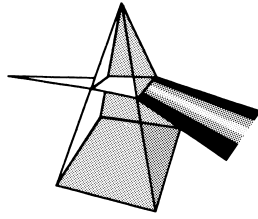


ガラス固化体非破壊測定装置の開発



中谷 隆良 吉岡 正弘 小坂 哲生

早川 剛* D. H. Beddingfield*¹

東海事業所 再処理センター 環境保全部
*東海事業所 再処理センター 技術部
*ロスアラモス国立研究所

The Development of Vitrified Waste Coincidence Counter

Takayosi NAKATANI Masahiro YOSHIOKA Tetsuo KOZAKA
Tsuyoshi HAYAKAWA D. H. BEDDINGFIELD*

Waste Management Division, Tokai Reprocessing Center, Tokai Works

*Technology Co-operation Division, Tokai Reprocessing Center, Tokai Works

*¹Los Alamos National Laboratory

ガラス固化技術開発施設（TVF）で製造される高レベル放射性廃液のガラス固化体の保障措置終了の検認を行うため、ガラス固化体中の核物質量を定量することができる非破壊測定装置（VWCC）を JNC / DOE 保障措置協定に基づき、ロスアラモス国立研究所と共同で開発した。

本装置の測定方法は、主に Cm - 244 から放出される自発核分裂中性子を検出して Cm - 244 の量を測定し、一方廃液の分析から得られた Cm - 244 / Pu 比及び Cm - 244 / U 比を用いて間接的に Pu 量及び U 量を測定するものである。

本装置は、セル内のガラス固化体の測定位置近傍に配置された 5 本の ³He 中性子検出器、セル外に配置された計数装置、測定するガラス固化体の ID を取得するデジタルカメラ、そしてこれらを制御するコンピュータで構成されている。この測定操作は、非立会いで行われ、査察官はコンピュータに蓄積されたデータを定期的に回収することで検認が出来るよう設計されている。

Under an agreement between JNC and DOE, a vitrified waste coincidence counter (VWCC) capable of measuring the quantity of nuclear material in vitrified waste was developed in cooperation with Los Alamos National Laboratory (LANL) for the termination of safeguards of vitrified waste. This counter is capable of measuring neutron emissions from Cm-244 and calculating the masses of plutonium and uranium using Cm/Pu and Cm/U ratios that are derived from the DA of high level liquid waste. The VWCC consists of a detector head (five He-3 tubes shielded by lead, tungsten and polyethylene), two shiftresisters, a digital camera to photograph ID numbers and two computers. The measurements are taken and the data is stored automatically, and the Agency is able to verify the termination of safeguards by taking data on periodical work.

キーワード

ガラス固化体，保障措置，非破壊測定，共同研究，Cm-244，Pu，自発核分裂中性子

Vitrified Waste, Safeguard, Non-Destructive Assay, Development Cooperation, Cm-244, Pu, Coincidence Neutron



中谷 隆良
処理第三課所属
研究員
TVF の保障措置，
開発運転に従事
第一種放射線取扱
主任者



吉岡 正弘
環境保全部次長
ガラス固化技術開
発施設の運転管理
等に従事
核燃料取扱主任者



小坂 哲生
処理第三課所属
課長代理
ガラス固化技術開
発施設の運転管理
等に従事
核燃料取扱主任者



早川 剛
核物質管理室所属
副主任技術員
再処理センターの
保障措置業務に従
事
第一種放射線取扱
主任者

1. はじめに

東海事業所のガラス固化技術開発施設（Tokai Vitrification Facility：以下、TVF）は、再処理工場にて使用済燃料を再処理した際に発生する高放射性廃液（以下、HALW）のガラス固化に関する技術開発を行う施設である。

ガラス固化体は、高さ1040mm、直径430mmのステンレス製の円筒型容器にHALWとガラス原料を溶融混合したものを注入・密封したものである。

HALWは核物質を含んでいることから、国際原子力機関（以下、IAEA）による保障措置の対象となっている。TVFで製作するガラス固化体を保障措置の適用から除外するには、ガラス固化体中の核物質濃度が基準に合致しているか確認する必要がある。そのため、ガラス固化体に含まれる核物質の確定手法の検討が求められていたことから、サイクル機構（JNC）/ 米国エネルギー省（以下、DOE）保障措置協力協定に基づき、ロスアラモス国立研究所（Los Alamos National Laboratory：以下、LANL）と共同でガラス固化体非破壊測定装置（Vitrified Waste Coincidence Counter：以下、VWCC）を開発し、導入した。

2. VWCC 導入の経緯

再処理工場の高放射性廃液貯蔵所に貯蔵されているHALWは、保管廃棄物として通常査察の対象外となっている。

HALWをTVFにて廃液状態から固体状態へ形態を変更することから、高放射性廃液貯蔵場からTVFへ送液する時に保管廃棄物再生手続により再び在庫に計上されることとなっている。

INFCIRC / 153に規定されている保障措置終了基

準の明確化及び保障措置の合理化の観点から、廃棄物に対する保障措置の終了を巡っては、1988年よりIAEAでは専門家会合が開催され保障措置の終了基準（廃棄物の形態、核物質の濃度基準）が協議された。

