

高速系革新炉の成立性に影響する核データの新規測定技術開発

(受託者)独立行政法人 日本原子力研究開発機構

(研究代表者)千葉 敏 東京工業大学 原子炉工学研究所

(研究開発期間)平成21年度～23年度

1. 研究開発の背景とねらい

高燃焼革新炉やPuから燃焼の始まる高速炉の運転に伴い、マイナーアクチノイド及び核分裂生成物が炉内に蓄積する。これらの多くは天然に存在しない不安定な原子核であるため中性子を用いる断面積等核特性の直接測定が困難で、発生する長寿命放射性同位体量の推定や、これらを高速体系で核変換する先進核燃料サイクルの設計に用いる核データに許容範囲を超える不確定性が存在することが指摘されている。

本事業では重イオン原子核物理の手法を発展させて、これら中性子での直接測定が困難または不可能な核種の高速領域での中性子反応断面積を決定する新規な手法の開発と検証を行う。具体的には、目的とする中性子反応と同じ複合核を重イオン核子移行反応により生成し、その崩壊分岐比から中性子反応断面積を導出する“代理反応”実験技術及び理論を開発する。さらにそれを用いて0.5MeV～5MeV領域での中性子誘起核分裂断面積と非核分裂性核種の中性子捕獲断面積の新規測定手法としての妥当性を検証、確立することを目的とする。

2. 研究開発成果

2-1 測定装置の開発

代理反応測定では多核子移行反応から放出される様々な粒子を弁別することで生成された複合核を同定し、それと同時に複合核の崩壊で生成する核分裂片、あるいはガンマ線を検出することで複合核の崩壊分岐比を求める。このため核反応で生成された荷電粒子を識別して複合核の励起エネルギーを決定するための高分解能シリコン ΔE - E 検出器、核分裂片を検出するための多芯線比例計数管および捕獲断面積を決定するコンプトン抑止型のガンマ線測定装置等一式を開発した。

(1) 核分裂断面積の測定

① 測定装置の開発

核分裂断面積を測定する真空散乱槽、多芯線比例計数管(MWPC)とデータ取得回路を開発した。真空散乱槽は直径800mmの球形形状とし、核分裂中性子を散乱槽外部で検出するため厚さ4mmのアルミニウム球面を持つ設計とした。核分裂片を検出する検出器として大立体角をカバーするため有感面積 $400 \times 200 \text{mm}^2$ の大面積型MWPCを4台開発した。本MWPCは、互いに向き合う2台をペアとして2つの核分裂片を同時計測することにより、運動学的に2つの核分裂片の質量数を決定できる設

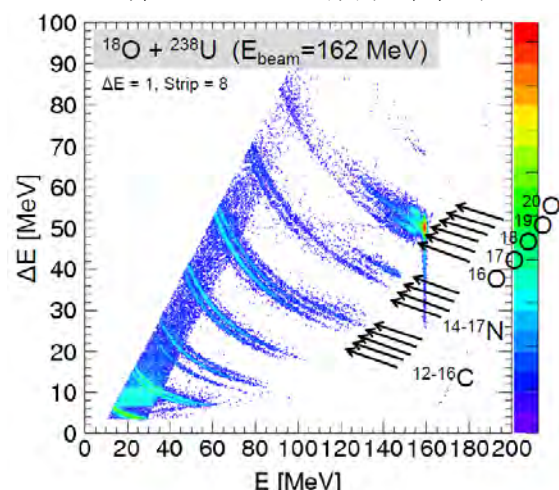


図1 シリコン検出器で測定された放出荷電粒子の ΔE - E スペクトル。

て2つの核分裂片を同時計測することにより、運動学的に2つの核分裂片の質量数を決定できる設

計とした。計数ガス制御系等一式も開発した。

②標的、シリコン検出器の開発

核子移行反応により放出された荷電粒子を効率良く測定するため一様性の高い標的の製作と高効率のシリコン ΔE -E検出器の開発を行った。 ΔE 検出器は厚さの一様性を $\pm 1.0\mu\text{m}$ 内に抑えエネルギー分解能として3~4% (半値幅)を得た。E検出器としては、厚さ $300\mu\text{m}$ 、内径 48mm から外径 96mm までを有感面積($7,150\text{mm}^2$)とするストリップ型検出器を採用した。本 ΔE -E検出器による同位体の分離の様子を図1に示す。酸素同位体、窒素同位体、炭素同位体が明確に分離されており、これらにより複合核として生成された $^{237-240}\text{U}$ 、 $^{239-242}\text{Np}$ 、 $^{240-244}\text{Pu}$ 等の励起エネルギーを識別し、その崩壊分岐比の測定から核分裂断面積の導出が可能となった。

