

平成28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

マイナーアクチニドの
中性子核データ精度向上に係る研究開発

成果報告書

平成29年3月

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

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、国立研
究開発法人 日本原子力研究開発機構が実施
した平成25-28年度「マイナーアクチニ
ドの中性子核データ精度向上に係る研究開
発」の成果を取りまとめたものです。

目次

概略	ix
1. はじめに	1
2. 業務計画	3
3. 業務の実施内容及び成果	5
3.1. 熱中性子捕獲断面積の高精度化 (H25~H28)	5
3.1.1. 独立分析手法の組合せによる高精度化	5
3.1.2. 可変中性子スペクトル場照射による精度検証 (再委託先: 京都大学)	14
3.2. TOF 測定に用いるサンプル量の高精度決定 (H25~H28)	30
3.2.1. 崩壊ガンマ線放出率の高精度決定	30
3.2.2. カロリメータを適用した放射能絶対値測定	38
3.2.3. MA サンプルの整備と同位体分析 (再委託先: 京都大学)	52
3.3. 中性子全断面積測定を組み合わせた共鳴パラメータの高精度決定 (H25~H28)	66
3.3.1. J-PARC/MLF/ANNRI での測定	66
3.3.2. 京都大学原子炉実験所の電子線形加速器での測定 (再委託先: 京都大学)	95
3.4. 測定エネルギー範囲の高速中性子領域への拡張 (再委託先: 東京工業大学) (H25~H28)	106
3.5. 測定と評価のキャッチボールによる高品質評価 (H25~H28)	114
3.5.1. ガンマ線放出率の評価	114
3.5.2. MA 核種の熱中性子捕獲断面積及び s 因子の評価	114
3.5.3. J-PARC で測定されたデータを用いた共鳴解析	118
3.5.4. 高速中性子領域における断面積評価	123
3.6. 研究推進 (H25~H28)	164
4. 結言	172
参考文献	173

表一覧

表 3-1	ガンマ線放出率の測定結果	8
表 3-2	Np サンプル位置での Au-197 (n, γ) 反応率の測定結果	21
表 3-3	Np-237 (n, γ) 反応率の測定結果	22
表 3-4	実験と JENDL-4.0 より得られた捕獲反応率比と C/E 値	22
表 3-5	過去に行った KUCA 実験結果に対して、サンプル中の不純物を考慮した場合としなかった場合の C/E 値の比較	25
表 3-6	Am-241 のガンマ線放出率	34
表 3-7	Am-243 のガンマ線放出率	34
表 3-8	Np-237 のガンマ線放出率	34
表 3-9	Np-239 のガンマ線放出率	34
表 3-10	ガンマ線測定で得られた放射能	37
表 3-11	Am-241, 243 の寿命及び崩壊あたりの発熱の決定精度	44
表 3-12	測定された発熱の値	48
表 3-13	Np-239 のベータ崩壊で放出される β 線の平均エネルギーとエンドポイントエネルギーの関係	49
表 3-14	Am-243 α 線スペクトルから得られた各ピークの面積	50
表 3-15	崩壊熱中の、それぞれの核種からの崩壊熱が占める割合	50
表 3-16	発熱測定から導出された放射能絶対値	50
表 3-17	カロリメータ及びガンマ線分光による、放射能絶対値測定値の比較	51
表 3-18	Am-241 サンプルの同位体分析結果	61
表 3-19	Am-243 サンプルの同位体分析結果	61
表 3-20	ADC の諸特性	75
表 3-21	予備測定に利用した Gd 試料の面密度	75
表 3-22	NaI スペクトロメータでの測定時間	75
表 3-23	0.0253eV での中性子捕獲断面積及び誤差	76
表 3-24	TOF フレームとスタート信号の関係	110
表 3-25	Au-197 の共鳴パラメータ	125
表 3-26	Gd-155 の共鳴パラメータに対する各評価値との比較	127
表 3-27	Gd-157 の共鳴パラメータに対する各評価値との比較	127
表 3-28	Gd-155 の共鳴パラメータ	127
表 3-29	Gd-157 の共鳴パラメータ	128
表 3-30	Am-241 の共鳴パラメータ	129
表 3-31	Am-243 の共鳴パラメータ	130
表 3-32	Tc-99 の共鳴パラメータ	131
表 3-33	統計解析の結果と既存データとの比較	132
表 3-34	全体委員会開催一覧	164
表 3-35	学会等における口頭・ポスター発表リスト	165
表 3-36	学会誌・雑誌等における論文発表リスト	170

図一覧

図 3-1	照射試験に用いた 3 核種の試料	8
図 3-2	照射用アルミフォルダ(左)と密封された Am-243 ターゲット(右)	9
図 3-3	照射ターゲット室の準備作業(左)と設置したターゲット(右)	9
図 3-4	計算で使用したジオメトリ	10
図 3-5	計算で求められた KURRI-LINAC の中性子束分布	10
図 3-6	Am-243 ターゲットの照射位置における中性子束成分	11
図 3-7	照射済み Am-243 試料のガンマ線スペクトル	11
図 3-8	照射済み Np-237 試料のガンマ線スペクトル	12
図 3-9	Np-237 ターゲットの照射位置における中性子成分	12
図 3-10	照射前後の Am-241 試料のアルファ線スペクトルとそれらの差分	13
図 3-11	TOF 法によって測定した可変中性子照射場の中性子スペクトル	20
図 3-12	実験条件の概要	20
図 3-13	モデレータ容器及びサンプルホルダーの外観写真	21
図 3-14	Np-237 サンプルの外観写真	21
図 3-15	Np-237 捕獲率/Au-197 捕獲率比に対する Np-237 中性子捕獲断面積の感度係数	22
図 3-16	各体系の中性子スペクトル	23
図 3-17	U-235 及び Np-237 に対する TOF スペクトル	23
図 3-18	U-235 と Np-237 の中性子核分裂断面積の評価値 (JENDL-4.0)	24
図 3-19	過去に行った KUCA 実験における可変中性子スペクトル	24
図 3-20	U-235 及び Am-241 に対する TOF スペクトル	25
図 3-21	U-235 及び Am-241 の中性子核分裂断面積の評価値 (JENDL-4.0)	26
図 3-22	U-235 及び Am-243 に対する TOF スペクトル	26
図 3-23	U-235 及び Am-243 の中性子核分裂断面積の評価値 (JENDL-4.0)	27
図 3-24	Pu-239 含有量の異なる二つの Am-243 サンプルの TOF の比較	27
図 3-25	差分を取ることで導出した Pu-239 の正味の TOF スペクトル	28
図 3-26	Pu-239 の中性子核分裂断面積の評価値 (JENDL-4.0)	28
図 3-27	Am-243 サンプルの TOF から Pu-239 成分を除去した正味の TOF	29
図 3-28	Am-243 核分裂率/U-235 核分裂率比に対する Am-243 核分裂断面積の感度係数	29
図 3-29	Am-243 試料のアルファ線スペクトル	33
図 3-30	Am-243 試料のガンマ線スペクトル	33
図 3-31	測定と PHITS によるシミュレーションで得られた Ge 検出器の検出効率	34
図 3-32	Am-241 試料 (480, 950 MBq) のガンマ線スペクトル	35
図 3-33	Am-243 試料 (60, 120, 240 MBq) のガンマ線スペクトル	35
図 3-34	Am-241 試料 (480 MBq) 59.5 keV ピークのフィッティング	36
図 3-35	Am-243 試料 (60 MBq) 試料 277.6 keV ピークのフィッティング	36
図 3-36	検出効率測定値と PHITS によるシミュレーションの比較	37
図 3-37	熱伝導式カロリメータの測定原理図	44

図 3-38	GEANT4 シミュレーション中のサンプルセル	44
図 3-39	Am-243 の α 崩壊にともない放出されるガンマ線のサンプルセル外での分布の GEANT4 シミュレーション	45
図 3-40	Am-243 の 1 崩壊あたりの発熱に対する、サンプルセル外部への熱量漏れだしの割合	45
図 3-41	抵抗体を用いたカロリメータキャリブレーション時の写真	45
図 3-42	10k Ω の高精度抵抗を使用したカロリメータの較正試験	46
図 3-43	高精度抵抗に流れた電流値とカロリメータでの発熱測定の結果の相関	46
図 3-44	想定されるジュール熱と、カロリメータでの発熱測定の結果の残差	46
図 3-45	タングステン板によるサンプル遮蔽の様子	47
図 3-46	2 種類の Am-241 サンプルに対する発熱量測定の結果	47
図 3-47	3 種類の Am-243 サンプルに対する発熱量測定の結果	48
図 3-48	圧縮成形した Am-243 サンプルと同じサンプルから得られた α 線スペクトル	48
図 3-49	許容遷移を仮定して計算した平均 β エネルギーと、Nuclear Data Sheet 記載値との比較	49
図 3-50	α 線スペクトルのテール部フィッティング	50
図 3-51	2 つの手法で求めた放射能絶対値に対する測定の不確定さの比較	51
図 3-52	密封 RI サンプルの外観写真	56
図 3-53	密封容器の断面図	56
図 3-54	Np-237 の水酸化沈殿サンプルの外観	56
図 3-55	ストロンチウム同位体比の測定精度	57
図 3-56	アルファ線分析装置の写真	58
図 3-57	天然 Gd に対する同位体比の測定結果	58
図 3-58	Gd-155 濃縮サンプルに対する測定結果	59
図 3-59	Gd-157 濃縮サンプルに対する測定結果	59
図 3-60	Am-241 サンプルのマススペクトル	60
図 3-61	Am-243 サンプルのマススペクトル	60
図 3-62	典型的な質量分析でのチャートレコード	61
図 3-63	分析に使用する領域で観測した Am-243 サンプルのマススペクトル	62
図 3-64	分析準備の領域で観測した Am-243 サンプルのマススペクトル	62
図 3-65	分析に使用する領域で観測した Am-241 サンプルのマススペクトル	63
図 3-66	分析準備の領域で観測した Am-241 サンプルのマススペクトル	63
図 3-67	調製した Np-237 サンプルのアルファ線波高スペクトル	64
図 3-68	調製した Am-241 サンプルのアルファ線波高スペクトル	64
図 3-69	調製した Am-243 サンプルのアルファ線波高スペクトル	65
図 3-70	ANNRI の全体図	77
図 3-71	Ge スペクトロメータの概念図	77
図 3-72	NaI スペクトロメータの全体図	78
図 3-73	中性子遮蔽の有無による TOF スペクトルの違い	78

図 3-74	波形整形時間とエネルギー分解能の相関	79
図 3-75	shaping time が 3 μ 秒と 1 μ 秒での Ge 検出器の不感時間とイベントレートの関係	79
図 3-76	金試料での中性子全断面積測定実験時の波高スペクトル	79
図 3-77	金試料の中性子成分にのみゲートをかけた飛行時間スペクトル	80
図 3-78	Blank 試料の場合の Frame バックグラウンド	80
図 3-79	1mm 金試料を用いた透過率スペクトル	80
図 3-80	測定された金の中性子全断面積	81
図 3-81	低エネルギー側の Gd-155, 157 の中性子捕獲断面積	82
図 3-82	0.2~0.3eV で規格化した高エネルギー側の Gd-155, 157 の中性子捕獲断面積	83
図 3-83	Am-241 試料、Am ダミー試料、Pb 試料、Blank の TOF スペクトル	84
図 3-84	Am-241, Am ダミー試料の TOF スペクトルにおけるデッドタイム補正量	84
図 3-85	Am-241 の中性子捕獲断面積	85
図 3-86	Am-241 0.31 eV 及び 0.47 eV 共鳴の中性子捕獲断面積	85
図 3-87	Am 試料の TOF スペクトル	86
図 3-88	Am-241 の中性子全断面積	86
図 3-89	Am-243 試料での TOF スペクトル	87
図 3-90	Am-243 試料の捕獲イールド	87
図 3-91	第 3 共鳴付近での 60MBq 及び 120MBq 試料の 240MBq 試料に対する比	88
図 3-92	Am-243 の第 3 共鳴付近での中性子捕獲断面積	89
図 3-93	60MBq 試料の中性子捕獲断面積	90
図 3-94	120MBq 試料の中性子捕獲断面積	91
図 3-95	240MBq 試料の中性子捕獲断面積	92
図 3-96	240MBq, 60MBq の試料で得られた中性子捕獲断面積と評価値 JENDL-4.0 との比較	93
図 3-97	60MBq 試料での各誤差要因の大きさ	93
図 3-98	240MBq 試料での各誤差要因の大きさ	94
図 3-99	Am-243 の中性子全断面積測定結果及び誤差	94
図 3-100	透過中性子測定の実験体系の概略図	100
図 3-101	Li-glass 検出器の波高分布の比較	100
図 3-102	Dummy サンプルに対する TOF スペクトルとバックグラウンド評価	101
図 3-103	Np-237 (26MBq) に対する TOF スペクトルとバックグラウンド評価	101
図 3-104	Np-237 (26MBq) に対する中性子透過率	102
図 3-105	Np-237 に対する全中性子断面積の実験値と評価値の比較	102
図 3-106	Np-237 の全中性子断面積値に対して行った共鳴解析の結果	103
図 3-107	厚さの異なる Np-237 サンプルに対する中性子捕獲収量の比較	103
図 3-108	サンプル中での中性子自己遮蔽・多重散乱補正係数	104
図 3-109	中性子自己遮蔽・多重散乱補正前後の共鳴ピーク面積とサンプル厚さの関係	104
図 3-110	熱中性子エネルギーで JENDL-4.0 の評価値に規格化した中性子捕獲断面積の実験値と共鳴解析の結果の比較	105

図 3-111	NaI(Tl) 検出器システムのブロックダイアグラム	110
図 3-112	入射中性子スペクトル	111
図 3-113	Au-197 の中性子捕獲断面積	111
図 3-114	Tc-99 の中性子捕獲断面積	112
図 3-115	Tc-99 の中性子捕獲断面積 (高速中性子領域)	112
図 3-116	Am-241 の中性子捕獲断面積	113
図 3-117	Np-237 の中性子捕獲断面積	113
図 3-118	Np-238 の 984keV、Np-237 の 86keV、Pa-233 の 312keV ガンマ線放出率の評価結果	133
図 3-119	Np-238 の 1025keV、1028keV ガンマ線放出率の評価結果	134
図 3-120	Np-238 の 1025keV、1028keV ガンマ線放出率の 984keV ガンマ線放出率に対する割合	135
図 3-121	Np-239 の 228keV ガンマ線放出率の評価結果	136
図 3-122	Am-241 の熱中性子捕獲断面積に対する補正前(上図)と補正後(下図)の経年変化	137
図 3-123	Am-241 の s 因子に対する補正前(上図)と補正後(下図)の比較	138
図 3-124	Am-243 の熱中性子捕獲断面積に対する補正前(上図)と補正後(下図)の経年変化	139
図 3-125	Am-243 の s 因子に対する補正前(上図)と補正後(下図)の比較	140
図 3-126	Np-237 の熱中性子捕獲断面積に対する補正前(上図)と補正後(下図)の経年変化	141
図 3-127	Np-237 の s 因子に対する補正前(上図)と補正後(下図)の比較	142
図 3-128	分解能関数パラメータ探索のための外部プログラムと REFIT との関係	143
図 3-129	Sn-118 の中性子捕獲断面積を用いた分解能関数パラメータの推定結果	143
図 3-130	Sn-118 の中性子捕獲断面積への再現で得られた分解能関数パラメータの中性子エネルギー依存性	144
図 3-131	REFIT を用いた断面積の再現におけるエネルギー領域の分割数依存性	144
図 3-132	分解能関数と共鳴の両パラメータの調整による再現結果(赤線)と細分化したエネルギー領域において共鳴パラメータのみを調整した再現結果(黒線)の比較	145
図 3-133	JENDL-4.0 の共鳴エネルギーに対する既存データと JEFF-3.2 の比較	145
図 3-134	Am-241 の中性子捕獲断面積測定における TOF スペクトルと Y-89 の共鳴(3490ch)の再現結果	146
図 3-135	金の中性子捕獲断面積の再現結果(上図)と共鳴エネルギーに対する本解析値との比較(下図)	146
図 3-136	金の 0-200 eV における中性子透過(上図)・中性子捕獲断面積(下図)の再現結果	147
図 3-137	金の 200-1000 eV における中性子透過(上図)・中性子捕獲断面積(下図)の再現結果	148
図 3-138	Gd-155 の 0.01-10 eV における中性子捕獲断面積の再現結果	149

図 3-139	Gd-157 の 0.01-10 eV における中性子捕獲断面積の再現結果	150
図 3-140	Gd-155, 157 の 1-30 eV に対する中性子捕獲断面積の再現結果	151
図 3-141	Gd-155 に対して得られた共鳴パラメータによる中性子捕獲断面積と評価値との比較	152
図 3-142	Gd-157 に対して得られた共鳴パラメータによる中性子捕獲断面積と評価値との比較	152
図 3-143	Am-241 の中性子透過・捕獲断面積の再現結果と共鳴パラメータに対する評価値との比較	153
図 3-144	Am-241 に対して得られた共鳴パラメータによる中性子捕獲断面積と評価値との比較	154
図 3-145	Am-243 試料に対する 0.02-2 eV における共鳴断面積の再現結果	155
図 3-146	Am-243 試料に対する 2-20 eV における共鳴断面積の再現結果	156
図 3-147	Am-243 に対して得られた共鳴パラメータによる中性子捕獲断面積と評価値との比較	157
図 3-148	Tc-99 の 0.01-200 eV における中性子捕獲断面積の再現結果	158
図 3-149	Tc-99 の 200-600 eV における中性子捕獲断面積の再現結果	159
図 3-150	高速中性子領域の断面積に対する評価方法	160
図 3-151	truncated Porter-Thomas 分布による解析結果	160
図 3-152	複合核 Tc-100 の離散レベル累積数の再現結果	161
図 3-153	中性子全断面積の評価結果と JENDL-4.0 との比較	161
図 3-154	部分波ごとの中性子幅に対する中性子エネルギー依存性	162
図 3-155	Tc-99 の高速中性子領域における捕獲ガンマ線スペクトルの評価結果	162
図 3-156	Tc-99 の高速中性子領域における中性子捕獲断面積（上図）と誤差（下図）の評価結果	163

略語一覧

- ADC : Analog-to-digital convertor (アナログ・デジタル変換器)
- AMP : Amplifier (増幅器)
- ANNRI: Accurate Neutron-Nucleus Reaction measurement Instrument
(中性子核反応測定装置)
- ANODISC: Anopore Inorganic Membrane Filters
(無機酸化アルミニウムメンブレンフィルター)
- BGO : $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ シンチレータ
- BTB チェンバー: Back-to-back type of double fission chamber (背中合わせ型電離箱)
- DA : Delay Amplifier (遅延増幅器)
- DAQ : Data Acquisition system (データ収集系)
- ENSDF : Evaluated Nuclear Structure Data File (評価済み核構造データファイル)
- FPGA : Field Programmable Gate Array (プログラミング可能集積回路)
- J-PARC : Japan Proton Accelerator Research Complex (大強度陽子加速器施設)
- JAEA : Japan Atomic Energy Agency (国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)
- JENDL : Japanese Evaluated Nuclear Data Library
- KUCA : Kyoto University Critical Assembly (京都大学臨界集合体)
- KURRI : Kyoto University Research Reactor Institute (京都大学原子炉実験所)
- LANSCE : Los Alamos Neutron Science Center (ロスアラモス中性子科学センター)
- LINAC : linear accelerator (直線加速器)
- LLFP : Long-Lived Fission Product (長寿命核分裂生成物)
- 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)
- PA : Preamplifier (前置増幅器)
- TFA : Timing Filter Amplifier
- TIMS : Thermal Ionization Mass Spectrometry (表面電離型質量分析装置)
- TOF : Time of flight (飛行時間)

概略

核変換システムの核設計で必要となる核データの精度が、経済協力開発機構原子力機関 (OECD/NEA) 等により評価⁽¹⁾され、中性子核データ高精度化の意義について世界的な認識が深まっている。我が国においても、マイナーアクチニド (MA) 核種の核変換システムとして有望視されている加速器駆動型未臨界炉の核設計のために、核データライブラリに整備された共分散を用いて核特性予測値の不確定さが定量化され、Am-241, Am-243 や Np-237 の中性子捕獲断面積が最も大きな影響を与えることが報告⁽²⁾⁽³⁾されている。

このように定量化された核データの高精度化ニーズに応えるため、近年核データ測定研究が世界的に活性化している。特に、核破碎反応による大強度パルス中性子源等の最先端装置を適用した核データ測定技術の進展は目覚ましく、欧州では原子核研究機構 (CERN)⁽⁴⁾、米国ではロスアラモス国立研究所⁽⁵⁾、我が国では大強度陽子加速器施設 (J-PARC)⁽⁶⁾において、中性子飛行時間測定 (TOF) 法を適用した中性子捕獲断面積のエネルギー依存性を測定する研究が進められている。これらの研究により、測定の統計精度は飛躍的に改善され、エネルギー依存性データの精度が大幅に向上している。しかしながら、その絶対値については、依然大きな系統誤差が残っており、精度向上を達成するためには、高精度の規格化とともに信頼性の検証が必要である⁽⁷⁾。

平成 25 年度を初年度として開始した本研究開発事業では、核変換システムの研究で重要な放射性核種の中性子捕獲断面積を高精度化することに焦点を当て、5 つの研究項目、①熱中性子捕獲断面積の高精度化、②TOF 測定に用いるサンプル量の高精度決定のための技術開発、③中性子全断面積測定を組み合わせた共鳴パラメータの決定、④測定エネルギー範囲の高速中性子領域への拡張、⑤測定と評価のキャッチボールによる高品質評価を設定した。

本研究開発を進めるに当たり、核データ測定、放射化学、炉物理、核データ評価という異なる分野の研究者が、それぞれ得意とする独立した研究手法を持ち寄り、得られた結果を相互に比較検討することで信頼性を高めるとともに、研究手法を組み合わせることにより高精度の規格化を実現し、核データの精度を 2 倍近く向上させるという高い目標を掲げ研究に取り組んだ⁽⁸⁾。各研究項目の事業全体における位置づけ及び本事業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。

研究項目①「熱中性子捕獲断面積の高精度化」は、熱中性子捕獲断面積を高精度で決定することにより、中性子捕獲断面積のエネルギー依存性データを高精度に規格化することを目指した研究項目である。

中性子照射によりサンプルを放射化し、生成核種量を γ 線分光法により定量して熱中性子捕獲断面積を導出する際には、生成核種から放出される崩壊 γ 線放出率が高い精度で必要となる。しかしながら、重要 MA 核種の 1 つである Am-243 の中性子照射により生成する Am-244 からの崩壊 γ 線放出率には大きな誤差があった。本事業では、内部転換係数を考慮した崩壊 γ 線放出率の和が 100%に規格化できることに着眼した解析法を開発し、対象となる崩壊 γ 線放出率の誤差を従来の 29%から 2%へと大幅に低減した。

また、本事業では、京都大学原子炉実験所電子線形加速器施設の光中性子源について、軽水モデレータの改良を行い、軽水中にホウ酸水を添加することにより可変中性子スペクトル場を構築した。本可変中性子スペクトル場を用いて、Np-237 等のサンプルを照射し、中性子捕獲反応で生

成した Np-238 からの崩壊 γ 線を統計精度 1%以下で計測できることを実証した。本研究では、照射中性子束のエネルギー依存性を、TOF 法を適用して精密に測定することにより、従来の原子炉中性子を用いた放射化実験に比較し、信頼性の高い積分的検証法を構築した。

研究項目②「TOF 測定に用いるサンプル量の高精度決定のための技術開発」では、中性子捕獲断面積の絶対値の決定に欠かすことのできない密封放射性サンプル中の MA 核種量を高精度に定量することを目指した。

本研究開発では、2つの独立した測定手法として、ガンマ線分光法及び熱量測定法を適用するための技術開発を行った。また、密封放射性サンプル作製に用いたものと同じ MA 核種試料を破壊分析用に少量準備し、質量分析法やアルファ線分光法により、試料に含有される不純物の測定を実施し、その結果を熱量測定法に反映した。

ガンマ線分光法の開発においては、崩壊ガンマ線を高精度に計測可能とするため、ガンマ線検出器のピーク検出効率を高精度に決定する技術を開発した。本開発では、標準線源により求まる離散的ガンマ線エネルギー点での校正値を多項式関数により外挿する従来の手法ではなく、モンテカルロシミュレーション法を適用した外挿法を開発した。この結果、従来 2-3%あったガンマ線検出器のピーク検出効率の決定精度が、約 1%まで向上した。このように高精度に校正したピーク検出効率を適用することにより、MA 核種からの主要崩壊ガンマ線放出率を 1.2%以下の精度で決定した。本放出率データ及び測定技術により、TOF 測定用密封放射性サンプル中に含有される MA 核種量を約 2%の精度で決定した。

熱量測定によるサンプル量の絶対値測定技術の開発では、マイクロカロリメータを導入することにより 0.1%という高い測定精度を確保するとともに、ガンマ線放出により逃げ出す熱量を低減した。さらに質量分析法やアルファ線分光法を用いた破壊分析結果を適用した不純物核種の定量結果に基づき、不純物による発熱量を補正し、カロリメータによる放射能絶対値測定技術を確立した。本技術を適用することにより、TOF 測定に用いた密封放射性サンプル中の MA 核種量を約 0.1%の精度で決定した。本測定結果は、ガンマ線分光法による測定結果と誤差の範囲で一致した。約 0.1%の精度で密封放射性サンプル中の MA 核種量を定量可能とする技術は、従来の測定精度を 10 倍以上更新する画期的な技術と位置づけられる。

研究項目③「中性子全断面積測定を組み合わせた共鳴パラメータの決定」は、中性子捕獲断面積と中性子全断面積の測定を組み合わせることにより、中性子共鳴パラメータを精度よく決定し、中性子捕獲断面積の評価に資することを目指した研究である。また、対象となる MA 核種の中性子共鳴ピークには、中性子捕獲断面積の中性子全断面積に占める割合が 98-99%程度と大きいため、中性子全断面積と中性子捕獲断面積の測定値を比較することにより、信頼性の確認に資することができる。さらに、本事業では、同じ核種について、3種類の異なる厚さのサンプルを用いた測定を実施することにより、測定方法や解析方法における矛盾の有無を確認することを目指した。

中性子全断面積測定技術の開発に当たっては、バックグラウンドを正確に差し引くことのできる中性子検出器の開発、高速データ収集システムの開発、並びに S/N を改善するための中性子遮蔽の強化を実施した。開発した測定システムを、安定核種である標準金試料及び Gd-157 等に適用して測定技術及び解析技術を構築した後、Am-241, 243 の中性子全断面積測定に適用した。また、

中性子捕獲断面積の測定も実施し、中性子全断面積の測定結果と比較した。京都大学原子炉実験所の電子線形加速器施設では、中性子捕獲断面積と中性子全断面積を同時測定可能な検出器システムを整備し、TOF法により Np-237 の中性子捕獲断面積を測定した。

Am-241 については、0.01~100 [eV] の範囲で中性子捕獲断面積のエネルギー依存性データを取得した。熱中性子エネルギーにおける中性子捕獲断面積として 707 ± 32 [b] を、中性子全断面積として 730 ± 21 [b] という結果を得た。本測定精度は、世界における最新の測定精度に比較しても同等あるいは2倍以上高精度化している。さらに、Am-241 について、世界の他機関では両断面積を同時に測定した例はなく、中性子捕獲断面積と中性子全断面積について矛盾のないデータセットが得られたことは、信頼性の高さを示す結果となった。Am-243 や Np-237 についても、本章で詳述する通りの良好な結果が得られている。

研究項目④「測定エネルギー範囲の高速中性子領域への拡張」は、中性子捕獲断面積のエネルギー依存性の測定範囲を、本事業開始前に達成していた約 100keV から、高速中性子による中性子捕獲反応で重要な約 300 keV 領域まで拡張することを目指した。

このために、ANNRI・NaI(Tl)検出器のデータ収集系の高度化を行うとともに、並行して、バックグラウンドを低減する追加遮蔽体の設計・製作・設置を行った。整備したデータ収集系、追加された遮蔽体系において、標準金試料等を用いて特性試験を行い、高度化したデータ収集系による解析手法を確立した。本技術を代表的長寿命核分裂生成核種の1つである Tc-99 の中性子捕獲断面積測定に適用し、目標としたエネルギー領域を上回る約 800 keV 領域まで中性子捕獲断面積が導出できることを実証した。

研究項目⑤「測定と評価のキャッチボールによる高品質評価」は、既存測定データの収集・解析を行うとともに、本事業において得られた測定データと合わせて、総合的な核データ評価を行うものである。核データの測定データは、測定者や測定方法、実験施設の違いにより、しばしば誤差範囲を超えた結果が報告されるため、信頼性の高い評価が困難であった。本事業においては、評価者が測定者と実験解析の細部にわたり議論を行うとともに、過去の測定データの解析について系統的な見直しを行うことで、信頼性の高い評価値を導出し、核データの高精度化を目指した。

熱中性子捕獲断面積の評価では、MA核種の低エネルギーに存在する大きな中性子共鳴の存在が、放射化法による熱中性子捕獲断面積の導出に与える影響を補正する評価手法を開発し、過去に測定された放射化法による測定値を系統的に見直した結果、従来測定誤差の範囲を超えて相互に矛盾のあったデータの多くが、誤差の範囲で一致する結果となった。Am-241 について評価した熱中性子捕獲断面積の値は 697 ± 16 [b] となり、研究項目③で TOF法により導出した値と誤差の範囲で一致した。これらの評価研究により、従来の精度を2倍近く向上させるという高い目標を達成することができた。また、Am-243 と Np-237 についても、開発した補正手法を適用することにより、相互に矛盾のあったデータの問題を低減し、信頼性の高い評価値を得た。

以上、本プロジェクト研究では、MA核種を中心に中性子捕獲断面積を高精度化するための研究開発に取り組み、データ精度を約2倍向上させるとともに、精度向上のために汎用性を有する測定技術及び評価技術を開発した。

1. はじめに

核変換システムの核設計で必要となる核データの精度が、経済協力開発機構原子力機関 (OECD/NEA) 等により評価⁽¹⁾され、中性子核データ高精度化の意義について世界的な認識が深まっている。我が国においても、マイナーアクチニド (MA) 核種の核変換システムとして有望視されている加速器駆動型未臨界炉の核設計のために、核データライブラリに整備された共分散を用いて核特性予測値の不確定さが定量化され、Am-241, Am-243 や Np-237 の中性子捕獲断面積が最も大きな影響を与えることが報告⁽²⁾⁽³⁾されている。

このように定量化された核データの高精度化ニーズに応えるため、近年核データ測定研究が世界的に活性化している。特に、核破砕反応による大強度パルス中性子源等の最先端装置を適用した核データ測定技術の進展は目覚ましく、欧州では原子核研究機構 (CERN)⁽⁴⁾、米国ではロスアラモス国立研究所⁽⁵⁾、我が国では大強度陽子加速器施設 (J-PARC)⁽⁶⁾において、中性子飛行時間測定 (TOF) 法を適用した中性子捕獲断面積のエネルギー依存性を測定する研究が進められている。これらの研究により、測定の統計精度は飛躍的に改善され、エネルギー依存性データの精度が大幅に向上している。しかしながら、その絶対値については、依然大きな系統誤差が残っており、精度向上を達成するためには、高精度の規格化とともに信頼性の検証が必要である⁽⁷⁾。

平成 25 年度を初年度として開始した本研究開発事業では、核変換システムの研究で重要な放射性核種の中性子捕獲断面積を高精度化することに焦点を当て、5 つの研究項目、①熱中性子捕獲断面積の高精度化、②TOF 測定に用いるサンプル量の高精度決定のための技術開発、③中性子全断面積測定を組み合わせた共鳴パラメータの決定、④測定エネルギー範囲の高速中性子領域への拡張、⑤測定と評価のキャッチボールによる高品質評価を設定した。

研究項目①「熱中性子捕獲断面積の高精度化」は、熱中性子捕獲断面積を高精度で決定することにより、中性子捕獲断面積のエネルギー依存性データを高精度で規格化可能にすることを目指した研究項目である。

研究項目②「TOF 測定に用いるサンプル量の高精度決定のための技術開発」では、中性子捕獲断面積の絶対値決定に欠かすことのできない密封放射性サンプル中の MA 核種量を高精度に決定することを目指した。

研究項目③「中性子全断面積測定を組み合わせた共鳴パラメータの決定」は、中性子捕獲断面積と中性子全断面積の測定を組み合わせることにより、中性子共鳴パラメータを精度よく決定し、中性子捕獲断面積の評価に資することを目指した研究である。また、対象となる MA 核種の中性子共鳴ピークには、中性子捕獲断面積の中性子全断面積に占める割合が 98-99%程度と大きいため、中性子全断面積と中性子捕獲断面積の測定値を相互に比較することにより、信頼性の確認に資することが期待できる。さらに、本事業では、同じ核種について、3 種類の異なる厚さのサンプルを用いた測定を実施することにより、測定方法や解析方法における矛盾の有無を確認することを目指した。

研究項目④「測定エネルギー範囲の高速中性子領域への拡張」は、中性子捕獲断面積のエネルギー依存性の測定範囲を、本事業開始前に達成していた約 100keV から、高速中性子による中性子捕獲反応で重要な約 300 keV 領域まで拡張することを目指した。

研究項目⑤「測定と評価のキャッチボールによる高品質評価」は、既存測定データの収集・解

析を行うとともに、本事業において得られた測定データと合わせて、総合的な核データ評価を行うものである。核データの測定データは、測定者や測定方法、実験施設の違いにより、しばしば誤差範囲を超えた結果が報告されるため、信頼性の高い評価が困難であった。本事業においては、評価者が測定者と実験解析の細部にわたり議論を行うとともに、過去の測定データの解析について系統的な見直しを行うことで、信頼性の高い評価値を導出し、核データの高精度化を目指した。

本研究開発を進めるに当たり、核データ測定、放射化学、炉物理、核データ評価という異なる分野の研究者が、それぞれ得意とする独立した研究手法を持ち寄り、独立した研究手法により得られた結果を相互に比較検討することで信頼性を高めるとともに、研究手法を組み合わせることにより高精度の規格化を実現し、核データの精度を2倍近く向上させるという高い目標を掲げ研究に取り組んだ⁽⁸⁾。この結果、本プロジェクト研究では、MA核種を中心に中性子捕獲断面積の精度を約2倍向上させるとともに、精度向上のために汎用性を有する測定技術及び評価技術を開発した。本研究開発事業の成果が、マイナーアクチニド(MA)を中心とする放射性廃棄物にかかわる環境負荷低減技術開発に大きく貢献することを念じてやまない。

2. 業務計画

マイナーアクチニド (MA) を中心とする放射性廃棄物にかかわる環境負荷低減技術の基盤データとして、放射性核種の核データの精度向上が求められている。本研究では、従来測定が困難であるため測定誤差が大きい放射性核種 (MA 及び長寿命核分裂生成核種(LLFP)) に対して、環境負荷低減効果の評価に重要な中性子核データを高精度化することを目指し、①熱中性子捕獲断面積の高精度化、②TOF 測定に用いるサンプル量の高精度決定のための技術開発、③中性子全断面積測定を組み合わせた共鳴パラメータの決定、④測定エネルギー範囲の高速中性子領域への拡張、⑤測定と評価のキャッチボールによる高品質評価、並びに、⑥研究推進を実施する。これにより、マイナーアクチニド核種を中心とする最重要核種の中性子核データを世界最高水準で測定できる技術を開発し、これを適用した核データ測定結果を反映した評価を行うことにより、高品質データを整備する。研究項目①～⑤の4ヵ年計画は以下の通りである。() 内には、研究担当機関名・大学名を記す。

(1) 熱中性子捕獲断面積の高精度化

京都大学原子炉実験所研究炉 KUR 及び日本原子力研究開発機構研究炉 JRR-3 (稼動しない場合は京都大学研究炉だけを使用) を用いて、中性子放射化によりサンプルを放射化し、生成核種を γ 線分光法及び α 線分光法という独立した2種類の分析手法を用いて反応率を求めることにより、独立して熱中性子捕獲断面積値を導出できる技術を開発する。得られた結果の相互比較により系統的誤差要因を検討する。開発した測定手法を Am-241, 243 等の MA 核種へ適応し、熱中性子捕獲断面積を高精度で決定する。(原子力機構)

京大炉ライナック及び京都大学原子炉実験所臨界集合体 KUCA を用いて可変中性子スペクトル場を生成し、MA 核データの精度検証を実施する。京大炉ライナックでは、光中性子源の軽水モデレータの改良を行い、放射化法による熱中性子捕獲断面積の測定に適用する。中性子場の定量評価のために、TOF 法により中性子スペクトルを測定するとともに、放射化法により検証する。構築した最適な中性子場を用いて、放射化法による Np-237 等の熱中性子捕獲断面積測定を実施する。KUCA では、背中合わせ電離箱 (BTB チェンバー) を作製し、核分裂反応率測定を実施する。中性子スペクトルの異なる炉心体系内に BTB チェンバーを入れて、Am-241 核種などの U-235 に対する核分裂比を測定する。捕獲反応率、核分裂比測定の結果に基づいて感度解析を行い、得られる結果を微分断面積測定の結果と比較してデータの現状を検証し、核データ評価に反映させる。(京都大学)

(2) TOF 測定に用いるサンプル量の高精度決定のための技術開発

中性子捕獲断面積の精度を向上させるために、サンプル量を高精度に測定する手法を開発する。放射化物の生成量を精度良く求めるために、低エネルギー用ガンマ線検出器を整備し、ガンマ線放出率を精度よく決定する技術を開発する。また、カロリメータを整備し、独立した手法である熱測定によりサンプル量の絶対値測定を行う。(原子力機構)

J-PARC/MLF/ANNRI に使用する試料を整備するためのサンプル整備、及びサンプル試料分析を行う。京大原子炉実験所で保有している表面電離型質量分析装置のイオン源の整備を行い、Np-237 試料等の分析に適用する。(京都大学)

(3) 中性子全断面積測定を組み合わせた共鳴パラメータの決定

中性子全断面積測定技術の開発に当たっては、高速データ収集システムの整備、並びに S/N 比を改善するための中性子遮蔽の強化を実施する。開発した測定システムを、初めに安定核種である標準金試料及び Gd-157 等に適用し測定技術及び解析技術を構築した後、Am-241, 243 等 MA 核種の中性子全断面積の測定に適用する。中性子捕獲断面積及び中性子全断面積の測定結果を組み合わせて解析することにより共鳴パラメータを高精度で決定する。(原子力機構)

京都大学原子炉実験所の電子線形加速器施設に、中性子捕獲断面積と中性子全断面積を同時測定可能な検出器システムを整備し、TOF 法により Np-237 等の MA 核種の測定を行い、共鳴パラメータを決定する。(京都大学)

(4) 測定エネルギー範囲の高速中性子領域への拡張

ANNRI・NaI(Tl) 検出器のデータ収集系の高度化を行い、測定エネルギー範囲を高速中性子領域へ拡張するために、測定回路系を整備する。並行して、バックグラウンドを低減する追加遮蔽体の設計・製作・設置を行う。なお、設計においては、実験とシミュレーションにより追加遮蔽体の最適化設計を行う。

整備したデータ収集系、追加された遮蔽体系において、標準金試料等を用いて特性試験を行い、高度化したデータ収集系による解析手法を確立する。

Am-241, 243 等の MA 核種及び LLFP 核種を選定し、それらの中性子捕獲断面測定を実施する。得られた測定データを解析し、高速中性子領域にわたる中性子捕獲断面積を導出する。

(東京工業大学)

(5) 測定と評価のキャッチボールによる高品質評価

既存測定データの収集・解析を行い、本事業において測定データと合わせて、総合的な核データ評価を行う。本事業における実験データの解析に対しても、核データ評価の立場から議論を行うことによって、マイナーアクチニド核種を中心とする核データの精度向上を目指す。核データの測定では、測定者や測定方法、実験施設の違いにより、しばしば誤差範囲を超えた結果が得られるため、信頼性の高い評価値を与えることは困難であった。本事業においては、測定者と実験解析の細部にわたり議論を行いつつ、他の測定データの解析についても見直しを行うことで、可能な限り測定値間における矛盾を解消した信頼性の高い評価値を導出し、核データの高精度化を達成する。(原子力機構)

3. 業務の実施内容及び成果

3.1. 熱中性子捕獲断面積の高精度化 (H25~H28)

3.1.1. 独立分析手法の組合せによる高精度化

(1) 概要

平成 28 年度において、京都大学原子炉実験所の電子線形加速器施設の中性子源を用いて、Am-241、Am-243、及び Np-237 核種の放射化実験を行なった。放射化させた Am-241、Am-243、及び Np-237 試料をガンマ線測定、アルファ線測定を行うことにより実効熱中性子捕獲断面積データを導出した。また、Am-243(n, γ)Am-244g 反応の解析に使用する崩壊ガンマ線の放出率データを高精度で導出した。以下に、各項目について詳細に説明する。

(2) 放射化実験

① 照射実験

京都大学原子炉の中性子源の代替として、当実験所の電子線形加速器施設（以下、KURRI-LINAC と略す）のターゲット室の中性子場を利用して、放射化実験を実施した。

1) 照射用試料

Am-243 試料、放射エネルギー 2 MBq、Am-241 試料、888kBq、及び Np-237 試料、4kBq のものを使用した。Am-241, 243 試料、及び Np-237 試料を、図 3-1 に示してある。Am-241 試料は、直径 28mm、厚み 0.5mm のアルミ円盤の表面に、直径 20mm のサイズに蒸着されている。Am-243 試料は、直径 28mm、厚み 0.5mm のアルミ円盤の表面に、乾燥固化した試料が直径 20mm のサイズでシールされている。Np-237 試料は、ファイバー濾紙をシールして密封したもので、直径 20mm の円盤状である。それぞれの試料を、図 3-2 に示すような 50mm×50mm×1mm サイズのアルミ板に置き、試料に近い位置に Au 箔（厚み 10 μ m）、Co 箔のモニタをカプトンテープで張り付けて、3mm 厚のスペーサーを入れて、更に 5cm×5cm サイズのアルミ板でフタをして 4 点をネジ止めして密封することで、試料の飛散に対する安全性を担保した。

2) 中性子照射

準備したターゲットを、図 3-3 に示すようにターゲット室に設置されたサンプル台の表面に取り付けた。サンプル位置は、電子線の方向に対して 90° の向きで、水減衰タンク（モデレータ）の表面から 100mm の位置に設置した。水減衰タンクは、平成 28 年度は直径 200mm のものをセットした。加速器の運転条件は、パルス繰返し 50 Hz、パルス幅 2.8 μ s、電流値 70 μ A オーダー、2 kW 出力とし、Np-237 試料を 8 時間、Am-243 試料を 24 時間、Am-241 試料を 43 時間照射した。

3) 放射線計測

照射終了後、照射済み試料を開封して、未照射のアルミフォルダへ封入し直した後、ホットラボに移送して、照射済み Am-243 と Np-237 試料はガンマ線計測を、Am-241 試料はアルファ線計測を行なった。

ガンマ線計測に用いた Ge 検出器は、ORTEC モデル GEM-25185P で、AMP(ORTEC 672) の Shaping Time を 6 μ s とし、Labo 製 MCA 600 を用いて、スペクトルデータを取得し

士た。検出器効率は、校正線源 Eu-152(1D418、11.33 μ Ci)と混合線源(UL206)を用いて求めた。照射済みの試料は、安全のためにアルミフォルダに封入して測定した。検出器効率を求める際には、校正線源の前に1mm厚のAl板を設置し、ガンマ線の減衰効果が同じ条件で測定した。

照射済み Am-241 試料は、アルファ線計測を行なった。アルファ計測には、プレアンプ(CANBERRA 2003BT)、HV(TC953)、アンプ(CANBERRA 7401)、1日毎にデータを保存し、8日間の連続測定を行なった。

② データ解析

1) 放射化箔の中性子自己吸収補正係数

放射化箔として用いたAu及びCoモニタからのガンマ線を計測して、それらのAu-198及びCo-60の生成量を求め、Westcott's Conventionに基づいて照射位置における中性子束成分を導出するには、今回用いた厚いAu箔(10 μ m厚)の中性子自己吸収補正係数を計算により精度よく計算し、Auの反応率を補正する必要がある。

計算には、MCNP6(A General Monte Carlo N-Particle Transport Code Ver.6)コード及びENDF/B-VII.0評価データを使用し、図3-4に示すような照射のアルミフォルダとAu箔のジオメトリをMCNPの入力として与えた。また、入射中性子の分布として、図3-5に示すようなKURRI-LINACの200mm ϕ モデレータの場合での中性子束分布の計算値を使用した。中性子自己吸収補正係数は、 1.288 ± 0.012 と求められた。

2) Am-243照射データの解析

中性子自己吸収の補正を考慮して、得られた中性子束成分の解析結果を図3-6に示す。Auモニタの反応率が補正を受けて、補正前(青線)から大きくなり(赤線)、傾きも大きくなる。この y 切片の値から熱中性子束成分 $\phi_1(1.015 \pm 0.022) \times 10^8$ (n/cm²s)を、また傾きから熱外中性子束成分 $\phi_2(0.081 \pm 0.004) \times 10^8$ (n/cm²s)を求めた。今回使用した200mm ϕ の水減速タンクは、熱外中性子束成分を約8%含む硬いスペクトルである。

照射済み Am-243 試料のガンマ線スペクトルを、図3-7に示す。Am-243(n, γ)Am-244g反応により生成されたAm-244g(10.1h)からの崩壊ガンマ線744keVのピークを赤色の矢印で示す。Am-243と放射平衡の関係にあるNp-239の228keVガンマ線の収量から、試料量は562kBqとなった。

Am-244gの744keVとNp-239の228keVガンマ線の収量の比から反応率Rを求めた。解析には、内部転換係数を考慮した全崩壊 γ 線強度が100%に規格化できることに着眼した解析法を開発し、本手法を用いてガンマ線放出率を導出した。本プロジェクトで得られたガンマ線放出率の結果を評価値とともに表3-1ガンマ線放出率の測定結果に示す。744keVガンマ線の放出率データの誤差は、29%から2%へと大幅に向上した。

反応率Rとして、 $(1.207 \pm 0.073) \times 10^{-15}$ (1/s)を得た。この誤差には、系統誤差2.5%を含めている。Am-243(n, γ)Am-244g反応の実効中性子捕獲断面積として、 11.9 ± 0.8 (b)を得た。なお、Westcott's Conventionを用い実効中性子捕獲断面積は、次式で

表現される。

$$\hat{\sigma} = \sigma_0 \cdot (g + \phi_2 / \phi_1 s_0)$$

(数式 3-1)

評価データの $s_0=27.4$ 、 $g=1.014$ を用い、実験で得られた中性子束成分の情報から、熱中性子捕獲断面積 σ_0 を求め、3.7(b)を得た。この値は、Mughabghab(1984)の評価値 3.8 ± 0.4 (b) と誤差の範囲で一致する。

3) Np-237 照射データの解析

照射終了後、Np-237 ターゲットをホットラボに移送して、Np 試料及びモニタ試料のガンマ線計測を行なった。照射済み Np-237 試料を測定して得られたガンマ線スペクトルを図 3-8 に示す。Np-237 の 86keV ガンマ線、放射平衡の関係にある Pa-233 の 312keV、及び中性子捕獲反応で生成された Np-238 の崩壊ガンマ線が良い信号対雑音比で測定され、Pa-233 の 312keV ガンマ線収量を 1.7kBq と導出した。

また、中性子自己吸収の補正を考慮して得られた中性子束成分の解析結果を図 3-9 に示す。熱中性子束成分 $\phi_1 = (1.010 \pm 0.024) \times 10^8$ (n/cm²s) とグラフの傾きから $\phi_2 = (0.082 \pm 0.006) \times 10^8$ (n/cm²s) を求めた。熱外中性子束成分の割合は、Am-243 の時と同様に約 8%であった。

Pa-233 の 312keV と Np-238 の 984keV のガンマ線の収量の比から、反応率 R を求めた。解析には、本プロジェクトで導出したガンマ線放出率を用い、312keV に対して $38.46 \pm 0.16\%$ 、984keV に対して $25.19 \pm 0.10\%$ を使用した。反応率 R として、 $(2.47 \pm 0.05) \times 10^{-14}$ (1/s) を得た (系統誤差 1.7% を考慮)。今回の照射場における実効中性子断面積は、 245 ± 8 (b) となった。

前回の照射実験 (平成 27 年度実施) で、水減速タンク 150mm ϕ の場合で照射実験を行っており、異なる中性子場を利用することで熱中性子捕獲断面積が導出できることを次に示す。(数式 3-1) を 2 種類のモデレータ a と b の場合について考えて、実効中性子断面積を書き下せば、

$$\hat{\sigma}_a = \sigma_0 \cdot (g + \Phi_a s_0) \quad \text{ただし、} \Phi_a \equiv \phi_2 / \phi_1$$

(数式 3-2)

$$\hat{\sigma}_b = \sigma_0 \cdot (g + \Phi_b s_0) \quad \text{ただし、} \Phi_b \equiv \phi_2 / \phi_1$$

(数式 3-3)

となる。中性子成分の割合 Φ は、それぞれのモデレータに対して、モニタの照射から測定することができる。上式を連立すれば、 σ_0 について次式を得る。

$$\sigma_0 = \frac{\hat{\sigma}_b \Phi_a - \hat{\sigma}_a \Phi_b}{g \cdot (\Phi_a - \Phi_b)}$$

(数式 3-4)

通常、原子炉で熱中性子捕獲断面積を導出する場合、Cd ないし Gd 遮蔽を用いて中性子束成分を変化させて照射を行うが、モデレータ自体を変えて中性子束分布の硬さが異なる 2 種類の照射を行うことで、熱中性子捕獲断面積が導出できることが示された。ただし、本手法では差分を用いてデータを導出するため、十分な統計精度の測定が求められる。

4) Am-241 照射データの解析

照射済み Am-241 試料中に生成された Am-242g(16h)を、半減期に対して十分長い 8 日間減衰させ、生成する Cm-242(162d)と Am-241 のアルファ線の収量比から、中性子捕獲断面積を導出した。24 時間毎にスペクトルを保存し、1 週間測定を行った。得られたアルファ線スペクトルと照射前の Am-241 試料のアルファ線スペクトルを測定時間で規格化し、差分により得られたスペクトルも併せて図 3-10 に示す。Am-241 試料が厚いため、5.5MeV(1320ch)のピークから低エネルギー側に広くテールを引いていることが分かる、また、1400ch 以上で、パイルアップと考えられるバックグラウンドが生じているものの、6.1MeV のエネルギー位置(1480ch)に、Cm-242 のピークを観測することができた。得られたアルファ線ピークの収量は、

Am-241	180ch~1445ch	173, 199, 323±13, 160 Cnts
Cm-242	1446ch~1490ch	2, 502±50 Cnts

であった。照射中のターゲット試料の減少、生成核の二重中性子捕獲と崩壊による損失を考慮して、Am-241 と Cm-242 の比から反応率を求め、 $R_g=1.201 \pm 0.025 \times 10^{-13} (/s)$ を得た。反応率 R_g と熱中性子束成分 $\Phi_1=1.133 \pm 0.029 \times 10^8 (n/cm^2s)$ から、実効中性子捕獲断面積は、 $\sigma = 1060 \pm 35 (b)$ となった。

表 3-1 ガンマ線放出率の測定結果

	本研究の結果	T. O. I. 8 th
154 keV	17.1±1.2	16±5
538 keV	<0.4	0.66±0.15
744 keV	66.5±1.3	66±19
898 keV	28.0±1.0	28±8

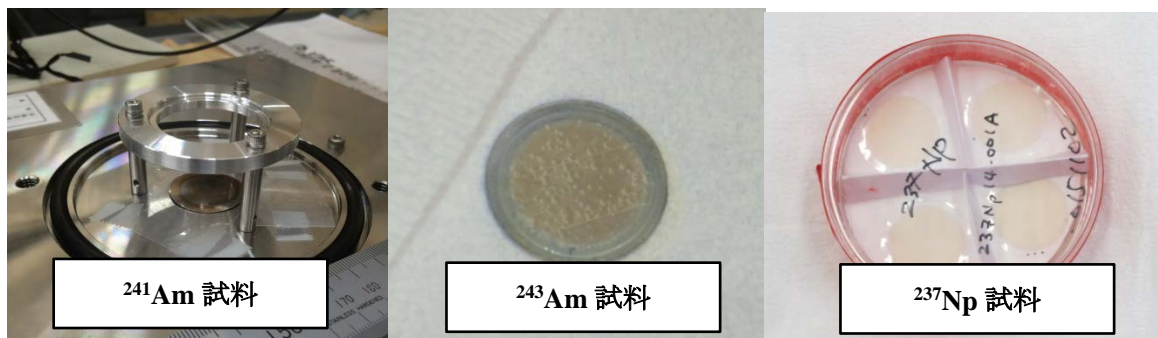


図 3-1 照射試験に用いた 3 核種の試料

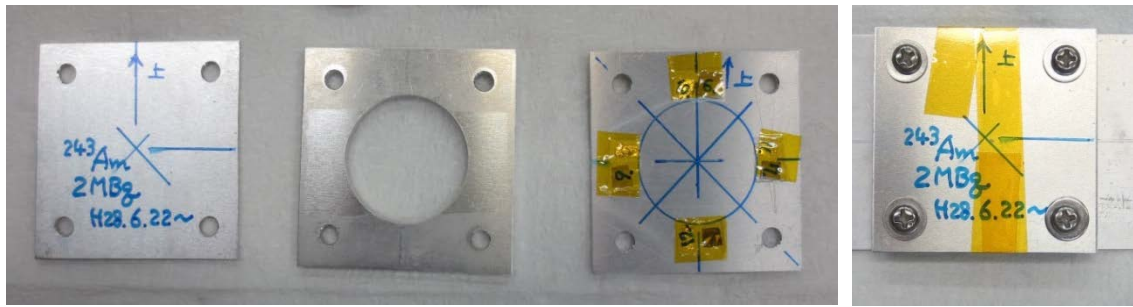


図 3-2 照射用アルミフォルダ(左)と密封された Am-243 ターゲット(右)

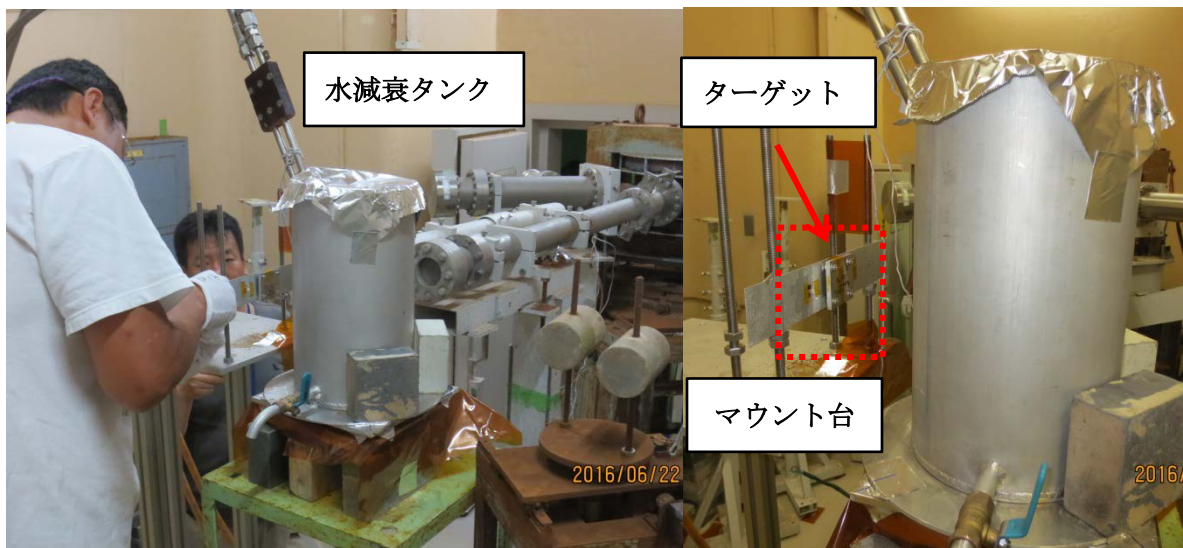


図 3-3 照射ターゲット室の準備作業(左)と設置したターゲット (右)

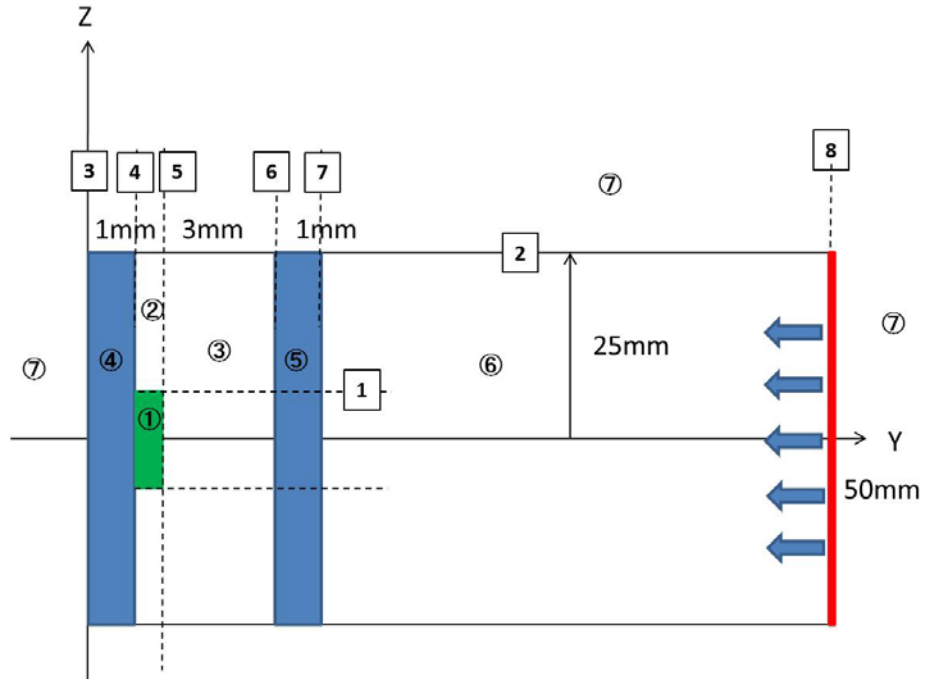


図 3-4 計算で使したジオメトリ
 (アルミフォルダ (青色)、Au 箔 (緑色)、そして右端から
 中性子が入射する。中性子の分布には、KURRI-LINAC での
 中性子束分布の計算値を用いた。)

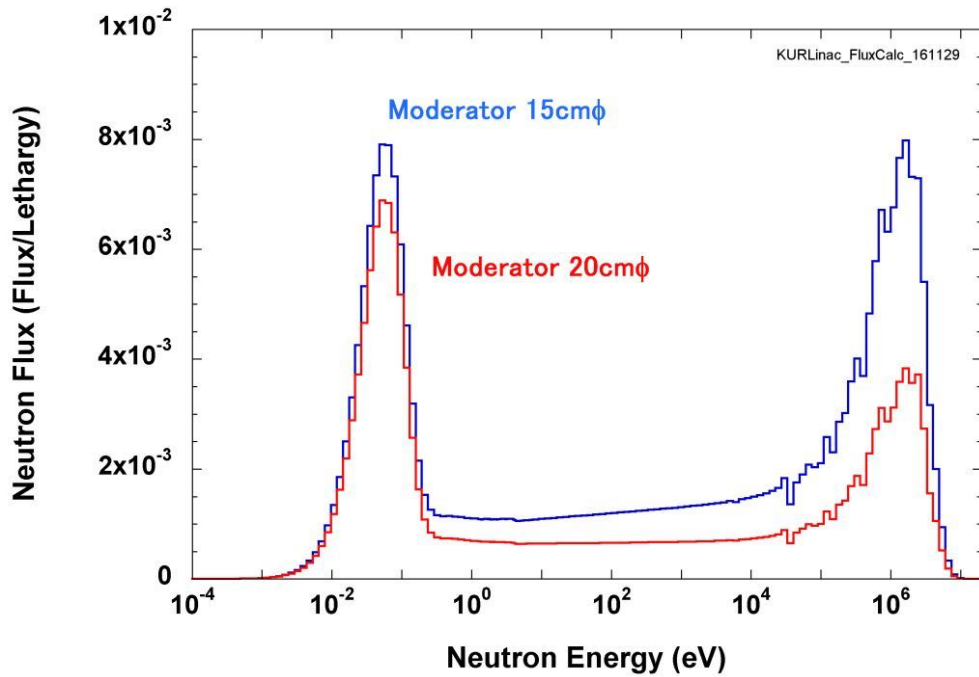


図 3-5 計算で求められた KURRI-LINAC の中性子束分布
 (モデレータ 150mm φ の場合 (青線) と 200mm φ の場合 (赤線) を示す。)

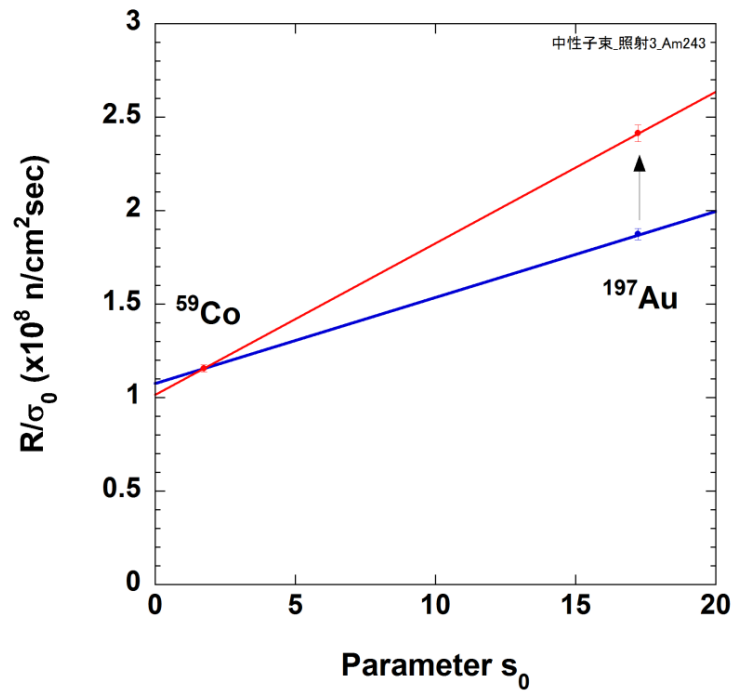


図 3-6 Am-243 ターゲットの照射位置における中性子束成分

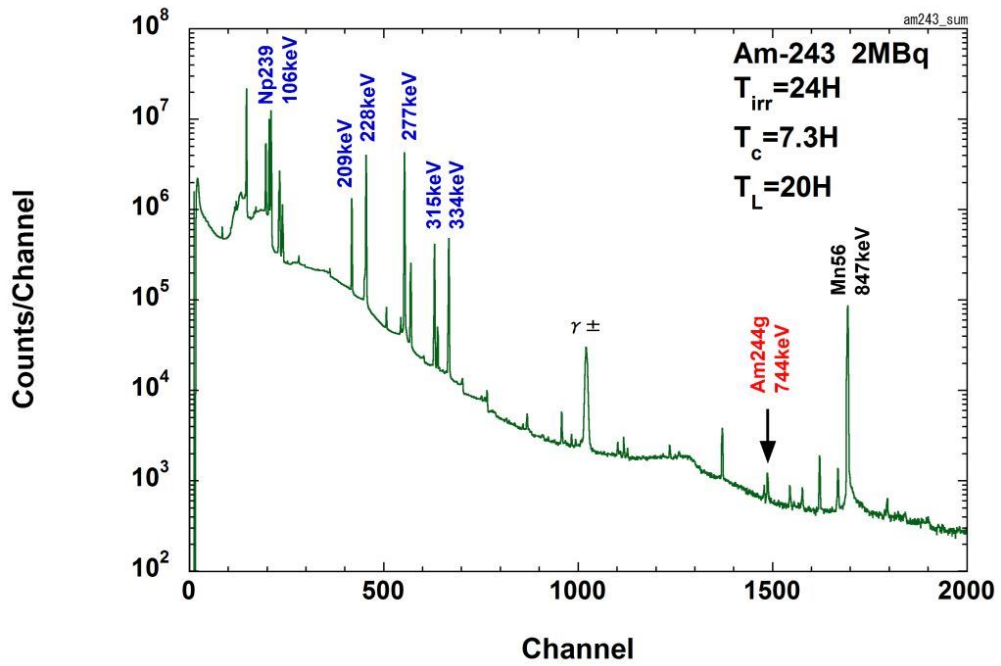


図 3-7 照射済み Am-243 試料のガンマ線スペクトル

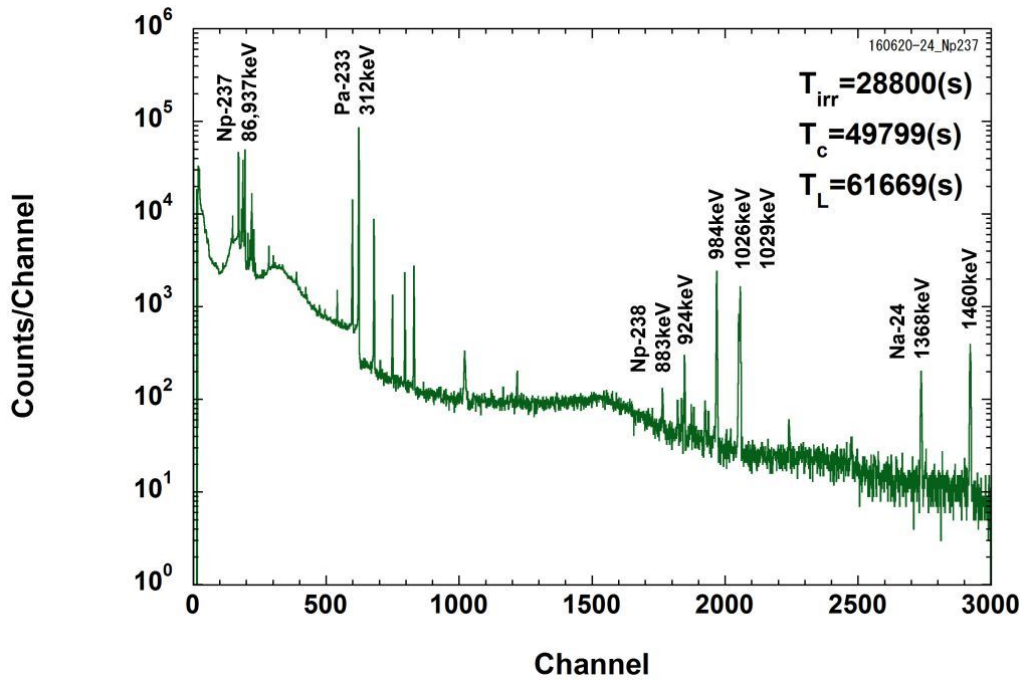


図 3-8 照射済み Np-237 試料のガンマ線スペクトル

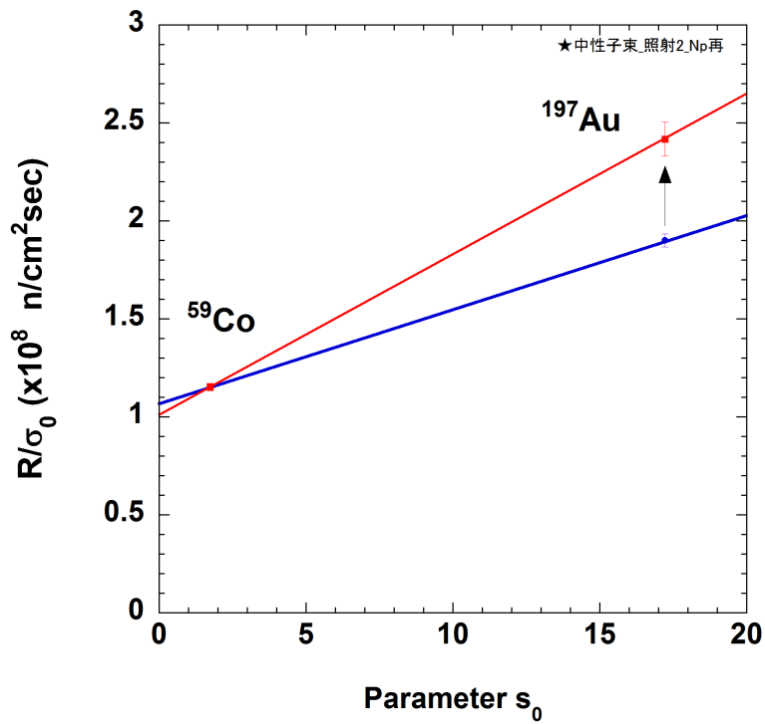


図 3-9 Np-237 ターゲットの照射位置における中性子成分

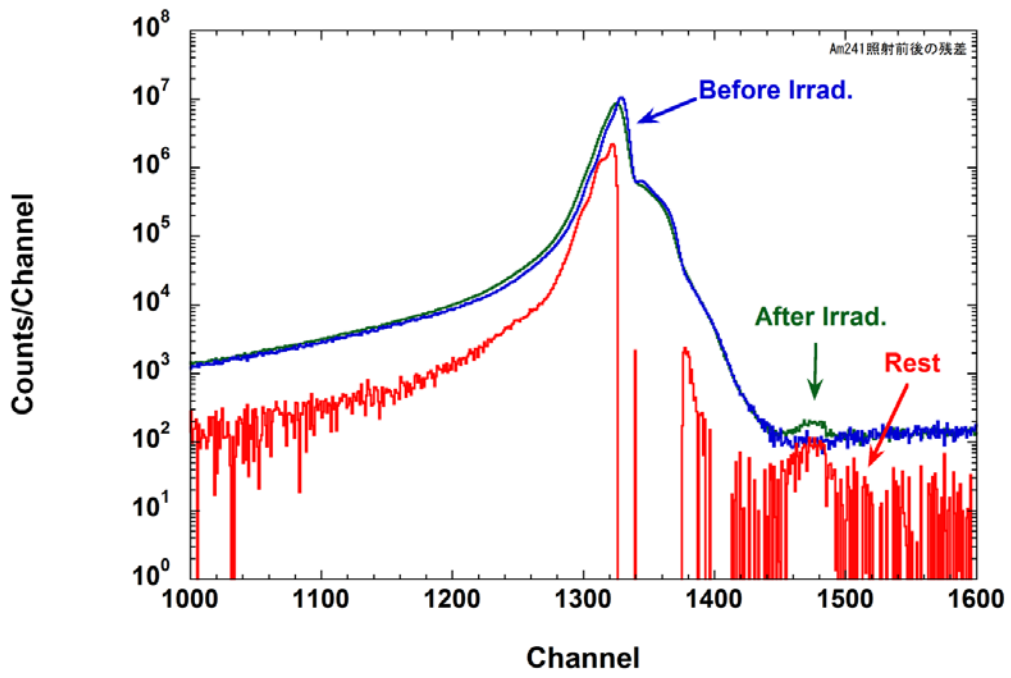


図 3-10 照射前後の Am-241 試料のアルファ線スペクトルとそれらの差分

3.1.2. 可変中性子スペクトル場照射による精度検証（再委託先：京都大学）

TOF 法を用いて測定した中性子捕獲断面積のエネルギー依存性は、近年の大強度パルス中性子源の建設や高感度捕獲ガンマ線検出器の開発によって高い測定精度が実現されつつあるが、TOF 測定で得られた相対捕獲収率は熱中性子捕獲断面積の評価値を用いて規格化を行うことが一般的であるため、熱中性子捕獲断面積の高精度化及び積分実験による検証が重要である。

本事業では、KURRI-LINAC を用いて可変中性子スペクトル場を構築し、スペクトルの硬さが異なる中性子場で放射化実験を行うことにより中性子捕獲反応率比を測定し、MA 核データの精度検証を行った。放射化法による断面積測定においては、照射場の中性子スペクトル評価が不確かさの要因の一つとなっている。そこで、本事業では照射場の中性子スペクトルを TOF 法で測定することによって、照射場のスペクトルを精度良く評価する手法を新たに適用した。

また、MA 核種の核分裂断面積の検証のために、京大炉の臨界集合体 (KUCA) を用いた可変中性子スペクトル場照射による核分裂反応率比測定を実施する予定であったが、研究用原子炉の新規制基準対応による運転再開の遅れのため、事業期間中に KUCA を用いた実験を行うことが不可能になった。そこで、京大炉ライナックを代替中性子源として活用し、核分裂反応率比測定を行ったところ、十分な統計精度は得られなかったものの、核分裂比測定に与える影響が大きい Pu-239 の寄与を定量することができた。本結果から過去に実施した KUCA での実験を再解析することにより、所期の目標を達成することができた。本節では以下にその詳細を述べる。

(1) 京大炉ライナックにおける可変中性子スペクトル場の構築

① 可変中性子スペクトル場構築及び測定系の整備

京大炉ライナックでは、光中性子源の軽水モデレータの改良を行い、軽水中にホウ酸水を添加することにより、中性子温度 320~430K の可変中性子スペクトル場を構築できることを確認した。照射場の中性子スペクトル測定には TOF 法を適用した。放射化箔からの崩壊ガンマ線を測定するための Ge 検出器を整備し、その検出効率曲線を導出した。

② 可変中性子スペクトル場評価（平成 26 年度成果）

標準試料である金箔照射を用いた予備実験を行い、可変中性子スペクトル場評価を行った。予備実験の結果から照射位置に起因する系統誤差要因について明らかにし、誤差低減のための対策を検討した。

(2) 可変中性子スペクトル場を用いた熱中性子捕獲反応率比測定

① MA サンプルを用いた予備実験

軽水モデレータにホウ酸重量濃度が 0, 850, 2740ppm となるようにホウ酸を添加することにより、可変中性子照射場を構築した。照射場の中性子スペクトルは TOF 法による B-10 からの即発ガンマ線測定によって図 3-11 のように導出した。Np-237 の照射に関する予備実験を行った。系統誤差を 2%以内に抑えるための最適な照射時間を概算し、精度検証実験に向けた計画を立案した。また、崩壊ガンマ線測定に対する系統誤差要因を明らかにし、誤差低減のための対策を検討した。

② Np-237 に対する熱中性子捕獲断面積の検証実験

本項目では、図 3-11 に示すようなスペクトルの硬さが異なる 3 種類の中性子場において、Np-237 の中性子照射試験を行った。標準試料として金箔も併せて照射し、金に対する中性子捕獲反応率比測定を実施した。また、同時にそれぞれの中性子場で測定した TOF スペクトルと JENDL-4.0⁽⁹⁾ の評価済核データライブラリを用いて Np-237 と金の捕獲反応率比を求め、実験で得られた結果と比較を行った。

本実験におけるライナックの運転条件、実験条件を図 3-12 に示す。また、ターゲット室におけるモデレータ容器の配置及びサンプル設置位置の外観写真を図 3-13 に示す。本実験で使用した Np-237 サンプルとサンプルホルダーに貼り付けた金箔の設置位置の外観写真を図 3-14 に示す。なお、Np-237 サンプルは、本事業の 3.2 で作成したものを使用した。Np-237 サンプルは直径 20 mm であり、サンプル位置での中性子束を評価するために直径 20 mm、厚さ 0.01mm の金箔（重量 60.2 mg）も用意した。これら円板サンプルを 5×5cm 角のアルミニウム板に挟み込んだ容器をネジ止めして封入し、図 3-14 に示すように、サンプルホルダーの 4 か所に標準試料として直径 3 mm、厚さ 0.01mm の金箔（重量は 1.4～1.6 mg）を貼り付けた。

まず初めに、Np サンプル設置位置と同じ位置での金箔の中性子捕獲反応率を算出するために、ホウ酸濃度 0 ppm の中性子場において、直径 20mm の金箔の照射を行った。照射時間は 60 分であった。その後、各中性子場において、Np サンプルと 4 つの金箔の照射を行った。照射時間は、ホウ酸濃度 0 ppm、850 ppm、2740 ppm の場合において、それぞれ 9 時間、17 時間、24 時間であった。照射後、冷却した後ターゲット室から照射サンプルを回収し、Ge 検出器を用いて崩壊ガンマ線の測定を行った。

解析では、Np-238 からの 984keV の崩壊ガンマ線ピークを用いて反応率（誘導放射能）を導出した。Np-238 の半減期には 2.117 ± 0.002 日⁽¹⁰⁾、984keV の崩壊ガンマ線の放出率には $25.19 \pm 0.10\%$ ⁽¹¹⁾ を用いた。Np サンプル位置での金箔の反応率は、Np 照射実験に先立って行った金箔のみの実験の結果を元に、直径 3 mm の 4 枚の金箔の平均反応率に対する直径 20 mm の金箔の反応率の比を求め、それぞれの中性子場で照射した直径 3mm の 4 枚の金箔の平均反応率に掛けることで、Np サンプル位置での金箔の反応率を導出した。図 3-11 及び図 3-12 に実験から得られた Np サンプル位置での原子核数当たりの金箔の反応率及び Np-237 の反応率の結果を示す。系統誤差としては、標的核及び生成核の原子核数決定に係るアルファ線検出器、ガンマ線検出器の検出効率の誤差、崩壊ガンマ線放出率の誤差、重量測定の誤差を考慮した。それぞれの反応率は、誤差 2.0%以内の精度で得られた。また、金の自己吸収・多重散乱補正係数は、各実験条件でそれぞれ、1.199、1.236、1.324 であった。本解析では、照射中に TOF 法によって得られた中性子スペクトルと核データライブラリ JENDL-4.0 の評価値から Np-237 と金箔の捕獲反応率を求め、そこから中性子捕獲反応率比を算出した。

表 3-3 に、実験及び JENDL-4.0 から得られた計算値と実験値の中性子捕獲反応率比とその C/E 値を示す。C/E 値は B-850ppm の場合のみ、誤差 3%の範囲内で 1.00 と一致し、JENDL-4.0 の値を支持する結果となった。B-0 ppm、2740 ppm の場合は、それぞれ 6%、

11% JENDL-4.0 の値が過大評価であるという実験結果を得た。

また、図 3-11 を見れば分かるように、熱外中性子領域では中性子スペクトルの違いがほとんど見られないことから、放射化量の差分を取ることによって、熱中性子捕獲反応の実効断面積を算出できる可能性もまた示唆された。

③ 感度解析

KURRI-LINAC で実施された Np-237 捕獲率/Au-197 捕獲率比の感度解析を実施した。感度係数は直接法を用いて次式を用いて計算した。

$$S = \frac{dR}{R} \bigg/ \frac{d\sigma}{\sigma}, \quad R = \frac{\int dE \sigma_c^{Np237} \phi}{\int dE \sigma_c^{Au197} \phi} \quad (\text{数式 3-5})$$

ここで、 R は対象とする核特性であり、また σ は無限希釈断面積である。感度係数計算に必要となる中性子束はモンテカルロ計算コード PHITS2⁽¹²⁾ 及び JENDL-4.0 を使用し計算した。更に、比較として KUCA で実験が行われた場合に得られる感度係数も計算した。KUCA 体系は中性子スペクトルが軟らかい炉心 (B38p36EU5 炉心) とスペクトルの硬い炉心 (B18p60EUEU5 炉心) を対象とし、試料を封入した容器を炉心中央に設置することを想定した。中性子束はモンテカルロ計算コード MVP2.0⁽¹³⁾ と JENDL-4.0 を使用し臨界計算より得た。ただし、KUCA の感度係数は断面積変化による成分のみを計算した。得られた Np-237 捕獲/Au-197 捕獲率比に対する Np-237 中性子捕獲断面積の感度係数を図 3-15 に示す。今回の中性子スペクトルでは共鳴領域では第一共鳴及び第二共鳴が大きな感度を持つことが分かった。更に KURRI-LINAC での実験を対象とした感度係数では、減速材中のホウ素濃度が増加するとともに、Np-237 中性子捕獲に対する感度も高エネルギー側にシフトしていることがわかる。即ち、臨界実験と同様に中性子スペクトルを変化させることで、感度係数の異なる実験が可能であることを示した。また、KURRI-LINAC での実験における 850ppm と 2470ppm の感度係数は、KUCA 実験における 2つの感度係数の間に入っている。これは、図 3-16 に示すように、850ppm 及び 2470ppm の中性子スペクトルが、B38p36EU5 炉心と B18p60EUEU5 炉心の間となるためである。以上の結果より、中性子捕獲断面積を対象とした KURRI-LINAC での照射実験は通常の臨界集合体を用いた照射実験を補完することが可能であることが分かった。

