コード DORT^[8]から求めた計算スペクトルを初期推定値として、中性子スペクトル解析コード NEUPAC-Jlog^[9]によりアジャストし、中性子スペクトルの最適解を求めた。断面積セットには、評価済み核データライブラリ JENDL-3.2^[10]ベースのドシメトリファイル JEND L/D-99^[11]から作成した共分散誤差付きの 103 群(上限エネルギー 20MeV、下限エネルギー 0.001 eV)断面積セットを用いた。

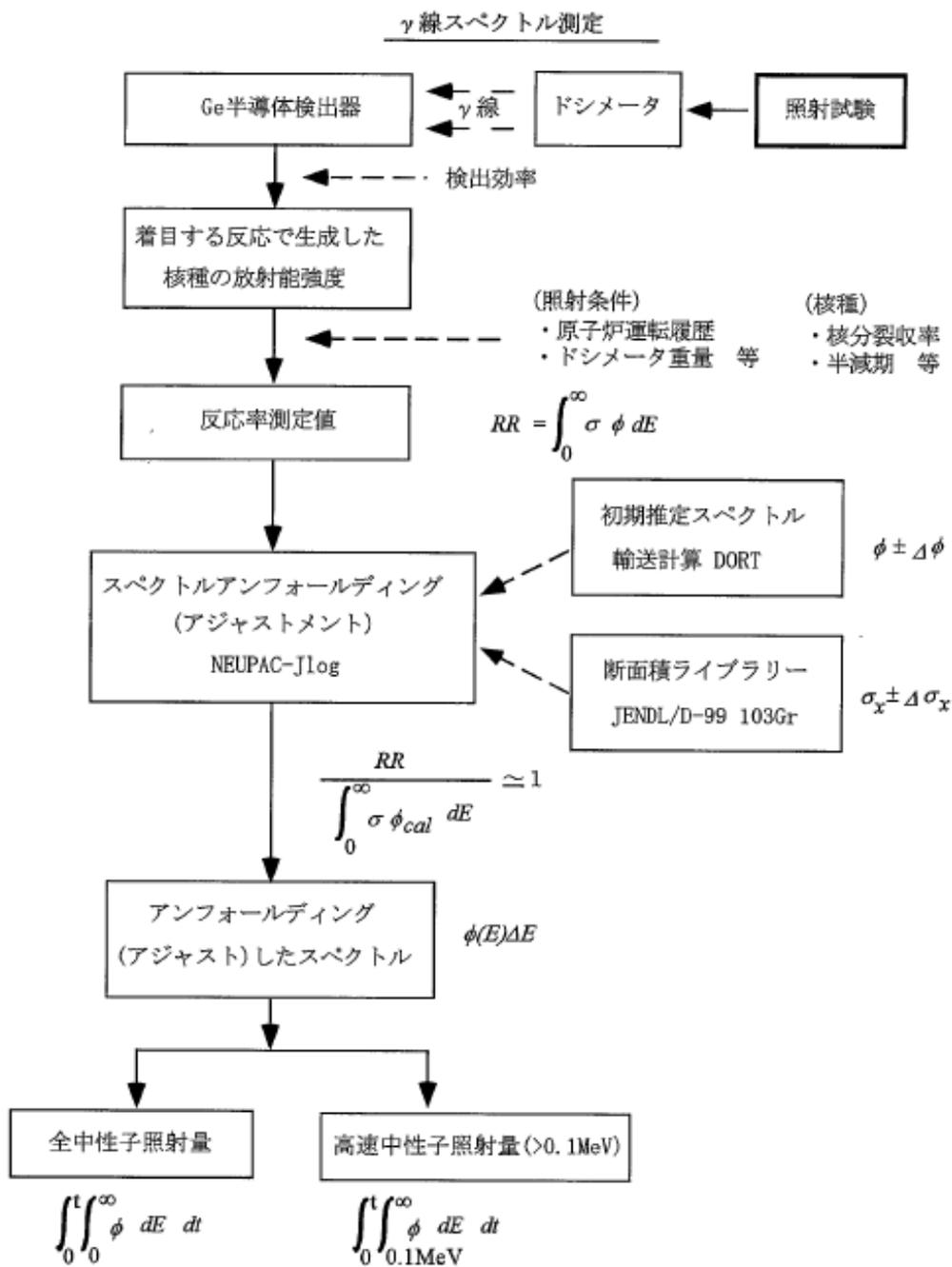


図 2-9 多重放射化箔法による中性子照射量解析フロー

得られた中性子スペクトルと照射した Nb ドシメータの 90 % 感度範囲を図 2-10 に示す。Nb ドシメータの感度範囲はスペクトルの形状に応じて若干異なるが、1 MeV 前後に感度を有する結果となった。得られた中性子束を「常陽」の運転履歴に基づいた定格出力換算の運転日数で積分して中性子照射量を求めた。

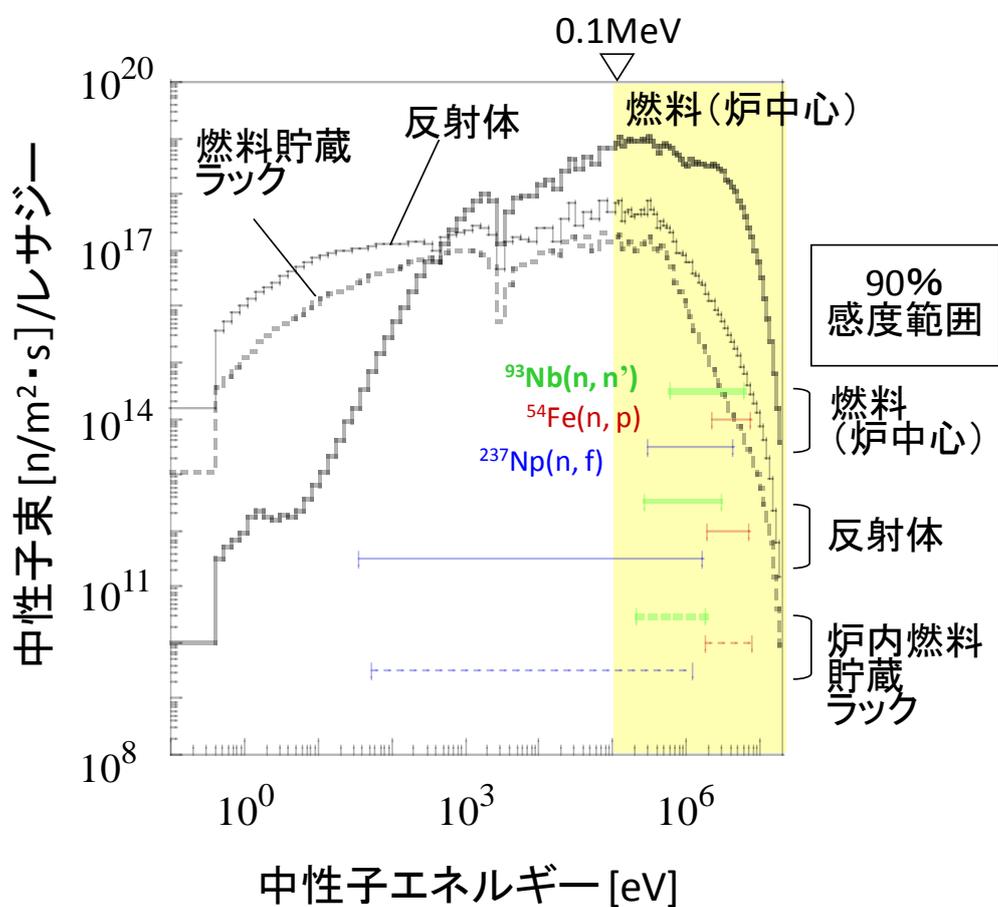


図 2-10 Nb ドシメータ照射位置の中性子スペクトルと Nb の 90 % 感度範囲

照射終了後、Nb ドシメータを取り出し、 ^{182}Ta の影響が除去されたことを確認して、 $^{93}\text{Nb}(n,n')^{93m}\text{Nb}$ 反応率を測定した。得られた反応率測定値を Nb ドシメータ照射位置の中性子スペクトルで縮約した平均断面積で除し、積算照射時間を乗じて高速中性子照射量を求めた。平均断面積の算出には多重放射化箔法で得た中性子スペクトルを用い、これと JENDL/D-99 から作成した 103 群構造の $^{93}\text{Nb}(n,n')^{93m}\text{Nb}$ 断面積を乗じ、多重放射化箔法で得た中性子スペクトルを 0.1 MeV 以上エネルギー範囲で積分して求めた高速中性子束で除した。得られた平均断面積により、Nb ドシメータを用いた 0.1 MeV 以上の高速中性子照射量を算出した。

得られた 0.1 MeV 以上の高速中性子照射量は、 $2.09 \times 10^{24} \text{ n/m}^2 \sim 2.35 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ であった。これらを多重放射化箔法による評価値と比較して表 2-3 及び図 2-11 に示す。炉中心から炉心構成要素外周の燃料貯蔵ラックまでの広範な照射場にわたり、測定誤差(反応率の測定誤差と、反応率から中性子照射量を求めるために必要な反応断面積の誤差)は、表 2-3 に示すように 4.5 % ~ 9.1 % であった。両者の比は 0.97 ~ 1.03 であった。これは、それぞれの測定誤差より小さい 3 % 以内で一致し、Nb ドシメータによる高速中性子照射量測定法の妥当性が確認できた。

表 2-3 中性子照射量測定結果

照射位置	高速中性子照射量 (n/m^2)				①/②
	①Nb ドシメータ		②多重放射化箔法		
	$\Phi_{>0.1\text{MeV}}$	誤差(1 σ %)	$\Phi_{>0.1\text{MeV}}$	誤差(1 σ %)	
燃料 (炉中心)	2.35×10^{26}	4.45	2.28×10^{26}	8.34	1.03
燃料 (上端部)	1.17×10^{26}	4.46	1.16×10^{26}	9.07	1.01
反射体	9.81×10^{24}	7.75	9.50×10^{24}	13.3	1.03
炉内燃料貯蔵ラック	2.09×10^{24}	9.07	2.15×10^{24}	14.9	0.97

注) Nb ドシメータの誤差の内訳は、反応率の測定誤差と反応率から中性子照射量を求めるために必要な反応断面積の誤差である。一方、多重放射化箔法の誤差は、複数の放射化箔の反応率測定誤差、初期推定中性子スペクトルと断面積の誤差(各群の自己分散と群間の共分散)を与えて NEUPAC-Jlog でアジャストした中性子スペクトルの評価誤差を積分したものである。

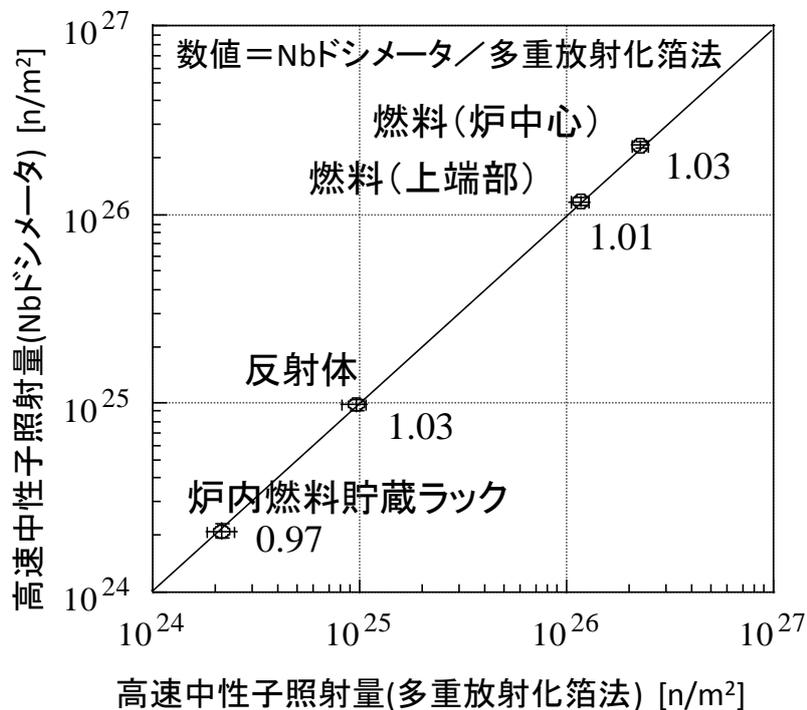


図 2-11 高速中性子照射量(>1 MeV)測定結果

Nb ドシメータにより測定した高速中性子照射量測定値の誤差は、反応率測定値及び平均断面積のそれぞれの誤差からなる。反応率の誤差は前述に示したとおりである。また、平均断面積の誤差は、断面積の各群の誤差を縮約に用いた中性子スペクトルの重みで平均した。これらの誤差の内訳を表 2-4 に示す。照射時間の誤差は照射位置に関わらず同一であり、反応率の測定誤差は、いずれの照射位置においても Ge 半導体検出器による特性 X 線測定や ICP-MS による Nb 濃度測定で十分な計数率を得ているため、照射位置によらず測定誤差は大きく変わらない。

一方、平均断面積の誤差は照射位置による差が生じ、反射体領域や燃料貯蔵ラック位置で誤差の低下が見られた。これは、照射位置により中性子スペクトルが異なり、これに応じて Nb の感度領域も若干異なるためである。反射体領域や炉内燃料貯蔵ラック位置では、燃料領域と比較すると中性子スペクトルが相対的に軟化して感度範囲が低エネルギー側にシフトし、 $^{93}\text{Nb}(n,n')^{93\text{m}}\text{Nb}$ 反応断面積がしきいエネルギーから立ち上

がり勾配が大きい領域をほとんどが占める(図 2-1 及び図 2-4 参照)。この勾配の大きい領域の誤差は大きく(使用した 103 群断面積の各群の自己分散誤差は、1.5 MeV ~ 8 MeV では約数%だが、1 MeV 以下では 30 %以上である。)、平均断面積の誤差が大きくなると考えられる。

表 2-4 Nb ドシメータによる高速中性子照射量測定値の誤差の内訳

照射位置	Nb ドシメータによる高速中性子照射量の測定誤差 (1 σ %)				多重放射化 箔法の誤差 (1 σ %)
	種類	反応率	断面積	合計	
燃料 (炉中心)	統計	1.64	—	4.50	8.34
	系統	1.81	2.21		
燃料 (上端部)	統計	1.71	—	4.64	9.07
	系統	1.81	2.30		
反射体	統計	1.84	—	8.52	13.3
	系統	1.81	6.43		
炉内燃料 貯蔵ラック	統計	1.67	—	10.1	14.9
	系統	1.81	8.21		

注) 多重放射化箔法の誤差は、複数の放射化箔の反応率測定誤差、初期推定中性子スペクトルと断面積の誤差(各群の自己分散と群間の共分散)を与えて NEUPAC-Jlog でアジャストした中性子スペクトルの評価誤差を積分したものである。

2.5 第 2 章のまとめ

高速炉の高速中性子照射量の測定に用いる Nb ドシメータの反応率測定手法を確立し、「常陽」の照射試験に適用した。Nb ドシメータの反応率測定については、ドシメータを溶解・乾燥固化処理することにより、低エネルギーの特性 X 線を高精度で測定するとともに、ICP-MS でその重量を精度良く求め、反応率測定値を得た。この手法を「常陽」のドシメトリーに適用し、反応率を測定して 0.1 MeV 以上の高速中性子照射量を求め、多重放射化箔法による中性子スペクトルから求めた高速中性子照射量と比較し、両者の測定誤差の範囲で一致した。これらより、Nb ドシメータによる高速中性子照

射量測定法の信頼性が確認でき、高速中性子が支配的な高速炉の燃料領域では高速照射量 ($E > 0.1 \text{ MeV}$) を誤差 5 % 以内の高精度で測定できることを確認した。

今後の課題であるが、さらに軟スペクトル場で照射した ^{93}Nb ドシメータを測定した結果、 ^{182}Ta の影響が除去されたと評価できるまで冷却時間を置いても、特性 X 線強度は本来想定される値より過大となる実験結果が得られている。これは、 $^{93}\text{Nb}(n,\gamma)^{94}\text{Nb}$ 反応で生成される ^{94}Nb (半減期 2.03×10^4 年、主な γ 線は、703 keV (97.9 %)、871 keV (99.9%)) の影響の可能性がある。 ^{182}Ta の影響と同様に評価を進めていくが、 ^{94}Nb の半減期が $^{93\text{m}}\text{Nb}$ のそれよりも長いため、減衰待ちの手段が取れず、 ^{94}Nb の影響が存在する場合、 $^{93\text{m}}\text{Nb}$ の測定のためには、 $^{93\text{m}}\text{Nb}$ と ^{93}Nb を積極的に分離していく必要がある。これについては、 ^{93}Nb の超微細構造が研究され^[12]、さらに、それを利用したレーザー共鳴イオン化分光による核異性体分離も提唱されており^[13]、狭帯域半導体レーザーの大出力化と発信波長域拡大が進んでいる現状を勘案すると、本手法を工学的に実証できる可能性が考えられ、Nb ドシメトリ手法の高度化研究として検討していく。

第 2 章の参考文献

- [1] T. Aoyama, C. Ito and S. Suzuki, “Current Status and Upgrading Activity of Reactor Material Dosimetry in the Experimental Fast Reactor “JOYO”,” *Reactor Dosimetry*, World Scientific (1998) 302 - 310
- [2] C. Ito, S. Maeda, S. Sekine and T. Aoyama, “Improvement of Measurement Technique of Niobium Reaction Rate for Fast Reactor Dosimetry,” 13th International Symposium on Reactor Dosimetry, 25 - 30 May 2008, Akersloot, The Netherlands
- [3] American Society for Testing and Materials, “2008 Annual Book of ASTM Standards,” **12.02** (1994) E1297-02
- [4] K. Shibata, et. al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, **39** (2002) 1125
- [5] American Society for Testing and Materials, “2008 Annual Book of ASTM Standards,” **12.02** (1994) E693-01
- [6] 伊藤主税, 助川一弥, 吉川和伸, “Nb ドシメータの放射化量測定方法”, 特許第 3845638 号, 2004 年 3 月 8 日出願, 2006 年 8 月 25 日登録

- [7] T. Aoyama, et al., “Characterization of neutron field in the experimental fast reactor JOYO for fuel and structural material irradiation test,” *Nuclear Engineering and Design*, **228** (2004) 21 - 34
- [8] W. A. Rhoades and R.L.Childs: “DORT Two-dimensional Discrete Ordinates Transport Code,” CCC-484 (1989)
- [9] M. Nakazawa and A. Sekiguchi, “The Basic Reports of JI-Unfolding Code “NEUPAC”,” UNTL-R0096 (1981)
- [10] T. Nakagawa et al., “Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version-3 Revision-2: JENDL-3.2,” *Journal of Nuclear Science and Technology*, **32** (1995) 1259
- [11] K. Kobayashi, et al., “JENDL Dosimetry File 99 (JENDL/D-99),” JAERI1344 (2002)
- [12] S. Kröger, et al., “Fine and Hyperfine Structure in the Atomic Spectrum of Niobium,” *The European Physical Journal D* (2006) DOI: 10.1140/epjd/e2006-00207-y
- [13] H. M. Lauranto, “Numerical Studies of the Isomer Selectivity of Two- and Three-step Resonance Ionization of Niobium,” *Applied Physics B*, **66** (1998) 231 - 239

第3章 He 蓄積型中性子照射量モニタの開発

本章では、放射線計測を用いる従来の放射化箔法から離れ、中性子反応生成物として、安定核種である He を選定し、中性子反応で生成した He を蓄積して質量分析によりその生成量を測定する He 蓄積法を用いた高速中性子照射量の測定法を開発する。

3.1 He 蓄積法^[1-4]

原子炉における燃料、材料等の照射試験や炉心周りのサーベイランス試験では、中性子照射量を精度良く評価することが重要であり、また、構造材料等の照射試験においては、材料の照射脆化の一因である材料中の He 生成量を精度良く評価することも必要である。これらを背景に、高速中性子照射環境診断技術の高度化を目的として、He 蓄積型中性子照射量モニタ (Helium Accumulation Fluence Monitor: HAFM) による高速中性子測定法を開発した。

He 蓄積法の概念を図 3-1 に示す。本手法は、 (n,α) 反応等で生成する He 原子数を質量分析により測定することで中性子照射量を求める手法であり、先行研究においては、軽水炉の圧力容器サーベイランス^[5]や中性子反応による He 生成断面積測定^[6]が行われてきた。

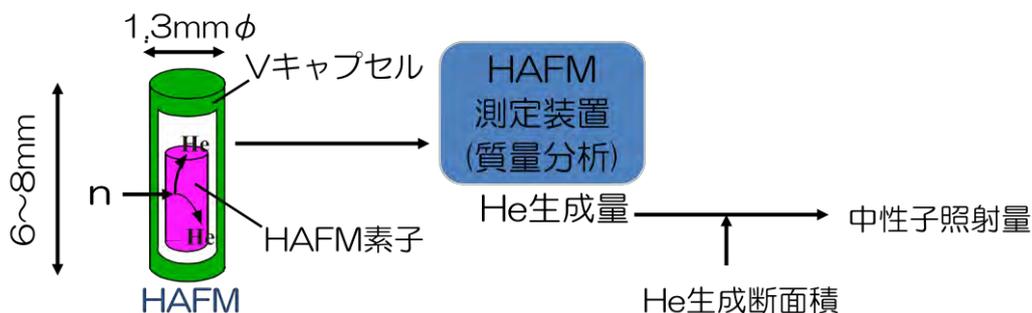


図 3-1 He 蓄積法の概念

これを高速炉ドシメトリーに適用し、放射化箔法との併用により中性子照射量評価の精度と信頼性の向上を図るとともに、He 生成量が直接測定できる利点を高速炉用構造材中の He 生成量測定に用いるものである。

HAFM は、測定対象である He が安定核種であるため、照射中の飽和や照射後の崩壊に伴う減衰がなく、中性子捕獲等による He 自身の核変換もほとんど無視でき、生成した He を体系外へ漏えい(拡散)させないために金属キャプセルに密封する等の措置により、これらに起因する誤差が照射時間に依存しない単純な積分型のモニタである。このため、放射化箔法では考慮しなければならないこれらの補正が不要であり、HAFM 素子の原子数及び He 生成量は、以下のように簡単な式で表現できる。

$$\frac{dn}{dt} = -Rn \quad (3-1)$$

$$\frac{dN}{dt} = Rn \quad (3-2)$$

ここで、

n : HAFM 素子の原子数

N : He 生成量(生成した He の原子数)

R : He 生成反応を $X(n,He)X'$ と表現した場合の反応率(He 1 原子の生成反応率)

t : 照射時間

である。式 3-1、3-2 を解いて、中性照射量を求めると、

$$\Phi = \frac{1}{\sigma_{\text{avg}}} \log_2 \left(\frac{1}{1 - \frac{N}{N_0}} \right) \quad (3-3)$$

