

## 核不拡散・保障措置・核セキュリティ連絡会セッション

## 福島第一原子力発電所デブリの計量管理技術の現状と今後

## Status and Future Prospects on Technologies for Material Accountancy of Fuel Debris in Fukushima-Daiichi Nuclear Power Station

## (2) 燃料デブリ計量管理のための非破壊測定技術の課題と方策

## (2) Issues and measures of non-destructive assay technologies for material accountancy of fuel debris

\*奥村 啓介<sup>1</sup><sup>1</sup>原子力機構 廃炉国際共同研究センター (CLADS)

## 1. はじめに

東京電力HD 福島第一原子力発電所(1F)からの本格的な燃料デブリの取出しに向けて、原子力機構では大学や他の研究機関と連携し、格納容器(PCV)内に分布する燃料デブリの探査技術開発の他、容器に収納された燃料デブリ内の核燃料物質を非破壊測定により評価する技術、あるいは、燃料デブリと廃棄物を仕分けする技術の開発を進めている。本講演では、1F燃料デブリの特殊性に起因するこれらの技術開発における課題とその課題解決のための候補技術や技術開発の現状について報告する。

## 2. 格納容器内の線量率分布と燃料デブリ探査技術

1F各号機のPCV内における燃料デブリの分布と性状は、東京電力HDと国際廃炉研究開発機構(IRID)を中心に進められており[1]、1Fの事故進展解析、TMI-2燃料デブリや模擬燃料デブリの分析、ロボットを使った内部調査等により徐々に明らかにされつつあるが、未だ実際の1F燃料デブリの分布や性状が確認されているわけではなく、今後の内部調査の進展や燃料デブリ採取と分析に期待が寄せられている。

原子力機構では、これまでの事故進展解析や内部調査等の結果を利用して、PCV内のガンマ線の線量率分布予測をモンテカルロ法による放射線輸送計算により行っている[2]。図1は、各号機に対する最近の解析結果の例を示したものである。PCV内の主なガンマ線源は、1) 溶融燃料から放出された<sup>137</sup>Cs、2) 事故前に燃料集合体または炉内構造物中の微量不純物の放射化により生成された<sup>60</sup>Co、および3) 原子炉压力容器(RPV)底部及びペDESTAL内外に存在していると考えられている燃料デブリである。これらの解析結果から推測されることは、従来の内部調査に使用されてきた小型の線量計(付与エネルギー領域全体で積分された電気信号)によるガンマ線測定だけでは、汚染Csと燃料デブリの区別は容易ではなく、PCV内の燃料デブリの分布を線量率だけから予測することは難しきであろうという点である。

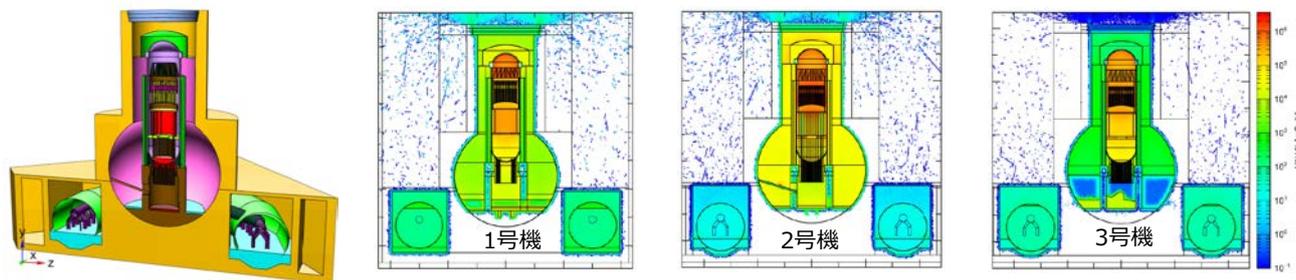


図1 PCV内線量率計算モデルと2021年3月時点の線量率分布予測結果の例

PCV内の燃料デブリ分布を効率的に探査するためには、汚染Csと区別できる燃料デブリ特有の放射線を検知する方法が有効であり、それらは以下のものが考えられる[3]。

\*Keisuke Okumura<sup>1</sup><sup>1</sup>Japan Atomic Energy Agency, Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science