(3) 可変中性子スペクトル場を用いた核分裂反応率比測定

① 核分裂検出器の整備と性能試験

MA の核分裂反応率比を測定するための背中合わせ型電離箱 (BTB チェンバー) を製作し、その性能試験を行った。中性子照射時の U-235 箔からは核分裂片による事象の波高スペクトルを観測することができ、中性子非照射場における Cm-248 の自発核分裂事象に対しても同様なスペクトルを得られたことから、製作した BTB チェンバーが核分裂片をアルファ線又はノイズと区別して測定できる性能を有することを確認した。また、京大炉ライナックの測定では RF ノイズの除去が重要な課題であることを明らかにした。

② Np-237 に対する核分裂反応率比測定

平成 26 年度は、京大炉ライナックのパルス中性子源において、BTB チェンバーを用いて、Np-237 の U-235 に対する核分裂反応率比測定を行った。Np-237 と標準試料である U-235 の照射実験において、平成 25 年度事業で課題として抽出した RF ノイズを除去することに成功し、U-235 と Np-237 の核分裂事象に対する TOF スペクトル及び核分裂反応率比を取得した。U-235 及び Np-237 に対する TOF スペクトル（横軸を中性子エネルギーに変換、縦軸をレサジー 0.1 当たりの計数となるようにバンチングしたもの）を図 3-17 に、各エネルギービンの平均核分裂断面積を JENDL-4.0 の評価値に基づいて導出したものを図 3-18 に示す。U-235 に対する TOF スペクトルは U-235 の核分裂断面積を再現するものとなったが、Np-237 に対する TOF スペクトル中には不純物の Pu-239 と思われる共鳴構造が観測された。特にサンプル中に Pu-239 が含まれる場合、0.001%程度の微量な不純物であっても高精度に定量しなければ系統誤差の要因になり得ることが分かった。

平成 27 年度は、平成 26 年度に得られた実験データ^{(10), (14)}を用いて Np-237 サンプル中に含まれる Pu-239 の量を約 1ppm と定量した。この結果に基づき、過去に KUCA で行われた Np-237 核分裂比測定実験の再解析を行った。この実験では、図 3-19 に示すような 5 種類の可変中性子スペクトル場において BTB チェンバーに封入された U-235 に対する Np-237 の核分裂反応率比が測定された。本実験に基づき MVP2.0 と JENDL-4.0 を用いて表 3-5 のように核分裂反応率比の C/E 値を求めた。その結果、Pu-239 を考慮した場合、C/E 値のバイアスは約 0.5%から 3%となり、約 3%の精度で実験値は評価値と良い一致を示した。

③ Am-241 に対する核分裂反応率比測定

平成 27 年度は、京大炉ライナックのパルス中性子源において、BTB チェンバーを用いて、Am-241 の U-235 に対する核分裂反応率比測定を行った。U-235 及び Np-237 に対する TOF スペクトル（横軸を中性子エネルギーに変換、縦軸をレサジー 0.1 当たりの計数となるようにバンチングしたもの）を図 3-20 に、各エネルギービンの平均核分裂断面積を JENDL-4.0 の評価値に基づいて導出したものを図 3-21 に示す。Am-241 については不純物核種による有意な共鳴構造は観測されなかったため、本サンプルが KUCA での核分裂反応率比測定に供しても問題ない高純度のサンプルであることを確認することができた。

④ Am-243 に対する核分裂反応率比測定

平成 28 年度は、京大炉ライナックのパルス中性子源において、BTB チェンバーを用いて、Am-243 の U-235 に対する核分裂反応率比測定を行った。U-235 及び Am-243 に対する TOF スペクトル（横軸を中性子エネルギーに変換、縦軸をレサジー 0.1 当たりの計数となるようにバンチングしたもの）を図 3-22 に、各エネルギービンの平均核分裂断面積を JENDL-4.0 の評価値に基づいて導出したものを図 3-23 に示す。TOF スペクトル中には Am-243 の 1.36eV 等の主要な共鳴が観測されたが、0.3eV 付近に Pu-239 起因と思われる共鳴もまた観測されている。Am-243 はアルファ崩壊とそれに引き続き起こるベータ崩壊によって Pu-239 が生成・蓄積されるため、Pu-239 の混入は避けることはできない。そこで、Pu-239 含有量の異なる Am-243 サンプルの測定も比較のために行った。Pu-239 含

有率の異なる二つの Am-243 サンプル(1), (2) に対して得られた TOF スペクトルを Am-243 サンプル量と測定時間で規格化した TOF スペクトルを図 3-24 に示す。1eV 以下の領域と 10eV、70eV 近傍で差異が見られる。規格化した TOF スペクトルの差分を図 3-25 に示す。一方、Pu-239 の JENDL-4.0 の評価値を図 3-26 に示す。図 3-25 の共鳴構造が図 3-26 と良く一致していることから、差分を Pu-239 に対する正味の TOF スペクトルとみなして、Am-243 サンプル(2) から Pu-239 の 0.3eV 共鳴がなくなるように規格化して差し引くことで、図 3-27 の通り Am-243 の正味の TOF スペクトルを得た。

⑤ 感度解析

KURRI-LINAC で実施された Am-243 核分裂率/U-235 核分裂率比の感度解析を実施した。感度解析は Np-237 捕獲率/Au-197 捕獲率比と同様の手法を用いて実施した。

$$S = \frac{dR}{R} \bigg/ \frac{d\sigma}{\sigma}, \quad R = \frac{\int dE \sigma_f^{Am243} \phi}{\int dE \sigma_f^{U235} \phi}$$

(数式 3-6)

ここで、 R は対象とする核特性であり、また σ は無限希釈断面積である。に感度係数計算に必要となる中性子束はモンテカルロ計算コード PHITS2 及び JENDL-4.0 を使用し計算した。更に、比較として KUCA で実験が行われた場合に得られる感度係数も計算した。KUCA 体系は中性子スペクトルが軟らかい炉心 (B38p36EU5 炉心) とスペクトルの硬い炉心 (B18p60EUEU5 炉心) を対象とし、試料を封入した BTB 核分裂計数管を炉心中央に設置することを想定した。ただし、KUCA の感度係数は断面積変化による成分のみを計算した。得られた Am-243 核分裂率/U-235 核分裂率比に対する Am-243 核分裂断面積の感度係数を図 3-28 に示す。図より今回の実験において、Am-243 核分裂率/U-235 核分裂率比において Am-243 核分裂断面積の高エネルギー側で共鳴よりも大きな感度を有することが分かった。また、大きな感度を持つ共鳴は第三共鳴であり、その他の共鳴の感度は第三共鳴の感度よりも 3 倍以上小さいことが分かった。感度係数計算のエネルギー境界が異なるため KUCA と直接比較することは困難であるが KUCA 実験でも第三共鳴が最も大きな感度を有することが分かった。一方で、高エネルギー領域では KUCA 体系の方が大きな感度となることが分かった。これは、今回の KURRI-LINAC での実験と比較すると高エネルギー中性子束は KUCA の方が大きいためである。以上の結果より、Am-243 核分裂率/U-235 核分裂率比測定実験において、感度の大きなエネルギー領域及び共鳴を特定することができた。

(4) まとめ

京大炉ライナックにおいて可変中性子場を構築し、スペクトルの硬さが異なる中性子場で放射化実験を行うことにより中性子捕獲反応率比を測定し、MA 核データの精度検証を行った。従来の放射化法では照射場の中性子スペクトル評価が大きな系統誤差要因となっていたが、本事業では TOF 法により照射場の中性子スペクトルを直接測定する方法を取り入れたことにより、当該誤差要因を低減することができた。その結果、硬さの異

なる3種類の可変中性子スペクトル場での照射によって、Np-237の熱中性子捕獲断面積の評価値の妥当性の検証を約3%の感度で行うことができた。感度解析を行ったところ、最も柔らかい中性子スペクトル場では熱中性子断面積に高い感度を有し、最も硬い中性子スペクトル場では0.49eVの第一共鳴に高い感度を有する可変中性子場であることが分かった。本実験値に対するJENDL-4.0の評価値が最も柔らかい中性子場で約6%、最も硬い中性子場で約11%過大であるという結果になったことから、中性子捕獲断面積については評価値全体が約6%過大であり、第一共鳴の捕獲断面積については更に過大に評価している可能性が示唆された。これらのことから、可変中性子スペクトル場照射による中性子捕獲断面積の精度検証手法は、TOF法を組み合わせることで中性子スペクトル場に起因する系統誤差要因を排除できる点で有効な手段であることが分かった。また、本事業で構築した可変中性子場は熱外中性子成分をほとんど変化させることがないため、差分を取ることで熱中性子捕獲反応の実効断面積を算出できる可能性が示唆された。

MA核種の核分裂断面積の検証のために、京大炉の臨界集合体(KUCA)を用いた可変中性子スペクトル場照射による核分裂反応率比測定を実施する予定であったが、研究用原子炉の新規制基準対応による運転再開の遅れのため、事業期間中にKUCAを用いた実験を行うことが不可能になった。そこで、京大炉ライナックを代替中性子源として活用し、Np-237、Am-241、Am-243を対象として標準核種であるU-235に対する核分裂反応率比測定を実施した。Np-237については、京大炉ライナックでのTOF測定によってサンプル中に含まれるPu-239を定量し、同サンプルを使用した過去のKUCAでの実験データを再解析した。過去の報告では熱中性子場ではJENDL-4.0のC/E値が 0.942 ± 0.031 と過小であったが、不純物補正を行ったことによりC/E値が 0.981 ± 0.032 に上方修正され、Np-237の熱中性子核分裂断面積の評価値を3%以内の精度で支持する結果を得た。Am-241, 243についても不純物のPu-239の影響の有無を確認した。Am-243については、異なる二種類のサンプルを用いることでPu-239の影響を除去する手法についても検討を行った。KUCAを用いた核分裂反応率比測定を行うためにはPu-239の寄与を適切に補正することは非常に重要であり、本事業で適用した手法がサンプル中の不純物による影響補正に有効であることを示した。

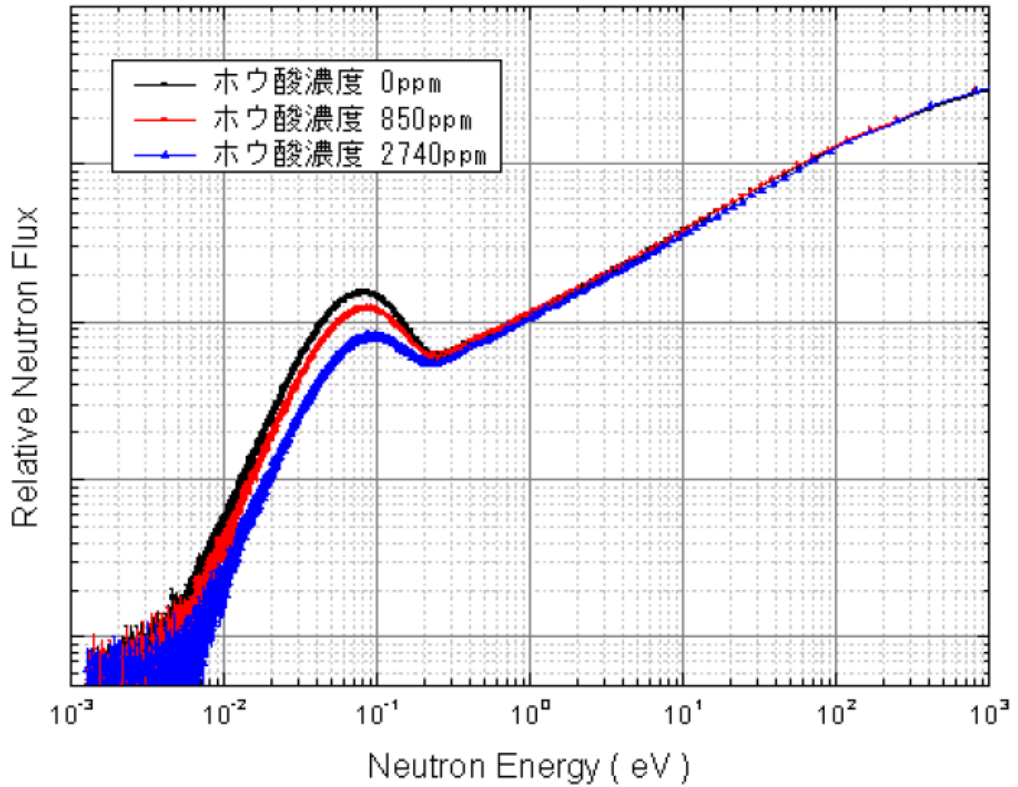


図 3-11 TOF 法によって測定した可変中性子照射場の中性子スペクトル

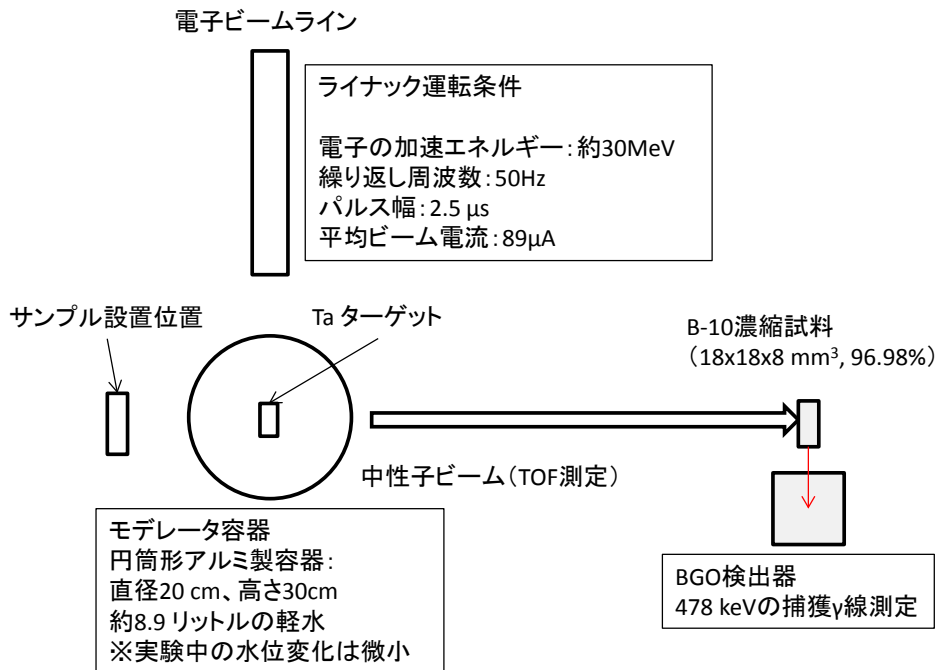


図 3-12 実験条件の概要

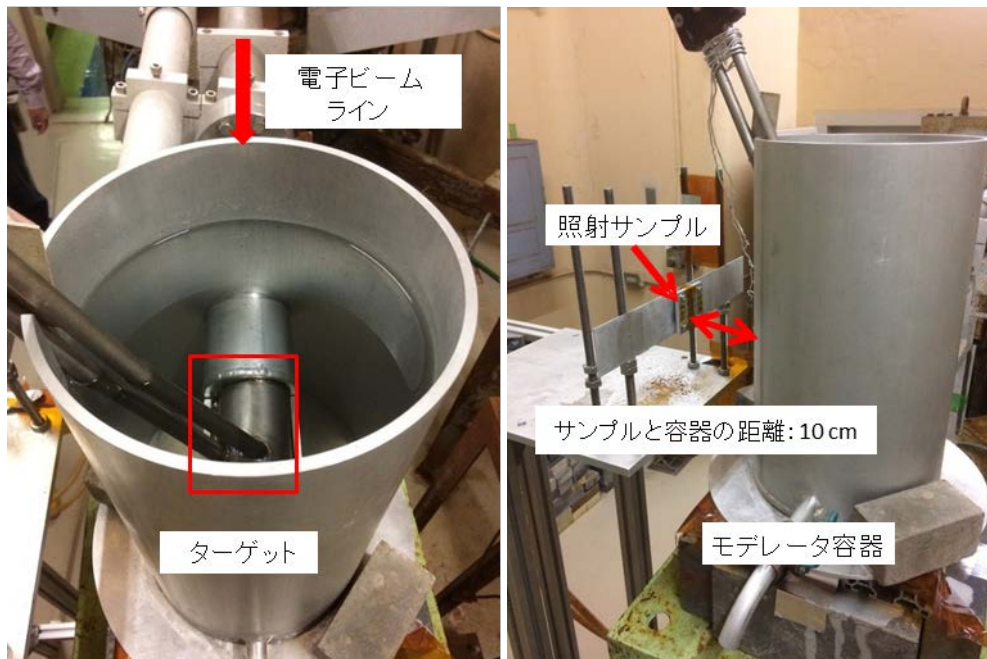


図 3-13 モデレータ容器及びサンプルホルダーの外観写真

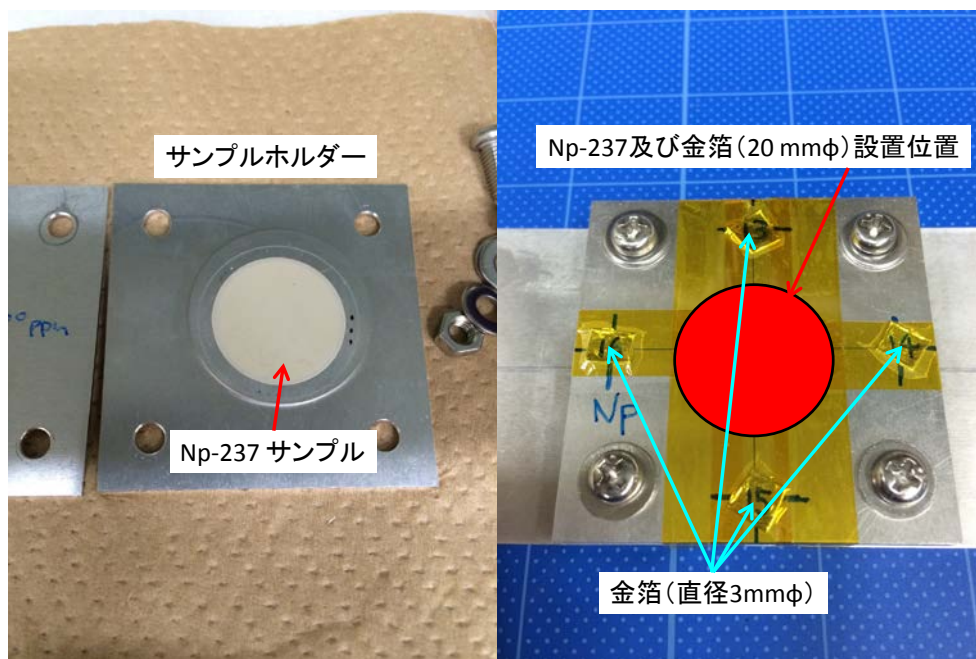


図 3-14 Np-237 サンプルの外観写真

表 3-2 Np サンプル位置での Au-197 (n, γ) 反応率の測定結果

ホウ酸濃度[ppm]	反応率 [1/s/atom]	誤差 [1/s/atom]	相対誤差 [%]
0	2.20E-14	4E-16	1.9
850	1.78E-14	4E-16	2.0
2740	1.42E-14	3E-16	1.9

表 3-3 Np-237(n, γ)反応率の測定結果

ホウ酸濃度 [ppm]	反応率 [/s/atom]	誤差 [/s/atom]	相対誤差 [%]
0	3.16E-14	4E-16	1.11
850	2.56E-14	2E-16	0.96
2740	1.74E-14	1E-16	0.75

表 3-4 実験と JENDL-4.0 より得られた捕獲反応率比と C/E 値

C(TOF+JENDL)	B-0ppm	誤差	B-850ppm	誤差	B-2740ppm	誤差
Np-RR	642075	4597	478070	3687	358680	3015
Au-RR	507535	2983	414236	2565	348276	2190
Np/Au	1.265	0.01	1.154	0.01	1.030	0.01
E(実験値)						
Np-RR	3.16E-14	4E-16	2.56E-14	2E-16	1.74E-14	1E-16
Au-RR	2.20E-14	4E-16	1.78E-14	4E-16	1.42E-14	3E-16
Np/Au	1.196	0.03	1.162	0.03	0.926	0.03
C/E	1.06	0.03	0.99	0.03	1.11	0.03

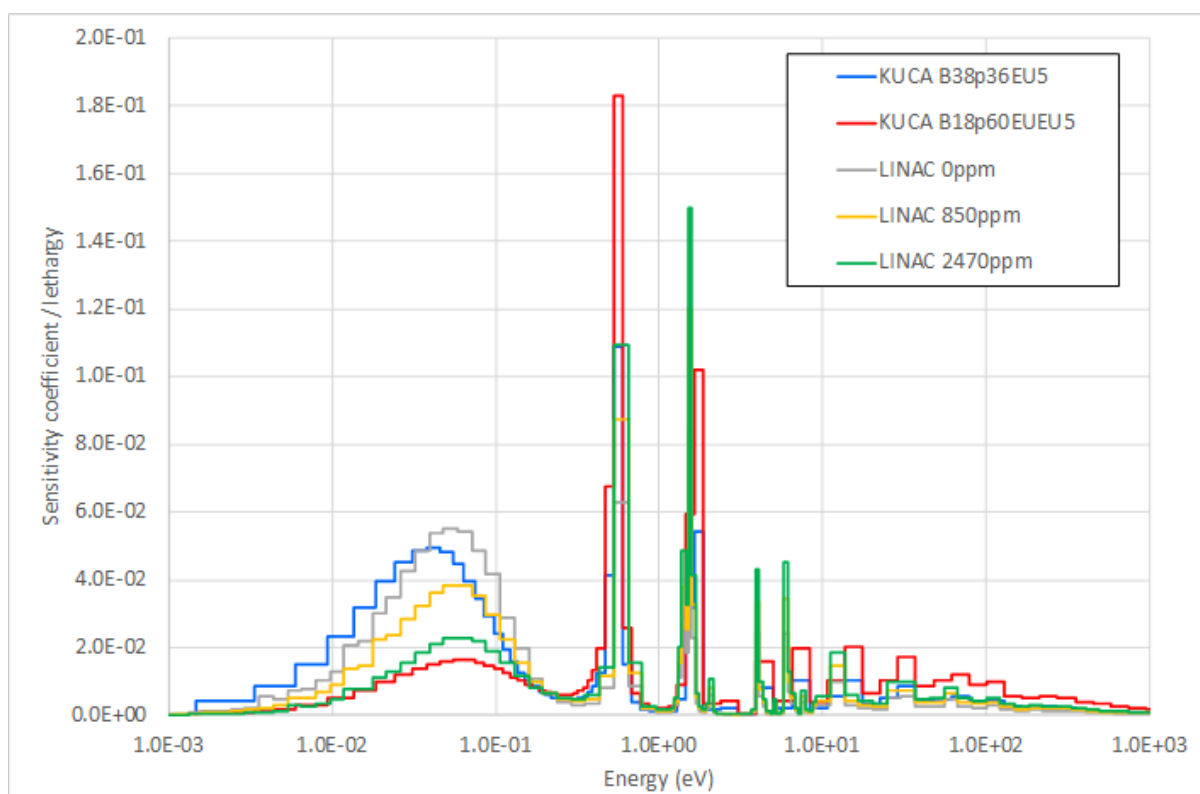


図 3-15 Np-237 捕獲率/Au-197 捕獲率比に対する Np-237 中性子捕獲断面積の感度係数

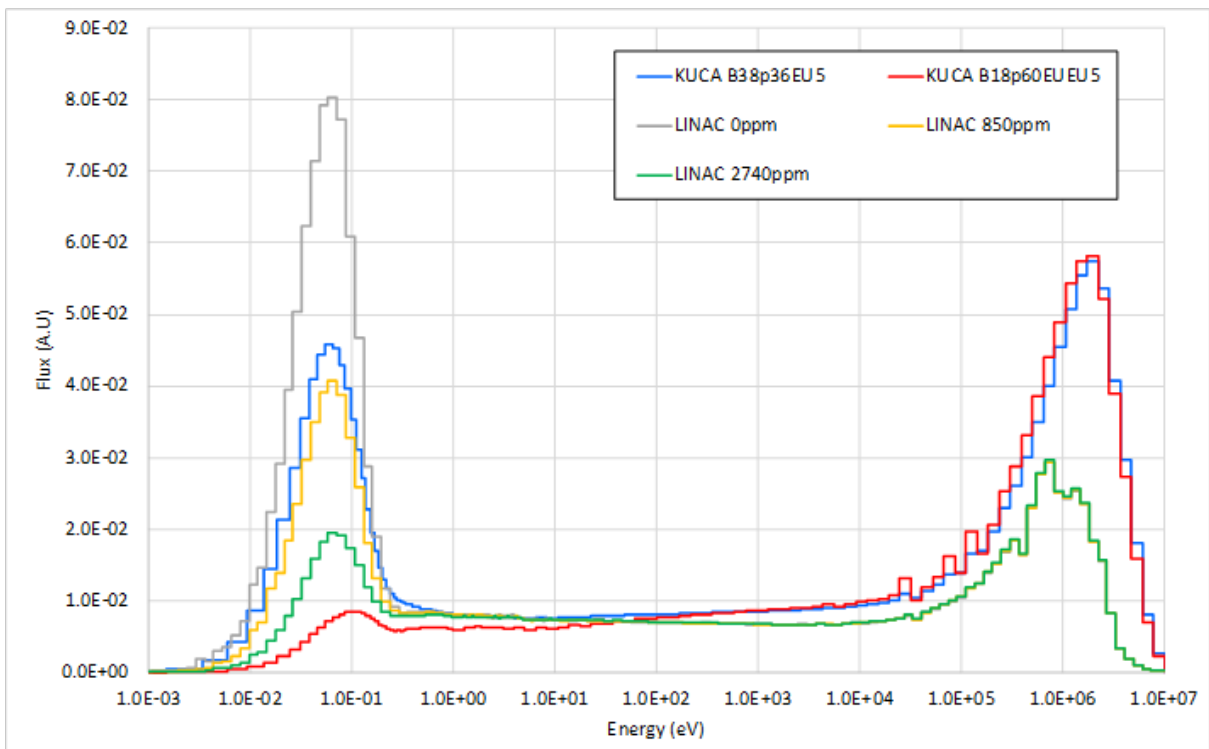


図 3-16 各体系の中性子スペクトル

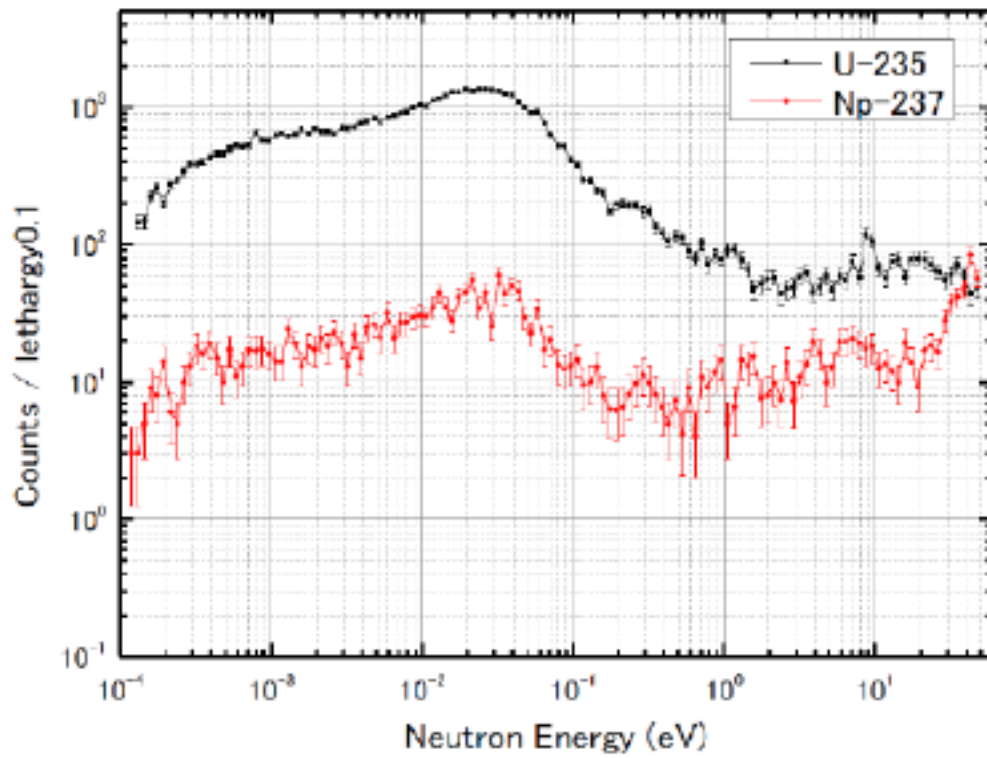


図 3-17 U-235 及び Np-237 に対する TOF スペクトル

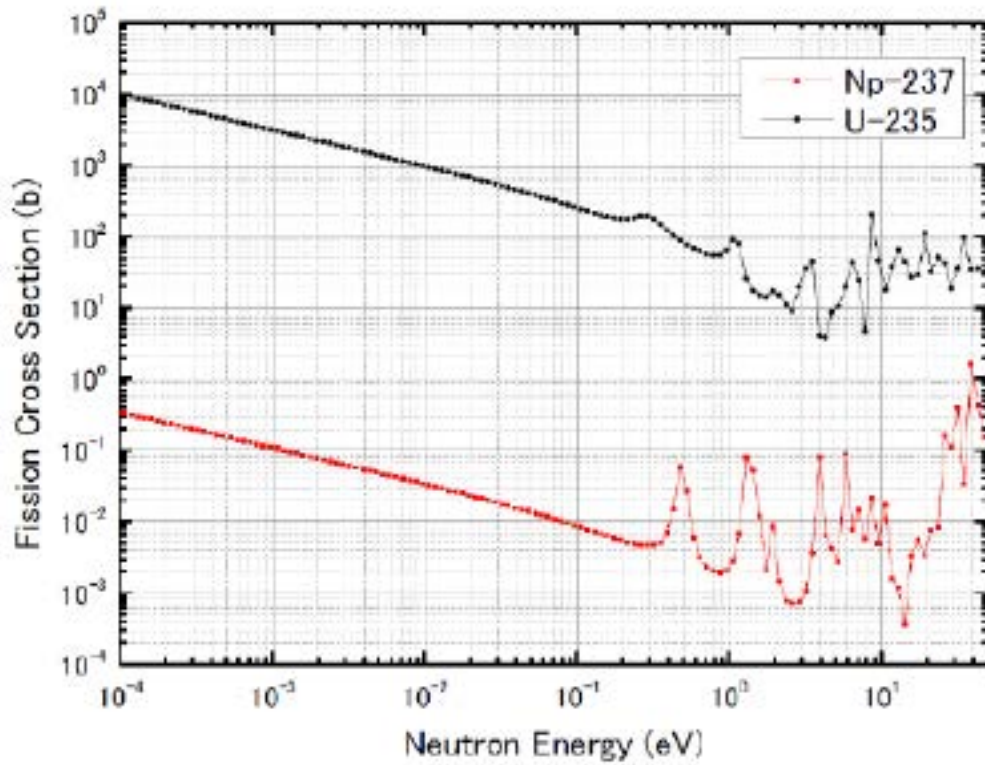


図 3-18 U-235 と Np-237 の中性子核分裂断面積の評価値 (JENDL-4.0)

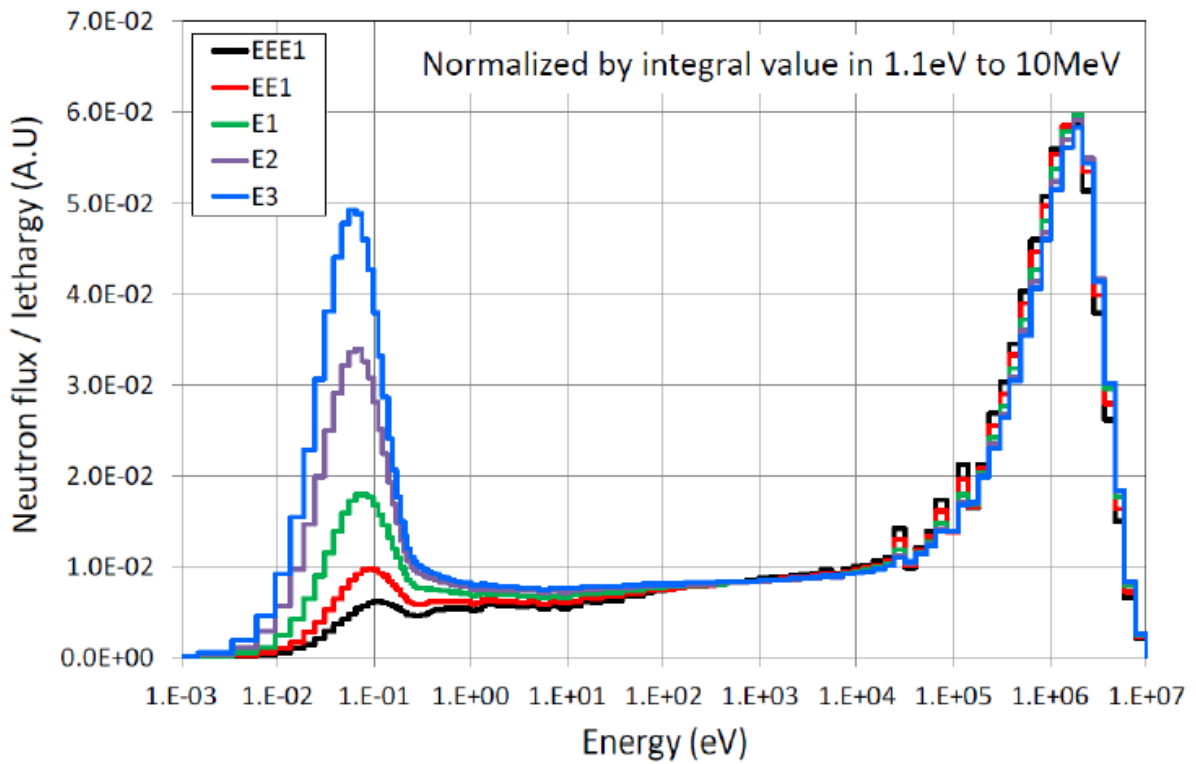


図 3-19 過去に行った KUCA 実験における可変中性子スペクトル

表 3-5 過去に行った KUCA 実験結果に対して、サンプル中の不純物を考慮した場合としない場合の C/E 値の比較

Core	C/E	
	JENDL-4.0	JENDL-4.0 with impurity
EEE1	0.975 ± 0.037	1.005 ± 0.038
EE1	0.961 ± 0.036	0.994 ± 0.037
E1	0.949 ± 0.034	0.984 ± 0.035
E2	0.938 ± 0.032	0.974 ± 0.033
E3	0.942 ± 0.031	0.981 ± 0.032

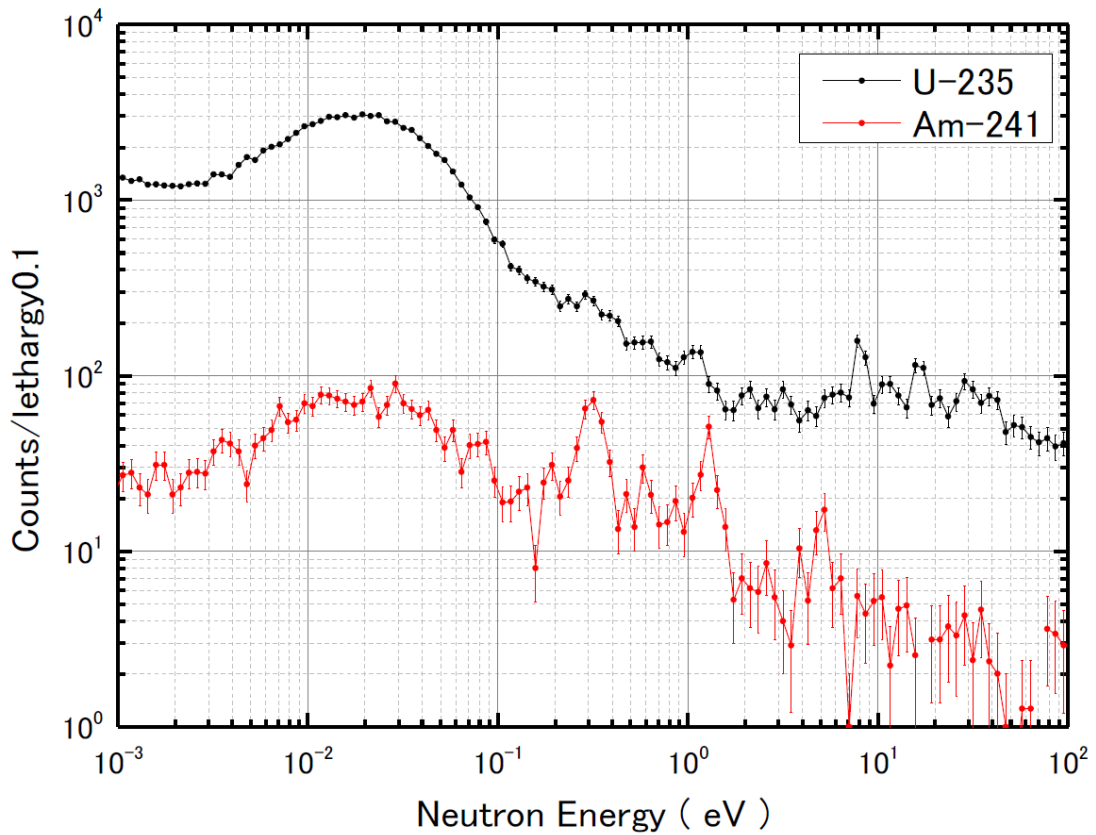


図 3-20 U-235 及び Am-241 に対する TOF スペクトル

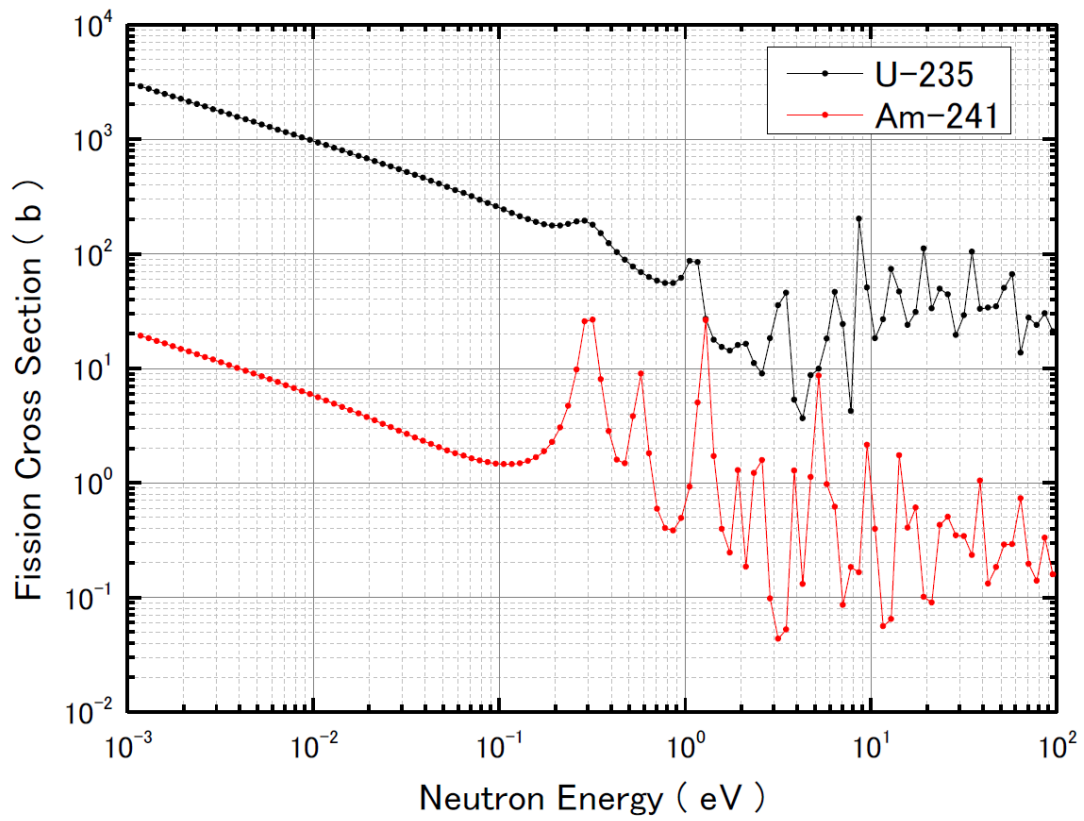


図 3-21 U-235 及び Am-241 の中性子核分裂断面積の評価値 (JENDL-4.0)

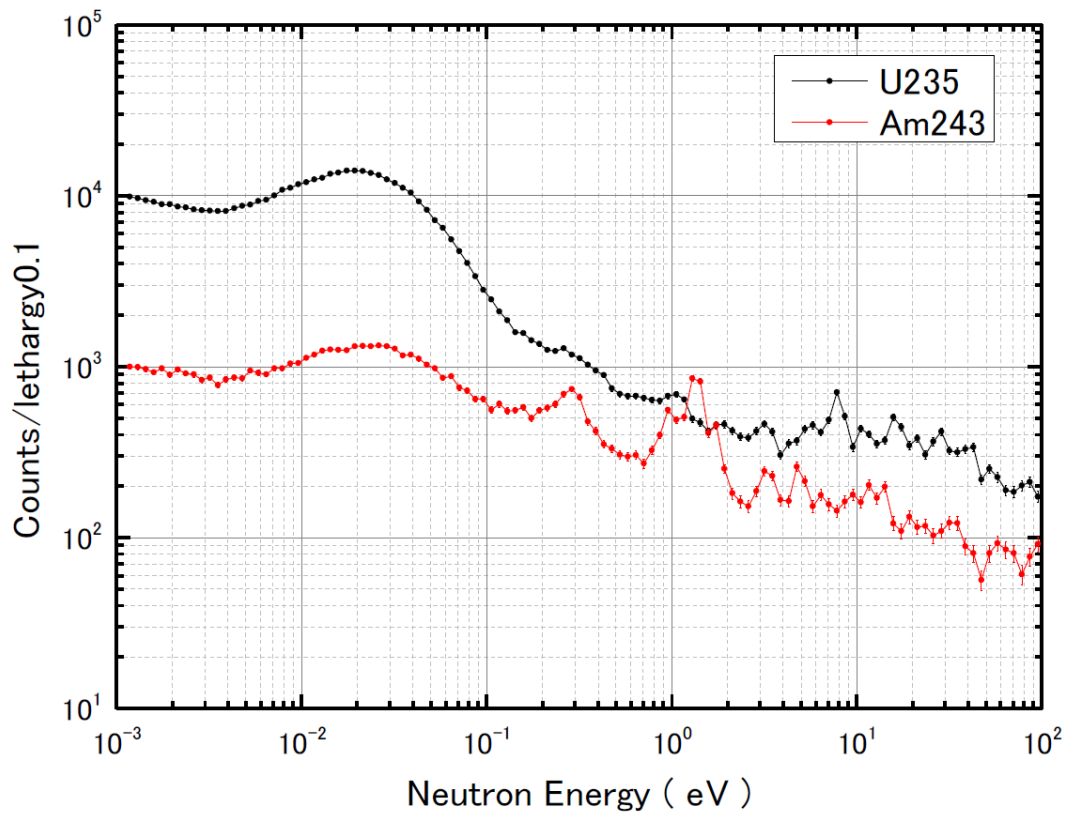


図 3-22 U-235 及び Am-243 に対する TOF スペクトル

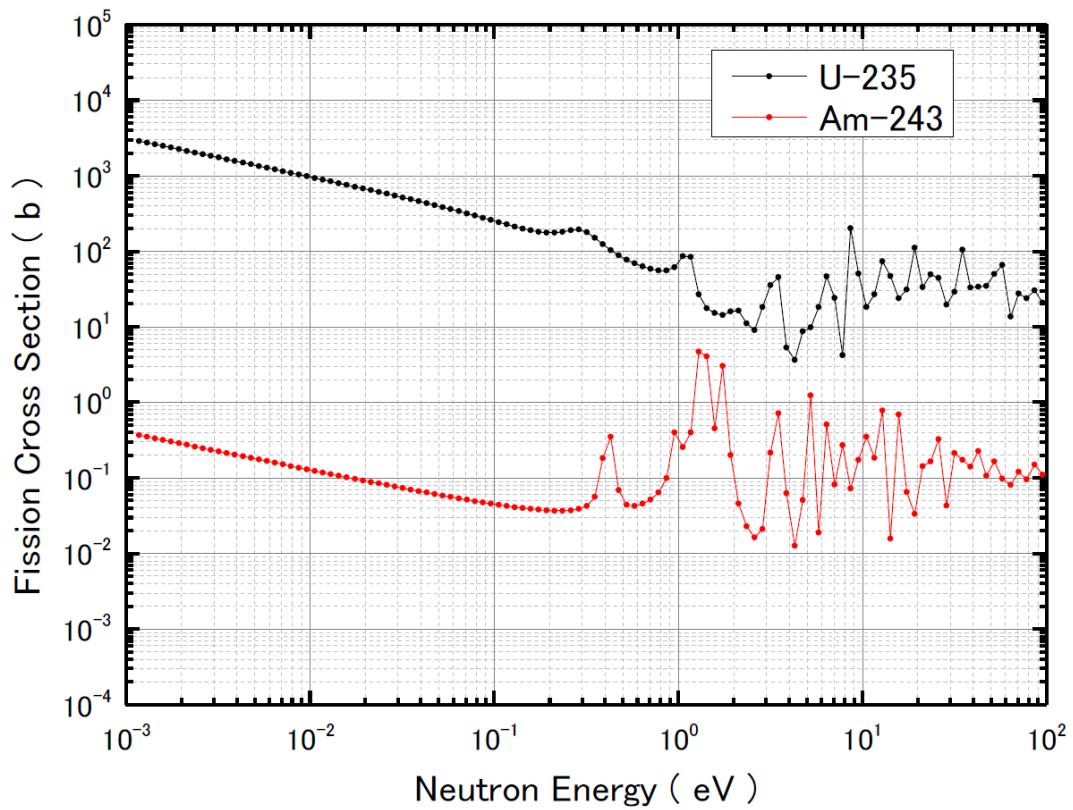


図 3-23 U-235 及び Am-243 の中性子核分裂断面積の評価値 (JENDL-4.0)

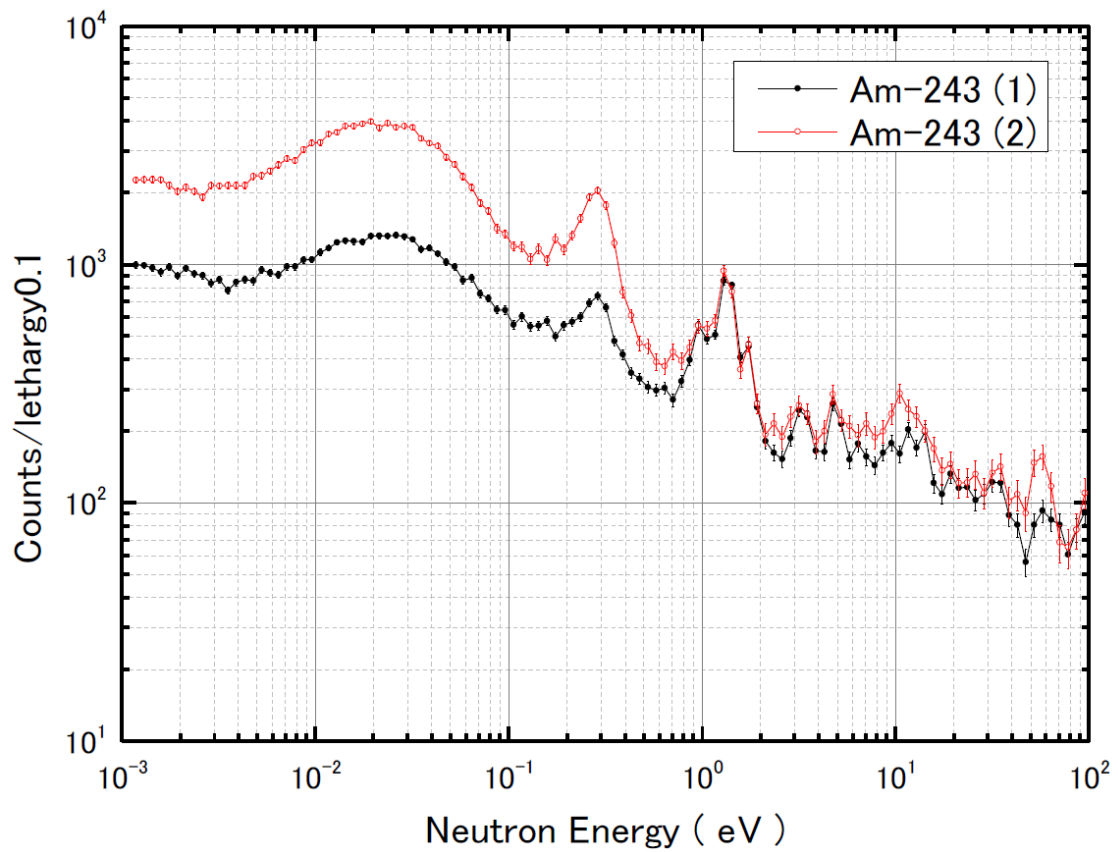


図 3-24 Pu-239 含有量の異なる二つの Am-243 サンプルの TOF の比較

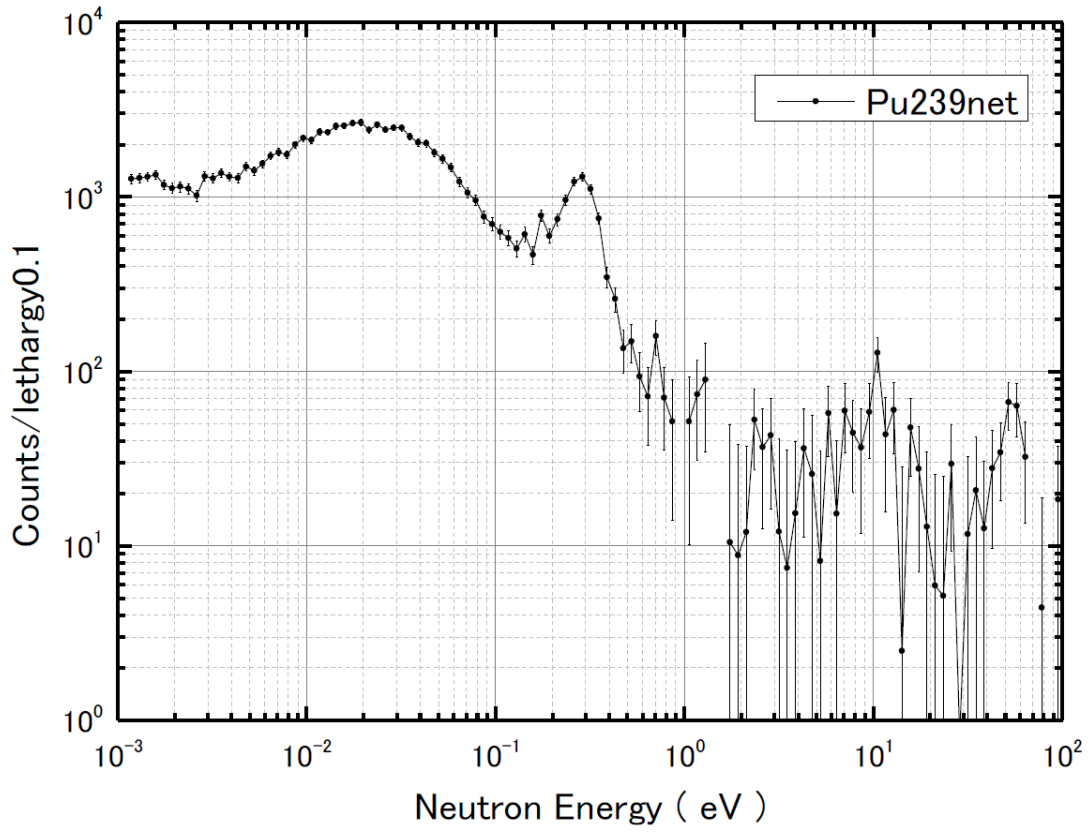


図 3-25 差分を取ることによって導出した Pu-239 の正味の TOF スペクトル

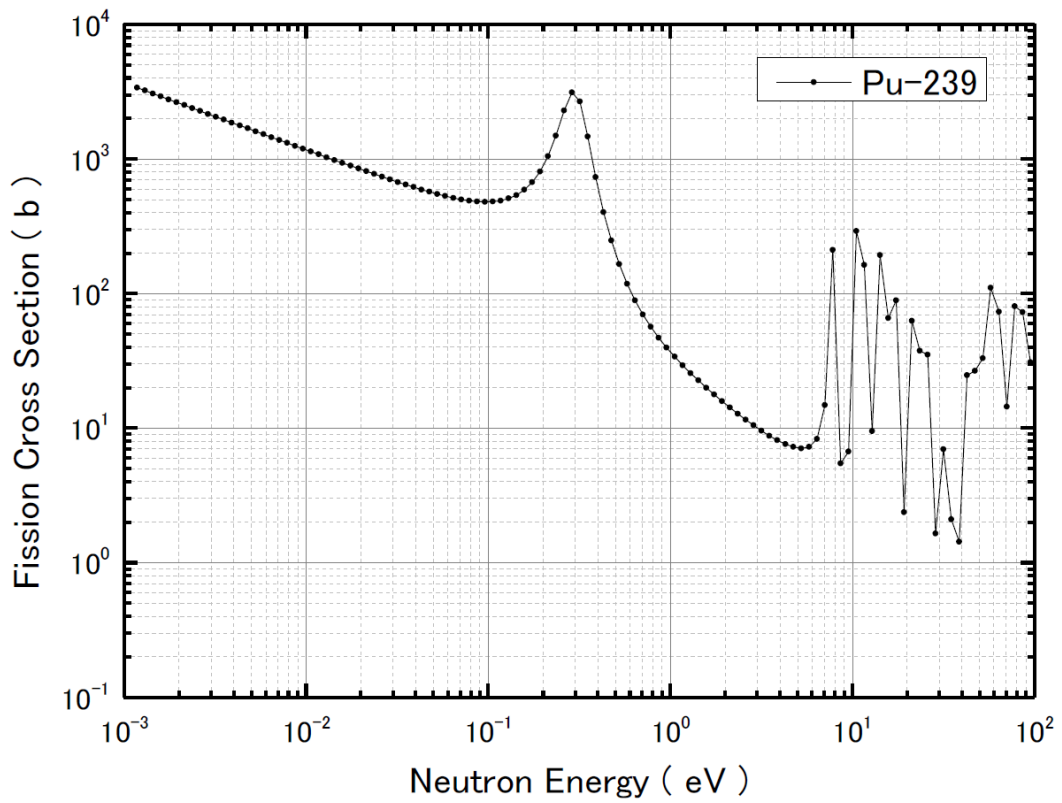


図 3-26 Pu-239 の中性子核分裂断面積の評価値 (JENDL-4.0)

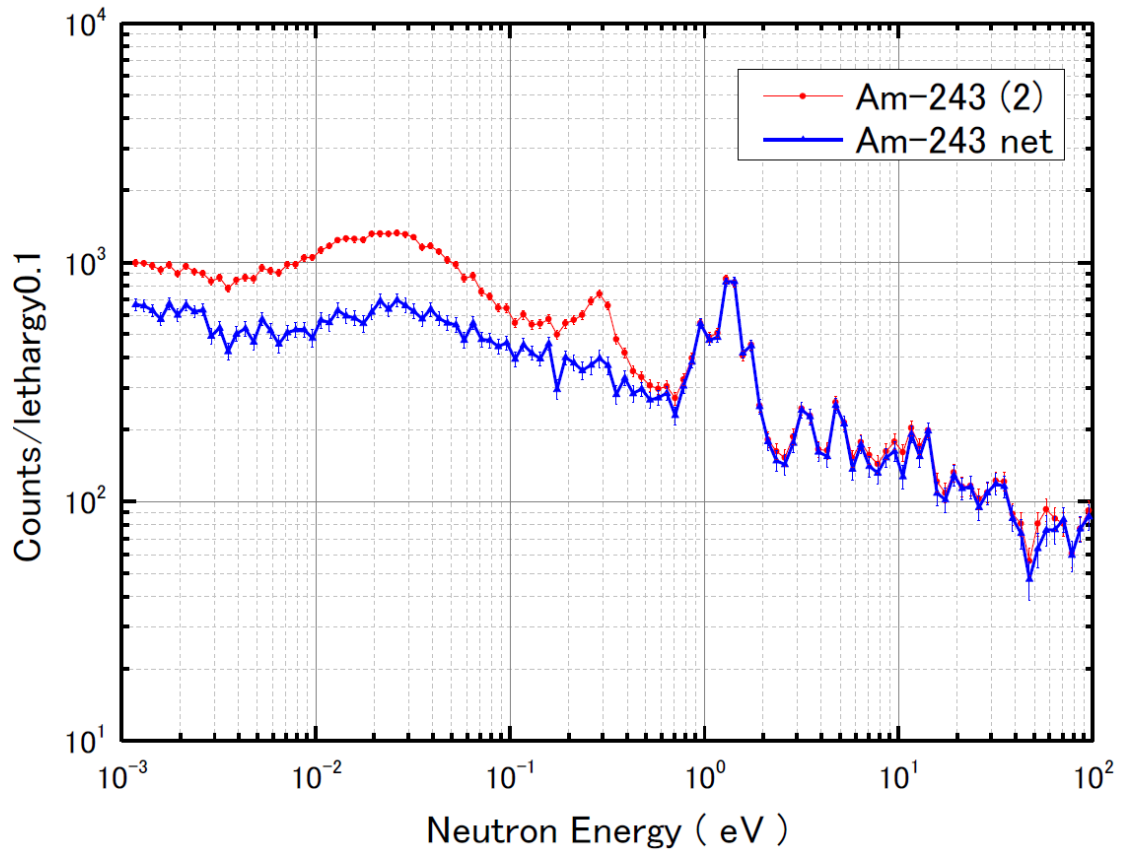


図 3-27 Am-243 サンプルの TOF から Pu-239 成分を除去した正味の TOF

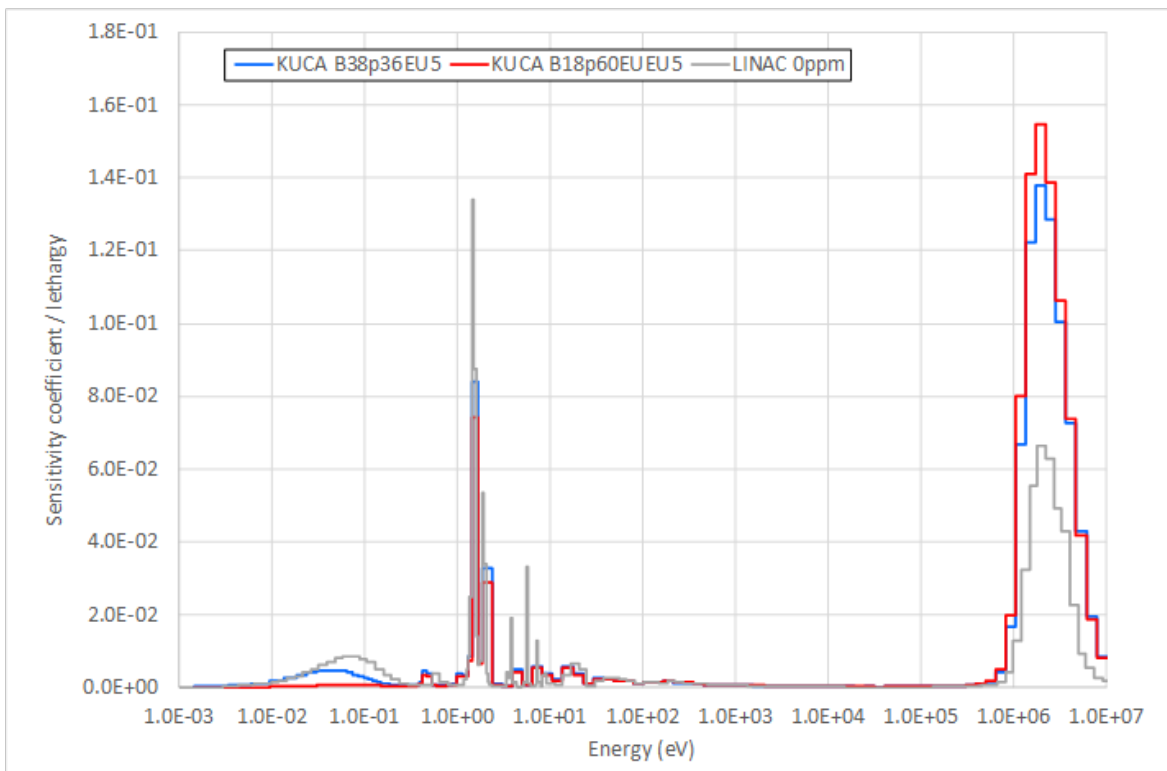


図 3-28 Am-243 核分裂率/U-235 核分裂率比に対する Am-243 核分裂断面積の感度係数

3. 2. TOF 測定に用いるサンプル量の高精度決定 (H25~H28)

3. 2. 1. 崩壊ガンマ線放出率の高精度決定

ガンマ線測定によって密封 RI 試料の絶対量を高精度に決定するためには、ガンマ線検出効率と崩壊ガンマ線放出率の高精度化が必要不可欠である。本事業で整備した合計 5 つの Am-241 及び Am-243 試料の放射能を決定するために、Am-241、Am-243 の崩壊ガンマ線放出率の高精度測定を実施した。また、Np-237 についても崩壊ガンマ線放出率の測定を行った。そして、Am-241 及び Am-243 試料の放射能測定を実施し、本事業で得られたガンマ線放出率を用いて Am 試料の放射能を 2%の精度で得ることができた。以下、Am-241, Am-243, Np-237 の崩壊ガンマ線放出率測定と Am 試料の放射能決定について述べる。

(1) ガンマ線放出率の高精度測定

アルファ線分光法とガンマ線分光法により Am-241, Am-243, Np-237 の崩壊ガンマ線放出率の測定を行った。はじめに、Am-243 及び Np-237 標準溶液 10 μ l をガラス製のシャーレに滴下し、赤外線ランプで蒸発乾固させて測定試料を作製した。作製した Am-243 及び Np-237 試料の放射能は、試料から放出されるアルファ線を Si 半導体検出器 (ORTEC BU-019-300-AS) で測定することで決定した。図 3-29 に Am-243 試料のアルファ線スペクトルを示す。Si 検出器の検出効率は、Am-241 標準アルファ線源を用いて決定した。アルファ線測定から Am-243 及び Np-237 試料の放射能を 0.6%の精度で得ることができた。Am-241 のガンマ線放出率の測定には、Am-241 標準アルファ線源を用いた。

Am 及び Np 試料から放出される崩壊ガンマ線は、試料から 20.0 cm の距離に設置された Ge 検出器 (ORTEC GLP-36360/13P4) で測定した。図 3-30 が Am-243 試料のガンマ線スペクトルを示している。Am-243 のガンマ線は 43.5 keV や 74.7 keV にかけて観測された。また、Am-243 の娘核 Np-239 のガンマ線が 100 keV から 334 keV に観測されている。得られたガンマ線スペクトルのピークをフィッティングし、ピーク面積を計算した。

Ge 検出器の検出効率は、標準ガンマ線源 (Co-60, Cs-137, Ba-133) の測定と、PHITS を用いたガンマ線のモンテカルロシミュレーションによって決定した。Co-60, Cs-137, Ba-133 ガンマ線源は AREVA 及び DAMRI によって製造され、その放射能はそれぞれ、 40.6 ± 0.3 , 37.7 ± 0.38 , 35.2 ± 0.24 kBq (1 σ) である。これらの線源は溶液をプラスチック板の上に滴下・乾固して作製されている。測定は、ピークの統計誤差が 0.3%以下となる様に十分時間をとった。また、線源の測定におけるデッドタイムは 0.04%以下と小さい。ピーク面積は同様にフィッティングによって決定した。ガンマ線のカスケード・サムによる影響は、PHITS を用いたシミュレーションで評価し、その量は 0.3%以下と小さなものである。ガンマ線の放出率は IAEA の標準データを用いた。得られた検出効率を図 3-31 に示す。検出効率は 32 keV から 1332 keV のエネルギー領域でおよそ 0.04%から 0.2%である。Ge 検出器の検出効率曲線は、PHITS を用いたモンテカルロ計算による内挿で決定した。PHITS の計算では、測定値を再現するように Ge 検出器のパラメータ (結晶直径:r、結晶厚さ:l、結晶前方の不感領域の厚さ:t1) を調整した。100 keV 以下の測定値を再現する様に結晶直径を変化させ、Co-60 の 1173 keV と 1332 keV のガンマ線の検出効率を再現する様に、Ge 結晶の厚さを調

整した。40 keV 以下の低エネルギーガンマ線や検出効率は Ge 結晶前方の不感領域の厚さに大きく依存するため、不感領域の厚さを調整した。最終的に、PHITS で計算した検出効率の不確かさは 60 keV から 300 keV の領域で 0.8%となった。この高精度に決定した検出効率を用いることで、Am-241, Am-243, Np-237, Np-239 の崩壊ガンマ線放出率を 1.3%以下の精度で決定することができた。表 3-6 から表 3-9 に得られたガンマ線放出率を示す。

(2) Am 試料の定量

崩壊ガンマ線測定による密封 Am 試料の定量には Ge 検出器(ORTEC GLP-36360/13P4)を用いた。Ge 検出器の計数率を低減するため、試料-検出器間距離を 2 m とした。図 3-32 及び図 3-33 に得られた Am-241 及び Am-243 試料のガンマ線スペクトルを示す。横軸は Ch 数、縦軸は計数率を示している。図 3-32 において、Am-241 から放出された 59.5 keV のガンマ線以外にも、99 keV や 125 keV 等の放出率の低いガンマ線によるピークも観測されている。また、線源の強度が強いため、630 ch 付近に 59.5 keV ガンマ線のサムピークが現れている。Am-241 試料の測定では、デッドタイムは 480 MBq, 950 MBq の試料でそれぞれ 2.9%及び 5.3%となった。Am-241 試料のガンマ線スペクトル上には、Am-241 試料に含まれる不純物によるガンマ線のピークは観測されなかった。

Am-243 試料の測定では、Am-243 のアルファ崩壊に伴う 43.5 keV, 74.7 keV ガンマ線の他に、Am-243 の娘核 Np-239 の崩壊によるガンマ線が観測されている。Np-239 の半減期は 2.36 日であり、親核の Am-243(半減期 7370 年)と放射平衡の状態にあるため、Am-243 と Np-239 の放射能は等しい。また、Np-239 が放出するガンマ線のエネルギーは親核の Am-243 よりも大きく、100 keV から 340 keV の領域に複数のガンマ線が観測されている。Am-243 試料の測定におけるデッドタイムは、60, 120, 240 MBq の試料においてそれぞれ 1.8%, 3.9%, 6.9%となった。Am-243 のガンマ線スペクトル中の不純物については、Am-241 の 59.5 keV ガンマ線が現れており、Am-241 が不純物として混入していることが分かる。その他の不純物はスペクトル中に明瞭に観測することは出来なかった。京大炉で Am-243 試料のアルファ線測定を行った結果から、Am-243 試料中には Cm-242 及び Cm-244 が不純物としてそれぞれ 0.009%, 0.240%含まれていることが判明している。しかし、Cm-242 と Cm-244 が放出するガンマ線は、44.1 keV や 42.8 keV であり、Am-243 が放出する 43.5 keV とエネルギーが重なっている上、放出率 0.09%以下と Am-243 の 43.5 keV ガンマ線(I=5.9%)と比べて圧倒的に小さい。Cm-242 と Cm-244 のエックス線についても、エネルギーが 17 keV と小さく、コンプトン成分と重なっているために、スペクトル上でピークとしては観測出来なかった。

放射能決定のため、Am-241 試料は 59.5 keV ガンマ線によるピークをフィッティングして正味のピーク面積を求めた。フィッティング関数として、ガウス関数とステップ関数を用いてフィッティングした。図 3-34 が Am-241 480 MBq 試料のスペクトルをフィッティングしたものである。また、Am-243 試料については、Am-243 の娘核である Np-239 が放出する 277.6 keV ガンマ線のピークをフィッティングした。図 3-35 に Am-243 60 MBq 試料のフィッティング結果を示す。

1 MBq の Co-60 及び Cs-137 標準ガンマ線源を用いて Ge 検出器の検出効率を測定した。

線源の放射能の精度は 1σ で 1.5% である。モンテカルロシミュレーションコード PHITS を用いて検出効率を 1.5% の精度で決定した。PHITS を用いたシミュレーションでは Ge 検出器や線源の体系を再現し、試料-検出器間の空気を考慮した。図 3-36 は測定値と PHITS を用いたシミュレーションを比較している。PHITS を用いたシミュレーションは測定値を良く再現している。

Am 試料中におけるガンマ線の自己遮蔽の寄与は PHITS によるシミュレーションで決定した。Am 試料は、酸化アメリシウム (AmO₂) に酸化イットリウム (Y₂O₃ 希釈剤が均一に混ざった状態であり、直径 10 mm、厚さ 0.5 mm の円盤状にプレスされ、厚さ 0.1 mm のアルミで密封されている Am-241 試料による 59.5 keV ガンマ線の自己遮蔽による減衰は 480 MBq と 950 MBq の試料でそれぞれ 18%、20% となった。また、Am-243 試料 277.6 keV については 60 MBq、120 MBq、240MBq の試料で 3.7%、4.1%、4.8% となった。試料の放射能が大きくなるほど Am 試料の量が大きくなるため、自己遮蔽の影響は増加している。

最終的に、フィッティングによって得られたピーク面積を、検出効率と測定時間及び本事業でこれまでに得られた Am-241 の 59.5 keV と Np-239 の 277.6 keV に対するガンマ線放出率で除することで試料の放射能を決定した。表 3-7 はガンマ線測定により得られた放射能値を示している。Am-241 及び Am-243 試料の放射能を 2% の精度で得ることができた。また、試料の公称放射能と比較して、最大で 30% の差異が存在することが明らかとなった。

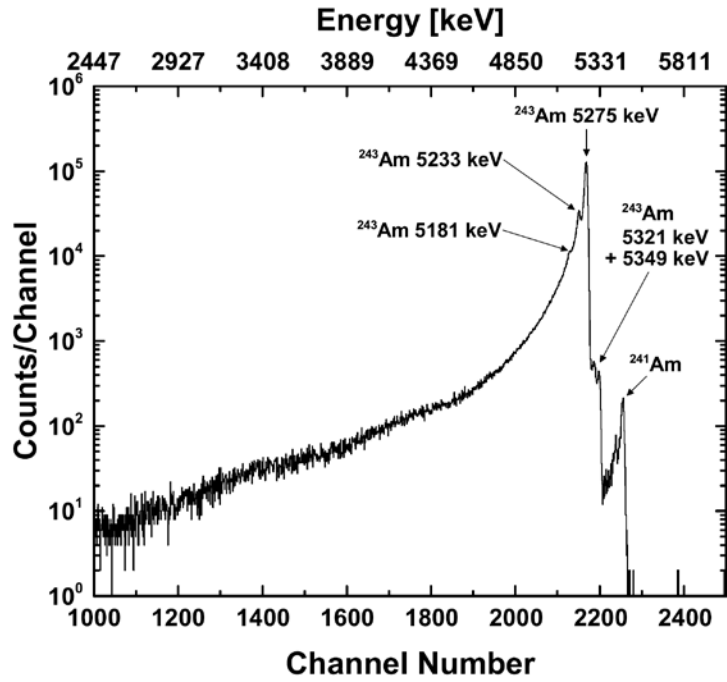


図 3-29 Am-243 試料のアルファ線スペクトル

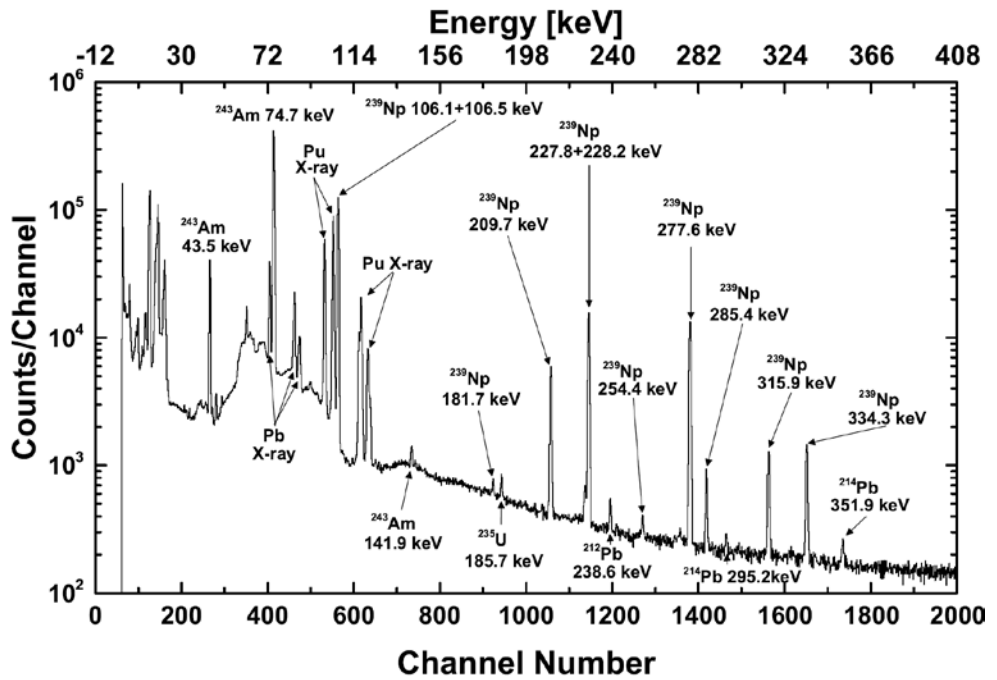


図 3-30 Am-243 試料のガンマ線スペクトル

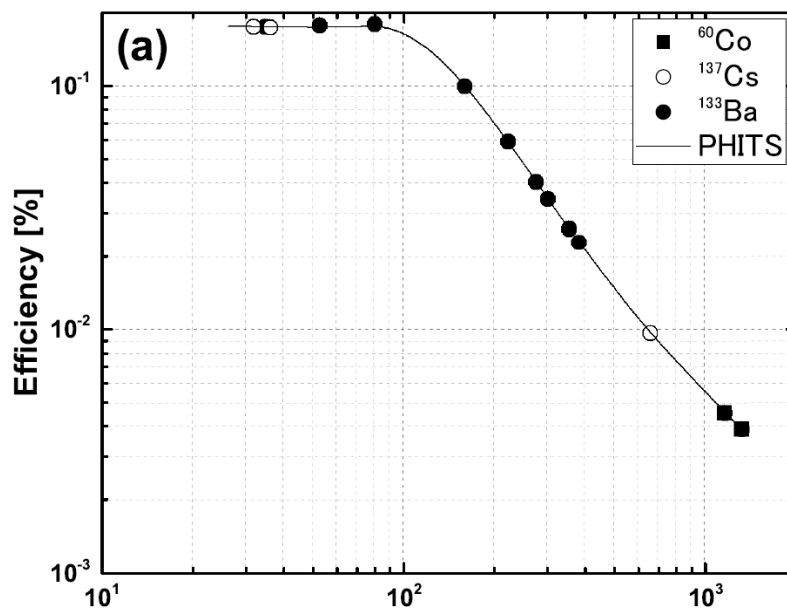


図 3-31 測定と PHITS によるシミュレーションで得られた Ge 検出器の検出効率

表 3-6 Am-241 のガンマ線放出率

E_{γ} [keV]	I_{γ} [%]
26.34	2.3 ± 0.1
59.54	35.64 ± 0.46

表 3-7 Am-243 のガンマ線放出率

E_{γ} [keV]	I_{γ} [%]
43.53	5.87 ± 0.09
74.66	67.72 ± 0.65

表 3-8 Np-237 のガンマ線放出率

E_{γ} [keV]	I_{γ} [%]
312.17	38.5 ± 0.5

表 3-9 Np-239 のガンマ線放出率

E_{γ} [keV]	I_{γ} [%]
106.12+106.47 ^{a)}	26.01 ± 0.26
209.75	3.31 ± 0.04
228.18	11.18 ± 0.12
277.60	14.34 ± 0.16
285.46	0.76 ± 0.02
315.88	1.60 ± 0.03
334.31	2.05 ± 0.04