を得る。ここで、

Φ : 中性子照射量

σ_{avg} : 中性子束 ϕ で 1 群に縮約された He 生成断面積

N_0 : 照射前の HAFM 素子の原子数

である。He 生成断面積は、中性子エネルギーの関数であり、中性子照射量は、中性子スペクトルを時間積分した量であるが、測定で得られる He 生成量は、中性子スペクトルと He 生成断面積をエネルギー積分してさらに時間積分したスカラー量であり、これから中性子照射量を得るためには、式 3-3 に示すとおり、中性子スペクトルでたたみ

込まれたスカラー量としての He 生成断面積(1 群に縮約された He 生成断面積)が必要である。この 1 群縮約した He 生成断面積 σ_{avg} は、反応率 R を評価対象のエネルギー範囲の中性子束で除した値

$$\sigma_{\text{avg}} = \frac{R}{\int \phi dE}$$

として求められる。

3.2 HAFM を用いた高速中性子照射量測定法の開発^[1-4]

He 蓄積法による高速中性子照射量を測定するため、高速中性子に He 生成反応の感度を有する Be を HAFM 素子として新規に選定し、その He 生成量を測定するための HAFM 測定装置を開発した。

3.2.1 He 蓄積型中性子照射量モニタ

HAFM は、前述の先行研究と相まって、米国材料試験学会 (ASTM) において標準化されており^[7]、HAFM 素子としては、低エネルギー中性子に感度が高い B、Li、中性子反応にしきい値を有し、高速中性子に感度が高い Al、Ni 等が挙げられている。これらの HAFM 素子は、単体、合金等でキャプセルに封入され、あるいは素子材のままでも用いられる。

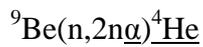
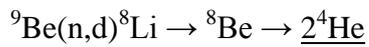
本研究では、高速炉の高速中性子スペクトル場における高速中性子照射量を測定することを念頭に置いて、HAFM 素子材として、

- ① He 生成反応の断面積が大きく、精度よく評価され、かつ、競合反応がない
- ② 中性子照射による誘導放射能が低い
- ③ 炉内の限られたスペースに装荷可能な寸法及び形状で、測定可能な He 生成量が得られる

等の理由から、Be を新しく採用した。Be は、前述の ASTM 標準にも HAFM 素子の候補として掲載されているが、過去、原子炉の Be 反射体中の He 生成量を質量分析

により測定した例はあるものの、中性子照射量モニタとして適用が試みられた報告はない。

${}^9\text{Be}$ の He 生成反応には、図 3-2 に示すように、概ね 1 MeV 以上のしきい値反応である



等が存在し、それぞれの反応を合計した He 生成反応が測定の対象となる。そこで、 ${}^9\text{Be}$ の He 生成断面積は、1 反応あたりの He 原子生成個数を考慮してそれぞれの反応断面積を合算して作成した。これらの反応断面積を図 3-3 に示す。断面積ライブラリは JEND L-3.3 を用いた。

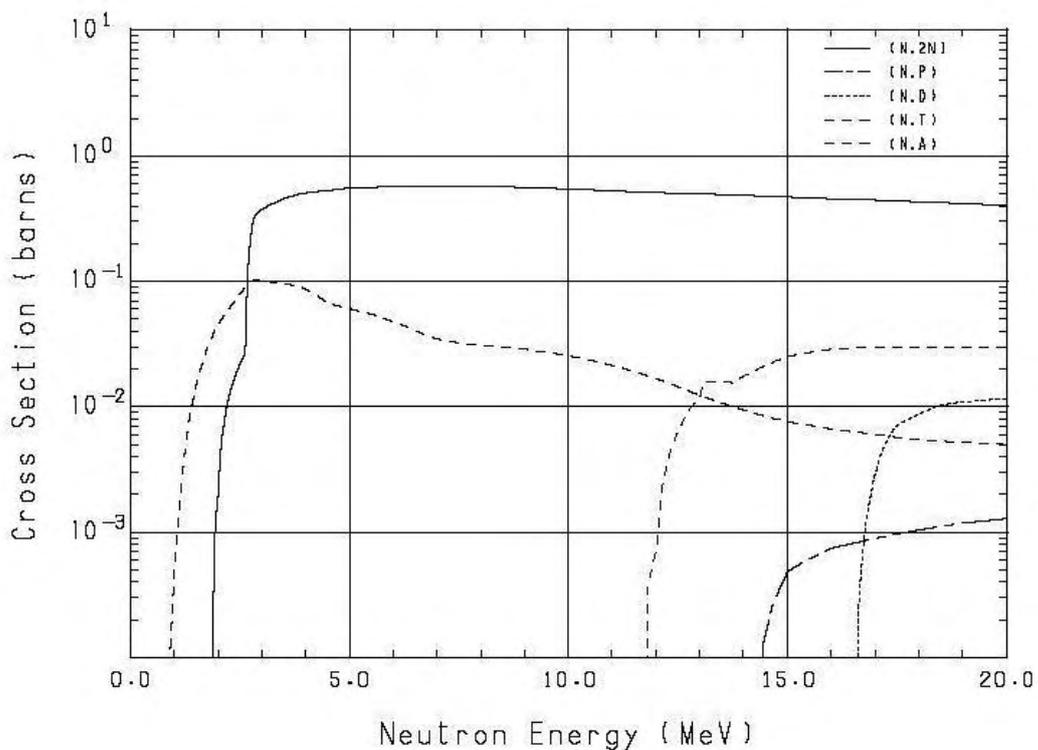


図 3-2 ${}^9\text{Be}$ の中性子反応断面積

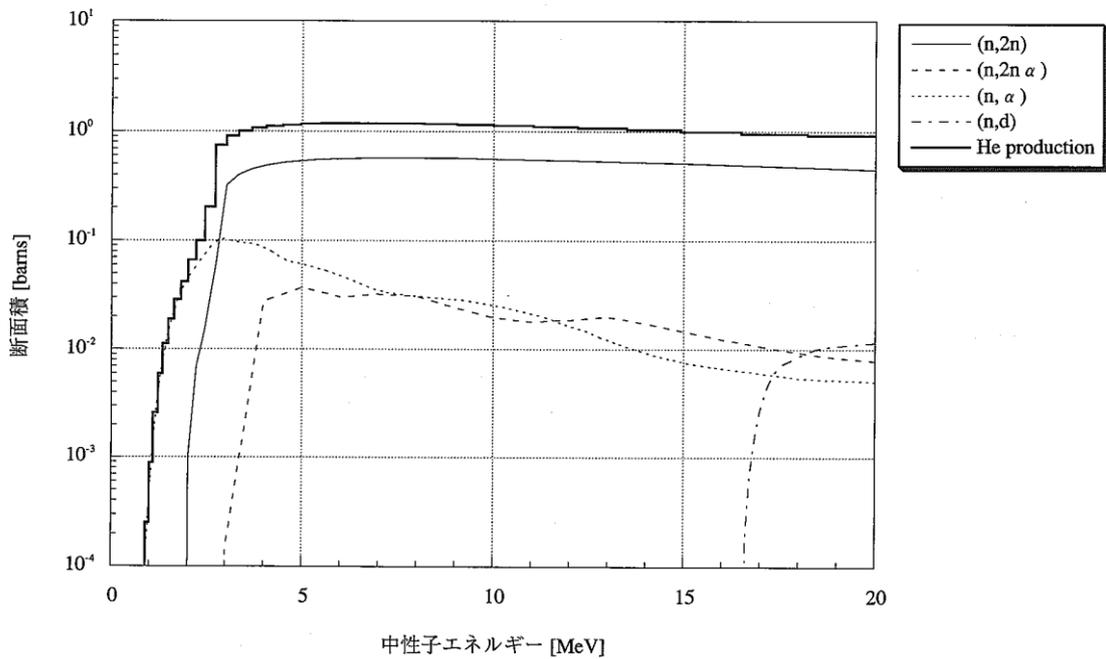


図 3-3 HAFM 用に作成した ${}^9\text{Be}$ の He 生成断面積

この Be 素子は、素子から生成した He を保持するため、キャプセル中に密封する。
キャプセルの材料としては、

- ① 高速炉スペクトル場において、バックグラウンドとなる He 生成反応の断面積が小さい
- ② 照射中の高温環境下において、透過による He の漏えいを無視できる
- ③ 中性子照射による誘導放射能が低い

等の理由から、ドシメータ用のキャプセルとして、これまでの「常陽」において、 ${}^{235}\text{UO}_2$ や ${}^{237}\text{NpO}_2$ 等の核分裂箔への使用実績のある V を採用した。

3.2.2 He 蓄積型中性子照射量モニタ測定装置

He 蓄積型中性子照射量モニタ測定装置 (HAFM 測定装置) の概略を図 3-4 に示す。
本装置は、

- ① HAFM 素子をキャプセルごと熔融し、蓄積した He を放出させる電気炉及び HAFM を電気炉に導入するための前室
- ② He 原子数を測定する質量分析計
- ③ 質量分析計の感度を校正するための標準 He ガス作製装置

から構成され、これらに装置の制御及びデータ処理を行うパーソナルコンピュータ並びにそれぞれの装置の真空排気系統が付属する。

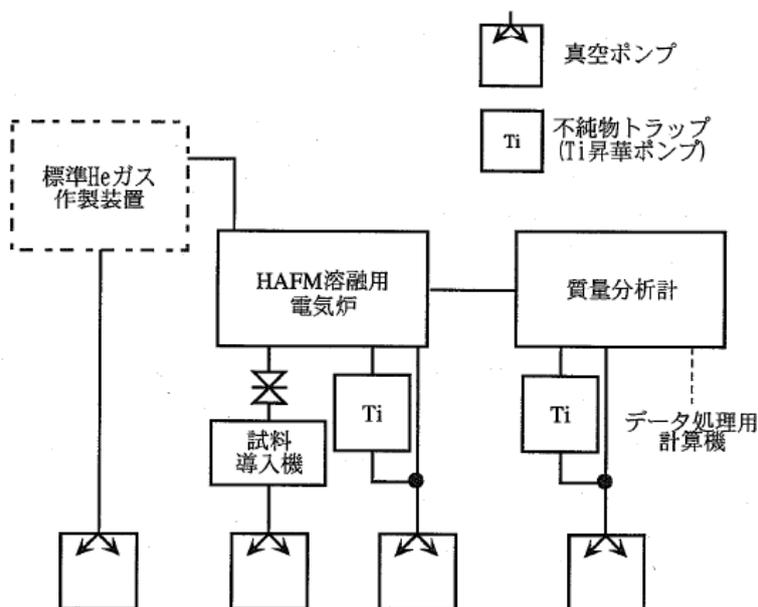


図 3-4 HAFM 測定装置

HAFM 溶融用電気炉は、容積 1 L のステンレス鋼製チャンバ内に、HAFM を溶融させる加熱ボートを設置する構造とした。ボートの材質は、He 測定時のバックグラウンドとなる放出ガスを低減させるため、融点の高いタングステン(W、融点 3,407 °C)とし、HAFM を効率よく溶融させるため、中央部を凹ませ、V キャプセルを包み込む構造とした。ボートへは最大 200 A までの電流が通電でき、例えば、「常陽」用 HAFM(V キャプセルを含めて約 30 mg)については、40 A の通電で 2,400 °C 以上まで昇温可能であり、電気抵抗加熱により HAFM を溶融する。ボートの加熱時における輻射熱の利用と溶融時に蒸発した HAFM の電気炉内壁への蒸着防止のため、Mo 及びステンレス鋼製の反射板を電気炉内部に設置した。また、HAFM 溶融時に発生し、He 測定時のバックグラウンドとなる主に水素系のガスを除去するため、不純物ガストラップとして液体窒素冷却型 Ti ゲッターポンプを溶融炉に設置し、He ガスを純化する。Ti ゲッターポンプは、Ti 蒸着膜と活性ガスとの化学吸着により排気を行うため、水素等の活性ガスは排気されるが、不活性ガスである He は排気されず、バックグラウンドとなるガスの低減に有効である。

質量分析計には、本手法の測定条件が不純物の多価イオンや同重体の影響が無視でき、高い質量分解能を要しないため、He 原子に相当する m/z のピークを簡便に高感度で測定できる四重極質量分析計を採用した。イオン源には熱電子衝撃型を採用しており、質量分析計へ導入されたガスは、イオン源フィラメントからの熱電子によりイオン化され、分析管内の質量分析部で目標とする質量電荷比のイオンのみが選択され、イオン検出部に入射する。このイオン電流を 2 次電子増倍管で増幅し、AD コンバータを介してその電流量を記録することにより He 原子数を計測する。なお、He 生成量の測定範囲(ダイナミックレンジ)を拡大させるため、電気炉からの He ガス導入部にオリフィスバルブを設け、質量分析計に導入される He ガスの流量を調節できる構造とした。

質量分析計から直接得られる測定値は電流値であるため、この電流値を He 原子数に換算する較正曲線を別途作成する必要がある。較正曲線は、図 3-5 に示す標準 He ガス供給部で調製された既知量の He ガスを質量分析計で測定することにより作成した。標準 He ガス供給部は、2 種類の拡散容器、圧力計、熱電対温度計及び真空排気系から構成され、既知濃度の He ガスを拡散・希釈することにより、HAFM 測定装置の測定範囲である $10^{13} \sim 10^{19}$ 個の He 原子数に調製する。ガス中の He 原子数は、拡散

容器の体積、ガス導入時の圧力及び温度から、理想気体の状態方程式を用いて求める。この He ガスを質量分析計で測定して較正曲線を作成する。

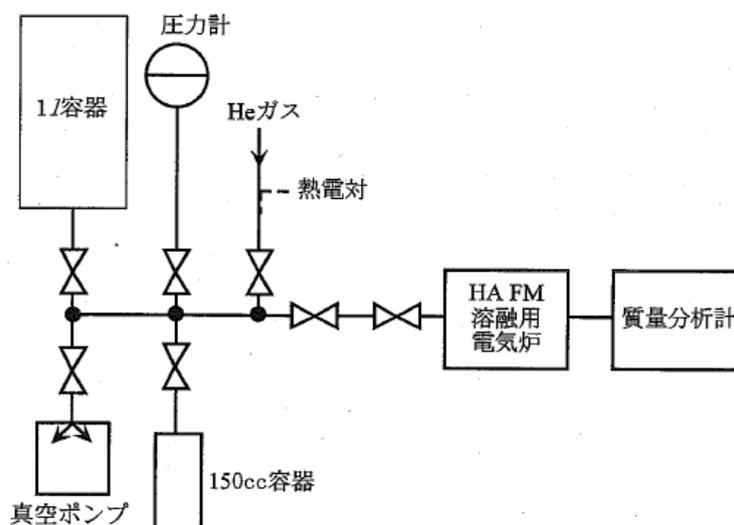


図 3-5 校正用標準 He ガス供給部

3.2.3 He 含有標準試料を用いた装置の校正と He 原子数測定精度の評価

標準 He ガスによる較正は、あくまでも標準 He ガス作製装置を仮の基準とした質量分析計の相対感度較正である。これは、標準 He ガス作製装置を構成する容器・配管等の容積の誤差、圧力及び温度の測定誤差、拡散・希釈の繰返しによる上記誤差の累積等、標準 He ガス作製に伴う誤差要因を排除できないことによる。このため、既知量の He 原子を金属片に打ち込むことにより照射中の He 生成反応で生成する He を模擬した標準試料を作製した。

本研究に用いた He 含有標準試料は、九州大学のイオン注入装置^[8]により、既知量の He イオンを金属試料中に打ち込んで作製した。イオン注入装置の概念図を図 3-6

に示す。イオン源で生成し、加速された He イオンは、質量分析磁石によって他のイオンと分離された後、ターゲットチャンバ内の金属試料表面に照射される。He イオンビームは、約 1 mmφ で、金属試料表面から約 0.2 mm の深さまで打ち込まれる。金属試料は、カレントインテグレータに接続されており、He イオン電流を積分した電荷量により、He イオンの照射量を算出する。上記で求めた He 打込み量は、作製した試料の一部を HAFM 測定装置と同じ測定原理を有し、He 生成断面積測定等で実績のある九州大学の微量 He 原子測定装置 (HAMS)^[8]で測定した値との比で補正した。He 打込み量の誤差は、カレントインテグレータの測定誤差、HAMS の質量分析計の感度の変動、He 打込み量と HAMS 測定値の比 (上記の補正值) のバラツキによる統計誤差が 2.3 %、HAMS の較正曲線の系統誤差が 2.0 %であり、保守的に両者の和をとり、4.3 %とした。

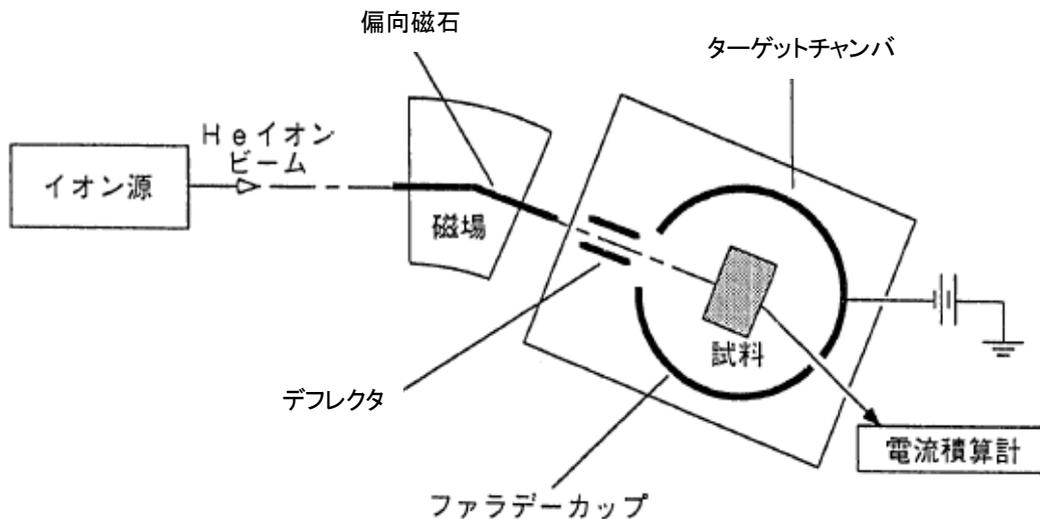


図 3-6 金属試料への He イオン注入装置

作製した He 含有標準試料を表 3-1 に示す。試料に用いた金属は、Al、Cu、V である。V は HAFM 素子を内包するキャプセルの材料である。Al、Cu は材料の加工が容易であり、融点も比較的 low、ポートや真空系への負荷も低減できるため、標準試料用の金属材料に適すると判断して選択した。この He 含有標準試料の He 原子数を測定し、He 含有標準試料を測定し、質量分析計の出力電流と He 原子数の関係(校正曲線)を求めた。この結果、図 3-7 に示すように、He 含有標準試料による HAFM 測定装置の校正曲線は良好な直線性を有するとともに、バラツキも 3 % (1 σ)と低く抑えられた。得られた絶対校正曲線の傾きを求め、標準 He ガスによる相対校正曲線を補正した。以上の測定値を用いて、HAFM 測定装置による He 原子数の測定精度を評価した結果を表 3-2 に示す。測定誤差 5.1 %で He 原子数を測定できることが示された。

表 3-1 作製した He 含有標準試料

材質		Cu	Al	V
融点(°C)		1084.5	660.4	1890
純度(%)		99.96	99.999	99.8
寸法(mm)		2 × 10 × '0.5	2 × 10 × '0.5	2 × 10 × '0.5
前 処 理	湿式研磨	○	○	○
	バフ研磨	○	○	○
	超音波洗浄	○	○	○
	アニーリング	○	○	○
He 打込み量 (He 原子/試料)		10 ¹³ ~ 10 ¹⁵	10 ¹³ ~ 10 ¹⁵	10 ¹³ ~ 10 ¹⁵

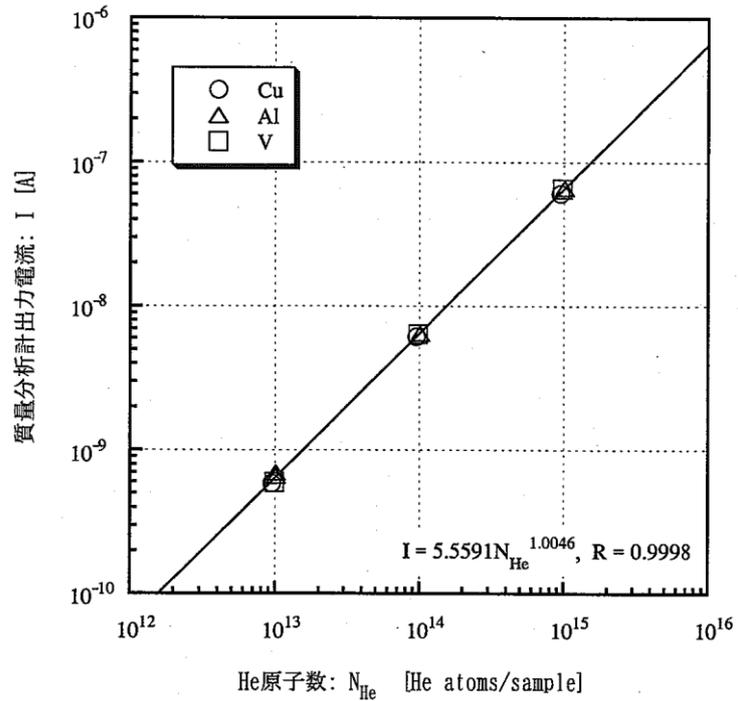


図 3-7 He 含有標準試料の He 含有量測定結果

表 3-2 He 原子数の測定誤差

統計誤差	
He 含有量の誤差	2.3 %
質量分析計の感度の変動	1.0 %
He 含有標準試料の He 含有量と測定値の比のばらつき	1.8 %
小計	3.1 %
系統誤差	
He 含有標準試料の He 含有量を決定した九大装置の較正曲線の誤差	2.0 %
小計	2.0 %
誤差合計	5.1 %

また、この He 含有標準試料を用いた測定により、HAFM からの He 放出温度を評価し、HAFM の溶融条件を決定した。本実験では、Al、Cu 及び V の He 含有標準試料を HAMS により測定して、材料ごとの試料の加熱温度と He の放出率の関係を実験式によりフィッティングした。これらの結果を図 3-8 に示す。すべての試料について、温度の上昇とともに He の放出率は増加し、K 単位で融点の 1.3 倍まで升温すれば、He はすべて放出されるとみなせる結果が得られ、これより HAFM 測定時の溶融条件を決定できた。

