

PNC-TJ--9601-97-001

PNC TJ9601 97-001

30

公開資料



JP9709018

MA 核種の高速中性子微分核分裂断面積の測定-II

(動力炉核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1997 年 3 月

東北大学 工学部 量子エネルギー工学科

PNC-TJ9601-97-001

日本原子力研究所蔵書



3300256900

MA核種の高速中性子微分核分裂断面積の測定-II*

平川 直弘**

要旨

新しい核燃料サイクルの一つとして考えられているアクチニドリサイクルにおいては、炉心燃料にマイナーアクチニド(MA: Np, Am, Cm等)を比較的多く含有することとなるため、これらMAの高速炉の炉心特性への影響を精度良く評価することが不可欠となる。そのためには、正確なMAの核反応断面積が必要である。そこで本研究ではMA核種の高速中性子微分核分裂断面積の測定を実施する。

本年度においては、昨年度の研究の結果をふまえ、下記の点について、実験的な改良を加えた。(1)密封型核分裂計数管の開発、(2)Li中性子発生ターゲットの高強度化、(3)飛行時間系測定回路の高時間分解能化、(4)高質量のネプチウム試料の導入と(5)高純度のウラン試料の導入である。これらの改良された測定装置並びに試料を用いてNp237に対する核分裂断面積測定を実施し、5-100keVの中性子エネルギー領域に対するNp237/U235の微分核分裂断面積比及びNp237の核分裂断面積を測定した。

一方、Npと同様に高速炉炉心に大きな影響を持つとされているAm試料に対して、Am241及びAm243の核分裂断面積の現状を調査するとともに、両試料を入手し、定量を実施した。

* 本報告書は、東北大学が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究の成果である。

契約番号: 080D0222

事業団担当部課室及び担当者: 大洗工学センター基盤技術開発部炉心技術開発室 若林利男

** 東北大学工学部量子エネルギー工学科(旧原子核工学科)

COMMERCIAL PROPRIETARY
PNC TJ9601 97-001
MARCH 1997

Measurement of Fast Neutron Induced Fission Cross Section of Minor-Actinide*

Naohiro Hirakawa**

Abstract

In fuel cycles with recycled actinide, core characteristics are largely influenced by minor actinide (MA: Np, Am, Cm). Accurate nuclear data of MA such as fission cross section are required to estimate the effect of MA with high accuracy. In this study, fast neutron induced fission cross section of MA is measured using Dynamitron Accelerator in Tohoku University.

The experimental method and the samples, which were developed or introduced during the last year, were improved in this fiscal year: (1) Development of a sealed fission chamber, (2) Intensification of Li neutron target, (3) Improvement of time-resolution of Time-of-Flight (TOF) electronic circuit, (4) Introduction of Np237 samples with large sample mass and (5) Introduction of a U235 sample with high purity. Using these improved tools and samples, the fission cross section ratio of Np237 relative to U235 was measured between 5 to 100 keV, and the fission cross section of Np237 was deduced. On the other hand, samples of Am241 and Am243 were obtained from Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI) after investigating fission cross section of two americium isotopes (Am241 and Am243) which are important for core physics calculation of fast reactors.

* Work performed by Tohoku University

under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel development Corporation

PNC Liaison: Toshio Wakabayashi,

Core Physics Research Section, advanced Technology division

** Laboratory for nuclear Physics, Tohoku University

目 次

	<u>page</u>
1. 目的	1
2. 研究内容	1
3. 報告書内容	2
4. 平成 8 年度成果報告	3
4.1 実験手法の改良	3
4.1.1 密封型核分裂計数管の開発	
4.1.2 Li 中性子発生ターゲットの高強度化	
4.1.3 飛行時間系測定回路の高時間分解能化	
4.1.4 高質量のネプチニウム試料の導入	
4.1.5 高純度のウラン試料の導入	
4.2 Np237 の核分裂断面積の測定	10
4.2.1 測定原理	
4.2.2 実験	
4.2.3 実験結果	
4.2.4 データ処理	
4.2.5 結果	
4.3 Am241 及び Am243 に関する調査と試料の導入	20
4.3.1 Am241 及び Am243 断面積ライブラリの現状調査	
4.3.2 Am241 及び Am243 試料の導入	
5. まとめ	22

