

# J-PARC を用いた核変換システム(ADS)の構造材の弾き出し損傷断面積の測定

(受託者)国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

(研究代表者) 明午 伸一郎 J-PARC センター

(再委託先) 大学共同利用機関法人 高エネルギー加速器研究機構

(研究期間)平成 28 年度～31 年度

## 1.研究の背景とねらい

### 1.1 背景

原子炉から生成される高レベル放射性廃棄物 (High Level Waste: HLW) は数万年という長期間にわたって放射性毒性を持つため、ガラス固化体として地上施設に数十年間保管した後、地下数百メートルの安定な地層中に埋設処分する計画とされている。しかしながら、HLW が有意な毒性を持ち続ける千年から百万年という年月を考えたとき、その有害度を合理的に達成可能な限り低減化することは人類において「負の遺産」を残さないための重要な課題である。この打開策の一つとして、加速器で得られる陽子ビームを未臨界高速炉心に入射する核変換システム (加速器駆動核変換システム (Accelerator Driven System: ADS)) の技術が国内のみならず世界的に注目され開発されている。日本原子力研究開発機構(Japan Atomic Energy Agency: JAEA)で提案する ADS は、1.5 GeV の高エネルギーの大強度陽子加速器(30 MW)と未臨界炉心を組み合わせた複合システムである。炉心には特に有害度の強いネプツニウム、アメリシウム等のマイナーアクチノイド (Minor Actinoid: MA) を含む核燃料を装荷し、ADS 1 基あたり原子炉 10 基から生じる MA を高速中性子発生用の核破砕標的や炉心で発生した中性子により毒性の弱い核種に変換する。廃棄物から有害度の高い MA を分離し本システムで燃焼させると、使用済み燃料のままでは天然ウランと同程度になるのが 10 万年も必要とされるところが、1/300 の約 300 年に短縮することができる。ADS では 30 MW の大強度の陽子ビームを鉛ビスマス合金などの標的に入射することが必要とされる。ADS の標的には大強度の陽子ビームが入射するため、標的の材料には大強度の陽子ビームに耐えられるものが必要とされる。ADS の成立性を評価する上で標的と加速器の境界となる入射窓の照射損傷を精度良く予測することが鍵となる。窓の健全性を評価する上で最も基礎的な物理量となるのが、原子炉などの放射線照射損傷量の指標として用いられる「原子あたりの弾き出し数 (Displacement Per Atom: DPA)」である。

DPA は入射粒子のフルエンスに弾き出し断面積を乗ずることで得られる。弾き出し断面積は、原子核を弾性体として近似する方法と原子核を陽子及び中性子の集合体と捉えた核内カスケードモデルの組み合わせによる計算が用いられる。弾き出し断面積の実験データは、しかしながら殆ど無く、数 GeV のエネルギー領域で唯一存在するのは米国ブルックヘブン国立研究所(Brookhaven National Laboratory: BNL)による 1 GeV 近傍の陽子に対する銅のはじき出し断面積データである。ADS の実現のためには、特に入射窓の候補となる鉄のデータが必要であるが、実験データが全くないために計算モデルの比較検討が行えない。このため、計算による損傷評価の信頼性が乏しく ADS の実現性評価のためには大きな障害となる。ADS の加速器の加速エネルギーは数百 MeV から数 GeV に亘るために、広いエネルギー範囲のデータが必要となる。更に、ADS では広い範囲の元素が使用されるために、広い元素にわたるシステムティックな計算モデルの精度検証が必要となる。

## 1.2 ねらい

本研究では数百 MeV～数 GeV の陽子加速が可能な J-PARC の加速器施設を用いて弾き出し断面積の測定を行い、得られた実験データと計算モデルの比較検討を行うことにより、計算モデルの精度向上を狙うことを目標とする。これにより ADS のビーム窓の設計信頼性を向上させ、ADS の実現性を更に高めることを狙う。

## 2.これまでの研究成果

### 2.1 弾き出し断面積測定手法

弾き出しの断面積は、照射試料を極低温(10 K 程度)に冷却し欠陥に伴う電気抵抗増加を測定することにより得られる。BNL で行われた実験<sup>(1)</sup>では液体ヘリウム冷媒を用いたため、取り扱いが煩雑な大型の装置が必要であった。そこで当グループでは様々な加速器施設での実験遂行のため、可搬型の小型冷凍機(ギフォード・マクマホン(Gifford-McMahon: GM)冷凍機)を用いた無冷媒による電気抵抗測定手法を開発した。陽子エネルギー(E)における弾き出し断面積( $\sigma(E)[\text{cm}^2]$ )は照射後の試料の抵抗率の変化( $\Delta\rho[\Omega\text{m}]$ )、試料上の陽子平均フルエンス( $\psi[\text{cm}^{-2}]$ )、及び原子中の欠陥当たりの抵抗率変化( $\rho_f[\Omega\text{m}]$ )により以下の式で得ることができる。