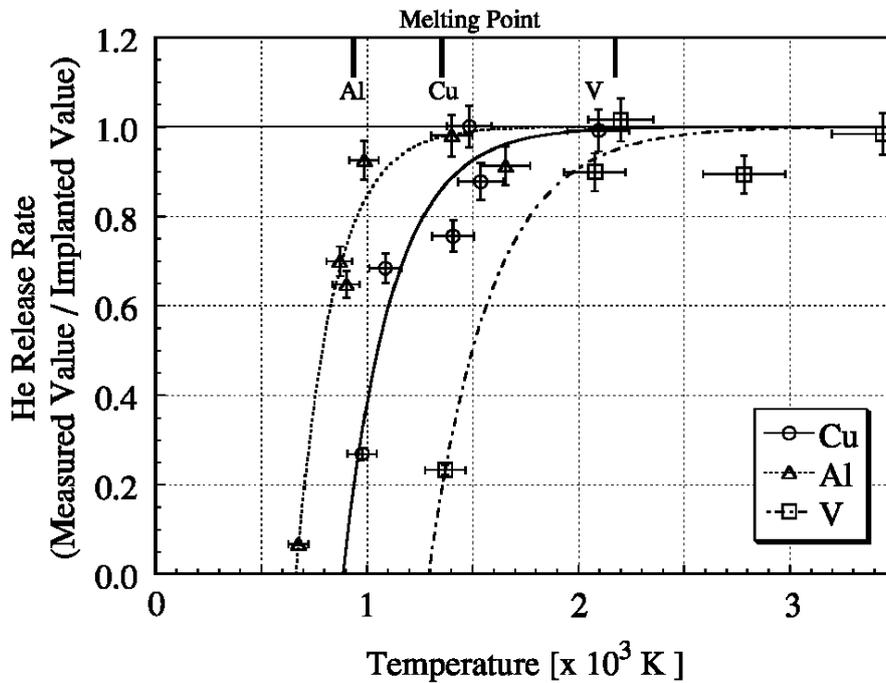


図 3-8 He 含有標準試料の加熱温度と He 放出率の関係

3.3 高速中性子スペクトル場における実証実験^[2-4]

HAFM を高速中性子場のドシメトリーに適用し、高速中性子照射量の測定精度を評価し、その適用性を実証するため、標準的な高速中性子場である「弥生」において HAFM による中性子照射量の測定実験を行った。さらに、実機高速炉プラントである高速実験炉「常陽」の中性子照射量測定に適用した。

3.3.1 高速中性子源炉「弥生」の標準中性子場での HAFM 実証実験

HAFM を高速中性子場のドシメトリーに適用し、高速中性子照射量の測定精度を評価し、その適用性を実証するため、標準的な高速中性子場である「弥生」^[9]において HAFM を照射し、HAFM 測定装置を用いて He 生成量を測定した。得られた測定結果から、式 3-3 を用いて HAFM 測定による中性子照射量を算出し、標準場の中性子照射量と比較して測定精度を評価した。式 3-3 における He 生成断面積 σ_{avg} は、照射位置における評価済みの中性子スペクトルと JENDL-3.3 ライブラリ^[10]を用いて作成した He 生成断面積から求めた。

HAFM 素子は、製作時に精密天秤で重量を測定し、また、純度及び同位体比を分析しており、照射前の HAFM 素子の原子数誤差は、0.3 % 以下である。なお、キャプセル材である V の(n, α)反応による He 生成量は、照射場の中性子束が小さいため HAFM 測定装置の測定下限未満であり、無視できる。

Be 素子 HAFM の照射に用いたブランケット実験孔は、円柱炉心を取り囲む劣化 U ブランケットの軸方向に設けられた実験孔である。中性子スペクトルは典型的な高速中性子場のそれであるが、炉中心を貫通するグローリー孔と比べると若干軟らかい。このブランケット実験孔で、Be 素子 100 mg を積算出力 193 kWh、全中性子照射量 1.02×10^{21} n/m² (最大) で照射した。また、レファレンスに、中低速中性子までをモニタできる ¹⁰B 素子の HAFM も同時に照射した。¹⁰B の He 生成断面積は ⁹Be のそれより大きいため、⁹B 素子 HAFM については、93 % 濃縮 B 素子 40 mg を積算出力 93 kWh、全中性子照射量 5.39×10^{20} n/m² (最大) で照射した。また、ブランケット実験孔における ⁹Be と ¹⁰B の He 生成反応率及び 90 % 感度範囲は、図 3-9 に示すとおりである。

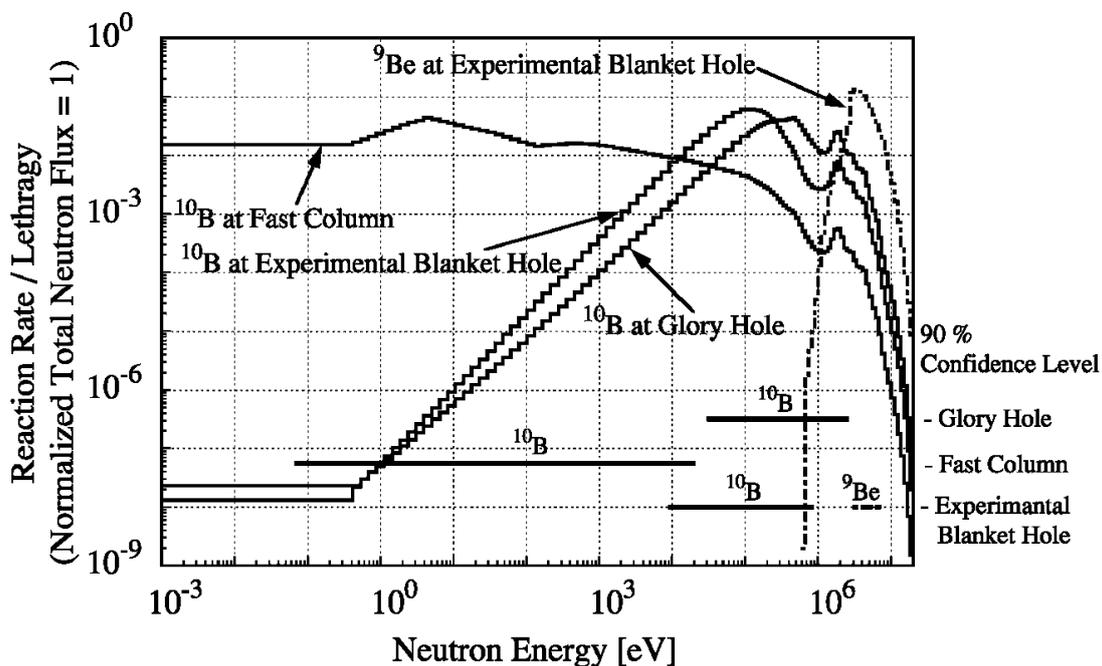


図 3-9 「弥生」の代表的な照射場の中性子スペクトルと HAFM の He 生成感度範囲

ブランケット実験孔で照射した Be の He 原子数測定結果を表 3-3 に、その分布を図 3-10 に示す。He 原子数測定値の分布は、炉心中心に最も近い 5 cm 付近位置の測定値が最大であった。本実験孔では、Be 素子 HAFM を実験孔先端からおよそ 2 cm 間隔に並べて較正照射した。一方、照射条件から He 生成量の計算値を求めるため、4 ~ 5 cm 間隔で多重放射化箔法の測定も行った。過去の実験等により求められている核分裂と非弾性散乱の 2 スペクトルモードの線形和のパラメータフィッティング式^[9]を用い、ブランケット実験孔内の中性子束測定値を ${}^9\text{Be}$ の He 生成反応と感度領域の近い ${}^{58}\text{Ni}(n,p)$ 反応率測定値で補正し、前述の He 生成断面積を乗じて ${}^9\text{Be}$ の He 生成反応率を求めた。ブランケット実験孔で ${}^9\text{Be}$ の He 生成反応に寄与する中性子のエネルギーは約 3 ~ 8 MeV の範囲であった。

表 3-3 「弥生」ブランケット実験孔で照射した ^9Be の He 生成量測定結果

No.	照射位置 ^{*1} [cm]	He 原子数測定値(M) [10^{14} He atoms/ ^9Be g]	He 原子数評価値(C) [10^{14} He atoms/ ^9Be g]	M/C
1	1.0	3.61 (5.0) ^{*2}	3.81 (7.8)	0.95 (9.3)
2	3.1	4.23 (5.0)	4.70 (7.8)	0.90 (9.3)
3	5.2	5.37 (5.0)	5.13 (7.8)	1.05 (9.3)
4	7.3	4.87 (5.0)	5.18 (7.8)	0.94 (9.3)
5	9.3	4.67 (5.0)	4.92 (7.8)	0.95 (9.3)

*1 ブランケット実験孔先端から HAFM が照射された位置までの距離を示す。

*2 ()内の数値は相対誤差(1 σ %)を示す。

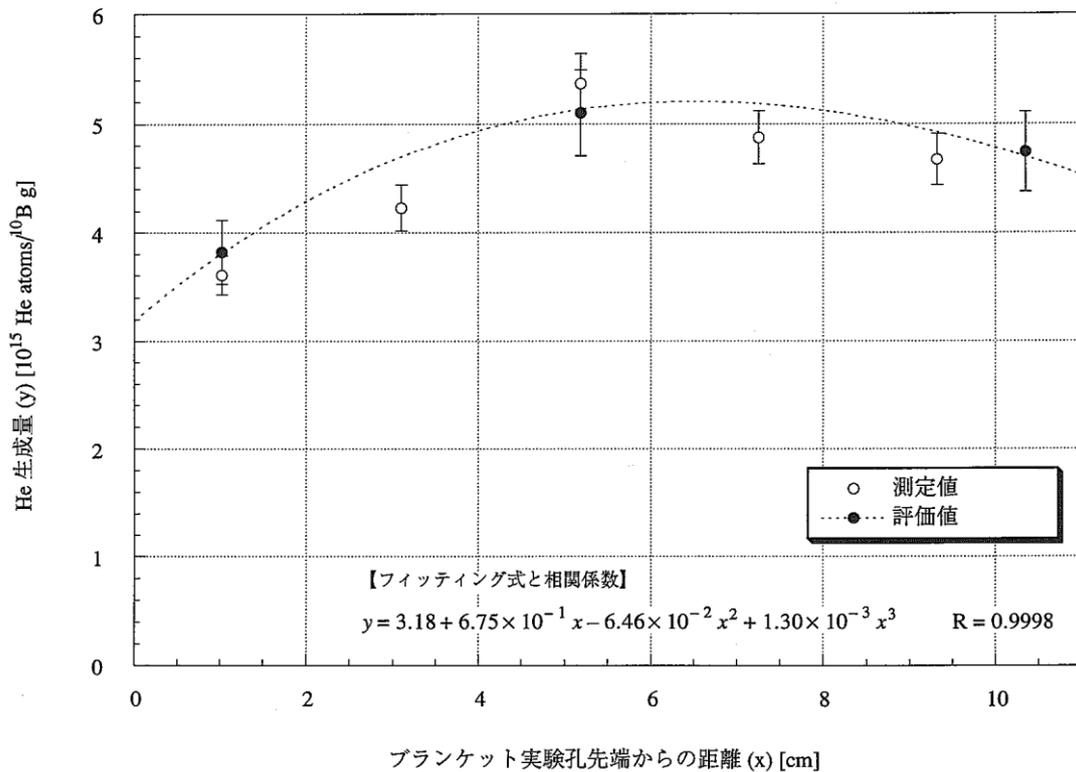


図 3-10 「弥生」ブランケット実験孔で照射した ^9Be の He 生成量分布

得られた反応率を照射時間で積分してHe生成量を計算して、これらのHe生成量計算値を濃縮Bの場合と同様に最小自乗法で3次関数フィッティングし、各HAFM照射位置のHe生成量を計算値した。フィッティングの結果を図3-10に、He生成量の計算結果を表3-3に示す。He生成量計算値は、誤差の範囲内でフィッティングすることができた。なお、計算値の誤差は中性子束及び $^{58}\text{Ni}(n,p)$ 反応率の測定値の誤差とした。

一方、レファレンスとして測定した ^{10}B 素子HAFMのHe生成量測定結果を表3-4に、その分布を図3-11に示す。He原子数測定値の分布は、2~8MeVの高速中性子に感度を有した ^9Be とは異なり、全域にわたってほぼ平坦であった。なお、5試料のうちHAMSで1試料測定したが、HAFM測定装置の測定値に良く内挿できる結果であり、測定装置に依存する系統的な有意差は見られなかった。次に、 ^9Be と同様の計算により $^{10}\text{B}(n,\alpha)$ 反応率を求めた。ここでは $^{58}\text{Fe}(n,\gamma)$ 反応率測定値を補正に用いた。 $^{10}\text{B}(n,\alpha)$ 反応に寄与する中性子のエネルギーは、グローリー孔より若干低エネルギー側にシフトした0.01~0.8 MeVであった。得られた反応率を照射時間で積分してHe生成量を計算して、これら5点のHe生成量計算値を最小自乗法で2次関数フィッティングし、各HAFM照射位置のHe生成量計算値を求めた。計算値の誤差は、中性子束測定値の誤差に $^{58}\text{Fe}(n,\gamma)$ 反応率測定値の誤差を加えたものとした。

表 3-4 「弥生」ブランケット実験孔で照射した ^{10}B のHe生成量測定結果

No.	照射位置 ^{*1} [cm]	He 原子数測定値(M) [10^{15} He atoms/ ^{10}B g]	He 原子数評価値(C) [10^{15} He atoms/ ^{10}B g]	M/C
1	1.1	4.62 (5.0) ^{*2}	4.58 (7.7)	1.01 (9.2)
2	3.0	4.55 (5.0)	4.70 (7.6)	0.97 (9.1)
3	5.3	4.94 (5.0)	4.78 (7.5)	1.03 (9.0)
4	7.4	4.72 (5.0)	4.78 (7.6)	0.99 (9.1)
5 ^{*3}	9.4	4.50 (5.0)	4.72 (7.7)	0.95 (8.3)

*1 ブランケット実験孔先端からHAFMが照射された位置までの距離を示す。

*2 ()内の数値は相対誤差(1σ%)を示す。

*3 九州大学のHAMSを用いて測定した。

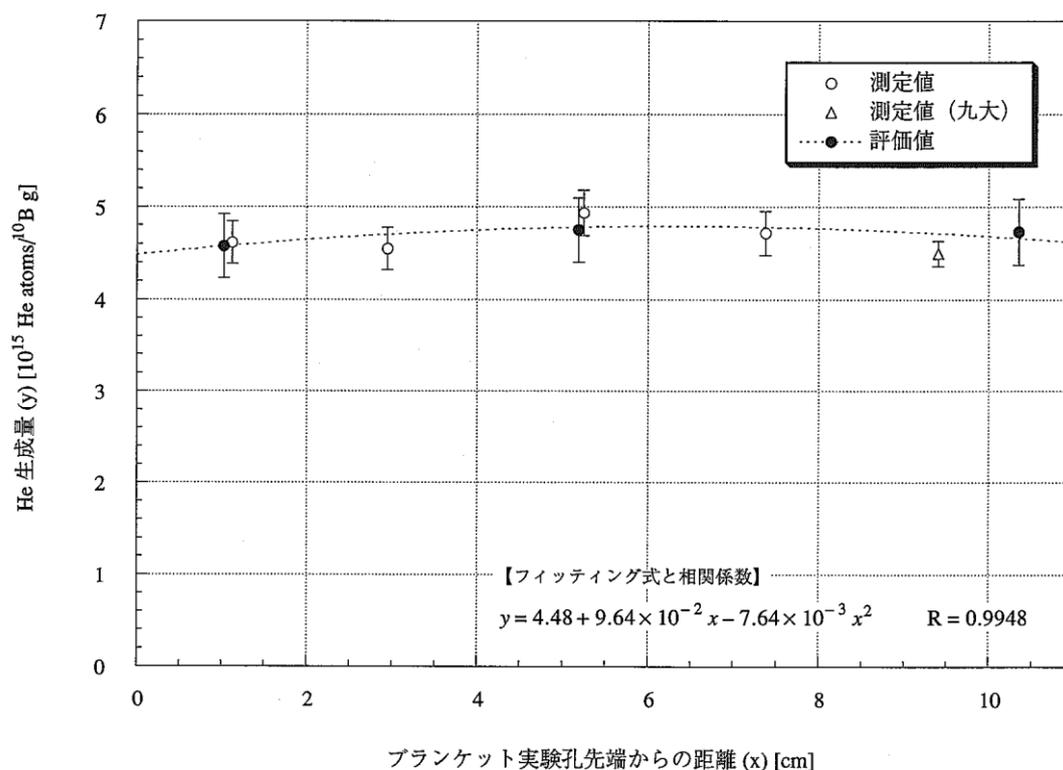


図 3-11 「弥生」ブランケット実験孔で照射した ¹⁰B の He 生成量分布

照射した 5 試料の Be 素子による高速中性子照射量 ($E > 1 \text{ MeV}$) の測定結果を表 3-5 に示す (表 3-4 の結果から、高速中性子照射量を算出したもの)。5 試料中 1 試料を除いて標準場の高速中性子照射量と誤差範囲内で一致した。なお、レファレンスである ¹⁰B についても同様に測定値と計算値が良好な一致を示し、HAFM 法の適用性を実証できる結果を得た。

本照射試験結果から、HAFM による中性子照射量の測定誤差を評価した結果、表 3-5 に示すように、統計誤差、系統誤差を合わせた全測定誤差は 7.1 % となり、⁹Be 素子の HAFM の測定により、高速中性子スペクトル場の高速中性子照射量を測定誤差約 7 % の精度で測定できる技術を新たに確立できた。なお、本測定誤差評価は、¹⁰Be 素子 HAFM による全中性子照射量測定に対しても適用される。

表 3-5 中性子照射量の測定誤差

統計誤差	
質量分設計の感度の変動を除く He 原子数の測定誤差	2.9 %
HAFM による中性子照射量測定値と標準場の値の比のバラツキ (質量分析計の感度の変動、照射前の HAFM 素子の原子数誤差、 照射場の中性子束の変動による誤差が含まれ、保守的に 3.9 % の 誤差すべてが HAFM による中性子照射量の測定誤差要因になる ものとした。)	3.9 %
小計	4.9 %
系統誤差	
He 含有標準試料の He 含有量を決定した九大装置の較正曲線の誤差	2.0 %
He 生成断面積の誤差	< 1.0 %
小計	2.2 %
誤差合計	7.1 %

3.3.2 高速実験炉「常陽」での HAFM 照射試験

「常陽」で HAFM を照射し、得られた中性子照射量により高速炉ドシメトリーへの適用を試みた。本照射試験では、 ^9Be 素子を高速中性子モニタ用、 ^{10}B の存在比を 93 % まで濃縮した B (濃縮 B) 素子を低中速中性子モニタ用として用いた。Be 素子 HAFM は 2 mg の Be 粉末、濃縮 B 素子 HAFM は 0.1 mg の濃縮 B 粉末を外径 1.3 mm、全長 6 ~ 8 mm の V 製キャプセルに封入したものである。これらの素子は、それぞれ精密天秤により重量を測定するとともに、素子のロットごとに純度及び同位体比を分析しており、素子の原子数は誤差 1.1 % 以下の精度で求められている。

これらの HAFM を「常陽」の炉内に装荷して、原子炉積算運転時間 117.1 時間(定格出力換算)照射した。HAFM の照射位置は、図 3-12 に示すとおり、炉中心に装荷した軸方向炉中心レベル(図中①)と燃料領域上端部の+258mm 位置(図中②)並びに径方向反射体領域(図中③)を選定した。このうち、He 生成反応にしきいエネルギーを有する Be はスペクトルの硬い燃料領域で照射される①、②に、濃縮 B は 3 箇所に装荷した。なお、キャプセル材の V から生成した He 原子数が HAFM 測定時のバックグラウンドとなることから、これを差し引くため、素子を封入しない空の V キャプセル(ブランク材)も HAFM と同位置で同時に照射した。照射位置における中性子照射量等の照

射条件は、HAFMと同時に同位置で照射した放射化箔を用いて、従来から「常陽」で実施している放射化箔法^[11]により評価した。

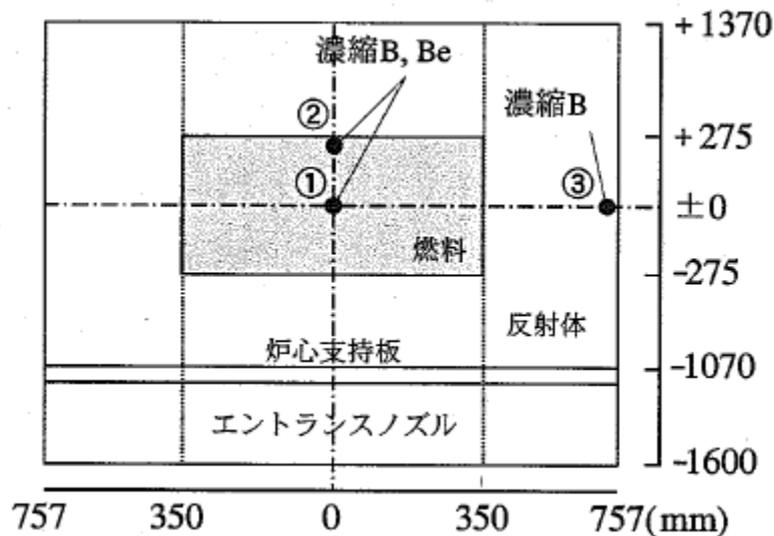


図 3-12 「常陽」での HAFM 照射位置

これらの HAFM を照射終了後に取り出して、HAFM 測定装置で He 原子数を測定し、同様に測定したblank材からの He 生成量をバックグラウンドとして差し引き、HAFM 素子による正味の He 生成量を求めた。得られた He 生成量から式 3-3 により中性子照射量を求めた。He 生成断面積は、1 meV ~ 20MeV のエネルギー範囲を 103 グループ(群)に区分けし、JENDL-3.3 核データライブラリからそれぞれのエネルギーに対する断面積値を与えて作成した 103 群構造の無限希釈断面積を用い、中性子束は、放射化箔法により評価された同群構造のスペクトルを用いた。なお、自己遮へいに効果による He 生成断面積の補正^[12]の程度については、これで算出した中性子束を積分して全中性子照射量または高速中性子照射量に対する補正量を見積もると、表 3-6 及び表 3-7 に示すように、スペクトルの硬い燃料領域①、②では Be、濃縮 B とともに 0.99 以上、③照射位置では B について 0.95 程度の値となった。

HAFM 法の放射化箔法による中性子照射量の測定結果を表 3-6 及び表 3-7 並びに図 3-13 に示す。濃縮 B 素子 HAFM による全中性子照射量と放射化箔法の測定値

との比は 1.01 ~ 1.04 であり、HAFM 測定装置の He 原子数測定誤差のみの範囲内で一致した。中性子照射量の測定誤差は、He 原子数の測定誤差に加え、照射前の HAFM 素子の原子数誤差、照射場の中性子束の誤差、He 生成断面積の誤差等が含まれるため、この結果は、HAFM と放射化箔によい一致がみられたと言える。一方、⁹Be 素子 HAFM による高速中性子照射量 (> 1 MeV) については、HAFM による測定値は放射化箔法のそれより系統的に 16 ~ 17 % 過大となった。

