

令和2年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業  
国家課題対応型研究開発推進事業

核変換システム開発のための長寿命MA核種の  
高速中性子捕獲反応データの精度向上に  
関する研究

成果報告書

令和3年3月

国立大学法人 東京工業大学

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、国立大学法人 東京工業大学が実施した平成29年度～令和2年度「核変換システム開発のための長寿命MA核種の高速中性子捕獲反応データの精度向上に関する研究」の成果を取りまとめたものです。

## 目次

概略	vii
1. はじめに	1
2. 業務計画	2
2.1 全体計画	2
3. 実施内容及び成果	4
3.1 中性子フィルター装置の開発（再委託先：原子力機構）	4
3.1.1 開発の必要性と原理	4
3.1.2 フィルター装置の設計と製作【H29-H30】	5
3.1.3 ANNRIでの評価試験【R1-R2】	5
3.1.4 東工大ペレトロン加速器を用いた評価試験【R1-R2】	6
3.1.5 中性子フィルター装置の評価と使用するフィルターの選定【H29-H30】	7
3.1.6 透過中性子のエネルギー分布の導出【R2】	7
3.1.7 金断面積の導出による検証【R2】	8
3.1.8 まとめ	9
3.2 NaI 検出器を用いた中性子捕獲断面積の測定	21
3.2.1 J-PARC/MLF/ANNRI NaI 検出器の概要	21
3.2.2 高速データ収集技術の開発【H29-H30】	21
3.2.3 試料回転装置を用いた測定【H30-R1】	21
3.2.4 中性子捕獲断面積の測定【R1-R2】	22
3.2.5 まとめ	26
3.3 MA 試料中の Pu 分析技術の開発（再委託先：京都大学）	33
3.3.1 不純物 Pu 分析の概要	33
3.3.2 質量分析装置の真空系及びフィラメント温度制御系の高度化のための改良とその検証【H29】	33
3.3.3 Pu 分析標準試料の整備【R1】	34
3.3.4 本研究で分析する MA 試料	34
3.3.5 $\alpha$ 線観測による MA 試料の分析【H30】	34
3.3.6 Pu を添加する前の MA 試料の TIMS 分析【R1】	35
3.3.7 Pu を添加した MA 試料の TIMS 分析【R2】	36
3.3.8 ホウ酸試料中のホウ素同位体組成分析【H30】	36
3.3.9 まとめ	37

3.4	MA 核データファイルの整備（再委託先：JAEA）	46
3.4.1	スペクトル導出法の開発【H29-H30】	46
3.4.2	核反応理論解析【R1】	46
3.4.3	$^{237}\text{Np}$ に対する中性子捕獲断面積と共分散の評価【R1-R2】	46
3.4.4	$^{243}\text{Am}$ に対するガンマ線強度関数と遷移強度の評価【R2】	48
3.4.5	$^{243}\text{Am}$ に対する中性子捕獲断面積と共分散の評価【R2】	49
3.4.6	まとめ	49
3.5	研究推進	57
4.	結言	59

## 表 一 覧

表 3-1:	製作したフィルター材質、厚さ、透過中性子エネルギー . . . . .	10
表 3-2:	ANRRI での評価試験の諸条件 . . . . .	10
表 3-3:	評価に利用した中性子エネルギーでの透過率及びバックグラウンドの比率	11
表 3-4:	検証実験で導出した Au の断面積と JENDL-4.0 との比較 . . . . .	11
表 3-5:	MA 試料の諸元 . . . . .	27
表 3-6:	$^{237}\text{Np}$ の中性子捕獲断面積測定値 . . . . .	27
表 3-7:	$^{243}\text{Am}$ の中性子捕獲断面積測定値 . . . . .	27
表 3-8:	$^{242}\text{Pu}$ 標準試料の分析結果 . . . . .	38
表 3-9:	MA 試料のプロファイル (ミルシート記載分) . . . . .	38
表 3-10:	MA 試料の濃度評価結果 . . . . .	39
表 3-11:	$^{237}\text{Np}$ 試料の分析結果-1 . . . . .	39
表 3-12:	$^{243}\text{Am}$ 試料の分析結果-1 . . . . .	39
表 3-13:	$^{237}\text{Np}$ 試料中の Pu の分析結果 . . . . .	40
表 3-14:	$^{243}\text{Am}$ 試料中の Pu の分析結果 . . . . .	40
表 3-15:	$^{238}\text{Np}$ の $E1$ 放射に対するガンマ線強度関数パラメータ . . . . .	50
表 3-16:	$^{238}\text{Np}$ の $M1$ 放射に対するガンマ線強度関数パラメータ . . . . .	51
表 3-17:	$^{244}\text{Am}$ の $E1$ 放射に対するガンマ線強度関数パラメータ . . . . .	51
表 3-18:	$^{244}\text{Am}$ の $M1$ 放射に対するガンマ線強度関数パラメータ . . . . .	51
表 3-19:	打合会の内訳 . . . . .	58

## 図 一 覧

図 2-1:	年度別全体計画 . . . . .	3
図 2-2:	ANNRI . . . . .	3
図 3-1:	ANNRI と他の実験施設での中性子強度との比較 [1] . . . . .	12
図 3-2:	ダブルバンチモードのイメージ図 . . . . .	12
図 3-3:	Si の全断面積 (JENDL-4.0 より) . . . . .	13
図 3-4:	ロータリーコリメータとフィルター設置時の様子 . . . . .	13
図 3-5:	Bi フィルターの写真 . . . . .	14
図 3-6:	ANNRI での評価試験で使用了 Li ガラス検出器 . . . . .	14
図 3-7:	Fe フィルター厚さ 20 cm での GS-20 検出器と GS-30 検出器の TOF スペクトル . . . . .	15
図 3-8:	Fe フィルターの中性子透過率 . . . . .	15
図 3-9:	Al フィルターの中性子透過率 . . . . .	16
図 3-10:	ペレトロン加速器を用いた評価試験の様子 . . . . .	16
図 3-11:	ペレトロン加速器を用いた試験で導出した Fe フィルターの中性子透過率 . . . . .	17
図 3-12:	ペレトロン加速器を用いた試験で導出した Al フィルターの中性子透過率 . . . . .	17
図 3-13:	ペレトロン加速器と ANNRI での試験で導出した Fe 及び Al での透過率の比較 . . . . .	18
図 3-14:	Fe フィルターを透過した中性子の TOF スペクトルの実験値と計算値の比較 . . . . .	18
図 3-15:	Si フィルターを透過した中性子の TOF スペクトルの実験値と計算値の比較 . . . . .	19
図 3-16:	Fe フィルターの透過中性子のエネルギー分布 . . . . .	19
図 3-17:	Si フィルターの透過中性子のエネルギー分布 . . . . .	19
図 3-18:	Cr フィルターの透過中性子のエネルギー分布 . . . . .	20
図 3-19:	検証実験で導出した Au の断面積と JENDL-4.0 との比較 . . . . .	20
図 3-20:	J-PARC/MLF/ANNRI NaI 検出器 . . . . .	28
図 3-21:	試料を傾けたときの厚さの変化 . . . . .	28
図 3-22:	$^{237}\text{Np}$ 試料を回転させたときの第一共鳴のピーク高さの変化比 $R$ . . . . .	29
図 3-23:	$^{237}\text{Np}$ 測定の飛行時間スペクトル . . . . .	29
図 3-24:	$^{237}\text{Np}$ 測定の波高スペクトルと時間に依存しないバックグラウンド . . . . .	30
図 3-25:	時間に依存しないバックグラウンドを除去した $^{237}\text{Np}$ 測定の波高スペクトルと各種バックグラウンドとの比較 . . . . .	30
図 3-26:	$^{237}\text{Np}$ の中性子捕獲断面積の測定結果と過去の実験値、評価値との比較 . . . . .	31
図 3-27:	$^{243}\text{Am}$ の中性子捕獲断面積の測定結果と過去の実験値、評価値との比較 . . . . .	31
図 3-28:	$^{243}\text{Am}$ の中性子捕獲断面積の測定結果と再規格化した過去の実験値との比較 . . . . .	32
図 3-29:	Pu の添加による MA 試料中の Pu 分析の概念図 . . . . .	40
図 3-30:	表面電離型質量分析装置 (Thermal Ionization Mass Spectrometer : TIMS) . . . . .	41
図 3-31:	Pu 標準試料のマススペクトル . . . . .	41

図 3-32:	MA 試料の $\alpha$ 線スペクトル . . . . .	42
図 3-33:	$^{237}\text{Np}$ 試料観測時で得たマススペクトル . . . . .	42
図 3-34:	$^{243}\text{Am}$ 試料観測時で得たマススペクトル . . . . .	43
図 3-35:	$^{242}\text{Pu}$ の添加による $^{237}\text{Np}$ 試料での $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の変化 . . . . .	43
図 3-36:	$^{242}\text{Pu}$ の添加による $^{243}\text{Am}$ 試料での $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の変化 . . . . .	44
図 3-37:	Na 系での B のマススペクトル . . . . .	44
図 3-38:	B 試料の同位体組成分析結果 . . . . .	45
図 3-39:	PHITS で計算した 6 MeV の入射ガンマ線に対する NaI 検出器の応答関数	52
図 3-40:	PHITS で計算した NaI 検出器の応答関数 . . . . .	52
図 3-41:	$^{237}\text{Np}$ の中性子捕獲ガンマ線スペクトルと理論解析により得られたスペク トル . . . . .	53
図 3-42:	$^{237}\text{Np}$ に対する中性子捕獲断面積と共分散評価結果 . . . . .	53
図 3-43:	$^{243}\text{Am}$ に対する共鳴捕獲断面積とスピン . . . . .	54
図 3-44:	$^{243}\text{Am}$ の捕獲断面積評価に用いたガンマ線強度関数 . . . . .	54
図 3-45:	$^{243}\text{Am}$ に対する共鳴スピン $J = 2$ と 3 の PH ガンマ線スペクトルの評価結果	55
図 3-46:	$^{243}\text{Am}$ に対する Fe フィルタを用いた PH ガンマ線スペクトルの評価結果 .	55
図 3-47:	$^{243}\text{Am}$ に対する中性子捕獲断面積と共分散評価結果 . . . . .	56

## 略語一覧

- ADC:** Analog-to-Digital Converter (アナログデジタル変換器)
- ADS:** Accelerator Driven System (加速器駆動型システム)
- ANNRI:** Accurate Neutron Nucleus Reaction Instrument (中性子核反応測定装置)
- CAEN:** Costruzioni Apparecchiature Elettroniche Nucleari
- CERN:** European Organization for Nuclear Research (欧州原子核研究機構)
- ENDF/B-V:** United States Evaluated Nuclear Data File Version 5 (米国の評価済核データファイル第5版)
- ENDF/B-VIII:** United States Evaluated Nuclear Data File Version 5 (米国の評価済核データファイル第8版)
- IAEA:** International Atomic Energy Agency (国際原子力機関)
- IUPAC:** International Union of Pure and Applied Chemistry (国際純正・応用化学連合)
- J-PARC:** Japan Proton Accelerator Research Complex (大強度陽子加速器施設)
- JAEA:** Japan Atomic Energy Agency ((独)日本原子力研究開発機構)
- JENDL:** Japanese Evaluated Nuclear Data Library
- LANL:** Los Alamos National Laboratory (ロスアラモス国立研究所)
- LANSCCE:** Los Alamos Neutron Science Center (ロスアラモス中性子科学センター)
- LLNL:** Lawrence Livermore National Laboratory (ローレンスリバモア国立研究所)
- MLF:** Materials and Life Science Facility (物質・生命科学実験施設)
- MA:** Minor Actinide (マイナーアクチニド)
- OECD/NEA:** Organization for Economic Co-operation and Development/Nuclear Energy Agency (経済協力開発機構/原子力機関)
- NIST:** National Institute of Standards and Technology (アメリカ国立標準技術研究所)
- PH:** Pulse Height (波高)
- RIPL-3:** Reference Input Parameters Library: Phase III (核反応模型計算用入力パラメータデータベース第3版)
- SD:** Standard Deviation (標準偏差)
- TIMS:** Thermal Ionization Mass Spectrometer (表面電離型質量分析計)
- TOF:** Time Of Flight (飛行時間)

## 概略

原子力発電により排出される放射性廃棄物の減容及び有害度低減のために群分離・核変換処理が重要な選択肢として検討されてきた。特に潜在的有害度の高い長寿命マイナーアクチニド (MA) 核種を短寿命もしくは安定化するために核変換システムの研究が進められている。核変換システムは、中性子誘起核反応により長寿命核種を短寿命もしくは安定核種に変換するものである。これにより核廃棄物の減容、有害度低減、管理期間の短縮が可能となる。これまで高速炉や加速器駆動型システム (ADS) などの革新的原子力システムによる核変換が検討されてきた。特に我が国では ADS は MA 核変換の有力な候補として研究が活発に実施されている。

しかし、核変換システム研究は、未だ多くの克服すべき技術的課題を抱えている。その一つが設計に必要な中性子核反応データの精度不足である。核変換システムを実現するには核変換効率を上げつつ、十分な裕度を持ってシステムを設計し、安全性を確保しなくてはならない。これまでの研究から、 $N_p$ , Am, Cm 同位体の高速中性子エネルギー領域の MA 核データ、具体的には核分裂断面積、中性子捕獲断面積、中性子非弾性散乱断面積等の精度を大幅に改善する必要があることが分かっている。特に重要な高速中性子領域については、高精度化が技術的な困難さから進んでいない。

そこで、本研究課題では核変換システム開発に必要とされる高速中性子エネルギー領域における MA の中性子捕獲断面積の精度向上を目的とした。現状では核変換システムで特に必要とされる 0.5-500 keV のエネルギー領域において評価誤差は 10% 以上もある。また、測定自体が少なく、測定値間でも食い違いが生じており、信頼性が高くかつ高精度の測定が必要となる。本研究ではこれら MA 核種の現状誤差を半減し、目標精度を 5% 程度 (現状誤差 10% の場合、それより大きい場合は半減) として高精度化を目指す。

本研究では MA の中性子捕獲断面積精度の向上のために J-PARC 物質・生命科学実験施設 (MLF) の核破砕中性子源からの大強度パルス中性子ビームを用いた捕獲断面積測定を実施する。J-PARC の大強度中性子ビームを用いることで MA の中性子捕獲断面積の高精度化が可能になる。J-PARC の中性子ビームは強度が非常に強いため、過去の測定よりもずっと少ない 10 分の 1 程度の試料で測定が可能である。したがって、崩壊ガンマ線バックグラウンドの影響を低減でき、中性子捕獲断面積の高精度化が原理的に可能となる。しかも、世界最高のパルス中性子束強度であるため、欧米の施設に比較し、高い統計精度のデータ取得が期待できる。

しかしながら、J-PARC で中性子捕獲断面積の測定を行うには以下の課題を克服する必要がある。

**課題 1** J-PARC 陽子ビームのダブルパルス構造による断面積不確かさの増大

**課題 2** 大強度中性子場でのガンマ線測定のためのデータ収集系の高速化

**課題 3** 系統誤差の主因である MA 試料中不純物の定量

課題 1 は J-PARC の加速器の運転モードに関連した問題である。J-PARC/MLF では発生中性子量を増やすためにダブルパルスモードと呼ばれる運転を通常行っており、25 Hz のサイクルで中性子を発生させている。ダブルパルスモードは中性子発生時に 100 ナノ秒程度の幅の陽子パルス 2 つを 600 ナノ秒の時間差をおいて核破砕ターゲットに入射させている。そのため、ひとつの

飛行時間チャンネルに2つの中性子エネルギーが混在するという問題が生じる。そこで中性子フィルター法を J-PARC の高強度中性子ビームに適用することで課題1の解決を図る。中性子フィルターにより特定のエネルギーの中性子が選り出されるため、異なるエネルギーの中性子が同じ飛行時間チャンネルで観測されるということはない。

課題2のデータ収集系の高速化は、J-PARC の特徴である中性子ビーム強度を最大限活用し、断面積の統計精度を向上させるためには、不可欠である。本研究ではデジタル波形取込み処理を活用し、高い計数率でも測定可能な計測システムを開発する。これにより、捕獲断面積測定に使用している NaI 検出器の高速化が可能となり、予想される計数率に十分対応可能となる。

課題3の試料起因の誤差は、高速中性子エネルギー領域に限らず放射性試料の断面積測定全般で大きな系統誤差要因となる。放射性試料は絶対量が少なく、また放射性であるため重量測定による高精度決定は難しい。混入した不純物の同定も必要である。本研究では高精度計量可能な表面電離型質量分析計 (TIMS) を用いて MA 試料中の不純物定量技術を確認し、試料起因の系統誤差を1%以下に低減する。

さらに上記の課題克服に加え、本研究で得られた測定データを最大限活用し、誤差を含む MA 核データファイルを整備する。本研究課題で利用する NaI 検出器は中性子捕獲断面積だけではなく、捕獲ガンマ線スペクトルの測定が可能である。現在、MA 核種に対する捕獲ガンマ線スペクトルの測定データはほとんど存在しないため、MA 核種に対する捕獲反応の理論モデルに関わる不確かさが大きい。本研究で捕獲ガンマ線スペクトルを核反応理論モデルと比較することでガンマ線放出に関わる理論モデルの不確かさを低減することが可能である。

以上の課題を克服し、研究目標である MA の高速中性子捕獲断面積データの高精度化を達成するために次の4つの項目、(1) 中性子フィルター装置の開発、(2) NaI 検出器を用いた中性子捕獲断面積の測定、(3) MA 試料中の Pu 分析技術の開発、(4) MA 核データファイルの整備、に分けて研究を実施した。

4年の研究期間における各項目の実施内容は以下の通りである。

項目(1)は、中性子フィルターの設計・製作を行った。J-PARC/MLF/ANNRI 及び東京工業大学 (以下、東工大) のペレット加速器で評価試験を行い、特定のエネルギー中性子のみを選択的に取り出し、単色中性子源として機能することを確認した。中性子フィルターの核破砕中性子源への適用は世界で初めてであり、これにより J-PARC 陽子ビームのダブルバンチ運転による問題を解決し、高精度な断面積測定が可能となった。

項目(2)は、NaI 検出器を用いて MA 試料の中性子捕獲反応実験を行った。J-PARC の高強度中性子ビーム及び放射性試料からの崩壊ガンマ線により引き起こされる高計数率環境下でも計測が行えるよう NaI 検出器からの信号の高速データ収集技術を開発した。中性子フィルター装置を用いて  $^{237}\text{Np}$  及び  $^{243}\text{Am}$  の測定を行い、得られた実験データを解析して中性子捕獲断面積を導出した。得られた測定値は目標精度5%を達成し、過去の測定値よりも高い精度で断面積を決定した。特に  $^{243}\text{Am}$  は、過去の測定では試料からの強い崩壊ガンマ線のために回路系に負荷がかかり信頼性の低い結果となっていた。本研究の測定では高速データ処理のおかげで信頼性の高い測定を行うことができた。 $^{243}\text{Am}$  の高速中性子エネルギー領域での測定は1985年以降なされておらず、本研究による捕獲断面積の高精度化は36年ぶりになされた快挙である。また、本研究で使用した MA 試料は物質質量や不純物が定量的に測定・評価されており、過去の測定に比べ試料起因の不確かさが小さいことも強調すべき点である。

項目(3)は、系統誤差要因となる MA 試料中に含まれる Pu 不純物の高精度分析を行った。分

析には京都大学複合原子力科学研究所の表面電離型質量分析装置（TIMS）を使用した。Pu 分析時の高イオン電流負荷に対応するため TIMS を改良した。MA 試料中に含まれる Pu 不純物の定量に適用するため、Pu 分析標準試料を整備した。改良した TIMS 及び標準 Pu 試料を用いて MA 試料の Pu 不純物の分析を行った。結果として目標精度 1%以下で不純物の定量ができた。これにより、過去の測定でしばしば見過ごされている不純物起因の不確かさを取り除くことができた。

項目 (4) は、NaI 検出器による測定で得られたガンマ線スペクトルを核データ評価に反映させるためにスペクトル導出法を開発した。スペクトル導出法の開発によりガンマ線スペクトルを核データ評価に積極的に活用できるようになった。本研究の測定で得られた MA の捕獲断面積及びガンマ線スペクトルを基に、高速中性子エネルギー領域における捕獲断面積の評価を行った。結果として、 $^{237}\text{Np}$  及び  $^{243}\text{Am}$  に対して、KALMAN コードで行った共分散評価により捕獲断面積の精度は概ね 5%以下もしくは従来不確かさの半分以下とすることができた。

## 1. はじめに

原子力発電により排出される放射性廃棄物の減容及び有害度低減のために群分離・核変換処理が重要な選択肢として検討されてきた。特に潜在的有害度の高い長寿命マイナーアクチニド (MA) 核種を短寿命もしくは安定化するために核変換システムの研究が進められている。核変換システムは、中性子誘起核反応により長寿命核種を短寿命もしくは安定核種に変換するものである。核廃棄物の減容、有害度低減、管理期間の短縮が可能となる。これまで高速炉や加速器駆動型システム (ADS) などの革新的原子力システムによる核変換が検討されてきた。

しかし、核変換システムは実現までに未だ多くの克服すべき技術的課題を抱えている。その一つが設計に必要な中性子核反応データの精度不足である。核変換システムを実現するには十分な裕度を持ってシステムを設計し、安全性を確保しなくてはならない。計算によって得られた安全性パラメータには当然のことながら MA の中性子核反応断面積等の核データ誤差が反映される。残念ながら、現状の MA の核反応データは設計の要求精度を満たしているとは言い難い。経済協力開発機構原子力機関 OECD/NEA は、作業部会 SG26 を立ち上げ、ADS、高速炉等の核変換システムに必要とされる核データについて検討を行った。検討の結果、高速中性子エネルギー領域の MA 核データ、具体的には核分裂断面積、中性子捕獲断面積、中性子非弾性散乱断面積等の精度を大幅に改善する必要があることが分かった。

そこで、本研究では核変換システム開発に必要とされる高速中性子エネルギー領域における MA の中性子捕獲断面積の精度向上を目的とした。核変換システムで特に必要とされる 0.5-500 keV のエネルギー領域において評価誤差は 10% 以上もある。また、測定自体が少なく、測定値間でも食い違いが生じている。したがって、本研究ではこれら MA 核種の現状誤差を半減し 5% 程度 (現状誤差 10% の場合、それより大きい場合は半減) の精度達成を目指す。

## 2. 業務計画

### 2.1 全体計画

核変換システム開発に必要なとされる高速中性子エネルギー領域における MA の中性子捕獲断面積の精度向上を目指し、高速中性子エネルギー領域での捕獲断面積データを高精度に測定できる技術を開発するとともに、これを適用した断面積測定結果を反映した核データ評価を行うことにより、信頼性の高いデータを整備することを目的とする。

本研究課題は、研究目標である MA の高速中性子捕獲断面積データの高精度化を達成するために次の4つの項目、(1) 中性子フィルター装置の開発、(2) NaI 検出器を用いた中性子捕獲断面積の測定、(3) MA 試料中の Pu 分析技術の開発、(4) MA 核データファイルの整備、に分けて研究を実施する。年度別の全体計画を図 2-1 に示す。(1)「中性子フィルター装置の開発」は、原子力研究開発機構（以下、原子力機構）が担当し、中性子フィルター装置の開発を行う。J-PARC/ANNRI のビームラインに適した中性子フィルター装置を設計・製作し、ANNRI に設置し、中性子フィルター装置を用いた際の高速中性子エネルギー領域の中性子スペクトルの測定を行う。図 2-2 に ANNRI の全体図を示す。

(2)「NaI 検出器を用いた中性子捕獲断面積の測定」は、東工大が担当する。J-PARC/ANNRI の NaI 検出器を用いて MA 核種の高速中性子捕獲断面積の測定を行う。NaI 検出器は Ge 検出器よりも時間的に応答の速い検出器であり、高速中性子エネルギー領域での測定に適している。捕獲ガンマ線波高スペクトルから波高重み法により中性子捕獲断面積の導出が可能である。予想される高い計数率、高エネルギーでの測定を可能にするために高速信号処理法の開発・試験をまず行い、その後、J-PARC/ANNRI での本格的な捕獲断面積測定に使用する。

(3)「MA 試料中の Pu 分析技術の開発」は京都大学が担当する。MA 試料中の Pu 不純物の定量手法を開発し、試料起因の系統誤差の低減を行う。定量には高精度計量可能な表面電離型質量分析装置を使用する。Pu 標準試料と MA 試料の混合比を変えた試料を数種類作製し、 $^{242}\text{Pu}$  の強度変化から MA 試料に含まれる Pu 不純物量を算出する。

(4)「MA 核データファイルの整備」は、原子力機構が担当する。MA 核種の核データ評価に関して、まず、測定された捕獲ガンマ線スペクトルと核反応理論モデルで計算したものととは直接比較できないため、これを比較可能とするためのスペクトル導出手法を開発する。これを用いて理論モデル計算の精度向上に必要な情報を抽出し、断面積の予測精度を高め、高速中性子エネルギー領域における中性子捕獲断面積を導出する。誤差を含む MA 核種の核データファイルを整備する。

