

マイクロカロリメーターを用いた14 MeV中性子 による構造材中の核発熱直接測定

(日本原子力研究所) 池田 裕二郎

1. 序論

中性子が物質中で核反応によりエネルギーを付与する過程を総称して核発熱と呼ぶ。核融合炉核設計において、核発熱はエネルギー生産に直接関わるものとして、燃料自己充足性を規定するトリチウム増殖と並んで最も基本的な核的パラメーターである。特に、高い 14 MeV 中性子負荷に曝されるプラズマ対向材、真空第一壁では核発熱に起因する発熱は熱設計に大きな影響を与える。核発熱は核反応断面積と反応粒子エネルギーを基にした KERMA 係数をレスポンスとして中性子及び γ 線束から与えられる。従って核発熱計算精度は中性子及び γ 線束の精度とKERMA係数の精度に依存する。核設計に用いる評価済み核データは積分実験によりその妥当性が吟味されてきているが、これまで整備されている核発熱に供する KERMA 係数¹⁻⁶⁾ の不確定性の範囲は多くの物質に対して実験による試験の困難さ故、有効な検証は行われていなかった。そこで核発熱に関する計算精度の積分的検証並びに関連する核データの妥当性の試験を目的に、強力 D-T 中性子源 FNS⁶⁾ を用いて、主要な核融合構材を対象とした 14 MeV 中性子核発熱直接測定実験を開始進めてきた。⁷⁻¹¹⁾

本稿では、これまでに行ってきた測定法の開発と実験内容の紹介とともに JENDL-3 等の核データを用いた実験解析に基づく計算精度の現状について紹介する。

2. 実験

2.1 測定条件

D-T 中性子束が 10^9 から $10^{10}/\text{cm}^2/\text{s}$ 程度では、極微少な核発熱による温度上昇しか期待できない。この中性子束レベルは現在世界で最も高い強度を有する FNS で得られる範囲を示す。この中性子束強度で SS-316 中で発生する核発熱による温度上昇は、GICX 40 ライブラリーを用いた DOT3.5 による予備的な計算では 10^{-4} から 10^{-5} K/s であった。従って、通常の温度測定では、観測に大きな困難を伴うことは明らかである。良く温度制御された部屋でも温度の変化量は予想される核発熱による温度変化に比べて遙かに大きく、測定には如何に周辺温度変化を抑えるかが最も重要な条件である。マイクロカロリメーターを構成する上で次のことが一般的な必要条件である。

(1) 温度センサー系の熱的な安定性

(2) 低ノイズ計測系

(3) バックグラウンドの低減

本研究では(1)の条件から、温度センサーとして抵抗温度計；白金測温抵抗体(RTD；Resistance Thermo Detector)並びにサーミスターを用いた。実際に、中性子フルエンス $10^{16}/\text{cm}^2$ までの照射では、センサーの特性変化は見られなかった。また、取り扱いが簡便で、熱電対のように基準温度点が不用で、点中性子源による照射場の傾斜を考慮すれば、抵抗センサーの有利さは明らかである。(2)の要請から 10^{-4} から 10^{-5}K/s 程度の温度上昇に対する出力を有意な分解能で測定可能な微小電圧計が必須で、一般にナノボルトメータと呼ばれる計測器(最小感度 10^{-8} Volt)の適用を図った。(3)のバックグラウンドの低減は、カロリメータでは最も基本的な概念である。¹²⁻¹⁶⁾ 如何に、測定対象を外部の温度変化から遮断するか、断熱の良否は大きな影響を測定系に及ぼす。しかしながら、中性子及び γ 線混在場での核発熱測定では、系をなるべく単純化し周辺物質の影響を極力低減する必要がある。散乱中性子線、2次 γ 線の寄与を少なくするためには、いわゆるカロリメータで採用している多重の断熱層を適用することは避けなければならない。また、できるだけ高い中性子束強度で測定対象を照射することも、S/Nの良い測定を達成する条件である。

2.2 カロリメータ

以上の観点から、本研究では、図-1に示す単純な系でカロリメータを構成した。核発熱測定対象物質及び寸法形状を表-1に示す。本カロリメータは対象物質を直接測定プローブとした。温度センサーとして白金測温抵抗体(RTD: 100W、0.8 mm 径、有効長 20 mm: 岡崎製作所製)及びビーズ状のサーミスタ(TM: 10 kW、 $0.5 \times 0.2 \times 2\text{ mm}^3$: 米国(α 社製))を用いた。RTD、TMの温度係数は、各々、 2.53°C/W 、 $-2.04 \times 10^{-8}^\circ\text{C/W}$ である。各プローブの前、後面にサーミスタを、側面にRTDを接触させ真空容器に挿入した。プローブは、円筒状の真空容器の中心軸上の位置に熱伝導率の低い厚さ 0.3 mmの紙で支持し、周囲からの直接の伝熱による影響を少なくした。真空容器は 10^{-8} torr 程度の真空に保ち外部と空気による伝熱及び対流を軽減した。真空容器外周をさらに発泡スチロールで覆い外気温の変化の影響を減らすことにした。しかしながら、中性子源側はプローブとの距離を短くするために、発泡スチロールの厚さは 10 mm、真空容器前面内壁とプローブ前面との距離は 10 mm とした。これを FNS 回転ターゲットの直前に設置し、最終的な中性子源からプローブ前面までの実効的な距離は 30 から 40 mm であった。

