

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 4 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2011～2015

課題番号：23360429

研究課題名(和文) 高速増殖炉の燃料ピン充填希ガス同位体による中性子捕獲断面積の測定

研究課題名(英文) Measurement of neutron capture cross sections of noble gas for damage of fuel pins of fast breeding reactor

研究代表者

石橋 健二 (Ishibashi, Kenji)

九州大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：00159766

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 11,900,000円

研究成果の概要(和文)：高速増殖炉の破損燃料の検出を行うFFDL法では希ガス同位体の高精度中性子捕獲断面積データが必要とされる。そこでクリプトンとキセノン同位体について核データ評価に必要な計算の改良を行い、これまで測定データが存在しない0.1MeV以下の中性子捕獲反応断面積を高精度で測定する手法の検討を目的とした。CCONEコードをベースに結合チャンネル光学模型、励起子模型で使用する多数のパラメータを最適化して中性子入射全断面積、中性子捕獲断面積などの計算精度を向上させた。中性子捕獲反応からのガンマ線を高精度測定に必要なバックグラウンド事象を低減できる希ガス試料容器を検討した。

研究成果の概要(英文)：Neutron capture cross sections for xenon and krypton isotopes with high accuracy are required for FFDL method, which detects damage of fuel of fast breeding reactors. The purpose of this study were to upgrade nuclear data evaluation and design experimental technique for neutron capture cross sections for xenon and krypton isotopes below 0.1 MeV region, which there is no experimental data. Many parameters of coupled channel optical model and exciton one in the CCONE code were optimized. Noble gas sample cases were designed in the view of decrease of background radiation in measurement of gamma-rays from neutron capture reaction.

研究分野：原子核工学

キーワード：キセノン クリプトン 中性子捕獲反応 CCONE

### 1. 研究開始当初の背景

(1) 高速炉の核燃料の健全性を確保するには、腐食や摩耗などによる燃料被覆管の損傷をいち早く検出し安全対策をとることが重要である。

(2) 高速増殖実験炉常陽では燃料ピン中に同位体比を変えたクリプトンやキセノンの希ガスを封入しておき(タギング法)、燃料被覆管の破損が生じた場合にカバーガス中に混入してくる希ガスの同位体分析をして、破損燃料の検出と位置決めを行う方法(FFDL法)の開発がなされた。しかしながら、タギングした封入希ガスは原子炉運転中に中性子捕獲反応によって徐々に同位体比が変化していく。そこで、タギング法に適する希ガス同位体として、核燃料から核分裂生成物ガスとして生成されにくい低質量数の Kr-78、Kr-80、Xe-124、Xe-126、Xe-128 などが有用である。

(3) FFDL法での破損燃料の位置決めを行うには、希ガス同位体の精度の高い中性子捕獲断面積データが必要とされる。特に中性子エネルギー10 keV から 1 MeV の領域が高速炉として重要である。過去の希ガス中性子捕獲断面積の積分実験で、核データライブラリ(JENDL)の値とは概ね 30%以内の一致であることが確認されたが、Xe-124 と Xe-126 については核データファイルの値と約 2 倍の食い違いを示すデータも得られている。また Xe-124 の場合について、実験データがほとんど無い中で核データ評価がなされていた。将来的に FFDL法を実用性に富んだ確実な技術にしていくためには、中性子捕獲断面積を誤差 1%程度で議論できることが望まれる。

### 2. 研究の目的

高速炉の核燃料に対して希ガスのタギングによる破損燃料検出及び位置決め方法(FFDL法)の性能向上のために、クリプトン同位体(Kr-78 から Kr-86)及びキセノン同位体(Xe-124 から Xe-134)について、核データ評価に必要な計算の改良を行い、これまで測定データが存在しなかった 0.1 MeV 以下のエネルギー範囲で中性子捕獲反応断面積を統計誤差 1%程度で測定するための手法を検討し、ことを目的とした。

### 3. 研究の方法

(1) 従来、キセノンやクリプトンの断面積データは日本で編纂されている核データライブラリである JENDL-4.0 などによって評価・格納されていた。しかし、JENDL-4.0 公開後新しい知見に基づいて原子核反応の計算手法がより高度化されていたため、本研究ではこの手法によるキセノンとクリプトン同位体の中性子入射断面積の評価を中性子のエネルギーが 20 MeV 以下の領域で行った。評価の際には、日本原子力研究開発機構で開発されて

いる原子核模型の理論計算コードである CCONE をベースとした。

まず、結合チャンネル光学模型のポテンシャルのパラメータのより最適な値を幅広い原子核に対して適用できるモデルをベースにして、既知の中性子全断面積の実験データをよく再現するように求めた。

