

令和5年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業

原子力システム研究開発事業

革新型原子炉開発のための

核データ整備基盤の構築

成果報告書

令和6年3月

国立大学法人 京都大学

本報告書は、文部科学省の原子力システム研究開発事業による委託業務として、国立大学独  
法人京都大学（受託機関名）が実施した令和3  
年度－令和5年度「革新型原子炉開発のための  
核データ整備基盤の構築（契約書第1条で定め  
た委託業務題目）」の成果を取りまとめたもの  
です。

## 目次

概略	vi
1. はじめに	1
2. 業務計画	2
2.1 全体計画	2
3. 業務の実施内容及び成果	5
3.1 微分測定	5
3.1.1 熱中性子領域の断面積測定（再委託先：原子力機構）【R3-R5】	5
3.1.2 構造材に対する高速中性子領域の断面積測定（再委託先：東京工業大学）【R3-R5】	17
3.2 積分測定	27
3.2.1 熱中性子散乱則データ検証実験【R3-R5】	27
3.2.2 研究用原子炉を用いた試料反応度測定（再委託先：近畿大学）【R3-R5】	40
3.3 核データ整備及び炉設計への影響評価	49
3.3.1 評価済断面積データライブラリの整備（再委託先：原子力機構）【R3-R5】	49
3.3.2 新たな核データを用いた革新型原子炉の核特性計算（再委託先：近畿大学）【R3-R5】	58
3.4 研究推進【R3-R5】	62
4. 結言	63
参考文献	64

表一覧

表 3. 1. 1-1	測定に用いた黒鉛試料の各諸元	6
表 3. 1. 2-1	測定データの乏しい核種・反応	17
表 3. 1. 2-2	UV 硬化型シンチレータ材料の組成	20
表 3. 1. 2-3	飛行時間スペクトルから算出した共鳴の面積上限値	26
表 3. 2. 1-1	主要な候補材に対する熱中性子散乱則データの JENDL-5 への収録状況	29
表 3. 2. 2-1	塩化物とフッ化物の試料反応度事前計算結果	41
表 3. 2. 2-2	軽水試料情報	42
表 3. 2. 2-3	試料反応度測定時の臨界条件	43
表 3. 2. 2-4	測定された余剰反応度	44
表 3. 2. 2-5	試料反応度	45
表 3. 2. 2-6	数値計算結果	45
表 3. 2. 2-7	新断面積を用いた $\text{CaH}_2$ 試料反応度の数値解析結果	46
表 3. 3. 2-1	MoveLuX の諸元	59
表 3. 3. 2-2	実効増倍率計算値	60
表 3. 4-1	全体会合の実施状況	61

図一覧

図 2. 1-1	全体スケジュール	3
図 2. 1-2	研究実施体制	4
図 3. 1. 1-1	黒鉛試料の全断面積測定での T0F スペクトル	7
図 3. 1. 1-2	各黒鉛試料の全断面積の測定結果	8
図 3. 1. 1-3	入射エネルギー7.74 meV での各黒鉛試料の弾性散乱の角度分布	9
図 3. 1. 1-4	ET-34 試料の 2 重微分断面積の測定結果 (Ein=41.98 meV)	10
図 3. 1. 1-5	散乱角度毎の 2 重微分断面積の測定結果 (Ein=41.98 meV)	10
図 3. 1. 1-6	2 重微分散乱断面積の試料依存性 (Ein=41.98 meV)	10
図 3. 1. 1-7	ET-34 試料の重微分散乱断面積の温度依存性 (Ein=41.98 meV)	11
図 3. 1. 1-8	固体減速材 (CaH <sub>2</sub> 、YH <sub>2</sub> 及び、ZrH <sub>2</sub> ) の全断面積の測定結果	12
図 3. 1. 1-9	塩化物塩 (NaCl 及び KCl) の全断面積の測定結果	12
図 3. 1. 1-10	LiF の全断面積の測定結果	13
図 3. 1. 1-11	塩化物塩 (NaCl 及び KCl) の全断面積の温度依存性	14
図 3. 1. 1-12	NaCl, KCl の 2 重微分断面積の測定結果 (Ein=41.98 meV)	15
図 3. 1. 1-13	LiF の弾性散乱断面積の角度依存性 (Ein=41.98 meV)	15
図 3. 1. 1-14	NaCl 単結晶試料の散乱断面積の温度依存性 (Ein=41.98 meV)	15
図 3. 1. 2-1	<sup>39</sup> K の中性子断面積 - <sup>39</sup> K(n, α) <sup>36</sup> Cl (緑), <sup>39</sup> K(n, α) <sup>40</sup> K (赤)	18
図 3. 1. 2-2	<sup>63</sup> Cu の中性子断面積 - <sup>63</sup> Cu(n, p) <sup>63</sup> Ni (緑), <sup>63</sup> Cu(n, α) <sup>64</sup> Cu (赤)	18
図 3. 1. 2-3	試料添加型シンチレータの形状と作製手順	21
図 3. 1. 2-4	紫外線照射によるシンチレータの硬化の様子	21
図 3. 1. 2-5	製作したシンチレータ	22
図 3. 1. 2-6	中性子照射試験のセットアップ	22
図 3. 1. 2-7	リチウム添加したシンチレータの波高スペクトル	23
図 3. 1. 2-8	中性子照射後のシンチレータの波高スペクトル	24
図 3. 1. 2-9	波形弁別のための電荷積分ゲートの設定	25
図 3. 1. 2-10	波高-波形弁別値 (PSD) の 2 次元プロット	25
図 3. 1. 2-11	<sup>63</sup> Cu の陽子イベントの飛行時間スペクトル	26
図 3. 2. 1-1	ZrH <sub>2</sub> 試料を容器に封入したときの写真	31
図 3. 2. 1-2	黒鉛試料の粒度分布測定の結果	31
図 3. 2. 1-3	熱中性子散乱則データ検証のための測定法の概念図	33
図 3. 2. 1-4	ZrH <sub>2</sub> 試料容器の側面に Cd シートを巻いた時の写真	33
図 3. 2. 1-5	軽水に対する正味の中性子 T0F スペクトルの実験値と計算値の比較	35
図 3. 2. 1-6	軽水に対する 2.2MeV ガンマ線発生時の正味の時間スペクトルの計算と実験の比較	36
図 3. 2. 1-7	ZrH <sub>2</sub> に対する正味の中性子 T0F スペクトルの実験値と計算値の比較	36
図 3. 2. 1-8	CaH <sub>2</sub> に対する正味の中性子 T0F スペクトルの実験値と計算値の比較	36
図 3. 2. 1-9	構築した黒鉛パイルの様子	37
図 3. 2. 1-10	黒鉛に対する正味の中性子 T0F スペクトルの実験値と計算値の比較	38

図 3.2.1-11	テフロンに対する正味の中性子 TOF スペクトルの実験値と計算値の比較...	38
図 3.2.1-12	NaCl に対する正味の中性子 TOF スペクトルの実験値と計算値の比較.....	39
図 3.2.2-1	軽水用試料容器.....	42
図 3.2.2-2	NaCl 用試料容器.....	43
図 3.2.2-3	測定された時系列データの一例.....	44
図 3.2.2-4	感度係数計算フロー.....	47
図 3.2.2-5	CaH <sub>2</sub> 試料反応度 (試料 D) に対する水素の非弾性散乱断面積の感度係数...	47
図 3.2.2-6	使用する断面積を変更したことによる CaH <sub>2</sub> 試料反応度計算値 (試料 D) の差	48
図 3.3.1-1	黒鉛に対する非弾性散乱断面積及び弾性散乱断面積.....	50
図 3.3.1-2	黒鉛に対する二重微分断面積.....	51
図 3.3.1-3	Winmostar で作成した水素化カルシウムの単位結晶.....	52
図 3.3.1-4	水素化カルシウムのスーパーセルの例 (2×2×2).....	52
図 3.3.1-5	水素化カルシウムの非弾性散乱断面積.....	53
図 3.3.1-6	水素化カルシウムの全断面積.....	53
図 3.3.1-7	水素化イットリウムの全断面積.....	54
図 3.3.1-8	塩化ナトリウムの全断面積.....	54
図 3.3.1-9	<sup>39</sup> K(n, α) <sup>36</sup> Cl 反応断面積.....	55
図 3.3.1-10	<sup>63</sup> Cu(n, p) <sup>63</sup> Ni 反応断面積.....	56
図 3.3.2-1	計算体系図.....	59
図 3.3.2-2	実効増倍率に対する水素の非弾性散乱断面積の感度係数.....	60
図 3.3.2-3	断面積を変更したことによる実効増倍率計算値の変化量.....	61

## 略語一覧

J-PARC	: Japan Proton Accelerator Research Complex	(大強度陽子加速器施設)
MLF	: Material and Life Science Facility	(物質・生命科学実験施設)
MD	: Molecular Dynamics	(分子動力学)
SMR	: Small Modular Reactor	(小型モジュール炉)
KURNS	: Kyoto University Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science	(京都大学複合原子力科学研究所)
LINAC	: linear accelerator	(線型加速器)
JENDL	: Japanese Evaluated Nuclear Data Library	
ENDF	: Evaluated Nuclear Data File	
JEFF	: Joint Evaluated File for Fission and Fusion	
TOF	: Time of flight	(飛行時間)
BGO	: Bi <sub>4</sub> Ge <sub>3</sub> O <sub>12</sub> シンチレータ	
EXFOR	: Experimental Nuclear Reaction Data	
UTR-KINKI	: University Teaching Reactor-KINKI	(近畿大学研究炉)
DFT	: Density Functional Theory	(密度汎関数法)
TSL	: Thermal Neutron Scattering Law	(熱中性子散乱則)

## 概略

革新型原子炉の研究開発は短いタイムスパンで効果的、効率的に進めていく必要があるが、炉型によっては従来の炉型では経験のない構造材や減速材が用いられるため、炉設計の検討が進むにつれて新たな核データの高度化ニーズが生じることが考えられる。特に現状として整備が十分なされていない熱中性子散乱則データについては、戦略的に整備していく必要がある。そこで、革新型原子炉で核データの高度化の必要性が想定される代表的な構造材、核種を選定し、基盤データを取得するとともに、産業界からの要求に迅速且つ柔軟に対応し、必要な核データを高度化するスキームを構築することを研究目標として設定した。

令和3年度を初年度として開始した本研究開発事業では、6つの研究項目、(1)微分測定として、①熱中性子領域の断面積測定、②高速中性子領域の断面積測定、(2)積分測定として、①熱中性子散乱則データ検証実験、②研究用原子炉を用いた試料反応度測定、(3)核データ整備及び炉設計への影響評価として、①評価済核データライブラリの整備、②新たな核データを用いた革新型原子炉の核特性計算を設定した。

各研究項目の研究全体における位置付け及び本研究により得られた特筆すべき研究成果について、以下に概略を記す。

### (1) 微分測定

#### ①熱中性子領域の断面積測定（再委託先：原子力機構）

黒鉛及び固体減速材（ $\text{CaH}_2$ 、 $\text{YH}_2$  及び、 $\text{ZrH}_2$ ）について J-PARC・MLF 施設のビームライン No. 4（ANNRI）にて全断面積の測定を、ビームライン No. 14（AMATERAS）にて散乱断面積の測定を複数の温度で実施し、得られたデータを解析して全断面積及び散乱断面積を導出した。塩化物、フッ化物について AMATERAS にて散乱断面積の測定を ANNRI 及び京都大学複合原子力科学研究所の LINAC を用いて全断面積測定を実施し、得られたデータを解析して断面積及びそれらの温度依存性を導出した。黒鉛については、従来の評価済核データライブラリでは空孔率に依存した断面積が与えられていたが、今回の実験結果では空孔率が異なる試料間で断面積に大きな差異は確認できず、黒鉛の断面積には空孔率による依存性はないことが分かった。

得られた断面積は(3)①「評価済み断面積ライブラリの整備」に反映させた。

#### ②高速中性子領域の断面積測定（再委託先：東京工業大学）

革新型原子炉開発で使われる構造材の荷電粒子発生反応の断面積測定のための検出器を開発した。効率的に荷電粒子発生反応を測定するために試料を添加した薄いプラスチックシンチレータの作製方法を確立し、添加試料を加えたプラスチックシンチレータを製作した。作製した試料添加型シンチレータを用いて J-PARC/MLF 施設において測定を行い、 $^{63}\text{Cu}(n, p)^{63}\text{Ni}$  反応及び  $^{39}\text{K}(n, \alpha)^{36}\text{Cl}$  反応の共鳴面積上限値を算出した。

得られた共鳴面積上限値は(3)①「評価済み断面積ライブラリの整備」に反映させた。

### (2) 積分測定

#### ①熱中性子散乱則データ検証実験

熱中性子散乱則データ検証実験を行うために二段階 TOF 法及び 2 次ガンマ線測定を組み合



わせる手法が有効であることを示し、水素化合物 ( $\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{ZrH}_2$ 、 $\text{CaH}_2$ ) に対して適用した。その結果、JENDL-5 に収納されている  $\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{ZrH}_2$  中の水素の熱中性子散乱則データの妥当性を検証することができた。 $\text{CaH}_2$  については、(3)①「評価済み断面積ライブラリの整備」で新たに整備した熱中性子散乱則データを用いた計算結果は JEFF-3.3 を用いた場合と比べて大きな違いはなく、熱平衡ピーク近傍の中性子スペクトルの形状を実験値は良く再現することを確認した。黒鉛、フッ化物、塩化物については黒鉛パイルを用いた新たな手法を適用し、JENDL-5 に収納されている断面積データの妥当性を検証することができた。

#### ②研究用原子炉を用いた試料反応度測定（再委託先：近畿大学）

UTR-KINKI を用いて  $\text{CaH}_2$ 、 $\text{ZrH}_2$ 、軽水、 $\text{NaCl}$  の試料反応度測定を実施し、既存核データを用いて行った数値解析の結果と比較した。 $\text{CaH}_2$  については、(3)①「評価済み断面積ライブラリの整備」で新たに作成した断面積を用いて解析を実施した。

その結果、 $\text{ZrH}_2$ 、軽水については、JENDL-5 に収納されている熱中性子散乱則データの妥当性が示された。 $\text{NaCl}$  については JENDL-5 に収納されている  $\text{Na}$  及び  $\text{Cl}$  の断面積の妥当性が示された。 $\text{CaH}_2$  については、新たに評価した熱中性子散乱則データを用いた結果は JEFF-3.3 と同等の特性を示すことが分かった。試料反応度計算値にバイアスが存在したが、水素以外の核種・反応による寄与であることが示唆された。

### (3) 核データ整備及び炉設計への影響評価

#### ①評価済み断面積データライブラリの整備（再委託先：原子力機構）

革新型原子炉の設計に重要な TSL と荷電粒子放出断面積について、評価手法の調査・検討を行い、その結果に基づき評価システムを構築した。また、本研究で取得された実験値を参照した核データ評価を、構築した評価システムを用いて実施した。この評価結果を基に、核データファイルを整備した。最終的に、TSL については黒鉛、水素化カルシウム、水素化イットリウム、塩化ナトリウムの 4 物質、荷電粒子放出反応断面積については  $^{39}\text{K}$ 、 $^{63}\text{Cu}$  の 2 核種に対して核データファイルを整備した。

#### ②新たな核データを用いた革新型原子炉の核特性計算（再委託先：近畿大学）

本項目では、(3)①「評価済み断面積ライブラリの整備」で新たに作成した断面積を用いて革新型原子炉の実効増倍率計算を実施した。さらに、既存断面積を用いて計算した感度係数に既存断面積と新たに作成した断面積の差を乗じることで、新断面積を用いた場合の実効増倍率計算値の変化量を定量的に評価した。その結果、MoveLuX の固体減速材に新断面積を用いた場合、実効増倍率は  $1.15601 \pm 0.00132$  となった。一方、JEFF-3.1 を用いた場合は  $1.15585 \pm 0.00135$  であり、両者の差は 65.8 pcm であった。上記の差は  $\text{CaH}_2$  試料反応度実験の再解析と整合した。

実効増倍率計算値の差について、感度解析を用いて定量的に評価したところ 0.01-0.06 eV の正の寄与と 0.06-0.1 eV の負の寄与による打ち消し合いによる結果であることが明らかとなった。

#### (4) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、研究実施計画等を協議するための全体会合を開催した。

全体会合は令和3年度に2回、令和4年度に3回、令和5年度に3回の頻度で開催した。全体会合では研究の進捗状況や取り組むべき課題について情報を共有し、活発な議論によって今後の研究開発の進め方について業務参加者全体で確認した。

このように、革新型原子炉開発で核データの高度化の必要性が想定される代表的な構造材、核種として、熱中性子散乱則データの観点からは水素化合物、黒鉛、フッ化物、塩化物、荷電粒子放出反応断面積の観点からは  $^{63}\text{Cu}(n, p)^{63}\text{Ni}$  反応及び  $^{39}\text{K}(n, \alpha)^{36}\text{Cl}$  反応を選定し、基礎データを取得し、核データファイルを整備することができた。さらに、6つの研究項目が連携して業務を進めることにより、必要な核データを高度化するスキームを構築することができた。

以上、3年間の業務を実施し所期の目標を達成した。

## 1. はじめに

2018年7月に閣議決定された第5次エネルギー基本計画では、原子力関連の新技术開発について、海外における小型モジュール原子炉（SMR）の革新的な原子炉開発の研究動向が活性化していることに言及されており、原子力利用の安全性・信頼性・効率性を抜本的に高める新技术等の開発として、SMRのような革新型原子炉の開発は喫緊の課題である。研究開発を加速するためには、従来のリニア型の開発モデルを超え、スパイラル型に知識の総合化、技術の総合化を進め、短いタイムスパンで効果的、効率的に研究開発を展開することが求められる。評価済核データライブラリは原子炉設計において最も基盤となるデータベースである。炉心設計の自由度が利用可能な核データからの制約によって制限されるようなことがあつては、革新型原子炉開発の足かせになってしまうので、必要とされる核データの新知見を迅速に評価済核データライブラリに取り込み、炉心設計の検討段階から要求に応えられるものを提示することが必要である。ところが、核データ測定によって最新の知見が得られてから汎用の評価済核データライブラリの形として公開されるまでには、微分・積分実験に基づいた評価、検証のプロセスを経るため、産業界のニーズに応えるまでに相当の時間遅れが生じてしまうのが現状である。革新的な原子炉開発は、小型軽水炉、小型高速炉、高温ガス炉、熔融塩炉、超小型炉等の多様な炉型が検討されているため、精度向上に必要な核データを一概に特定することが難しく、産業界の炉設計の取り組みと歩調を合わせて、要求に応じて核データを迅速且つ柔軟に高度化していくスキームを構築することが極めて重要な課題となる。

そこで、本研究では、革新型原子炉の開発において問題になると想定される核データについて基盤データを取得すると共に、新たな核データのニーズに迅速に対応し、3年程度の短期間で検討用核データライブラリを整備するためのスキームの構築を研究目標として設定する。革新型原子炉の開発状況から解決すべき核データの問題点を整理すると、減速材の熱中性子散乱則データと構造材の荷電粒子放出反応断面積データの整備の必要性が挙げられる。熱中性子散乱則データに関しては、最新の評価済核データライブラリ JENDL-5 において新規データが大幅に追加されたものの、熔融塩炉や超小型炉等で新たに検討されている減速材についてはデータが十分に整備されているとは言い難く、また、その精度検証も課題として残っている。荷電粒子放出反応断面積に関しては、従来の測定手法では使用できる試料の物質量が少なく十分な統計精度を得ることが難しかったことに加え、従来の原子炉開発では荷電粒子放出反応があまり重要視されてこなかったこともあり、測定データが十分ではないのが現状である。ところが、熔融塩炉の場合、塩化物熔融塩に含まれる K-39 による  $(n, \alpha)$  反応によって半減期 30 万年の Cl-36 が生成されることが廃棄物管理上問題となることが懸念されており、革新型原子炉の設計開発において、荷電粒子放出反応断面積データの整備が求められることになる。

このような状況を踏まえて、令和3年度を初年度に開始した本研究は、革新型原子炉で核データの高度化の必要性が想定される代表的な構造材、核種に対して基盤データを取得することを目指し、研究項目(1)微分実験、(2)積分実験、(3)評価済核データライブラリの整備及び炉設計への影響評価、並びに(4)研究推進を実施するものである。

## 2. 業務計画

### 2.1 全体計画

本研究では、革新型原子炉で必要となる核データの高度化を目指し、(1)微分測定、(2)積分測定、(3)核データ整備及び炉設計への影響評価、並びに(4)研究推進を実施する。これにより、革新型原子炉の開発において問題になると想定される核データについて基盤データを取得するとともに、実験データの取得から核データ評価、検討用核データライブラリの整備、検証までの一連の研究開発を短期間で実施するスキームを構築することを目的とする。以下に、本研究の各研究項目の概要とそのスケジュール並びに、これらを遂行するための研究体制を示す。( )内には、研究担当機関名・大学名を記す。

#### (1) 微分測定

本項目では、革新型原子炉で使用されると想定される減速材、冷却材、構造材に関する中性子断面積データの取得を行う。得られたデータは(3)①「評価済断面積データライブラリの整備」に反映される。

##### ① 熱中性子領域の断面積測定（原子力機構）

大強度陽子加速器施設（J-PARC）の物質・生命科学実験施設（MLF）において、TOF法を用いて、熱中性子領域での断面積測定を行う。特に、軽水、黒鉛、熔融塩を構成する化合物試料に対しては、温度を制御して断面積測定を行うことによって、熱中性子散乱データの整備に必要な基盤データを取得する。

##### ② 構造材に対する高速中性子領域の断面積測定（東京工業大学）

東工大ペレット加速器及びJ-PARCのMLFにおいて、TOF法を用いて、荷電粒子放出反応を含めた高速中性子領域での断面積測定を行う。特に、革新型原子炉で使用される構造材に対する荷電粒子放出反応に対しては、新たな測定原理に基づく検出器を開発する。

#### (2) 積分測定

京都大学複合原子力科学研究所電子線形加速器（KURNS-LINAC）及び近畿大学原子炉（UTR-KINKI）を用いて、核データ評価にフィードバックするための積分実験を実施する。得られたデータは(3)①「評価済断面積データライブラリの整備」に反映される。

##### ① 熱中性子散乱データ検証実験（京都大学）

KURNS-LINACにおいて、革新型原子炉の減速材、冷却材を模擬した体系をパルス中性子源のモデレータとして用いることにより、体系内及び体系外の中性子スペクトルに関するデータをTOF法等で測定することによって、熱中性子散乱データの検証に必要な積分データを取得する。

##### ② 研究用原子炉を用いた試料反応度測定（近畿大学）

UTR-KINKIにおいて、試料反応度測定を実施する。本測定では(1)①「熱中性子領域の断面積測定」又は(2)①「熱中性子散乱データ検証実験」と同一組成の試料を用いる。

(3) 核データ整備及び炉設計への影響評価

上記(1)及び(2)で測定される実験値を用いて評価済断面積データライブラリの整備を実施する。更に整備された評価済断面積データライブラリを用いて革新型原子炉の核特性計算を実施し、従来の核データを用いた結果と比較検討する。

① 評価済断面積データライブラリの整備（原子力機構）

既存測定データの収集・解析を行い、本研究における微分及び積分実験データと合わせて、総合的な核データ評価を行う。得られた評価済断面積データライブラリは下記(3)②で使用する。

② 新たな核データを用いた革新型原子炉の核特性計算（近畿大学）

本研究で整備される評価済断面積データライブラリを用いて革新型原子炉の原子炉核特性計算を実施し、従来の核データを用いた結果と比較することで感度解析を実施する。対象とする核特性は臨界性とする。ただし、本項目は2年目から開始する。

図 2.1-1 に、本研究の全体スケジュールを示す。

項目	年度	令和3年度	令和4年度	令和5年度
(1) 微分測定	① 熱中性子領域の断面積測定 (再委託先：原子力機構)	昇温装置・試料セルの製作・評価	J-PARCでの断面積測定・解析	J-PARCでの断面積測定・解析
	② 構造材に対する高速中性子領域の断面積測定 (再委託先：東京工業大学)	検出器開発・試験	断面積測定・解析	断面積測定・解析
(2) 積分測定	① 熱中性子散乱則データ検証実験	手法検討・予備実験	熱中性子散乱則データ検証実験	熱中性子散乱則データ検証実験
	② 研究用原子炉を用いた試料反応度測定 (再委託先：近畿大学)	事前解析・予備実験	試料反応度測定	試料反応度測定
(3) 核データ整備及び炉設計への影響評価	① 評価済断面積データライブラリの整備 (再委託先：原子力機構)	文献調査・手法検討	評価済断面積データライブラリの整備	
	② 新たな核データを用いた革新型原子炉の核特性計算 (再委託先：近畿大学)		既存データによる核特性計算	新データによる核特性計算
(4) 研究推進		全体会合の開催	全体会合の開催	全体会合の開催
		まとめ・評価	まとめ・評価	まとめ・評価

図 2.1-1 全体スケジュール

本研究の研究実施体制を図 2.1-2 に示す。

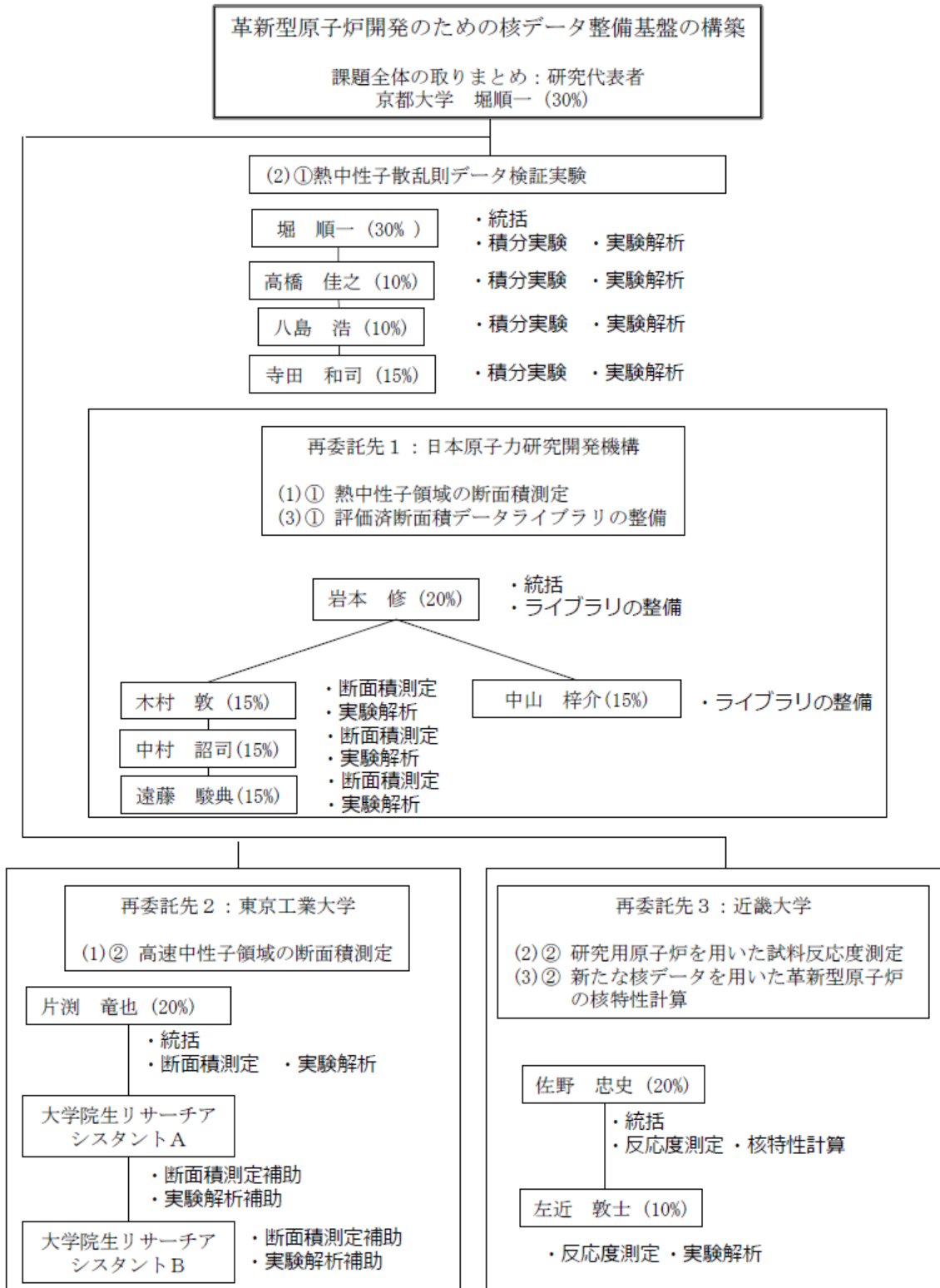


図 2.1-2 研究実施体制

### 3. 業務の実施内容及び成果

#### 3.1 微分測定

##### 3.1.1 熱中性子領域の断面積測定（再委託先：原子力機構）【R3-R5】

###### (1) 目的及び概要

本項目では、大強度陽子加速器施設（J-PARC）の物質・生命科学実験施設（MLF）において、TOF 法により、中性子減速に影響すると考えられる黒鉛、熔融塩化合物に対して、温度を制御して複数の温度で全断面積及び散乱断面積の測定を行う。これにより、熱中性子散乱則データの整備に必要な基盤データを取得する。

令和 3 年度は MLF での実験に必要な昇温炉の製作、及び耐圧試料セルの試作を行うとともに、それらの試験を行った。

令和 4 年度は令和 3 年度の試験結果をもとに、改良を行うとともに、実験条件の絞り込みを行った。また、黒鉛及び固体減速材（ $\text{CaH}_2$ 、 $\text{YH}_2$  及び、 $\text{ZrH}_2$ ）について J-PARC・MLF 施設のビームライン No. 4 (ANNRI) にて全断面積の測定を、ビームライン No. 14 (AMATERAS) にて散乱断面積の測定を複数の温度で実施し、得られたデータを解析して全断面積及び散乱断面積の暫定値を導出した。