温度変化による抵抗変化は定電流源による一定電流を常に抵抗温度センサーに流すこ

とが必要である。流す電流は、センサー部でのジュール発熱を最小にしかつ電圧計で有意な信号として観測できる範囲から決定した。RTD 及び TM に各々、1 mA 及び 10 mA とした。電圧計は現在最も感度の高い Kethley 社のモデル 182、及び 181 微少電圧計を TM の測定に、Solatron 社のモデル 7081 を RTD の測定に用いた。

2.3 中性子照射及び測定

D-T 中性子照射は原研 FNS⁶⁾ の回転ターゲットを用いた。中性子発生率は、エネルギー 350 keV の重陽子ビーム 20 mA で約 $2\sim 3 \times 10^{12}/s$ であった。カロリメーター系を中性子源の直前に設置し照射した。3分照射、2分冷却を数回繰返し、その間センサーの抵抗変化を 10 秒置きに継続して測定した。測定データは、GP-IB で各測定器をコンピュータ制御して収集した。実験解析を行うためには正確な中性子源とプローブの位置関係が必要である。カロリメーターのセッティングには不確定性があり、プローブの前面にニオブ箔を置き、 $Nb-93(n, 2n)Nb-92m$ 反応から求めた中性子束と、ターゲットで発生した中性子源強度から $1/(距離)^2$ の関係より実際の距離を導出した。

2.4 データ処理

先に述べたように、本カロリメーターは抵抗センサーを用いているために、センサー部にジュール加熱による発熱が生ずる。一定電流の条件で、かつ、断熱を仮定した場合、この発熱は常に一定であるが予想される核発熱と比べ2桁大きい。従って、直接温度の時間変化から核発熱による信号を抽出することは極めて困難であることが当初より予想されていた。核発熱による温度上昇の観測には、バックグラウンドとしての、ジュール発熱及び外部温度変化の寄与を差し引くことが不可欠である。その方法として、図-2 に示すように、データの差分を取り、温度の時間変化率（時間微分）を求めた。もし、バックグラウンドによる温度変化が測定している時間で緩やかで一定と見做せる範囲にあれば、図-2 に示すような矩形状の核発熱による応答が観測されるはずである。

3. 測定結果と実験誤差

図-3.1(a)、(b) にモリブデンの、図-3.2(a)、(b) に錫の各々 TM、RTD で測定した、D-T 中性子照射前後の温度変化率に対応する抵抗変化率を示す。TM によるデータは、TM が負の温度係数を持っているので負の矩形状の応答をしめしている。逆に RTD では図-2 で示したように正の応答を示している。いずれにしても、温度の時間微分を取ることにより核発熱によるプローブ中の温度上昇率を抽出することができた。TM の測定データを詳細にみると照射開始時には、プローブ前面のセンサーでは立上りが早く後面のセンサーでは比較的ゆっくりした立上りを示している。前面の値は、後面の値より照射開始

時には若干高いが照射終了時(約3分後)にはほぼ同じ値を示している。また、照射終了時(約3分後)では、前面のセンサーの立下がり方が後面のセンサーより早いことを示している。これは、勾配を持った中性子束分布により核発熱率の傾きから熱の移動が生じていることを示している。しかしながら、中性子束強度の差ほど、温度変化率はプローブ前後で大きな差となって現れていない。これは、金属では、熱伝導率が大きく10秒間隔のデータサンプリング時間内に素早く熱の移動が達成されるからと考えられる。RTDはプローブ長とほぼ同じ有感領域を持ってプローブと側面で接触しているため温度変化率は熱の移動による影響は無く照射中一定であることを示している。

図3.3(a)、(b)には、炭酸リチウムをプローブとした温度変化率を示す。焼結した炭酸リチウムは金属と比べて非常に熱伝導率が悪いので熱の移動に対応する温度変化率の差がTMの測定データに顕著に現れている。炭酸リチウムの中心に挿入したRTDでの測定データは、熱の流出流入がバランスしているために温度変化率の時間依存性は現れていない。