1. 目的

将来の原子力エネルギーの利用を経済的に、かつ安全に行うためには、燃料及び原子炉等を総合的に勘案する新しい核燃料サイクルの構築が必要とされている。そこで、新しい核燃料サイクルの一つとして、環境への負荷低減性に優れているアクチニドリサイクルの検討を実施している。

アクチニドリサイクルでは、炉心燃料にマイナーアクチニド (MA: Np, Am, Cm 等) を比較的多く含有することとなるため、これら MA の高速炉の炉心特性への影響を精度良く評価することが不可欠となる。そのためには、正確な MA の核反応断面積が必要となるが、高速及びエピサーマルエネルギー領域の核データは、核データライブラリ間に違いがあるとともに、精度検証に必要な実験データも少なく、かつ実験データ間の相違も大きいのが現状である。

これらのことから、本研究では、東北大学工学部高速中性子実験室のダイナミトロン型加速器を用いて MA の核分裂断面積の測定ならびに核データとの比較を実施する。

2. 研究内容

ダイナミトロン型加速器を用いて高速中性子を発生させ、MA 核種 (Np237, Am241, Am243, Cm244) の微分核分裂を測定する。測定のエネルギー範囲は高速炉で主要な 10keV~1MeV 程度とし、検出器にはバックツープック (BTB) 核分裂検出器を用い、信号とバックグラウンドとの弁別にはタイムオブフライト (TOF) 法を採用し、高精度の測定を実施する。測定結果は、今までの測定結果および核データライブラリと比較し、その精度を評価する。

平成7年度には、これら測定系の整備を行うとともに、Np237 について予備測定を実施した。

平成8年度は、昨年度の研究の結果をふまえ、いくつかの点について実験的な改良を施した。これらの改良の後、改良された測定装置並びに試料を用いた Np237 に対する核分裂断面積測定を実施し、5-100keV の中性子エネルギー領域に対する Np237/U235 の微分核分裂断面積比を得た。一方、Np と同様に高速炉炉心に大きな影響を持つとされている Am 試料に対しては、Am241 及び Am243 の核分裂断面積の現状を調査するとともに、両試料の入手・定量を実施した。

3. 平成 8 年度報告書の内容

平成 8 年度においては下記の項目に対しての研究を実施したので、第 4 章で、以下の順で報告する。

4.1 実験手法の改良

- 4.1.1 密封型核分裂計数管の開発
- 4.1.2 Li 中性子発生ターゲットの高強度化
- 4.1.3 飛行時間系測定回路の高時間分解能化
- 4.1.4 高質量のネプチニウム試料の導入
- 4.1.5 高純度のウラン試料の導入

4.2 Np237 の核分裂断面積の測定

- 4.2.1 測定原理
- 4.2.2 実験
- 4.2.3 実験結果
- 4.2.4 データ処理
- 4.2.5 結果

4.3 Am241 及び Am243 に関する調査と試料の導入

- 4.3.1 Am241 及び Am243 断面積ライブラリの現状調査
- 4.3.2 Am241 及び Am243 試料の導入

4. 平成 8 年度成果報告

4.1 実験手法の改良

4.1.1 密封型核分裂計数管の開発

当研究室では、従来よりガスフロー型平行平板電離箱タイプの核分裂計数管を用いてアクチニド核の核分裂断面積を測定してきた¹²。本研究において昨年度行った測定においても、同様にガスフロー型検出器を使用した。

