総説

超ウラン元素の非破壊分析法†

五藤 博

日本原子力研究所東海研究所原子炉工学部

319-11 茨城県那珂郡東海村白方

Key Words: transuranic elements, nondestructive assay, gamma-ray spectrometry, passive assay, active assay, differential dieaway technique, electron linear accelerator, calorimetry, densitometry, laser induced breakdown spectroscopy

1. はじめに

超ウラン元素を取り扱うことは、原子力エネルギーの利用を考えるかぎり避けて通ることはできない。この価値があり、一方では危険性をはらむ物質を適切に取り扱うための技術の一環として、「超ウラン元素の非破壊分析法」がある。

非破壊分析法に期待される目的は、つぎの五つに集約されるように思われる。

- (1) 核燃料の計量管理のため、
- (2) 国内および国際保障措置のため、
- (3) 再処理工程管理のため、
- (4) 廃棄物の処理・処分のため、
- (5) 放射能汚染等の異常時に対処するため。

1960年代以降、上記の(1)～(3)を目的として、非破壊分析法はおおいに研究された。そして、1970年代後半以降、(4)を目的とする研究開発が盛んになっている。

(1)および(2)では、分析対象物質は形や質が定まっており、含有されている核物質の量が多い。また、未照射燃料では、分析の邪魔になる共存放射能が強くないという特徴がある。(3)では、核分裂生成物が共存する条件のもとで分析を行わなければならない場合が生じる。また、溶液として再処理ラインを流れている諸段階で分析したいという要求が起こる。(4)では、一般に、核物質密度の薄い物質が対象になり、共存する妨害放射能が強いとか、かさが大きいとか、均一性がない条件のもとでの分析が要求されるとかの特徴があ

る。(5)については、正面から取り上げられた例はあまりないが、分析対象物質は、(4)のものと似た条件になるものと考えられる。

現在、わが国で、超ウラン元素に関する非破壊分析技術が話題になるのは、海外に委託して行っている使用済核燃料の再処理に伴って発生する超ウラン元素を含有する廃棄物が、わが国に返還されることになっており、これらが1990年代の遅くない時期に返還が開始される見通しとなっていること、混合酸化物燃料の軽水炉での使用が予測されること、また、本格的な再処理施設の建設が日程にのぼっていることなどのためであると思われる。

ここでは、まず、分析対象となる超ウラン元素とはどのような核種からなるかを考え、ついで、超ウラン元素の非破壊分析法として用いられる方法を原理別に紙数の許すかぎりできるだけ多く、また、できるだけ詳しく紹介したい。そして、最後に、非破壊分析法を実際に適用する場合の注意と今後の研究開発の方向について触れることにしたい。

2. 超ウラン元素核種とその性質

ウランを初期装荷燃料とする核燃料サイクルでは、中性子の継続吸収と崩壊連鎖によって超ウラン元素が生成される。超ウラン元素といえば、本来、原子番号93以上の元素すべてを指すが、炉内照射において実際上有意な量が生成され、かつ、再処理までに取られる冷却期間後も残るものだけに限れば、原子番号96のキュリウムまでを考えればよい。

図1に、考慮の対象とすべき超ウラン元素の核種をウラン核種とともに生成崩壊の連鎖図として示す。核種の枠内には、核種名、半減期、主たる崩壊様式を記

† Nondestructive Assay of Transuranic Elements. Hiroshi GOTOH: Department of Reactor Engineering, Japan Atomic Energy Research Institute, Shirakata, Tokai-mura, Ibaraki-Pref. 319-11.