いずれにしても、照射中の矩形を形成する温度変化率データを統計的に処理し、物質固有の比熱¹⁷⁾を用いて、核発熱率実験データを導出した。主な実験誤差は、データの揺らぎ、バックグラウンドの揺らぎ、中性子発生量で、全体の不確定性は±5から9%の範囲であった。

4. 実験解析

4.1 計算条件

実験条件を詳細に模擬して、各物質中の核発熱率の計算を行い実験値と比較を通して、核発熱を与えるKERMA係数の妥当性を調べた。今回テストしたものは、JENDL-3¹⁸⁾から作成したFUSION-J3¹⁹⁾のKERMAライブラリー⁸⁾(中性子のみ、 γ 線に関してはDL C-99²⁰⁾のデータを使用)、ENDF/B-Vから作成したRMCCSライブラリー²¹⁾、ENDL-85ライブラリー²²⁾、及びENDF/B-IVを基にしたBMCCSライブラリー²³⁾である。中性子及び γ 線の計算は、JENDL-3に関する計算は、FUSION-J3を断面積ライブラリーとした2次元中性子輸送計算コードDOT3.5²⁴⁾で、その他のライブラリーに対しては、RMCCSを用いた3次元モンテカルロコードMCNP²⁵⁾で行った。

4.2 計算と実験の比較と検討

図-4に今回テストした各物質に対する、計算値と実験値の比(C/E)を示す。破線は実験誤差を±10%とした範囲を示す。この図から、実験値との一致において、JENDL-3による計算が全般的に良いことが示された。しかしながら、黒鉛、モリブデンで20%、タングステンで30%の過大評価している。ENDL-85も比較的良好な結果を与えている。

黒鉛、ニッケル、タングステンの約 20 % 過大評価を除いては実験値と誤差の範囲で一致した。RMCCS(ENDF/B-V) は黒鉛、ニッケル、鉛で 30 % 以上の過大評価、タングステンで 20 % の過大評価、モリブデンでは逆に 15 % の過小評価となった。チタン、ニオブ、炭酸リチウムに関してはどのライブラリーも実験値との一致は満足に行く結果を与えた。BMCCS(ENDF/B-IV) は炭酸リチウムを除いて大きく過大、過小評価しており、データも古いことから、今後の対象から落としても差し支えないと考える。

以上の結果から、JENDL-3 は少なくとも 14 MeV 中性子が支配的な場において、核発熱積分量（中性子+ γ 線）に対する実験値をよく現している。実験値に ± 10 % 程度の不確実性があることを考慮すれば、 ± 30 % 以内の一致は、大変満足のいく状況と考えられる。

5. 結論と今後の研究課題

マイクロカロリメーターの適用により、D-T 中性子場環境における核発熱に関する核データの検証を行える実験データが初めて測定できた。しかしながら、研究は、その第一歩を足したばかりであり、今後の目標として次のことを念頭において研究を進めることにしている。

- (1) 低熱伝導率物質における時間依存温度変化の解析を行う。
- (2) さらに、検出感度の向上を図り大型体系の深層部での測定を行う。
- (3) 中性子及びガンマ線に対する異なる感度を持つプローブの組み合わせにより、核発熱の中性子及びガンマ線成分を分離した測定を行う。

謝辞

本研究の多くは、日米共同実験で行った成果を基にしている。共同で研究に携わった方々に対して、ここに感謝の意を示す。

参考文献

1. M. A. Abdou, C. W. Maynerd and R. Q. Wright, "MACK: A Computer Program to Calculate Neutron Energy Release Parameters(Fluence-to-Kerma Factor) and Multigroup Reaction Cross Sections from Nuclear Data in ENDF Format," ORNL-TM-3994 (Jul. 1973).
2. M. A. Abdou and C. W. Maynard, "Calculation Method for Nuclear Heating - Part I: Theoretical and Computational Algorithms," Nucl. Sci. Engrg. 56 (1975) 360.
3. M. A. Abdou and C. W. Maynard, "Calculation Methods for Nuclear Heating - Part II: Applications to Fusion Reactor Blanket and Shields," Nucl. Sci.