^{a)} $I_{\gamma} = 0.05\%$ from ENSDF

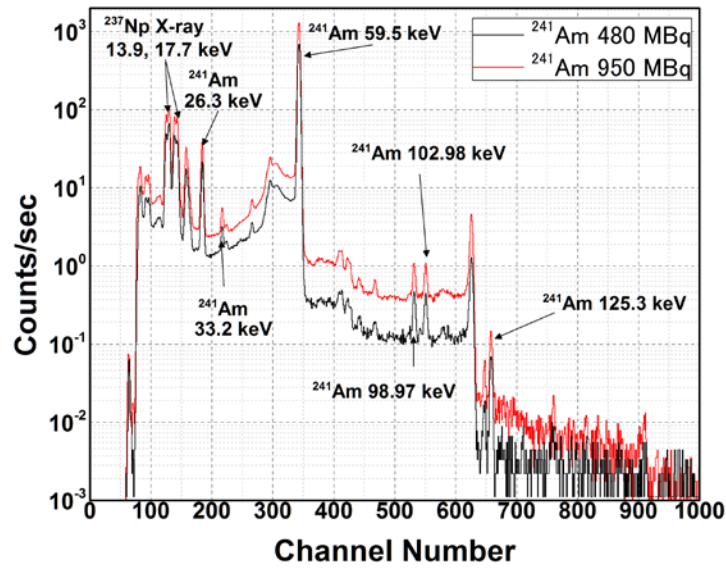


図 3-32 Am-241 試料(480, 950 MBq) のガンマ線スペクトル

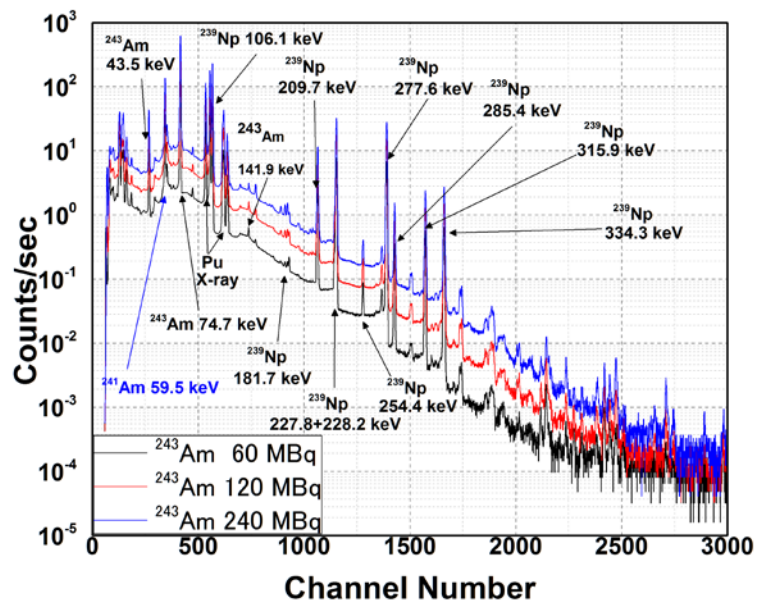


図 3-33 Am-243 試料 (60, 120, 240 MBq) のガンマ線スペクトル

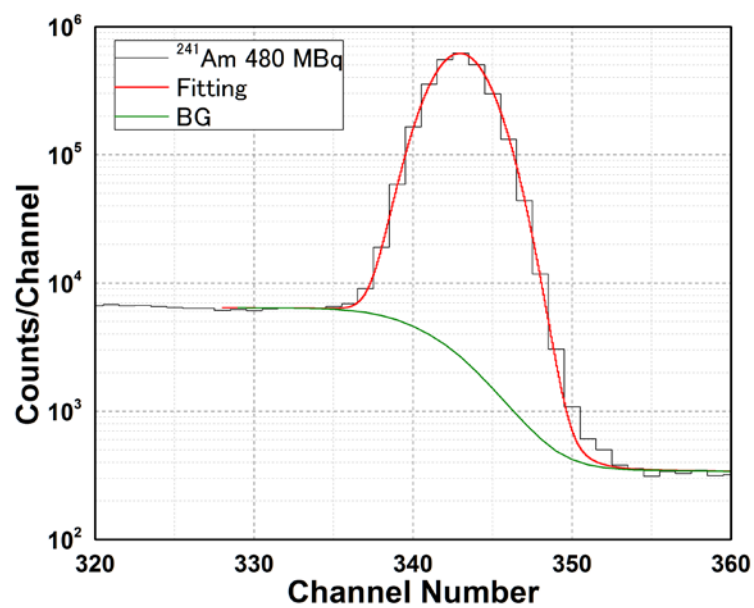


図 3-34 Am-241 試料(480 MBq) 59.5 keV ピークのフィッティング

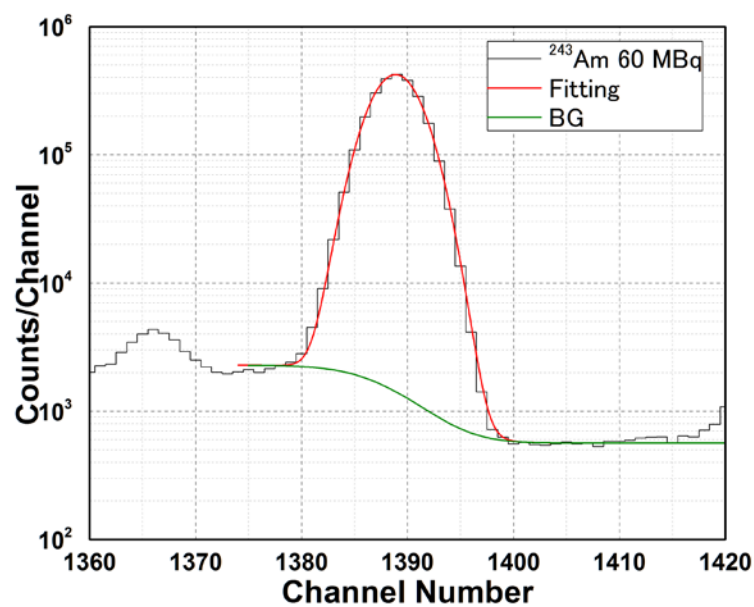


図 3-35 Am-243 試料 (60 MBq) 試料 277.6 keV ピークのフィッティング

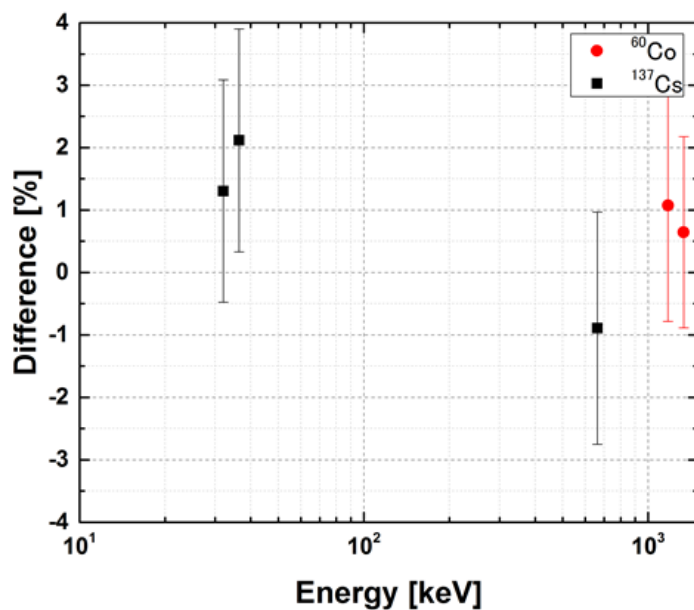


図 3-36 検出効率測定値と PHITS によるシミュレーションの比較

表 3-10 ガンマ線測定で得られた放射能

	Am-241 480MBq	Am-241 950MBq	Am-243 60MBq	Am-243 120MBq	Am-243 240MBq
Eg (keV)	59.5	59.5	277.6	277.6	277.6
Net Counts	2.731×10^6	6.392×10^6	2.486×10^6	5.672×10^6	3.793×10^6
Net Error	0.1%	0.09%	0.06%	0.04%	0.05%
Real Time (s)	927.9	1199.5	62650	62882	24858
Dead Time (%)	2.92	5.32	1.80	3.86	6.91
Peak C. R.	2.86×10^3	5.33×10^3	3.97×10^1	9.02×10^1	1.60×10^2
Ig (%)	35.64 ± 0.65	35.64 ± 0.65	14.34 ± 0.16	14.34 ± 0.16	14.34 ± 0.16
Phits FEP Effeciency	2.312×10^{-5}	2.344×10^{-5}	4.544×10^{-6}	4.560×10^{-6}	4.590×10^{-6}
Activity (MBq)	511 ± 10	962 ± 19	66.7 ± 1.3	155 ± 3	286 ± 6

3.2.2. カロリメータを適用した放射能絶対値測定

カロリメータを用いて崩壊熱を測定し、放射能の絶対値を決定するためには、カロリメータのセル外部への放射線の漏れ出しを低減する、もしくは定量評価する必要がある。本研究では熱量測定により放射能絶対値を決定する手法について、測定領域外への放射線の漏れ出しの影響や不純物起因の発熱の補正を適切に行い、カロリメータによる放射能絶対値測定の手法を確立した。

(1) 発熱測定による放射能絶対値測定の原理

1崩壊あたりの崩壊熱を Q 、測定対象とする放射性核種個数を N_0 、寿命（半減期を $\ln 2$ で除したものを）を τ とすると、単位時間当たりの崩壊熱 W は以下の式で与えられる。

$$W = Q \cdot \frac{N_0}{\tau}$$

(数式 3-7)

このように単位時間あたりの発熱は、放射性物質の個数、崩壊あたりの発熱量、寿命の3つの量だけで決まる。3つのうち2つが精度よく求まっていれば、最後の一つも精度よく求まる。

本事業においてANNRI ビームラインを使用して断面積測定を行ったAm-241, 243について、寿命と崩壊あたりの発熱について表 3-11 にまとめた。最も精度の低いAm-243の寿命でも、0.3%という高い精度で決定されている。

重い α 崩壊核では典型的に Q 値は5MeV程度となるが、そのような核ではおよそ1mW/GBqの関係が成り立つ。1GBqのAm-241サンプルからの発熱を、寿命決定精度と同程度の0.1%の精度で決定する場合、要求される発熱測定精度は1 μ Wである。

(2) 熱伝導式カロリメータによる発熱測定

図 3-37 に、熱伝導式カロリメータの測定原理図を示した。熱浴の温度を T_0 とし、サンプルセルの温度を T_s 、リファレンスセルの温度を T_r とすると、各セルからの熱流は

$$\Phi_s = k \cdot (T_s - T_0)$$

$$\Phi_r = k \cdot (T_r - T_0)$$

と表される。係数 k は比熱容量に起因するもので、セル間で比熱をそろえておけば同じ値となる。

マイクロワット程度の発熱の場合、セルと熱浴の温度差はおおよそマイクロ $^{\circ}$ C程度となる。熱浴自体の温度 T_0 は数マイクロ $^{\circ}$ C程度の幅で時間変動してしまうため、測定誤差が生じる。しかし、二種類のセルを用意すれば、非発熱体であるリファレンスセルからの熱流は熱浴の温度変動に追従するため、両者の差をとることで熱浴の温度変動に起因する熱雑音がキャンセルする。このような熱伝導式と呼ばれる方式は、常温～高温の測定雰囲気において、微小発熱を高精度に決定するのに適している。

本研究で導入したTA インスツルメント社製マイクロカロリメータ TAM IV は、熱伝導式のカロリメータであり、セルの容量は20ml あり、200nW/day のベースライン安定性と100nW

の測定精度を持つ。これにより、Am-241, 243 サンプルからの発熱を、寿命決定精度と同程度か、それ以上の精度で決定できる。

(3) GEANT4 を用いたガンマ線による熱量漏れ量の見積もり

カロリメータを用いて放射性サンプルからの発熱を測定する場合、測定領域外へ放射線が飛び出すことによって生じる熱量漏れを最小限にする必要性が生じる。本研究で使用する Am-243 サンプルは、放射平衡に達した娘核 Np-239 から放出されるガンマ線のエネルギーが 300keV 程度と高く、工夫をしなければサンプルセル領域を容易にエスケープしてしまう。そのため、サンプルセルからの漏れ出し、及び遮蔽の妥当性を見積もるために、GEANT4 によるモンテカルロシミュレーションを行った。

図 3-38 に、GEANT4 シミュレーションに組み入れたサンプルセルの情報を示した。0.5mm 厚のステンレス製容器内部に、アルミニウムでパッキングされた放射性サンプルを含める。サンプル領域は 10mm Φ であり、本研究で導入したものとそろえてある。アルミニウムパッキングを上下に挟む形で、1cm 厚の遮蔽材を挿入した。

以上のジオメトリで、遮蔽材なし、鉛遮蔽、タングステン遮蔽の 3 種類のシミュレーションを行い、ステンレス容器外部に漏れだしたガンマ線のエネルギー分布を求めた。結果が図 3-39 である。遮蔽材が存在しない場合は 0keV~330keV の範囲に多くのイベントが検出されているが、鉛もしくはタングステンで遮蔽を行うことで低エネルギー側のガンマ線もしくは X 線が完全に遮蔽され、330keV などの一部の高いエネルギーのガンマ線に起因するイベントのみがサンプルセル外に漏れ出している。また、遮蔽の効率は鉛よりタングステンのほうが優れている。

図 3-40 に、Am-243 の崩壊による発熱に対する、遮蔽しきれなかったガンマ線による漏れ出しの割合を示した。まったく遮蔽を行わない場合、総発熱のうちおよそ 1.8% がサンプルセルから漏れ出す。これに対して 1cm の鉛で遮蔽をすれば漏れ出し量は約 0.07% となり、タングステンに遮蔽材を変更すればさらに約 0.02% まで抑制される。これは Am-243 の寿命決定精度よりも 1 桁以上小さく、1cm 厚のタングステンを用いることで、Am-243 の崩壊に起因するガンマ線の漏れ出しの影響が無視できるほど小さくなることがわかった。

(4) ジュール熱発熱体を用いたカロリメータの較正

カロリメータ自身の較正のために、抵抗体を測定領域中に導入しジュール熱の測定を行った。用いた抵抗体は 10k Ω 、0.01% 精度保証、温度係数 10ppm/ $^{\circ}\text{C}$ 以下のもので、テクトロニクス・ケースレー社の高精度マルチメータ DMM7510 を用いた抵抗値測定では 10000 \pm 0.1 Ω の範囲に収まっていた。この抵抗体を 0.1mm 径のウレタン被覆線を用いてカロリメータ中に導入し、外部から抵抗体に電圧を印可することによりジュール熱を発生させた。計測時の写真を図 3-41 に示す。

ウレタン被覆線も含めた負荷線全体の抵抗は 10k Ω + 3 Ω 程度であり、ウレタン被覆線自体の抵抗分を差し引くと半田づけによる接触抵抗は数十 m Ω のオーダーであった。ウレタン被覆線は 2m ほどの長さがあり、カロリメータの測定領域内部に入り込んでいるのはその

うち 5cm 程度に過ぎない。ウレタン被覆線自体、及び半田の接触抵抗に起因する発熱が与える影響は、抵抗体からの発熱にくらべて 6 桁ほど小さく、測定誤差も考えれば無視できる。そのため、以下の解析ではこれらの影響は無視した。

抵抗体に流れる電流は DMM7510 により常時記録し、カロリメータの測定値と比較した。測定結果を図 3-42 に示す。ジュール熱は抵抗と電流を用いて

$$W = RI^2$$

とあらわされるので、横軸を電流とし縦軸を発熱としてプロットすると図 3-43 のように二次関数となる。抵抗値は高精度に測定されているため、想定される発熱と実測値のずれを求めることができる。残差をプロットすると図 3-44 となった。総発熱に対して、±0.7% の範囲に入っていることがわかる。この差は、ウレタン被覆線自体は電気の良導体であると同時に熱の良導体であるため、発熱の一部はウレタン線を通じて外部に漏れだしたものと推測できる。この影響は抵抗体での発熱値が大きいほど大きくなると予想されるが、定量的に見積ることは困難であった。このため、この差異を、カロリメータ較正精度の上限を与えるものと評価した。

(5) アメリシウムサンプルの発熱測定

本節では実際のアメリシウムサンプルの発熱測定について述べる。図 3-40 で示したとおり、GEANT4 によるシミュレーションの結果 1cm 厚のタングステンによる遮蔽によってガンマ線の漏れ出しによる影響を無視できることがわかっている。そのため、20mmφ・4mm 厚のタングステン円盤を購入し、3 枚重ねて 1.2cm として 1cm 以上の遮蔽厚を確保した。測定時のサンプル及び遮蔽材の状況を図 3-45 に示してある。

測定はアメリシウムサンプルをサンプルセル側に、ブランクサンプルをリファレンスセル側に挿入して行った。ブランクサンプルは、封入されているものが希釈材である酸化イットリウム粉末を圧縮成形体であることのみが異なるだけで、アメリシウムサンプルと同型のものである。内部に発熱体が入っていないため、サンプルセルとの発熱差がそのままサンプルの発熱量となる。セル内熱容量のバランスをとるために、ブランクサンプルもアメリシウムサンプルと全く同様に 1.2cm のタングステンで挟んだ。

図 3-46、図 3-47 に、Am-241, 243 サンプルに対する、カロリメータによる熱量測定の結果のグラフを示した。サンプルセル挿入後の熱量測定の安定化を待ち、測定開始から 7 日後のデータから示してある。グラフから得られた発熱量を表 3-12 に示してあるが、誤差には測定値の安定性によるものだけを示してある。カロリメータの安定性は非常によく、数百 nW クラスの発熱測定精度があることを示している。

(6) 発熱量から放射能への変換

発熱測定は発熱体からの総発熱のみを測定することができるため、不純物も発熱する場合にはその影響を差し引く必要が生じる。n種の不純物発熱体が存在したとして、それぞれの含有数を N_i ガンマ線などで漏れ出してしまう割合を α_i と書くと、総発熱量 W は

$$W = \sum_{i=1}^n (1 - \alpha_i) \cdot \frac{Q_i \cdot N_i}{\tau_i} \quad (\text{数式 3-8})$$

とあらわされる。ある核種のサンプル量 N を定量したい場合、それ以外のすべての核種について、 (α_i, N_i, τ_i) の三つ組みがわかっているなければならない。

Am-241 の場合、 α 線測定の結果不純物含有率は 0.1% 以下の高純度であり、かつガンマ線による漏れ出しが十分無視できる。このため、発熱からサンプル数への変換は単純である。しかし Am-243 は状況が大きく異なる。図 3-48 に、Am-243 サンプルから放出される α 線スペクトルを示す。精製された Am-243 粉末は酸化イットリウムと希釈され圧縮成形されるが、圧縮成形前の一部を硝酸に溶かした溶液を準備し、薄膜状に蒸発乾固させることで α 線源とすることができる。図 3-48 はそうして得られた α 線源からのスペクトルである。Am-243 起因のピークの外、Am-241、Cm-242, 244 の 3 種類の不純物によるピークが観測される。これら不純物は崩壊後に放出されるガンマ線が数十 keV 程度と低いいため、タンゲステン遮蔽により十分吸収され、崩壊熱がすべて発熱測定で検出される。

観測された α 崩壊核は、Am-243 を除き娘核の寿命が数十年～数百万年と非常に長く、娘核由来の崩壊熱は無視できる。Am-243 だけは娘核である Np-239 が 2.4 日の半減期であるため放射平衡となっている。3.2.2(3) 節で述べたとおり Np-239 は β 崩壊後に放出されるガンマ線のエネルギーが高いこと、さらにニュートリノは原理的に遮蔽不可能であることから、崩壊熱のうち一部は発熱測定にかからない。このため、補正が必要となる。

① ニュートリノによる熱量持ち出し割合の導出

β 崩壊における β 線のエネルギー分布は、許容遷移の場合に

$$dn = F(Z, E) p E (E_0 - E)^2 dE \quad (\text{数式 3-9})$$

と書ける。 $F(Z, E)$ が原子核の電荷によりスペクトルがゆがむ効果で、それ以外が統計的な分布因子である。実験で求められるのは平均 β エネルギー

$$\langle E_e \rangle = \frac{\int F(Z, E) p E^2 (E_0 - E)^2 dE}{\int F(Z, E) p E (E_0 - E)^2 dE} \quad (\text{数式 3-10})$$

である。今必要なのはニュートリノの持ち去る平均エネルギーなので、求めるべきは許容遷移の場合に

$$\langle E_\nu \rangle = \frac{\int p E (E_0 - E)^3 dE}{\int p E (E_0 - E)^2 dE} \quad (\text{数式 3-11})$$

となる。

禁制遷移の場合は

$$\langle E_e \rangle = \frac{\int S(p, q) F(Z, E) p E^2 (E_0 - E)^2 dE}{\int S(p, q) F(Z, E) p E (E_0 - E)^2 dE}$$

$$\langle E_{\nu} \rangle = \frac{\int S(p, q) p E (E_0 - E)^3 dE}{\int S(p, q) p E (E_0 - E)^2 dE}$$

(数式 3-12)

と、それぞれに形状因子がかかる。

形状因子についての測定データは Np-239 については存在しないが、平均 β エネルギーについては Nuclear Data Sheet にデータが記載されており、表 3-13 となっている。スピンパリティの値から 330.9keV の遷移は第一禁止遷移であるが、形状因子の精密な計算は困難である。そこですべての遷移を許容遷移と仮定、すなわち形状因子を 1 として計算した平均 β エネルギーを表 3-13 の値と比較した。図 3-49 に示すとおり、どの遷移においても計算値は文献値を数 keV 以内で再現することが確認された。よって、すべての遷移について許容遷移を仮定し、ニュートリノの持ち出し平均エネルギーを計算し、 $245.9 \pm 4.3 \text{keV}$ を得た。これをもとに Am-243 の換算崩壊熱 $Q'_{243\text{Am}}$ を求めると、 $5915.4 \pm 4.5 \text{keV}$ となった。

② Am-243 サンプルの不純物由来の発熱割合の導出

次に α 線スペクトルから得られた 3 種の不純物について、その定量を行う。図 3-48 に見られるように α 線スペクトルはそれぞれのピークに対して低エネルギー側にテールを引いているが、これは薄膜の厚みの間にエネルギー損失が発生し、検出器まで到着したときのエネルギーにばらつきが生じているためである。高いエネルギー側のピークからのテール部が低いエネルギー側のピーク部にも重なってしまっているため、単純な領域積分ではピーク中のイベント数を正確に導出できない。

物質中での荷電粒子のエネルギー損失はベーテ=ブロッホの公式によれば、同一物質、同一荷電粒子、同一の厚み、非相対論的領域であれば速度の逆数に比例する。これは電子との散乱回数が十分に多く、かつ荷電粒子進行方向に空間が一様とみなせるという仮定のみから得られる一般的な式であり、それに従えば、一様な厚みのサンプル中に一様に分布した放射性物質から放出される単一エネルギー α 線がサンプルから抜け出したときのエネルギー分布のテール形状は指数関数となる。指数関数の傾きは、全エネルギーに対してエネルギー損失が十分小さいと近似できる範囲では、放射される α 線のエネルギーに依存せず一定である。そのため、テール部のみを含む領域を単一の傾き変数をもった指数関数でフィッティングすることで、隣のピーク領域へ染み出した割合を見積もることができる。

図 3-50 に、すべてのテールに対して単一の傾き値を用いてフィッティングを行った結果を示す。もとのスペクトルからテール関数を差し引くことで、緑線のスペクトルのように、ピークのみを分離したスペクトルが得られる。それぞれのピーク面積は緑線のスペクトルの領域積分に、テール関数の面積を足したものとして評価できる。このようにして得られたピーク部面積を表 3-14 にまとめた。統計誤差は Am-243 に対して 0.28% となった。

ピーク面積は単位時間あたりの崩壊数に比例するものであるから、崩壊の Q 値を掛けることで崩壊熱に占める Am-243 の割合が計算できる。ただし、 α 線測定が行われたのが

2015年3月なのに対し発熱測定が行われたのがちょうど1年後の2016年3月のため、その間の崩壊に起因する減少分を考慮することで、測定された崩壊熱のうち、Am-243に起因する部分の割合が計算できる。表3-15にまとめたとおり、全発熱量のうち、Am-243の崩壊に起因する部分は41.19%となった。

③ 放射能絶対値の導出

測定された発熱のうち、Am-241, 243に起因する発熱の割合が得られたため、放射性サンプル数を導出できる。得られた結果を表3-16にまとめた。得られた放射能はすべて公称値より大きく、120MBqのAm-243サンプルでは20%以上のずれがみられた。放射能導出の誤差は、公称値60MBqのAm-243サンプルでは量が少ないために0.5%となったが、その他のサンプルについては0.05~0.2%となり、極めて高精度に放射能の絶対値が導出された。

(7) ガンマ線分光による測定結果との比較

3.2.1節において詳述された、ガンマ線分光によるサンプル量定量との比較結果を表3-17にまとめた。すべてのサンプルに対して、両者はガンマ線分光による誤差の範囲内でよく一致していることがわかる。表3-17には、2つの手法で求めた放射能絶対値に対する測定の不確定さの比較を示す。60MBqのAm-243サンプルを除き、カロリメータを用いた定量精度が、ガンマ線分光による精度に比較して10倍以上高精度であることを示している。

表 3-11 Am-241, 243 の寿命及び崩壊あたりの発熱の決定精度

	Am-241		Am-243	
寿命 (年)	624.1 ± 0.9	0.14%	(1.062 ± 0.003) × 10 ⁴	0.3%
崩壊Q値 (keV)	5637.82 ± 0.12	0.0021%	5438.8 ± 1.0	0.018%

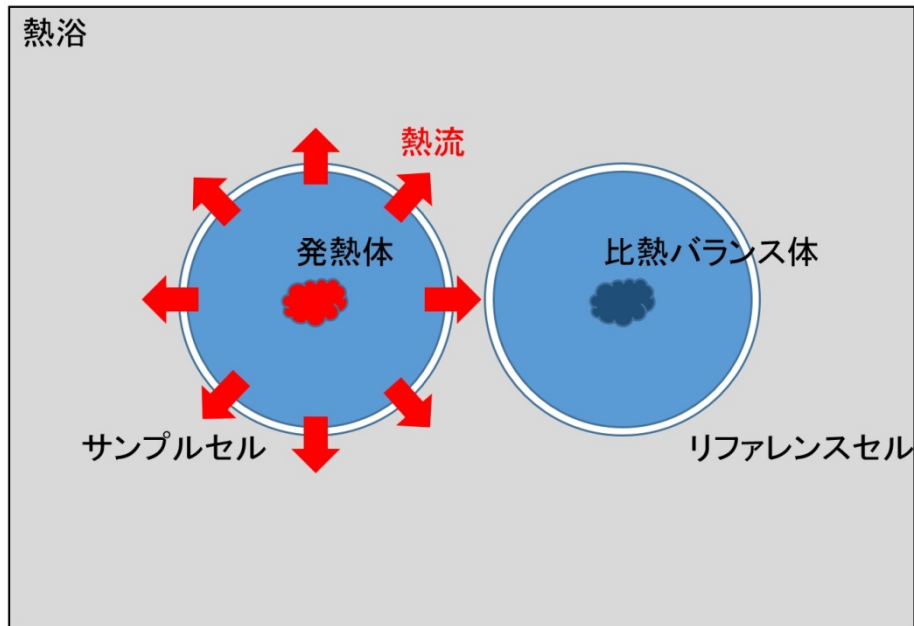


図 3-37 熱伝導式カロリメータの測定原理図

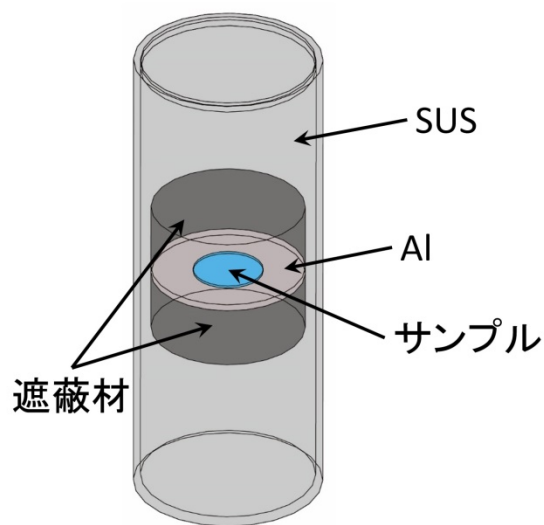


図 3-38 GEANT4 シミュレーション中のサンプルセル

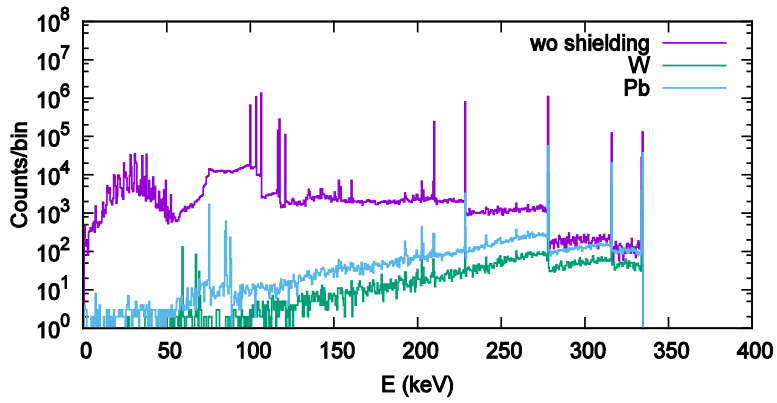


図 3-39 Am-243 の α 崩壊にともない放出されるガンマ線のサンプルセル外での分布の GEANT4 シミュレーション

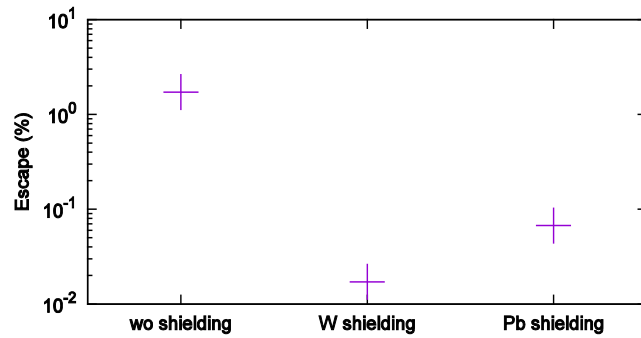


図 3-40 Am-243 の 1 崩壊あたりの発熱に対する、サンプルセル外部への熱量漏れだしの割合

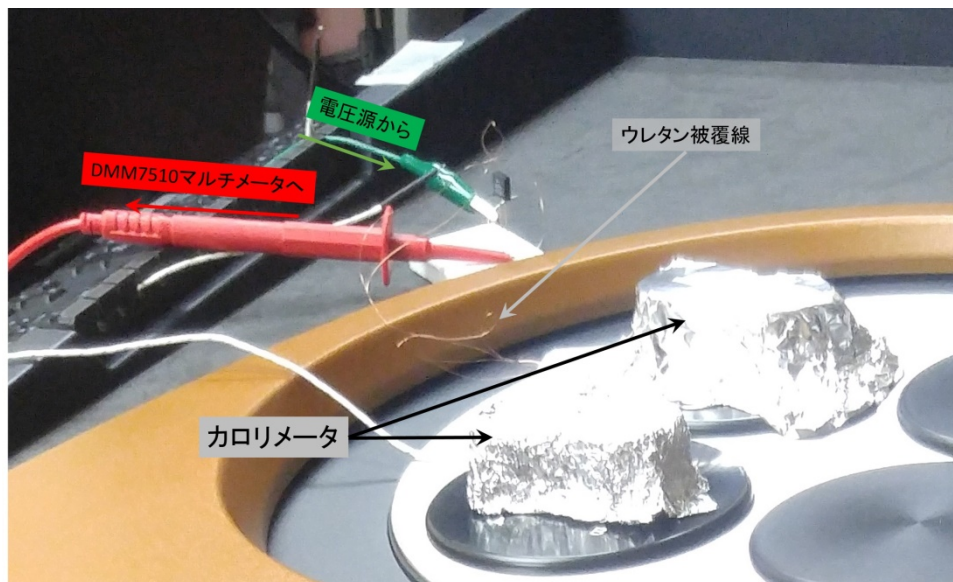


図 3-41 抵抗体を用いたカロリメータキャリブレーション時の写真

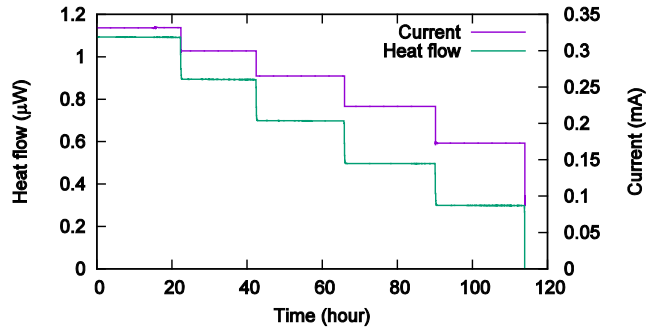


図 3-42 10kΩ の高精度抵抗を使用したカロリメータの較正試験

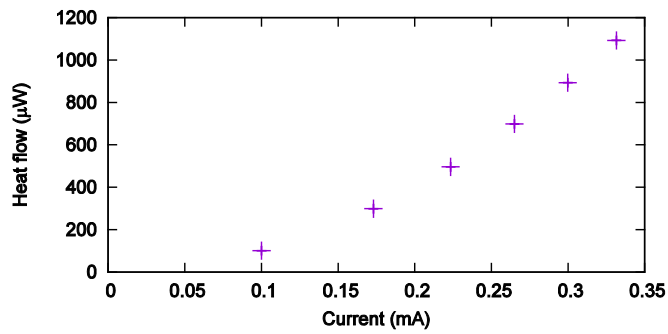


図 3-43 高精度抵抗に流れた電流値とカロリメータでの発熱測定の結果の相関
(ジュールの法則にしたがう二次関数的ふるまいが見えている。)

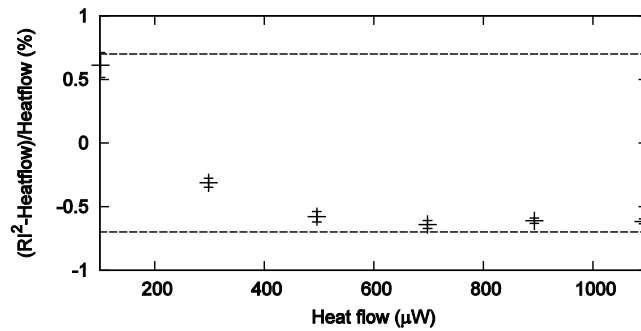


図 3-44 想定されるジュール熱と、カロリメータでの発熱測定の残差
(100μW から 1mW 程度までの範囲で±0.7%以下に収まっていることがわかる。)

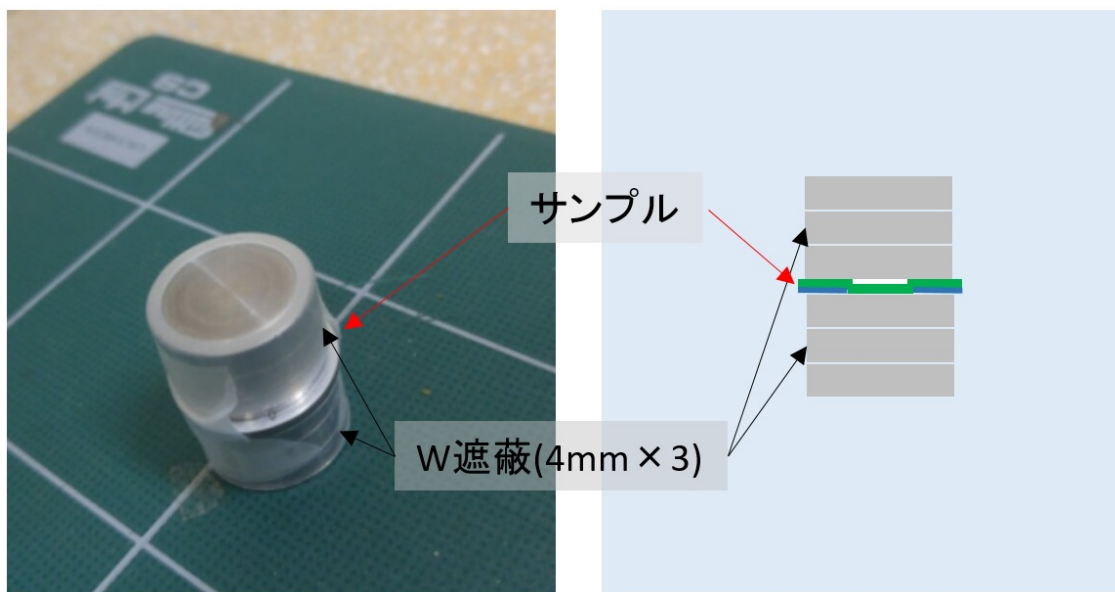


図 3-45 タングステン板によるサンプル遮蔽の様子
 (遮蔽は4mm厚のタングステン円盤3枚を重ねた12mmのものとした。)

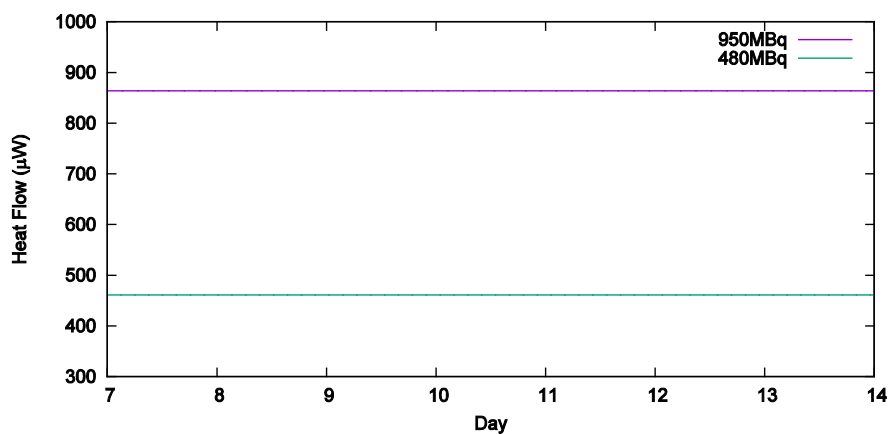


図 3-46 2種類のAm-241サンプルに対する発熱量測定の結果

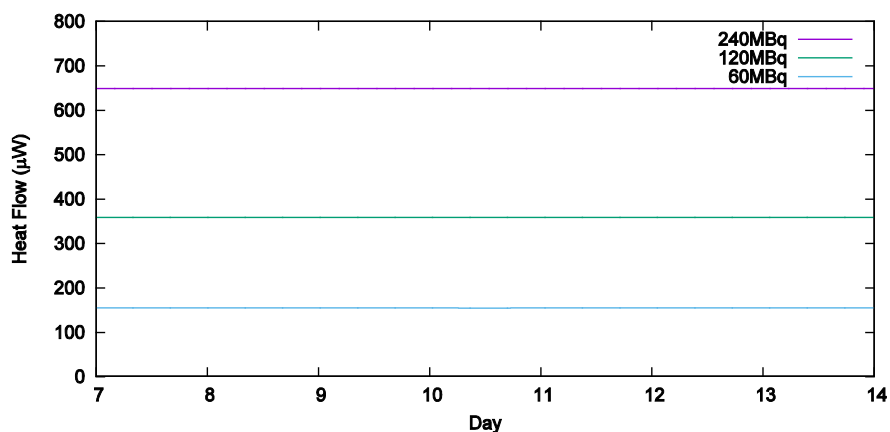


図 3-47 3 種類の Am-243 サンプルに対する発熱量測定の結果

表 3-12 測定された発熱の値

Am-241	公称値	480MBq	950MBq	
	発熱(μW)	461.5 ± 0.2	863.6 ± 0.2	
Am-243	公称値	60MBq	120MBq	240MBq
	発熱(μW)	154.9 ± 0.4	358.6 ± 0.4	648.9 ± 0.4

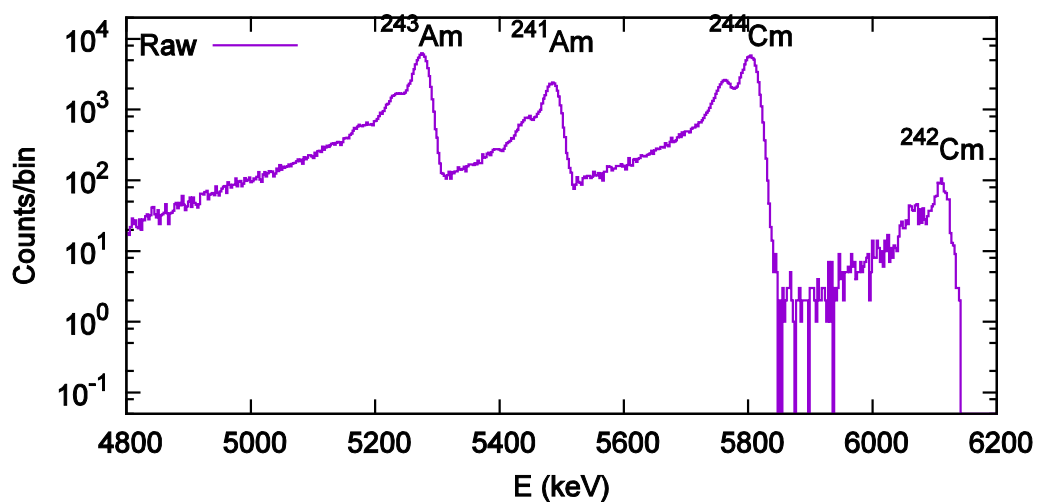


図 3-48 圧縮成形した Am-243 サンプルと同じサンプルから得られた α 線スペクトル
(主に 3 種の不純物が含まれているのがわかる。)

表 3-13 Np-239 のベータ崩壊で放出される β 線の平均エネルギーとエンドポイントエネルギーの関係

(Nuclear Data Sheet より)

Energy (keV)	End Point (keV)	Intensity (%)	log ft
44.2	166.3	0.0030	9.7
56.8	210.7	1.70	7.3
58.7	217.3	0.00740	9.7
62.5	230.3	0.0200	9.3
92.5	330.9	44.0	6.5
111.5	392.4	7.0	7.5
125.6	437.0	45	6.8
218.1	714.6	2.0	8.9

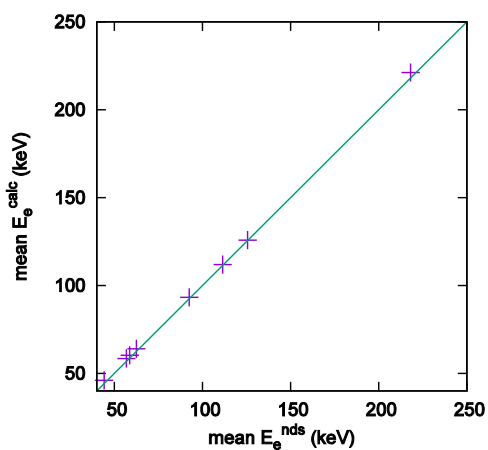


図 3-49 許容遷移を仮定して計算した平均 β エネルギーと、Nuclear Data Sheet 記載値との比較

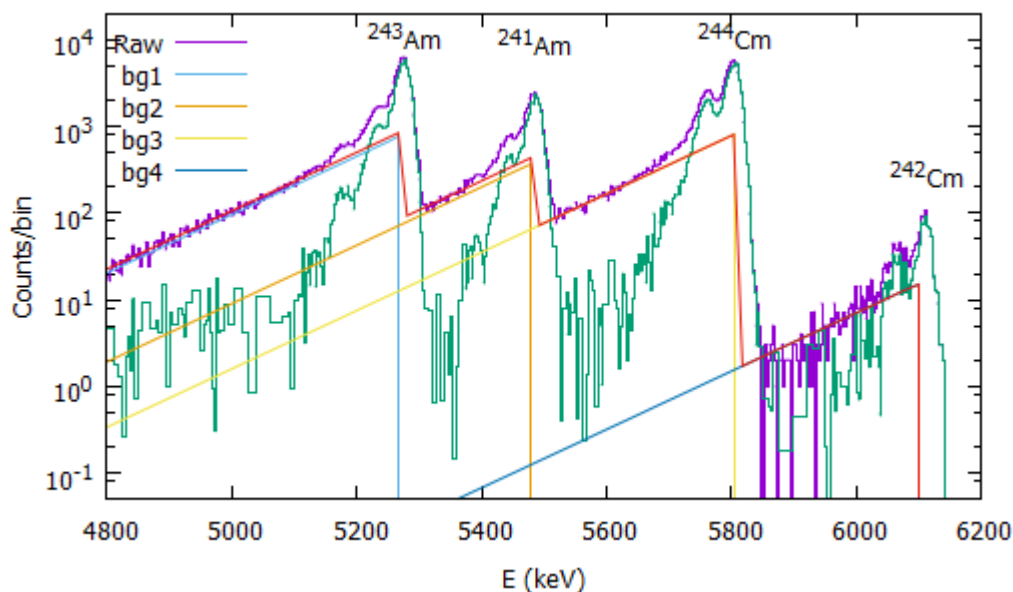


図 3-50 α 線スペクトルのテール部フィッティング

(4種のピークに対して固定値の傾きをもった指数関数でフィッティングすることで漏れ込み分を評価した。もとのスペクトル(紫)からテール関数を差し引いたものが緑線である。)

表 3-14 Am-243 α 線スペクトルから得られた各ピークの面積

	Am-243	Am-241	Cm-244	Cm-242
ピーク部	80033.3	31392.5	87760.5	1354.5
テール部	42672.3	19690.5	43601.8	727.2
和	122706	51083	131362	2082
Am-243 との比	1	0.42	1.07	0.017

表 3-15 崩壊熱中の、それぞれの核種からの崩壊熱が占める割合

	Am-243	Am-241	Cm-244	Cm-242
1年後の強度	0.9999906	0.415638	1.030348	0.0003586
換算崩壊熱	5915.4	5637.82	5901.74	6215.56
全発熱との比	0.4119	0.1632	0.4234	0.00155

表 3-16 発熱測定から導出された放射能絶対値

	Am-241		Am-243		
公称値 (MBq)	950	480	240	120	60
発熱 (μ W)	863.6 ± 0.2	461.5 ± 0.2	648.9 ± 0.4	358.6 ± 0.4	154.9 ± 0.4
サンプルからの発熱割合	1	1	0.4119	0.4119	0.4119
放射能 (MBq)	957.4 ± 0.5	510.7 ± 0.5	281.8 ± 0.3	155.8 ± 0.3	67.3 ± 0.3

表 3-17 カロリメータ及びガンマ線分光による、放射能絶対値測定値の比較

	Am-241		Am-243		
	950MBq	480MBq	240MBq	120MBq	60MBq
公称値	950MBq	480MBq	240MBq	120MBq	60MBq
カロリメータ	957.4±0.5	510.7±0.5	281.8±0.3	155.8±0.3	67.3±0.3
ガンマ線分光	962±19	511±10	286±6	155±3	66.7±1.3

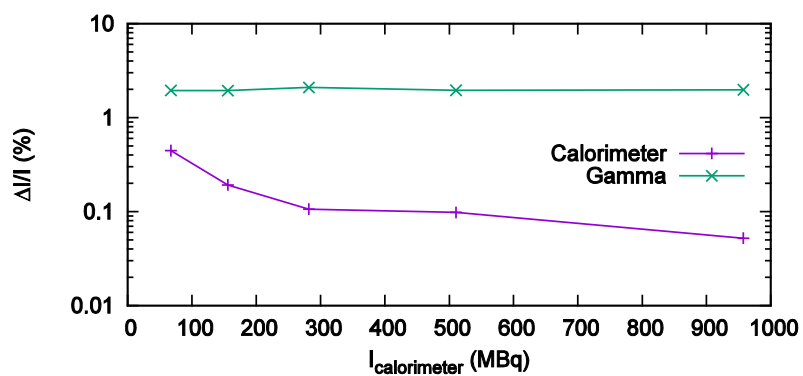


図 3-51 2つの手法で求めた放射能絶対値に対する測定の不確定さの比較

3.2.3. MA サンプルの整備と同位体分析（再委託先：京都大学）

(1) MA サンプルの整備

① J-PARC 実験用密封 MA サンプルの整備

J-PARC/ANNRI での核データ測定実験に供するための密封 MA サンプルの仕様を検討し、製造元の選定を行った。本事業で整備する MA 核種は Am-241 と Am-243 とし、厚さの異なる複数個のサンプルを用意した。

Am-241 については 950MBq (7.5mg 相当)、480MBq (3.7mg 相当) を各 1 個、Am-243 については 240MBq (30mg 相当)、120MBq (15mg 相当)、60MBq (7.5mg 相当) を各 1 個ロシア国の JSC Khlopin Radium Institute から入手した。サンプルの化学形は酸化物とし、39~46mg のイットリウム酸化物 (Y_2O_3) を希釈材として使用し、直径 10mm、厚さ 0.5mm のペレット状に固めた円盤を外径 22mm のアルミニウム容器に封入した。密封サンプルの外観写真及び断面図を図 3-52、図 3-53 に示す。密封サンプルと同一の組成を有する非密封 RI として、1 リットル当たり 4mol の硝酸で溶解した溶液を分析用サンプルとして入手した。また、J-PARC での実験に供する Np-237 密封サンプルを京大炉から J-PARC へ輸送した。

② 可変中性子スペクトル場照射用非密封 MA サンプルの整備

1) Np-237, Am-241 サンプルの整備

可変中性子スペクトル場照射に供する Np-237, Am-241 サンプルの調製を行った。線源調製には Eckert & Ziegler 社製のものを用いた。溶液は ANODISC に沈殿させることでサンプル調製を行った。調製後のサンプルの一例として、Np-237 の水酸化物沈殿サンプルの外観を図 3-54 に示す。

2) Am-243 の整備

線源調製には Eckert & Ziegler 社製の Am-243 標準溶液 ($AmCl_3$ in 1 M HCl, 5.04631 g, 3.822 MBq) を原液として用いた。原液の 800 μ L (約 600 kBq 相当) をプラスチックカップに分取し、0.1 M 塩酸を 2000 μ L 加え、フェノールフタレイン (EtOH) 溶液を 1 滴加えた。この溶液に 25% アンモニア水を溶液がピンク色に着色するまで滴下し、Am-243 の水酸化物沈殿を生成した。着色を確認して 20 分静置した後、ANODISC 25 (ポアサイズ 0.02 μ m) にて濾過し Am-243 の水酸化物沈殿を捕集し、線源として調製した。

(2) 同位体分析

① 分析装置の整備

1) 同位体分析装置のイオン源、真空装置の整備

サンプルの組成を精密に測定するために表面電離型質量分析計 (TIMS : Thermal Ionization Mass Spectrometer) を用いる。TIMS はイオン源、分析部、及び検出器から構成される。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。

平成 25 年度は、TIMS のイオン源と真空装置の導入による測定の高精度化を行った。

装置導入前後において、ストロンチウム標準物質である SRM987 を用いて性能試験を実施した。性能試験の結果を図 3-55 に示す。イオン源と真空装置の導入により、TIMS のビーム形状及び真空度が改善され、同位体分析精度の向上が確認された。

2) アルファ線分析装置の整備

アルファ線測定時におけるサンプルと検出器間の幾何学的配置は系統誤差要因となるため、サンプルと検出器の間の距離を従来使用していたアルファ線測定チェンバーの約 2~6 倍にすることを可能としたチェンバーを製作した。本チェンバーはサンプルと検出器間の距離を 3 段階 (100, 200, 300mm) で変更することができる。平成 26 年度に整備したアルファ線分析装置の写真を図 3-56 に示す。

② 同位体分析

1) J-PARC 実験用 Gd 同位体及び MA サンプルの同位体分析

平成 26 年度は、J-PARC の ANNRI 装置に整備された高速データ収集システムの適用試験に用いた Gd-155 及び Gd-157 サンプル、並びに J-PARC 実験に供する Am-241, Am-243 サンプルと同一の組成から成る分析用サンプルに対して精密同位体分析を行った。同位体分析は、レニウムフィラメントを用いたダブルフィラメント法による表面電離型質量分析法により行った。ダブルフィラメント法では、サンプルの蒸発のためのフィラメント (蒸発用フィラメント) とイオン化のためのフィラメント (イオン化用フィラメント) の 2 個のフィラメントを用いる。

天然 Gd に対する同位体分析結果と国際純粋・応用化学連合 (IUPAC) が提供する天然存在比の推奨値との比較を図 3-57 に示す。測定結果は IUPAC の推奨値と誤差範囲内で一致し、IUPAC より 1 桁以上高い精度で同位体比を求めることができた。Gd-155 及び Gd-157 の同位体濃縮サンプルに対する同位体分析結果と米国オークリッジ国立研究所の与えた成分表との比較を図 3-58、図 3-59 に示す。濃縮サンプルの同位体組成は、米国オークリッジ国立研究所の与えた成分表と誤差範囲内で一致した。特に Gd-155 濃縮サンプルに関する本試験の分析精度は、米国オークリッジ国立研究所の分析精度より 1 桁以上良い精度であった。

次に、J-PARC 実験用に本事業で整備した MA サンプルに対するマススペクトルを図 3-60、図 3-61 に示す。Am-241 サンプルは質量数 241 以外に顕著なピークは観測されなかった。Am-243 サンプルは質量数 243 以外に質量数 241 に顕著なピークを観測した。また、質量数 242 に Am-243 の 1/500 程度の強度の微弱なピークを観測した。マススペクトルの結果を用いて、Am-241, Am-243 サンプルに対する同位体存在割合を表 3-18、表 3-19 のように決定した。本分析の結果、Am-241 サンプルは極めて同位体純度の高いサンプルであり、Am-243 サンプルには約 2.3% の Am-241 不純物を含有していることが分かった。

2) J-PARC 実験用 MA サンプルの不純物定量

平成 26 年度事業において、Am-243 試料の分析で Am-242m とと思われるピークを観測した。このピークに対する更なる検討を行った。

表面電離型質量分析装置を用いた同位体分析では、対象とする元素のうち同重体干渉を受けにくい同位体を指標として、ビーム強度を増加させていく。その後、測定に適したビーム強度に達した後、ビーム強度の安定を確認して同位体分析を行う。この一連での流れを図 3-62 に示す。過去の報告書では、図 3-62 の分析に使用する領域で観測したマススペクトルを報告しているが（図 3-63）、平成 28 年度は、その手前の分析準備の領域についてもマススペクトルを確認した。

Am-243 サンプルの分析準備の領域で観測したマススペクトルを図 3-64 に示す。図 3-64(a)は図 3-64(b)よりも Am のビーム強度が低い時点で観測したマススペクトルであるが、図 3-64 のマススペクトル両方で質量数 242 に図 3-63 と同じ様なピークを確認できる。また、この質量数 242 に観測されるピークは図 3-64(a)及び図 3-64(b)で示されるように、Am-243 及び Am-241 のピークと比較してその相対強度は変わらない。同図では質量数 239 及び 240 にもピークを観測している。これらは、仕様書には報告されていないが、不純物の Pu と推測される。質量数 239 及び 240 のピークは、観測時期の異なる(a)と(b)で Am-243 及び Am-241 のピークと比較してその相対強度が変化している。Cm のイオン化ポテンシャルも Pu とほぼ同じであるため、同程度の量の Cm が存在していても、Pu-239 及び Pu-240 と同じように減少することが予測される。以上より、質量数 242 で観測したピークは Am-242m と確信できる。

一方、Am-243 試料では、報告されていない Pu に由来するピークが確認された。Pu-239 の存在は Am の中性子捕獲断面積測定に大きく影響を与えるため、その詳細な定量が要求される。Am と Pu ではイオン化ポテンシャルが異なること、及び質量数 239 と 240 のピークの最大強度を本分析では抑えていないため正確な定量は行えないが、質量数 239 と 240 のピークは Am-243 のピークと比較して相対強度が 0.01%となるので（図 3-64(a)）、同程度以上の Pu-239 が存在していると推測される。また、同様の質量数 239 及び 240 のピークは Am-241 試料（図 3-65）でも観測されている。図 3-66 には分析準備の領域で観測した Am-241 試料のマススペクトルを示す。ここでは、同様に、0.36%程度の相対強度のピークが質量数 239 で観測されている。これらの詳細な定量のために、既知の量の Pu を使用した分析が今後必要となる。Pu-239 の核分裂断面積には 0.3eV 付近に大きな共鳴（ピークで約 5000b）があり、微量の含有量であっても Am の中性子捕獲断面積に影響を与える可能性がある。Am-241 は 0.3eV 付近に Pu-239 と同程度の共鳴があるため、Pu-239 の影響はほとんど無視できると考えられるが、Am-243 は 0.3eV 付近は大きな共鳴がなく、中性子捕獲断面積も 50b 程度しかないため、1%の Pu-239 が含まれていれば、Am-243 と断面積はほぼ同等になるため、たとえ微量であっても Pu-239 の不純物の影響を無視することはできない。今年度事業では、これまでの同位体分析では見落とされていたイオン化ポテンシャルの違いに注目し、ビーム強度が安定する前のビーム強度が低い時点でのマススペクトルを観測したことにより、Am-243 密封サンプル中には 0.01%以上の Pu-239 が含まれていることを確認し、これまで認識できていなかった系統誤差要因を明らかにすることができた。

3) アルファ線分析

a) Np-237, Am-241 サンプルの定量

沈殿法によって調製した Np-237, Am-241 サンプルに対してアルファ線スペクトロメトリを行ったところ、図 3-67、図 3-68 に示したスペクトルが得られた。得られたアルファ線測定の結果を用いて、調製したサンプルの原子核数を決定した。

b) Am-243 サンプルの定量

沈殿法によって調製した Am-243 サンプルを、検出器に Canberra 社製 PIPS 検出器 PD25-10-500AM を使い、検出器までの距離を約 250 mm としてアルファ線スペクトロメトリを行なったところ、図 3-69(上)に示したスペクトルが得られた。また、同じ条件にて Am-241 標準線源 (286 Bq) を測定した結果を比較として図 3-69(下)に示した。図 3-69(下)では、スペクトル形状の比較のため、Am-241 ピークの高さを Am-243 のピークの高さに規格化した。線源の厚さを検証するために、複数のピークの重ね合わせではあるが Am-243 線源及び Am-241 標準線源の半値幅を見積もったところ、それぞれ約 71 keV 及び 54 keV となり、Am-243 サンプルの方が Am-241 標準線源に比べて半値幅が大きいものの、自己吸収の少ない薄い線源が調製できたと考える。

Am-241 標準線源のピーク面積との比較により Am-243 線源の強度を見積もると 355 ± 4 kBq (誤差は 1σ) となり、今回の線源調製による化学収率は約 60% となった。キャリア物質を含まない条件における収率としては十分高いと考えられる。Sm をキャリアとし用いることで収率を向上させることも可能であると考えが、中性子照射によって生成する FP の運動エネルギーを測定する場合においては、自己吸収によるエネルギー損失を避けるために、キャリアを使用しない本手法が適切であったと考える。

(3) まとめ

J-PARC 実験用密封 Am-241, Am-243 については、厚さの異なる複数の密封サンプルを整備すると共に、同一の組成を有する非密封サンプルも整備した。京大炉ライナックの可変中性子スペクトル場照射に供するための非密封サンプルとして、Np-237, Am-241, Am-243 について沈殿法により ANODISC に固着させたサンプルを調製した。

J-PARC 実験に用いた Gd-155, Gd-157, Am-241, Am-243 同位体濃縮サンプルに対して TIMS を用いた同位体分析を行った。濃縮 Gd サンプルの同位体組成は、米国オークリッジ国立研究所の与えた成分表と誤差範囲内で一致した。特に Gd-155 濃縮サンプルに関する本試験の分析精度は、米国オークリッジ国立研究所の分析精度より 1 桁以上良い精度であった。MA サンプルについては、不純物の定量を行った。Am-241 サンプルの同位体純度は極めて高く、Am-243 サンプルには約 2.3% の Am-241 不純物を含有していることが分かった。また、Am-243 密封サンプル中には 0.01% 以上の Pu-239 が含まれていることを確認し、これまで認識できていなかった系統誤差要因を明らかにすることができた。

アルファ線分析装置を用いて、京大炉ライナックの可変中性子スペクトル場照射に供するための非密封 Np-237, Am-241, Am-243 のサンプル量を決定した。



図 3-52 密封 RI サンプルの外観写真

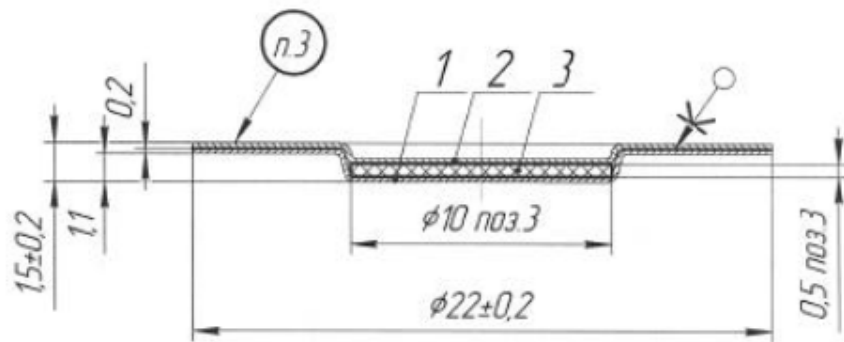


図 3-53 密封容器の断面図



図 3-54 Np-237 の水酸化沈殿サンプルの外観

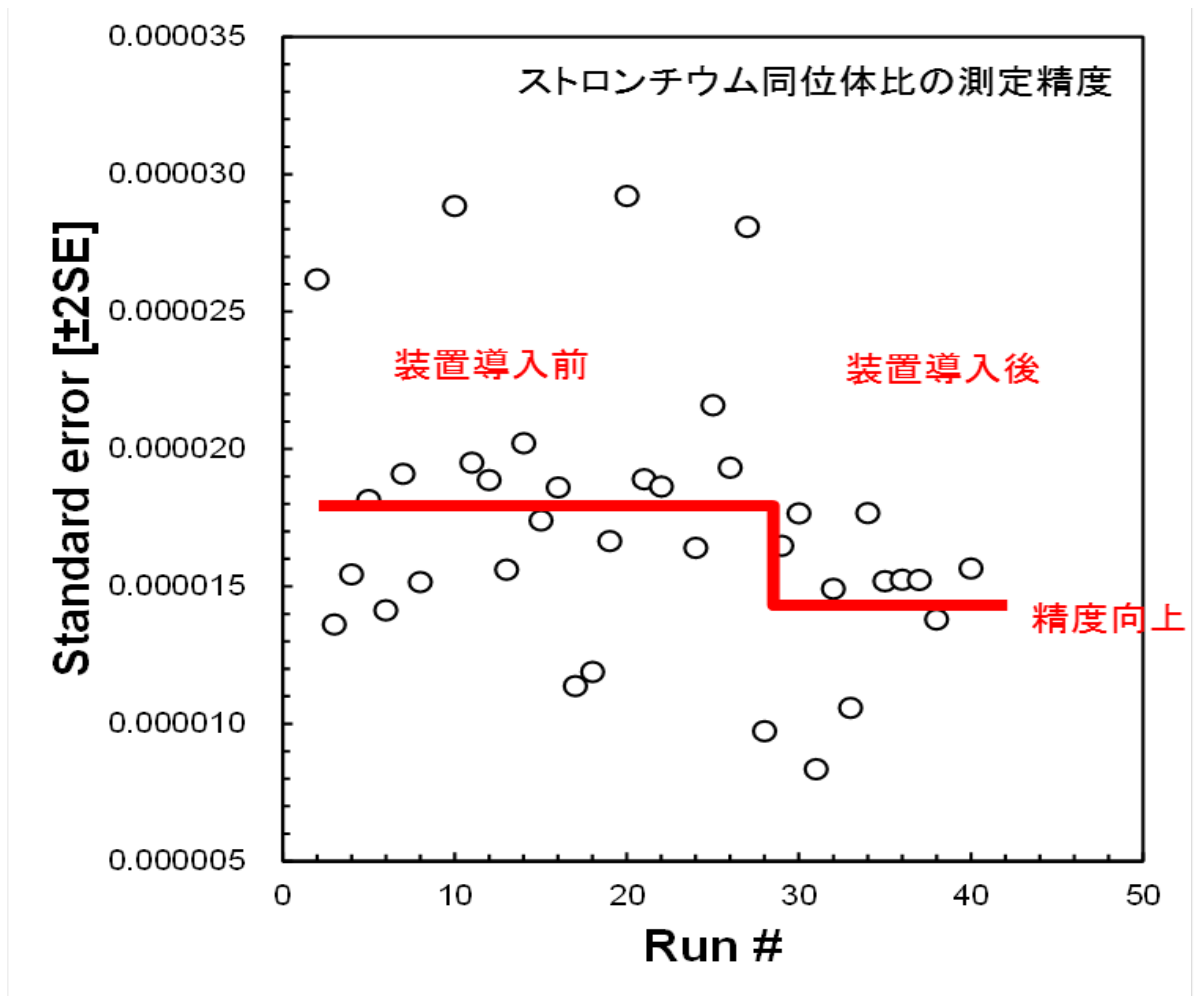


図 3-55 ストロンチウム同位体比の測定精度

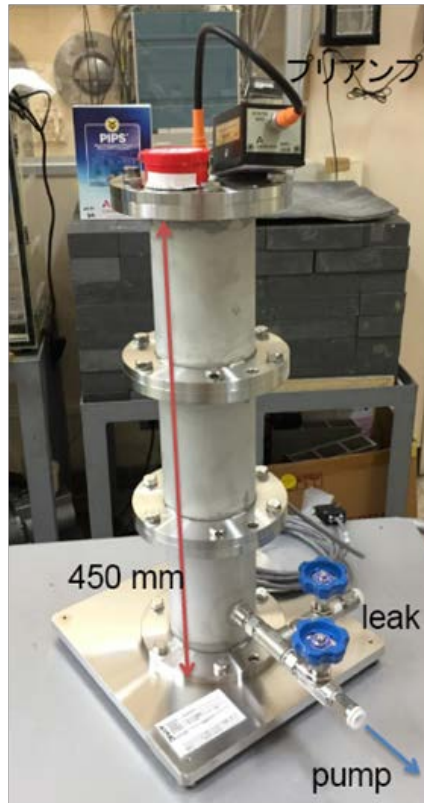


図 3-56 アルファ線分析装置の写真

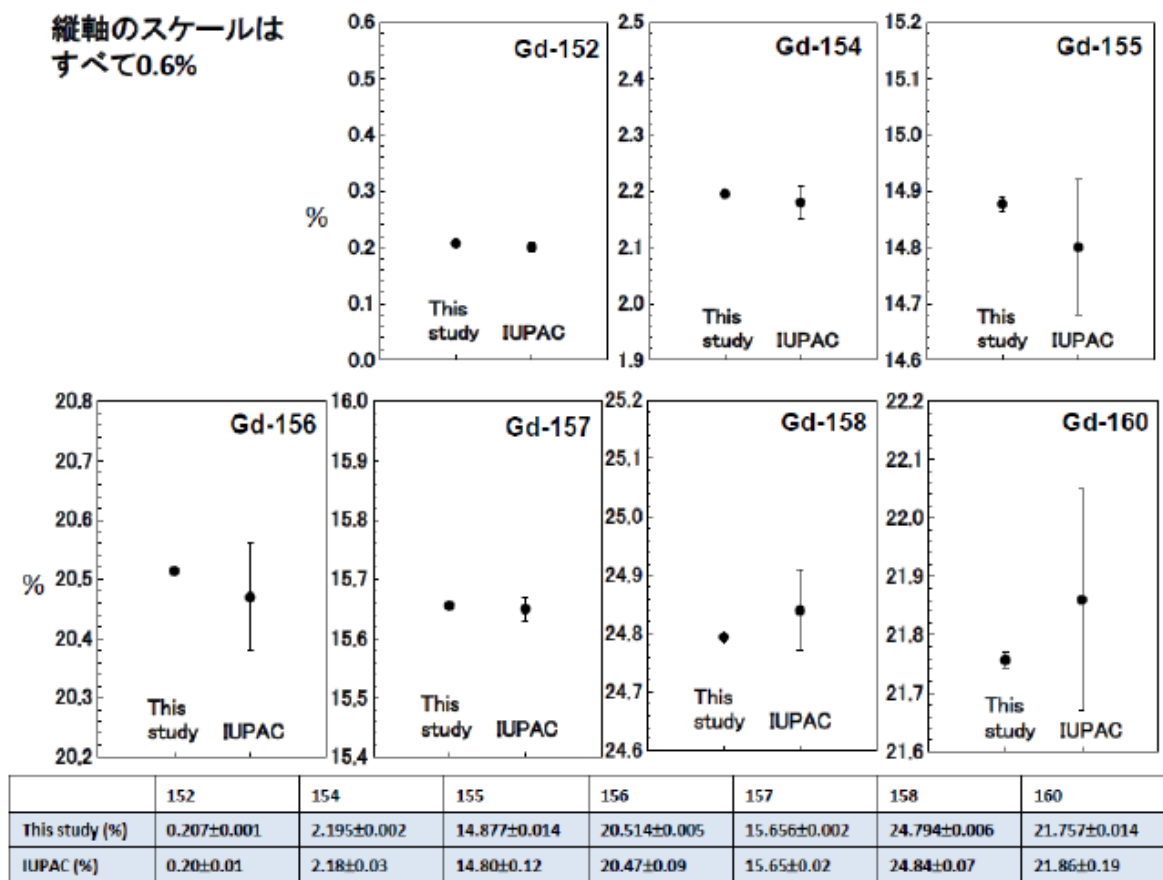
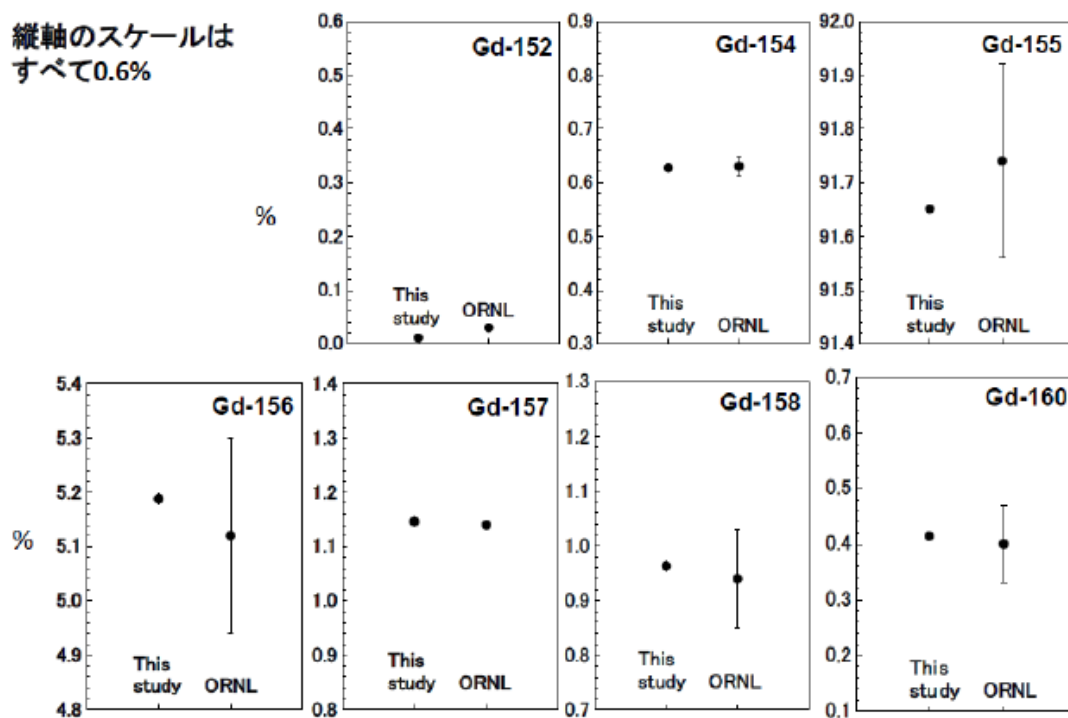


図 3-57 天然 Gd に対する同位体比の測定結果

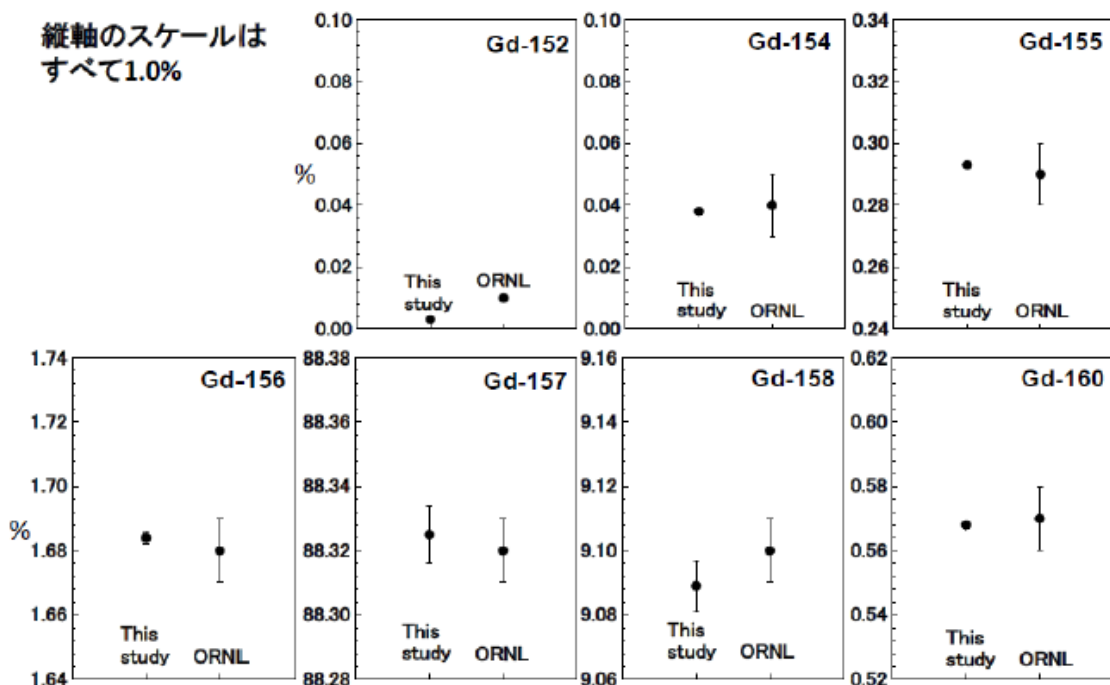
縦軸のスケールは
すべて0.6%



	152	154	155	156	157	158	160
This study (%)	0.011±0.001	0.627±0.001	91.651±0.007	5.188±0.006	1.146±0.001	0.963±0.001	0.414±0.001
ORNL (%)	0.03	0.63±0.02	91.74±0.18	5.12±0.18	1.14	0.94±0.09	0.40±0.07

図 3-58 Gd-155 濃縮サンプルに対する測定結果

縦軸のスケールは
すべて1.0%



	152	154	155	156	157	158	160
This study (%)	0.003±0.001	0.038±0.001	0.293±0.001	1.684±0.002	88.325±0.009	9.089±0.008	0.568±0.001
ORNL (%)	<0.01	0.04±0.01	0.29±0.01	1.68±0.01	88.32±0.01	9.10±0.01	0.57±0.01

図 3-59 Gd-157 濃縮サンプルに対する測定結果

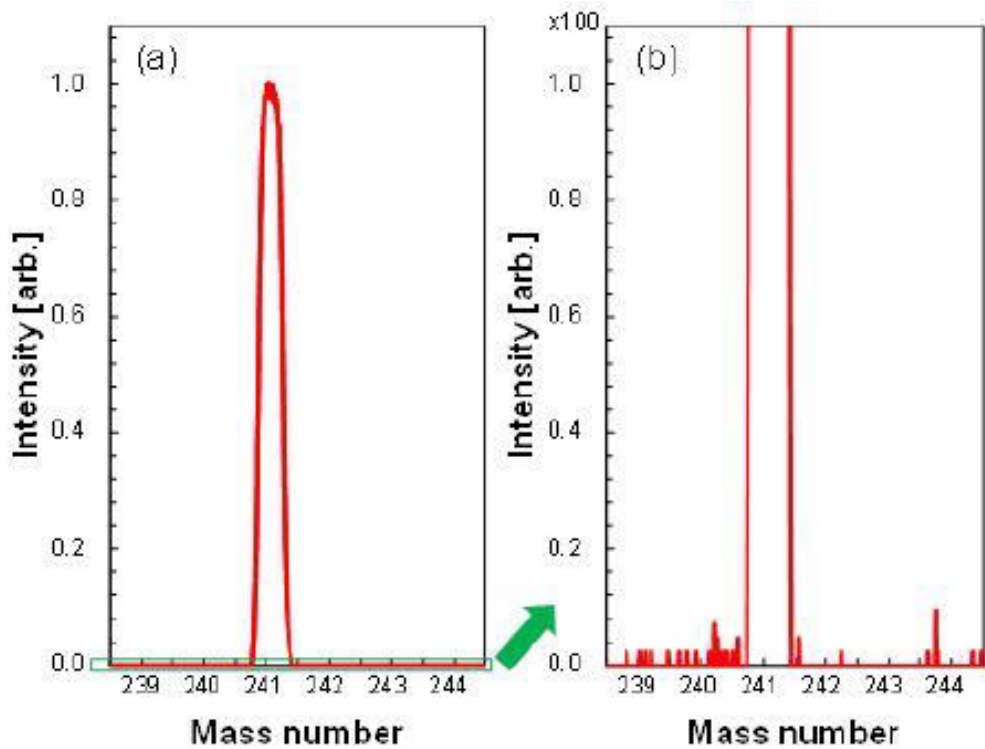


図 3-60 Am-241 サンプルのマススペクトル
(a) 全体、(b) 1/100 の強度で拡大

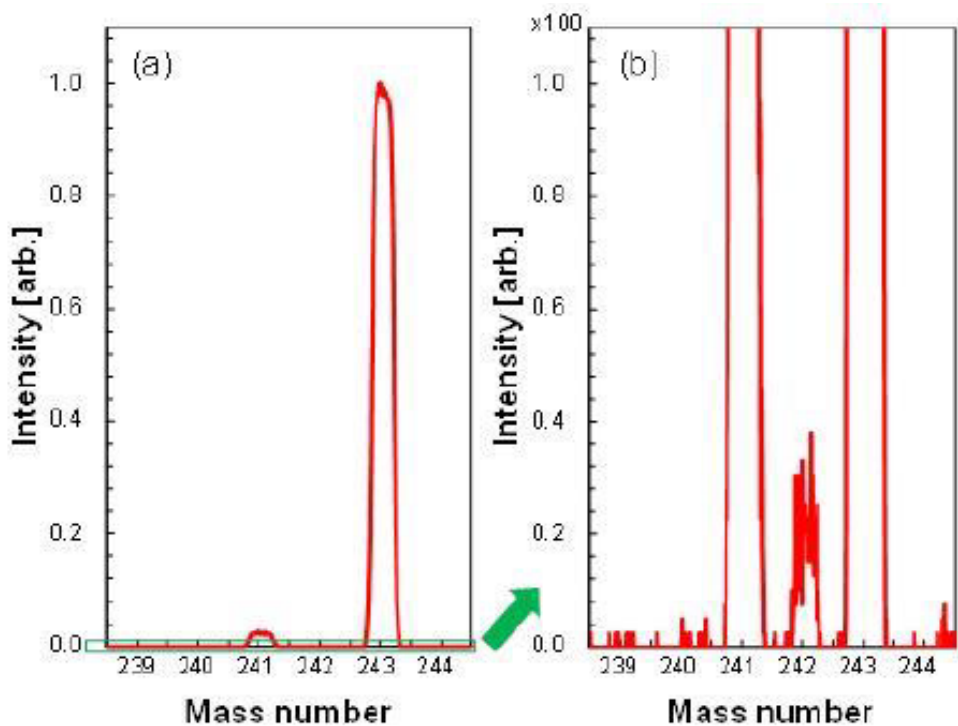


図 3-61 Am-243 サンプルのマススペクトル
(a) 全体、(b) 1/100 の強度で拡大

表 3-18 Am-241 サンプルの同位体分析結果

	^{241}Am	^{243}Am
1 st	ca. 100%	less than 0.0005%*
2 nd	ca. 100%	less than 0.0003%*
3 rd	ca. 100%	less than 0.0002%*

* : $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ 比の測定誤差 $\pm 2\text{SD}$ より算出

表 3-19 Am-243 サンプルの同位体分析結果

	^{241}Am	$^{242\text{m}}\text{Am}$	^{243}Am
1 st	$2.29\pm 0.03\%^{**}$	$0.038\pm 0.006\%$	$97.67\pm 0.03\%^{**}$
2 nd	$2.29\pm 0.05\%^{**}$	$0.038\pm 0.006\%$	$97.67\pm 0.05\%^{**}$
3 rd	$2.28\pm 0.03\%^{**}$	$0.038\pm 0.006\%$	$97.67\pm 0.03\%^{**}$