しかし、最終的にはIAEAは1994年6月に廃棄物に含まれる核物質の保障措置終了に関する暫定的なガイドラインとしてポリシーペーパーを発行した。この中で、高放射性廃液についてはガラス固化体が保障措置を終了できる形態となり、また1994年11月に出示されたTVFに対するSafeguards Approachに、ガラス固化体内容物の測定に非破壊測定を適用することが明記された。

これを達成するために、JNC/DOE保障措置協力協定に基づき、LANLと共同で、VWCCを開発し、査察機器として導入することとなった。

図1にVWCCに関わる開発スケジュールを示す。

本共同研究は1995年7月にサイクル機構及びDOE双方で調印がなされ開発を開始し、1998年1月には、TVFへの設置前にサイクル機構による作動確認と最終的な要求事項を確認するためLANLにて現地作動試験を行った。その結果を反映した後、1998年11月にTVFに搬入、設置した。

その後、2回の改良を行い、現在までガラス固化処理運転においてフィールドテストを実施してきている。

3. 測定原理

3.1 U, Pu/Cm 244比を用いた間接的な定量方法

VWCCの目的は、ガラス固化体中に含まれる核物質（Pu及びU）の定量である。

非破壊による核物質測定手法としては、線ス

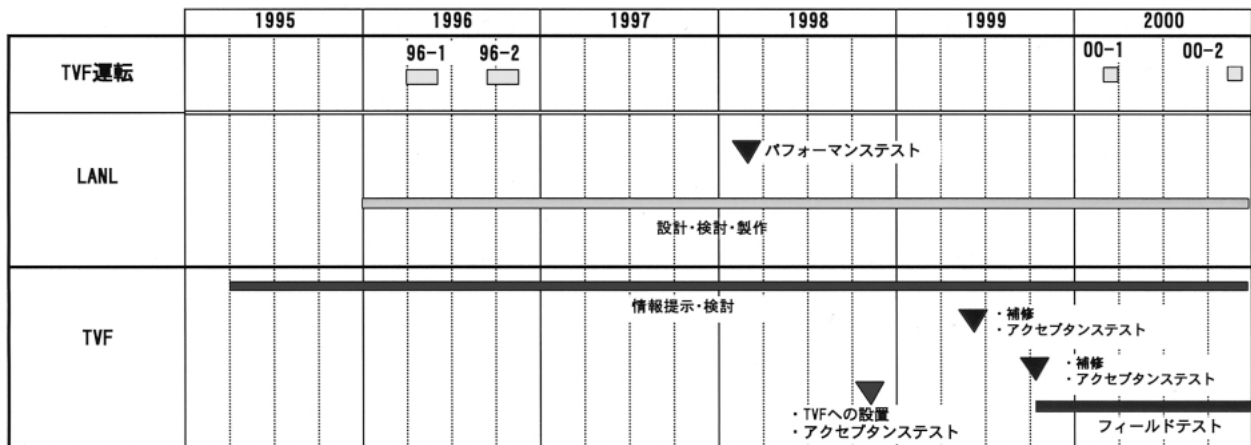


図1 VWCC 開発スケジュール

ベクトロメトリや中性子によるパッシブ及びアクティブ法があるが、測定対象であるガラス固化体に含まれる核分裂生成物からの線や Cm 244 の中性子線の影響が大きく、目的の核種を直接測定することは困難である。

そこで、VWCC は Cm 244 から生ずる自発核分裂中性子を測定し、ガラス固化体に含まれる核物質を間接的に定量する手法を採用した。

この方法でガラス固化体に含まれる核物質の定量を行うためには VWCC で測定した Cm 244 と Pu 及び U との比が既知である必要がある。この比は、TVF の受入槽にて HALW を受け入れた際に行う廃液サンプルの濃度分析により求められる。

TVF に受け入れた HALW は、ガラス固化体の品質管理のため、組成調整 (Na 添加) 及び濃度調整が行われるが、Pu/Cm 比及び U/Cm 比に影響を及ぼすような化学的処理を行う工程がないことから、本測定法が適用可能となる。¹⁾

3.2 中性子の同時計数法

HALW の状態では、約 87% の中性子が Cm 244 からの自発核分裂中性子によるものである。しかしガラス固化体に処理されると、ガラス原料の成分であるホウ素等と、Am 241 や Cm 244 から放出されるアルファ線との (α, n) 反応により発生する中性子の影響が大きくなり、Cm 244 からの自発核分裂中性子の割合は、全体の約 67% に減少し、

測定に影響を与えることとなる。そこで (α, n) 反応による中性子と区別するため、Cm 244 からの自発核分裂中性子を測定する同時計数法を適用した。ガラス固化体中に含まれる核種で、ほかに自発核分裂するものには Pu 240 等がある。しかし、ORIGEN コードによる処理直後 (炉取出し後 5 年) の廃液の評価では中性子の放出率に 10^3 倍以上の差があり、処理後相当の時間が経過していても、Pu 240 による影響は、十分無視することができる程度である。

