

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

(受託者) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

(研究代表者) 原田秀郎 原子力基礎工学研究センター

(再委託先) 国立大学法人東京工業大学、国立大学法人京都大学

(研究期間) 平成25年度～28年度

1. 研究の背景とねらい

核変換システムの定量的評価とシステムの設計を行うために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ーに整備された共分散に基づいた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影響が大きな核データの一つであることが報告^(2, 3)されている。

このような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 MA 核種の中性子捕獲断面積の測定研究が進められている。これらの研究により、測定の統計精度が飛躍的に改善され、絶対値を除く中性子捕獲断面積のエネルギー依存性については、精度が大幅に向上した。しかしながら、中性子捕獲断面積の絶対値については、依然大きな系統誤差が残っており、核データの精度向上を達成するためには、高精度の規格化及び信頼性の検証が重要である⁽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、設定した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実施してきた。

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、相互に比較検討することで信頼性を高めるとともに、高精度の規格化により核データの精度向上を目指している⁽⁸⁾。

平成25年10月から約3年間に実施した研究開発により得られた主要な成果について概説する。

2. これまでの研究成果

2.1 熱中性子捕獲断面積の高精度化

京大炉ライナックの軽水減速光中性子源の改良を行い、軽水中にホウ酸水を調整して添加することにより、可変中性子スペクトル場を生成可能とした。図1に、開発した可変中性子スペクトル場を生成する装置、及び放射化断面積測定用サンプル設置の様子を示す。従来の原子炉を用いた放射化断面積測定に比較し、中性子束の絶対値は小さいものの、サンプル位置での中性子スペクトル (中性子束のエネルギー依存性) を TOF 法により実測でき、中性子スペクトル形状に起因

する系統誤差を低減できる。また、中性子スペクトルの硬さをホウ酸の割合を調整することで、様々な硬さの中性子スペクトルに対する放射化断面積が1つの施設で測定できるようになった。このことは、データの検証を行う上で従来の原子炉照射に比較し有利な点である。統計誤差に関しては、これまで、Np-237等のサンプルを照射し、照射済み試料のγ線計測を行った結果、統計精度2%以下を達成できることを確認している。

2. 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

TOF 測定に用いるサンプルは、国外からの輸入によるものであり、製品明細書情報ではサンプル量の絶対値に10%以上の不確定さがある。これは、数%という高精度の核データニーズを満足するには十分ではない。TOF 測定用サンプルは、密封であることが求められるため、非破壊でサンプル量の絶対値を決定するとともに、断面積測定に影響を与える不純物核種情報が必要となる。

非破壊測定手法として、サンプルからの崩壊ガンマ線を計測する方法及びサンプルからの崩壊熱を直接計測するという2つの独立した手法を開発し、相互比較を行った。崩壊ガンマ線を計測する方法に関しては、最大の誤差要因となるガンマ線検出器のピーク検出率効率曲線を、モンテカルロシミュレーション技術を駆使した外挿手法を開発することにより、約0.5%という高精度で決定可能とした。さらに、本技術を適用することで、崩壊ガンマ線の放出率に関しても従来の評

