

## パルス中性子源を用いた 金属燃料合金材のドップラー効果測定

京都大学  
複合原子力科学研究所  
堀 順一  
[horii@rri.kyoto-u.ac.jp](mailto:horii@rri.kyoto-u.ac.jp)

### 1. はじめに

高レベル放射性廃棄物の処分に関し、幅広い選択肢を確保するため、放射性廃棄物の減容化・有害度低減を実現しうる「核廃棄物燃焼システム」の工学的見通しを得ることは将来のエネルギー計画を検討する上で重要な課題である。このような状況を背景として、東芝エネルギーシステムズ株式会社が代表機関となり「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃料システムの開発」と題する文部科学省原子力システム研究開発事業が平成 26~29 年度の 4 年間にわたって実施され、京都大学はその再委託先として研究を行ってきた。本研究課題では、軽水炉で発生する TRU を最小の高速炉基数にて燃焼することを目指して、U を含まない MA 入り Pu 金属燃料を用いた高速炉サイクルにて TRU を高い効率で燃焼できる「核廃棄物燃焼システム」についての検討が行われた [1]。

U を含まない TRU 金属燃料炉心では、U を含んだ燃料に比べてドップラー反応度が減少するため、安全性確保の観点から、適切な金属燃料合金材を選択することによりドップラー反応度を増強する必要がある。本事業では金属燃料合金材の候補として Mo または Nb を用いることが検討された [2]。ところが、これらの核種のドップラー反応率の評価精度については検証が十分なされていないため、本研究ではこれらの物質を対象として、京都大学複合原子力科学研究所電子ライナック（以下、KURNS-LINAC という。）のパルス中性子源を用いて、共鳴吸収分光法による共鳴領域の積分中性子吸収率の温度による変化量の測定を試みた。

本稿では、これまでに得られた成果の一部として、Mo の結果 [3] について紹介させていただく。

## 2. 実験

実験は KURNS-LINAC のパルス中性子源を用いて行った。高エネルギー電子を重金属に当てると、制動 X 線の発生と共に  $(\gamma, n)$  反応を経て光中性子が得られる。本実験では 46 MeV 電子線形加速器を用いて約 30 MeV まで加速した電子をチタン製容器に納められた水冷式 Ta ターゲットアッセンブリ（実効厚さ 29 mm）に当てて、ターゲット周りに配置された軽水モデレータで減速させた中性子を用いた。モデレータとターゲットの写真を図 1 に示す。本実験で用いたパックマン型と呼ばれる軽水モデレータに起因するエネルギー分解能は、先行研究によって中性子飛行距離 10 m において 0.1 eV~10 keV のエネルギー領域で 0.7~1.3%になることが評価されている [4]。実験の配置図を図 2 に示す。中性子ビームは、電子入射方向に対し 90 度方向に水平に取り出され、直径 50 mm にコリメートされて、Ta ターゲットから 10 m 離れた場所にセットされたサンプルへと導かれた。中性子飛行導管出口付近には中性子ビームモニタとして BF3 検出器を配置した。サンプルをガラスヒーターから成る昇温装置中心に設置することにより、サンプル温度を制御した。サンプルからの即発ガンマ線は、中性子ビーム軸に対照に置かれた 2 台の BGO 検出器を用いて測定した。BGO 検出器の周りは鉛ブロックで遮蔽した。昇温装置からの散乱中性子及び熱を遮蔽するために、厚さ 5 mm の 6LiF タイルを BGO 検出器と昇温装置の間に設置した。サンプルから検出器表面までの距離は 6 cm とした。