3.3 定量手順

TVF における VWCC を用いた核物質定量の手順は以下のとおりである。

高放射性廃液貯蔵場から TVF に HALW を移送した際、受入槽にて HALW のサンプルを採取し、分析により Pu、U 及び Cm 244 の濃度を求める。

ガラス固化体を測定場所に設置し、VWCC による中性子測定を行い、Cm 244 を定量する。

の定量結果に得た濃度に基づく Pu/Cm 244 比及び U/Cm 244 比を乗じて Pu 及び U を算出する。

TVF の主要工程の中での査察ポイントを図 2 に示す。

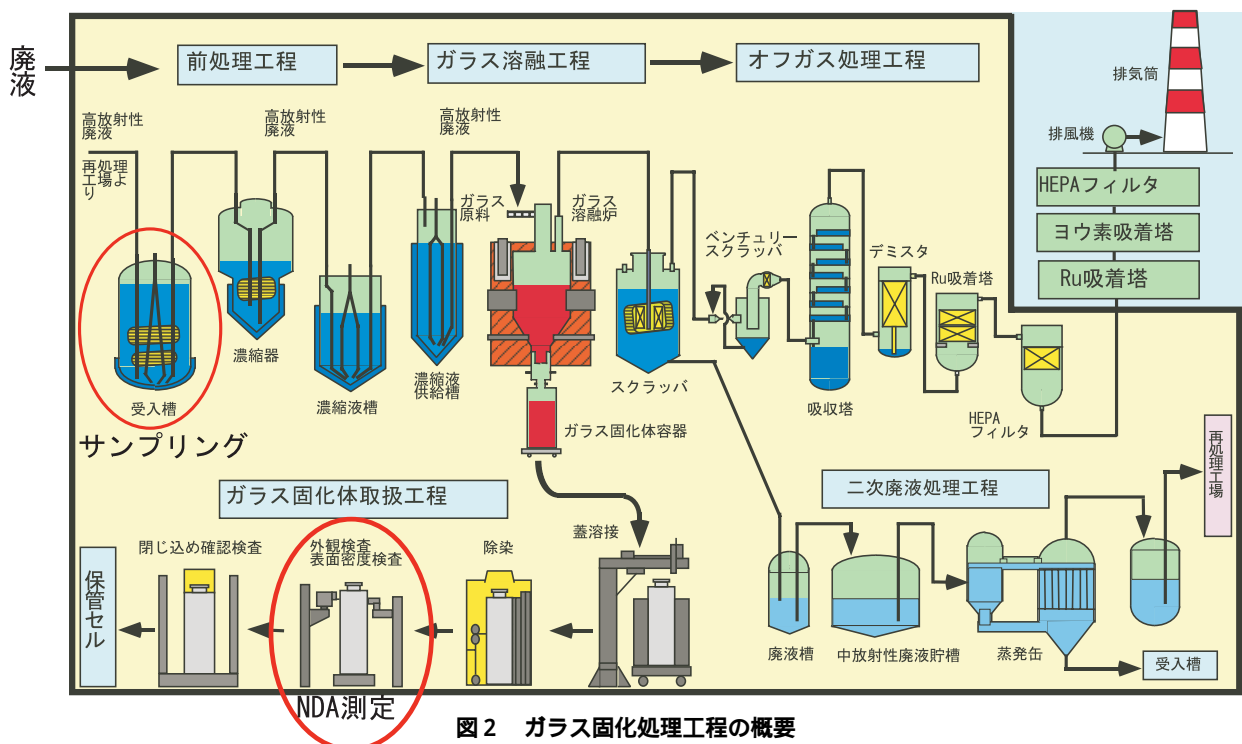


図2 ガラス固化処理工程の概要

4. 装置

4.1 設置箇所の検討

VWCC 検出器の設置にあたり，抽出された制約条件は以下のとおりである。

現在ある装置類の改造等はない。

検出器はできるだけガラス固化体に接近させるのが望ましい。

できるだけ測定時間を長くとる。(2.0h 以上)

誤差要因を低減させるため，近傍にほかのガラス固化体ができるだけ近づけない。

これらの条件で測定場所を検討した結果，ガラス固化体表面の汚染状態や閉じ込め性能等の検査を行う搬送セル (R102) 内で，ガラス固化体表面のスマヤ試料を採取する検査台 (G22M60) が測定場所として選定された。

理由は，検査台に検出器を設置する余裕があり，検出器をガラス固化体に十分接近させることが可能なこと，及びスマヤ採取作業で通常3.0hr 程度要していることから，必要とされた測定 (滞在) 時間を満足させられるためである。