- $^{134}\text{Cs}$  や  $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ) による放出ガンマ線とその散乱線の影響が少ない約 1MeV 以上のアクチニド核種との随伴性が期待できるランタノイド核種が放出するガンマ線の検知。例えば、 $^{154}\text{Eu}$  の 1.27 MeV や  $^{144}\text{Ce}$  ( $^{144}\text{Pr}$ ) の 2.19 MeV などが候補に挙げられるが、 $^{144}\text{Ce}$  の半減期は 285 日で長期間にわたっては使えないため、 $^{154}\text{Eu}$  の 1.27 MeV ガンマ線の検知が有力な候補となる。検出器は、号機や探査部位に依存して図 1 に示した線量率以上の耐放射線性が求められ、 $^{60}\text{Co}$  の 2 本のガンマ線 (1.17 MeV, 1.33 MeV) と区別可能なエネルギー分解能を有することが求められる。
- 中性子線の検知。主に  $^{244}\text{Cm}$  が放出する僅かな自発核分裂中性子、それによる誘起核分裂中性子、アクチニド核種の  $\alpha$  崩壊による ( $\alpha, n$ ) 反応により発生する中性子のいずれも燃料デブリ起因と判断できる。中性子束のレベルは、ウラン濃度が比較的高い燃料デブリ組成を想定すると、 $10^5/\text{cm}^2/\text{s}$  程度と推察されるが、探査部位や燃料デブリの性状によっては、ウラン濃度が低い場合も考えられるため、高いガンマ線環境下で  $10^2/\text{cm}^2/\text{s}$  程度の検出限界は必用と考えられる。
- ( $n, \gamma$ ) 反応や ( $n, f$ ) 反応に起因する比較的高いエネルギー領域に発生するガンマ線の検知。例えば、水没した燃料デブリの近くであれば、 $\text{H}(n, \gamma)$  反応による 2.2 MeV の捕獲ガンマ線などが検出できる可能性がある。

いずれの方法にしても、PCV 内で利用するためには、小型軽量、耐放射線性、高検出効率、エネルギー分解能、高圧電源不要、などの多くの制約条件があり、これらの条件を満足する検出器開発は、現在 IRID の他、CLADS が運営する公募研究事業「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」[4]などで研究開発が進められている。

### 3. 1F 燃料デブリの非破壊測定技術の課題

PCV 内から取出した燃料デブリを対象とする非破壊測定技術に期待されるのは、保障措置対応、臨界安全性評価、燃料デブリ・廃棄物仕分け、処理処分のための核種インベントリ評価など数多くあるが、現在のところ既存の非破壊測定装置を 1F 燃料デブリにそのまま適用することは困難であり、1F 燃料デブリに適用できる非破壊測定技術は世界的に見ても研究開発段階にある。これは、以下のような多くの課題による[5]。

#### 【放射線計測に係る課題】

- 1)  $^{137}\text{Cs}$  や  $^{60}\text{Co}$  等によるバックグラウンド(BG)ガンマ線レベルが非常に高く、ホットセル内遠隔操作により BG からデブリ特有放射線の弁別が必要。
- 2) BG ガンマ線やデブリ特有放射線の強度範囲が広く、計測システムの放射線遮蔽の最適化が困難。
- 3) 収納容器の径が大きくなるほど、ガンマ線の自己遮蔽効果は大きく、中性子透過率は小さくなる。
- 4) 中性子吸収材(ボロン, 可燃性毒物(Gd), 燃料デブリ取出し作業時に投入される臨界防止材)が多く含まれる場合には、熱中性子の計測が妨げられる。
- 5) 燃料デブリ取出しが長期化すると比較的短い半減期の放射線は検出できなくなる可能性がある。
- 6) 高ガンマ線と低中性子線の混合場による試験フィールドの準備が容易でない。
- 7) 性状や組成が多様な燃料デブリに対する検量線の作成方法の検討が必要。
- 8) 手法に依存して、核燃料物質がある場合でもそれを検出できない場合がある(例えば未燃焼燃料)。

#### 【測定量から核燃料物質質量評価に係る課題】

- 9) 使用済み燃料と異なり収納容器中の総ウラン量の把握が困難
- 10) 本格取出しでは、収納容器毎のサンプリング分析による組成把握は期待できない。
- 11)  $^{244}\text{Cm}$  実効質量などの測定量から間接的にウランやプルトニウム量を評価する手法の開発が必要。
- 12) 初装荷炉心で約 3 ヶ月後に事故が発生した TMI-2 炉心と異なり、平衡サイクル炉心の燃料が熔融混合しており、燃焼度範囲が広い(0~50 GWd/t)ため、燃焼計算による組成把握が困難。
- 13) 汚染 Cs の BG により、従来の Cs 核種を含む燃焼度相関の利用は期待できない。
- 14) 回収した燃料デブリの組成が炉心平均組成の周りに分布しない可能性がある。
- 15) 基礎的な実証試験でも核燃料物質取り扱い施設を利用する必要がある。

