

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

|                   |   |
|-------------------|---|
| 題目(和文)            | 燃料デブリ中のプルトニウム定量のためのパッシブ中性子非破壊測定技術の研究  |
| Title(English)    |   |
| 著者(和文)            | 長谷竹晃  |
| Author(English)   | Taketeru Nagatani   |
| 出典(和文)            | 学位:博士(工学),<br>学位授与機関:東京工業大学,<br>報告番号:甲第12581号,<br>授与年月日:2023年9月22日,<br>学位の種別:課程博士,<br>審査員:相樂 洋,小原 徹,林崎 規託,木倉 宏成,片淵 竜也   |
| Citation(English) | Degree:Doctor (Engineering),<br>Conferring organization: Tokyo Institute of Technology,<br>Report number:甲第12581号,<br>Conferred date:2023/9/22,<br>Degree Type:Course doctor,<br>Examiner:,,,,, |
| 学位種別(和文)          | 博士論文  |
| Category(English) | Doctoral Thesis   |
| 種別(和文)            | 要約  |
| Type(English)     | Outline   |

令和5年度 博士課程学位論文

燃料デブリ中のプルトニウム定量のための  
パッシブ中性子非破壊測定技術の研究

東京工業大学

環境・社会理工学院 融合理工学系 原子核工学コース

長谷 竹晃

指導教員 相楽 洋 准教授

## 論文要約

福島第一原子力発電所の廃炉を進めていく上では、原子炉内の構造物と燃料が過熱し溶けて冷えて固まったもの（燃料デブリ）の適切な核物質管理の実施が必要である。そこで本研究では、燃料デブリ中のプルトニウム定量の課題を指摘した上で、これらを解決するパッシブ中性子非破壊測定技術を提案し、数値解析及び実証試験により本技術の有効性や不確かさを定量的に明らかにし、適切な核物質管理や廃炉作業に貢献する重要な技術となり得ることを示した。

第1章「序論」では、本研究の背景として、核物質管理において非破壊測定技術の開発が強く求められている社会的ニーズを述べ、福島第一原子力発電所の廃炉を進めていく上では燃料デブリ中の核物質の定量が重要であるが、既存技術を用いた測定が技術的に困難であることを指摘し、多様な中性子源を持つ燃料デブリからプルトニウムの直接情報を外部線源を用いずに取り出すパッシブ中性子非破壊測定技術を提案した上で、数値解析により、提案した手法の不確かさを評価し、燃料デブリ中のプルトニウム定量への適用性を明らかにするとともに、模擬燃料デブリ試料を用いた試験により、要素技術の原理を実証するという本論文の目的を述べた。

第2章「燃料デブリ中のプルトニウム定量手法の提案」では、燃料デブリ自身から放出される中性子情報を活用して、燃料デブリ中のプルトニウムを定量するにあたり、従来開発されてきている健全な使用済燃料集合体に対する非破壊測定技術では、燃料デブリ性状の多様性に伴う中性子漏れ増倍率の不確かさ及び燃焼度の多様性に伴う中性子放出源核種割合の不確かさが課題である点を指摘した上で、これらの課題を解決する技術を提案した。はじめに、中性子漏れ増倍率評価技術として、自発核分裂中性子とそれによる誘発核分裂

中性子の消滅時間の違いに着目し、燃料デブリ中の誘発核分裂性核種や中性子減速・吸収材の影響下においても、中性子漏れ増倍率を適切に評価することが期待できる Differential Die-Away Self-Interrogation (DDSI) 法の適用を提案した。つぎに、燃焼度の多様性に伴う中性子放出源核種割合を特定するため、主な自発核分裂中性子放出核種である Cm-244 と自発核分裂プルトニウム核種の半減期が異なることに着目し、時間間隔を空けた中性子計測により Cm-244 実効質量を 2 回測定することによって Cm-244 および Pu-240 実効質量を定量する Differential Half-life of Spontaneous Fission Nuclides (DHS) 法を新たに考案した。さらに、DDSI 法により得た中性子漏れ増倍率を用い Cm-244 実効質量を定量し、DHS 法により Pu-240 実効質量を定量したうえで、燃焼計算で得た重量組成比及び DHS 法で取得した Cm-244 量/Pu-240 実効質量比から、プルトニウムを定量する手法 (DDSI-DHS 法) を考案した。

第 3 章「中性子漏れ増倍率評価手法の適用性評価」では、第 2 章にて提案した DDSI 法の中性子漏れ増倍率測定への適用性評価を行った。まず、収納缶内の燃料デブリ (燃料、構造材、中性子吸収材等) と雰囲気物質 (水または空気) を均質化したモデルを構築し、収納缶から放出される中性子同時計数値と Cm-244 実効質量の相関を評価した結果、乾式貯蔵については、中性子吸収効果は無視できる程度であり、既に確立された技術により中性子増倍率評価が可能であるものの、湿式貯蔵については、中性子吸収効果が大きく、中性子同時計数値が大きく変動するため、中性子漏れ増倍率評価には DDSI 法の適用を検討する必要があることを見出した。湿式貯蔵の燃料デブリ中の燃料、構造材、水、中性子吸収材等の組成をパラメータとし、DDSI 応答値と中性子漏れ増倍率を評価した結果、両者の間に強い相関関係が確認され、中性子漏れ増倍率評価に対する DDSI 法の有効性を明らかにした。つぎに、収納缶内で燃料デブリの位置感度解析を行った結果、湿式貯蔵では最大で 71%、乾式貯蔵では最大で 2% の不確かさを有し、円柱状の燃料デブリなど容器内で