表 3-6 ⁹Be 素子 HAFM による高速中性子照射量 (> 1 MeV) 測定結果

照射位置	自己遮へい 効果補正量	高速中性子照射量 [n/m ²]		H/F
		HAFM (H)	放射化箔 (F)	
① SVIR-1 炉中心	0.998	5.72×10 ²⁵	4.93×10 ²⁵	1.160
② SVIR-1 +258 mm	0.998	2.92×10 ²⁵	2.49×10 ²⁵	1.173

表 3-7 濃縮 B 素子 HAFM による全中性子照射量測定結果

照射位置	自己遮へい 効果補正量	高速中性子照射量 [n/m ²]		H/F
		HAFM (H)	放射化箔 (F)	
① SVIR-1 炉中心	0.999	3.41×10 ²⁶	3.28×10 ²⁶	1.040
② SVIR-1 +258 mm	0.995	1.75×10 ²⁶	1.74×10 ²⁶	1.006
③ SVIR-2 炉中心	0.953	2.44×10 ²⁵	2.37×10 ²⁵	1.030

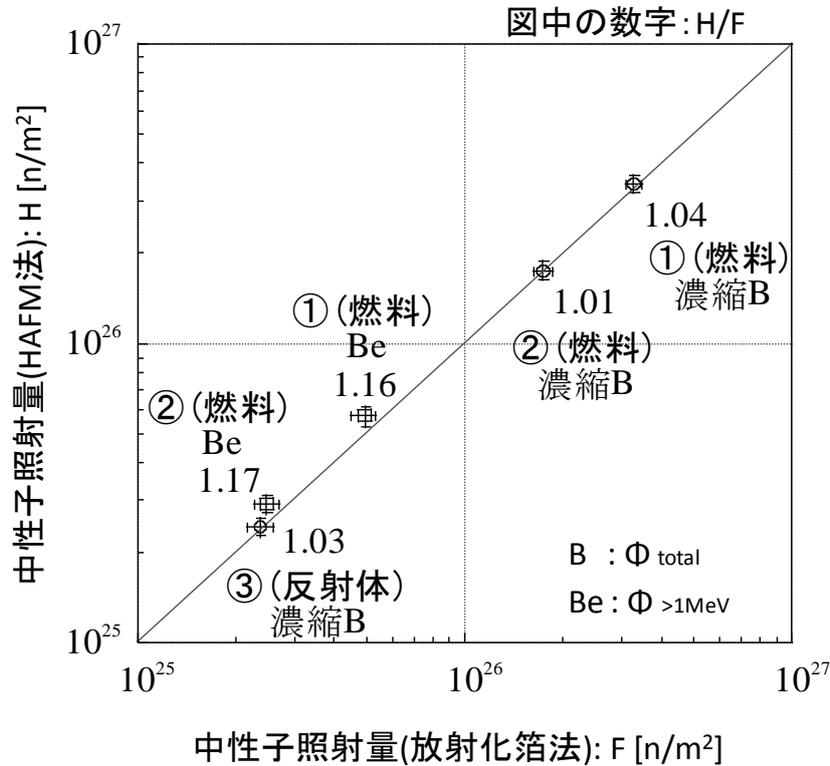


図 3-13 HAFM による中性子照射量測定結果

放射化箔法では、しきいエネルギーを有する Be の He 生成反応と感度領域が近い放射化反応として $^{63}\text{Cu}(n,\gamma)$ 、 $^{46}\text{Ti}(n,p)$ 、 $^{54}\text{Fe}(n,p)$ 、 $^{58}\text{Ni}(n,p)$ を採用しているが、評価後の中性子束及びスペクトルから求めた反応率に対する測定値の比は 0.96 ~ 1.00 とほぼ一致しており、Be の He 生成反応のみが 1.16 ~ 1.17 と大きく異なっている。図 3-14 に ^9Be の He 生成断面積、炉中心の中性子束及び反応率のエネルギー分布を示す。Be の He 生成反応が感度を有する 2 ~ 7MeV のエネルギー範囲では、照射場の中性子束のエネルギー勾配が大きく高エネルギー側に大きく落ち込んでいる一方で、Be 断面積はしきいエネルギーから 3 MeV までの立ち上がりの勾配が大きくなっている。これより、He 生成反応率分布は、3 MeV 付近を凸とするピーク形状を示し、この付近の B 断面積の誤差が 1 群に縮約して作成する He 生成断面積に影響する。参考までに、Be の He 生成断面積として ENDF/B-VI や JEF-2.2 を用いた場合の ^9Be による高速中性子照射量 (> 1 MeV) と放射化箔法のそれとの比を表 3-8 に示すが、ライブラリの違いにより差が

生じている。図 3-15 に示す各ライブラリの Be の He 生成断面積をみると、断面積の勾配が大きく、かつ照射場の中性子勾配も大きい 2 ~ 3 MeV のエネルギー範囲においてライブラリ間に差があり、これが、1 群に縮約して作成する He 生成断面積に影響を及ぼし、中性子照射量の算出結果に誤差を生じさせていると考えられる。

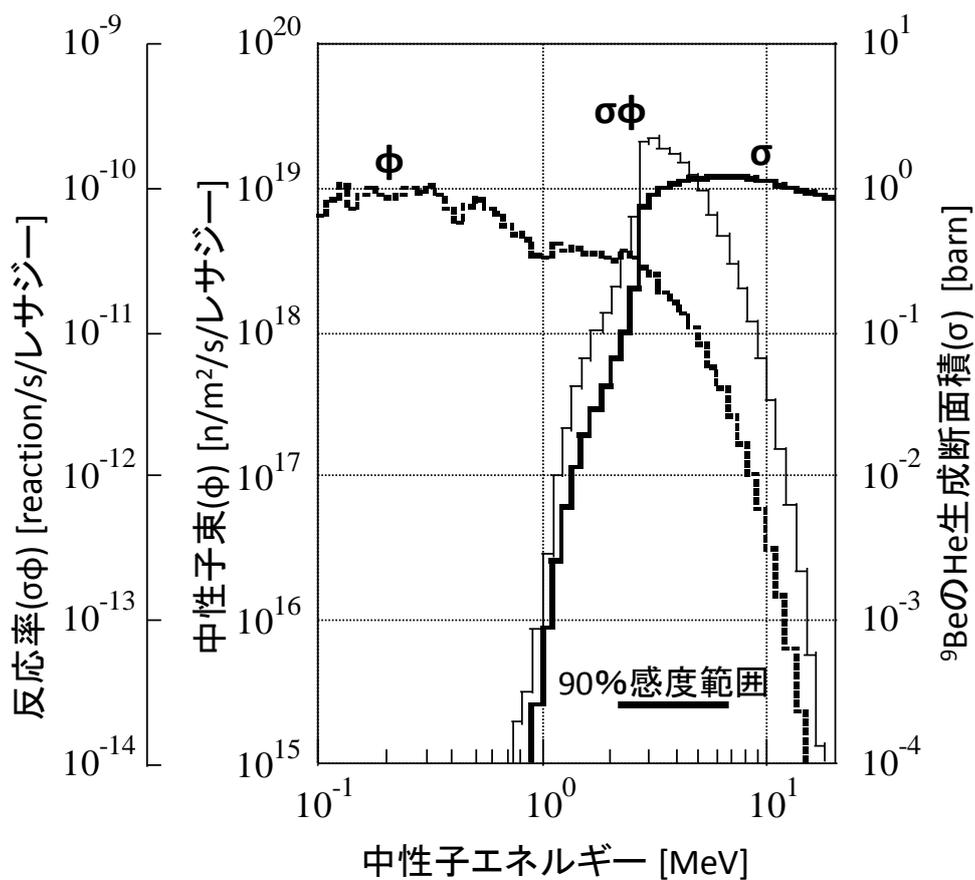


図 3-14 ${}^9\text{Be}$ の He 生成断面積、炉中心の中性子束及び反応率のエネルギー分布

表 3-8 断面積ライブラリの違いによる高速中性子照射量(> 1 MeV)測定結果
(HAFM 法/放射化箔法)の比較

断面積ライブラリ*	HAFM による測定値/放射化箔法による測定値	
	SVIR-1 炉中心	SVIR-1 +258mm
JENDL-3.2	1.16	1.17
ENDF/B-VI	1.22	1.23
JEF-2.2	1.21	1.23

* HAFM による中性子照射量測定値の算出に用いた ^9Be の He 生成断面積

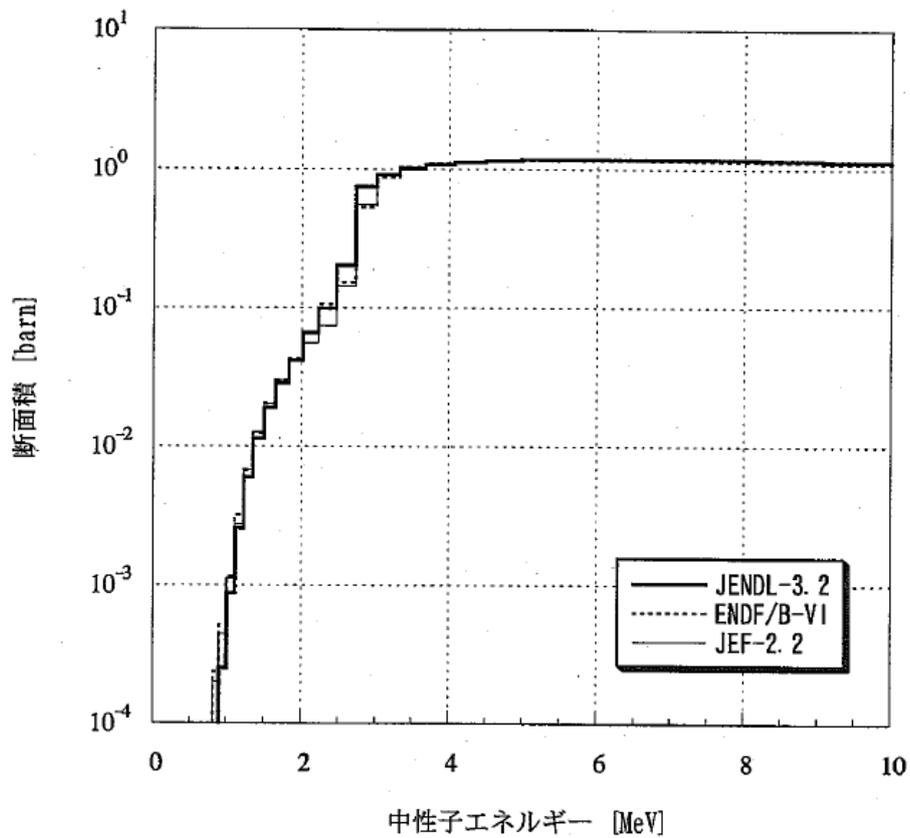


図 3-15 ^9Be の He 生成断面積

これらより、Be 素子 HAFM による高速中性子照射量測定値の誤差要因は、Be 断面積の誤差にあるものと考えられる。「弥生」の標準照射場での較正照射試験では、Be 素子 HAFM は放射化箔法と良好な一致を示したが、照射場の中性子スペクトルは「常陽」の炉中心よりもさらに硬いため、2 ~ 3 MeV より高エネルギー側が主要な感度範囲であったためと考えられる。「弥生」のような比較的純粋な核分裂スペクトルより低エネルギー側にシフトした中性子スペクトルを持つ実機高速炉での ^9Be 適用においては、現状では十数 % 程度の誤差が見込まれ、本来の He 生成量測定誤差である約 5 % に準ずる評価精度を達成するためには、しきいエネルギー付近の断面積及び中性子スペクトルの評価精度を向上させていく必要がある。

3.4 第 3 章のまとめ

本章では、反応生成物の半減期により、中性子照射量測定時間の上限が制限される放射化箔法に対して、反応生成物として安定核種である He を用いる HAFM 法を導入した。高速中性子照射量の測定用 HAFM 素子として ^9Be を選択し、HAFM の He 生成量を測定する質量分析装置を作成し、He 含有標準試料による校正法を開発して、He 測定誤差 5 % を達成した。本手法を「弥生」の標準中性子場にいける高速中性子照射量測定に適用し、 ^9Be 素子 HAFM により測定誤差 7 % で高速中性子照射量が測定できることを実証した。しかし、中性子スペクトルが低エネルギー側に若干シフトする実機高速炉である「常陽」の高速中性子照射量測定では、16 ~ 17 % 過大な測定結果となり、He 生成量測定値から中性子照射量求めるために必要な、1 群縮約した ^9Be の He 生成断面積(すなわち、断面積と中性子束及びスペクトル)の評価精度を向上させる必要があることを明らかにした。

第 3 章の参考文献

- [1] T. Aoyama, C. Ito and S. Suzuki, “Current Status and Upgrading Activity of Reactor Material Dosimetry in the Experimental Fast Reactor “JOYO”,” Reactor Dosimetry, World Scientific (1998) 302 - 310
- [2] 伊藤主税, 関根隆, 青山卓史, 鷹尾良行, 神田幸則, 井口哲夫, “高速炉ドシメト

- リー用 He 蓄積型中性子フルーエンスモニタの開発”, 日本原子力学会和文論文誌, **1** [1] (2002) 48 - 58
- [3] C. Ito, T. Sekine and T. Aoyama, “Development of Helium Accumulation Fluence Monitor for Fast Reactor Dosimetry,” Reactor Dosimetry in the 21st Century, World Scientific, (2003) 150 - 157
- [4] C. Ito, T. Sekine and T. Aoyama, “Development of Helium Accumulation Fluence Monitor for Fast Reactor Dosimetry,” 11th International Symposium on Reactor dosimetry, 18 - 23 August 2002, Brussels, Belgium
- [5] F. H. Ruddy, et al., Proc. 5th ASTM-Euratom Symp. on Reactor Dosimetry, Geesthacht, 1984 (1985) 153
- [6] D. W. Kneff, et al., Nucl. Sci. Eng., **92** (1986) 491
- [7] American Society for Testing and Materials, 2008 Annual Book of ASTM Standards, **12.02** (2008) E910-07
- [8] Y. Takao and Y. Kanda, Rev. Sci. Instrum., **67**, [1] (1996) 198
- [9] M. Nakazawa and A. Sekiguchi, UTNL-R0037, (1976)
- [10] K. Shibata, et. al., J. Nucl. Sci. Technol., **39** (2002) 1125
- [11] T. Aoyama, et al., “Characterization of neutron field in the experimental fast reactor JOYO for fuel and structural material irradiation test,” Nuclear Engineering and Design, **228** (2004) 21 - 34
- [12] H. Farrar IV, et al, Proc. 3rd ASTM-Euratom Symp. On Reactor Dosimetry, Ispra, 1979 (1980) 552

第4章 レーザ共鳴イオン化質量分析法を用いたガスドシメトリー

本章では、前章までの固体ドシメータとは異なり、ガスを用いた中性子照射量の測定法を提案する。具体的には、複数の安定同位体を有し、他の物質との化学反応がほとんど生じない希ガスを用い、中性子照射による同位体比の変化を測定し、中性子照射量を求める。同位体比の測定のために、レーザ共鳴イオン化質量分析法を用いた極微量の希ガス同位体比の分析装置を開発して、「常陽」で実施したタグガス(人工的に同位体比を調製した Xe、Kr の標識ガス)放出実験において当該実験における中性子照射量を測定し、本手法の可能性について議論する。

4.1 ガスドシメトリー

前章で議論してきた HAFM は固体のドシメータであり、第2章の Nb ドシメータを含む従来法である放射化箔と同様、確保された照射スペースに設置して中性子照射を行い、照射終了後に取り出して測定に供するという手順を踏む。原子炉構造材等、長期間の中性子照射量を測定したい部位は、簡単にドシメータを設置・取出しできない位置にあり、限られたスペースに限られた数のドシメータを設置し、計画的に少しずつ取り出して中性子照射量を追うこととなる。

そこで、本章では、ガスを用いた中性子照射量の測定法を提案する。ガスは、これを保持あるいは通気させる容器、配管等が必要となるが、測定部位に応じてその大きさを変えられるため、狭隘部への相性は良く、そのガスの一部をサンプリングするラインを設置することにより、照射開始から任意の時点までの中性子照射量を簡便に測定することが可能となる。

ガスを用いた中性子照射量の測定は、中性子照射による核変換のために着目するガスの存在量が増加するその変化量を求めることにより行う。ここで、ガスの一部をサンプリング・測定して中性子照射量を得るため、変化量の総量を求めるのではなく、反応断面積の異なる複数の核変換率の違いに着目し、それらのガス核種の存在比の変化を測定する。測定対象の核種として安定同位体を選択することにより、放射性核種が持つ飽和・減衰に起因する照射時間の上限はない。

例として、元素 X を用い、 ${}^N_A\text{X}$ 、 ${}^{N+1}_A\text{X}$ の 2 核種に着目し、中性子照射による両者の同

位体比の変化を測定する。ここで、簡単のため、 ${}^N\text{X}(n,\gamma)$ ${}^{N+1}\text{X}$ (反応率 R_N)、 ${}^{N+1}\text{X}(n,\gamma)$ ${}^{N+2}\text{X}$ (反応率 R_{N+1}) の中性子捕獲反応のみを考えることとする。

時間 t 照射した後の ${}^N\text{X}$ 、 ${}^{N+1}\text{X}$ の原子数 n_N 、 n_{N+1} は、

$$\frac{dn_N}{dt} = -R_N n_N \quad (4-1)$$

$$\frac{dn_{N+1}}{dt} = R_N n_N - R_{N+1} n_{N+1} \quad (4-2)$$

であり、 ${}^N\text{X}$ 、 ${}^{N+1}\text{X}$ の照射前 ($t = 0$) の原子数を N_N 、 N_{N+1} として、式 4-1、式 4-2 を解くと、

$$n_N = N_N e^{-R_N t} \quad (4-3)$$

$$n_{N+1} = -\frac{1}{1 - \frac{R_{N+1}}{R_N}} N_N e^{-R_N t} + \left(\frac{1}{1 - \frac{R_{N+1}}{R_N}} N_N + N_{N+1} \right) e^{-R_{N+1} t} \quad (4-4)$$

を得る。これらより、式 4-4 を式 4-3 で除して ${}^N\text{X}$ と ${}^{N+1}\text{X}$ の同位体比 n_{N+1}/n_N を求めると、

$$\frac{n_{N+1}}{n_N} = -\frac{1}{1 - \frac{R_{N+1}}{R_N}} + \left(\frac{1}{1 - \frac{R_{N+1}}{R_N}} + \frac{N_{N+1}}{N_N} \right) e^{(R_N - R_{N+1})t} \quad (4-5)$$

となる。

ここで、式 4-5 の指数部の底 $(R_N - R_{N+1})t$ が 1 より十分小さい範囲、すなわち、照射時間 t が $1/(R_N - R_{N+1})$ ($R_N > R_{N+1}$ として端的には $1/R_N$) に対して十分小さい範囲において、指数項を 0 のまわりでテイラー展開して照射時間 t の 2 次以降の項を無視し、照射時間 t の 1 次式で近似すると、

$$\frac{n_{N+1}}{n_N} = \frac{N_{N+1}}{N_N} + \left(\frac{1}{1 - \frac{R_{N+1}}{R_N}} + \frac{N_{N+1}}{N_N} \right) \left(1 - \frac{R_{N+1}}{R_N} \right) R_N t \quad (4-6)$$

を得る。式 4-6 の右辺第 1 項は照射前の初期の同位体比であるから、これを左辺に移行して照射前後の同位体比の変化量とし、時間 t までの積算中性子照射量 Φ を用いると、

$$\frac{n_{N+1}}{n_N} - \frac{N_{N+1}}{N_N} = \left(\frac{1}{1 - \frac{R_{N+1}}{R_N}} + \frac{N_{N+1}}{N_N} \right) \left(1 - \frac{R_{N+1}}{R_N} \right) \sigma_{\text{avg}N} \Phi \quad (4-7)$$

を導出することができる。式 4-7 は、照射による同位体比の変化量(式 4-7 の左辺)が中性子照射量に比例する(同式右辺)ことが分かる。ここで、中性子照射量 Φ は中性子エネルギー (E) の関数として表わされる中性子束 ϕ を評価対象のエネルギー範囲と照射時間で積分した量であり、

$$\Phi = \iint \phi \, dE dt$$

と表わされる。また、 σ_{avgN} は ${}^N_A\text{X}(n,\gamma){}^{N+1}_A\text{X}$ 反応を 1 群に縮約した断面積であり、反応率 R_N を評価対象のエネルギー範囲の中性子束で除した値

$$\sigma_{\text{avgN}} = \frac{R_N}{\int \phi dE}$$

である。

以上より、中性子照射後の同位体比 n_{N+1}/n_N を測定し、初期同位体比 N_{N+1}/N_N を差し引くことにより、式 4-7 から中性子照射量を求めることができることを初めて見出した。この方法により中性子照射量が測定可能な照射時間は、式 4-6 の導出時の説明のとおり、 $R_N > R_{N+1}$ として、照射時間 t が $1/R_N$ に対して十分小さい必要がある。一方、下限については、中性子照射量の算出において、式 4-6 の左辺の第 1 項の値を測定し、第 2 項を差し引くことを考えると、 ${}^{N+1}_A\text{X}$ の初期原子数 N_{N+1} に対して ${}^N_A\text{X}$ の初期原子数 N_N を大きく設定しておくことにより、調整できる。ただし、上限値の 1 ~ 2 桁下程度が限界となる。

9 種類の安定同位体を有する希ガスである Xe は、中性子捕獲断面積が $10^{-28} \sim 10^{-27} \text{ m}^2$ 程度であり、典型的な高速増殖炉の炉心～炉容器外周の中性子束レベル $10^{16} \sim 10^{19} \text{ n/m}^2\text{s}$ の中性子場の反応率 R_N は $10^{-8} \sim 10^{-12} \text{ n/s}$ となり、その逆数 $1/R_N$ は $10^8 \sim 10^{12} \text{ s}$ となることから、数年～十年オーダ ($10^7 \sim 10^8 \text{ s}$) の測定が可能と見込まれる。反応する中性子エネルギーの範囲についても、例として ${}^{126}\text{Xe}$ の中性子反応断面積を図 4-1 に示すように^[1]、keV オーダ前後に共鳴を持ち、MeV オーダ前後でも大きな低下がみられず、高速中性子スペクトル場で適用することが可能である。

前述のように、測定レンジは広くなく、従来型のドシメータのようにドシメータ物質でレンジを調整できないので、反応率(反応断面積と中性子束及びスペクトル)を考慮して分析対象の 2 核種を選択し、初期同位体比を調整する。