次に、前平衡過程を記述するための 2 段階励起子模型の中で原子核内の中性子と陽子の 1 粒子状態密度を表す最適なパラメータを求めた。加えて離散準位と準位密度パラメータの最適化を行った。さらに一般化ローレンツ関数を用いたガンマ線強度関数内のパラメータも実験データを再現するような値を探索した。

(2) 中性子捕獲断面積の測定では、中性子捕獲反応で生成された原子核が励起状態から基底状態に移行する際に放出するガンマ線をゲルマニウム検出器で測定する。実験は J-PARC の物質・生命科学実験施設の中性子核反応測定装置(ANNRI)の利用を想定した。

キセノンとクリプトン同位体ごとの中性子捕獲断面積を測定するためには、希ガス試料であるキセノンとクリプトン同位体をなるべく高い圧力で封入できる容器を検討した。試料容器に中性子が当たると容器を構成する元素から中性子捕獲反応などによりガンマ線が放出される。実際の測定においてこのガンマ線はバックグラウンド信号となるため、バックグラウンドガンマ線が少なくなるような容器材料や構造とすることが重要であった。

ガス試料容器を J-PARC の ANNRI に持ち込み、バックグラウンド信号をゲルマニウム検出器で測定した。

### 4. 研究成果

(1) 図 1 に天然存在比のキセノンの中性子入射全断面積の実験データと計算結果の比較を示す。この図から、今回求めたパラメータを用いた CCONE コードの結合チャンネル光学模型計算(図中の Present)が 0.1 MeV から

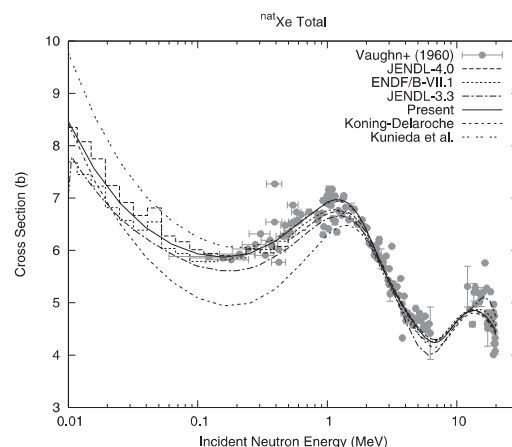


図 1 天然存在比のキセノンに対する中性子入射全断面積。

20 MeV の幅広い範囲で実験データを他の計算モデルよりも再現していることがわかった。

本研究の中で重要な中性子捕獲断面面積について、例えば図2のように研究期間中の2015年に公開されたXe-124の実験データに対して、世界で編纂されているENDF/B-VIIやJEFF-3.2、JENDL-4.0などの既存の核データライブラリが実験データを再現できていないのに対して、本研究の計算では再現することがわかった。

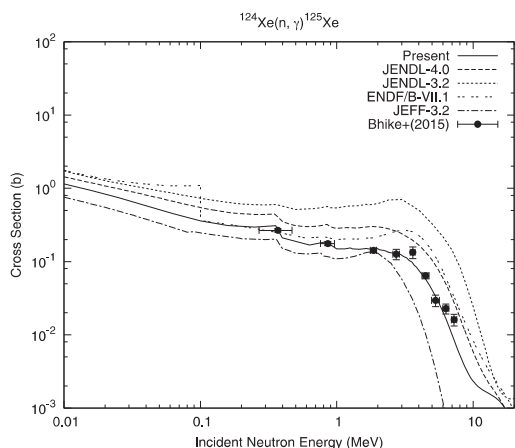


図2 Xe-124 に対する中性子捕獲反応断面面積。

また、原子炉内での中性子束に影響を与えるXe-136(n, 2n)反応断面面積については、図3に示すように本研究で得られた計算結果が研究期間中の2013年に発表された新しい実験データの全成分とアイソマー成分の両方を再現することがわかった。

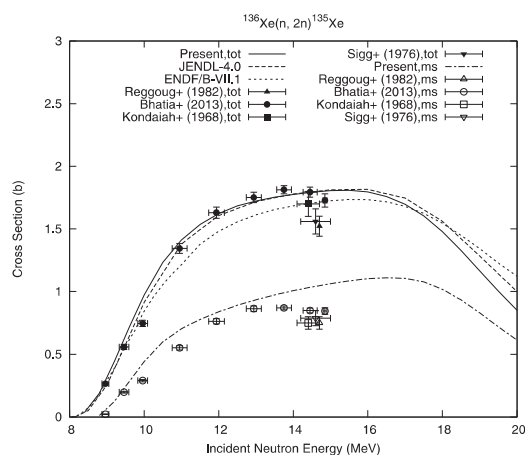


図3 Xe-136 に対する(n, 2n)反応断面面積。

この他に(n, p)反応や(n, )反応の断面面積、弾性散乱角度分布、中性子生成二重微分断面面積を高い精度で計算し、これまでの実験データを再現することがわかった。