項目	年度	平成29年度	平成30年度	平成31年度	令和2年度
① 中性子フィルター装置の開発 (原子力機構)		← 中性子フィルター的设计・製作		← 中性子スペクトルの測定	
② NaI検出器を用いた中性子捕獲 断面積の測定 (東京工业大学)		← 高速信号処理 法の開発	← データ収集系の試験 試料回転装置の製作	← 試料回転装置の試験、 J-PARCでの断面積測定・解析	← J-PARCでの断面積測定・解析
③ MA試料中のPu分析技術の開発 (京都大学)		← MA試料分析手法の開発	← MA試料分析手法の開発	← 分析標準試料の整備	← MA試料の分析
④ MA核データファイルの整備 (原子力機構)		← スペクトル導出法の開発		← 核反応理論解析	← 核データの評価
⑤ 研究推進 (東京工业大学)		← 研究打合せの開催 △ △ △	← 研究打合せの開催 △ △ △	← 研究打合せの開催 △ △ △	← 研究打合せの開催 △ △ △

図 2-1: 年度別全体計画

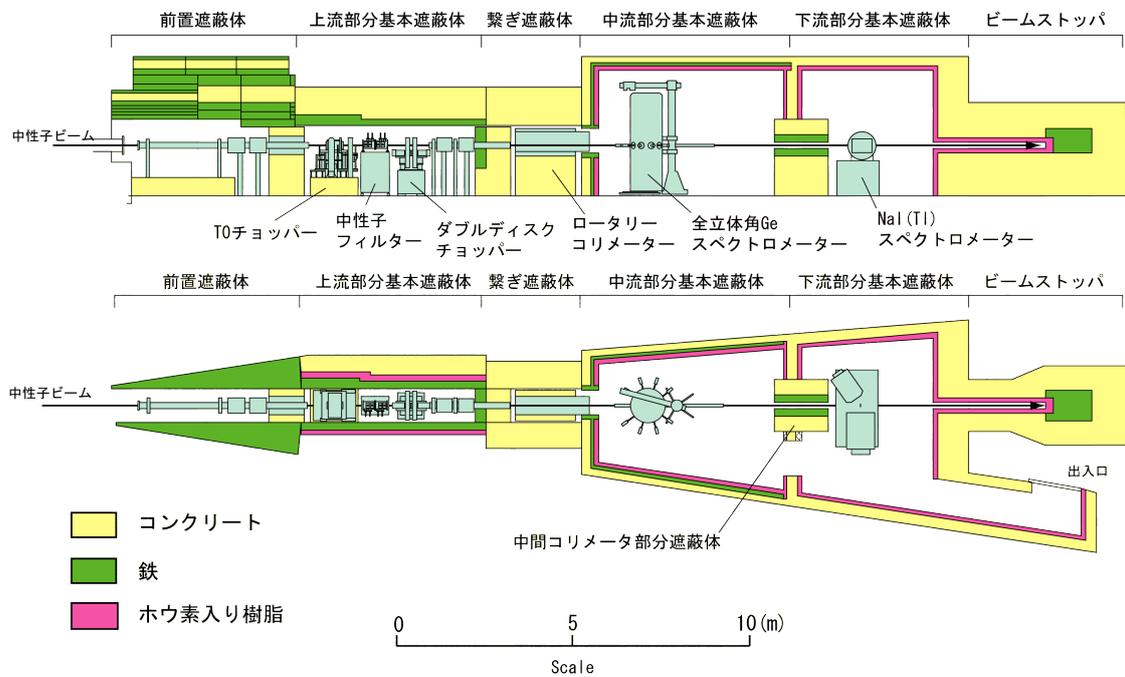


図 2-2: ANNRI

### 3. 実施内容及び成果

#### 3.1 中性子フィルター装置の開発（再委託先：原子力機構）

##### 3.1.1 開発の必要性と原理

本研究で中性子捕獲断面積測定を行う MA 試料は放射性核種であるため、微量な試料しか取り扱うことができないだけでなく、崩壊ガンマ線によるバックグラウンドの影響により統計精度が悪化するという問題があった。この問題を解決するため、受託者らのグループは J-PARC/MLF に ANNRI を建設し MA 核種などの断面積測定を進めてきた。

図 3-1 に J-PARC の中性子強度を他の実験施設の中性子強度と比較したものを示す [1]。J-PARC の中性子ビーム強度は欧米の核破砕中性子源施設である n\_TOF や DANCE と比較しても非常に高く、微量な試料でも中性子捕獲断面積の高精度化が原理的に可能となる。さらに、J-PARC は段階的にビーム強度を増強し最終的に 1 MW での運転を計画しており、中性子の強度が増えることで断面積測定における統計精度が大幅に向上し断面積の測定精度向上が期待される。

しかしながら、J-PARC では発生中性子量を増やすため、図 3-2 にあるような 100 ナノ秒の幅の陽子パルス 2 つを 600 ナノ秒の時間差で核破砕標的に入射させる、「ダブルバンチモード」と呼ばれる運転がなされている。ダブルバンチモード運転の結果、中性子分布も 600 ナノ秒ずれた二山構造を持ち、ひとつの飛行時間チャンネルに 2 種類の中性子エネルギーが混在するという問題が生じる [2]。そのため解析して得られた断面積には一つの飛行時間に 2 つの異なるエネルギーの断面積が含まれることになり、この領域で中性子捕獲断面積の測定を行うにはこの影響を回避する必要がある。

この問題の解決のため、中性子フィルター法を J-PARC の高強度中性子ビームに適用する。中性子フィルター法は特定の共鳴エネルギーの低エネルギー側で中性子透過率が大きくなることを利用する。例えば、Si の場合、図 3-3 示した JENDL-4.0 [3] の Si の全断面積から分かるように 54 keV と 148 keV で局所的に断面積が小さくなる（透過確率が高くなる）。この現象を利用し、適当な厚さのフィルターを通すことで、特定のエネルギーの中性子を選択的に透過させ、中性子ビームを単色化（または準単色化）することが可能となる。

この手法は原子炉からの連続中性子ビームを準単色化するためにしばしば用いられて来た手法である [4]。ただし、従来の原子炉等で中性子フィルター法を用いる際には、複数の共鳴で透過してくる中性子が混在するという問題があった（例えば Si をフィルターに用いる場合 54keV と 148keV の両方のエネルギーの中性子がフィルターを透過してくる）。そのため、過去の実験では複数種類のフィルターを組み合わせることで単色化することが行われている。しかしながら、複数のフィルターを利用する手法だと透過する中性子強度が大きく低下するという問題があった [4],[5],[6]。

一方で J-PARC はダブルバンチ運転で中性子のエネルギーが混在するものの、その時間差は飛行時間で 600 ns であり、透過してくる中性子のエネルギーが十分に（飛行時間で  $1\mu\text{s}$  以上）離れていれば、飛行時間法による中性子のエネルギー弁別が可能である。したがって、中性子飛行時間法と中性子フィルター法を組み合わせることで、中性子強度はある程度下がるものの、特定の中性子をもつ中性子を利用することが可能となる。そこで、本研究では J-PARC のダブルパルス中性子ビームのための中性子フィルター装置を開発し、高エネルギー領域で二つのエネルギーの中性子が混在する問題の解決を図った。

本研究では、中性子フィルター装置を平成 29 年度に設計、平成 30 年度に製作、令和元年度と 2 年度にその評価を行った。評価に際しては、J-PARC/MLF/ANNRI 及び東工大ペレトロン加速器において Li ガラス検出器により透過中性子の測定を行い、一部のフィルター (Fe 及び Al) については複数の厚みについての測定を実施した。また、モンテカルロシミュレーションコード PHITS[7] を用いて透過する中性子のエネルギースペクトルの導出を行うとともに、中性子フィルター装置の検証のために Au 試料を用いた断面積測定を実施した。

### 3.1.2 フィルター装置の設計と製作【H29-H30】

設計の最初のステップとしてフィルターに使用する材質の選定を行った。フィルター材質の選定には過去に実績のある Sc、Si、Fe の他に局所的に断面積が小さくなる共鳴が存在する元素について、以下の条件を加味して検討を進めた。

- フィルターの性質上厚さが必要となるため、価格の面から濃縮同位体試料は使用しないこととし、天然の同位体とする。
- 局所的に断面積が小さくなる共鳴が存在し、その間隔が飛行距離 28 m の位置で 1  $\mu$  秒以上空いている。(ダブルバンチの幅と合致すると分離できないため)
- 単色化した中性子が透過率 1% 以上、バックグラウンドとの比率が 10% 以下となる。
- 化学的に安定で毒性が低い化合物が存在する。
- 捕獲反応断面積が大きくない (放射化の防止)

平成 29 年度に実施した検討の結果、Si, Fe, Al, Cr, Bi, Sc を材質として選定した。

中性子フィルター装置のビームライン上の設置場所として図 2-2 のロータリーコリメータの位置とした。当初計画ではビームライン上流部の前置遮蔽体内に駆動機構を持つ大型の装置を新設する計画であった。しかしながら、この場所はビーム運転時に立ち入りができないだけでなく、アクセスにクレーンが必要なため装置トラブル時に容易に対応できないという問題がある。一方で、飛行距離 18.5~20m に設置されているロータリーコリメータは、図 3-4 にみられるように回転するドラムの中に 4 本の内径 10 cm の鉄製円筒が設置されており、その円筒の中に鉄でできた直径 10 cm 厚さ 5 cm のコリメータを下流側から 20 枚挿入する構造となっている。そこで、新たに大型の装置を製作するのではなく、コリメータと同一サイズのフィルターの製作を行い、実験に際してコリメータをフィルターに交換する設計とした。これにより、フィルターの厚さを 5 cm 単位で実験に応じて容易に変更することが可能となった。製作したフィルター材質及び厚みを表 3-1 に、また、製作例として Bi フィルターの写真を図 3-5 に示す。

### 3.1.3 ANNRI での評価試験【R1-R2】

製作したフィルター装置を評価するための試験を令和元年度及び令和 2 年度に ANNRI で実施した。

試験には 2 種類の Li ガラス検出器を用い、フィルターを透過した中性子を直接測定した。Li ガラス検出器は、大きさ 50mm×50 mm 厚さ 1 mm の  $^6\text{Li}$  濃縮 (~95%) のもの (Saint-Gobain 社製 GS-20 シンチレータ) と、もう一つは同サイズの  $^7\text{Li}$  濃縮 (99.99%) のもの (同社製 GS30) を使

用した。Li ガラス検出器は  ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$  反応を用いて中性子を検出する。 ${}^6\text{Li}$  の含有量が低く中性子への感度が低い GS30 はガンマ線バックグラウンドの評価に用いた。GS30 から得られたガンマ線バックグラウンドを GS20 の結果から差し引くことで中性子のみの計数が得られる。2 台の検出器の設置の様子を図 3-6 に示す。NaI 検出器下流部の飛行距離 28.7 m の位置に設置した。上流側（写真左側）がガンマ線によるバックグラウンドを評価するための GS-30 検出器、下流側が中性子を検出するための GS-20 検出器である。

評価試験に用いた中性子エネルギーや実験条件を表 3-2 に示す。Fe 及び Al についてはフィルター厚さの中性子スペクトルに対する影響を確認するために厚さを変えた測定を行った。なお、測定ではフィルターの放射化を低減させるため、ビームライン上流部に低エネルギー中性子を捕獲する Cd フィルターを挿入した。また、比較に用いる中性子スペクトルを確認するため中性子フィルターを挿入しない状態での測定（ブランク）を実施した。バックグラウンドを評価するためのブラックレゾナンスフィルター（Mn,Co,In,Ag）を入れた測定を実施した。実験時の J-PARC の運転状態は、出力 500 kW であった。

Fe フィルター厚さ 20 cm での GS-20 検出器と GS-30 検出器の飛行時間（TOF）スペクトルを図 3-7 に示す。Fe フィルターにより単色された 23.5 keV の中性子が飛行時間 19  $\mu\text{s}$  付近に確認できるが、ダブルバンチの影響により双山の形状になっている。また、ガンマフラッシュによるピークはダブルバンチの影響で 2 本となり、5.0 及び 5.6  $\mu\text{s}$  に観測される。以下、実験結果のグラフで横軸を中性子エネルギーに変換して図示する場合は、5.0  $\mu\text{s}$  を  $t = 0$  として計算したエネルギーで表す。

解析では、不感時間補正を行った後、各検出器での時間に依存しないバックグラウンドの差し引き、GS-30 から求めたガンマ線バックグラウンドの差し引きを行った。フィルターを入れたときとフィルター無し（ブランク）の中性子 TOF スペクトルの比を取り各フィルターに対する透過率を得た。Fe フィルター、Al フィルターに対して得られた透過率を図 3-8、図 3-9 に示す。ダブルバンチの影響を受けてふた山になっているが、Fe フィルターの場合に 25 keV、Al のフィルターの場合に 134 keV の中性子が選択的に透過していることが確認できる。また、フィルターの厚さを変更することで、透過率は減少するものの、透過する中性子の幅が狭くなっていることが確認できた。導出した透過率から得られた中性子フィルター装置の評価については 3.1.5 で述べる。

### 3.1.4 東工大ペレトロン加速器を用いた評価試験【R1-R2】

ANNRI で得られる TOF スペクトルは、ダブルバンチの影響を大きく受けており、透過中性子の状況を評価するためにはダブルバンチの影響を調べる必要がある。そこで、ダブルバンチの影響のない東工大ペレトロン加速器を用いた試験を令和元年度及び令和 2 年度に行った。ペレトロン加速器を用いた試験の様子を図 3-10 に示す。試験にはペレトロン加速器で生成される中性子の領域に対してシャープな透過中性子を持つ Fe フィルター及びそれとほぼ同じエネルギー領域に幅の広い透過中性子を持つ Al フィルターを用いた。中性子エネルギー 100 keV 以下での Al フィルターを透過する中性子は、エネルギー幅が広く単色性がよくないため、断面積測定の対象としていないが、ダブルバンチの影響を見るために測定を行った。ペレトロン加速器の中性子強度は ANNRI に比べて小さいため、測定時間との兼ね合いから試験に使用するフィルター厚さは Fe フィルターで 5,10,20 cm、Al フィルターで 20,30 cm とし、各フィルターを透過してくる中性子を飛行距離 31~32 cm に設置した Li ガラス検出器を用いて測定した。また、中性子透過率を評価するためのフィルター無しの測定も同時に行った。

Fe 及び Al フィルターを用いた場合に得られた透過率を図 3-11 及び図 3-12 に示す。Fe のフィルターを用いることで、24keV の中性子が選択的に透過している。また、ANNRI での試験と同様にフィルターの厚さを増やすことで、透過率は減少するものの、透過中性子のエネルギー単色性が良くなることが確認できた。Al フィルターに関しても厚さに対する透過率の減少が確認できた。

### 3.1.5 中性子フィルター装置の評価と使用するフィルターの選定【H29-H30】

中性子フィルターの断面積測定への適用性については、現実的な測定時間で実験が行えるか、バックグラウンドに比べて十分に単色化できているかという 2 点から評価を行った。

ペレトロン加速器を用いた試験と ANNRI での試験で導出した厚さ 20 cm での Fe フィルター、Al フィルターの透過率の比較を図 3-13 に示す。24 keV 近辺の共鳴を比較した場合、幅の広い Al の透過スペクトルは ANNRI での測定結果とペレトロン加速器の測定結果に大きな差がみられないのに対して、幅の狭い Fe フィルターの透過スペクトルはその強度が大きく異なっている。これは、ANNRI ではダブルバンチの影響で単色化された中性子が異なる TOF で透過してくることが原因である。そのため、図 3-13 にあるように ANNRI の評価試験で導出した透過率は、ペレトロン加速器で導出した透過率の約半分となっている。また、ANNRI での実験で TOF の遅い側 (低エネルギー側で観測される) のピークは、早い側のピークのテール部分に乗るため、透過率も大きく出る傾向がある。そこで、評価では ANNRI での実験の結果において単純に透過したスペクトルの高エネルギー側 (時間的に早い側) の最大値の 2 倍を評価に使用することとした。バックグラウンドについては、平坦なバックグラウンドを仮定しピークとの強度比とした。また、Al の 5 cm、20 cm 及び Fe の 5 cm は明らかにバックグラウンドが大きい (フィルターの厚さ不足) ので今回の評価からは除外した。

導出した結果を表 3-3 に示す。製作した各中性子フィルターは、透過率 2.7~62% で特定のエネルギー中性子を選択的に取り出しており、単色中性子源として十分な性能を持つことが確認できた。これらのフィルターの中から特に透過率が 15% 以上で、バックグラウンドが 1.5% 未満の Fe、Si、Cr (46 keV のみ) フィルターを実試料の測定に用いることとした。

### 3.1.6 透過中性子のエネルギー分布の導出【R2】

図 3-8、図 3-9 に示すように透過率スペクトルはダブルバンチの影響を受けている。一方で、断面積の評価においては透過中性子の正確なエネルギー分布が必要となるため、モンテカルロシミュレーションにより導出した。

透過中性子のエネルギー分布は以下の手順で導出した。

1. モンテカルロシミュレーションコード PHITS を用いてフィルターを透過する中性子の輸送計算を行い、中性子エネルギーごとにフィルターの透過率を計算した。
2. 核破砕中性子源の減速体表面での中性子エネルギーと時間の 2 次元分布 (文献 [2]) 及び検出器までの飛行距離からフィルターがない場合の検出器位置での中性子エネルギーと飛行時間の 2 次元分布を計算する。
3. 上記手順で求めたフィルター透過率と検出器位置での中性子エネルギーと飛行時間の 2 次元分布を掛け合わせて、フィルターありの場合の検出器位置での中性子エネルギーと飛行

時間の2次元分布を導出する。

4. 導出した検出器位置での中性子エネルギーと飛行時間の2次元分布から特定の飛行時間の中性子を切り出すことで検出器位置で透過中性子のエネルギー分布を導出する。

上の手順3で導出したフィルターを透過した中性子のエネルギーと飛行時間の2次元分布が正しいかを実験的に確認するため、ANNRIにてLiガラス検出器及びNaI(Tl)を用いた透過中性子のTOFスペクトル測定を実施した。フィルターにはFe(20 cm)及びSiフィルター(20 cm及び30 cm)の3種類を用い、実験結果とシミュレーション結果の比較を行った。NaI検出器を用いた測定では $B_4C$ を試料を用い、 $^{10}B(n,\alpha\gamma)$ 反応により放出される478 keVのガンマ線をNaI検出器で測定することで透過中性子を測定した。Liガラス検出器を用いた測定では3.1.3節と同様のセットアップを用いた。シミュレーションについては手順3で導出した中性子エネルギーと飛行時間の2次元分布に $^{10}B(n,\alpha\gamma)$ 反応断面積及び $^6Li(n,\alpha)$ 断面積をかけ、それぞれの検出器での透過中性子の飛行時間分布を計算した。

Fe(20 cm)及びSi(20 cm)の2種類のフィルターについて、シミュレーションの結果と実験の結果を比較したものを図3-14、図3-15に示す。シミュレーションの結果と実験の結果はよく一致しており、手順3で計算したフィルターを透過した中性子の検出器位置における中性子エネルギーと飛行時間の2次元分布が精度よく導出できていることが確認できた。

手順3で導出した中性子エネルギーと飛行時間の2次元分布に飛行時間にゲートをかけることで各フィルター利用時の透過中性子のエネルギー分布を導出した。Fe、Si、CrフィルターのNaI(Tl)検出器の位置でのフィルターありなしでの透過中性子のエネルギー分布を図3-16、図3-17及び図3-18に示す。Feの24 keVに対しては12.6~15.0  $\mu s$ に、Siの54、128 keVに対しては8.6~9.8  $\mu s$ 、5.4~6.4  $\mu s$ に、Crの46keVに対しては9.2~10.6  $\mu s$ にゲートを設定した。透過中性子のエネルギーの平均値も併せて図に赤線で示す。図に示されたように、フィルターを用いることで特定のエネルギーの中性子が選択的に透過し、中性子のエネルギー分解能が大きく改善していることが確認できた。また、フィルターを用いた際の中性子スペクトルは低エネルギー側にテールを引く形状となっており、中心値はピーク（最頻値）よりも低エネルギー側にずれることも確認された。

### 3.1.7 金断面積の導出による検証【R2】

製作したフィルター装置の検証のため、Fe(20cm)及びSi(20cm)フィルターを使用し、断面積が良く知られているAuの中性子捕獲断面積測定を実施した。測定にはNaI検出器を用い、Au試料(直径10 mm、厚さ0.5 mm)、試料無し、散乱補正のためのカーボン試料の測定を行い、波高重み法を適用することで断面積を導出した。

また、波高重み関数の規格化のため、フィルターなしの状態でのAu試料、試料無し、散乱補正のためのカーボン試料、中性子スペクトル導出のための焼結した $B_4C$ を試料の測定も併せて実施した。0.5 mm厚の金試料は4.9eV共鳴が飽和するため、測定から飽和共鳴法を用いて断面積の絶対値を導出した。

解析は、以下の手法で実施した。

1. 波高重み法の適用（重み関数はフィルターなしの測定で規格化したものを利用）
2. 不感時間による数え落とし補正

3. フレームオーバーラップ中性子バックグラウンドの除去
4. ブランクバックグラウンドの除去
5. 散乱バックグラウンドの除去
6. 中性子捕獲断面積の導出

導出した各中性子エネルギーでの Au の断面積を JENDL-4.0 と比較したものを図 3-19 及び表 3-4 に示す。導出した断面積は JENDL-4.0 の評価値と誤差の程度で一致した。また、断面積の不確かさは約 4% であり、断面積測定のためのフィルター装置として十分機能することが検証できた。

以上の中性子フィルター開発の成果については参考文献で報告された [8]。

### 3.1.8 まとめ

中性子飛行時間法と中性子フィルター法を組み合わせることで、J-PARC 特有のダブルバンチの問題を克服し、高速中性子エネルギー領域の断面積導出を行うため、中性子フィルター装置を設計・製作した。製作した装置の評価のため、J-PARC/MLF/ANNRI 及び東工大ペレットロン加速器において Li ガラス検出器により透過中性子の測定を行った。特に透過率が高く、バックグラウンドの小さい Fe、Si、Cr(46keV のみ) フィルターを実試料の測定に選定した。また、モンテカルロシミュレーションコード PHITS を用いて中性子スペクトルの導出を行うとともに、Au 試料の断面積測定を行い本装置が断面積測定において十分機能することを実証した。

#### 参考文献

- [1] K. Kino et al., “Measurement of energy spectra and spatial distributions of neutron beams provided by the ANNRI beamline for capture cross-section measurements at the J-PARC/MLF”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 626-627, 58-66 (2011).
- [2] K. Kino et al., “Energy resolution of pulsed neutron beam provided by the ANNRI beamline at the J-PARC/MLF”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 736:66-74 (2014).
- [3] K. Shibata et al. “JENDL-4.0: A new library for nuclear science and technology”, Journal of Nuclear Science and Technology, 48, 1-30 (2011).
- [4] R. C. Greenwood and R. E. Chrien, “Filtered reactor beams for fast neutron capture  $\gamma$ -ray experiments”, Nuclear Instruments and Methods, 138, 125-143 (1976).
- [5] Y. Francis et al., “A versatile neutron beam filter facility with silicon and iron filters”, Nuclear Instruments and Methods, 134, 1976, 441-447 (1976).
- [6] M. Kostal et al., “Measurement of neutron spectra in a silicon filtered neutron beam using stilbene detectors at the LVR-15 research reactor”, Applied Radiation and Isotopes, 128, 41-48 (2017).

- [7] T. Sato et al., “Features of Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) version 3.02”, Journal of Nuclear Science and Technology, 55, 684-690 (2018).
- [8] G. Rovira et al., “Neutron beam filter system for fast neutron cross-section measurement at the ANNRI beamline of MLF/J-PARC”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 1003, 165318 (2021).