令和 5 年度は黒鉛及び固体減速材の詳細な解析を進めて最終結果を導出するとともに、減速材として利用される塩化物、フッ化物について AMATERAS にて散乱断面積の測定を ANNRI 及び京都大学複合原子力科学研究所の LINAC を用いて全断面積測定を実施し、得られたデータを解析して断面積を導出した。また、これらの断面積を 3.3.1「評価済み断面積ライブラリの整備」に反映させた。

###### (2) 昇温炉・セルの製作【R3-R4】

昇温炉及びセルについては高温の利用となるため、令和 3 年度は利用施設である J-PARC センターの安全担当者と打ち合わせを重ねて設計・製作を進めた。その後、管理区域外にて昇温試験を行い、 $500^\circ\text{C}$  以下での用の許可を得た。

また、令和 4 年度には散乱断面積測定で利用するアルミホルダ及び固体減速材（ $\text{CaH}_2$ 、 $\text{YH}_2$  及び、 $\text{ZrH}_2$ ）の全断面積測定用試料の製作を併せて実施した。 $\text{CaH}_2$ 、 $\text{YH}_2$  及び  $\text{ZrH}_2$  は金属の水素化物であるため、水と反応すると発熱反応（自然発火性）の後に強アルカリ性になるという性質を持つ。そのため MLF の安全担当者と協議の結果、試料は Ar 雰囲気中で内側を樹脂で保護した Al 製セルに封入する構造とした。

###### (3) 測定条件の選定【R4】

MATERAS で実施する散乱断面積測定に関しては、AMATERAS で標準として利用されている温度制御装置（クライオファーンネス）を利用するため、測定温度の上限は  $500\text{ K}$  ( $227^\circ\text{C}$ ) に制限される一方、低温側は  $50\text{ K}$  まで利用する事が可能である。一般的に低温側の方が温度の影響を明確に観測する事が可能であることから、測定温度を  $100\text{ K}$  ( $-173^\circ\text{C}$ )、 $300\text{ K}$  ( $27^\circ\text{C}$ )、 $485\text{ K}$  ( $202^\circ\text{C}$ ) とすることとした。また、入射中性子エネルギーはディスクチョッパの設定で任意に決定でき、本測定では AMATERAS で過去に行われた実験に合わ

せ、

- Filter1: 5.93, 10.53, 23.65, 93.95 meV
- Filter2: 3.14, 7.74, 15.15, 41.98 meV
- Filter3: 1.17, 1.48, 1.94, 2.64 meV

の3パターンとすることとした。

全断面積測定に関しては試料及び温度制御装置などの上限を考慮し、測定温度を室温、485 K (202°C) とした。また、測定対象エネルギーは数 meV~1 eV とし、それに合わせて試料厚みを設定することとした。

#### (4) 黒鉛の断面積測定【R4-R5】

##### ① 試料

###### 【R5】

測定に用いる黒鉛試料については、等方性黒鉛を測定に用いることとした。等方性黒鉛は原料のコークスを複数回、粉碎・混捏（焼結過程で蒸発するバインダーを加え、加熱しながら混ぜ合わせ固める作業）を行って均質な粒を作成した後に、ゴム製の容器に入れて水中で均等に圧力を加え焼成したもので、均質性が高く、加工性や化学的特性に優れるという特色を持つ。この特性を生かし、ファインカーボンとして産業界で工業炉材料や半導体製造分野などで一般的に用いられるだけでなく、原子力分野でも原子力機構の HTTR の炉心集合体に採用される<sup>(1)</sup>など幅広く用いられている。本予備試験では製造時の粒子径や密度、用途の異なる 5 種類の等方性黒鉛について直径 10 mm、高さ 10 mm の円柱状の試料を準備し測定を行った。表 3.1.1-1 に測定に用いた黒鉛試料の重量及び密度を気孔率及び粒子径のメーカー公称値と共に示す。

表 3.1.1-1 測定に用いた黒鉛試料の各諸元

試料名	気孔率 (公称値 : %)	粒子径 (公称値 : $\mu\text{m}$ )	重量 (実測値 : g)	密度 (実測値 g/cm <sup>3</sup> )	用途
ET-10	15	15	1.376	1.75	エネルギー、工業炉材料 (大型加工可能)
ET-11	14	13	1.351	1.72	
ET-34	11	15	1.442	1.84	
ED-4	9	1	1.491	1.90	放電加工用電極材
T-8	9	5	1.499	1.90	半導体製造分野

##### ② 全断面積測定

###### 【R4】

全断面積の測定は ANNRI で中性子飛行時間(TOF)法を用いて令和4年度に行った。試料をビームライン上に設置し、厚さ 1 cm の試料を透過した中性子を <sup>6</sup>Li-Glass 検出器で測定した。断面積を導出するために試料の無い状態(Blank)の測定も実施した。測定



時間は各試料 9～15 時間とした。実験時、MLF は 800 kW、25 Hz で運転されており、130 Shot (5.2 秒) 毎に、最初の 126 Shot が MLF に、残りの 4 Shot は他施設に供給される運転パターンであった。今回の測定では、この特殊な運転パターンに着目し、MLF に最後に供給される 126 Shot 目を用いてデータ解析を行う事でより飛行時間が長い領域 (より中性子エネルギーが低い領域) までの測定を実施した。

図 3.1.1-1 に測定に得られた TOF スペクトルを示す。ANNRI では Trigger を前のパルス を 40 ms 遅らせてトリガーを作成しているため、160 ms 以降に次の中性子パルスによるイベントが観測されている。

【R5】

令和 5 年度は解析を進め、断面積の最終結果を得た。得られた室温での全断面積を ENDF/B-VIII.0 (空孔率 10%) と比較したものを図 3.1.1-2 に示す。中性子エネルギー 20 meV 以上の領域では各試料の測定結果と評価値はほぼ同じ値となり、100 meV 以上では 4.9～5.0 b と JENDL-5 の全断面積とよく一致した。一方で 20 meV 以下では試料間の差は大きくなっていき、1 meV で 22～33 b と 1.5 倍もの差が出た。また、この値は S. Petriw らによる一般的な黒鉛の測定<sup>(2)</sup>に比べて 2～3 倍程度、ENDF/B-VIII.0 と比較して 40 倍程度大きい。これは、今回測定に使用した等方性黒鉛は通常の原子炉級黒鉛と異なり、粉碎・混捏が多く行われている。その結果、原料となる粒子径が通常の黒鉛と比べてそろっており、小角散乱が大きくなったと考えられる。

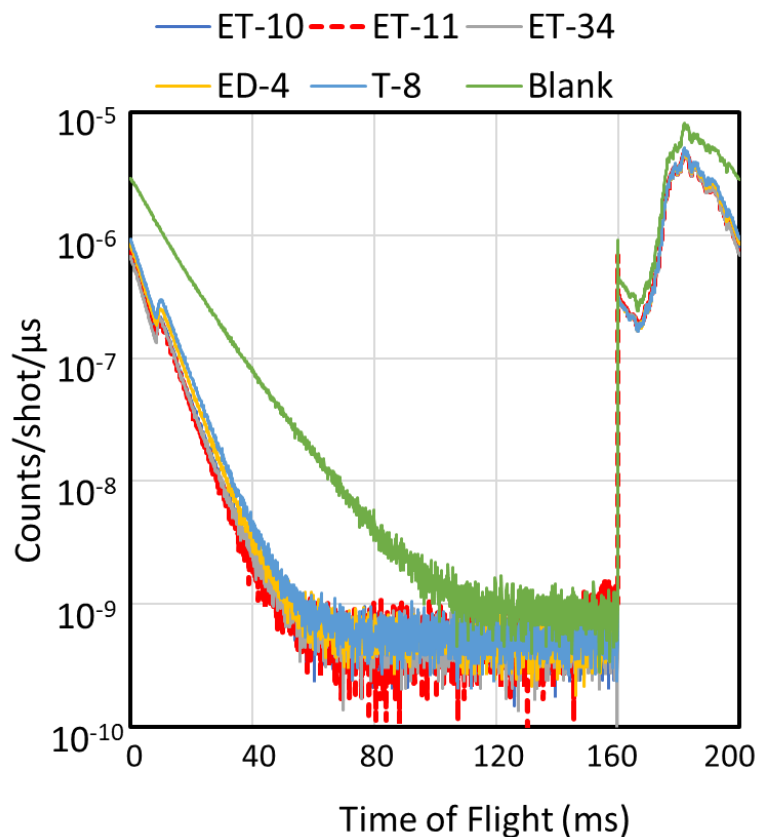


図 3.1.1-1 黒鉛試料の全断面積測定での TOF スペクトル

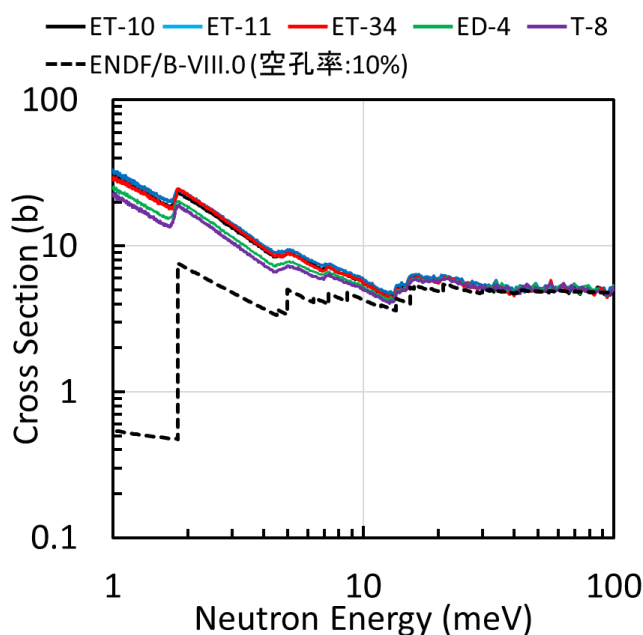


図 3.1.1-2 各黒鉛試料の全断面積の測定結果

### ③ 散乱断面積測定

#### 【R4】

測定は AMATERAS で実施した。AMATERAS では以下の方法で測定を行っている。

1. 設置されているディスクチョッパを用いて MLF のパルス中性子を単色化。
2. 単色化した中性子が試料で散乱。この時の時刻を入射中性子のエネルギーと中性子源から試料までの飛行距離で計算。
3. 試料によって散乱された中性子を円筒状に設置された 2 次元位置検出機能を持つ中性子検出器で検出、検出位置と検出時刻を測定。
4. 散乱中性子が検出された位置から散乱角度と試料からの距離(散乱中性子の飛行距離)を導出。
5. 中性子が散乱した時刻と検出時刻の差から散乱中性子の飛行時間を導出。
6. 散乱中性子の飛行距離と飛行時間から散乱中性子のエネルギーを計算。

このように AMATERAS では散乱中性子の散乱角度とエネルギーを同時に測定する事が可能である。

実験は黒鉛試料を製作したアルミ製のセルに入れ、それを AMATERAS で標準として利用されている温度制御装置に入れて測定を行った。黒鉛の他に、バックグラウンド測定のためのアルミセルのみの測定 (Blank) 及び規格化のためのバナジウム試料の測定も行った。入射エネルギーは (3) 項に示した値とし、各 2~6 時間測定を行った。断面積の導出に際しては、試料から Blank を差し引き、バナジウムの測定結果で規格化を行った。規格化に際し、バナジウムのインコヒーレント断面積は 5.08 b(NIST) とした。

導出した断面積の一例として、入射エネルギー7.74 meVでの各黒鉛試料の弾性散乱断面積の角度分布を図 3.1.1-3 に示す。(0, 0, 2)及び(1, 0, 1)の結晶構造に対応するブラッグピークが観測された。また、15度以下の領域で大きな小角散乱成分が観測された。

図 3.1.1-3 にある様に、今回測定された試料では大きな小角散乱成分が観測されており、この大きな小角散乱が図 3.1.1-2 で観測された低エネルギー領域での過去の文献値よりも大きな断面積の原因である。小角散乱が過去の文献値よりも大きくなった原因としては、方性黒鉛が通常の黒鉛に比べて粉碎・混捏をしっかりと行っており、原料となる粒径が均質であったため小角散乱が増大したことが原因だと推測される。但し、小角散乱は、散乱角度が大きくなれば加速度的に小さくなる、熱中性子より大きなところではほとんど影響しないという特徴を持つことから、臨界計算への影響は小さいと考えられる。

【R5】

令和5年度においては中性子の自己吸収などの補正を行い、非弾性散乱部分の解析を進めた。図 3.1.1-4 に一例として、入射エネルギー41.98 meVでのET-34試料の2重微分断面積を示す。AMATERASでの測定結果は、入射中性子と散乱中性子の波数ベクトルの差の絶対値(|Q|)をX軸に、入射中性子と散乱中性子のエネルギーの差をY軸にとった2次元のスペクトルで表される。なお、図中に斜めに走る白い線は検出器がなく測定データの存在しない領域である。

散乱角度に対する依存性を明らかにするために、図 3.1.1-4 を散乱角度で切り出した結果を図 3.1.1-5 に示す。

図 3.1.1-6 に入射エネルギー41.98meVでの試料依存性を示す。右側が散乱角度20°～40°の左側が60°～80°の結果である。ENDF/B-VIII.0では空孔率に依存した断面積が与えられており、空孔率の違いにより数十%もの違いがエネルギー遷移の大きい領域で存在している。(図 3.3.1-2 参照)しかしながら、今回の実験結果では空孔率が異なる試料間で断面積に大きな差異は確認できず、黒鉛の断面積には空孔率による依存性はないとの結果となった。

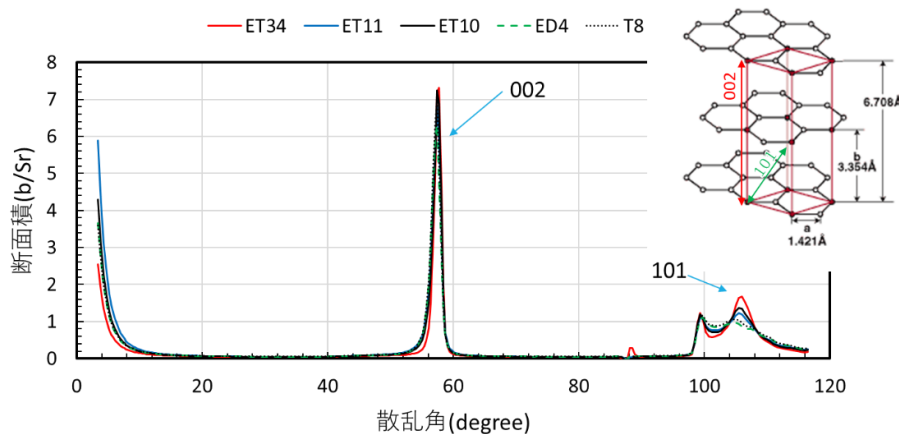


図 3.1.1-3 入射エネルギー7.74 meVでの各黒鉛試料の弾性散乱の角度分布

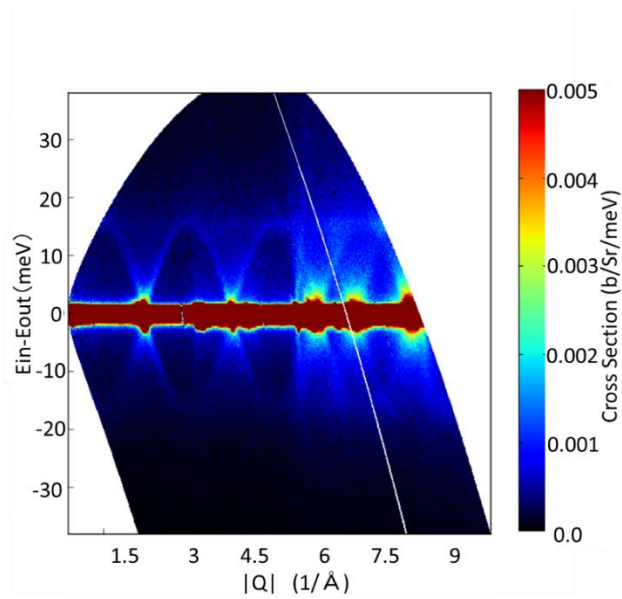


図 3.1.1-4 ET-34 試料の 2 重微分断面面積の測定結果 ( $E_{in}=41.98$  meV)

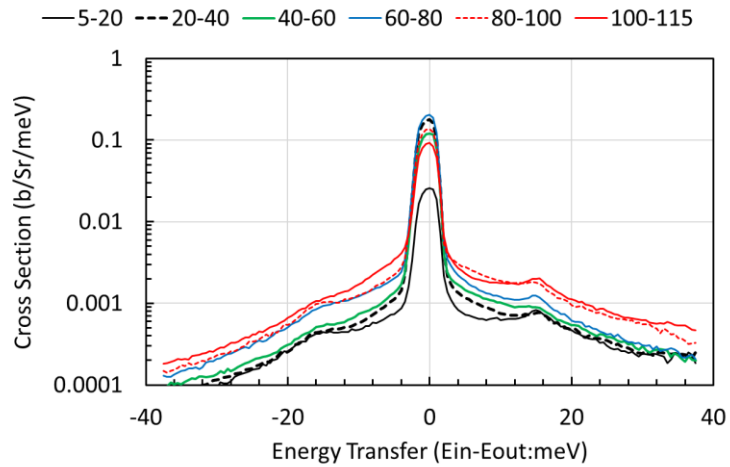


図 3.1.1-5 散乱角度毎の 2 重微分断面面積の測定結果 ( $E_{in}=41.98$  meV)

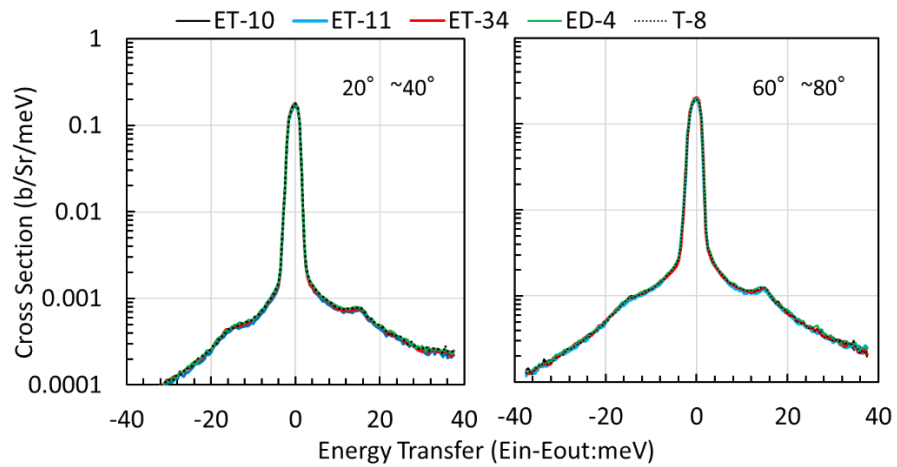


図 3.1.1-6 2 重微分散乱断面面積の試料依存性 ( $E_{in}=41.98$  meV)

温度依存性の一例として、ET-34 試料の入射エネルギー41.98meV での散乱角度  $20^{\circ} \sim 40^{\circ}$  (右側) 及び  $60^{\circ} \sim 80^{\circ}$  (左側) の温度依存性を図 3.1.1-7 に示す。温度上昇により、全体的に断面積は上昇するが、その傾向はエネルギーを与えられる側 (負の側) で大きい事が確認できた。

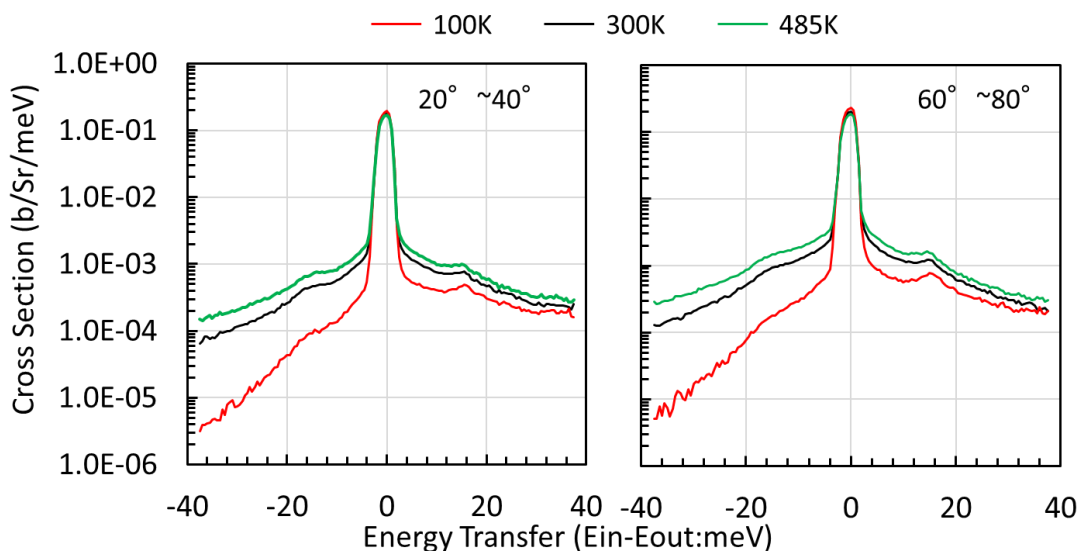


図 3.1.1-7 ET-34 試料の重微分散乱断面積の温度依存性 ( $E_{in}=41.98 \text{ meV}$ )

#### (5) 固体減速材 ( $\text{CaH}_2$ 、 $\text{YH}_2$ 及び、 $\text{ZrH}_2$ ) の全断面積測定【R4-R5】

##### 【R4】

固体減速材としての利用が期待されている  $\text{CaH}_2$ 、 $\text{YH}_2$  及び、 $\text{ZrH}_2$  の測定は黒鉛の測定と同じく ANNRI で中性子飛行時間 (TOF) 法を用いて令和 4 年度に行った。 $\text{CaH}_2$ 、 $\text{YH}_2$  及び  $\text{ZrH}_2$  は金属の水素化物であるため、Ar 雰囲気中で外径 15 mm  $\phi$ 、厚さ 1 cm に圧縮成型成形した試料 (重量  $\text{CaH}_2$ : 2.82 g、 $\text{YH}_2$ : 5.71 g、 $\text{ZrH}_2$ : 6.75 g) を内側を樹脂で保護した Al 製セルに封入したものを試料として用いた。測定時間は各試料 4~12 時間であり、実験・解析手法は黒鉛の全断面積測定とほぼ同様である。

##### 【R5】

令和 5 年度に導出した全断面積を評価値と比較した結果を図 3.1.1-8 に示す。なお、評価値に関し、 $\text{ZrH}_2$  は JENDL-5 の値 (ENDF-B/VIII.0 と同じ) を、 $\text{CaH}_2$  は ENDF-B/VIII.0 の値を、 $\text{YH}_2$  は JEFF-3.3 の値 (ENDF/B-VIII.0 には収録無し) を示す。導出した断面積は各分子当たり H 原子が 2 個あるとした場合の分子当たりの断面積である。黒鉛 (炭素) と異なり、水素はインコヒーレント成分が大きいため、ブラッグエッジは観測できるものの、その大きさは小さなものになっている。

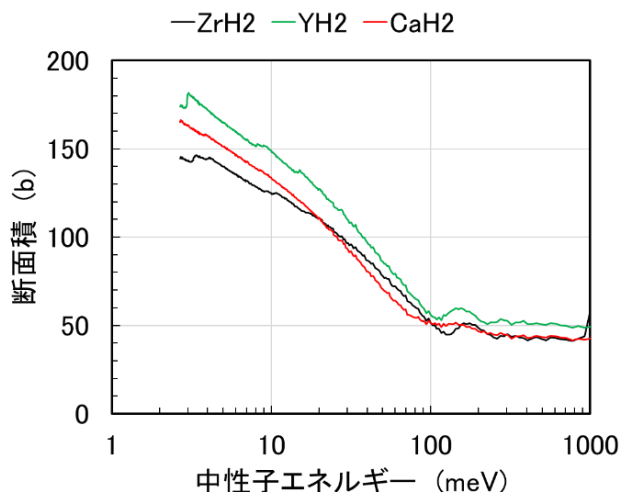


図 3.1.1-8 固体減速材 (CaH<sub>2</sub>、YH<sub>2</sub> 及び、ZrH<sub>2</sub>) の全断面積の測定結果

## (6) 塩化物及びフッ化物の測定【R5】

### ① 全断面積測定

#### 1) ANNRI での測定

室温での全断面積の測定は黒鉛及び固体減速材と同じく ANNRI で中性子飛行時間 (TOF) 法を用いて行った。試料には厚さ 5 mm の NaCl 及び KCl の単結晶及び粉末試料を 10 mm φ に圧縮成型したものを、フッ化物については LiF の焼結体 (10 mm t) を利用した。測定時間は各試料 9~15 時間とした。

測定の結果得られた NaCl 及び KCl の全断面積を図 3.1.1-9 に示す。単結晶試料は結晶間隔がそろっているため、その波長に該当する中性子の断面積のみが局所的に増大する様子が確認された。一方、粉末試料では結晶の向きがそろっていないため、ブラッグエッジ以外の構造は確認されない。また、粉末試料の全断面積は単結晶試料に比べて大きくなる傾向がみられた。これは単結晶では 2 回散乱を起こすと元の入射方向に中性子が散乱されることが原因と考えられる。

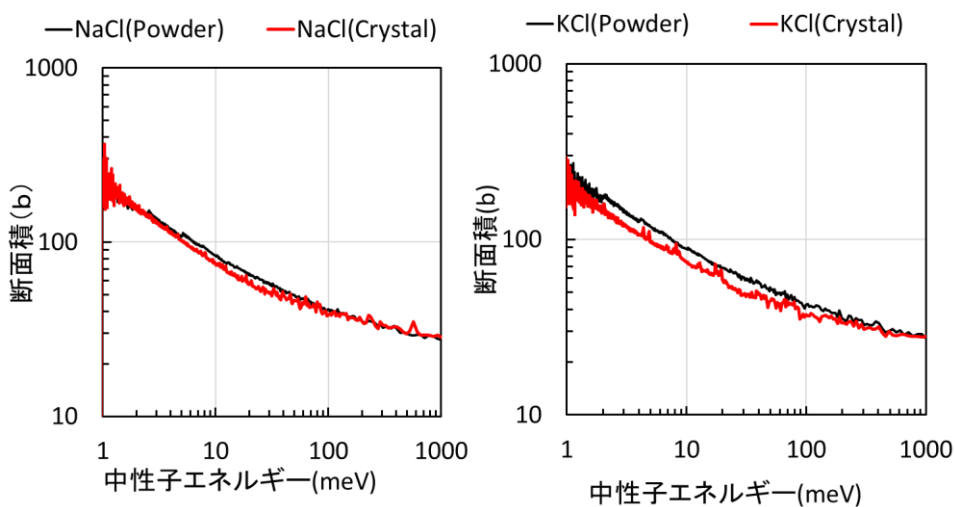


図 3.1.1-9 塩化物塩 (NaCl 及び KCl) の全断面積の測定結果

図 3.1.1-10 に、LiF の全断面積の測定結果を示す。LiF は  ${}^6\text{Li}$  の  $(n, \alpha)$  断面積がけた違いに大きいため、13.3 meV (3.6 Å) に LiF(1, 1, 0) のブラッグエッジがかろうじて確認できるものの、その他の構造を確認する事が出来なかった。また、測定下限も 4.5 meV に制限されている。

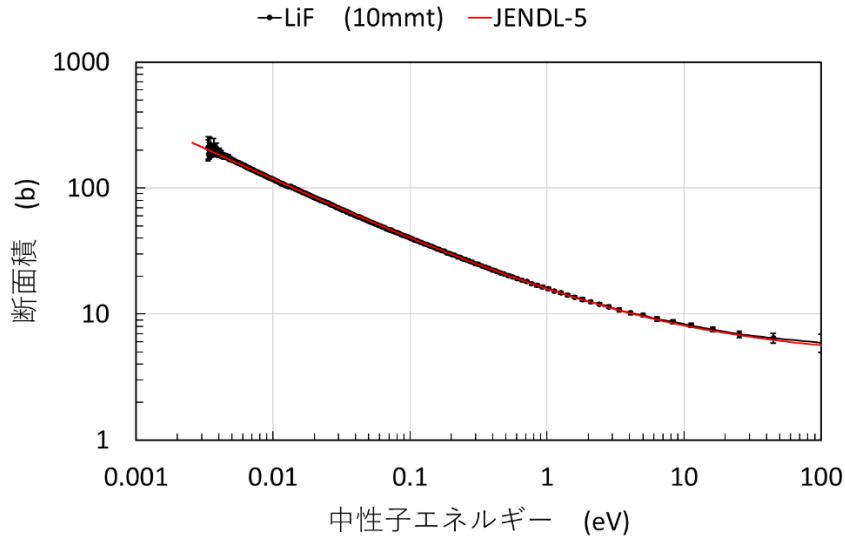


図 3.1.1-10 LiF の全断面積の測定結果

2) 京都大学複合原子力科学研究所での測定

温度を上昇させての測定は、製作した昇温炉及びセルを用い、京都大学複合原子力科学研究所の LINAC を用いて測定を行った。試料には厚さ 5 mm に成形した NaCl 及び KCl の粉末試料を用い、測定は室温、485°C の 2 点について各 4 時間行った。