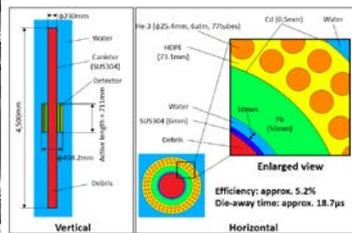
#### 4. 燃料デブリの核燃料物質質量評価を目指した非破壊測定技術の開発

直近の少量燃料デブリ取出しを想定した核燃料物質質量評価を目的とした測定技術としては、レーザー誘起ブレイクダウン発光分光法(LIBS) [6]や、可搬型高エネルギーX線源を用いた2色X線CTスキャン[7]などが検討されている。しかしながら、取出し燃料デブリの量が多くなるほど、あるいは大型容器に燃料デブリが収納された条件においては、これらの技術の適用は困難になると考えられる。このため、原子力機構では、図2に示す4つの非破壊測定技術を大型の燃料デブリ収納缶を対象とした非破壊測定技術の有力な候補として考え、機構内の他部署や他機関と協力して、非破壊測定技術の開発検討をモンテカルロシミュレーションベースで行ってきた[8~10]。その結果、それぞれの候補技術には一長一短があるため、取出し部位での性状や用途に応じて適切な技術を選定あるいは複数手法を組み合わせることが必要と判断された。

##### パッシブ中性子法 (パッシブ中性子同時計数法)



MOX燃料用非破壊測定装置  
(JAEA/プルトニウム燃料技術開発センター)

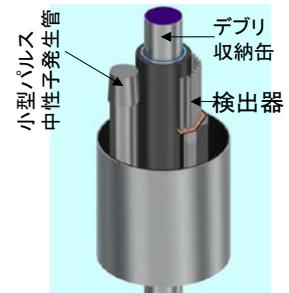


デブリ収納缶非破壊測定  
シミュレーションモデル

##### アクティブ中性子法 (高速中性子直接問いかけ法)

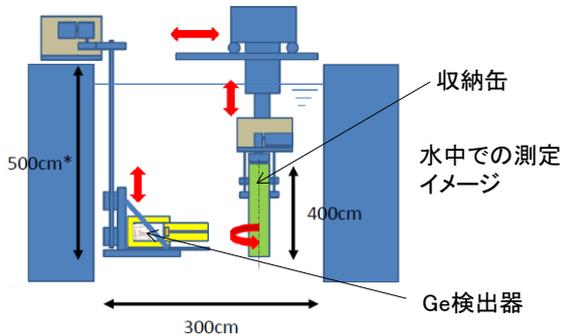


ウラン廃棄物用(JAEA人形峠)  
の非破壊測定装置

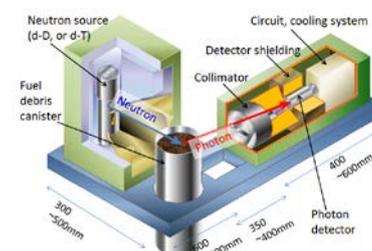


高速中性子直接問いかけ法による  
デブリ収納缶非破壊測定装置

##### パッシブガンマ法 (随伴FPγ線測定法)



##### アクティブガンマ法 (NIGS法) 電力中央研究所



NIGS (Neutron Induced Gamma Spectrometry)  
法によるデブリ収納缶NDA測定体系イメージ

図2 燃料デブリ収納缶の計量管理を目指した非破壊測定候補技術

例えば、アクティブ中性子法(高速中性子直接問いかけ法)は、上記の4手法のうち、唯一核分裂性核種の量を直接測定可能な方法であるが、原理的に容器内での熱核分裂により発生する高速中性子の容器からの漏洩を測定するため、容器内にボロンやガドリニウムなどの熱中性子吸収材が多く存在する場合には、測定自体ができないケースがありえる。一方、パッシブ中性子法は、 $^{244}\text{Cm}$ の自発核分裂中性子による高速中性子の漏洩量を測定し、容器内の中性子吸収や中性子増倍は2次的な補正量としての扱いをするため、中性子吸収材があってもロバストな測定が可能といった利点がある反面、測定量である $^{244}\text{Cm}$ 実効質量からウラン・プルトニウム量を燃焼計算の結果などを利用して間接的に評価する必要があり、測定量の精度が良くても間接評価の段階で大きな評価誤差を生じる欠点がある。また、パッシブガンマ法(随伴FPγ線測定法)は、燃料デブリ中のユーロピウム元素がウラン・プルトニウムと随伴していることを予めサンプリング燃料デブリの破壊分析などにより良く確認しておく必要がある。また、精度の良い計量管理に利用するためには、燃焼度が異なる混合燃料系に対する新しい燃焼度評価式の開発や、ガンマ線の多様な燃料デブリによる自己遮蔽効果の影響評価手法の開発などが必要とされる。アクティブガンマ法(NIGS法)は、今のところ計量管理に対する実

