

令和 5 年 6 月 26 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2022

課題番号：19K15474

研究課題名（和文）中性子核反応の完全制御への挑戦－フレキシブルな中性子スペクトル場の創成

研究課題名（英文）Challenge for the complete control of neutron reaction -Creation of flexible neutron spectrum field

研究代表者

相澤 直人（AIZAWA, Naoto）

東北大学・工学研究科・助教

研究者番号：70707033

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では加速器駆動システム(ADS)における中速中性子に対する核変換実現性を明らかにすることを目的として、中速中性子による核反応の挙動解明のためのADS原子炉実験ならびに様々な条件におけるADS仮想実験解析を実施した。原子炉実験では、中速中性子測定の検証と数値解析の検証を目的とした放射化反応率測定実験を実施し、放射化箔法による中速中性子測定ならびに数値解析の妥当性が確認された。ADS仮想実験解析では、減速材・中性子源位置・未臨界度等の様々な原子炉条件を有するADS体系を対象とした解析を実施した。数値解析の結果、諸条件に対する中速中性子による放射化反応への影響は極めて小さいことが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

加速器駆動システム(ADS)は原子炉と加速器を組み合わせた原子炉システムであり、エネルギー分布の異なる2つの中性子（核破砕中性子、核分裂中性子）が存在する。そのため、ADSでは、原子炉の条件を変化させることで多様なエネルギー場を1つの原子炉に作り出すことができる可能性があり、長寿命・高毒性核種の核変換だけでなく有用元素の製造等のための中性子源としての活用が期待できる。本研究では、多くの核種で共鳴構造を持ち、中性子との難反応核種でも比較的反応性を高められることが期待される中速中性子に着目し、ADSにおける中速中性子による中性子核反応特性を明らかにすることを目的とした研究である。

研究成果の概要（英文）：The accelerator-driven system (ADS) experiment and the numerical analyses of the simulated ADS experiment for intermediate neutrons were performed to investigate the feasibility of the transmutation by intermediate neutrons in ADS. In the ADS experiment, the measurement of neutron activation reaction rates was carried out to verify the measurement of the reaction rates by intermediate neutrons and the reproducibility of the numerical analyses. The numerical analyses were conducted with the simulated ADS experiment by changing the reactor core conditions such as moderator type, the neutron source location, and subcriticality. It is concluded that the effect of the reactor core conditions considered in the present study on the reaction rates by intermediate neutrons was small.

研究分野：原子炉物理、核変換工学

キーワード：中性子核反応 中性子スペクトル 中速中性子 加速器駆動システム 放射化反応

1. 研究開始当初の背景

放射性廃棄物の減容化・有害度低減を目的として、分離変換技術の研究開発が進められている。そして、長寿命・高毒性核種の一つであるマイナーアクチニド(MA)の効率的な核変換システムとして、加速器駆動システム(ADS: Accelerator-Driven System; Fig. 1 参照)の研究開発が世界各国で進行中である。

ADSは陽子加速器と未臨界炉心を組合せたシステムであり、未臨界状態での原子炉の運転により、従来型原子炉と比べて高い安全性を有する。ADSは、大強度陽子ビームと核破砕ターゲット間における核破砕反応にて発生する核破砕中性子を高速炉体系の未臨界炉心に供給し、主に高速中性子による核分裂連鎖反応を継続的に発生することで運転を行うことから、高速中性子領域にて核分裂反応の感度を有するMA核種の効率的な核変換が可能である。また、ADSの特徴として、核破砕反応にて発生する数百～数MeVの核破砕中性子と平均2MeVの核分裂中性子が存在するが、全中性子数に対する核破砕中性子と核分裂中性子のバランスは原子炉の実効増倍率(未臨界度)に依存するうえ、炉心内位置によって核破砕中性子の影響度が変わる。そのため、ADSにおける中性子スペクトルは、既存原子炉と同様に炉心構成材料のほか、未臨界度、炉心内位置の影響を受けると考えられ、これらのパラメータを変化させることによって炉心内に多様な中性子スペクトル場を作り出すことができる可能性がある。

一方で、放射性廃棄物に含まれる長寿命・高毒性核種には長寿命核分裂生成物(LLFP)が存在するが、LLFPは高速中性子および熱中性子に対する中性子核反応断面積が比較的低いことから、既存の原子炉にて得られるエネルギーの中性子との反応性に乏しい。原子炉におけるLLFP核変換の研究例は少なく、効率的なLLFPの核変換技術は確立されていない。しかしながら、多くのLLFP核種は数eV～数keVの中速中性子領域にて反応断面積の共鳴構造を有することから、原子炉にて中速中性子領域に特徴を持つ中性子場を創成できれば、高い中性子束を持つ原子炉にてLLFP核種の効率的な核変換が原理上可能である。