このガスフロー型検出器の場合、常に検出ガスが置換されるため密封性があまり重要ではなく、検出器をきわめて薄型・小型にできる特長がある。しかし、ガスフロー型の場合、核分裂反応により生成されるガス状の放射性物質や電着固着された試料からのスパッタリング等により飛散する放射性のサンプルアクチニドの混入が原理的に避けられない。このため、多くの実験施設では、このガスフロー型検出器の利用が許可されておらず、アクチニド核の核分裂断面積の測定精度向上に必要な広いエネルギー範囲における実験・測定が実施できない欠点を生じている。さらに、本研究を行う東北大学工学部高速中性子実験室では、ガスフロー型核分裂計数管を用いた実験そのものは実施可能であるが、検出器より放出されるガスの管理等の問題は厳しい問題であり、これを排除できる検出器が実験遂行上好ましい。このため、本研究では、ガスフロー型に変わる密封可能型(平行平板)核分裂検出器を開発した。

作成に当たっては、

- a) 数日間程度、核分裂片の波高信号が安定していること及び
- b) ガスフロー型としても動作可能とすること

を基本仕様として、材料としては

- c) 強度並びに加工性を考慮してステンレス鋼(SUS304)と、
- d) 密封にはOリング

を用いることとした。

Fig. 4.1.1 に本研究で作成した核分裂計数管を示す。大きさは、外直径 72mm、高さ 39mm で、Oリングを収納するフランジ部の外直径 86mm である。作成された検出器の密封度はヘリウムリーク検出器で測定しており、リーク率 1×10^{-7} Torr/sec 以下の十分な密封性能を持つことを確認した。本研究では、この密封可能型検出器を用いて実験測定を実施している。

なお、この検出器は、今まで当研究室で使用してきたガスフロー型検出器の外径 44mm、高さ 16mm に比してかなり大きい。これは、密封用の O リングを収納するための大きなフランジ部が付されていることが大きな原因であるが、このように検出器が大きくなったことは散乱中性子量に大きく

影響する。実際に、本研究で実施した散乱中性子解析(詳細は、4.2 節)を見ると、この検出器による散乱中性子量は従来のものに比してかなり大きな値を示していた。これは、大きな構造材(SUS)中の主成分である Fe の散乱断面積が数十 KeV で大きな値を有していることが大きく寄与している。今後、散乱中性子量を少なくする構造(大きさ、材質)を検討する必要がある。ただし、本研究で採用している back-to-back 型測定法においては、測定対象核並びに参照核が同一位置に置かれた測定がなされ、その比として核分裂断面積が測定されることとなるため、散乱中性子量の大きさが直接結果に影響しないことに注意をする必要がある。実際に、本研究での散乱中性子に対する補正係数は最大で 2%程度と小さい値にとどまっている(第 4.2 節に述べる)。

4.1.2 Li 中性子発生ターゲットの高強度化

昨年度の研究では、LiF を銅セルに蒸着したターゲットを使用し、加速器より 3~4 μ A 程度を入射させ、中性子を発生させていた。このターゲット及びビーム電流で発生できる中性子量は、予備的検討から、本年度に計画した TOF 法による数十 keV 領域での Np237 核分裂反応の微分断面積測定には十分でないと予測された。

このため、本研究では、原子数密度の点で LiF に比して 3 倍ほど大きな値を持つ金属 Li を使用すること及びターゲットの冷却性能を向上させ少なくとも昨年より 2 倍以上のビーム量を入射可能とすることを検討する事により、中性子発生ターゲットの高強度化を試みた。

ターゲット冷却性能の向上

従来は、基本的に、数気圧程度まで加圧した空気をターゲット表面に噴射させる空冷ターゲットを用いていた。このターゲットの場合、過去の実績から 5 μ A 程度がビーム電流の上限とされ、それ以下のビーム量となるよう加速器を運転していた。本研究では、これを倍程度まで入射可能となるよう、水冷ターゲットを試作した。