図1 TRU核種の生成崩壊連鎖

してある。いずれの核種も中性子の吸収によって、質量数が一つ大きい右側の同位体へ転化するが、ターゲット核種の半減期が短いため少量しか生成されない核種は省略した。 β 崩壊を起こす核種は、照射中においても、炉から取り出されたあとにおいても、時間とともに左上側の同重体へ転化する。一方、 α 崩壊を起こす核種は、同じく時間とともに左下方向に1 梓飛び越した核種へ転化する。また、炉内では、高速中性子の照射によって($n, 2n$)反応を生じ、中性子吸収と逆の核転換も起こる。ターゲット核種が大量に存在する場合には、この反応による左側への転換が主となる場合もある。自発核分裂を起こす核種は梓から下向きの矢印を付して示した。熱中性子の吸収によって核分裂を起こす、いわゆる核分裂性核種は、梓を2 重線にして示した。

超ウラン元素の中でプルトニウムは、特別に扱われる。それは、その同位体の一つである ^{239}Pu が核分裂性であり、かつ、半減期 2.44×10^4 年という長い寿命を持つために、核燃料として再び利用できるからである。そして、現在の再処理工程では、プルトニウム元素のみが有用物質として回収され、他の超ウラン元素は核分裂生成物と一緒に廃棄物として一括して処理されている。

プルトニウム試料には、図1に示したプルトニウム元素の6種の同位体のうち寿命の短い ^{243}Pu を除く5種の同位体が必ず共存している。プルトニウム試料については、特別に高い正確度の分析が要求される。

多くの超ウラン元素核種は、 α 崩壊または β 崩壊に伴って、 γ 線を放出する。また、いくつかの核種は、自発核分裂性であって、自然に核分裂を起こし、中性

子を発生する。また、いくつかの核種は、核分裂性であって、熱中性子の照射によって核分裂を起こし、それに伴って即発中性子、即発 γ 線および遅発中性子を発生し、短寿命核分裂生成物を生成する。また、 α 崩壊によって、熱が発生する。これらの性質は、超ウラン元素の非破壊分析に利用される。

3. パッシブガンマ法

超ウラン元素が自然に放出する γ 線を検出して、その元素の存在するのを知り、または、その存在量を推定する方法をパッシブガンマ法という。また、 γ 線スペクトロメトリ法と呼ばれることもある。 γ 線検出器としては、多くの場合、Ge 検出器が用いられるが、条件によってはNaI (TI) 検出器が用いられることもある。

γ 線エネルギーは、核種固有の値を持ち、崩壊当たりの放出率(分岐比)は一定の値を持つので、分析試料が放出する γ 線をエネルギー分解能のよい γ 線検出器(Ge 検出器)で検出すれば、分析試料に含まれる超ウラン元素の量を核種ごとに求められる可能性がある。

図2に、低燃焼度および高燃焼度の軽水炉燃料から再生されたプルトニウムをGe 検出器を用いて測った γ 線スペクトルを示す¹⁾。このスペクトルに示されたエネルギー範囲は、120 keV から210 keV である。低燃焼度のものと高燃焼度のものでは、かなりスペクトルの感じは違っているが、いずれの場合も、 ^{238}Pu 、 ^{239}Pu 、 ^{241}Pu 、 ^{241}Am のピークをはっきりと観察することができる。 ^{240}Pu の γ 線は ^{241}Pu のそれとの複合ピークとして観測される。 ^{242}Pu は定量できるほどには

図2 低および高燃焼の燃料から再生されたプルトニウムの γ 線スペクトル

強く γ 線を放出しない。

γ 線の検出された強さは、通常、ピーク面積として表される。検出された γ 線の強さを分析試料に含まれる量に変換するためには、放出核種の半減期およびその γ 線の分岐比についての正確な値が必要である。また、分析試料中の超ウラン元素の幾何学的分布、 γ 線入射経路にわたるすべての物質（アブゾーバ）の元素別の密度分布、 γ 線コリメータの明るさおよびエネルギーごとの γ 線検出効率等が明らかでなければならない。幸い、 ^{239}Pu と ^{241}Am は広いエネルギー範囲にわたってかなりまんべんなく γ 線を放出するので、それらを用いると、分析試料中の γ 線の減衰、アブゾーバ中の γ 線の減衰、コリメータの明るさおよび検出効率の効果をすべてを一括した相対検出効率を、標準線源を用いなくて決定することができる。