なお、前述の議論の例では、簡単のため ${}^{N-1}_A\text{X}(n,\gamma){}^N_A\text{X}$ を考慮しなかったが、この反

応断面積を考慮した上で、 ${}^N_{A-1}X$ の初期原子数 n_{N-1} を n_N に比べて小さくする等の工夫によりその影響を抑制することができる。また、中性子捕獲((n,γ)反応)以外の中性子反応や放射性の中性子反応生成物の崩壊等、より複雑な核変換チェーンについても考慮する必要がある場合もある。実際の運用においては、ORIGEN2^[2]等の燃焼計算コードにより、照射時間をパラメタとして、時間 t 照射時の同位体比 n_{N+1}/n_N と中性子照射量 Φ を別途計算しておくことにより、実測値から Φ を求めることができる。

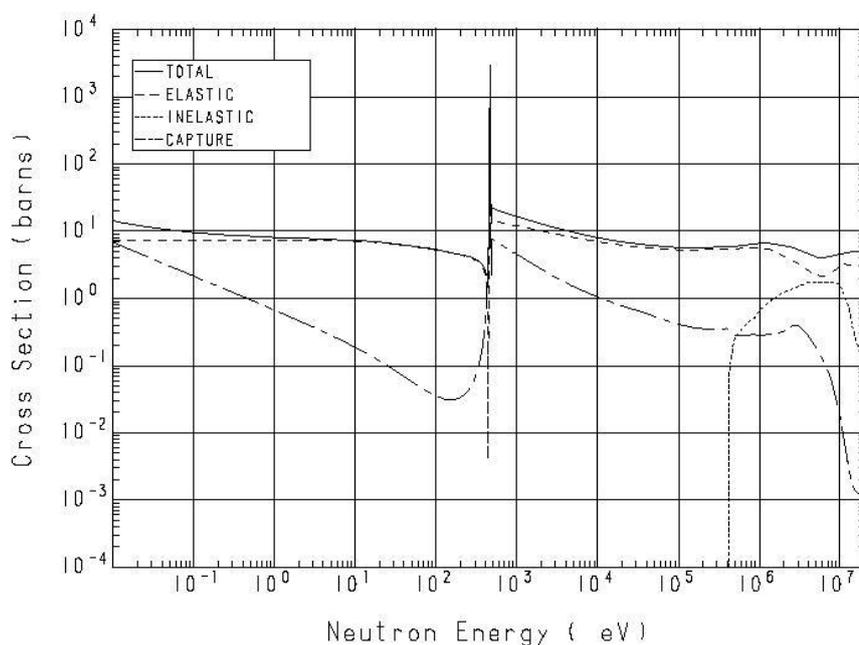


図 4-1 ${}^{126}\text{Xe}$ の中性子反応断面積

4.2 レーザ共鳴イオン化質量分析法^[3]

ガスドシメトリ原子炉プラントへの適用は、測定対象部位にガスループを通過させ、そのキャリアガス中に測定に適したように同位体比を調製した Xe ガスを混合させておくこととなる。したがって、ガスドシメトリに用いる Xe の同位体分析法として、ベースガス中に極微量含まれる Xe の同位体を高精度で分析可能なポテンシャルを有するレーザ共鳴イオン化質量分析法を採用し、ガスドシメトリ用の微量希ガス同位体分析技術を開発する。

4.2.1 レーザ共鳴イオン化質量分析法を用いた希ガス分析システム

レーザ共鳴イオン化質量分析法 (RIMS) は、イオン源にレーザ共鳴イオン化方式を用いる質量分析法である^[4-6]。対象とする原子の二つの電子状態のエネルギー差に相当する波長を有する光子を照射し、下準位の原子を選択的に特定の上準位に励起することを共鳴遷移と言う。レーザ共鳴イオン化とは、電子衝突イオン化等に代表される通常のイオン化のように基底状態から一度にイオン化するのではなく、複数の中間準位をこの共鳴遷移を経由して多段階で行う方式のことである。レーザ共鳴イオン化には、波長可変レーザが用いられることが多く、近年の超高感度の微量元素分析や効率的な同位体分離等の先端技術として、レーザ性能の向上と相まって広範囲な工学応用の展開が見込まれており、高速炉の計装への応用も提案されている^[7]。

RIMS は、特定の対象元素のみを選択的にイオン化することが可能であり、以下に説明する同重体干渉が原理的に存在しないので同位体組成比測定に対し高い信頼性を有するという画期的な特長を持つ。同重体干渉とは、質量分析において測定対象と同じ質量数を有するクラスターイオン (同重体) が形成される場合、ピークが重なることで質量スペクトルが乱されることである。後述するように、Ar ガス中の Xe 同位体分析を行おうとすると、Ar の 3 量体及び Ar と Ar ガス中に含まれる Kr の同重体の質量数が Xe の質量数と同程度となるため、図 4-2 に示すように同重体干渉の影響を強く受ける。したがって、通常のイオン化の場合、Ar 除去 (または He 等へのキャリアガスの置換) 換作という比較的大掛かりな前処理を必要とするが、RIMS を用いることで前処理が不要となり、設備が大幅に軽減される上、オンラインでのリアルタイム計測の実現が期待できる。

この RIMS を用いて、ppt オーダの極微量の Xe 同位体分析が可能な技術を開発する。この装置は、共鳴イオン化用レーザ部と質量分析部、並びに両者をつなぐイオン化チェンバにより構成される。装置の構成を図 4-3 に示し、以下にそれぞれの要素について以下に説明する。

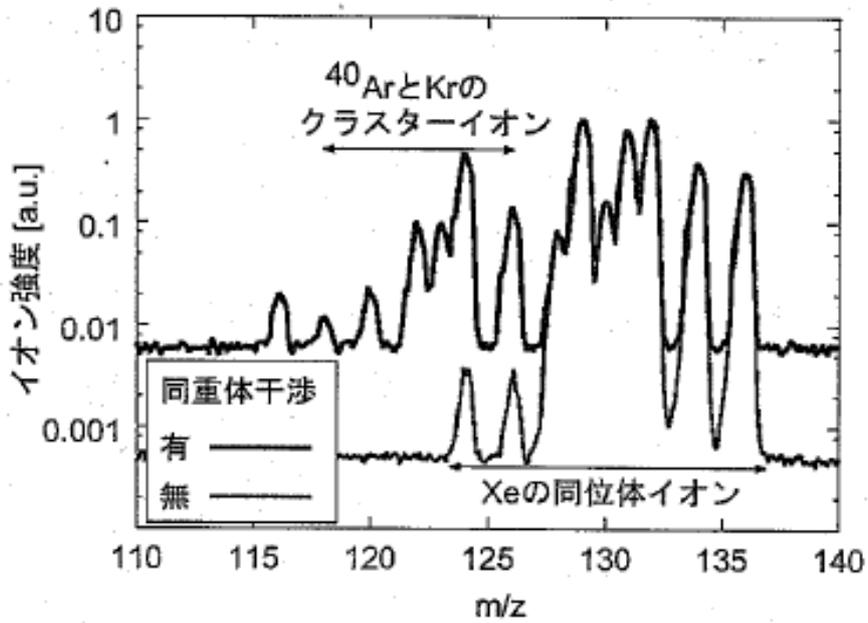


図 4-2 Ar と Kr による Xe の同重体干渉

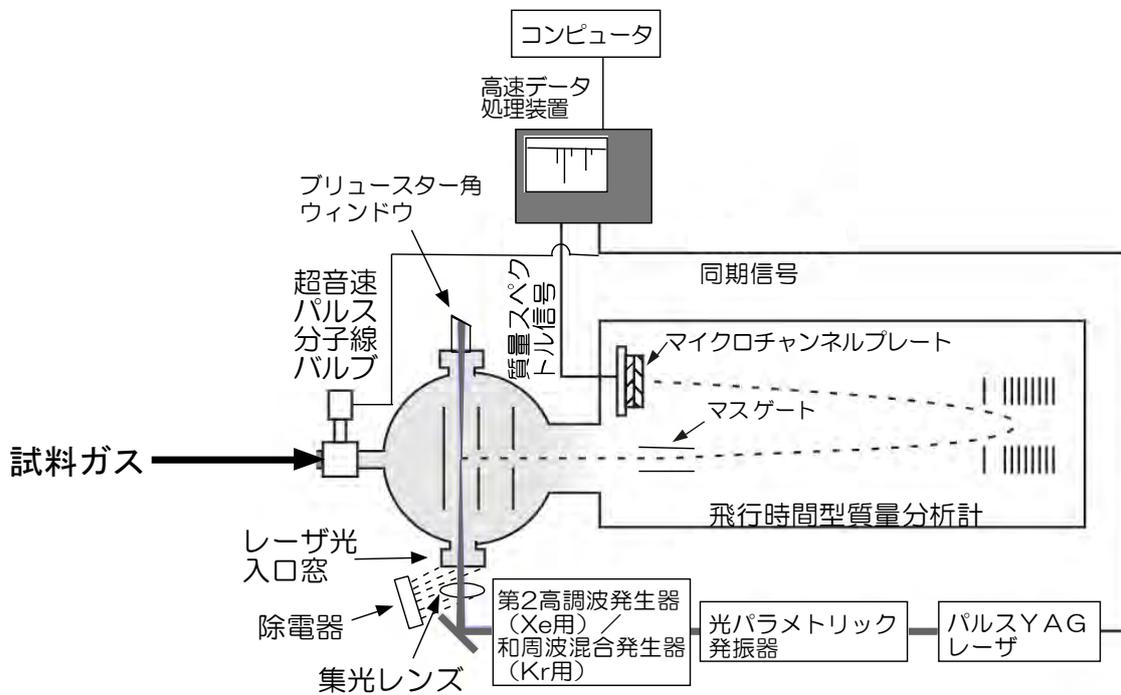


図 4-3 RIMS を用いた微量希ガス分析装置の構成

レーザの大強度化を含めた将来の原子力施設でのドシメトリ技術への適用を見据えて、ここでは、近年進歩の著しい非線型光学素子を用いた光パラメトリック発振器(OPO)をベースにシステム設計を行った。Xeのイオン化は、基底準位 $5p^6$ から $5p^56p$ の励起準位まで、そのエネルギー差の1/2に相当する256 nmのレーザ光2光子により共鳴励起させ、さらに、同一波長1光子によりイオン化ポテンシャルを超えることにより行う。まず、励起用のNd:YAGレーザ(Continuum製Powerlite 9010)からの第三高調波(355 nm)をOPO(Continuum製Sunlite EX)に入射し、パラメトリック発振により512 nmを発生させる。OPOは、全固体レーザシステムであるので、出力等の動作特性が長期に渡って安定である特長を有する。この512 nmのレーザ光を第2高調波発生器(Continuum製FX-1)に投入し、目的の256 nmのレーザ光を発生させる。

質量分析部は、反射型(RE-)の飛行時間型質量分析計(R. M. Jordan製RE-TOFMS)を採用した。共鳴イオン化用のレーザパルス入射に同期して試料ガスを超音速パルス分子線バルブ(PSV)によりパルスの注入し^[8]、MCP出力波形を高速サンプリングしてイオンの飛行時間を測定し、質量スペクトルを求める。データは、デジタル信号プロセッサ(Perkin Elmer製Fast Flight)により積算、圧縮等の処理をリアルタイムで行い、コンピュータに転送する。PSVによる試料ガス導入により、一桁近く検出感度が向上することを確認した。真空排気系についてはターボ分子ポンプと粗引系の2段構成により質量分析部、イオン化チェンバのそれぞれについて差動排気を行い、さらに、排気系をオイルで汚染しないため、粗引系としてはスクロールポンプを採用した。

4.2.2 装置の高感度化と標準ガス分析実験による性能評価

構築した微量希ガス分析装置により質量スペクトルを得ると、図4-4に示すように、Arの質量数の近傍に大きなピークが検出された。これは、Xeのイオン化に用いている光子のエネルギーが金属の典型的な仕事関数を超えることから、窓材等で反射、散乱したレーザが電極に当たって光電子を放出し、電極間の電場により加速されて主な成分であるArがイオン化したことによるものと考えられる。そこで、この非共鳴イオン化により生じるArイオンの影響を抑制するために、RE-TOFMSに、図4-5に示すマスクゲートの機能を付加し、Xeイオンのスペクトルに影響を与えることなく非共鳴Arイオン強度を3桁以上減少させることに成功した。

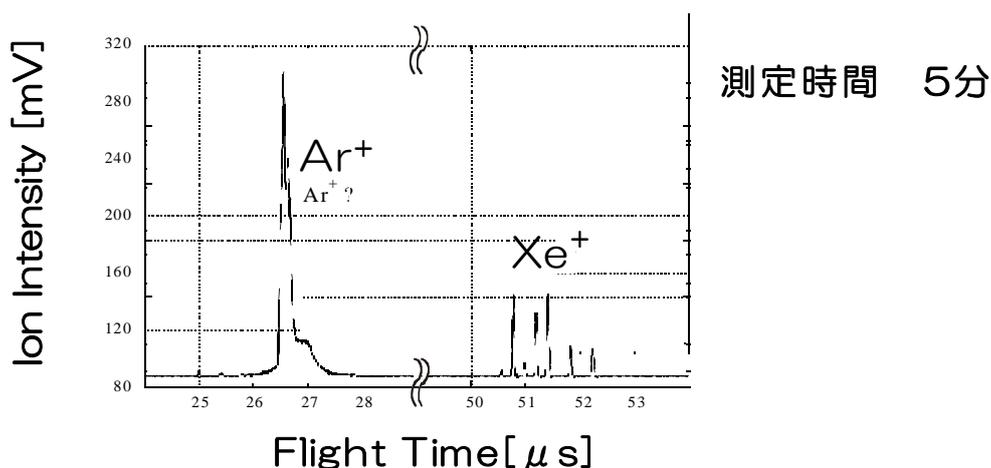


図 4-4 Ar の非共鳴ピーク

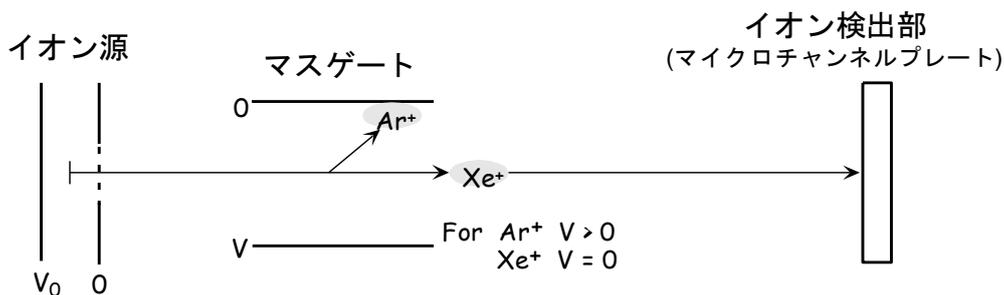


図 4-5 マスゲート

さらに、散乱線の発生を抑制し、非共鳴イオン $^{40}\text{Ar}^+$ の発生自体を抑える方策についても検討した。まず、レーザー光を収束させる光学レンズとイオン化チャンバの入口窓については多層膜の一部が損傷することがあり、その場合に著しく散乱が増加する。空気中の塵が静電気でこれらの表面に付着し、そこが核となって損傷が進行するようであり、除電器を導入し表面の静電気を中和したところ、損傷発生はほとんどなくなった。一方、出口の窓材については、こうした損傷はみられないが、表面からの微弱な反射光が TOFMS のイオン源に当たり光電子を発生すると考え、反射を抑制し、反射光がイオ

ン源に届かないようにするため、出口の窓材をブリュースター角でレーザー光がP偏光入射(入射面に平行な偏光成分による入射)し、反射率をほぼ0とするように配置した。以上の方策により、非共鳴Arイオンの発生をさらに2桁程度減少させることに成功した。

上記により、比共鳴イオンを低減させて高感度化を図った微量希ガス分析装置により、1ppb及び0.1ppbの天然組成のXeガスを含むArガスを同位体分析し、5分間の測定により図4-6に示す良好な質量スペクトルを得た。Xeは同位体シフトの影響は小さいが、天然組成の標準ガスの測定値をレファレンスとして必要に応じて補正を加えることにより、繰り返し測定結果から、測定誤差 $\pm 0.75\%$ で同位体比を分析できることを確認した。また、純Arガスを繰り返し測定することによりバックグラウンドのベースラインのゆらぎの標準偏差 σ を求め、検出限界値をその 3σ 、定量下限値を 10σ と定義し^[9]、本装置の検出限界は0.7 ppt、定量下限は2.2 pptであることを示し、これまでには無い高感度な同位体分析技術を実現させた。

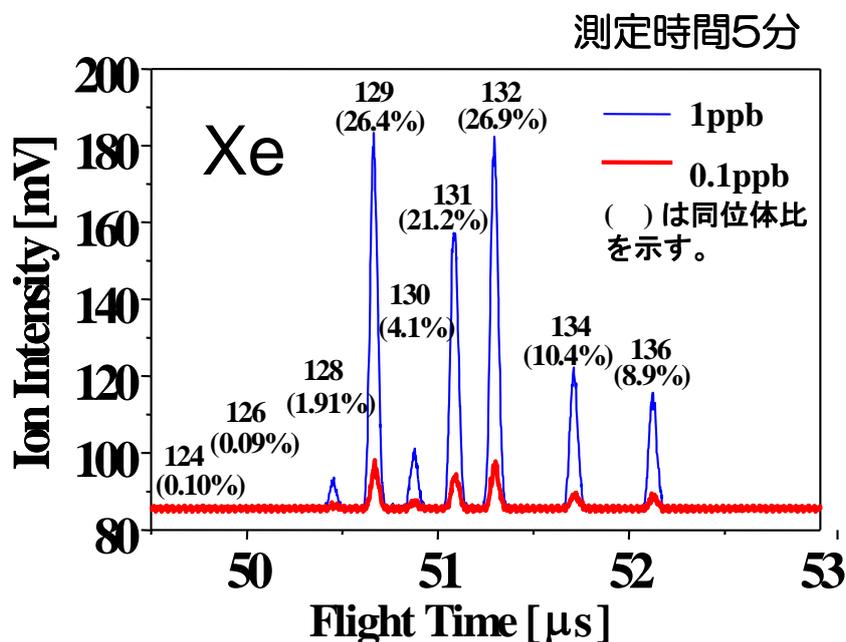


図4-6 Xeの質量スペクトル

4.3 希ガスの同位体組成変化のモニタによる中性子照射量測定

開発した微量希ガス分析装置を用いて、Xe ガスの同位体組成変化によるドシメトリーへの適用性を議論する。ここでは、高速実験炉「常陽」で行われた Xe タグガスを用いた照射試験を用いて本ドシメトリー法の原理実証実験を行い、その適用可能性について検討した。

4.3.1 高速実験炉「常陽」の炉内クリープ破断試験^[10-12]

高速実験炉「常陽」では、燃料寿命の制限因子である被覆管材料の中性子照射下におけるクリープ破断強度の評価^[13]を目的とした炉内クリープ破断試験を実施している。本試験では、照射材料の温度がクリープ破断強度に大きく影響するため、オンラインで照射材料の温度を計測するとともに、温度制御を可能にした材料照射装置を開発し(図 4-7)、照射試験を実施してきた^[14]。試料には内部を加圧するための He に加え、予め試料毎に Xe と Kr の同位体組成比を変えた混合ガス(タグガス)が封入されており、この照射試料を原子炉内で照射し、クリープ破断が発生するまでの時間を測定する(図 4-8)。この時間を測定するためには、どの試料がいつ破断したかを正確に検知する必要があり、試料破断が発生したら炉容器カバーガスを採取し、カバーガス中の Xe 同位体比を分析する。タグガスは、試料の破断とともに放出され、冷却材 Na 中を通過してカバーガス空間に移行するため、この Xe 同位体比を分析することにより、タグガスの同位体比を求め、判断した試料を同定することができる。

一方、本試験では、クリープ破断するまでの中性子照射量を評価することが重要であるが、これについては、中性子輸送計算により試料照射位置の中性子束を求めておき、試料が破断した時刻から得た積算照射時間で積分して求める。レファレンスに放射化箔を照射試験装置内に装荷してあり、照射試験がすべて終了した後、放射化箔を取り出して実測ベースの中性子照射量を求め、先の輸送計算結果を補正する。

本研究では、この照射試験を利用し、タグガスの同位体比分析により、照射試料の同定のみならず、中性子照射量の測定を試みた。これにより、希ガスの同位体組成変化に着目した RIMS を用いたガスドシメトリー法の原理実証を行った。

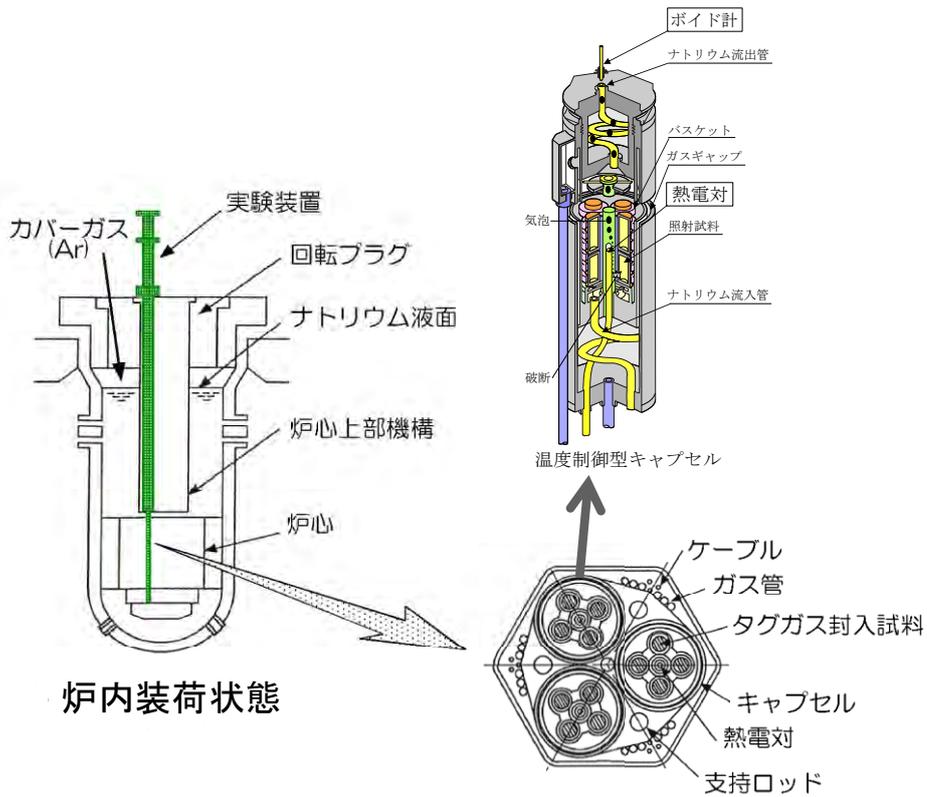


図 4-7 温度制御型材料照射装置 (MARICO)