ここで作成したターゲットは、**Fig. 4.1.2**に示す通り、銅製のターゲット部に銅製のパイプを 2 回転巻き付けた後、半田付けしたものである。このターゲットの冷却は、巻き付けたパイプ中に数気圧程度加圧した冷却水を通すことにより行う。また、ビームが入射する部分から冷却パイプまでの距離を極力短くするよう改良することにより、冷却性能を向上させるよう工夫を施している。

金属 Li の蒸着

LiF が空気中で安定なのに比べて、金属 Li は空気中ですぐに酸化する。このため、金属 Li ターゲットの製作時には、極力空気に触れない製作手段、すなわち

- a) 乾燥窒素中での Li の加工、
- b) 高真空真空ベルジャー中での蒸着そして
- c) 蒸着後のターゲットの速やかな取り付け

が必要となる。本研究では、上記の水冷ターゲットに対して、これらの手順を極力速やかに行うことにより、金属 Li をターゲットに蒸着した水冷ターゲットセルを製作した。

冷却性能並びに中性子発生量の確認

様々なビーム量の陽子ビームを入射させ、赤外線温度計によりターゲットセル外面温度を、Li6 ガラスシンチレータにより中性子発生量(次節で述べる測定回路により)を測定した。

Fig. 4.1.3 に入射ビーム量に対する中性子発生量並びにターゲットセル外面温度を示す。この図に示した中性子発生量は積算入射ビーム量あたりの Li6 グラスシンチレータモニターの計数値である。この図を見ると分かる通り、10 μ A 程度まで、ターゲット外表面温度が 10°C 程度で安定していることが分かる。10 μ A を越えるとターゲット外表面温度がわずかながら上昇しはじめ、12 μ A では 13°C を示した。また、この間、単位ビーム量あたりの中性子発生量はほぼ安定した値を示していた。

この結果から、ここで開発したターゲットにより、当初目標とした金属 Li を使用し、10 μ A 程度まで安定した中性子発生が可能であるターゲットが開発された。

4.3 飛行時間系測定回路の高時間分解能化

平行平板電離箱型の核分裂計数管の固有の時間分解能は、検出ガスの電子移動度並びに電極間の電界によって決まる。しかし、実際には、この検出器固有の時間分解能そのものではなく、数多くの悪化因子の影響により悪化した時間分解能となる。

ここでは、これら時間分解能に影響を及ぼす因子の内、下記の項目について検討を行い、高時間分解測定システム・回路を探った。

- a) 検出ガス

Ar-CO₂ ガス、CH₄ ガス

- b) 核分裂計数管への印可電圧

500V, 1000V, 1500V, 2000V

- c) 測定回路構成

・Pulse Height-Timing 信号の処理回路の分離 (Timing Filter Amp の仕様)

・回路内ケーブルの低容量化(特に、核分裂計数管と前置増幅器間)

これらの項目に対する実験的な検討に当たっては、薄膜 LiF ターゲットを用い、500keV 程度の中性子を発生させ、Li6 ガラスシンチレータにより中性子飛行時間(TOF)-波高 2 次元スペクトル及び時間分解能を測定した。

Fig. 4. 1. 4 及び **4. 1. 5** に 2 つの中性子飛行時間(TOF)-波高 2 次元スペクトルとそのスペクトルを 1 次元化した TOF スペクトルを示す。**Fig. 4. 1. 4** は、昨年度報告した回路による測定結果であり、**Fig. 4. 1. 5** は、今回の検討の結果得られた最良の時間分解能を持つ回路に基づく測定結果である。**Fig. 4. 1. 6** にこの測定に用いられた回路を示す。改良以前の回路に基づく時間分解能は、1 次元 TOF スペクトルのピーク部分の半値幅で約 27nsec であった。これに対し、改良後の回路による時間分解能は、同じく 1 次元スペクトルのピーク部分の半値幅で約 10nsec、全幅でも 15nsec と大幅に向上していることが分かる。