表 3-1: 製作したフィルター材質、厚さ、透過中性子エネルギー

	フィルター材質	透過中性子エネルギー (keV)	フィルター枚数 <sup>※</sup>
Fe フィルター	Fe	25	6 枚
Al フィルター	Al	134, 275	10 枚
Cr フィルター	Cr	47, 137	10 枚
Bi フィルター	Bi	5.1, 11.5, 15.3	8 枚
Si フィルター	Si	54, 128	10 枚
Sc フィルター	Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	7.5	15 g/cm <sup>2</sup> <sup>※※</sup>

※1 枚当たりの厚みは Bi 以外は 5 cm。Bi は 4.8 cm。  
 ※※Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 粉体を成型するため、面密度での表示である。

表 3-2: ANRRI での評価試験の諸条件

材質	対象エネルギー (keV)	厚さ (cm)	測定時間 (h)
Fe フィルター	25	5	5
		20	15
		30	3
Al フィルター	134, (275)	5	4
		20	4
		30	8
Cr フィルター	47, 137	30	12
Bi フィルター	5.1, 11.5, 15.3	29	8
Si フィルター	54, 128	30	2
Sc フィルター	7.5	12 g/cm <sup>2</sup>	2
フィルター無し (ブランク)	-	-	18

表 3-3: 評価に利用した中性子エネルギーでの透過率及びバックグラウンドの比率

フィルター材質	ピークエネルギー (keV)	厚さ (cm)	透過率 (%)	バックグラウンドの比率 (%)
Fe フィルター	25	20	48	0.4
	24	30	29	0.1
Al フィルター	130	30	14	3.6
Cr フィルター	46	30	15	0.8
	136	30	6.1	2.2
Bi フィルター	5.1	29	2.7	2.9
	11.5	29	4.1	2.5
	15.4	29	3.7	1.6
Si フィルター	54	30	41	1.2
	145	30	62	1.0
Sc フィルター	7.4	12 g/cm <sup>2</sup>	30	2.2

表 3-4: 検証実験で導出した Au の断面積と JENDL-4.0 との比較

中性子エネルギーの中央値 (keV)	実験値 (b)	評価値 JENDL-4.0(b)
23.5	0.613 ± 0.025	0.638
51.5	0.403 ± 0.016	0.426
51.5	0.299 ± 0.011	0.288

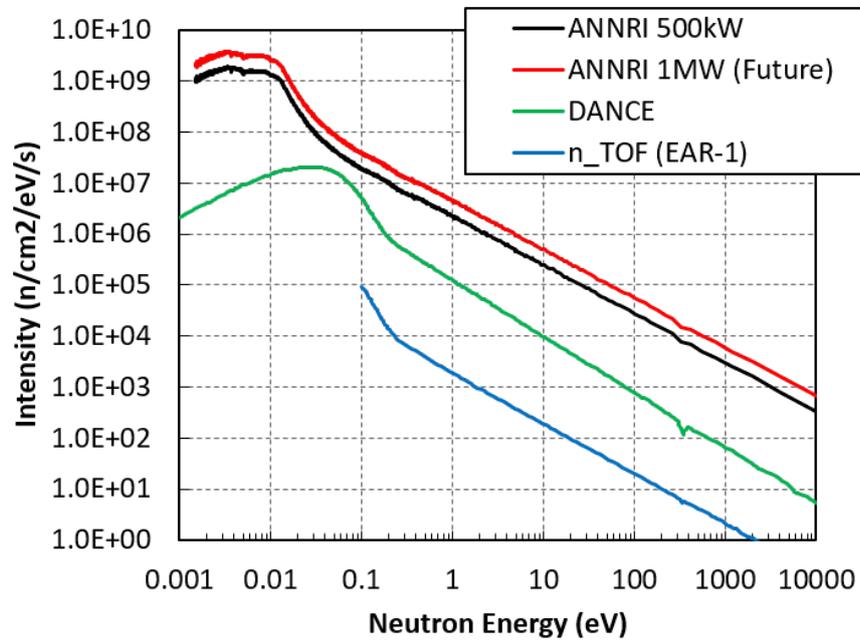


図 3-1: ANNRI と他の実験施設での中性子強度との比較 [1]

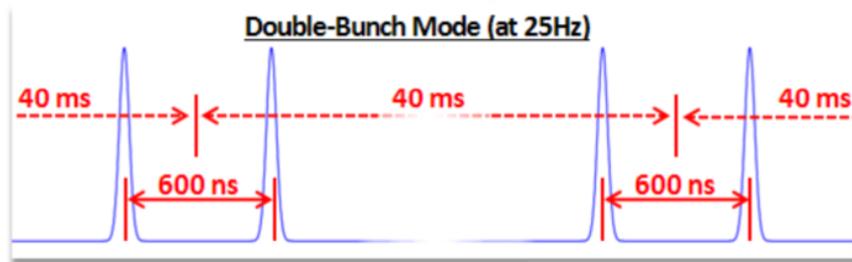


図 3-2: ダブルバンチモードのイメージ図

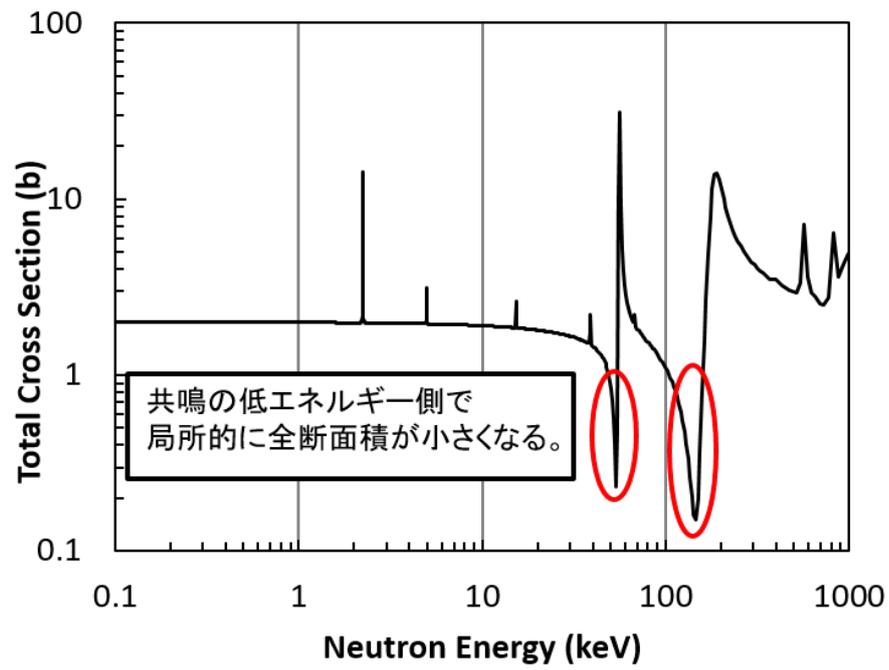


図 3-3: Si の全断面積 (JENDL-4.0 より)



図 3-4: ロータリーコリメータとフィルター設置時の様子

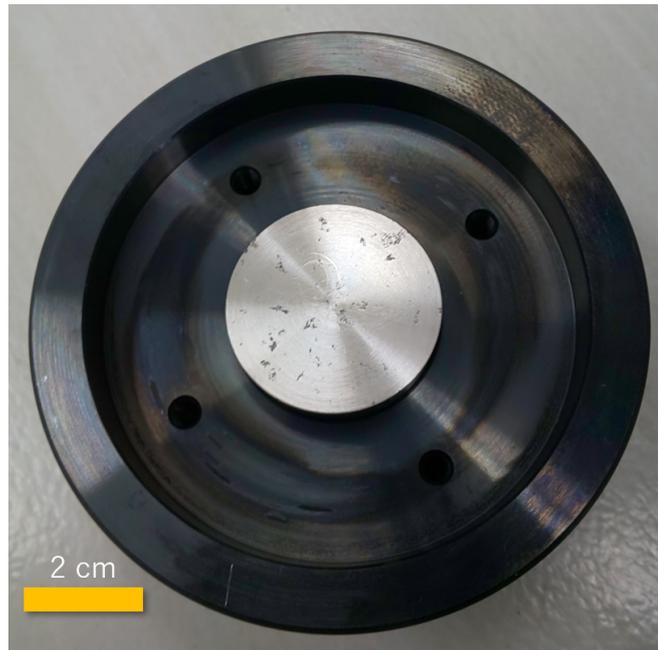


図 3-5: Bi フィルターの写真

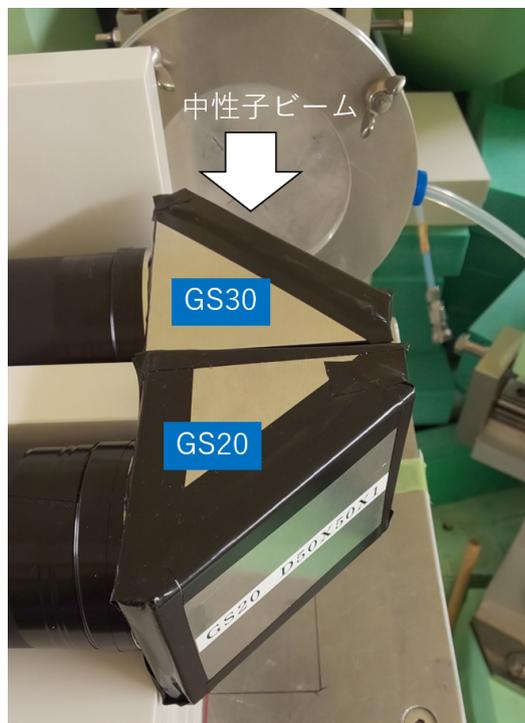


図 3-6: ANNRI での評価試験で使した Li ガラス検出器

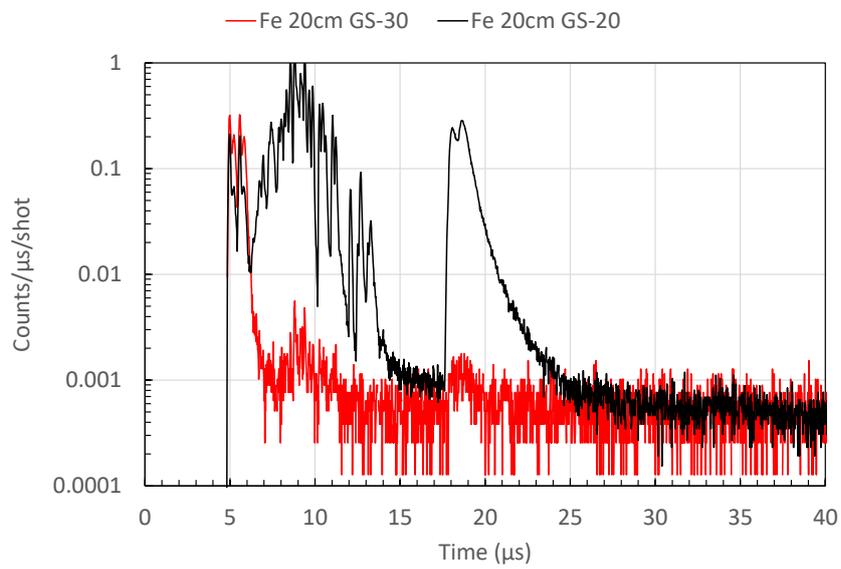


図 3-7: Fe フィルター厚さ 20 cm での GS-20 検出器と GS-30 検出器の TOF スペクトル

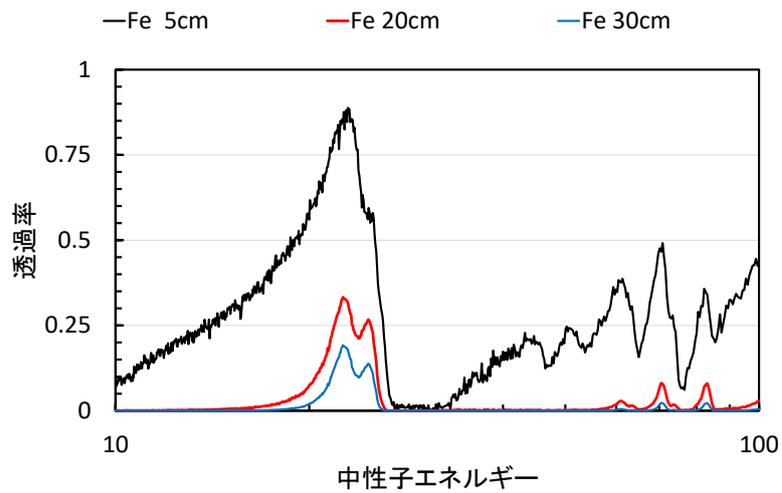


図 3-8: Fe フィルターの中性子透過率

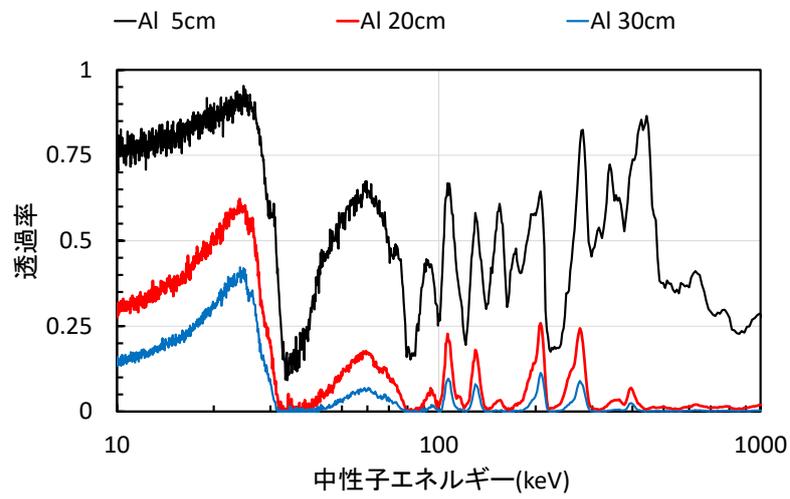


図 3-9: Al フィルターの中性子透過率



図 3-10: ペレトロン加速器を用いた評価試験の様子

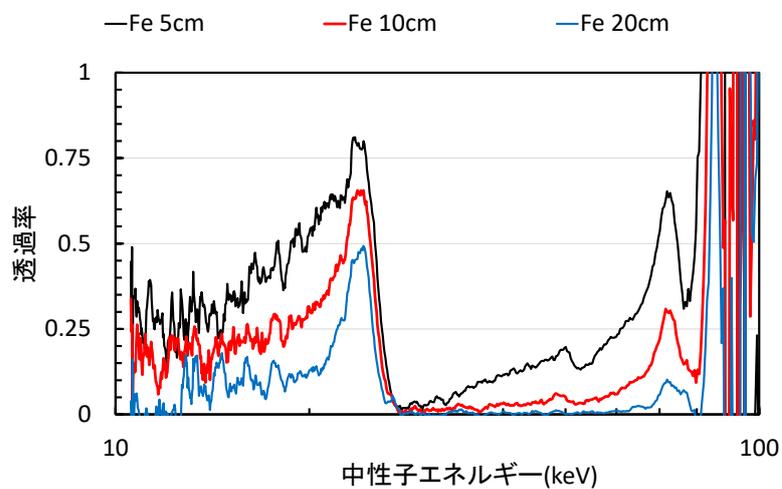


図 3-11: ペルトロン加速器を用いた試験で導出した Fe フィルターの中性子透過率

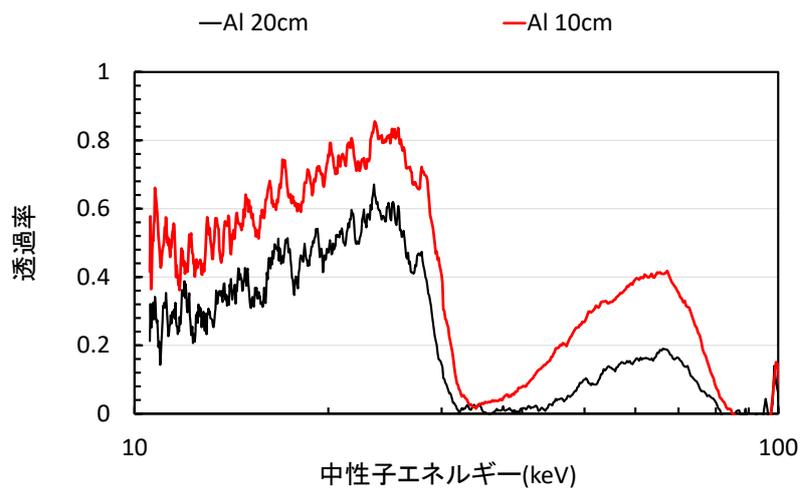


図 3-12: ペルトロン加速器を用いた試験で導出した Al フィルターの中性子透過率

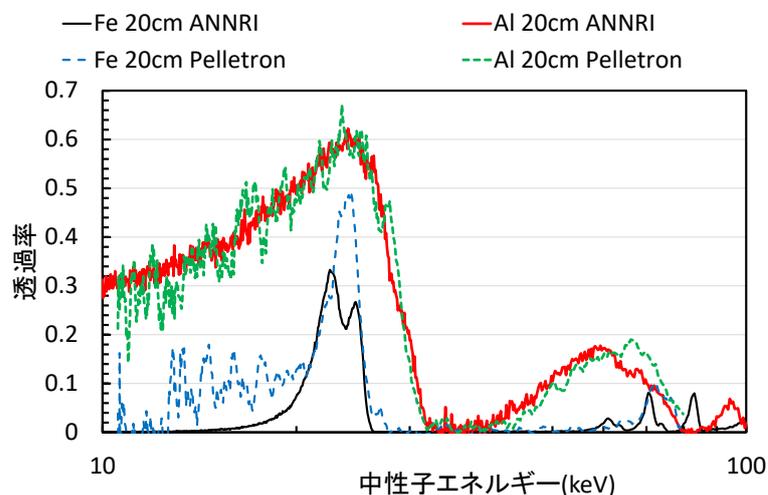
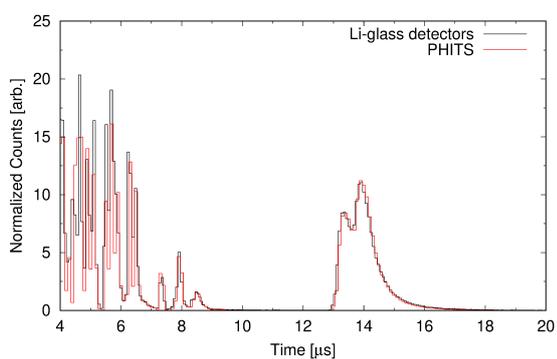
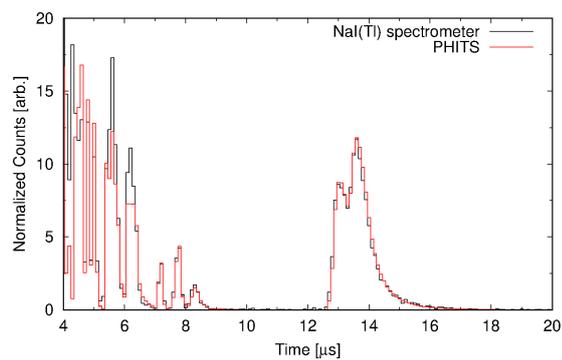


図 3-13: ペレトロン加速器と ANNRI での試験で導出した Fe 及び Al での透過率の比較

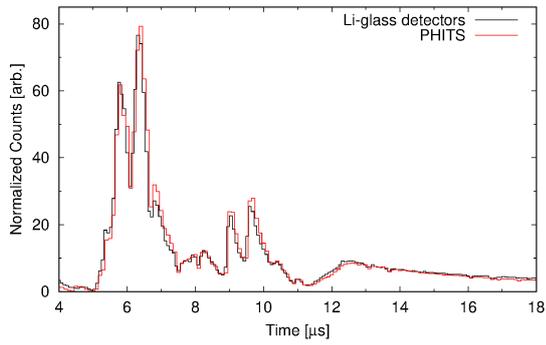


(a) Li ガラス検出器

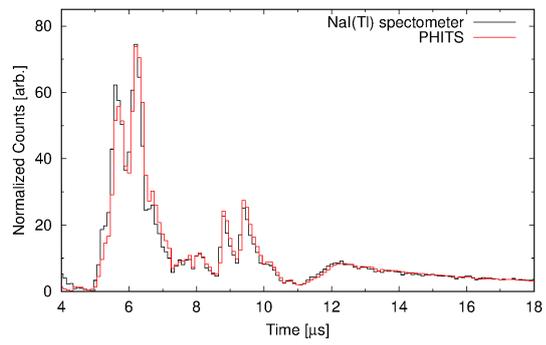


(b) NaI 検出器

図 3-14: Fe フィルターを透過した中性子の TOF スペクトルの実験値と計算値の比較



(a) Li ガラス検出器



(b) NaI 検出器

図 3-15: Si フィルターを透過した中性子の TOF スペクトルの実験値と計算値の比較

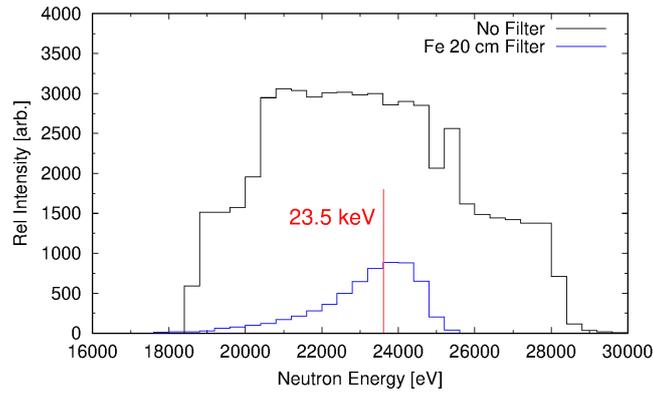
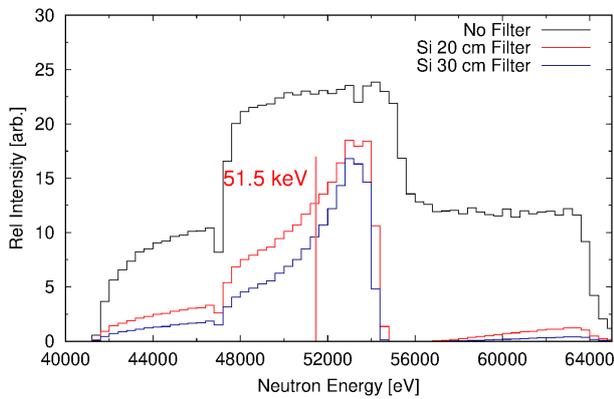
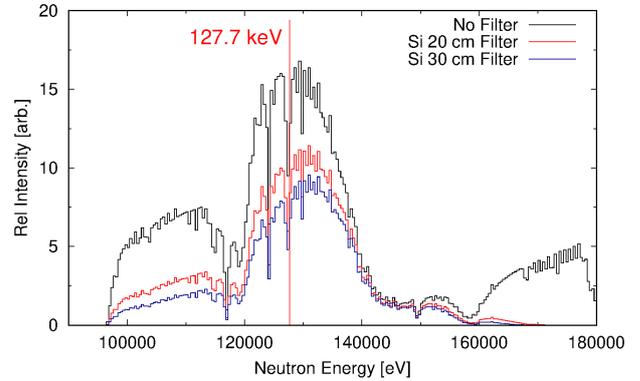


図 3-16: Fe フィルターの透過中性子のエネルギー分布



(a) 54 keV



(b) 128 keV

図 3-17: Si フィルターの透過中性子のエネルギー分布

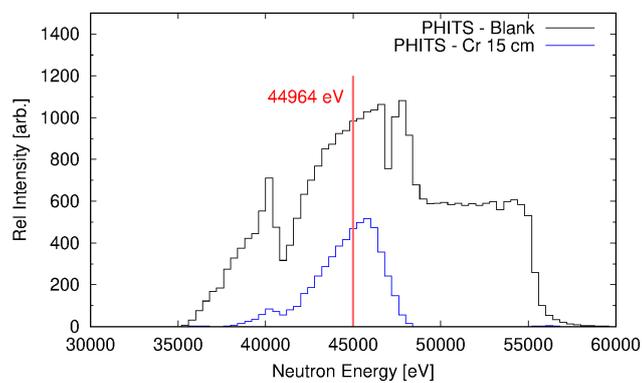


図 3-18: Cr フィルターの透過中性子のエネルギー分布

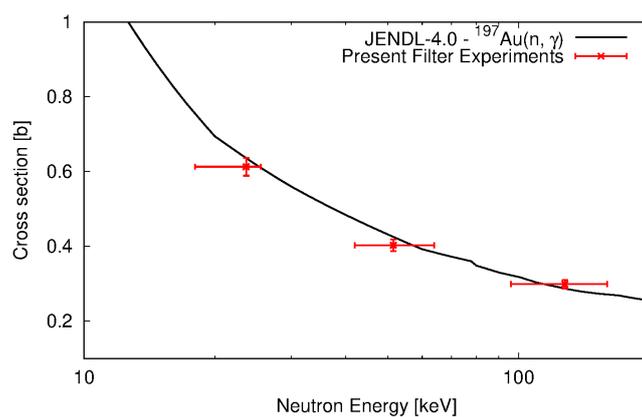


図 3-19: 検証実験で導出した Au の断面積と JENDL-4.0 との比較

## 3.2 NaI 検出器を用いた中性子捕獲断面積の測定

### 3.2.1 J-PARC/MLF/ANNRI NaI 検出器の概要

まず、NaI 検出器を用いた中性子捕獲断面積の測定に用いた J-PARC/MLF/ANNRI の NaI 検出器について概要を述べる。図 3-20 に ANNRI の NaI 検出器の配置図を示す。試料位置の飛行距離は 27.9 m である。2 つの NaI 検出器のうち 90° に設置された検出器を用いて測定を行った。90° 検出器は NaI 検出器部分が NaI 結晶（直径 330 mm、長さ 203 mm）と光電子増倍管 3 本より構成される。今回、宇宙線バックグラウンド除去用のプラスチック検出器は用いなかった。NaI 検出器からの信号は高速データ収集技術により処理した。

### 3.2.2 高速データ収集技術の開発【H29-H30】

平成 29 年度に高速データ収集技術を開発した。J-PARC の高強度中性子ビームにより生じる高計数率の信号を処理するために高速のデータ収集技術が必要となる。NaI 検出器からのアノード信号をフラッシュ ADC（CAEN 社 V1720）に直接取込み信号処理を行った。信号処理に従来型の増幅器等のアナログ回路を排除することで高速のデータ収集が可能となった。

平成 30 年度に開発した高速データ収集技術を用いて J-PARC/MLF/ANNRI でテスト実験を行った。金試料に中性子ビームを照射し生じる中性子捕獲ガンマ線を NaI 検出器で検出し、信号を高速のデータ収集技術を用いて処理した。NaI 検出器からの信号の波高、飛行時間を導出し記録した。得られた飛行時間スペクトルからバックグラウンドを差し引き正味の計数を求め、 $^{197}\text{Au}$  の中性子捕獲断面積を導出した。JENDL-4.0 の評価済み断面積データと比較した。各共鳴が JENDL-4.0 とよく一致することが確認された。このことから開発した高速データ収集技術を用いて捕獲断面積が導出できることが確認された。