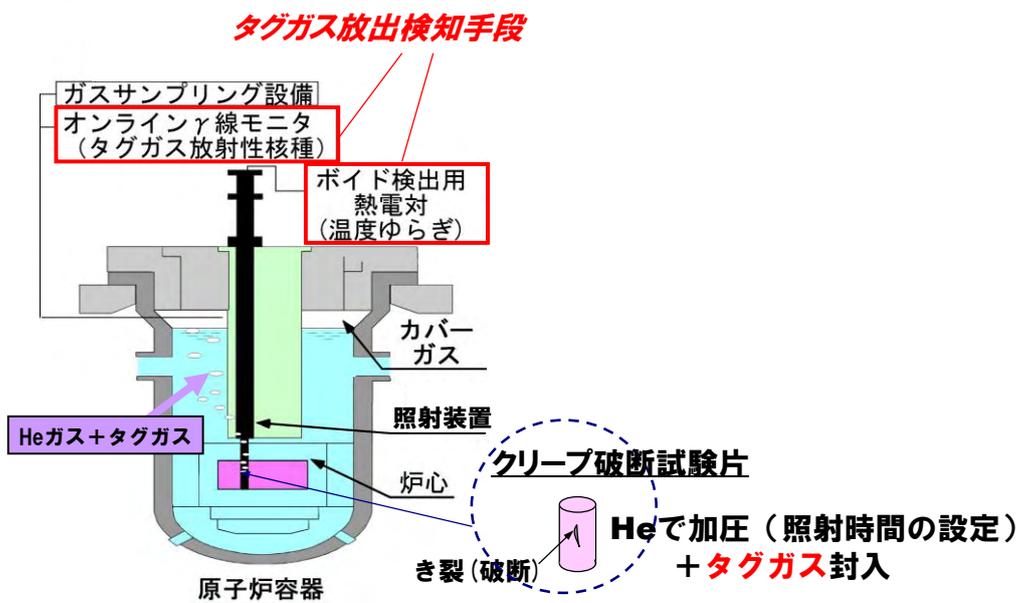


図 4-8 MARICO による炉内クリープ破断検知

4.3.2 RIMS による Xe タグガスの同位体比分析^[11,12,15-17]

まずは、開発した RIMS を用いた微量希ガス分析装置を「常陽」の炉内クリープ破断試験に適用し、Xe の同位体比を分析できるかどうか確認した。

タグガスは、中性子照射により放射化され、試料の破断によりその放射化核種もカバーガス空間に移行するため、カバーガス中の放射能濃度を監視するカバーガス・オンライン γ 線モニタで試料の破断を検知することができる。カバーガス・オンライン γ 線モニタは、常温活性炭にカバーガスを通気させ、高純度 Ge 半導体検出器で γ 線スペクトル測定を行う操作を自動化したシステムで、その測定結果の例を図 4-9 に示す。「常陽」のカバーガスには常時少量の清浄 Ar が流入しており、これによるカバーガスのパージ効果は、半減期換算で概ね 3 日程度であるが、図 4-9 を見ても、放射性核種であってもタグガス放出時に、その前回に放出されたタグガスが残留し、バックグラウンドとなることがわかる。

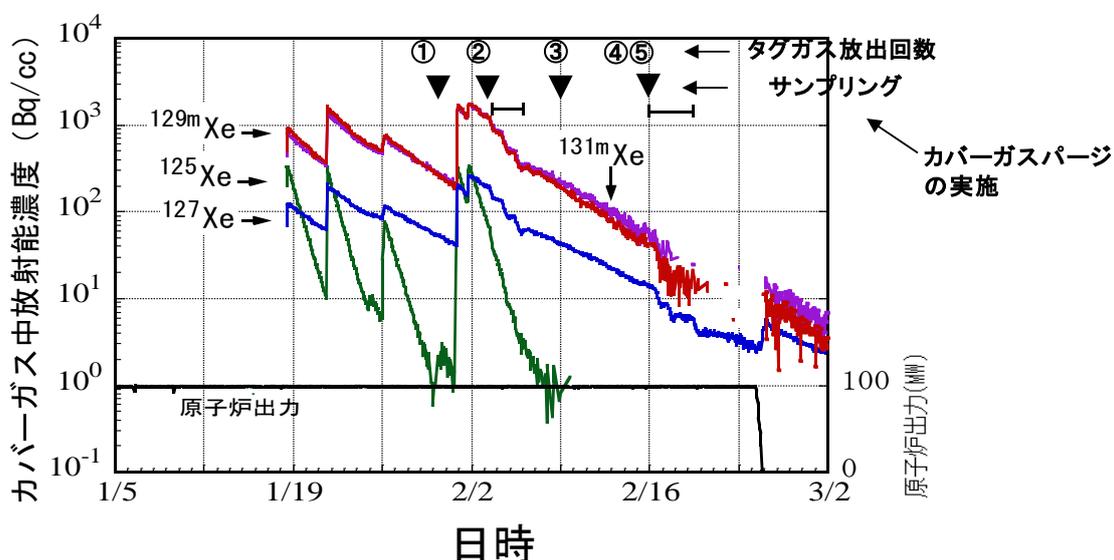


図 4-9 カバーガス・オンライン γ 線モニタによる Xe タグガス放射化核種の測定例

一方、RIMS では、レーザの持つ不安定性(エネルギー、位置、各種モードなど)とレーザ共鳴イオン化の効率がエネルギー密度に対し極めて非線型に応答することから、絶対感度の一定性、信頼性に対しては不十分である。

したがって、バックグラウンド補正を行うための濃度測定のために、大気圧イオン化質量分析法(APIMS)^[18]を導入した。APIMS では、図 4-10 に示すように 2 段階のイオン化が行われる。導入された試料ガスは、まずコロナ放電によりイオン化される。この一次イオン化により生じた主成分 C のイオンと微量成分 X との電荷交換反応(2 次イオン化)が進行する時、微量成分 X は非常に高い効率でイオン化され、高感度を実現することになる。カバーガスの主成分である Ar は、微量成分である Xe よりも大きなイオン化ポテンシャルを有しているため、上記の電荷交換反応が進行する。したがって、APIMS の適用により超高感度検出が期待できる。

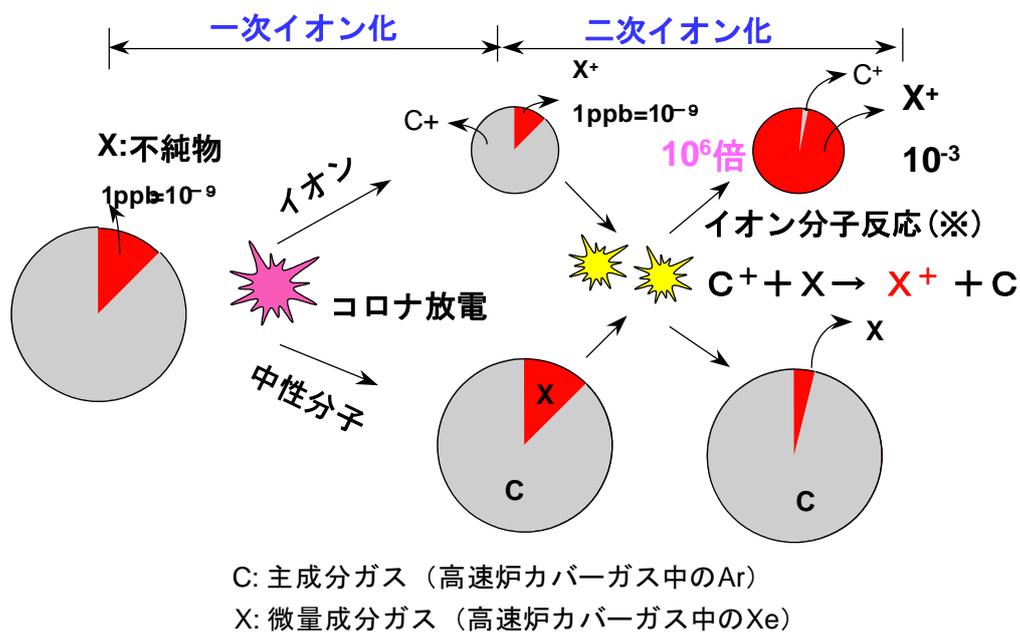


図 4-10 大気圧イオン化の原理

この APIMS を用いた微量希ガス分析部を作製し、マスフローコントローラにより試料ガスや校正用標準ガスの濃度調整が行える絶対感度測定ユニットとして(図 4-11)、RIMS を用いた微量希ガス分析装置への試料ガス導入部に設置した。カバーガスを模擬し、Xe、Krの含有量を変えた Ar ガスによる予備実験を行った結果、 ^{124}Xe 、 ^{126}Xe は、 $^{40}\text{Ar}^{84}\text{Kr}$ 、 $^{40}\text{Ar}^{86}\text{Kr}$ による同重体干渉がみられ、2 次イオン化率はその濃度に依存することにより、濃度と質量分析計出力には直線性が見られなかったが、同重体干渉のない ^{132}Xe 、 ^{134}Xe 、 ^{136}Xe を分析することにより、図 4-12 に示すように、濃度 10^{-2} ppb オーダまで良好な直線性を得た。「常陽」の照射試験に用いたタグガスは 1 試料あたり約 2 cm^3 であり、これが 6.5 m^3 のカバーガス空間に拡散すると、例えば同位体比 1 % に調製されたタグガスの濃度は 3 ppb となり、試料からの放出率が 100 % でない可能性を考慮しても、その濃度を測定することが可能となる。

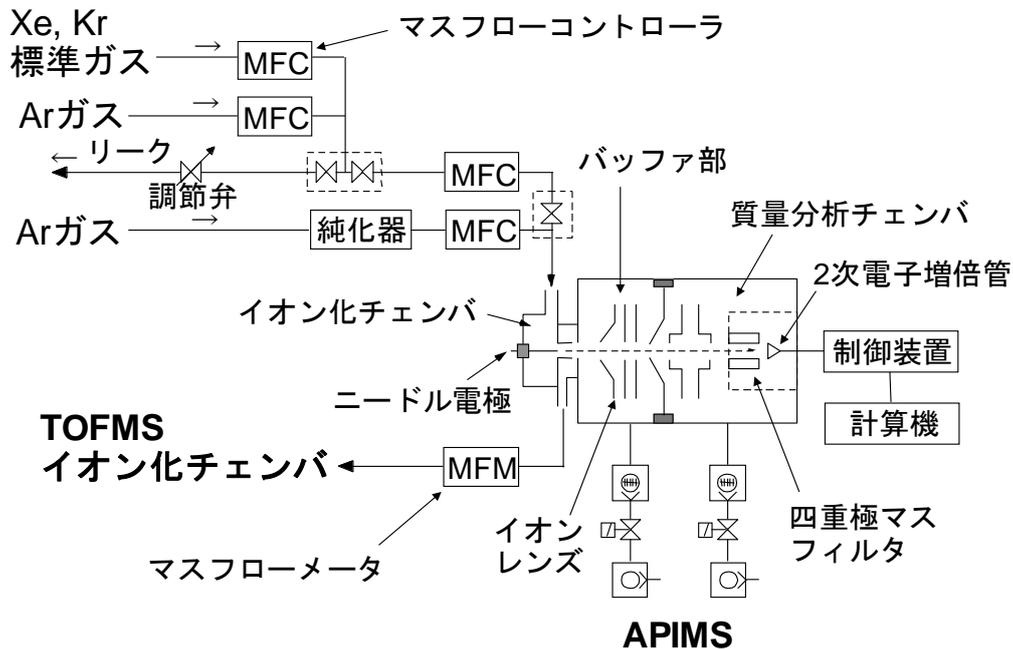


図 4-11 APIMS を用いた絶対感度構成ユニット

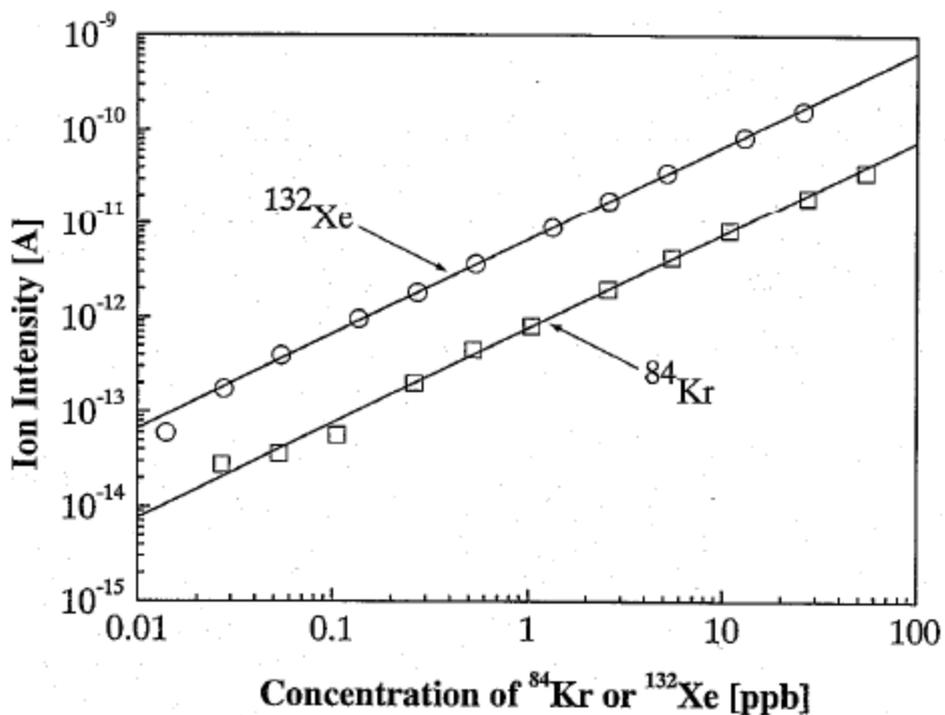


図 4-12 絶対感度構成ユニットによる Ar 中微量希ガスの検量線

上記のシステムを用いて、第 1 ステップとして、クリープ破断試料の同定のために Xe タグガスの同位体比を大きく変化させて調製したタグガスの分析を行い、このシステムによる Xe 同位体比の分析性能を確認した。

実際に「常陽」で行われた炉内クリープ破断試験において、試料が破断したことをカバーガス・オンライン γ 線モニタにより検知した後、 300 cm^3 のステンレス製容器にカバーガスを採取し、RIMS による微量希ガス分析装置でカバーガス中の同位体比を分析した。タグガス放出前のカバーガス中の Xe をバックグラウンドとして差し引くため、原子炉運転前及び運転中適宜カバーガスを採取し、Xe のバックグラウンド濃度を把握している。前述のように、「常陽」のカバーガスは清浄 Ar ガスで常時浄化されており、バックグラウンド値も刻々と変化するため、カバーガス・オンライン γ 線モニタで測定される ^{127}Xe (半減期は、清浄 Ar による浄化率 (半減期換算で約 3 日) より長い 37 日であり、バックグラウンドの変化のモニタに適する。) の放射能濃度変化を用いて、試料破断時の Xe バックグラウンドを補正した。

測定結果の例を図 4-13 に示す。良好な質量スペクトルが得られ、これより得られた Xe の同位体比をこの試験で用いた 6 種類のタグガスの同位体比と比較した結果を表 4-1 に示す。この表では、それぞれの同位体比分析値がタグガスの組成と近いものを網掛けしており、その結果から、No.2 のタグガスが放出されたものと判断できる。

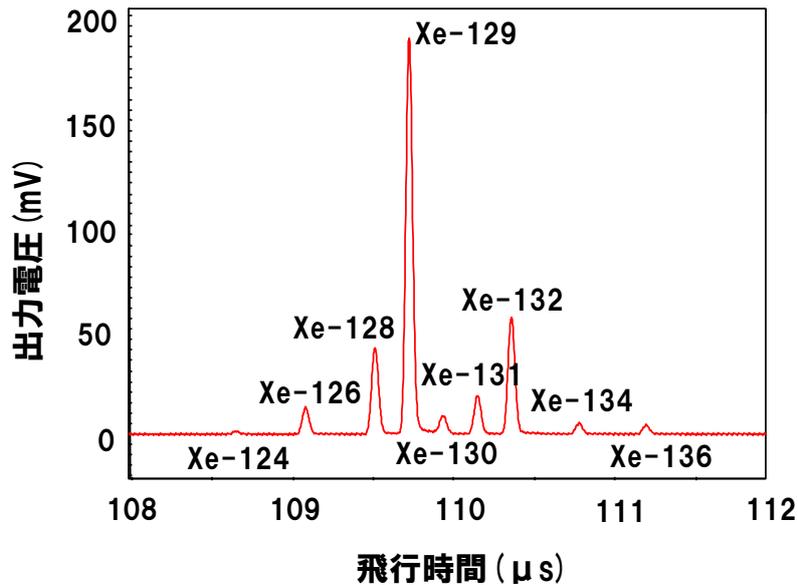


図 4-13 カバーガス中の Xe タグガスの分析例

表 4-1 タグガス分析によるクリープ破断試料の同定例

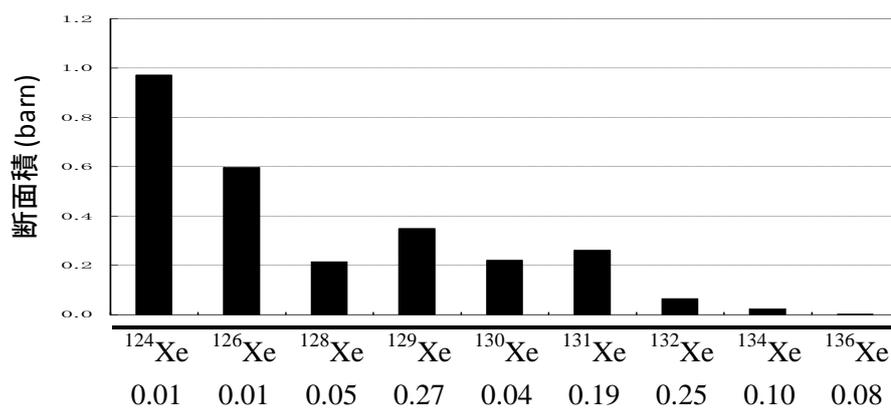
標識ガス 種類	Xe同位体の組成比 (Xe-129に対する比)		
	Xe-126	Xe-131	Xe-132
1	0.632	0.896	0.891
2	0.069	0.101	0.298
3	0.209	0.890	0.101
4	0.630	0.301	0.101
5	0.629	0.102	0.892
6	0.071	0.888	0.889
測定値	0.065	0.099	0.295

4.3.3 希ガスドシメトリーの適用性検討

この「常陽」の炉内クリープ破断試験を用いて、試料が破断するまでの中性子照射量を実際に測定し、本手法の原理実証を試みた。

本実験に用いたタグガスの同位体比を中性子捕獲断面積と併せて図 4-14 に示す。同位体比は、天然比とほぼ同一である。同位体比の変化としては ^{124}Xe の断面積が最大であるが、存在比が小さいため、変化量の絶対値としては不十分であり、最大となるのは、 $^{129}\text{Xe}(n,\gamma)^{130}\text{Xe}$ である。変換先の ^{130}Xe の存在比は ^{129}Xe の 1/7 程度であるので、 ^{129}Xe と ^{130}Xe の比の変化を検出するのがよい。このとき、中性子照射量は、式 4-7(あるいは式 4-6)により求められるが、実際には、より低質量数側の同位体からの中性子捕獲によるチェーン等を考慮し、図 4-15 に示すように ORIGEN2 による燃焼計算を行った。Xe の中性子反応断面積については、JENDL-3.3 核データライブラリ^[19]に基づく 103 群断面積を作成し、中性子輸送計算 DORT で求めた 103 群中性子スペクトルで縮約し、ORIGEN2 用 1 群平均断面積を作成した。これと、先の中性子スペクトルをエネルギー積分して求めた全中性子束、タグガスの初期組成、原子炉運転履歴(照射履歴)を入力データとして、ORIGEN2 による燃焼計算を行い、中性子照射量とタグガスの同位体比($^{130}\text{Xe}/^{129}\text{Xe}$)の関係を算出した。

タグガスの初期組成比(No. 1 の例*)と「常陽」燃料領域で縮約した(n, γ)断面積



※ タグガスは6種類用いたが、初期組成比はほぼ同一

図 4-14 ガスドシメトリー原理実証実験に用いた Xe ガスの組成と中性子断面積

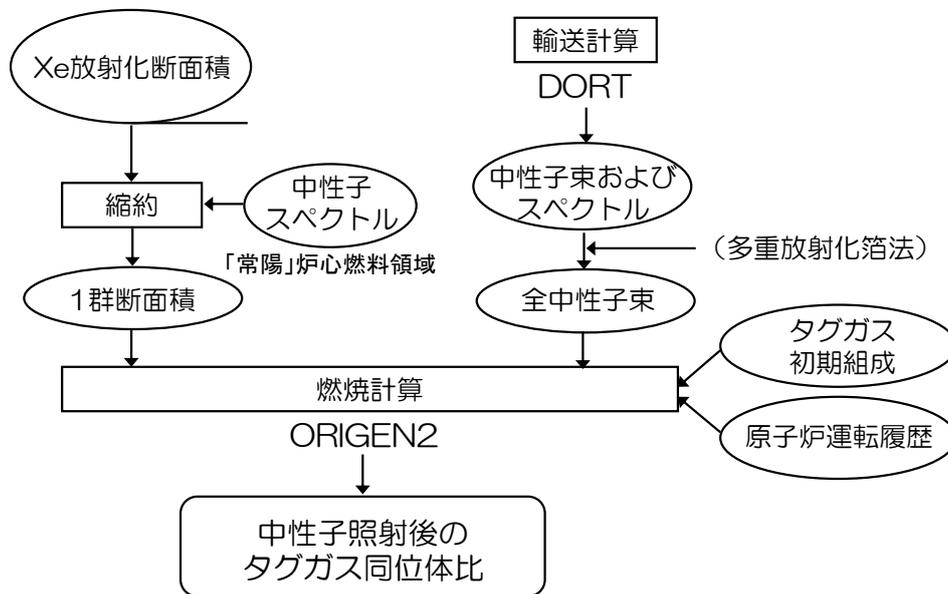


図 4-15 Xe タグガスの燃焼計算方法

「常陽」の炉内クリープ破断試験において、試料破断により放出された Xe ガスの同位体比を分析した。本試験では、1 カプセルあたり最大 8 試料を格納した 6 種類のカプセルを照射した。同一カプセルには全く同一の種類(組成)のタグガスが封入されており、図 4-16 に示すように、12 回の試料破断イベントに対して $^{130}\text{Xe}/^{129}\text{Xe}$ の測定値が得られた。 $^{130}\text{Xe}/^{129}\text{Xe}$ の初期組成比は、カプセルによって若干異なるが 0.133 ~ 0.143 であり、図 4-16 の縦軸は、照射後(試料破断時)の $^{130}\text{Xe}/^{129}\text{Xe}$ 同位体比を初期組成比で除した値で示した。