Dragnev²⁾は、この考えのもとに、 ^{239}Pu の255.38 keV, 345.014 keV, 392.908 keV および 413.712 keV の4本の γ 線を用いて得た一括相対検出効率とエネルギーとの関係に二次式をあてはめ、その結果を、 ^{239}Pu , ^{241}Pu , ^{241}Am の3核種からの γ 線が寄与する332-338 keV 領域および367-384 keV 領域、 ^{239}Pu の γ 線が寄与する411-414 keV 領域の3個の複合ピークの面積に適用して、同位体比 $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ および $^{241}\text{Am}/^{239}\text{Pu}$ を求めた。また、図2に見られる152.68 keV の ^{238}Pu のピークおよび148.567 keV の ^{239}Pu のピークを用いて、もう少し複雑な方法でこの領域の一括相対検出効

率を得たのち、同位体比 $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ を求め、同じく、図2の160 keV ピークから ^{241}Pu の寄与を差引いて、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比を求めた。そして、 ^{242}Pu 百分比と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比のあいだの同位体相関の知識を用いて ^{242}Pu 百分比を推定し、これによって Pu の主なる5種の同位体（百分）比すべてを決定した。

このように、プルトニウムの標準試料を用いなくて、分析試料だけを用いて Pu 百分比を求める方法は、査察技術として非常に価値が高い。また、質量分析器を用いなくて、プルトニウムの同位体比が求められることも有用である。上の例では、複合ピークのピーク面積を γ 線ごとに分離しないで扱っているが、微弱な成分を精度よく求めるためには、いわゆるアンフォールディングを行って、成分ごとに分離する必要がある。

このパッシブガンマ法による同位体比分析法は、1970年頃から研究が行われた。その研究は、正確な γ 線分岐比の決定と平行して進められ、1970年代には世界的に広まり、1980年には、欧米8か国と1国際機関が参加する国際比較も行われ¹⁾、現在では、IAEA の査察手法としても定式化されている³⁾。

最近の例として、Gunnink⁴⁾の仕事を紹介しておこう。彼は、59 keV から 208 keV までの低いエネルギー領域を用いた。そのため、短時間に計数をかせげ、数分の測定で充分であるという。これまでの高いエネルギー領域を用いる方法だと、短くても数10分、長く

れば数時間というのが通常であった。なぜ、これが可能になったか。一つは分解能の高い検出器を用いたこと、二つ目はX線ピークに対してX線の正確なラインプロファイルを用いたこと、三つ目は一括相対検出効率にプルトニウム試料中での γ 線吸収のK端不連続効果を正確に入れたこと、四つ目は高い計数率に追従できる電子回路が開発されたことをあげるべきであろう。図3に彼が一括相対検出効率を求めるために用いた10本のピークと一括相対検出効率を構成する3成分、すなわち、カドミウムアブゾーバの吸収効果、検出効率およびプルトニウム吸収効果を描いた図を示す。ま

図3 低エネルギー γ 線およびX線スペクトルと相対検出効率をきめる要素

図4 94-104 keV 領域の多重線解析の説明図

た、図4に、エネルギー範囲94-104 keVのアンプオールドニングのようすを示す。

同位体比すべてを求めようとする、上に述べた二つの例のように複雑な手法が必要になるが、製品の工程管理などのように標準と比較できる場合などには、 ^{239}Pu の強いピークのみを測定すればよい場合が多い。

パッシブガンマ法は、密度のあまり高くないかさばった廃棄物容器に含まれるプルトニウム量の推定にも用いることができる。このような場合には、その測定によって同位体組成を求めることまでは期待されないことが多く、それよりも、 ^{239}Pu の総量のある程度の正確さで誤りなく測定することが期待される。核分裂生成物が含まれていない場合には、NaI(Tl)検出器によっても可能である。しかし、プルトニウム以外の γ 線放出核種が含まれる場合には、Ge検出器の使用が望ましい。

図5は、吾勝ら⁵⁾⁻⁷⁾が、カートンボックス中のPu量を測定した装置の概念図である。NaI(Tl)検出器を固定した位置に置いて、カートンボックスを眺める。カートンボックスは、回転しながら上下に往復する。こうすることによって、カートンボックス内のすべての位置が、均等に検出器によって眺められるようにする。また、必要な場合には、図中に示された位置に ^{137}Cs 線源を置いて、その662 keV γ 線の透過率を測定し、廃棄物の密度による補正を行う。このようにして、数mgの ^{239}Pu を400秒の計数によって25%の誤差で測定できたという(検出感度にして30-40 nCi/g)。図6は、 γ 線の波高分布図である。356-470 keVの