図 1 KURNS-LINAC のパックマン型中性子モデレータと Ta ターゲット

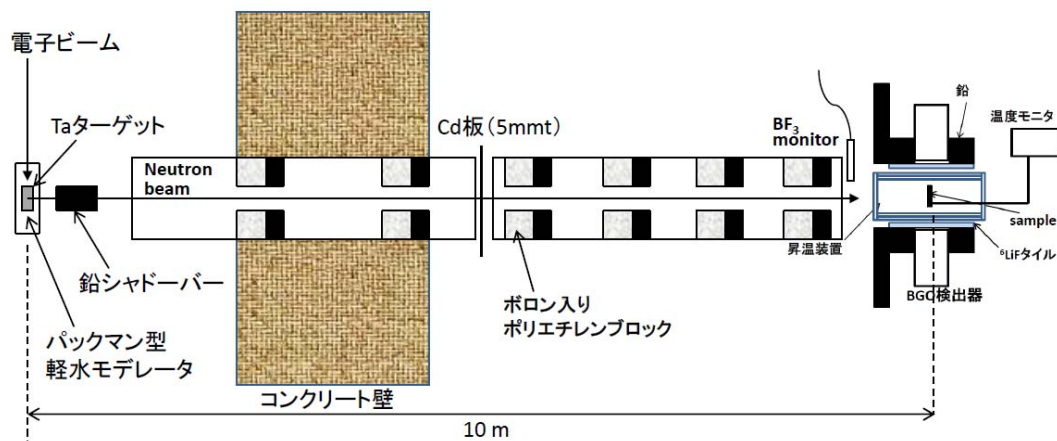


図2 TOF 実験の配置図

KURNS-LINAC の運転条件は、パルス幅 47 ns、繰り返し周波数 250 Hz とした。一つ前のパルスで生じた熱中性子が次のパルスで生じた中性子とオーバーラップしないように、ビームライン上には厚さ 0.5 mm のカドミウム板を挿入した。さらに、ターゲットから発生するガンマフラッシュの影響を低減するために、ターゲット近傍には鉛シャドーバーを設置した。BGO 検出器からの信号は、TOF と波高(PH)の 2 次元リストデータとして収集した。

サンプルには一辺 2.0 cm の天然組成の厚さの異なる Mo 板 (0.5 mm, 3.0 mm) を 1 枚ずつ用いた。測定はサンプル温度を 300 K または 600 K に保った状態で行った。このとき測定中のサンプル温度の変動は 10 K 以内であった。また、バックグラウンド測定のために、サンプルを置かずに昇温装置だけを置いた測定 (Blank 測定) と散乱体として厚さ 3 mm の黒鉛を昇温装置内に置いた測定 (C 測定) も行った。このときの測定時間を表 1 に示す。

表 1 Mo 実験における測定時間

Sample	Measurement time (h)	
	300 K	600 K
Mo(0.5 mm <sup>1</sup> )	6.0	5.8
Mo(3.0 mm <sup>1</sup> )	12.7	9.7
Blank	5.0	---
C(3.0 mm <sup>1</sup> )	3.1	---

### 3. 実験結果の解析・評価

測定時間で規格化した TOF スペクトルを図 3 に示す。10 eV~1 keV のエネルギー領域において Mo-95, Mo-96, Mo-97, Mo-98 の主要な共鳴が観測された。44.9 eV, 70.9 eV,

131.4 eV の共鳴については、中性子自己遮蔽効果が大きく共鳴ピークでの計数率はほとんど飽和していることが分かる。一方、300 eV 以上の領域では中性子自己遮蔽効果がそれほど小さくなく、共鳴ピークでの計数率はサンプルの厚さと共に増加している様子が分かる。Blank 測定と C 測定の間には TOF スペクトルの差はほとんど見られなかった。このことは Blank 測定で得られた TOF スペクトルをバックグラウンドとしてみなしても問題ないことを示している。一方、BGO 検出器に中性子が直接入射して  $^{75}\text{Ge}(n,\gamma)$  反応を引き起こしたことにより、 $^{75}\text{Ge}$  の共鳴構造が反映された時間依存のバックグラウンドが観測されているため、正味の捕獲事象を抽出するためには、注意深くバックグラウンドを引き去る必要がある。