本研究で測定を行う予定の数十 keV 領域の測定に対して、ここで得られた 10nsec 程度の時間分解能は十分である。

4. 1. 4 高質量のネプチニウム試料の導入

昨年度報告した通り、本研究で使用するための Np237 試料を日本原子力研究所アイソトープ部開発研究課の協力のもと作成した³。今年度は、これらの試料の詳細な定量及び試料の一様性の測定を実施した。

精製

もとなる Np237 試料には、ウラン、アメリシウム、キュリウムおよび核分裂生成物の不純物が混入していると予想されるため、陰イオン交換法を用いて分離精製を行った。この陰イオン交換法は、溶液の pH の違いによる各元素の溶出速度・価数の違いに伴うイオン交換樹脂への吸着性の違いを利用する方法であり、FP (FP+Am, Cm)、Pu、Np、U を順次イオン交換分離を実施した。本研究においては、この手順を 2 度繰り返し行い、Np の純度を高めている。**Table 4. 1. 1** に各精製段階での原子数比を示す。最終的に得られた Np 溶液の純度は、各段階の α 線測定データをもとに考えると原子数割合にして不純物割合で 0. 1ppm 以下と評価でき、十分な純度の Np 溶液が得られていることが分かる。

Table 4.1.1 Atomic fraction of impurities relative to Np237 in Np solution

	Np237	Pu239+240	Pu238	Am241
Before purification	1.0	7.17E-3	5.95E-6	5.83E-7
After 1st purification	1.0	1.61E-5	2.47E-8	2.69E-9
After 2nd Purification	1.0	--	--	--

(*) 1.23E-3 : read as 1.23×10^{-3}

電着

精製されたNp溶液を電着装置にセットし、白金製の陽極を挿入して電着をおこなった。今回の試料バックングには36mm直径、0.3mm厚の白金板を使用し、25mm直径の部分にNpを電着した。今回作成したNp電着フォイルは4枚である。

定量

作成した試料の定量は、 α スペクトロメトリにより行った。今回作成した4枚の試料の定量結果を、**Table 4.1.2**に示す。この時の定量誤差は、**Table 4.1.3**に示すとおりである。

Table 4.1.2 Result of sample assay for four Np samples

Foil No.	Deposited mass (mg)	Error (%)
6	0.2757	1.35
8	1.083	1.34
9*	1.051	1.34
11	1.042	1.34

*used in the present measurement

Table 4.1.3 Errors in sample assay of Np sample

	Error (%)
Statistical	0.2
Extrapolation	0.001
Equation for Efficiency	1.0
Geometry for Efficiency	1.033

試料の一様性

定量用 α スペクトロメータを用い、試料上部に 5.5mm 直径のアパチャ径を持つ遮蔽銅板により遮蔽し、試料の一部分だけの試料量を定量する事により、試料の一様性の測定を実施した。**Table 4.1.4** に中心部と再外周にアパチャをセットしたときの結果を示す。

サンプル 8 では、10%ほど試料付着量に差が見られたものの、サンプル 9 及び 11 の中心と再外周の差は 4%程度であり、良い一様性が得られている。

Table 4.1.4 Measurement result of uniformity of Np samples

Foil No.	Center (cps) (A)	Most outer region (cps) (B)	Difference (%) $100*(B-A)/A$
8	0.65	0.59	10
9*	0.65	0.68	4
11	0.65	0.68	4

*used in the present measurement

4.5 高純度のウラン試料の導入

核分裂試料中に核分裂性の不純物が混入している場合、中性子照射により不純物核種も核分裂を起こし、測定対象核種のバックグランドとなる。従って、不純物の純度の小さい試料の方が望ま

しい。昨年度使用したウラン試料はU235純度が約92.7%であった。今年度は、より純度の高い試料の導入を図った。なお、このウラン試料は、ネプチニウムと全く同じ形状の試料(電着部 25mm 直径、パッキング 36mm 直径)である。以下、高純度ウラン試料の同位体組成測定結果及び定量結果を述べる。