図5 プルトニウム廃棄物のためのパッシブガンマ法装置概念図

^{239}Pu の γ 線が大きく寄与する領域の計数から、475–620 keV の ^{241}Am の γ 線が大きく寄与する領域の計数を差し引くことによって ^{239}Pu による正味の計数を算出して、 ^{241}Am の混在比が変わっても、 ^{239}Pu 量の算出に誤差が生じないようにしている。

4. パッシブ中性子法

図1に見るように、超ウラン元素核種の中には、自発核分裂を起こすものがあり、それに伴って中性子が

図6 プルトニウム試料のNaI(Tl)検出器による γ 線スペクトルと正味のプルトニウム量を求める手法の説明図

放出される。また、多くの超ウラン元素は α 放射性であり、その α 線は酸素等の軽元素を照射して (α, n) 反応によって中性子を放出する。自然に発生する中性子を測定することによって超ウラン元素またはウラン試料の質または量について情報を得る方法はパッシブ中性子法と呼ばれる。これらの中性子はエネルギーが高いために、透過力が強く、パッシブガンマ法に比べて、かさばった試料についても比較的均一に分析することができる。

自発核分裂中性子の発生率は、核の性質のみによって決まり、核分裂のさいに2個とか3個とかまとまって中性子が発生することが多い。一方、 (α, n) 中性子の発生率は α 粒子の発生率と超ウラン元素核の周囲の軽元素の種類およびその分布状態に依存し、中性子は1個ずつたがいに時間相関がなくランダムに発生する。この発生の時間相関の違いを利用すると両者を区別して検出することが可能となる。

図7に示す測定器⁸⁾で中性子パルスの時間間隔を測定することを考えてみよう。円柱形のパラフィンの軸に分析試料挿入のための円柱形の孔が開けられている。試料挿入後、中性子の洩れを防ぐために、その孔にはパラフィン製の蓋が挿入される。円柱の軸のまわりに軸に沿って、複数本の BF_3 検出器が設置される。複数本の検出器は、同等に2分割されて、それぞれ加算し増幅されたのち、タイミングシングルチャンネルアナライザによってパルス成形される。一方の信号は、時間波高変換器へのスタートパルスとして入力される。もう一方の信号は、200 μs 程度の遅れを入れてストップパルスとして時間波高変換器に入力される。時間波高変換器は、スタートパルスとストップパルス

図7 中性子検出の時間間隔分布測定装置の概念図

の時間間隔に比例した高さのパルスを出力する。その出力は、通常のマルチチャンネル波高分析器に入れられる。

図8に、この測定器で ^{244}Cm (28.4 μg)試料を測定した時間間隔分布と $^{241}\text{AmO}_2$ (93.3 mg)試料を測定した時間間隔分布データを示す⁹⁾。 ^{244}Cm 試料の場合、時間間隔分布データは時間間隔0(時間目盛では T_1)を中心にして指数関数的に減衰する成分と時間的に変化しない成分の和によってよく表されていることが見られる。前者は、同じ核分裂によって発生した中性子同志がスタートパルスとストップパルスの対になっているものである。後者は、 (α, n) 中性子同志、または、異なる核分裂による中性子同志、または、 (α, n) 中性子と核分裂中性子とが対になったものである。 $^{241}\text{AmO}_2$ 試料の場合には、自発核分裂はほとんど起こらないから、 (α, n) 中性子同志で対になったものだけが観測されている。

図8 中性子検出の時間間隔分布データ
(A) ^{244}Cm 試料, (B) $^{241}\text{AmO}_2$ 試料

なぜ、このような分布になるか説明してみよう。核分裂中性子にしても (α, n) 中性子にしても、MeV領域の速中性子として発生する。熱中性子検出器である ^3He 検出器によって検出されるためには、熱エネルギー近くまで減速されなければならない。それに要する時間は、ポリエチレン中では10 μs 程度である。減速された熱中性子は、体系内で散乱しながら、漏洩または吸収によって消滅する。その減少具合はほぼ指数関数的であって、その時定数はその体系の消滅時間(dieaway time)と呼ばれる。消滅時間は体系が大きいほど長く、また、体系の吸収が小さいほど長い。この検出体系の場合、それは約100 μs であった。核分裂によって2個または3個の中性子が発生し、そのうち