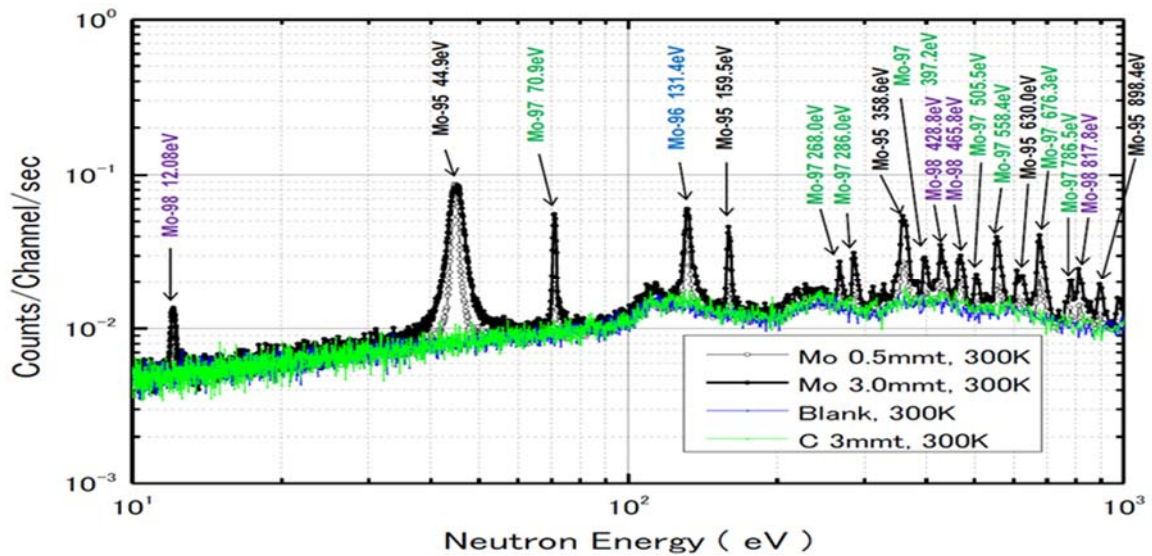


図3 Mo サンプルとバックグラウンド測定における TOF スペクトルの比較

異なるサンプル温度での厚さ 3 mm の Mo に対する TOF スペクトルの比較を図 4 及び図 5 に示す。図 4 に示した 4 つの共鳴はいずれも中性子自己遮蔽効果が大きいいためスペクトルからドップラー効果の影響を識別することは難しいが、図 5 に示した 300 eV 以上のエネルギー領域では、中性子自己遮蔽効果が比較的小さい 358.6 eV と 676.3 eV の共鳴においてドップラー効果による反応率の増加をはっきりと観測することができた。温度による反応率変化をより分かりやすくするために、決定論的手法による高速炉の炉心解析で使用される JFS-70 群構造[5] (lethargy 幅=0.25) で TOF スペクトルをバンチングして多群表示した結果を図 6 に示す。ドップラー効果に大きく寄与する主要な共鳴 (44.9 eV、70.9 eV、358.6 eV 共鳴) を含むエネルギー群では、温度変化により最大 8% の反応率の増加を観測した。

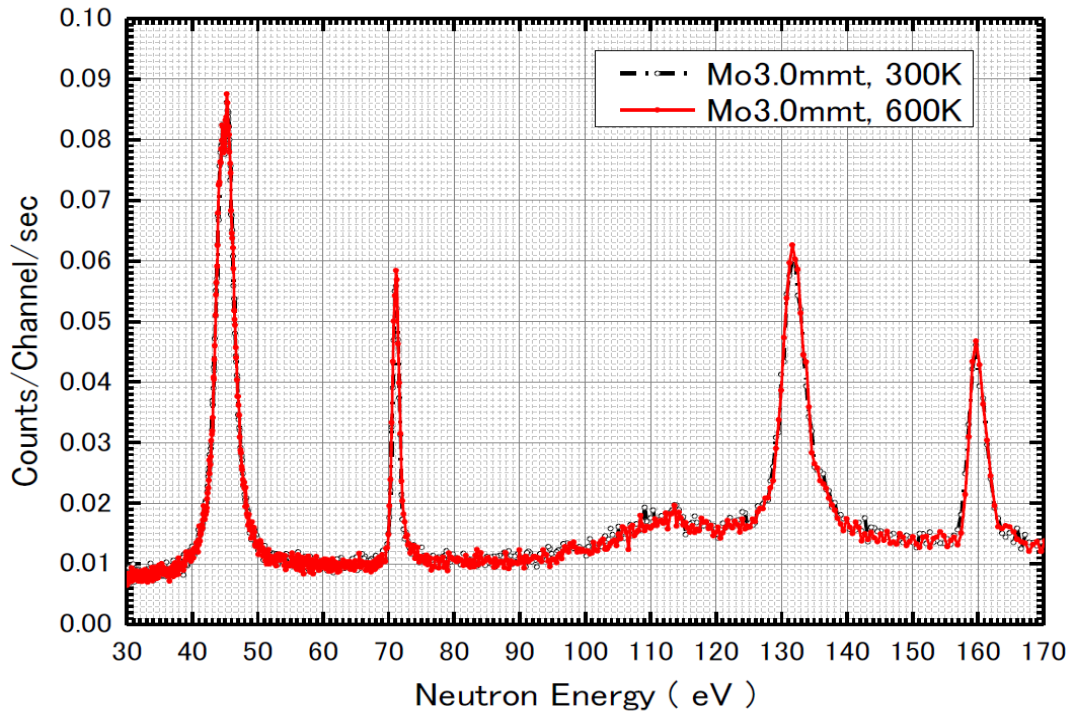


図4 300 K 及び 600 K のときの厚さ 3 mm の Mo サンプルに対する TOF スペクトルの比較 (30 eV < E < 170eV)