同位体組成

このウラン試料の同位体組成の測定には、もっとも精度の高い測定が可能な質量分析器測定を実施した。この質量分析法は、半減期が長い U235 あるいは U238 のような試料に対しては特に有効である。測定結果の詳細は **Table 4.1.5** に示しているとおりであるが、U235 の純度で見ると 99.9% であった。

定量

定量は、ネプチニウムと同じく α スペクトロメータにより行った。U235 試料の場合には、目的核である U235 に比べて半減期が短い不純物核である U234 あるいは U236 のバックグランド α 成分を削除する手段が必要となる。ここでは、上記の通り、高精度の同位体組成が得られているため、この組成並びに半減期データ及び α 崩壊データを用いてバックグランド成分を差し引き、U235 量を導出した。

定量の結果を、同位体組成とともに **Table 4.1.5** に示す。純度は、99.912%、U235 試料量は 10.40×10^{17} atoms である。

Table 4.1.5 Result of sample assay of U sample

Isotope	Total Activity (Bq)	Isotopic Composition (%)	Relative Activity (%)	Number of Atoms ($\times 10^{17}$)	Areal Density (μ g/cm ²)
U-233	60.55 \pm 0.55	< 1ppm	<0.24	-	94.0
U-234		0.0298	45.84	0.003	
U-235		99.912	53.66	10.40 \pm 0.11	
U-236		0.0165	0.27	0.002	
U-238		0.0414	-	0.004	

4.2 Np237 の核分裂断面積の測定

第4.1節で述べた核分裂計数管、中性子ターゲット、測定回路、Np237 及び U235 試料を用い、Np237 の核分裂断面積測定を実施した。本章では実験方法、データ処理及び測定結果をまとめる。

4.2.1 測定原理

核分裂比測定

基本的に、BTB 検出器により、標準核種である U235 と目的核種である Np237 の核分裂率を同時に測定し、Np237/U235 の断面積比を測定する。測定に当たっては、試料の向きをターゲットに面した測定およびターゲットに背を向けた測定の2測定を実施し、相乗平均法により断面積比を導出する方法を採用する。

$$R = \sqrt{\frac{C_{237}^f \cdot C_{237}^b}{C_{235}^f \cdot C_{235}^b} \cdot \frac{N_{235}}{N_{237}}}$$

ここで

R	: Np237/U235 断面積比
C_{237}	: Np237 の核分裂計数
C_{235}	: U235 の核分裂計数
N_{237}	: Np237 の原子数
N_{235}	: U235 の原子数
添字 f	: 試料がターゲットに面した時
添字 b	: 試料がターゲットに背を向けた時

この方法によると、BTB 検出器内での両試料の若干の立体角の違い、試料バック材の減衰の有無等の補正要因を相殺できる。このため、この方法により測定された断面積比の精度は極めて高いものとなる。なお、核分裂計数の導出に当たっては、 α 成分に埋もれる核分裂低波高成分の補正を行う必要がある。さらに、ターゲットから発生した中性子が検出器ならびにターゲット構造材で散乱し、試料に入射する成分の補正を要する。

中性子エネルギー決定法

シンチレーション検出器などを用いる飛行時間測定においては、ターゲットから放出される γ

線の飛行時間を基準として、中性子飛行時間からエネルギーに換算する。しかし、核分裂計数管を用いる場合、ターゲット γ 線による核分裂が期待できず、またガス型検出器の場合 γ 線そのものが検出器に落とすエネルギーが小さいため、 γ 線によるイベントをつかめむことができない。このため、先のようなガンマ線基準法を用いることができない。