### 3.2.3 試料回転装置を用いた測定【H30-R1】

平成 30 年度に中性子捕獲断面積の精度向上のための試料回転装置の製作を行った。試料回転装置は試料を中性子ビームに対して傾けることで見かけ上の厚さを変えるためのものである。試料回転装置は、試料回転部、試料ホルダー、中性子ビームダクト、遠隔制御装置から構成される。試料ホルダー及び試料回転部はカーボンファイバー製の中性子ビームダクト内に挿入される。試料回転部はダクトの外に設置されたステッピングモータによりシャフトを通して回転される。回転角度の精度は 1° 以下となるようにした。また、遠隔制御装置により遠隔で回転を制御できるよう製作した。

令和元年度に試料回転装置を用いて  $^{237}\text{Np}$  の原子数面密度の絶対値を決定した。試料回転による原子数面密度の決定法の原理について簡単に述べる。中性子を平板状試料に照射した場合の中性子捕獲反応数  $Y$  は中性子自己遮蔽を考慮して次式 (3.1) のように表せる。

$$Y = \frac{\sigma_{\gamma}}{\sigma_t} \cdot (1 - e^{-n\sigma_t t}) \cdot \phi_0 \quad (3.1)$$

ここで、 $\phi_0$  は入射中性子数、 $t$  は試料の厚さ、 $n$  は試料の原子数密度、 $\sigma_t$  は全断面積、 $\sigma_{\gamma}$  は捕獲断面積である。試料の厚みとともに自己遮蔽係数  $1 - e^{-n\sigma_t t}$  は変化し、試料が十分厚くなると飽和し 1 となる。本研究で採用した試料回転法は厚い試料を用いる代わりに試料を傾け見かけの

厚さを変化させることで自己遮蔽係数を変化させる。反応率の変化の割合から試料の原子数面密度（数密度と厚さの積）の絶対値を決定する。

図 3-21 に示すように試料をビーム軸に対して角度  $\theta$  だけ傾けるとビームに対する見かけ上の厚さ  $t'$  は

$$t' = t \cdot \frac{1}{\cos\theta} \quad (3.2)$$

となる。 $t'$  を式 (3.1) の  $t$  に代入すると捕獲反応数  $Y$  は

$$Y(\theta) = \frac{\sigma_\gamma}{\sigma_t} \cdot (1 - e^{-n\sigma_t t \frac{1}{\cos\theta}}) \phi_0 \quad (3.3)$$

となり、角度  $\theta$  の関数となる。さらに角度  $\theta$  での反応数  $Y(\theta)$  を  $0^\circ$  での反応数  $Y(0^\circ)$  で割り込んだ比  $R$  は

$$R = \frac{Y(\theta)}{Y(0^\circ)} = \frac{1 - e^{-n\sigma_t t \frac{1}{\cos\theta}}}{1 - e^{-n\sigma_t t}} \quad (3.4)$$

となる。 $R$  は角度  $\theta$  と積  $n\sigma_t t$  のみに依存する関数となる。異なる角度での捕獲反応数の測定から  $R$  を求め、測定結果に式 (3.4) をフィッティングすることで  $n\sigma_t t$  を決定することができる。

試料回転法を  $^{237}\text{Np}$  の中性子エネルギー 0.49 eV の第 1 共鳴ピークの試料を傾けたときの反応数の変化に適用し、 $^{237}\text{Np}$  試料の原子数密度の絶対値を決定した。実験で得られた比  $R$  の角度に対するプロットを図 3-22 に示す。測定結果に式 (3.4) をフィッティングしたものを実線で示す。フィッティングの結果得られた原子数面密度は誤差の範囲で試料成績書から計算される値と一致した。

### 3.2.4 中性子捕獲断面積の測定【R1-R2】

$^{237}\text{Np}$  及び  $^{243}\text{Am}$  の中性子捕獲断面積の測定を行った。測定試料を ANNRI の NaI 検出器試料位置（飛行距離 27.9 m）に設置し、J-PARC/MLF の核破砕中性子源からのパルス中性子ビームを照射して実験を行った。繰り返し周波数 25 Hz でパルス中性子が発生した。核破砕中性子源への入射陽子ビーム出力は 500~600 kW であった。核破砕標的の直前に設置されたパルス電流計により陽子ビームパルスの通過が検出され、出力信号パルスを飛行時間測定の基準に用いた。また、発生中性子数は陽子ビームパルス数に比例すると考え、陽子ビームパルス数を各測定ランの規格化に用いた。

測定に用いた  $^{237}\text{Np}$  及び  $^{243}\text{Am}$  試料の諸元を表 3-5 に示す。試料はどちらも円盤状ペレットであり、アルミケースに封入されている。ネプツニウムペレットには成型時の結合剤としてアルミ粉末が混合されている。アルミケースの外径は 30 mm、厚み 1.8 mm である。一方、アメリカウムペレットは結合剤として酸化イットリウムが用いられている。アルミケースの外径は 22 mm、厚み 0.7 mm である。

断面積決定において重要な量のひとつである試料の物質量は試料の放射能から決定した。 $^{237}\text{Np}$  試料については、 $^{237}\text{Np}$  の娘核種  $^{233}\text{Pa}$  からの 312 keV 崩壊ガンマ線を Ge 検出器で測定した。Ge 検出器の検出効率は標準ガンマ線源を用いて決定した。決定した放射能の誤差は、統計誤差、標準線源の放射能誤差、312 keV 崩壊ガンマ線放出比の誤差を考慮し 0.9 % と評価した。放射能から  $^{237}\text{Np}$  の重量を算出すると 199 mg となり、試料成績書の 200 mg と誤差の範囲で一致した。

一方、 $^{243}\text{Am}$  試料の放射能は先行研究で決定した値を用いた [1, 2]。先行研究では、2つの方法、カロリメータによる測定と崩壊ガンマ線測定により 0.1% の精度で決定した。 $^{237}\text{Np}$  試料の場合

合と異なり、結果は試料成績書と大きく異なった。試料成績書の放射能が 240 MBq に対し、測定で得られた値は 281.8 MBq となり、17% 大きな値を得た。

さらに先行研究で存在が明らかとなった MA 試料中の Pu 不純物の定量は京都大学で行った。試料分析の詳細は、3.2 節で述べる。

本事業で製作した中性子フィルター装置を用いて中性子ビームを単色化し、高速中性子領域の捕獲反応実験を行った。 $^{237}\text{Np}$  の測定には Fe、Si、Cr フィルターを用いた。 $^{243}\text{Am}$  には Fe フィルターを用いた実験を実施した。また、上流にカドミウムを挿入し熱中性子を除去した。これにより熱中性子によるフィルター材の過剰な放射化を防いだ。

測定は、MA 試料に加え、試料を何も置かないblank、試料ケースを模擬したダミーケース、グラファイト試料、金試料について行った。グラファイト試料測定は、散乱バックグラウンドを評価するために行った。炭素の捕獲断面積は非常に小さいためグラファイト試料を設置した際に検出されるイベントは試料での散乱中性子によるものと見なせる。金試料は、捕獲断面積の標準とするために行った。

測定データからバックグラウンドを差し引き MA 核種での中性子捕獲イベントを抽出するための解析の詳細について説明する。中性子捕獲反応実験で考えられるバックグラウンドとしては以下の 4 つが挙げられる。

- (時間に依存しないバックグラウンド) 自然放射線、宇宙線、放射性試料の放出する崩壊ガンマ線、中性子照射により放射化した物質からの崩壊ガンマ線が含まれる (ただし、半減期が繰り返し周期 40 ms より長いもの)。単位時間あたりの計数率が一定のバックグラウンドである。
- (blank・バックグラウンド) blank測定で中性子ビームに起因するバックグラウンドである。
- (試料ケースによるバックグラウンド) 中性子が試料ケース及び試料の結合剤と反応したことによるバックグラウンド
- (散乱中性子バックグラウンド) 試料で中性子が散乱されたことにより生じる。試料の量と散乱断面積の大きさに依存する。

解析の詳細を鉄フィルターで行った  $^{237}\text{Np}$  の測定を例として説明する。図 3-23 に  $^{237}\text{Np}$  測定の飛行時間スペクトルを示す。J-PARC 加速器の運転繰り返し周波数が 25Hz のため飛行時間スペクトルは 40 ms まで計測されている。15~17  $\mu\text{s}$  付近に観測されるピーク (ピンクで塗りつぶされた領域) は鉄フィルターによって単色化された中性子ビームによるイベントである。ピークは中性子エネルギー 24 keV に相当する。

解析ではまず 24 keV 中性子ピークの TOF 領域にゲートをかけ、TOF-波高の 2 次元リストデータから波高スペクトルを抽出した。抽出された波高スペクトルを図 3-24 に示す (赤線)。 $^{237}\text{Np}$  の中性子捕獲反応から放出される即発ガンマ線は最大 5.5 MeV までの領域に含まれる。低エネルギー領域に観測されるピークは  $^{237}\text{Np}$  の娘核種  $^{233}\text{Pa}$  から放出される崩壊ガンマ線 (312 keV) である。また、自然放射線として  $^{40}\text{K}$  (1.461 MeV)、 $^{208}\text{Tl}$  (2.615 MeV) が観測される。さらに 13~14 MeV 付近に観測されるピークはエネルギーの高い宇宙線バックグラウンドがデータ取り込み ADC の入力電圧上限を超えてしまい波高が飽和した結果形成されたピークである。

時間に依存しないバックグラウンドは、中性子が存在しない飛行時間領域から求めた。上で述べたように時間に依存しないバックグラウンドは自然放射線など中性子に直接関係しないものである。したがって、中性子の存在しない飛行時間領域があれば求めることができる。本実験では上流にカドミウムを挿入しているため約0.5 eV以下の中性子は試料には到達していない。図3-23から分かるように低速領域では計数率は一定となっており時間に依存しないバックグラウンドから構成されていることが分かる。10~35 msの領域（水色で塗りつぶされた領域）にTOFゲートをかけて波高スペクトルを抽出し時間に依存しないバックグラウンドを決定した。

図3-24に24 keV領域の波高スペクトルと時間に依存しないバックグラウンドを示す。時間に依存しないバックグラウンドは、TOFゲート幅の比で規格化した。規格化したバックグラウンド波高スペクトルを24 keV波高スペクトルから差し引くことでバックグラウンドを除去した。規格化により15 MeV付近の高エネルギー宇宙線バックグラウンドと<sup>233</sup>Paからの崩壊ガンマ線バックグラウンドのピーク高さが、よく一致していることが分かる。ブランク、グラフィイト、金、ダミーケースも同様に時間に依存しないバックグラウンドを除去した。

試料ケースによるバックグラウンドはダミーケースを用いた測定から求めた。ダミーケース測定の波高スペクトルには当然のことながらブランク・バックグラウンドも含まれる。したがって、ダミーケース測定の波高スペクトルを<sup>237</sup>Np試料測定の波高スペクトルから差し引くことで、ブランク・バックグラウンドと試料ケースバックグラウンドの両方を除去した。また、散乱バックグラウンドはグラフィイト試料測定から求めた。<sup>237</sup>Np試料とグラフィイト試料の物質質量と散乱断面積の積の比を規格化因子としグラフィイト試料の波高スペクトルを差し引いた。図3-25に<sup>237</sup>Np試料、ダミーケース、グラフィイト試料の波高スペクトルを示す。ダミーケースとグラフィイト試料のスペクトルは差し引くための規格化を行ったものである。これらのバックグラウンドを差し引き、<sup>237</sup>Npによる中性子捕獲反応の波高スペクトルのみを抽出した。<sup>243</sup>Am、金また他のフィルター測定についても同様のバックグラウンド除去を行い、正味の波高スペクトルを導出した。

バックグラウンドを除去して得られた波高スペクトルから中性子捕獲断面積を導出した。中性子捕獲断面積の導出には、標準として<sup>197</sup>Auの中性子捕獲断面積のJENDL-4.0の評価値を用いた。以下の式3.5にしたがってMA核種の中性子捕獲断面積 $\sigma_s$ を導出した。

$$\sigma_s = \frac{I_a \xi_a C_a Y_s}{I_s \xi_s C_s Y_a} \sigma_a \quad (3.5)$$

ここで $I$ は入射中性子数、 $\xi$ は試料の原子数面密度、 $Y$ は中性子捕獲反応数、 $C$ は中性子の試料中での自己遮蔽や多重散乱等の補正係数、 $\sigma_a$ はJENDL-4.0から求めた金の標準断面積である。3.1節で述べたモンテカルロシミュレーションにより導出したフィルター挿入時の中性子エネルギースペクトルでJENDL-4.0の<sup>197</sup>Auの平均断面積を計算して断面積の標準とした。添え字 $s$ と $a$ はそれぞれMA試料測定、金試料測定に関するものであることを示す。MA試料測定と金試料測定の入射中性子数の比 $\frac{I_a}{I_s}$ は、核破碎中性子源に入射する陽子ビームパルス数の比から求めた。中性子捕獲反応数 $Y$ は波高スペクトルに波高重み法を適用することで得られた。波高重み法に用いる重み関数は、モンテカルロシミュレーションにより得られた検出器応答関数から求めた。中性子の試料中での自己遮蔽や多重散乱等の補正係数 $C$ はモンテカルロシミュレーションにより求めた。

結果として得られた断面積と誤差を表3-6及び表3-7に示す。誤差として、統計誤差、標準断面積の誤差、試料物質質量の誤差、補正係数の誤差、不純物補正誤差、検出の弁別レベル（600 keV）

以下のガンマ線寄与の補正誤差を考慮した。統計誤差と標準断面積の誤差（3%）が支配的な誤差成分となった。

$^{237}\text{Np}$  の測定結果を過去の測定値及び評価値と比較した（図 3-26）。 $^{237}\text{Np}$  の中性子捕獲断面積に関しては、keV 領域においてこれまで2つの飛行時間法を用いた測定が報告されている。Westonらは、オークリッジ国立研究所の電子線形加速器からのパルス中性子ビームを用いて実験を行った [6]。中性子捕獲ガンマ線は  $\text{C}_6\text{F}_6$  検出器を用いて検出され、断面積の導出には波高重み法が適用された。Eschらはロスアラモス国立研究所の核破碎中性子源施設 LANSCE で測定を行った [7]。大型の  $\text{BaF}_2$  検出器アレイを用いてガンマ線を検出し、全吸収カロリメータ（Total absorption calorimeter）法によって断面積を決定した。過去の測定値の誤差は統計誤差のみが表示されている。過去の測定値がばらつきが大きいのに比較し、今回の測定はばらつきが小さい結果が得られた。ただし、51.5 keV の結果は他に比べ小さくなっている。これは単色化された中性子のエネルギー幅が 7 keV と狭いために共鳴反応による断面積の変動の影響が大きく現れたためと考えられる。

図 3-27 に  $^{243}\text{Am}$  の測定結果を過去の測定値及び評価値との比較を示す。 $^{243}\text{Am}$  に関しては、飛行時間法を用いた測定はこれまで2つの報告がある。Wisshakらは、カールスルーエ原子力研究所において  $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$  及び  $\text{T}(p,n)^3\text{He}$  反応を用いて発生させた中性子を用いて測定を行った [8]。Moxon-Rae 検出器を用いて中性子捕獲ガンマ線を測定し断面積を決定した。飛行距離や検出器の構成など8つの異なる実験条件で測定したため多数の点が与えられている。測定値に与えられている誤差は統計誤差と系統誤差の両方を含んでいる。Westonらは、 $^{237}\text{Np}$  の測定と同様の方法でオークリッジ国立研究所で測定した [9]。ただし、 $^{237}\text{Np}$  と比べ試料の放射能が桁違いに強く測定の精度を悪化させている。 $^{243}\text{Am}$  試料からの崩壊ガンマ線により回路系の信号処理が影響を受け測定結果に大きなばらつきが生じた。異なる加速器条件で2回測定を行っているが、2つのデータセット間で8%程度の食い違いが観測された。図 3-27 の Weston と Todd の測定値には統計誤差のみ表示されている。

一見して分かるように、これまでの測定値が精度が悪く大きくばらついているのに比べ、今回の測定値は精度が大きく改善した。

さらに過去の実験内容を検証した結果、Westonらは断面積の標準として  $^{243}\text{Am}$  の熱中性子捕獲断面積の ENDF/B-V の評価値（74.8 b）を用いているが、最新の値（87.7 b）[2] と比較すると17%程度小さいことが判明した。一方、Wisshakらは、 $^{197}\text{Au}$  の ENDF/B-V の捕獲断面積を標準として用いている。Au の評価値は古いものであるが、最新の JENDL-4.0 の評価値と比較してほとんど違いはない。そこで比較をより正確にするために過去の測定値を最新の断面積データで再規格化し直した。Wisshakらの測定値には JENDL-4.0 の  $^{197}\text{Au}$  の捕獲断面積を、Westonらの測定値には最新の  $^{243}\text{Am}$  の熱中性子捕獲断面積測定値を再規格化に用いた。再規格化した過去の測定値と今回の測定値を図 3-28 に示す。図 3-28 から Wisshakらの測定値は今回の測定値よりも小さくなることが分かった。また、Westonらは論文中で Wisshakらの測定値と誤差の範囲で一致したと結論付けているが、最新の標準断面積データを用いると一致しないことが判明した。

ここで Wisshakらの測定値が小さくなった原因は不明だが、試料の物質量の誤差がひとつの可能性として考えられる。Wisshakらは  $^{243}\text{Am}$  試料の物質量を重量のみから決定している。本研究で行ったように放射能を用いた物質量の決定は行っていない。放射性試料は試薬などと比べると不純物が多く含まれることがあり、重量からのみで物質量を定める方法は信頼性が乏しい。Wisshakらは試料の物質量の誤差を1.5%としているが、誤差を過小評価している可能性がある。

実際、本研究で使用している  $^{243}\text{Am}$  の試料成績書も実際の物質量と大きく異なっている。したがって、Wisshak らの測定で用いられた  $^{243}\text{Am}$  試料の物質量が過大評価され導出された断面積が小さくなった可能性は十分に考えられる。

### 3.2.5 まとめ

J-PARC の高強度中性子ビーム及び放射性試料からの崩壊ガンマ線により引き起こされる高計数率環境下でも計測が行えるよう NaI 検出器からの信号の高速データ収集技術を開発した。中性子フィルター装置を用いて  $^{237}\text{Np}$  及び  $^{243}\text{Am}$  の測定を行い、得られた実験データを解析して中性子捕獲断面積を導出した。過去の測定値よりも高い精度で断面積を決定した。本研究で得られた測定値は過去の測定に比べ試料物質量の算出など信頼性の高いものであり、断面積評価を行う際の基準点を与えるものである。

#### 参考文献

- [1] K. Terada et al., “Technical developments for accurate determination of amount of samples used for TOF measurements”, EPJ Web of Conferences, 146, 03019 (2017).
- [2] A. Kimura et al. “Measurements of the  $^{243}\text{Am}$  neutron capture and total cross sections with ANNRI at J-PARC”, Journal of Nuclear Science and Technology, 56, 479-492 (2019).
- [3] R. L. Macklin and J. H. Gibbons, “Capture-cross-section studies for 30-220 keV neutrons using a new technique”, Physical Review 159, 1007–1015 (1976).
- [4] S. Mizuno et al., “Measurements of keV-Neutron capture cross sections and capture gamma-ray spectra of  $^{161,162,163}\text{Dy}$ ”, Journal of Nuclear Science and Technology, 36, 439-507 (1999).
- [5] T. Sato et al. “Features of particle and heavy ion transport code system (PHITS) version 3.02, Journal of Nuclear Science and Technology”, 55, 684-690 (2018).
- [6] L. W. Weston and J. H. Todd, “Neutron Capture Cross Section of  $^{237}\text{Np}$ ”, Nuclear Science and Engineering, 79, 184-196 (1981).
- [7] E.-I. Esch et al., “Measurement of the  $^{237}\text{Np}(n,\gamma)$  cross section from 20 meV to 500 keV with a high efficiency”, highly segmented  $4\pi$  BaF<sub>2</sub> detector, Physical Review C, 77, 034309 (2008).
- [8] K. Wisshak and F. Kappeler, “Neutron capture and fission cross section of  $^{243}\text{Am}$  in the energy range from 5 to 250 keV”, Nuclear Science and Engineering, 85, 251-260 (1983).
- [9] L. W. Weston and J. H. Todd, “Neutron Capture Cross Section of  $^{243}\text{Am}$ ”, Nuclear Science and Engineering, 91, 444-450 (1985).

表 3-5: MA 試料の諸元

化学形	NpO <sub>2</sub>	AmO <sub>2</sub>
同位体純度	99.99%	97.7%
試料ペレット重量	851.5 mg	434 mg
放射能	5.18 MBq	281.8 MBq
MA 物質質量 (重量)	199 mg	38.14 mg
物質質量誤差	0.9%	0.1%
直径	20 mm	10 mm
厚さ	1.0 mm	0.5 mm
原子数面密度	$0.162 \times 10^{-3}$ atoms/barn	$0.120 \times 10^{-3}$ atoms/barn

表 3-6: <sup>237</sup>Np の中性子捕獲断面積測定値

平均エネルギー (keV)	エネルギー範囲 (幅) (keV)	フィルター	断面積 (b)	誤差 (b)
23.5	22.0 – 24.8 (2.8)	Fe	2.30	0.15 (6.5%)
45.0	36.3 – 78.1 (41.8)	Cr	1.78	0.19 (10.6%)
51.5	47.0 – 54.0 (7)	Si	1.34	0.071 (5.3%)
127.7	120 – 140 (20)	Si	0.921	0.041 (4.4%)

表 3-7: <sup>243</sup>Am の中性子捕獲断面積測定値

平均エネルギー (keV)	エネルギー範囲 (幅) (keV)	フィルター	断面積 (b)	誤差 (b)
23.5	22.0 – 24.8 (2.8)	Fe	2.52	0.14 (5.5%)