- Engrg. 56 (1975) 381.
4. Y. Farawila, Y. Gohar and C.W. Maynard; "KAOS/LIB-V: A Library of Nuclear Response Functions Generated by KAOS-V Code from ENDF/B-V and Other Data Files," ANL/FPP/TM-241 (1989).
 5. K. Maki, H. Kawasaki, K. Kosako and Y. Seki, "Nuclear Heating Constant KERMA Library," JAERI-M 91-073 (1991). (in Japanese)
 6. T. Nakamura, H. Maekawa, J. Kusano, Y. Oyama, Y. Ikeda, C. Kutsukake, S. Tanaka and Shu. Tanaka: Present Status of the Fusion Neutron Source(FNS), Proc. 4th Symp. on Accelerator Sci. Technol., RIKEN, Saitama, 24 - 26 November (1982) 155-156.
 7. Y. Ikeda, C. Konno, K. Kosako and D. P. Kuhn, "Direct Measurement of Temperature Rise in Structural Materials Due to Nuclear Heating by 14 MeV Neutrons," JAERI-M 89-128 (1989) pp. 153-154.
 8. D. P. Kuhn, W. Vath, Y. Ikeda, and C. Konno, "A Calorimetric Measurement of the Nuclear Heating Effect in Steel and Graphite Caused by 14 MeV Neutrons," KFK report, INR 1708 (1990).
 9. A. Kumar, Y. Ikeda and C. Konno, "Experimental Measurements and Analysis of Nuclear Heat Deposition Rates in Simulated D-T Neutron Environment: JAERI/USDOE Collaborative Program on Fusion Neutronics Experiments," Fusion Technol. Vol. 19, 3, Part 2B (1991) pp 1979 -1988.
 10. A. Kumar, et al., "Direct Nuclear Heating Measurement in Fusion Neutron Environment and Analysis," Fusion Eng. and Design, 18 (1991) pp397-405.
 11. Y. Ikeda, et al., "Measurement and Analysis of Nuclear Heat Depositions in Structural Materials Induced by D-T Neutrons," Fusion Technol., 21 (1992) 2190.
 12. S. R. Domen, "Advances in Calorimetry for Radiation Dosimetry," pp.245-320, in "The Dosimetry of Ionization," Vol.II, edited by K. R. Kase, B. E. Biangrad and F. H. Attix, Academic Press, Inc., Orlando (1987).
 13. S. R. Gunn, "Radiocalorimetric Calorimetry: A Review," Nucl. Instrum. Methods, 29, 1 (1964); also other two later reviews with identical titles in Nucl. Instrum. Methods, 85, 285 (1970) and Nucl. Instrum. Methods, 135, 251 (1976).
 14. S. R. Domen and P. J. Lamperti, "A Heat-loss-compensated Calorimeter: Theory, Design and Performance," J. Res. Nat. Bur. Stand. (U. S.) (Phys.

- and Chem.), 78A(5): 595 (1974).
15. J. S. Laughlin and S. Genna, "Calorimetry," pp. 380-441, in "Radiation Dosimetry", Vol. II, edited by F. H. Attix and W. C. Roesch, Academic Press Inc., New York (1966).
 16. J. A. Mason, A. N. Asfar and P. J. Grant, "Improved Microcalorimetry for Radiation Absorbed Dose Measurement," Proc. 5th ASTM-Euratom Symp. on Reactor Dosimetry, Vol. 1, (1984) pp. 415-423.
 17. Y. S. Touloukian and E. H. Buyco, Specific Heat: Metallic elements and alloys, Vol. 4 of Series on Thermophysical Properties of Matter (IFI/Plenum, New York, 1970); see also, by same authors, "Specific Heat: nonmetallic solids, Vol. 5 of the series, (IFI/Plenum, New York, 1970).
 18. K. Shibata, et al., "Japanese Evaluated Nuclear Data Library, Version-3," JAERI-1319 (1990).
 19. K. Maki, K. Kosako, Y. Seki and H. Kawasaki, "Nuclear Group Constant Set FUSION-J3 for Fusion Reactor Nuclear Calculations Based on JENDL-3," JAERI-M 91-072 (1991).
 20. R. W. Roussin, J. R. Knight, J. H. Hubbell and R. J. Howerton, "Description of DLC-99/HUGO Package of Photon Interaction Data in ENDF/B-V Format," ORNL/RSIC-46 (ENDF-335) (1983).
 21. R. E. MacFarlane, D. W. Muir and R. M. Boicourt, "The NJOY Nuclear Data Processing System, Vol. II: The NJOY, RECONR, BROADR, HEATR and THERMR Modules," LA-9303-M, Vol. II (ENDF-324) (1982).
 19. R. J. Howerton, "Calculated Neutron Kerma Factors Based on the LLNL ENDL Data File, UCRL 50400 Vol 27 (Jan. 1986).
 22. R. J. Howerton, "Calculated Neutron Kerma Factors Based on the LLNL ENDL Data File," UCRL-50400 Vol. 27 (1986).
 23. R. MacFarlane, "Energy Balance of ENDF/B-V," Trans. Am. Nucl. Soc. 33 (1979) 681.
 24. W. A. Rhoades and F. R. Mynatt, "The DOT III Two-Dimensional Discrete Ordinates Transport Code," ORNL/TM-4280 (1979).
 25. J. F. Breisemeister, ed. MCNP-A General Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport: Version 3A, Report No. LA-7396-M, Rev. 2 (Sep. 1988), along with MCNP3B newsletter dated Jul. 18, 1988, Los Alamos National Laboratory.