** : 誤差は $\pm 2\text{SD}$ で表示

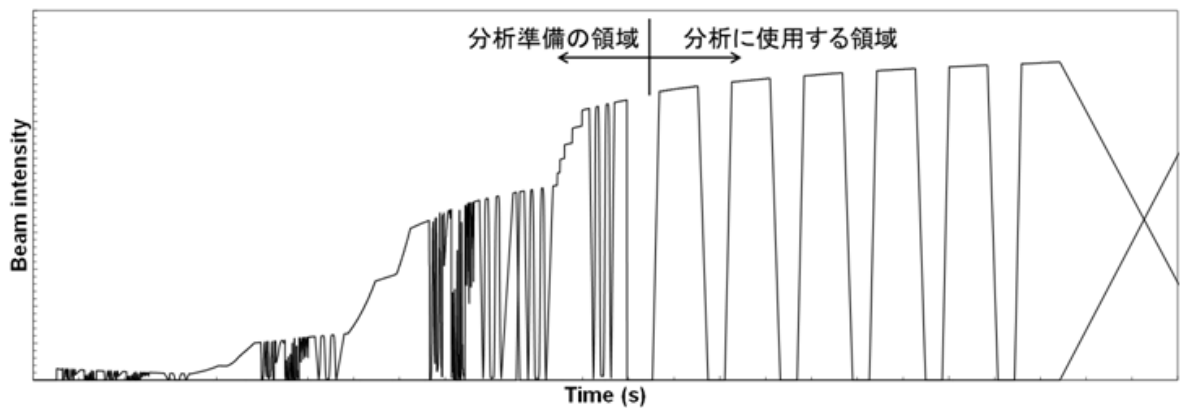


図 3-62 典型的な質量分析でのチャートレコード

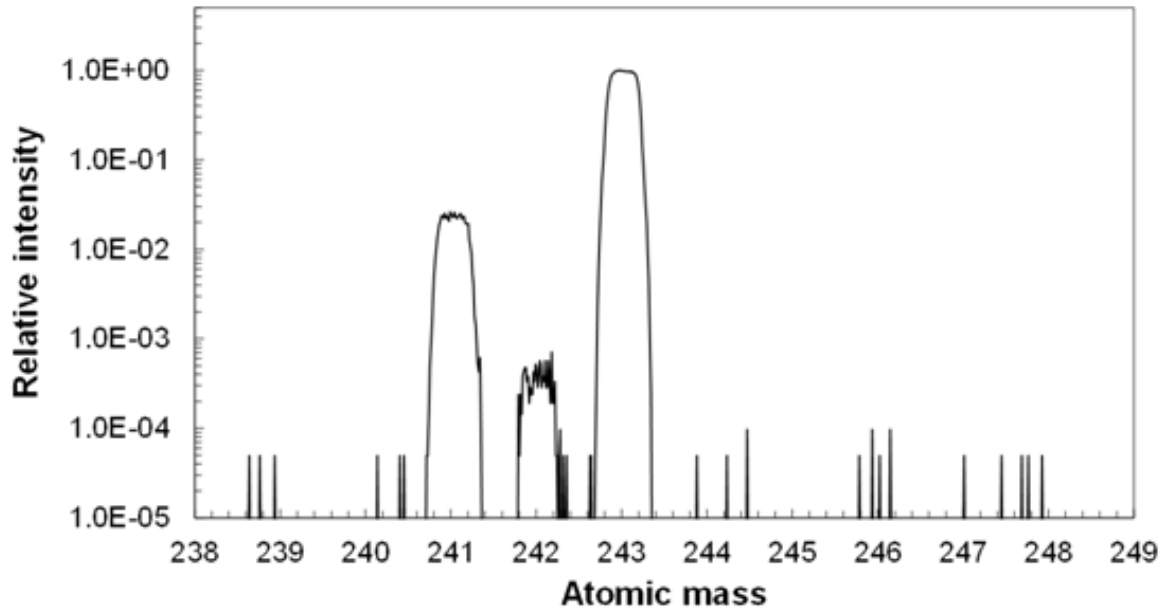


図 3-63 分析に使用する領域で観測した Am-243 サンプルのマススペクトル

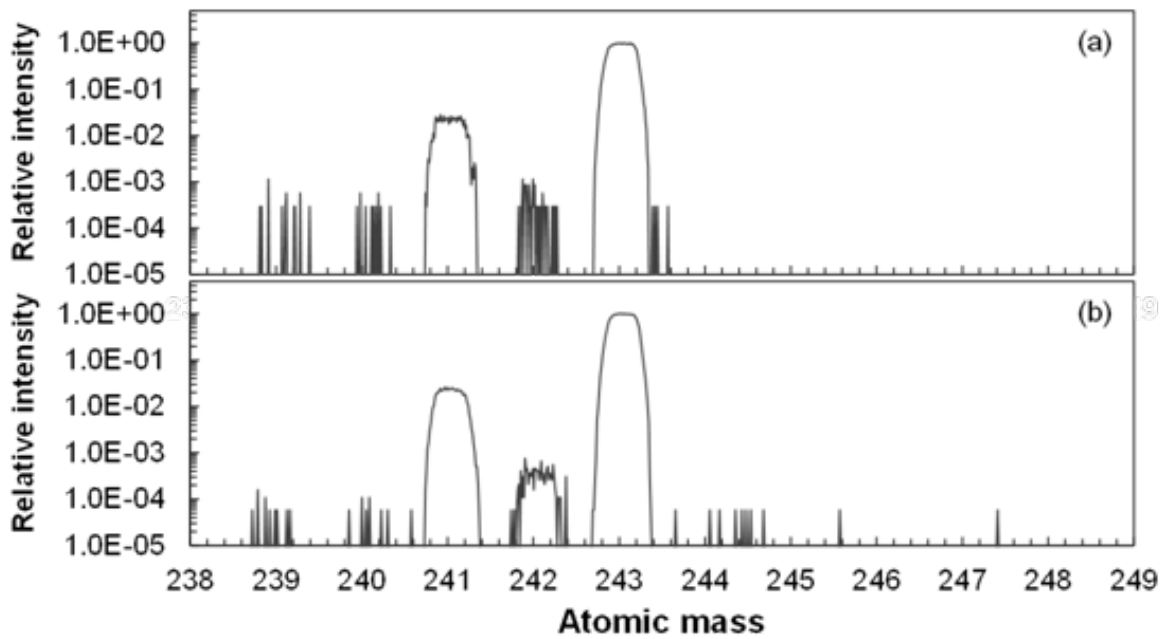


図 3-64 分析準備の領域で観測した Am-243 サンプルのマススペクトル
(マススペクトル観測時期は、(a)→(b)となる。)

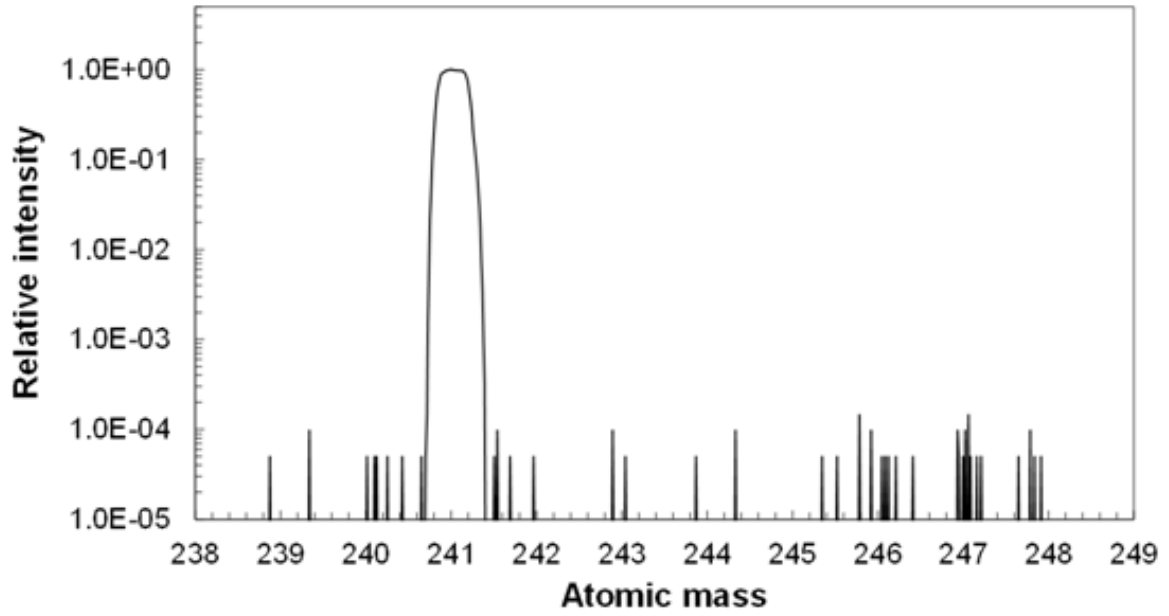


図 3-65 分析に使用する領域で観測した Am-241 サンプルのマススペクトル

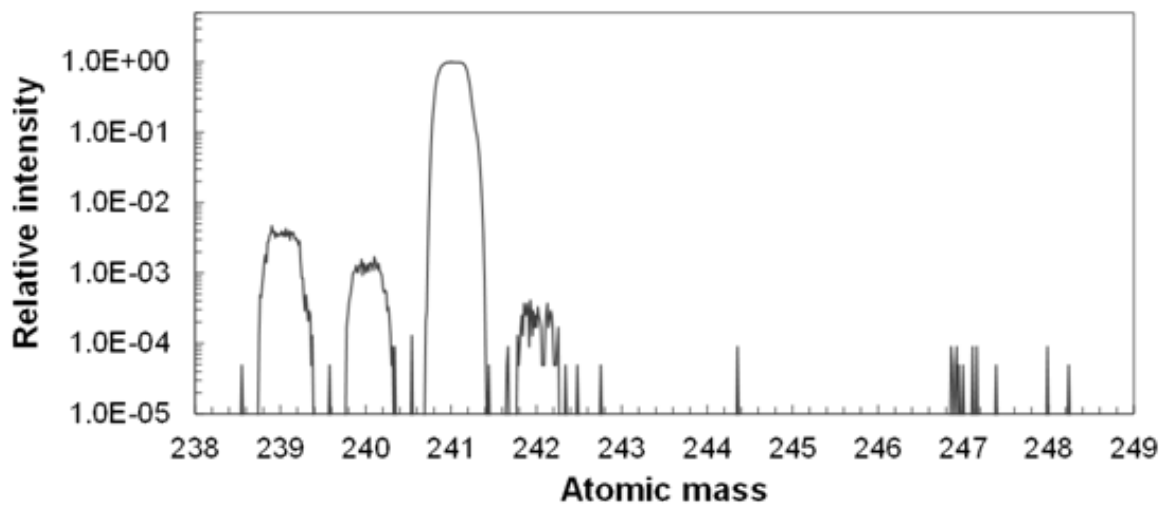


図 3-66 分析準備の領域で観測した Am-241 サンプルのマススペクトル

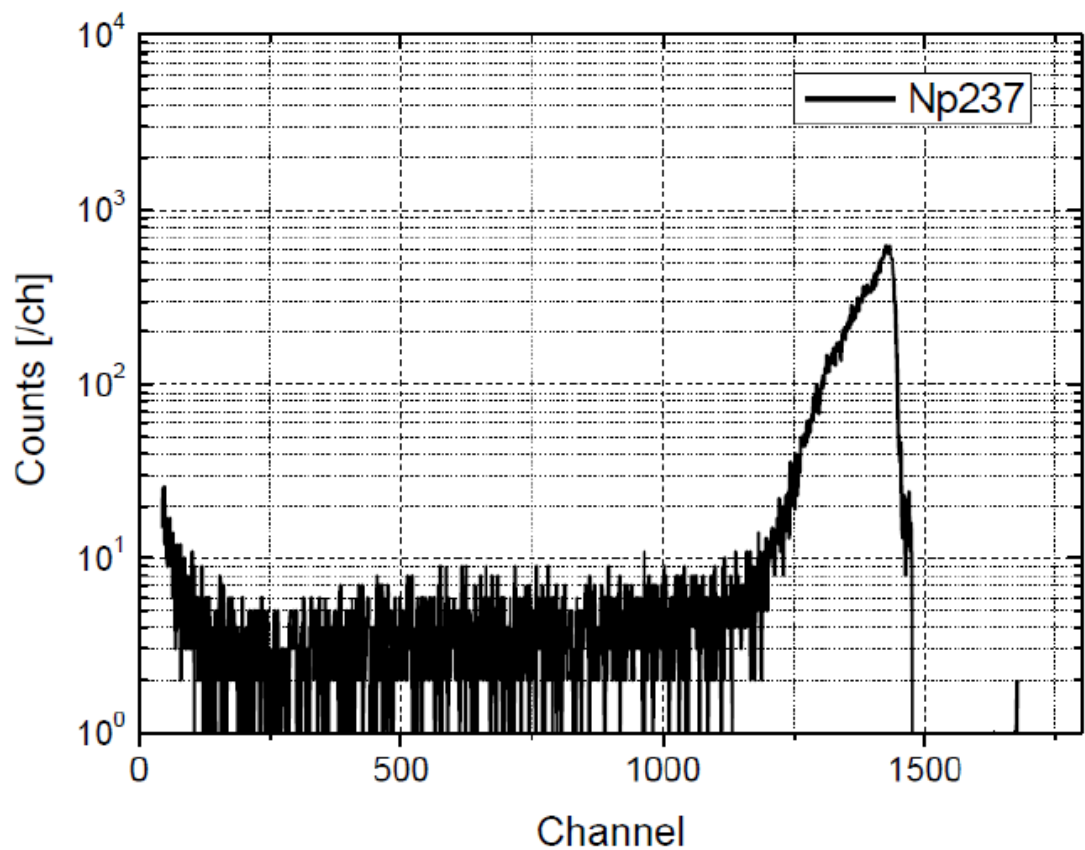


図 3-67 調製した Np-237 サンプルのアルファ線波高スペクトル

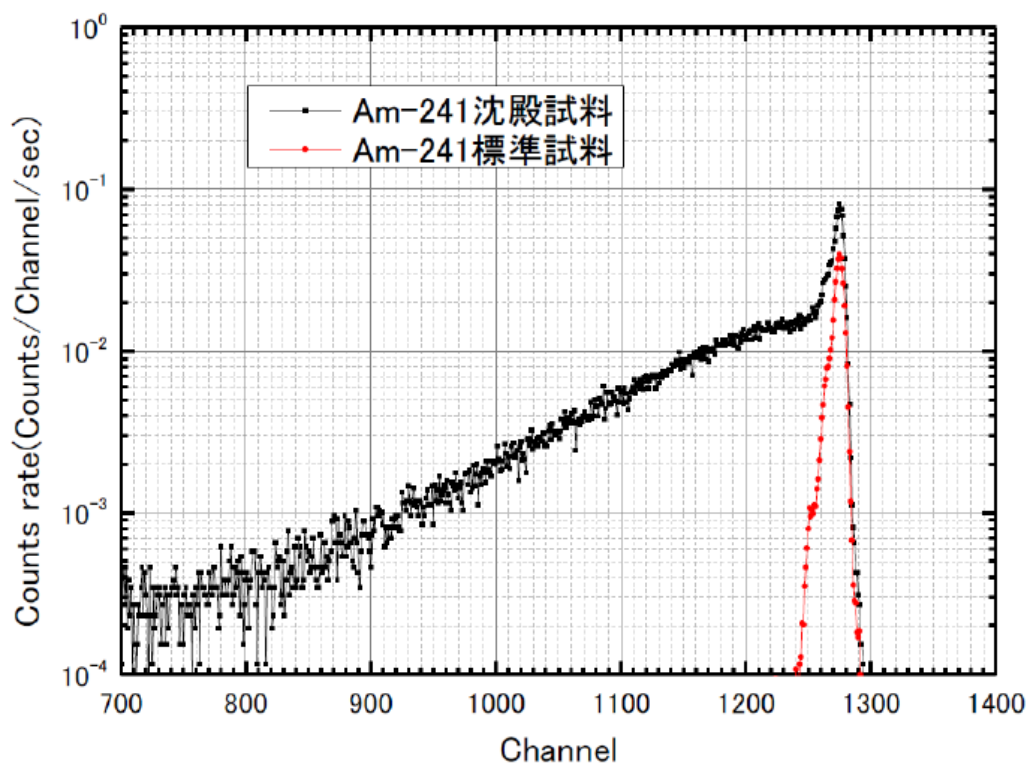


図 3-68 調製した Am-241 サンプルのアルファ線波高スペクトル
(黒線は Am-241 サンプル、赤線は Am-241 標準線源)

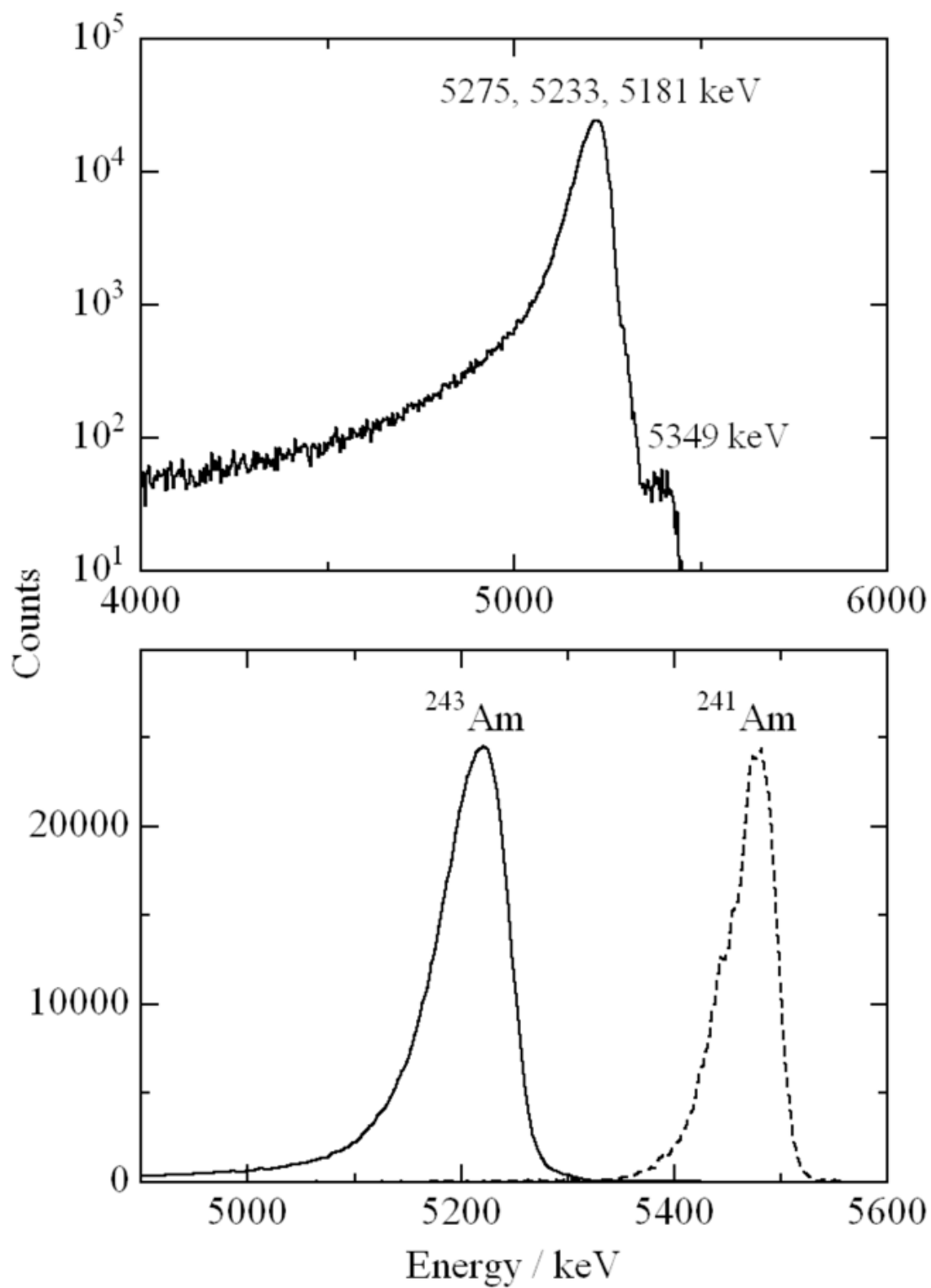


図 3-69 調製した Am-243 サンプルのアルファ線波高スペクトル
 (実線は Am-243 サンプル、点線は Am-241 標準線源)

3.3. 中性子全断面積測定を組み合わせた共鳴パラメータの高精度決定 (H25~H28)

3.3.1. J-PARC/MLF/ANNRI での測定

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、中性子核反応測定装置 ANNRI が開発・設置され、TOF 法を適用した核データ測定研究が実施されている。本研究では、J-PARC/MLF/ANNRI に中性子全断面積の測定体系の構築をし、Am-241, 243 等の MA 核種の中性子全断面積の測定に適用するとともに、中性子捕獲断面積の測定を実施する。得られた中性子断面積の解析を行う事で共鳴パラメータを高精度で決定する。

そのため、中性子遮蔽の強化、データ収集システムの整備、中性子全断面積測定体系の整備、及び Gd 濃縮同位体等を用いた予備測定を行い、これらの結果を反映させて Am-241, 243 の中性子捕獲断面積及び中性子全断面積の測定を行った。

(1) ANNRI ビームラインの概略

図 3-70 に ANNRI の全体図を示す。ANNRI には、飛行距離 21.5m の位置に Ge スペクトロメータが、飛行距離 28m の位置に NaI スペクトロメータが設置されており、中性子捕獲反応で発生する即発 γ 線を測定することで中性子捕獲断面積の測定が可能である。飛行距離 29m の位置には本事業で開発した Li ガラス検出器を設置し、その上流位置に試料を設置することにより、透過する中性子を計測する中性子全断面積の測定を可能とした。中性子ビーム径は、X ステージコリメータとロータリーコリメータの 2 種類の可変コリメータを利用することで試料に合わせて調整することが可能である。また、前のプロトンパルスで発生した遅い中性子をカットするためのディスクチョップが整備されており、S/N 比を改善することが可能である。

① Ge スペクトロメータ

飛行距離 21.5m の位置に Ge スペクトロメータが設置されている。Ge スペクトロメータの全体図を図 3-71 に示す。Ge スペクトロメータは 2 台の Cluster タイプ Ge 検出器、8 台の Coaxial タイプ Ge 検出器で構成される。また、それぞれの Ge 検出器はコンプトンサプレッサーとして用いる BGO 検出器を備えている。1 台の Cluster タイプ Ge 検出器には 7 個の Ge 結晶が内包されているため、Ge スペクトロメータは 22 個の Ge 結晶で構成される。散乱中性子による検出器のダメージを低減するため、検出器前面には 2cm 厚の濃縮 ${}^6\text{LiF}$ 焼結体及び 3.5cm 厚の濃縮 ${}^6\text{LiH}$ 粉末が設置されている。J-PARC MLF における様々な実験に対応するために検出器と試料間の距離は可変となっており、必要に応じて鉛の γ 線遮蔽を追加することも可能である。Ge スペクトロメータ全体での 1.33MeV の γ 線に対するピーク検出効率は $3.64 \pm 0.11\%$ である。

Ge 検出器の前置増幅器からの出力、及び BGO 検出器からのアノード出力は、本事業で開発したデータ収集系を用い、中性子飛行時間と信号波高情報を事象ごとに記録した。

② NaI スペクトロメータ

飛行距離 28m の位置に NaI 検出器が設置されている。図 3-72 に NaI スペクトロメータの全体図を示す。NaI スペクトロメータは中性子ビームから 90 度の位置に設置された直径 330 mm 長さ 203 mm の検出器と 125 度の位置に設置された直径 203 mm 長さ 203 mm

の 2 台の NaI 検出器から構成される。90° の検出器は 125° の検出器に比べて大きな立体角が取れるが、125° の検出器は E1 遷移の角分布の影響を殆ど受けないという特徴があるため、これらを必要に応じて使い分けることが出来る。また、各検出器は鉛、ボロン入りポリエチレン、LiH によって作られた遮蔽体の中に設置されている。NaI スペクトロメータは Ge スペクトロメータに比べて高速の時間応答をすること、さらに飛行距離が長い位置に設置されている理由から、より中性子エネルギーが高い領域での測定に適している。

(2) 中性子遮蔽材製作

中性子捕獲断面積測定におけるバックグラウンドの主成分は散乱中性子の影響であり、高精度な中性子捕獲断面積を得るためには中性子遮蔽の強化が必要となる。平成 25 年度設計を行い、平成 26 年度に、濃縮フッ化リチウム 6 の焼結中性子遮蔽材を製作し、Ge 検出器のビームダクト内部に設置した。

設置した遮蔽の評価を行うため、10mm φ、厚さ 1mm、重量 167.6mg の C-12 試料を Ge 検出器の試料位置に設置し、遮蔽材の有無でスペクトルの変化を調べた。図 3-73 に TOF スペクトルの変化を示す。中性子遮蔽を強化することで Al の即発 γ 線の影響は小さくなり、中性子捕獲断面積の小さい C-12 からの即発 γ 線が観測された。

(3) データ収集システム開発

ANNRI には Ge 検出器と NaI 検出器の二種類の検出器系が用意されており、中性子捕獲ガンマ線の測定により中性子捕獲断面積の共鳴解析が行われてきた。J-PARC 加速器のビームパワーの増大にともない ANNRI に供給される中性子ビームも強大となり、2014 年には施設稼働時に比べ 25 倍にも達した。そのため、検出器デッドタイム低減のためのデータ収集システムの高速化が喫緊の課題となっていた。さらに、本事業で整備された中性子全断面積測定体系については、データ収集システム自体の構築が新たに必要となった。以上のニーズに対応するため、新たにデータ収集システムの開発を行った。

① システム概要

本事業では、中性子捕獲断面積測定のための Ge 検出器系、及びあらたに事業内で整備された中性子全断面積測定のための体系((4)節にて詳述)に適用するためのデータ収集システムの整備を行った。同一のシステムで Ge 検出器による中性子捕獲断面積測定、リチウムガラスシンチレータ検出器による中性子全断面積測定といった異なる測定に柔軟に対応できるデータ収集系の構築を行った。

それぞれの検出器系に対しては、要求される性能が異なる。Ge 検出器は高いエネルギー分解能を達成する検出器であり、ADC にも高い波高値分解性能が要求される。反面、プリアンプの周波数特性から高速度の波形弁別には向いていないため、時間周波数はそれほど高い性能が要求されない。Li-glass 検出器は中性子ビームを直接観測する検出器であり、高いイベントレートが予想されるために波形パルスも速い時間応答性をもっているが、波高分解能は Ge 検出器よりも典型的に 2 桁ほど悪い。そのため ADC には、波高

値分解性能よりも高速性が要求される。以上二つの要請に応じるため、ADC は二種類準備した。一つは CAEN 社⁽¹⁸⁾製のフラッシュ型 ADC である v1724 であり、もう一つが同社製 v1720 である。それぞれの ADC の特性を表 3-20 に示す。v1724 は 14bit の高波高分解能型であり、Ge 検出器系に対して使用する。v1720 は 250MHz の高速な時間周波数をもっており、Li-glass 検出器系、及び Ge 検出器周囲にバックグラウンド低減目的で配置されている BGO 検出器に対して使用する。

② Ge 検出器系に対するデータ収集システムの性能試験

ANNRI での実験において Ge 検出器のデータ収集系に対して求められている性能は、Ge 検出器特有の高いエネルギー分解能が達成できること、及び高い計数率でも不感時間の少ないデータ収集ができることである。

1) エネルギー分解能

エネルギー分解能はノイズレベルやプリアンプのゲインなどさまざまな要因で決定されるが、回路の設定、特に波形整形時間と強い相関を持つ。最適な設定値を探索するため、ADC の波形整形時間と分解能の相関を測定した。Co-60 標準線源を用い、さまざまな波形整形の設定に対して 1333keV のピークに対するエネルギー分解能を測定した。図 3-74 に、波形整形時間とエネルギー分解能 (FWHM) の相関を示す。v1724 は波形整形時間のパラメータとして flat top と rise time の二種類が存在し、波形整形時間はその二つの値の和として表現される。図中のそれぞれの点は flat top と rise time の組み合わせを変化させながら分解能を測定した結果である。横軸が波形整形時間となっており、十分長い波形整形時間を与えると分解能は 3keV を下回る。1.5 μ 秒以下の波形整形時間では、分解能が急激に悪化する。2~3 μ 秒程度の整形時間で、分解能は安定した値に落ち着くことが確認された。

2) 不感時間

ADC ボードは、デジタル変換の起点となる信号を受け付けた時点で、定められた時間の間デジタル変換処理を行う。この定められた時間の間 true となる論理信号のことをゲート信号と呼ぶ。v1724 はピークホールド型であり、ゲート信号中のピーク最大値を読み取りデジタル化する。v1720 は電荷積分型であり、ゲート信号中パルス電荷をコンデンサに充電し、積分値を波高とみなす。ゲート信号中は次の信号を受け付けることができない。よって、ゲートが開く時間より、不感時間を見積もることができる。

Ge 検出器系に対して使用する v1724 は、ゲート中に次のパルスが来た場合、互いのパルスが一定時間以上接近していればパイルアップと処理し、波高値情報として 0 を出力する機能が内蔵されている。ゲート信号は二番目のパルスの影響で後ろ側に延長する拡張型の不感時間である。パイルアップ除去は単に波高値が 0 となっているイベントを排除すればよく、やはり拡張型の不感時間である。v1724 の不感時間割合の見積もりは、一貫して拡張型不感時間として扱うことができる。

図 3-75 に、Ge 検出器系に対する不感時間割合について示した。shaping time とエネルギー分解能はトレードオフの関係にあり、結果として不感時間とエネルギー分解

能もトレードオフとなる。5keV のエネルギー分解能を許容できる場合は、shaping time は図 3-74 に示すように 1 μ 秒程度でよく、100kcps でも 10%以下の不感時間とすることができる。shaping time を 3 μ 秒に設定した場合は、100kcps での不感時間は 20%以下に抑えつつ、3.5keV のエネルギー分解能での測定が可能である。

(4) 中性子全断面積体系の整備

本節では中性子全断面積測定系の整備、及び金サンプルを用いた試験について述べる。

① 中性子全断面積測定の原理

サンプルに対して中性子束を入射し、サンプル下流に設置した中性子検出器により中性子束を測定する。サンプルを設置した場合と取り除いた場合の計数率を同じ条件で測定し比較することにより、サンプルを透過した中性子の割合、即ち中性子透過率が導出できる。中性子透過率の導出には、高精度の較正が難しい検出効率と中性子束分布の両方がキャンセルされるため、サンプル中の物質密度が高精度に決定されていれば、中性子全断面積が精度よく決定される。よって、中性子全断面積の高精度決定のために必要なものは、以下のとおりとなる。

- 安定した中性子検出器
- サンプルの上流側及び下流側に配置するコリメータシステム
- サンプル中の物質密度の絶対値

ANNRI ビームラインには図 3-70 に示すように、ロータリーコリメータ及び中間コリメータと呼ばれる二種類のコリメータシステムが常設されており、測定サンプルはこの 2 つのコリメータの間に設置することができる。測定に用いる Am-241, 243 サンプルの物質密度は 3.2.2 節において詳述したように本事業内で高精度に決定されている。よって、中性子検出器を用いた中性子束測定体系を整備することで、Am-241, 243 の中性子全断面積が高精度に決定できる。

② 中性子検出器の整備

中性子検出器として、二種類の異なるタイプの Li-glass 検出器を整備した。一つは Li-6 濃縮 (~95%) のもの (Saint-Gobain 社製シンチレータ、GS20) で、もう一つは Li-7 濃縮 (99.99%) のもの (同社、GS30) である。Li-glass 検出器の高い中性子検出効率特性は Li-6 の中性子捕獲断面積が Li-7 に比べて非常に大きいことに依存しているため、Li-6 の含有量が圧倒的に少ない GS30 は GS20 に比べ中性子への感度が 1000 分の 1 程度と極めて低い。反してガンマ線への感度は濃縮されたイオンが同位体に依存しないため、検出器におけるガンマ線バックグラウンドの量を GS30 によって見積もることができる。

③ 金試料を用いた予備測定

Li-glass 検出器の中性子全断面積測定への適用性検証のため、金試料を用いた中性子全断面積測定を行った。金は安定同位体が Au-197 のみであり、高純度の金属試料が入手しやすく、さらに第一共鳴ピークが 2.7 万バーンと大きな断面積値を持つことから測定が比較的容易であるために、多くの文献で基準として使われており、測定体系の適用性検証にも適したサンプルである。

測定は 1mm 厚の金試料を 9mm 径の中間コリメータの上流側に取り付けて行った。ロータリーコリメータは 22mm 径とし、ビームライン上のガンマ線バックグラウンド低減のためにロータリーコリメータ下流部に 5cm の鉛ブロックを設置した。中性子束の測定のためにブランク測定も行い、両者の比をとることで中性子全断面積を導出した。図 3-76 に、金試料挿入時の Li-glass 検出器の波高スペクトルを示す。GATE と表示された領域にゲートをかけて得られた不感時間補正済み飛行時間スペクトルが図 3-77 となる。 2×10^5 ch 付近の谷が金の第一共鳴であり、1mm の金試料では中性子全吸収となっている。第一共鳴の谷底は GS30 によって見積もられるガンマ線バックグラウンド及び Frame 成分のみで構成されていることがわかる。

ANNRI ビームラインには 25Hz でパルス中性子が入射するが、Frame と呼ばれる 1 周期遅い中性子成分が飛行時間スペクトルの中に原理的に混じりこんでしまう。これを除去するために、J-PARC の特殊な運転パターンを使用することができる。J-PARC は ANNRI が設置された物質・生命科学実験施設だけでなく、ハドロン実験施設側にもビームを供給しており、133/137、53/58 などの一定のビーム分配比(実験により異なる)によって運転されている。このため、ビームが ANNRI まで分配されなかったトリガー信号は、次のトリガー信号までの時間が長周期となる。長周期のイベントには一周期遅い成分のみが含まれるため、長周期イベントだけを取り出すことで Frame イベントを分離することができる。図 3-78 に、Blank 試料の場合の Frame バックグラウンドを示す。

Blank 及び金試料の測定結果に対して、不感時間を補正し、GS-30 検出器から決定した γ 線バックグラウンド及び Frame バックグラウンドを差し引いた後、その割合から透過率スペクトルを得る。得られた透過率スペクトルを図 3-79 に示す。

透過率スペクトルより、試料中のサンプル面密度の情報をもとに反応の断面積を計算することができる。得られた断面積の実験値と JENDL-4.0 と比較した結果を図 3-80 に示す。熱領域から高速領域にかけて、JENDL-4.0 の結果を再現する結果が得られた。金試料の解析において過去の測定を再現する結果が得られたことから、中性子全断面積測定体系が正しく構築されたことが確認された。

(5) Gd 濃縮同位体を用いた中性子捕獲断面積の測定

測定体系の中性子捕獲断面積測定への適用性試験として、Gd 濃縮同位体等を用いた測定を行った。なお、Gd は原子炉での可燃性毒物や制御棒の材料として広く用いられる重要核種であるが、特に Gd-157 については報告データ間に大きな違いがあるという問題が指摘されており、信頼性あるデータの取得が望まれている核種の 1 つでもある。

① 測定体系

試料は濃縮同位体試料を硝酸ガドリニウム 6 水和物の結晶として、 $10\mu\text{m}$ 厚の Al 箔の上に $0.2\mu\text{m}$ 及び $2\mu\text{m}$ 積層させたものを用いた。試料製作時の厚みのばらつきを緩和するために、試料は 1 枚ではなく複数枚を重ね合わせて使用した。濃縮 Gd 同位体の同位体比は、平成 26 年度に京都大学にて質量分析器による測定を行い高精度に決定した。測定に使用した濃縮 Gd 試料の面密度を表 3-21 に示す。中性子捕獲断面積の測定は Ge スペク

トロメータと NaI スペクトロメータの両方を用いて行った。

Ge スペクトロメータの測定では Gd-157 20 μ m 試料及び Gd-155 16 μ m 試料を Ge 検出器の試料位置（飛行距離=21.5m）に設置し、本事業で開発したデータ収集系を用い、約 20 時間測定を行った。また、B. G. の導出するため、試料無し（ブランク）及び Pb-208 試料の測定を約 4 時間行った。

NaI スペクトロメータの測定では飛行距離 28m の位置に表 3-22 で示す試料を設置して測定を行った。各試料の測定時間も表 3-22 に示す。

測定時の J-PARC/MLF の運転状況はプロトンビーム出力 500kW で Double-Bunch であった。また、飛行距離 12.5m の X-stage コリメータは 15mm ϕ 、飛行距離 20m のロータリーコリメータは 15mm ϕ を選択し、37.5mm 厚の Pb を中性子フィルタとして挿入した。

② 解析手法

中性子捕獲断面積測定試験では絶対値を導出するために、厚い試料と薄い試料の 2 種類の試料の測定結果を利用した。不感時間やバックグラウンドの差引を行った後の薄い試料と厚い試料の収量の比 $R(E_n)$ は、Gd-155, 157 は中性子散乱断面積が中性子捕獲断面積に比べて小さく散乱の寄与が無視できるため、(1) 式で表される。

$$R(E_n) = \frac{\varphi(E_n) \times k_{Gd} \times (1 - \exp(-\sigma(E_n)N_{thin}))}{\varphi(E_n) \times k_{Gd} \times (1 - \exp(-\sigma(E_n)N_{thick}))} = \frac{1 - \exp(-\sigma(E_n)N_{thin})}{1 - \exp(-\sigma(E_n)N_{thick})}$$

(数式 3-13)

ここで、 E_n は中性子エネルギー、 $\varphi(E_n)$ は中性子束、 k_{Gd} は Gd からの即発 γ 線の検出効率、 $\sigma(E_n)$ は中性子捕獲断面積、 N_{thin} 、 N_{thick} は各々の試料の面密度である。このように、比を取ることで、大きな誤差要因となる中性子束や検出効率がキャンセルされ、高精度に絶対値を導出できる。

0.1eV 以上については、イベント量の多い Ge スペクトロメータでの測定結果を利用し、得られた相対断面積を NaI スペクトロメータで得られた結果に 0.02~0.03eV で規格化し、中性子捕獲断面積を導出することとした。

③ 測定結果

(数式 3-13) を用いて中性子捕獲断面積の絶対値を導出した結果を図 3-81 に、0.2~0.3eV で規格化した高エネルギー側の Gd-155, 157 の中性子捕獲断面積を図 3-82 に示す。0.0253eV の辺りの絶対値は評価値とよく一致するが、前後での形状は NaI スペクトロメータでの測定でも、Ge スペクトロメータでの測定値も評価値（JENDL-4.0）と異なる結果となった。なお、JENDL-4.0 の値は ANNRI の中性子の時間分布⁽¹⁾の影響を考慮したものである。

表 3-23 に熱中性子 ($E_n=0.0253$ eV) での中性子捕獲断面積の測定結果及び誤差を評価値（JENDL-4.0）及び、Møller⁽²⁰⁾、Leinweber⁽²¹⁾ らの測定結果と比較して示す。熱中性子での測定結果は評価値や Møller らの結果とはよく一致し、Leinweber らの結果とは一致しなかった。また、測定誤差は系統誤差を含め 2.1~2.4% となり、本測定により Gd 同位体の中性子捕獲断面積を高精度で決定した。

(6) Am-241 の測定

Am-241 の中性子全断面積及び中性子捕獲断面積の測定を J-PARC/MLF/ANNRI で実施した。加速器はシングルバンチモードで運転され、MLF の核破砕中性子源に入射した陽子ビームの出力は 195 kW だった。

① Am-241 の中性子捕獲断面積測定

中性子捕獲断面積は飛行距離 21.5 m にある Ge 検出器で測定した。Am 試料から放出される 59.5 keV の崩壊ガンマ線を低減するために、Ge 検出器の前面に厚さ 5 mm の鉛シートを設置した。Am 試料、Am ダミー試料、中性子散乱体である Pb-208 試料、試料を置かない Blank、中性子エネルギースペクトル導出のためのボロン試料を測定した。

ダミー試料の測定から、Am 試料のアルミケースと酸化イットリウムによるバックグラウンドを見積もった。また、Pb-208 試料の測定から試料で散乱された中性子に起因するバックグラウンドを見積もった。バックグラウンドを差し引くことで得られた Am-241 試料の正味の TOF スペクトルを入射中性子束のエネルギースペクトルで除すことで、Am-241 の中性子捕獲断面積を導出した。

解析では、Am-241 試料の捕獲イールドを求めるために、Ge 検出器で得たガンマ線波高スペクトルに対して波高重み法を適用した。波高重み法とは、検出器で測定した捕獲ガンマ線の波高スペクトルにガンマ線のエネルギーの関数である重み(重み関数)を掛けて積分することで、捕獲反応が起きた数(捕獲イールド)が得られる手法である。

図 3-83 に Am-241 試料、Am ダミー試料、Pb-208 試料、Blank の TOF スペクトルを示す。Am-241 の 0.31 eV 第一共鳴は 3×10^5 ch に観測されており、 10^4 ch (260 eV) まで共鳴が観測された。一方、Am ダミー試料の TOF スペクトルにおいては、希釈剤として密封された Y-89 の 2.6 keV 共鳴が 3.5×10^3 ch に観測されている。

不感時間補正後、Am 試料の TOF スペクトルから以下のバックグラウンド差し引いた、①Am 試料の酸化イットリウムやアルミケースによるバックグラウンド、②試料で散乱された中性子によるバックグラウンド、③フレームオーバーラップバックグラウンド、④試料の崩壊ガンマ線によるバックグラウンド。Am-241 試料における中性子の自己遮蔽・多重散乱の補正は PHITS を用いたモンテカルロシミュレーションで計算した。

最終的に Am-241 の熱中性子捕獲断面積 707 ± 32 b を得た。図 3-85 に Am-241 の中性子捕獲断面積を示す。また、図 3-86 に Am-241 の第一共鳴と第二共鳴の拡大図を示す。誤差の内訳として、TOF スペクトルの統計誤差、重み関数の誤差、中性子スペクトルの誤差、Au-197 断面積標準の誤差、デッドタイム補正の誤差、PH スペクトルの外挿補正、中性子の自己遮蔽・多重散乱の誤差、核分裂に対する補正の誤差、試料の絶対量の誤差を考慮した。今回得られた測定値を JENDL-4.0 と比較すると、JENDL-4.0 の熱中性子捕獲断面積は 3.1%小さいという結果を得た。第一共鳴と第二共鳴の比較では、さらに大きな差異のあることが示されている。なお、Am-241 試料の同位体純度は 99.9%であり、0.1%含まれている Pu-240 の第一共鳴が、Am-241 の 1.27 eV 第三共鳴の低エネルギー側に観測されている。

② Am-241 の中性子全断面積測定

Am-241 の中性子全断面積の測定では、3.3.1(4)で整備した GS20 及び GS30 Li-glass 検出器を設置した。Am 試料は中間コリメータ最上流に設置し、ロータリーコリメータ 22 mm ϕ 、X-stage は空の条件で実験を行った。中間コリメータの直径は 9 mm ϕ のため、直径 10 mm ϕ の Am 試料を透過した中性子の TOF スペクトルが得られる。また、Li-glass 検出器で得られた中性子 TOF スペクトルにおけるバックグラウンドを見積るために、中性子ノッチフィルタ(Mn, Co, In, Ag)を用いた測定を行った。

図 3-87 に Am 試料の透過中性子 TOF スペクトルを示す。横軸は ch 数(1ch=4ns)、縦軸は ch あたりのカウントを中性子源に入射した陽子ビームパルスの数(shot 数)とビン幅で除することで規格化している。GS20 検出器の TOF スペクトルにおいて、 10^6 ch 付近にある谷は Am-241 の第一共鳴(0.31 eV)によるものである。更に、 7×10^5 ch に Am-241 の第二共鳴(0.57 eV)による谷が観測されている。図 3-88 に得られた Am-241 の中性子全断面積を示す。Am-241 の熱中性子に対する中性子全断面積は 730 ± 21 b となった。

(7) Am-243 の測定

Am-241 の測定と同様に Am-243 の中性子全断面積及び中性子捕獲断面積の測定を J-PARC/MLF/ANNRI で実施した。加速器はシングルバンチモードで運転され、MLF の核破砕中性子源に入射した陽子ビームの出力は 195 kW だった。Am-243 試料は 3.2.2 項で高精度に放射能を決定した 240MBq、120MBq、60MBq の 3 種類の試料を用いた。

① Am-243 中性子捕獲断面積の測定

中性子捕獲断面積は飛行距離 21.5 m に設置された Ge 検出器を用いた。Am-241 試料と異なり Am-243 試料では娘核の Np-237 の崩壊 γ 線のエネルギーが 277keV 等と高いため、遮蔽を強化する必要があり、Ge 検出器の位置を下げて厚さ 5cm の鉛ブロックを検出器前面に設置した。ロータリーコリメータを 22mm ϕ 、X-stage コリメータを空に設定し、直径 10mm の Am-243 試料全体に中性子ビームが照射される条件で測定を実施した。試料は Ge 検出器の測定位置(L=21.5m)に設置し、サンプルチェンジャー内は He 雰囲気下に設定した。Am 試料のほかに Am ダミー試料、中性子散乱体である Pb-208 試料、試料を置かない Blank、中性子エネルギースペクトル導出のためのボロン試料の測定を行った。測定の結果得られた TOF スペクトルを図 3-89 に示す。

Am-241 試料の測定と同様の手法でバックグラウンドを導出し、最終的に得られた Am-243 試料の正味の TOF スペクトル(捕獲イールド)を図 3-90 に、図 3-91 に Am-243 の第 3 共鳴付近での 60MBq 及び 120MBq 試料の 240MBq 試料に対する比を示す。Am-241 試料と異なり、240MBq 試料の第 3 共鳴における吸収量は 80%程度となっており、図 3-91 にあるように、直線性が崩れている。そのため、比をとることで、Gd-157 の場合と同じく(数式 3-13)から第 3 共鳴の断面積の絶対値を得ることができる。図 3-92 に(数式 3-13)を用いて導出した、Am-243 の第 3 共鳴付近での中性子捕獲断面積を誤差の成分と一緒に示す。60MBq の試料では 1.3~1.4eV で積分すると誤差は 1.6%となり、非常に高精度に断面積を導出することができた。

Am-243 の解析では、B-10 試料の結果より中性子束を導出して相対値を求め、上で導出した第 3 共鳴の中性子捕獲断面積を用いて規格化を行った。規格化に際しては、自己吸収の補正の際に発生する誤差を低減するため、まず、自己吸収の補正が小さい 60MBq の試料について、Am-243 の第 3 共鳴で 60MBq の結果を用いて規格化を行った。その後、120MBq、240MBq の相対値を第 4 共鳴で 60MBq の断面積を用いて規格化した。このように規格化を施した Am-243 の中性子捕獲断面積の測定結果を図 3-93、図 3-94、図 3-95 に示す。今回測定した 60MBq、120MBq、240MBq の試料での測定結果はよく一致した。また、240MBq、60MBq の試料で得られた中性子捕獲断面積と評価値 JENDL-4.0 と比較した結果を図 3-96 に示す。スペックシートや α 線分析で見出されなかった核種に起因すると考えられる共鳴が観測され、これを解析して Pu-240 が 0.7%程度、Pu-239 が 0.6%程度混入していることがわかった。

60MBq 試料、240MBq での各誤差要因の大きさを図 3-97 及び図 3-98 に示す。240MBq 試料の場合の第 3 共鳴での誤差の主因は規格化誤差(4.4%)で全誤差は 5.0%、60MBq 試料の場合でも誤差の主因は規格化誤差(2.6%)で全誤差は 2.9%であった。

② Am-243 中性子全断面積の測定

Am-243 の中性子全断面積の測定では、Am-241 の測定と同じく 3.3.1(4)で整備した GS20 及び GS30 Li-glass 検出器を利用した。Am 試料は中間コリメータ最上流に設置し、ロータリーコリメータ 22 mm ϕ 、X-stage は空の条件で実験を行った。測定には公称値 240MBq の Am-243 サンプルを用い、Am-243 の中性子全断面積を 4meV \sim 100eV の範囲で導出した。測定によって得られた結果及び誤差を図 3-99 に示す。Pu-240 については不純物量についての定量測定が存在しないため、モル比 0.7%を仮定してプロットした。また、統計精度の制約により、Pu-239 の混入の有無を確認することはできなかった。評価値である JENDL-4.0 と比較した場合、共鳴エネルギーが低エネルギー側にずれていること、及び熱中性子近傍のテールの形状が異なっていることがわかった。これらの傾向は中性子捕獲断面積の測定でも観測されている。

表 3-20 ADC の諸特性

	V1724	V1720
検出器	Ge 検出器	BGO 検出器、 Li-glass 検出器
clock	100MHz	250MHz
分解能	14bit	12bit
デジタル化方式	ピークホールド型	電荷積分型
チャンネル数	8ch	8ch
信号入力方式	同軸 50Ω	差動 100Ω

表 3-21 予備測定に利用した Gd 試料の面密度

核種	厚さ	試料枚数	Gd-157 (atom/cm ²)	Gd-155 (atom/cm ²)
Gd-157	0.6μm	3	1.72±0.03E+18	5.72±0.99E+15
	1μm	5	2.72±0.04E+18	8.95±0.99E+15
	1.2μm	6	3.19±0.04E+18	1.06±0.01E+16
	20μm	10	5.47±0.01E+19	1.82±0.02E+17
Gd-155	0.6μm	3	2.13±0.04E+16	1.71±0.03E+18
	1μm	5	3.55±0.04E+16	2.80±0.03E+18
	16μm	8	5.42±0.01E+17	4.73±0.01E+19

表 3-22 NaI スペクトロメータでの測定時間

試料	厚さ	測定時間 (h)
Gd-157	0.6 μm	5.5
Gd-157	1.2 μm	15.2
Gd-157	20 μm	14.8
Gd-155	0.6 μm	3.8
Gd-155	16 μm	3.7
ブランク		3.8
Al	50 μm	3.8

表 3-23 0.0253eV での中性子捕獲断面積及び誤差

1 σ	Gd-157 600nm		Gd-157 1200nm		Gd-155 600nm	
	+Err.	-Err.	+Err.	-Err.	+Err.	-Err.
統計誤差 (不感時差補正誤差含む)	2.1×10^3	2.0×10^3	1.8×10^3	1.8×10^3	1.5×10^3	1.4×10^3
試料厚みのばらつき	2.4×10^3	0.6×10^3	2.2×10^3	0.6×10^3	1.0×10^3	0.3×10^3
重量の誤差 (はかりの性能から)	4.2×10^3		3.1×10^3		2.5×10^3	
試料設置の誤差 (2mm の傾きを想定)		4.4×10^3		4.6×10^3		0.9×10^3
Total	5.2×10^3	6.5×10^3	5.1×10^3	6.5×10^3	3.1×10^3	3.1×10^3
Cross Section	253.1×10^3	$+5.2 \times 10^3$	249.4×10^3	$+5.1 \times 10^3$	61.8×10^3	$+3.1 \times 10^3$
		-6.5×10^3		-6.5×10^3		-3.1×10^3
JENDL-4.0	253.2×10^3				60.7×10^3	
Møller et. al. (20)	$254 \pm 2 \times 10^3$				$60.6 \pm 0.5 \times 10^3$	
Leinweber et al. (21)	226×10^3				60.2×10^3	

表中の単位は全て[b]

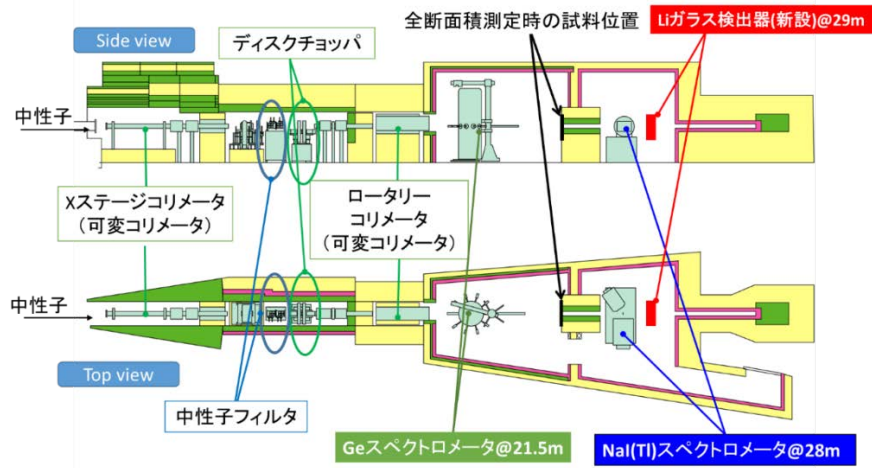


図 3-70 ANRI の全体図

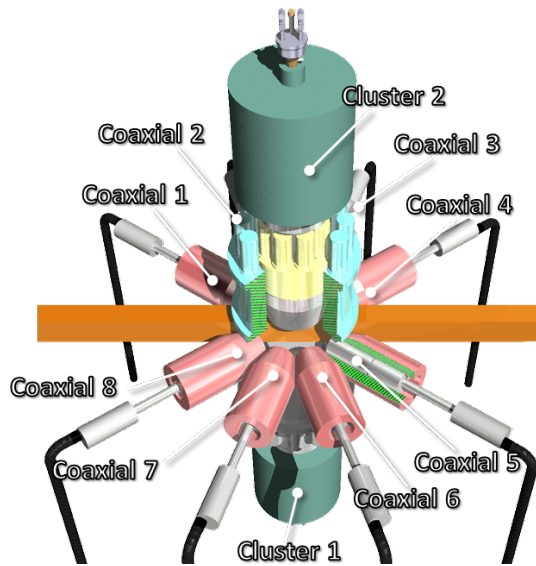


図 3-71 Ge スペクトロメータの概念図

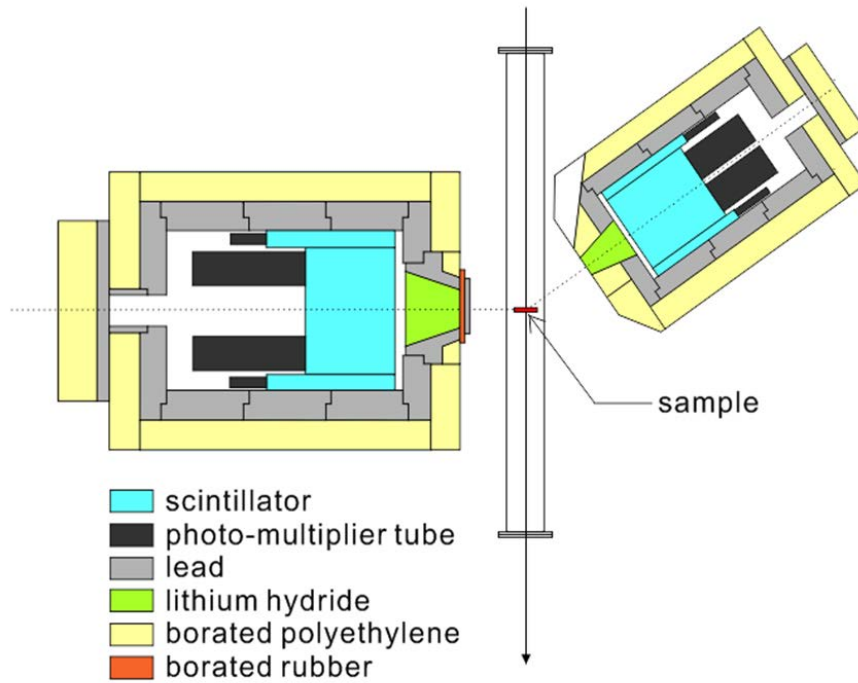


図 3-72 NaI スペクトロメータの全体図

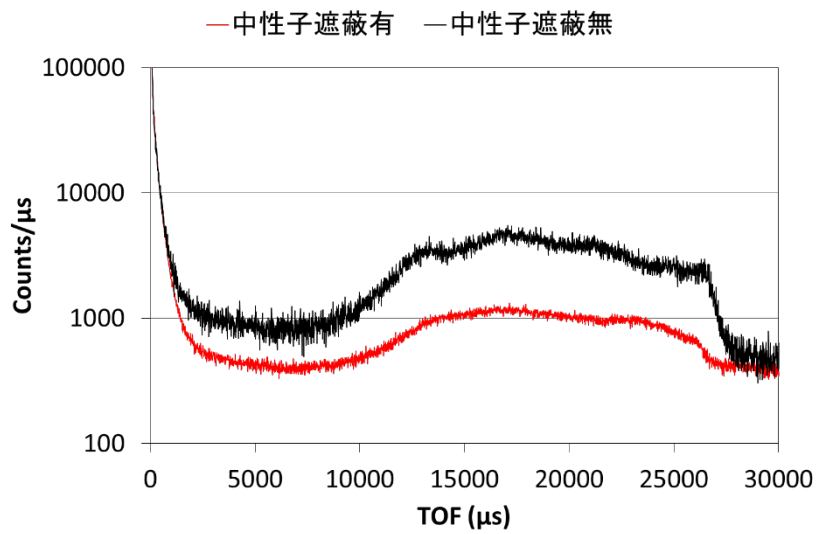


図 3-73 中性子遮蔽の有無による TOF スペクトルの違い

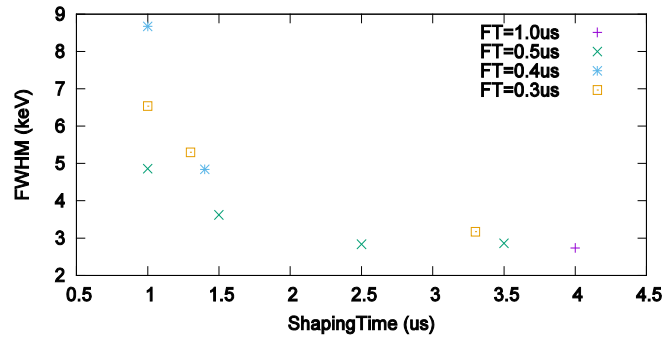


図 3-74 波形整形時間とエネルギー分解能の相関

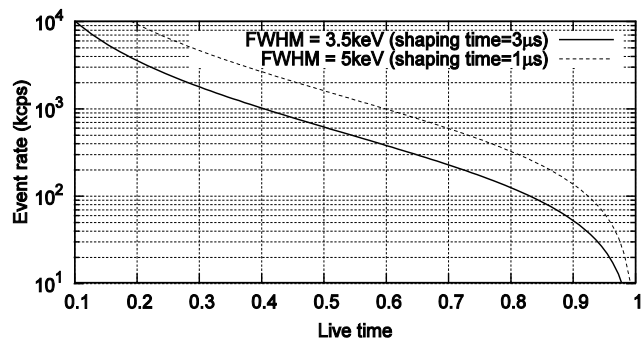


図 3-75 shaping time が 3 μ 秒と 1 μ 秒での Ge 検出器の不感時間とイベントレートの関係

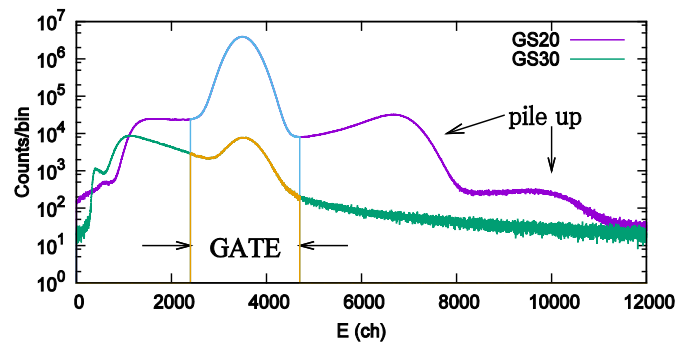


図 3-76 金試料での中性子全断面積測定実験時の波高スペクトル

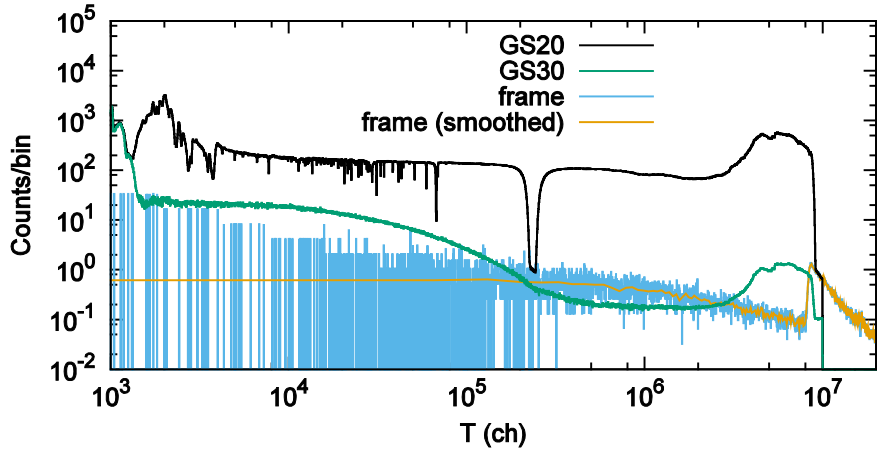


図 3-77 金試料の中性子成分にのみゲートをかかけた飛行時間スペクトル

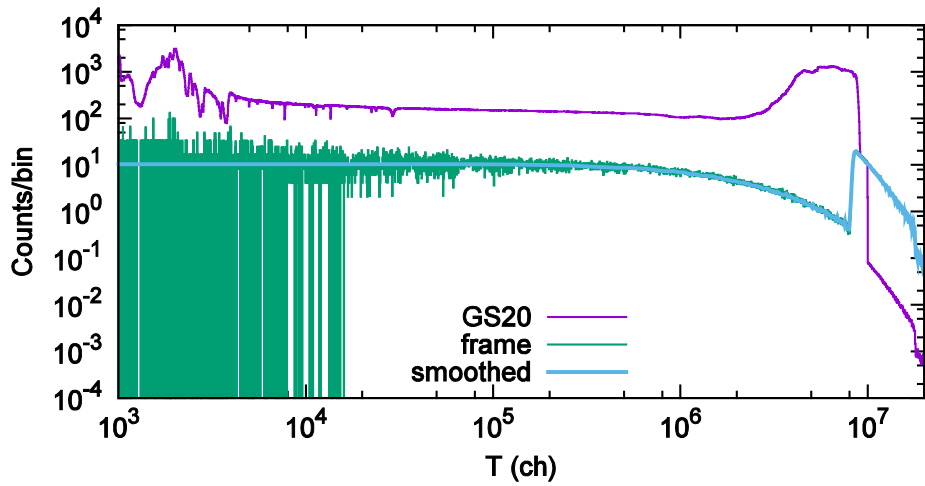


図 3-78 Blank 試料の場合の Frame バックグラウンド

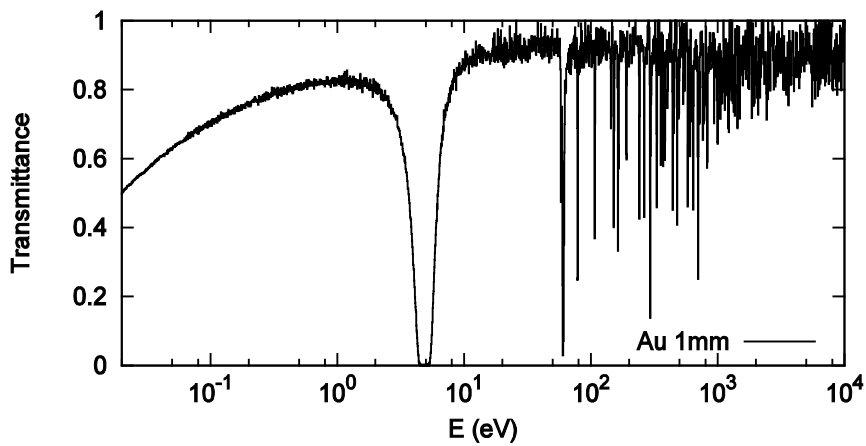


図 3-79 1mm 金試料を用いた透過率スペクトル

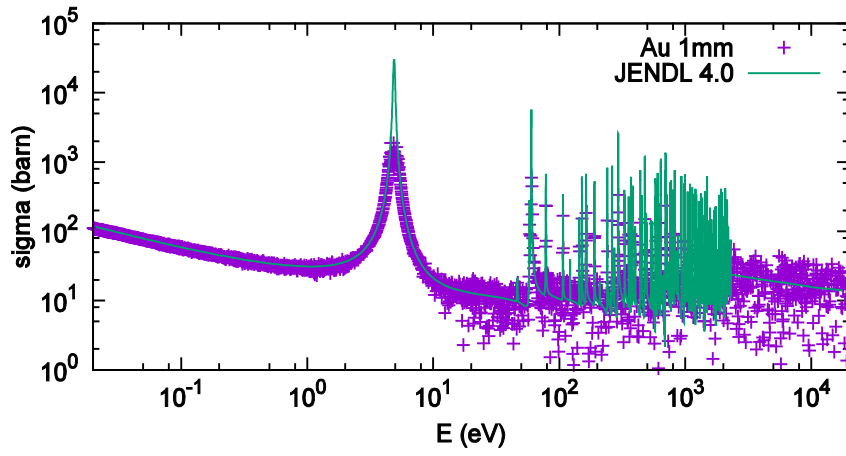
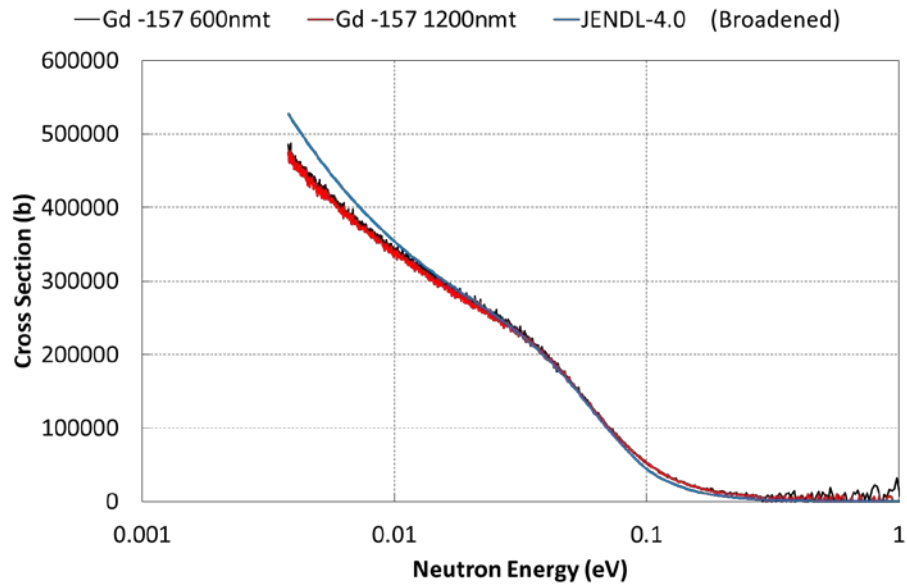
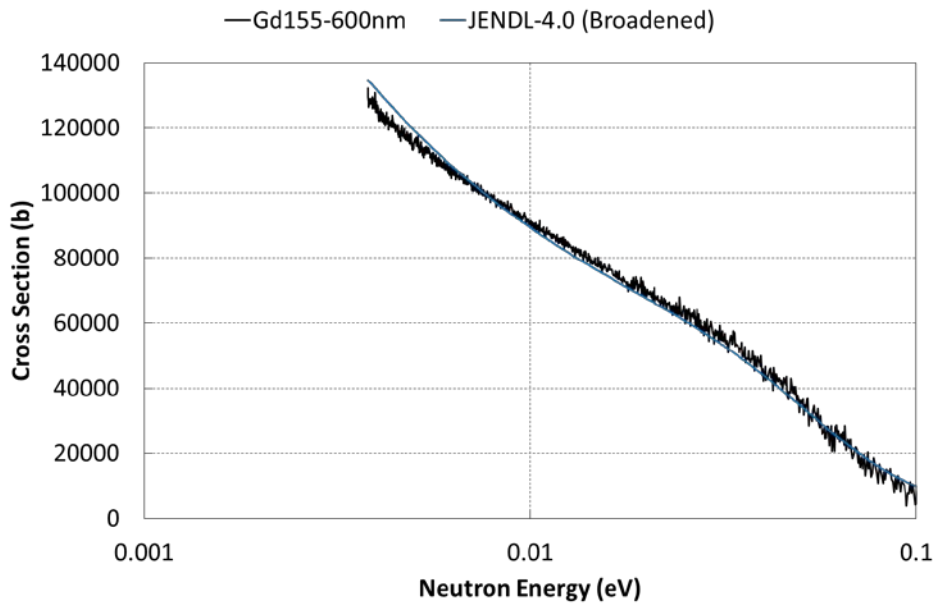


図 3-80 測定された金の中性子全断面積



(a) Gd-157



(b) Gd-155

図 3-81 低エネルギー側の Gd-155, 157 の中性子捕獲断面積

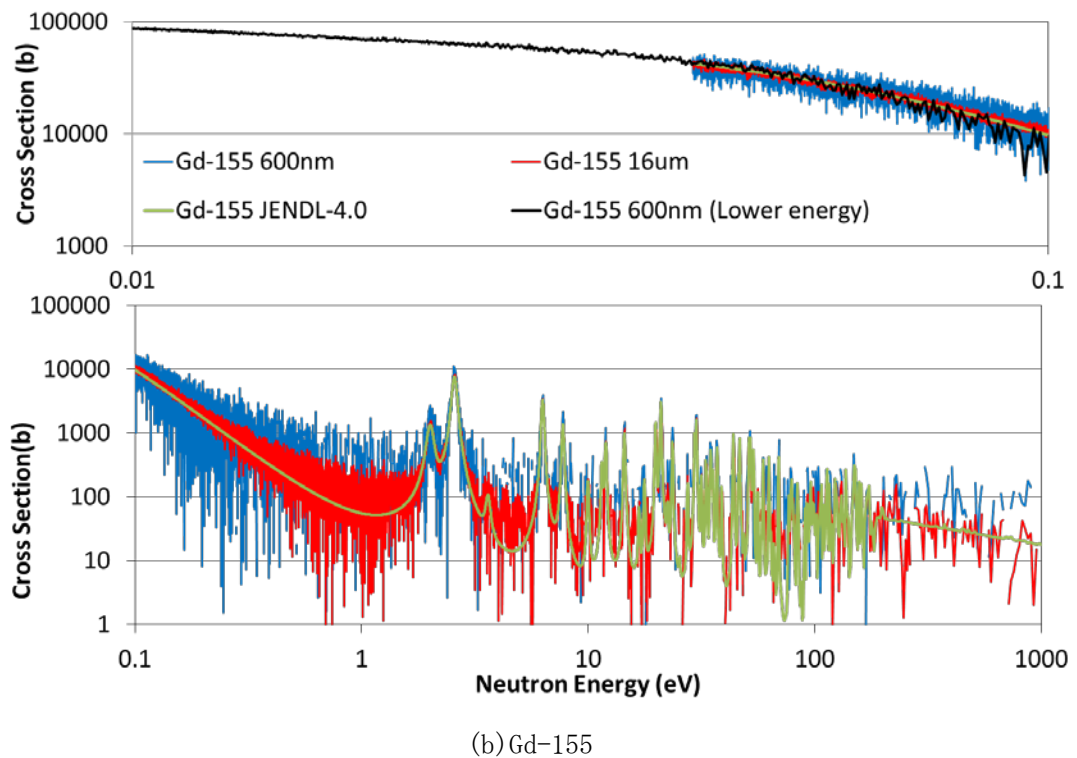
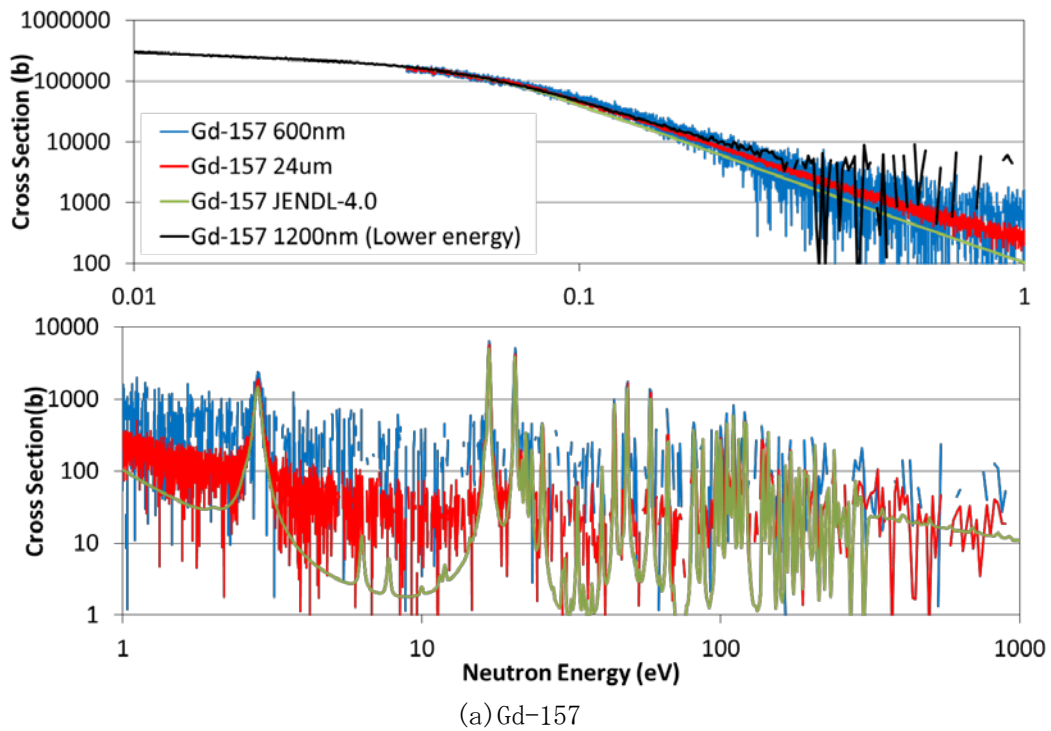