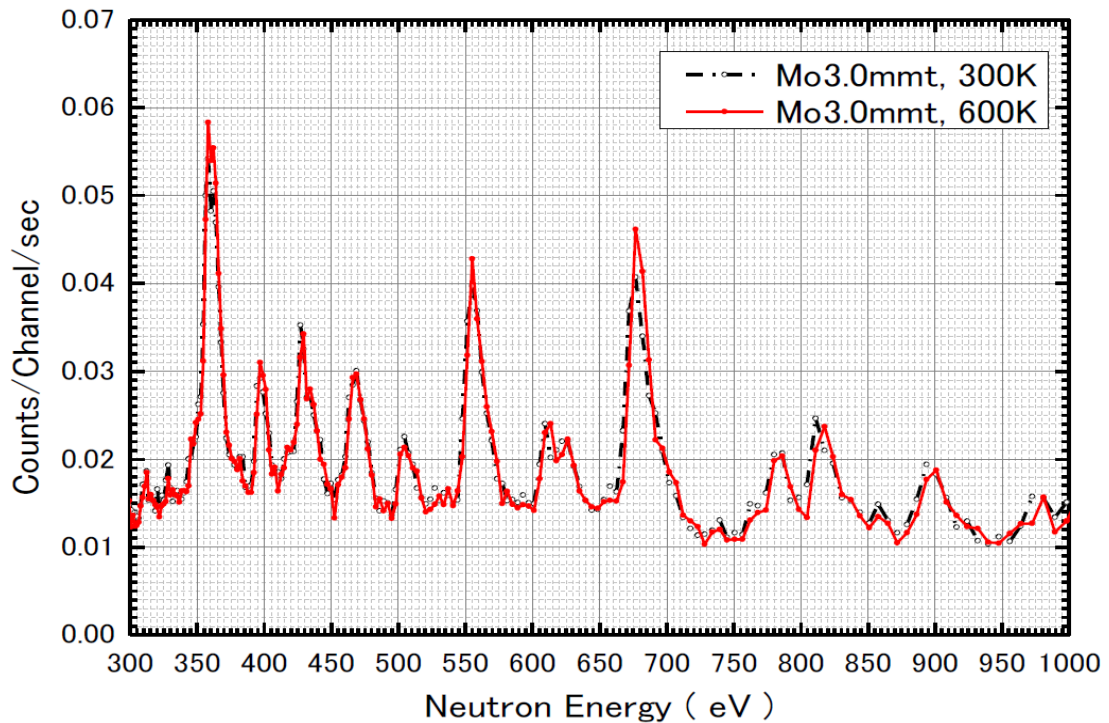


図5 300 K 及び 600 K のときの厚さ 3 mm の Mo サンプルに対する TOF スペクトルの比較 (300 eV < E < 1 keV)