2個が検出されたとする。簡単のために減速時間を無視すると、任意の1個の中性子の検出時刻の分布は、中性子の発生時刻を始点として正の時刻にのみ値を持ち、消滅時間を時定数とする指数分布によって表される。そして、2個の検出時刻の差は0を中心として対称な同じ時定数を持つ指数分布によって表される。

発生時刻に相関のない (α, n) 中性子はいずれも、発生から検出までに消滅時間を時定数とする指数分布の時間遅れを受ける。そして、発生時刻に相関がないから検出時刻もたがいに相関を持たない。検出時刻に相関のない事象の時間間隔は計数率の逆数を時定数とする指数分布となる。核分裂の発生もたがいに相関がない。したがって、異なる核分裂による中性子の検出時刻のあいだにもたがいに相関はない。核分裂中性子と (α, n) 中性子のあいだについても同様である。そして、全体として総計数率の逆数を時定数とする指数分布となる。しかし、このデータ程度の計数率においては、ほとんど平坦に見える。

時間間隔の分布の形でデータを収集するのとは異なるデータの収集方法は、個々のパルスの直後に消滅時間程度の幅の時間ゲートを設定して、その間に計数されるパルス数を集計する方法である。この計数には同じ核分裂による中性子のもの(真の同時計数)のほか他に他の核分裂による中性子や (α, n) 中性子によるもの(偶然の同時計数)もまぎれ込んでくるから、それらを引いてやらなくてはならない。偶然の同時計数は、消滅時間の何倍も経ってから上記の時間ゲートと同じ時間幅のゲートを開いてその間のパルス数として得ることができる。この方式の測定法が多くの場合採用されている。普通の回路系では、一つのゲートを開くとそれが終るまでつぎのゲートを開くことができない。それを避けるためにパルス発振器を用いて時間を量子化し、シフトレジスタとアップダウンカウンタを用いてゲートを重複して開けるようにした方式が発明された⁹⁾。IAEAの査察機器として定式化されているHLNCC(high level neutron coincidence counter)にはこの方式が採用されている⁹⁾。

中性子の発生率が非常に高い試料の測定に適した方法として短い時間における計数の頻度分布から核分裂中性子 (α, n) と中性子を弁別する方法がある¹⁰⁾。これは、 (α, n) 中性子の計数はポアソン分布に従い、したがって、計数の分散が計数の平均と等しくなるのに対して、核分裂中性子の計数はもっと大きな分散を持つことを利用して、全中性子計数の中に占める核分裂中性子計数の割合を定めようというものである。中性子

計数モーメント法と呼ばれる。

そのほか、計数のデッドタイムを変化させて計数データを取得し、両者を分離して求めようとする variable dead time counter という方式もある¹¹⁾。

以上に述べたパッシブ中性子法は、いずれも中性子を減速したのち熱中性子検出器である ^3He カウンタまたは BF_3 カウンタで検出しているので、遅い同時計数法と総称されることがある。中性子を減速しないで早い同時計数をする場合には、中性子検出器としてはプラスチックシンチレータが用いられる。Random driver と呼ばれる装置をパッシブモードで働かせた場合はこの方式に相当する¹²⁾。シンチレータは自発核分裂の即発中性子とともに即発 γ 線をも検出するので、3アウトオブ4とか4アウトオブ4などの多量同時計数で働かされることが多い。

5. アクティブ中性子法

測定試料を中性子で照射して、試料に含まれる核分裂性物質に核分裂を起こさせ、その結果生じる即発中性子、即発 γ 線、遅発中性子、または、短寿命核分裂生成物からの γ 線を検出して、試料に含まれる核分裂性物質量を測定する方法はアクティブ中性子法と呼ばれる。

5.1 消滅時間差法

1980年代になって新しい原理に基づく differential dieaway technique (略して DDT) が報告された¹³⁾。この方法による装置の例を図9に示す¹⁴⁾。すなわち、ドラム缶大の試料を入れられるだけの直方体の空間が