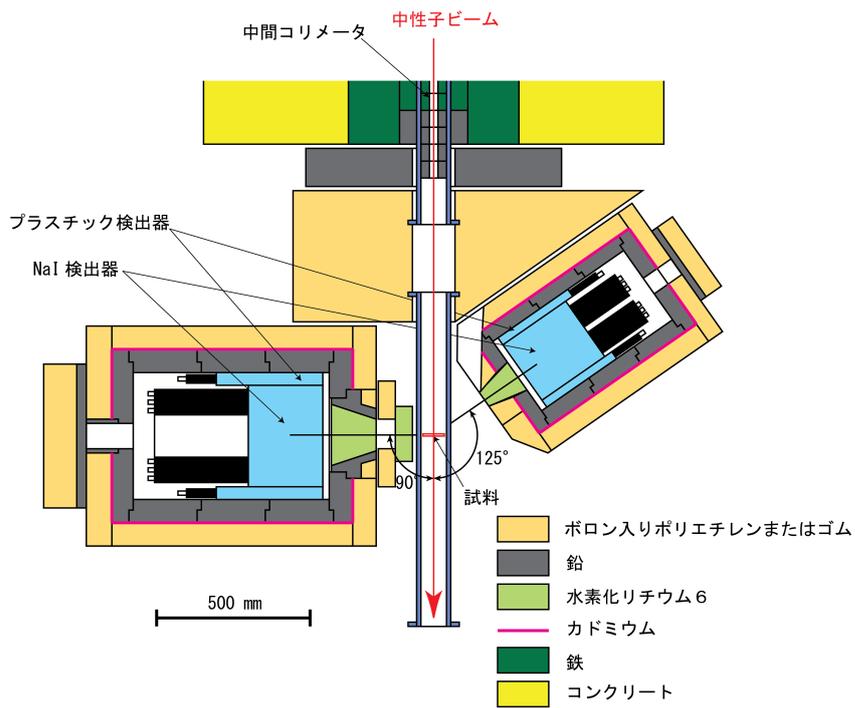


図 3-20: J-PARC/MLF/ANNRI NaI 検出器

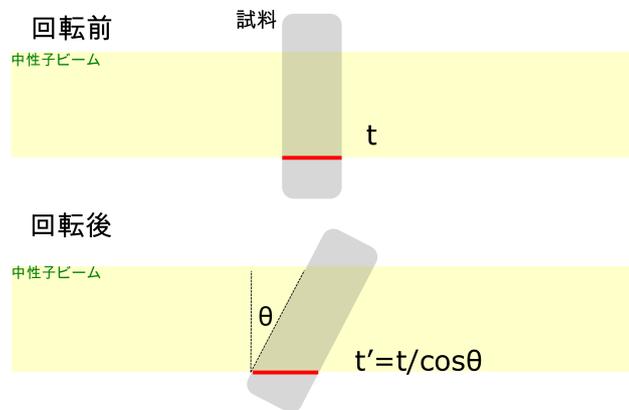


図 3-21: 試料を傾けたときの厚さの変化

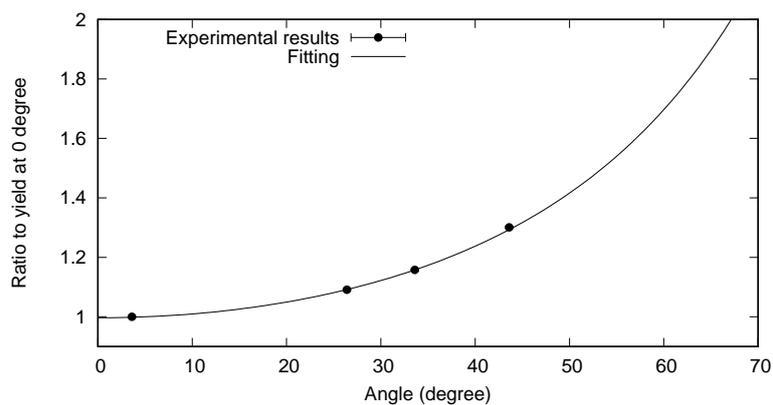


図 3-22:  $^{237}\text{Np}$  試料を回転させたときの第一共鳴のピーク高さの変化比  $R$

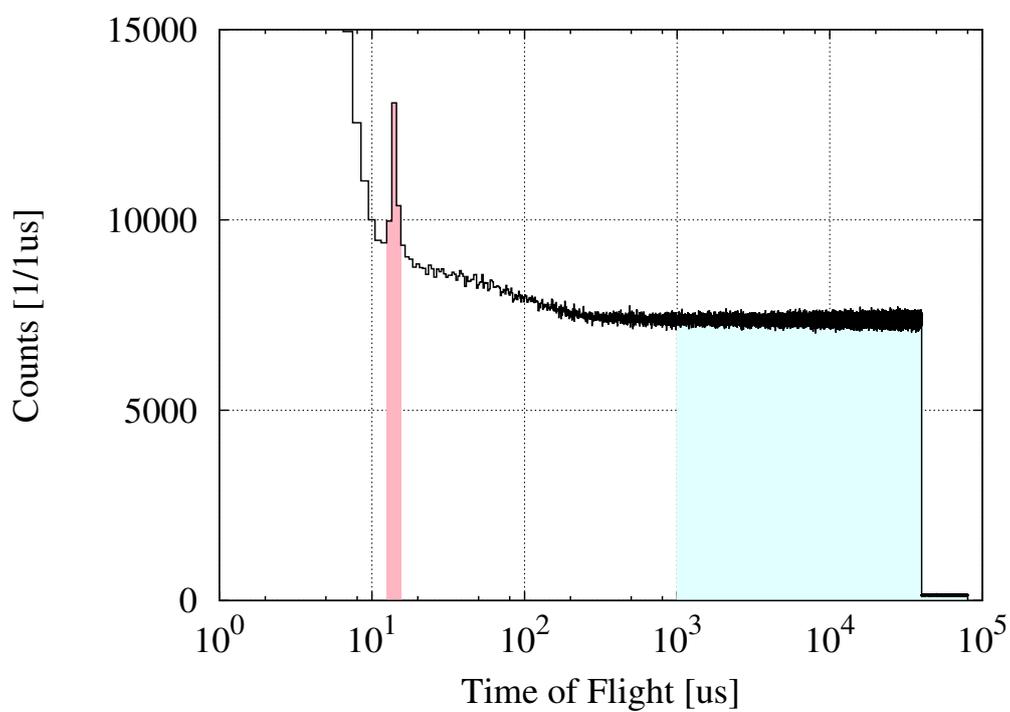


図 3-23:  $^{237}\text{Np}$  測定 of 飛行時間スペクトル

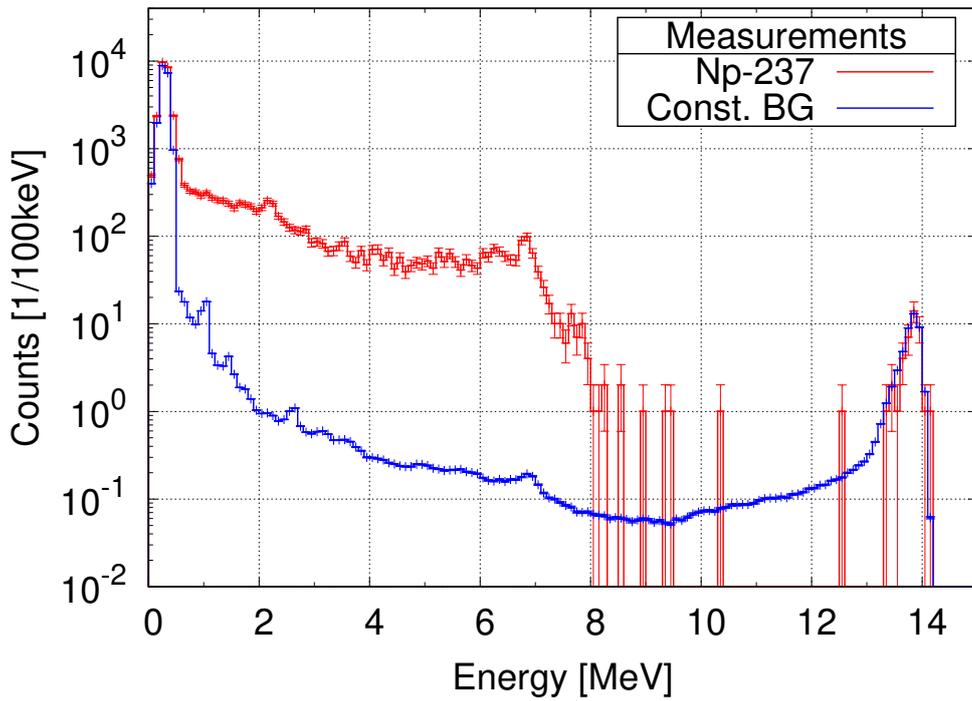


図 3-24:  $^{237}\text{Np}$  測定の高エネルギースペクトルと時間に依存しないバックグラウンド

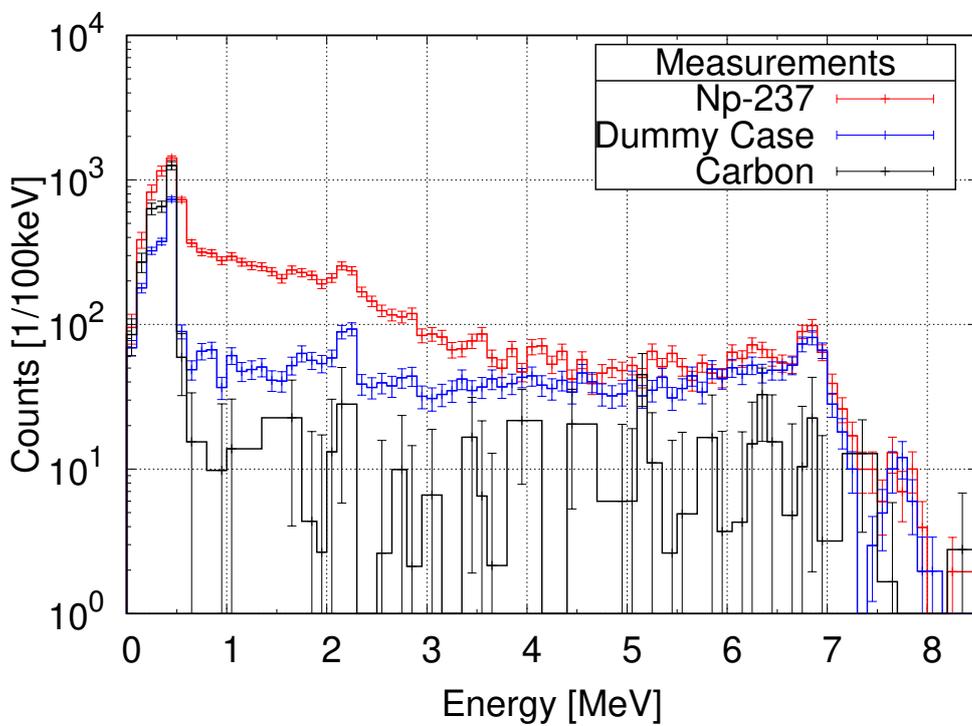


図 3-25: 時間に依存しないバックグラウンドを除去した  $^{237}\text{Np}$  測定の高エネルギースペクトルと各種バックグラウンドとの比較

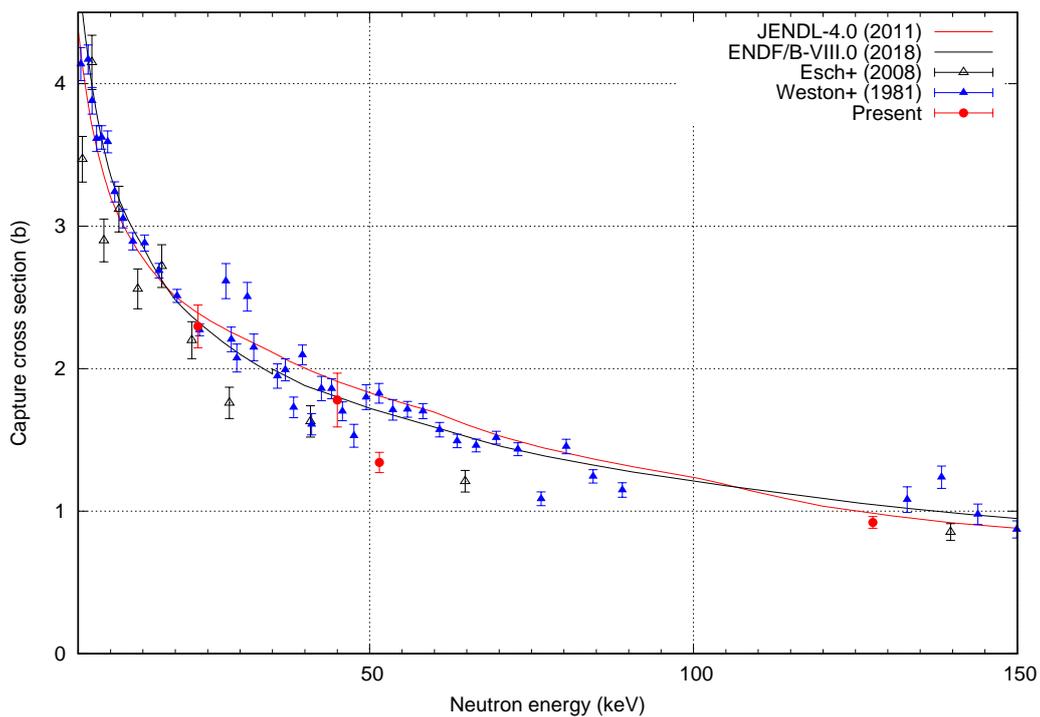


図 3-26:  $^{237}\text{Np}$  の中性子捕獲断面積の測定結果と過去の実験値、評価値との比較

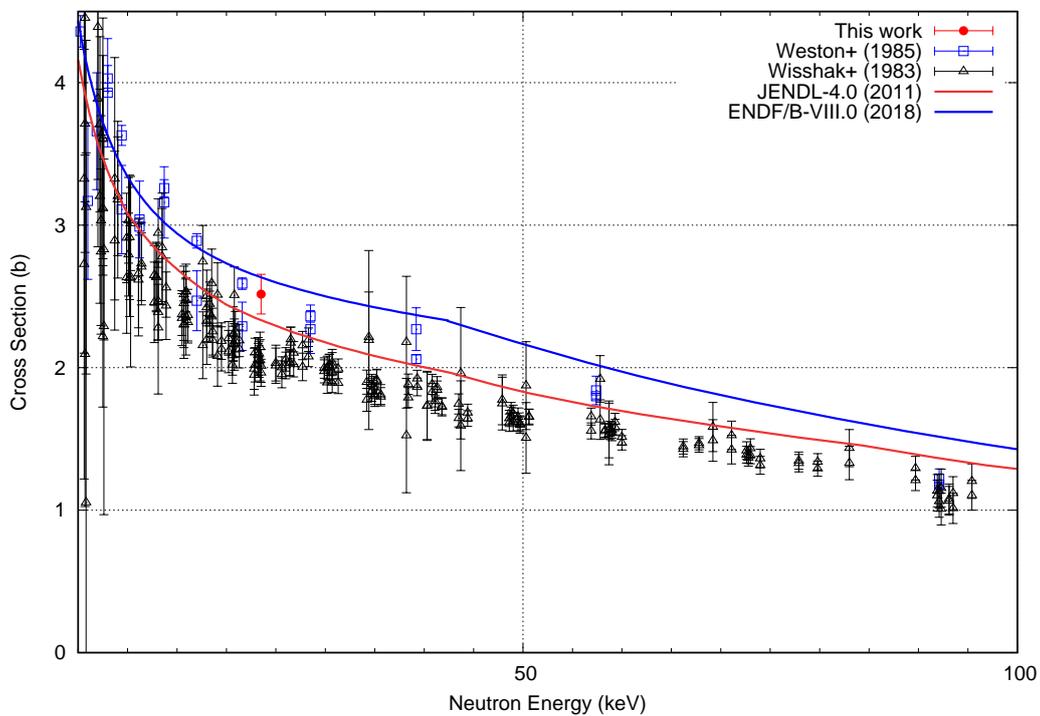


図 3-27:  $^{243}\text{Am}$  の中性子捕獲断面積の測定結果と過去の実験値、評価値との比較

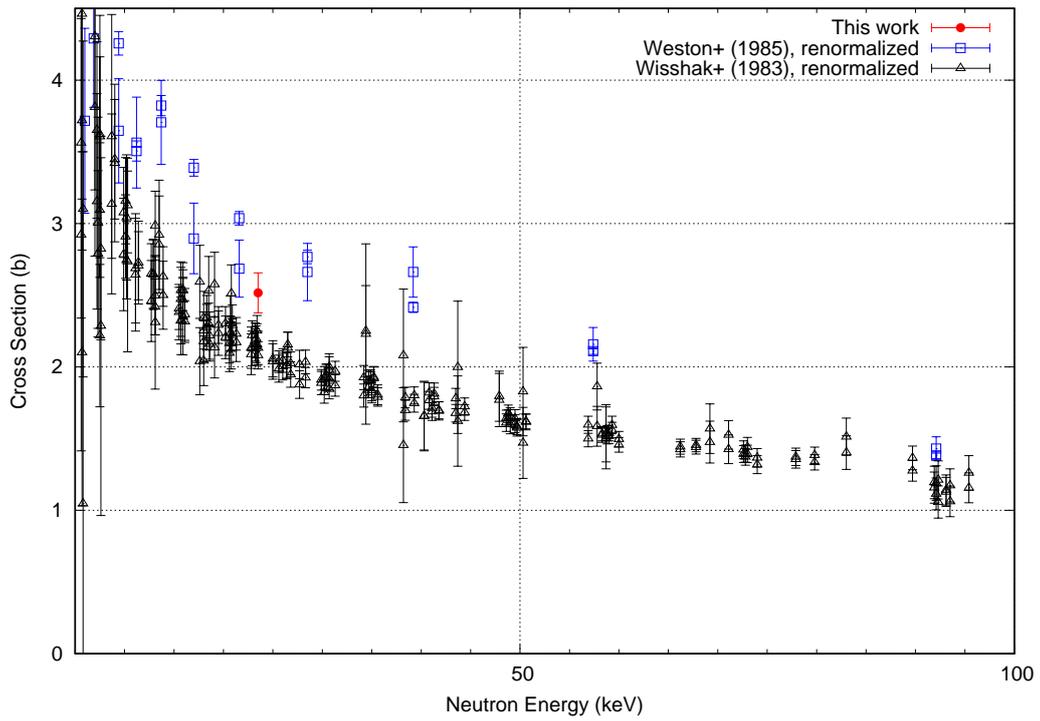


図 3-28:  $^{243}\text{Am}$  の中性子捕獲断面積の測定結果と再規格化した過去の実験値との比較

### 3.3 MA 試料中の Pu 分析技術の開発（再委託先：京都大学）

#### 3.3.1 不純物 Pu 分析の概要

試料に関する系統誤差要因を低減するためには、(1) 同位体的な不純物の高精度分析、及び(2) 中性子反応断面積測定に影響を与えうる化学的不純物の高精度分析が必要であり、化学的不純物として Pu を重要視している。このため、本プロジェクトでは、(1) MA 試料中に含まれる Pu 不純物の定量に適用するための Pu 分析標準試料の整備、及び(2) MA 試料に対する TIMS 等による不純物分析試験の実施を当該項目の目標に設定した。

本プロジェクト行う MA 試料中の Pu の分析として、Pu の MA 試料への添加による Pu 同位体比の変化を分析する方法を採用した。この方法について簡単に説明する。MA 試料に既知量の Pu を添加し、MA 試料中の Pu の同位体比を分析する。その Pu 同位体比は Pu の添加量により変動する（図 3-29）。Pu の添加後の MA 試料の Pu 同位体比 ( $c_i/c_j$ ) は、以下の式で表すことができる。

$$c_i/c_j = xa_i/a_j + yb_i/b_j = (xa_i + yb_i)/(xa_j + yb_j) \quad (3.6)$$

ここで、 $a_i/a_j$  及び  $b_i/b_j$  はそれぞれ MA 試料中の Pu 同位体比（添加前）及び添加する Pu の同位体比を表している。また、 $x$  は MA 試料に含まれる Pu の総量を表しており、 $y$  は添加する Pu の総量を表している。Pu の添加総量 ( $y$ )、Pu の添加前後及び添加する Pu の同位体比 ( $a_i/a_j$ ,  $b_i/b_j$ , 及び  $c_i/c_j$ ) のデータは分析等により得ることができるので、それらをもとに MA 試料に含まれている Pu 総量 ( $x$ ) を評価する。このために必要な情報は、(1)Pu の添加前の MA 試料中 Pu の同位体比、(2) 添加する Pu の同位体比、及び(3)Pu を添加した後の MA 試料中の Pu の同位体比となる。

#### 3.3.2 質量分析装置の真空系及びフィラメント温度制御系の高度化のための改良とその検証【H29】

本研究では、MA 試料の分析に対して TIMS を主たる装置として用いる。TIMS は、イオン源、分析部、及び検出器から構成される（図 3-30）。イオン源に導入した試料は正または負の電荷をもつイオンに変換され、イオン源から加速する。加速したイオンは、分析部の磁場又は電場を通過する際に質量によって異なる軌跡を描く。このイオンを検出器で測定し、イオンビーム強度比から同位体比を求める。また、MA 試料を対象とした質量分析は、Re フィラメントを用いたダブルフィラメント法により行った。ダブルフィラメント法による分析では、試料を塗布・乾固させた蒸発用フィラメント及びイオン化用フィラメントを表面電離型質量分析装置のイオン源部分に装着し、イオン源周辺の真空度の急激な変動を抑えつつ、フィラメントへの通電量を増加させて、分析に十分な MA 核種のイオンビーム強度を確保し、同位体比分析を実施する。

本研究で採用する MA 試料に Pu を添加する方法は、MA 試料に更なる不純物を追加することと同じ意味を示す。このことは、TIMS での分析時の真空度変化を増長させる原因となりうる。また、フィラメントに塗布されている試料の主なものは MA 試料であり、僅かに含まれる Pu のイオン化の制御は MA 試料のイオン化の制御よりも難しい。このため、真空系制御の高度化及びフィラメント温度制御の高度化を行った。

真空系制御の高度化では、ターボ分子ポンプの交換による真空排気システムの改良を行った。排気量の大きい真空ポンプへの交換により、20% 程度の排気システムの性能向上が達成された。フィラメ

ント温度制御の高度化では、パイロメータの設置による温度制御系の改良を行った。これまでの温度制御の方法は、フィラメントに用いている  $^{187}\text{Re}$  ビーム強度による制御で信頼性の高いものではなかった。そこでイオン源窓にパイロメータを設置し、直接フィラメントの表面温度を観測することによる信頼性の高い温度制御方法に切り替えた。その結果、従来法の温度制御が30%程度だったのに対し、パイロメータの使用により1%程度での温度制御が可能になった。

### 3.3.3 Pu 分析標準試料の整備【R1】

令和元年度に本分析手法を適用するための Pu 分析標準試料を整備した。試料は 3.1 mol/l の硝酸溶液であり、硼珪酸ガラスサンプル中に封じられている。

本試料は 1994 年に LLNL で化学精製され、2017 年に NIST で  $^{241}\text{Pu}$  の娘核種である  $^{241}\text{Am}$  が取り除かれたものである。 $^{242}\text{Pu}$  の放射能は 26.08 Bq/g である。同位体純度は非常に高く、 $^{242}\text{Pu}$  に対する  $^{241}\text{Pu}$  の放射能比は  $0.36 \pm 0.11\%$ 、原子核数比にすると  $1.4 \times 10^{-7}$  である。 $^{238}\text{Pu}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{240}\text{Pu}$  はいずれも検出限界以下であった。

整備した  $^{242}\text{Pu}$  標準試料の質量分析を実施した。分析方法は上述の MA 試料の分析とほぼ同じで、 $^{242}\text{Pu}$  使用量を 0.3 ng/run とした。得られた  $^{242}\text{Pu}$  標準試料のマスペクトルを図 3-31 に、また、同標準試料の Pu 同位体比分析結果を表 3-13 に示す。今回の分析条件では、 $^{242}\text{Pu}$  以外の Pu によるピークは観測されず、 $^{242}\text{Pu}$  の純度として  $99.998 \pm 0.004\%$  ( $n = 3$ ) を得た。このことより、式 3.6 での Pu の同位体比 ( $a_i/a_j$ 、 $b_i/b_j$  及び  $c_i/c_j$ ) を  $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  とした場合、添加する Pu での  $b_j$  は考慮する必要が無いため、(3.6) 式は以下の式 (3.7) のように簡略化することができる。

$$c_i/c_j = (xa_i + yb_i)/xa_j \quad (3.7)$$

### 3.3.4 本研究で分析する MA 試料

令和元年度より、分析対象である MA 試料の分析試験を開始した。各試料の成分表を表 3-9 に示す。先行研究では、それぞれの試料の同位体組成分析に主眼を置いた分析試験を行っている。その中で、 $^{237}\text{Np}$  試料は同位体不純物は確認されないこと、及び  $^{243}\text{Am}$  試料ではミルシートに記載されている程度の  $^{241}\text{Am}$  と記載されていない  $^{242m}\text{Am}$  が同位体的な不純物として含まれていることを確認している。また、全試料にて、他のアクチニド元素が原因と思われるイオンビームが確認されている。 $^{237}\text{Np}$  試料では、他の放射性核種の不純物は  $\alpha$  核種として 17% 存在していると報告されている。一方、 $^{243}\text{Am}$  試料に関しては、 $^{241}\text{Am}$ 、 $^{242}\text{Cm}$  及び  $^{244}\text{Cm}$  の存在が確認されているが、先行研究ではそれ以外の核種と思われるイオンビームも観測している。

### 3.3.5 $\alpha$ 線観測による MA 試料の分析【H30】

MA 試料の濃度の確認のために  $\alpha$  線分析を実施した。MA 試料の  $\alpha$  線スペクトルを図 3-32 に示す。参考に  $^{241}\text{Am}$  の  $\alpha$  線スペクトルも示す。 $^{237}\text{Np}$  試料では、 $^{237}\text{Np}$  に由来する 4.8 MeV のピークに加えて、ミルシートからは推測ができない 5.1 MeV 付近と 5.5 MeV 付近のピークが観測された。それぞれのピークは、 $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$  のピーク (5.1 MeV) 及び ( $^{238}\text{Pu} + ^{241}\text{Am}$ ) のピーク (5.5 MeV) と推測される。この中で、5.5 MeV のピークに関しては、メイン/サブのピーク比を考慮すると、 $^{238}\text{Pu}$  が大半を占めていると思われる。一方、5.1 MeV のピークに関しては、 $\alpha$  線データではこれ以上の考察ができない。また、メインの  $^{237}\text{Np}$  のピークとそれぞれのピークの面

積比として、 $0.050\pm 0.001$  (5.1 MeV/4.8 MeV 比) 及び  $0.126\pm 0.002$  (5.5 MeV/4.8 MeV 比) を得た。

$^{243}\text{Am}$  試料の分析では、 $^{243}\text{Am}$  に由来するピーク (5.3 MeV 付近)、ミルシートでも報告されている  $^{241}\text{Am}$ 、 $^{244}\text{Cm}$  (それぞれ 5.5 MeV 及び 5.8 MeV 付近) のピークが観測された。また、6.1 MeV 付近にもピークが観測された。このピークはミルシートにも記載されている  $^{242}\text{Cm}$  に帰属すると推測されるが、ミルシートの基準日と  $^{242}\text{Cm}$  の半減期 (163 日) 及び  $\alpha$  線スペクトル観測日を考えると、試料調製当初から不純物として存在していた  $^{242}\text{Cm}$  ではなく、核壊変により生成されたものと推測される。ただし、この親核種となりうる核種の記載はミルシートには無い。また、このスペクトルより  $^{241}\text{Am}$  及び  $^{243}\text{Am}$  の含有率を評価したところ、 $2.26\pm 0.01\%$  ( $^{241}\text{Am}$ ) 及び  $97.74\pm 0.33\%$  ( $^{243}\text{Am}$ ) と見積もられた (共に  $2\sigma$ )。

$\alpha$  線分析から得た各 MA 試料の濃度評価結果を表 3-10 に示す。 $^{243}\text{Am}$  試料に関しては、濃度の分析結果と見積値との比較で分析結果の方が若干高い値を示した。今回の濃度評価より、MA 試料の濃度誤差の軽減を確認した。なお、見積値の評価は、減衰補正と 4M 硝酸の比重変換 [7] をもとに行った。

### 3.3.6 Pu を添加する前の MA 試料の TIMS 分析【R1】

令和元年度に Pu 添加前の MA 試料中 Pu の同位体比の分析を実施した。MA による TIMS の汚染の低減を目的として、MA 試料の使用量を 1~1.5 ng/回とした。MA 試料それぞれの主要核種 1~1.5 ng 分を上述の蒸発用フィラメントに塗布し、通電による乾固を行った。試料を塗布・乾固させた蒸発用フィラメント及びイオン化用フィラメントを TIMS のイオン源部分に装着し、イオン源周辺が高真空になった後に以下の手順で各試料の同位体分析を行った。結果として得られた MA 試料の化学的不純物の観測時に得たマススペクトル例を図 3-33、図 3-34 に示す。これらの図には、基準日から観測日までの間に生成されている娘核種の評価結果も縦グラフとして示す。