4.2 システム構成

VWCC のシステム配置状況を図3に示す。検出器は，搬送セル (R102) に設置されており，ここではガラス固化体にかかわる所定の検査が行われ

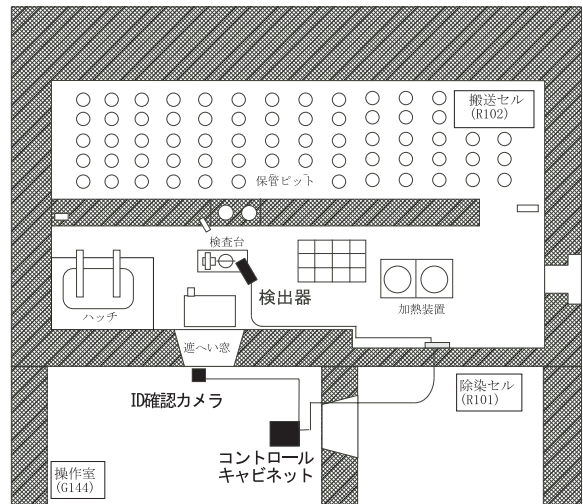
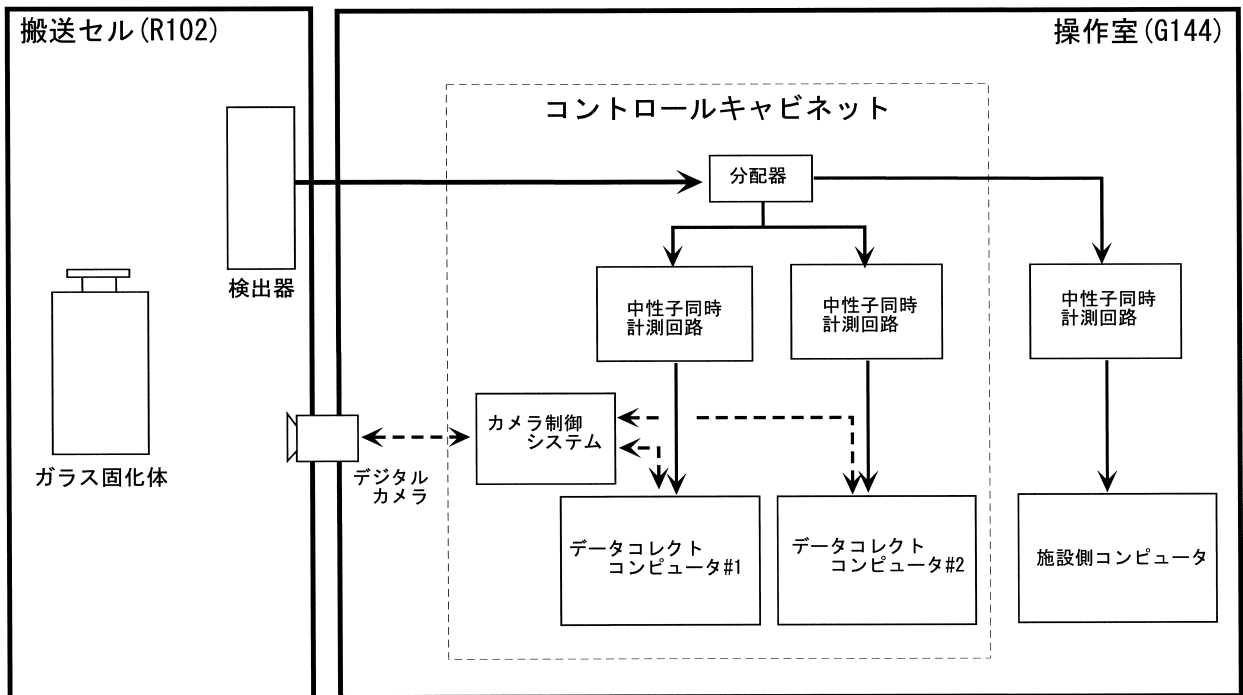


図3 システム配置状況

る。操作室 (G144) には遮蔽窓を介してガラス固化体の製造番号 (ID) を確認するデジタルカメラ及び VWCC システムを制御 / データ収集しているコントロールキャビネットが設置されている。

図4にシステム構成図を示す。搬送セル (R102) に設置された検出器からの信号は，シフトレジスタと呼ばれる計数装置にて所定の時間，ガラス固化体の全中性子数及びガラス固化体に含まれる Cm 244からの自発核分裂中性子が計数される。計数