図 3-82 0.2~0.3eV で規格化した高エネルギー側の Gd-155, 157 の中性子捕獲断面積

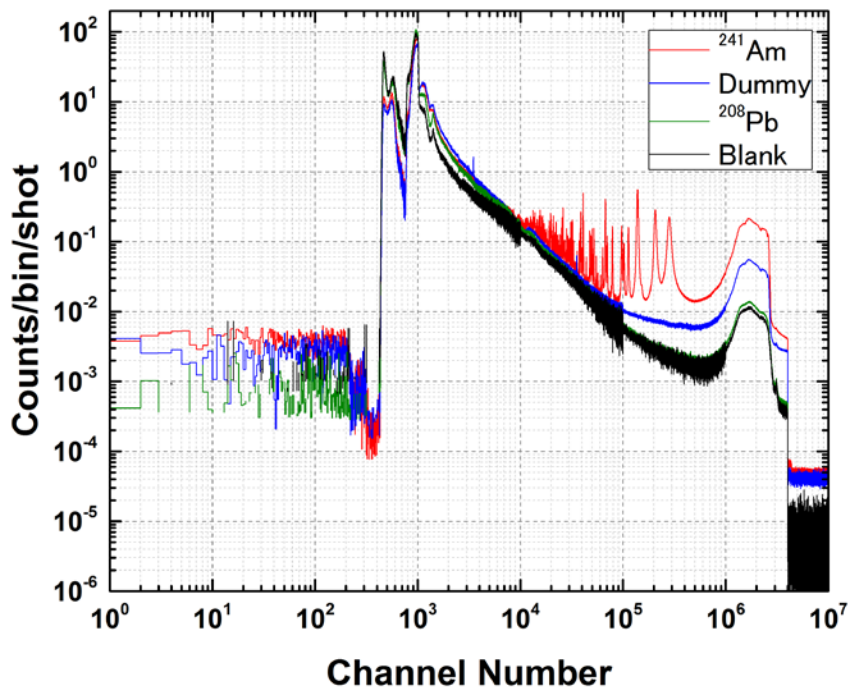


図 3-83 Am-241 試料、Am ダミー試料、Pb 試料、Blank の TOF スペクトル

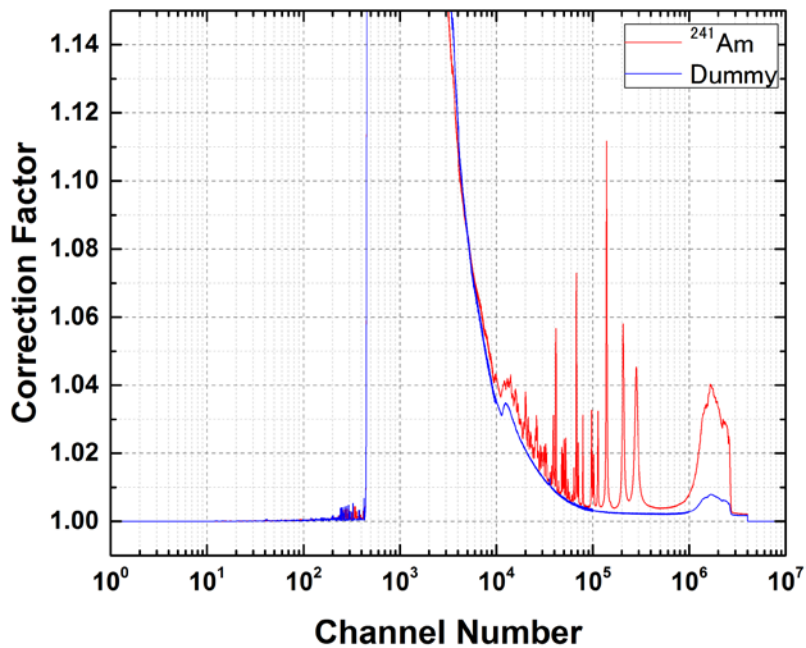


図 3-84 Am-241, Am ダミー試料の TOF スペクトルにおけるデッドタイム補正量

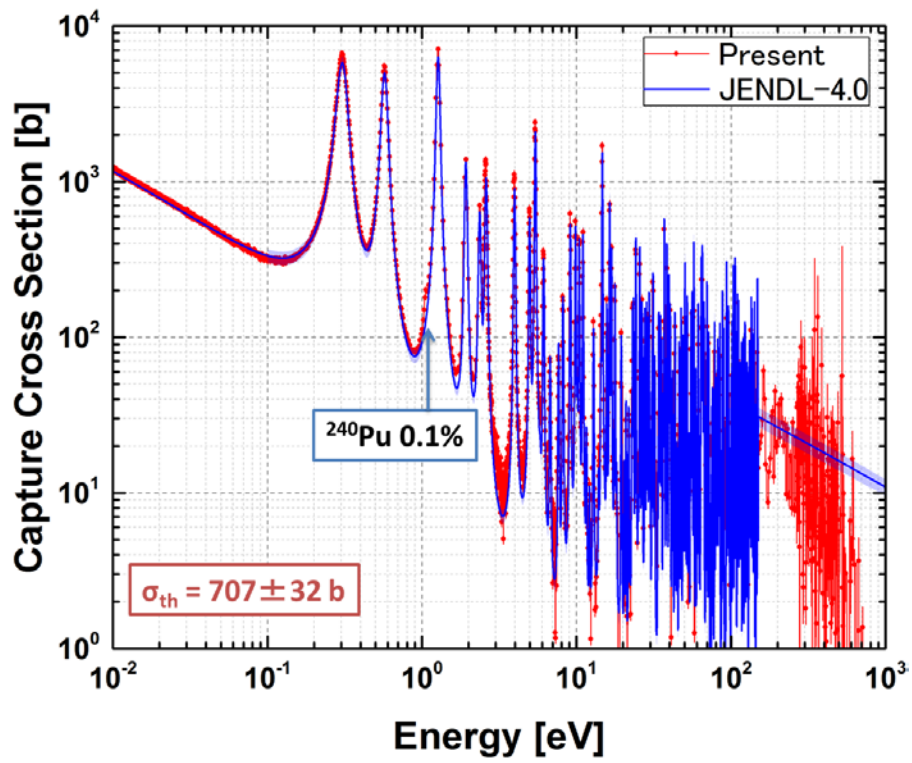


図 3-85 Am-241 の中性子捕獲断面積

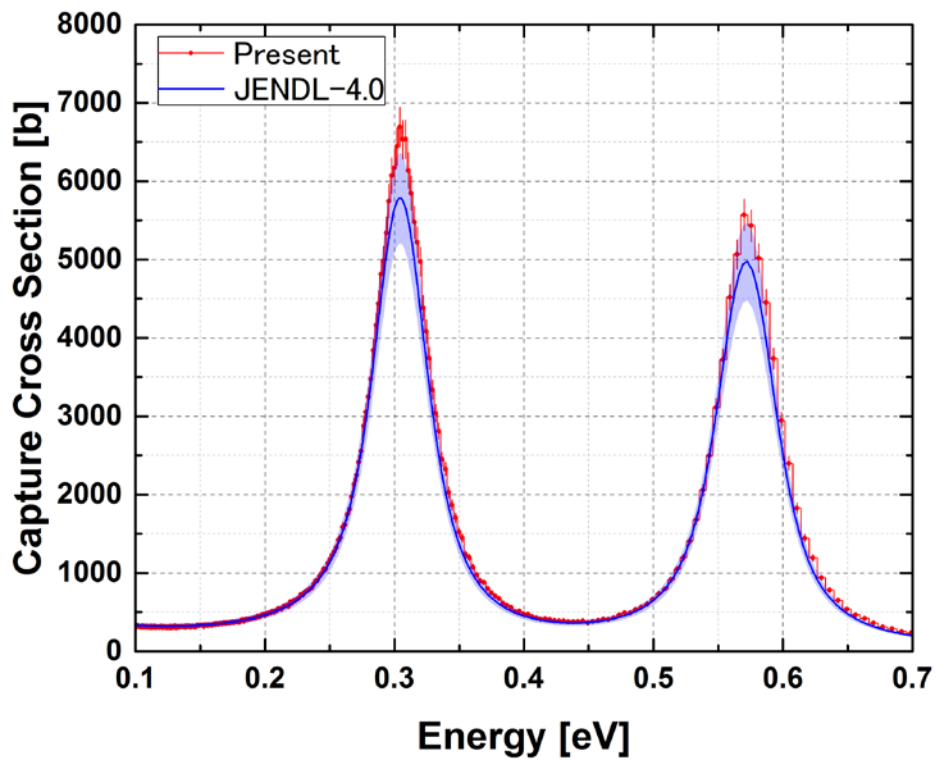


図 3-86 Am-241 0.31 eV 及び 0.47 eV 共鳴の中性子捕獲断面積

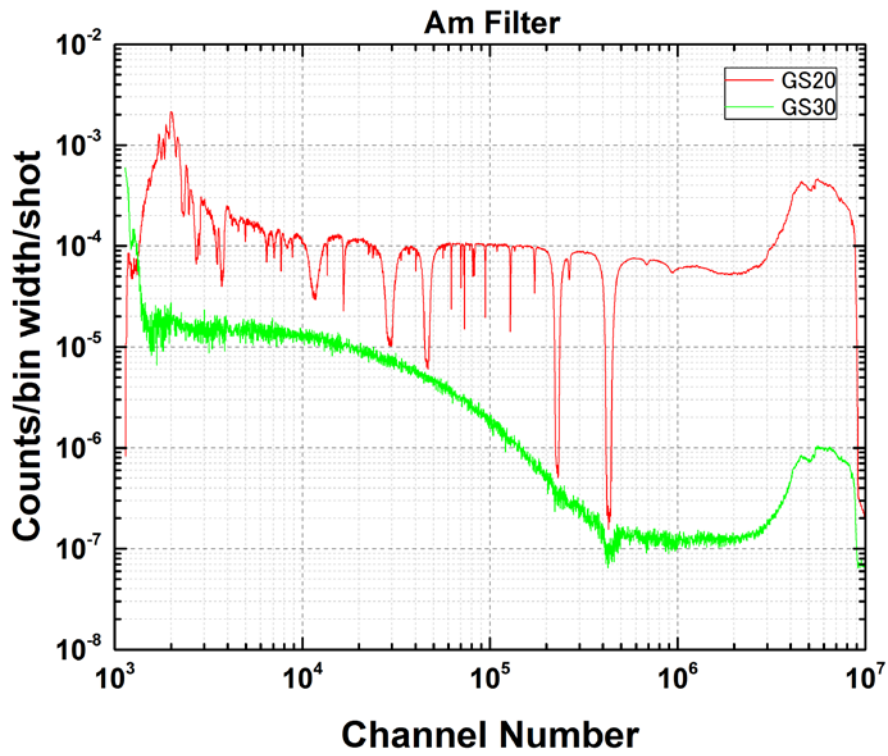


図 3-87 Am 試料の TOF スペクトル

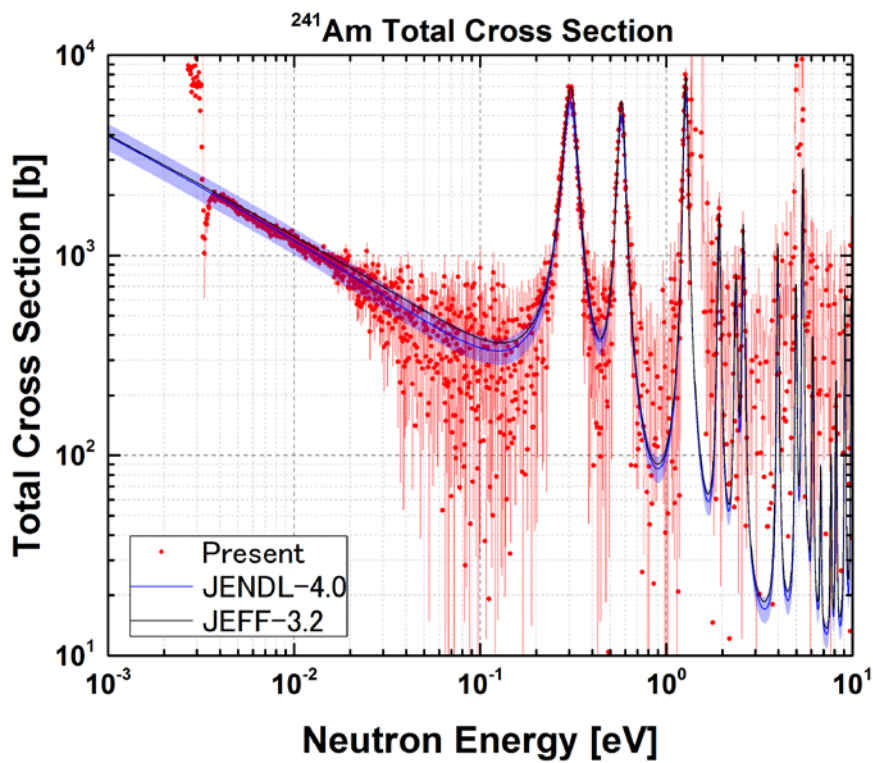


図 3-88 Am-241 の中性子全断面積

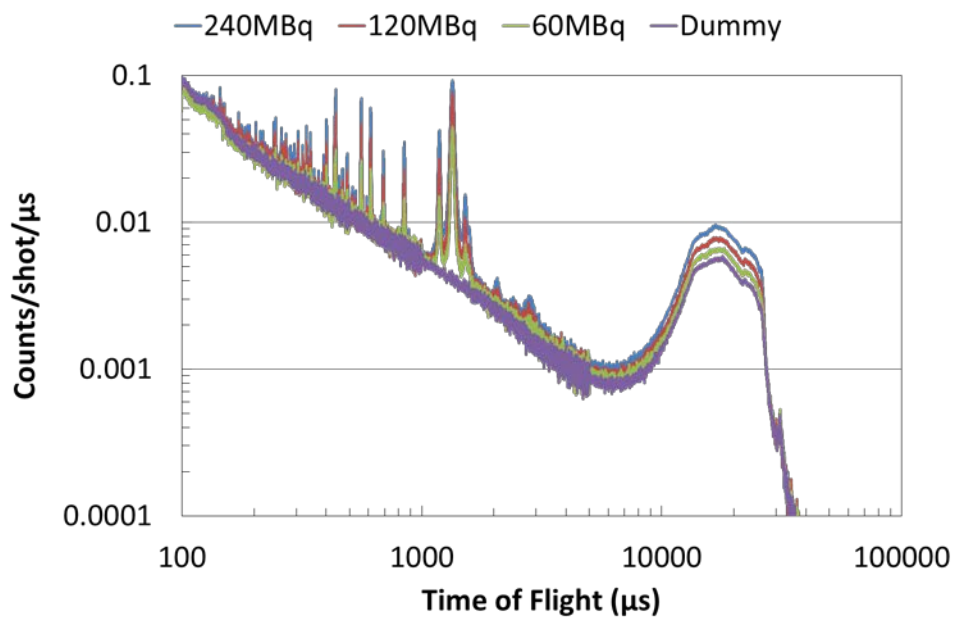


図 3-89 Am-243 試料での TOF スペクトル

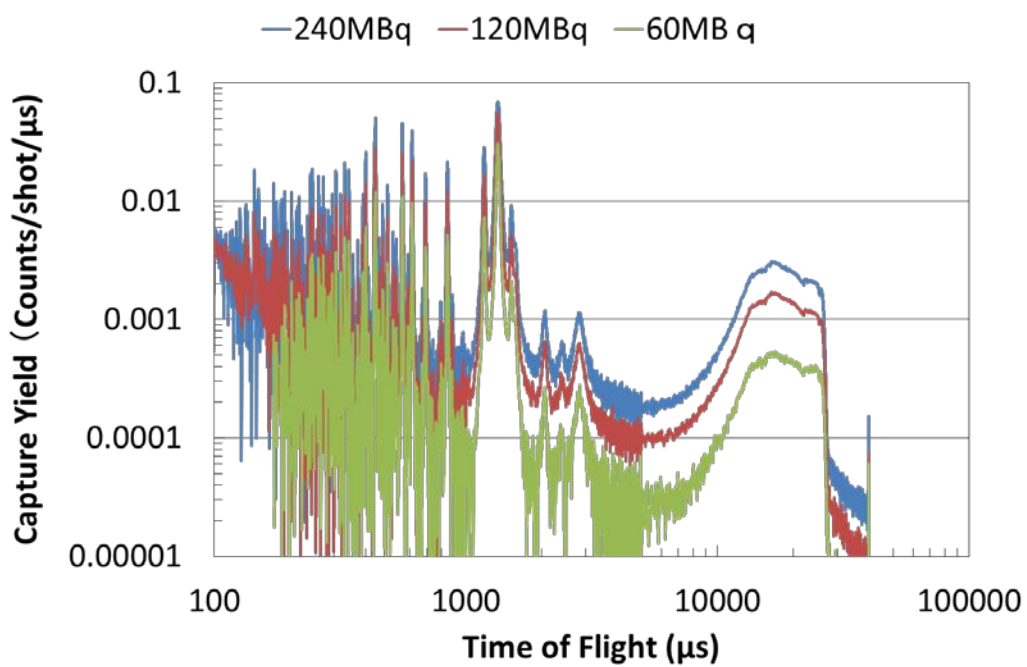


図 3-90 Am-243 試料の捕獲イールド

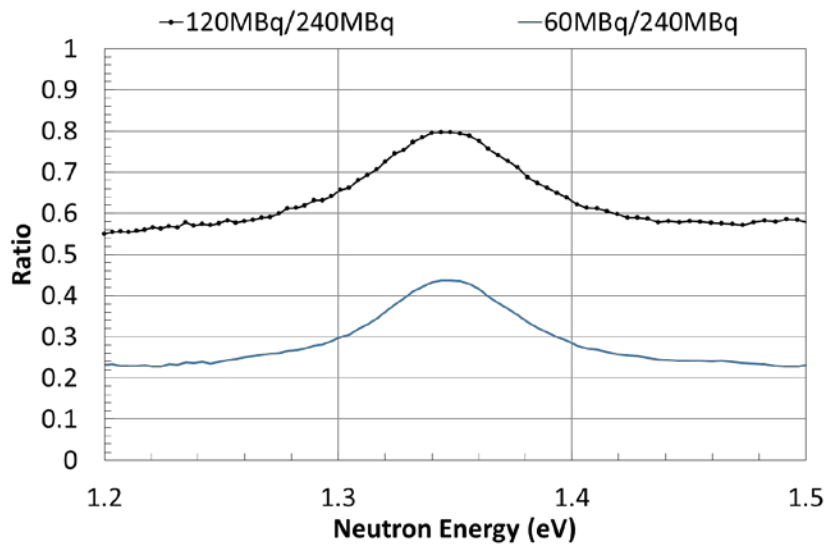
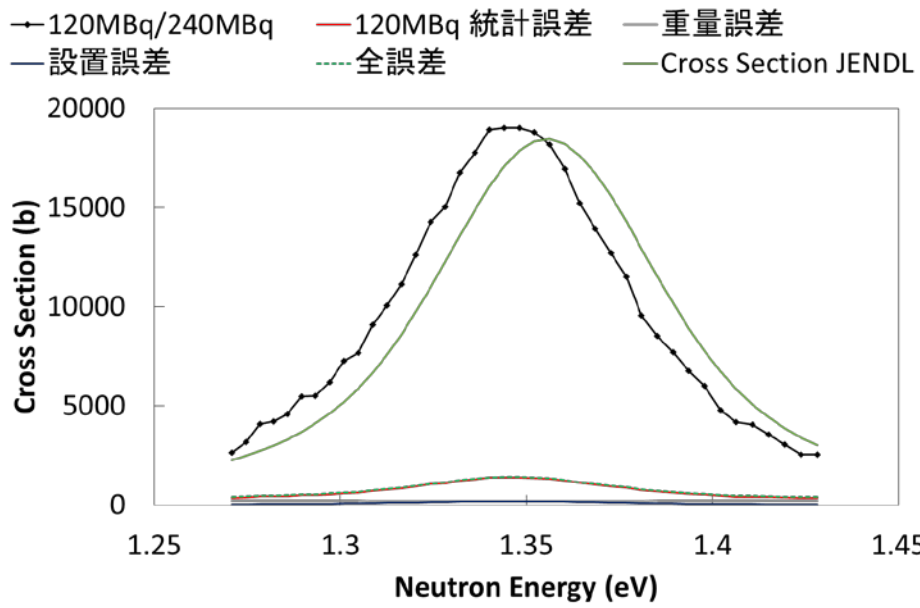
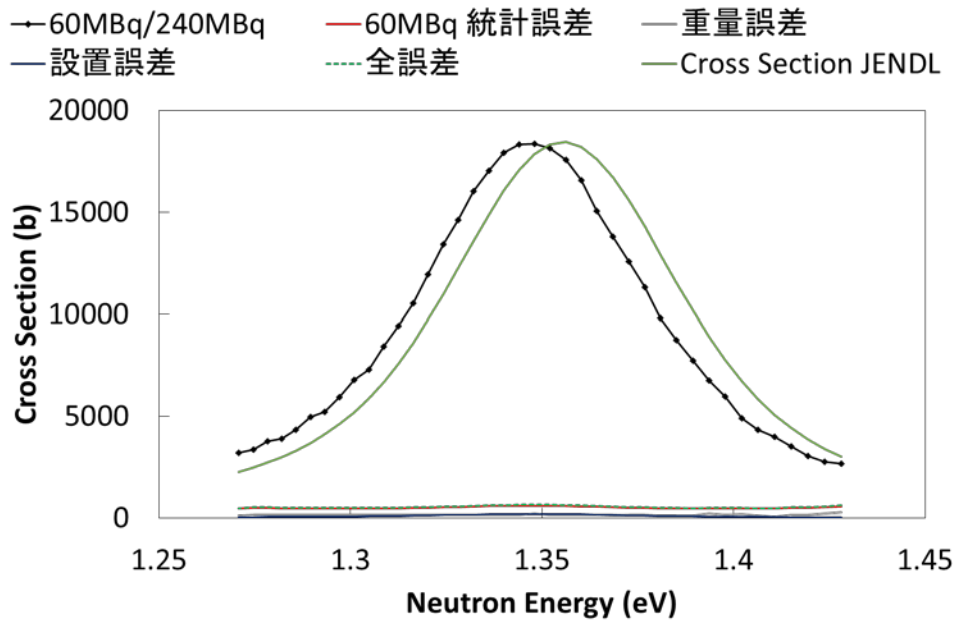


図 3-91 第3共鳴付近での60MBq及び120MBq試料の240MBq試料に対する比



(a) 120MBq 試料



(b) 60MBq 試料

図 3-92 Am-243 の第 3 共鳴付近での中性子捕獲断面積

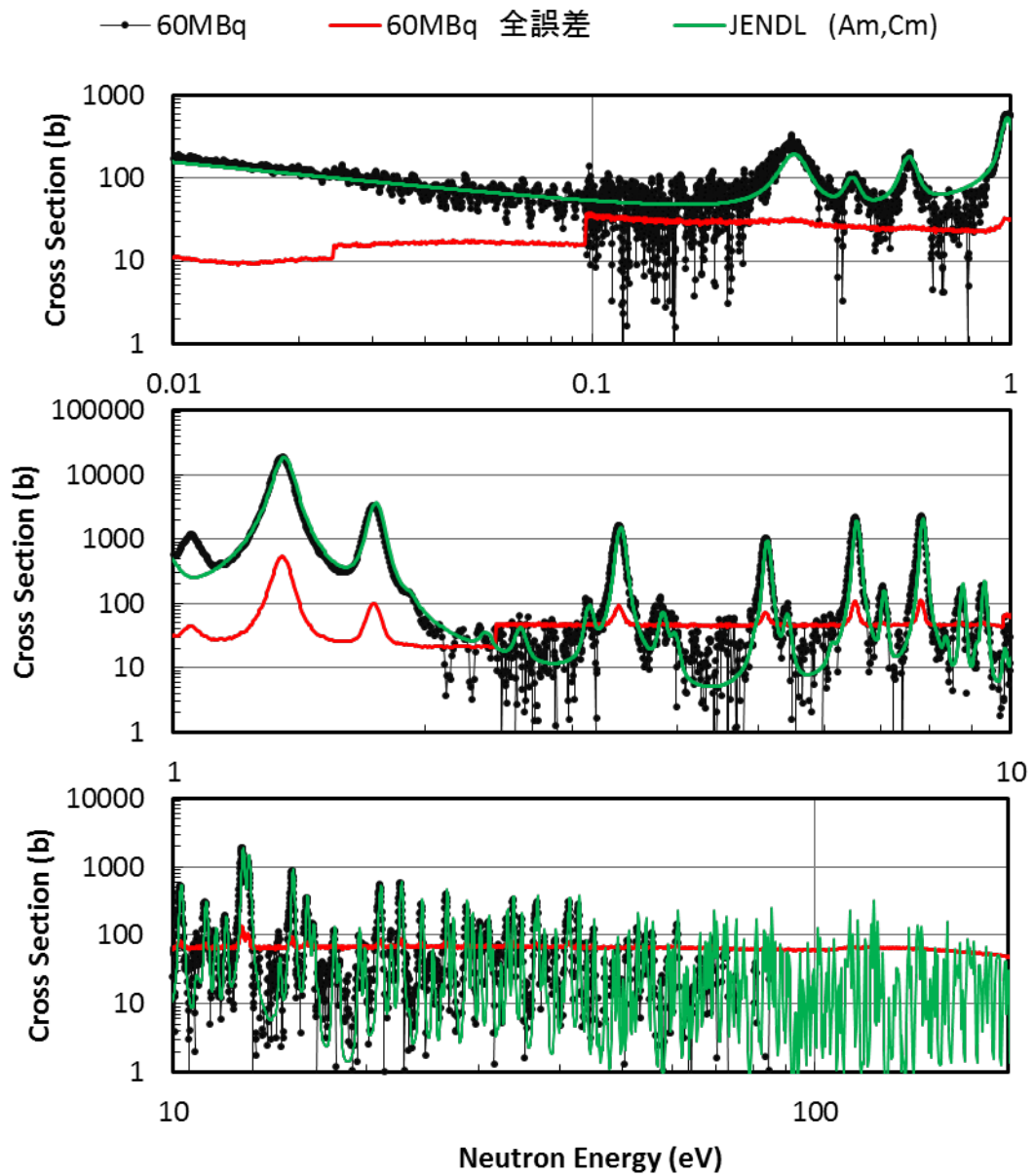


図 3-93 60MBq 試料の中性子捕獲断面積

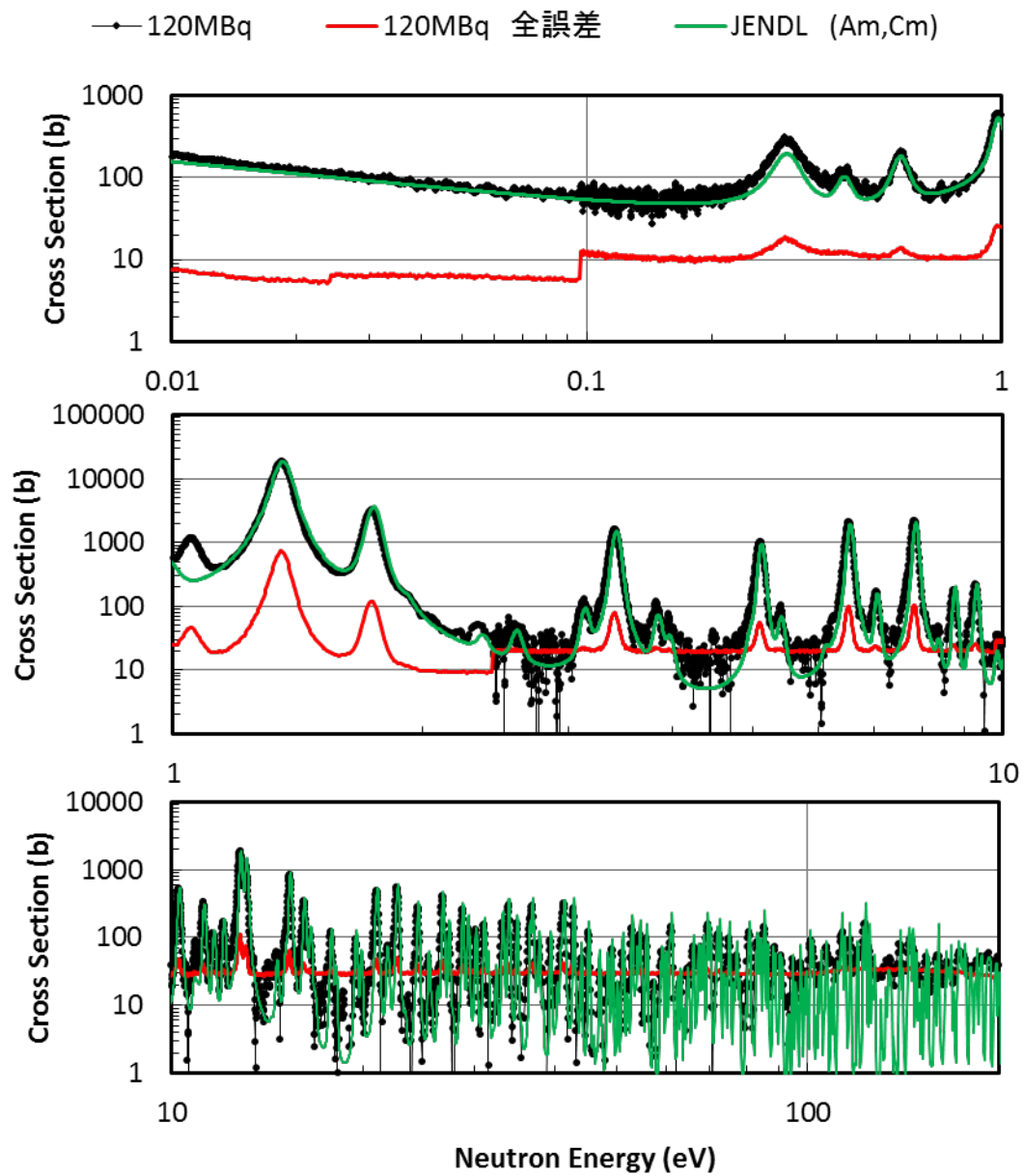


図 3-94 120MBq 試料の中性子捕獲断面積

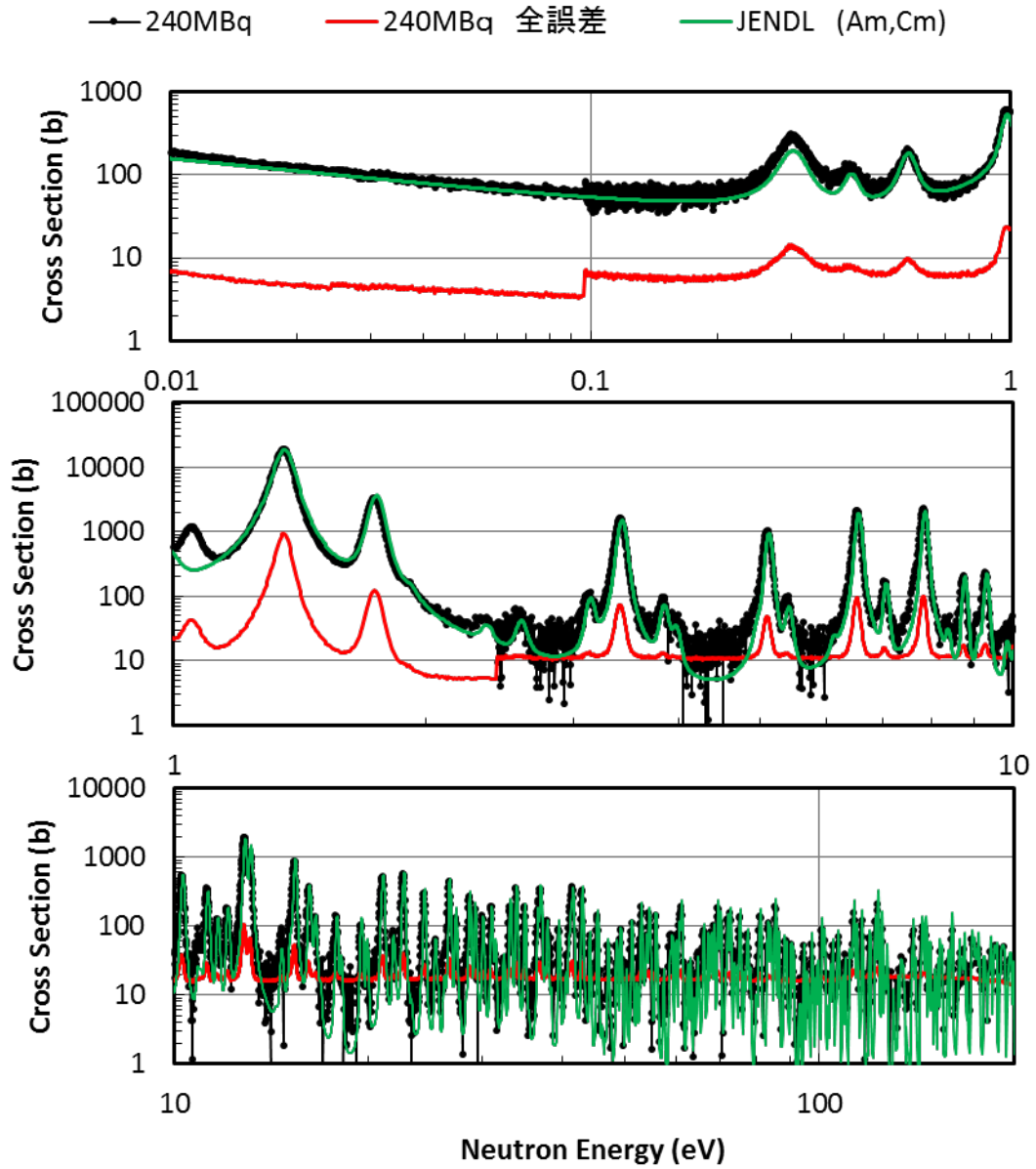


図 3-95 240MBq 試料の中性子捕獲断面積

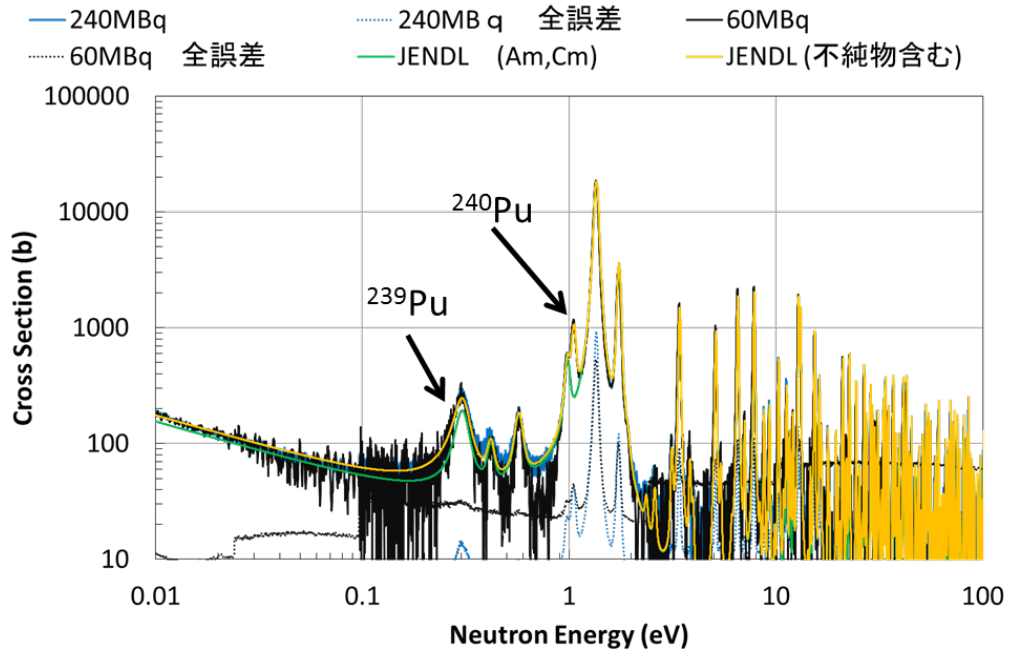


図 3-96 240MBq, 60MBq の試料で得られた中性子捕獲断面積と評価値 JENDL-4.0 との比較

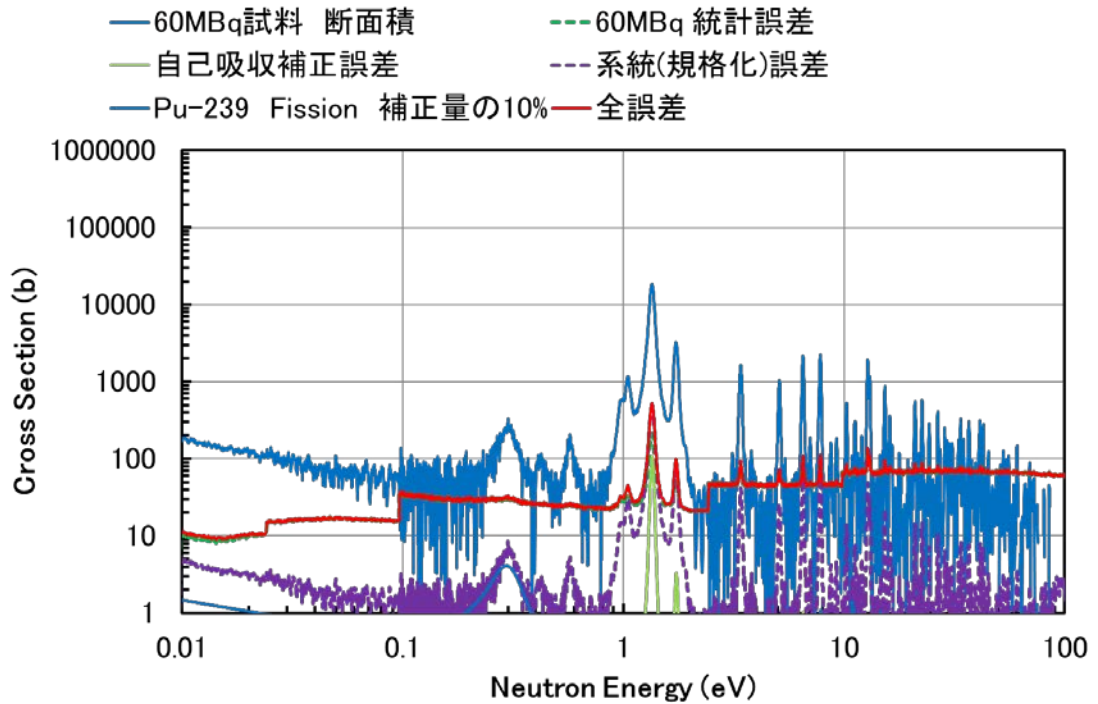


図 3-97 60MBq 試料での各誤差要因の大きさ

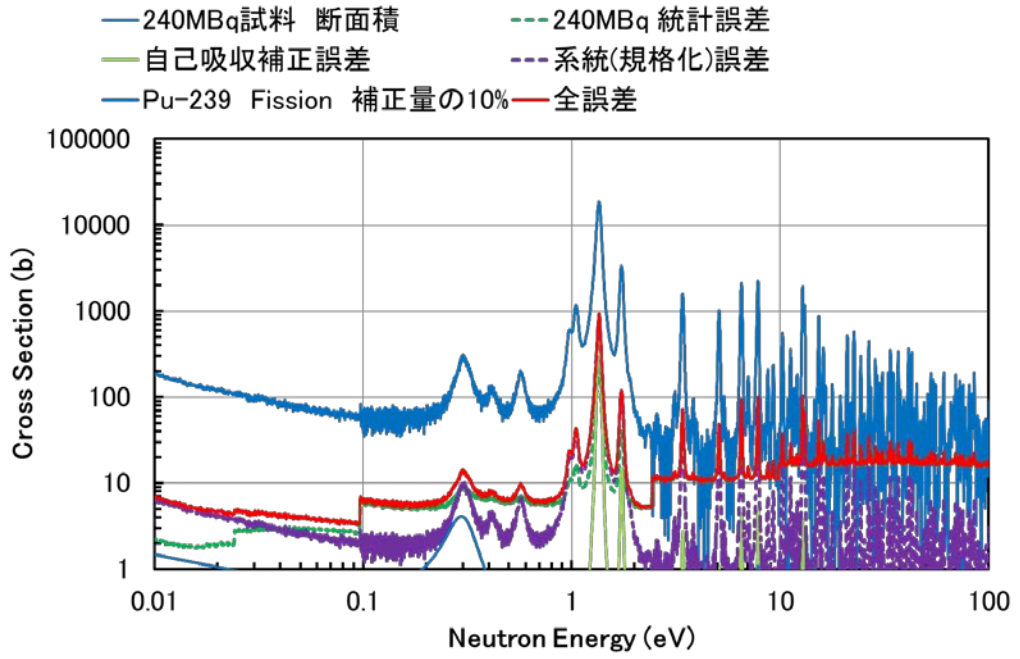


図 3-98 240MBq 試料での各誤差要因の大きさ

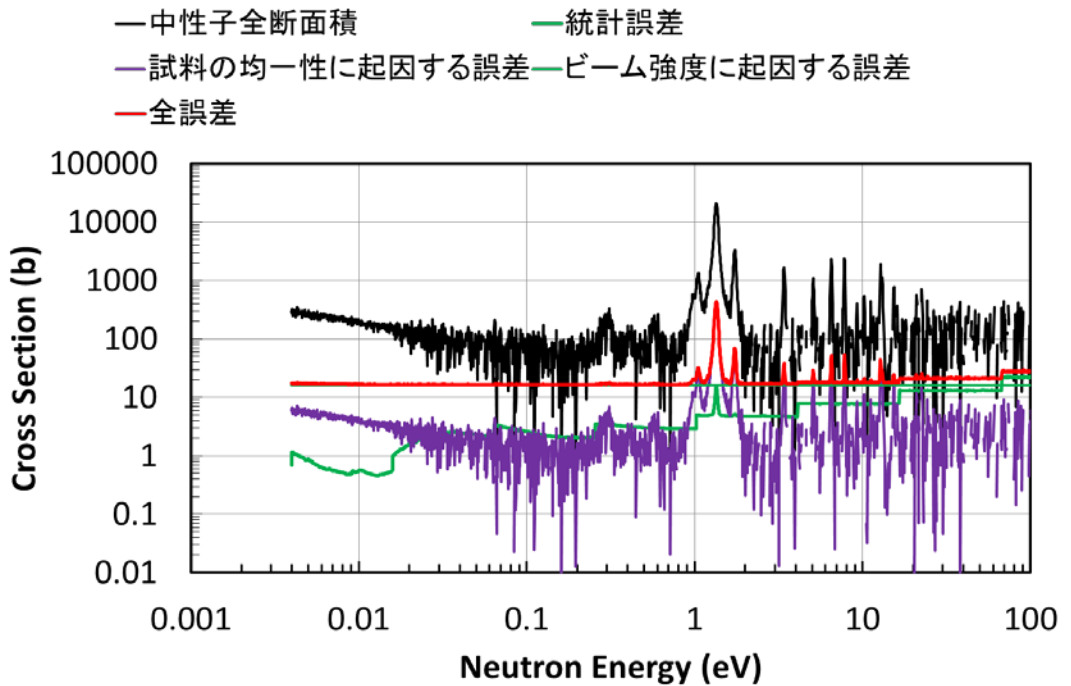


図 3-99 Am-243 の中性子全断面積測定結果及び誤差

3.3.2. 京都大学原子炉実験所の電子線形加速器での測定（再委託先：京都大学）

本事業では、MA 核種の共鳴パラメータを決定するために、京大炉ライナックの TOF 施設を用いた中性子全断面積測定及び中性子捕獲断面積測定を実施した。京大炉ライナックは J-PARC/ANNRI に比べて中性子束ははるかに少ないものの、パルスがシングルバンチであり、高いエネルギー分解能を有する特徴を持つ。このような利点を生かすために、パルス中性子源の中性子モデレータのパルス時間特性を明らかにし、中性子全断面積及び中性子捕獲断面積測定のための検出器システムを構築した。MA 核種の中でも京大炉ライナックの中性子束で十分な統計を得ることができる Np-237 を測定対象核種として選定し、中性子全断面積測定及び中性子捕獲断面積測定を実施し、主要な共鳴パラメータを導出した。本節では以下にその詳細を述べる。

(1) 中性子モデレータの時間分解能評価

① 中性子モデレータの検討

京大炉ライナックのパルス中性子源に対して、中性子束及びエネルギー分解能の観点から最適な中性子モデレータの形状及び材質について検討を行った。熱外中性子領域の中性子束を考慮すると、厚さ 6cm の軽水と厚さ 10cm の重水が候補として挙げられる。重水を用いると軽水に比べて約 2 倍の熱外中性子フラックスが得られるのに対し、エネルギー分解能は軽水の 2 倍以上劣ることが分かった。軽水モデレータを用いる場合、100eV から 10keV のエネルギー領域でのエネルギー分解能は 1%以下に収まっていることが分かった。

② 中性子モデレータの時間分解能評価

京大炉ライナックのパルス中性子源に対して、共鳴パラメータが既知の Ta に対する TOF 測定を実施し、共鳴ピークの幅を測定することにより、中性子ビームの時間特性を実験的に取得した。その結果、計算で得られた分解能関数の検証を行うことができた。

(2) 中性子全断面積測定

① 中性子全断面積測定用検出器系の整備と性能試験

京大炉ライナックの TOF ビームラインにおいて、透過中性子測定による中性子全断面積測定を行うための Li-glass 検出器を整備した。検出器のタイプとしては、Li-6 が 95% 同位体濃縮された GS-20 を選択した。シンチレータの寸法は、直径 2 インチ (50.8mm)、厚さ 0.25 インチ (6.35mm) である。直径 2 インチの浜松フォトニクス社製高電子増倍管、ライトガイドを内蔵している。シンチレータには +800V の高電圧を印加し、出力信号は前置増幅器、増幅器で波形整形・増幅された後、データ収集系へと送られる。一方、京大炉ライナックの injector 信号をトリガーとして基準信号とし、Li-glass 検出器からの出力信号と同時にデータ収集系に取り込んだ。データはイベント毎に記録され、TOF と波高 (PH) の 2 次元リストデータとして保存された。性能試験は京大炉ライナックの 10m 測定室にて行った。検出器及びサンプルの配置状況を図 3-100 に示す。バックグラウンドを決定するために、中性子飛行距離 5m の付近に共鳴フィルター (In, Ag, Mn, Co) と厚さ 0.5mm の Cd を置いた測定 (以後、filter 測定と呼ぶ) も行った。Li-glass 検出

器のガンマ線成分に注目することで、TOF スペクトルの時間依存バックグラウンドを決定する手法を決定した。また、適切なガンマ線遮蔽を行うことで測定エネルギー領域を 1keV まで拡張できる見通しを得た。

② Np-237 の全中性子断面積測定

試料としては公称放射能 26MBq, 5.2MBq, 1MBq の厚さの異なる 3 種類の Np-237 を用いて、Li-glass 検出器による透過中性子測定を行った。

本実験では、京大炉ライナックを用いて加速した電子ビームを水冷式タンタルターゲットに当ててパルス状の中性子を発生させた。モデレータには平成 26 年度に時間分解能評価を実施した軽水モデレータ（厚さ 100mm の八角柱状）を用いた。本実験におけるライナックの運転条件は、電子の加速エネルギー約 30MeV、繰り返し周波数 50Hz、パルス幅 100ns、平均ビーム電流 16.7 μ A とした。

中性子全断面積測定は次式を用いて導出した。

$$T_{trans} = \frac{(I_{in} - B_{in})/M_{in}}{(I_{out} - B_{out})/M_{out}} = \exp(-n\sigma_{tot})$$

(数式 3-14)

$$\sigma_{tot} = -\frac{1}{n} \ln(T_{trans})$$

(数式 3-15)

ただし、 T_{trans} は中性子透過率、 σ_{tot} は中性子全断面積(b)、 I_{in} , I_{out} はサンプルがある場合となかった場合の透過中性子計数率、 B_{in} , B_{out} はサンプルがある場合となかった場合のバックグラウンド、 M_{in} , M_{out} はサンプルがある場合となかった場合の中性子モニタの計数率、 n はサンプル中の Np-237 の原子核厚さ (/b) を表す。

Np-237 の場合、サンプルはアルミニウム容器に封入されているため、空のアルミニウム容器を置いた測定をサンプルがなかった場合の測定とみなした。以後、本測定を Dummy 測定と呼ぶことにする。各厚さの Np-237 サンプル測定及び Dummy 測定は 3 時間ずつ行った。実験中の中性子モニタの計数率の変動は $\pm 1\%$ 以下であった。

Np-237 サンプル、Dummy サンプル、Blank (サンプル無し) の測定における Li-glass 検出器出力信号の波高スペクトルを図 3-101 に示す。150ch. 以下の領域に観測されている主な成分は、Np-237 からの崩壊ガンマ線によるものと思われる。300ch. 付近に観測されているピークは検出器上流に設置されたボロン入りポリエチレンコリメータ中の水素による中性子捕獲ガンマ線 (2.2MeV) のコンプトン端であると思われる。470ch. 付近に見られるピークは、入射中性子が Li-6(n, α)H-3 反応によって吸収されたときに放出される荷電粒子によるものと思われる。図 3-101 の中性子ピークが観測された領域 (G3) にゲートをかけることにより、フォアグラウンド成分の TOF スペクトルを取得した。一方、中性子ピークにオーバーラップする高エネルギーガンマ線によるバックグラウンド成分を評価するために、中性子ピークより高いガンマ線バックグラウンド領域 (G4) にゲートをかけ、G4 成分の面積と G3 成分の連続部分の面積の比を用いて規格化を行った。Dummy 測定と Np-237 (26MBq) 測定に対するフォアグラウンドとバックグラウンドの比較を図

3-102、図 3-103 に示す。従来の研究ではバックグラウンド評価はノッチフィルター法（大きな共鳴を持つサンプルを中性子ビーム導管中にセットし、その共鳴領域では中性子ビームが Black out されることを利用したバックグラウンド決定法）によって行うのが一般的であった。ところが、ノッチフィルター法では限られた共鳴エネルギー点しかバックグラウンドレベルを決定することができないため、離散的に得られたバックグラウンド点をフィッティングにより内挿することでバックグラウンドを決定しなければならないことが系統誤差の要因となる。そこで本研究では、各測定における検出器の波高情報を用いてバックグラウンド評価を行う方法を新たに適用した。その結果、G4 成分から推定したバックグラウンド成分は、ノッチフィルター法によって決定した共鳴エネルギー（In:1.457eV, Ag:5.2eV, Co:132eV, Mn:336eV）でのバックグラウンド計数率を再現していることを確認できた。

バックグラウンドを差し引いた正味の TOF スペクトルを中性子モニタの計数率で規格化を行い、(数式 3-14)式を用いて中性子透過率を導出した。Np-237(26MBq)に対して求めた中性子透過率を図 3-104 に示す。中性子全断面積の実験値と JENDL-4.0 の評価値との比較を図 3-105 に示す。

得られた全中性子断面積に対して、SAMMY コード⁽¹⁶⁾を用いた共鳴解析を実施した。共鳴パラメータの初期値には、JENDL-4.0 で採用されている共鳴エネルギー、共鳴スピン、軌道角運動量、中性子幅、放射幅を用いた。共鳴解析の近似法には Reich-Moore (RM) 近似を適用した。フィッティングには Bayes の式を用いた。パルス中性子源の時間分解能関数には本事業で評価した時間分解能を分散とするガウス分布を用いた。なお、サンプル中での中性子自己遮蔽・多重散乱の効果は、SAMMY コード内に組み込まれている機能を用いることによって、核データに依存することなく考慮した。実験値と共鳴解析によって得られたフィッティング曲線の比較を図 3-106 に示す。共鳴解析後の全断面積は JENDL-4.0 の評価値に比べて熱中性子エネルギー領域で約 13%, 0.49eV の第一共鳴ピークでは約 40%小さい値を示した。

(3) 中性子捕獲断面積測定

① 中性子捕獲断面積測定用検出器系の整備と性能試験

京大炉ライナックの TOF ビームラインにおいて、中性子捕獲断面積測定を行うための 12 台の BGO 検出器から成る全吸収型中性子捕獲ガンマ線検出システムを構築し、予備試験を実施した。シンチレータには-1400V の高電圧を印加し、各検出器からの Anode 信号は前置増幅器と高速増幅器で波形整形・増幅された後、Dual Sum & Inverter によって足し合わされた。一方、京大炉ライナックの injector 信号をトリガーとして基準信号とし、BGO 検出器からの出力信号と同時にデータ収集系に取り込んだ。データはイベント毎に記録され、TOF と PH の 2 次元リストデータとして保存された。予備試験は Np-237 密封線源（公称放射能 26MBq）を用いて行った。予備試験の結果、整備した測定系が MA サンプルの共鳴パラメータ決定に必要な検出効率等の性能を有していることを確認できた。

② Np-237 の中性子捕獲断面積測定

中性子飛行距離 9.93m の場所に設置した BG0 検出器から成る全吸収型中性子ガンマ線検出システムを用いて、Np-237 の中性子捕獲断面積測定を実施した。サンプルとしては公称放射能 26MBq, 5.2MBq, 1MBq の厚さの異なる 3 種類の Np-237 試料を用いた。初めに共鳴ピーク部分に注目した測定を行うために、ライナックの運転条件は、電子の加速エネルギー約 30MeV、繰り返し周波数 300Hz、パルス幅 100ns、平均ビーム電流約 $100\ \mu\text{A}$ とした。ただし、低エネルギーの中性子のオーバーラップを防ぐために、測定中はビーム導管の上流側に厚さ 0.5mm の Cd フィルターを設置した。厚さの異なるサンプルの TOF スペクトルの比較を図 3-107 に示す。次にサンプル中での中性子自己遮蔽・多重散乱効果に対する補正係数を、モンテカルロシミュレーション粒子輸送コード MCNP-4C⁽¹⁷⁾を用いて導出した。このときに用いた核データは JENDL-4.0 である。本補正のための計算では、試料面に対して垂直に中性子ビームが入射するとして、サンプル領域中での中性子捕獲反応率を求め、試料密度を実際の密度の 10^{-4} 倍に希釈した理想的に薄いサンプルでの中性子捕獲反応率との比を求めることにより、補正関数を導出した。26MBq のサンプルの場合、0.49eV 共鳴、1.32eV 共鳴では補正量は約 1.27 となった。厚さの異なるサンプルを用いた場合、補正に用いた核データが信頼性の高いものであれば、補正後の捕獲反応率はサンプルの厚さに比例するはずである。代表例として、0.49eV 共鳴と 1.32 共鳴の両者に対して、捕獲反応率（共鳴ピーク面積）とサンプルの厚さの関係をプロットしたところ図 3-109 のようになった。1.32eV 共鳴では補正によって捕獲反応率とサンプルの厚さの線形性が確認できたが、0.49eV 共鳴については補正を行っても 26MBq のサンプルについては補正量が約 10%不足することが分かった。この結果は、補正に用いた JENDL-4.0 の 0.49eV 共鳴の断面積値が過小評価されている可能性を示唆するものである。

次に、公称放射能 26MBq のサンプルに対して、電子の加速エネルギー約 30MeV、繰り返し周波数 50Hz、パルス幅 $2.5\ \mu\text{s}$ 、平均ビーム電流約 $67\ \mu\text{A}$ のビーム条件で中性子捕獲断面積測定を行った。ただし、繰り返し周波数を 50Hz としたため、低エネルギー中性子のオーバーラップはないので Cd フィルターは挿入していない。測定は B-10 濃縮サンプルを用いて行い、B-10(n, $\alpha\gamma$) 反応を標準反応として相対断面積を求め、JENDL-4.0 の熱中性子捕獲断面積 (178.1b) で規格化を行った。本測定では、10meV から 100eV のエネルギー領域で中性子捕獲断面積を得た。実験から中性子捕獲断面積についても SAMMY コードを用いた共鳴解析を実施したところ、図 3-110 のようになった。熱中性子捕獲断面積を JENDL-4.0 の値を再現するように規格化しているため、熱中性子領域でのフィッティングによる断面積変化は小さいものの、0.49eV 共鳴については共鳴解析を行っても実験値に対する再現性が改善していないことが分かる。以上のことから、0.49eV 共鳴のパラメータを見直す必要があることを示唆する結果となった。

(4) まとめ

MA 核種の共鳴パラメータを決定するために、京大炉ライナックの TOF 施設に中性子全断面積測定を組み合わせた中性子捕獲断面積測定のための検出システムを構築した。

全中性子断面積測定では、透過中性子測定における不確かさの要因の一つであるバックグラウンドを決定するための新たな手法を開発した。Np-237 の中性子全断面積を導出し、共鳴解析を行ったところ、JENDL-4.0 の評価値は熱中性子エネルギー領域で約 13%、0.49eV の第一共鳴ピークで約 40% 下方修正された。

中性子捕獲断面積測定では、厚さの異なる 3 個の Np-237 サンプルを用いて、JENDL-4.0 を用いた中性子自己遮蔽・多重散乱効果に対する補正を行ったところ、最も厚い 26MBq のサンプルでは 0.49eV 共鳴の補正量が約 10% 不足していることが分かった。26MBq の Np-237 サンプルを用いて 10meV から 100eV のエネルギー領域で中性子捕獲断面積の相対値を得た。JENDL-4.0 の熱中性子断面積に対して規格化した中性子捕獲断面積に対して共鳴解析を行ったところ、0.49eV 共鳴については実験値を再現しないことが分かった。

この結果、全断面積測定と組み合わせた中性子捕獲断面積測定と、異なる厚さのサンプルを用いた測定における中性子自己遮蔽・多重散乱効果の補正係数を既存の核データを用いて算出する手法が、核データの検証に有効であることを示すことができた。

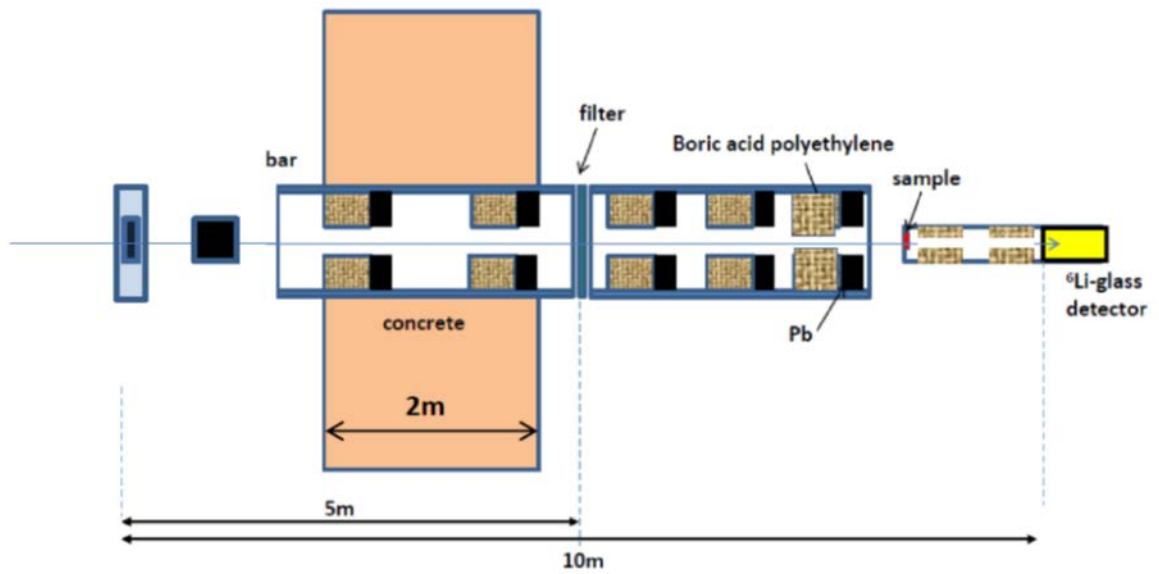


図 3-100 透過中性子測定の実験体系の概略図

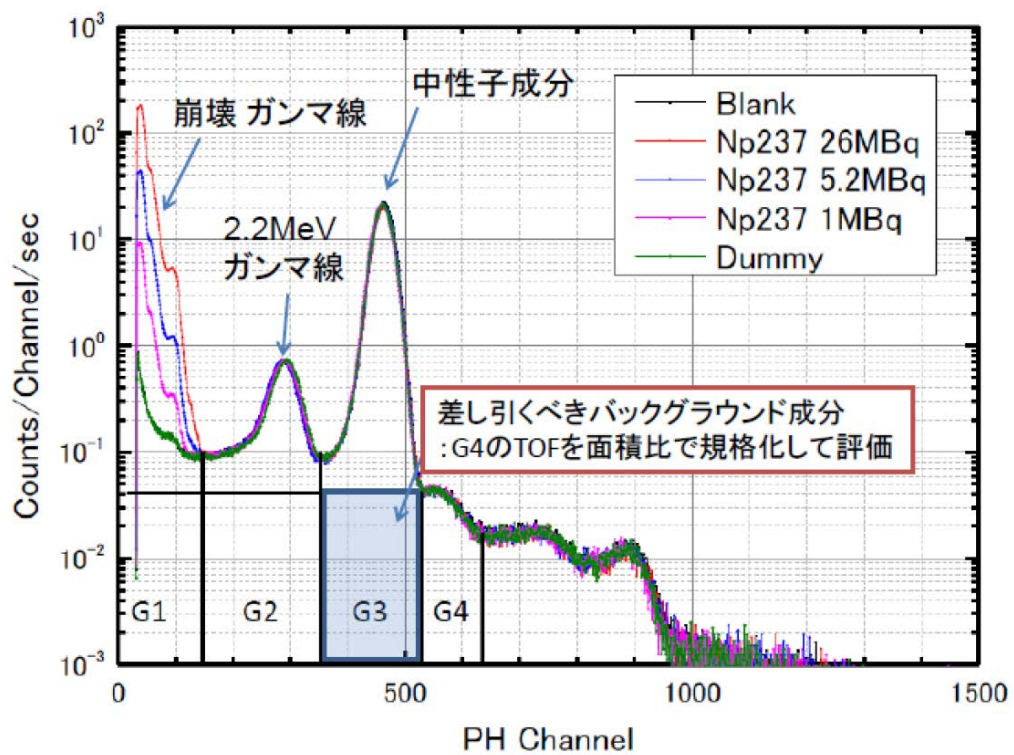


図 3-101 Li-glass 検出器の波高分布の比較

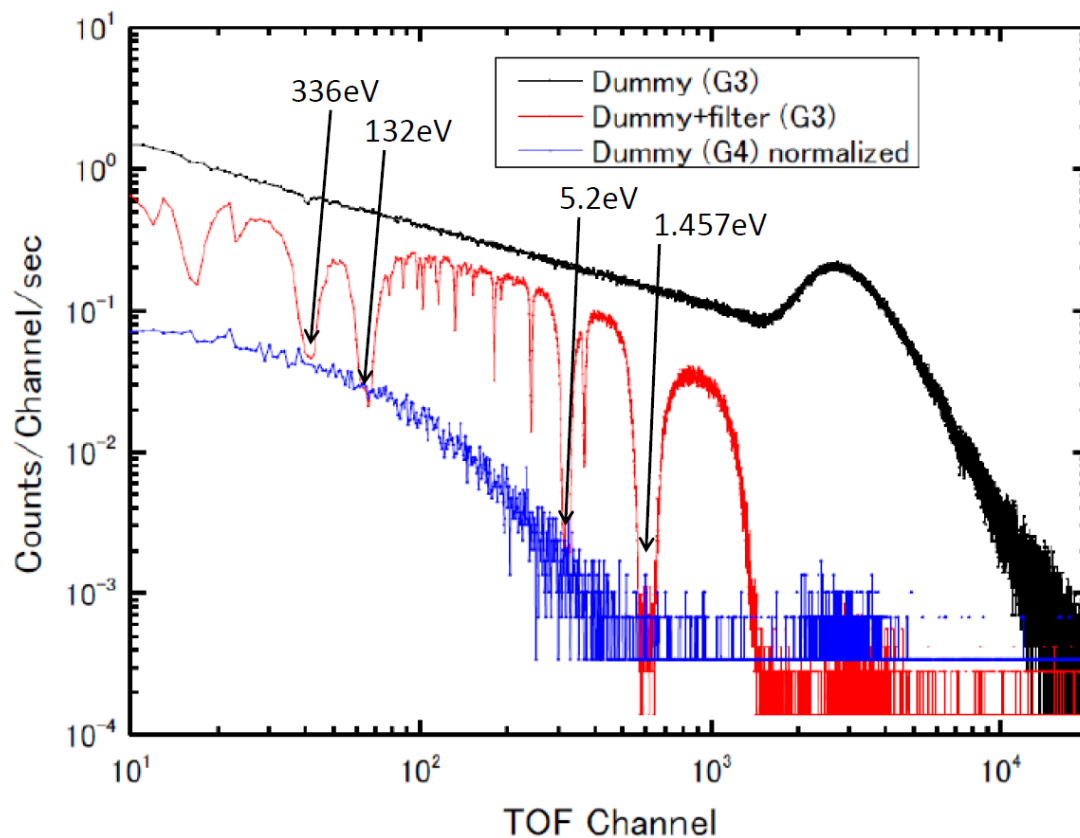


図 3-102 Dummy サンプルに対する TOF スペクトルとバックグラウンド評価

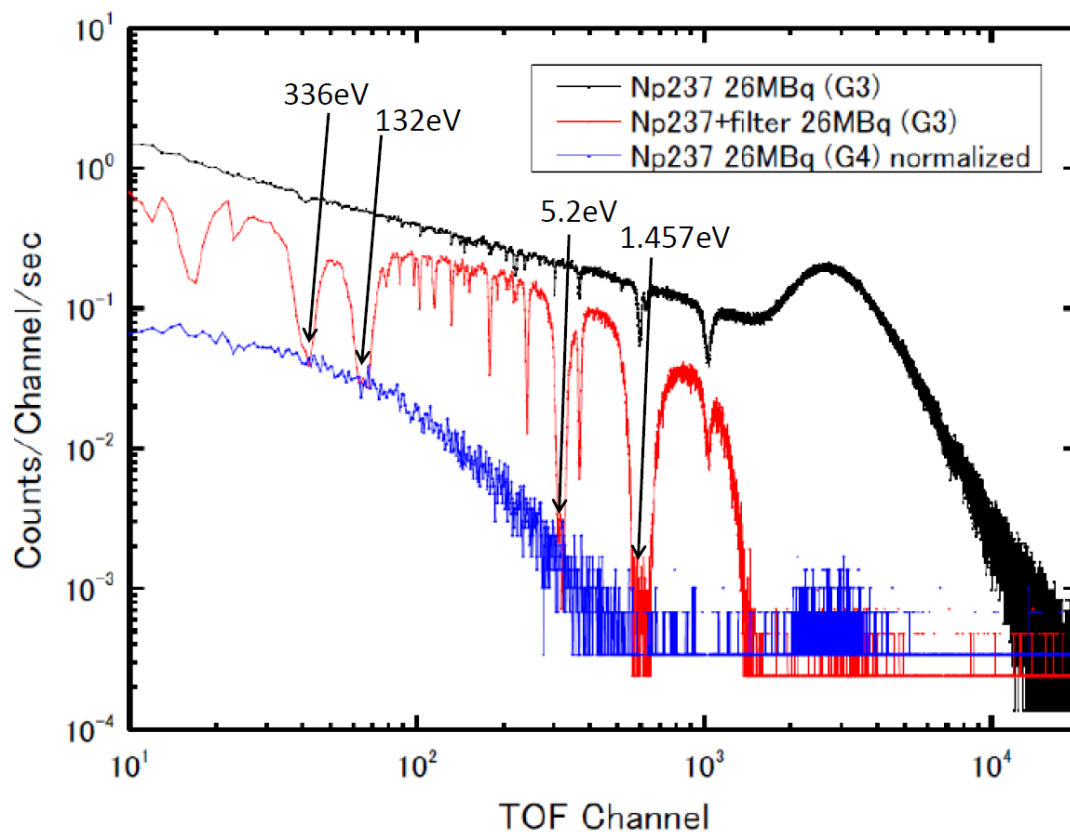


図 3-103 Np-237 (26MBq) に対する TOF スペクトルとバックグラウンド評価

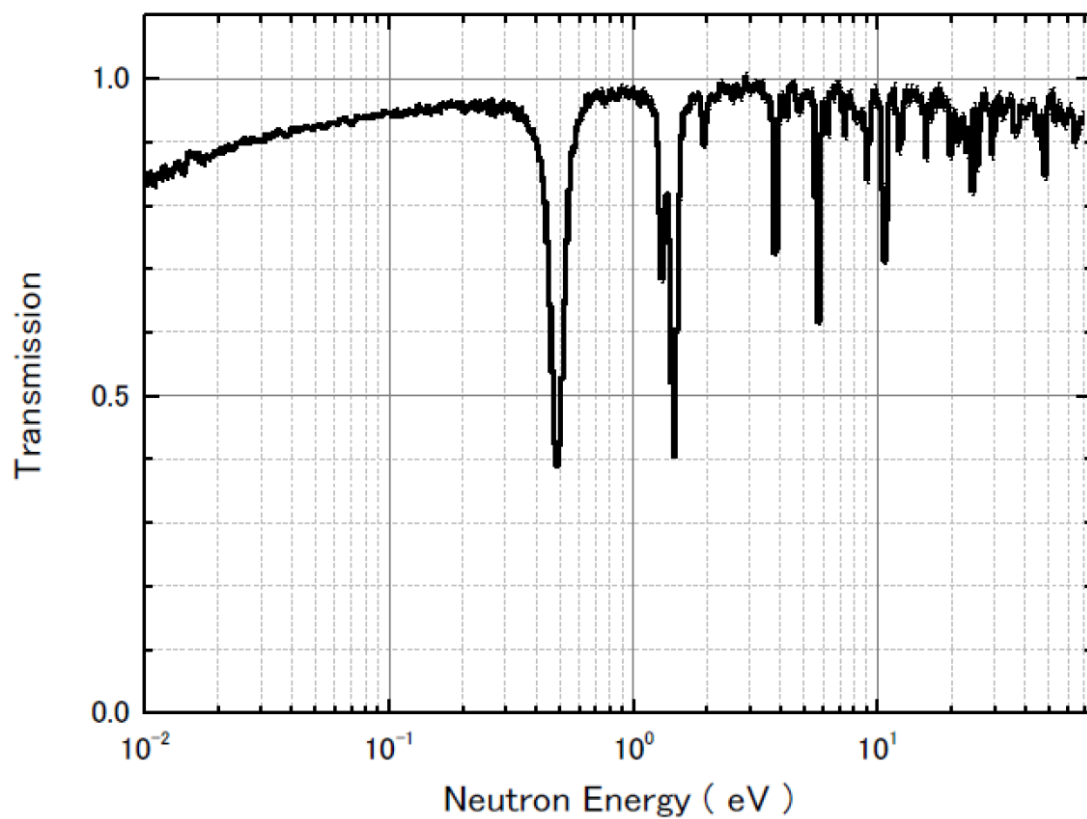


図 3-104 Np-237 (26MBq) に対する中性子透過率

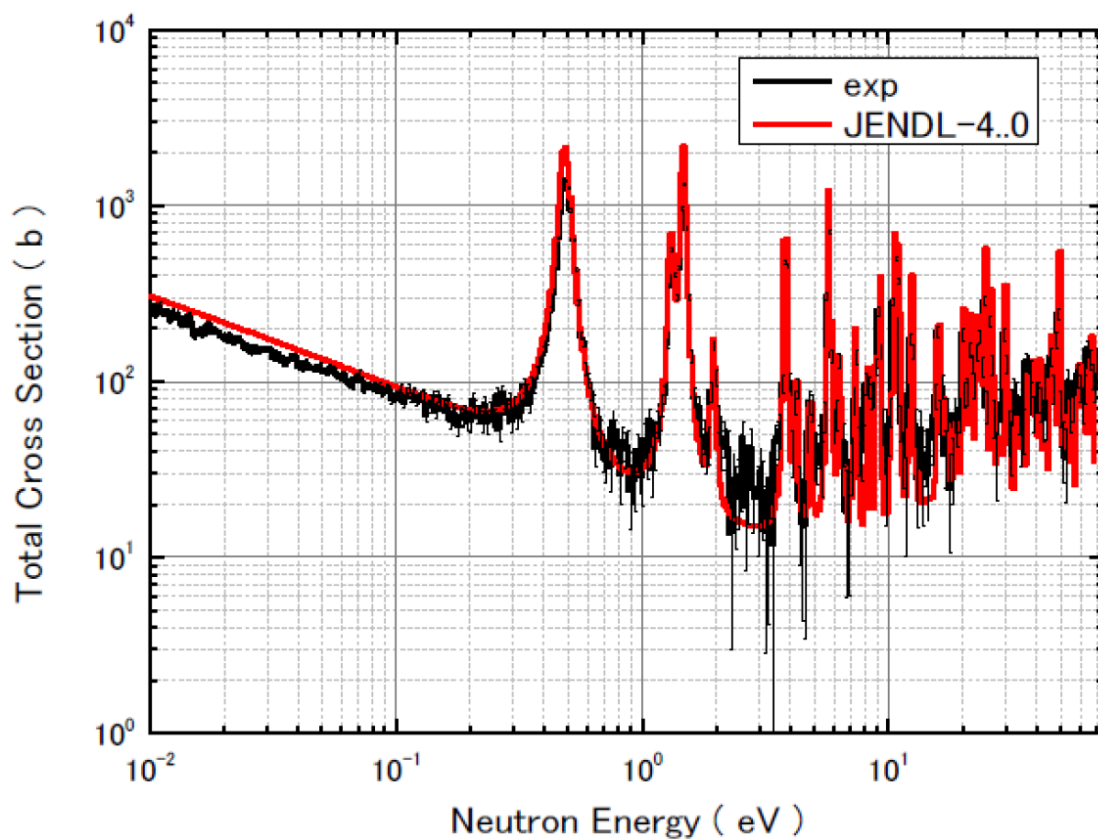


図 3-105 Np-237 に対する全中性子断面積の実験値と評価値の比較

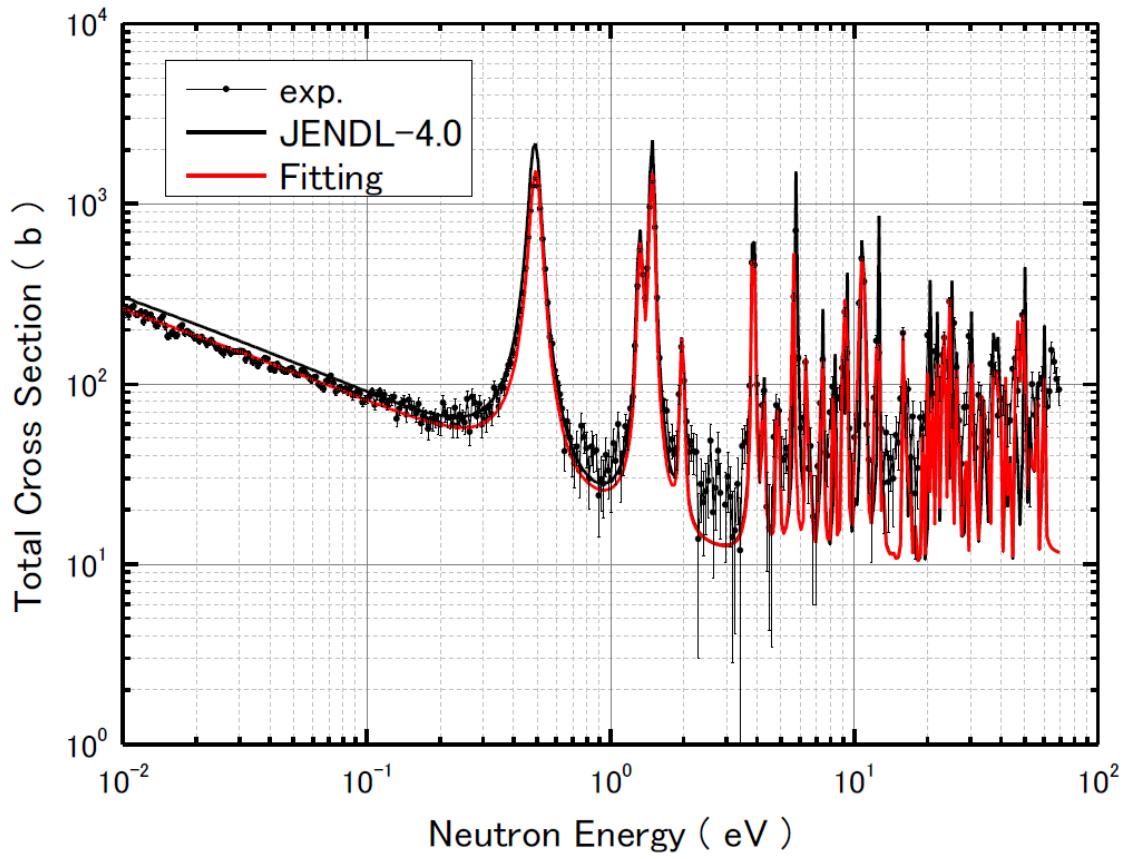


図 3-106 Np-237 の全中性子断面積値に対して行った共鳴解析の結果

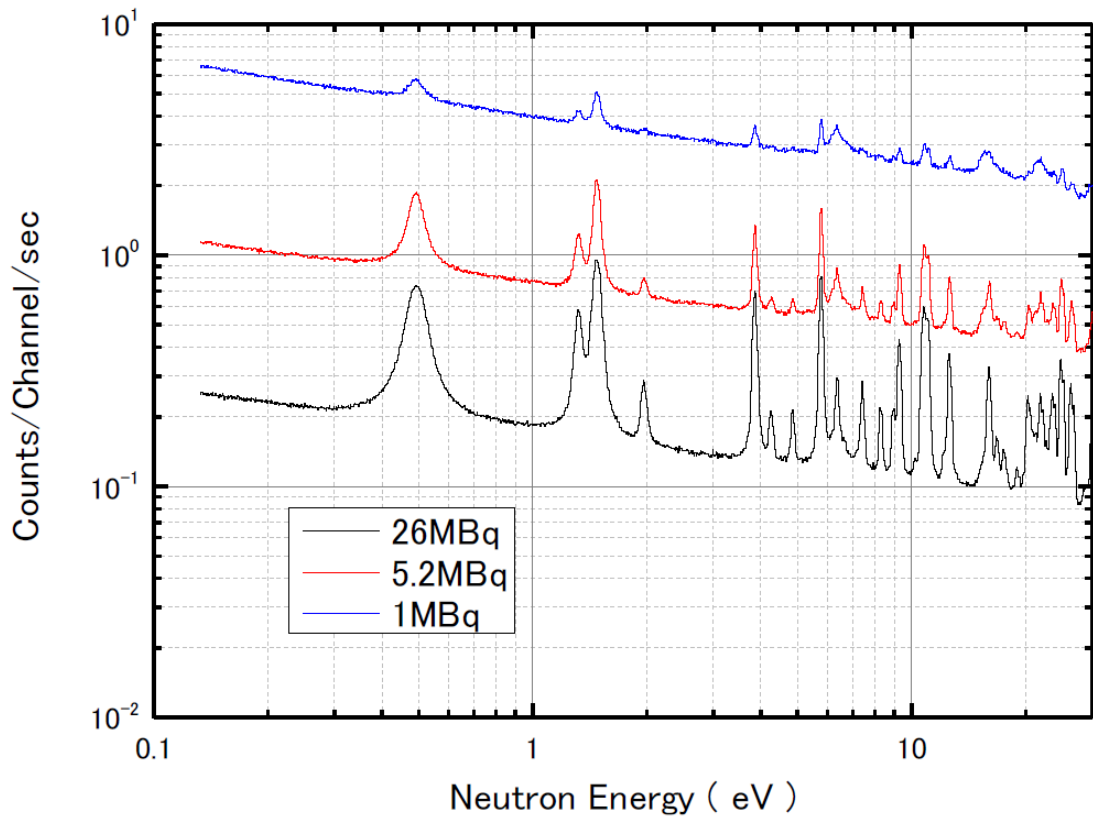


図 3-107 厚さの異なる Np-237 サンプルに対する中性子捕獲収量の比較

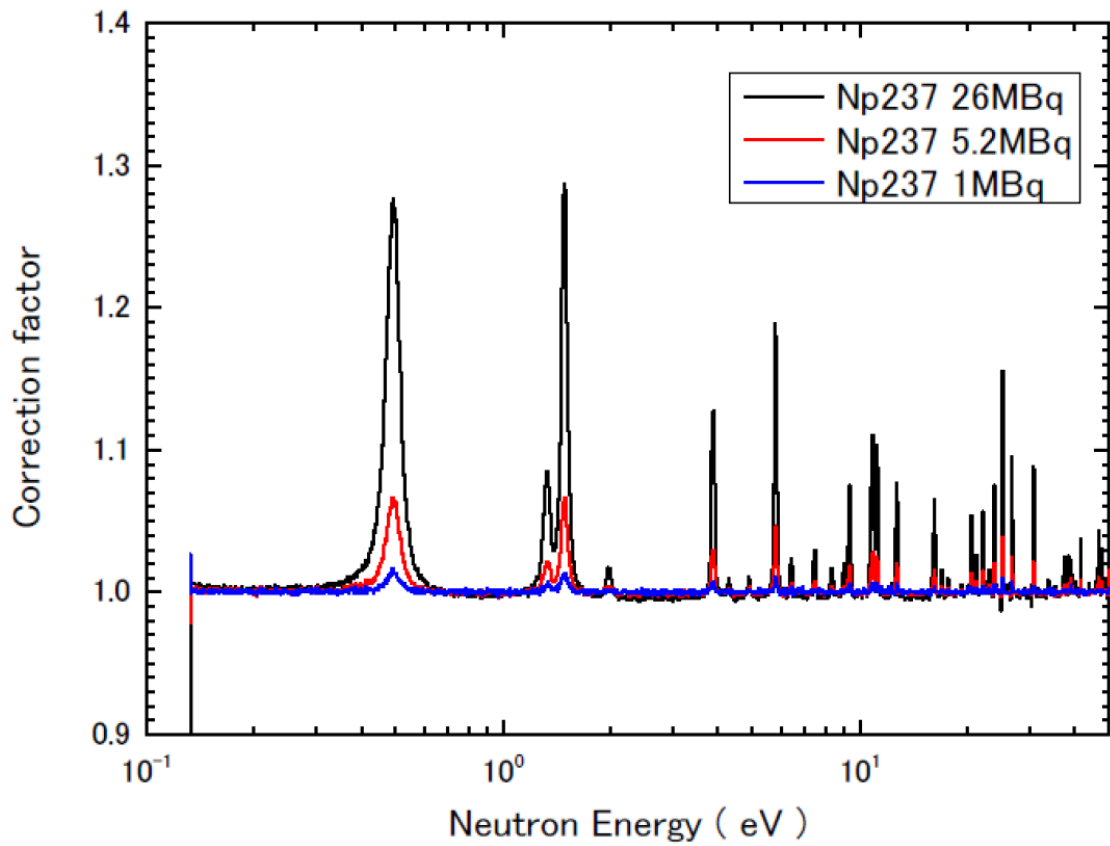


図 3-108 サンプル中での中性子自己遮蔽・多重散乱補正係数

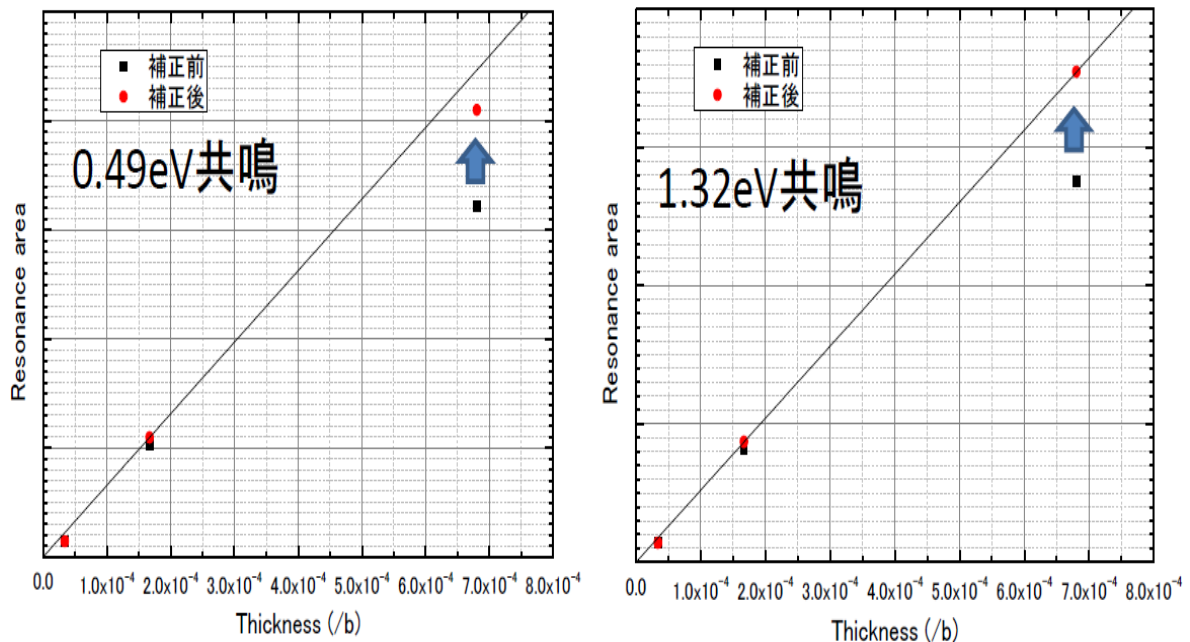


図 3-109 中性子自己遮蔽・多重散乱補正前後の共鳴ピーク面積とサンプル厚さの関係

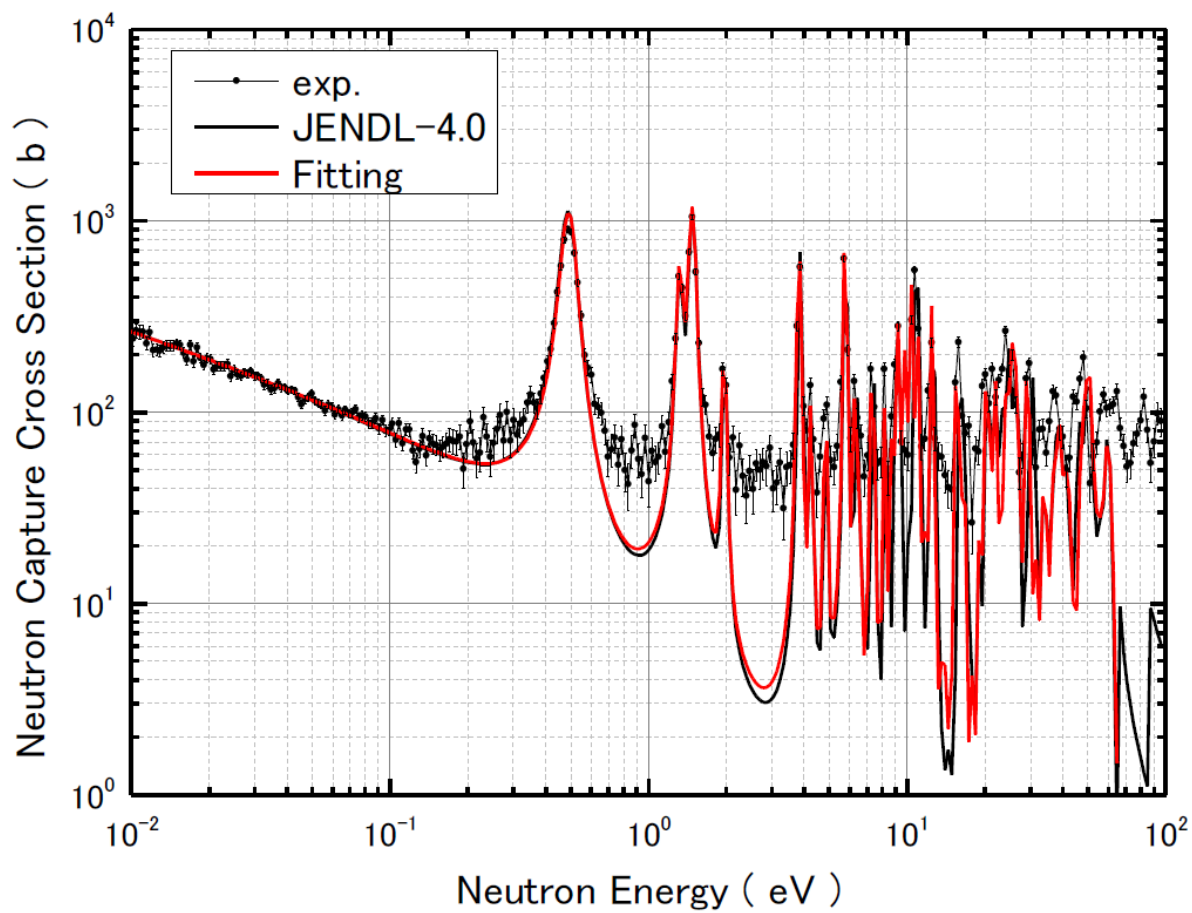


図 3-110 熱中性子エネルギーで JENDL-4.0 の評価値に規格化した中性子捕獲断面積の実験値と共鳴解析の結果の比較

3.4. 測定エネルギー範囲の高速中性子領域への拡張（再委託先：東京工業大学）（H25～H28）

NaI (Tl) 検出器を用いて、Am-241 及び Np-237 について熱中性子エネルギー領域から高速中性子エネルギー領域にわたる中性子捕獲断面積測定を行った。波高重み法を用いたデータ解析を行い中性子捕獲断面積を導出した。平成 27 年度に測定した Tc-99 についても平成 28 年度に得られた解析の知見を加え、再解析を行った。