そこで、本研究では核分裂計数管については以下の手順を用いてエネルギーを決定した。

a) 最高中性子エネルギーの実測

Li6 ガラスシンチレータによる TOF 測定を実施し、発生中性子エネルギーの最大値(今回の場合は、最高中性子エネルギー)を決定する。

b) 最小飛行時間チャンネルの決定

核分裂計数管による TOF スペクトルから最小の飛行時間に対応するチャンネルを決定し、そのチャンネルを(a)で求めた最大中性子エネルギーに対応づける。これを中性子エネルギー換算の基準チャンネルとすることにより、TOF スペクトルを中性子エネルギースペクトルに換算する。

c) Fe 透過スペクトルによるエネルギー軸の確認

ターゲット-核分裂計数管の間に鉄材を置き、鉄透過スペクトル下での核分裂計数管 TOF スペクトルを測定する。鉄透過スペクトルでは、28.0eV に大きな共鳴があり、核分裂計数管 TOF スペクトル上にこれに対応する"dip"(谷)が観測される。a) 及び b) で決定したエネルギー換算法により、ここで観測された"dip"のエネルギーが 28.0eV と一致することを確認する。

4.2.2 実験

測定に使用した中性子ターゲット、核分裂計数管及び核分裂計数管にセットした試料は前節で述べたとおりである。

実験配置

これらを用いた核分裂断面積測定の実験配置を Fig. 4.2.1 に示す。核分裂検出器は Li ターゲットから 0 度方向 13.2cm の位置に配置している。また、核分裂計数管の後方 83cm(ターゲットから)の位置には、中性子発生量並びにエネルギーをモニターする Li6 ガラスシンチレータを配置した。また、発生中性子量をモニターするための BF₃ 検出器を核分裂検出器の 90 度方向 2.3m の位置にセットした。

測定回路

本測定に使用した測定回路を、**Fig. 4. 2. 2** 及び **4. 2. 3** に示した。**Fig. 4. 2. 2** は核分裂計数管系の測定回路を示しており、前節で設定した TOF-波高 2 次元測定回路であり、データ収集には二つの核分裂計数管それぞれについて Labo MPC-1600 型の MCA を使用して 2 次元リストデータの取得した。**Fig. 4. 2. 3** には Li6 ガラスシンチレータ及び BF3 検出器の回路を示している。

実験手順

測定は、以下の手順で行われた。

a) 発生中性子エネルギー分布測定 (Li-6 ガラスシンチレータ)

先に述べた通り、Li6 ガラスシンチレータを用い、所定のエネルギーの中性子が発生していることを確認する。また、この時ターゲット-検出器間に鉄ブロックを挿入して作成した Fe 透過スペクトルに対する測定も実施している。

b) ターゲット厚さの確認 (Li-6 ガラスシンチレータ)

上記測定では、ターゲットから発生している中性子の下限値を測定するのは難しい。そのため、本研究では、加速陽子エネルギーを 500keV ほど上昇させ、Li ターゲットの厚さを確認する。

c) 核分裂計数管スペクトルのエネルギー校正

核分裂計数管を所定の位置に置き、Fe 透過スペクトル下で TOF 測定を実施する。鉄透過スペクトルの 28.0eV の "dip" (谷) からエネルギー軸の確認を行う。

d) 核分裂計数管の TOF 波高レスポンス測定

TOF 波高の 2 次元測定を実施する場合、データ処理の際に単色中性子に対する TOF 波高応答関数(レスポンス)が必要となる。ここでは、薄型ターゲットを使用して単色中性子(今回は約 500keV±50keV)を発生させ、TOF 波高レスポンスを測定した。

e) 核分裂測定

以上の測定の後、核分裂断面積の測定を実施した。陽子電流は 6~10 μ A 程度で、総測定時間は 54 時間であった。この測定期間中、BF3 検出器及びターゲット部入射陽子電流計によりモニターした発生中性子量は安定しており、また、Li-6 ガラスシンチレータでモニターした中性子エネルギーも有意の変化は示さなかった。