図9 消滅時間差法装置の断面図

あって、その6面は厚さ約10 cmの黒鉛で囲まれている。そして、その外側は、反射材および遮蔽材の役割を果たす厚さ約20 cmのポリエチレンで囲まれている。黒鉛層とポリエチレン層の中間あたりに何本かの ^3He 検出器をまとめて Cd 板で遮蔽した速中性子検出ブロックが4面ないし6面に配置される。長さ約10 μs の幅のパルス状中性子を発生する DT(deuterium-tritium) 加速器のヘッドが試料空間に置かれる。また、加速器中性子の時間的変動や廃棄物の中性子吸収効果を補正するために熱中性子モニタも備えられている。

このような体系において、加速器からパルス状中性子を発生させると、発生した速中性子は、黒鉛層において多量散乱を行い、数10 μs のあいだにすべて熱中性子になる。熱中性子は主として黒鉛の量によってきまる体系の消滅時間(1 ms 程度)をもって指数関数的に減衰する。試料中に核分裂性物質が存在すると、この熱中性子束によって核分裂性物質は照射され、核分裂を起こし、即発中性子を発生する。この即発中性子は元の加速器中性子と時間的に分離しているの、感度よく核分裂性物質の量が測定できるというのが、この方法の原理である。

図10は、このような装置で得られた時間分布データである¹³⁾。図中、曲線(a)は核分裂性物質がない場合のデータであって、曲線(b)は核分裂性物質がある場合のデータである。二つの曲線の差の計数率が、核分裂性物質量に比例する。

この方法は、アクティブ法の中でも、即発中性子を検出していることおよび加速器によって強い中性子照射が行えることのために、非常に高い感度で核分裂性物質量を測定することができる。よい条件のもとでは、数分間の測定で、ドラム缶大の試料に含まれる1 mgの ^{239}Pu を検出することができる。なお、図9にはパッシブ中性子法も行えるように Cd 遮蔽のない ^3He 検出器も挿入されている。

このような装置が、米国 LANL から報告されるとともに、各国でほとんど一斉にその追試と実用化にとりかかったようである。2-3年前から、米国のほか、英国^{15), 16)}、仏国¹⁷⁾⁻¹⁹⁾、日

図10 消滅時間差法による計数データ
(a) 核分裂性物質がない場合、(b) 核分裂性物質がある場合

本²⁰⁾からも国際会議に報告されるようになってい

る。この装置では、測定しているのは核分裂性物質質量であるという点に留意する必要がある。ウランとプルトニウムが混ざっている場合には、すべての核分裂性物質が総和として測定されるので、 α 放射能に換算するためには、それらの混合比を知っている必要がある。また、試料がボロンのような中性子毒物を含む場合や試料がアスファルトのように多量の水素を含有する場合などには、試料中心部に対する感度が大きく低下することも留意すべきである。 ^3He 検出器は、用いるパルス系の時定数にもよるが、鉛遮蔽を用いない場合には、10 rad/h 程度が使用の限界であるといわれ

ている。

5.2 RI 中性子源を用いる方法

RI 中性子源を用いたアクティブ中性子法の装置の一つに Shuffler と呼ばれる方法がある²¹⁾。図11にその構造を示す。 ^{252}Cf 中性子線源が、照射位置と収納位置を往復し、照射位置において発生する中性子は適当に減速されて試料を照射する。線源が収納位置に戻っている間に、試料に誘起された短寿命核分裂生成物からの遅発中性子が ^3He カウンタによって計数される。

図12は random driver と呼ばれているものである¹²⁾。この装置には、試料の大きさに応じて、いくつかの機種がある。この装置では、 $^{241}\text{Am-Li}$ 中性子線源を外部線源として用い、検出器には、プラスチックシンチレータを用いて、核分裂で生ずる即発中性子と即発 γ 線を合わせて早い同時計数法で測っている。 $^{241}\text{Am-Li}$ 中性子は、エネルギーが低いため、Shuffler のように中性子源を遠ざけなくても核分裂中性子を弁別して計数することができる。この装置では、中性子線源をはずせば、パンプアッセイ機器として用いることができるようになっていることは前節に述べた。