$^{237}\text{Np}$  試料では、主要核種の  $^{237}\text{Np}$  のピークの外に、質量数 233~242 でもピークを確認した (なお図 3-33 は  $^{237}\text{Np}$  の観測に調整された条件での質量分布測定のため強度の弱い 240 以上は明瞭に見えない)。質量数 233, 234 及び 235 は U と推測される。また、質量数 238 は U と  $\alpha$  線測定で観測した  $^{238}\text{Pu}$  の混合と思われる。ただし、 $^{238}\text{Pu}$  の絶対量は少ないので、大半は U で占められていると思われる。質量数 239, 240, 241 及び 242 は Pu に帰属すると推測された。Np, Pu 及び U はそれぞれ試料に含まれている含有量及びイオン化ポテンシャルが異なるため [8]、それぞれに由来するイオンビームは同等に安定した状態で観測されることはない。質量数 238, 239, 240 及び 242 のビーム強度の時間依存性を調べ、各質量数で見られたピークの帰属先の検討を行い、そこから Pu の同位体比を評価した。この時得た Pu 同位体比を、表 3-11 にまとめる。また、その後の Np の同位体分析結果より、 $^{237}\text{Np}$  が  $99.9976\pm 0.0009\%$  ( $n=7$ ,  $2\sigma$ , 表 3-11) であることも評価した。次に、TIMS を用いて得た  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  と  $\alpha$  線測定で求めた  $^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu}$  と  $^{237}\text{Np}$  の放射能比をもとに、 $^{237}\text{Np}$  試料中の Pu 量の評価を試みた。その結果、 $^{239}\text{Pu}/^{237}\text{Np}$  原子比として、 $(4.4\pm 0.4)\times 10^{-4}$  ( $2\sigma$ ) を得た。

$^{243}\text{Am}$  試料の TIMS 分析では、主要成分である  $^{243}\text{Am}$  に加えて、質量数 238, 239, 240, 241, 242, 244, 245 及び 248 に不純物由来と思われるピークを観測した。質量数 238 は U、質量数 239 及び 240 は Pu、ならびに質量数 244, 245 及び 248 は Cm と推測される。質量数 242 に関しては、 $^{242}\text{Pu}$  と  $^{242m}\text{Am}$  の混在であるとし、 $\text{M-}242/^{243}\text{Am}$  比及び  $\text{M-}242/^{239}\text{Pu}$  比それぞれの時間依存性をもとに、 $^{242m}\text{Am}/^{243}\text{Am}$  同位体比及び  $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比を評価した。 $^{243}\text{Am}$  試料の Pu 同

位体比及び Am 同位体の分析結果を表 3-12 に示す。 $^{243}\text{Am}$  試料でも Pu 同位体比を精度よく分析することができた。Am 同位体組成もミルシートでの報告分より 1桁精度良く分析できた。また、Am 同位体に関しては、ミルシートに記載されていない  $^{242m}\text{Am}$  の定量が行えた。この  $^{242m}\text{Am}$  が存在していることを前提に娘核種の生成を再評価すると、 $\alpha$  線測定で観測された  $^{242}\text{Cm}$  の存在が説明できる。一方、 $^{242m}\text{Am}$  が存在することで  $^{242}\text{Pu}$  も存在できる。上述の  $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比が  $^{242m}\text{Am}$  から発生した  $^{242}\text{Pu}$  だけを見ていると仮定して（つまり、 $^{243}\text{Am}$  試料の調製時には他の由来の Pu は存在していないと仮定して）、 $^{242m}\text{Am}$  の減衰評価を行い、そこで生成された  $^{242}\text{Pu}$  量をもとにした  $^{243}\text{Am}$  試料中の Pu 量の評価を試みた。その結果、 $^{239}\text{Pu}/^{243}\text{Am}$  原子比として、 $(7.6\pm 1.8)\times 10^{-4}$  ( $2\sigma$ ) を得た。

### 3.3.7 Pu を添加した MA 試料の TIMS 分析【R2】

$^{242}\text{Pu}$  標準試料を用いて、各 MA 試料中に含まれている Pu 分析を実施した。分析では、MA 試料の主要核種 1.5 ng に対して、0.1% 及び 0.05% の  $^{242}\text{Pu}$  標準試料を添加した。

$^{237}\text{Np}$  試料への  $^{242}\text{Pu}$  標準試料の添加による  $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比の変化の様子を図 3-35 に示す。 $^{237}\text{Np}$  試料中の  $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比は  $^{242}\text{Pu}$  標準試料の添加により、 $7.6\times 10^{-2}$  (表 3-11) から 1.9 へと増加した。また、各分析での精度は平均で 1.1% ( $n=4$ ) であった。本分析法で得た  $^{237}\text{Np}$  試料中の  $^{239}\text{Pu}$  量の評価結果として、 $^{239}\text{Pu}/^{237}\text{Np}$  原子比で  $(5.1\times 0.3)\times 10^{-4}$  ( $2\sigma$ ) を得た。この値は、上述の Pu 未添加での分析結果  $(4.4\pm 0.4)\times 10^{-4}$  と比較して誤差範囲内で一致しているが、1.16 倍高い値を示している。この評価結果の差として、 $\alpha$  線測定での  $^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu}$  の量が過小評価されていることが考えられる。本分析により得た  $^{237}\text{Np}$  試料中の Pu 量の評価結果を表 3-13 に示す。 $^{238}\text{Pu}/^{237}\text{Np}$  原子比は  $\alpha$  線測定で得た放射能比をもとに評価した。最大の存在量を示す Pu は  $^{239}\text{Pu}$  であり、その量は  $^{237}\text{Np}$  に対して  $10^{-4}$  のオーダーである。また、表 3-13 の Pu 量を用いて、 $^{237}\text{Np}$  試料中の  $^{237}\text{Np}$  の  $\alpha$  核種としての純度を再評価した結果、基準日の 2005 年に換算して、 $83.3\pm 1.2\%$  ( $2\sigma$ ) を得た。この結果は、ミルシートに記載の  $^{237}\text{Np}$  純度 (83%) を支持する。

$^{243}\text{Am}$  試料でも同様の分析を実施し、図 3-36 の結果を得た。 $^{243}\text{Am}$  試料では  $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比の増加量が低下し、 $2.5\times 10^{-3}$  (表 3-12) から 0.25 程度までの増加しか示さなかった。また、各分析での精度は平均で 0.8% ( $n=3$ ) であった。評価結果として  $^{239}\text{Pu}/^{243}\text{Am}$  原子比で  $(4.0\pm 0.1)\times 10^{-3}$  ( $2\sigma$ ) を得た。この値は、上述の Pu 未添加の場合の評価結果 ( $7.6\times 10^{-4}$ ) より 5 倍程度大きい。これは、 $^{243}\text{Am}$  試料に含まれている Pu は、ミルシートに記載されている成分の崩壊によるものよりも多くの Pu が試料の調製段階で含まれていたことを示している。本分析より得た  $^{243}\text{Am}$  試料中の Pu 量の評価結果を表 3-14 に示す。 $^{238}\text{Pu}/^{243}\text{Am}$  原子比は、ORIGEN2 コードによる核壊変評価結果をもとに計算した放射能比をもとに評価した。 $^{243}\text{Am}$  試料では、 $^{241}\text{Am}$  のビーム強度が  $^{241}\text{Pu}$  に比べて強いいため、 $^{241}\text{Pu}$  の評価は行わなかった。 $^{243}\text{Am}$  試料では、 $^{243}\text{Am}$  に加えてミルシートに記載されている  $^{241}\text{Am}$  及び記載されていない  $^{242m}\text{Am}$  が存在しており、さらに Pu が不純物として、合計で 1.2% 程度含まれていることが確認できた。

### 3.3.8 ホウ酸試料中のホウ素同位体組成分析【H30】

平成 30 年度に J-PARC で使用するホウ素試料中の B 同位体組成分析を行った。天然ホウ素の  $^{10}\text{B}$  の存在割合は IUPAC により 0.189 から 0.204 の間であるとされている [3, 4]。また、工業製品では原材料からの精製工程があり、この精製過程でも B 同位体組成が変化することが確認されて

いる [5]。これらの反応等で観測されている同位体組成の変動は、概ね IUPAC で報告されている天然 B の存在割合の幅と同程度である。このため、全ての効果が同じ方向で合わさると、天然ホウ素より大きな同位体組成の幅が表れる可能性が出てくる。以上の背景より、J-PARC で使用するホウ素試料中の B 同位体組成を、TIMS を用いて精密分析した。また、その分析精度の目標を  $^{10}\text{B}$  の存在割合に対して 0.1% ( $\pm 2\sigma$ ) に設定した。

B 同位体組成は、 $^{10}\text{B}/^{11}\text{B}$  同位体比の分析結果をもとに評価した。TIMS での B のイオンビームの取り出しは分子イオンの形で行っており、陰イオン型と陽イオン型のそれぞれの方法がこれまで検討されている [6]。本研究では、目標としている分析精度から、B の同位体比分析を  $\text{Na}_2\text{BO}_2$ +型の陽イオンの形で行った。この場合、 $^{10}\text{B}$  及び  $^{11}\text{B}$  はそれぞれ質量数 88 及び 89 になる (図 3-37)。

B 同位体組成の TIMS 分析では、B の使用料を 300 ng とした。TIMS を用いた B 同位体比の測定手法は、参考文献 [6] を参考にした。SRM951a 標準試料を分析した結果、 $^{10}\text{B}$  の存在割合として  $0.1981 \pm 0.0002$  ( $\pm 2\sigma$ ) を得た。この分析結果は、SRM951a に与えられている保証値 ( $0.1983 \pm 0.0001$ ) と誤差範囲内で一致しているとともに、目標としている 0.1% の分析精度をクリアしている。3 回の繰り返し測定による B 試料の同位体組成分析結果として、 $0.1991 \pm 0.0002$  ( $\pm 2\sigma$ ) を得た。また、これまで使用していた IUPAC の数値と比較しても (図 3-38)、3.5% から 0.1% へと大きく精度向上できた。

### 3.3.9 まとめ

MA 試料中の Pu 不純物分析を行うために TIMS の真空排気系及びフィラメント温度制御機構の改良を行った。同位体スパイクによる Pu 不純物分析を実施するために標準 Pu 試料を整備した。改良した TIMS 及び標準 Pu 試料を用いて MA 試料の Pu 不純物の分析を行った。また、測定の信頼性を向上するために  $\alpha$  スペクトル分析も組み合わせた。結果として目標精度 (1%) 以下で不純物の定量ができた。また、J-PARC で使用するホウ素試料中の B 同位体組成分析も行い中性子スペクトル導出に必要な同位体組成を高精度で決定した。

#### 参考文献

- [1] Y. Shibahara et al., “Radiological Issues for Fukushima’s Revitalized Future”, Springer (2016).
- [2] Y. Shibahara et al., “Determination of isotopic ratios of plutonium and uranium in soil samples by thermal ionization mass spectrometry”, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 307, 2281-2287 (2016).
- [3] J. Meija et al., “Isotopic compositions of the elements 2013 (IUPAC Technical Report)”, Pure and Applied Chemistry, 88, 293-306 (2016).
- [4] K. J. R. Rosman and P. D. P. Taylor, “Isotopic compositions of the elements 1997 (Technical Report)”, Pure and Applied Chemistry, 70, 217-235 (1998).
- [5] A. Vengosh, “The isotopic composition of anthropogenic boron and its potential impact on the environment”, Biological Trace Element Research, 66, 145-151 (1998).
- [6] I. T. Platzner, “Modern Isotope Ratio Mass Spectrometry”, Wiley (1997).

[7] 畑一夫, 渡辺健一, 「新版 基礎有機化学実験」, 丸善 (1968).

[8] “Handbook of chemistry and physics” 70th edn., Tables E 80-81, CRC press Inc., Boca Raton, FL (1989-90).

表 3-8:  $^{242}\text{Pu}$  標準試料の分析結果

Pu isotope analysis	
$^{239}\text{Pu}/^{242}\text{Pu}$	$(0.6\pm 6.5)\times 10^{-5}$
$^{240}\text{Pu}/^{242}\text{Pu}$	$(0.4\pm 6.0)\times 10^{-5}$
$^{241}\text{Pu}/^{242}\text{Pu}$	$(1.0\pm 4.8)\times 10^{-5}$
Isotope abundance (%)	
$^{242}\text{Pu}$	$99.998\pm 0.004$
Other Pu	$0.002\pm 0.004$

Error here means  $2\sigma$

表 3-9: MA 試料のプロファイル (ミルシート記載分)

	$^{237}\text{Np}$ sample	$^{243}\text{Am}$ sample
Concentration of radioactivity	solid	9.98 kBq/g
Solvent concentration ( $\text{HNO}_3$ ), mol/ $\ell$	solid	4
Activity measurement error (P=0.95)	No data	3%
Radioactivity impurities (for $^{237}\text{Np}$ and $^{241}\text{Am}$ )	17%	
Radionuclide components by $\alpha$ -spectrometry (for $^{243}\text{Am}$ )		$^{241}\text{Am}$ : 16.99% $^{243}\text{Am}$ : 38.32% $^{244}\text{Cm}$ : 43.99% $^{242}\text{Cm}$ : 0.7%
Reference date	2005.2.15	2015.3.5

表 3-10: MA 試料の濃度評価結果

	$^{237}\text{Np}(\text{kBq}/\text{ml})$	$^{243}\text{Am}(\text{kBq}/\text{mell})$
Estimated value	—	$11.3\pm 0.3$
Evaluated value	$(2.1\pm 0.1)\times 10^2$	$12.4\pm 0.1$

Error here is 2SD

表 3-11:  $^{237}\text{Np}$  試料の分析結果-1

Np isotope analysis	
Np-236/ $^{237}\text{Np}$	$(2.5\pm 0.8)\times 10^{-5}$
Isotope abundance (%)	
$^{237}\text{Np}$	$99.9976\pm 0.0009$
Other Np	$0.0024\pm 0.0009$
Pu analysis	
$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	$0.076\pm 0.001$
$^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	$0.004\pm 0.002$
$^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	$0.0047\pm 0.0007$

Error here means  $2\sigma$

表 3-12:  $^{243}\text{Am}$  試料の分析結果-1

Am isotope analysis	
$^{241}\text{Am}/^{243}\text{Am}$	$(2.33\pm 0.01)\times 10^{-2}$
$^{242m}\text{Am}/^{243}\text{Am}$	$(0.48\pm 0.05)\times 10^{-3}$
Isotope abundance (%)	
$^{243}\text{Am}$	$97.680\pm 0.005$
$^{241}\text{Am}$	$2.274\pm 0.005$
$^{242m}\text{Am}$	$0.046\pm 0.003$
Pu analysis	
$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	$2.143\pm 0.003$
$^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	$0.0025\pm 0.003$

Error here means  $2\sigma$

表 3-13:  $^{237}\text{Np}$  試料中の Pu の分析結果

$^{238}\text{Pu}/^{237}\text{Np}$	$(6.1 \pm 0.6) \times 10^{-7}$
$^{239}\text{Pu}/^{237}\text{Np}$	$(5.1 \pm 0.3) \times 10^{-4}$
$^{240}\text{Pu}/^{237}\text{Np}$	$(3.9 \pm 0.4) \times 10^{-5}$
$^{241}\text{Pu}/^{237}\text{Np}$	$(2.0 \pm 1.4) \times 10^{-6}$
$^{242}\text{Pu}/^{237}\text{Np}$	$(2.4 \pm 1.6) \times 10^{-6}$

Error here means  $2\sigma$

表 3-14:  $^{243}\text{Am}$  試料中の Pu の分析結果

$^{238}\text{Pu}/^{243}\text{Am}^*$	$(1.4 \pm 0.2) \times 10^{-5}$
$^{239}\text{Pu}/^{243}\text{Am}$	$(4.0 \pm 0.1) \times 10^{-3}$
$^{240}\text{Pu}/^{243}\text{Am}$	$(8.6 \pm 0.2) \times 10^{-3}$
$^{242}\text{Pu}/^{243}\text{Am}$	$(9.9 \pm 2.7) \times 10^{-6}$

Error here means  $2\sigma$

\*  $\alpha$  線測定で得た放射能比を基に評価した。

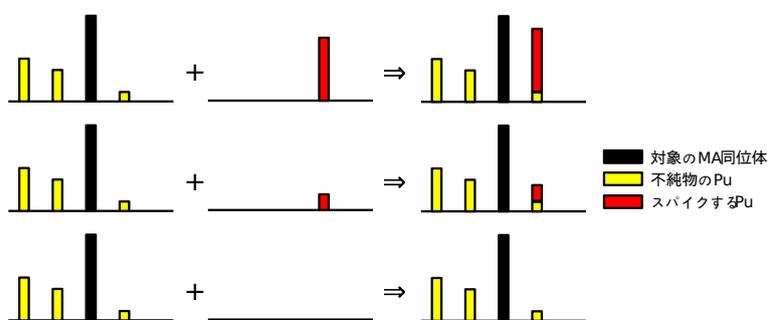


図 3-29: Pu の添加による MA 試料中の Pu 分析の概念図

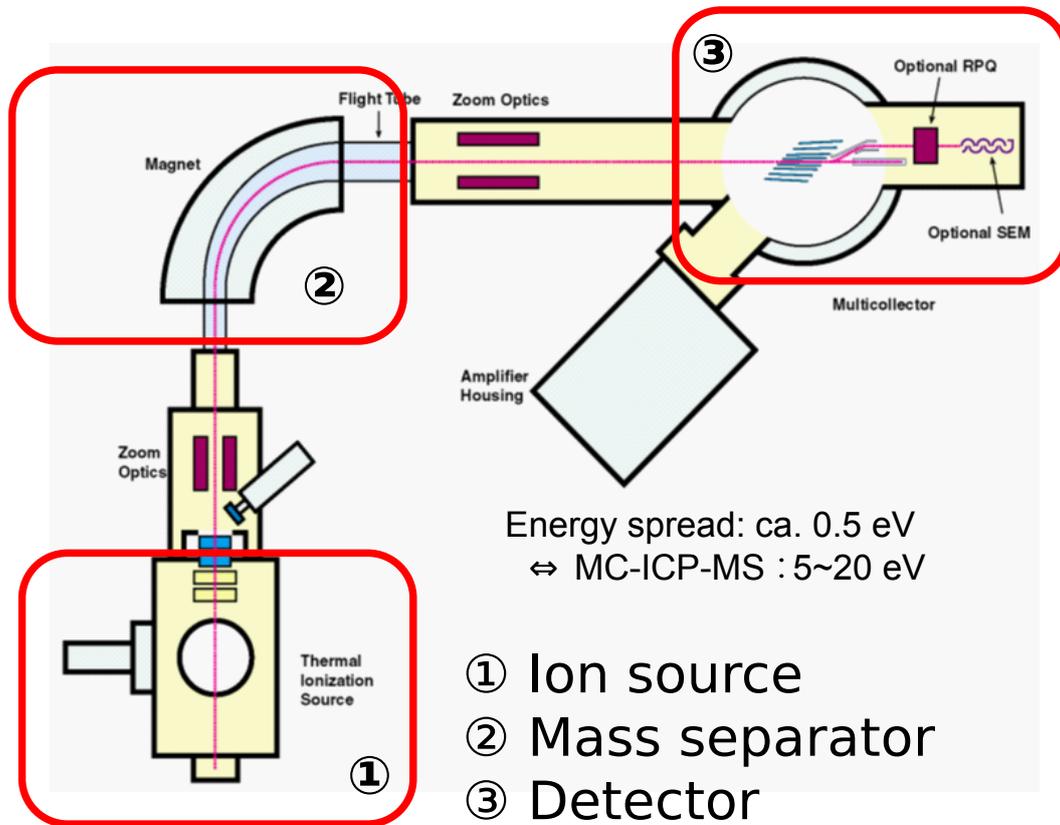


図 3-30: 表面電離型質量分析装置 (Thermal Ionization Mass Spectrometer : TIMS)

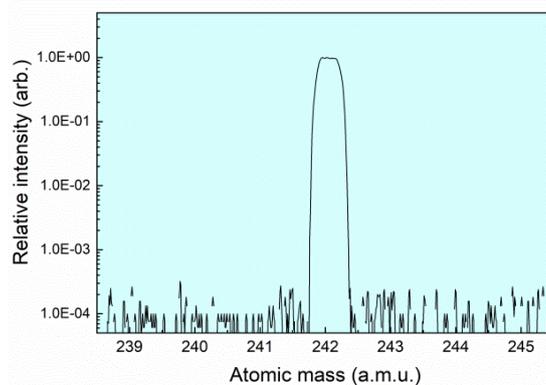


図 3-31: Pu 標準試料のマスペクトル

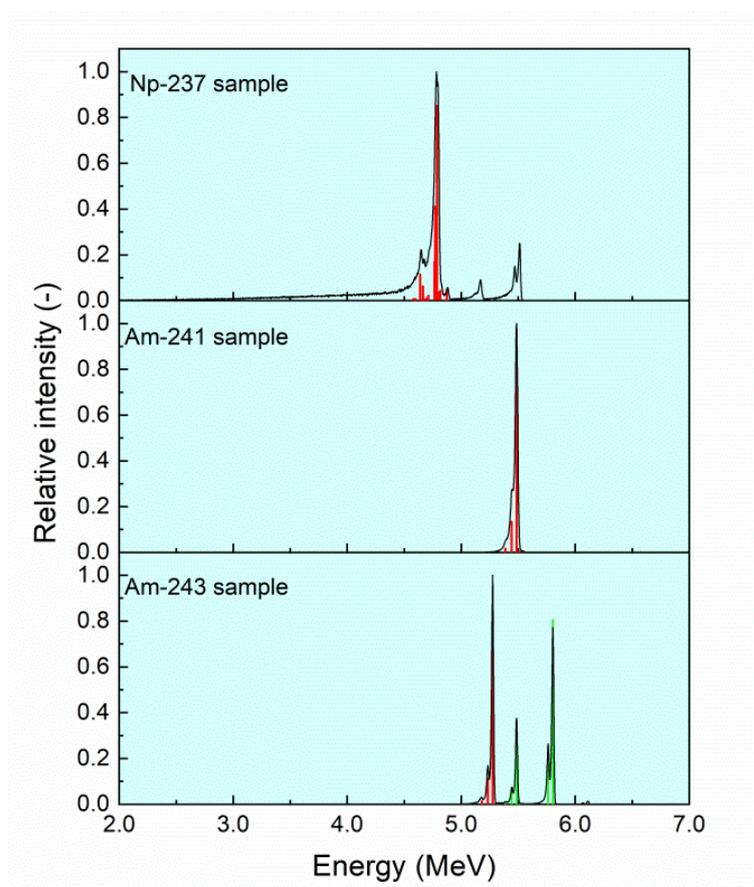


図 3-32: MA 試料の  $\alpha$  線スペクトル

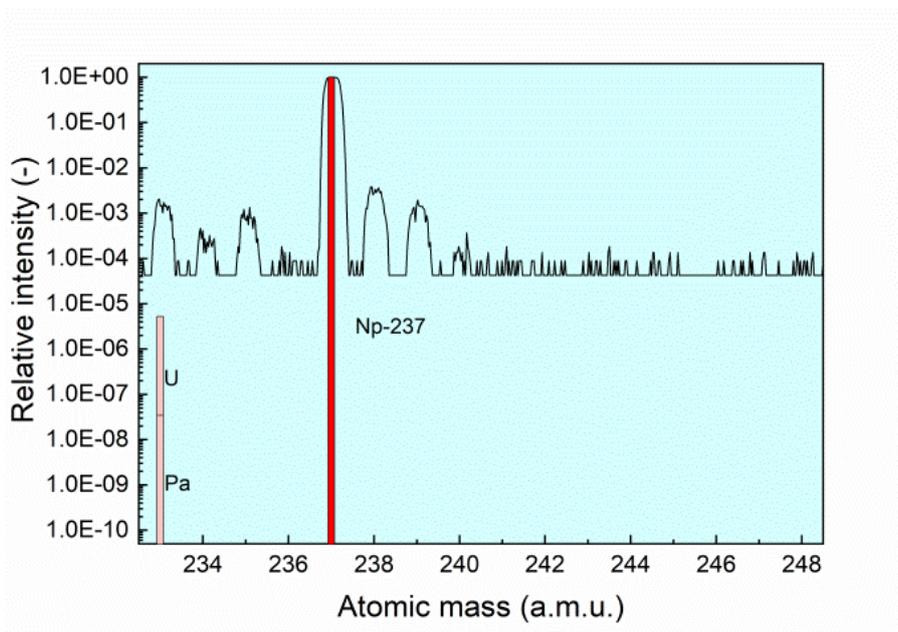


図 3-33:  $^{237}\text{Np}$  試料観測時で得たマススペクトル

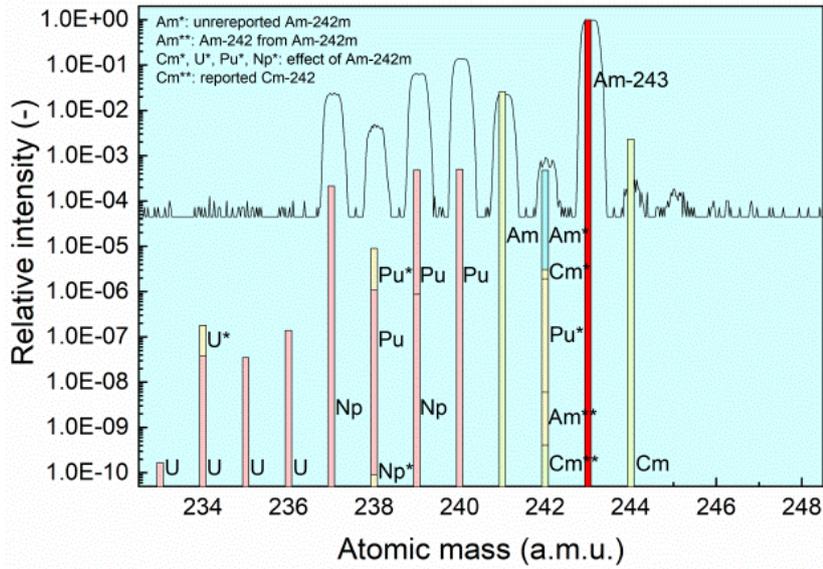


図 3-34:  $^{243}\text{Am}$  試料観測時で得たマスペクトル

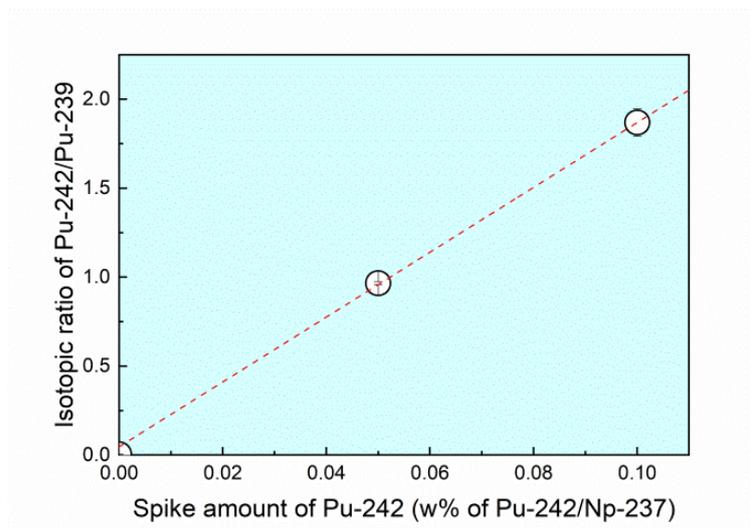


図 3-35:  $^{242}\text{Pu}$  の添加による  $^{237}\text{Np}$  試料での  $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比の変化