—— 中性子計数信号の流れ
 - - - ID映像信号の流れ

図4 システム構成図

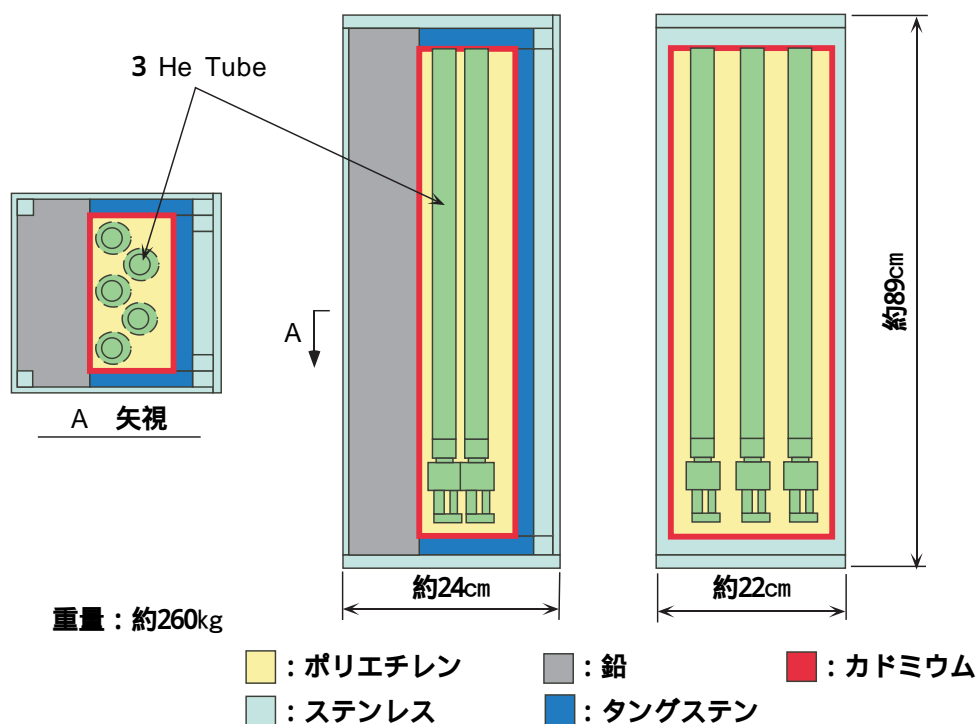


図5 検出器構造

結果は、データコレクトコンピュータにて保存される。データコレクトコンピュータは、全中性子数の変化からガラス固化体が測定場所に到着したことを検知し、カメラユニット制御システム(GEMINI SYSTEM)にガラス固化体のID情報の取得指示を送る。この指示によって一定時間でデジタル映像を取得・データコレクトコンピュータに送信する。

また、検出器からの信号は分配器にてコントロールキャビネット外部にも送られ、その信号はTVF側でも独自に計数・評価できるようになっている。

VWCCの動力については、測定データの保護のため、TVF内の重要系分電盤から給電し、更に無停電電源装置を接続することにより商用電源停電にも対応できるように構成されている。

4.3 検出器

検出器の概略構造を図5に示す。また、搬送セル内への設置状況の写真を写真1に示す。検査台にはガラス固化体の転倒防止用ガイドローラーやガラス固化体を回転させるためのターンテーブル駆動モーターなどの既設装置があるため、それらの空隙に検出器は設置されている。検出器とガラス固化体の面間距離は、10cmにとられている。

検出器の外形寸法は、約22cm×24cm×89cmの直方体で、重量は約260kgである。

検出器内は、He 3が0.4MPaの圧力で充てんさ

れた直径25.4mm、長さ610mmのチューブが5本収納されている。He 3チューブの周りには、中性子を減速させるための減速材(ポリエチレン)が配置されている。ガラス固化体からの線を遮蔽するため、前面には鉛遮蔽が施されており、残りの5面には隣接するプロセス機器にあるガラス固化体からの線を防ぐためのタングステンがある。散乱中性子線に対しては、カドミウムの内張をすることで対処している。検出器の最外郭は、除染性を考慮し、鏡面加工されたステンレスで覆われている。

ガラス固化体1本当たりの中性子発生率は高く($\sim 10^8$ n/s)、シフトレジスタの計数能力(~ 1 MHz)を上回っている。そのため、VWCCの検出器は、図6のように、ガラス固化体の一部分に隣接するように設置し、ガラス固化体に対する立体角を小さくして検出効率を形状的に低減させて計数値を

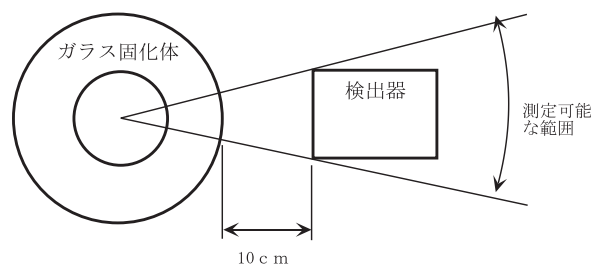


図6 検出器の配置概略図(上面より)