$$\sigma(E)=\Delta\rho/(\psi\cdot\rho_f) \dots\dots\dots (式 1)$$

弾き出し断面積測定は、BNL でも測定が行われたがビームの強度が弱く測定に時間を要し、またビームの安定性が悪いため測定に誤差は 20%程度と大きい。本測定では、試料に  $1\times 10^{14}$  個程度の陽子を入射する必要があるが、J-PARC のビーム強度は BNL の約千倍の強度となり、わずか数ショットのビームで簡単に測定ができる。さらに J-PARC の加速器はビームも安定しており、数%程度の誤差でビームを計測することが可能である。J-PARC では様々な施設の利用者に中性子等の二次ビームを常時供給しているため、これを障害する長時間の停止はできないが、本測定は僅か数秒間の試料照射により弾き出し断面積を得ることができる。常に試料がビームに照射されると通常のビーム利用運転を障害するため、利用運転時において試料をビームから退避することが要求される。このために本研究では試料の駆動装置を設け、照射時間を管理可能なものとする。

本実験は 3 GeV シンクロトロン (Rapid Cycling Synchrotron: RCS)及び 30 GeV シンクロトロン (Main Ring: MR)で行う。シンクロトロンでは、ビーム取り出し用のキッカ電磁石を励磁しビームを取り出す。キッカ電磁石の励磁のタイミングを加速途中とすることで様々なエネルギーの取り出しが可能となる。RCS の加速途中のビームの取出しは加速器のビーム試験として既に行っており、任意のエネルギーを持つ陽子ビームをダンプまで輸送することが可能である。MR では 8 GeV ビームの取り出しが計画されており、今年度には取り出す予定である。

本研究では、JAEA のグループが J-PARC センターの RCS を使い、0.4～3 GeV 領域の断面積測定を行う。KEK のグループが同センターの MR を使い、3～30 GeV 領域の断面積測定を行う。平成 28 年度から必要な機器の調達を開始し、実験の準備を行った。

### 2.2 実験に必要なビーム条件の検討

京都大学において共同実験者等が実施した同様な実験<sup>(2)</sup>から、実験に必要な条件を検討した。この実験では、125 MeV の陽子ビーム(電流 約 1 nA、 $6.2\times 10^9$  個/秒)を 12 K に冷却された銅試

料に 12 時間照射し、これを 3 回繰り返した。入射における銅試料の電気抵抗と温度の時間的振る舞いを測定した(図 1)。照射 1 回あたりに用いた陽子の総数は  $3 \times 10^{14}$  個となり、J-PARC で実験する場合でも約  $3 \times 10^{14}$  個の入射陽子が必要なことが分かった。京都大学で実施した実験では、ビーム入射に伴う試料中に生じた損傷が、熱運動により回復するのを防止するため、照射中の温度を低くして実施したが、J-PARC の場合には長期間の実験が困難となることが想定されるために、損傷の回復が顕著とならない照射中の許容できる温度評価が必要となる。

上記実験では照射後の銅試料を昇温(アニール)し、電気抵抗率変化を測定した(図 2)。銅試料の温度が 30 K 以下の場合には、損傷の回復が顕著とならないことが判明し、J-PARC における実際の測定では銅試料の温度が 30 K を超えない場合には問題ないことがわかる。詳細な条件は温度解析等を実施して評価する必要があるが、京都大学の実験結果より 30 nA 程度( $1.8 \times 10^{11}$  個/秒)の電流で約 30 分程度の照射でデータが取得できると考えられる。なお、本実験では試料の温度を可能な限り下げることが重要となるために、測定で用いる冷凍機は市販品で可能な限りの能力が高い住友重機社製冷凍機 RDK-415D: 冷凍能力 1.5W を選定した。

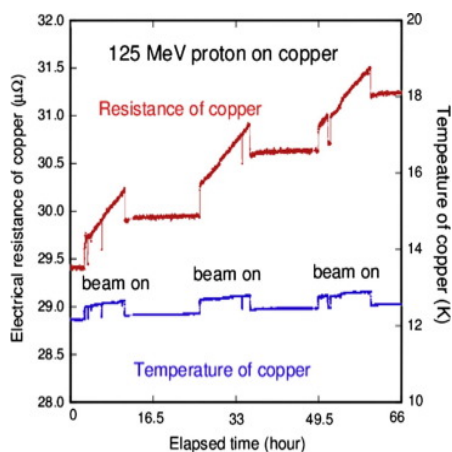


図 1 125 MeV 陽子入射における銅試料の電気抵抗と温度の時間的振舞い

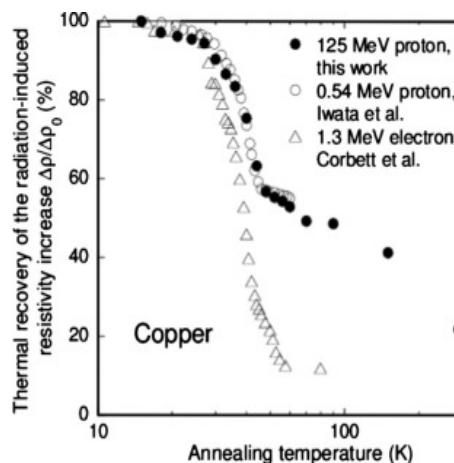


図 2 照射後のアニールによる銅試料の温度と電気抵抗率変化

### 2.3 安全性評価

実験に関する安全性に関して評価を行った。PHITS コード<sup>(3)</sup>を用いて実験の放射線の安全の確認を行った。上記ビーム条件と図 3 に示す体系を用いて、照射後の試料の線量率を評価した。この結果、照射後の線量率は十分に低く問題ないことを確認した。ビーム損失を抑えるため、試料冷却のために用いる輻射熱シールドには、図 3 に示す薄いアルミ窓を用いることとし、装置全体の陽子ビームの相互作用を減らす構成とした。また、PHITS コードによる発熱密度を用いて、照射中の試料の温度を評価した。冷凍機