2. 研究の目的

本研究では、ADSにおける様々な炉心条件を変更した多様な中性子スペクトルを有するADS模擬体系を構築し、原子炉実験ならびに数値解析を通じてADSにおける中速中性子領域を中心としたフレキシブルな中性子スペクトル場の創成の実現性および中速中性子での核変換の実現性を検討することを目的とする。本研究では、これらの検討を行うために、以下の項目を実施する。

- ・ 加速器と未臨界炉心を組み合わせたADS実験体系による原子炉実験を実施し、中速中性子エネルギーに大きな感度を持つ核種の核反応データを取得する
- ・ 炉心構成材料・未臨界度等を変化させた炉心条件において、ADSにおける中速中性子領域に特徴を持つ中性子スペクトル場の実現性、および中速中性子での核変換の実現性を検討する

3. 研究の方法

本研究では、大きく分けて(1)原子炉実験、(2)ADS仮想実験体系による数値解析、の2つを実施した。

(1) 原子炉実験

原子炉実験では、Fig. 2に示すように、数eV～数keVの中速中性子領域において吸収断面積の共鳴構造を持ち、中速中性子に対してそれぞれ異なる反応感度を有する4つの放射化箔(Cu, In, Ta, W)を選定し、熱中性子測定用のAu箔と合わせて炉心に設置し、臨界条件および未臨界条件において放射化反応率の測定を行った。そして、モンテカルロコードMVPと核データライブラリJENDL-4.0による数値解析結果の比較検討を行った。