表-1 プローブ物質の物性値と寸法, 形状

Materials	Specific Heat* (J/g/K)	Conductance (W/m/K)	Density (g/cm ³)	Dimension (mm)
C ⁺	0.712 (0.540) ^{c)}	160	2.25	21φ x 20
Ti	0.527 (0.528)	22	4.51	21φ x 20
Ni	0.444 (0.440)	91	8.90	21φ x 20
Zn	0.388 (0.381)	119	7.133	21φ x 19
Zr	0.284 (0.301)	22	6.489	21φ x 18
Mo	0.248 (0.255)	135	10.22	21φ x 20
Sn	0.218 (0.226)	67	7.29	26φ x 20
Pb	0.128 (0.130)	35	11.34	19φ x 20
W	0.133 (0.134)	170	19.24	21φ x 20
Nb	0.256 (0.272)	51	8.57	21φ x 20
Li ₂ CO ₃	0.879 (----)	< 1	1.82	50 x 50 x 50

a) Value at 300°K, b) Graphite,
c) Values in parentheses were taken from Ref-18)

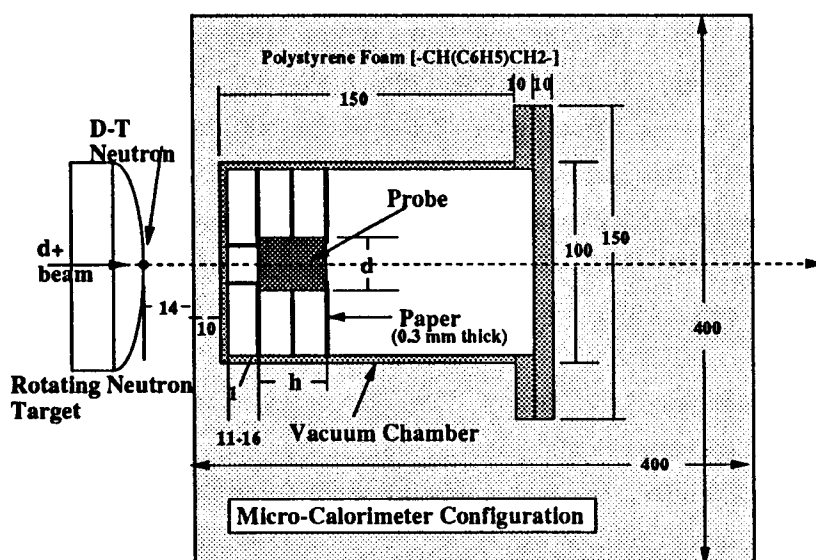


図-1 マイクロカロリメーターの断面図及び実験配置