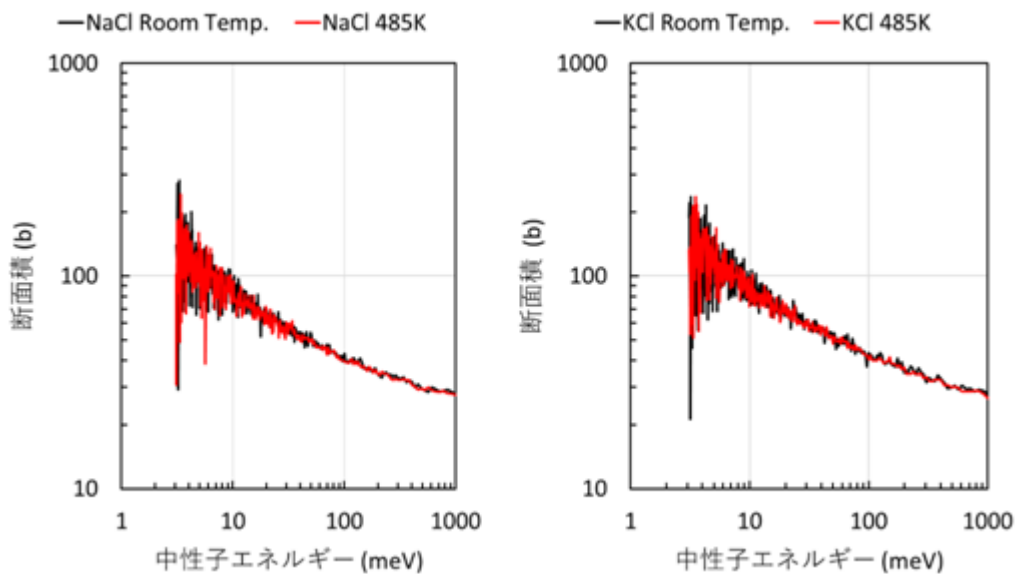


図 3.1.1-11 に測定の結果得られた全断面積の温度依存性を示す。塩素の捕獲断面積が大きいこともあり、温度による断面積の違いは観測されなかった。



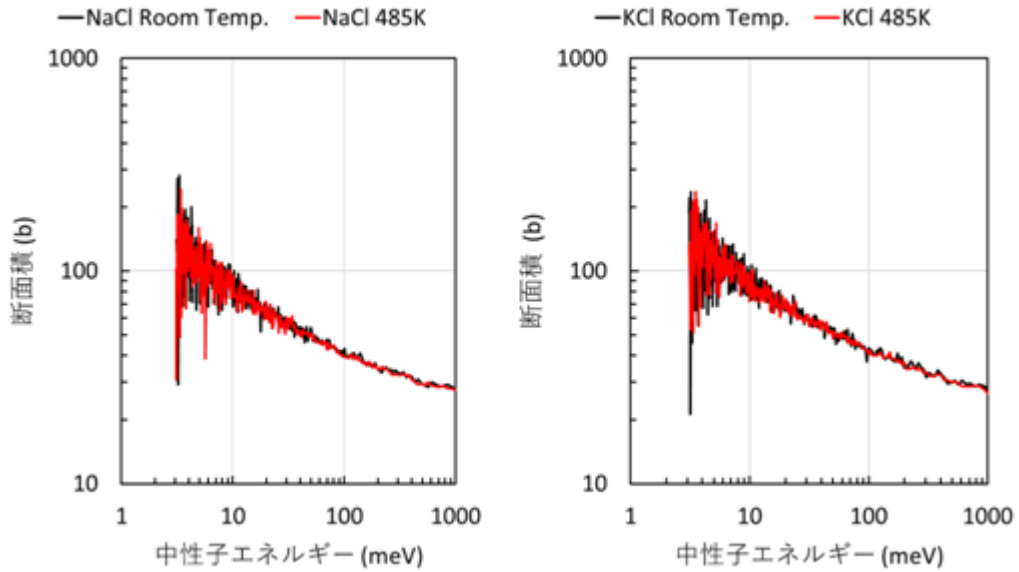
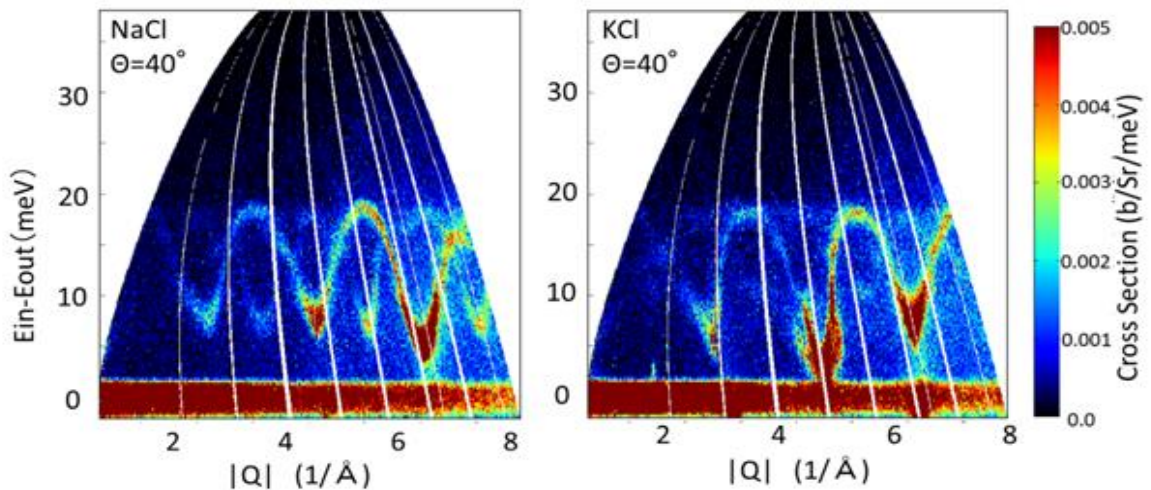


図 3.1.1-11 塩化物塩 (NaCl 及び KCl) の全断面積の温度依存性

## ② 2重微分散乱断面積測定

2重微分散乱断面積測定の測定は黒鉛と同じく AMATERAS で行った。試料には厚さ 5mm の NaCl 及び KCl の単結晶、フッ化物については厚さ 10 mm の LiF の焼結体を用いた。これらの試料を製作したアルミ製のセルに固定し、それを AMATERAS で標準として利用されている温度制御装置に入れて測定を行った。NaCl 及び KCl については (1, 0, 1) 面を  $0^\circ$  とし、 $0^\circ \sim 90^\circ$  まで 10 度おきに各 50 分測定を実施した。また、LiF については  ${}^6\text{Li}$  の (n,  $\alpha$ ) 断面積が大きく、散乱した中性子が試料を透過しない。そのため、試料を中性子ビームラインに対して  $45^\circ$  傾けて設置し、反射条件での測定を行った。

測定結果の一例として図 3.1.1-12 に入射中性子エネルギー 41.98 meV、試料角度  $40^\circ$  での NaCl 及び KCl 試料の 2重微分散面積を示す。試料が単結晶であるため、黒鉛試料のようなブラッグエッジを中心とする形状ではなく、結晶構造に起因する幸三を明確に確認する事ができる。また、図 3.1.1-13 に入射中性子エネルギー 41.98 meV での





LiF 試料の弾性散乱断面積の角度依存性を示す。反射条件での測定となっているため、測定角度は  $45^\circ$  以上に制限されているが、(1, 1, 0)、(1, 1, 1)、(2, 0, 0) に該当するブラッグエッジを  $80^\circ$ 、 $95^\circ$ 、 $155^\circ$  付近に確認する事ができる。

図 3.1.1-12 NaCl, KCl の 2 重微分断面積の測定結果 ( $E_{in}=41.98$  meV)

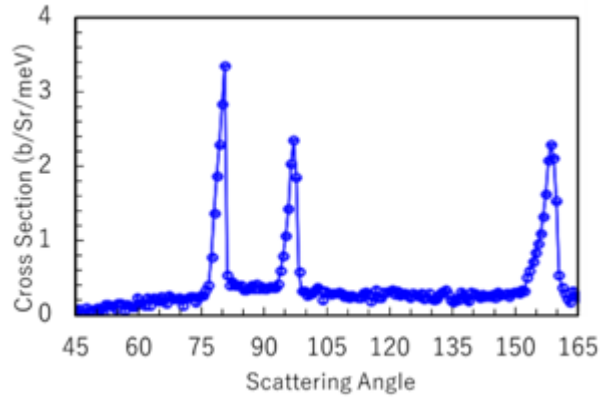


図 3.1.1-13 LiF の弾性散乱断面積の角度依存性 ( $E_{in}=41.98$  meV)

温度依存性の一例として、NaCl 試料の入射エネルギー  $41.98$  meV での散乱角度  $40^\circ \sim 60^\circ$  での温度依存性を図 3.1.1-14 に示す。黒鉛試料と同じく、温度上昇により、全体的に断面積は上昇するが、その傾向はエネルギーを与えられる側（負の側）で大きい事が確認できた。また、弾性散乱の形状が温度の上昇に伴い太くなっている事も確認する事ができた。

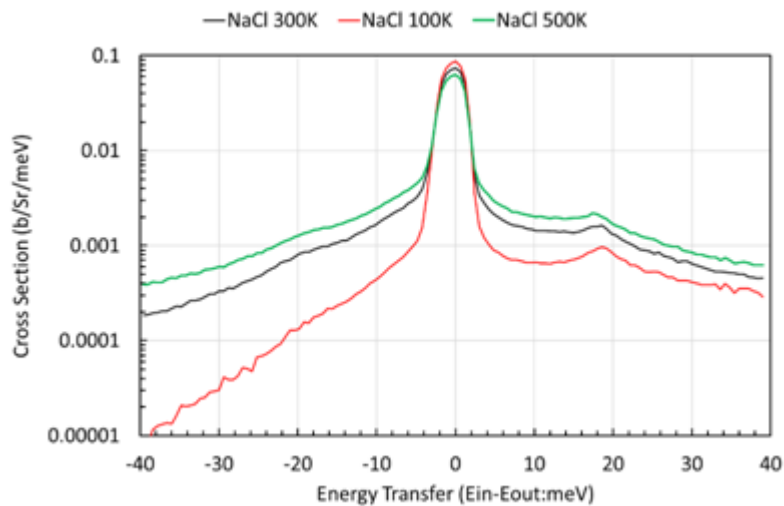


図 3.1.1-14 NaCl 単結晶試料の散乱断面積の温度依存性 ( $E_{in}=41.98$  meV)

## (7) まとめ

J-PARC・MLF での実験に必要な昇温炉及び耐圧試料セルの整備を行い、測定条件を選定した。

黒鉛及び固体減速材 (CaH<sub>2</sub>、YH<sub>2</sub> 及び、ZrH<sub>2</sub>) について J-PARC・MLF 施設のビームライン No. 4 (ANNRI) にて全断面積の測定を、ビームライン No. 14 (AMATERAS) にて散乱断面積の測定を複数の温度で実施し、得られたデータを解析して全断面積及び散乱断面積を導出した。黒鉛については、従来の評価済核データライブラリでは空孔率に依存した断面積が与えられていたが、今回の実験結果では空孔率が異なる試料間で断面積に大きな差異は確認できず、黒鉛の断面積には空孔率による依存性はないとの結果となった。

塩化物、フッ化物について AMATERAS にて散乱断面積の測定を ANNRI 及び京都大学複合原子力科学研究所の LINAC を用いて全断面積測定を実施し、得られたデータを解析して断面積及びそれらの温度依存性を導出した。

また、得られた断面積は 3.3.1 「評価済み断面積ライブラリの整備」に反映させた。

### 3.1.2 構造材に対する高速中性子領域の断面積測定（再委託先：東京工業大学）【R3-R5】

#### (1) 目的及び概要

革新型原子炉には従来の原子炉とは異なる構造材が多く使われている。それらの構造材の中で起きる荷電粒子発生反応が重要となるにも関わらず、荷電粒子発生反応の断面積データは多くの核種において未整備な状態である。そこで本研究では新しい測定手法により荷電粒子発生反応の核データ整備に資する測定データを取得することを目的とする。

令和3年度は革新型原子炉開発で使われる構造材の断面積データの状況を調べ、測定対象核種及び反応を選定した。構造材の荷電粒子発生反応の断面積測定のための検出器を開発した。測定試料を添加したシンチレータを用いた測定手法を確立した。

令和4年度及び令和5年度は測定試料を添加したシンチレータを作製し、J-PARC/MLF施設において断面積測定を行った。

#### (2) 測定対象核種の選定【R3】

測定対象核種及び反応を選定するために革新型原子炉開発で用いられる構造材の断面積データの測定状況を調べた。具体的には、革新型原子炉のひとつ、熔融塩炉で用いられる構造材 F, Li, Be, K, Cl 及び小型炉のヒートパイプに用いられる Cu の (n, tot), (n,  $\gamma$ ), (n, p), (n,  $\alpha$ ) 反応について調査を行った。核データ測定データベース EXFOR に基づいて行った結果、表に示す核種及び反応について実験データが乏しいことが分かった。

表 3.1.2-1 測定データの乏しい核種・反応

	(n,tot)	(n, $\gamma$ )	(n,p)	(n, $\alpha$ )
<sup>39</sup> K	(3)-(5)	熱と keV 領域のみ (6)-(9)	2.5 MeV 以上のみ (10)-(16)	2.5 MeV 以上のみ (10)-(14),(17),(18)
<sup>41</sup> K	(3),(4),(19)	熱と keV 領域のみ (8),(20),(21)	Q < 0	Q < 0
<sup>35</sup> Cl	(22)	熱と keV 領域のみ (23),(24)	共鳴領域を広く測定しているのは 1 例のみ (25)	(26)-(29)
<sup>63</sup> Cu	(30)-(32)	(33)-(37)	主に MeV 領域のみ (38)-(41)	主に MeV 領域のみ (42)-(45)

<sup>39</sup>K は、全断面積 (n, tot) についてはこれまで 3 例の測定があり、(n,  $\gamma$ ) 反応に関しては熱領域と keV 領域の測定がある。一方、荷電粒子発生反応 (n, p), (n,  $\alpha$ ) については DT 中性子源や DD 中性子源を用いた MeV 領域の測定が主であり、中性子エネルギー 2.5MeV 以下での測定はなされていない。<sup>41</sup>K については (n, tot)、(n,  $\gamma$ ) は <sup>39</sup>K と同様の測定があ

る。(n, p), (n,  $\alpha$ )はQ値が負であるため閾エネルギー以下では反応が起きず今回の検討対象外である。 $^{35}\text{Cl}$ については、測定は少ないものの(n, tot), (n,  $\gamma$ ), (n, p), (n,  $\alpha$ )のそれぞれについての測定が存在する。 $^{63}\text{Cu}$ については、 $^{39}\text{K}$ と同様に(n, tot), (n,  $\gamma$ )共に少数ながら測定値は存在するものの(n, p), (n,  $\alpha$ )の測定値は MeV 領域より下では存在しない。本研究では特に荷電粒子発生反応の核データに着目していることから、以上の核種のうち  $^{39}\text{K}$  と  $^{63}\text{Cu}$  を本研究課題の測定対象核種とした。

ちなみに上記の測定状況を反映して  $^{39}\text{K}(n, \alpha)^{36}\text{Cl}$  反応と  $^{63}\text{Cu}(n, p)^{63}\text{Ni}$  反応の断面積評価値はかなり不完全なものとなっている。図 3.1.2-1 と図 3.1.2-2 に JENDL-5 の評価値を示す。荷電粒子発生断面積 (緑線) と比較のために捕獲断面積 (赤線) が示されている。捕獲反応には多数の共鳴があるが、荷電粒子発生反応には共鳴が全くない。これは、実際に共鳴がないのではなく、測定値がまったくないため共鳴パラメータの評価値を導入できないためである。したがって、少しでもこの状況を改善できる測定データが望まれる。

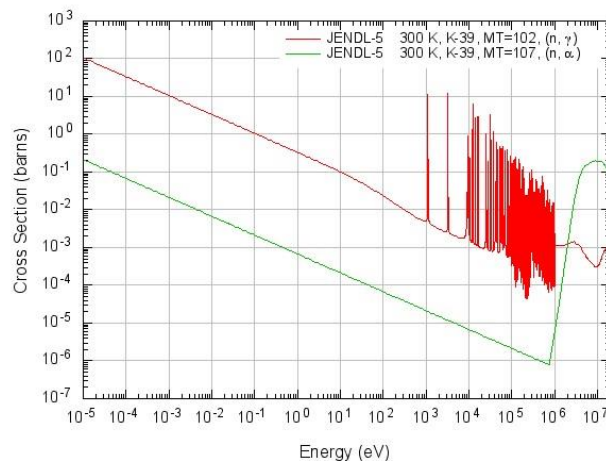


図 3.1.2-1  $^{39}\text{K}$  の中性子断面積 -  $^{39}\text{K}(n, \alpha)^{36}\text{Cl}$  (緑),  $^{39}\text{K}(n, \gamma)^{40}\text{K}$  (赤)

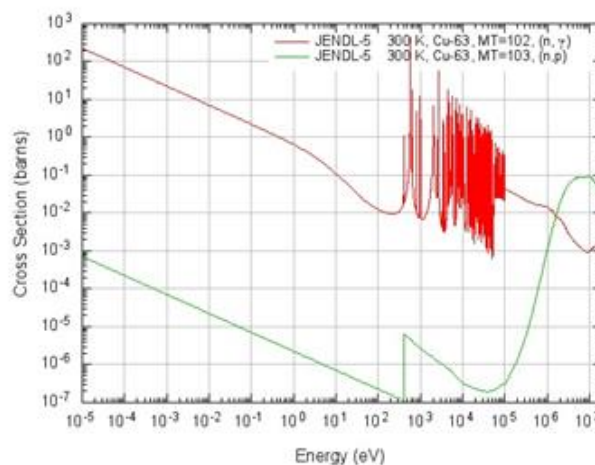


図 3.1.2-2  $^{63}\text{Cu}$  の中性子断面積 -  $^{63}\text{Cu}(n, p)^{63}\text{Ni}$  (緑),  $^{63}\text{Cu}(n, \gamma)^{64}\text{Cu}$  (赤)

### (3) 荷電粒子発生反応を測定するための試料添加型シンチレータの開発【R3】

荷電粒子放出反応の断面積データは全断面積や中性子捕獲断面積に比べると、多くの核種において未整備な状態であるが、その主な原因は従来測定手法で使用できる試料の物質質量が少なく、統計精度が十分でないことにある。従来手法では、真空槽内で中性子を照射した薄膜試料から放出される荷電粒子を半導体検出器等の荷電粒子検出器により測定する。荷電粒子の薄膜中でのエネルギー損失を抑えるため薄膜厚さが制限され試料物質質量を増やすことができない。そこで本研究では、従来法の課題を克服する新しい測定手法を開発する。開発する測定手法では、測定対象物質を検出器であるプラスチックシンチレータに添加し、測定試料と検出器を一体化する。これにより薄膜を用いた従来法に比べ、試料の物質質量を格段に増やすことができ、統計精度を上げることができる。

本研究で提案する新しい測定手法に基づいた検出器を開発するに当たり、克服すべき以下の4つの開発項目が挙げられる。

1. ベースとなるプラスチックシンチレータの選定
2. プラスチックシンチレータへの測定試料の添加方法の確立
3. 薄型シンチレータの製作方法の確立
4. 製作した試料添加シンチレータの動作実証

令和3年度において上記4つの開発項目を達成し、試料を添加した薄型シンチレータを作製した。

ベースとなるプラスチックシンチレータとして、九州大学の金らが開発したUV硬化樹脂を用いたプラスチックシンチレータを用いた。金らは3Dプリンタで用いられるUV硬化樹脂と発光剤、波長変換剤を混合し3Dプリンタで造形可能なプラスチックシンチレータを開発した<sup>(46), (47)</sup>。開発されたシンチレータは既存のプラスチックシンチレータと比べて性能に遜色のないことも示された。このシンチレータは、液状のシンチレータ材料を紫外線照射により硬化させるため、硬化前の液状シンチレータ材料に追加の物質を添加することが可能である。そこで本研究ではこのUV硬化型シンチレータをベースとなるシンチレータ材料として選択した。表 3.1.2-2 にUV硬化型シンチレータ材料の組成を示す。UV硬化樹脂として東亜合成製のM211B(ビスフェノールAEO変性ジアクリレート)を用いている。これにシンチレータとしての機能を付与するために発光剤としてPPO(2,5-Diphenyloxazole)を加えている。また、PPOからの発光光子の波長を光電子増倍管の量子効率の高い波長に変換するために波長変換剤 Bis-MSB(1,4-Bis(2-methylstyryl)benzene)を添加している。さらにUV照射により樹脂が重合反応を開始し硬化するための光開始剤として Irgacure TPO(2,4,6-trimethylbenzoyl-diphenyl phosphine oxide)が微量添加されている。

表 3.1.2-2 UV 硬化型シンチレータ材料の組成

	組成比	説明
M211B	79%	UV 硬化樹脂
PPO	21%	発光剤
Bis-MSB	0.10%	波長変換剤
Irgacure TPO	0.04%	光開始剤

次に試料の添加方法について検討した。まず、液状シンチレータ材料に溶解する試料化合物を選択し溶解することを考えた。液状シンチレータ材料の樹脂は疎水性であり、多くの親水性の無機化合物は溶解しない。フェニル基を持った疎水性の物質がよく溶解する。そこでフェニル基を持つ溶解する物質を選択し試験的に溶解を試みたところ 2 つの問題が明らかとなった。まず、フェニル基を持つため分子量が大きい割に 1 分子に対象元素の占める割合が小さい。そのため仮に溶解度が高くても化合物重量に占める対象元素の正味量が少なく、試料物質量をあまり大きくできないことが分かった。また、溶解後、紫外線照射によって樹脂の硬化を行ったところ、溶解量や溶解物質によっては樹脂が硬化しない場合があることが分かった。

以上のように試料を溶解させる場合、あまり多くの量を添加できないこと、また溶解条件によって樹脂が硬化しないことが分かった。そこで溶解とは異なる試料の添加方法を採用した。添加試料は必ずしもシンチレータに溶解している必要はなく、均一に分散していれば問題はない。そこで添加試料を液状シンチレータ中に均一に攪拌し、その懸濁液を紫外線照射により硬化し添加試料をシンチレータ中に均一に固定化することとした。この方法を用いることで溶解しない無機化合物でも添加可能になる。一般に無機化合物の方が一分子あたりの対象元素の割合は大きくシンチレータ中に添加できる物質の量を増やすことができる。また、試料の添加により液状シンチレータ材料の化学的性質は大きく変わらないので紫外線照射による硬化も支障はない。

令和 3 年度は試料を添加したシンチレータを製作し、実際に中性子を照射し動作実証を行うという観点から、添加物質としては中性子との反応がよくわかっている物質として、リチウム及びホウ素を添加してシンチレータを製作した。リチウムは  ${}^6\text{Li}(n, t){}^4\text{He}$  反応、ホウ素は  ${}^{10}\text{B}(n, \alpha){}^7\text{Li}$  反応により中性子とよく反応することが知られており、中性子検出器にもよく用いられている。添加する化合物としてリチウムは LiF、ホウ素はホウ酸  $\text{H}_3\text{BO}_3$  を選択した。LiF は、 ${}^6\text{Li}$  が同位体濃縮（濃縮度：95%）されている試料を用いた。試料は液状シンチレータ材料に添加する前にメノウ乳鉢でよく粉砕し粒度を細かくした。混合比は重量パーセントでシンチレータ材料の 5%とした。液状シンチレータ材料に添加後、マグネチックスターラで攪拌した。攪拌時には温度を 50~60°C に維持した。スターラ回転子を 500~1000 rpm で 30 分から 4 時間攪拌し、添加試料を均一に分散させた。

次にシンチレータを薄型に成形する方法を検討した。まず、3D プリントを用いてシンチレータを直接造形する方法を試みたが、安定して薄く製作できないことが明らかとなった。1 mm 程度の厚みでシンチレータを製作すると樹脂内の応力に不均一性があるため

か、硬化後、時間とともに変形することが分かった。そこで解決策として、シンチレータの形を決めるフレームを 3D プリンタで製作し、そこに液状シンチレータ材料を充填し、その後、紫外線照射により硬化する方法を考案した。考案したシンチレータの構造を 図 3.1.2-3(a) に示す。外径 40 mm、内径 30 mm のフレームを 3D プリンタ用の硬化樹脂で作製し、その内側にシンチレータを充填した。また、両面にマイラー膜を貼り、シンチレータを封入した。

製作手順を 図 3.1.2-3(b) に示す。まず、フレームの片側だけにマイラー膜を貼る。次にフレームとマイラー膜で形成された凹部分に液状シンチレータ材料を充填する。充填後、上面からマイラー膜を貼り封入する。その後、紫外線照射によりシンチレータを硬化する ( 図 3.1.2-4 )。紫外線は 10 分間照射した。製作したシンチレータの例を 図 3.1.2-5 に示す。

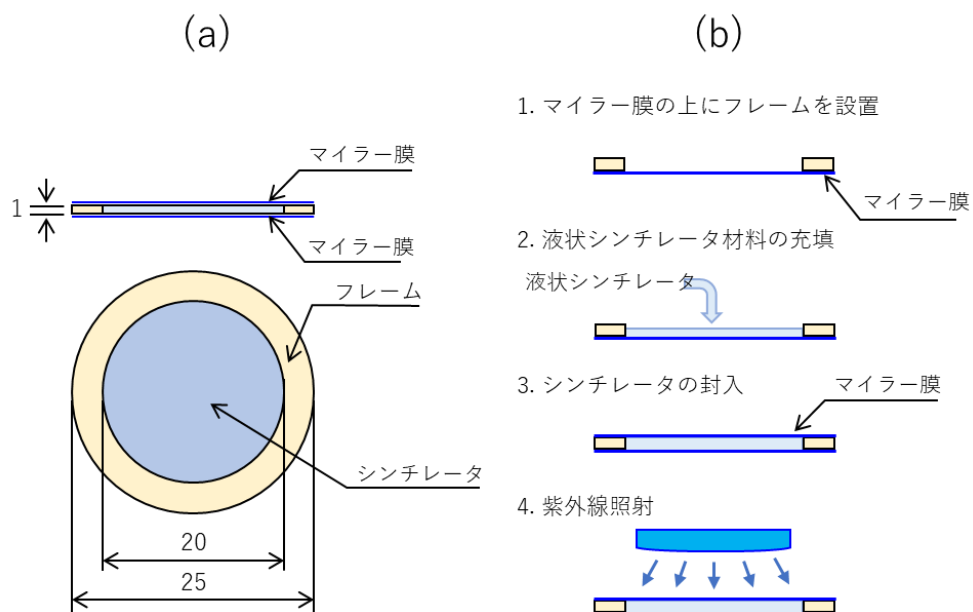


図 3.1.2-3 試料添加型シンチレータの形状と作製手順

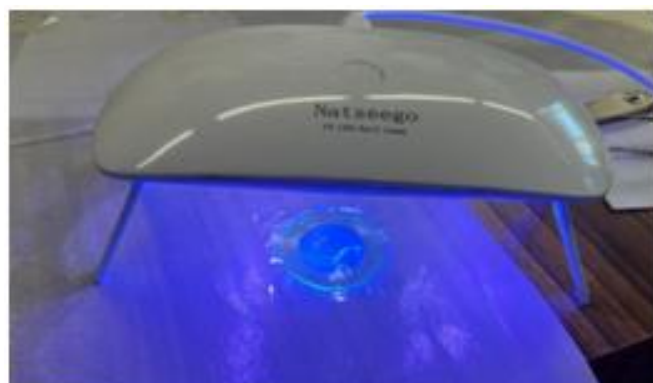


図 3.1.2-4 紫外線照射によるシンチレータの硬化の様子



図 3.1.2-5 製作したシンチレータ

製作したシンチレータを東京工業大学のペルトロン加速器で発生させた中性子を用いて試験した。シンチレータを光電子増倍管に接続し、中性子照射場に設置した。図 3.1.2-6 に実験セットアップを示す。中性子は、ペルトロン加速器からの陽子ビームをリチウムターゲットに入射させ、 ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$  反応により発生させた。陽子ビームのエネルギーは 1.902 MeV とし、 ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$  反応の閾エネルギー (1.880 MeV) より 22 keV 高い。このとき発生する中性子のエネルギーは 2~100 keV である。中性子源からは中性子以外に非弾性散乱  ${}^7\text{Li}(p, p'){}^7\text{Li}^*$  から 478 keV のガンマ線が発生する。そのためガンマ線バックグラウンドを低減するために厚み 5 cm の鉛ブロックを中性子源の直後に設置した。また、シンチレータでの反応率を上げるために厚み 1 cm のポリエチレン板をシンチレータ直前に設置し熱中性子成分を増やした。光電子増倍管からの信号は、前置増幅器、リニアアンプで波形整形した後、アナログデジタル変換器を通してデータ収集系に取り込み、波高スペクトルを記録した。試料を添加したシンチレータに加え、何も添加していないシンチレータも比較のために測定した。

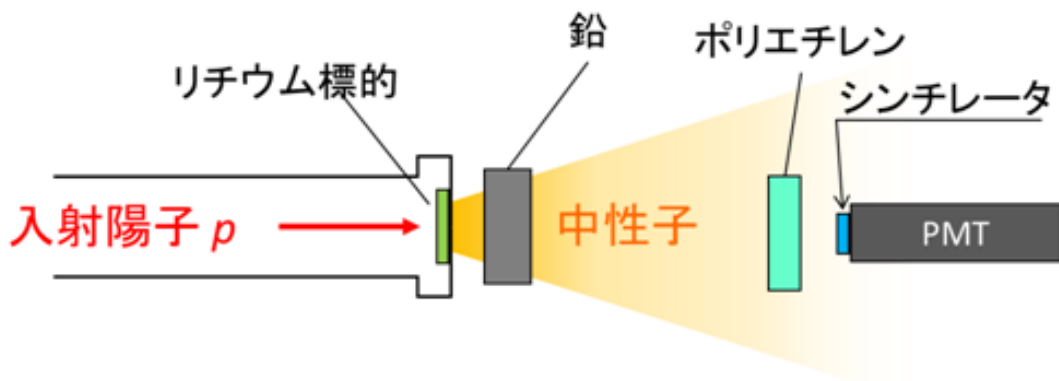


図 3.1.2-6 中性子照射試験のセットアップ



リチウムを添加したシンチレータの測定結果を図 3.1.2-7 に示す。リチウム添加シンチレータ（赤線）以外に無添加シンチレータ（青線）、中性子発生閾値以下での測定（黒線）、ビームなし（緑線）の結果を比較のために示す。中性子とリチウムの反応  ${}^6\text{Li}(n, t){}^4\text{He}$  は、無添加シンチレータの結果との差として 200-500 ch の領域に明瞭に観測された。中性子発生閾値以下での測定では、陽子ビームエネルギーを 1.875 keV に設定したため中性子は発生しないが、 ${}^7\text{Li}(p, p'){}^7\text{Li}^*$  反応からのガンマ線は発生する。この測定から、中性子源からのガンマ線バックグラウンドは主に 200 ch 以下の波高領域に分布することが分かった。照射後、陽子ビームなしの状態でも測定した場合にもイベントが観測されるが、これは放射化によるバックグラウンドと考えられる。