ここで、計算値の線が Tag No.1、No.2 と Tag No.3 ~ 6 の 2 グループに分けられるのは、Tag No.3 ~ 6 は軸方向で原子炉中心レベルで照射されており、一方、Tag No.1、No.2 は軸方向+25 cm で、燃料領域と上部反射対領域の境界であり、中性子束レベルが炉中心より低下しているためである。Tag No. 6 が中性子照射量 $5.6 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ で折れ曲がっているのは、ここで一旦照射を終了し、改めて第 2 号機の照射試験装置にて照射試験を再開したためであり、照射位置が変更されるとともに、この間に「常陽」は、高度化炉心への改造を行い、炉心の核特性も変化したためである。なお、この

5.6×10²⁶ n/m²までにおいては、一旦照射を終了し、照射装置を取出したことにより、一緒に照射した放射化箔のセットも取り出されたため、これによる多重放射化箔法ドシメトリを実施し、中性子スペクトルを実測反応率で調整し、前述の ORIGEN2 計算に用いている。

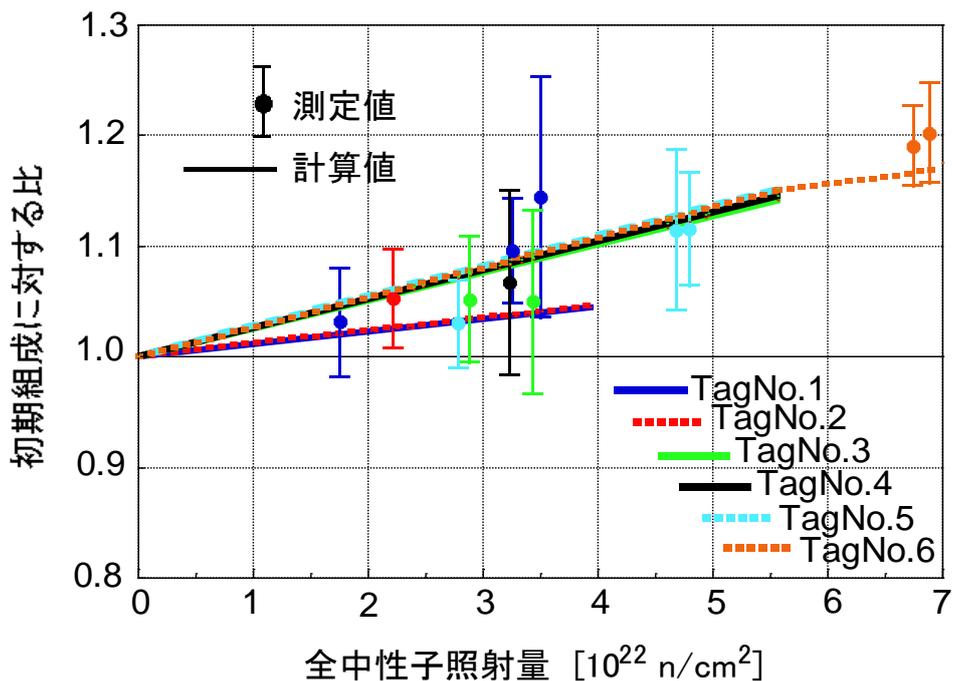


図 4-16 ¹³⁰Xe/¹²⁹Xe 同位体比の測定結果^[20]

ここで、最初から炉心上部で照射した Tag No.1、No.2 の結果については、照射が進むに従い、¹³⁰Xe/¹²⁹Xe の初期組成に対する比が実験値と計算値で乖離し(計算値が過小評価となる)、炉中心と燃料領域上端において、中性子束(の絶対値)のみならず、中性子スペクトルの違いが表れている可能性がある。そこで、放射化箔による実験データがあり、これによるスペクトル調整が行えた炉中心位置で照射した Tag No. 3 ~ 6 について、同位体比の測定値から中性子照射量を求めた。

中性子輸送計算により求めた中性子照射量をレファレンスとして、Xe ガス同位体比分析による中性照射量測定結果を図 4-17 に示す。質量スペクトルの測定精度については、単体の測定では、前述のとおり±0.75 %を達成しているが、それぞれについて、

試料破断によるタグガス放出前のバックグラウンド測定値を差し引く処理を行っており、さらに両同位体の比をとることによる誤差の伝播により、条件によっては誤差が拡大する。中性子照射量 $4.8 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ における実験値の誤差が 100 % 近くとかなり大きいのは、このときは、当該試料破断のすぐ直前にも別の試料が破断し、差し引くべきバックグラウンドが高濃度であったこと(しかも、その別試料の破断時のデータを取得できず、前々回までのデータから、カバーガス・オンライン γ 線モニタ等のデータで外挿してバックグラウンドを求めている。)、当該破断によるタグガスの放出率が小さく、その結果、放出前後の Xe 濃度の変化が微量であり、バックグラウンドを差し引くことにより誤差が大きく拡大したためである。しかし、これを除けば、 $^{130}\text{Xe}/^{129}\text{Xe}$ 同位体比の分析結果は、概ね測定誤差 $1 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ 程度で分析できており、輸送計算との差も概ねその誤差程度となった。

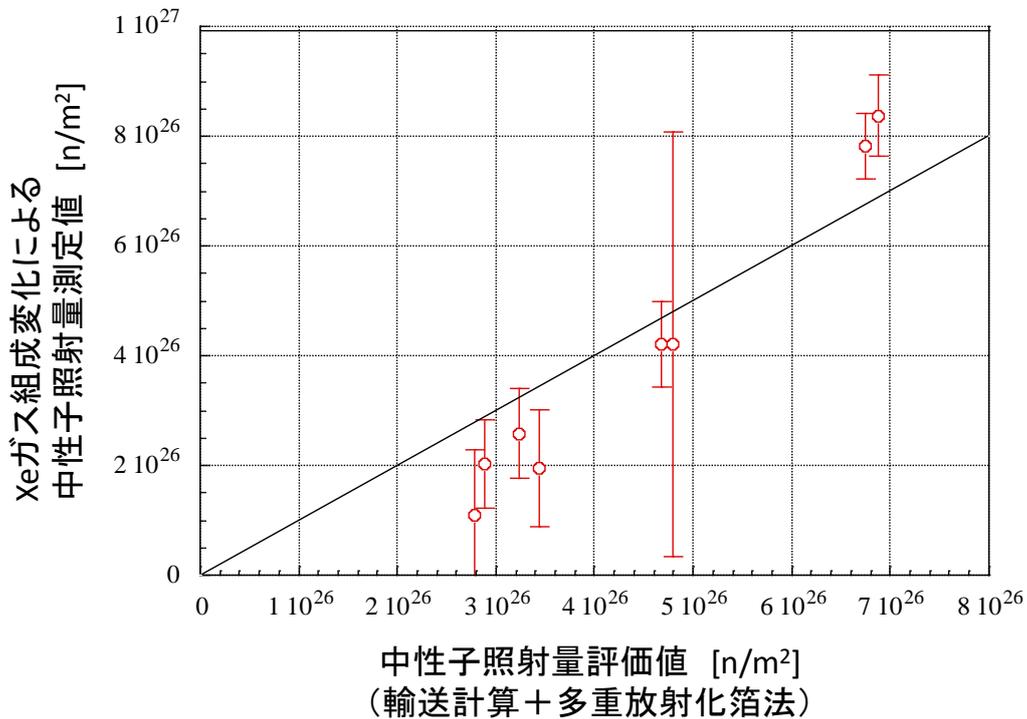


図 4-17 $^{130}\text{Xe}/^{129}\text{Xe}$ 同位体比分析による中性子照射量測定結果

本手法では、同位体比の初期組成からの変化分を測定するため、その測定誤差は相対誤差ではなく、中性照射量に比例する絶対値に支配され、本実験では上述のとおり概ね 1×10^{26} n/m²、本実験の最大照射量では、 $(8.4 \pm 0.7) \times 10^{26}$ n/m²との測定結果が得られ、この照射量は、定格出力換算の運転日数で 220 日（燃料交換等の計画停止を考慮すると、大雑把に 1 年程度）の積算である。ガスドシメリーのターゲットである数年～数十年のレンジに外挿すれば、測定誤差 5 % 以下の中性子照射量測定の可能性がある。さらに、照射前の初期同位体比について、¹²⁹Xe をより大きく、¹³⁰Xe をより小さくしておくことにより、照射による組成の変化幅が拡大するので、誤差の低減に寄与できる。

一方、図 4-17 を見ると、この実験のレンジで、輸送計算と実験値には、測定誤差程度の差が生じており、本実験の最大照射量の実験値は、計算値を 20 % 上回る結果となっている。タグガスの種類によっては実験値が計算値を下回っているものもあり、このばらつき具合からは、初期組成の誤差（不確かさ）の可能性があると考えられる。本実験に用いたガスの初期組成は、製造メーカーによる値（誤差データなし）のみであり、本研究前に照射試験を開始しており、RIMS 以外の他の手段でも未照射時の同位体分析が行われていなかった。本手法では、同位体比の初期組成からの変化分が中性子照射量に比例することを用いるため、初期組成とその誤差の正確な把握は重要であり、本手法を適用するに当たっての重要な要素一つである。

4.4 第 4 章のまとめ

本章では、ガスを用いた中性子照射量の測定法を提案し、炉容器内や炉利用気周辺の狭隘部において固体のドシメータの照射・取出しというプロセスに制限されないドシメリー法を検討した。中性子捕獲反応により複数の安定同位体を有するガスの同位体比が変化することに着目し、反応率の逆数に対して短時間の照射であれば、隣り合う同位体の存在比の変化量（初期の同位体と照射後の同位体比の差）がその中性子照射量に比例することを初めて示し、Xe ガスの安定同位体を用いることにより、数年～数十年オーダの長期照射量を測定する手法を初めて試みた。

測定技術に関しては、将来の実用化を念頭に置いて、多量のキャリアガス中に微量の Xe ガスを添加し、その同位体比を高精度で分析するため、RIMS を用いて、ppt オ

一ダの微量 Xe ガスの同位体比を分析できる装置を開発した。これを用いて、原理実証実験として、「常陽」の炉内クリープ破断試験で試料の破断に伴いカバーガス中に放出される Xe タグガスの分析に適用し、その同位体比を分析して、試料がクリープ破断するまでの中性子照射量測定を試みた。その結果、原子炉内での約 1 年間の中性子照射において、 $(8.4 \pm 0.7) \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ までの中性子照射量が測定でき、本手法による中性子照射量の測定原理が実証できた。今回の実験での比較的良好なケースから類推し、測定対象のガス(ガスドシメータ)の放出に伴う誤差要因(放出前のバックグラウンド等)を回避できれば、測定誤差約 10 % ($\sim 1 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$) で中性子照射量を測定できる見通しがあるものとする。

本手法の実用化に当たっては、タグガスの初期組成の適切な設定と正確な値(誤差を含む)の把握が必要であり、今回の実験のような「ドシメトリ用の」ガスを炉容器内に放出する方法は、実験誤差の拡大を招くので、例えば、専用のガスループを設置する等ドシメトリ方法を具体化していくことが必要である。そうして、実験誤差を低減させていく中で、中性子断面積や輸送計算の精度についても検討課題に挙げていき、ドシメトリ手法として確立していくことが今後の課題となる。

第 4 章の参考文献

- [1] K. Shibata, et. al., J. Nucl. Sci. Technol., **39** (2002) 1125
- [2] A. G. Croff, et. al., ORNL Report, ORNL-5621 (1980).
- [3] H. Harano, C. Ito, K. Watanabe and T. Iguchi, “Development of a RIMS-based FFDL system at the experimental fast reactor JOYO,” International Journal of Applied Electromagnetics and Mechanics, **14** (2001/2002) 307 - 310
- [4] M. G. Payne, et al., “Applications of Resonance Ionization Spectroscopy in Atomic and Molecular Physics,” *Adv. At. Mol. Phys.*, **17** (1981) 229 - 274
- [5] C. H. Chen, et al., “Isotopically Selective Counting of Atoms and Molecules Using Resonance Ionization Spectroscopy,” *Oxford University Press* (1990) 3
- [6] M. G. Payne, et al, “Applications of Resonance Ionization Mass Spectrometry,” *Rev. Sci. Instrum.*, **65** (1994) 2433 - 2459
- [7] K Watanabe, et al., “Application of Resonance Ionization Mass Spectrometry to

- Failed Fuel Detection and Location Technique for Fast Reactors,” *Journal of Nuclear Science and Technology*, **38** (2001) 844 - 849
- [8] K. Watanabe et al., “Development of Failed Fuel Detection and Location Technique using Resonance Ionization Mass Spectrometry: improvement of the detection limit with pulsed supersonic valve,” *Proc. 14th W. S. on Radiation Detectors and Their Uses*, KEK Proc., 2000-14 (2000) 183 - 190
- [9] L. A. Currie, “Limits for Qualitative Detection and Quantitative Determination,” *Analytical Chemistry* **40**, 3 (1968) 586 - 593
- [10] T. Aoyama and C. Ito, “Integral Test on Activation Cross Section of Tag Gas Nuclides Using Fast Neutron Spectrum Fields,” *Journal of Nuclear Science and Technology*, Supplement 2, **2** (2002) 1025 - 1028
- [11] C. Ito, E. Kagota and T. Aoyama, “Experimental Method of In-pile Creep Rupture behavior of ODS Cladding Materials in the Experimental Fast Reactor Joyo,” *Journal of Power and Energy Systems*, **2** [2] (2008) 620 - 632
- [12] C. Ito, E. Kagota, K. Ishida, R. Kitamura and T. Aoyama, “In-pile Creep Rupture Experiment of ODS Cladding Materials in the Experimental Fast Reactor Joyo,” *15th International Conference on Nuclear Engineering*, 22 - 26 April 2007, Nagoya, Japan
- [13] S. Ukai, et al., *Journal of Nuclear Science and Technology*, **39**, [7] (2002) 778 - 788
- [14] H. Kataoka, et al., *Journal of Nuclear Materials*, **258-263** (1998) 677 - 681
- [15] H. Harano and C. Ito, “Application of atmospheric pressure ionization mass spectrometry to cover gas analysis in fast reactors,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, **492** (2002) 317 - 323
- [16] C. Ito and H. Harano, “Innovative fast reactor fuel failure detection and location system by means of laser resonance ionization mass spectrometry,” *16th International Mass Spectrometry Conference*, 31 August - 5 September 2003, Edinburgh, Scotland, UK
- [17] 伊藤主税, 野瀬正一, “炉内クリープ破断検出方法”, 特許第 3790752 号, 2003 年 7 月 27 日出願, 2006 年 4 月 7 日登録
- [18] Y. Mitsui, et al., *Anal. Chem.* **55** (1983) 477

[19] K. Shibata, et. al., J. Nucl. Sci. Technol., **39** (2002) 1125

[20] C. Ito, T. Iguchi and H. Harano, "Irradiated Xenon Isotopic Ratio Measurement Using Laser Resonance Ionization Mass Spectrometry for Failed Fuel detection and Location in Fast Reactor," 13th International Symposium on Reactor Dosimetry, 25 - 30 May 2008, Akersloot, The Netherlands

第5章 結論

本章では、研究を通じて得られた成果、知見についてまとめ、今後の、高速中性子環境診断の高度化の展開について述べる。

5.1 結論

本研究では、高速中性子ドシメトリーにおいて数年～数十年の長期照射量を実測する方法の開発を行った。具体的には、長期照射量測定のパテンシャルを有する Nb ドシメータの実用化を妨げる妨害 X 線の問題に取り組むとともに、核変換生成物として飽和・減衰の生じない安定核種に着目し、 ^9Be 素子を用いた He 蓄積型中性子フルーエンスモニタを開発し、さらに、高速炉の計装にも用いている希ガスに着目し、中性子照射による Xe ガスの同位体組成変化から中性子照射量を測定するガスドシメトリーを提案し、その原理を実証した。

これらの研究により得られた成果は以下に要約される。

- (1) 高速炉の高速中性子照射量の測定に用いる Nb ドシメータの反応率測定手法を確立し、「常陽」の照射試験に適用した。Nb ドシメータの反応率測定については、ドシメータを溶解・乾燥固化処理することにより、低エネルギーの特性 X 線を高精度で測定するとともに、ICP-MS でその重量を精度良く求め、反応率測定値を得た。この手法を「常陽」のドシメトリーに適用し、反応率を測定して 0.1 MeV 以上の高速中性子照射量を求め、多重放射化箔法による中性子スペクトルから求めた高速中性子照射量と比較し、両者の測定誤差以下で一致した。これらより、Nb ドシメータによる高速中性子照射量測定法の信頼性が確認でき、高速中性子照射量が精度良く測定できることを確認した。
- (2) 反応生成物の半減期により、中性子照射量測定時間の上限が制限される放射化箔法に対して、反応生成物として安定核種である He を用いる HAFM 法を導入した。高速中性子照射量の測定用 HAFM 素子として ^9Be を選択し、HAFM の He 生成量を測定する質量分析装置を作成し、He 含有標準試料による校正法を開発して、He

測定誤差 5 % を達成した。本手法を「弥生」の標準中性子場にいける高速中性子照射量測定に適用し、 ^9Be 素子 HAFM により測定誤差 7 % で高速中性子照射量が測定できることを実証した。しかし、中性子スペクトルが低エネルギー側に若干シフトする実機高速炉である「常陽」の高速中性子照射量測定では、16 ~ 17 % 過大な測定結果となり、He 生成量測定値から中性子照射量求めるために必要な、1 群縮約した ^9Be の He 生成断面積(すなわち、断面積と中性子束及びスペクトル)の評価精度を向上させる必要があることを明らかにした。

- (3) ガスを用いた中性子照射量の測定法を提案し、炉容器内や炉利用気周辺の狭隘部において固体のドシメータの照射・取出しというプロセスに制限されないドシメトリ法を検討した。中性子捕獲反応により複数の安定同位体を有するガスの同位体比が変化することに着目し、反応率の逆数に対して短時間の照射であれば、隣り合う同位体の存在比の変化量(初期の同位体と照射後の同位体比の差)がその中性子照射量に比例することを初めて示し、Xe ガスの安定同位体を用いることにより、数年～数十年オーダの長期照射量を測定する手法を試みた。将来の実用化を念頭に置いて、多量のキャリアガス中に微量の Xe ガスを添加し、その同位体比を高精度で分析するため、RIMS を用いて、ppt オーダの微量 Xe ガスの同位体比を分析できる装置を開発した。これを用いて、原理実証実験として、「常陽」の炉内クリープ破断試験で試料の破断に伴いカバーガス中に放出される Xe タグガスの分析に適用し、その同位体比を分析して、試料がクリープ破断するまでの中性子照射量測定を試みた。その結果、原子炉内での約 1 年間の中性照射において、測定誤差約 10 % ($\sim 1 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$) で中性子照射量を測定でき、本手法による中性子照射量測定法の原理が実験的に確認できた。

5.2 今後の展望

前述のとおり、本研究では、時間微分量である中性子束及びスペクトルを測定する従来のドシメトリ法に対して、数年～数十年の長期間にわたる積算照射量(時間積分量)を実測するドシメトリ法を提案した。Nb ドシメータ、He 蓄積法、ガスドシメトリそれぞれの手法について、原理を実証し、さらには、限定された条件においてその評

価精度を示すことができたが、実用化レベルまで技術の完成度を高め、ドシメトリー技術を高度化させるためには、今後の研究の進展が必要である。

Nb ドシメータについては、典型的な高速炉スペクトル場においては、その手法を確立できたと言えるが、重要な原子炉構造材の放射化量評価対象の一つである炉容器周辺部は、中低速中性子の寄与が多い軟スペクトル場であり、 ^{182}Ta による妨害の身ならず、 ^{94}Nb による妨害の可能性がある。これは、不純物ではなく、ドシメータ物質自身である ^{93}Nb から生成され、 $^{93\text{m}}\text{Nb}$ より長半減期核種であるため、妨害 X 線の影響は本研究の成果を利用して評価できるが、除去については、放射性崩壊による減衰の手段が取れないため、新たな分離手法を検討する必要がある。その 1 手段として、超微細構造を利用したレーザ同位体分離が提案されており、近年の狭帯域半導体レーザの大出力化と発信波長域の拡大化の進展を鑑みると、将来実現できる可能性を切り開ける要素はあると考える。

He 蓄積法については、B 素子による広範囲のエネルギーの中性子照射量測定は測定誤差 7 %を達成し、原子炉構造材料のドシメトリーの要求を満足するレベルに達したが、高速中性子照射量を対象とする Be 素子について、B 素子と同レベルの測定精度を達成するためには、He 生成量測定値から中性子照射量求めるために必要な、1 群縮約した ^9Be の He 生成断面積(すなわち、断面積と中性子束及びスペクトル)の評価精度を向上させる研究が必要である。

ガスドシメトリーについては、手法の原理を実証し、測定対象のガス(ガスドシメータ)の放出に伴う誤差要因(放出前のバックグラウンド等)を回避できれば、測定誤差約 10 % ($\sim 1 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$) で中性子照射量を測定できる見通しを得たが、これを実用化させるにあたっては、タグガスの初期組成の適切な設定と正確な値(誤差を含む)の把握が必要となる。例えば、専用のガスループを設置する等、ドシメトリー方法を具体化し、実験誤差を低減させるとともに、中性子断面積や輸送計算の精度についても詳細な検討を進め、ドシメトリー手法として確立していくことが今後の課題となる。

第 1 章で述べたように、専用のドシメータがない状況における中性子照射量あるいは中性子照射量と直接相関のある物理量の測定要求が高まってきている。具体的には、原子炉運転開始以降の原子炉構造材の積算中性子照射量や He 損傷、弾き出し損傷の蓄積量等である。これらに対しては、原子炉構造材中の不純物 Nb の測定や構造材中の He 原子数の直接測定がその候補であり、本研究を発展させていくことにより、

それらの要求に応えられる技術体系の構築が期待できる。これは、ガスドシメトリーにおいても同様であり、具体例一つとしては、燃料から発生する FP ガスに着目するもので、これについては、燃料破損による放出された Xe ガス FP の同位体比を分析することにより、破損した燃料プロファイルを把握しようというもので、基礎的検討と予備実験を行った結果を付録に示す。測定精度の観点からは、今後本格的な研究が必要だが、可能性を示すことはできた

