

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

核変換システムの諸量評価と核設計に必要な中性子核データの精度が、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JENDL-4.0 に整備された共分散に基づいて核特性予測値の不確かさが定量化され、Am-241, Am-243 や Np-237 の中性子捕獲断面積が最も影響の大きい核データであることが報告^(2, 3)されている。

このような核データ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、大強度パルス中性子ビームと最先端放射線測定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、測定の統計精度は飛躍的に改善し、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、依然大きな系統的な不確かさが残っており、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MA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、次章に詳述する5つの研究項目に取り組んだ。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、その相乗効果を発揮することにより核データの精度向上を目指した⁽⁸⁾。

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

本研究項目では、放射化法により熱中性子捕獲断面積を高精度で決定し、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とともに、可変中性子スペクトル場を開発・適用して高い信頼性でのデータ検証を目指した。

放射化による測定では、京都大学原子炉実験所の研究炉及び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核種を照射し、放射化した試料からの崩壊 γ 線及び α 線を測定した。放射化量を γ 線分光法により定量するためには、崩壊 γ 線放出率データが必要であるが、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導出法を考案し、Am-244からの崩壊 γ 線放出率の不確かさを大幅に低減して、断面積導出に反映した。

可変中性子スペクトル場照射による検証試験では、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可変中性子スペクトル場を構築してNp-237等のサンプルを照射し、Np-237の熱中性子捕獲断面積の評価値の妥当性を約3%の精度で検証した。また、従来の検証試験に用いられ

てきた原子炉中性子スペクトル場に関しては中性子束のエネルギー依存性の詳細な導出が困難であったが、TOF 法を適用することによりこの困難を解決し⁽⁹⁾、信頼性の高いデータ検証のための中性子スペクトル場として利用できることを実証した。

2.2 TOF 測定に用いるサンプル量の高精度決定

中性子捕獲断面積の絶対値を決定するためには、測定サンプル中の MA 核種量の定量が不可欠である。本事業では、高精度の定量を目指して「崩壊ガンマ線放出率の高精度決定」、「カロリメータを適用した放射能絶対値測定」及び「MA サンプルの整備と同位体分析」の 3 課題を実施した。

崩壊ガンマ線放出率の高精度決定では、 γ 線検出器のピーク検出効率を高精度に決定するため、モンテカルロシミュレーション法を適用したピーク検出効率の外挿法を開発し、従来 2-3%あったピーク検出効率の決定精度を約 1%まで高めた。これにより MA 核種からの主要崩壊 γ 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%の精度で定量した⁽¹⁰⁾。

カロリメータを適用した放射能絶対値測定では、マイクロカロリメータによる熱量の測定値より、高精度に放射能の絶対値を導出するための各種解析技術を開発するとともに、質量分析法や α 線分光法を用いた破壊分析結果を適用することで不純物の影響を高精度に補正した。これにより、密封 MA 核種の放射能絶対値を、0.5%以下という高精度で決定するとともに、上述した γ 線分光法による測定結果とも誤差の範囲で一致することを確認した⁽¹¹⁾。

MA サンプルの整備と同位体分析では、厚さの異なる複数の密封 MA 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て、表面電離型質量分析装置 TIMS 及び α 線分析装置を用いた MA サンプル中の不純物定量分析⁽¹²⁾を行った。質量分析法と α 線分析法という独立した分析手法を適用し、1%以下の精度で相互の測定値の差異がないことを確認した。このようにして得られた破壊分析結果は、上記のマイクロカロリメータを適用した放射能絶対値の決定に反映させた。

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

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%程度と大きいものが存在することに着眼し、両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を目指した。本研究では、「J-PARC/MLF/ANNRI での測定」及び「京都大学原子炉実験所の電子線形加速器での測定」の 2 課題を実施し、両課題において、各核種に対して 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、矛盾の有無を確認することで信頼性の向上に努めた。

J-PARC/MLF/ANNRI での測定では、中性子全断面積測定のための測定系を新たに整備し⁽¹³⁾、Am-241、243 の中性子全断面積測定に適用するとともに、中性子捕獲断面積の測定も実施して、両測定結果を比較した。Am-241 については、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] という矛盾のないデータセットを得た。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 倍以上の高精度化を達成している。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、信頼性の高さを示す結果となった。Am-243 についても、第 3 共鳴付近での中性子捕獲断面積を、1.6% という極めて高い測定精度で導出した。京都大学原子炉実験所の電子線形加速器での測定では、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、

Np-237の中性子全断面積及び中性子捕獲断面積を測定した。これらの測定研究により、中性子全断面積測定と組み合わせた中性子捕獲断面積測定、並びに異なる厚さのサンプルを用いた測定により核データを導出する手法の有効性を示した。