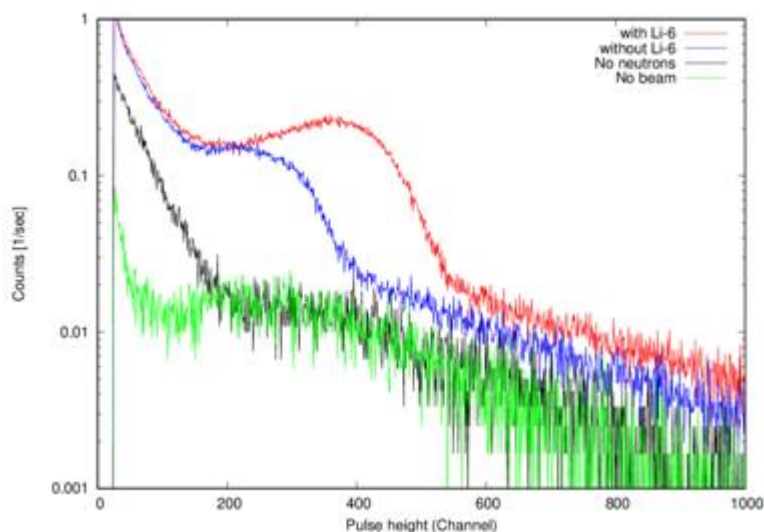


図 3.1.2-7 リチウム添加したシンチレータの波高スペクトル

#### (4) 試料添加型シンチレータを用いた断面積測定【R5】

実験は J-PARC の物質・生命科学実験施設 (MLF) の核破砕中性子源からのパルス中性子ビームを用いて行われた。試料を添加したシンチレータは、MLF/J-PARC の中性子ビームライン ANNRI で中性子が照射された。シンチレーション検出器は、中性子源から飛行距離 28.75 m の位置に設置された。入射した中性子のエネルギーは飛行時間法によって測定された。 ${}^{39}\text{K}(n, \alpha){}^{36}\text{Cl}$  測定用に KCl を添加したシンチレータを作製し測定に用いた。また、 ${}^{63}\text{Cu}(n, p){}^{63}\text{Ni}$  断面積測定用には銅-ニッケル合金（白銅）の金属箔をシンチレータ表面に接触させた。白銅を用いた理由は、無色の銅化合物がないこと、銅箔もシンチレーション光である青色の光を吸収してしまうことから、銀白色の白銅を用いた。

製作したシンチレータは (3) と同様の方法により東工大ペレトロン加速器で中性子を照射し試験した。令和 5 年度は特に照射による放射化バックグラウンドの測定に重点をおき試験を行った。中性子照射後のシンチレータの波高スペクトルをエラー！参照元が見つかりません。に示す。バックグラウンド測定と比較して計数の上昇は確認されたものの計数率は毎秒 0.1 カウントを下回っており、J-PARC における断面積測定においては問題とならない計数率であることが確認された。

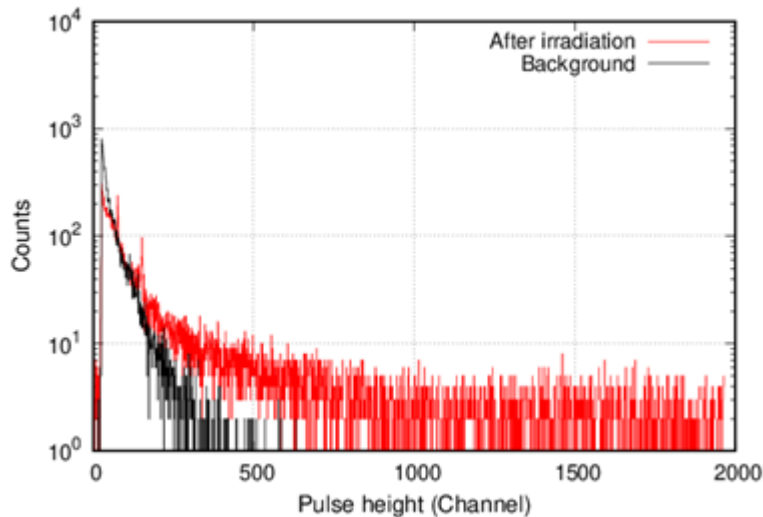


図 3.1.2-8 中性子照射後のシンチレータの波高スペクトル

また、波形弁別法により荷電粒子の識別を行った。有機シンチレータからの光出力の時間発展は、粒子の電荷と質量に依存することが知られている。重い粒子の光出力は、立ち下がり時間が長くなる。シンチレーション検出器の光電子増倍管からのアノード信号をデータ収集システム (CAEN V1720) に入力した。図 3.1.2-9 に示すように、ロングゲートとショートゲートという 2 つの異なるタイムゲートを設定し、信号の電荷積分を行った。前述したように重い粒子の光出力は、立ち下がり時間が長くなる。したがって、ロングゲートとショートゲートの電荷積分値  $Q_L, Q_S$  から計算される以下の式の値  $PSD$  を用いることで粒子の識別を行うことができる。

$$PSD = \frac{Q_L - Q_S}{Q_L}$$

実験結果のパルス波高と PSD の 2 次元プロットを図 3.1.2-10 に示す。 ${}^6\text{LiF}$  添加シンチレータと  $\text{B(OH)}_3$  添加シンチレータのプロットは、無添加シンチレータとは異なる領域で高いカウント数を示した。無添加シンチレータで観測されている主なイベントは  ${}^{14}\text{N}(n, p){}^{14}\text{C}$  反応からの陽子であると考えられる。陽子イベントの PSD は 0.14 から 0.24 の範囲である。一方、 ${}^6\text{LiF}$  添加シンチレータでは無添加の陽子とは異なる領域 ( $PSD=0.28-0.4$ ) で高カウントのイベントが観測された。このイベントは  ${}^6\text{Li}(n, t){}^4\text{He}$  反応による三重陽子に起因している。ホウ酸添加シンチレータの結果は、陽子イベントと一部重なるものの異なる形でイベントが観測された。波高は非常に小さい。このイベントは、 ${}^{10}\text{B}(n, \alpha){}^7\text{Li}$  反応によるアルファ粒子であると考えられる。

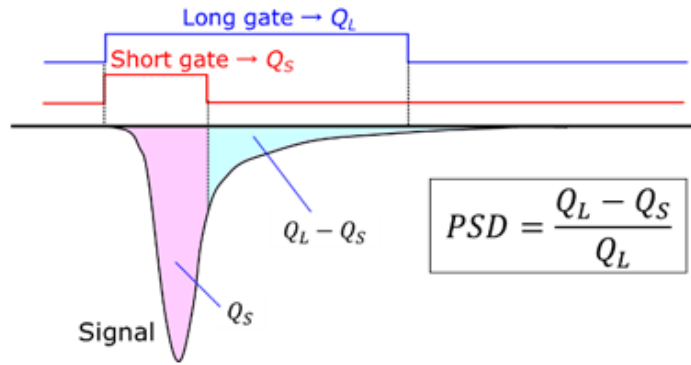


図 3.1.2-9 波形弁別のための電荷積分ゲートの設定

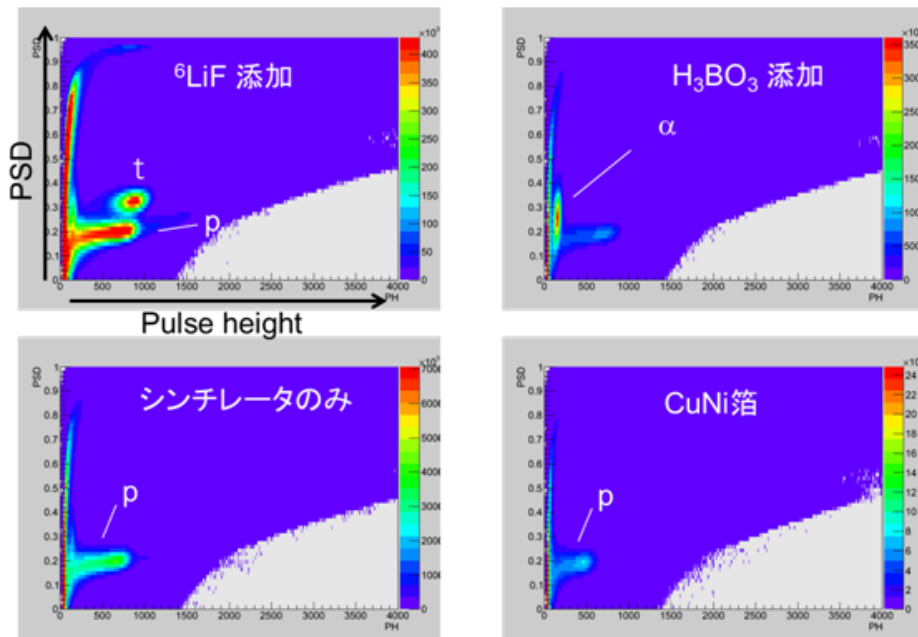


図 3.1.2-10 波高—波形弁別値 (PSD) の 2 次元プロット

$^{63}\text{Cu}(n, p)^{63}\text{Ni}$  断面積の導出のために白銅 (CuNi) の 2 次元プロット上の陽子の領域にゲートを設定し飛行時間スペクトルを導出した。その結果、 $^{63}\text{Cu}$  の第 1 共鳴 (579 eV) エネルギーへのピークが観測された。図 3.1.2-11 に飛行時間スペクトルを示す。95  $\mu\text{s}$  付近に観測されているピークが第 1 共鳴である。リチウム添加シンチレータ測定時の計数の比から、 $^6\text{Li}(n, t)^4\text{He}$  反応の断面積を基準として、共鳴ピーク面積を導出した。ただし、 $^{63}\text{Cu}(n, \gamma)^{64}\text{Cu}$  反応からの捕獲ガンマ線イベントの混入も考えられるため、別に行った  $^{197}\text{Au}$  の測定から捕獲ガンマ線に対する検出感度を算出し、予想される  $^{63}\text{Cu}(n, \gamma)^{64}\text{Cu}$  反応の寄与を計算した。その結果、観測されたピークの大部分のカウントは捕獲反応に起因するものであることが分かった。そこで観測された共鳴ピークの計数値から第 1 共鳴の共鳴ピーク面積の上限値を算出した。その結果を表 3.1.2-3 に示す、 $^{39}\text{K}(n, \alpha)^{36}\text{Cl}$  反応についても同様の解析により共鳴積分の上限値を算出した (表 3.1.2-3)。

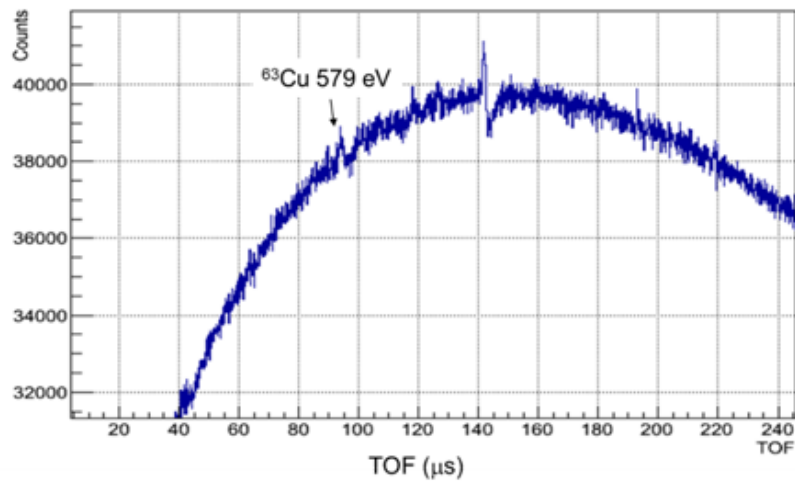


図 3.1.2-11  $^{63}\text{Cu}$  の陽子イベントの飛行時間スペクトル

表 3.1.2-3 飛行時間スペクトルから算出した共鳴の面積上限値

核種	共鳴エネルギー (keV)	共鳴ピーク面積上限値 (barn·eV)
$^{63}\text{Cu}$	0.579	0.53
$^{39}\text{K}$	1.11	0.55
$^{39}\text{K}$	9.37	0.53

#### (5) まとめ

革新型原子炉開発で使われる構造材の荷電粒子発生反応の断面積測定のための検出器を開発した。効率的に荷電粒子発生反応を測定するために試料を添加した薄いプラスチックシンチレータの作製方法を確立し、添加試料を加えたプラスチックシンチレータを製作した。作製した試料添加型シンチレータを用いて J-PARC/MLF 施設において測定を行い、 $^{63}\text{Cu}(n, p)^{63}\text{Ni}$  反応及び  $^{39}\text{K}(n, \alpha)^{36}\text{Cl}$  反応の共鳴面積上限値を算出した。

## 3.2 積分測定

### 3.2.1 熱中性子散乱則データ検証実験【R3-R5】

#### (1) 目的及び概要

本項目では、京都大学複合原子力科学研究所（KURNS-LINAC）のパルス中性子源を用いて、熱中性子散乱則データを検証するための積分実験を実施する。そこで、革新型原子炉の減速材候補に対して、体系内で形成される熱中性子スペクトルに関する積分データを取得することを目的とした。

令和3年度は、革新型原子炉開発の状況について情報収集を行い、測定対象とする材料を選定した。さらに、実験に用いる試料設置架台、サンプルホルダーを製作するとともに、TOF法を用いた検証実験の方法について検討し、予備試験を行った。

令和4年度は、実験装置の整備を行い、固体減速材の  $ZrH_2$ 、 $CaH_2$ 、及び  $H_2O$  に対して熱中性子散乱則データ検証実験を実施した。さらに、試料の特性を明らかにするための各種分析を実施した。

令和5年度は、固体減速材の実験及び詳細な解析を進めて最終結果を導出するとともに、減速材として利用される塩化物、フッ化物等について、KURNS-LINACを用いた熱中性子散乱則データ検証実験を実施した。さらに、試料の特性を明らかにするための各種分析を実施した。

#### (2) 革新型原子炉開発の状況に関する情報収集及び測定対象の選定【R3】

国内外の革新型原子炉開発状況に関して文献<sup>(48)</sup>、<sup>(49)</sup>による調査を行った。革新型原子炉は軽水炉、ナトリウム冷却高速炉、ガス炉、液体金属冷却高速炉、熔融塩炉、超臨界圧軽水炉等多岐に及ぶ。そのうち、軽水炉、ナトリウム冷却高速炉、ガス炉が、他の炉型よりやや開発が進んでいる傾向が見られる。許認可申請中のものは米国の NuScale と韓国の SMART であり、いずれも軽水炉型の SMR である。運転中の炉はロシアの実証炉である BN-800 と中国の研究炉である CEFR であり、いずれもナトリウム冷却高速炉である。熔融塩炉、超臨界圧軽水炉などは、その多くが概念設計段階にある。

熱中性子散乱則データの役割が大きいと思われる炉型として熔融塩炉と固体減速材を用いた SMR が想定されるので、両炉型での使用が検討されている減速材、冷却材について重点的に調査を行った。熔融塩炉で使用が検討されている燃料、塩、減速材の現状について文献<sup>(48)</sup>-<sup>(50)</sup>に基づき調査を行った。熔融塩としては、FLiBe、FNaBe、FLiNaK、NaCl 等のフッ素化合物、塩素化合物の使用が検討されている。減速材としては、黒鉛が最も有力な候補であるが、重水や水素化ジルコニウムを候補とする炉も存在する。燃料としては、固体燃料を用いる場合は TRISO 燃料あるいはペブルベッド型燃料が検討されている。液体燃料を用いる場合は  ${}^7LiF-NaF-KF-AF_3$ 、 $NaCl-KCl-ACl_3$ （ここで、A は核分裂性核種またはアクチニドを示す）のような燃料塩の使用が検討されている。このように熔融塩炉については多くの炉型・燃料塩が提唱されているものの、詳細設計は公開されていないものが多い。固体減速材を用いた SMR としては、東芝エネルギーシステムズ株式会社によって開発されている MoveLuX<sup>(51)</sup> と呼ばれる超小型炉、三菱 FBR システムズ株式会社

によって特許が出願されている可搬型原子炉<sup>(52)</sup>が挙げられる。MoveLuX では、低濃縮ウランで小型炉心を構成し、炉心からヒートパイプによって除熱することによって動的機器のない受動的除熱を行うこととし、原子炉容器内の圧力を低減させるために減速材は固体とし、減速能の高い水素化合物を用いることを検討している。固体減速材としては、 $\text{CaH}_2$ 、 $\text{ZrH}_2$ 、 $\text{LaH}_{2.76}$ 、 $\text{PrH}_{2.8}$ 、 $\text{YH}_2$ 、 $\text{YH}_{0.7}$ が候補として挙げられ、熱中性子吸収断面積、化学的安定性、高温での利用可能性、価格の合理性等の観点から水素化カルシウムを最終的な候補材として選定している。三菱 FBR システムズ株式会社の提唱する可搬型原子炉では、減速材には水素化ジルコニウム、反射材には金属ベリリウムが用いられ、燃料から発生した熱はヒートパイプによって除熱される。このように超小型炉では水素化カルシウム、水素化ジルコニウムが注目されており、水素化イットリウムも高温化で利用できる水素化物として注目されている。

革新型原子炉における減速材、冷却材の主要な候補材料に対する熱中性子散乱則データの整備状況についても調査を行った。令和3年12月にリリースされた最新の評価済核データライブラリ JENDL-5<sup>(53)</sup>への熱中性子散乱則データの収録状況を表 3.2.1-1 に示す。JENDL-5 では62元素(37材料)の熱中性子散乱則データが収録されており、そのうち17材料は ENDF-B/VIII.0<sup>(54)</sup>、4材料は JEFF-3.3<sup>(55)</sup>から採用され、残りの16材料については今回新たに評価された。特に、軽水と重水については分子動力学を用いて評価されている<sup>(56), (57)</sup>。原子炉級の黒鉛については、ポロシティ10%と30%に対して分子動力学に基づいて評価した最新の知見<sup>(58), (59)</sup>が反映されている。また、 $\text{YH}_2$ 、 $\text{ZrH}$ の水素化合物については JENDL-5.0 には収録されているが、 $\text{CaH}_2$ は未だ整備されていないのが現状である。

以上の調査結果から、熱中性子散乱則データの整備及び検証が必要と思われる材料として、以下の4つのカテゴリーの材料を選定した。

- 軽水：軽水炉ベースの SMR においても熱中性子散乱則データの重要性は高いため測定対象とする。
- 重水、黒鉛：熔融塩炉やその他の炉型でも減速材としての利用が検討されているため測定対象とする。
- 水素化合物：超小型炉での使用が検討されている水素化カルシウム、水素化ジルコニウムを測定対象とする。
- 熔融塩化合物：熔融塩炉での使用が検討されている材料のうち入手可能な  $\text{LiF}$ 、 $\text{NaCl}$  等のフッ化物、塩化物を測定対象とする。

本業務期間中においては、1年目に軽水、重水、2年目に水素化合物、3年目にフッ化物、塩化物、黒鉛を測定対象として検証実験を実施する方針を立案した。

表 3.2.1-1 主要な候補材に対する熱中性子散乱則データの JENDL-5 への収録状況

物質名	対象原子	温度 (K)	種別	引用元
H <sub>2</sub> O	H, O	270-800, 10K 刻み+296K	改訂	文献(56)
YH <sub>2</sub>	H, Y	293.6, 400, 500, 600, 700, 800, 1000, 1200, 1400, 1600	新規	ENDF/B-VIII.0
ZrH	H, Zr	296, 400, 500, 600, 700, 800, 1000, 1200	継続	JENDL-4.0
D <sub>2</sub> O	D, O	293.6, 350, 400, 450, 500, 550, 600	改訂	文献(57)
Graphite	C	296, 400, 500, 600, 800, 1000, 1200, 1600, 2000	改訂	ENDF/B-VIII.0

### (3) 試料設置架台の製作【R3】

熱中性子散乱則データの検証に適した体系を検討するための数値計算を実施し、KURNS-LINAC での実験に必要な試料設置架台、サンプルホルダーを製作した。

試料設置架台は中性子源として利用する Ta ターゲットを保持するための架台で、減速材容器、水冷ブロック、支持架台から構成される。減速材容器の材質は放射化低減の観点からアルミニウム合金を用いた。減速材容器側面には電子ビーム入射孔を設けることとし、ビーム入射方向に対して 90 度方向にもターゲット固定治具を挿入するための孔（ターゲット固定用孔）を設け、入射孔とターゲット固定用孔をつないだ L 字型の中空部分を設けた。減速材容器の内面は溶接によって接合し、内部を液体で満たしても漏れない構造とした。また、減速材容器下部には排水口を設け、容器内の軽水を容易に排水することができる構造とした。

### (4) 実験装置の整備【R4】

令和 3 年度の予備試験によって、水素化合物の熱中性子散乱則データの検証には、体系にパルス高速中性子を照射し、体系中で減速されて形成された熱中性子スペクトルを TOF 法により中性子検出器で測定する方法と、体系中の水素による中性子捕獲ガンマ線の発生タイミングをガンマ線検出器で測定する方法の有効性が示された。そこで、令和 4 年度はこれらの両者の測定を同時に行うために、MPA-4 (Multi-Parameter Analyzer) をデータ収集系として新たに整備することにより測定回路を構築した。

### (5) 測定試料の整備及び各種分析【R3-5】

#### ① 予備試験用サンプルホルダーの製作【R3】

令和 3 年度は、既存の昇温装置を用いて試料温度を制御するためのサンプルホルダーの製作を行った。昇温装置は 4 台のハロゲンヒータによって容器中心に置かれた試料を四方向から加熱するための装置であり、容器内は断熱性を高めるために真空に引くことができる。サンプルホルダーはステンレス製の円柱状容器であり、側面には直径 10 mm の中性子ビーム導入口を設けてある。サンプルホルダーには軽水または重水

をあらかじめ封入するものとし、容器の内面は溶接によって接合し、内部を液体で満たしても漏れない構造とした。サンプルホルダーには上蓋を設け、水密性を確保するために下容器との接合部には O リングを取り付けた。また、上蓋にはシース熱電対を通し、水密を確保した状態で容器内の液体温度を外部から測定可能とした。サンプルホルダーの内径は 70.7 mm, 83.5 mm, 95.6 mm の 3 種類とし、内径が 70.7 mm と 83.5 mm の容器には軽水を、内径が 95.6 mm の容器には重水を封入した。また、バックグラウンド評価のための空のサンプルホルダーも製作した。

## ② 水素化ジルコニウム、水素化カルシウム試料の整備及び分析【R4】

令和 4 年度は、検証実験に供する水素化ジルコニウム、水素化カルシウム試料を入手した。

ZrH<sub>2</sub> の場合、試料中に含まれる水素とハフニウムの含有量は中性子の輸送に大きな影響を与え、粒径の均一性も S( $\alpha$ ,  $\beta$ ) の評価に重要な要素であるため、ZrH<sub>2</sub> については同一ロッドから分取した分析用試料を用いて、ICP 発光分光分析と電子顕微鏡観察による分析を外注した。ICP 発光分光分析による結果は、Zr の含有率は 93.8 %、Hf の含有率は 1.7 %であった。本分析結果は、スペックシートの Hf を除いた Zr の含有率 95.5%、Hf の含有率 2.0 %を概ね支持した。このことから、スペックシートの値を計算に使用しても問題ないことを確認した。電子顕微鏡写真から最大の粒径は 20  $\mu$ m、大部分の粒子の粒径が 10  $\mu$ m 以下であることが分かるので、スペックシートの平均粒径 5.4  $\mu$ m の信頼性を確かめることができた。

ZrH<sub>2</sub> と CaH<sub>2</sub> は空気中の酸素と反応して発火しやすいため、粉末試料を封入する容器は気密性を保つ構造とし、封入作業はアルゴン雰囲気で行った。試料容器はフランジ面を直径 195 mm とし、試料が封入される領域が内径 60.5 mm、高さ 55 mm の円柱状になるように設計した。ZrH<sub>2</sub> 粉末をアルゴン雰囲気中で容器に封入したときの写真を図 3.2.1-1 に示す。封入した CaH<sub>2</sub> と ZrH<sub>2</sub> の重量はそれぞれ 150.0 g, 476.1 g であった。なお、容器の気密性を保つためにフランジ面にはメタル O リングを用いた。

## ③ 塩化物、フッ化物、黒鉛試料の整備及び分析【R5】

令和 5 年度は、検証実験に供する塩化物として NaCl、フッ化物としてテフロン、さらに黒鉛ブロックを入手した。

NaCl の粉末は直径 10 cm、高さ 10 cm の円筒形のアルミニウム容器内に封入したものを試料とした。テフロンは 10×10×2.5 cm の直方体の板を 4 枚組み合わせたものを試料とした。黒鉛は 1 辺 10 cm の立方体のブロックを 125 個入手し、一辺が 50 cm のパイルを作成した。中性子入射と散乱中性子取出しのために 4 個のブロックについては直径 5 cm の貫通孔を設けた。

黒鉛ブロックについては、熱中性子スペクトルの形成に影響する <sup>10</sup>B 不純物の含有量について ICP 発光分光分析を外注したところ、5 ppm 未満であることを確認した。さらに、黒鉛粉末を電子顕微鏡で観測するとともに粒度分布に関する分析を外注した。粒度分布の測定結果を図 3.2.1-2 に示す。平均粒度は 150  $\mu$ m であることが分かった。



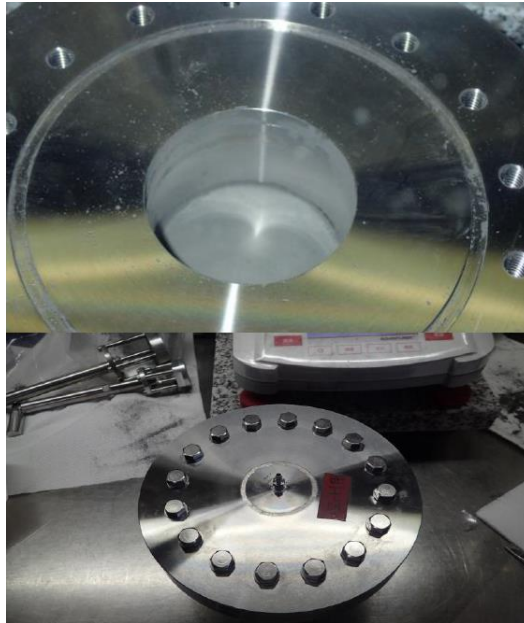


図 3.2.1-1 ZrH<sub>2</sub> 試料を容器に封入したときの写真  
(上が粉末充填時、下が粉末封入後)

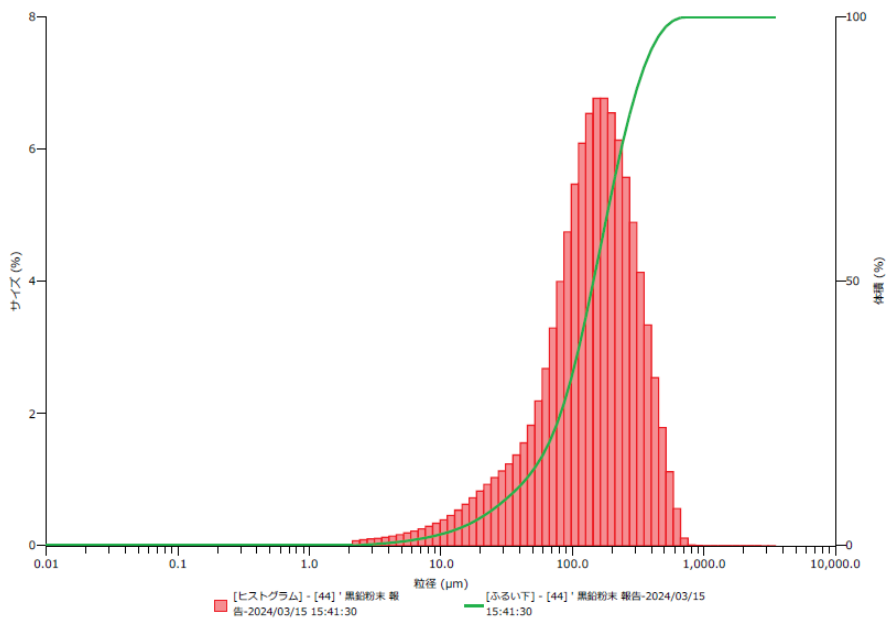


図 3.2.1-2 黒鉛試料の粒度分布測定の結果

## (6) 熱中性子散乱則データ検証実験【R3-5】

### ① 予備試験【R3】

熱中性子散乱則データを実験的に検証する手法の一つとして、対象材料から成る体系中心に高速中性子を入射し、体系内での中性子減速・吸収過程において形成される熱中性子スペクトルを TOF 法で測定し、 $S(\alpha, \beta)$  を含む評価済核データライブラリを用いた数値計算によって求めた熱中性子スペクトルと比較する方法が考えられる。測定法の概念を図 3.2.1-3 に示す。