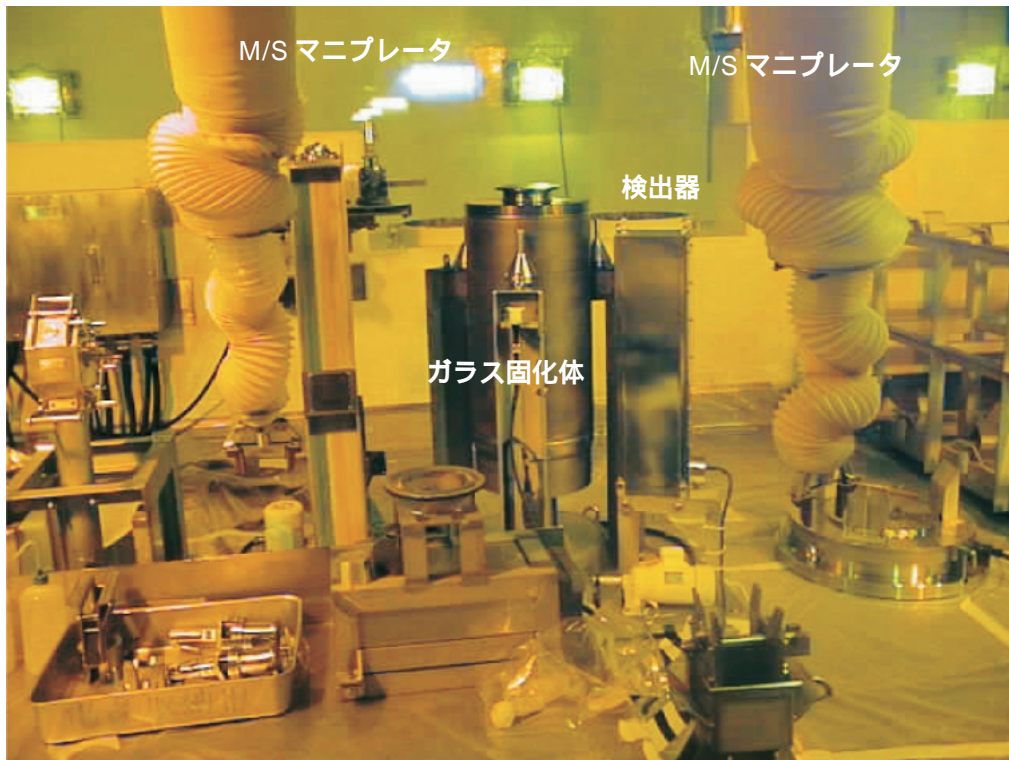


写真1 測定状況（操作室側より撮影）

低く抑えている。²⁾

VWCC の検出器の検出効率は、内容物が既知の標準試料を用いた測定で求めたものではなく、中性子遮蔽計算コード（MCNP）を用いてガラス固化体を計算モデルとした条件で求めている。このようにして求めた VWCC の検出効率は約0.3%である。

また、Cf 252点線源をモデルとした場合の MCNP での計算値と、Cf 252点線源を用いた実測値を比較した結果、両者が非常に近い値であり、MCNP による評価の妥当性が確認されている。

4.4 コントロールキャビネット

VWCC は国及び IAEA の査察機器として査察監視下にあるため、コントロールキャビネットは常時ワイヤーシールによる封印監視がなされている。

コントロールキャビネット内に収納されている主な装置は以下のとおりである。

分配器：検出器からの信号をキャビネット内外のシフトレジスタに送る。

シフトレジスタ：検出器の信号から設定されたゲート時間等で自発核分裂による中性子の信号を区別し、計数する。

コンピュータ：VWCC 全体を制御し、ID カメラ及び検出器で取得した情報を記録する。

GEMINI システム：映像を取得し、画像信号

の圧縮を行う。

4.5 ID 確認カメラ

測定は査察官の立会いは行わず実行され、また測定期間（通常約1ヵ月）に10数本のガラス固化体が製造されることから、データとガラス固化体の照合が必要となる。この照合には操作室（G144）遮蔽窓に設置された ID 確認カメラの映像情報が利用される。

ガラス固化体が測定場所である検査台に設置されると中性子数の計数が増加し、それをもって測定地点にガラス固化体が設置されたことを判断する。設置されたことを確認すると、コンピュータから撮影開始のトリガー信号が「GEMINI システム」と呼ばれるカメラ制御部に送られ、映像の取得が開始される。映像は時間管理されたデータとして JPEG フォーマットで圧縮保存される。ガラス固化体が所定の検査を終え、測定地点から離れたとき、中性子数の計数が減少し、これにより撮影停止の信号が GEMINI システムに送信され、必要な映像情報のみ取得できるようになっている。

5. 使用方法

5.1 非立会モード

VWCC の運転モードは、査察活動の効率化を考慮した設計がなされている。「非立会モード」と呼

ばれるのがそれである。

VWCC は24時間連続して中性子線の測定を行っており、そのデータはすべてコントロールキャビネット内のコンピュータに記録されている。ここに記録されたデータは、毎月1回実施されている

査察活動において国及びIAEA 査察官により回収される。回収されるデータは、中性子の連続測定結果と、ID カメラにて保存されたガラス固化体 ID の映像情報である。図7に、この概念を示す。