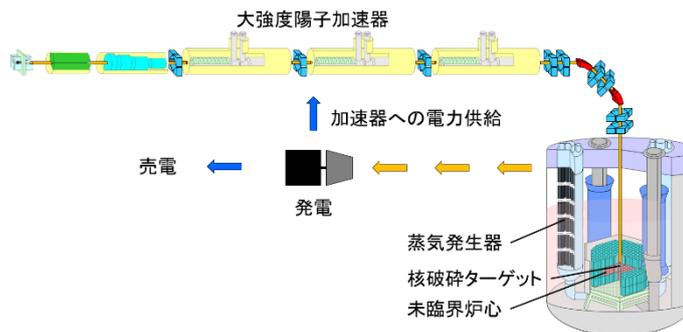


Fig. 1: 加速器駆動システム(ADS)の概念図

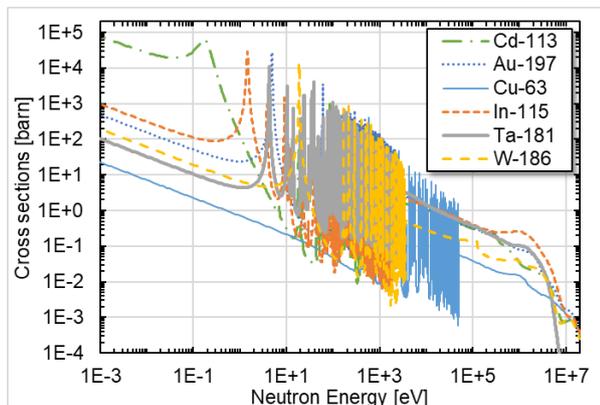


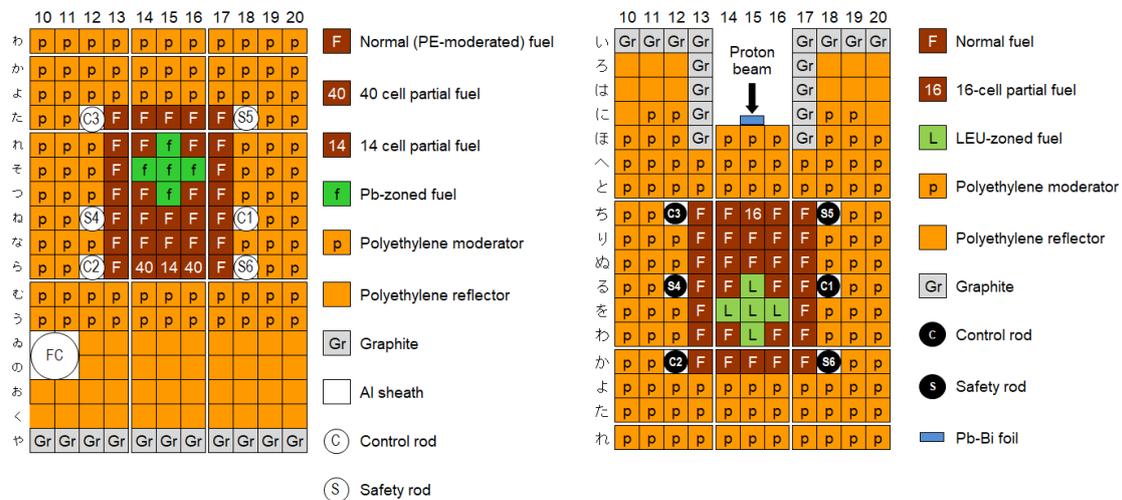
Fig. 2: 放射化箔の捕獲断面積

① 鉛ゾーン炉心を用いた臨界実験

ポリエチレン板と高濃縮ウラン板を組み合わせる構築した通常燃料および通常燃料に使われるポリエチレン板の一部を鉛板で置換した鉛ゾーン燃料を用いて、Fig. 3(a)に示すような鉛ゾーン炉心を構築した。本炉心において、通常燃料の領域では、ポリエチレン板の影響で熱中性子エネルギー領域にもピークを持つ比較的軟らかい中性子スペクトル、鉛ゾーン燃料領域では熱中性子エネルギー領域のピークが無い、比較的硬い中性子スペクトルとなる。実験では、通常燃料領域(15, ね-な)または鉛ゾーン燃料領域(15, そ-つ)に選定した放射化箔をそれぞれ設置し、制御棒位置の調整により臨界状態とした炉心条件にて約 0.1W の熱出力で原子炉を運転し、その後放射化反応率の測定を行った。

② 低濃縮ウランゾーン炉心と加速器中性子源を組合せた ADS 実験体系による未臨界実験

①と同じ通常燃料と、高濃縮ウラン板・天然ウラン板・アルミ板を組合せた低濃縮ウラン模擬燃料を用いて、Fig. 3(b)に示す低濃縮ウランゾーン炉心を構築した。なお、低濃縮ウラン模擬燃料は①の鉛ゾーン燃料と同等の中性子スペクトルを持つ。放射化箔については、低濃縮ウランゾーン領域(15, を-わ)に設置した。そして、(15, に)の燃料下部から 700 mm の位置に鉛ビスマスタターゲットを配置し、水平方向に加速器から 100 MeV 陽子ビームを入射することで核破砕中性子を発生させ、原子炉の運転により中性子照射を行った。本体系では、臨界条件(ビーム無し)1 ケース、未臨界条件 2 ケース(挿入制御棒パターンの変更により未臨界度変更)の合計 3 ケースに関して、熱出力 0.1-1W にて原子炉を運転し、放射化反応率を測定した。