KURNS-LINAC では水冷式タンタルアッセンブリを光核反応中性子源の標的に用いている。発生中性子のエネルギー分布は、1~2 MeV にピークをもった蒸発スペクトルで、核分裂反応のものに近い。したがって、図 3.2.1-3 の測定方法①のようにターゲットを取り囲むように対象物質を配置すれば、体系内で減速・吸収された中性子スペクトルを中性子飛行時間法 (TOF 法) によって直接測定することが可能である。ところが、加速器運転中のターゲット室は強放射線場になるため、昇温装置のような精密な機器を置くことはできない。そこで、代替手段として図 3.2.1-3 の測定方法②のような二段階 TOF 法の適用を検討する。すなわち、ターゲットで発生した高速中性子を遮へい壁で隔てた測定室まで真空に引かれた TOF 管を經由して導き、測定室に配置した体系に照射し、体系から漏れ出した中性子を測定する。TOF 測定で得られるのは電子ビーム発生時刻と中性子検出時刻の時間差情報になるが、高速中性子が体系に到達するまでの飛行時間が、体系内で減速された低速中性子が検出器に到達するまでの飛行時間に比べて十分短ければ、体系から発生した低速中性子を TOF 法で測定するのと同じ意味を持つ。ターゲットから測定室までの距離は約 12 m であるため、1 MeV の中性子の飛行時間は約  $0.9 \mu\text{s}$  になる。一方、体系から中性子検出器までの距離を 0.4 m とすると、0.0253 eV の熱中性子の飛行時間は約  $575 \mu\text{s}$  であることから高速中性子の飛行時間は十分短いため、二段階 TOF 法による減速中性子の識別は可能であると考えた。

令和 3 年度は測定手法を確立するために、軽水、重水を用いた予備試験を行った。昇温装置内に軽水または重水の入ったサンプルホルダーをコリメートされた中性子ビームの軸上に合わせて設置した。サンプルホルダーの両側には  ${}^6\text{Li}$  が 95 % 同位体濃縮された GS-20 というタイプの  ${}^6\text{Li}$ -glass 検出器と 2 インチ  $\phi$   $\times$  2 インチの BGO 検出器を配置した。サンプル中心から検出器表面までの距離は、それぞれ 390 mm と 190 mm とした。

軽水については室温 (約  $10^\circ\text{C}$ ) と  $80^\circ\text{C}$  まで昇温させた場合の測定をそれぞれ約 10 時間行った。重水の測定は室温で約 11 時間行った。バックグラウンドを決定するための空のサンプルホルダーの測定は常温で約 13 時間行った。

軽水については、 ${}^6\text{Li}$ -glass 検出器での測定では体系内で減速されて形成された熱平衡のピークを観測することができた。BGO 検出器での測定では、中性子が吸収されるときに発生する 2.2MeV の捕獲ガンマ線の時間分布を測定することで、体系内で中性子が消滅するまでの時間分布 (以下、「中性子消滅時間分布」という) が得られることが分かった。また、温度を上昇させたときの中性子スペクトルや中性子消滅時間分布の違いを観測することができた。重水については、軽水のように明確な熱平衡ピークを観測することはできなかった。

熱平衡ピークの形状や中性子消滅時間分布が熱中性子散乱則データによって変化する物理量であるため、十分体系内で減速させることが可能な水素化物に対しては、二段階 TOF 法にて熱中性子スペクトル測定及び即発ガンマ線測定を組み合わせる方法が有効であることが分かった。

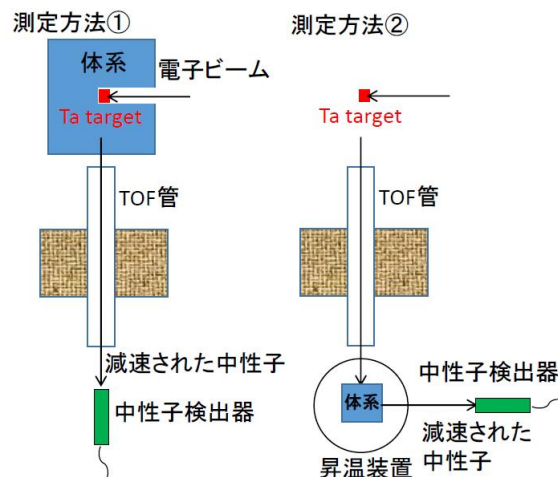


図 3.2.1-3 熱中性子散乱則データ検証のための測定法の概念図

## ② 水素化合物の実験【R4-R5】

### 1) 実験

【R4】令和4年度は水素化合物として  $ZrH_2$ 、 $CaH_2$ 、軽水に対する熱中性子散乱則データ検証実験を行った。KURNS-LINACの運転条件は、電子の加速エネルギーを約30 MeV、パルス幅100 ns、平均ビーム電流約70  $\mu A$ 、繰り返し周波数は200 Hzとした。低エネルギー中性子のオーバーラップを防ぐために、ビーム上流側には厚さ0.5 mmのCdフィルターを常に挿入した状態で測定を行った。

【R5】令和5年度は  $ZrH_2$ 、 $CaH_2$ の測定のSN比を向上させるため、ビーム電流を増強し、サンプルホルダー中心から ${}^6Li$ -glass検出器表面までの距離を390 mmから300 mmに近づけて再実験を行った。再実験におけるKURNS-LINACの運転条件は、電子の加速エネルギーを約30 MeV、パルス幅5  $\mu s$ 、平均ビーム電流約110  $\mu A$ 、繰り返し周波数は50 Hzとした。実施した測定項目は以下のとおりである。 $ZrH_2$ 、 $CaH_2$ に対して、容器の周りに厚さ0.5 mmのCdシートを巻いた場合と巻かない場合の測定を各6時間行った。再実験のときのサンプルホルダー周辺の様子を図3.2.1-4に示す。

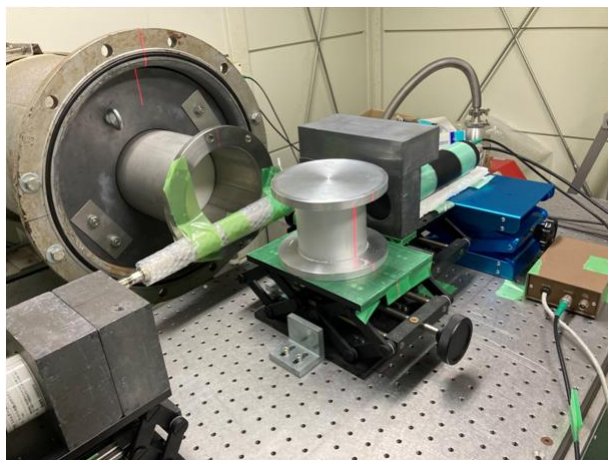


図 3.2.1-4  $ZrH_2$  試料容器の側面にCdシートを巻いた時の写真

## 2) 計算

【R4】令和4年度は、モンテカルロシミュレーションコード MCNP-6.3 を用いて、<sup>6</sup>Li-glass 検出器内での (n,  $\alpha$ ) 反応事象と BGO 検出器に水素の中性子捕獲ガンマ線エネルギーである 2.2 MeV のエネルギーが付与される事象の時間分布を計算した。令和3年度に評価したターゲットアッセンブリからの中性子エネルギーをソースタームとして用いた。中性子は試料中心から 50 cm 上流で直径 30 mm の平行ビームとして発生させた。試料、検出器、遮蔽体、実験台の形状は忠実に実験体系を再現した。

軽水の計算では JENDL-4.0<sup>(61)</sup>、JENDL-5<sup>(53)</sup> の評価済核データライブラリを用いて  $S(\alpha, \beta)$  を考慮した計算を行い、JENDL-5 についてはフリーガスモデルに基づいた計算も行った。

【R5】令和5年度は、ZrH<sub>2</sub> と CaH<sub>2</sub> の再実験の条件に合わせて、令和4年度と同様な手法で再計算を行った。

ZrH<sub>2</sub> の計算では、JENDL-4.0、JENDL-5 を用いて  $S(\alpha, \beta)$  を考慮した計算とフリーガスモデルに基づいた計算を行った。

CaH<sub>2</sub> の計算では、JENDL-4.0、JENDL-5 には  $S(\alpha, \beta)$  データが収納されていないので、本研究において新たに整備した  $S(\alpha, \beta)$  (3.3.2 節参照) 及び JEFF-3.3<sup>(65)</sup> に収録された  $S(\alpha, \beta)$  を用いた計算とフリーガスモデルに基づいた計算を行った。

ZrH<sub>2</sub>、CaH<sub>2</sub> の計算では、体系で熱化された中性子成分を際立たせるために、容器側面を Cd シートで巻いた測定も行っている。そこで、両試料については容器側面を Cd シートで巻いた場合についても計算を行った。

## 3) 結果と考察

軽水については、空容器(Dummy)に対して得られた TOF スペクトルを用いてバックグラウンドを引き去った後の正味の TOF スペクトルと計算で評価した TOF スペクトルの比較を行った。

<sup>6</sup>Li-glass 検出器を用いて得られた実験値と計算値の比較を図 3.2.1-5 に示す。比較のために熱中中性子のピーク付近において実験値と JENDL-5 の  $S(\alpha, \beta)$  を考慮した計算値が一致するように実験値を規格化している。図 3.2.1-5 を見ると、フリーガスモデルによる計算では熱中中性子ピークの高さが  $S(\alpha, \beta)$  を考慮した場合に比べて2倍以上大きくなっていることが分かる。一方、熱中中性子ピークよりも右側、すなわち低エネルギー側のテールの部分では、実験値は  $S(\alpha, \beta)$  を考慮した計算値と良い一致を示した。JENDL-4.0 と JENDL-5 のライブラリ間の差は計算値で中性子飛行時間 200  $\mu$ s 近傍の熱中中性子バンプの高さに僅かに観測されたが、実験結果は JENDL-5 を用いた計算結果を支持する傾向が見られた。100~200  $\mu$ s の領域では計算値が実験値を過小に評価する傾向が見られた。40  $\mu$ s 以下の領域では、計算値が不自然な減少が見られた。軽水の正味のスペクトルは他の試料のように Cd の有無の差から正味の熱中中性子スペクトルを抽出しているわけではないので、熱外中中性子領域では中性子エネルギーに反比例した 1/E 減速スペクトルに近い形状となることが予測される。TOF 法では中性子

飛行時間  $T$  と中性子エネルギー  $E$  の関係は  $E \propto 1/T^2$  になることから、 $dT$  を一定として TOF スペクトルをプロットした場合、スペクトルは  $dT/T$  に比例した形状になると予測されるため、TOF の増加と共に計数率は減少するはずである。このことから熱外中性子領域の計算値には何らかのバイアスがあるものと考察した。

次に、軽水に対する 2.2 MeV ガンマ線発生時の正味の時間スペクトルの計算と実験の比較を図 3.2.1-6 に示す。フリーガスモデルに基づいた計算値に比べて、 $S(\alpha, \beta)$  を用いた計算値の方がより実験値に近づく傾向が見られた。時間スペクトルの高チャンネル側は良い一致を示しているが、100~500  $\mu\text{s}$  の時間領域において、実験値と計算値の間に形状の差異が見られた。また、JENDL-4.0 と JENDL-5 のライブラリ間の差は計算値でも見られなかった。

ZrH<sub>2</sub>、CaH<sub>2</sub> については、Cd カバーの有無による差分を正味の熱中性子スペクトルとみなして実験値とした。計算においても同様に Cd カバーの有無による差分を計算値とした。ZrH<sub>2</sub> に対する実験値と計算値の比較を図 3.2.1-7 に示す。実験値が約 50  $\mu\text{s}$  以下で急激に小さくなっているのは、再実験でビーム増強を図ったことによりガンマフラッシュの影響が大きくなり数え落としたためであると考えられる。フリーガスモデルでは見られなかった熱平衡ピークが  $S(\alpha, \beta)$  を考慮した計算では約 70  $\mu\text{s}$  の位置に観測されているのに対し、実験値では約 75  $\mu\text{s}$  の位置に観測された。ピークの位置が約 10%ずれて観測されたが、計算で予測した熱中性子スペクトルの形状は概ね再現していることを確認できた。

CaH<sub>2</sub> に対する実験値と計算値の比較を図 3.2.1-8 に示す。CaH<sub>2</sub> に対する計算値では  $S(\alpha, \beta)$  を考慮した場合とフリーガスモデルに基づいた場合の間にほとんど差は見られなかった。本研究で新たに導出した  $S(\alpha, \beta)$  を用いた場合と JEFF-3.3 の  $S(\alpha, \beta)$  を用いた場合ではほとんど差が見られなかった。実験値では 90  $\mu\text{s}$  以上の領域で計算値を上回る結果となっているが、熱平衡ピークが現れる 50~90  $\mu\text{s}$  の領域では評価値を用いた計算値を良く再現した。

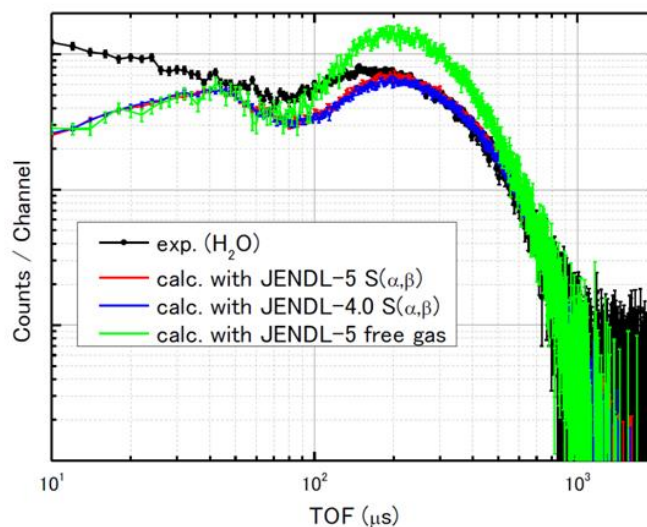


図 3.2.1-5 軽水に対する正味の中性子 TOF スペクトルの実験値と計算値の比較

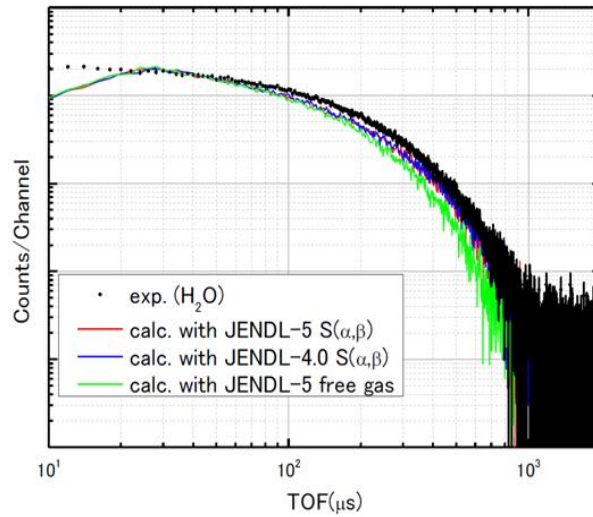


図 3.2.1-6 軽水に対する 2.2MeV ガンマ線発生時の正味の時間スペクトルの計算と実験の比較

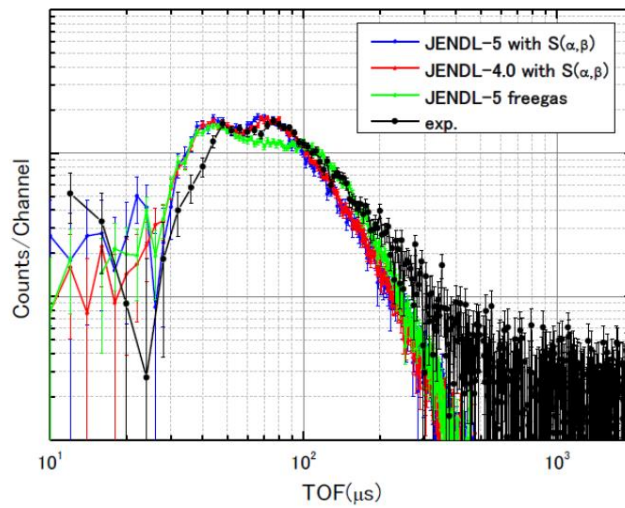


図 3.2.1-7 ZrH<sub>2</sub>に対する正味の中性子 TOF スペクトルの実験値と計算値の比較

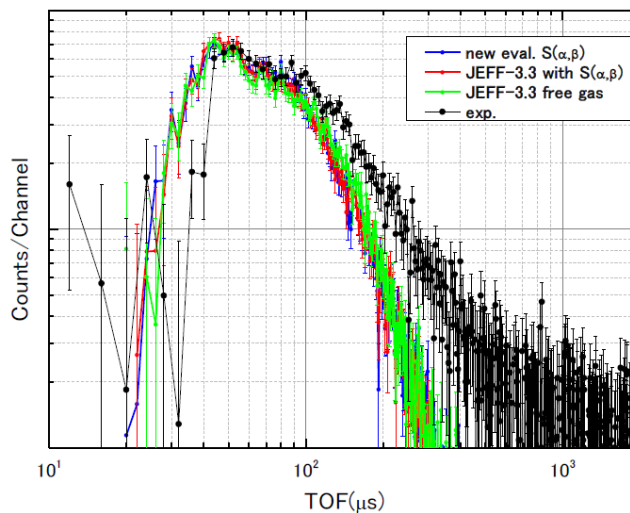


図 3.2.1-8 CaH<sub>2</sub>に対する正味の中性子 TOF スペクトルの実験値と計算値の比較



### ③ 塩化物、フッ化物、黒鉛の実験【R5】

令和5年度は、塩化物としてNaCl、フッ化物としてテフロンに対する検証実験を実施した。これまでの水素化合物の場合とは異なり、これらの材料は減速能が小さいため、これまでのように体系内で中性子を熱平衡状態にするのは困難である。そこで、熱中性子散乱則データの検証法として最近注目されている PNDA (Pulsed Neutron Die-Away) 法<sup>(62)</sup>を参考に、対象とする材料を黒鉛反射体で取り囲んで、中性子の減速を促進させる手法を採用した。

一辺が 10 cm の立方体の 125 個の黒鉛ブロックを用いて、一辺が 50 cm の黒鉛パイルを構築した。ただし、中性子ビームが入射する方向と散乱中性子を取り出す方向には直径 5 cm の貫通孔の空いた黒鉛ブロックを用いた。試料を設置する場合は、中心の黒鉛ブロックを試料に置換した。<sup>6</sup>Li-glass 検出器は、検出器表面が黒鉛パイル中心から 30 cm (黒鉛パイル表面からは 5 cm) の位置に配置した。また、<sup>6</sup>Li-glass 検出器の前面の黒鉛パイルの散乱中性子取出口の前には厚さ 0.5 mm の Cd シートを張り付けられるようにし、Cd シートの有無の測定の差分を取ることで、黒鉛パイル中で熱化された中性子の時間分布を実験的に求められるようにした。この差分のことを正味の中性子 TOF スペクトルという。構築した黒鉛パイルの様子を図 3.2.1-9 に示す。

実験は中心に黒鉛ブロックを置いた場合、NaCl 粉末を充填した円筒形アルミニウム容器 (直径 10 cm、高さ 10 cm) を置いた場合、4 枚のテフロン (10×10×2.5 cm) を置いた場合のそれぞれについて、Cd シートの有無の測定を行った。KURNS-LINAC の運転条件は、電子の加速エネルギーを約 30 MeV、パルス幅 5  $\mu$ s、平均ビーム電流約 110  $\mu$ A、繰り返し周波数は 50 Hz とした。

PHITS コード<sup>(63)</sup>を用いて、<sup>6</sup>Li-glass 検出器内での (n,  $\alpha$ ) 反応事象の時間分布を計算した。令和3年度に評価したターゲットアセンブリからの中性子エネルギーをソースタームとして用いた。中性子は黒鉛パイル中心から 30 cm 上流で直径 3 cm の平行ビームとして発生させた。核データには JENDL-5<sup>(53)</sup>の評価済核データライブラリを用いた。

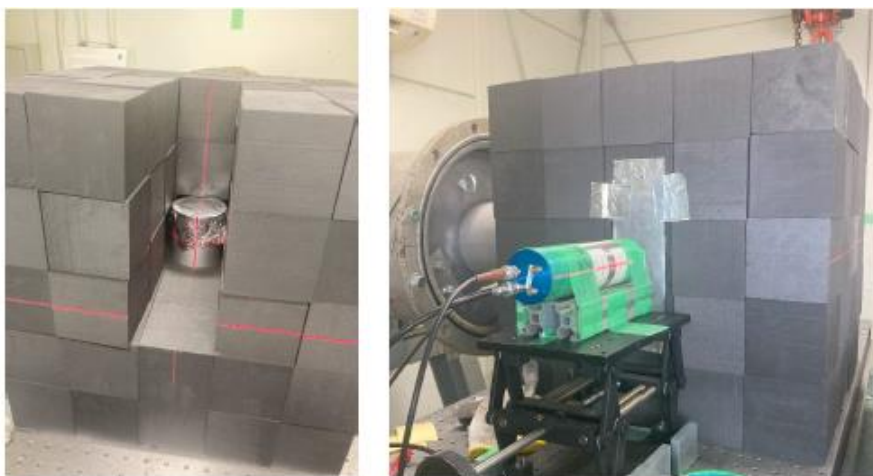


図 3.2.1-9 構築した黒鉛パイルの様子

黒鉛試料に対して得られた正味の中性子 TOF スペクトルの実験値と計算値の比較を図 3.2.1-10 示す。100  $\mu\text{s}$  以下の領域で実験値が急激に小さくなっているのは、ガンマフラッシュの影響に拠る数え落としと考えられる。また、2 ms 以上の領域で実験値に構造が見られるのは、中性子源からの元々の熱中性子成分が引き切れずに観測された物であると考えられる。体系中で熱平衡に達して形成される 0.1~1 ms の領域の形状については、実験値は計算値を良く再現していることが分かった。このことから、JENDL-5 に収納されている黒鉛の熱中性子散乱則データの妥当性が検証された。

次に黒鉛パイル中心部の黒鉛ブロックをテフロンまたは NaCl 試料に置き換えた場合の正味の中性子 TOF スペクトルの実験値と計算値の比較を、図 3.2.1-11、図 3.2.1-12 に示す。

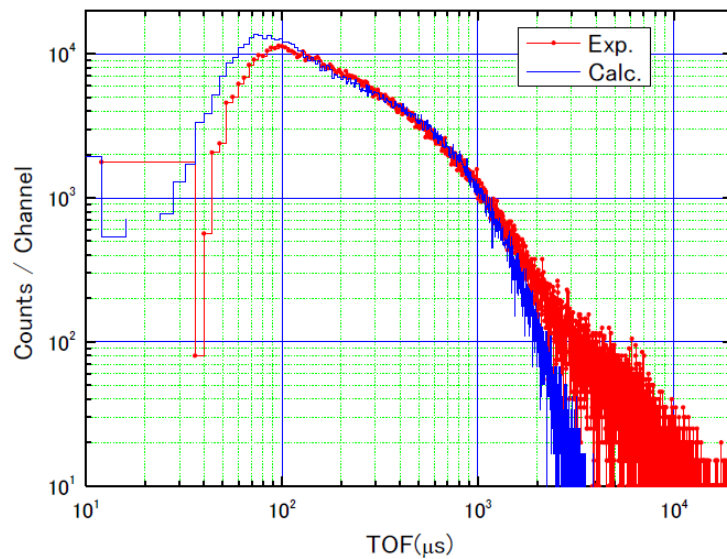


図 3.2.1-10 黒鉛に対する正味の中性子 TOF スペクトルの実験値と計算値の比較

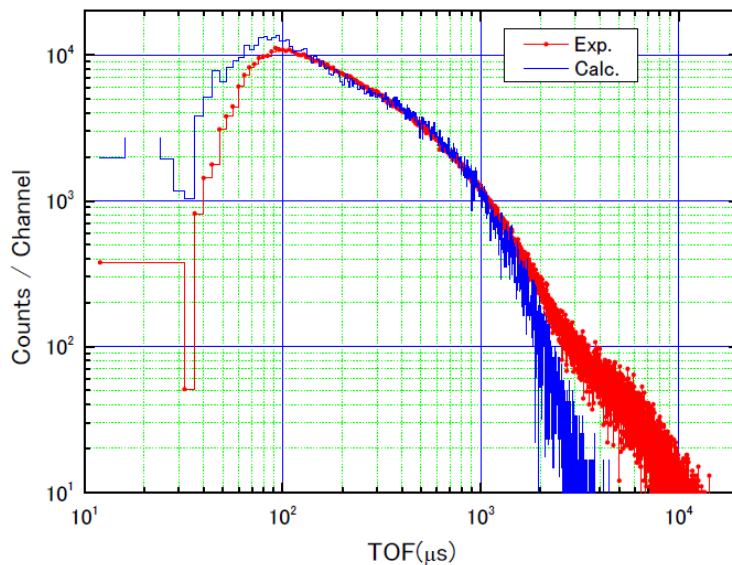


図 3.2.1-11 テフロンに対する正味の中性子 TOF スペクトルの実験値と計算値の比較



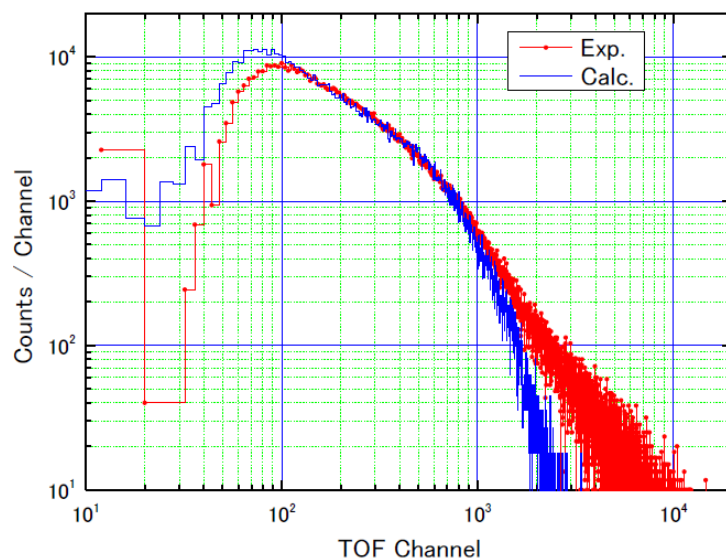


図 3.2.1-12 NaCl に対する正味の中性子 TOF スペクトルの実験値と計算値の比較

テフロンに対する正味の中性子 TOF スペクトルは黒鉛のものとはほぼ同じ形状となっており、NaCl に対しては黒鉛やテフロンに比べてスペクトルの形状が高エネルギー側 (TOF が短い側) にシフトしていることが分かる。このことは NaCl の寄与が正味の中性子 TOF スペクトルの形状に反映されていることを示している。どちらのスペクトルも 0.1~1 ms の領域では実験値は計算値を良く再現していることが確認された。このことから、JENDL-5 に収録されている Na 及び Cl の断面積については、本積分実験の条件においては妥当であることが確認された。このように、水素化合物以外の材料を扱う場合は、黒鉛パイルと組み合わせて断面積の検証を行う手法が有効であることが示された。

## (7) まとめ

熱中性子散乱則データを検証するために、二段階 TOF 法を用いた体系内で形成された熱中性子スペクトルの形状を測定する手法を検討した。予備試験の結果、水素化合物の測定では体系中で中性子が捕獲される際に発生する 2 次ガンマ線の時間分布測定も組み合わせる手法が有効であることが分かった。また、軽水については昇温試験を行ったところ、中性子スペクトルの形状の変化を観測できた。

軽水及び革新型原子炉で減速材として使用が検討されている水素化合物 ( $ZrH_2$ ,  $CaH_2$ ) について熱中性子散乱則データ検証実験を行った。その結果、JENDL-5 に収録されている軽水、水素化ジルコニウム中の水素の熱中性子散乱則データの妥当性を検証することができた。水素化カルシウムについては本研究で整備した新たな熱中性子散乱則データを用いた計算結果は JEFF-3.3 を用いた場合と比べて大きな違いはなく、熱平衡ピーク近傍の中性子スペクトルの形状を実験値は良く再現することを確認した。黒鉛、フッ化物、塩化物については黒鉛パイルを用いた新たな手法を適用し、JENDL-5 に収録されている断面積データの妥当性を検証することができた。

### 3.2.2 研究用原子炉を用いた試料反応度測定（再委託先：近畿大学）【R3-R5】

#### (1) データ収集系構築及び予備実験【R3】

近畿大学原子炉（UTR-KINKI）を用いた試料反応度測定に関し、時系列データ測定による逆動特性解析手法を導入するためにデータ収集系及び解析システムを構築した。更に、標準試料として軽水を用いた予備実験を実施し整備したデータ収集系及び解析システムの妥当性確認を実施した。実験結果は事前に実施した予備計算と誤差範囲内で一致し、解析モデルの妥当性を確認した。更に令和4年度に用いる温度コントロール機能付き試料容器の設計を行った。

#### (2) UTR-KINKI を用いた試料反応度測定【R4-R5】

##### ① $\text{CaH}_2$ 及び $\text{ZrH}_2$ の試料反応度測定及び数値解析【R4】

本実験は UTR-KINKI の中央ストリンガーを使用して実施した。水素化カルシウム ( $\text{CaH}_2$ ) 試料は異なる重量の2種類を準備した (164.49 g と 76.42 g)。これらの  $\text{CaH}_2$  試料を SUS304 製試料容器に封入し中央ストリンガーの炉心高さ方向中心位置に設置し試料反応度を測定した。得られた試料反応度はそれぞれ、 $-32.20 \pm 0.75$  pcm (164.39 g 試料) と  $-13.19 \pm 1.68$  pcm (76.42 g 試料) であった。数値解析は MVP3<sup>(64)</sup> と JEFF-3.1<sup>(65)</sup> を用いて実施した (尚、試料以外の構造材等は JENDL-4.0<sup>(61)</sup> を使用した)。164.39 g 試料に対する解析値の C/E は  $0.894 \pm 0.100$  であった。また、76.42 g 試料の解析値の C/E は  $0.874 \pm 0.257$  であった。