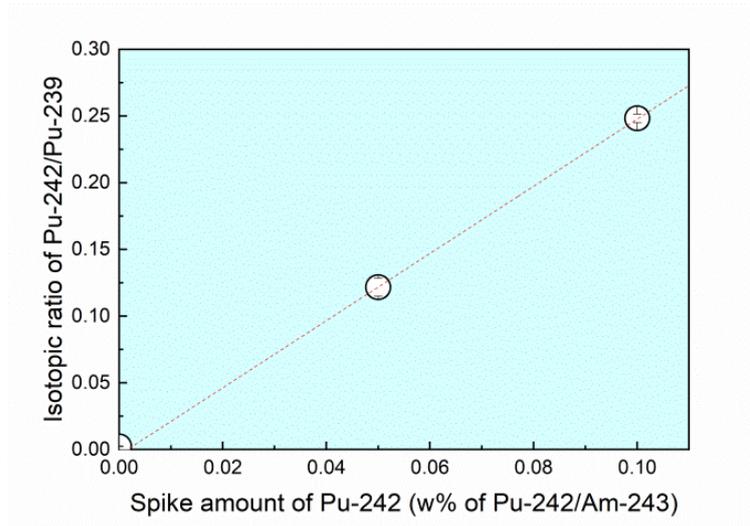


図 3-36:  $^{242}\text{Pu}$  の添加による  $^{243}\text{Am}$  試料での  $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比の変化

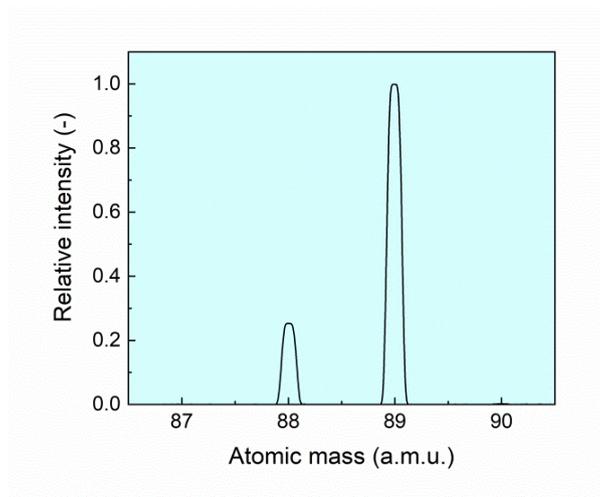


図 3-37: Na 系での B のマスペクトル

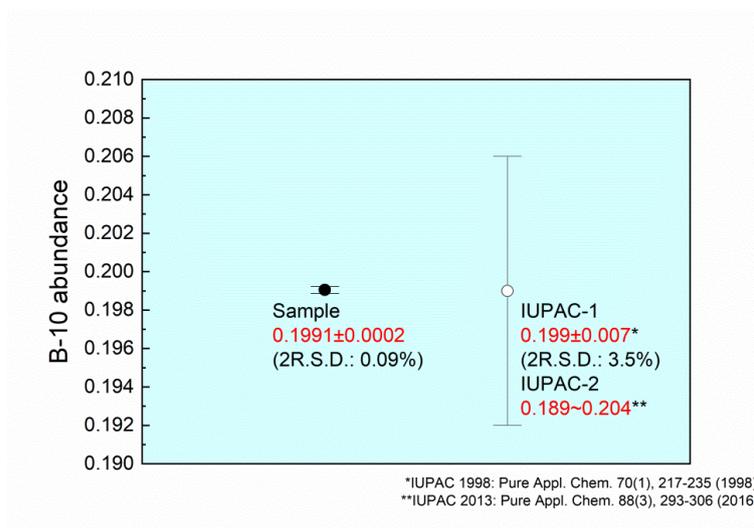


図 3-38: B 試料の同位体組成分析結果

### 3.4 MA 核データファイルの整備（再委託先：JAEA）

#### 3.4.1 スペクトル導出法の開発【H29-H30】

測定された中性子捕獲反応による波高（PH）ガンマ線スペクトル及び捕獲断面積を基に核反応理論モデルを用いた評価手法を高度化するため、核反応理論モデルで計算したスペクトルから、J-PARC/MLF/ANNRI で測定された PH ガンマ線スペクトルと比較可能なスペクトル導出法を開発した。

ANNRI で測定された PH ガンマ線スペクトルには、検出器のガンマ線に対する応答成分が含まれるため、そのままでは核反応理論モデルで計算したスペクトルとは比較ができない。そこで今回開発したスペクトル導出法では、粒子・重イオン輸送計算コード PHITS を用いて NaI 検出器内のガンマ線の輸送を模擬し、単色ガンマ線に対する検出器の応答関数を計算した。このガンマ線応答関数を核反応理論解析で得られた理論計算ガンマ線スペクトルにフォールディングする。これにより PH ガンマ線スペクトルの形で理論計算と測定結果が比較可能となった。図 3-39 に PHITS で計算した NaI 検出器の応答関数の例を示す。6 MeV の単色ガンマ線が NaI 検出器に入射した場合の応答スペクトルである。ガンマ線エネルギーが NaI 検出器に全て吸収された結果として全エネルギーピークが形成される。また、全エネルギーピーク以外にシングルエスケープピーク、消滅ガンマ線ピーク、コンプトン連続領域が形成される。シングルエスケープピークは電子対生成によって生じた消滅ガンマ線が NaI 検出器の外に逃げた結果である。消滅ガンマ線ピークは NaI 検出器周辺で電子対生成により生じた消滅ガンマ線が NaI 検出器に入射することによる。コンプトン連続領域は NaI 検出器中で入射ガンマ線がコンプトン散乱を起こし、散乱ガンマ線が検出器外に逃げた結果、連続的なスペクトルが生じる。同様の応答関数を異なる入射ガンマ線エネルギーに対して計算した。計算結果を図 3-40 に示す。入射ガンマ線エネルギーを 1 から 9 MeV までは 1 MeV 刻みで、1 MeV 以下については 100 keV 刻みで行った。全エネルギーピークのエネルギーが入射ガンマ線エネルギーに対応する。

#### 3.4.2 核反応理論解析【R1】

平成 30 年度までに開発したスペクトル導出法を用いて核反応計算コード CCONE [1] を用いた理論解析を実施し、実験結果を再現する理論モデルパラメータを決定した。図 3-41 に測定で得られた  $^{237}\text{Np}$  の中性子捕獲ガンマ線スペクトルとそれを再現するよう決定された理論計算の結果を示す。ガンマ線スペクトル形状から理論計算のモデルパラメータを決定することで核反応モデルによる断面積計算の信頼性の向上が可能となった。

#### 3.4.3 $^{237}\text{Np}$ に対する中性子捕獲断面積と共分散の評価【R1-R2】

$^{237}\text{Np}$  に対する中性子捕獲断面積及び共分散評価を実施し、核データファイルにまとめた。

捕獲断面積測定で得られた  $^{237}\text{Np}$  の PH ガンマ線スペクトルデータを基に、理論計算パラメータである電氣的  $E1$  放射及び磁氣的  $M1$  放射に対するガンマ線強度関数パラメータと捕獲状態から離散レベルへの遷移強度を決定した。決定したパラメータを用いて、keV 領域における中性子捕獲断面積と共分散を評価した。捕獲断面積の評価には CCONE コードを使用した。中性子透過係数やガンマ線強度関数、離散レベル情報、レベル密度モデルは令和元年度のガンマ線スペクト

ルの評価と同じものを採用している。以下にこれらの詳細を記載する。

理論計算モデルでは中性子捕獲反応を2段階の物理過程として取り扱う。まず、第1段階の過程として入射中性子が原子核内に入り中性子と原子核で複合核（捕獲状態）を形成する。そして、第2段階の過程として複合核がガンマ線を放出する。中性子が原子核内に入る度合いを中性子透過係数と呼び、 $^{237}\text{Np}$ の中性子透過係数はSoukhovitskiiら[2]の光学モデルポテンシャルを採用し、JENDL-4.0の評価で用いられたパラメータで計算した。

次に複合核からのガンマ線の放出である。形成直後の複合核は高エネルギー準位にあるためガンマ線を放出して基底準位に遷移する。遷移確率のガンマ線エネルギー依存性を決定するのがガンマ線強度関数であり、観測されるガンマ線スペクトルの形状はガンマ線強度関数の影響を強く受ける。逆に言えば観測されたガンマ線スペクトルから最適なガンマ線強度関数を決定することができる。ガンマ線の放射は原子核の集団的な振動により引き起こされる。原子核の集団振動には異なるタイプが存在しガンマ線強度関数にも反映される。主成分である電気的雙極子振動に対応するE1放射に対するガンマ線強度関数には、標準ローレンツ型を採用し、共鳴幅に温度、エネルギー依存のあるモデル（SLOD）を使用した。またE1放射よりも弱い成分であるM1放射及びE2放射に対するガンマ線強度関数には共鳴幅に温度、エネルギー依存のないモデル（SLO）[3]を採用した。PHガンマ線スペクトルの再現に使用したE1放射及びM1放射に対するガンマ線強度関数パラメータ（共鳴エネルギー、共鳴幅、ピーク断面積）をそれぞれ表3-15及び表3-16に示した。E1放射及びM1放射に対して、それぞれ4.8 MeV及び2.4 MeVにSLOモデルで強度を追加することで、測定されたPHガンマ線スペクトルの特徴的な形状を再現した[4]。離散レベルのエネルギー、スピン、パリティ、レベル間の遷移比などの情報はIAEAで整備されているRIPL-3データベース[5]から採用した。離散レベルよりも高い励起エネルギーでは、Gilbert-Cameron型のレベル密度モデルを使用した[6]。

図3-42の上図には、入射中性子エネルギー（ $E_n$ ）に対して、断面積（ $\sigma$ ）に入射中性子エネルギーの平方根を掛けた量<sup>1</sup>（ $\sigma\sqrt{E_n}$ ）を示した。この図には既存の測定データを灰色で、令和2年度に得られた断面積を青色で示してある。また、JENDL-4.0の評価値を緑線で示した。本研究で得られた評価値は赤線で示してあり、Fe（23.5 keV）、Si（127.7 keV）、Cr（45.0 keV）の各フィルタを使用して得られた測定データを再現するように評価した。ただし、シリコンフィルタを用いて得られた51.5 keVのデータは、他のフィルタで得られた断面積と比べて極端に小さかったため、評価対象から外した。JENDL-4.0の断面積と比較すると、3 keV以下ではほぼ同じ断面積形状を持っているが、3から400 keVの領域では、JENDL-4.0より小さな断面積となった。しかしながら、今回の評価値はJENDL-4.0の評価で得られた不確かさの範囲内にあり、整合している。共分散評価にはベイズの定理に基づくKALMANコード[7]を使用した。このコードでは測定データの不確かさを使って、核反応モデルのパラメータ不確かさを求め、モデルパラメータの断面積感度と組み合わせることで、断面積共分散を導出している。パラメータの不確かさを考慮した核反応モデルは、光学モデル、ガンマ線強度関数、レベル密度モデル、離散レベルへの遷移強度、核分裂モデルである。keV領域における共分散評価では、測定データにまだ共鳴に由来するゆらぎが残っているため、測定データの不確かさをそのまま用いることはせずに、測定データの広がりを含むように不確かさを与えた。ただし、本研究の測定データがあるエネルギーでは、その測定データの不確かさを採用した。このようにして求めた断面積不確かさ（赤線）を

<sup>1</sup>この量は、断面積が $1/v$ 則に従う場合に、定数となる特徴があり、数値で変化する捕獲断面積を示すのに適している。

JENDL-4.0の不確かさ（緑線）、及び目標値（5%、青線）とともに図 3-42 の下図に示してある。本研究における測定データの不確かさを利用することで、0.5 から 500 keV 領域において目標値より高い精度で捕獲断面積を導出することができた。

### 3.4.4 $^{243}\text{Am}$ に対するガンマ線強度関数と遷移強度の評価【R2】

$^{243}\text{Am}$  に対しても  $^{237}\text{Np}$  における評価と同様の手法を用いることで、ガンマ線強度関数及び捕獲状態から離散レベルへのガンマ線遷移強度を評価し、PH ガンマ線スペクトルを再現した。

$^{243}\text{Am}$  の基底状態スピンは  $5/2^-$  なので、s 中性子捕獲に対して、複合核である  $^{244}\text{Am}$  にはスピン  $2^-$  と  $3^-$  の共鳴状態が生成される。図 3-43 には、低エネルギー領域において、JENDL-4.0 に基づく  $^{243}\text{Am}$  の s 中性子捕獲による共鳴断面積とスピンの評価が示してある。これらの共鳴から、令和 2 年度の測定で得られたスピンの  $2^-$  及び  $3^-$  の共鳴を選び、PH ガンマ線スペクトルを基に、平成 30 年度に開発したスペクトル導出法で解析を行い、ガンマ線強度関数と離散レベルへの遷移強度を評価した。図 3-43 には、評価に採用したスピン ( $J$ ) が 2 の第 11 共鳴 (7.86 eV) と  $J = 3$  の第 6 共鳴 (3.42 eV) を赤字で示してある。PH ガンマ線スペクトルの評価には、CCONE コードを使用し、ガンマ線強度関数などのモデルは  $^{237}\text{Np}$  の評価と同じものを採用した。評価では、入射中性子エネルギーを 1eV と仮定した。この入射中性子エネルギーは共鳴のエネルギーと異なるが、複合核である  $^{244}\text{Am}$  の中性子束縛エネルギーが 5367 keV もあるため、eV オーダーの違いは微小で無視できる。計算に使用したガンマ線強度関数を図 3-44 に示す。アクチノイド核種は変形していると考えられており、測定で得られた PH ガンマ線スペクトルにもガンマ線エネルギーで 2000 keV あたりに多くの変形核に見られる形状の変化が見られた。この形状を再現するには、ガンマ線強度関数の 2000 keV あたりに強度を追加する必要がある。本研究ではこのエネルギー領域に現れることが予想されている集団的な振動の一種である  $M1$  シザーズモードを仮定し、 $M1$  放射として強度を追加した（図 3-44 の緑線）。また、多くの中性子過剰な原子核において 5000 keV 付近の強度の増加はピグミー共鳴と呼ばれる強度の小さい集団的振動に由来するものと解釈されており、本研究でも 4900 keV に  $E1$  放射として強度を追加した（図 3-44 の赤線）。採用した  $E1$  放射及び  $M1$  放射のガンマ線強度関数に対するパラメータをそれぞれ表 3-17 及び表 3-18 に示した。

図 3-45 には、測定データをヒストグラムで、スピン  $J = 2$  と  $3$  に対する評価結果をそれぞれ赤線と緑線で示した。測定では、しきいエネルギーとして 600 keV が設定されていたため、このエネルギー以下のデータは 600 から 700 keV のデータに比べて減少していた。評価データには、このようなしきいエネルギーがないので、600 keV 以下でもスペクトルが得られている。

捕獲状態から離散レベルへの直接遷移に対する強度の評価では、スピン  $J = 2$  の状態からの PH ガンマ線スペクトルの再現により、86.1 keV、452.1 keV への強度をそれぞれ 2 倍、6 倍した。スピン  $J = 3$  の状態からの PH ガンマ線スペクトルの評価により、146.4 keV への強度を 1.5 倍し、両スピン状態に共通として、412.8、417.1、418.2 keV への強度を 0.2 倍することで、スペクトル形状を再現した。なお、評価計算に利用した  $^{244}\text{Am}$  の離散（励起）レベルを図中の右上に青線で示した。

図 3-46 には、Fe フィルタを透過した 23.5 keV のエネルギーを持つ中性子と  $^{243}\text{Am}$  との捕獲反応によって生じた PH ガンマ線スペクトルを示した。3000 keV 以上ではバックグラウンドレベルが高くなっており、ガンマ線による離散レベルへの直接遷移の状態が判別できないが、3000 keV 以下では低エネルギー共鳴のスペクトル評価で得られた  $E1$  放射及び  $M1$  放射に対するガンマ線

強度関数により測定データを良く再現していることが分かる。

### 3.4.5 $^{243}\text{Am}$ に対する中性子捕獲断面積と共分散の評価【R2】

PH ガンマ線スペクトルの測定データを評価して得られた  $E1$  放射及び  $M1$  放射のガンマ線強度関数パラメータ、離散レベルへの遷移強度を用いて CCONE コードにより、 $^{243}\text{Am}$  の捕獲断面積と共分散を評価し、核データファイルとして整備した。

図 3-47 の上図には、図 3-42 と同様に、中性子入射エネルギーに対して、断面積に中性子入射エネルギーの平方根を掛けた量を示した。図中の Weston & Todd [8] の測定では断面積の絶対値を導出するために ENDF/B-V の断面積データ ( $f_n = \int_{0.02}^{0.1} \sigma \sqrt{E_n} dE_n = 0.984 \text{ b eV}^{3/2}$ ) を利用していた。本研究では JENDL-4.0 を使って  $f_n$  値 ( $1.060 \text{ b eV}^{3/2}$ ) を導出し、断面積を再規格化した。図から Weston & Todd と Wisshak & Käppeler [9] のデータには系統的な差があり、この差が 10 % を超えていることが分かる。また、Fe フィルタを用いた 23.5 keV 中性子によるデータは青点で示してあり、Wisshak & Käppeler のデータより Weston & Todd と整合している。

光学モデルポテンシャルには、JENDL-4.0 と同様に Soukhovitskii ら [2] の光学ポテンシャルを用いたが、実部体積項のディフューズネスを 0.58 fm から 0.63 fm へ変更した。この変更の妥当性を確認するために、中性子強度関数を調べた。光学モデルで計算した中性子強度関数は 100 eV で 0.98 であり、共鳴情報から得られている既存の解析値 0.98(9) [10] と一致しており、変更は妥当であることが分かった。光学モデルで計算された中性子透過係数を用いて、Fe フィルタによる測定データを再現するように評価した結果が図 3-47 に赤線で示してある。今回の評価データは JENDL-4.0 と比較して、100 keV 以下で 8 % 程度大きくなっていることが分かる。

共分散評価にも  $^{237}\text{Np}$  の評価と同様にベイズの定理に基づく KALMAN コード [7] を用いた。得られた断面積不確かさ (赤線) を JENDL-4.0 の不確かさ (緑線)、及び目標値 (青線) とともに下図に示してある。測定データの不確かさは Weston & Todd や Wisshak & Käppeler などの測定データを包含するように選んだが、23.5 keV での今回の測定データの誤差が 5.5 % であったので、10 から 100 keV ではこの不確かさを反映して、目標精度の 5 % を達成した。一方、100 keV 以上の領域については従来不確かさが 10~20% あるため、評価結果は 5% よりも大きくなった。但し、5% という目標精度は現状不確かさが 10% と考え、それを半減するという観点から設定したものである。この点からいえば、今回の評価結果は 5 から 9 % と従来不確かさ 10~20% を半減する結果となっており当初目標を達成していると言える。10 keV 以下については今回の評価結果は 5% を上回ったものの従来不確かさよりも小さくすることはできた。今後、中性子フィルターを用いない測定でエネルギー依存性を測定し、基準値となる今回の測定値と組み合わせることで 10 keV 以下の領域についても精度がさらに改善されると考えられる。

### 3.4.6 まとめ

本研究では NaI 検出器で測定された PH ガンマ線スペクトルを評価に反映させるためにスペクトル導出法を開発した。粒子・重イオン輸送計算コード PHITS で NaI 検出器を模擬し、単色ガンマ線に対する検出器のガンマ線応答関数を導出した。このガンマ線応答関数を CCONE コードで計算したガンマ線スペクトルにフォールディングすることで、PH ガンマ線スペクトルを計算し、実験値と比較することで最適な理論計算パラメータを決定した。これらの結果を基に、 $^{237}\text{Np}$  に対しては Fe、Si、Cr による中性子フィルタを、 $^{243}\text{Am}$  に対しては Fe による中性子フィルタを用

いることで、高速中性子エネルギー領域における捕獲断面積の評価を行い、PHガンマ線スペクトルと整合する捕獲断面積を導出した。また、 $^{237}\text{Np}$  及び  $^{243}\text{Am}$  に対して、KALMAN コードで行った共分散評価により捕獲断面積の精度を概ね 5%以下もしくは従来不確かさの半分以下とすることができた。

## 参考文献

- [1] O. Iwamoto et al., “The CCONE Code System and its Application to Nuclear Data Evaluation for Fission and Other Reactions”, Nuclear Data Sheets, 131, 259-288 (2016).
- [2] E.Sh. Soukhovitskii et al., “Dispersive coupled-channel analysis of nucleon scattering from  $^{232}\text{Th}$  up to 200 MeV” Physical Review C, 72, 024604 (2005).
- [3] J. Kopecky and M. Uhl, “Test of gamma-ray strength functions in nuclear reaction model calculations”, Physical Review C, 41, 1941 (1990).
- [4] 令和元年度「核変換システム開発のための長寿命 MA 核種の高速中性子捕獲反応でデータの精度向上に関する研究」成果報告書.
- [5] R. Capote et al., “RIPL – Reference Input Parameter Library for Calculation of Nuclear Reactions and Nuclear Data Evaluations”, Nuclear Data Sheets, 110, 3107-3214 (2009).
- [6] A. Gilbert and A.G.W. Cameron, “A COMPOSITE NUCLEAR-LEVEL DENSITY FORMULA WITH SHELL CORRECTIONS”, Canadian Journal of Physics 43, 1446-1496 (1965).
- [7] T. Kawano, K. Shibata, 「共分散評価システム」 JAERI-Data/Code 97-037 (1997).
- [8] L.W. Weston and J.H. Todd, “Neutron Capture Cross Section of  $^{243}\text{Am}$ ”, Nuclear Science and Engineering 91, 444-450 (1985).
- [9] K. Wisshak and F. Käppeler, “Neutron Capture and Fission Cross Section of  $^{243}\text{Am}$  in the Energy Range from 5 to 250 keV”, Nuclear Science and Engineering 85, 251-260 (1983).
- [10] S. F. Mughabghab, *Atlas of Neutron Resonances*, Sixth Edition, Elsevier (2018)

表 3-15:  $^{238}\text{Np}$  の E1 放射に対するガンマ線強度関数パラメータ

タイプ	共鳴エネルギー (MeV)	共鳴幅 (MeV)	ピーク断面積 (mb)
SLOD	11.6	4.0	350.0
SLOD	14.3	4.2	472.8
SLO	4.8	1.2	1.4

表 3-16:  $^{238}\text{Np}$  の  $M1$  放射に対するガンマ線強度関数パラメータ

タイプ	共鳴エネルギー (MeV)	共鳴幅 (MeV)	ピーク断面積 (mb)
SLO	6.6	4.0	2.1
SLO	2.4	2.0	0.3

表 3-17:  $^{244}\text{Am}$  の  $E1$  放射に対するガンマ線強度関数パラメータ

タイプ	共鳴エネルギー (MeV)	共鳴幅 (MeV)	ピーク断面積 (mb)
SLOD	11.6	4.0	350.0
SLOD	14.3	4.2	472.8
SLO	4.9	1.0	5.0