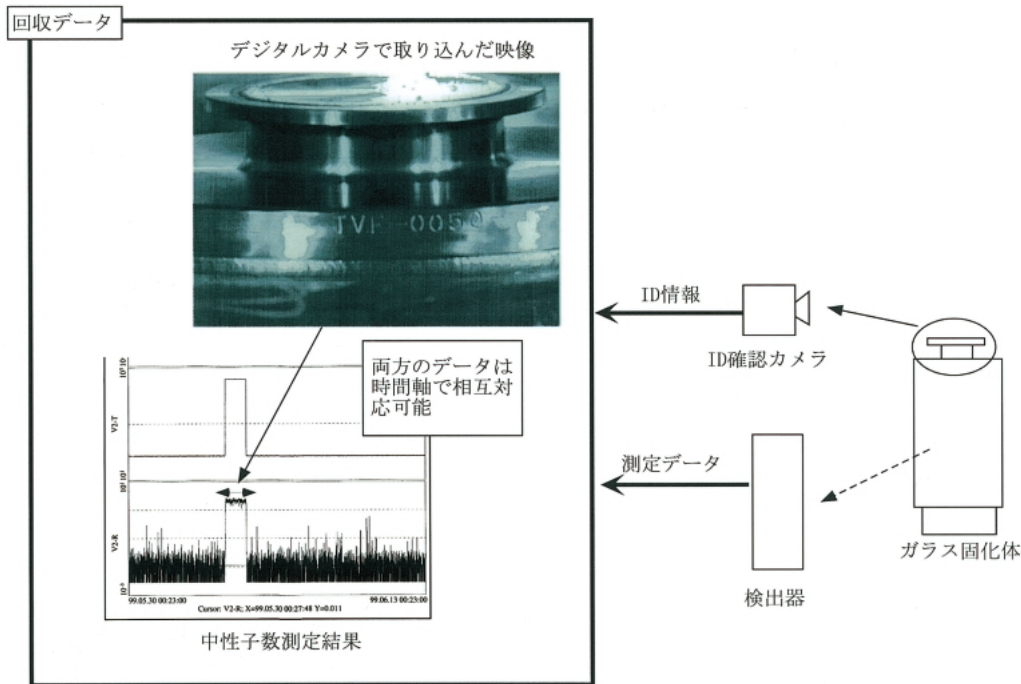


図7 非立会モードの概念

査察官によって回収されたデータは、査察官室にあるデータレビュー用のコンピュータでデータの検証が行われ、時間を横軸としたグラフで表される。

非立会モードの利点は、以下の3点である。

査察官は、製造されるガラス固化体ごとに測定操作をする必要はなく、VWCC に保存されたデータを定期的に回収すればよい。

連続したプロセスの中で測定が行われるので、査察のためにプロセスを停止する必要がない。

ガラス固化体を保管後に再度移動する必要がない。

現在は、実際の運転において円滑な運用ができるかどうかを確認するIAEAによるフィールドテスト中である。

5.2 TVF 側の測定操作

VWCC には、検出器の信号をコントロールキャビネット外に送信するラインが設けられている。これは、将来 VWCC を利用して TVF 側で独自に

測定し、計量管理を行うためのもので、この信号線にシフトレジスタ及びコンピュータを接続することにより測定値の取得が可能である。運転中は、TVF 運転員が常時駐留しているため、測定は手動で行われる。

測定は中性子の計数のみを測定し、運転終了後に濃度比などの必要なパラメータを入力して定量計算を行うこととしている。

6. 査察への受入試験 (アクセプタンステスト)

VWCC は査察活動に使用される査察機器として用いることから、IAEA により「User Requirement」に明記された査察機器としての各種受入試験・検査を行ってきた。

6.1 第1回アクセプタンステスト (1998年11月)

アクセプタンステスト全体には、LANL で作成した完成図書の内容確認や装置の仕様確認が含まれるが、この一環として実際のガラス固化体を用いた測定試験を実施し、印加電圧の設定、測定時

間（測定回数）及び計数誤差の確認を行った。

検出器については、事前にサイクル機構側で搬送セルに設置したものを国及びIAEA 査察官が設置位置の確認をし、検出器への封印を行った。

この時のアクセプタンステストの結果から、ケーブルの接続作業時について傷やID 確認用カメラの動作不良等、IAEA 査察官から査察機器としてIAEA の仕様を満足しない個所が指摘されたため、これらの個所に改良・補修を加える必要が生じた。

6.2 第2回アクセプタンステスト(1999年5月)

第2回は、前回は行われたアクセプタンステストの結果を反映し、十分な補修・調整を行い、国及びIAEA 査察機器としての運用に耐えうるものとするを目的に実施した。

変更の内容は、以下のとおりである。

傷のついたケーブルの交換。

ID カメラのレンズの倍率を変更(17mm 50mm)。

結果として、ケーブルの問題は改善されたものの、映像状態については、撮影したID 番号の確認ができる解像度が得られず、IAEA 査察官からも更に改良するよう要求された。

6.3 第3回アクセプタンステスト(1999年9月)

これまでのアクセプタンステストで改善されていないID カメラに関する以下の作業を実施した。

ID カメラのレンズ倍率の再変更(50mm 75mm)

セル内照明による乱反射防止のための偏光レ

ンズの追加

この二つの改良によって、画像の鮮明さが向上し、作業に立ち会ったIAEA 査察官により十分に使用に耐えうる事が確認された。

もう一つの課題であった、ID カメラ動作を制御しているGEMINI システムの映像の自動取得ができないという事象については、暫定的に以下の処置をとることで、VWCC の試験運用を行うこととしIAEA 査察官もこれを了承した。

映像の撮影間隔を20分とし、常時撮影状態とする。

上記撮影間隔でガラス固化体のID を確実に取得するため、検査台で滞在している間に、運転員が20分以上ID カメラ(遮蔽窓)方向にガラス固化体のID 番号を向けて停止させる。