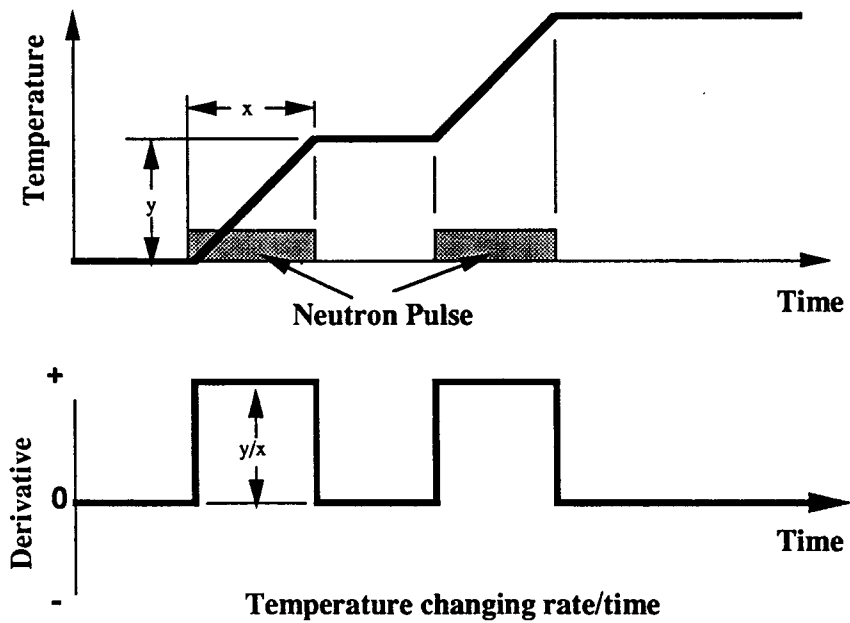


図-2 核発熱による温度及び温度上昇率の時間変化の概念図

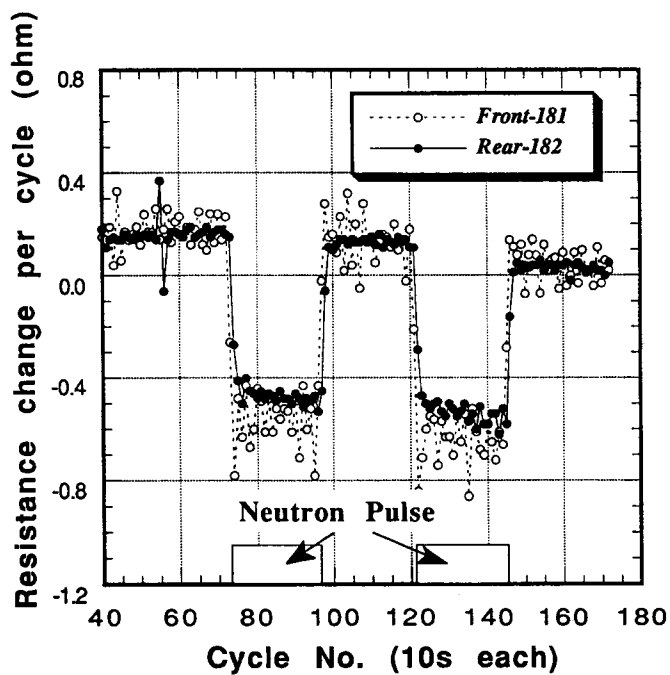


図-3.1(a) サーミスタ (TM) で測定したモリブデンの核発熱による温度上昇率

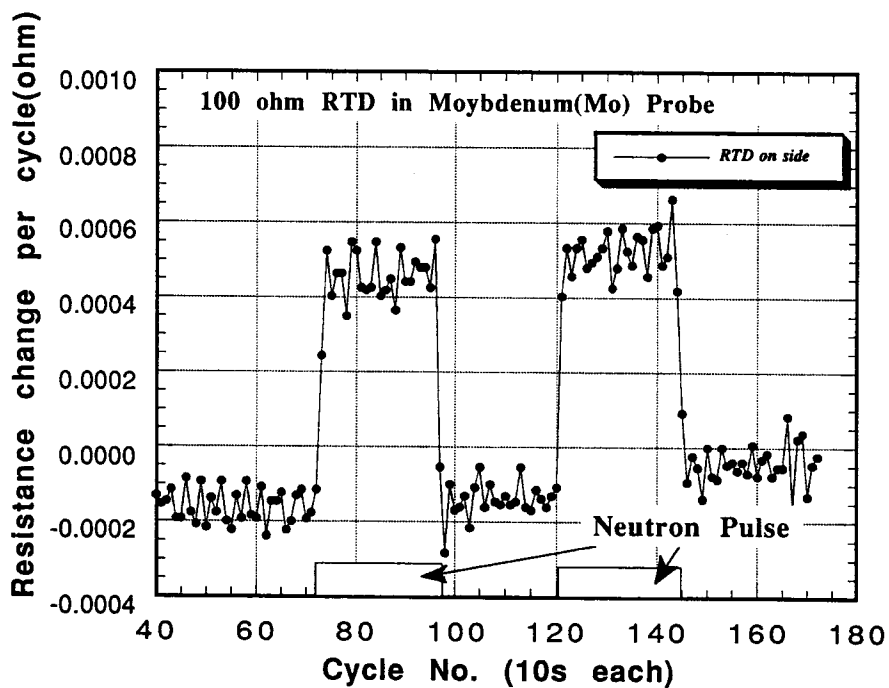


図- 3.1(b) 白金測温抵抗体 (R T D) で測定したモリブデンの核発熱による温度上昇率

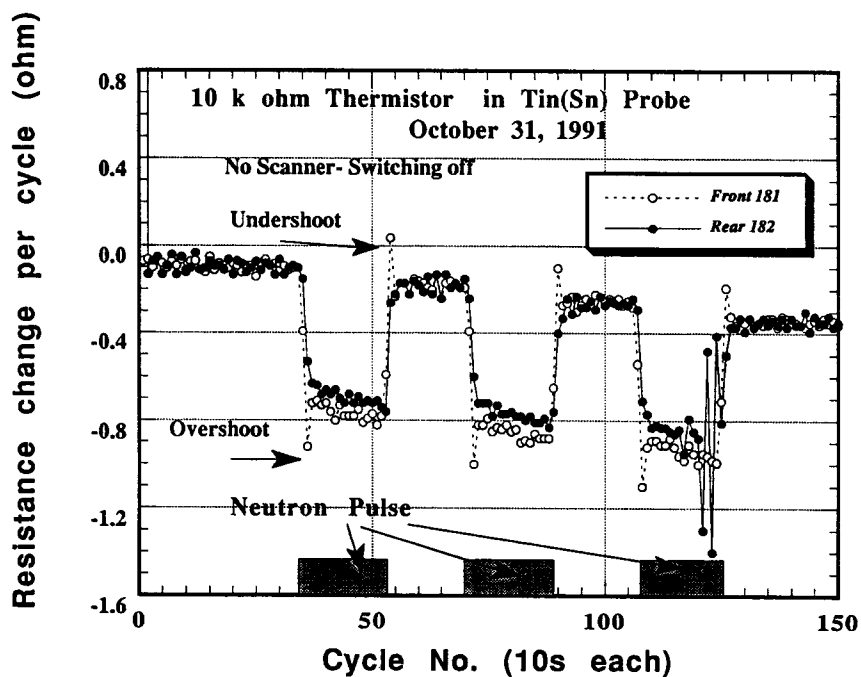


図- 3.2(a) サーミスタ (T M) で測定した錫の核発熱による温度上昇率