クリプトン同位体についても本研究で得られた中性子入射断面面積の計算結果がこれまで取得された実験データを従来よりも再現することがわかった。

これらの結果から、中性子のエネルギーが0.1 MeV以上の領域に対して、本研究の計算は新しいデータも含めて実験値をより再現することがわかった。実験データの得られていない低エネルギーの中性子入射反応に対する反応断面面積についても、本研究の計算は予測精度が従来の核データライブラリよりも高いことが期待される。

(2) 中性子捕獲断面面積測定のためのバックグラウンドガンマ線が少ない試料容器として、はじめにガラス繊維強化プラスチック(FRP)を容器本体、カプトンフィルムを中性子通過のための窓材料としていたが、試料ガスの圧力を1気圧程度に維持することができることがわかった。

試料容器によるバックグラウンド信号の寄与を調べるためにJ-PARCのANNRI装置のビームライン中に設置して測定したところ、大きなバックグラウンド事象が確認された。この結果からFRP材料の中に微量なホウ素が混入しているために、ホウ素の中性子捕獲反応から放出されるガンマ線が大きなバックグラウンドとなることが判明した。また、カプトンフィルムは材料中の水素と中性子の弾性散乱が非常に大きく、中性子が容器外のビームダクトなどと衝突してバックグラウンドガンマ線を多く発生させることがわかった。このためカプトンとFRP以外の材料を検討することが必要となった。アルミニウムの原子番号はFRPやカプトン中の元素よりも大きいものの、中性子との反応率が低いために機械的強度を確保できる程度の薄いアルミニウムを容器本体と中性子透過窓の両方に使用することとした。

ガス試料が容器から予期せずに漏洩した場合、実験室内に放射性のガスが出てくる可能性があるため、ガス試料容器は二重構造にするなど漏洩した場合にも実験室内に放出されないような安全対策が必要であることがわかった。二重構造にするだけでなく、より長時間の測定時間を確保する必要があるものの容器内のガスの圧力を0.5気圧以下に下げること、試料容器が破損した場合でも実験室内にガスが漏洩することを防ぐ対策が重要であることがわかった。この条件を満足する容器を設置することで、キセノンやクリプトンの中性子捕獲断面面積の測定が可能となることがわかった。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計2件)

Md. Mamunur Rashid, Nobuhiro Shigyo,  
Kenji Ishibashi, Nobuyuki Iwamoto,  
Osamu Iwamoto, Evaluation of neutron  
nuclear data on krypton isotopes,  
Proceedings of the 2014 Symposium on  
Nuclear Data November 27-28, 2014,  
Conference Hall, Hokkaido University,  
Sapporo, Japan, JAEA-Conf 2015-003,  
査読有、2016、pp. 319-324、  
<http://dx.doi.org/10.11484/jaea-conf-2015-003>

Md. Mamunur Rashid, Nobuhiro Shigyo,  
Kenji Ishibashi, Nobuyuki Iwamoto,  
Osamu Iwamoto, Evaluation of neutron  
nuclear data on xenon isotopes, Journal  
of Nuclear Science and Technology, 査  
読 有 、 2015 、  
<http://www.tandfonline.com/doi/full/10.1080/00223131.2015.1105164>

〔学会発表〕(計1件)

Md. Mamunur Rashid, Nobuhiro Shigyo,  
Kenji Ishibashi, Nobuyuki Iwamoto, Osamu  
Iwamoto, Evaluation of neutron nuclear  
data on krypton isotopes, the 2014  
Symposium on Nuclear Data, 2014年11  
月27日、北海道大学(北海道・札幌市)

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

取得状況(計0件)

〔その他〕

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

石橋 健二 (ISHIBASHI Kenji)  
九州大学・大学院工学研究院・教授  
研究者番号：00159766

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

前畑 京介 (MAEHATA Keisuke)  
九州大学・大学院工学研究院・准教授  
研究者番号：30190317

執行 信寛 (SHIGYO Nobuhiro)  
九州大学・大学院工学研究院・助教  
研究者番号：40304836

國枝 賢 (KUNIEDA Satoshi)  
国立研究開発法人日本原子力研究開発機

構・原子力科学研究部門 原子力基礎工学  
研究センター・研究副主幹  
研究者番号：50414553