2.4 測定エネルギー範囲の高速中性子領域への拡張

本研究項目では、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性が高いとされる約300 keV 領域までをカバーできるように拡張することを目指した。

ANNRI・NaI(Tl)検出器のデータ収集系の高度化を行うとともに、バックグラウンドを低減するために追加遮蔽体の設計・製作・設置を行った。標準金試料等を用いた特性試験を行い、高度化したデータ収集系による解析手法を確立した。本手法を代表的長寿命核分裂生成核種である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大幅に上回る約800keV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⁽¹⁴⁾。

2.5 測定と評価のキャッチボールによる高品質評価

本研究項目では、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、MA核種のNp-237, Am-241, 243及びFP核種のTc-99, I-129並びにGd-155, 157に対して、既存測定データの調査、及び測定データと評価データの比較検討を行った⁽¹⁵⁾。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⁽¹⁶⁾、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2.3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、開発した補正手法やガンマ線放出率の新たな評価値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。

3. 今後の展望

本事業で開発した核データの測定技術及び評価技術は汎用性が高く、原子力バックエンド分野や核セキュリティ分野での利用が期待される基盤核データの高精度化など原子力分野での展開が期待できる。また、中性子共鳴分光法⁽¹⁷⁾を適用した非破壊分析のための基盤データ構築や、宇宙の元素合成の謎を解明するための基礎データの整備など、原子核科学分野への貢献も広く期待できる。

本事業は、原子力機構と大学の連携研究により基礎技術を構築し⁽¹⁸⁾、限られた核種ではあるものの、核変換技術には重要なMA核種の中性子捕獲断面積データの精度を約2倍向上させることに成功したものである。今後は産業界とも連携して必要とされる基盤核データの品質向上に反映すべく努めるとともに、先輩格に当たる基礎物理定数の研究分野において、長期的な取り組みによりデータの超高精度化が達成されてきた歴史に学び、核データの精度向上に向けてたゆまざる努力を重ねていきたいと考えている。関係各位のご指導とご協力をいただければ幸いです。

4. 参考文献

- (1) Salvatores, M. 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) Iwamoto, H. et al., “Sensitivity and uncertainty analysis for an accelerator-driven system with JENDL-4.0,” J. Nucl. Sci. Technol., 50, 856 (2013).
- (3) Iwamoto, H. 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) Fraval, K. 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) Jandel, M. et al., “Neutron capture cross section of ^{241}Am ,” Phys. Rev. C 78, 034609 (2008).
- (6) Harada, H. et al., “Capture Cross-section Measurement of $^{241}\text{Am}(n, \gamma)$ at J-PARC/MLF/ANNRI,” Nuclear Data Sheets 119, 61 (2014).
- (7) Harada, H. et al., “Improving nuclear data accuracy of ^{241}Am and ^{237}Np capture cross-sections”, NEA/WPEC-41 <https://www.oecd-nea.org/science/wpec/sg41/> 20 May 2016.
- (8) Harada, H. et al., “Accuracy Improvement of Neutron Nuclear Data on Minor Actinides,” EPJ Web of Conferences 93, 06001 (2015).
- (9) Sano, T. et al., “Analysis of energy resolution in the KURRI-LINAC pulsed neutron facility,” EPJ Web of Conferences 146, 03031 (2017).
- (10) Terada, K. et al., “Measurements of gamma-ray emission probabilities of 241 , ^{243}Am and ^{239}Np ,” J. Nucl. Sci. Technol., 53, 1881 (2016).
- (11) Terada, K. et al., “Technical developments for accurate determination of amount of samples used for TOF measurements”, EPJ Web of Conferences 146, 03019 (2017).
- (12) Shibahara, Y. et al., “High precision analysis of isotopic composition for samples used for nuclear cross-section measurements”, EPJ Web of Conferences 146, 03028 (2017).
- (13) Nakao, T. et al., “Developments of a new data acquisition system at ANNRI”, EPJ Web of Conferences 146, 03021 (2017).
- (14) Katabuchi, T. et al., “Measurement of the neutron capture cross section of ^{99}Tc using ANNRI at J-PARC”, EPJ Web of Conferences 146, 11050 (2017).
- (15) Iwamoto, N. 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).
- (16) Mizuyama, K. 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).
- (17) 原田秀郎, “中性子共鳴分光法が切り拓く原子力科学技術の世界”, 第11回 原子力機構報告会 <https://www.jaea.go.jp/jaea-houkoku11/> 2016年11月8日.
- (18) Harada, H. et al., “Research and development for accuracy improvement of neutron nuclear data on minor actinides”, EPJ Web of Conferences 146, 11001 (2017).