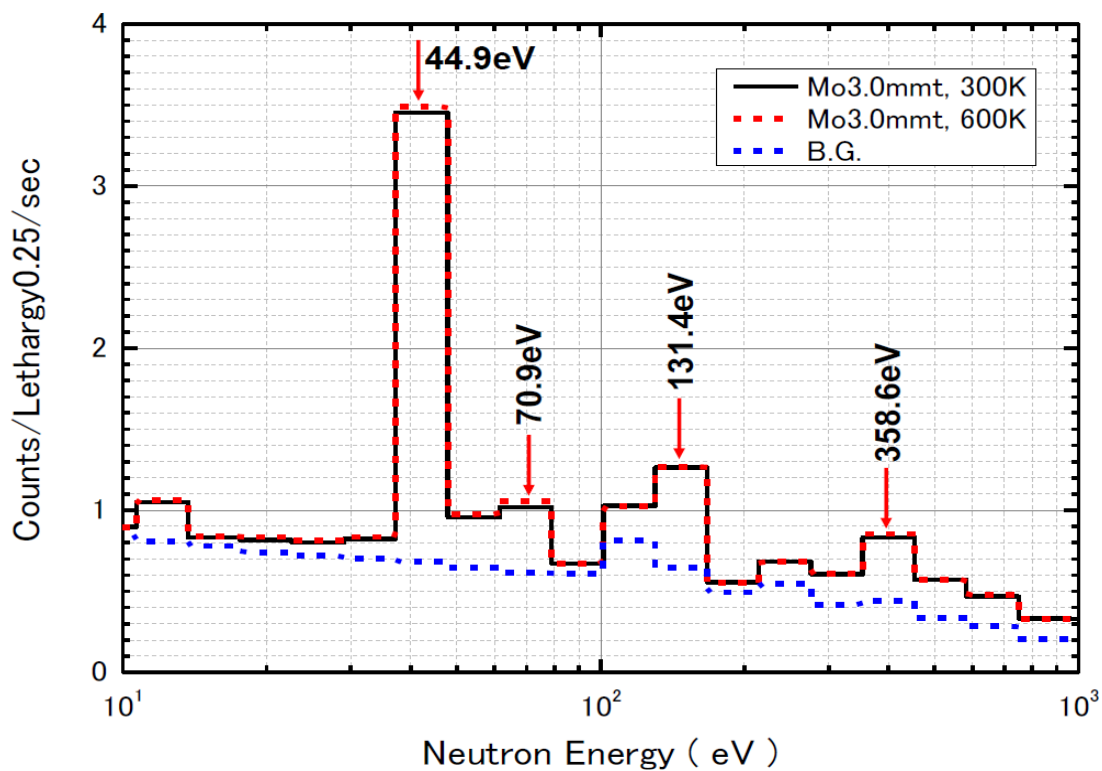


図6 厚さ 3 mm の Mo サンプルにおける JFS-70 群構造での TOF スペクトル

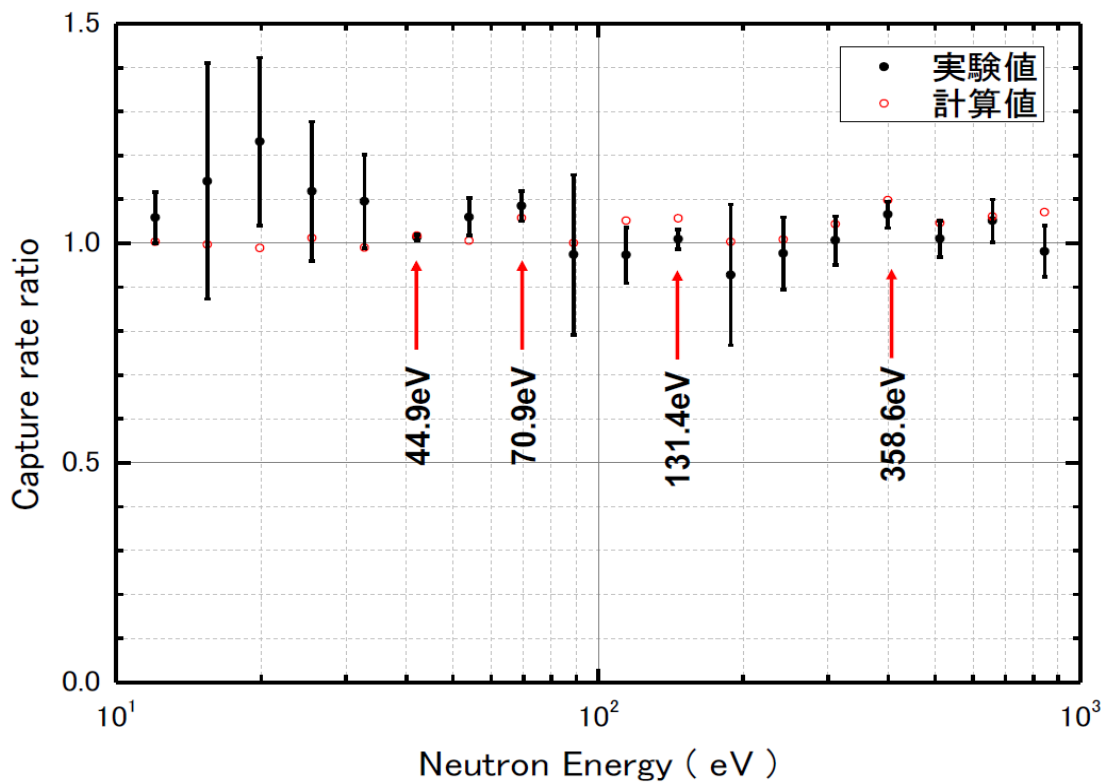


図7 厚さ 3 mm の Mo サンプルにおけるドップラー反応率比の実験値と計算値の比較

温度による反応率変化は、モンテカルロ輸送計算コード MVP2.0 [6] と評価済み核データライブラリ JENDL-4.0 [7] を用いた数値計算によっても評価した。軽水モデレータ表面から放出される中性子スペクトルを面線源として中性子を発生させ、JFS-70 群に対してサンプル中での中性子吸収率を算出した。ここで、サンプル温度 300 K における吸収率に対する 600 K における吸収率をドップラー反応率比と定義した。エネルギー群ごとに求めたドップラー反応率比の計算値と実験値の比較を図 7 に示す。

数値計算により算出したドップラー反応率比を、数値計算と同じ群構造での実験値と比較すると、131.4 eV 共鳴を除き、主要な共鳴 (44.9 eV, 70.9 eV, 358.6 eV) を含む反応率の大きなエネルギー群では、数値計算は実験値を 10%以内の精度で再現できることが分かった。

#### 4. おわりに

U を含まない MA 入り Pu 金属燃料を利用した炉心では、金属燃料合金材料によるドップラー反応度は安全確保の観点から重要な役割を果たす。本研究では、合金候補材料の一つである Mo について、KURNS-LINAC のパルス中性子源を用いてドップラー反応率比の微分測定を試みた。厚さ 3 mm の Mo をサンプルとした場合、主要な共鳴 (44.9 eV, 70.9 eV, 358.6 eV) については、300 K から 600 K に昇温させると最大 8%のドップラー反応率の増加が観測され、これらの反応度変化は既存の核データを用いたモンテカルロ法による数値計算によって 10%以内の精度で再現できることを検証した。本稿では説明を割愛したが、もう一方の候補材である Nb についても同様な測定実験並びに検証を行っている。このことから、本研究開発で着眼した代替合金材については、ドップラー効果評価の所期の目標精度である 20%を実現できる見通しを得た。

本研究では通常の核データ測定とは異なり、サンプル温度を制御することにより、個々の共鳴についてドップラー効果を実測したことが特徴的な点である。対象核種のドップラー反応率評価精度について検証するという本事業の目標は達成したが、研究過程においてドップラー効果による反応率変化と共鳴毎の自己遮蔽因子との相関性についても興味深い傾向が見られたので、今後も引き続き研究を進めていきたい。