図13は米国ロスアラモス研究所で開発された active well coincidence counter である²²⁾。中性子源としては $^{241}\text{Am-Li}$ 線源を用い、中性子検出器には ^3He カウンタを用いている。

6. その他の方法

6.1 電子線ライナックを用いる方法

電子線ライナックは、制動放射線を Be ターゲットに当てて中性子を発生させ、DT 中性子源と同様に消

図11 Shuffler 断面図

図12 Random driver 構造図

A: シンチレータ集合体, B: 線源, C: 基盤, D: 基盤のカバー, E: 前面パネル, F: 試料プラテン, G: 蓋, H: 上面カバー, I: キャスタ, J: 秤, K: 扉, L: 鉄遮蔽, M: ボラル遮蔽, N: 線源調整容器

図13 AWCC 装置断面図

減時間差法のパルス中性子源として用いることができる。しかし、消滅時間差法に用いるためだけならば、保守の容易なDT中性子源が開発された今日ではこちらの方が選ばれるであろう。ライナックの有用性は、加速エネルギーを変えることによって光核分裂断面積

の差を利用して、核分裂性物質と核原料物質の両方を測り分ける可能性があることにある²³⁾。検出は、即発中性子または遅発中性子によって行われる。この方面の研究はまだあまり深く行われてはいない。

6・2 熱量計法

原子炉級のプルトニウムは、主として α 崩壊熱によって、1 kg で10数Wの熱量を発生する。同位体比が分かっている場合には、発生熱量を正確に測ることによって、他の条件に左右されないで含有核物質量を正確に求めることができる。最近の研究では、101程度の試料について1 Wの発生熱量があれば0.3%程度の精度で測定できるという²⁴⁾。

6・3 K端またはL端デンストメトリ法

ウランおよびプルトニウムのK端エネルギーは110～120 keV にあり、その上下で光子に対する吸収率が大幅に変化する。この性質を利用して、溶液に含まれるこれら元素の濃度を分析することができる。透過させるための光子源としては、 ^{109}Yb (109.8 keV), ^{76}Se (121.05 keV), ^{57}Co (122.1 keV)などのRIやX線発生器が用いられる。20 keV 前後のL端が用いられることもある。

6・4 レーザ誘導ブレイクダウンスペクトロスコピィ法(LIBS)

この方法は、最近初めて報告されたもので、溶液状の試料に対して光学窓から強力なパルス状レーザービームを当てて、瞬間的に溶液中にプラズマを作り、そこから発生する光をモノクロメータの後に光ダイオードを並べて、元素特有の波長の光を検出して、元素濃度を得ようとするものである²⁵⁾。報告では、ウランについての結果しか述べられていないが、プルトニウム、アメリシウム等への応用も期待されている。

7. おわりに

以上で主なる超ウラン元素の非破壊分析法について多少軽重をつけて解説してきた。ここまで読んでこられた読者の中には、これらが、はたして「分析法」と言えるだろうかという疑問を持たれる向きもあるかと思う。プルトニウム元素に限っても、同位体比を曲がりなりに分析できるのは、パッシブガンマ法に限られている。その他の方法では、核分裂性物質量の総量であったり、自発核分裂性物質量の総量であったり、あるいは、 α 放射能の総量であったりするからであ

る。英語では、「非破壊分析法」を nondestructive analysis と言わないで nondestructive assay と言うことが多い。Assay という、いささか古典的な用語が好んで用いられるのは、その辺のニュアンスによるものであろうか。

このような弱点にもかかわらず「非破壊分析法」に期待されているところは大きい。それは、完成された製品を傷つけずに、その内部状態を判断できるのは「非破壊分析法」に限られるからである。また、廃棄物に多く見られるように内部の均一性が前提とできないものでは「破壊分析法」のためのサンプリングが行えない場合もあるからである。