用実績はなく、核データや理論計算に頼るところも多いため、実核燃料物質を用いた要素試験などにより燃料デブリへの適用性を良く確認しておく必要がある。

これらの非破壊測定技術開発では、未臨界形状(直径 20cm 程度)の燃料デブリ収納缶を想定したシミュレーションで検討を行ってきたが、燃料デブリ取出しのスループットを向上させるため、収納容器サイズを更に大きくすることも期待されており、その場合には、容器に収納する前に単一ユニットとして十分な未臨界度が維持されることを確認するための測定も必要になってくる。この測定手法については、IRID により開発が進められている燃料デブリ取出し時の臨界近接監視手法(ファイマン $\alpha$ 法など)を炉外にも応用することが考えられるが、未臨界度が直接測定できなくても、上記で述べたような非破壊測定法により、取出した燃料デブリが無限体系で未臨界組成であることを確認する方法も有効と考えられる。

## 5. 燃料デブリと廃棄物仕分け方法の提案

容器に収納された燃料デブリや廃棄物の効率的な長期保管や処理・処分の観点から、PCV 内から取出される燃料デブリとそれ以外の廃棄物とを仕分ける技術開発も期待されている。図 3 は、その概念提案を示したものである。この概念では、PCV 内の放射線測定やカメラ映像等を含む内部調査結果やサンプリング分析結果により、予め各号機の部位ごとに臨界危惧の有無を判定し、 $\alpha$  汚染は有っても確実に臨界危惧が無いと判断される部位については、臨界近接監視などを行わないなるべく迅速な取出し方法を適用する。取出し物質に対しては、ガンマ線の簡易測定に基づいて遮蔽厚が異なる大型の廃棄物容器を選定して収納し、アクティブ中性子法を適用する。臨界危惧や中性子吸収材が含まれると予想される部位(主に燃料デブリ)については、形状未臨界の細形容器に収納し、簡易的なガンマ線や中性子線測定に基づいて事前仕分けをし、最後にパッシブ中性子法とアクティブガンマ法によるウラン・プルトニウム量の粗い評価を行って、2 種類の燃料デブリに仕分けすることとしている。燃料デブリに対しては、保障措置への対応ができる評価精度は得られないかもしれないが、燃料デブリを遅滞なく取出すための一方策として提案するものである。