$\text{ZrH}_2$  実験は  $\text{CaH}_2$  実験と同様に試料を充填した SUS304 製試料容器を UTR-KINKI の中央ストリンガーに設置し試料反応度を測定した。用いた  $\text{ZrH}_2$  試料の重量は 237.81 g であった。今回得られた試料反応度は  $-30.95 \pm 1.22$  pcm であった。また、数値解析の結果、JENDL-4.0 を用いた場合の C/E は  $0.995 \pm 0.103$ 、JENDL-5<sup>(53)</sup> の場合は  $1.091 \pm 0.103$  であった。

##### ② 軽水及び NaCl の試料反応度測定及び数値解析【R5】

###### 1) 各試料に関する事前解析

令和5年度の反応度測定の試料は塩化物、フッ化物等とした。実験実施前に事前解析を行い得られる試料反応度を予測した。これは試料反応度が UTR-KINKI の核的制限値を満足することを確認する共に、炉心に設置する試料量及び試料容器設計を行う上で重要な解析である。塩化物は NaCl、フッ化物はテフロンを想定し、MVP3 と JENDL-5 を用いて事前解析を実施した。結果を表 3.2.2-1 に示す。NaCl については重量と試料反応度が比例関係にあり且つ 50 g 程度の重量であれば十分に試料反応度測定が可能であることが分かった。一方、テフロンであるが 100 g 試料の場合、約 2 pcm の正の反応度、200 g 試料の場合は約 3 pcm の負の反応度、300 g の場合は約 2 pcm の負の反応度となった。試料重量と試料反応度に比例関係は無く、また、100 g 試料についてモンテカルロ計算の初期乱数を変更した場合、約 1 pcm の負の反応度が得られた。即ち、UTR-KINKI でのフッ化物の試料反応度はゼロ反応度と予測された。一方、これまでの知

見から UTR-KINKI における試料反応度の実験誤差は最大数 pcm 程度見込まれることから相対実験誤差が 100 % を超える可能性があり、実験誤差の低減に対して大きな労力及び工夫が必要であることが明らかとなった。しかしながら、ゼロ反応度についてはこれまでの炉物理実験では無視されがちな事項であるが、実験値としてゼロ反応度が得られることは断面積の積分検証として重要な知見となる。従ってゼロ反応度についての研究は今後の検討課題にあげられる。

数値計算値についてもモンテカルロ計算コードを使用する場合は統計誤差が大きな数値となり C/E 値が意味を成さないことが示された。従って、本研究ではフッ化物の試料反応度測定代わりに軽水試料の試料反応度測定を実施した。

表 3.2.2-1 塩化物とフッ化物の試料反応度事前計算結果

塩化物 (NaCl)		フッ化物 (テフロン)	
試料重量 (g)	試料反応度 (pcm)	試料重量 (g)	試料反応度 (pcm)
20	27.7 ± 4.1	100	1.8 ± 4.0
30	41.7 ± 4.0	200	-3.3 ± 4.1
40	55.5 ± 3.9	300	2.2 ± 3.9
50	69.3 ± 4.0	100 (初期乱数変更)	-0.9 ± 4.0

## 2) 試料反応度測定

令和 6 年 1 月 25 日、26 日に UTR-KINKI において試料反応度測定を実施した。試料は事前解析の結果より、軽水及び塩化物 (NaCl) とした。表 3.2.2-2 に試料情報を示す。重量ごとに 3 種類の試料を準備した。また、別に Blank 試料として Al のみの試料 (中空ではない) を準備した。これらの試料を図 3.2.2-1 または図 3.2.2-2 に示すアルミ製試料容器に封入し、UTR-KINKI の中央ストリンガーに設置した。ここで、鉛直方向の試料中心が炉心中央となるように調整した。

本研究での測定される試料反応度は試料を設置した場合と Blank 試料を設置した場合の余剰反応度差で定義され、その余剰反応度は逆動特性解析法を用いて測定した。逆動特性解析法は炉心内に設置した中性子検出器からの時系列データに対し一点炉近似原子炉動特性方程式から導かれる以下の式をフィッティングして反応度を得るため高精度な測定が可能である。

$$N(t) = -\frac{\Lambda}{\rho - \beta_{eff}} Q(t) \quad (3.2.2.1)$$

ここで、

$$Q(t) = \sum_{i=1}^6 \lambda_i C_i = \sum_{i=1}^6 \left( \frac{1}{1 + C_i(t)\Delta t} \right) \left( \frac{\beta_i}{\lambda_i \Lambda} N_0 + \frac{\beta_i \Delta t}{\Lambda} N(t) \right) \quad (3.2.2.2)$$

上式中の $\lambda_i$ は第  $i$  群の遅発中性子先行核の崩壊定数、 $\beta_i$ は第  $i$  群の実効遅発中性子割合、 $C_i$ は第  $i$  群の実効遅発中性子先行核密度、 $\Lambda$ は中性子生成時間、 $N_0$ は反応度投入前の平均計数率、 $\Delta t$ は測定回路系 (MCS) のゲート時間である。逆動特性解析法では式 (3.2.2.1) に得られた中性子の時系列データをフッィングすることで反応度を求めることができる。尚、これらの方程式中の実効遅発中性子割合 ( $7.33 \times 10^{-3}$ ) 及び中性子生成時間 ( $1.59 \times 10^{-4}$  sec) は JENDL-5 と MVP3 を用いて計算した。

実験では安全棒#1, #2 を上限、調整棒 (RR) は 50%引き抜き位置または下限とし、シム安全棒 (SSR) を用いて原子炉を臨界にした後、SSR を上限まで引き抜き、核分裂計数管 (FC) の時系列データを令和 3 年度に整備した実験データ収集系を用いて測定した。表 3.2.2-3 に臨界条件を示す。一例として図 3.2.2-3 に H20-03 試料を設置した際の時系列データを示す。表 3.2.2-4 に本実験で測定された余剰反応度、表 3.2.2-5 に余剰反応度から得られた試料反応度を示す。今回得られた試料反応度は  $-24.80 \pm 0.30$  pcm (H20-01 試料)、 $-17.73 \pm 0.28$  pcm (H20-02 試料)、 $-8.99 \pm 0.12$  pcm (H20-03 試料)、 $-45.26 \pm 0.42$  pcm (NaCl-01 試料) であった。

表 3.2.2-2 軽水試料情報

軽水試料	試料 ID	試料高さ (cm)	試料直径 (cm)	試料重量 (g)
	H20-01	5.0	5.3	110.3
	H20-02	4.5	5.0	88.4
	H20-03	3.5	4.0	44.0
NaCl	NaCl-01	3.5	3.0	34.6

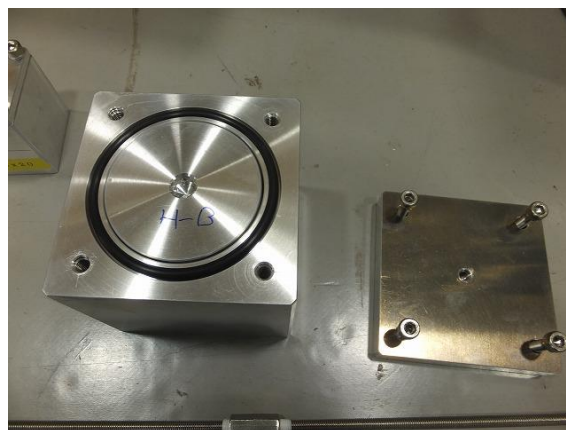


図 3.2.2-1 軽水用試料容器

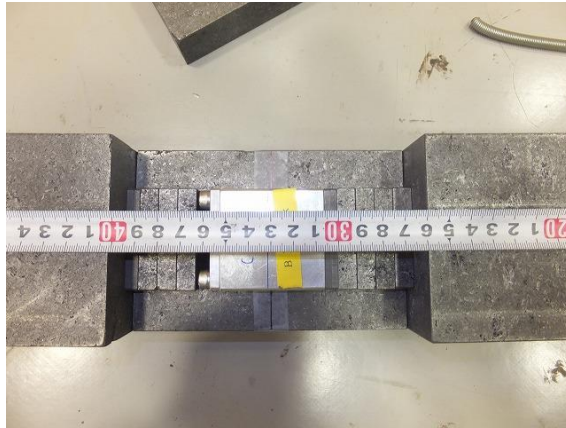


図 3.2.2-2 NaCl 用試料容器

表 3.2.2-3 試料反応度測定時の臨界条件

Run No.	試料	炉心温度(°C)	SSR 位置 (%)	RR 位置 (%)
1	H2O-Blank	21.8	73	50
2	H2O-01	21.8	79	50
3	H2O-02	21.8	77	50
4	H2O-03	21.8	75	50
5	H2O-Blank	21.8	73	50
6	H2O-01	21.8	79	50
7	H2O-02	21.8	77	50
8	H2O-03	21.8	75	50
9	H2O-Blank	21.8	73	50
10	H2O-01	21.8	79	50
11	H2O-02	21.8	77	50
12	H2O-03	21.8	75	50
13	H2O-Blank	21.8	73	50
14	NaCl-Blank	22.8	73	0
15	NaCl-01	23.8	81	0
16	NaCl-Blank	25.8	73	0

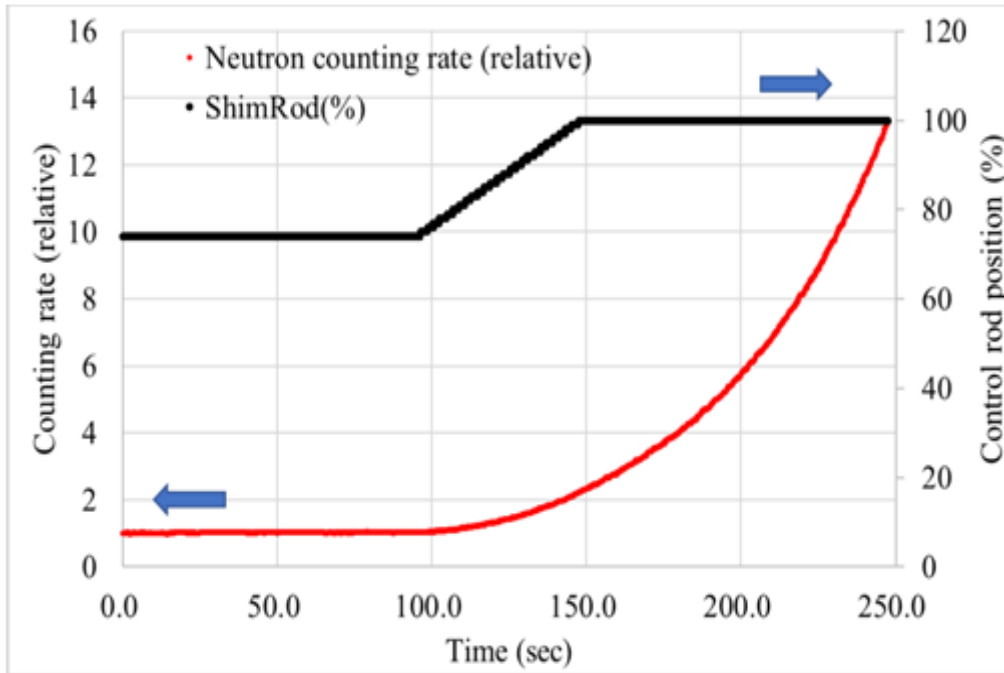


図 3.2.2-3 測定された時系列データの一部

表 3.2.2-4 測定された余剰反応度

Run No.	試料 ID	余剰反応度 (pcm)
1	H2O-Blank	108.17
2	H2O-01	85.15
3	H2O-02	92.66
4	H2O-03	101.45
5	H2O-Blank	110.41
6	H2O-01	84.96
7	H2O-02	92.81
8	H2O-03	100.98
9	H2O-Blank	109.84
10	H2O-01	85.30
11	H2O-02	91.13
12	H2O-03	100.39
13	H2O-Blank	111.31
14	NaCl-Blank	113.95
15	NaCl-01	68.54
16	NaCl-Blank	113.65

表 3.2.2-5 試料反応度

試料 ID	試料反応度 (pcm)
H2O-01	24.80 ± 0.30
H2O-02	17.73 ± 0.28
H2O-03	8.99 ± 0.12
NaCl-01	45.26 ± 0.42

## 3) 数値解析

数値解析は MCNP6.3<sup>(60)</sup> と JENDL-5 を用いて実施した。ここで試料反応度は試料を設置した場合と Blank 試料を設置した場合での実効増倍率の逆数の差と定義した。表 3.2.2-6 に結果を示す。軽水試料では、C/E 値はそれぞれ  $1.07 \pm 0.15$  (H2O-01)、 $1.01 \pm 0.21$  (H2O-02)、 $1.07 \pm 0.42$  (H2O-03) であり、JENDL-5 に収納されている H<sub>2</sub>O の水素の熱中性子散乱則データについて妥当性が示された。更に、軽水試料をレファレンスとした場合、本解析モデルの妥当性 (何らかのバイアスが無いこと) が示された。また、NaCl 試料の C/E 値は  $1.03 \pm 0.08$  となり JENDL-5 に収納されている Na 及び Cl 断面積は妥当であることが示された。

表 3.2.2-6 数値計算結果

軽水	試料 ID	実効増倍率	試料反応度 (pcm)	C/E
	H2O-Blank	1.00614 ± 0.00003	----	----
	H2O-01	1.00587 ± 0.00003	-26.47 ± 3.79	1.07 ± 0.15
	H2O-02	1.00590 ± 0.00003	-17.88 ± 3.79	1.01 ± 0.21
	H2O-03	1.00604 ± 0.00003	-9.58 ± 3.75	1.07 ± 0.42
NaCl	NaCl-Blank	1.00638 ± 0.00003	----	----
	NaCl-01	1.00591 ± 0.00003	-46.72 ± 3.66	1.03 ± 0.08

③ CaH<sub>2</sub> 試料反応度の再解析【R5】

## 1) 新たに作成した断面積を用いた数値解析

本研究において日本原子力研究開発機構が新たに作成した CaH<sub>2</sub> の水素の核データを使用して、CaH<sub>2</sub> 試料反応度について再解析を実施した。計算は MCNP6.3 を用い CaH<sub>2</sub> 以

外の燃料・構造材等は JENDL-5 を使用した。試料の数密度はミルシートの記載通り  $\text{CaH}_2$  が 95%、残りを  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  とした。また、試料反応度は試料を設置した場合と Blank 試料を設置した場合での実効増倍率の逆数の差と定義した。表 3.2.2-7 に結果を示す。JEFF-3.1 を用いた場合と比較し C/E 値の変化は誤差範囲内である。本計算結果より、新断面積は JEFF-3.1 と同等であることが明らかとなった。さらに計算結果の差について感度解析を用いて検討した。

表 3.2.2-7 新断面積を用いた  $\text{CaH}_2$  試料反応度の数値解析結果

試料 ID	試料重量(g)	新断面積	JEFF-3.1
A	21.2	$1.00 \pm 0.59$	$1.11 \pm 0.59$
B	41.0	$0.85 \pm 0.33$	$0.83 \pm 0.33$
C	78.7	$0.90 \pm 0.15$	$0.88 \pm 0.14$
D	164.4	$0.87 \pm 0.11$	$0.89 \pm 0.11$

## 2) 感度解析を用いた検討

感度係数計算に用いる群定数は、MVP3.0 の群定数作成機能を用いて作成した。感度係数計算は、計算モデル内の各領域の群定数を作成したのち、拡散計算にて中性子束及び随伴中性子束を計算し、これらを入力として一般化摂動コード SAGEP<sup>(66)</sup> で感度係数を計算した。図 3.2.2-5 に  $\text{CaH}_2$  試料反応度 (試料 ID:D) に対する  $\text{CaH}_2$  中の H-1 非弾性散乱断面積の感度係数 (赤線) と新断面積と JEFF-3.1 の H-1 非弾性散乱断面積の差 (青線) を示す。図より、感度係数は約 0.03 eV 付近で正負が逆転している。即ち、仮に断面積の差が一律に正または負であったとしても 0.03 eV を境に断面積変更によるサンプル反応度計算値は正負が打ち消し合うことを示している。一方で断面積差は約 0.01 eV で正負が逆転 (0.01 eV 以下では新断面積が小さく、0.01 eV 以上では新断面積が大きい) しているために断面積変更によるサンプル反応度計算値は複雑な挙動となる。感度係数に断面積差を乗ずることで、使用する断面積を変更したことによる積分核特性計算値の変化の成分を知ることが出来る。図 3.2.2-6 に  $\text{CaH}_2$  試料反応度計算値変化のエネルギー成分を示す。断面積を JEFF-3.1 から新断面積に変更することによって次の寄与がある。

- 1) 0.01 eV 以下では負の寄与となる。
- 2) 0.01 eV - 0.03 eV では正の寄与となる。
- 3) 0.03 eV から 0.1 eV では負の寄与となる。
- 4) 0.1 eV 以上は断面積の差は無いのでサンプル反応度計算値への寄与は無い。

これらの結果として正負の寄与により、新断面積を用いてもサンプル反応度計算値の変化は小さくなる。さらに、これらの寄与は C/E 値が約 0.8-0.9 となる理由にならないことから、このバイアスは他の核種・反応による可能性が示唆される。



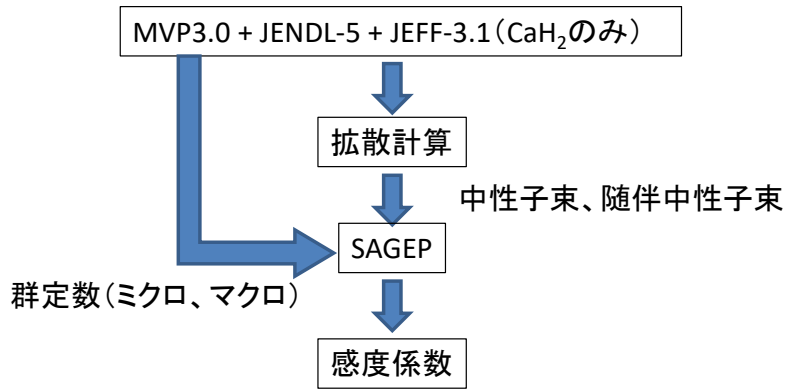


図 3.2.2-4 感度係数計算フロー

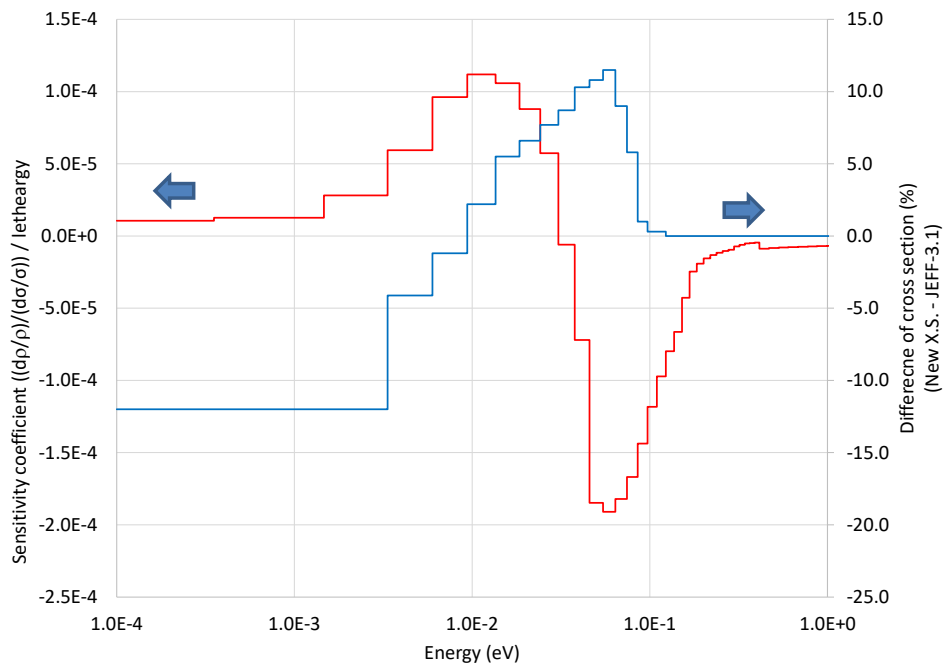


図 3.2.2-5  $\text{CaH}_2$  試料反応度 (試料 D) に対する水素の非弾性散乱断面積の感度係数と新断面積と JEFF-3.1 の非弾性散乱断面積の差

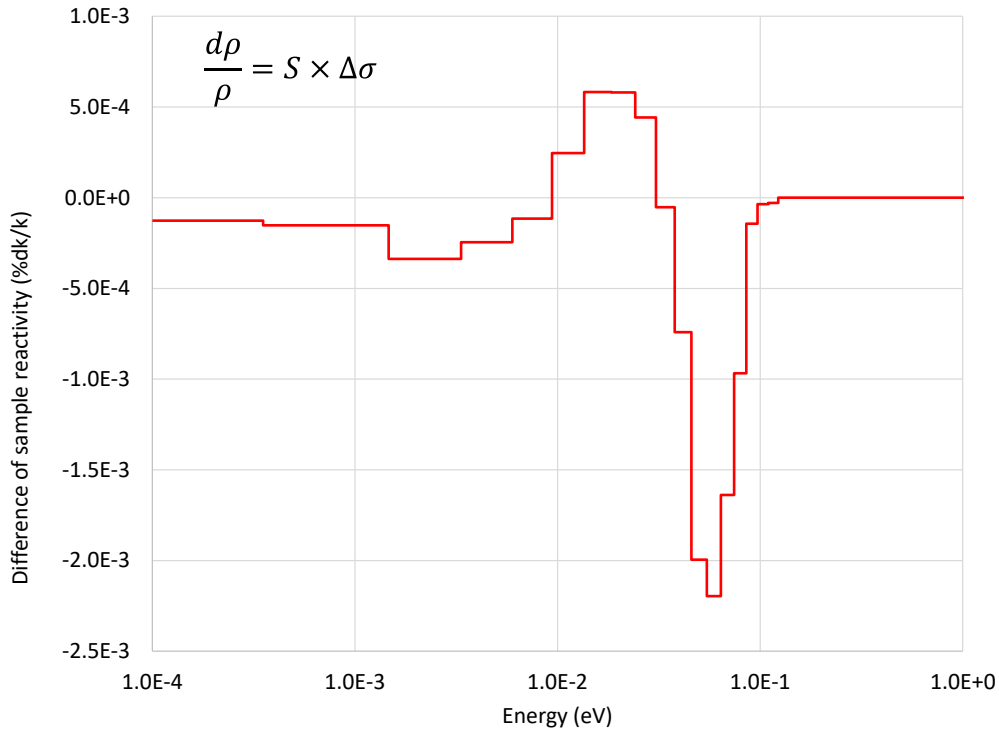


図 3.2.2-6 使用する断面積を変更したことによる CaH<sub>2</sub> 試料反応度計算値（試料 D）の差

### (3) まとめ

本項目では令和 3 年度から 5 年度にかけて、UTR-KINKI を用いて CaH<sub>2</sub>、ZrH<sub>2</sub>、軽水、NaCl の試料反応度測定を実施し、既存核データを用いて数値解析を行った。さらに CaH<sub>2</sub> については本研究で新たに作成した断面積を用いて解析を実施した。その結果、以下の結論を得た。

1. CaH<sub>2</sub> 試料を用いた試料反応度は  $-32.20 \pm 0.75$  pcm (164.39 g 試料)、 $-13.19 \pm 1.68$  pcm (76.42 g 試料) であった。今回及び過去の実験値より UTR-KINKI 実験の範囲内では試料重量と試料反応度に線形性が存在することを確認した。また、新断面積を使用した C/E は 0.85~0.90 であり、積分評価上新断面積は JEFF-3.1 と同等の特性を持つことが明らかとなった。
2. 新断面積を使用しても試料反応度計算値にバイアスが存在し、水素以外の核種・反応による寄与が示唆された。
3. UTR-KINKI における ZrH<sub>2</sub> 試料反応度は  $-30.95 \pm 1.22$  pcm であった。JENDL-4.0 と JENDL-5 を用いた数値計算値の間には有意な差は無いことが明らかとなった。
4. UTR-KINKI における軽水試料反応度の C/E 値は  $1.07 \pm 0.15$  (110.3 g)、 $1.01 \pm 0.21$  (88.4 g)、 $1.07 \pm 0.42$  (44.0 g) であり、JENDL-5 に収納されている H<sub>2</sub>O の水素の熱中性子散乱則データについて妥当性が示された。

UTR-KINKI における NaCl 試料反応度の C/E 値は  $1.03 \pm 0.08$  となり JENDL-5 に収納されている Na 及び Cl 断面積は妥当であることが示された。

### 3.3 核データ整備及び炉設計への影響評価

#### 3.3.1 評価済断面積データライブラリの整備（再委託先：原子力機構）【R3-R5】

##### (1) 目的及び概要

革新型原子炉の内、熔融塩炉や小型モジュール炉では固体減速材として黒鉛や水素化合物の使用が想定されている。減速材による熱中性子の散乱は炉心設計に大きな影響を及ぼす。また、熔融塩や構造材に含まれる物質に対する中性子誘起の荷電粒子放出反応の中には、廃棄物管理上問題となり得る核種を生成するものがある。そのため、革新型原子炉開発においては、上述の物質に対する精度良い熱中性子散乱則（TSL）や荷電粒子放出反応断面積のデータが重要になる。以上を踏まえ、これらの核データの評価手法を調査・検討し、その評価システムを構築した。また、開発したシステムを使用し、本研究で取得された実験値を活用した核データ評価を行い、その結果を基に評価済核データファイルを完成させた。

##### (2) 核データ評価手法の調査・検討及び評価システムの構築【R3-R5】

【R3】令和3年度は、TSL評価手法に関する情報収集を行った。既存の核データライブラリでは軽水等のTSL評価に古典分子動力学法が使用されている。本研究で対象とする黒鉛や水素化合物（水素化カルシウム等）といった、この古典分子動力学法の適用が難しい物質に対するシミュレーション手法（第一原理計算等）について、各手法の特徴や計算コードに関する情報収集を行い、核データ評価手法を検討した。また、収集した情報に基づき、本研究で取得したワークステーション上に第一原理計算コードを導入してその試用をするなど、核データ評価システムの開発を開始した。

【R4】令和4年度は、初めに、TSL評価システムの開発を進めた。第一原理計算に基づいた非弾性散乱成分の評価だけでなく、本研究で取得された実験値を活用した干渉性弾性散乱や小角散乱成分の評価も可能にした。干渉性弾性散乱と小角散乱成分については、実験値との比較のため、角度分布の出力も可能にした。次に、構造材に対する荷電粒子放出反応断面積の評価システムの開発を行った。共鳴構造を考慮するか否かに応じて二種類の評価手法を想定し、それぞれについて評価システムを構築した。

【R5】令和5年度は、TSL評価システムの開発をさらに進めた。後述のように、黒鉛に対する非弾性散乱成分に関しては、全断面積の実験値との比較からでは検証が難しく、二重微分断面積の実験値と比較する必要がある。この目的のため、評価システムを改良しTSLの非弾性散乱成分から断面積だけでなく二重微分断面積の出力も可能にした。なお、核データ処理コードNJOYのTHERMRモジュール等でも、TSLファイルと中性子核反応断面積ファイルを用意し両者を結合させた上で二重微分断面積を出力することが可能であるが、簡便性の観点からTSLファイルのみから二重微分断面積を出力できるようにした。また、NJOYでは通常、入射エネルギーと放出エネルギーを固定し、放出角度を変数とした形式で出力されるが、実験値との比較がしやすいよう、入射エネルギーと放出角度を固定し、放出エネルギーを変数とした形式で出力することとした。

### (3) 熱中性子散乱則の評価【R4-R5】

【R4】令和4年度は、黒鉛の TSL について、本研究で開発した評価システムを用いて評価を行った。黒鉛の TSL の内、非弾性散乱成分については、第一原理計算から求めたフォノン状態密度に基づいて評価した。第一原理計算は理想的な結晶黒鉛に対して行った。干渉性弾性散乱成分については、本研究で実施された中性子散乱実験及び中性子透過実験に基づいて評価した。透過実験との比較においては小角散乱成分の定量も行った。これらの結果に基づき、黒鉛に対する暫定的な TSL データファイルを作成した。

【R5】令和5年度は、初めに、前年度に作成した黒鉛に対する暫定的な TSL データファイルのさらなる検証を行った。黒鉛に対する TSL については、米国の核データライブラリ ENDF/B-VIII.0 で空孔率に依存したデータが整備されている。しかしながら、空孔のある黒鉛であっても、その中で非弾性散乱を引き起こす炭素部分については、以下のような理由により理想的な結晶構造を持っていると考えられる<sup>(67)</sup>。

- 空孔黒鉛中で空孔は結晶よりも大きなサイズ（数百マイクロメートル）を持つ
- このため、空孔部とそれ以外の炭素原子が存在する部分は明確に分かれている（各々が結晶レベルのスケールで共存しているわけではない）

このため、上述の通り、令和4年度に作成した暫定的な TSL データファイルにおいては、非弾性散乱成分について理想的な結晶黒鉛（空孔率0%）を仮定して評価した。この仮定について、本研究で取得された中性子散乱実験値との比較を通じて、検証を行った。図 3.3.1-1 に示す通り、温度 300 K での非弾性散乱成分について、今回の理想的な結晶を仮定した評価値（赤実線）は、ENDF/B-VIII.0 の空孔率 10%（青破線）及び 30%（黄一点鎖線）に対する評価値と幅広い入射中性子エネルギー範囲において数倍の差がある。しかしながら、特に原子炉応用で重要な 10 から 100 meV 程度の領域では弾性散乱成分（黒点線）が大きく、中性子透過実験から取得された全断面積との比較からは検証し難い。