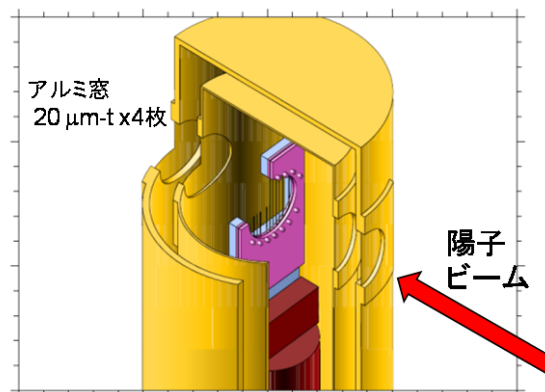


図 3 安全評価の検討に用いた PHITS コードにおける装置体系図

が停止した状態でも試料の溶融の可能性が無い事を確認した。JAEA のグループの試験では、1 MW の大強度陽子ビームが試料を通過する可能性があるため、この防止のため施設全体のインターロック変更を行う事となった。このために、放射線許認可変更申請が必要となり、これを行う事とした。許認可変更申請は同時に申請する他の案件の申請のため遅れてしまい、現在(平成 30 年 1 月現在)において変更申請の許可を待っている。

## 2.4 冷却試験・真空試験

実験に用いる GM 冷凍機及び電気抵抗測定機器、更に実験に用いる真空チェンバを製作し、試料の冷却試験を行った。その結果、約 8 時間程度で温度が飽和することが確認された。JAEA グループの装置では、試料付近の温度は 20 K 程度と十分冷却できることを確認した。

ターボ分子ポンプを用いてチェンバを真空引きし、真空試験を実施した。ヘリウムリークディテクタにより漏れが無い事を確認した。装置表面からガスが放出されるため真空引き開始後は、圧力が高いものの、約一週間程度の真空引きによるガス出しにより到達圧力は  $3 \times 10^{-6} \text{Pa}$  と十分に低くなることを確認し、加速器の真空に対し影響を与えない事がわかった。この確認の後に、JAEA グループの実験装置をビームラインへ設置した(図4)。既に、設置状態で試料の抵抗が問題なく読み出せることを確認しており、またインターロックの検査等を終了しており実験に必要な準備作業を終えることができた。

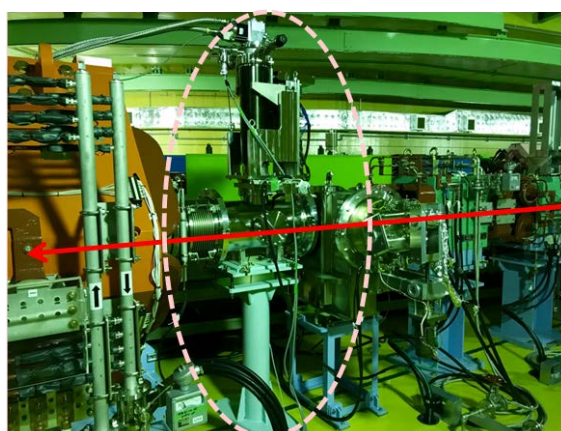


図4 3 GeV ビームラインに取り付けた装置

## 3.今後の研究

既に JAEA のグループが行う実験の装置はビームラインに取り付けられており、放射線変更申請が完了を待っている。変更申請が終了した後に本年度より 3 GeV 陽子に対する実験を行う予定としている。また、KEK のグループ行う実験の装置は 30 GeV 陽子ビームラインに設置する真空チェンバの製作を行っており、チェンバの完成後に低温試験及び真空試験を実施する予定である。

今後、J-PARC センターの加速器を用いて断面積測定を行い、測定で得られた断面積と PHITS コード等の計算による断面積の比較検討を実施し、コードの高度化を行う予定である。

## 4.参考文献

- (1) Greene, G.A., et al., Proc. of Sixth International Meeting on Nuclear Applications of Accelerator Technology (AccApp'03), Ja Grange Park, Illinois, USA, 2004, p. 881–892 (2004).
- (2) Iwamoto, Y., et al., “Measurement of the displacement cross-section of copper irradiated with 125 MeV protons at 12 K”, J. Nucl. Mater., 458 pp. 369-375 (2015).
- (3) Niita, K., et al., “PHITS: particle and heavy ion transport code system, version 2.23”, JAEA-Data/Code 2010-022 (2010).