③代理反応実験

$^{18}\text{O} + ^{238}\text{U}$ 、 $^{18}\text{O} + ^{235}\text{U}$ 反応実験を遂行し、荷電粒子と核分裂片の同時計測より核分裂断面積と核分裂特性の測定を行った。まず、中性子断面積が既知の断面積を用いて本手法の妥当性を検証するため、 $^{235}\text{U}(^{18}\text{O}, ^{16}\text{O})^{237}\text{U}$ 及び $^{238}\text{U}(^{18}\text{O}, ^{17}\text{O})^{239}\text{U}$ 反応チャンネルからそれぞれ $^{236}\text{U}(n,f)$ 、 $^{238}\text{U}(n,f)$ に相当する励起関数の比を求め、 $^{238}\text{U}(n,f)$ 反応断面積を標準として ^{236}U の中性子誘起核分裂断面積を導出した。

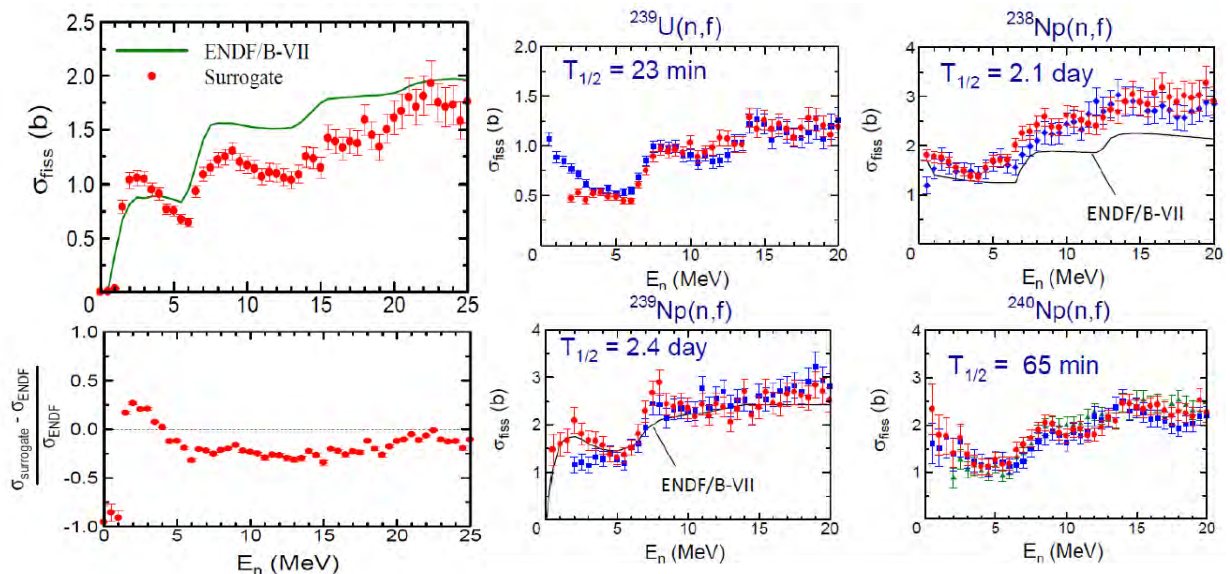


図2 代理反応により導出した ^{236}U の中
性子誘起断面積 (赤丸)。

図3 代理反応により導出した不安定核の中性子誘起
核分裂断面積

結果を図2に示す。赤丸が本手法による結果で、実線は中性子データより決定された評価済み核データの値である。本事業では中性子エネルギー 5MeV までのデータ取得を目的にしているが、その領域は断面積が1st chance fissionに相当する立ち上がりから最初のプラトーに至るエネルギーである。本手法の結果は立ち上がりにオーバーシュート、その後アンダーシュートとなっているが、立ち上がりのエネルギー (すなわち核分裂障壁) と平均値としてのプラトーの値を再現できている。オーバーシュート、アンダーシュートの原因は本手法のエネルギー分解能が中性子データのエネルギー変化