NaI (Tl) 検出器の測定エネルギー範囲を高速中性子領域に拡張するにあたって、平成 25 年度と平成 26 年度において 2 つの改良がなされた。すなわち、(1) 信号処理系の高度化、(2) バックグラウンド中性子の低減である。信号処理系の高度化にあたっては、NaI (Tl) 検出器用回路を製作し、パルス幅測定法に基づく計測の高度化を行った。また、バックグラウンド中性子の低減には同位体濃縮した Li-6 を用いた中性子遮蔽体を製作・設置した。中性子ビームを用いた試験を行い実際に中性子バックグラウンドが十分に低減されることを確認した。

平成 28 年度においては、改良した NaI (Tl) 検出器システムを用いて、Am-241 と Np-237 の中性子捕獲断面積の測定を実施した。また、前年度の平成 27 年度においては、既に Tc-99 の測定を行っている。

測定に用いた試料は、Am-241 と Np-237 ともに密封放射性試料である。Am-241 試料は放射能 957.4MBq、重量 7.5mg、直径 10mm、厚さ 0.5mm である。Np-237 試料は、放射能 5.2MBq、重量 200mg、直径 20mm、厚さ 1mm である。どちらの試料もアルミのケースに封入されている。平成 27 年度に測定を行った Tc-99 試料は、放射能 52MBq、重量 78mg、直径 6.3mm、厚さ 0.28mm である。

その他の測定試料として炭素、ホウ素、Au-197 を用いた。炭素試料は散乱中性子バックグラウンドを求めるために使用した。ホウ素試料は B-10(n, α)Li-7 反応により入射中性子スペクトルを求めるために使用した。ホウ素試料は B-10 が同位体濃縮されたものである。Au-197 試料はデータ解析のチェックのために行った。試料は全て直径 10 mm であり、重量はそれぞれ 73.1 mg (C)、86.1 mg (化学形 B₄C、B-10 同位体比 90.4%)、152 mg (Au) であった。

図 3-111 に NaI (Tl) 検出器の測定システムのブロックダイアグラムを示す。TOF 測定のためのスタート信号として加速からのビームパルス信号を用いている。ただし、ビーム繰返し周期 (40 ms) よりわずかに短い時間 (39.992 ms) 遅らせた信号をスタートトリガーとしている。このような構成としたのは、加速器からのスタート基準信号がデータ収集系まで到達するまでに 3 μ s 程度かかるためである。つまり、TOF が 3 μ s より小さい検出信号はスタート信号より早くデータ収集系に到達してしまい測定できなくなる。そこで一つ前のサイクルの基準信号を用いることでゼロ TOF からの測定を可能とした。また、遅延回路 (One cycle delay) の遅延時間のばらつきなどもあることから、現 TOF サイクルの TOF 基準信号も同時に取り込んだ (CH4 に入力)。

NaI (Tl) 信号の波高はパルス幅測定により決定した。NaI (Tl) 検出器のアノード信号を NaI 検出器用回路を通してデータ収集系に取り込んだ。また、同時にダイノード信号を ADC を用いた伝統的な波高計測に基づく方法でも取り込んだ (ADC0)。NaI (Tl) 検出器を囲むように配置された環状プラスチック検出器からの信号も取り込み、非同時計測を行うことで宇宙線バックグラウンドの低減を行った。

平成 27 年度に測定した Tc-99 も含め、中性子捕獲断面積を導出するためのデータ解析を行った。解析では 100ns, 1 μ s, 100 μ s と 3 つの異なる TOF ビンで行い、エネルギー領域に応じて適切な TOF ビンの解析結果を用いた。解析は以下の手順から構成される。

1. 不感時間による数え落とし補正
2. 波高重み法の適用
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. アルミケースによるバックグラウンドの除去
6. 散乱バックグラウンドの除去
7. ホウ素試料と Au-197 試料測定から中性子スペクトルの導出 (バックグラウンドの差引は上記 2-6 と同様、ただし 5 のケースによるバックグラウンドは含まれない)
8. 中性子捕獲断面積の導出

不感時間による数え落とし補正はパルス幅測定法の利点を生かした。パルス幅測定法では各事象のパルスの幅、具体的には信号波高が設定された閾レベルを超える時間、を計測している。したがって、このパルス幅を不感時間と考え、TOF チャンネルごとに不感時間を積算することで不感時間補正係数を求めた。また、信号が閾レベル以下になってもある時間裾を引きパイルアップする可能性があることから、パルス幅に 500ns の付加的な不感時間を設け、その間に来た信号はオフライン解析で除去することとした。不感時間補正係数の導出にはこの付加的な不感時間も加算した。

波高重み法を適用するためにまず NaI (Tl) 検出器の単色のガンマ線に対する応答関数をモンテカルロシミュレーションにより求めた。求めた応答関数から重み関数を得た。求めた重み関数を用いて TOF チャンネル毎に波高重み法を適用し中性子捕獲反応数を導出した。

次にオーバーラップ中性子と呼ばれる低エネルギー中性子によるバックグラウンドの差し引きを行った。この低速中性子は TOF が 40ms を超えることから次以降の TOF サイクルにオーバーラップする形でバックグラウンドとなる。このバックグラウンドの見積もりには J-PARC の加速器の特殊な運転パターンを利用した。J-PARC の 3 GeV シンクロトロンからの陽子ビームはほとんどの時間は中性子を発生させるための水銀ターゲットに入射しているが、55 発に 1 回程度、50GeV のメインリングに入射する。したがって、約 2 秒に 1 回、中性子源に陽子ビームが来ないサイクルが存在する。この陽子ビームが来ていない TOF フレームは表 3-24 にあるように現サイクルのスタート信号 (CH4) が来ているかどうかで判別することができる。1 周期前のスタート信号はあり、CH4 に信号がない TOF フレームは TOF を 40-80 ms としてオーバーラップ中性子バックグラウンドの導出に使用した。

ブランクバックグラウンドは試料を何も置かないときの測定から求めた。アルミケースによるバックグラウンドは同一の材質・形状のダミーケースによる測定から求めた。また、散乱中性子バックグラウンドは炭素試料を置いたときの測定から求めた。ブランクバックグラウンドは陽子パルス数で規格化し、試料測定の結果から差し引いた。ダミーケース測定、炭素試料測定も同様にブランクバックグラウンドを差し引いた後、試料原子数と陽子パルス数の積で規格化したものを TOF スペクトルから差し引いた。散乱バックグラウンドを除去する際は規格化因

子に散乱断面積の違いも考慮した。

入射中性子スペクトルはB-10 (n, α)Li-7 反応からの 478 keV のガンマ線を NaI(Tl) 検出器で検出することで決定した。478 keV のピーク領域の計数から TOF スペクトルをつくり、Tc-99 の解析と同様にオーバーラップ中性子、ブランクバックグラウンド、散乱中性子バックグラウンドを差し引くことで正味の TOF スペクトルを求めた。この TOF スペクトルを JENDL-4.0 の B-10 (n, α)Li-7 反応の断面積評価値とモンテカルロシミュレーションから求めた自己遮蔽込みの反応率で割り込むことで相対的な中性子スペクトルを求めた。得られた中性子スペクトルを図 3-112 に示す。図 3-113 には金試料の結果から得られた中性子スペクトルも比較のために示した。Au-197 の共鳴による影響が無視できる熱領域及び 1keV 以上の領域は両者のスペクトルの比較が可能である。比較可能なエネルギー領域においてよく一致していることが分かり、今回導出された中性子スペクトルの信頼性が確認された。

バックグラウンドを差し引いた正味の TOF スペクトルを中性子スペクトルで割ることで中性子捕獲断面積を導出した。まず、データ解析手法の妥当性検証のために行った Au-197 の断面積の導出結果を図に示す。断面積の絶対値は、4.9eV の第一共鳴において飽和共鳴法により規格化して得た。得られた結果を JENDL-4.0 の評価値と比較した。熱領域から高速中性子領域にわたって誤差の範囲で評価値とよく一致していることが分かる。このことからデータ解析手法は妥当なものであることを確認した。

次に解析により得られた Tc-99 の中性子捕獲断面積を図 3-114 に示す。得られた断面積は熱中性子エネルギー領域で JENDL-4.0 の評価値に一致するよう規格化した。測定結果を JENDL-4.0 の評価値と比較した。また、高速中性子エネルギー領域を拡大したものを図 3-115 に示す。誤差は統計誤差のみ示されている。過去の測定及び JENDL-4.0、ENDF/B-VII.1 の評価値と比較した。JENDL-4.0 の評価値は今回の測定より低めである。一方、ENDF/B-VII.1 は今回の測定結果より過大評価気味であることが分かった。過去の実験値は、Chou の測定結果は今回の結果を大きく下回っていることが分かった。また、Macklin らの結果は今回の測定値よりも低めである。他の測定値に関しては今回の結果と良い一致が見られた。

今回、解析により得られた Am-241 の中性子捕獲断面積を図 3-116 に示す。絶対値は、Au-197 測定の飽和共鳴法で得られた規格化因子を Am-241 の解析結果にも適用することで得た。結果を JENDL-4.0 と比較した。今回の測定では 2keV 程度までが高エネルギー測定可能領域の上限となった。これは、Am-241 試料の物質量が 7.5mg と少ないために十分な統計精度が得られなかったためである。測定可能な 2keV 程度までは JENDL-4.0 は今回の測定値と誤差の範囲で一致していることが分かった。

Np-237 の解析結果で得られた中性子捕獲断面積を図 3-117 に示す。絶対値は熱中性子エネルギー領域で JENDL-4.0 の評価値に規格化して得た。高エネルギー領域については Np-237 は 30keV 程度までの中性子捕獲断面積が導出された。高エネルギー領域において JENDL-4.0 の評価断面積は今回の結果を上回ることが分かった。

NaI(Tl) 検出器を用いて、Am-241 及び Np-237 の熱中性子エネルギー領域から高速中性子エネルギー領域にわたる中性子捕獲断面積測定を行った。実験に際しては、適宜バックグラウンドの低減を行いながら測定を行った。昨年度測定した Tc-99 のデータも含め、波高重み法を用い

たデータ解析を行い、中性子捕獲断面積を最大約 800keV まで導出した。

この結果、中性子捕獲断面積測定のエネギー範囲を高速中性子領域に拡張できることを確認するとともに、3.5 章「測定と評価のキャッチボールによる高品質評価」に資する断面積測定データを得ることができた。

表 3-24 TOF フレームとスタート信号の関係

スタート信号 (1 周期前)	CH4 (現サイクル)	計測	TOF フレーム
○	○	○	0 - 40 ms
○	×	○	40 - 80 ms

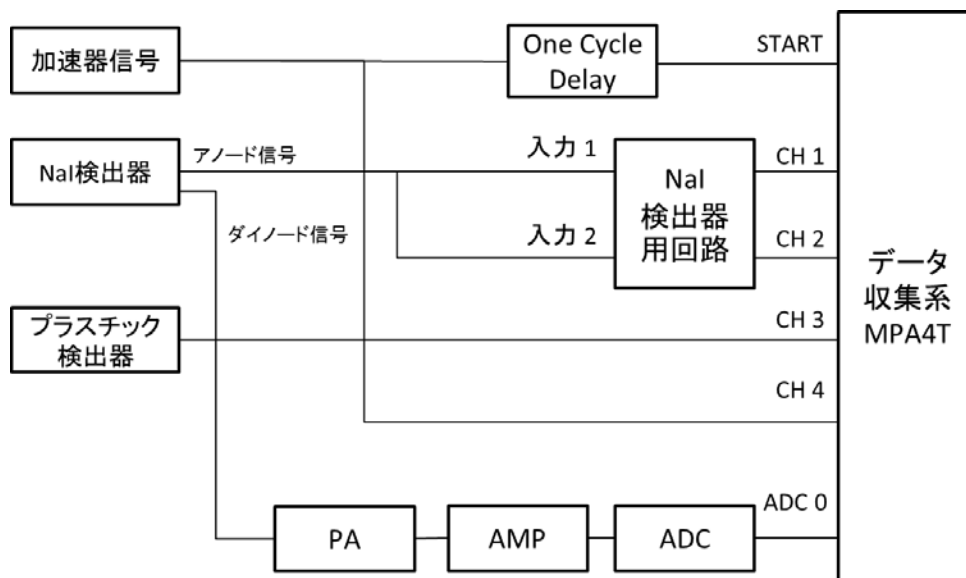


図 3-111 NaI(Tl) 検出器システムのブロックダイアグラム

(PA: Preamplifier, AMP: Amplifier, ADC: Analog-to-digital convertor)

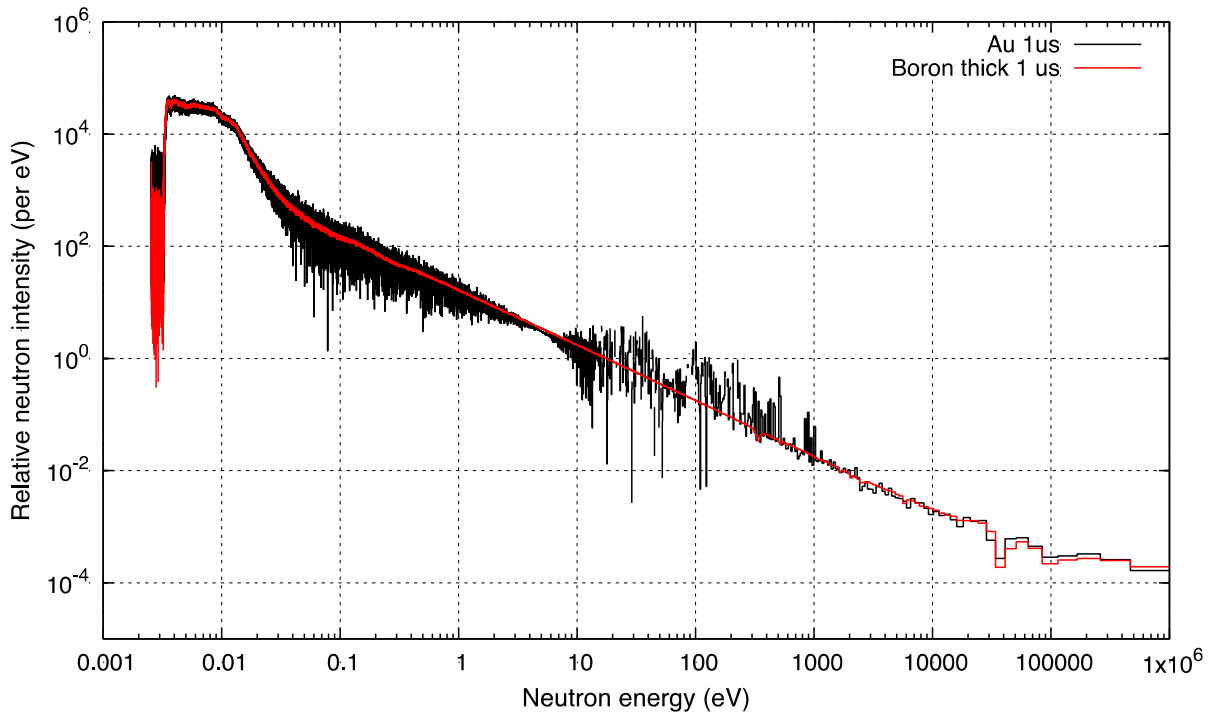


図 3-112 入射中性子スペクトル

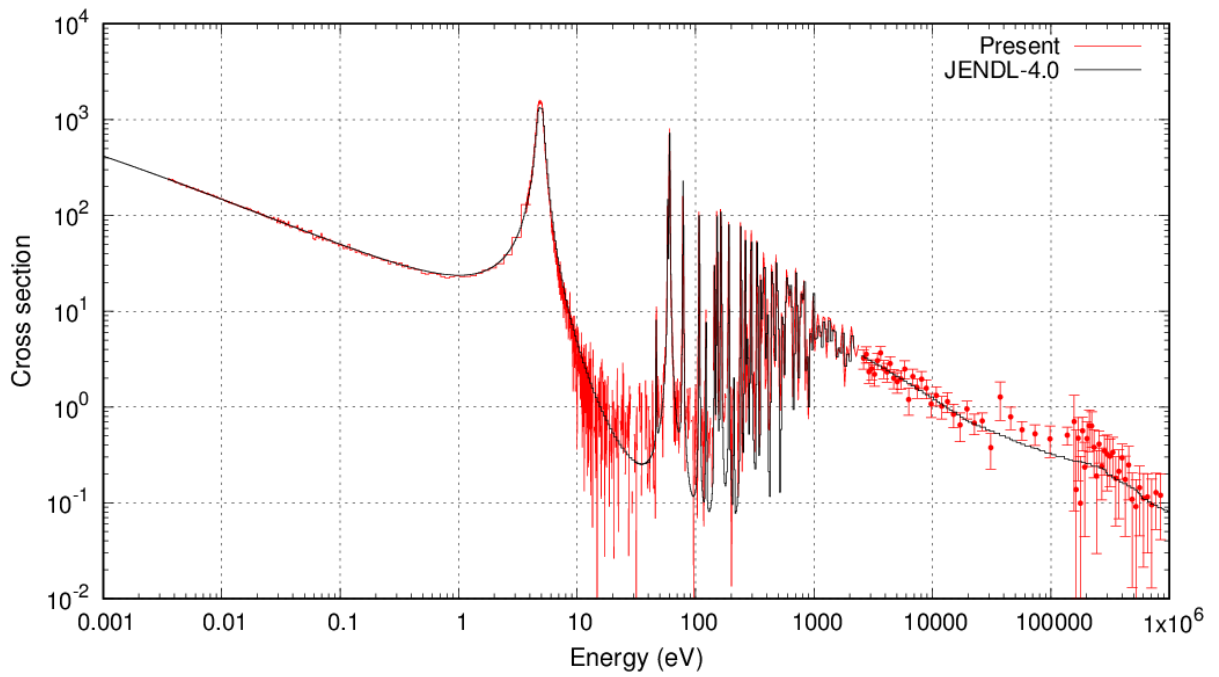


図 3-113 Au-197 の中性子捕獲断面積

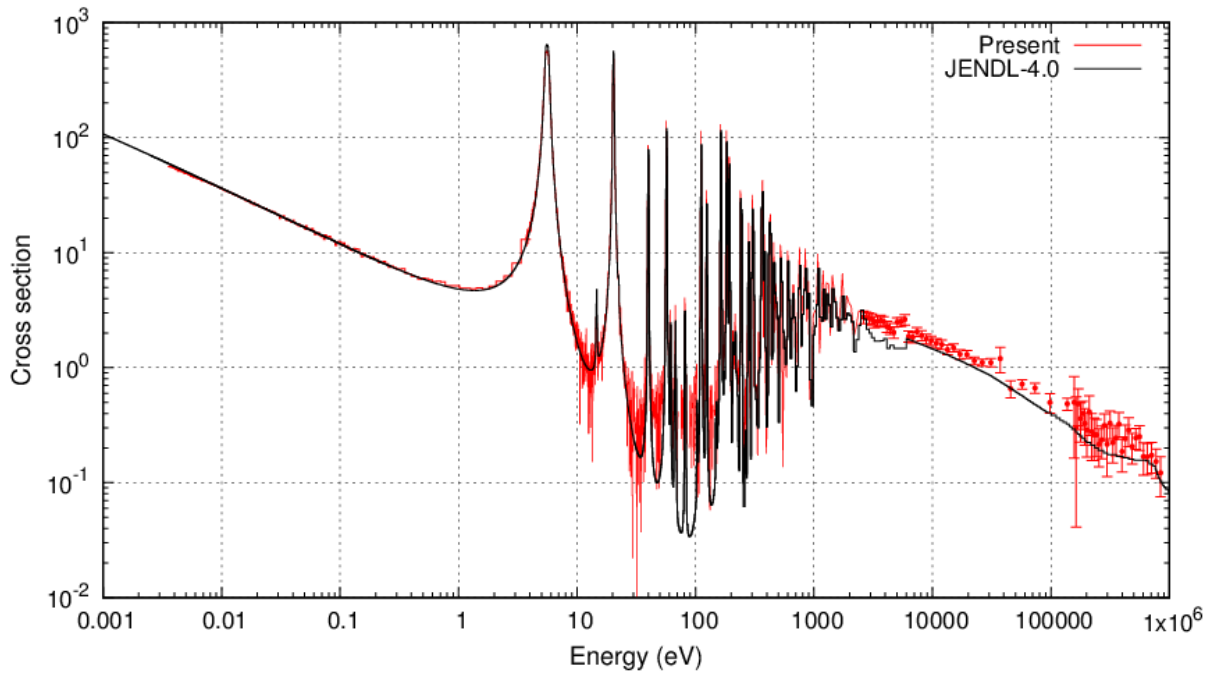


図 3-114 Tc-99 の中性子捕獲断面積

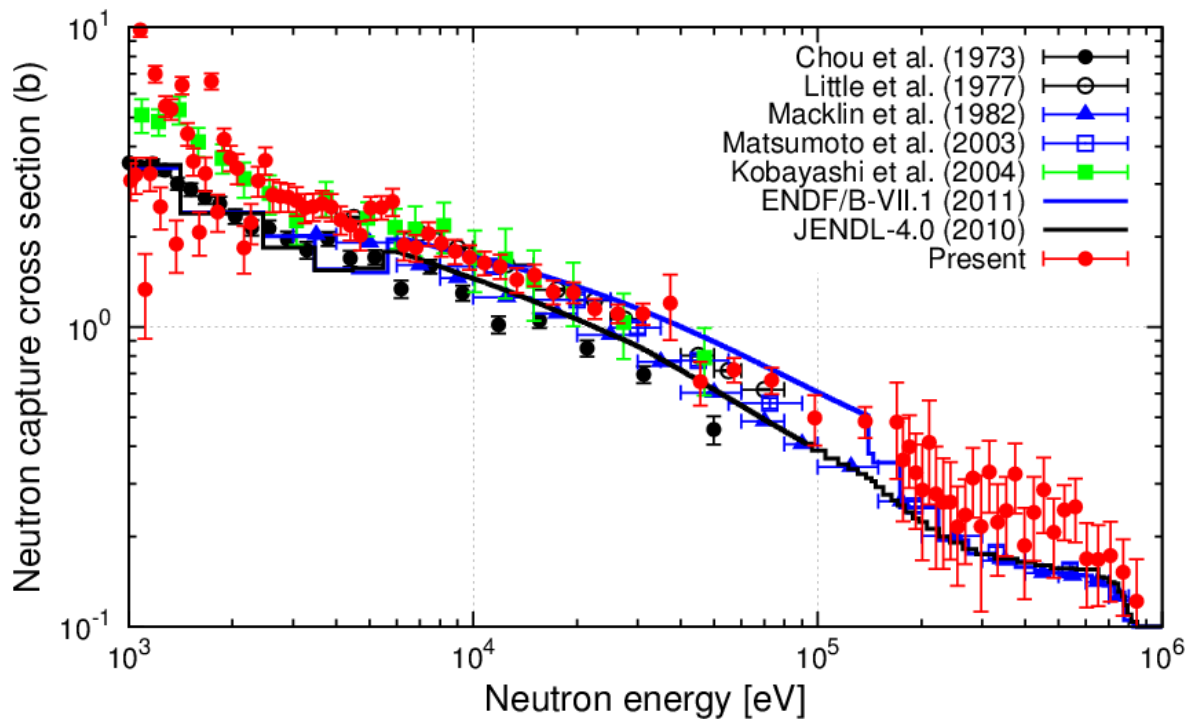


図 3-115 Tc-99 の中性子捕獲断面積 (高速中性子領域)

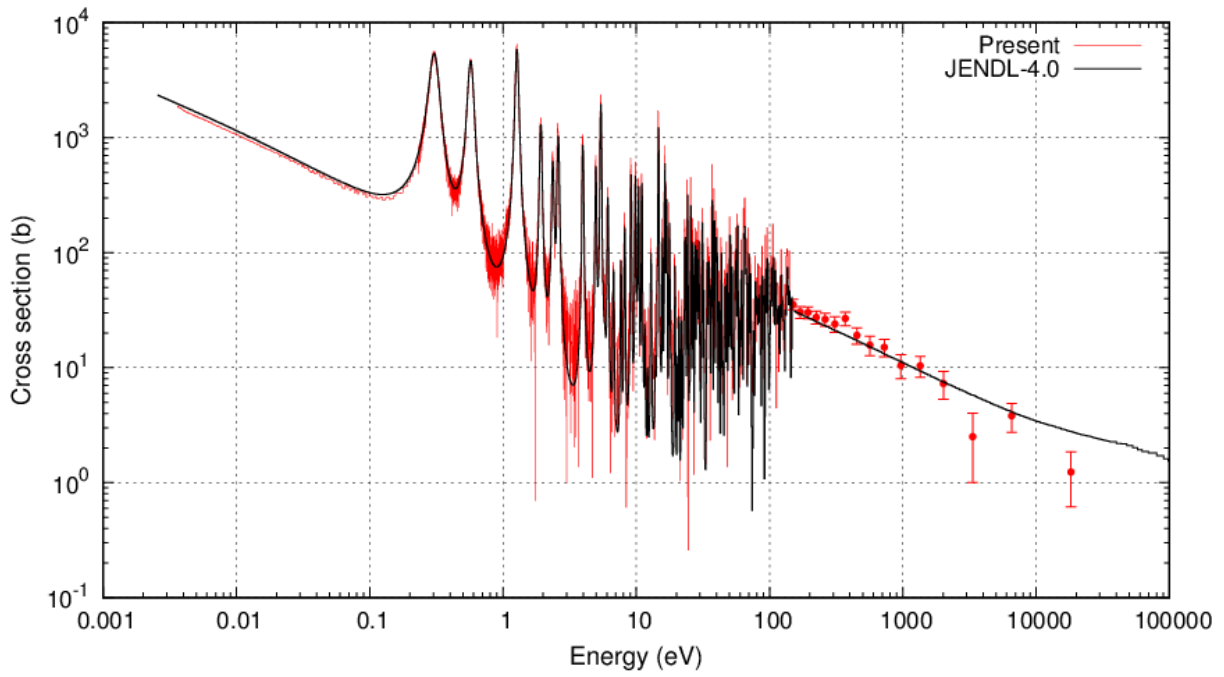


図 3-116 Am-241 の中性子捕獲断面積

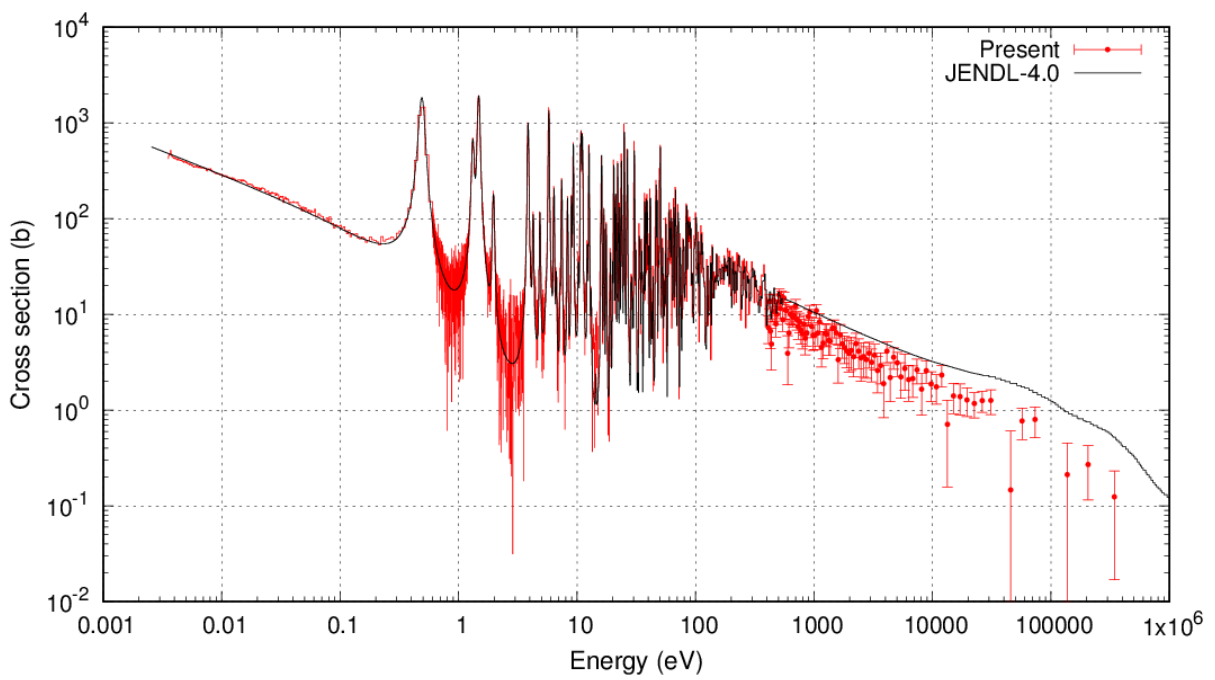


図 3-117 Np-237 の中性子捕獲断面積

3.5. 測定と評価のキャッチボールによる高品質評価 (H25~H28)

3.5.1. ガンマ線放出率の評価

平成 28 年度は、放射化法による熱捕獲断面積の導出のために、崩壊ガンマ線の放出率に関する評価を実施した。

図 3-118、図 3-119、図 3-120、図 3-121 には、既存のガンマ線放出率に関する測定値 (紫) と評価値 (青) を時系列で示してある。評価値は Be et al. ⁽²²⁾、Table of Isotopes (7th ed. ⁽¹¹⁾, 8th ed. ⁽²³⁾)、核構造データベース ENSDF⁽²⁴⁾ である。Pa-233 の 312keV ガンマ線放出率 (図 3-118 下段) は Harada et al. ⁽²⁵⁾ を除いて測定データ間の整合性はかなり良い。このガンマ線放出率では、Shchukin et al. ⁽²⁶⁾ のデータが Luca et al. ⁽²⁷⁾ の再解析値なので Luca et al. のデータを評価から外した。DeVries et al. ⁽²⁸⁾ には誤差に関する詳細な記述がなかったので、他のデータと整合するように誤差を 2 倍にした (緑線)。Np-238 の 1025keV 及び 1028keV ガンマ線放出率は、図 3-119 に示すとおり測定値間で差異が大きい。しかし、図 3-120 のように、984keV ガンマ線放出率に対する相対値として見ると整合性が高いことが分かった。これにより大きな差異は、1025keV 及び 1028keV ガンマ線放出率のデータが Letourneau et al. ⁽²⁹⁾ や Leconte et al. ⁽³⁰⁾ を除いて、Lederer et al. ⁽³¹⁾ の 984keV ガンマ線放出率に対する相対測定値となっていたことに起因すると考えられる。Np-239 の 228 keV ガンマ線放出率 (図 3-121) に関しては、ENSDF によると、Ahmad et al. ⁽³²⁾、Starozhukov et al. ⁽³³⁾、Vaninbroukx et al. ⁽³⁴⁾、Woods et al. ⁽³⁵⁾ の測定値から 227keV ガンマ線放出率の 0.51% を除いて加重平均を取ったと記載があった。これは測定でこのガンマ線が分離できなかったためと考えられる。Chang et al. ⁽³⁶⁾ や Hamed et al. ⁽³⁷⁾ にも 227keV ガンマ線に関する記述がなかったため、同様に 0.51% を除いた (緑線)。

以上を踏まえて、Np-238 の 984keV ガンマ線放出率は、Lederer et al. を除いた測定値の加重平均から $I_{\gamma}^{Np238}(984) = (25.19 \pm 0.10) \%$ 、Pa-233 の 312keV では Harada et al. を除いた測定値の加重平均から $I_{\gamma}^{Pa233}(312) = (38.46 \pm 0.16) \%$ をそれぞれ評価値とした。なお、 $I_{\gamma}^{Pa233}(312)$ の評価には本事業で測定した値 (Terada 2016) も加味した。Np-237 の 86keV ガンマ線放出率 (図 3-118 中段) は、測定値にばらつきがあるが、数値に大きな差異がないことからそのまま加重平均をとり、評価値を $I_{\gamma}^{Np237}(86) = (12.22 \pm 0.08) \%$ とした。Np-238 の 1025keV 及び 1028keV ガンマ線放出率 (図 3-120) に関しては、984keV ガンマ線放出率に対する相対値の加重平均を計算し、それらに導出した $I_{\gamma}^{Np238}(984) = (25.19 \pm 0.10) \%$ を乗じることで、 $I_{\gamma}^{Np238}(1025) = (8.78 \pm 0.05) \%$ 及び $I_{\gamma}^{Np238}(1028) = (18.3 \pm 0.1) \%$ を得た。これらの数値は図 3-119 に示すとおり、データが逐次更新されている ENSDF と整合している。Np-239 の 228keV ガンマ線放出率 (図 3-121) は、227keV ガンマ線放出率を除いた数値と本事業の成果 (Terada 2017) を合せた加重平均から $I_{\gamma}^{Np239}(228) = (10.90 \pm 0.07) \%$ を評価値とした。

3.5.2. MA 核種の熱中性子捕獲断面積及び s 因子の評価

熱エネルギー (0.0253 eV) における中性子捕獲断面積 σ_0 の測定には主に放射化法と TOF 法が用いられる。TOF 法では基本的に中性子エネルギー E に依存した断面積 $\sigma(E)$ が測定できる。しかし、断面積の絶対値を直接求めることは難しいため、多くの場合には評価済ライブラリ等にある共鳴断面積のピークや熱中性子捕獲断面積へ規格化することで絶対値が決められている。対

照的に、放射化法では直接、中性子熱捕獲断面積や共鳴積分 I_0^C （または s 因子 s_0^C ）を求めることができるという利点がある。

放射化法では中性子と試料との反応率を記述するために、Westcott の表現⁽³⁸⁾を用いるのが一般的である。Westcott の表現では熱中性子領域と熱外中性子領域に対する中性子束エネルギー分布をそれぞれモデル化し、これを反応率に代入して以下のように記述される。

$$R^{(i)}/\sigma_0 = g\phi_1^{(i)} + s_0^{(c)}\phi_2^{(i)} \quad (\text{数式 3-16})$$

$R^{(i)}$ は反応率、 $\phi_1^{(i)}$ 、 $\phi_2^{(i)}$ は中性子束を表し、上付きプライムは試料を Cd フィルタで覆った場合を表す。 s_0 と s_0^C は以下のように記述され、積分範囲の下限が異なる。

$$s_0^{(c)} = \frac{2}{\sigma_0\sqrt{\pi}} \int_{\mu kT(E_c)}^{\infty} \frac{dE}{E} \left(\sigma(E) - g\sigma_0 \sqrt{\frac{E_0}{E}} \right) \quad (\text{数式 3-17})$$

μkT は熱外中性子束の寄与が現れるエネルギーを、 E_c は Cd フィルタ等による中性子束エネルギー分布の切断エネルギーをそれぞれ表す。ここで s_0 と s_0^C の差を $\delta s_0 (= s_0 - s_0^C)$ とすると(数式 3-16)式の Cd フィルタなしの場合の反応率は

$$R/\sigma_0 = g\phi_1 + s_0^C\phi_2 + \delta s_0\phi_2 \quad (\text{数式 3-18})$$

と表せる。 σ_0 や s_0^C が良く分かっている核種（中性子束モニタ）には、 $\mu kT \sim E_c$ のエネルギー範囲に共鳴が存在せず、断面積が $1/v$ 則に従うもの選ばれているため、 $\delta s_0 = 0$ となり、反応率を測定することによって $\phi_1^{(i)}$ 、 $\phi_2^{(i)}$ を導出することができる。測定対象核の反応率 $R^{(i)}$ と中性子束モニタで得られる $\phi_1^{(i)}$ 、 $\phi_2^{(i)}$ を用いれば、(数式 3-16)式と(数式 3-18)式から測定対象核の σ_0 と s_0^C を得ることができる。このような手法は Cd 比法と呼ばれる。

Cd 比法はこれまでに多くの核種へ適用され、信頼性の高い σ_0 を与えてきた。しかし、MA 核種については、測定値に大きな差異が見られた。これは Cd フィルタによる切断エネルギー近傍に共鳴が存在し、 δs_0 の寄与が無視できなくなることに起因すると考えられた。そこで、評価値の $\sigma(E)$ を用いて δs_0 を算出することで断面積の絶対値に依らずに測定値の補正を行い、本事業の測定値も加味して熱中性子捕獲断面積に対する評価を行った。

(1) Am-241

図 3-122 上図には補正前の Am-241 に対する熱中性子捕獲断面積測定値の経年変化、また図 3-123 上図には補正前の s 因子の測定値を切断エネルギーの関数として示してある。熱中性子捕獲断面積に関しては、近年の測定値ではばらつきが小さくなってきている。一方、Bak et al.⁽³⁹⁾、Harbour et al.⁽⁴⁰⁾、Gavrilov et al.⁽⁴¹⁾、Shinohara et al.⁽⁴²⁾の測定値は JENDL-4.0⁽⁹⁾や近年の測定値と比べて、10~20%ほど大きな値を示している。s 因子では著しく各測定値間の整合性が低い状況である。

Shinohara et al.の測定値については、著者から入手した実験に関する資料を基に試料カプセルの形状などを考慮した Cd フィルタの有効厚みの解析や反応率の解析方法を見直

した。これに加えて、本事業で測定した断面積を解析して得られた共鳴パラメータ (3.5.3(4)章参照) を基に導出した δs_0 を用いて反応率を補正した。その結果、 $\sigma_0=707\pm 64b$ 、 $s_0^C=2.47\pm 0.25$ を得た。Gavrilov et al. の論文には中性子束の測定値に関する記載がなかった。測定は SM-2 原子炉で行われたことが記されていたので、SM-2 原子炉に関する他の文献⁽⁴³⁾ から中性子束の情報を推定した。また、切断エネルギーについては 0.68eV という記述があったが、Cd フィルタの厚さや試料カプセルの形状などの情報がなかったことから、測定された I_0^C と近年の評価値の傾向より切断エネルギーとして $0.5\pm 0.1eV$ と推定した。このように補正を行った結果、 $\sigma_0=702\pm 96b$ 、 $s_0^C=2.45\pm 0.42$ を得た。Bak et al. でも Gavrilov et al. と同様に、中性子束の測定値は論文に記載されていなかった。測定は VVR-M 原子炉で行われたので、VVR-M 原子炉に関する他の文献⁽⁴⁴⁾ から中性子束の情報を推定した。切断エネルギーに関する記述はなく、実験データベース EXFOR⁽⁴⁵⁾ には 0.4eV と記載されていた。測定値 $I_0^C=2400\pm 20 b$ と近年の評価値から、本事業では切断エネルギーとして $0.3\pm 0.1eV$ と推定した。これらを踏まえて δI_0 の効果を補正したところ、 $\sigma_0=683\pm 69b$ 、 $s_0^C=3.45\pm 0.52$ を得た。Harbour et al. では中性子束の熱外中性子成分と熱中性子成分の比が 0.958 であると記述されており、実験が行われた炉は非常に硬い中性子束エネルギー分布を持つことが示唆された。しかし、この数値は輸送計算を基にした理論値と得られた熱中性子捕獲断面積から推定された値であり、実測値ではなかった。一方で、熱外中性子成分がこれほど多い炉で熱中性子捕獲断面積を精度よく測定することは極めて難しいと考えられたため、評価から外すことにした。また、Pomerance et al.⁽⁴⁶⁾ はパイルオシレーター法を採用していたが、この方法では厚い試料を用いることが多く、これに伴う試料による自己遮蔽効果も大きいため、この効果に対する補正が適切に行われたか明確ではなかったことから、加重平均より除外した。

図 3-122 下図には補正後の Am-241 の熱中性子捕獲断面積を示す。上図と比べて、測定データ間の整合性が向上しており、JENDL-4.0 の誤差範囲に分布する結果となった。本事業の評価値は、補正後のデータを基に、測定誤差から共通 (系統) 誤差を取り出し、誤差伝播と加重平均により平均値と誤差を導出した。その結果、得られた評価値 $697\pm 16 b$ となった。本事業による評価値 (赤丸) も示してあり、J-PARC で測定された断面積を解析して得られた共鳴パラメータ (3.5.3(4)章参照) を基に計算した熱中性子捕獲断面積 (698 b) と整合している。

図 3-123 下図には補正後の s 因子の値を示している。補正前は切断エネルギーの関数として一貫性がなかったのに対し、補正後は JENDL-4.0 との整合性も改善した。本事業で導出した共鳴パラメータ (3.5.3(4)章参照) を用いて計算した s 因子 (緑線) は、放射化法で得られた補正後の s 因子と一致した結果となっている。

(2) Am-243

図 3-124 上図及び図 3-125 上図に Am-243 に対する補正前の熱中性子捕獲断面積測定値の経年変化及び s 因子の測定値を示す。また、図 3-124 下図及び図 3-125 下図には、それぞれの補正後の結果を示している。Gavrilov et al. と Bak et al. の測定値は、本事業の

測定値を解析して得られた共鳴パラメータ (3.5.3(5)章参照) から計算した断面積を用いて補正した。補正後の Gavrilov et al. の値は $\sigma_0=74\pm 7$ b、 $s_0^C=33\pm 4$ となり、Bak et al. の値は $\sigma_0=70\pm 6$ b、 $s_0^C=37\pm 5$ となった。Eberle et al. には、誤差解析の詳細が無かったため、他の放射化法によるものと同程度の誤差を仮定した。Marie et al. ⁽⁴⁷⁾を除いて、補正後の熱中性子捕獲断面積は JENDL-4.0 と比べて小さくなった。Marie et al. は測定された反応率を中性子束で割って導出された平均断面積に補正係数を乗じて熱中性子捕獲断面積を導出していたが、補正係数の誤差が小さく見積もられていた可能性があるため、JENDL-4.0 の断面積誤差を加えて評価した。その結果、 $\sigma_0=75.6\pm 3.2$ b を得た。なお、J-PARC の測定データを解析して得られた共鳴パラメータ (3.5.3(5)章参照) から計算した熱中性子捕獲断面積は 74.1 b であり、本評価値と誤差の範囲で整合している。

s 因子については、補正值の整合性は Am-241 と比べて低いが、本事業で導出した共鳴パラメータ (3.5.3(5)章参照) を用いて計算した s 因子 (緑線) は JENDL-4.0 より高くなっており、整合性は良くなった。

(3) Np-237

放射化法による Am-241, 243 の測定では、生成核から放出される α 線を測定することで反応率が導出されることが多い。対照的に Np-237 では反応率が、中性子を照射して生成される Np-238 の放射能 $A(^{238}\text{Np})$ と Np-237 試料の放射能 $A(^{237}\text{Np})$ の比に比例すること (数式 3-19) を用いて、導出されている。

$$R(^{237}\text{Np}) \propto \frac{A(^{238}\text{Np})}{A(^{237}\text{Np})} \quad (\text{数式 3-19})$$

Np-237 及び Np-238 の放射能の測定には、主に Np-237 の α 崩壊により生成される娘核 Pa-233 からのガンマ線及び Np-238 からのガンマ線がそれぞれ利用されることが多い。放射能 A はガンマ線の収量 Y_γ を検出効率 ε_γ 、ガンマ線放出率 I_γ 、測定時間 T で割って

$$A = \frac{Y_\gamma}{\varepsilon_\gamma I_\gamma T} \quad (\text{数式 3-20})$$

と与えられる。測定量は Y_γ 、 ε_γ 、 T であり、ガンマ線放出率は評価値や独立に測定された数値を用いることが一般的である。しかし、ガンマ線放出率の測定値にばらつきがあるため、共通のガンマ線放出率による反応率の補正が必要となる。

平成 28 年度は 3.5.1 章で導出した評価値を用いて補正を行った。補正係数 C は (数式 3-19) 式、(数式 3-20) 式から

$$C = \left(\frac{I_\gamma^{Eval}(^{233}\text{Pa})}{I_\gamma^{Eval}(^{238}\text{Np})} \right) / \left(\frac{I_\gamma^{Org}(^{233}\text{Pa})}{I_\gamma^{Org}(^{238}\text{Np})} \right) \quad (\text{数式 3-21})$$

と定義できる。ここで I_γ^{Org} はそれぞれの実験解析で用いられた値である。この補正係数を実験で導出された反応率(もしくは断面積)に乗じることによって補正を行うことができ、

Jurova et al. ⁽⁴⁸⁾, Kobayashi et al. ⁽⁴⁹⁾, Katoh et al. ⁽⁵⁰⁾, Harada et al. ⁽²⁵⁾, Genreith et al. ⁽⁵¹⁾を補正対象とした。

Jurova et al. では用いられたガンマ線放出率 (Np-237, $I_{\gamma}(86)=12.6\pm 1.3$; Np-238, $I_{\gamma}(984)=27.8\pm 0.8$) から補正係数は $C=1.07\pm 0.01$ となった。Jurova et al. では一つの参照核種に対する相対測定が行われたと推測されたので、 σ_0 及び s_0^C にこの補正係数を乗じて補正を行い、 $\sigma_0=168\pm 5$ b、 $s_0^C=4.73\pm 0.25$ 、 5.56 ± 0.32 (それぞれ Cd 厚 0.35, 0.5mm に対応)を得た。Kobayashi et al. では用いられたガンマ線放出率 (Pa-233, $I_{\gamma}(312)=37.0$; Np-238, $I_{\gamma}(984)=27.8$) から $C=1.15\pm 0.01$ とした。測定手法から Jurova et al. と同様の補正を適用し、 $\sigma_0=181\pm 4$ b、 $s_0^C=4.16\pm 0.20$ を得た。Katoh et al. では二つの参照核種を用いた Cd 比法により σ_0 と s_0^C の導出を行っていた。用いられたガンマ線放出率 (Pa-233, $I_{\gamma}(312)=38.6\pm 0.4$; Np-238, $I_{\gamma}(984)=27.8\pm 0.8$, $I_{\gamma}(1025)=9.6\pm 0.5$, $I_{\gamma}(1028)=20.3\pm 0.8$) から $C=1.10\pm 0.01$ となるので、 $\sigma_0=158\pm 6$ bを得た。 s_0^C は定義からガンマ線放出率に対する補正は受けない。ただし、Np-237はCd切断エネルギー近傍 ($E=0.5$ eV) に第1共鳴が存在するため、Cd比法の補正が必要となる。その結果、 $s_0^C=5.70\pm 0.42$ を得た。Harada et al. にはガンマ線放出率の補正は必要ない。これは Harada et al. では熱中性子捕獲断面積の測定に α 線を使用していたためである。ただし、実効捕獲断面積から熱中性子捕獲断面積を導出する場合に Katoh et al. で測定された s_0^C を用いていた。補正された Katoh et al. の s_0^C を用いて、 $\sigma_0=171\pm 6$ bを得た。Genreith et al. が使用したガンマ線放出率 (Np-238, $I_{\gamma}(1028)=0.1825\pm 0.0013$) から補正係数をほぼ1と評価し、誤差も小さかったので、補正は行わなかった。

図 3-126、図 3-127 では、補正前(上図)と補正後(下図)の σ_0 と s_0^C をそれぞれ示した。補正前と補正後を比較すると σ_0 では Katoh et al. を除いて、データのばらつきが改善した。Katoh et al. は補正前と比較すると過小傾向は改善しているが、他の測定手法によるデータとの整合性は改善しなかった。 s_0^C ではデータのばらつきが改善し、JENDL-4.0 と整合する結果となった。Katoh et al. を除いて熱中性子捕獲断面積を評価した結果、 $\sigma_0=174\pm 6$ bを得た。

3.5.3. J-PARC で測定されたデータを用いた共鳴解析

J-PARCにおける大強度パルス中性子を用いて TOF 法により測定された中性子透過データや中性子捕獲断面積データを精度良く再現するためには、実験施設に固有の分解能やエネルギー校正を適切に考慮する必要がある。以下では、J-PARC MLF 施設に対応した時間分解能関数とエネルギー校正方法、そして得られた結果を基にした共鳴解析結果についてまとめた。

(1) 時間分解能関数パラメータ探索方法の検討

本事業では、中性子透過データや中性子捕獲断面積データを解析し、共鳴断面積を表す共鳴パラメータを導出するために、R 行列理論に基づく共鳴解析プログラム REFIT⁽⁵²⁾を用いた。共鳴断面積データの解析精度を高めるためには、中性子パルスの時間分解能特性を適切に表現する必要がある。REFIT には J-PARC の運転出力が 17kW (RUN20) 及び 1MW の

ときの Ikeda-Carpenter 型の時間分解能関数に対するパラメータが組み込まれている⁽⁵³⁾
⁽⁵⁴⁾。そのパラメータの中性子エネルギー依存性は運転出力によって異なる可能性があるため、測定時の運転出力に対応した適切なパラメータを用いる必要がある。しかし、REFIT には、断面積の再現計算において共鳴パラメータと分解能関数パラメータを同時に推定する機能はない。そこでマルカート法による最小二乗近似法を用いた分解能関数パラメータ探索のための外部プログラムを開発し、この機能を追加した。図 3-128 に外部プログラムと REFIT との関係を示す。このプログラムでは実験データと計算値との残差が十分に小さくなるまで、共鳴パラメータと分解能関数パラメータの推定を交互に繰り返して、両者の収束した値を得る仕組みとなっている。

図 3-129 には J-PARC で過去に測定された Sn-118 の中性子捕獲断面積データを用いて外部プログラムの動作を確認した結果が示してある。図の青線と緑線はそれぞれ 1MW と RUN20 に対する分解能関数パラメータを固定して、共鳴パラメータを推定した結果であるが、共鳴の低エネルギー側で再現性が良くないことが分かる。分解能関数パラメータも同時に推定した結果が赤線で示してあり、共鳴ピークや低エネルギー側で実験値と計算値との残差が小さくなっていることを確認した。このとき得られた分解能関数パラメータの中性子エネルギー依存性を図 3-130 に示す。赤線が断面積データの再現によって得られたパラメータに対する結果である。比較のために 1MW 及び RUN20 のパラメータをそれぞれ黒線と緑線で示してある。

また、REFIT ではエネルギー領域を分割して断面積の再現計算を行うが、分解能関数パラメータはこの分割されたエネルギー領域の始点及び終点とその間の midpoint の 3 点でしか計算されていなかった。そこで領域の分割の仕方による断面積の再現性能を調べた。Gd-157 の断面積におけるエネルギー領域の分割数依存性の結果を図 3-131 に示す。図の上段の(1)～(4)は 100eV までのエネルギー領域をそれぞれ 1, 2, 4, 8 分割して計算した断面積である。中段、下段は分割数を変えた断面積間の差を表している。(1-2)は上段の(1)と(2)の間の差に対応する)。中段と下段の違いは断面積による規格化のみである。中段に示した残差を見るとエネルギーが高くなるほど、分割数の影響が大きいということが分かる。これは反対に、エネルギー分解能関数の影響はエネルギーの低い領域ではあまり大きくはないということを示している。100eV 以下のエネルギー領域を対数スケールで 70 分割すると、分割による断面積の変化は収束する。図 3-132 にこの処方箋を Sn-118 の再現計算に適用した結果を示す。赤線は図 3-129 と同様に、分解能関数パラメータと共鳴パラメータを同時に推定した結果である。一方で、黒線は RUN20 を用いてエネルギー領域を細かく分割し、断面積を再現した結果である。この結果から、分解能関数パラメータを調整することなく、調整した場合(赤線)と同程度の結果が得られることが分かった。

時間分解能関数パラメータの 1MW と RUN20 では、前提としている運転出力の違いのほか、冷却水等にも違いがある。J-PARC MLF では冷却水に軽水が使われ、本事業の実験時の運転出力は 200 及び 500 kW であった。RUN20 の分解能関数モデルでは運転出力が 17.5 kW、冷却水として軽水が使用されており、現在の J-PARC の運転環境に近い。また、エネルギー領域の分割に関する考察より、低エネルギー領域では再現計算に対する分解能関数の分割

数依存性は小さいので、MA 核種で解析をする 20eV 以下のエネルギー領域ではパラメータを探索できる可能性は低いと考えられる。これらのことから、本事業における共鳴解析では、分解能関数パラメータは RUN20 を用い、1keV までのエネルギー領域は対数スケールで 40 分割程度に分割することとした。

(2) エネルギー校正方法の検討

平成 28 年度は、TOF 法で測定されたデータの時間（またはチャンネル）を中性子エネルギーに変換するための手法を開発した。測定値の時間 t とエネルギー E とは、

$$E = \frac{1}{2}mc^2 \left(\frac{L/c}{t - T_0} \right)^2$$

(数式 3-22)

という関係があり、エネルギーの決定精度は中性子の飛行距離 L と時間遅れ T_0 の精度に依存する。なお、 m は中性子の質量、 c は光速を表す。通常、共鳴パラメータが良く知られている金などの核種を測定し、共鳴エネルギーが一致するように L と T_0 を決める。 L は低い共鳴エネルギーに対して感度が高く、反対に T_0 は高い共鳴エネルギーで感度が高いことから、低いエネルギーと高いエネルギーの両方で基準となる共鳴が必要となる。しかし、金の共鳴エネルギーは実験値や評価値によって異なっている。図 3-133 には JENDL-4.0 の共鳴エネルギーを基準に、過去の解析値 (Massimi et al. ⁽⁵⁵⁾, Alix et al. ⁽⁵⁶⁾, Alves et al. ⁽⁵⁷⁾) 及び評価値 (JEFF-3.2 ⁽⁵⁸⁾) との比較が示してある。この図から 107 eV 共鳴のエネルギーは評価値や過去の解析値のばらつきが最も小さく、かつ孤立した比較的大きな共鳴であることが分かった。低いエネルギーの共鳴はこれを採用することにし、この共鳴エネルギーの平均を求め、 106.99 ± 0.04 eV (誤差は 4 つのデータから導出した標準偏差) を得た。

1 keV を超える高いエネルギーで基準となる共鳴は金の測定データにはなかったため、Am-241 試料を測定したときの TOF スペクトルに着目した。この TOF スペクトルには試料に含まれる Y-89 の共鳴ピークが 3490 ch 付近にはっきりと測定されていた (図 3-134)。これは 2.6 keV の共鳴に対応しており、JENDL-4.0 や JEFF-3.2 などの評価値において共鳴エネルギーの差異は見られなかった。そこで、金の中性子捕獲断面積データにおける 107 eV 共鳴と Am-241 の TOF スペクトルにある Y-89 の 2.6 keV 共鳴を使って L と T_0 を決定した。その結果、Ge 検出器を用いた中性子捕獲断面積測定においては、 $L=21.5084$ m、 $T_0=4.468$ μ s を得た。この数値を用いて、金の中性子捕獲断面積を REFIT で再現した。得られた金の共鳴エネルギーと他の解析値や評価値の共鳴エネルギーを比較したものを図 3-135 に示す。低いエネルギーでは共鳴エネルギー間でばらつきが大きいのが、400 eV 以上ではほぼ JEFF-3.2 と等しくなることが分かった。次に、この金の共鳴エネルギーを再現するように、中性子透過測定用 Li-glass 検出器の設置位置に対する飛行距離 L と時間遅れ T_0 を金の透過データを用いて求め、 $L=28.6278$ m、 $T_0=3.9698$ μ s が得られた。図 3-136 と図 3-137 に金の中性子透過データ及び中性子捕獲断面積データの再現結果を示す。また、表 3-25 に得られた金の共鳴パラメータをまとめた。比較として、JENDL-4.0 と JEFF-3.2 の共鳴パラメータも載せてある。また、Am-243 の中性子捕獲断面積を測定した時期は Am-241 とは異

なっていたため、Am-243 と同時期に測定された金の中性子捕獲断面積データを使って同様の解析を行い、Ge 検出器の位置での時間遅れとして $T_0=4.259 \mu\text{s}$ を得た。なお、L に変更はなかった。

(3) Gd-155, 157 の中性子捕獲断面積の共鳴解析

REFIT を用いて、J-PARC で測定された Gd-155, 157 の中性子捕獲断面積データに対する共鳴解析を行った。Gd-155 試料には Gd-156、Gd-157 がそれぞれ 5.1%、1.1%、また、Gd-157 試料には Gd-155、Gd-156、Gd-158 がそれぞれ 0.3%、1.7%、9.1%含まれていたため、これらによる断面積への寄与を考慮した。また、本測定時は中性子パルス波形が二つのピークを持つダブルバンチモードであったため、計算ではそのダブルバンチを模擬した波形を用いて、REFIT による再現計算を実施した。解析には、厚さの異なる 2 種類の試料 (Gd-155 では試料厚 600 nm、16 μm 及び Gd-157 では試料厚 600 nm、20 μm) で得られた測定値とそれらの測定値を使って導出された絶対値の 3 種を使用した。飛行距離は 27.98 m と仮定してエネルギーを決定し、Gd-155, 157 に対する各試料厚の測定値は絶対値にそれぞれ 0.1, 0.2 eV で規格化した。図 3-138 と図 3-139 にはそれぞれ Gd-155, 157 に対する熱中性子領域における断面積の再現結果が示してある。図の上段には実験値と計算値の比較、下段には実験値と計算値の残差が載せてある。また、図 3-140 に、1-30 eV における解析結果を示す。Gd-155, 157 の測定値はそれぞれ試料厚 16 μm , 20 μm のものである。JENDL-4.0 との差異は小さいが、Gd-157 については負共鳴の影響が 14eV まで現れている。表 3-26 と表 3-27 には、Gd-155, 157 に対して得られた熱中性子領域に近い共鳴のパラメータ (共鳴エネルギー E 、スピン J 、中性子幅 Γ_n 、放射幅 Γ_γ) が JENDL-4.0、JEFF-3.2、ENDF/B-VII.1⁽⁵⁹⁾ の評価値と比較してある。また、共鳴パラメータから計算した中性子捕獲断面積と評価値との比較を図 3-141、図 3-142 に示す。Gd-155 の熱中性子捕獲断面積は 63.59 kb となり、JENDL-4.0 と比べて 5%程度増加したが、0.1~1.0eV のエネルギー領域における断面積は評価値より小さくなっていた。これは第 1 共鳴と第 2 共鳴の放射幅が評価値と比べて小さくなったことに起因する。Gd-157 の熱中性子捕獲断面積は 253.1 kb となり、JENDL-4.0 とほぼ一致していたが、0.1~1.0eV のエネルギー領域においては評価値よりも大きくなっていた。これは第 1 共鳴と第 2 共鳴に対する共鳴パラメータの違いに加えて、本解析で採用した束縛状態にある共鳴 (負共鳴) にも起因している。共鳴解析により得られた 26 eV までの Gd-155, 157 に対する共鳴パラメータをそれぞれ表 3-28、表 3-29 に示す。

(4) Am-241 の中性子捕獲断面積・透過データを用いた共鳴解析

平成 28 年度に REFIT を用いて、J-PARC で測定された Am-241 の中性子捕獲断面積・透過データの共鳴解析を行った。測定はシングルバンチモード、200 kW の運転出力下で行われた。初期共鳴パラメータとしては JENDL-4.0 を採用した。解析では、Pu-240 が 0.04%含まれていることを考慮し、10 eV までの中性子エネルギー領域について解析を行った。解析は、第 1、第 2 共鳴については透過データと中性子捕獲断面積データを使用し、それ以外は中性子捕獲断面積データのみに基づいて行った。図 3-143 に断面積の再現結果を示す。

用いた透過データの試料には中性子ノッチフィルタが使用されていたため、これに含まれる In-115 と Ag-109 の共鳴の影響で誤差が大きくなっていた。本解析により両データを良く再現する結果を得た。得られた中性子幅 Γ_n 、放射幅 Γ_γ 、共鳴エネルギー E_r を比較すると、中性子幅は JEFF-3.2 と近い値をとり、放射幅は 3~7 eV 付近で JENDL-4.0 や JEFF-3.2 よりも大きくなった。共鳴エネルギーは JEFF-3.2 と整合しており、JENDL-4.0 は 2 eV より高いエネルギー領域で今回の評価値よりも大きかった。得られた共鳴パラメータを用いて計算した中性子捕獲断面積と JENDL-4.0、JEFF-3.2 との比較を図 3-144 に示す。熱領域では JENDL-4.0 に近く、共鳴領域では JEFF-3.2 と良い整合性を持つ結果を得た。

10eV までの負共鳴 4 本を含む 20 本の共鳴に対して導出した共鳴パラメータ（表 3-30）で、対応する JENDL-4.0 のデータを置きかえ、核データファイルとしてまとめた。

(5) Am-243 の中性子捕獲断面積・透過データを用いた共鳴解析

平成 28 年度に REFIT を用いて、J-PARC で測定された Am-243 の中性子捕獲断面積・透過データの共鳴解析を行った。解析には、240 MBq 試料による中性子透過データと 240, 120, 60 MBq 試料による中性子捕獲断面積データを使用し、これら 4 つの測定値を同時に再現するように断面積の再現計算を行った。また、試料には不純物として Am-241、Pu-239, 240 が含まれており、これらによる断面積への寄与を考慮した。Am-241 の共鳴パラメータは 3.5.3(4)章で得られたデータを使い、Pu-239, 240 については JENDL-4.0 を用いた。なお、これら不純物に対する共鳴パラメータの導出は行っていない。解析は、18eV までの負共鳴 1 本を含む 24 本の共鳴について実施し、得られた再現結果は図 3-145、図 3-146 に示してある。0.30, 0.57, 1.0 eV にある共鳴ピークは、Am-241、Pu-239, 240 の低エネルギー共鳴に対応している。Am-243 の 1.36 eV 共鳴に対する中性子捕獲断面積は非常に大きいため、補正の影響が大きいことから透過データのみを使って解析を行った。得られた共鳴パラメータを表 3-31 に JENDL-4.0 とともに示してある。

図 3-147 ではこの共鳴パラメータを使って計算した温度 300K における Am-243 の中性子捕獲断面積を JENDL-4.0 と比較した。3 eV 以上の中性子捕獲断面積は全体的に JENDL-4.0 より大きくなり、共鳴位置が低エネルギー側にずれたことが分かる。結果として、Am-243 の温度 300K における熱中性子捕獲断面積は 74.0 b となり、JENDL-4.0 の 79.3 b より 7% 程度減少した。

表 3-31 に示した 24 本の共鳴パラメータで、対応する JENDL-4.0 のデータを置きかえ、核データファイルとしてまとめた。

(6) Tc-99 の中性子捕獲断面積データを用いた共鳴解析

平成 28 年度に J-PARC ANNRI の NaI 検出器を用いて測定された Tc-99 の中性子捕獲断面積データの共鳴解析を REFIT により実施した。3.5.3(2)章で記載したエネルギー校正を行った Au-197 の評価値を基に、Tc-99 と同時期に測定された Au-197 の断面積データを使ってエネルギー校正を行い、飛行距離を 27.946 m と決定した。この情報を基に、REFIT コードで Tc-99 のチャンネルデータを中性子エネルギーデータへ変換した結果、JENDL-4.0 に

収録された共鳴エネルギーとの間に差異があることが分かった。そこで、測定データの共鳴エネルギーを基準にして、JENDL-4.0 の共鳴エネルギーを調整し、初期値とした。解析に使用した情報が中性子捕獲断面積データのみであったため、スピンと放射幅は JENDL-4.0 から採用し、エネルギーと中性子幅のみをパラメータとした。REFIT を用いて 550 eV までの解析を行い、得られた測定データの再現結果を図 3-148 及び図 3-149 に示す。共鳴エネルギーの調整による影響は 200 eV 以下では小さいが、エネルギーが高くなるほど本結果(赤線)と JENDL-4.0 (青線)とのずれが大きくなっていることが分かる。表 3-32 には解析で得られた s 波共鳴に対するパラメータを JENDL-4.0 の評価値とともに示してある。再現した 21 本の共鳴については、エネルギーに*を付した。3.5.4 章に記述した方法で軌道角運動量を評価したため、p 波共鳴と割り当てられた 4 本の共鳴に関する情報は本解析結果に記載していない。これらの共鳴は中性子幅も小さく、ピーク断面積はバックグラウンドレベルであったため、パラメータ調整は行わなかった。

3.5.4. 高速中性子領域における断面積評価

高速中性子領域における全断面積及び中性子捕獲断面積の評価手法に関する概念図を図 3-150 に示す。平成 26 年度に Am-241 に適用した共鳴の統計解析手法を発展させ、平成 27 年度に JENDL-4.0 に収録されている Günsing et al. ⁽⁶⁰⁾ の共鳴パラメータを基に以下の (i) ~ (iv) を実施した。(i) truncated Porter-Thomas 分布を用いて、s 波共鳴の中性子強度関数 (S_0) と共鳴間隔 (D_0) を決定した。(ii) レベル密度モデル^{(61), (62)}を用いて、(i) で得た D_0 を再現するように p 波の共鳴間隔 (D_1) を決定した。(iii) 中性子エネルギーで 2MeV 以上にある既存の中性子全断面積測定値⁽⁶³⁾と (i) で得た S_0 を再現するように中性子光学モデル^{(64) (65)}を用いて評価し、中性子全断面積を導出した。この評価計算により p 波共鳴の中性子強度関数 (S_1) を決定した。(i) ~ (iii) で得られた共鳴に関する物理量 (S_0 , S_1 , D_0 , D_1) 及び共鳴パラメータ (エネルギーと中性子幅) を用いて、条件付き確率に基づくベイズの定理による解析⁽⁶⁶⁾を行い、各共鳴に対して軌道角運動量の再割り当てを行った。上記のようにして得た共鳴レベルの軌道角運動量に基づいて再度、(i) ~ (iv) を行うことで、軌道角運動量や統計的物理量を決定し、この物理量に整合する中性子全断面積を得た。

平成 28 年度は、3.5.3(6)章の解析で導出した共鳴パラメータを用いて、(i) ~ (iv) を実施し、最終結果を得た。図 3-151 には、s 波共鳴の中性子幅に対する共鳴の累積数を truncated Porter-Thomas 分布により再現した結果を示す。図 3-152 には、複合核である Tc-100 に対してレベル密度モデルを用いて既知の励起レベルのレベル密度と (i) で得られた D_0 を再現した離散レベル累積数の結果を示す。図 3-153 では、評価で得られた中性子全断面積の結果と JENDL-4.0 を比較した。JENDL-4.0 では 6-100 keV においては光学モデルからではなく、Günsing et al. のデータと整合するように別手法で断面積が与えられていたが、本解析では得られた S_0 と整合し、かつ平均化した共鳴断面積と滑らかにつながる断面積を光学モデルから得た。図 3-154 には、中性子幅に対してベイズの定理を適用して、共鳴を部分波に分類した結果を示す。s 波 (丸点) と p 波 (四角点) 共鳴の境界において Günsing et al. により s 波とされた共鳴が本解析で p 波として割り当てられている。この解析により、表 3-33 に示すように、s 波共鳴は Günsing et

al. と比較して減少し 467 本となり、p 波共鳴は 192 本となった。また、共鳴に関する物理量を Mughabghab⁽⁶⁷⁾ や RIPL-3⁽⁶⁸⁾ の編集値と比較した。 D_0 が編集値と比べて 13-20%程度小さいが、その他の量について矛盾はなかった。中性子全断面積計算で得られた Tc-99 の中性子透過係数と Tc-100 に対するレベル密度モデルを基に、既存の捕獲ガンマ線スペクトル測定値⁽⁶⁹⁾ を使って、ガンマ線強度関数を決定した。得られた捕獲ガンマ線スペクトルの評価結果と測定値の比較を図 3-155 に示す。既存の中性子捕獲断面積測定値及び 3.4 章で得た高速中性子領域における断面積データを使って、ガンマ線強度関数を基に中性子捕獲断面積を評価した。その結果を図 3-156 に示す。本事業による測定値は、Kobayashi et al.⁽⁷⁰⁾、Matsumoto et al.⁽⁶⁹⁾、Little et al.⁽⁷¹⁾ と整合しており、本評価値もこれらと整合する結果を得た。さらにこれらの測定値を使って共分散評価を実施し、高速中性子領域において 10-20%程度の誤差を得た。平成 26 年度に導出した誤差 12-18%と比較すると、600 keV 以下で誤差は小さくなっている。

3.5.3(6)章で導出した共鳴パラメータと本評価値を合せて、標準的 ENDF-6 形式の核データファイルとして整備した。

表 3-25 Au-197 の共鳴パラメータ

Present				JENDL-4.0				JEFF-3.2			
E	J	Γ_n	Γ_γ	E	J	Γ_n	Γ_γ	E	J	Γ_n	Γ_γ
(eV)		(meV)	(meV)	(eV)		(meV)	(meV)	(eV)		(meV)	(meV)
-61.1	1	329	124.3	-110	2	861.7	122.7	-61.1	1	329	124.3
-29.96	2	125.62	127	-61.1	1	328.3	122.7	-52.966	2	365.77	127
4.9126	2	13.984	132.42	4.89	2	15.2	124	4.8997	2	14.96	121.4
46.663	1	0.23385	127	46.45	1	0.14667	128	46.669	1	0.22	127
58.078	1	4.31	113	57.921	1	4.3467	112	58.078	1	4.31	113
60.291	2	70.66	118	60.099	2	66.4	110	60.291	2	70.66	118
78.462	1	20.565	109.13	78.271	1	16.667	120	78.5	1	17	124
106.99	2	9.0991	131.79	107	2	7.6	110	107.03	2	7.83	123
122.26	2	0.96885	164.19	122.1	2	0.8	128	122.3	2	0.9	121
144.31	1	10.66	192.84	144.4	1	8.8	120	144.41	1	9.07	121
151.32	2	31.51	120.74	151.4	2	22.32	95	151.39	2	22.26	121
162.97	1	53.943	198.06	162.9	1	50	130	163.07	1	55.16	129
164.98	2	9.9137	68.936	164.9	2	9.28	109	165.08	2	9.983	121
189.91	1	69.07	121	190.3	1	48	130	190.03	1	49.08	121
209.18	1	0.86025	121	209.6	1	0.96	128	209.05	1	0.86	121
240.44	2	124.46	121	240.5	2	63.2	121	240.61	2	74.164	121
255.6	1	0.5608	124	256.2	1	0.8	128	255.6	1	0.5608	124
262.06	1	199.07	129	262.4	1	140	120	262.26	1	144	129
273.86	2	4.8282	121	273.8	2	4.16	110	273.86	2	4.8282	121
293.43	2	363.97	126	293.4	2	364	120	293.46	2	363.98	126
329.29	2	45.999	137	329.3	2	45.76	137	329.39	2	46.006	137
330.91	1	62.193	130	330.8	1	62.4	130	330.8	1	62.183	130
355.54	2	40	125	355.3	2	40	125	355.55	2	40	125
371.24	2	85.892	121	370.7	2	84.8	99	371.14	2	85.88	121
375.58	1	13.919	121	375.1	1	13.733	125	375.65	1	13.92	121
382	2	63.109	121	381.5	2	63.36	97	382.01	2	63.11	121
400.29	2	6.8277	128	400	2	6.4	128	400.33	2	6.828	128
401.65	1	26.962	140	401.3	1	27.467	140	401.58	1	26.96	140
440.44	1	287.3	150.04	439.8	1	281.33	139	440.41	1	287.29	150.04
451.1	2	63.501	128.59	450.5	2	58.4	110	451.11	2	63.502	128.59
477.56	2	317.02	137.11	476.9	2	296	127	477.47	2	316.99	137.11
489.79	1	60.828	138	489.2	1	60	138	489.84	1	60.831	138
493.98	2	28.164	121	493.3	2	24	111	493.94	2	28.163	121

Present				JENDL-4.0				JEFF-3.2			
E	J	Γ_n	Γ_γ	E	J	Γ_n	Γ_γ	E	J	Γ_n	Γ_γ
(eV)		(meV)	(meV)	(eV)		(meV)	(meV)	(eV)		(meV)	(meV)
533.98	1	66.002	130	533.4	2	31.2	130	534.08	1	66.009	130
548.56	1	62.135	121	547.9	1	53.333	127	548.57	1	62.135	121
561.61	2	2.947	128	561.4	2	2.88	128	561.61	2	2.947	128
579.12	2	358.65	155.61	578.6	2	87.2	150	579.12	2	358.65	155.61
581	1	146.18	114.71	580.6	1	306.67	115	581	1	146.18	114.71
587.2	2	23.868	134	586.4	2	20.8	134	586.8	2	23.86	134
602.87	2	227.35	119.5	602.8	2	224	145	602.91	2	227.36	119.5
617.11	1	128.24	127.47	617.3	1	124	135	617.3	1	128.26	127.47
624.15	2	30.844	121	624.2	1	49.333	121	624.67	2	30.857	121
628.1	1	50.136	121	627.9	2	22.4	138	628.35	1	50.146	121
638.82	2	510.64	132.07	638.3	2	464	136	638.82	2	510.64	132.07
658.88	2	4.8367	97	658.4	2	3.84	97	658.88	2	4.8367	97
686.1	1	19.889	128	685.6	2	8	128	686.1	1	19.889	128
695.93	1	716.42	159.05	695.3	1	666.67	143	695.93	1	716.42	159.05
699.02	2	699.72	111.3	698.4	2	736	115	699.15	2	699.78	111.3
715.78	2	114.38	121	715.2	2	115.2	125	715.78	2	114.38	121
738.54	1	12.077	120	738	2	8	120	738.54	1	12.077	120
759.89	1	411.51	119	759.5	1	426.67	135	760.09	1	411.57	119
773.62	1	431.84	136	773.4	1	474.67	122	773.9	1	431.92	136
784.24	2	110.27	140	783.8	2	104	140	784.47	2	110.29	140
796.16	2	157.82	142	795.6	2	177.6	142	796.21	2	157.83	142
813.5	1	24.111	128	813	1	22.133	128	813.5	1	24.111	128
819.65	2	253.93	128	819	2	184	140	819.65	2	253.93	128
825.14	2	523.06	134.8	824.5	2	426.4	140	825.14	2	523.06	134.8
859.27	1	0.77679	121					859.27	1	0.77679	121
864.28	2	20.94	121	863.8	1	30.67	150	864.28	2	20.94	121
879.54	2	30.921	121	878.9	2	35.2	120	879.54	2	30.921	121
932.48	2	429.82	134.67	931.6	2	411.2	125	932.48	2	429.82	134.67
956.39	2	6.1806	121	955.2	2	11.2	128	956.39	2	6.1806	121
961.3	1	139.44	157.13	960.4	2	10.96	150	961.3	1	139.44	157.13
984.36	2	327.82	116.27	983.4	2	331.2	124	984.36	2	327.82	116.27
988.62	2	125.17	121	987.6	2	120.8	160	988.62	2	125.17	121
995.56	2	505.01	121	994.5	2	496	130	995.56	2	505.01	121

表 3-26 Gd-155 の共鳴パラメータに対する各評価値との比較

Present				JENDL-4.0				JEFF-3.2				ENDF/B-VII.1			
E	J	Γ_n	Γ_γ	E	J	Γ_n	Γ_γ	E	J	Γ_n	Γ_γ	E	J	Γ_n	Γ_γ
eV		meV	meV	eV		meV	meV	eV		meV	meV	eV		meV	meV
0.0266	2	0.0908	94.28	0.0251	2	0.0970	104.0	0.0268	2	0.1040	108.0	0.0268	2	0.1040	108.0
2.0141	1	0.2715	97.09	2.0120	1	0.4000	128.0	2.0080	1	0.3707	110.0	2.0080	1	0.3707	110.0
2.5793	2	1.9012	111.3	2.5729	2	1.7060	107.1	2.5680	1	2.8933	111.0	2.5680	2	1.7440	111.0

表 3-27 Gd-157 の共鳴パラメータに対する各評価値との比較

Present				JENDL-4.0				JEFF-3.2				ENDF/B-VII.1			
E	J	Γ_n	Γ_γ	E	J	Γ_n	Γ_γ	E	J	Γ_n	Γ_γ	E	J	Γ_n	Γ_γ
eV		meV	meV	eV		meV	meV	eV		meV	meV	eV		meV	meV
-0.407	1	3.0368	216.4												
0.0312	2	0.3935	94.13	0.0320	2	0.4280	107.0	0.0314	1	0.7867	106.0	0.0314	2	0.4740	107.2
2.8366	2	0.4046	134.9	2.8287	2	0.3770	109.7	2.8250	2	0.3448	97.0	2.8250	2	0.3448	97.00

表 3-28 Gd-155 の共鳴パラメータ

Present				JENDL-4.0			
E	J	Γ_n	Γ_γ	E	J	Γ_n	Γ_γ
eV		meV	meV	eV		meV	meV
0.0266	2	0.0908	94.3	0.0251	2	0.097	104
2.0141	1	0.2715	97.1	2.012	1	0.4	128
2.5793	2	1.9012	111.3	2.5729	2	1.706	107.1
3.616	1	0.05	130	3.616	1	0.05	130
6.3197	2	2.2902	114.7	6.3057	2	2.2	108.8
7.7653	2	1.2576	136.1	7.7477	2	1.16	109
10.0381	2	0.1966	110	9.991	2	0.2	110
11.5155	1	0.5629	120	11.508	1	0.78	120
11.9863	2	1.1861	130	11.964	2	1.12	130
14.51	1	3.9019	130	14.476	1	3.43	130
17.7333	2	0.4772	130	17.729	2	0.47	130
19.9042	2	4.5126	118	19.86	2	4.5	118
21.023	2	12.526	140	20.97	2	11.6	140
23.6292	2	3.4666	140	23.6	2	2.91	140

表 3-29 Gd-157 の共鳴パラメータ

Present				JENDL-4.0			
E	J	Γ_n	Γ_γ	E	J	Γ_n	Γ_γ
eV		meV	meV	eV		meV	meV
-0.4069	1	3.0368	216.4				
0.0312	2	0.3953	94.1	0.032	2	0.428	107
2.8366	2	0.4046	134.9	2.8287	2	0.377	109.7
16.1901	1	0.3747	130	16.201	1	0.44	130
16.8187	2	14.284	112	16.78	2	13.9	112
20.5519	2	13.58	106	20.51	2	13.4	106
21.5964	2	0.3295	80	21.59	2	0.34	80
23.3322	1	0.9384	140	23.28	1	1.3	140
25.3646	2	1.7434	130	25.35	2	1.99	130

表 3-30 Am-241 の共鳴パラメータ

Present					JENDL-4.0				JEFF-3.2				
E	J	Γ_n		Γ_γ		E	J	Γ_n	Γ_γ	E	J	Γ_n	Γ_γ
eV		meV		meV		eV		meV	meV	eV		meV	meV
-0.5000	3	0.4765		46.6200		-0.5000	3	0.4000	46.6200	-0.4209	3	0.1734	43.3300
-0.4000	2	0.0246		44.6000		-0.4000	2	0.2000	44.6000	-0.3778	2	0.5277	43.2400
-0.2000	3	0.0003		40.0000		-0.2000	3	0.0100	40.0000				
-0.0861	3	0.0078		38.0000		-0.0500	3	0.0010	38.0000				
0.3062	2	0.0854	(0.0004)	40.8540	(0.2885)	0.3051	2	0.0790	44.4000	0.3060	3	0.0631	40.7100
0.5740	2	0.1449	(0.0009)	42.3740	(0.4128)	0.5724	2	0.1340	43.3000	0.5736	2	0.1484	39.5600
1.2729	3	0.3642	(0.0042)	45.6270	(0.6306)	1.2718	3	0.3250	45.3000	1.2699	3	0.3753	41.2900
1.9210	2	0.1680	(0.0029)	46.9640	(1.1744)	1.9220	2	0.1445	41.0000	1.9194	3	0.1237	40.5500
2.3598	3	0.0744	(0.0017)	42.9370	(1.8830)	2.3630	3	0.0688	50.0000	2.3616	2	0.1099	42.1400
2.5868	3	0.1604	(0.0016)	55.7900	(0.8201)	2.5990	3	0.1297	48.0000	2.5856	3	0.1626	43.3300
3.9666	2	0.3036	(0.0037)	52.2790	(0.8343)	3.9730	2	0.2568	44.5000	3.9639	2	0.3170	43.3200
4.9570	3	0.1815	(0.0028)	49.3810	(1.3466)	4.9680	3	0.1570	43.8000	4.9573	3	0.1854	43.3200
5.4050	3	0.7881	(0.0129)	46.7540	(1.2123)	5.4150	3	0.6527	44.2000	5.4035	2	1.1440	43.3200
5.7908	2	0.0101	(0.0016)	106.0300	(33.0060)	5.8000	2	0.0025	44.2000				
6.1059	3	0.1370	(0.0024)	52.2400	(1.7840)	6.1170	3	0.1120	43.8000	6.1019	3	0.1307	43.3200
6.7259	2	0.0449	(0.0009)	55.2710	(2.6281)	6.7450	2	0.0408	44.2000	6.7253	3	0.0297	43.3200
7.6505	3	0.0369	(0.0008)	18.9740	(2.1241)	7.6590	3	0.0423	44.2000	7.6416	2	0.0575	43.3200
8.1580	3	0.1139	(0.0022)	47.2680	(1.9592)	8.1730	3	0.0926	42.7000	8.1490	3	0.1151	43.3200
9.0962	2	0.5564	(0.0109)	44.0080	(1.5135)	9.1130	2	0.4495	44.2000	9.0988	2	0.5706	46.1500
9.8318	2	0.6235	(0.0144)	41.1020	(2.2069)	9.8510	2	0.4939	43.9000	9.8344	3	0.4261	47.2200