これらを含めて、個々の章で述べた精度向上等の課題を解決しつつ、中性子ドシメトリー技術が展開していくことが期待される。

謝辞

本研究を進め、また、本論文を執筆するにあたり、名古屋大学大学院工学研究科量子工学専攻の井口哲夫教授には、大学院入学前より共同研究等を通じてドシメトリ一研究にご指導、ご助言いただくとともに、入学後は、研究全般について、さらには、論文審査の主査としてご指導いただきました。論文審査の副査として、同研究科マテリアル理工学専攻の瓜谷章教授、大阪大学大学院工学研究科電気電子情報工学専攻の飯田敏行教授、名古屋大学大学院工学研究科量子工学専攻の秋本晃一准教授には、貴重なご意見、ご助言をいただきました。同専攻の河原林順准教授には、論文審査の副査としてのご意見に加え、研究室会等におきまして多大なご指導をいただきました。同研究科マテリアル理工学専攻の渡辺賢一准教授には、研究室会でのご指導に加え、レーザ共鳴イオン化質量分析法に関する共同研究を通じて、多大なご指導、ご協力をいただきました。同研究科量子工学専攻の富田英生助教には、研究室会や研究室での議論を通じて数々のご意見、ご指導をいただきました。浅井啓輔氏(現、中部電力株式会社)には、研究室会等での議論に加え、学位取得までのマイルストーンをご指導いただきました。同専攻量子ビーム計測工学研究グループの学生の皆様には、勤務先の仕事の合間を縫って通学した際に数多くの議論をさせていただき、研究遂行の励みになりました。とりわけ、ともにレーザ共鳴イオン化質量分析法を研究テーマに取り入れた樋口雄紀氏とは、技術的な議論を深め、お互いに切磋琢磨できたと思います。秘書の服部愛氏、小林麻衣氏には、多くの事務手続き等にご協力いただき、大学院生活を円滑に進めることができました。

本論文は、勤務先である日本原子力研究開発機構大洗研究開発センター高速実験炉部高速炉技術課で実施した研究の成果を含んでおり、高速実験炉部の鈴木惣十部長には、多大なご指導をいただくとともに、学位取得を勧めていただきました。また、同部の青山卓史研究主席(兼同部高速炉技術課長)には、個別の具体的な研究指導から各研究論文の執筆まで、多方面にわたりご指導いただきました。同課の歴代課長である大戸敏弘氏(現、敦賀本部高速増殖炉研究開発センター技術主席)、前田幸基氏(現、高速実験炉部次長)からは研究環境を与えていただくとともに、多くのご指導をいただきました。茶谷恵治氏(現、大洗研究開発センター計画管理室長)には研究テーマとその動機を与えていただき、数々のご助言をいただきました。関根隆

氏(現、高速実験炉部保全技術開発課長代理)には放射化箔法ドシメトリー及び He 蓄積法の研究に関し、多くのご助言、ご協力をいただきました。野瀬正一氏(現、ニシム電子工業株式会社)と服部和裕氏(現、三菱重工業株式会社)には、レーザ共鳴イオン化質量分析法を用いた実験と評価にご協力いただきました。石田公一氏(現、日立 GE ニュークリア・エナジー株式会社)には、原子炉を用いた試験から放射化箔の測定まで、「常陽」で実施した多くの実験にご協力いただきました。その他、高速実験炉部の方々には多方面にわたりお世話になりました。

産業技術総合研究所計測標準研究部門放射能中性子標準研究室の原野英樹主任研究員には、レーザ共鳴イオン化質量分析法をご教授いただき、ドシメトリー研究の幅を広げることができました。

九州大学の神田幸則氏(現、同大学名誉教授)と鷹尾良行氏(現、西日本工業大学工学部デジタルエンジニアリング工学科准教授)には、He 蓄積法の研究に関しまして多大なご指導、ご助言をいただきました。

東京大学大学院工学系研究科の故中澤正治教授には、ドシメトリーを含む計測技術全般にわたり大変有益な助言をいただきました。

以上の方々に篤く御礼を申し上げます。

最後に、社会人として勤務しながら大学院へ通学し、研究を行うことに理解していただいた家族に感謝いたします。

2009年7月

伊藤主税

付録 核分裂生成物ガスの同位体計測による燃料プロファイル診断

第 4 章では、ガスドシメトリとして、Xe ガスをドシメータに使い、中性所照射による組成変化から中性照射量を測定する手法を提案した。ここで、専用の Xe ガス(第 4 章の原理実証実験ではタグガス)を原子炉燃料に置き換えれば、中性子反応生成物は、すなわち核分裂生成物(FP)であり、これには Xe ガスも含まれる。したがって、燃料から発生する FP ガスの分析により、原子炉燃料の中性子照射量、すなわち燃焼度を測定できる。この原理の実践的な応用として、高速炉における破損燃料の絞り込みが挙げられる。これは、燃料被覆管が破損すると、その中から FP ガスが放出され、冷却材 Na を通過して Ar カバーガスに移行するので、カバーガス中の Xe 分析により破損した燃料の燃焼度を推定する方法である。

「常陽」で採用されている SHIPPING 法は、主に軽水炉で採用されている手法と同一の原理であり、カップリング治具(SHIPPING ボート)を燃料集合体頂部に密着させ、燃料集合体内の圧力を変えることにより FP ガスを含んだ冷却材ナトリウムを上方に吸引し、これにアルゴンガスを吹き込んで、中に含まれる FP ガスを Ar ガス中に移行させ、NaI シンチレーションカウンタで検出する。これは、原子炉停止後、1 集合体ずつ順次測定してくが、「常陽」の燃料は最大 85 体あり、24 時間連続測定しても約 2 日間を要する。一方、「常陽」では、1 回の燃料交換で約 14 ~ 15 体の新燃料を装荷する。上記の FP ガス分析により、燃料プロファイルを把握し、燃焼度を推定できれば、いつの燃料交換後から照射(燃焼)が開始されたかが分かり、被疑破損燃料集合体を 85 体から 15 体に絞り込むことができ、その後の SHIPPING 法を行う順序の決定に役立つ。

FP ガスには、当然ながら放射性核種と安定核種があり、安定核種は照射(燃焼)に伴い燃料ピン内に蓄積していくが、放射性核種は、半減期に応じて飽和し、ほぼ一定値となる(図 付 1)。そこで、燃料破損時に炉容器カバーガス中へ放出される核分裂生成物(FP)ガスの同位体比を分析し、放射性核種と安定核種の比から破損燃料の燃焼度を推定して被疑破損燃料を絞り込む手法の適用性を検討した。

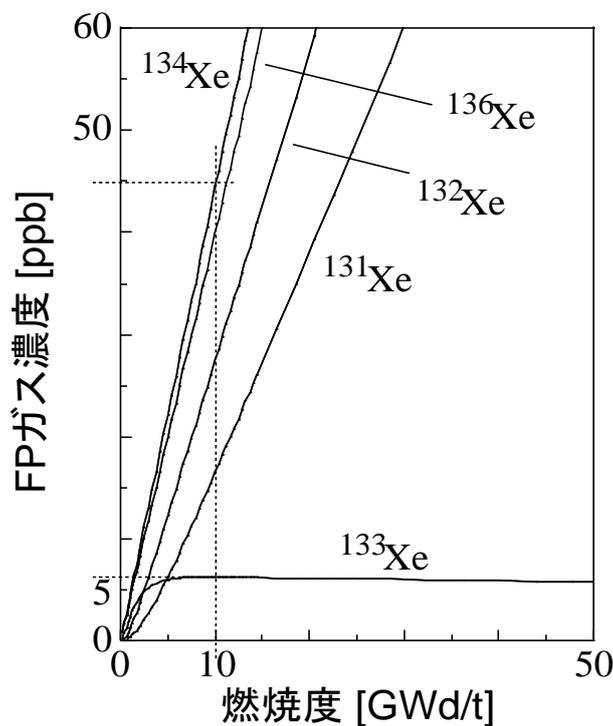


図 付 1 燃料破損時の炉容器カバーガス中 FP 濃度(「常陽」の計算例)

「常陽」で実施した燃料破損模擬試験(図 付 2)において、RIMS により、希ガス FP である Xe の同位体比分析を行った^[1,2]。本試験では、「常陽」MK-III 炉心用 U-Pu 混合酸化物(MOX)燃料の被覆管のガスプレナム部にスリットを設けて初期欠陥が生じたことを模擬した試験燃料を照射し、出力上昇中に燃料破損を検知して原子炉を停止した。本試験に用いた燃料の燃焼度は約 0.1GWd/t であった(図 付 3)。原子炉停止から 9 日後、試験燃料から放出されたガスをサンプリングし、Xe の同位体比を分析した。

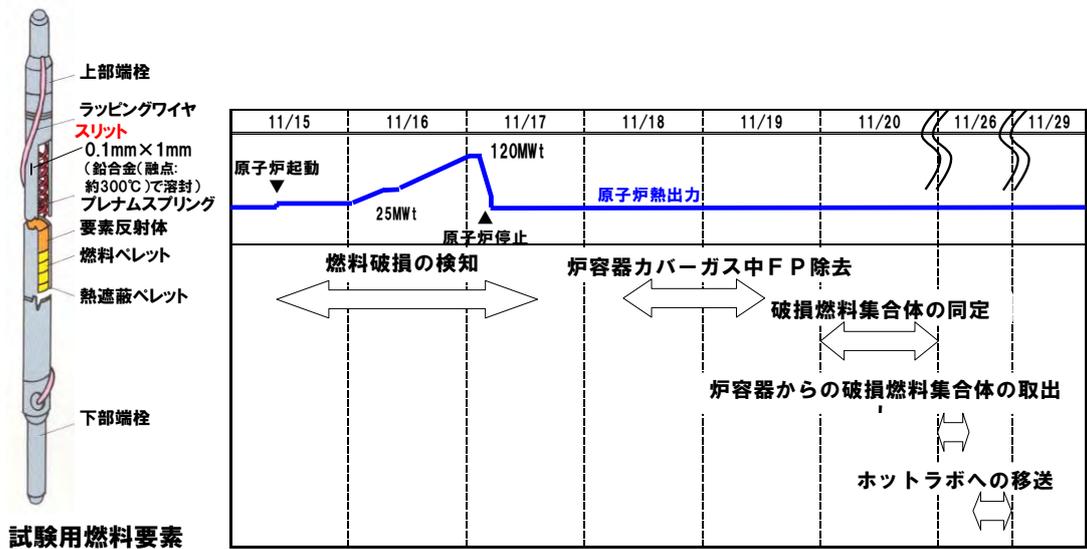


図 付 2 「常陽」における燃料破損模擬試験の概要

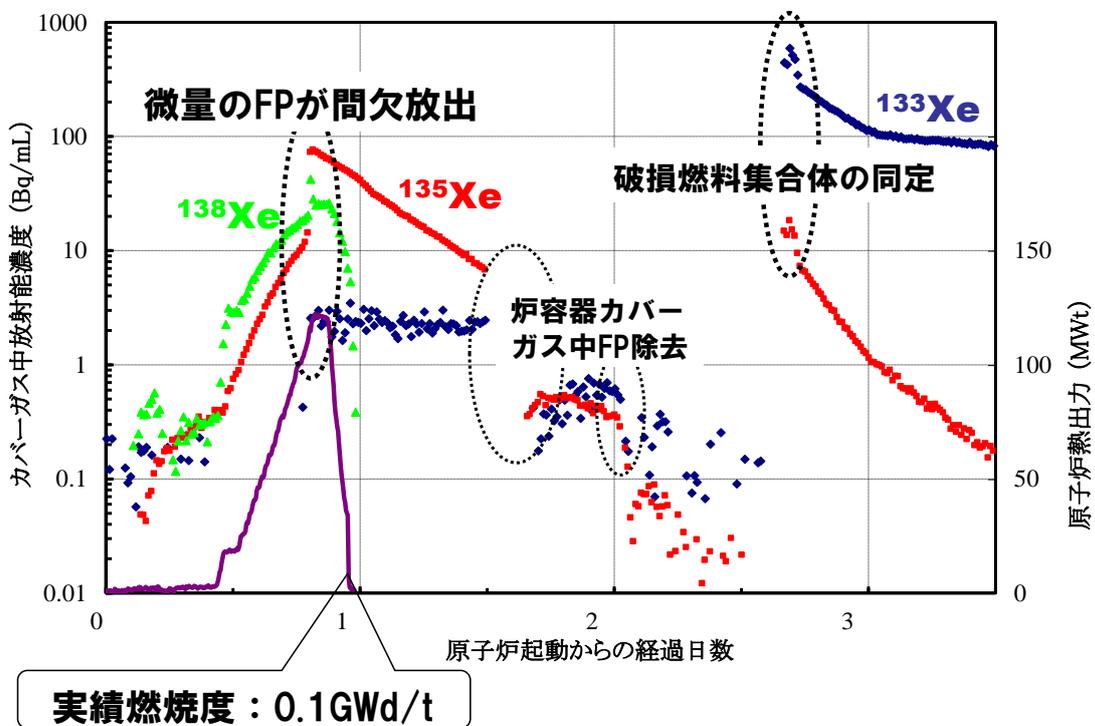


図 付 3 炉容器カバーガス中 FP 放射能濃度測定結果

サンプリングした炉容器カバーガスの分析で得られた Xe の質量スペクトルを図 4 に示す。RIMS により、放射性的の ^{133}Xe と安定 Xe 同位体の質量ピークを高分解能 ($M/\Delta M = 600$) で分析できた。Xe ガス FP の同位体比の算出においては、 ^{129}Xe の FP 生成量は $^{132}\text{Xe} \sim ^{136}\text{Xe}$ のそれより 6 桁程度少ないため、 ^{129}Xe のピークは炉容器カバーガスの主成分であるアルゴンに微量含まれる空気中の Xe (天然組成) のバックグラウンド成分が検出されたものとみなして、 ^{129}Xe が 0 となるように、各ピークから天然組成成分を差し引いた。ゲルマニウム半導体検出器による放射線計測で得られた ^{133}Xe の絶対濃度は 19 ppt であり、極微量の希ガス FP を濃縮することなく、同位体濃度 $10^1 \sim 10^2$ ppt の Xe を測定誤差 4 ~ 12 % で同位体比分析できた。

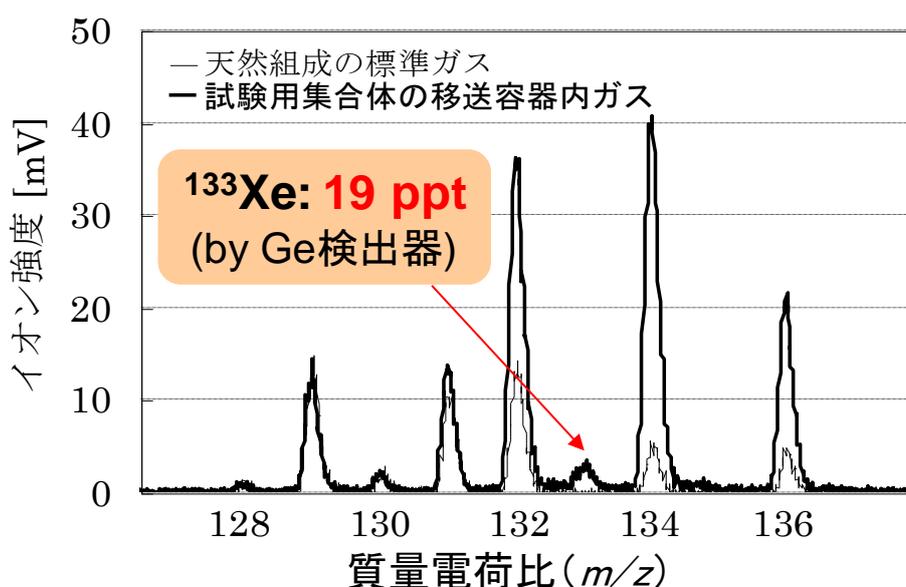


図 4 RIMS による破損燃料移送容器内のガス中の Xe 同位体分析結果

燃焼計算コード ORIGEN2^[3] を用いて FP 生成量を計算し、 ^{133}Xe に対する安定 Xe の同位体比を求め、RIMS による分析値と比較した。核分裂及び捕獲等の反応断面積は、JENDL-3.3^[4] を用いて「常陽」の炉心燃料領域の中性子スペクトルで 1 群に縮約したものを、核分裂収率及び燃焼チェーンに係る核データは JNDC V2 ライブラリ^[5] を用いた。

表 付 1 に示すように、 $^{132}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$ 、 $^{134}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$ は、計算値が測定値より 30 % 程度過小評価となった。これは、Xe の親核種である I の一部が燃料ペレット中に保持されたままであること、また、Na 中に溶解して Ar カバーガス(さらには燃料移送容器内雰囲気)に移行しない分もあることにより、親核種の半減期が相対的に長い ^{133}Xe が過大評価された(半減期は、 ^{132}I : 2.3h、 ^{133}I : 21h、 ^{134}I : 53min)と考えられる。

表 付 1 RIMS による FP ガス同位体比測定値と計算値の比較

同位体	計算 (C)	測定 (E)	C/E
$^{132}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$	4.45	6.94 ± 0.33	0.64
$^{134}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$	6.91	10.07 ± 0.41	0.69
$^{136}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$	6.07	4.51 ± 0.19	1.34

一方、 $^{136}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$ については、逆に計算値が 30 % 過大評価となった。 ^{135}Xe は中性吸収効果が大きく、計算では、FP として生成された ^{135}Xe が中性子を捕獲して ^{136}Xe に変換する反応も考慮している。この反応は、 ^{135}Xe が生成して燃料ペレットから放出され、中性子束レベルが低く、スペクトルも異なる(相対的に低エネルギー中性子が増加する)ガスプレナム部(燃料ピン内の最上部で、軸方向で燃料領域より上部)に移行する比率は多いと考えられる。しかし、燃焼計算は、燃料の照射位置の中性子束及びスペクトルを用いており、 $^{135}\text{Xe}(n,\gamma)^{136}\text{Xe}$ 反応を過大評価する。 ^{136}Xe の過大評価が前述の ^{133}Xe の過大評価を上回ったものと考えられる。

上記のとおり、核分裂により生成された FP の同位体比を分析することにより燃料の燃焼度を推定する手法は、原理的には確認することができたが、燃料ペレット→冷却材 Na→Ar カバーガスと移行するその挙動に起因する大きな誤差が明らかになり、原子炉の系統内を移行する FP をドシメトリーにおける被測定対象物質とするためには、要求される精度(本研究の例では、被疑破損燃料の絞り込みにおいて、燃料交換時期を特定できるレベル)を踏まえてそれら誤差要因の定量的な解明が必要となる。

付録の参考文献

- [1] K. Ishida, C. Ito, et al., “Fuel Failure Simulation Test in the Experimental Fast Reactor JOYO,” Proceedings of GLOBAL 2005 International Conference Nuclear Energy Systems for Future Generation and Global Sustainability, 9 - 13 October 2005, Tsukuba, Japan (2005)
- [2] C. Ito, K. Hattori, K. Ishida and H. Harano, “Ultratrace Fission Product Gas Nuclide Measuring System for Failed Fuel Detection and Location in Fast Reactor,” European Nuclear Conference, 11 - 14 December 2005, Versailles, France
- [3] A. G. Croff, et. al., ORNL Report, ORNL-5621 (1980)
- [4] K. Shibata, et. al., J. Nucl. Sci. Technol., **39** (2002) 1125
- [5] K. Tasaka, J. Takakura, H. Ihara, et al., JNDC Nuclear Data Library of Fission Products—Second Version, JAERI-1320, (1990).

本論文を構成している発表論文

I. 学会誌等

- 1) T. Aoyama, C. Ito and S. Suzuki, “Current Status and Upgrading Activity of Reactor Material Dosimetry in the Experimental Fast Reactor “JOYO”,” Reactor Dosimetry, World Scientific (1998) 302 - 310
- 2) H. Harano, C. Ito, K. Watanabe and T. Iguchi, “Development of a RIMS-based FFDL system at the experimental fast reactor JOYO,” International Journal of Applied Electromagnetics and Mechanics, **14** (2001/2002) 307 - 310
- 3) 伊藤主税, 関根隆, 青山卓史, 鷹尾良行, 神田幸則, 井口哲夫, “速炉ドシメトリ一用He蓄積型中性子フルーエンスモニタの開発”, 日本原子力学会和文論文誌, **1** [1] (2002) 48 - 58
- 4) T. Aoyama and C. Ito, “Integral Test on Activation Cross Section of Tag Gas Nuclides Using Fast Neutron Spectrum Fields,” Journal of Nuclear Science and Technology, Supplement 2, **2** (2002) 1025 - 1028
- 5) H. Harano and C. Ito, “Application of atmospheric pressure ionization mass spectrometry to cover gas analysis in fast reactors,” Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, **492** (2002) 317 - 323
- 6) C. Ito, T. Sekine and T. Aoyama, “Development of Helium Accumulation Fluence Monitor for Fast Reactor Dosimetry,” Reactor Dosimetry in the 21st Century, World Scientific, (2003) 150 - 157
- 7) C. Ito, E. Kagota and T. Aoyama, “Experimental Method of In-pile Creep Rupture behavior of ODS Cladding Materials in the Experimental Fast Reactor Joyo,”

II. 国際会議

- 8) C. Ito, T. Sekine and T. Aoyama, “Development of Helium Accumulation Fluence Monitor for Fast Reactor Dosimetry,” 11th International Symposium on Reactor dosimetry, 18 - 23 August 2002, Brussels, Belgium

- 9) C. Ito and H. Harano, “Innovative fast reactor fuel failure detection and location system by means of laser resonance ionization mass spectrometry,” 16th International Mass Spectrometry Conference, 31 August - 5 September 2003, Edinburgh, Scotland, UK

- 10) C. Ito, K. Hattori, K. Ishida and H. Harano, “Ultratrace Fission Product Gas Nuclide Measuring System for Failed Fuel Detection and Location in Fast Reactor,” European Nuclear Conference, 11 - 14 December 2005, Versailles, France

- 11) C. Ito, E. Kagota, K. Ishida, R. Kitamura and T. Aoyama, “In-pile Creep Rupture Experiment of ODS Cladding Materials in the Experimental Fast Reactor Joyo,” 15th International Conference on Nuclear Engineering, 22 - 26 April 2007, Nagoya, Japan

- 12) C. Ito, S. Maeda, S. Sekine and T. Aoyama, “Improvement of Measurement Technique of Niobium Reaction Rate for Fast Reactor Dosimetry,” 13th International Symposium on Reactor Dosimetry, 25 - 30 May 2008, Akersloot, The Netherlands

- 13) C. Ito, T. Iguchi and H. Harano, “Irradiated Xenon Isotopic Ratio Measurement Using Laser Resonance Ionization Mass Spectrometry for Failed Fuel detection and Location in Fast Reactor,” 13th International Symposium on Reactor Dosimetry, 25

- 30 May 2008, Akersloot, The Netherlands

III. その他

14) 伊藤主税, 野瀬正一, “炉内クリーブ破断検出方法”, 特許第3790752号, 2003年7月27日出願, 2006年4月7日登録

15) 伊藤主税, 助川一弥, 吉川和伸, “Nb ドシメータの放射化量測定方法”, 特許第3845638号, 2004年3月8日出願, 2006年8月25日登録

本論文の第1章は 1) を、第2章は 1), 12), 15) を、第3章は 1), 3), 6), 8) を、第4章は 2), 4), 5), 7), 9), 11), 13), 14)を、付録は 10) をそれぞれ参考に行している。