これまでも触れたが、分析対象の大きさ、形態、質、含有される超ウラン元素の量は多岐にわたっている。また、非破壊分析法に期待される正確さと感度も多様である。われわれが特定の課題に対して、すでに定評のある手法を採用するとしても、その課題に対して最適になるように装置や分析手順を仕立てなければならない場合が多い。さいわい、現在では、モンテカルロ法をはじめ中性子や γ 線の挙動を計算するためのプログラムも多く用意されており、問題に応じて適したものを選択することができる。また、大小の計算機の普及はシミュレーション計算を容易にしておき、実験データから求めるべき結果の導出も適当なプログラムを用意すればほとんど即時に行うことができる。

電子線ライナックの利用のように有望な手法も、未開拓の分野として残されている。また、消滅時間差法やレーザ誘導ブレイクダウンスペクトロスコーピ法のように、まったく新しい手法が出現することも将来期待される。一方、再処理工程も現在の方法で固定されてしまうというわけでもなさそうである。もしも群分離の方法が実現できるならば、燃料物質や廃棄物の質も変わり、超ウラン元素の非破壊分析に期待されるところも変わってくるであろう。

文 献

- Ottmar, H: KfK-3149 (1981)
- Dragnev, T.N.: *J. Radioanal. Chem.*, **36**, 491 (1977)
- Canada, T. R.: An Introduction to Non-Destructive Assay Instrumentation, IAEA (1984)
- Gunnink, R.: Proc. the ESARDA Symposium, Karlsruhe, 167 (1987)
- Akatsu, J.: *Nucl. Mater. Manag.*, **10**, 22, (1981)
- Akatsu, J., Kobayashi, Y. and Kimura, T.: *J. Radioanal. Nucl. Chem., Lett.*, **86**, 159(1984)
- 吾勝常勲, 武藤 博, 木村貴海: 特許公開 昭63-235882
- Kimura, T., Gotoh, H., Kobayashi, Y. and Akatsu, J.: *J. Radioanal. Nucl. Chem., Art.*, **125**, 29-40 (1988)
- Krick, M.S. et al.: Proc. of a Symp., Vienna, 2-6 Oct. 1978, "Nuclear Safeguards Technology 1978", Vol. II, pp. 51-64, IAEA (1979)
- Dowdy, E.J. et al.: *ibid.*, pp. 125-136
- Lees, E.W. et al.: *ibid.*, pp. 79-95
- National Nuclear Corporation Catalogue
- Kunz, W.E. et al.: *Nucl. Mater. Manag.*, **9**, 131 (1980)
- Kunz, W.E. et al.: LA-UR-82-787 (1982)
- Sampson, T.E. et al.: Proc. 7th ESARDA Ann. Symp. on Safeguards and Nuclear Mat. Mgt., Liege, Belgium, 21-23 May (1985)
- Armitage, B.H. and Shewood, A.C.: Proc. 9th ESARDA Symp. on Safeguards and Nuclear Mat. Mgt., London, U.K., 12-14 May (1987), pp. 401-410
- Bernard, P. Cance, M. and Beroud, Y.: European Nucl. Society-ENC '86 Geneva, Switzerland, 1-6 June (1986)
- Bardy, N., Ruffet, P. and Cance, M.: Proc. 9th ESARDA Symp. on Safeguards and Nuclear Mat. Mgt., London, U.K., 12-14 May (1987), pp. 395-400
- Bernard, P., Romeyer Dherbey, J. and Beroud, Y.: IAEA Intern. Symp. on the Back End of the Nucl. Cycle, Vienna, Austria, 11-15 May (1987)
- Ohta, S. et al.: Intern. Topical Meeting on Nuclear and Hazardous Waste Management, Pasco, U.S.A., 11-15 November (1988), pp. 230-233.
- Menlove, H. and Crane, T.W.: *Nucl. Instr. Meth.*, **152**, 549 (1978)
- Menlove, H.: LA-7823-M (1979)
- Cates, M.R. et al.: Proc. of a Symp., Vienna, 2-6 June 1980, "Management Alpha-Contaminated Wastes", pp. 531-547, IAEA (1981)
- Duff, M.F. et al.: Proc. 9th ESARDA Symp. on Safeguards and Nuclear Mat. Mgt., London, U.K., 12-14 May (1987), pp. 411-415
- Gutmacher, R.C., Cremers, D.A. and Wachter, J.R.: *ibid.*, pp. 215-217