本解析結果の中性子幅、捕獲幅に付した括弧付き数字はそれぞれの誤差を表す。

表 3-31 Am-243 の共鳴パラメータ

Present				JENDL-4.0			
E	J	Γ_n	Γ_γ	E	J	Γ_n	Γ_γ
eV		meV	meV	eV		meV	meV
-0.3	3	0.00365	40	-2	3	0.1	40
0.419	2	0.001	22.881	0.419	2	0.00067	22.881
0.983	2	0.02102	45	0.983	2	0.02	45
1.3543	3	1.0717	42.727	1.356	3	1.1	50
1.7418	2	0.3317	43.011	1.744	2	0.35	41.524
3.1329	2	0.01784	31.99	3.14	2	0.01356	31.99
3.4189	3	0.27794	38.671	3.424	3	0.23477	38.671
3.8346	2	0.02311	44.885	3.845	2	0.01721	44.885
5.1175	2	0.42671	35.095	5.125	2	0.34392	35.095
6.5455	3	0.93423	51.48	6.554	3	0.78235	51.48
7.0581	3	0.06797	29.748	7.067	3	0.05453	29.748
7.849	2	1.9598	46.93	7.863	2	1.48044	46.93
8.377	3	0.00989	38.428	8.377	3	0.00989	38.428
8.7547	3	0.11625	31.727	8.77	3	0.10094	31.727
9.3006	2	0.22272	38.576	9.314	2	0.17834	38.576
10.2949	2	0.64928	46.692	10.314	2	0.54576	46.692
10.877	3	0.01207	27.264	10.877	3	0.01207	27.264
11.2577	3	0.30531	42.769	11.278	3	0.24621	42.769
11.6771	2	0.14431	26.021	11.693	2	0.12734	26.021
12.1068	2	0.22992	27.053	12.122	2	0.19543	27.053
12.8581	3	2.3601	47.418	12.877	3	1.88537	47.418
13.138	2	1.9627	50.726	13.152	2	2.2074	50.726
15.143	3	0.05844	42.95	15.143	3	0.05845	42.95
15.3825	2	1.9658	50.785	15.404	2	1.72872	50.785
16.192	3	0.57492	47.323	16.21	3	0.52046	47.323
16.5632	3	0.19394	38.598	16.583	3	0.17916	38.598
17.85	2	0.31299	30.291	17.874	2	0.2605	30.291

共鳴エネルギーに*を付した共鳴に対して REFIT により再現計算を実施した。

表 3-32 Tc-99 の共鳴パラメータ

Present				JENDL-4.0			
E	J	Γ_n	Γ_γ	E	J	Γ_n	Γ_γ
eV		meV	meV	eV		meV	meV
*5.58	5	3.50	147	5.58	5	3.45	147
*20.27	4	8.24	155	20.27	4	8.37	155
*39.83	5	1.10	123	39.84	5	1.08	123
*56.64	4	4.03	141	56.68	4	3.90	141
*111.12	5	10.24	134	111.22	5	9.94	134
*123.65	4	4.25	145	123.77	4	4.11	145
*162.83	5	50.00	144	163.01	5	57.80	144
*181.87	4	63.05	160	182.09	4	67.30	160
*191.48	5	34.05	149	191.71	5	36.40	149
				206.41	4	0.69	147
214.52	4	1.19	147	214.83	4	1.19	147
				220.62	5	0.49	147
*240.87	4	37.98	147	241.21	4	37.90	147
				273.17	4	0.79	147
*279.57	4	16.68	147	279.98	4	15.00	147
*299.48	4	37.56	147	299.98	4	36.90	147
*306.33	5	13.83	147	306.81	5	14.30	147
342.58	5	1.62	147	343.21	5	1.62	147
*357.98	4	21.65	147	358.65	4	19.60	147
				361.45	5	1.03	147
362.01	4	1.97	147	362.69	4	1.97	147
*364.25	5	119.31	147	364.93	5	142.00	147
*379.24	5	23.15	147	379.84	5	20.90	147
*416.05	4	66.60	147	416.82	4	64.40	147
*425.66	5	56.85	147	426.54	5	60.90	147
446.77	5	2.22	147	447.70	5	2.22	147
*459.02	4	44.03	147	459.92	4	41.80	147
*477.72	4	14.98	147	478.77	4	12.70	147
485.52	5	5.35	147	486.58	5	5.35	147
515.29	4	13.20	147	516.45	4	13.20	147
519.39	5	29.50	147	520.56	5	29.50	147
*535.38	4	39.32	147	536.61	4	30.50	147

共鳴エネルギーに*を付した共鳴に対して REFIT により再現計算を実施した。

表 3-33 統計解析の結果と既存データとの比較

	Present	Gunsing+	Mughabghab	RIPL-3
s 波共鳴数	467	518		
p 波共鳴数.	192	141		
散乱半径 (fm)	7.17	7.17		
S0 (10^{-4})	0.56	0.52 ± 0.08	0.49 ± 0.06	0.50 ± 0.06
D0 (eV)	11.2	12.0 ± 1.3	12.8 ± 0.5	14.0 ± 1.2
S1(10^{-4})	5.6	3.8 ± 0.8	5.8 ± 0.8	5.3 ± 0.5
D1 (eV)	5.8	6.0	6.8 ± 0.3	

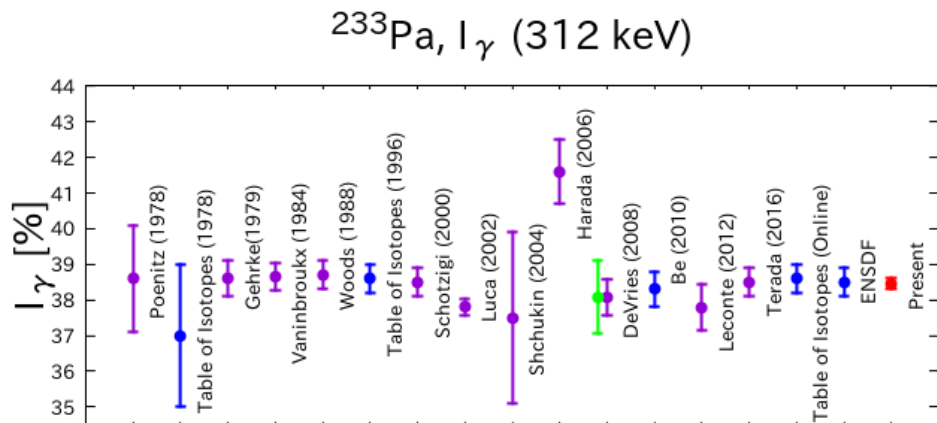
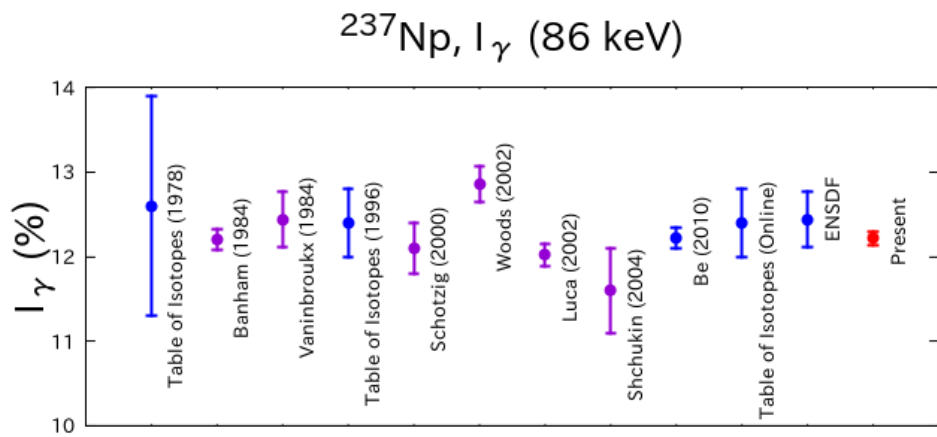
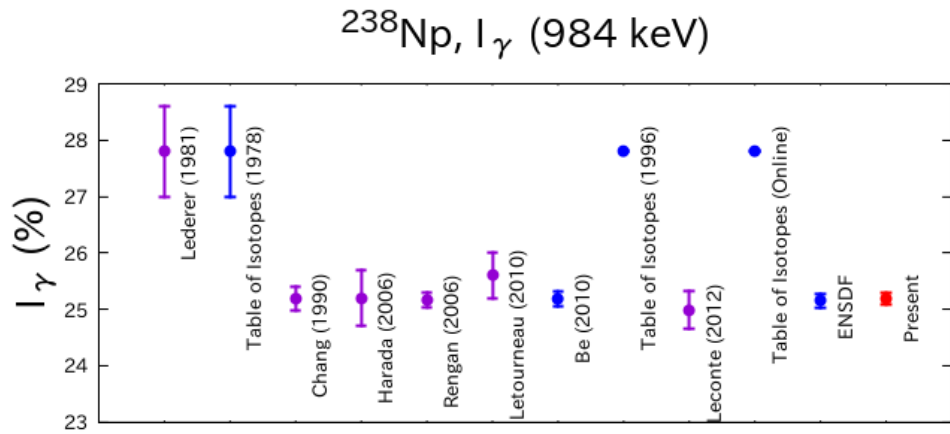


図 3-118 Np-238 の 984keV、 Np-237 の 86keV、 Pa-233 の 312keV ガンマ線放出率の評価結果 (評価結果、実験値、過去の評価値をそれぞれ赤丸、紫丸、青丸で示す。)

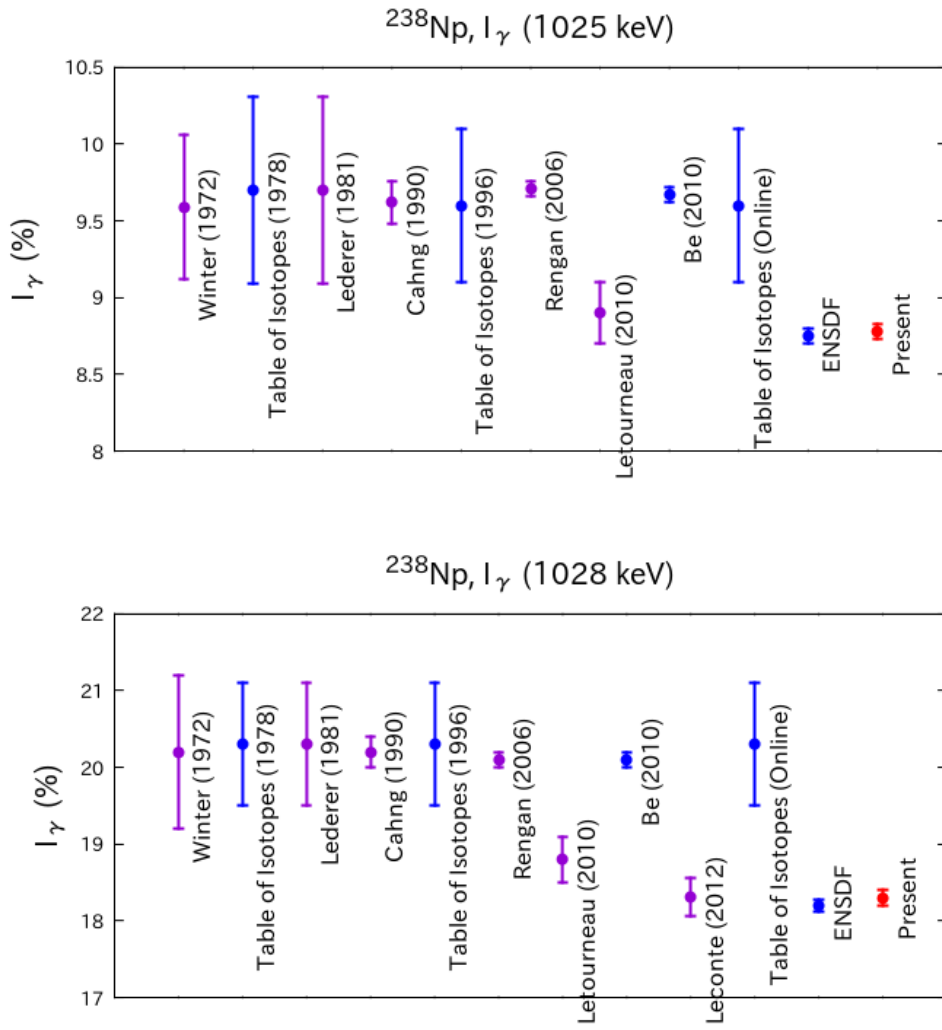


図 3-119 Np-238 の 1025keV、1028keV ガンマ線放出率の評価結果

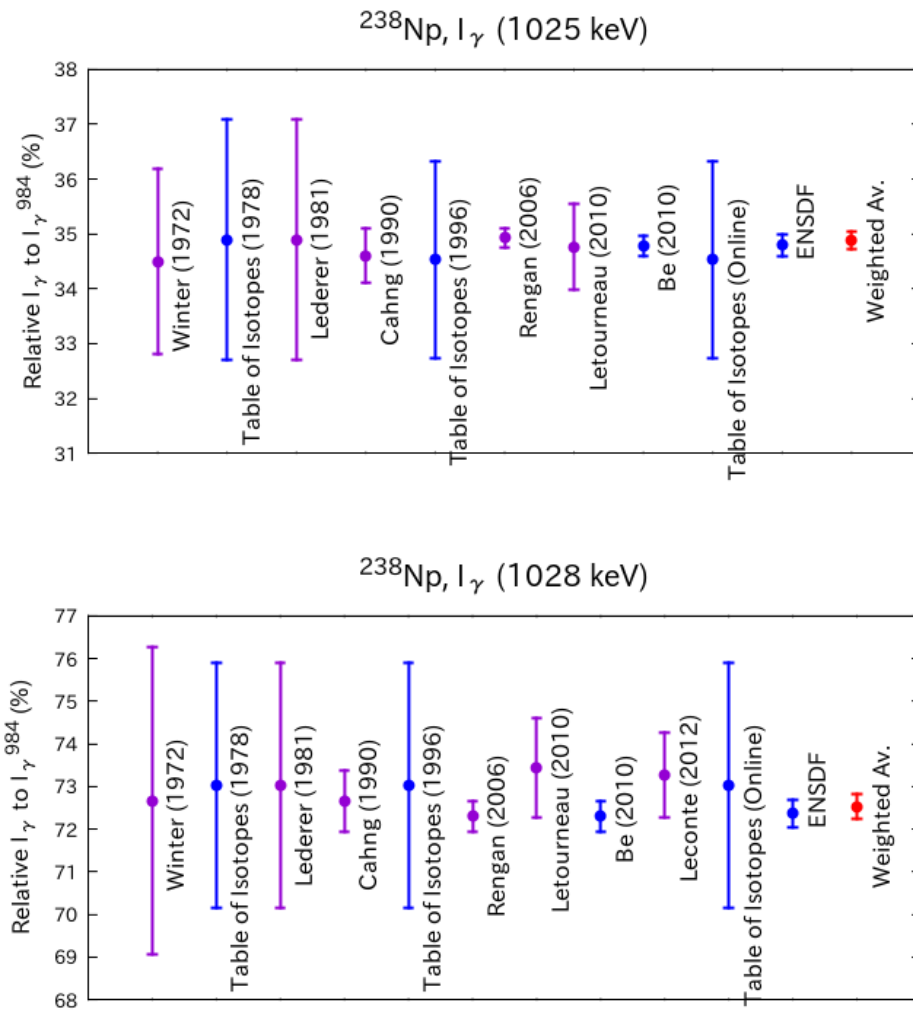


図 3-120 Np-238 の 1025keV、1028keV ガンマ線放出率の 984keV ガンマ線放出率に対する割合

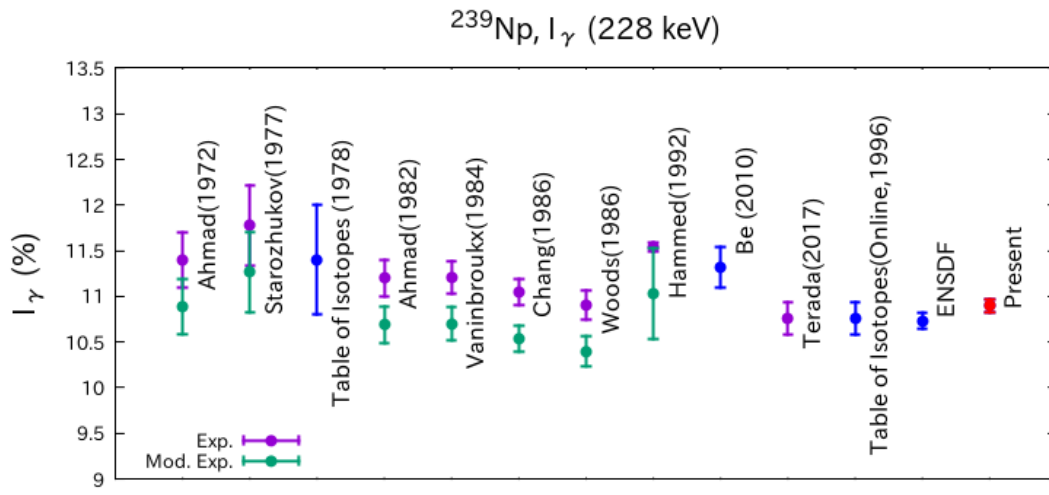


図 3-121 Np-239 の 228keV ガンマ線放出率の評価結果

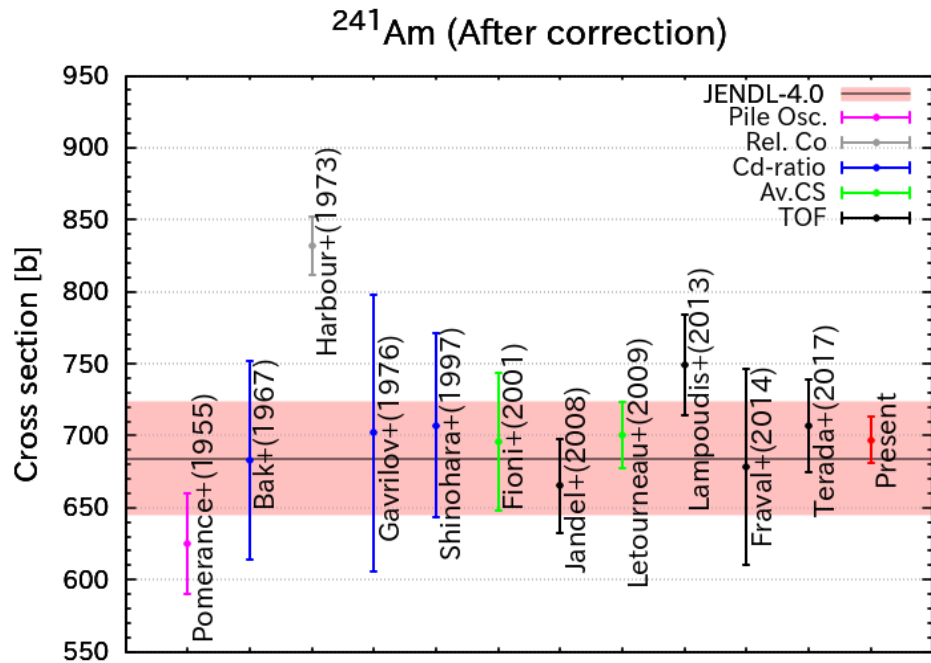
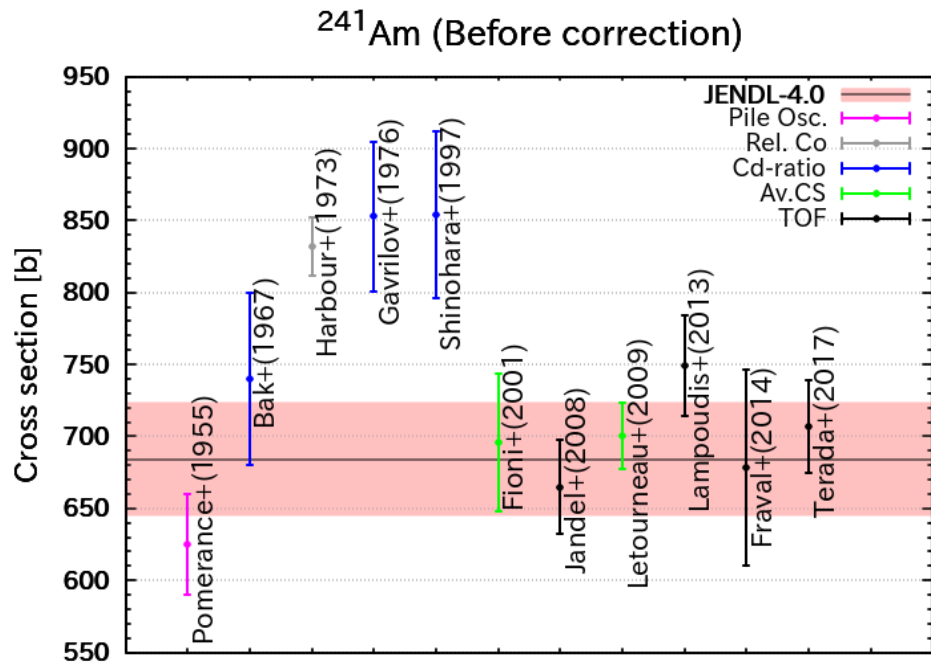


図 3-122 Am-241 の熱中性子捕獲断面積に対する補正前(上図)と補正後(下図)の経年変化 (各データはパイルオシレーター法 (ピンク)、Cd 比法 (青)、スペクトル平均捕獲断面積より導出(緑)、TOF 法(黒)による測定値及び本事業の評価値(赤)を表している。なお、Terada+(2017) は本事業の実験による成果である。)

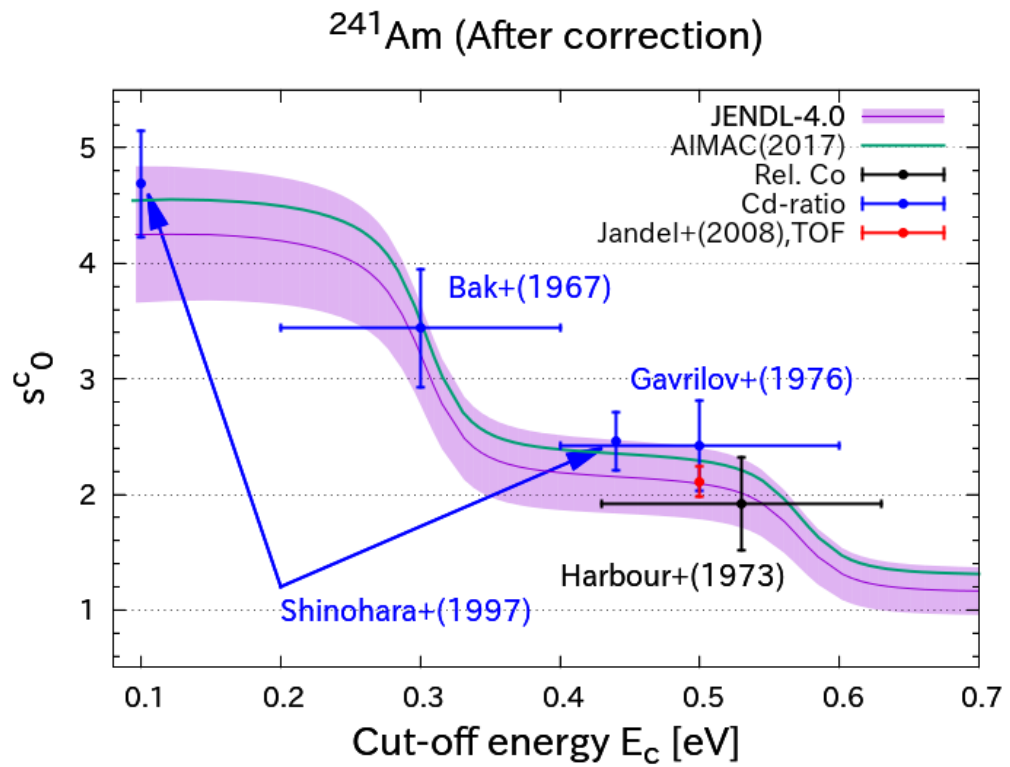
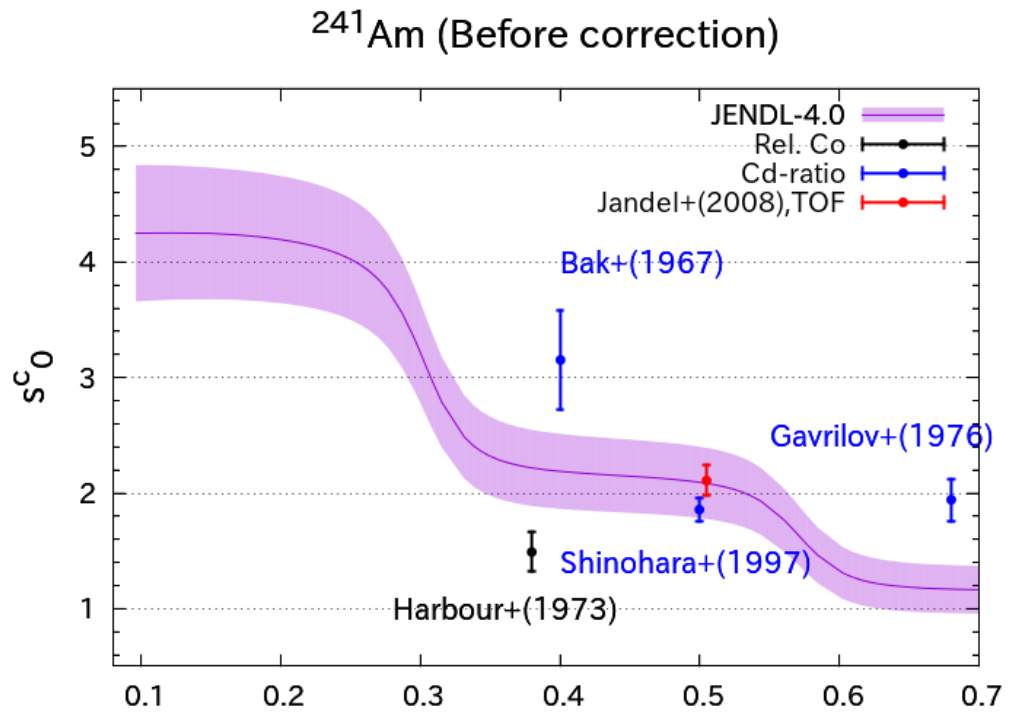


図 3-123 Am-241 の s 因子に対する補正前(上図)と補正後(下図)の比較

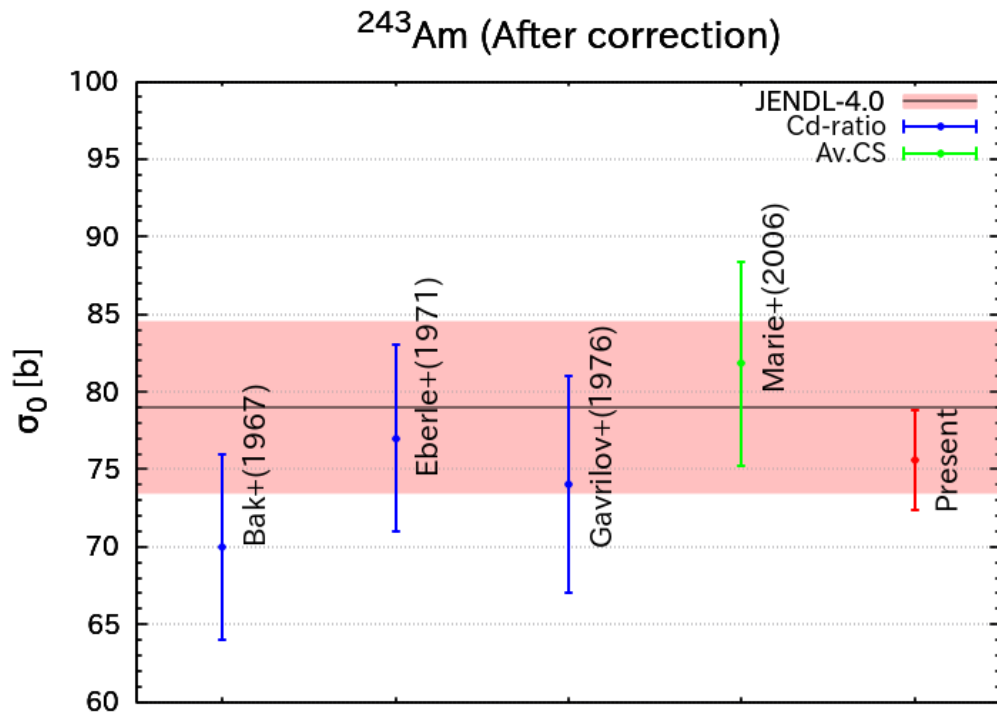
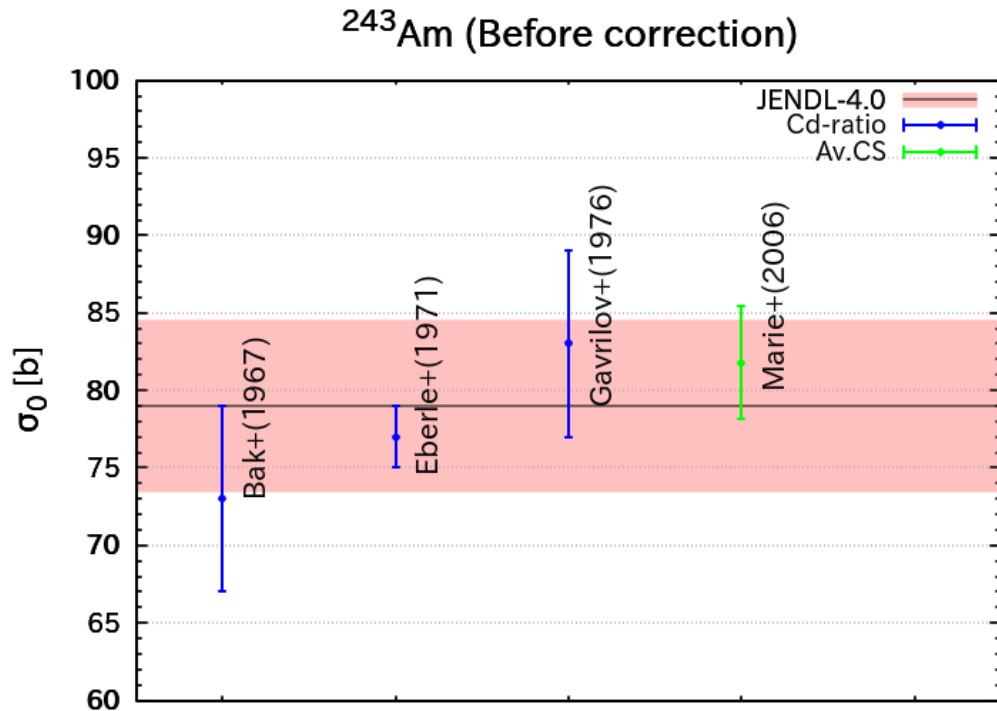


図 3-124 Am-243 の熱中性子捕獲断面積に対する補正前(上図)と補正後(下図)の経年変化

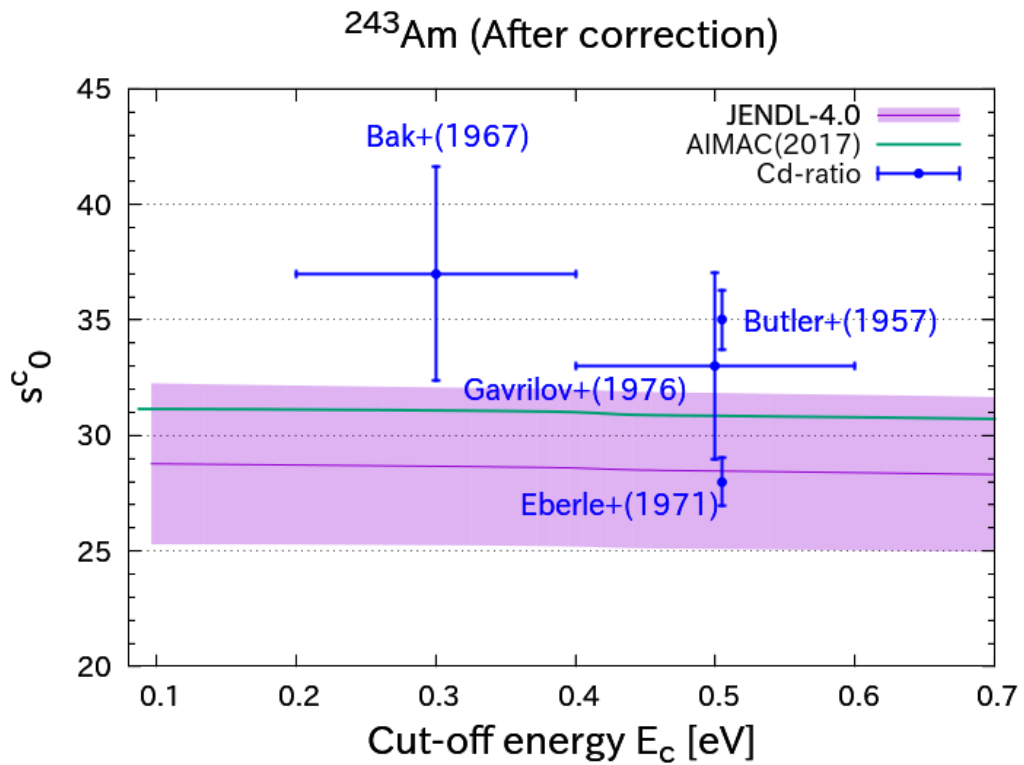
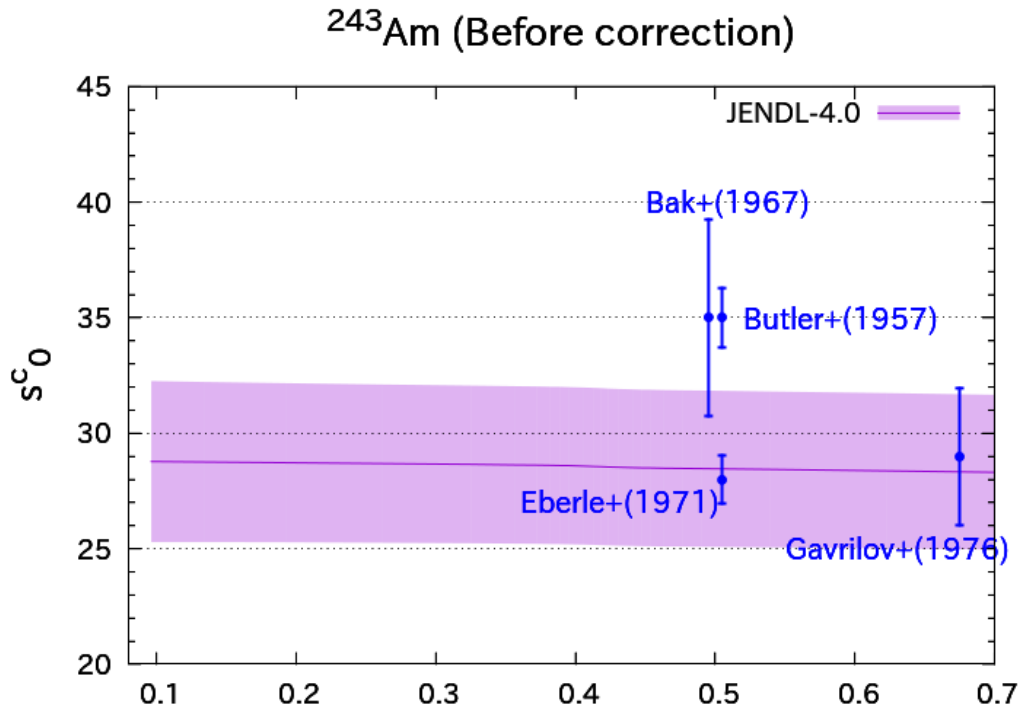


図 3-125 Am-243 の s 因子に対する補正前(上図)と補正後(下図)の比較

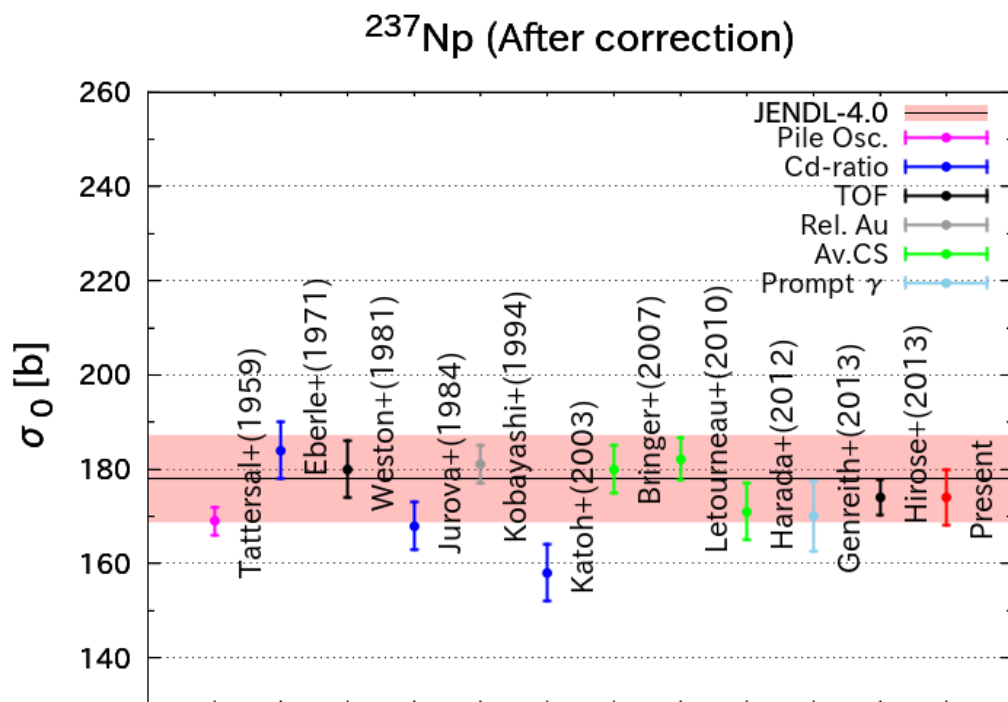
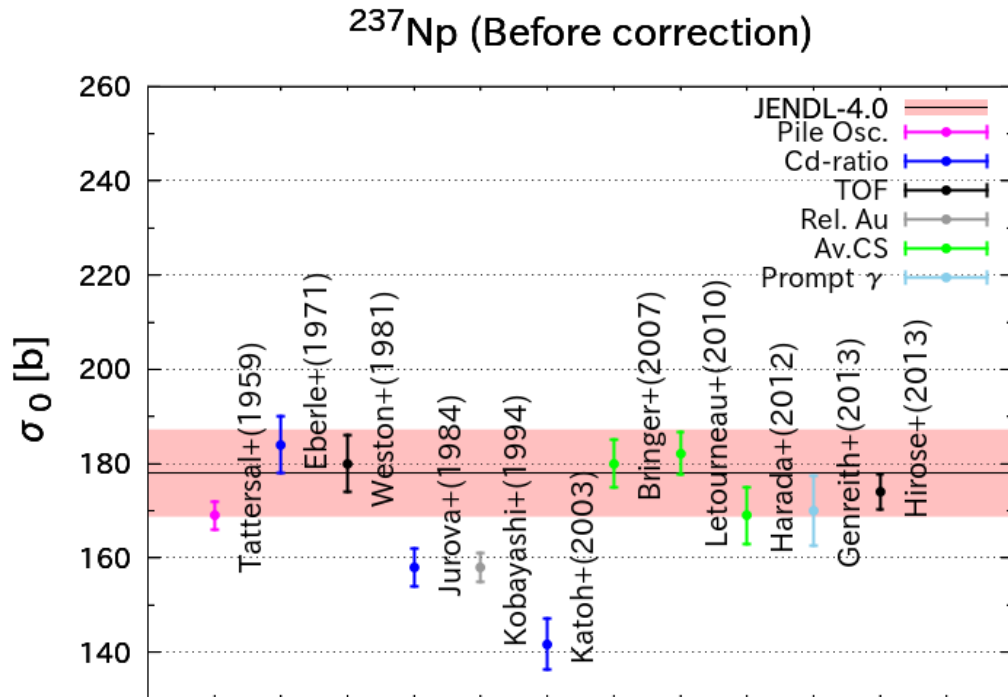


図 3-126 Np-237 の熱中性子捕獲断面積に対する補正前(上図)と補正後(下図)の経年変化

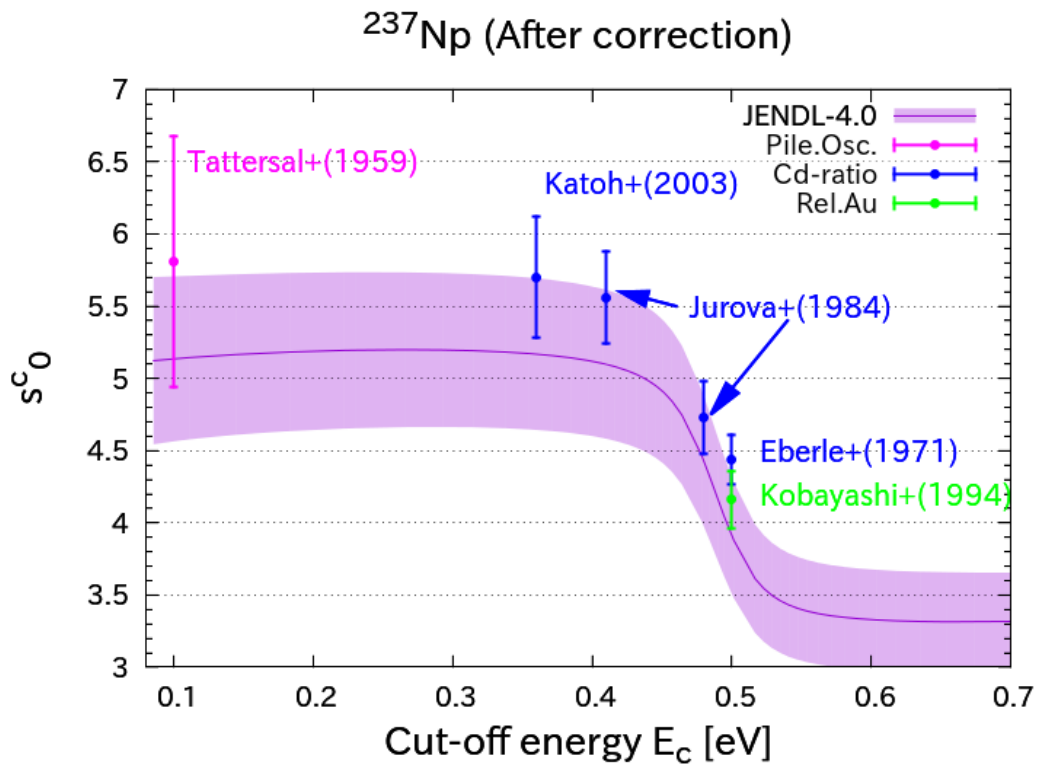
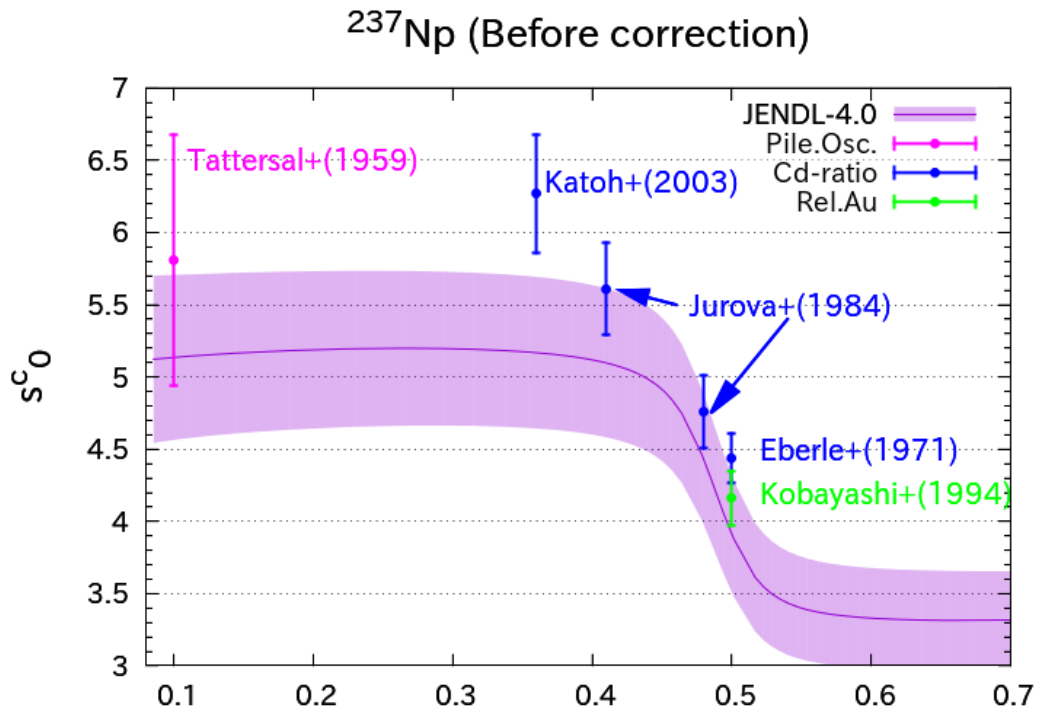


図 3-127 Np-237 の s 因子に対する補正前(上図)と補正後(下図)の比較

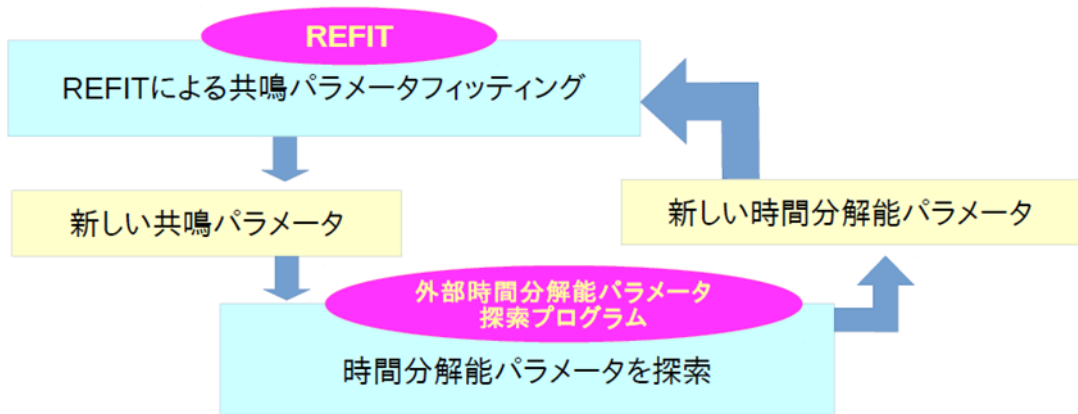


図 3-128 分解能関数パラメータ探索のための外部プログラムと REFIT との関係

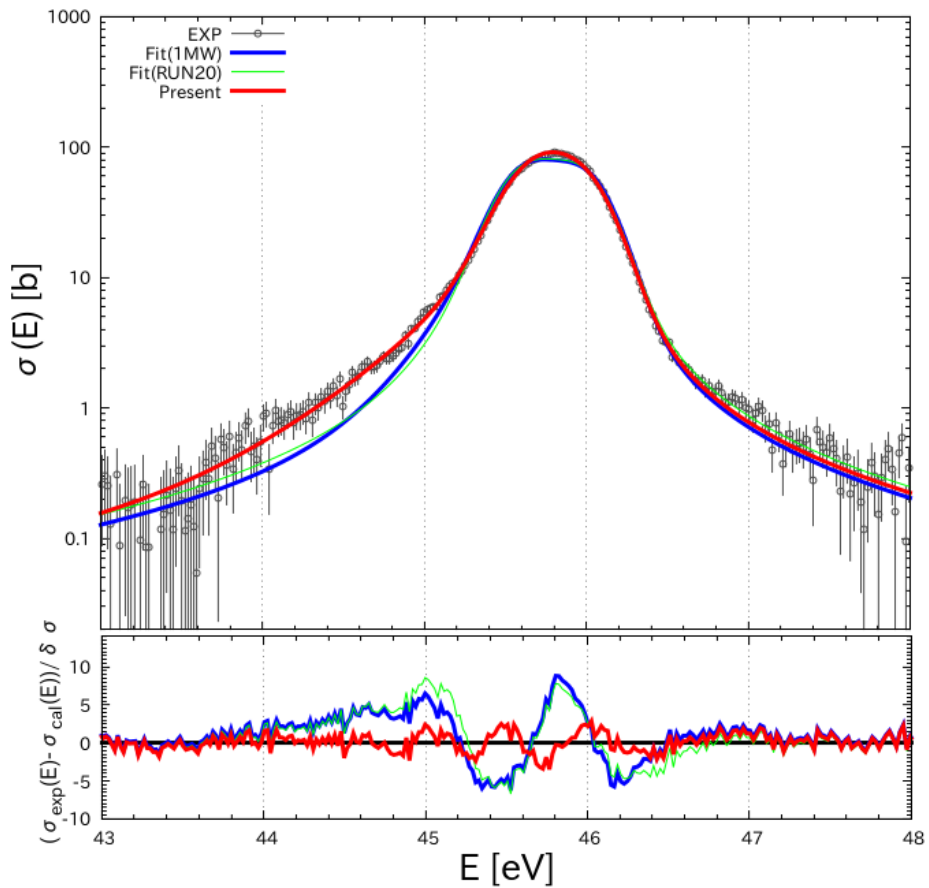


図 3-129 Sn-118 の中性子捕獲断面積を用いた分解能関数パラメータの推定結果

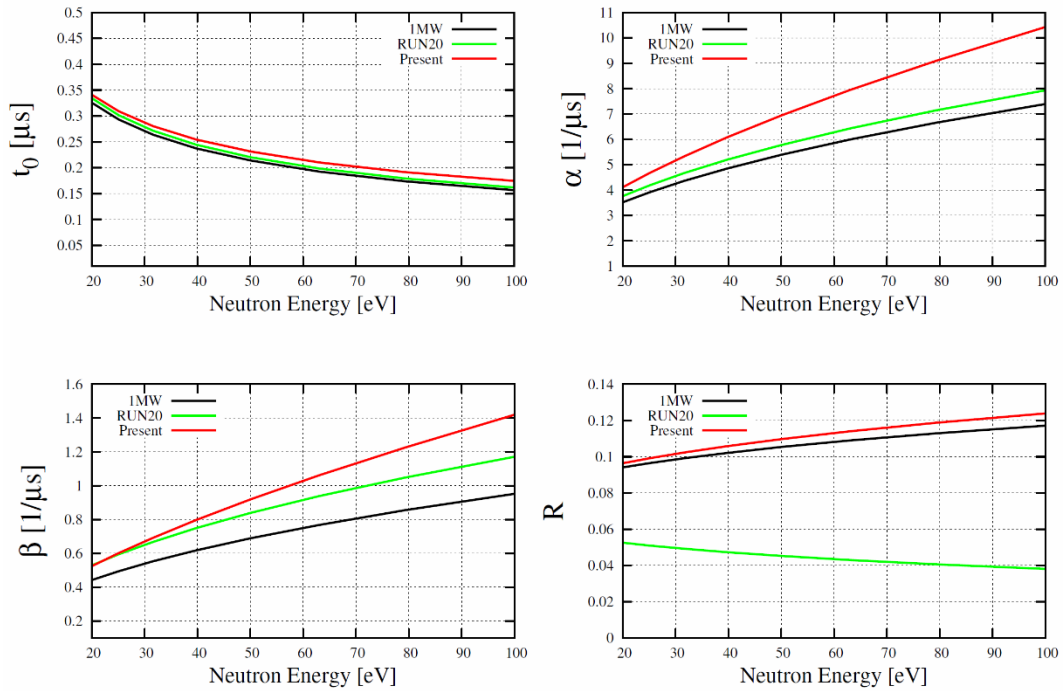


図 3-130 Sn-118 の中性子捕獲断面積への再現で得られた分解能関数パラメータの中性子エネルギー依存性

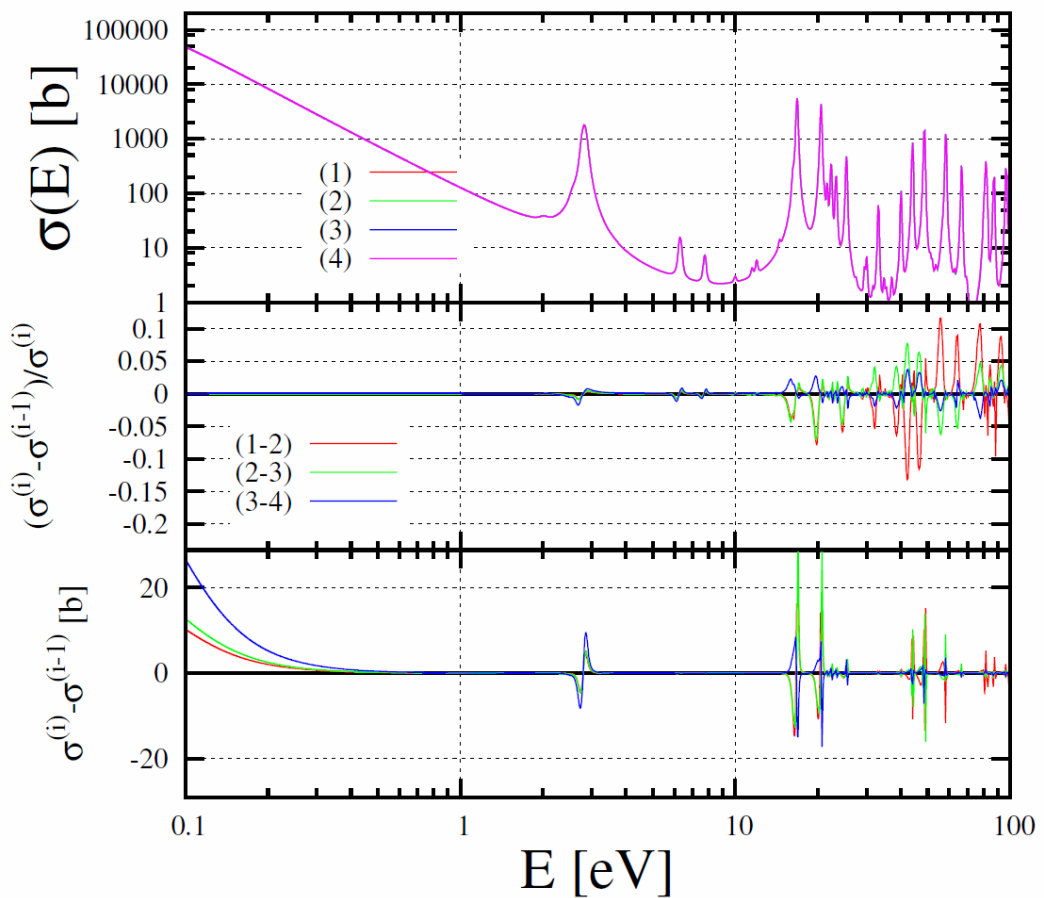


図 3-131 REFIT を用いた断面積の再現におけるエネルギー領域の分割数依存性

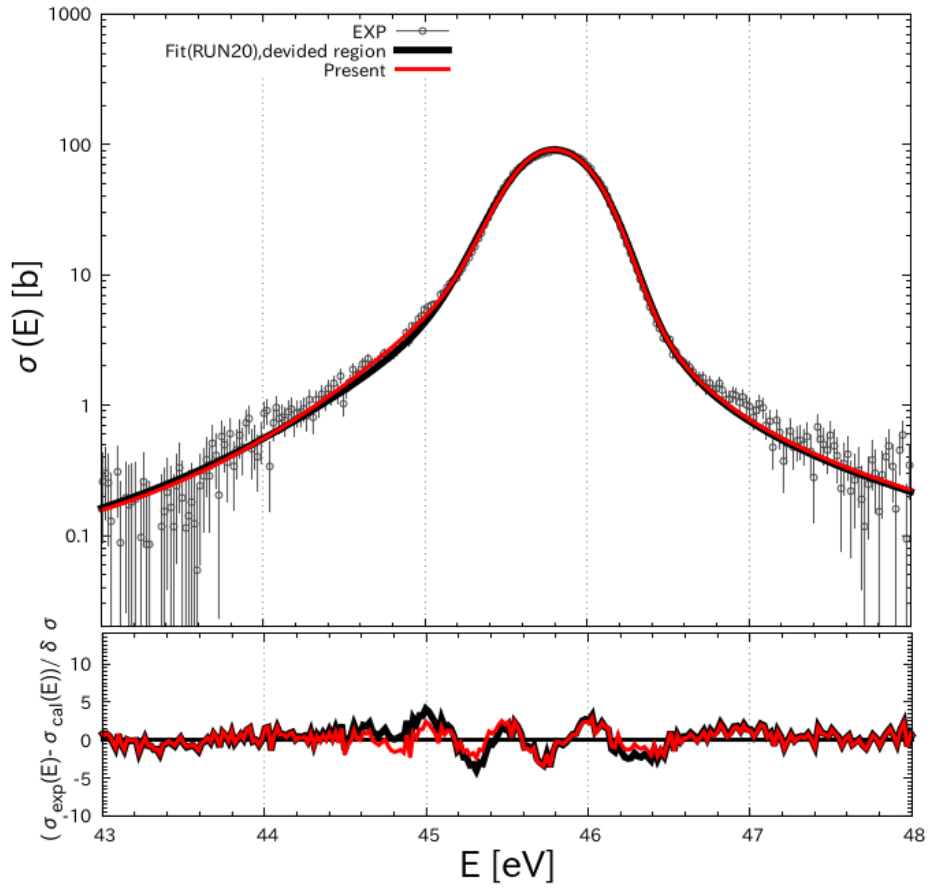


図 3-132 分解能関数と共鳴の両パラメータの調整による再現結果(赤線)と細分化したエネルギー領域において共鳴パラメータのみを調整した再現結果(黒線)の比較

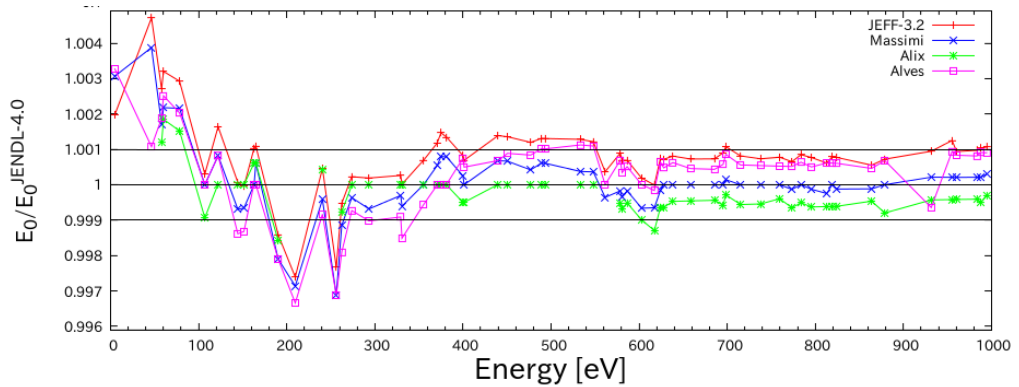


図 3-133 JENDL-4.0 の共鳴エネルギーに対する既存データと JEFF-3.2 の比較

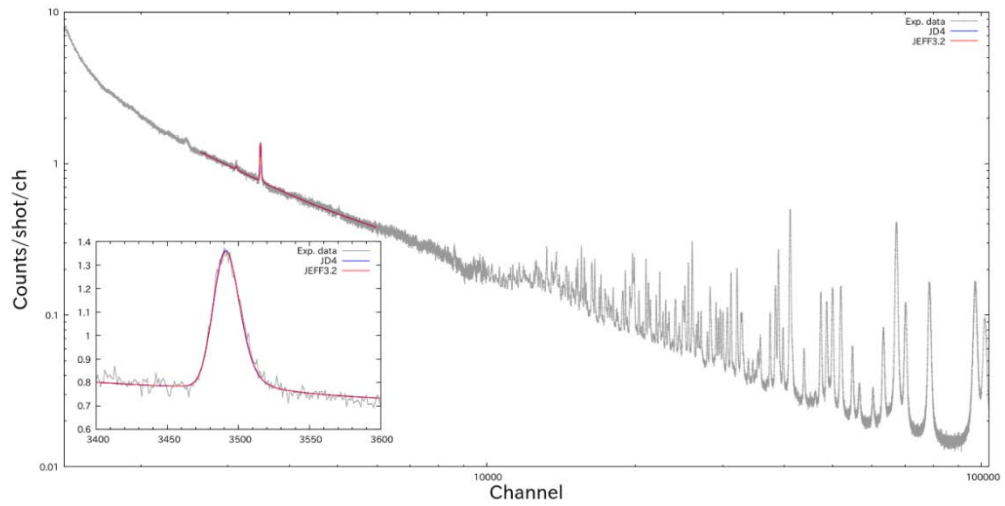


図 3-134 Am-241 の中性子捕獲断面積測定における TOF スペクトルと Y-89 の共鳴 (3490ch) の再現結果

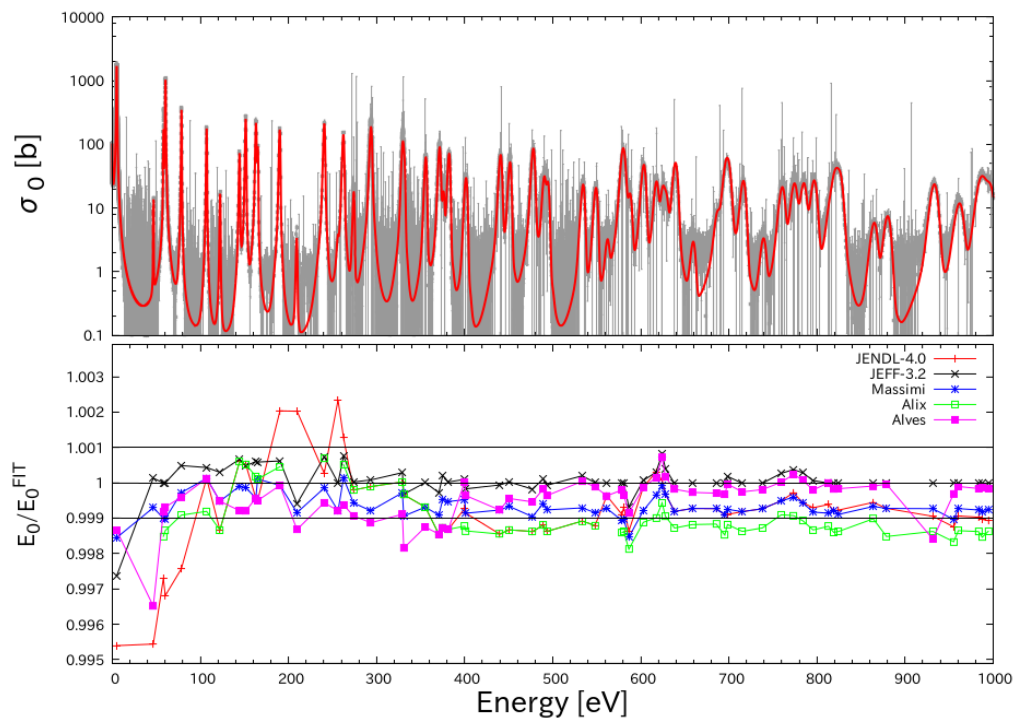


図 3-135 金の中性子捕獲断面積の再現結果(上図)と共鳴エネルギーに対する本解析値との比較(下図)

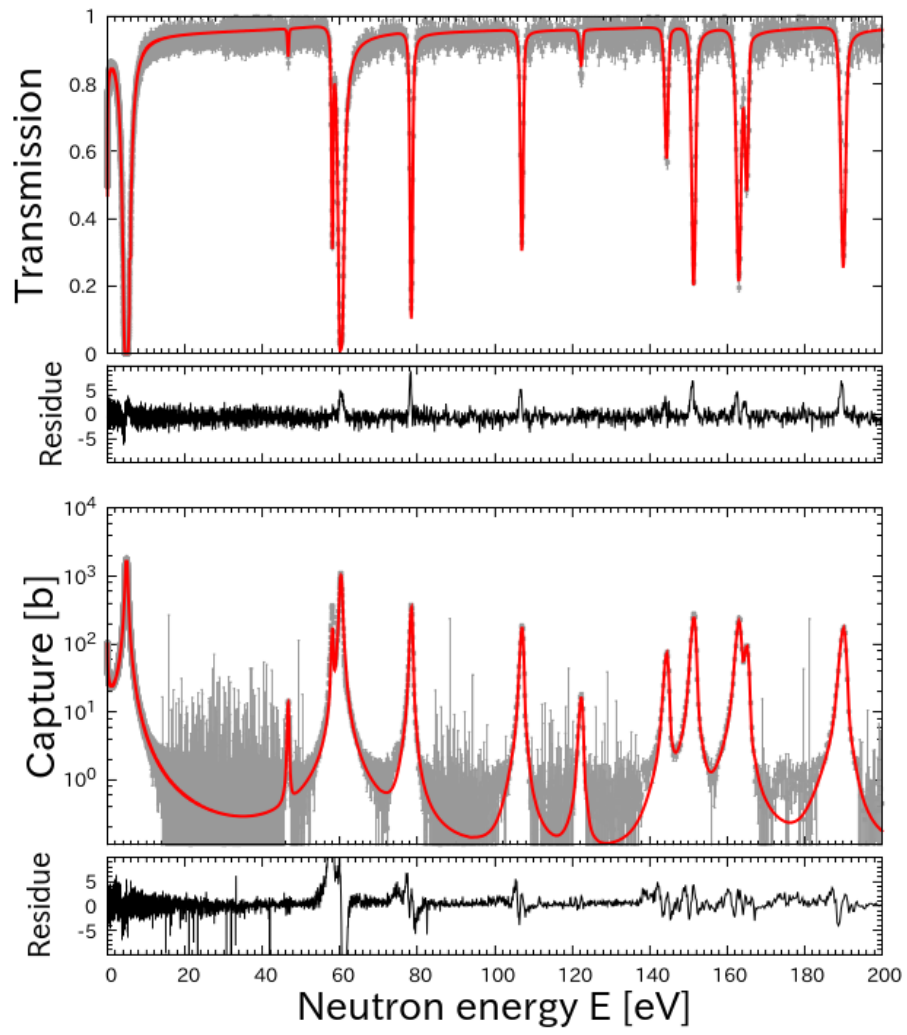


図 3-136 金の 0-200 eV における中性子透過(上図)・中性子捕獲断面積(下図)の再現結果

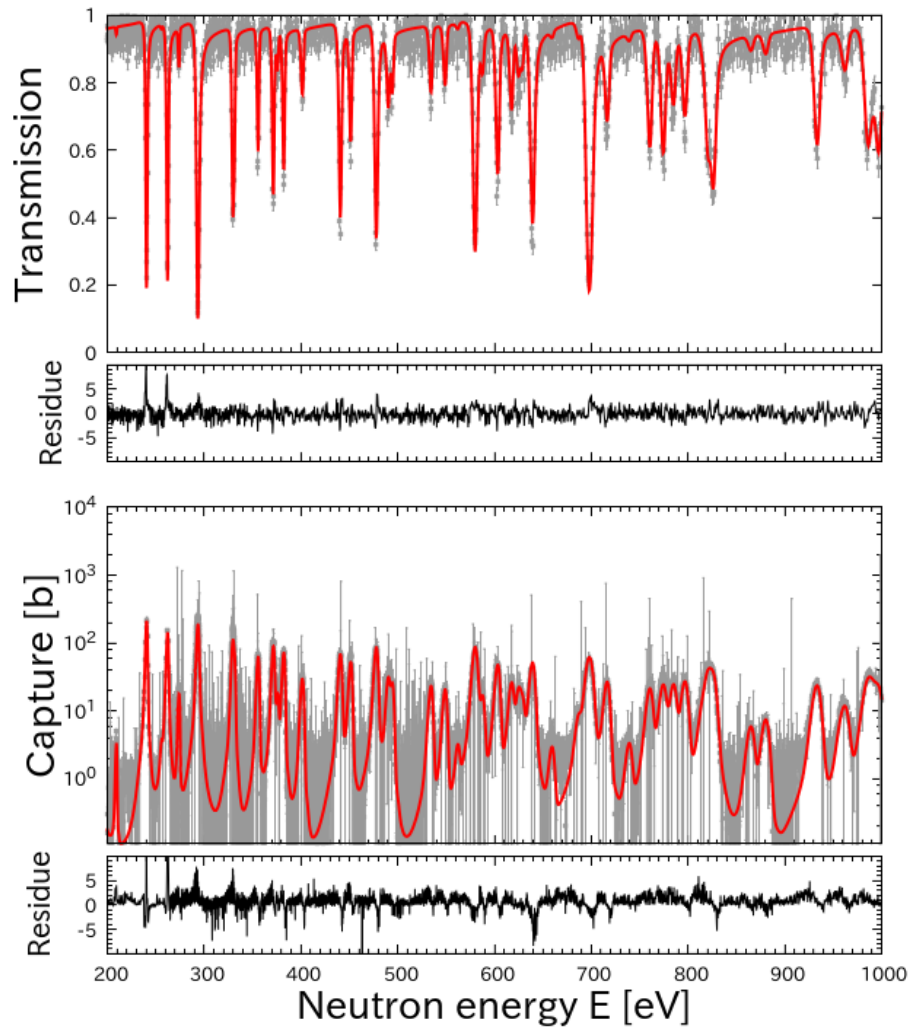


図 3-137 金の 200-1000 eV における中性子透過(上図)・中性子捕獲断面積(下図)の再現結果

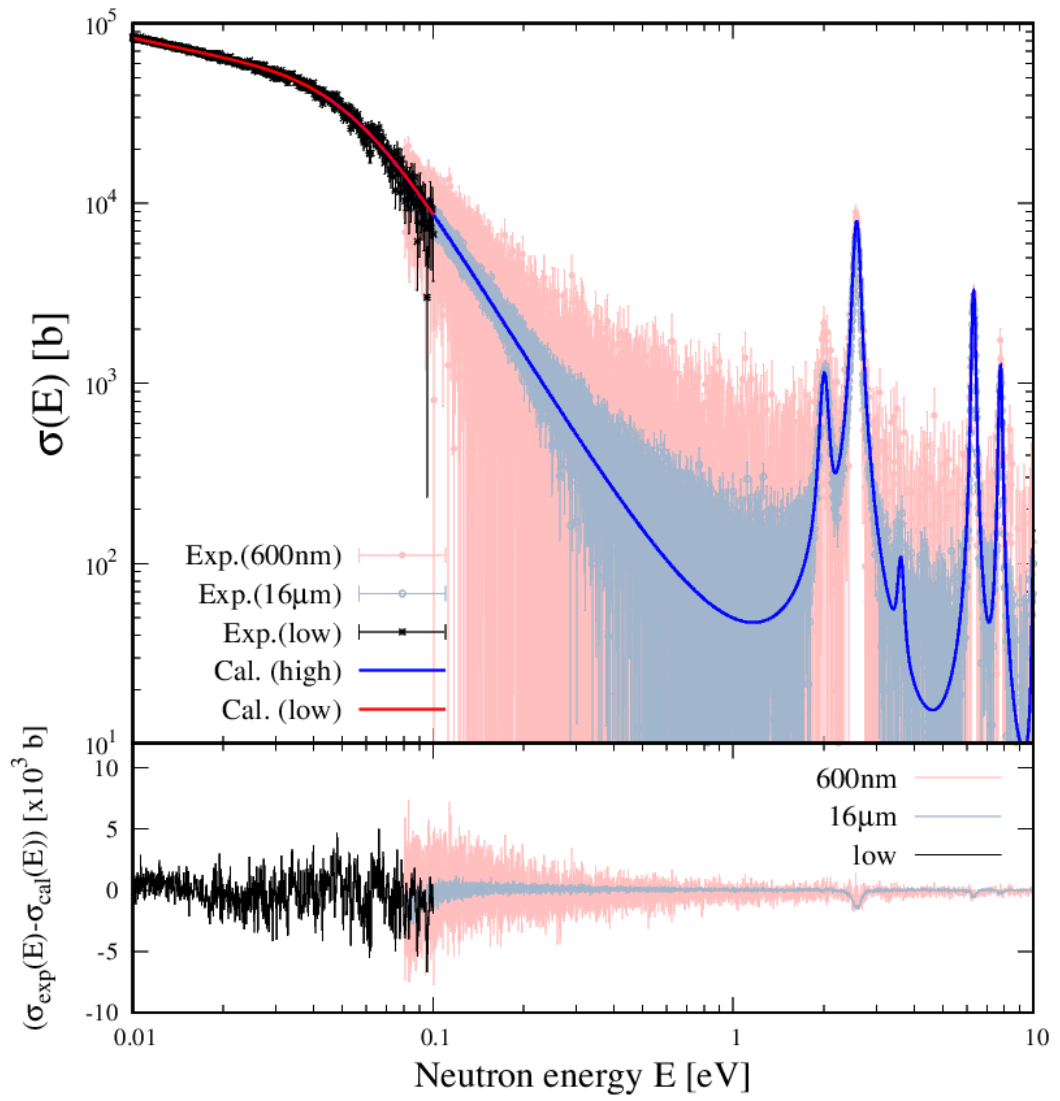


図 3-138 Gd-155 の 0.01-10 eV における中性子捕獲断面積の再現結果

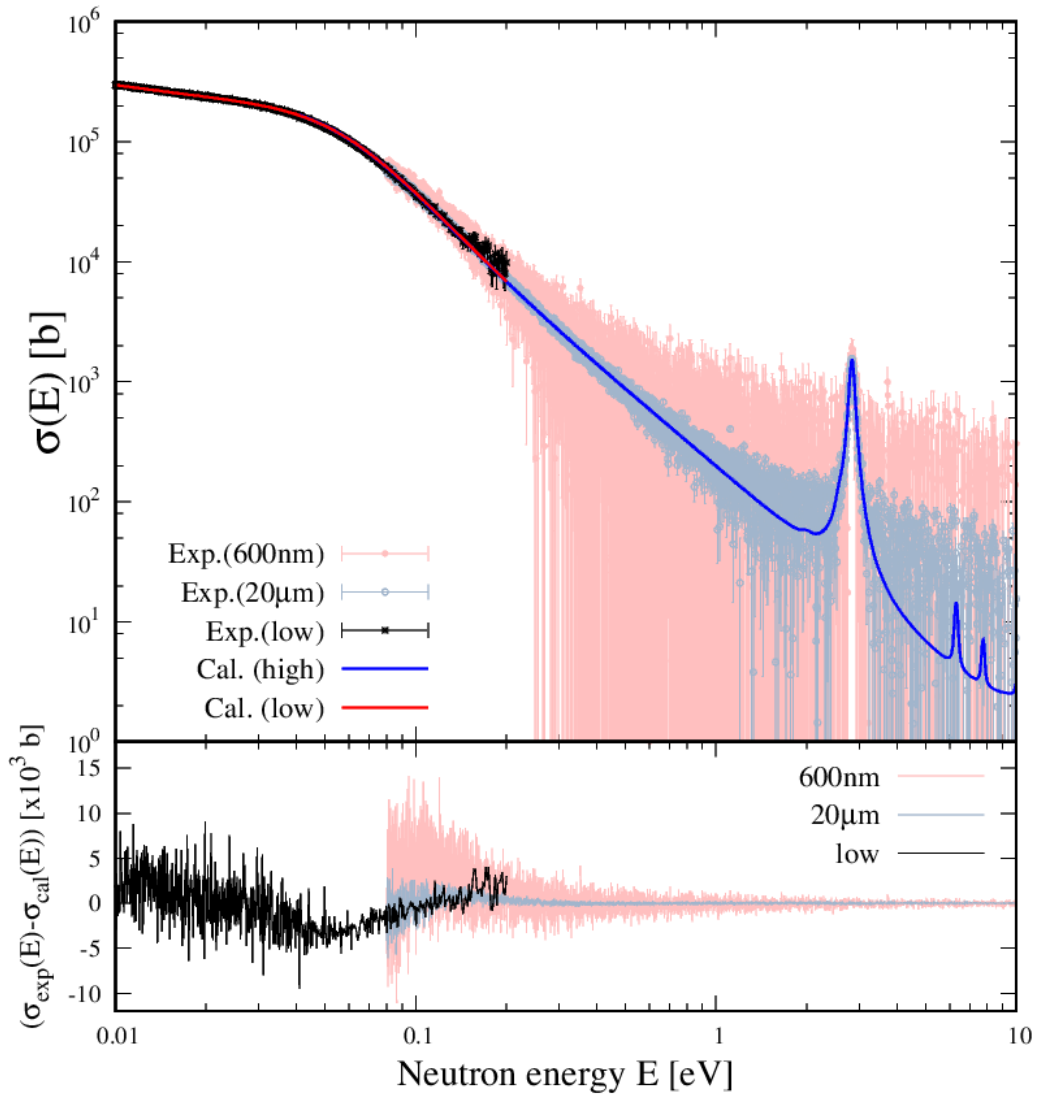


図 3-139 Gd-157 の 0.01-10 eV における中性子捕獲断面積の再現結果

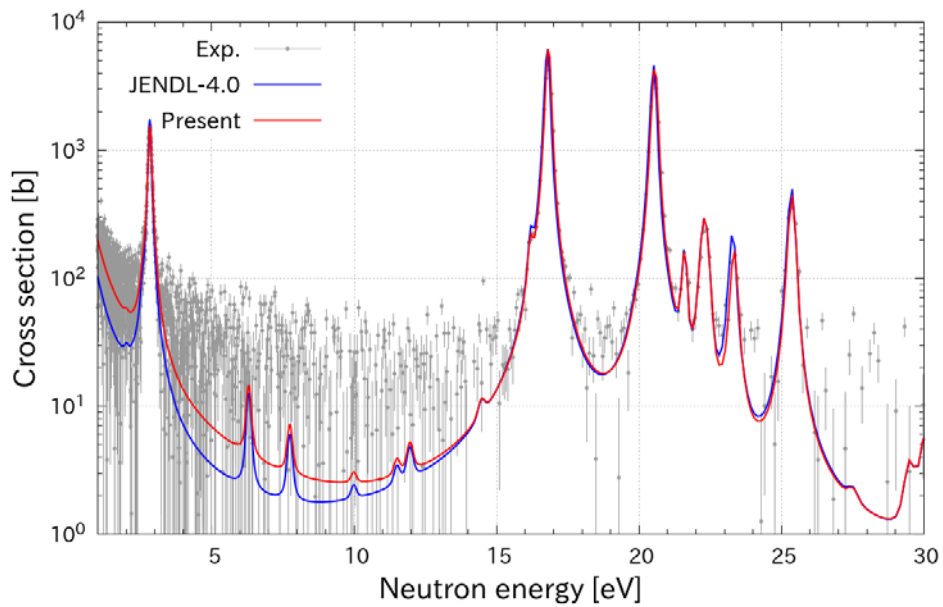
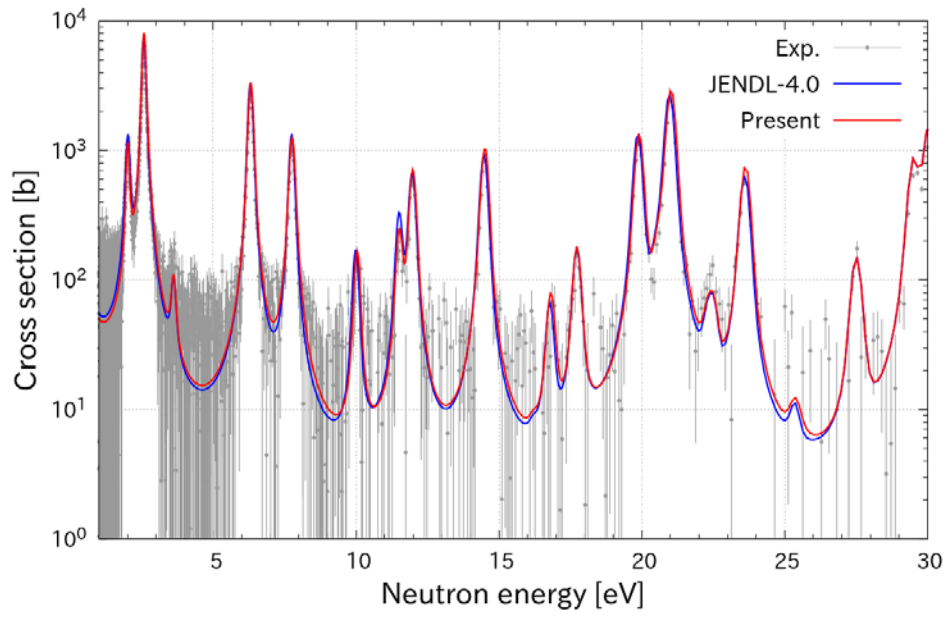