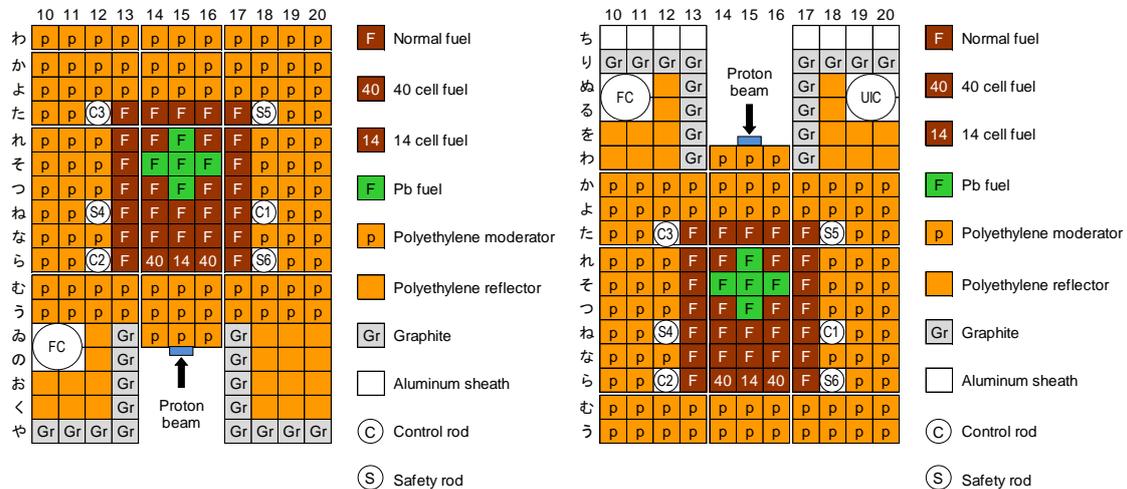


(a) 鉛ゾーン炉心 (b) 低濃縮ウランゾーン炉心

Fig. 3: 原子炉実験における炉心体系の水平断面図

(2) ADS 仮想実験体系による数値解析

Fig. 4に示すような、原子炉実験における鉛ゾーン 2 領域炉心をベースに核破砕中性子源を導入した ADS 仮想実験体系に対して、各燃料領域に設置した放射化箔の捕獲反応率に関する数値解析を実施した。数値解析では、制御棒挿入パターンの変化をさせた異なる 6 点の未臨界度 ($k_{eff}=0.997\sim 0.964$) を設定した。また、中性子源と炉心の相対位置を変化させるため、中性子源と炉心との間のポリエチレン減速材領域が 1 列・3 列の場合の 2 ケースを設定した。



(a) +y 方向ビーム入射体系 (b) -y 方向ビーム入射体系

Fig. 4: ADS 仮想実験解析における炉心体系の水平断面図

4. 研究成果

(1) 原子炉実験

① 鉛ゾーン炉心を用いた臨界実験

本実験では、初めに選定した4つの放射化箔(Cu, In, Ta, W)に関して、測定で得られた放射化反応率を用いて、中性子エネルギー数 eV~数 keV の中速中性子領域における中性子反応データの測定可能性の検証を行った。中性子エネルギーに関する評価に関しては、スペクトルインデックスであるカドミウム(Cd)比を用いて評価を行った。Cd比の導出式を以下に示す。

$$Cd\ ratio = \frac{RR_{bare}}{RR_{Cd}}$$

ここで、RRは反応率、下添え字 bare は裸箔、Cd はCdカバー付き箔を示す。Cd比は1に近いほど中性子スペクトルが硬い、または放射化箔が中速中性子に感度を持つこと、数値が大きいほど中性子スペクトルが軟らかい、または放射化箔が熱中性子に強い感度を持つことを示す。

初めに、本実験では選定した放射化箔を用いて低出力環境下でも十分な放射化反応率が得られることが確認できた。実験において得られた放射化反応率を用いて導出したCd比の測定値および実験値と計算値の比(C/E: Calculation/Experiment)をTable 1に示す。Cd比の測定結果に着目すると、いずれの箔でも鉛ゾーン燃料領域の方がCd値は1に近いことから、燃料による中性子スペクトルの違いを定性的に表す結果が得られた。さらに、Cd値の数値から、¹⁸¹Taは中速中性子領域に対して感度が極めて高いこと、硬スペクトル燃料領域ではいずれの箔でも中速中性子による反応が支配的であり、選定した放射化箔が中速中性子による核反応の測定に適用可能であることが示された。一方、Cd比に関する数値解析結果との比較から、測定値と計算値は誤差1σ以内で一致しており、数値解析による中性子スペクトルの再現性は妥当であることが分かった。なお、放射化反応率において中速中性子の寄与が支配的であることについては、数値解析結果からも裏付けられた。

Table 1: 各燃料領域におけるCd比の測定値と解析値との比較

Nuclide	PE fuel region	Pb-zoned fuel region
⁶³ Cu	2.15 ± 0.16	1.28 ± 0.10
	(0.99 ± 0.08)	(0.98 ± 0.08)
¹⁸¹ Ta	1.17 ± 0.09	1.04 ± 0.08
	(1.02 ± 0.08)	(1.04 ± 0.09)
¹⁸⁶ W	1.55 ± 0.12	1.08 ± 0.09
	(0.98 ± 0.08)	(1.08 ± 0.09)

※ カッコ内はC/E値を示す

※ Cdカバー付きInについては、測定精度が低いために除外

② 低濃縮ウランゾーン炉心と加速器中性子源を組合せたADS実験体系による未臨界実験

Table 2に放射化反応率の測定値から求めたCd比と計算値との比較結果を示す。低濃縮ウランゾーン燃料領域の中性子スペクトルは臨界実験の鉛ゾーン燃料領域のものに類似していることが事前計算からわかっているが、臨界状態における¹⁸⁶WのCd比は大きな差があり、かつ唯一計算値との比較で誤差1σを超える差異が生じていることから、¹⁸⁶Wの放射化反応率測定値は不確かさが大きいと考えられ、以降の検討からは除外する。その他のCd比については、臨界実験と同様の傾向が見られ、計算値とも誤差1σ以内で一致を示したことから、数値解析における中性子スペクトルの再現性が確認された。