極端に偏在する恐れがある場合、湿式貯蔵では大きな不確かさが生じる恐れがあることを指摘した。さらに、収納缶内をボクセル化しランダムに燃料、構造材、中性子吸収材、水等を配置した不均質なモデルを構築し、塊状の燃料デブリ中の Cm-244 実効質量定量の不確かさを評価した結果、乾式貯蔵及び湿式貯蔵でそれぞれ約 4% 及び約 8% であった。湿式貯蔵については、単純な中性子同時計数値を用いた評価と比較して、DDSI 法を用いることにより不確かさを 1/4 程度に低減できることを明らかにした。

第 4 章「DDSI 法による中性子漏れ増倍率測定の実証」では、DDSI 法による中性子漏れ増倍率測定の実証試験を行った。MOX 試料の周辺にホウ酸粉末及び Cf-252 線源を配置することにより燃料デブリを模擬した試料を中性子非破壊測定装置により測定した結果、DDSI 応答値と中性子漏れ増倍率の間に強い相関関係を確認し、DDSI 法による中性子漏れ増倍率評価の不確かさが、IAEA が定める非破壊測定目標精度と比較して十分に小さいことから、燃料デブリのように中性子増倍・吸収双方の効果が存在する測定体系に対する中性子漏れ増倍率評価に DDSI 法が有効であることを実証した。

第 5 章「自発核分裂中性子源特定手法の開発及びプルトニウム定量への適用性」では、第 2 章にて考案した DHS 法による燃料デブリ中自発核分裂中性子源特定手法を開発し、Pu-240 実効質量及びプルトニウム定量への適用性を評価した。まず、事故直後からの経過時間をパラメータとし Cm-244 実効質量を評価し、各核種からの中性子放出数及び割合を評価した結果、事故直後は Cm-242 から放出される中性子の割合は多いものの、事故後 10 年が経過すると Cm-242 の影響は無視でき、概ね Cm-244 の半減期に従い減少することを明らかにした。次に、Pu-240 実効質量の不確かさを評価した結果、偶然誤差については、2 回の測定間隔を長く取るほど改善し、燃焼度の増加及び水の存在により悪化することを明らかにした。系統誤差については、燃焼に伴い増加し長半減期を有する Cm-246 の影響に

より、最大 80%程度過大評価することを見出した。この過大評価を解決するため、DHS 法で測定可能な短半減期核種（主に Cm-244）と長半減期核種（主に Pu-240 及び Cm-246）の重量比と燃焼計算の組み合わせにより、Cm-246 を定量し、Pu-240 実効質量を補正する手法を新たに考案した。本補正手法を適用した結果、燃料デブリ中の Pu-240 実効質量の系統誤差は、20%以内に改善することを明らかにした。さらに、乾式貯蔵の燃料デブリ中のプルトニウム定量の不確かさを評価した結果、32 年間の測定間隔をとった場合、不確かさが最も悪化すると想定される大量の低燃焼度組成と微量の高燃焼度組成が混在する組成に対しては 40%程度過小評価するという課題はあるものの、それ以外の組成に対しては全誤差 10%以内でプルトニウム定量が可能であり、燃料デブリ中のプルトニウム定量への DDSI-DHS 法の高い適用性を明らかにした。

第 6 章「パッシブ中性子非破壊測定技術の総合評価」では、第 2 章から第 5 章までの議論で得られた知見を基に、提案したパッシブ中性子非破壊測定技術の福島第一原子力発電所 1 号機への有効性を評価するとともに、反映すべき方策や検討すべき課題について議論した。まず、燃料デブリと放射性廃棄物の仕分け技術としての有効性を評価した結果、Cm-244 実効質量を定量したうえで、炉心平均組成比によりプルトニウム量を評価した場合、その系統誤差は-99.6~97.6%と非常に大きいものの、プルトニウムの検出下限は数百 mg オーダーであり、仕分けに求められる水準と比較し十分に小さいため、仕分け技術として活用できることを明らかにした。次に、核物質管理技術としての有効性について評価した結果、32 年の測定間隔をとった DDSI-DHS 法のプルトニウム定量の不確かさは-40~10%であり、炉心平均組成比から評価した不確かさ（-99.6~97.6%）を大幅に改善することを明らかにした。さらに、本技術の保障措置への適用性を評価した結果、物質不明量の不確かさの精度要求に応えることは困難であるものの、封じ込め監視と組み合わせることにより、ベストエフォートの計量管理及び査察側が行う再検認に適用可能であり、保障措置結論導出のために重

要な技術となりうることを明らかにした。以上のことから、本技術は、適切な核物質管理や廃炉作業に貢献する重要な技術となり得ることを示した。

第7章「結論」では、各章によって得られた結果を総括し、本論文の結論とした。本論文は、燃料デブリ中のプルトニウム定量の課題を指摘した上で、これらを解決する DDSI 法及び DHS 法を提案し、数値解析や実証試験によりこれらの技術の有効性や不確かさを定量的に明らかにし、適切な核物質管理や廃炉作業に貢献する重要な技術となり得ることを示した。