図 3-140 Gd-155, 157 の 1-30 eV に対する中性子捕獲断面積の再現結果
 (Gd-155, 157 の結果をそれぞれ上図、下図 (測定値は試料厚 16 μ m、20 μ m に対応) に示してある。)

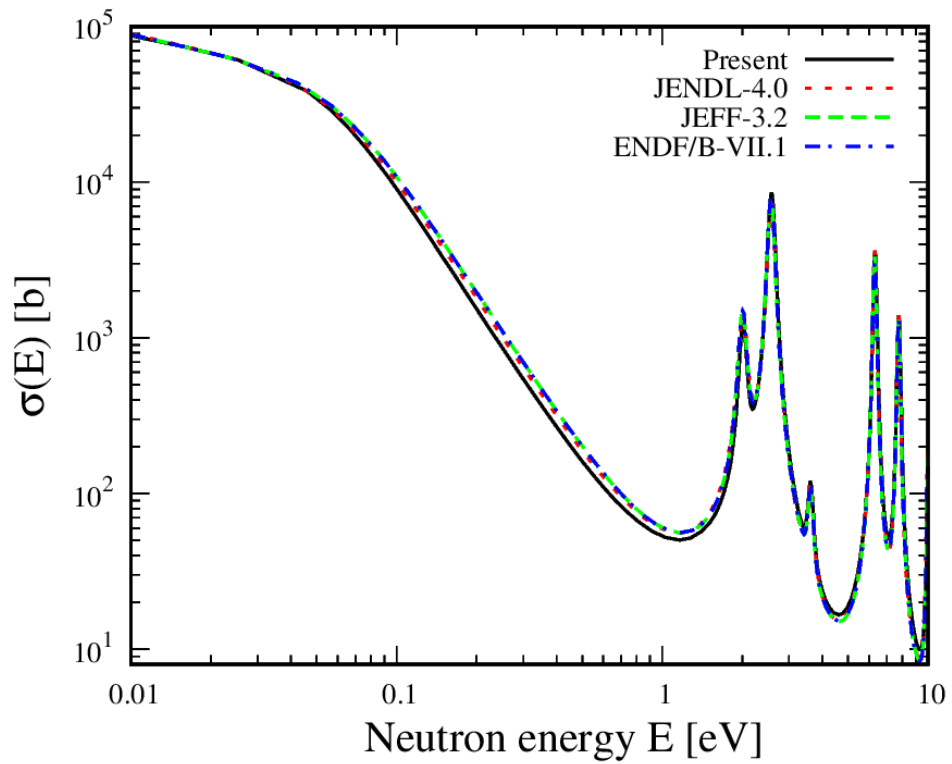


図 3-141 Gd-155 に対して得られた共鳴パラメータによる中性子捕獲断面積と評価値との比較

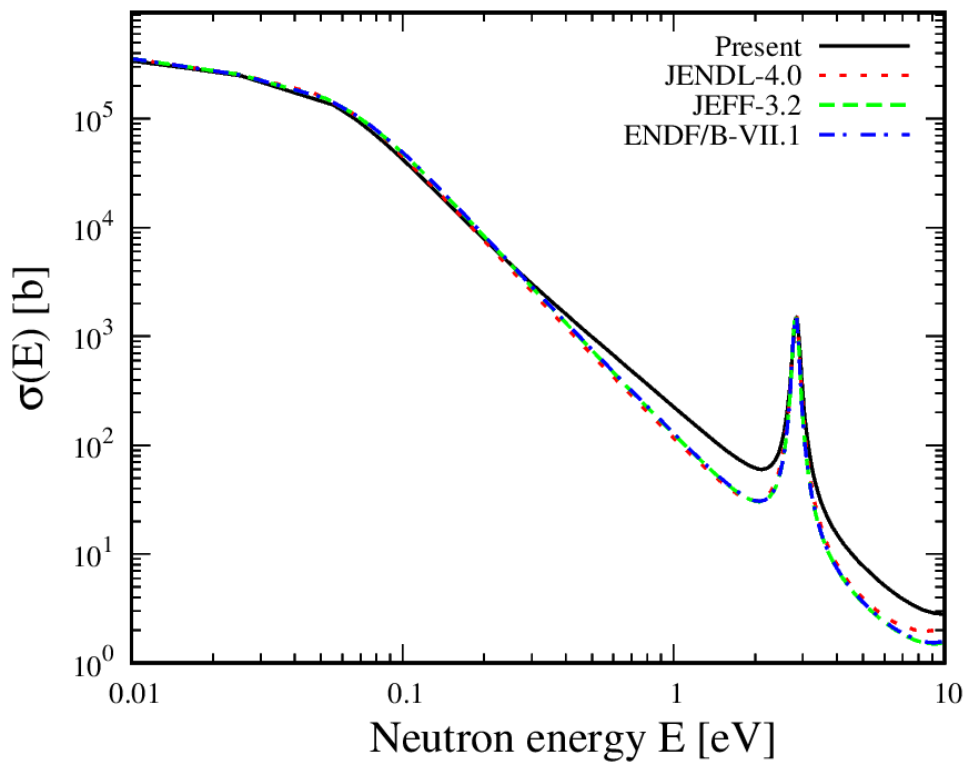


図 3-142 Gd-157 に対して得られた共鳴パラメータによる中性子捕獲断面積と評価値との比較

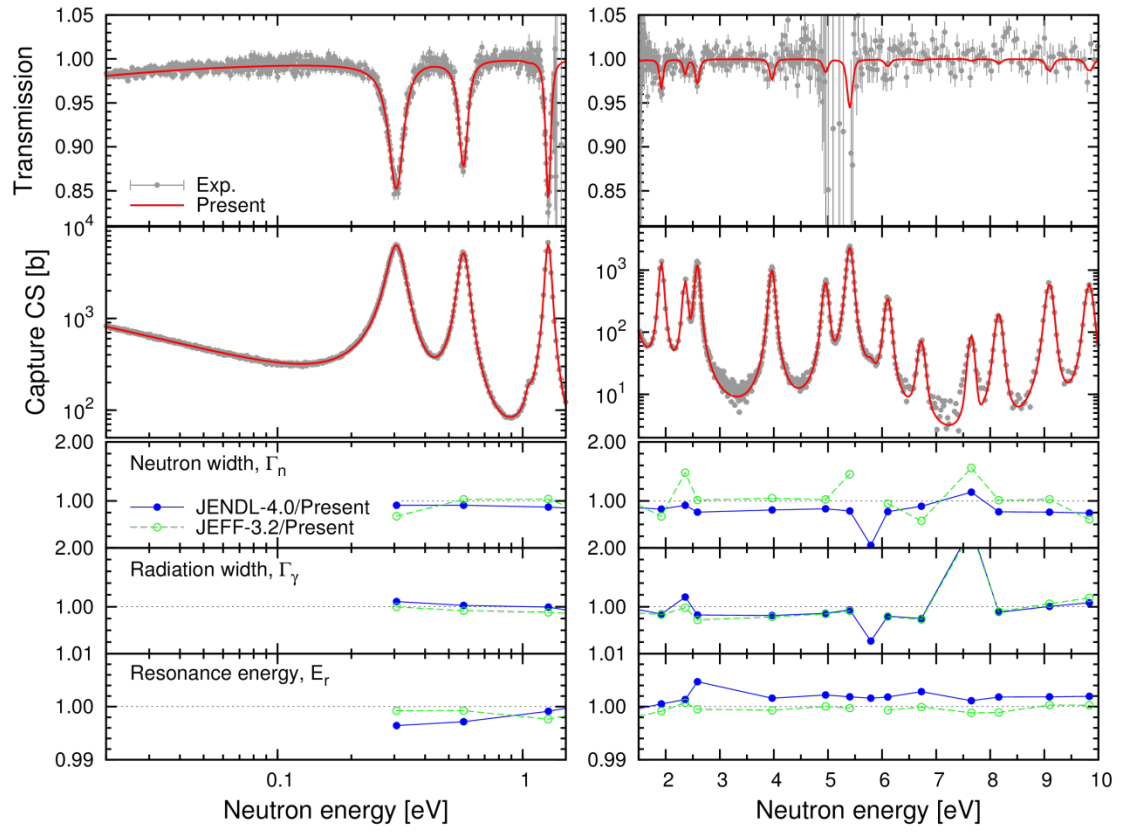


図 3-143 Am-241 の中性子透過・捕獲断面積の再現結果と共鳴パラメータに対する評価値との比較

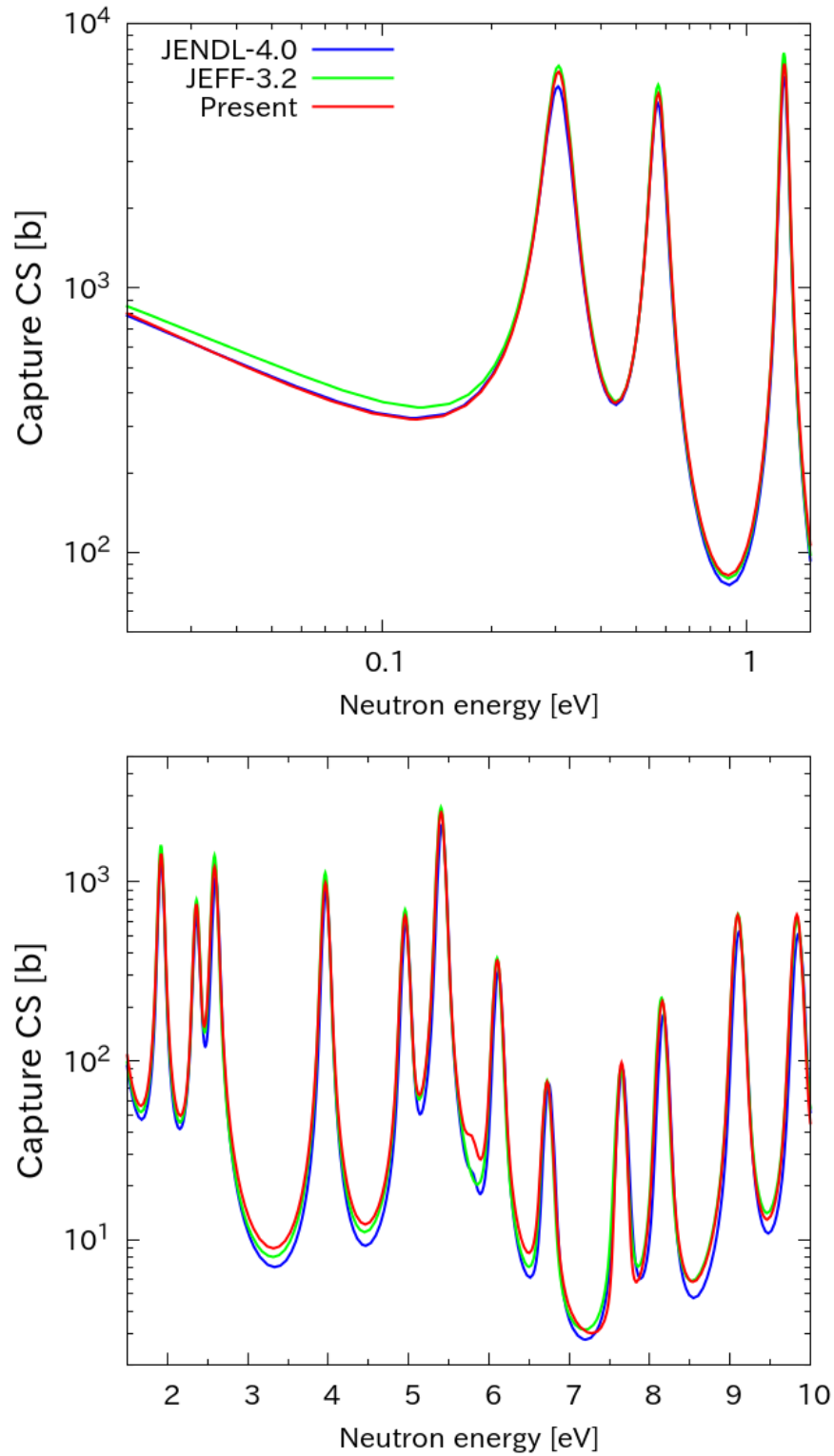


図 3-144 Am-241 に対して得られた共鳴パラメータによる中性子捕獲断面積と評価値との比較

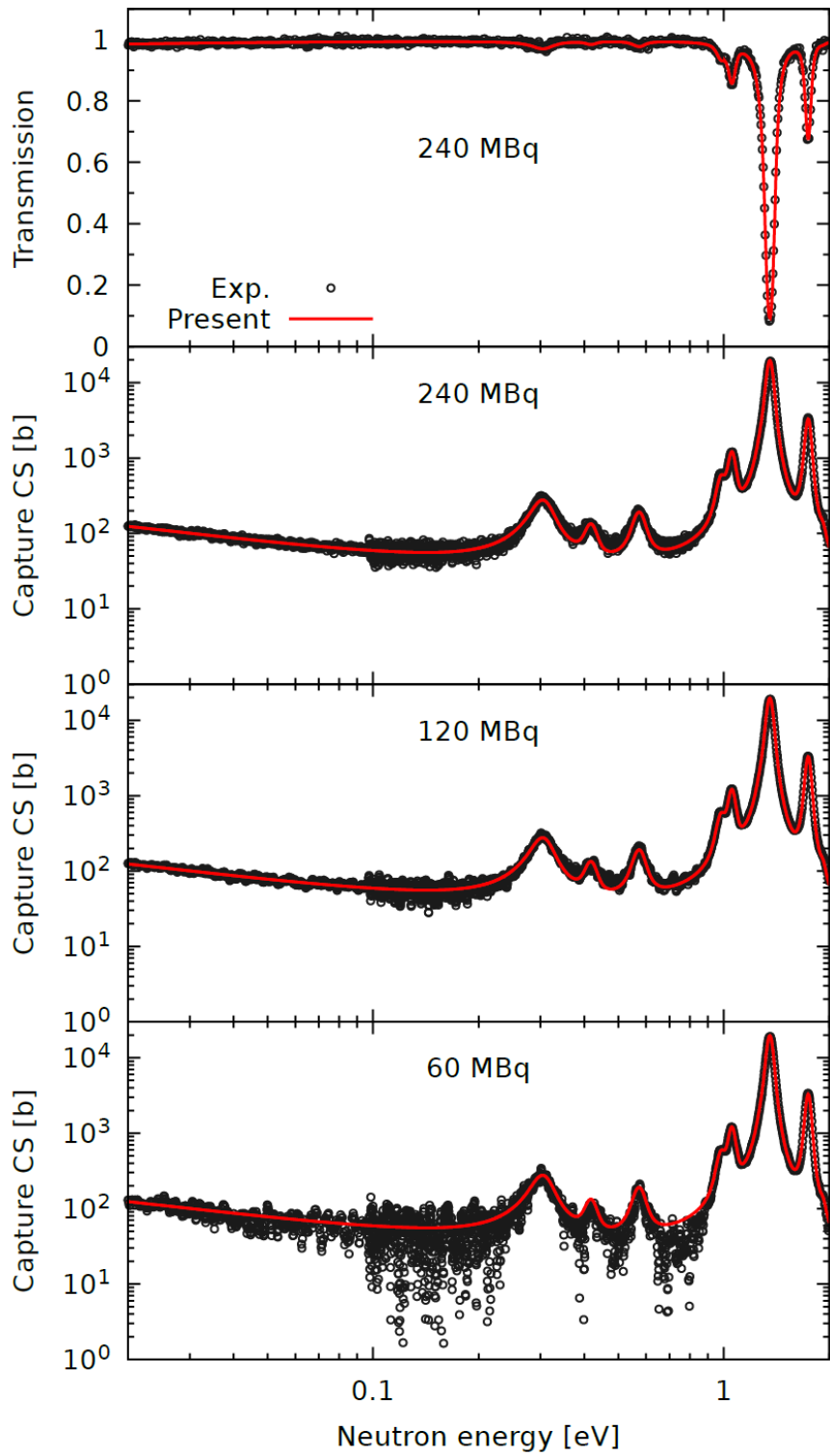


図 3-145 Am-243 試料に対する 0.02-2 eV における共鳴断面積の再現結果

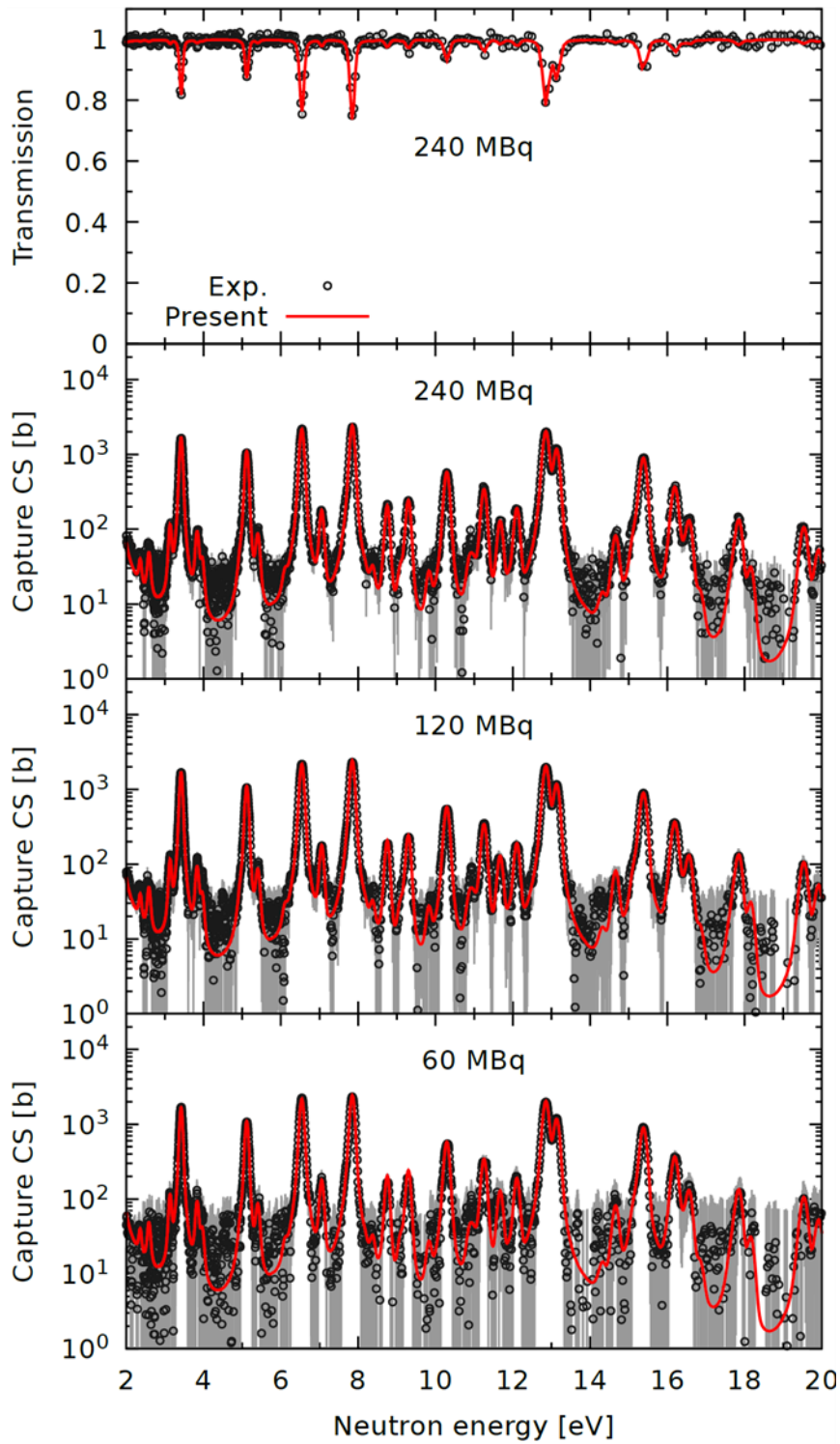


図 3-146 Am-243 試料に対する 2-20 eV における共鳴断面積の再現結果

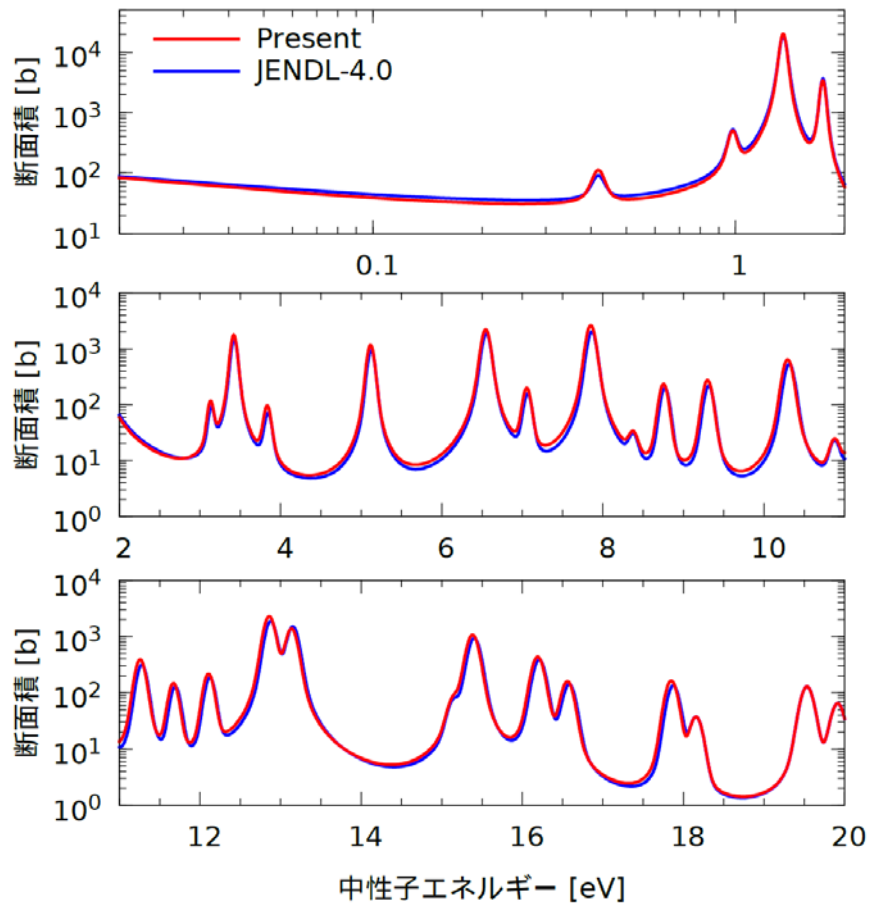


図 3-147 Am-243 に対して得られた共鳴パラメータによる中性子捕獲断面積と評価値との比較

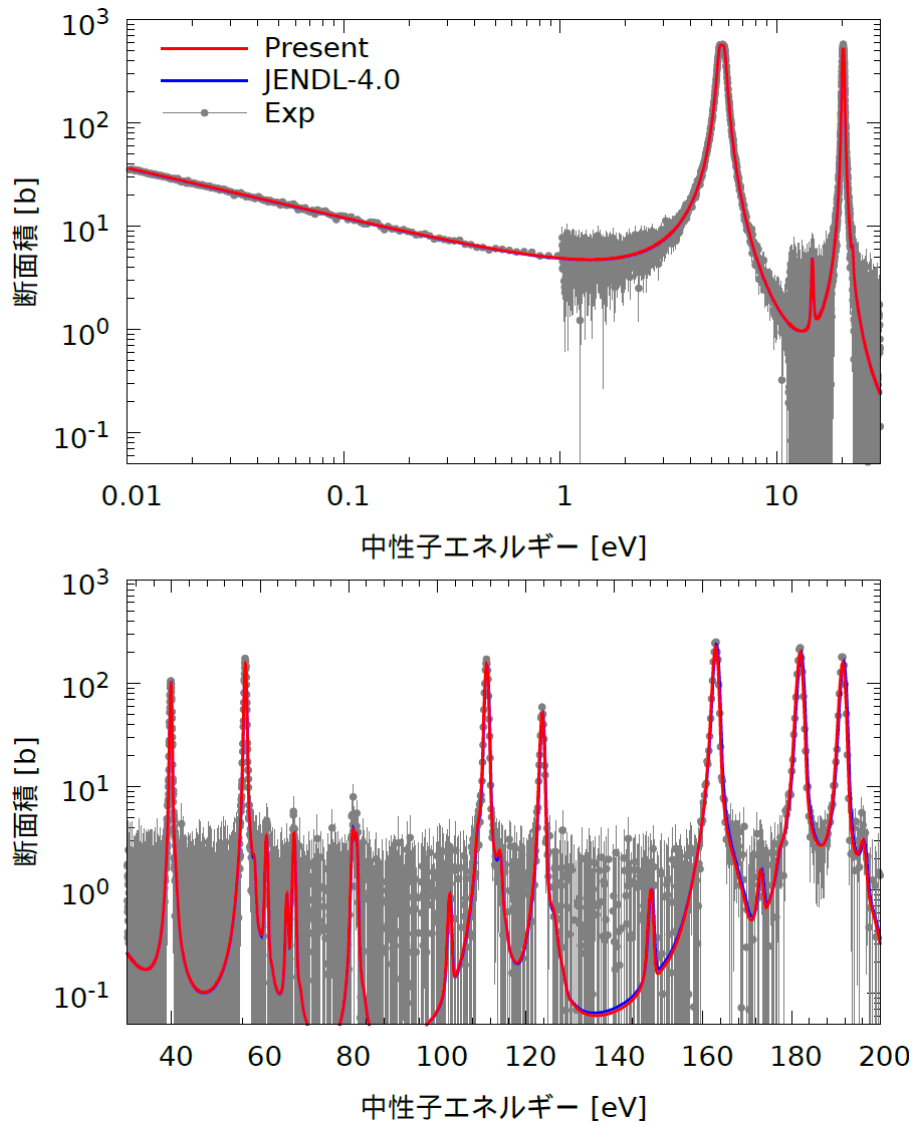


図 3-148 Tc-99 の 0.01-200 eV における中性子捕獲断面積の再現結果

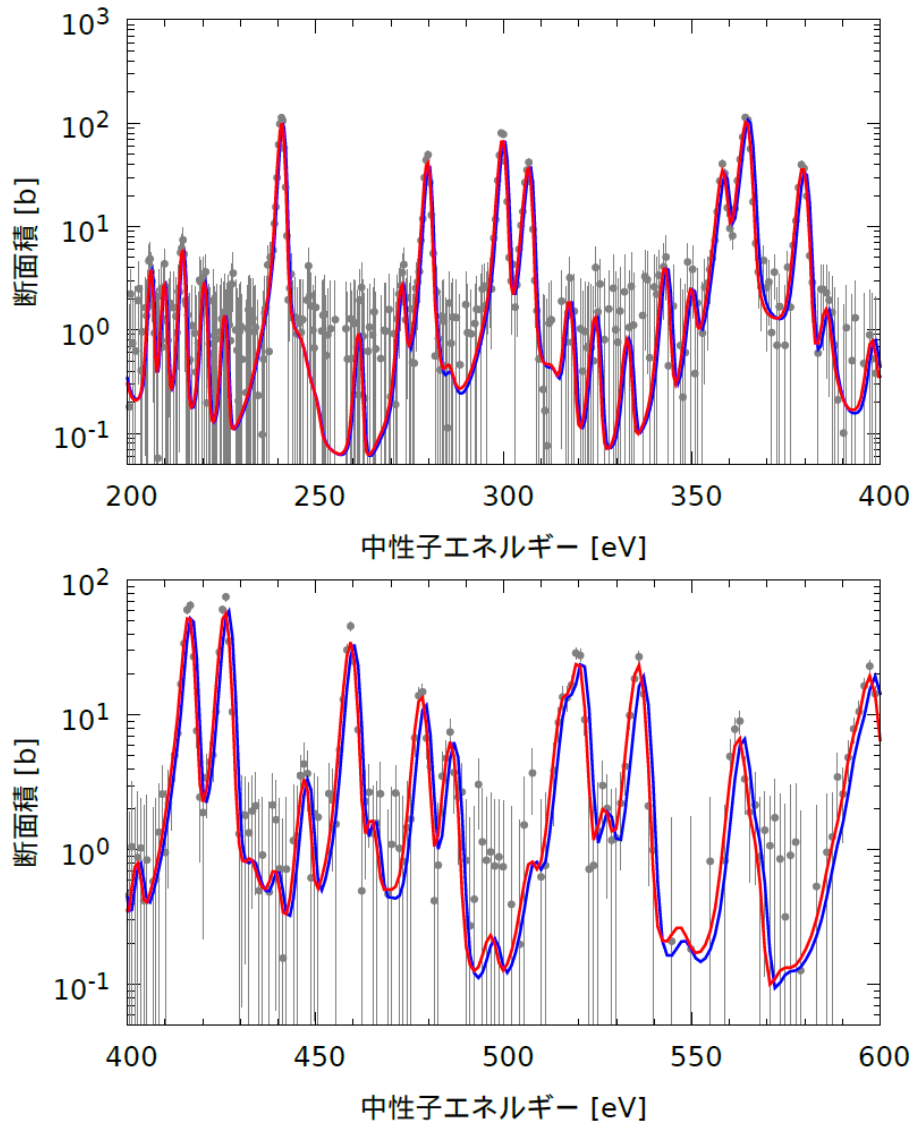


図 3-149 Tc-99 の 200-600 eV における中性子捕獲断面積の再現結果

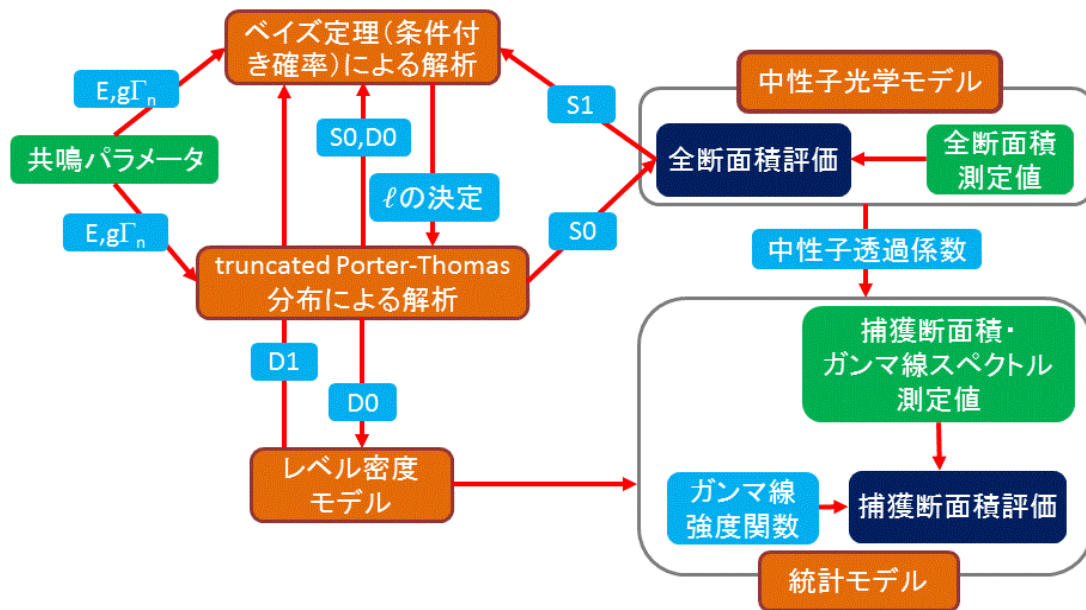


図 3-150 高速中性子領域の断面積に対する評価方法

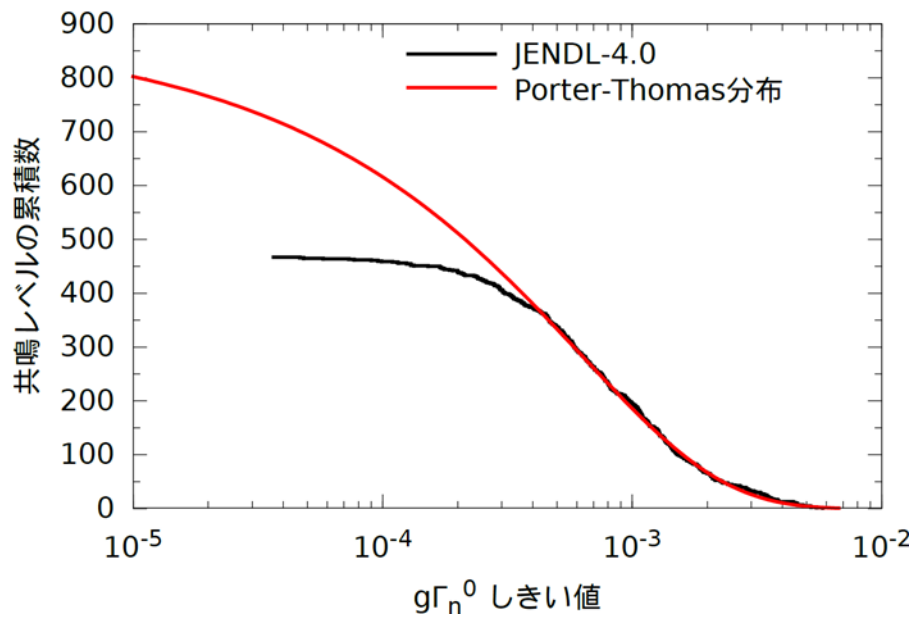


図 3-151 truncated Porter-Thomas 分布による解析結果

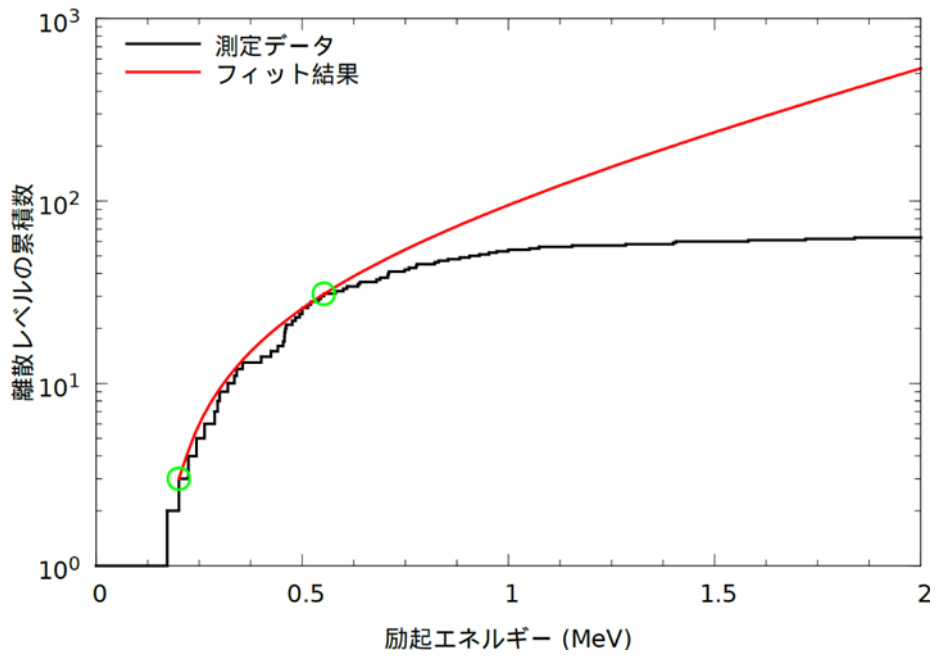


図 3-152 複合核 Tc-100 の離散レベル累積数の再現結果

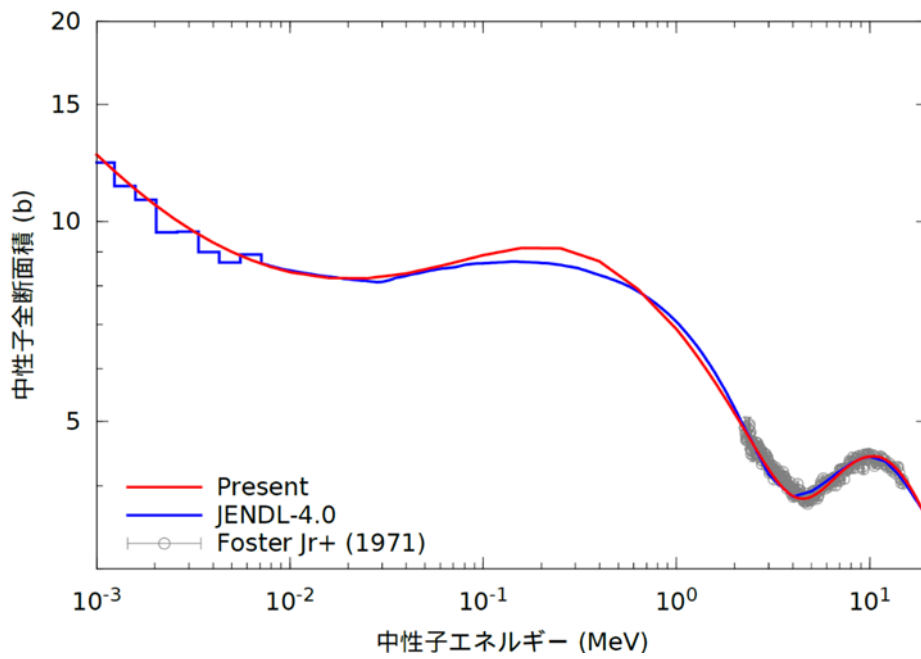


図 3-153 中性子全断面積の評価結果と JENDL-4.0 との比較

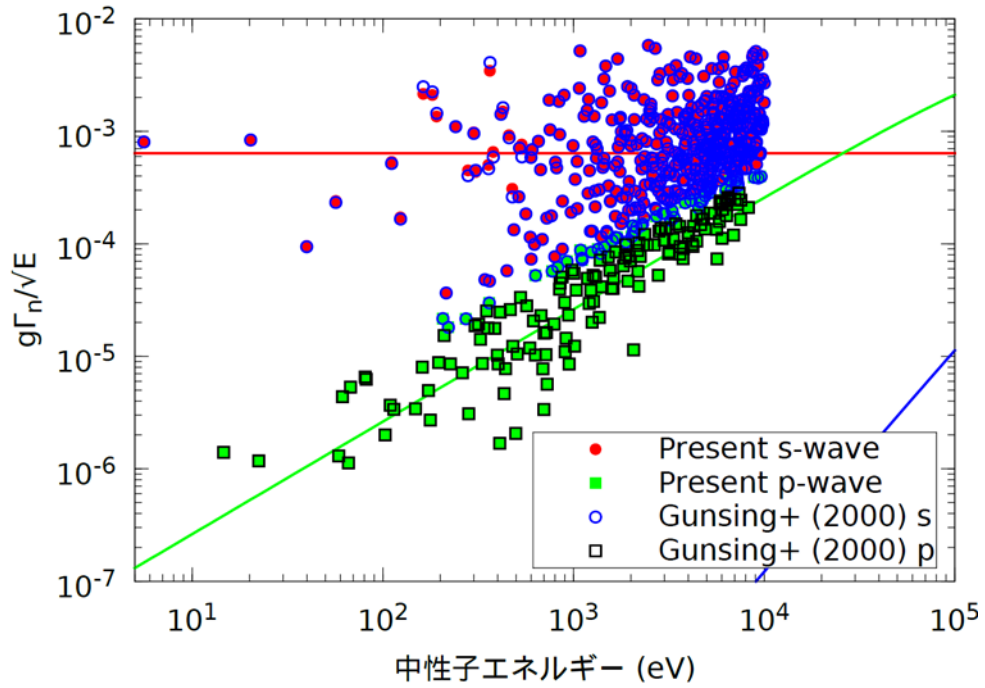


図 3-154 部分波ごとの中性子幅に対する中性子エネルギー依存性

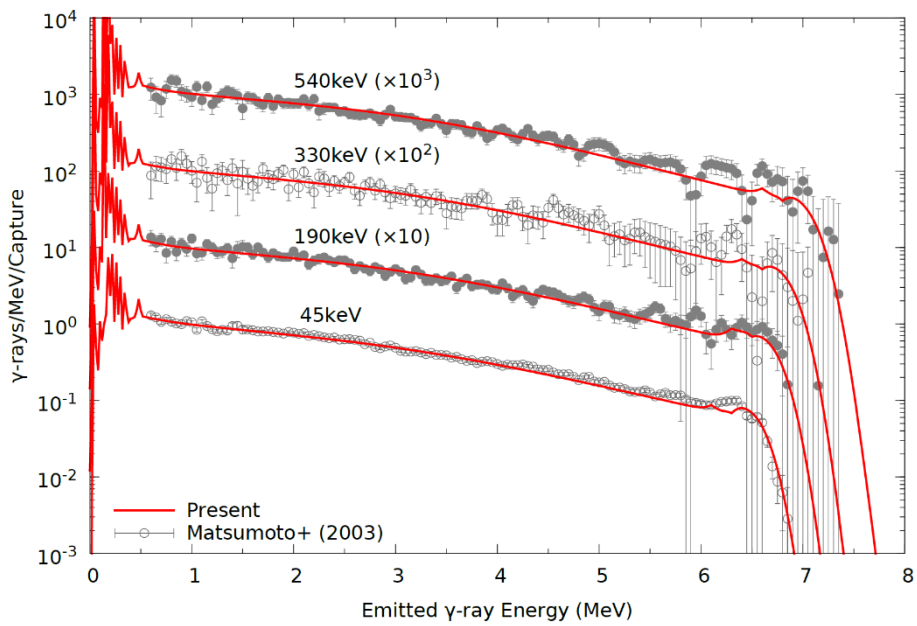


図 3-155 Tc-99 の高速中性子領域における捕獲ガンマ線スペクトルの評価結果

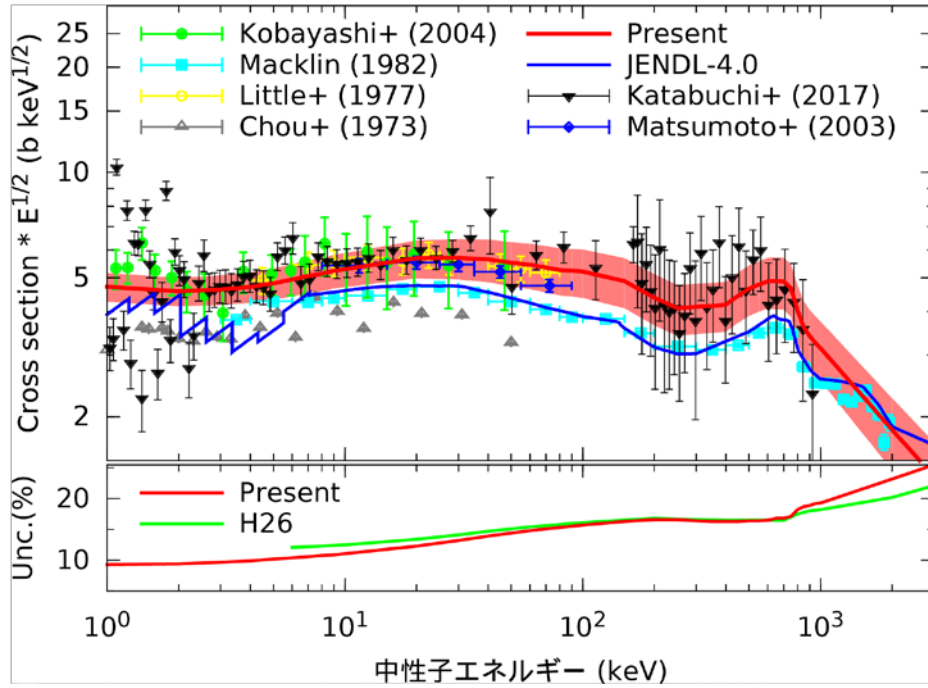


図 3-156 Tc-99 の高速中性子領域における中性子捕獲断面積（上図）と誤差（下図）の評価結果

3.6. 研究推進 (H25～H28)

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ため、全体委員会を 11 回開催（表 3-34）した。また、研究代表者による各研究分担機関での研究進捗や研究展開に関する検討を毎年実施した。

全体委員会では、核データ測定、放射化学、炉物理、核データ評価という異なる分野の研究者が顔を合わせて研究進捗状況を詳細に共有し、精度向上のための議論を行った。これにより、質量分析やアルファ線分析の結果を熱量測定の解析に反映させる等のアイデアが得られ、本事業の成果創出に反映された。

研究を進める中、研究炉が長期に停止するという想定外の困難も生じたが、加速器中性子源の利用研究が進捗し、新たな研究手法の構築にもつながった。

また、経済協力開発機構/原子力機関/原子力科学委員会/核データ評価国際協力ワーキングパーティ (OECD/NEA/NSC/WPEC) に設置された MA 核種の中性子捕獲断面積の高精度化に関する専門家会合 SG-41⁽⁷⁾ を活用し、海外の最新知見を把握し、本事業の研究推進に反映した。

本事業で得られた研究成果について、2016 年に開催された核データ国際会議における招待講演を含む 9 件の発表や、2017 年春に開催された原子力学会における 8 件のシリーズ発表など、積極的な外部発表に努めた。これまでに、学会等における口頭・ポスター発表を 50 件（表 3-35）、学会誌・雑誌等における論文発表を 17 件（さらに 10 件の論文掲載が決定している）（表 3-36）を行い、内外で高い評価を得ている。

表 3-34 全体委員会開催一覧

開催日	会合	開催場所
平成 25 年 10 月 21 日 15:00 ～ 10 月 22 日 12:00	平成 25 年度 第 1 回 全体委員会	京都大学 原子炉実験所
平成 26 年 1 月 16 日 11:00～16:00	平成 25 年度 第 2 回 全体委員会	日本原子力研究開発機構
平成 26 年 6 月 6 日 12:30～17:30	平成 26 年度 第 1 回 全体委員会	東京工業大学 先導原子力研究所
平成 26 年 10 月 23 日 14:30～ 10 月 24 日 12:00	平成 26 年度 第 2 回 全体委員会	京都大学 原子炉実験所
平成 27 年 1 月 9 日 11:00～16:00	平成 26 年度 第 3 回 全体委員会	日本原子力研究開発機構
平成 27 年 4 月 24 日 10:00～16:00	平成 27 年度 第 1 回 全体委員会	東京工業大学 先導原子力研究所
平成 27 年 10 月 15 日 13:30～ 10 月 16 日 18:00	平成 27 年度 第 2 回 全体委員会	京都大学 原子炉実験所
平成 27 年 12 月 24 日 13:00～16:00	平成 27 年度 第 3 回 全体委員会	日本原子力研究開発機構
平成 28 年 4 月 21 日 10:00～16:15	平成 28 年度 第 1 回 全体委員会	東京工業大学 先導原子力研究所
平成 28 年 8 月 25 日 13:30～ 8 月 26 日 18:00	平成 28 年度 第 2 回 全体委員会	京都大学 原子炉実験所
平成 28 年 12 月 9 日 10:30～17:00	平成 28 年度 第 3 回 全体委員会	日本原子力研究開発機構

表 3-35 学会等における口頭・ポスター発表リスト

	発表月日	発表題目	口頭 ポスター	発表者	場所
1	2014/8/27	Accuracy Improvement of Neutron Nuclear Data on Minor Actinides	口頭 招待講演	H. Harada et al.	CGS15、ドイツ
2	2014/9/9	マイナーアクチニドの中性子核データ精度向上に係る研究開発	口頭 招待講演	原田秀郎、他	日本原子力学会 2014年秋の大会、京都大学
3	2014/9/9	マイナーアクチニドの中性子核データ精度向上に係る研究開発 (1)AIMAC プロジェクトの全体計画	口頭	原田秀郎、他	日本原子力学会 2014年秋の大会、京都大学
4	2014/9/9	マイナーアクチニドの中性子核データ精度向上に係る研究開発 (2)熱中性子捕獲断面積の高精度化(放射化法)	口頭	中村詔司、他	日本原子力学会 2014年秋の大会、京都大学
5	2014/9/9	マイナーアクチニドの中性子核データ精度向上に係る研究開発 (3)熱中性子捕獲断面積の高精度化(可変中性子場)	口頭	堀順一、他	日本原子力学会 2014年秋の大会、京都大学
6	2014/9/9	マイナーアクチニドの中性子核データ精度向上に係る研究開発□(4)TOF測定に用いるサンプル量の高精度決定のための技術開発 I_{γ}	口頭	寺田和司、他	日本原子力学会 2014年秋の大会、京都大学
7	2014/9/9	マイナーアクチニドの中性子核データ精度向上に係る研究開発 (5)TOF測定に用いるサンプル量の高精度決定のための技術開発 カロリーメータ	口頭	中尾太郎、他	日本原子力学会 2014年秋の大会、京都大学
8	2014/9/9	マイナーアクチニドの中性子核データ精度向上に係る研究開発 (6)TOF測定に用いるサンプル量の高精度決定のための技術開発 質量分析	口頭	藤井俊行、他	日本原子力学会 2014年秋の大会、京都大学
9	2014/9/9	マイナーアクチニドの中性子核データ精度向上に係る研究開発 (7)J-PARC/MLF/ANNRIにおける高精度共鳴パラメータの導出	口頭	木村敦、他	日本原子力学会 2014年秋の大会、京都大学
10	2014/9/9	マイナーアクチニドの中性子核データ精度向上に係る研究開発 (8)全中性子断面積測定と組み合わせた共鳴パラメータの決定(京大炉ライナック)	口頭	高橋佳之、他	日本原子力学会 2014年秋の大会、京都大学

	発表月日	発表題目	口頭 ポスター	発表者	場所
11	2014/9/9	マイナーアクチニドの中性子核データ 精度向上に係る研究開発 (9) J-PARC/ MLF/ANNRI における中性子捕獲断面積 測定の高速中性子領域への拡張	口頭	片渕竜也、他	日本原子力学会 2014年秋の大会、京都 大学
12	2014/9/9	マイナーアクチニドの中性子核データ 精度向上に係る研究開発 (10) 測定と 評価のキャッチボールによる高品質評 価	口頭	岩本修、他	日本原子力学会 2014年秋の大会、京都 大学
13	2014/9/9	マイナーアクチニドの中性子核データ 精度向上に係る研究開発 (11) keV 領 域における ^{99}Tc と ^{129}I の捕獲断面積共 分散評価	口頭	岩本信之	日本原子力学会 2014年秋の大会、京都 大学
14	2014/11/27	Development of NaI(Tl) Detectors at ANNRI	口頭	T. Katabuchi et al.	2014 年度核データ研 究会、北海道大学
15	2014/11/27	Measurements of gamma-ray emission probabilities of minor actinides	ポスター	K. Terada et al.	2014 年度核データ研 究会、北海道大学
16	2014/11/27	Investigation of Variable Neutron Field for Accurate Determination of Thermal Neutron Capture Cross Section at KURRI-LINAC	ポスター	T. Yagi et al.	2014 年度核データ研 究会、北海道大学
17	2014/11/27	Verification of the Cd-ratio method in ^{241}Am using JENDL-4.0	ポスター	K. Mizuyama et al.	2014 年度核データ研 究会、北海道大学
18	2014/11/27	Prediction Calculation of Criticality at KUCA Solid Moderator Core for Integral Validation of MA nuclear data	ポスター	T. Sano et al.	2014 年度核データ研 究会、北海道大学
19	2014/11/27	R&D of the heat measurement method for accurate determination of amount of minor actinides samples for accuracy improvement of neutron nuclear data	ポスター	T. Nakao et al.	2014 年度核データ研 究会、北海道大学
20	2015/3/20	^{237}Np および ^{241}Am の崩壊 γ 線放出率の 測定	口頭	寺田和司、他	日本原子力学会 2015年春の大会、茨城 大学
21	2015/8/4	ANNRI における全断面積測定法開発	口頭	寺田和司	第4回 ANNRI 研究会、 東京工業大学

	発表月日	発表題目	口頭 ポスター	発表者	場所
22	2015/9/1	J-PARC/MLF/ANNRI NaI (T1) スペクトロメータを用いた Gd-155, 157 の中性子捕獲断面積の測定	口頭	木村敦、他	日本原子力学会 2015 年秋の大会、静岡 大学
23	2015/9/1	²⁴¹ Am における熱中性子捕獲断面積の評価	口頭	水山一仁、他	日本原子力学会 2015 年秋の大会、静岡 大学
24	2015/10/5	Evaluation of Neutron Capture Cross Sections and Covariances on ⁹⁹ Tc and ¹²⁹ I in the keV Energy Region	口頭	N. Iwamoto	WONDER 2015、フラン ス
25	2015/10/5	Neutron capture cross-section measurements of Gd-155 and Gd-157 in J-PARC/MLF/ANNRI	口頭	A. Kimura et al.	WONDER 2015、フラン ス
26	2015/11/20	MA 同位体の核データ精度向上のための評価手法開発	口頭	水山一仁、他	2015 年度核データ研 究会、いばらき量子ビ ーム研究センター
27	2015/11/20	γ 線放出率の高精度測定	口頭	寺田和司、他	2015 年度核データ研 究会、IQBRC、東海村
28	2016/3/27	J-PARC/MLF/ANNRI におけるデータ収集系開発	口頭	中尾太郎、他	日本原子力学会 2016 年春の年会
29	2016/5/2	Activation experiments for verification of neutron capture cross section of ²³⁷ Np using variable neutron field at KURRI-LINAC	口頭	Y. Takahashi et al.	PHYSOR 2016、米国
30	2016/5/3	Importance of the neutron flux information to the evaluation of thermal neutron capture cross section and resonance integral of MAs	口頭	K. Mizuyama et al.	PHYSOR 2016、米国
31	2016/8/4	Am-241 の中性子全断面積及び捕獲断面積の測定	口頭	寺田和司、他	第 5 回 ANNRI 研究会、 東京工業大学
32	2016/9/7	J-PARC/ANNRI-NaI (T1) 検出器を用いた Am-241 の中性子捕獲断面積の測定	口頭	片渕竜也、他	日本原子力学会 2016 年秋の大会、久留 米
33	2016/9/13	Research and development for accuracy improvement of neutron nuclear data on minor actinides	口頭 招待講演	H. Harada et al.	ND 2016、ベルギー

	発表月日	発表題目	口頭 ポスター	発表者	場所
34	2016/9/13	Application of modified REFIT code for J-PARC/MLF to evaluation of neutron capture cross section on ^{155, 157} Gd	ポスター	K. Mizuyama et al.	ND 2016、ベルギー
35	2016/9/13	Developments of a new data acquisition system at ANNRI	口頭	T. Nakao et al.	ND 2016、ベルギー
36	2016/9/13	Experimental verification of neutron capture cross section of ²³⁷ Np in variable neutron field at KURRI-LINAC	口頭	Y. Takahashi et al.	ND 2016、ベルギー
37	2016/9/14	Technical developments for accurate determination of amount of samples used for TOF measurements	口頭	K, Terada et al.	ND 2016、ベルギー
38	2016/9/13	Analysis of Energy Resolution in the KURRI-LINAC Pulsed Neutron Facility	ポスター	T. Sano et al.	ND 2016、ベルギー
39	2016/9/14	High precision analysis of isotopic composition for samples used for nuclear cross-section measurements	ポスター	Y. Shibahara et al.	ND 2016、ベルギー
40	2016/9/14	Evaluation of neutron total and capture cross sections on Tc-99 in the unresolved resonance region	ポスター	N. Iwamoto	ND 2016、ベルギー
41	2016/9/14	Measurement of the Neutron Capture Cross Section of ⁹⁹ Tc Using ANNRI at J-PARC	ポスター	T. Katabuchi et al.	ND 2016、ベルギー
42	2016/11/17	Resonance analysis of cross section data measured by J-PARC/MLF using the modified REFIT code	ポスター	K. Mizuyama et al.	2016 年度核データ研究会、高工研、つくば
43	2017/3/29	マイナーアクチニドの中性子核データ精度向上に係る研究開発 (1)AIMAC プロジェクトにおける研究成果のまとめ	口頭	原田秀郎、他	日本原子力学会 2017 年春の年会、東海大学
44	2017/3/29	マイナーアクチニドの中性子核データ精度向上に係る研究開発 (2)カロリメータによる高精度放射性サンプル定量技術	口頭	中尾太郎、他	日本原子力学会 2017 年春の年会、東海大学

	発表月日	発表題目	口頭 ポスター	発表者	場所
45	2017/3/29	マイナーアクチニドの中性子核データ 精度向上に係る研究開発 (3) J-PARC ANNRI を用いた ^{241}Am 中性子捕獲断面積 の測定	口頭	寺田和司、他	日本原子力学会 2017 年春の年会、東海大学
46	2017/3/29	マイナーアクチニドの中性子核データ 精度向上に係る研究開発 (4) J-PARC ANNRI を用いた ^{243}Am 中性子捕獲断面 積及び全中性子断面積の測定	口頭	木村敦、他	日本原子力学会 2017 年春の年会、東海大学
47	2017/3/29	マイナーアクチニドの中性子核データ 精度向上に係る研究開発 (5) 京大炉ラ イナックを用いた放射化法による MA の捕獲断面積測定	口頭	高橋佳之、他	日本原子力学会 2017 年春の年会、東海大学
48	2017/3/29	マイナーアクチニドの中性子核データ 精度向上に係わる研究開発 (6) 京大炉 ライナックを用いた TOF 法による ^{237}Np 中性子捕獲断面積及び全中性子 断面積の測定	口頭	堀順一、他	日本原子力学会 2017 年春の年会、東海大学
49	2017/3/29	マイナーアクチニドの中性子核データ 精度向上に係る研究開発 (7) J-PARC ANNRI を用いた高速中性子捕獲断面積 の測定	口頭	片淵竜也、他	日本原子力学会 2017 年春の年会、東海大学
50	2017/3/29	マイナーアクチニドの中性子核データ 精度向上に係る研究開発 (8) MA 及び ^{99}Tc に対する中性子捕獲断面積の評価	口頭	岩本信之、他	日本原子力学会 2017 年春の年会、東海大学

表 3-36 学会誌・雑誌等における論文発表リスト

	標題	発表者	発表媒体 (学会誌・雑誌等名・巻号ページ・年)
1	マイナーアクチノドの中性子核データ精度向上に係る 研究開発	原田秀郎	核データニュース No. 109 (2014)
2	Accuracy Improvement of Neutron Nuclear Data on Minor Actinides	H. Harada et al.	EPJ Web of Conferences, 93, 06001 (2015)
3	Development of NaI(Tl) Detectors at ANNRI	T. Katabuchi et al.	JAEA-Conf 2015-003, p. 17-22 (2016)
4	Measurements of gamma-ray emission probabilities of minor actinides	K. Terada et al.	JAEA-Conf 2015-003, p. 143-146 (2016)
5	Investigation of Variable Neutron Field for Accurate Determination of Thermal Neutron Capture Cross Section at KURRI-LINAC	T. Yagi et al.	JAEA-Conf 2015-003, p. 197-202 (2016)
6	Verification of the Cd-ratio method in ^{241}Am using JENDL-4.0	K. Mizuyama et al.	JAEA-Conf 2015-003, p. 245-250 (2016)
7	Prediction Calculation of Criticality at KUCA Solid Moderator Core for Integral Validation of MA nuclear data	T. Sano et al.	JAEA-Conf 2015-003, p. 275-280 (2016)
8	R&D of the heat measurement method for accurate determination of amount of minor actinides samples for accuracy improvement of neutron nuclear data	T. Nakao et al.	JAEA-Conf 2015-003, p. 303-306 (2016)
9	Evaluation of Neutron Capture Cross Sections and Covariances on ^{99}Tc and ^{129}I in the keV Energy Region	N. Iwamoto	EPJ Web of Conferences (Internet, Vol. 111, p. 03002-1~03002-5) (2016)
10	Measurements of gamma-ray emission probabilities of ^{241}Am , ^{243}Am and ^{239}Np	K. Terada et al.	Journal of Nuclear Science and Technology, 53, p. 1881-1888 (2016)
11	Activation experiments for verification of neutron capture cross section of ^{237}Np using variable neutron field at KURRI-LINAC	Y. Takahashi et al.	Proceedings of PHYSOR 2016, p. 645-652 (2016)
12	Importance of the neutron flux information to the evaluation of thermal neutron capture cross section and resonance integral of minor actinides	K. Mizuyama et al.	Proceedings of PHYSOR 2016, p. 2437-2443 (2016)
13	Correction of the thermal neutron capture cross section of ^{241}Am obtained by the Westcott convention	K. Mizuyama et al.	Journal of Nuclear Science and Technology, 54, p. 74-80 (2016)

	標題	発表者	発表媒体 (学会誌・雑誌等名・巻号ページ・年)
14	Activation measurements of neptunium-237 at KURRI-Linac	S. Nakamura et al.	KURRI Progress Report 2016, p. 67 (2016)
15	Measurements of americium isotopes by activation method at KURRI-Linac	S. Nakamura et al.	KURRI Progress Report 2016, p. 69 (2016)
16	Accurate measurements of γ -ray emission probabilities	K. Terada et al.	JAEA-Conf 2016-004, p. 21-25 (2016)
17	Development of evaluation method for improvement of nuclear data accuracy in MA isotopes	K. Mizuyama et al.	JAEA-Conf 2016-004, p. 35-39 (2016)
18	Research and development for accuracy improvement of neutron nuclear data on minor actinides	H. Harada et al.	to be published in EPJ Web of Conferences (2017)
19	Experimental verification of neutron capture cross section of ^{237}Np in variable neutron field at KURRI-LINAC	Y. Takahashi et al.	to be published in EPJ Web of Conferences (2017)
20	Analysis of energy resolution in the KURRI-LINAC pulsed neutron facility	T. Sano et al.	to be published in EPJ Web of Conferences (2017)
21	Measurement of the neutron capture cross section of ^{99}Tc using ANNRI at J-PARC	T. Katabuchi et al.	to be published in EPJ Web of Conferences (2017)
22	Developments of a new data acquisition system at ANNRI	T. Nakao et al.	to be published in EPJ Web of Conferences (2017)
23	Technical developments for accurate determination of amount of samples used for TOF measurements	K. Terada et al.	to be published in EPJ Web of Conferences (2017)
24	High precision analysis of isotopic composition for samples used for nuclear cross section measurements	Y. Shibahara et al.	to be published in EPJ Web of Conferences (2017)
25	Evaluation of neutron total and capture cross sections on Tc-99 in the unresolved resonance region	N. Iwamoto et al.	to be published in EPJ Web of Conferences (2017)
26	Application of modified REFIT code for J-PARC/MLF to evaluation of neutron capture cross section on $^{155,157}\text{Gd}$	K. Mizuyama et al.	to be published in EPJ Web of Conferences (2017)
27	Resonance analysis of cross section data measured by J-PARC/MLF using the modified REFIT code	K. Mizuyama et al.	to be published in JAEA-Conf 2017-xxx (2017)

4. 結言

本プロジェクト研究では、MA 核種を中心に中性子捕獲断面積を高精度化するために、測定技術及び評価技術を開発し、精度を約 2 倍向上させるという大きな成果を得た。

特に、最大の系統誤差要因であった TOF 測定に用いるサンプル量の測定精度について、カロリメータを適用することで、従来の測定精度を 10 倍以上高めるという画期的な成果を得て、中性子捕獲断面積の精度を大幅に向上させることに道を拓いた。本測定技術は、MA 核種以外の放射性核種にも適用できる汎用的測定技術であり、今後、様々な放射性核種の中性子捕獲断面積を系統的に向上させることに応用が期待される。

また、本事業では、ガンマ線検出効率の高精度校正技術、崩壊ガンマ線放出率の高精度測定技術、中性子全断面積と中性子捕獲断面積を組み合わせた相互検証手法、ANNRI での TOF 法による測定エネルギー範囲の大幅な拡張など、多くの優れた研究手法及び測定技術が開発された。これらの研究手法及び測定技術は、汎用性の高い技術であり、今後系統的な測定研究に反映されることが期待される。

核データ評価技術に関しては、放射化法により取得されたデータを補正する詳細解析技術が開発され、それを公開された全ての測定データに系統的に適用する研究手法の有効性が示された。本研究手法は、MA 核種以外にも適用できる汎用的評価技術と位置づけることができ、今後、U や Pu 等の他核種にも適用されることが期待される。

高速中性子領域の中性子捕獲断面積については、核分裂の寄与を補正する技術を開発することが今後の技術課題である。海外の測定施設では、非密封サンプルが利用できるため、核分裂チェンバーを組み合わせた測定が可能であり、本プロジェクト研究で得られた低エネルギー領域の高精度データにより規格化することで、高速中性子領域についても中性子捕獲断面積の高精度化が期待される。現在 ANNRI では放射性サンプルの測定は密封サンプルに制限されているが、将来核分裂中性子の測定を組み合わせる技術を開発することにより、直接測定も可能となるであろう。

本事業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、より効率的な核変換システムの設計を可能とする中性子核データのさらなる高精度化研究の発展に繋がることを期待される。

参考文献

- (1) M. Salvatores et al., “OECD/NEA WPEC Subgroup 26 Final Report: Uncertainty and Target Accuracy Assessment for Innovative Systems Using Recent Covariance Data Evaluations”, Report NEA/WPEC-26, Paris (2008)
- (2) H. Iwamoto et al., “Sensitivity and uncertainty analysis for an accelerator-driven system with JENDL-4.0,” J. Nucl. Sci. Technol. **50**, 856 (2013)
- (3) H. Iwamoto et al., “核変換物理実験施設を用いた炉物理実験による加速器駆動核変換システム炉物理パラメータの不確かさの低減効果,” JAEA-Research 2014-033 (2015)
- (4) K. Fraval et al., “Measurement and analysis of the $^{241}\text{Am}(n, \gamma)$ cross section with liquid scintillator detectors using time-of-flight spectroscopy at the n_TOF facility at CERN,” Phys. Rev. C **89**, 044609 (2014)
- (5) M. Jandel et al., “Neutron capture cross section of ^{241}Am ,” Phys. Rev. C **78**, 034609 (2008)
- (6) H. Harada et al., “Capture Cross-section Measurement of $^{241}\text{Am}(n, \gamma)$ at J-PARC/MLF/ANNRI,” Nuclear Data Sheets **119**, 61 (2014)
- (7) H. Harada et al., “Improving nuclear data accuracy of ^{241}Am and ^{237}Np capture cross-sections”, NEA/WPEC/SG-41 <https://www.oecd-nea.org/science/wpec/sg41/> 20 May 2016
- (8) H. Harada et al., “Accuracy Improvement of Neutron Nuclear Data on Minor Actinides,” EPJ Web of Conferences **93**, 06001 (2015)
- (9) K. Shibata, O. Iwamoto, T. Nakagawa, N. Iwamoto, et al., “JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering”, J. Nucl. Sci. Technol., **48**, 1-30 (2010).
- (10) R. Firestone, Table of Isotopes (1999 update with CD-ROM), 8th ed., John Wiley & Sons, New York (1999).
- (11) C. M. Lederer et al., “Table of Isotopes, 7th edition”, John Wiley & Sons, New York, (1995).
- (12) T. Sato et al., J. Nucl. Sci. Technol., **50**, 913 (2013).
- (13) Y. Nagaya et al., “MVP/GMVP II: General Purpose Monte Carlo Codes for Neutron and Photon Transport Calculations based on Continuous Energy and Multigroup Methods,” JAERI 1348 (2005).
- (14) H. Unesaki et al., “Measurement of ^{237}Np Fission Rate Ratio Relative to ^{235}U Fission Rate in Cores with Various Thermal Neutron Spectrum at the Kyoto University Critical Assembly,” J. Nucl. Sci. Technol., **37** (8), 627 (2000).
- (15) T. Iwasaki et al., “Integral Test for $\text{Np}237$ and $\text{Am}241$ Cross Sections in JNEDL, ENDF and JEF Libraries,” J. Nucl. Sci. Technol., Supplement 2, 920 (2002).
- (16) N. M. Larson, “Updated Uses’ Guide for SAMMY,” ORNL/TM-9179/R6, Oak Ridge National Laboratory, 1998.
- (17) J. F. Briesmeister, Ed. “MCNP-A general Monte Carlo N-Particle Transport code,

- version 4C,” LA-137090M (2000).
- (18)<http://www.caen.it/>
- (19)K. Kino et al., “Energy resolution of pulsed neutron beam provided by the ANNRIbeamline at the J-PARC/MLF” Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 736, 66 (2014).
- (20)Møller et al., “Low-Energy Neutron Resonances in Erbium and Gadolinium”, Nucl. Sci. Eng., 8, 183 (1960).
- (21)Leinweber et al., “Neutron Capture and Total Cross-Section Measurements and Resonance Parameters of Gadolinium”, Nucl. Sci. Eng., 154, 261 (2006).
- (22)M.-M. Be et al., Table of Radionuclides, Volumes 1-5, (2010).
- (23)R. B. Firestone et al., “Table of Isotopes, 8th edition”, John Wiley & Sons, New York, (1995).
- (24)Evaluated Nuclear Structure Data File(ENSDF), <http://www.nndc.bnl.gov/ensdf/>
- (25)H. Harada, S. Nakamura, M. Ohta, et al., “Emission Probabilities of Gamma Rays from the Decay of ²³³Pa and ²³⁸Np, and the Thermal Neutron Capture Cross Section of ²³⁷Np,”Journal of Nuclear Science and Technology, 43, 1289-1297 (2006).
- (26)G. Shchukin, K. Iakovlev, J. Morel, “Analysis of the ²³⁷Np-²³³Pa photon spectrum using the full response function method”, Appl. Radiat. Isot. 60. 239 (2004).
- (27)A. Luca, S. Sepman, K. Iakovlev, G. Shchukin, M. Etcheverry, J. Morel, “Emission probabilities of the K X-rays following the decay of ²³⁷Np in equilibrium with ²³³Pa”, Appl. Radiat. Isot. 56, 173-180 (2002).
- (28)D. DeVries, H. Griffin, “X- and γ-ray emissions observed in the decay of ²³⁷Np and ²³³Pa”, Appl. Radiat. Isot., 66, 668 (2008).
- (29)A. Letourneau et al., “Emission probabilities of g-rays from ²³⁸Np and their use for determination of the thermal neutron capture cross section of ²³⁷Np”, Applied Radiation and Isotopes, 68, 432-438 (2010).
- (30)P. Leconte et al., “An Innovative Method to Measure the Gamma-Ray Emission Probabilities in the Decay of ²³⁸Np and ²³³Pa”, Nucl. Sci. Eng. 274, 251 (2012).
- (31)C. M. Lederer, “E1 transition probabilities from K^π=0⁻ and K^π=1⁻ states of ²³⁸Pu” Phys. Rev. C24, 1175 (1981).
- (32)I. Ahmad, M. Wahlgren, “Long-Lived Standards for the Efficiency Calibration of Ge(Li) Detectors”, Nucl. Instrum. Methods 99, 333 (1972).
- (33)D. I. Starozhukov, Y. S. Popov, P. A. Privalova, “Determination of Absolute γ Yields in α Decay of ²⁴³Am”, At. Energ. 42, 319 (1977); Sov. At. Energy 42, 355 (1977).
- (34)R. Vaninbroux, G. Bortels, B. Denecke, “Alpha-Particle-Emission Probabilities in the Decay of ²³⁴U and Photon-Emission Probabilities in the Decays of ²³⁴U, ²³⁹Np and ²⁴³Am”, Int. J. Appl. Radiat. Isotop. 35, 1081 (1984).
- (35)S. A. Woods et al., “Standardisation and measurement of the decay scheme data of

- ^{243}Am and ^{239}Np ", Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., A369, 472 (1996).
- (36) Y. Chang, Z. Cheng, C. Yan, G. Shi, D. Qiao, "Determination of x-, and Gamma-Ray Emission Probabilities in the Decay of ^{239}Np ", Radiat. Eff., 94, 97 (1986).
- (37) M. A. Hamed, I. M. Lowles, T. D. Mac Mahon, "Decay scheme data for ^{154}Eu , ^{198}Au and ^{239}Np ", Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., 312, 308-316 (1992).
- (38) C. H. Westcott, W. H. Walker, T. K. Alexander, "Effective cross sections and cadmium ratios for the neutron spectra of thermal reactors," In: Proc. 2nd Geneva Conf. 16, 70 (1958).
- (39) M. A. Bak, A. S. Krivokhatskii, K. A. Petrzhak, et al., "Cross sections and resonance integrals for capture and fission in long-lived americium isotopes," Soviet Atomic Energy, 23, 1059 (1967).
- (40) R. M. Harbour, K. W. MacMurdo, F. J. McCrosson, "Thermal neutron capture cross sections and capture resonance integrals of americium-241," Nuclear Science and Engineering, 50, 1059 (1967).
- (41) V. D. Gavrilov, V. A. Goncharov, V. V. Ivanenko, et al., "Thermal cross sections and resonance integrals of fission and capture of ^{241}Am , ^{243}Am , ^{249}Bk , and ^{249}Cf ," Soviet Atomic Energy, 41, 808 (1976).
- (42) N. Shinohara, Y. Hatsukawa, K. Hata, et al., "Radiochemical Determination of Neutron Capture Cross sections of ^{241}Am ," Journal of Nuclear Science and Technology, 34, 613-621 (1997).
- (43) A. V. Karasiov, D. V. Efremov, L. R. Greenwood, "Neutron flux spectra and radiation damage parameters for the russian BOR-60 and SM-2 reactors". Oak Ridge National Lab., TN; 390 p; p.21-27; DOE/ER-0313/17 (1995).
- (44) B. Ya. Galkin, V. K. Isupov, A. B. Kolyadin, et al. "Prospective large-scale transmutation of fission iodine. Radiochemistry", 44, 174-177 (2002).
- (45) N. Otuka, E. Dupont, V. Semkova, et al., "Towards a More Complete and Accurate Experimental Nuclear Reaction Data Library (EXFOR): International Collaboration Between Nuclear Reaction Data Centres (NRDC)," Nucl. Data Sheets, 120, 272-276 (2014).
- (46) H. Pomerance, "Absorption cross sections for long-lived fission-product Zr93, Am241, and enriched stable platinum isotopes", ORNL-1879, 50, 55 (1955).
- (47) F. Marie, A. Letourneau, G. Fioni, et al., "Thermal neutron capture cross-section measurements of ^{243}Am and ^{242}Pu using the mini-INCA alpha- and gamma-spectroscopy station", Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res., A556, 547 (2006).
- (48) L. N. Jurova, A. A. Poljakov, V. P. Rukhlo, et al., "Integral radiation capture cross-sections in thermal and resonance energy region for Th-230, Pa-231, 232, 233, U-236, Np-237", Vop. At. Nauki i Tekhn., Ser. Yadernye Konstanty, Vol.1984, Issue.1/55, p.3 (1984).

- (49) K. Kobayashi, A. Yamanaka, I. Kimura, "Measurement of thermal neutron cross section and resonance integral of the $^{237}\text{Np}(n, \gamma) ^{238}\text{Np}$ reaction," *Journal of Nuclear Science and Technology*, 31, 1239 (1994).
- (50) T. Katoh, S. Nakamura, K. Furutaka, et al., "Measurement of Thermal Neutron Capture Cross Section and Resonance Integral of the $^{237}\text{Np}(n, \gamma) ^{238}\text{Np}$ Reaction," *Journal of Nuclear Science and Technology*, 40, 559-568 (2003).
- (51) C. Genreith, et al., "Measurement of thermal neutron capture cross sections of ^{237}Np and ^{242}Pu using prompt gamma neutron activation", *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 296, 699-703 (2013).
- (52) M. C. Moxon, T. C. Ware, C. J. Dean, "REFIT-2009, A Least-Square Fitting Program for Resonance Analysis of Neutron Transmission, Capture, Fission and Scattering, Data; Users' Guide for REFIT-2009-10", UKNSF, P243 (2010).
- (53) 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*, A736, 66-74 (2014).
- (54) 木野幸一, 「ANNRI パルス中性子ビームの時間特性」, private communication.
- (55) C. Massimi et al. (n_TOF Collaboration), *Phys. Rev.* C81, 044616 (2010).
- (56) M. Alix, "Device for the measurement of the neutron radiative capture cross section," CEA-N-1806 (1975).
- (57) R. N. Alves, J. Julien, J. Morgenstern, C. Samour, *Nucl. Phys.* A131, 450-480 (1969).
- (58) JEFF-3.2 evaluated data library - Neutron data,
https://www.oecd-nea.org/dbforms/data/eva/evatapes/jeff_32 (2014).
- (59) M. B. Chadwick, M. Herman, P. Obložinský, et al., "ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data," *Nucl. Data Sheets*, 112, 2887-3152 (2011).
- (60) F. Gunsing, A. Leprêtre, C. Mounier, C. Raepsaet, "Neutron resonance spectroscopy of ^{99}Tc from 3 eV to 150 keV," *Phys. Rev.* C61, 054608-1-13 (2000).
- (61) A. Gilbert, A. G. W. Cameron, "A composite nuclear-level density formula with shell corrections," *Can. J. Phys.*, 43, 1446 (1965).
- (62) A. Mengoni, Y. Nakajima, "Fermi-gas model parametrization of nuclear level density," *J. Nucl. Sci. Technol.*, 31, 151-162 (1994).
- (63) D. G. Foster Jr, D. W. Glasgow, "Neutron Total Cross Sections, 2.5-15 MeV. I. Experimental," *Physical Review*, C3, 576-603 (1971).
- (64) O. Iwamoto, "Program CCOM --Coupled channels optical model calculation with automatic parameter search--," JAERI-Data/Code 2003-020, Japan Atomic Energy Research Institute (2003).
- (65) S. Kunieda, S. Chiba, K. Shibata, A. Ichihara, E. Sh. Sukhovitskii, "Coupled-channels Optical Model Analyses of Nucleon-induced Reactions for Medium

- and Heavy Nuclei in the Energy Region from 1keV to 200 MeV,” J. Nucl. Sci. Technol., 44, 838-852 (2007).
- (66)M. Gyulassy, R. J. Howerton, S.T. Perkins, “Experimental Data, Indexes, and Techniques of Obtaining a Selected Set of Neutron Resonance Parameters,” UCRL-50400, Vol.11 (1972).
- (67)S. F. Mughabghab, “Atlas of Neutron Resonances - Resonance Parameters and Thermal Cross Sections Z=1-100,” Elsevier. (2006).
- (68)R. Capote, M. Herman, P. Oblozinsky, P. G. Young, et al., “RIPL - Reference Input Parameter Library for Calculation of Nuclear Reactions and Nuclear Data Evaluations,” Nucl. Data Sheets, 110, 3107-3214 (2009).
- (69)T. Matsumoto, M. Igashira, T. Ohsaki, “Measurements of keV-Neutron Capture Cross Sections and Capture Gamma-Ray Spectra of ⁹⁹Tc,” J. Nucl. Sci. Technol., 40, 61-68 (2003).
- (70)K. Kobayashi, S. Lee, S. Yamamoto, T. Kawano, “Neutron capture cross section measurement of ⁹⁹Tc by LINAC time-of-flight method and the resonance analysis,” Nucl. Sci. Eng., 146, 209 (2004).
- (71)R. C. Little, R. C. Block, “Neutron capture cross-section measurements of ⁹⁹Tc up to 80 keV,” Transactions of the American Nuclear Society, 26, 574 (1977).