次いで、中速中性子領域の数値解析結果に対する未臨界度の依存性を調査するために、Au放射化反応率で規格化した⁶³Cuおよび¹⁸¹Taの放射化反応率について、実験値と計算値の比較を行った。Fig. 5に放射化反応率のC/Eと未臨界度の傾向について示す。放射化反応率は、計算値が実験値より約20%の過小評価傾向を示したが、C/E値は未臨界度の変化に対して誤差1σ以内で一定値を示した。数MeV以上の中性子に対する放射化反応率の傾向について取り扱った先行研究では、未臨界度が深まるほど放射化反応率が減少する傾向が得られていたが、本研究の結果から中速中性子領域に対しては未臨界度の影響は小さく、数値解析は未臨界度の変化に関わらず一定の傾向を示すことが明らかとなった。

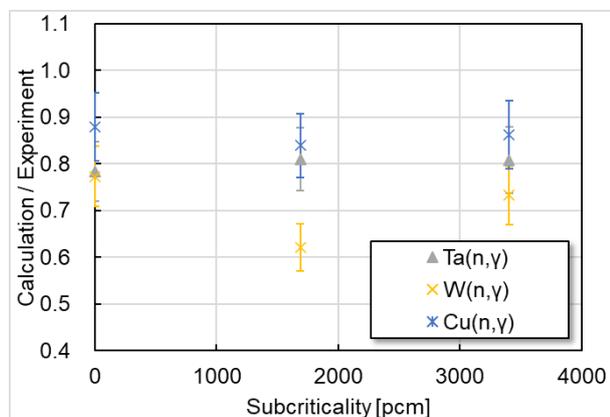


Fig. 5: 未臨界度変化に対する放射化反応率のC/Eの変化

Table 2: 各燃料領域における Cd 比の測定値と解析値との比較

Nuclide	Subcriticality [pcm]		
	0	1689	3405
^{63}Cu	1.30 ± 0.10	1.34 ± 0.11	1.38 ± 0.11
	(0.98 ± 0.08)	(0.99 ± 0.08)	(0.94 ± 0.08)
^{181}Ta	1.04 ± 0.08	1.10 ± 0.09	1.10 ± 0.09
	(1.05 ± 0.08)	(0.98 ± 0.08)	(0.98 ± 0.08)
^{186}W	1.33 ± 0.11	1.13 ± 0.09	1.17 ± 0.09
	(0.90 ± 0.07)	(1.05 ± 0.09)	(1.01 ± 0.08)

※ カッコ内は C/E 値を示す

※ Cd カバー付き In については、測定精度が低いために除外

(2) ADS 仮想実験体系による数値解析

数値解析では、原子炉実験における測定値にて数値解析の妥当性が概ね示された 3 つの放射化箱 (Cu, Ta, W) の放射化反応率について、熱中性子に対して大きな感度を持つ Au 放射化反応率で規格化した“比放射化反応率”を用いて、様々な条件に関して中速中性子に対する核反応の影響を検討する。この比放射化反応率を用いることで、熱中性子による放射化反応に対する中速中性子による放射化反応の傾向を検討する。

Fig. 4 に示す体系を用いて通常燃料領域と鉛ゾーン燃料領域における比放射化反応率を求めた結果を Fig. 6 に示す。減速材材料の影響については、硬スペクトルとなる鉛ゾーン燃料領域の方が熱中性子による放射化反応と比較して中速中性子による放射化反応の割合が大きい傾向にあるが、未臨界度が変化しても比放射化反応率は概ね一定値を示し、未臨界度依存性を示さない結果となった。また、核破砕中性子源と炉心とのポリエチレン減速材領域を 3 列から 1 列に変更することで炉心に対する核破砕中性子源の寄与を変化させた体系に関して同様の比較を行ったところ、比放射化反応率は概ね同等の値を示し、未臨界度依存性についても見られなかった。一方で、放射化反応率に対する核破砕中性子源のみの寄与を求めたところ、未臨界度が深いほど、放射化箱位置が中性子源に近いほど、全反応に対する核破砕中性子源の寄与が強まり、その影響は材料の減速能が小さいほど大きいことが分かった。