に完全には追従できていないためと考えられる。また5MeV以上では全体的に20%程度小さい値を与えている(図2下)。これは複合核の高励起状態を生成する核子移行反応に対して不要なブレークアップ反応が混在する事実と、代理反応と中性子反応で生成されるスピン分布の違いの影響であると考えられる。データが全く存在しない場合の理論予測値が100%程度の誤差を有していることを考えると、これらの問題点があっても本手法により理論計算に対して有意な制約を与えるデータ取得が可能となった。

図3には、本事業で決定した ^{239}U 、 $^{238-240}\text{Np}$ の中性子誘起核分裂断面積を示す。これらは寿命の短い原子核であり、このほぼ全ては世界初の結果である。異なる記号で示したのは異なる標準断面積を用いた場合であるが、立ち上がりのエネルギーを除いて良く一致しており、代理反応の結果が一意に収束することが示されている。実線はENDFに収納されている評価値であるが、本測定の結果はそれらがおおむね妥当な値であることを示している。また、ここに示したのは本実験で得られた結果の一部であり、実際にはより多くのデータが取得されている。このように代理反応が多くの核種の中性子断面積を同時に、効率的に決定できるメリットが示された。

(2) 中性子捕獲反応断面積の測定

①測定装置の開発

代理反応で生成した複合核から放出されるガンマ線を中性子と精度良く分離し、かつ良好なエネルギー応答を確保して中性子捕獲断面積を導出するために、コンプトン抑止型のガンマ線測定装置(図4)の開発を行った。世界最大級の $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ シンチレータ側面に環状BG0シンチレータを設置し、反同時計数によりガンマ線スペクトル上にみられる連続成分を除去する設計とした。さらに、バックグラウンド低減のため環状BG0シンチレータの側面及び前面に鉛遮蔽を設置した。これらを東京工業大学原子炉工学研究所のペルトロン加速器施設に持ち込んで応答関数を決定した。

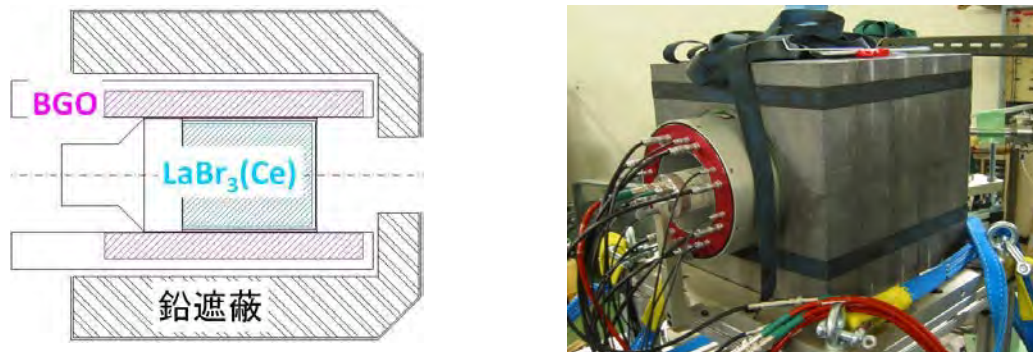


図4 コンプトン抑止型ガンマ線測定装置の構造(左)と実物写真(右)