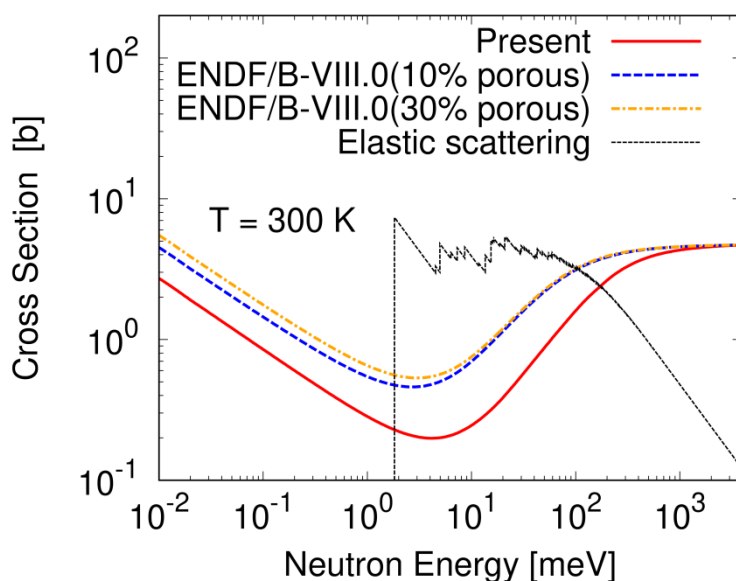


図 3.3.1-1 黒鉛に対する非弾性散乱断面積及び弾性散乱断面積

その一方で、中性子散乱実験から取得された二重微分断面積であれば、散乱中性子のエネルギーが弾性散乱成分と非弾性散乱成分で明確に異なるため、検証が可能である。図 3.3.1-2 に放出角度 100 から 115° の範囲で平均した二重微分断面積に関する比較結果を示す。入射中性子エネルギーは 42 meV、温度は 300 K である。図の通り、今回の評価値（赤線）は ENDF/B-VIII.0 の空孔率 10 %（青破線）及び 30 %（黄一点鎖線）に対する評価値よりも、本研究で取得された実験値（白丸）を良く再現していることが分かった。なお、各評価値は非弾性散乱成分のみを表示しており、実験値の 40 meV 付近に見られる大きなピークは弾性散乱からの寄与と考えられる。実験で使用した黒鉛の空孔率が 15 % であることから、非弾性散乱成分については空孔率に依らず、結晶黒鉛を仮定した評価を行うことが望ましいことが分かった。この結果から、令和 4 年度に作成した暫定的なファイルを本研究での最終的な黒鉛の TSL データファイルとして採用することとした。

次に、小型モジュール炉での固体減速材として使用が検討されている<sup>(68)</sup>水素化カルシウムの TSL 評価を行った。水素化カルシウムは結晶性物質であるため、黒鉛の場合と同じく、結晶中の格子振動に起因する非弾性散乱成分は第一原理計算と格子振動計算から求めたフォノン状態密度に基づき評価した。第一原理計算には Quantum ESPRESSO コード<sup>(69)</sup>を、格子振動計算には Phonopy コード<sup>(70)</sup>を、それぞれ使用した。第一原理計算は擬ポテンシャルと平面波基底を用いて行った。この際、Quantum ESPRESSO コードの入力データの作成には、シミュレーションの統合グラフィカルユーザインターフェースソフトウェアである Winmostar<sup>(71)</sup>を使用した。原子変位に対する長距離効果を考慮するため、図 3.3.1-3 に示す単位結晶をいくつか並べたスーパーセル（図 3.3.1-4）に対して計算を行った。ここから得られたフォノン状態密度を核データ処理コード NJOY2016<sup>(72)</sup>の LEAPR モジュールに入力として与え、非弾性散乱に対する TSL を導出した。

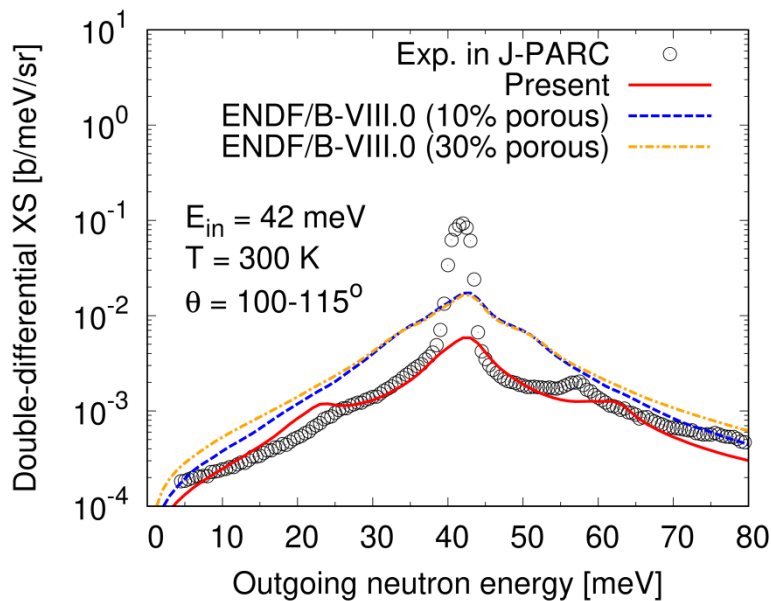


図 3.3.1-2 黒鉛に対する二重微分断面積

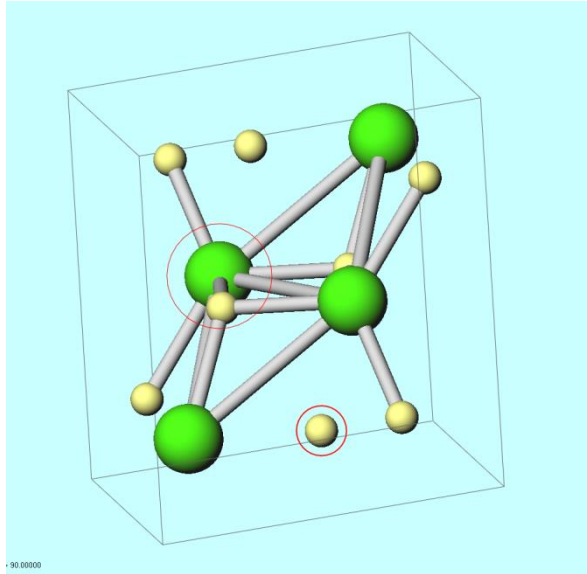


図 3.3.1-3 Winmostar で作成した水素化カルシウムの単位結晶

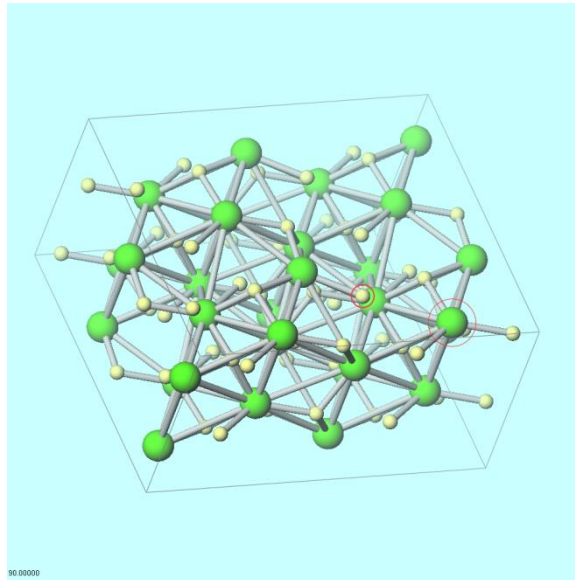


図 3.3.1-4 水素化カルシウムのスーパーセルの例 (2×2×2)

この TSL から求めた非弾性散乱断面積を図 3.3.1-5 に示す。水素化カルシウム中の水素に起因する成分については、今回の評価値（赤実線）と現状で唯一利用可能なデータである JEFF-3.3 の値（緑破線）は、同様の傾向を示している。JEFF-3.3 では、水素化カルシウム標的に対する散乱中性子のエネルギースペクトルを測定し、そこからフォノン状態密度を推定する評価手法を取っている。このように、今回の評価と JEFF-3.3 では評価手法が大きく異なるものの、両者の評価値はおおむね一致した。一方、カルシウムに起因する成分については、今回の評価値（青実線）と JEFF-3.3（黄破線）で大きな差がみられる。これは、JEFF-3.3 では水素化カルシウム全体に対して推定したフォノン状態密度を水素とカルシウムの各成分に近似的に分配しているため、断面積の小さなカルシ

ウム起因の成分に関しては不定性が大きいことが理由と考えられる。このため、カルシウム起因の成分は、第一原理計算に基づく今回の評価値の方が JEFF-3.3 よりも信頼性が高いと考えられる。

続いて、今回評価した非弾性散乱成分に弾性散乱成分を足して全断面積を求め、本研究での中性子透過実験から取得された温度 300 K での全断面積と比較した。その結果を図 3.3.1-6 に示す。水素起因の成分（青実線）を 2 倍してカルシウム起因の成分（緑実線）に足して求めた水素化カルシウムの全断面積（赤実線）は実験値（白丸）を良く再現しており、今回の評価値の信頼性を検証することができた。

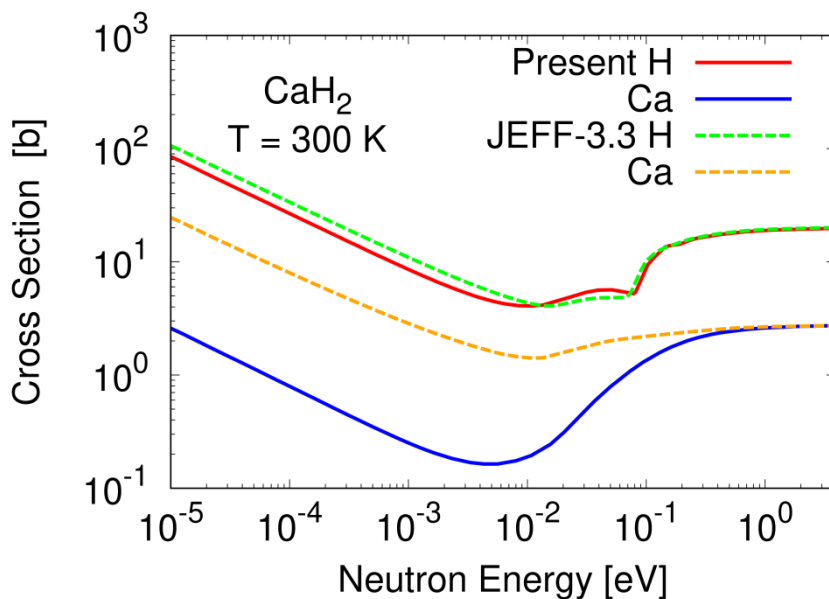


図 3.3.1-5 水素化カルシウムの非弾性散乱断面積

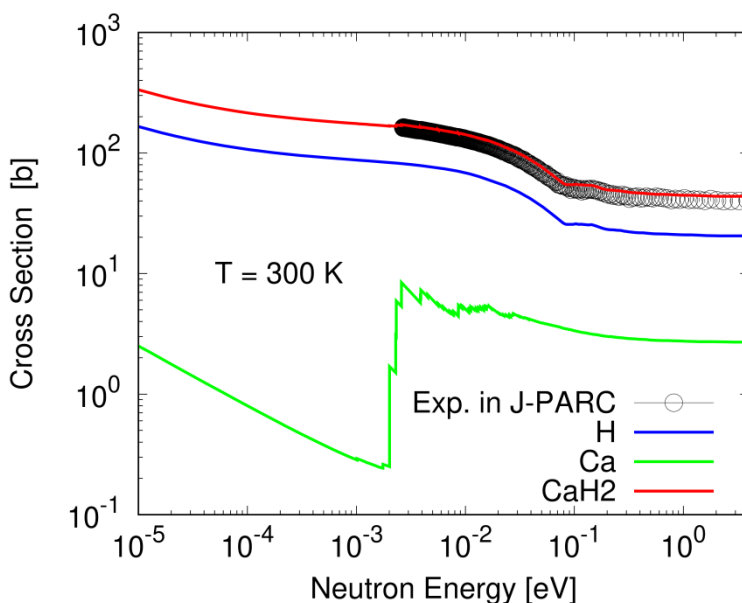


図 3.3.1-6 水素化カルシウムの全断面積

本研究では、水素化カルシウム以外の結晶性物質についても全断面積の実験値が取得されている。そのため、評価手法のさらなる検証を目的とし、水素化イットリウムと塩

化ナトリウムについても水素化カルシウムと同様の手法で TSL を評価し、実験値と比較した。その結果を図 3.3.1-7 及び図 3.3.1-8 に示す。どちらの物質に対しても今回の評価値（赤実線）は本研究で取得した実験値（白丸）を精度良く再現していることが分かる。なお、塩化ナトリウムについては、 $^{35}\text{Cl}$ （天然存在比 75 %）の中性子捕獲断面積が大きい。この成分（黄破線）は TSL 評価からは導出できないため、JENDL-5 のデータを用いて見積もった。

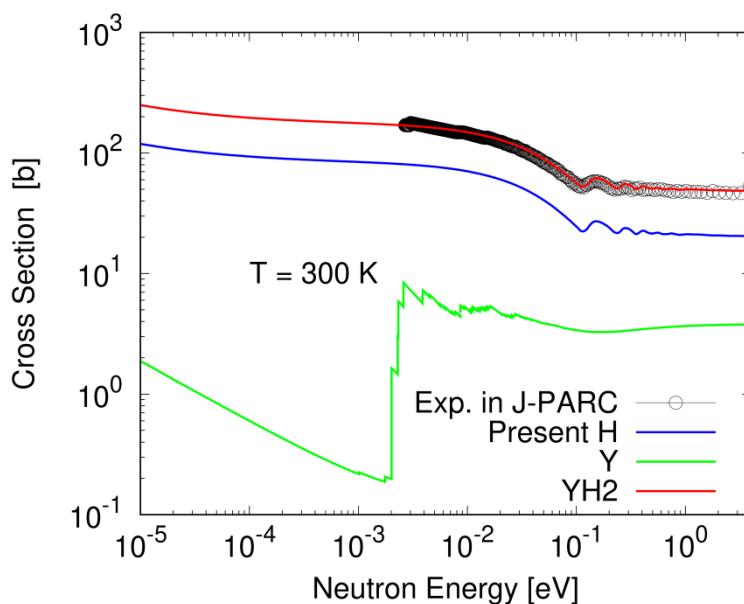


図 3.3.1-7 水素化イットリウムの全断面積

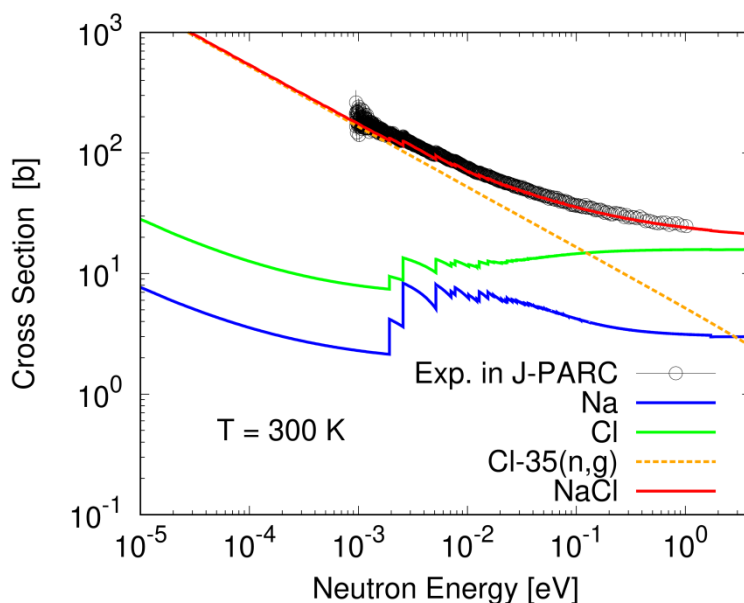


図 3.3.1-8 塩化ナトリウムの全断面積

以上を通じて、黒鉛、水素化カルシウム、水素化イットリウム、塩化ナトリウムの 4 物質に対する TSL を評価し、それらの値を核データの標準的な編集形式である ENDF-6 フ



フォーマットの形式に編集して核データファイルを整備した。

#### (4) 構造材に対する荷電粒子放出断面積の評価【R5】

革新型原子炉において、カリウムは溶融塩炉における FLiNaK 等の溶融塩、銅は小型炉のヒートパイプに使用されることが考えられる。カリウム中の  $^{39}\text{K}$  (天然存在比 93.26 %) 及び銅中の  $^{63}\text{Cu}$  (天然存在比 69.15 %) に対する、 $^{39}\text{K}(n, \alpha)^{36}\text{Cl}$  反応や  $^{63}\text{Cu}(n, p)^{63}\text{Ni}$  反応は、廃棄物管理上問題となり得る核種である  $^{36}\text{Cl}$  (半減期 30 万年) や  $^{63}\text{Ni}$  (半減期 100 年) を生み出す。そのため、革新型原子炉の開発においては、これらの反応断面積に対する精度の良い核データが必要となる。両反応とも荷電粒子放出反応ではあるものの、発熱反応であるために低い中性子入射エネルギーから反応が起こり得る。しかし、keV 領域のエネルギー範囲には実験値が無く、JENDL-5 等の核データライブラリにも実験的な根拠に乏しい値が格納されているのが現状である。そこで、本研究で実施した微分実験結果を参考に、特に 1 MeV 以下のエネルギー領域に着目して両反応断面積の核データ評価を行った。

図 3.3.1-9 に  $^{39}\text{K}(n, \alpha)^{36}\text{Cl}$  反応断面積の評価結果を示す。図の通り、1 MeV 以上の領域には実験値が比較的豊富に存在している。また、熱中性子エネルギーにも実験値が一点存在する。JENDL-5 の評価値 (青破線) はこれらの実験値を再現しているが、およそ 1 MeV 以下の領域に関しては全断面積や捕獲反応断面積の実験値から存在が分かっている共鳴構造が反映されておらず、 $1/v$  則を仮定した評価となっている。

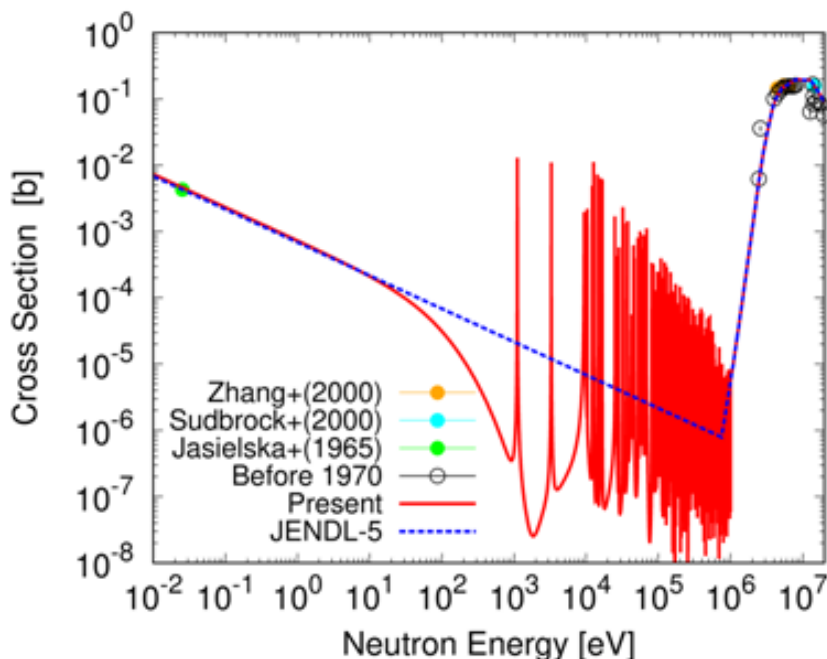


図 3.3.1-9  $^{39}\text{K}(n, \alpha)^{36}\text{Cl}$  反応断面積

本研究の微分実験では、共鳴面積の上限値のみが 1.1 keV で 0.55 barn eV、9.37 keV で 0.53 barn eV と得られているため、このデータのみから断面積の大きさを決定するこ

とは困難である。本研究では、共鳴構造をもった断面積の評価を行い、上記の上限値と整合するかどうかにより、評価値の妥当性を判断することとした。共鳴の $\alpha$ 崩壊幅は共鳴によらず一定であると仮定して、実験が存在する熱中性子エネルギーでの $(n, \alpha)$ 反応断面積を再現するよう、 $\alpha$ 崩壊幅を 0.6 meV と決定した。この値を全ての共鳴に共通に適用することで、共鳴構造を持った  $^{39}\text{K}(n, \alpha)^{36}\text{Cl}$  反応断面積 (赤実線) を得た。この結果は上記の上限値以下の範囲にあり、本研究での実験結果と整合しており、妥当性があると判断できるため、評価値として採用することとした。なお、1 MeV 以上の領域は JENDL-5 で既に実験値を再現する値が評価されており特に問題がないため、JENDL-5 の値を採用することとした。

次に、図 3.3.1-10 に  $^{63}\text{Cu}(n, p)^{63}\text{Ni}$  反応断面積の評価結果を示す。 $^{39}\text{K}(n, \alpha)^{36}\text{Cl}$  反応と同様、1 MeV 以上の領域には実験値は豊富に存在し、JENDL-5 の評価値 (青破線) はそれらを再現している。一方で、1 MeV 以下の領域には実験値は存在せず、JENDL-5 では 1 MeV 以上で決定した統計モデル計算を低エネルギーへ外挿した結果を評価値として与えているため、共鳴構造は考慮されていない。本研究での微分実験では、579 eV の共鳴断面積の上限値が 0.53 barn eV と得られている。この実験では上限値の情報だけであるため、定量的な評価は難しい。本研究では、共鳴領域の平均断面積が JENDL-5 の評価値と同程度となるよう陽子崩壊幅を 0.001 meV と決定した。この値を負共鳴も含めた全ての共鳴の陽子崩壊幅として共通に適用し、共鳴構造を持った  $^{63}\text{Cu}(n, p)^{63}\text{Ni}$  反応断面積 (赤実線) を得た。この結果は上記の上限値以下の範囲にあり、 $^{39}\text{K}(n, \alpha)^{36}\text{Cl}$  反応のケースと同様、本研究での実験結果と整合した値となっており妥当だと判断できるため、評価値として採用することとした。また、 $^{39}\text{K}(n, \alpha)^{36}\text{Cl}$  反応断面積と同様、1 MeV 以上は JENDL-5 の評価値を採用した。

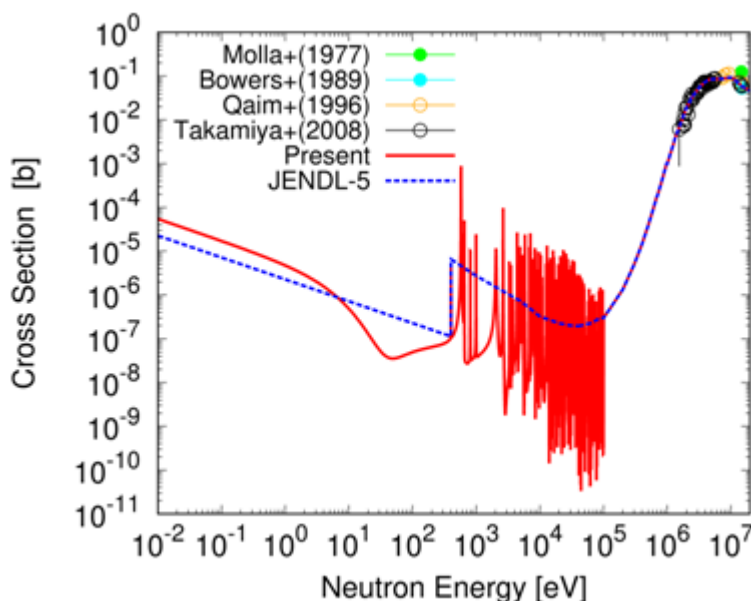


図 3.3.1-10  $^{63}\text{Cu}(n, p)^{63}\text{Ni}$  反応断面積

#### (5) まとめ

革新型原子炉の設計に重要な TSL と荷電粒子放出断面積について、評価手法の調査・

検討を行い、その結果に基づき評価システムを構築した。また、本研究で取得された実験値を参照した核データ評価を、構築した評価システムを用いて実施した。この評価結果を基に核データの信頼性を高め、最終的な評価済核データファイルを完成させた。最終的に、TSL については黒鉛、水素化カルシウム、水素化イットリウム、塩化ナトリウムの 4 物質、荷電粒子放出反応断面積については  $^{39}\text{K}$ 、 $^{63}\text{Cu}$  の 2 核種に対して核データファイルを整備した。

### 3.3.2 新たな核データを用いた革新型原子炉の核特性計算（再委託先：近畿大学）【R3-R5】

#### (1) 革新型原子炉核特性の予備計算【R4】

革新型原子炉の原子炉核特性の予備計算を既存の核データである JENDL-4.0<sup>(61)</sup>及び JENDL-5<sup>(63)</sup>を用いて実施した。尚、対象とする核特性は臨界性とした。本予備計算ではモンテカルロ法である MVP3 と決定論による手法を用いた。決定論による核特性計算値の予測値を得る方法として JENDL-4.0 を用いて作成した感度係数に、JENDL-4.0 を用いて作成した群定数と新たに作成する断面積データより得た群定数の差を乗じることで、新たな核データを用いた場合の予測核特性の変化量を評価した。解析対象とした炉心は、1) 高速炉型溶融塩炉<sup>(73)</sup>（溶融塩：NaCl-MgCl<sub>2</sub>-(Cl<sub>3</sub>-UCl<sub>4</sub>)-TRU-Cl<sub>3</sub>：47.6-22.4-14.7-6.3-9.0 mol%）、2) 熱中性子炉型溶融塩炉<sup>(74)</sup>（溶融塩：<sup>7</sup>LiF-BeF<sub>2</sub>-ThF<sub>4</sub>-UF<sub>4</sub>：71.7-16.0-12.0-0.3 mol%）、3) 小型モジュール炉（固体減速材：CaH<sub>2</sub>）、4) 高温ガス炉（HTTR 相当炉）とした。その結果、溶融塩炉（高速炉系）では使用する核データを JENDL-4.0 から JENDL-5 に変更することで大きな実効増倍率変化を確認した。特に大きな寄与となる核種は <sup>35</sup>Cl であることが分かった。熱中性子炉型溶融塩炉、高温ガス炉では大きな実効増倍率変化は無かった。また、モンテカルロ計算における実効増倍率変化量は決定論による結果を再現していることから、感度係数を使用する解析手法は妥当であることを明らかにした。

#### (2) 革新型原子炉の臨界性計算【R5】

##### ① 計算体系

令和4年度に実施した予備計算を基に令和5年度に整備した計算機を用いて革新型原子炉の臨界性（実効増倍率）を実施した。また、得られた実効増倍率について、既存の核データを使用した場合と比較し新たな核データが与えるインパクトについて感度解析を実施し定量的に評価した。対象とした炉型は水素化カルシウム（CaH<sub>2</sub>）を固体減速材として採用された小型モジュール炉（MoveLuX<sup>(68)</sup>）とした。表 3.3.2-1 に MoveLuX の諸元<sup>(51)(75)</sup>を示す。本原子炉は固体減速材として CaH<sub>2</sub> を採用している。固体減速材を採用することで、ポンプなどの動的機器が必要なく、原子炉機器の簡素化が可能である。さらに、原子炉が冷却材喪失や制御棒挿入失敗による反応度投入事故起因や何らかの異常による出力上昇によって減速材温度が 800 °C 以上になれば CaH<sub>2</sub> の水素が乖離する。これより、原子炉の中性子減速能力がなくなり原子炉は受動的に未臨界状態に移行する受動的な安全設備の機能を持たせている。本原子炉の燃料は濃縮度 4.8 wt% のウランシリサイド燃料を採用し、燃料は六角柱のブロックとして炉心に装荷される。

実効増倍率の計算はモンテカルロ計算コード MCNP6.3<sup>(60)</sup>、CaH<sub>2</sub> 固体減速材の水素断面積に本研究で新たに整備した断面積（新断面積）、減速材以外の燃料・構造材の断面積に JENDL-5 を用いて実施した。図 3.3.2-1 に計算体系図<sup>(51)(75)</sup>を示す。ここで、本原子炉には冷却系として燃料-固体減速材間にヒートポンプが設置されているが、本計算ではヒートポンプを除外した。感度係数は第3.2.2.(2)③節と同じ手法で計算した。即ち、計算に用いる群定数を MVP3 の群定数作成機能を用いて作成し、拡散計算にて中性子束及び随伴中性子束を計算し、これらを入力として一般化摂動コード SAGEP<sup>(66)</sup>で

感度係数を計算した。尚、SAGEP での計算は R-Z 体系で実施した。

表 3.3.2-1 MoveLuX の諸元

パラメータ	諸元
燃料組成	U <sub>3</sub> Si <sub>2</sub>
濃縮度	4.8 wt%
被覆管肉厚(cm)	0.10
燃料ピッチ(cm)	10.0
燃料配列	Hex.
燃料温度(K)	300
減速材	CaH <sub>2</sub>
冷却システム	ヒートポンプ