7. 実測定による性能の確認

7.1 測定誤差

アクセプタンステスト後に、保管中のガラス固化体(TVF 0009)を用いて測定試験を実施した。図8にVWCCによる測定結果を示す。

測定は、測定時間を2.0時間、3.0時間及び15時間として測定時間の誤差への影響を確認した。

測定誤差については、2時間の測定では20%以下であることが確認された。³⁾

7.2 運転時における計算値とVWCC 測定値の比較

2000年6月～7月に行われた固化処理運転(ガラス固化体10本製造)において、試験測定を実施

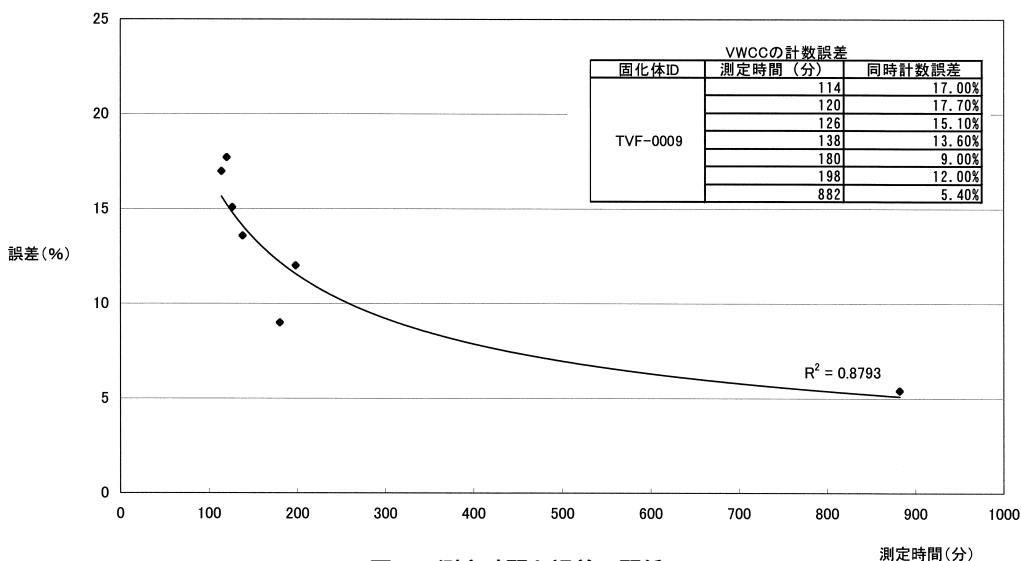


図8 測定時間と誤差の関係

表1 VWCCによる測定結果と計算値の比較(Pu)

| ID番号 | 全中性子計数率(n/s) | 同時中性子計数率(n/s) | 測定値(g) | 計算値(g) |
|----------|--------------|---------------|--------|--------|
| TVF 0063 | 507277.405 | 309.474 | 59.965 | 72.60 |
| TVF 0064 | 513766.562 | 319.725 | 61.964 | 72.65 |
| TVF 0065 | 518769.185 | 182.875 | 35.450 | 72.08 |
| TVF 0066 | 174211.534 | -53.722 | 測定不良 | 73.38 |
| TVF 0067 | 175748.891 | -95.419 | 測定不良 | 73.37 |
| TVF 0068 | 520072.800 | 374.555 | 72.658 | 72.28 |
| TVF 0069 | 522931.545 | 319.783 | 62.042 | 72.46 |
| TVF 0070 | 520716.043 | 287.416 | 57.616 | 71.88 |
| TVF 0071 | 526846.828 | 219.944 | 44.099 | 71.98 |
| TVF 0072 | 517462.386 | 280.508 | 56.258 | 71.63 |

測定時間はすべて120分

した。

従来の計量管理手法に基づき求めた計算値及びVWCCにて測定した結果を表1に示す。⁴⁾

TVF 0066及びTVF 0067の結果において、有意値が検出されなかった。これらは、全中性子数が通常は500Kn/s程度であるのが、170Kn/sと約2/5程度しか計数されていないことから、検出器内に収納されているHe 3チューブが何らかの原因で5本のうち2本しか機能しなかったものと考えられる。

また、VWCCによる測定結果と溶融炉への廃液供給量から計算した値を比較した場合、TVF 0065の結果に約2倍の差が確認された。

8. まとめ

Cm 244の自発核分裂中性子を測定ターゲットとした測定装置により、中性子線やγ線が強く、核物質の非破壊測定が困難とされていたガラス固化体の定量が可能となった。

また、TVFへの導入時のIAEAによる受入確認においても大きな問題もなく無事に設置することができ、IAEAの要件を完了することができ査察活動の低減化に役立つことと考える。

性能を確認するための測定試験では、一部の測定で通常と異なる結果が得られた。測定不良となった原因を確認するため、今後測定サンプルを多く取ること、インターキャンペーンでの点検等を行

い、その原因を確認し、改善する予定である。

9. おわりに

VWCCは設置後、2回の見直しを経て、国及びIAEAの管理の下で、ガラス固化処理運転における実測定による性能評価試験を継続しているところであり、その結果を待って査察機器として正式に運用される予定である。この成果はIAEA国際保障措置実施に対して大いなる貢献を果たすことになる。

また、VWCCは(株)日本原燃六ヶ所サイトのガラス固化施設で製造されるガラス固化体に対しても適用される予定であり、測定結果とあわせて故障とその対策についてもまとめていくこととする。

参考文献

- 1) H. O. Menlove, D. H. Beddingfield, et al.: "THE CURIUM TAGGING APPROACH FOR ENHANCED SAFEGUARDS FOR SPENT FUEL HANDLING AND REPROCESSING"; LA UR 97 3293
- 2) D. H. Beddingfield, H. Tomikawa: "COINCIDENCE COUNTER DESIGN FOR THE ASSAY OF VITRIFIED NUCLEAR WASTE"; LA UR 98 2865
- 3) 中谷隆良, 吉岡正弘 他: "ガラス固化体非破壊測定装置の開発", 核物質管理学会日本支部第20回記念大会論文集, P. 210
- 4) 小坂哲生, 吉岡正弘 他: "中性子同時計数法によるガラス固化体中のU, Pu計量方法の開発", 日本原子力学会「2000年秋の大会」予稿集, C31, P. 131