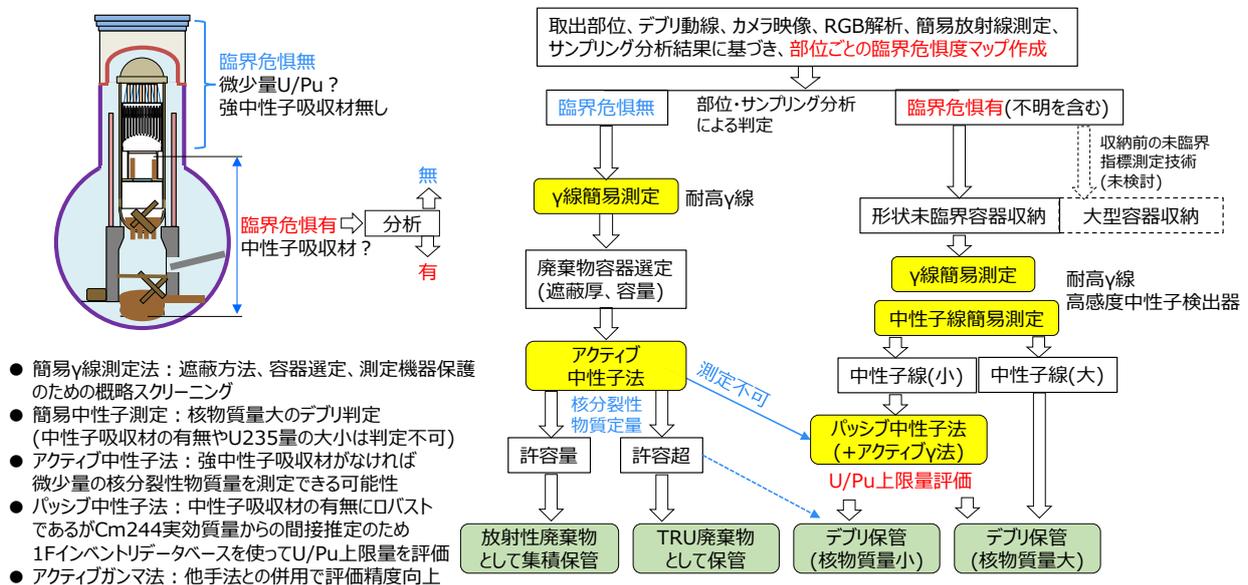


図 3 燃料デブリと廃棄物仕分けの概念提案

## 6. おわりに

燃料デブリの本格取り出しに向けて、PCV 内燃料デブリの検知技術、燃料デブリ・廃棄物仕分け技術、容器に収納された燃料デブリ中の核燃料物質量の評価技術の開発が期待されている。各技術開発の課題は同様なものが多いが、難易度はこの順番に格段に大きくなっていく。これらの技術開発でキーになると考えられるのは、今後実施が予定されている少量燃料デブリのサンプリングとその組成分析と考えている。例えば、ア

クティブ中性子法を適用する場合には、号機及び部位毎の中性子吸収材の有無やその濃度、パッシブ中性子法などの間接評価手法の適用を考える場合には、 $^{154}\text{Eu}$  や  $^{244}\text{Cm}$  等の測定対象核種とウラン・プルトニウムとの随伴性や、非破壊測定対象核種と評価対象核種量の相関関係の把握が重要と考えられる。

燃料デブリの非破壊測定技術の開発検討は、これまでは主にモンテカルロシミュレーションで行ってきた。多様な燃料デブリを想定したモックアップ試験の実施は、実際の燃料デブリの性状や組成の不確かさが大きい現状では、高額投資の判断が難しい状況にある。そこで、原子力機構の施設や装置を活用し、実核燃料物質を用いた非破壊測定法の要素試験が行える試験フィールドの整備を近年中に進める計画である。

---

#### 【参考文献】

- [1] IRID, 研究開発公開資料, <http://irid.or.jp/research/>
- [2] K. Okumura, E.S.Riyana, W. Sato, et al., “A method for the prediction of the dose rate distribution in a primary containment vessel of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station,” *Progress in Nucl. Sci. and Technol.* 6, pp.108-112, (2019).
- [3] E. S. Riyana, K. Okumura, K. Terashima, “Calculation of gamma and neutron emission characteristics emitted from fuel debris of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station,” *J. Nucl. Sci. and Technol.*, 56, 922 (2019).
- [4] 廃炉国際共同研究センター, 「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」  
<https://fukushima.jaea.go.jp/hairo/task/>
- [5] 奥村啓介, 寺島顕一, 長谷竹晃, 他, “燃料デブリ収納缶の核物質計量を目指した非破壊測定技術の課題,” 日本原子力学会 2019 年春の年会予稿, [2F09].
- [6] 赤岡克昭, 大場正規, 宮部昌文, 他, “レーザー誘起ブレイクダウン発光分光法によるウランスペクトルの測定 - 高分解能分光スペクトル (470-670nm) - ,” *JAEA-Research 2016-005* (2016).
- [7] 小沢壺生, 三津谷有貴, 土橋克弘, 上坂充, 阿部弘享, 芝知宙, “可搬型 950keV/3.95MeV X 線源を使用した燃料デブリ内部の U/Pu 濃度推定に関する研究,” 日本原子力学会 2019 年春の年会予稿 [1G04].
- [8] 長谷竹晃, 能見貴佳, 米田政夫, 芝知宙, 名内泰志, 奥村啓介, 他, “福島第一原子力発電所における燃料デブリ中の核燃料物質定量に関する候補技術の特性研究, 日本原子力学会 2017 年春の年会 [2D18~2D23]、2017 年秋の大会 [3L14~3L17].
- [9] T. Nagatani, M. Komeda, T. Shiba, et. al., “Characterization Study of Four Candidate Technologies for Nuclear Material Quantification in Fuel Debris at Fukushima Daiichi Nuclear Power Station,” *Energy Procedia*, 131, 258 (2017).
- [10] M. Maeda, K. Furutaka, M. Kureta, et.al., “Simulation study on the design of nondestructive measurement system using fast neutron direct interrogation method to nuclear materials in fuel debris”, *J. Nucl. Sci. and Technol.*, 56, 617 (2019).