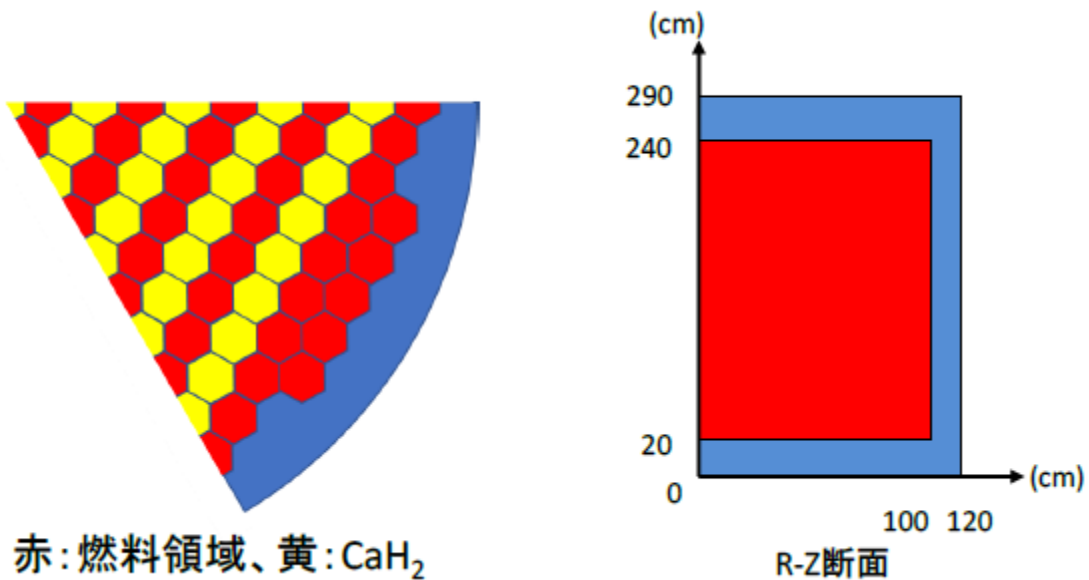


図 3.3.2-1 計算体系図

## ② 実効増倍率計算

表 3.3.2-2 に新断面積と既存断面積として JEFF-3.1 を用いて計算した実効増倍率を示す。尚、新断面積は日本原子力研究開発機構から提供された。CaH<sub>2</sub> に新断面積を用いた場合、実効増倍率は  $1.15601 \pm 0.00132$  となった。一方、JEFF-3.1 を用いた場合は  $1.15585 \pm 0.00135$  であり、両者の差は 65.8 pcm であった。この差は数値計算の統計誤差内であり、新断面積を使用する効果は小さいことが分かった。これは CaH<sub>2</sub> 試料反応度実験の再解析と整合している。感度係数を計算した。尚、SAGEP での計算は R-Z 体系で実施した。

表 3.3.2-2 実効増倍率計算値

CaH <sub>2</sub> 断面積	実効増倍率
新断面積	1.15601 ± 0.00132
JEFF-3.1	1.15585 ± 0.00135

### ③ 感度解析

図 3.3.2-2 に実効増倍率計算値に対する CaH<sub>2</sub> 中の H-1 非弾性散乱断面積の感度係数 (赤線) と新断面積と JEFF-3.1 の H-1 非弾性散乱断面積の差 (青線) を示す。感度係数は約 0.06 eV 付近で正負が逆転している。エネルギー領域 0.01 eV 以下では断面積差は 12%程度あるが、この領域の感度は最大でも  $-2 \times 10^{-4}$  ( $(dk_{\text{eff}}/k_{\text{eff}})/(d\sigma/\sigma)$ ) と小さい。また、0.1 eV 以上の領域の感度係数は 0 である。図 3.3.2-2 中の感度係数に断面積差を掛けることで、実効増倍率計算値の変化を定量的に検討することができる。図 3.3.2-3 に示すように断面積を JEFF-3.1 から新断面積に変更することによって、以下のことが明らかとなった。

- 1) 0.01 eV 以下では-5.3 pcm の寄与となる。
- 2) 0.01 eV - 0.06 eV では+89.0 pcm の寄与となる。
- 3) 0.06 eV から 0.1 eV では-32.8 pcm の寄与となる。

結果として 0.01-0.06 eV の正の寄与と 0.06-0.1 eV の負の寄与による打ち消し合いが発生していることが明らかとなった。この様に新断面積へ変更することによって実効増倍率計算値の差は誤差範囲内であったが、試料反応度応度計算値に対する断面積差の寄与についてエネルギー成分が異なることが明らかとなった。

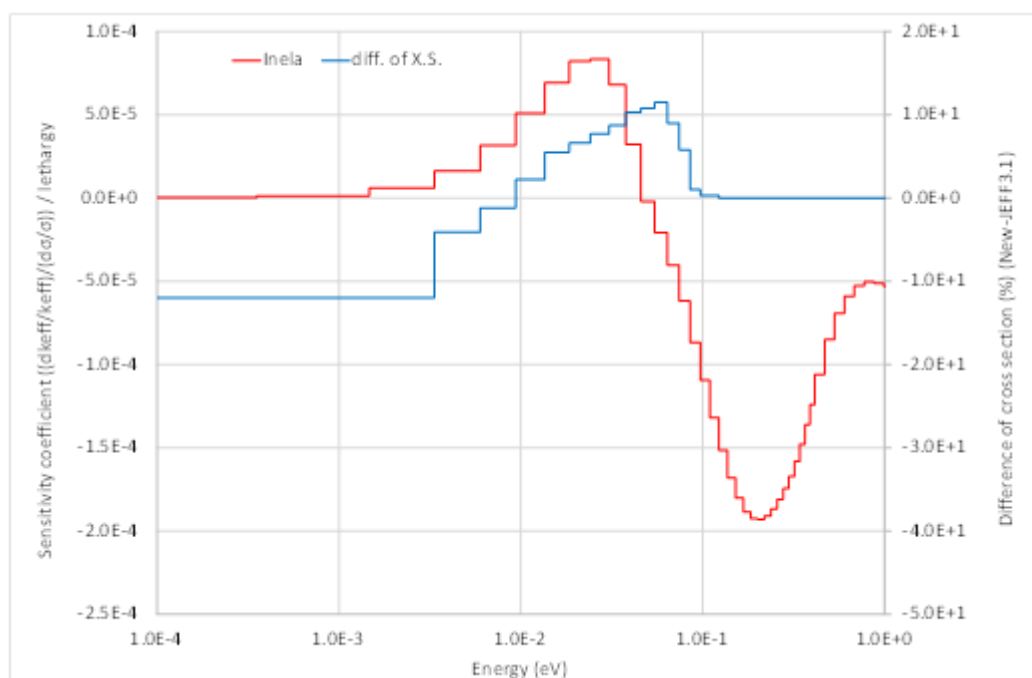


図 3.3.2-2 実効増倍率に対する水素の非弾性散乱断面積の感度係数

と新断面積と JEFF-3.1 の非弾性散乱断面積の差

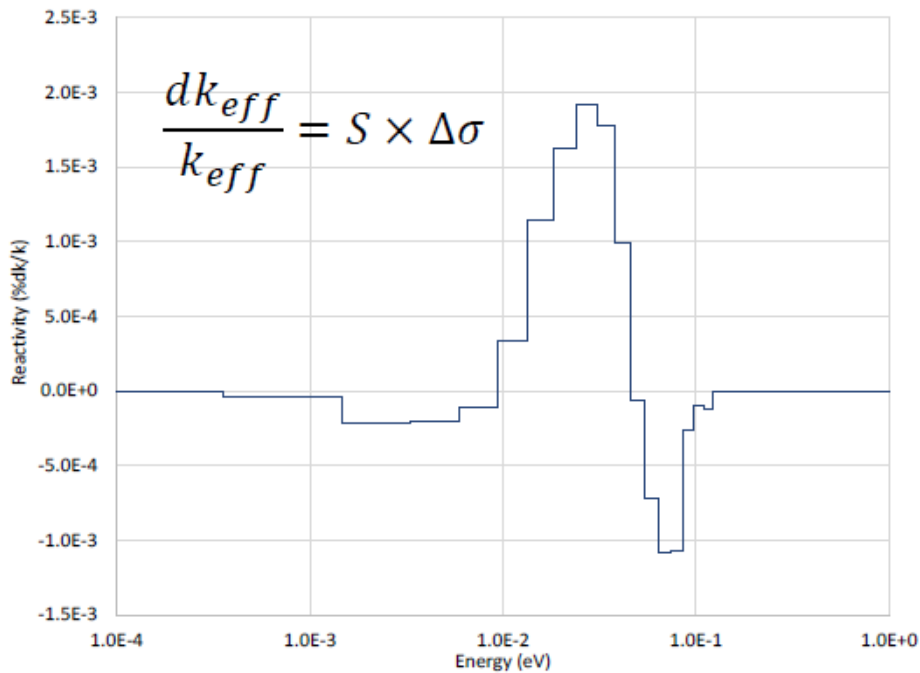


図 3.3.2-3 断面積を変更したことによる実効増倍率計算値の変化量

### (3) まとめ

本項目では令和4年度から5年度にかけて、既存の断面積及び本研究で作成した断面積を用いて革新型原子炉の実効増倍率計算を実施した。さらに、得られた実効増倍率について既存断面積である JEFF-3.1 を用いて計算した感度係数に既存断面積と新たに作成した断面積の差を乗じることで、新断面積が実効増倍率計算値に与えるインパクトを反応度変化の形で定量的に評価した。

その結果、以下の結論を得た。

1. Move1uX の固体減速材に新断面積を用いた場合、実効増倍率は  $1.15601 \pm 0.00132$  となった。一方、JEFF-3.1 を用いた場合は  $1.15585 \pm 0.00135$  であり、両者の差は 65.8 pcm であった。
2. 上記の差は CaH<sub>2</sub> 試料反応度実験の再解析と整合した。

実効増倍率計算値の差について、感度解析を用いて定量的に評価したところ 0.01-0.06 eV の正の寄与と 0.06-0.1 eV の負の寄与による打ち消し合いによる結果であることが明らかとなった。

### 3.4 研究推進【R3-R5】

研究代表者の下で各研究項目間における情報共有及び意見交換を密にして研究を進めるために、各年度で全体会合を3回開催した。

全体会合では研究項目ごとに業務の進捗状況の説明を行い、参加者全員で研究内容を確認した。特に微分実験で得られた結果を核データ評価に反映させる方法、積分実験で得られた結果を核データ評価にフィードバックさせる方法や今後の研究の進め方について活発な意見交換を行った。3年間の全体会合の実施結果を表3.4-1にまとめる。

本研究の成果発表としては、2023年日本原子力学会春の年会において6件、2024年日本原子力学会春の年会において6件のシリーズ発表を行った。また、国際会議は、International Symposium on Zero Carbon Energy Systems (IZES)にて1件、6<sup>th</sup> International Workshop On Nuclear Data Evaluation for Reactor applications (WONDER2023)にて4件の発表を行った。

上記のように各機関の研究者が積極的に情報共有及び成果発表を行うことで、本研究を着実に推進した。

表 3.4-1 全体会合の実施状況

	開催日	開催場所	議題
令和3年度			
第1回	令和3年11月4日	オンライン	令和3年度の研究進捗状況の報告
第2回	令和4年2月8日	オンライン	令和3年度の研究実施状況の報告、令和4年度の業務計画
令和4年度			
第1回	令和4年7月8日	東京工業大学ゼロカーボンエネルギー研究所	令和3年度の成果報告 令和4年度の業務計画
第2回	令和4年11月16日	近畿大学	令和4年度の研究進捗状況の報告
第3回	令和5年3月3日	日本原子力研究開発機構	令和4年度の研究実施状況の報告、令和5年度の業務計画
令和5年度			
第1回	令和5年7月7日	東京工業大学ゼロカーボンエネルギー研究所	令和4年度の成果報告 令和5年度の業務計画
第2回	令和5年10月19日	京都大学 複合原子力科学研究所	令和5年度の研究進捗状況の報告
第3回	令和6年2月28日	日本原子力研究開発機構	令和5年度の研究実施状況の報告

」



#### 4. 結言

本研究課題では、革新型原子炉で核データの高度化の必要性が想定される代表的な構造材、核種を選定し、基盤データを取得するとともに、産業界からの要求に迅速且つ柔軟に対応し、必要な核データを高度化するスキームを構築することを研究目標として設定した。

革新型原子炉の開発状況から解決すべき核データの問題点を整理したところ、減速材の熱中性子散乱則データ (TSL) と構造材の荷電粒子放出反応断面積データの整備という二つの課題が挙げられた。TSL に関しては、最新の評価済核データライブラリ JENDL-5 において新規データが大幅に追加されたものの、革新型原子炉で使用が検討されている材料の中には未収納なものもあり、整備が必要である。荷電粒子放出反応断面積データに関しては、測定データが十分でないのが現状であり、熔融塩炉の場合、塩化物熔融塩に含まれる  $^{39}\text{K}(n, \alpha)$  反応により半減期 30 万年の  $^{38}\text{Cl}$  が生成されることが廃棄物管理上問題となっている。

このような背景から、TSL については水素化合物、黒鉛、フッ化物、塩化物等を対象に、J-PARC 等の施設を用いて全断面積測定、散乱断面積測定を実施した。得られたデータを解析して断面積及びそれらの温度依存性を導出した。また、取得した微分データを参照して、本研究で構築した評価システムを用いて評価を実施した。その結果、熱中性子散乱則データについては、黒鉛、水素化カルシウム、水素化イットリウム、塩化ナトリウムの 4 物質に対して核データファイルを整備することができた。特に、水素化カルシウムは革新型原子炉で減速材候補となっているにもかかわらず JENDL-5 には未収納であったが、本研究を通じて整備することができたことは特筆すべき成果である。一方、TSL を含む核データを検証するために、京都大学電子線型加速器 (KURNS-LINAC) 及び近畿大学原子炉 (UTR-KINKI) を用いた積分実験を実施した。KURNS-LINAC を用いた積分実験では、パルス中性子源を用いた 2 段階 TOF 法による熱中性子スペクトルの測定によって TSL の検証が行えることを示し、軽水、水素化合物、黒鉛、フッ化物、塩化物を対象にした積分実験を行い、それらの核データの妥当性を検証した。UTR-KINKI を用いた積分実験では、軽水、水素化合物、塩化物を対象にした試料反応度測定を行い、それらの核データの妥当性を検証した。さらに、本研究で新たに得られた水素化カルシウムの TSL が革新型原子炉の臨界性に与える影響についても評価を行った。

荷電粒子放出反応については、効率的に荷電粒子発生反応を測定するために試料を添加した薄いプラスチックシンチレータの作製方法を確立し、添加試料を加えたプラスチックシンチレータを製作した。作製した試料添加型シンチレータを用いて J-PARC/MLF 施設において測定を行い、 $^{63}\text{Cu}(n, p)^{63}\text{Ni}$  反応及び  $^{39}\text{K}(n, \alpha)^{36}\text{Cl}$  反応の共鳴面積上限値を算出した。その結果を参照し、 $^{39}\text{K}$ 、 $^{63}\text{Cu}$  の 2 核種に対して核データファイルを整備することができた。

本研究課題で取り上げた 2 つの課題に対して、多角的な視点から基盤データを取得することにより、核データを整備するためのスキームを構築することができた。本研究で検討した評価データは、今後、ホームページ等で公開する予定である。

本研究で開発された研究手法、測定技術、評価技術を一層強化させ、革新型原子炉の設計検討段階のニーズを積極的に取り込むことにより、迅速且つ柔軟な革新型原子炉開発の実現に繋がることが期待される。

## 参考文献

- (1) 若井 栄一、「これからの原子力システムを担う新原子力材料 次世代原子力システムのための材料開発の現状と課題」、日本原子力学会誌 ATOMOΣ/55 巻 (2013) 4 号 P. 235-244。
- (2) S. Petriw et al., “Porosity effects on the neutron total cross section of graphite”, Journal of Nuclear Materials 2010; 396: 181-188.
- (3) W.M.Good et al., “Neutron Total Cross Sections in the keV Region by Fast Time-of-Flight Measurements”, Phys. Rev. 109, 926 (1958).
- (4) W.M.Good et al., “Neutron Total Cross Sections in the keV Energy Range”, ORNL-4937, p.198 (1974).
- (5) K.H. Guber et al., “New neutron cross section measurements from ORELA and new resonance parameter evaluations”, Proc. Intern. Conf. Nuclear Data for Science and Technology, Nice, France, April 22-27, 2007, p.403 (2008); EDP Sciences, 2008.
- (6) H. Pomerance, “Thermal Neutron Capture Cross Sections”, Phys. Rev. 88, 412 (1952).
- (7) J. H. Gillette, “Thermal Neutron Reactions”, Prog.Rep.: Oak Ridge National Lab. Reports, No.4013, p.2 (1966).
- (8) R.L.Macklin, “Resonance Neutron Capture by  $^{39}\text{K}$ ”, Nucl. Sci. Eng. 88, 129 (1984).
- (9) R. B. Firestone, “Thermal neutron capture cross sections of the potassium isotopes”, Phys. Rev. C 87, 024605 (2013).
- (10) G. Lindstrom and H. Neuert, “Absolute Effective Cross Sections of the Reactions  $\text{K}^{39}(\text{n}, \text{p})\text{Ar}^{39}$  and  $\text{K}^{39}(\text{n}, \alpha)\text{Cl}^{36}$  with 2.6-MeV Neutrons”, Z. Naturforsch. 13a, 826 (1958).
- (11) M. Bormann et al., “Cross sections for 14 MeV neutrons in the scintillation crystals NaI(Tl), KI(Tl), CsI(Tl) and Li-6I(Eu) component nuclear reactions”, Z. Naturforsch., Section A, 15, 200 (1960).
- (12) W. R. Dixon and J. H. Aitken, “Absolute Cross Section Of The  $\text{K}^{39}(\text{n}, \text{p})\text{Ar}^{39}$  Reaction For 2.5-Mev Neutrons”, Nucl. Phys. 24, 456 (1961).
- (13) R. Bass et al., “Cross Sections for the Reactions  $^{39}\text{K}(\text{n}, \text{p})^{39}\text{Ar}$  and  $^{39}\text{K}(\text{n}, \alpha)^{36}\text{Cl}$ ”, Nucl. Phys. 56, 569 (1964).
- (14) P. B. Johnson et al., “The absolute cross sections of the  $^{39}\text{K}(\text{n}, \text{p})^{39}\text{Ar}$  and  $^{39}\text{K}(\text{n}, \alpha)^{36}\text{Cl}$  reactions for 2.46 MeV neutrons”, Nucl. Phys. A94, 617 (1967).
- (15) D. V. Aleksandrov et al., “(n,p) cross sections for Al-27, Si-28, P-31, Cl-35, K-39 and Cr-52 at 14.1 MeV”, Soviet Atomic Energy, 39, 736 (1975).
- (16) K. A. Foland et al., “The Production of  $^{38}\text{Ar}$  and  $^{39}\text{Ar}$  by 14-MeV Neutrons on  $^{39}\text{K}$ ”, Nucl. Sci. Eng. 95, 128 (1987).
- (17) F. Sudbrock et al., “Cross Sections for the Formation of Long-Lived Radionuclides  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{26}\text{Al}$  and  $^{36}\text{Cl}$  in 14.6 MeV Neutron Induced Reactions Determined via Accelerator

- Mass Spectrometry (AMS)”, *Radiochim. Acta* 88, 829 (2000).
- (18) X. Zhang et al., “Dispersion Relations for (n, n), (n, p), and (n,  $\alpha$ ) Reactions on  $^{39}\text{K}$  and  $^{40}\text{Ca}$ ”, *Phys. Rev. C* 61, 054607 (2000).
- (19) A. L. Toller and H. W. Newson, “Neutron Resonances in the Kilovolt Region, Potassium, Aluminum and Sodium”, EXFOR # 11394.006.
- (20) D. C. Stuepegia et al., “Neutron capture between 5 keV and 3 MeV”, *J. Nucl. Energy* 22, 267 (1968).
- (21) F. A. Ferreira, Jr. et al., “ $^{41}\text{K}(n, \gamma)^{42}\text{K}$  thermal and resonance integral cross section measurements”, *Radiochim. Acta* 100, 871 (2012).
- (22) J. R. Patterson and H. W. Newson, “Neutron Resonances in the Kilovolt Region. F, Cl-35, Cl-37, P.”, EXFOR # 11589.007.
- (23) R. L. Macklin, “Resonance Neutron Capture by  $^{35,37}\text{Cl}$ ”, *Phys. Rev. C* 29, 1996 (1984).
- (24) G. L. Molnar et al., “Accurate absolute intensities for the  $^{35}\text{Cl}(n, \gamma)$  reaction gamma-ray standard”, *Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. B* 213, 32 (2004).
- (25) P. E. Koehler, “ $^{35}\text{Cl}(n, p)^{35}\text{S}$  Cross Section from 25 meV to 100 keV”, *Phys. Rev. C* 44, 1675 (1991).
- (26) H. Alder et al., “Cross Section and Q-Value of the Cl-35(N, Alpha)-Reaction”, *Helvetica Physica Acta* 26, 349 (1953).
- (27) E. B. Paul and R. L. Clarke, “Cross Section Measurements of Reactions Induced by Neutrons of 14.5 MeV Energy”, *Can. J. Phys.* 31, 267 (1956).
- (28) R. S. Scanlan and R. W. Fink, “Activation Cross-Sections for Reactions of Chlorine and Copper with 14.8 MeV Neutrons”, *Nuclear Phys.* 9, 334 (1958).
- (29) E. Sansarbayar, “Cross sections for the  $^{35}\text{Cl}(n, \alpha)^{32}\text{P}$  reaction in the 3.3–5.3 MeV neutron energy region”, *Phys. Rev. C* 104, 044620 (2021).
- (30) H. Marshak and H. W. Newson, “Neutron Resonances in the Kev Region- Odd-Intermediate Nuclei”, *Phys. Rev.* 106, 110 (1957).
- (31) W. M. Good et al., “Total Cross Sections for Kilovolt Neutrons of Even-Odd Nuclei in the Region of the 3s Strength-Function Resonances”, *Phys. Rev.* 151, 912 (1966).
- (32) M. S. Pandey et al., “Neutron Total Cross Sections and Resonance Parameters of  $^{63}\text{Cu}$  and  $^{65}\text{Cu}$ . I”, *Phys. Rev. C* 15, 600 (1977).
- (33) J. Voignier et al., “Capture Cross Sections and Gamma-Ray Spectra from the Interaction of 0.5- to 3.0-MeV Neutrons with Nuclei in the Mass Range  $A = 45$  to 238”, *Nucl. Sci. Eng.* 112, 87 (1992).
- (34) T. B. Ryves, “Activation measurements of thermal neutron capture cross-sections and resonance integrals”, *Journal of Nuclear Energy*, 24, 35 (1970).
- (35) G. D. Kim et al., “Measurements of fast neutron capture cross sections on  $^{63}\text{Cu}$  and  $^{186}\text{W}$ ”, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 271, 553 (2007).
- (36) M. Weigand et al., “ $^{63}\text{Cu}(n, \gamma)$  cross section measured via 25 keV activation and

- time of flight” , Phys. Rev. C 95, 015808 (2017).
- (37) I. Newsome, et al., “Neutron radiative capture cross section of  $^{63,65}\text{Cu}$  between 0.4 and 7.5 MeV” , Phys. Rev. C 97, 044617 (2018).
- (38) N. I. Molla and S. M. Qaim, “A Systematic Study of (n, p) Reactions at 14.7 MeV” , Nucl. Phys. A283, 269 (1977).
- (39) D. L. Bowers and L. R. Greenwood, “Analysis of Long-Lived Isotopes by Liquid Scintillation Spectrometry” , J. Radioanal. Nucl. Chem. 123, 461 (1988).
- (40) S. M. Qaim et al., “Radiochemical Measurement of Excitation Function of  $^{63}\text{Cu}(n, p)^{63}\text{Ni}$  Reaction from 7.2 to 14.6 MeV” , Radiochim. Acta 73, 111 (1996).
- (41) K. Takamiya et al., “Excitation function for  $^{63}\text{Cu}(n, p)^{63}\text{Ni}$  reaction in neutron energy range up to 15 MeV” , Appl. Radiat. Isot. 66, 1321 (2008).
- (42) H. Liskien and A. Paulsen, “Cross-Sections for the Reactions  $\text{Cu}63(n, \alpha)\text{Co}60$ ,  $\text{Ni}60(n, p)\text{Co}60$ ,  $\text{Ti}46(n, p)\text{Sc}46$  And  $\text{Na}23(n, 2n)\text{Na}22$ ” , Nucl. Phys. 63, 393 (1965).
- (43) G. Winkler et al., “Measurement of Cross Sections for the  $^{63}\text{Cu}(n, \alpha)^{60}\text{Co}$  Reaction from Threshold to 10 MeV” , Nucl. Sci. Eng. 76, 30 (1980).
- (44) V. Semkova et al., “Measurement of the  $^{58}\text{Ni}(n, t)^{56}\text{Co}$ ,  $^{59}\text{Co}(n, p)^{59}\text{Fe}$ , and  $^{63}\text{Cu}(n, \alpha)^{60}\text{Co}$  Reaction Cross Sections from 14 to 20 MeV” , Proc. Intern. Conf. Nuclear Data for Science and Technology, Santa Fe, New Mexico, 26 September–1 October, 2004, AIP Conf. Proc. 769, 1019 (2005).
- (45) Yu. M. Gledenov et al., “Cross sections of the  $^{57}\text{Fe}(n, \alpha)^{54}\text{Cr}$  and  $^{63}\text{Cu}(n, \alpha)^{60}\text{Co}$  reactions in the MeV region” , Phys. Rev. C 89, 064607 (2014).
- (46) 金 政浩、中村 嵩之、渡辺 幸信「3D プリンタでのシンチレータの造形を目的とした UV 硬化樹脂の開発」日本原子力学会 2016 年春の年会
- (47) 新城優治、金政浩、納富昭弘「3D プリンタを用いたプラスチックシンチレータの高度化」放射線 Vol. 46, No. 1 (2020).
- (48) 平成 29 年度原子力の利用状況等に関する調査（革新的原子炉の研究開発動向等に関する調査）報告書、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 30 年 2 月
- (49) 平成 30 年度原子力の安全性向上に資する共通基盤整備のための技術開発事業（原子力に関する技術開発動向調査）報告書、一般財団法人エネルギー総合工学研究所、IAE-1818115、2019 年 2 月
- (50) 山脇道夫、”溶融塩炉開発の世界の動向と日本の歩み”、第 13 回高速炉戦略会議、METI、(2018).
- (51) R. Kimura et al., “The Conceptual Design of Heat-Pipe Cooled and Calcium Hydride Moderated vSMR,” Proc. Int. Congress Advances of Nuclear Power Plants (ICAPP2019), Juan-les-Pins, France, May 12–15, 2019.
- (52) 三菱 FBR システムズ株式会社、特開 2021-32861
- (53) O. Iwamoto et al., “Japanese evaluated nuclear data library version 5: JENDL-5”, J. Nucl. Sci. Technol., 60(1), 1–60 (2023).

- (54) D. A. Brown et al., “ENDF/B-VIII.0: The 8th Major Release of the Nuclear Reaction Data Library with CIELO-project Cross Sections, New Standards and Thermal Scattering Data”, Nuclear Data Sheets 148, 1-142 (2018).
- (55) A. J. M. Plompen et al., “The joint evaluated fission and fusion nuclear data library, JEFF-3.3”, Eur. Phys. J. A 56, 181 (2020).
- (56) Y. Abe, T. Tsuboi, S. Tasaki, “Evaluation of the neutron scattering cross-section for light water by molecular dynamics”, Nucl. Instrum. Meth. A, 735, 568-573 (2014).
- (57) A. Ichihara, JAEA-Review 2019-046 (2020).
- (58) A. I. Hawari, “Modern Techniques in Inelastic Thermal Neutron Scattering Analysis,” Nuclear Data Sheets 118, 172 (2014).
- (59) A. I. Hawari and V. H. Gillette, “Inelastic thermal neutron scattering cross sections for reactor-grade graphite,” Nuclear Data Sheets, 188, 176 (2014).
- (60) M. E. Rising et al., MCNP® Code Version 6.3.0 Release Notes. Los Alamos National Laboratory Tech. Rep. LA-UR-22-33103, Rev. 1. Los Alamos, NM, USA. January, (2023).
- (61) K. Shibata et al., “JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering,” J. Nucl. Sci. and Technol., 48(1), 1-30 (2011).
- (62) D. Siefman et al., “Pulsed-Neutron Die-Away Experiments for Plastics and Neutron Thermal Scattering Laws,” EPJ Web of Conferences 284, 17012 (2023).
- (63) T. Sato et al., “Features of Particle and Heavy Ion Transport Code System PHITS Version 3.02”, J. Nucl. Sci. Technol. 55, 684-690 (2018).
- (64) Y. Nagaya, K. Okumura, T. Sakurai and T. Mori, “MVP/GMVP Version 3 : General Purpose Monte Carlo Codes for Neutron and Photon Transport Calculations Based on Continuous Energy and Multigroup Methods,” JAEA-Data/Code 2016-018 (2017).
- (65) Arjan Koning, Robin Forrest, Mark Kellett, Robert Mills, Hans Henriksson, Yolanda Rugama, “‘The JEFF-3.1 Nuclear Data Library - JEFF Report 21’” NEA No. 6190, OECD 1, (2006).
- (66) A. Hara, T. Takeda and Y. Kikuchi, “SAGEP : Two-Dimensional Sensitivity Analysis Code Based on Generalized Perturbation theory,” JAERI-M 84-065, Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI), (1984) (in Japanese).
- (67) I. Al-Qasir, Y. Cheng, J. Lin et al., “Neutron thermalization in nuclear graphite: A modern story of a classic moderator”, Annals of Nuclear Energy 161, 108437 (2021).
- (68) 木村、浅野、鈴木、水素化物減速ヒートパイプ冷却超小型炉 MoveLuX の開発 (1) : 原子炉システム及び炉心コンセプト概要、日本原子力学会 2019 年春の年会、1J04、(2019).
- (69) P. Giannozzi, O. Barone, P. Bonfa et al., “Quantum ESPRESSO toward the exascale”, The Journal of Chemical Physics, 152, 154105 (2020).
- (70) A. Togo, I. Tanaka, “First principles phonon calculations in materials science”,

- Scripta Materialia 108, 1-5 (2015).
- (71) Winmostar V10, X-Ability Co. Ltd., Tokyo, Japan (2022).
- (72) R. E. MacFarlane, A. C. Kahler, "Methods for processing ENDF/B-VII with NJOY", Nuclear Data Sheets 111, 2739-2890 (2010).
- (73) 田原他、小型塩化物溶融塩高速炉の研究開発（1）核熱結合計算による炉内出力分布の評価、日本原子力学会 2022 年秋の大会、1G05、2022.
- (74) C. Robertson et al., "CONCEPTUAL DESIGN STUDY OF A SINGLE-FLUID MOLTEN-SALT BREEDER REACTOR," ORNL-4541, (1971).
- (75) Advances in Small Modular Reactor Technology Developments 2020 Edition, IAEA Advanced Reactors Information System (ARIS), (2020), <http://aris.iaea.org>