表 3-18:  $^{244}\text{Am}$  の  $M1$  放射に対するガンマ線強度関数パラメータ

タイプ	共鳴エネルギー (MeV)	共鳴幅 (MeV)	ピーク断面積 (mb)
SLO	6.6	4.0	1.3
SLO	2.4	1.5	0.4

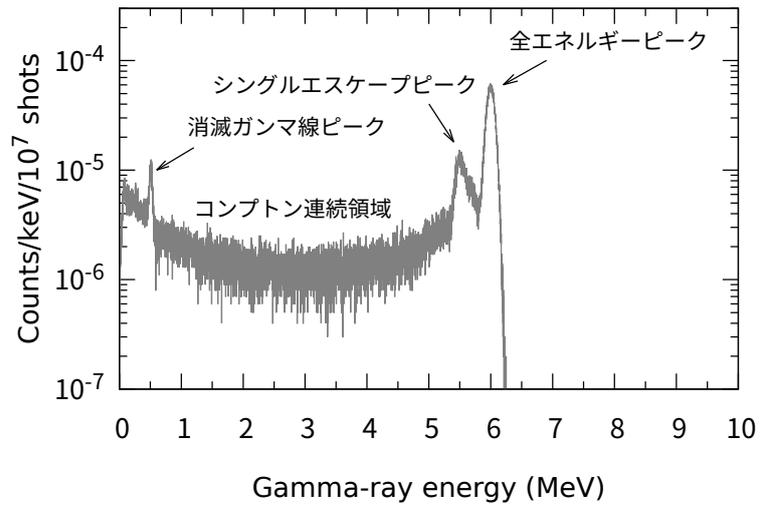


図 3-39: PHITS で計算した 6 MeV の入射ガンマ線に対する NaI 検出器の応答関数

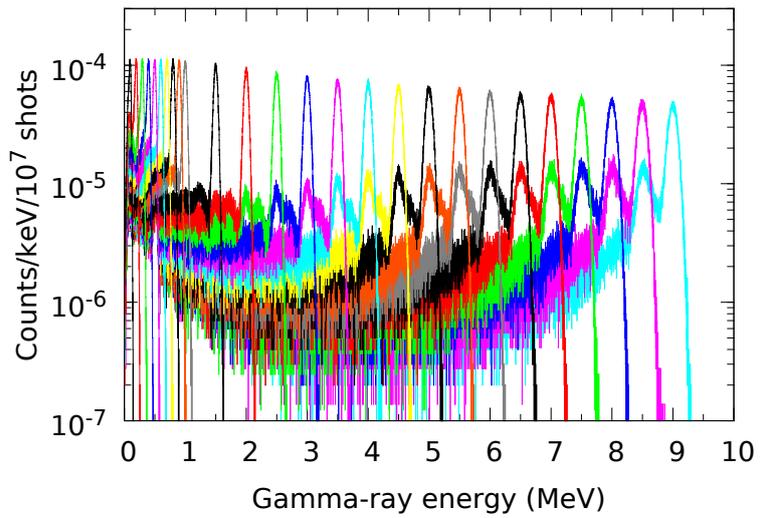


図 3-40: PHITS で計算した NaI 検出器の応答関数

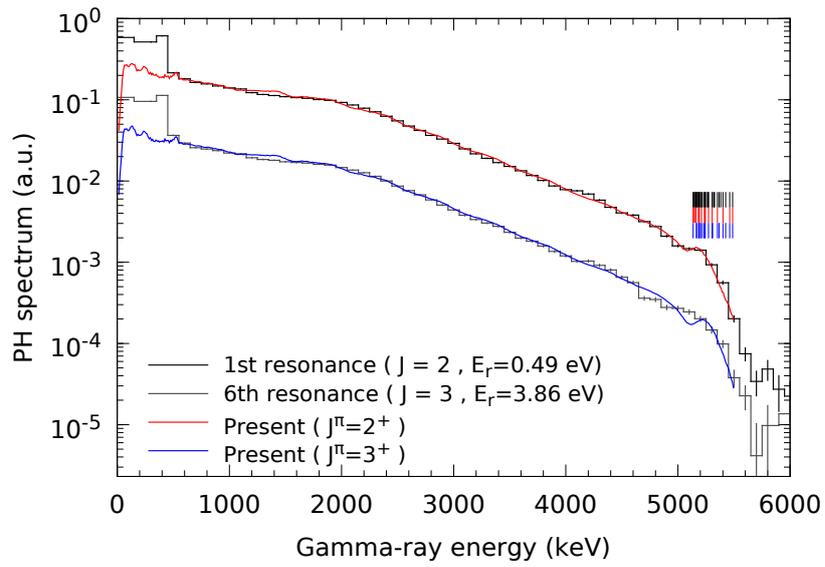


図 3-41:  $^{237}\text{Np}$  の中性子捕獲ガンマ線スペクトルと理論解析により得られたスペクトル

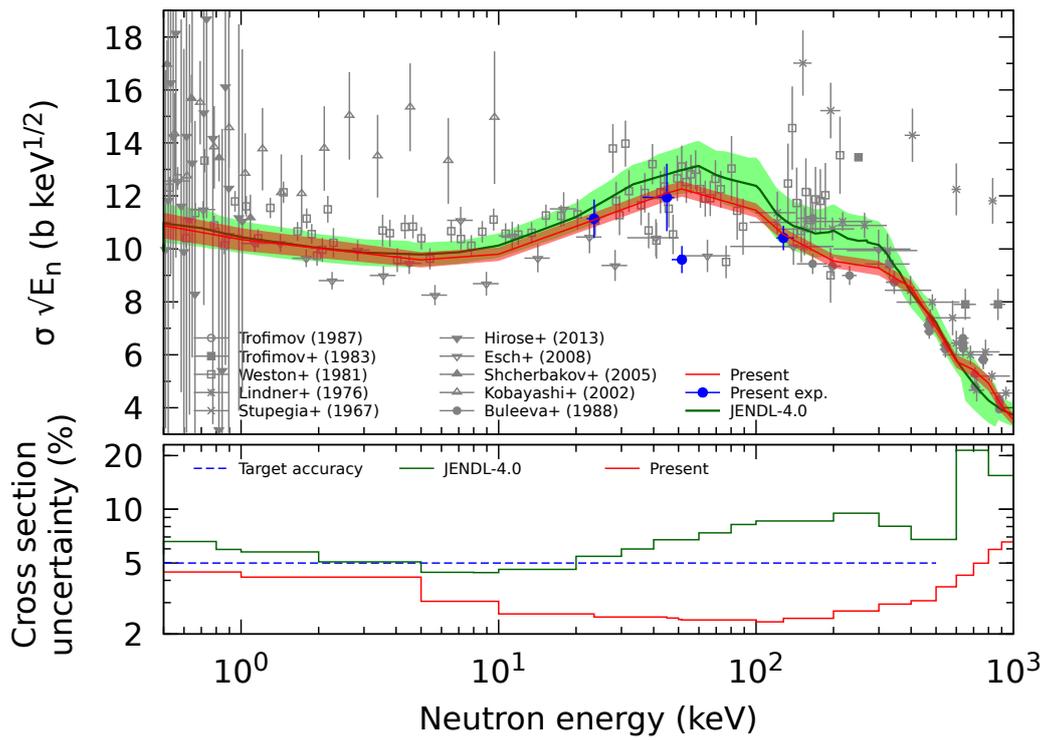


図 3-42:  $^{237}\text{Np}$  に対する中性子捕獲断面積と共分散評価結果

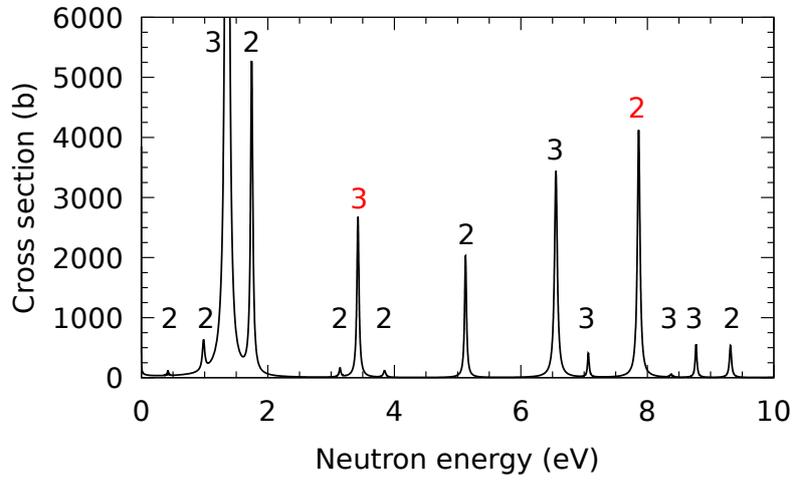


図 3-43:  $^{243}\text{Am}$  に対する共鳴捕獲断面積とスピン

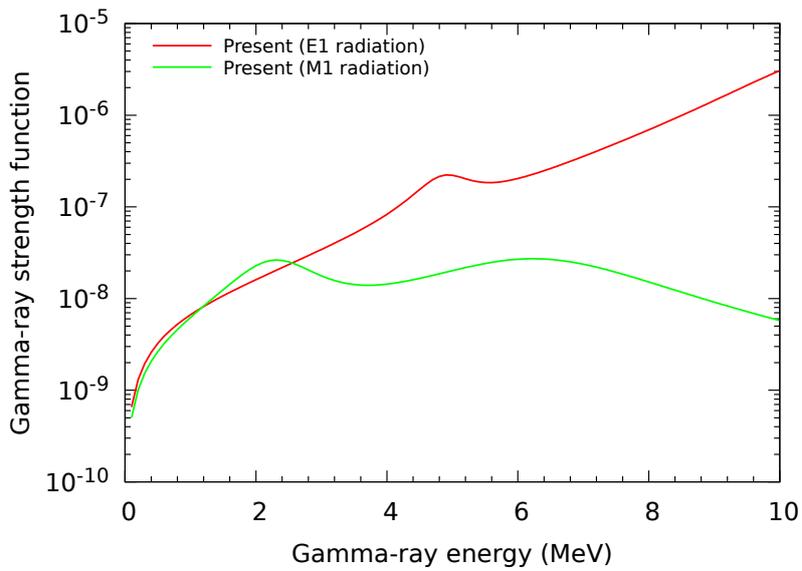


図 3-44:  $^{243}\text{Am}$  の捕獲断面積評価に用いたガンマ線強度関数

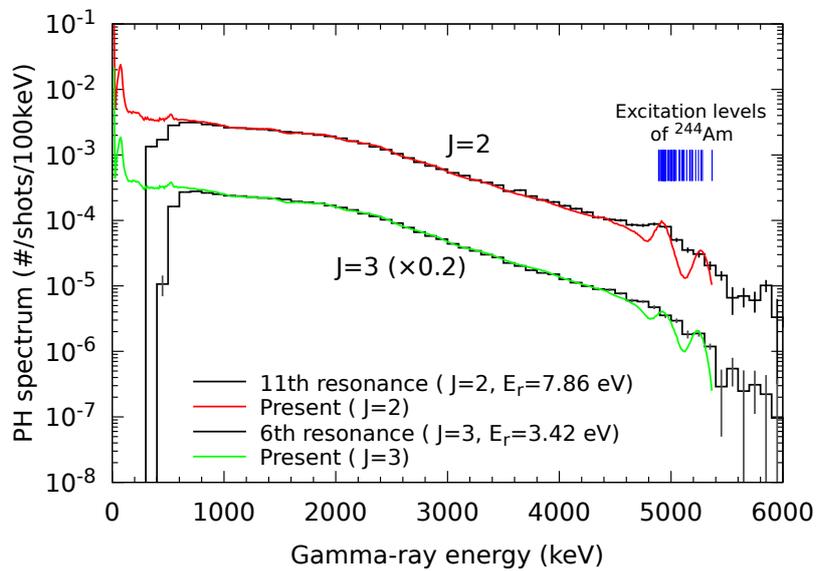


図 3-45:  $^{243}\text{Am}$  に対する共鳴スピン  $J=2$  と  $3$  の PH ガンマ線スペクトルの評価結果

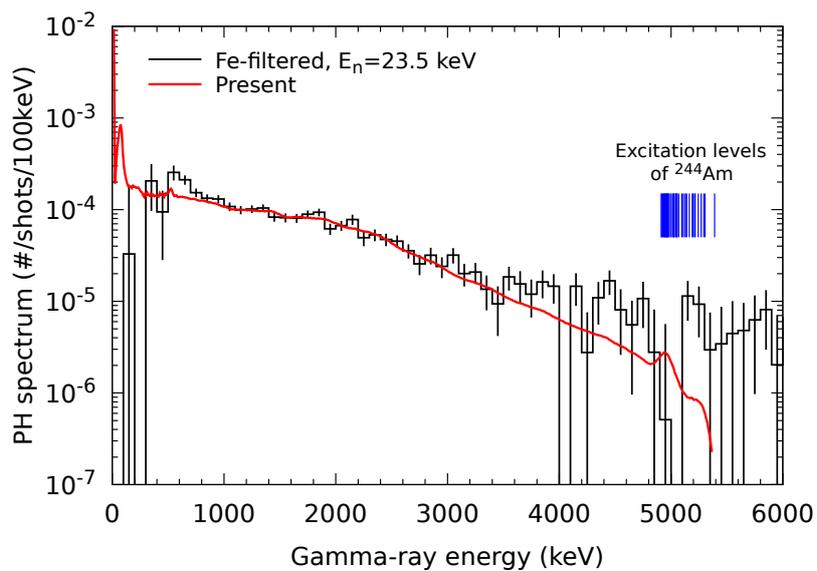


図 3-46:  $^{243}\text{Am}$  に対する Fe フィルタを用いた PH ガンマ線スペクトルの評価結果

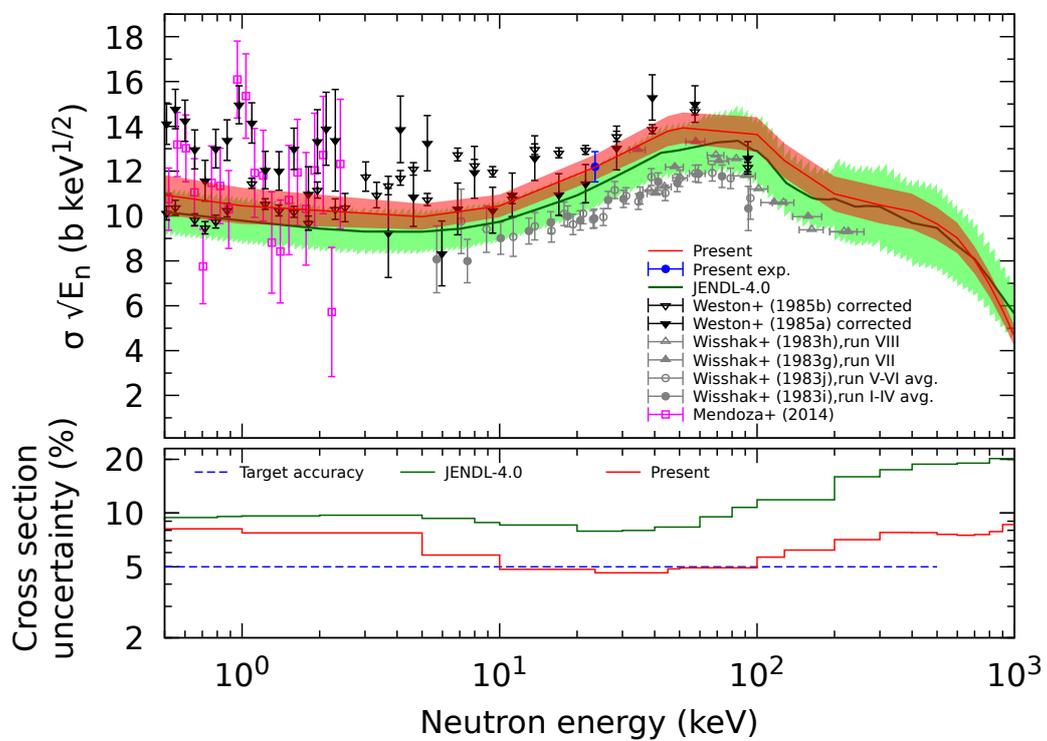


図 3-47:  $^{243}\text{Am}$  に対する中性子捕獲断面積と共分散評価結果

### 3.5 研究推進

本研究を推進するにあたり全体打合会を各年度で3回開催した。打合会では全体計画の確認、各研究機関の実施計画及び進捗について情報共有を行った。4年間の打合会の内訳を表3-19にまとめる。

本研究の成果発表としては、日本原子力学会2019年春の年会において4件、日本原子力学会2021年春の年会において5件のシリーズ発表を行った。また、核データ研究の国際会議ND2019において2件の講演（うち1件は招待講演）を行い本研究の成果を発表した。

表 3-19: 打合会の内訳

	開催日	開催場所	出席者	議題
平成 29 年度				
第 1 回	平成 29 年 11 月 2 日	東工大先導原子力研究所	代表 他 5 名	平成 29 年度実施計画の情報共有
第 2 回	平成 30 年 1 月 29 日 - 1 月 30 日	京都大学原子炉実験所	代表 他 6 名	平成 29 年度の研究進捗状況の報告
第 3 回	平成 30 年 3 月 6 日	原子力機構	代表 他 5 名	平成 29 年度の実施状況、平成 30 年度の研究計画
平成 30 年度				
第 1 回	平成 30 年 7 月 20 日	東工大先導原子力研究所	代表 他 7 名	平成 30 年度実施計画の情報共有
第 2 回	平成 30 年 10 月 17 日 - 10 月 18 日	京都大学複合原子力科学研究所	代表 他 7 名	平成 30 年度の研究進捗状況の報告
第 3 回	平成 31 年 2 月 8 日	原子力機構	代表 他 7 名	平成 30 年度の実施状況、平成 31 年度の研究計画
令和元年度				
第 1 回	令和元年 7 月 9 日	東工大 先導原子力研究所	代表 他 8 名	令和元年度実施計画の情報共有
第 2 回	令和元年 10 月 15 日 - 10 月 16 日	京都大学 複合原子力科学研究所	代表 他 7 名	令和元年度の研究進捗状況の報告
第 3 回	令和 2 年 2 月 7 日	原子力機構	代表 他 8 名	令和元年度の実施状況、令和 2 年度の研究計画
令和 2 年度				
第 1 回	令和 2 年 7 月 2 日	オンライン	代表 他 7 名	令和 2 年度実施計画の情報共有
第 2 回	令和 2 年 12 月 14 日	オンライン	代表 他 7 名	令和 2 年度の研究進捗状況の報告
第 3 回	令和 3 年 2 月 8 日	オンライン	代表 他 7 名	令和 2 年度の実施状況の報告

#### 4. 結言

この研究では、核変換システム開発に必要とされる高速中性子エネルギー領域における MA の中性子捕獲断面積の精度向上を目指し、高速中性子エネルギー領域での捕獲断面積データを高精度に測定できる技術を開発するとともに、これを適用した断面積測定結果を反映した核データ評価を行い、信頼性の高いデータを整備することを目的とした。

「中性子フィルター装置の開発」は、原子力機構が担当した。J-PARC/MLF/ANNRIにおいて高速中性子エネルギー領域での中性子捕獲実験を可能とする中性子フィルターの設計・製作を行った。J-PARC/MLF/ANNRI 及び東工大ペレトロン加速器で評価試験を行い、特定のエネルギー中性子のみを選択的に取り出し、単色中性子源として機能することを確認し、Fe、Si、Cr を断面積測定に使用するフィルターとして選定した。これにより J-PARC 陽子ビームのダブルバンチ運転による問題を解決し、高精度な断面積測定を可能とした。さらにモンテカルロシミュレーションの計算結果を評価試験と比較して計算の妥当性を確認し、計算により得られた各フィルターでの中性子エネルギー分布を NaI 検出器を用いた中性子捕獲断面積の測定に生かした。

「NaI 検出器を用いた中性子捕獲断面積の測定」は、東工大が担当した。J-PARC/MLF/ANNRI において、NaI 検出器を用いて MA 試料の中性子捕獲反応実験を行った。J-PARC の高強度中性子ビーム及び放射性試料からの崩壊ガンマ線により引き起こされる高計数率環境下でも計測が行えるよう NaI 検出器からの信号の高速データ収集技術を開発した。中性子フィルター装置を用いて  $^{237}\text{Np}$  及び  $^{243}\text{Am}$  の測定を行い、得られた実験データを解析して中性子捕獲断面積を導出した。10%以上の誤差を持つ過去の測定値に対し、5%程度の高い精度で断面積を決定した。本研究で使用した試料は物質質量や同位体比が高精度で定量されており、測定の標準断面積も最新値を使用するなど過去の測定に比べて信頼性の高いものである。また、中性子フィルターを用いることで中性子エネルギーの不確かさも低減している。しがたって、測定点は少ないものの断面積評価に対し信頼性の高い基準点を与え  $^{237}\text{Np}$  及び  $^{243}\text{Am}$  の核データ評価の高精度化を可能とした。

「MA 試料中の Pu 分析技術の開発」は、京都大学が担当した。系統誤差要因となる MA 試料中に含まれる Pu 不純物の高精度分析を行った。分析には京都大学複合原子力科学研究所の TIMS を使用した。Pu 分析時の高イオン電流負荷に対応するため TIMS を改良した。MA 試料中に含まれる Pu 不純物の定量に適用するため、Pu 分析標準試料を整備した。改良した TIMS 及び標準 Pu 試料を用いて MA 試料の Pu 不純物の分析を行った。また、測定の信頼性を向上するために  $\alpha$  スペクトル分析も組み合わせた。結果として目標精度 1%以下で不純物の定量ができた。また、今回の結果から試料中の不純物起因の中性子捕獲断面積の不確かさは  $10^{-2}$  %以下であり、断面積測定への影響が非常に小さいことが分かった。

「MA 核データファイルの整備」は、原子力機構が担当した。NaI 検出器で測定された PH ガンマ線スペクトルを評価に反映させるためにスペクトル導出法を開発した。粒子・重イオン輸送計算コード PHITS で NaI 検出器を模擬し、単色ガンマ線に対する検出器のガンマ線応答関数を導出した。このガンマ線応答関数を CCONE コードで計算したガンマ線スペクトルにフォールディングすることで、PH ガンマ線スペクトルを計算し、実験値と比較することで最適な理論計算パラメータを決定した。これらの結果を基に、高速中性子エネルギー領域における捕獲断面積の評価を行い、PH ガンマ線スペクトルと整合する捕獲断面積を導出した。 $^{237}\text{Np}$  及び  $^{243}\text{Am}$  に対して、KALMAN コードで行った共分散評価により捕獲断面積の精度は概ね 5%以下もしくは従来不確かさの半分以下とすることができた。

研究推進においては、研究代表者の下で各研究項目間の連携を密にして、研究を進めるとともに、研究実施計画等を協議するため全体打合会を年3回開催した。打合会では、研究の進捗が報告され、誤差低減に向けた活発な議論が行われるとともに、研究成果の発信方法についても検討を行った。

以上、4年間の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。

## 今後の展望

今後の展望として、まず本研究で高精度化された MA 中性子捕獲断面積の評価結果を核データライブラリに反映させることが挙げられる。本研究の結果が JENDL をはじめとする核データライブラリに反映されることで核変換システム開発への活用が可能となる。本研究の結果を用いた核変換システムの炉物理パラメータの計算不確かさ検証が次のステップとなる。

また、今後も J-PARC/MLF/ANNRI での測定を行い、MA 核データの精度向上を継続する。本研究の中性子フィルター開発においてモンテカルロシミュレーションを用いて、中性子スペクトルの測定結果をよく再現することに成功した。このことは本研究の成果として各飛行時間での中性子エネルギー分布を十分な精度で予測できるようになったことを意味する。今後はこの計算手法を活用し、中性子フィルターを用いない断面積測定を実施する。中性子フィルターを用いない場合、中性子のエネルギー拡がりが大きくなるが、モンテカルロシミュレーションにより中性子エネルギー拡がり进行评估することができる。エネルギー分解能は中性子フィルターを用いた場合に劣るものの任意のエネルギー点で測定が可能になり、断面積のエネルギー依存性を決定することができる。本研究の成果である中性子フィルターを用いた結果を絶対値の基準点とし、中性子フィルターを用いない測定で得られたエネルギー依存性と組み合わせることで、断面積不確かさのさらなる低減が可能になると考えられる。

また、本研究では、現状誤差 10%を半減という観点から目標精度を 5%としたが、核変換システム開発に必要な核データ精度の検討を行った OECD/NEA の作業部会 SG-26 では、目標精度として 2-3%を挙げている。この精度を達成するには標準断面積の精度が障害となる。本研究で標準として用いた  $^{197}\text{Au}$  の中性子捕獲断面積の評価値の精度は 3%であり、誤差の主要な成分となっている。したがって、標準断面積の精度向上が今後の課題である。逆に言えば、 $^{197}\text{Au}$  の中性子捕獲断面積の精度が向上すると今回の MA の測定結果の精度も向上することになる。

さらに核変換システム開発で問題となる MA の中性子捕獲断面積以外の核データについても測定・評価を行っていく。具体的には、核分裂に関係した核データや、鉄や鉛などの構造材の非弾性散乱断面積などが挙げられる。これらの測定には中性子捕獲断面積の測定とは異なる測定技術が必要となるため、それらの研究開発を進めることも今後の課題である。