#### 謝辞

本研究は、文部科学省原子力システム研究開発事業の一環として実施したものです。本稿では、再委託先として京都大学が実施した研究の成果の一部を紹介させていただきました。研究代表者の東芝エネルギーシステムズ株式会社の有江和夫様をはじめ、関係者の方々のご協力に感謝致します。

## 参考文献

- [1] K. Arie et al., “Innovative TRU Burning Fast Reactor Cycle Using Uranium-free TRU Metal Fuel (1) Overview and Progress of Core Design Study”, Proc. of Global 2015, Sep. 20-24, Paris, France, 5096 (2015).
- [2] K. Arie et al., “TRU Burning Fast Reactor Cycle Using Uranium-free Metallic Fuel”, Proc. of ICAPP 2014, Charlotte, USA, April 6-9 (2014).
- [3] T. Sano et al., “Measurement of Doppler Effect for Metallic Fuel Alloy Material by TOF Method”, Energy Procedia, 131, 292-298 (2017).
- [4] T. Sano et al., “Analysis of energy resolution in the KURRI-LINAC pulsed neutron facility”, EPJ Web of Conferences, 146, 03031 (2017).
- [5] M. Nakagawa and K. Tsuchihashi, “SLAROM: A Code for Cell Homogenization Calculation of Fast Reactor”, JAERI 1294 (1984).
- [6] Y. Nagaya et al., “MVP/GMVP II : General Purpose Monte Carlo Codes for Neutron and photon Transport Calculations based on Continuous Energy and Multigroup Methods”, JAERI1348, Japan Atomic Energy Research Institute (2005).
- [7] K. Shibata et al., “JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering”, J. Nucl. Sci. Technol., 48, 1 (2011).