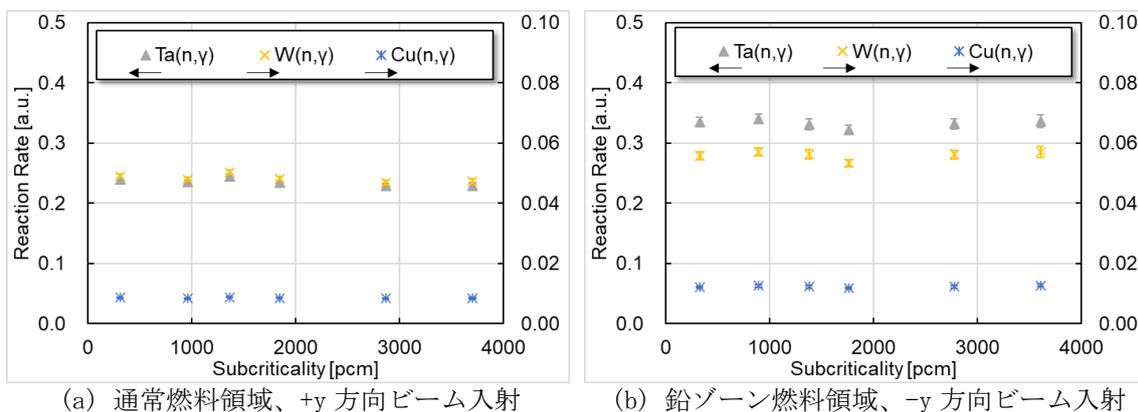


Fig. 6: ADS 仮想実験体系における未臨界度に対する比放射化反応率の変化

(3) 研究総括

本研究において、原子炉実験および数値解析を通じて、ADS の炉心内中性子スペクトルに影響を及ぼす炉心条件の変化に対する中速中性子による核反応の影響を検討し、以下のことが明らかとなった。

- ① 中速中性子に関する核反応データとモンテカルロコードによる数値解析との比較の結果、モンテカルロコードは中速中性子領域を含む中性子スペクトルの再現性に十分な能力を有しており、未臨界度の変化に対しても臨界状態と同等の精度で中速中性子領域の核反応を解析することが可能
- ② 本研究で取り扱った条件の範囲では、核破砕中性子源と炉心の相対位置・未臨界度の条件を変更した場合でも、中速中性子領域における中性子スペクトルの変化は極めて小さく、ADS において中速中性子領域に特徴を持つ中性子スペクトル場を作り出すことは困難

後者の理由としては、核分裂中性子よりエネルギーが大きな核破砕中性子についても、中性子スペクトルは原子炉材料の性質に依存するため、中速中性子領域についても核分裂中性子によって得られる臨界炉と同様の中性子スペクトルとなるためであると考えられる。そのため、ADS における中速中性子を活用した効率的な核変換については、原子炉材料の選択を工夫することで中性子スペクトルの最適化を行うことが有望であり、臨界炉と同様の技術を活用することが見込まれる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 N. Aizawa, H. Akatsu, T. Abe, K. Kawabata, C. H. Pyeon	4. 巻 -
2. 論文標題 Measurement of Reaction Rate of Intermediate Neutrons on Critical Core with Various Neutron Spectra Zone	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 KURRI Progress Report 2020	6. 最初と最後の頁 103
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 N. Aizawa, K. Nakamura, H. Akatsu, T. Abe, M. Yamanaka, C. H. Pyeon	4. 巻 -
2. 論文標題 Measurement of Neutron Reaction Rate of Intermediate Neutrons on Accelerator-Driven System with Spallation neutrons	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 KURRI Progress Report 2019	6. 最初と最後の頁 13
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Naoto Aizawa, Cheol Ho Pyeon	4. 巻 -
2. 論文標題 Experimental Analyses of Capture Reaction Rates for Epithermal and Resonance Neutrons in Source-Driven Subcritical Cores	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nuclear Science and Engineering	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/00295639.2023.2212580	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 相澤直人, 卞哲浩
2. 発表標題 原子炉実験における熱外中性子-中速中性子による放射化反応率の影響 (1)臨界体系における反応率測定ならびに解析
3. 学会等名 日本原子力学会2021年秋の年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 相澤直人, 山中正朗, 卞哲浩
2. 発表標題 加速器駆動システム実験における中性子スペクトルに対する未臨界度の影響
3. 学会等名 日本原子力学会2020年秋の大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 相澤直人, 河端恒介
2. 発表標題 原子炉実験における熱外中性子-中速中性子による放射化反応率の影響 (2) 仮想未臨界実験体系における数値解析
3. 学会等名 日本原子力学会2022年秋の大会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------