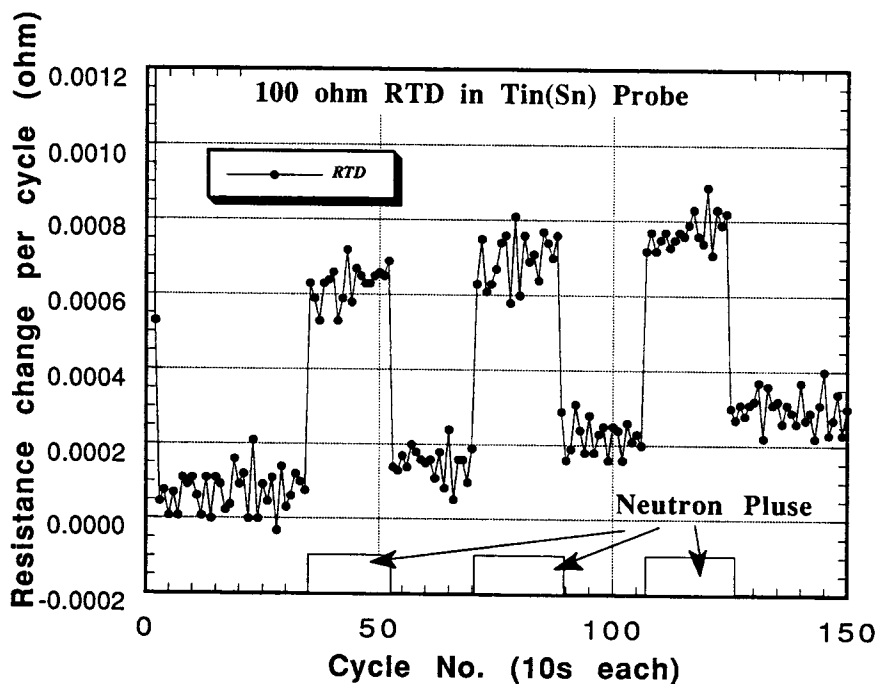


図-3.2(b) 白金測温抵抗体 (RTD) で測定した錫の核発熱による温度上昇率

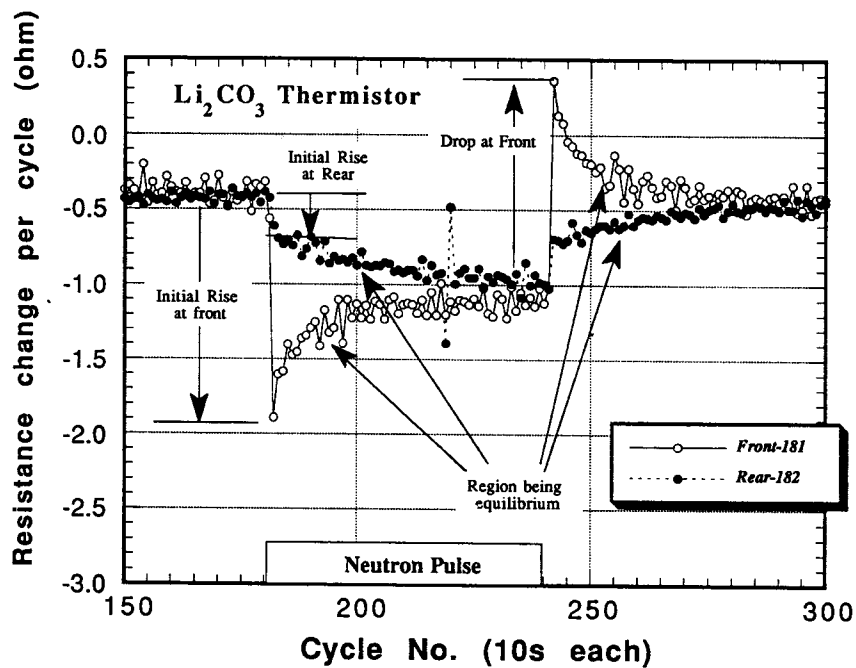
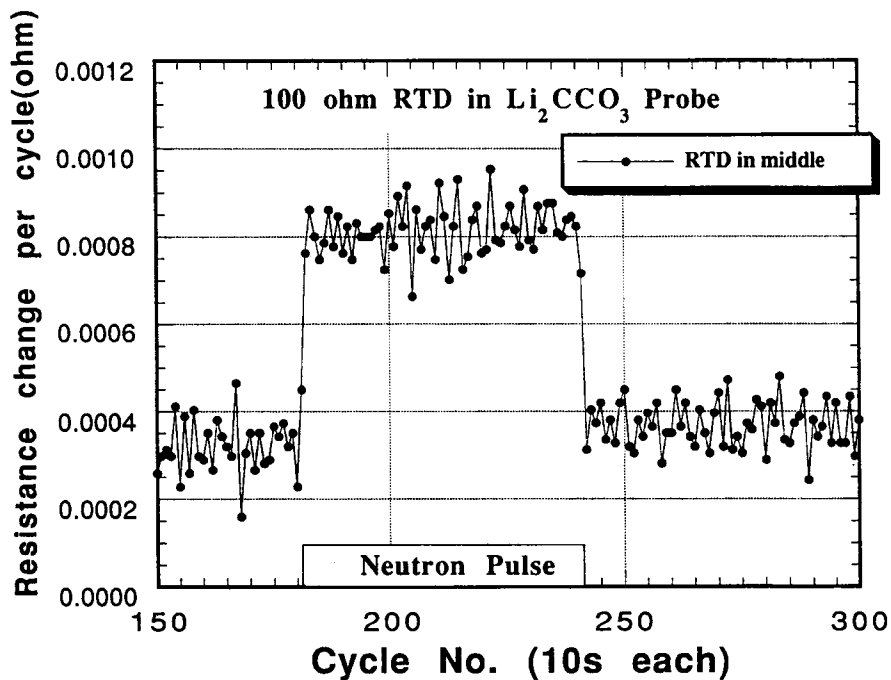
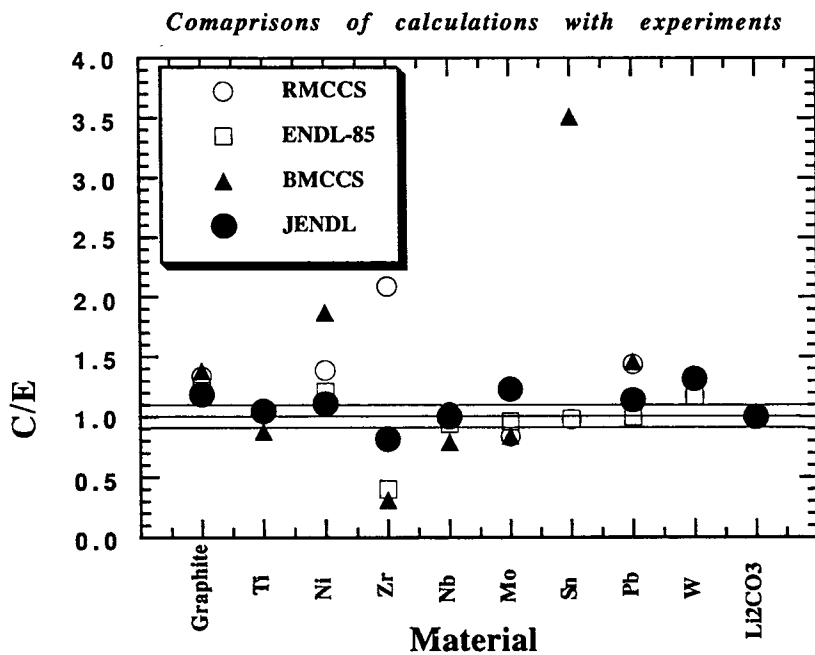


図-3.3(a) サーミスタ (TM) で測定した炭酸リチウムの核発熱による温度上昇率



図－3.3(b) 白金測温抵抗体（RTD）で測定した炭酸リチウムの核発熱による温度上昇率



図－4 核発熱率に対する計算値と実験値の比（C/E）