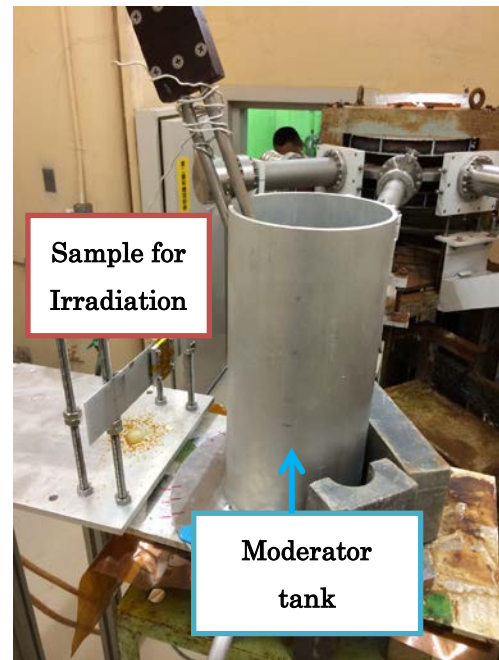


図1 可変中性子スペクトル場生成用ホウ酸入り軽水減速タンクと放射化断面積測定用サンプル配置

表1 TOF 用密封サンプル量の絶対値

Sample ID	明細書 [MBq]	γ線分光法 [MBq]	カロリメータ [MBq]
²⁴¹ Am #1	480	511±10	510.7±0.5
²⁴¹ Am #2	950	962±19	957.4±0.5
²⁴³ Am #1	60	66.7±1.3	67.3±0.3
²⁴³ Am #2	120	155±3	155.8±0.3
²⁴³ Am #3	240	286±6	281.8±0.3

価値を上回る精度で決定し、サンプル量決定に反映した⁽⁹⁾。

崩壊熱の直接計測では、マイクロカロリメータを用いたサンプル量の絶対値測定技術を開発し、Am-241については0.1%以下、Am-243については0.5%以下の精度で絶対量を決定した。Am-243の絶対量決定では、密封サンプルと同じ組成の少量サンプルを破壊分析用に準備し、質量分析及びアルファ線分析により、CmやAm同位体の不純物を定量した結果が、サンプル量の絶対値を導出する上で必要な補正量の評価に重要な役割を果たした。表1に決定した絶対量を示す。両測定手法により独立に得られたサンプル量（放射能値）は、よい一致が見られる。

2. 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

J-PARC に設置された中性子核反応測定装置(ANNRI)において、中性子全断面積を測定するための機能を新たに持たせるため、中性子検出器及びデータ収集系を開発した。Am-241 では、低エネルギーの共鳴に対し、中性子全断面積に占める中性子捕獲断面積の割合が 99%以上と大きいため、中性子全断面積の測定は、中性子捕獲断面積の絶対値決定にも直接反映させることが期待できる。中性子検出器の開発では、ガンマ線に起因するバックグラウンドを精度よく補正可能とするため、ガンマ線に対する感度は同じであるが、中性子に対する感度が大きく異なる 2 つの中性子検出器を組み合わせる工夫を行った。図 2 は、開発した測定システムを Am-241 の中性子透過実験に適用して得られた中性子透過スペクトルを示す。低エネルギー領域の中性子共鳴ピークに起因する凹みが明瞭に観測できている様子が示されている。

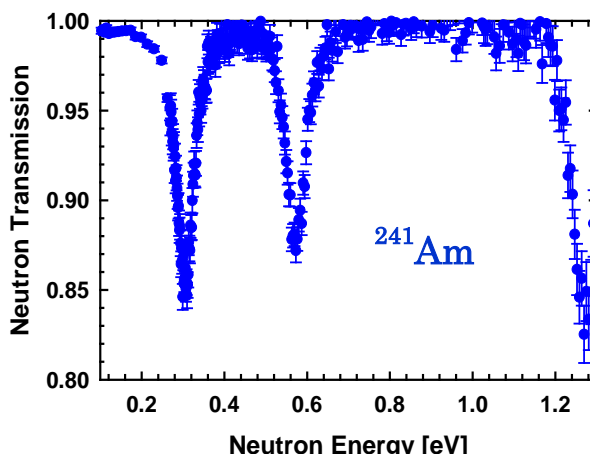


図 2 Am-241 の中性子透過スペクトル

2. 4 測定エネルギー範囲の高速中性子領域への拡張

ANNRI に整備されている NaI スペクトロメータによる中性子捕獲断面積の測定範囲を、現在の約 100 keV から 300 keV 以上に拡張するため、データ収集系の改良及び遮蔽強化によるバックグラウンドの低減を進めた。これらの技術開発を Tc-99 の中性子捕獲断面積測定に適用した結果を図 3 に示す。測定エネルギー範囲が、約 100 keV から約 800 keV へと大幅に拡張された様子が示されている。