②標的、シリコン検出器の開発

統計精度良くガンマ線スペクトルを観測するために厚み一様性の良い標的を製作できるRFスパッタ法を用いて ^{155}Gd 、 ^{157}Gd 標的を製作した。また、代理反応で生成された荷電粒子を識別するため、高分解能の $\Delta E-E$ シリコン検出器の開発を行った。市販の $525\mu\text{m}$ のシリコンウェハを調厚して $65\mu\text{m}$ 厚としたものを材料として表面障壁型シリコン検出器を製作し、粒子識別用の ΔE 検出器とした。 ΔE 検出器の粒子識別能力はシリコンウェハの厚み一様性で決まるため、シリコンウェハ厚み計を用いて材料となるシリコンウェハの厚み分布を測定し、厚み変化の少ない部分を加工す

ることで高分解能の検出器を製作した。

③代理反応実験

開発した装置を用いて $^{155}\text{Gd}(^{18}\text{O}, ^{16}\text{O})^{157}\text{Gd}$ 、 $^{157}\text{Gd}(^{18}\text{O}, ^{16}\text{O})^{159}\text{Gd}$ 反応により ^{156}Gd 、 ^{158}Gd の中性子捕獲断面積比を決定し、 $^{158}\text{Gd}(n, \gamma)$ 反応を標準として ^{156}Gd の中性子捕獲反応断面積の決定を行った。

図5にその結果を示す。これより、中性子エネルギー1.5MeVより上の領域では本手法が評価済みデータ(すなわち中性子データ)と良く一致しており、目的とする15%程度でのデータ取得が可能な事がわかった。MeV領域の捕獲断面積が代理反応によって測定されたのは世界初である。0.5MeVでの不一致は分岐比のスピンの依存性のため、代理反応と中性子反応により生成されるスピン分布の違いによるものであることが分かっている¹⁾。本手法により1.5MeV以上のデータ取得を行い、それを基に統計理論のパラメータを決定し、低エネルギーへは理論を用いて外挿する方法が有効であることが示された。

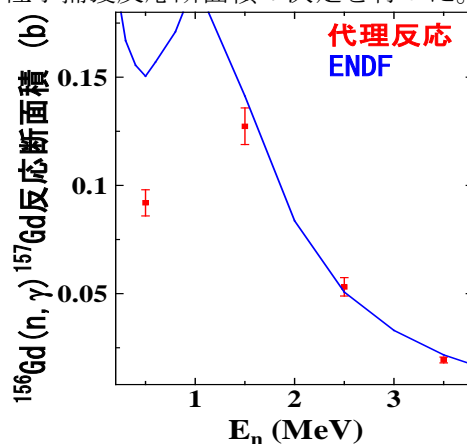


図5 代理反応により決定された ^{156}Gd の中性子捕獲反応断面積(四角)と評価済み核データ(実線)

2-2 理論計算

代理反応が成立する条件の探索¹⁾、代理反応の全過程を一つの枠組みで記述することができ、さらに代理反応における観測量と直接比較可能な物理量を計算出来る模型の開発²⁾、反応の初期部を精度良く記述する量子力学的2核子移行モデルの開発³⁾及びスピン分布と観測量の関係に関する理論的研究⁴⁾を行った。これらの理論的考察に基づいて実験計画の策定、代理反応により断面積を決定するエネルギー領域、データの解釈や補正量の決定を行った。

3. 今後の展望

重イオンを用いる代理反応測定装置と反応過程を記述する模型の開発は予定通り終了し、その潜在能力の高さを実証した。しかし現状では分解能の限界により核分裂断面積の立ち上がり部分においてオーバーシュートとアンダーシュートが生じた。また、(本事業の目的外ではあるが)入射中性子エネルギーが5MeV以上では中性子データに対して一様なズレが見られた。これらは代理反応手法のさらなる高度化と、反応過程に対するより深い考察が必要なことを示している。今後も代理反応の研究を進めこれらの問題点を解決する必要がある。

4. 参考文献

- 1) S. Chiba and O. Iwamoto, Phys. Rev. C **81**, 044604(2010).
- 2) Y. Aritomo, S. Chiba and K. Nishio, Phys. Rev. C **84**, 024602-1-10(2011)
- 3) K. Ogata, S. Hashimoto and S. Chiba, J. Nucl. Sci. Technol. **48**, 1337-1342(2011).
- 4) S. Chiba, O. Iwamoto and Y. Aritomo, Phys. Rev. C **84**, 054602-1-5(2011).