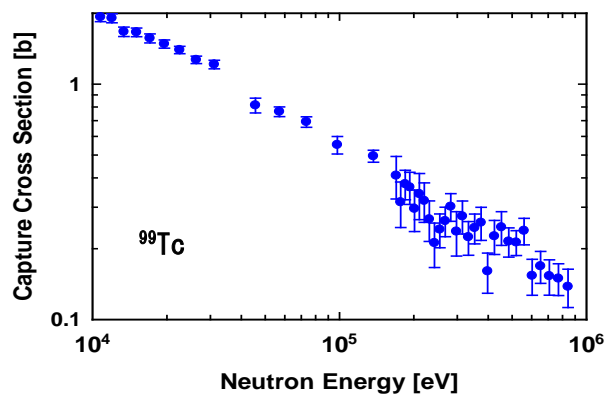


図 3 Tc-99 の中性子捕獲断面積

2. 5 測定と評価のキャッチボールによる高品質評価

核データ評価では、放射化法により測定された熱中性子捕獲断面積について、系統的な誤差要因となる Cd カットオフエネルギーの補正を系統的に行った結果、従来大きなばらつきが指摘されていた Am-241 の熱中性子捕獲断面積が 25%程度から 10%程

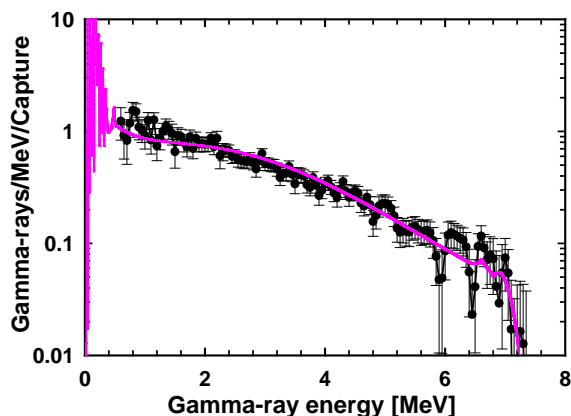


図 4 Tc-99 の中性子捕獲ガンマ線分布
実線が評価値、●が測定値

度まで改善されることを示した⁽¹⁰⁾。

keV 領域の核データ評価では、最新の中性子共鳴パラメータや中性子捕獲反応で放出されるガンマ線分布を再現するような総合的評価手法を統計モデル計算に適用し、Tc-99 と I-129 の中性子捕獲断面積及び中性子全断面積について評価値とその不確定さを導出した⁽¹¹⁾。開発した統計モデル計算手法により、中性子捕獲断面積だけでなく、中性子捕獲反応で放出されるガンマ線分布もよく再現されている様子を図4に示す。

3. 今後の研究

核データの精度向上を達成するために設定した研究課題が実施され、各項目で高精度データを取得するための要素技術開発が行われるとともに、開発した測定技術を適用した実験データが取得された。核データの最終結果に反映させるため、平成28年度下期には、取得した実験データの詳細解析を進めるとともに、これらの測定結果を反映させた核データの総合評価を実施する。

4. 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. Fraival 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-41 <https://www.oecd-neo.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. Terada et al., “Measurements of gamma-ray emission probabilities of 241 , ^{243}Am and ^{239}Np ,” J. Nucl. Sci. Technol. **53**, 1881 (2016)
- (10) K. Mizuyama et al., “Correction of the thermal neutron capture cross section of ^{241}Am obtained by the Westcott convention,” J. Nucl. Sci. Technol. **53**, 1881 (2016)
- (11) N. Iwamoto et al., “Evaluation of Neutron Capture Cross Sections and Covariances on ^{99}Tc and ^{129}I in the keV Energy Region,” EPJ Web of Conferences **111**, 03002 (2016)