4.2.3 実験結果

発生中性子スペクトル及びエネルギー

Fig. 4.2.4 に Li6 ガラスシンチレータにより測定した発生中性子 TOF スペクトルを示す。 γ ピークと中性子による連続したスペクトル成分が見られる。このスペクトルの中性子ピークの半波高チャンネルから最大中性子エネルギーを求めた。この結果、最大中性子エネルギーは 113.7keV であった。

なお、発生中性子の低エネルギー部分は、加速陽子パルスの繰り返し周期が 0.5MHz であるため、 γ ピークの前後に分布している。このため、発生中性子のエネルギー下限を導出することはできず、ターゲットの厚さは決定できないことが分かる。

Fe 透過中性子スペクトル

ターゲット-Li6 検出器間に鉄板(2cm)を挿入し、Fe 透過中性子スペクトルを作成し Li6 ガラスシンチレータにより測定した。**Fig. 4.2.5** にその TOF スペクトルを示す。 γ ピーク並びに中性子による連続スペクトルが見られるものの、中性子スペクトル部分には、Fe の共鳴に対応したいくつかの dip(谷)が見られる。この谷の内、もっとも大きな谷は 200 チャンネル付近のもので、エネルギーに換算すると 28.0keV となった。このエネルギーは Fe の共鳴エネルギーと一致しており、TOF-エネルギー換算処理が正しく行われていることが確認された。

ターゲット厚さの測定

陽子エネルギーを 500keV ほど上げて高エネルギー中性子を発生させ、TOF 測定を実施した。**Fig. 4.2.6** に測定結果を示す。 γ ピークの他、ピーク上の中性子成分が観測されている。このスペクトルから得られる中性子エネルギーは、

$$\text{最大エネルギー} = 496 \text{ keV}$$

$$\text{最小エネルギー} = 181 \text{ keV}$$

であった。これらのエネルギーの差が、ターゲットの厚さに相当することから、今回作成したターゲットの厚さは 315 keV であることが分かる。従って、最大中性子エネルギーが 113.7keV に対して、このターゲットは“thick target”となっている。

核分裂計数管の TOF スペクトル

Fig. 4.2.1 の通り核分裂計数管をターゲットから 13.2cm の位置に置き、また鉄板を両者の間に挿入して検出器を Fe 透過スペクトル下に置いて TOF-波高 2 次元データを測定した。**Fig. 4.2.7** に 2 次元データから TOF 軸に沿って整理して得られる 1 次元 TOF スペクトルを示す。この図の上部は全

体図であり、下部はピーク部分を拡大したときのスペクトルを示している。

先にも述べた通り、この TOF スペクトルには γ ピークは存在しない。このため、この TOF スペクトルのエネルギー変換には、先に決定された最大中性子エネルギー (113.7keV) をこの TOF スペクトルのピーク半波高チャンネルに対応付けることにより行う手法を採用した。

この手法の妥当性の確認は、同図の下図に見られるように Fe 透過スペクトルの "dip" (谷) に対応するチャンネル (下図) をエネルギー換算することにより行った。図中に見られる谷に対応するチャンネルは 548 チャンネルであり、このチャンネルのエネルギーは 27.9keV と換算された。このエネルギーが Fe の共鳴エネルギー位置 28.0keV とよく一致していることから、今回のエネルギー換算手法が妥当であることが確認された。

核分裂計数管のレスポンス測定

ターゲット厚さの測定を行った約 500keV の単色中性子を利用して、核分裂計数管のレスポンスを測定した。ここで用いた中性子エネルギー (500keV) とそのエネルギー幅 (± 50 keV) そしてターゲット-核分裂計数管距離 (13.2cm) を考えると、ターゲットから発生した中性子の飛行時間の幅は ± 0.8 nsec となり十分小さく、この中性子による検出器のレスポンスは検出器そのものの応答を与える。

測定されたスペクトルを、**Fig. 4. 2. 8** (U235) 及び **4. 2. 9** (Np237) に示す。両者とも高波高成分はほぼまっすぐであり、低波高部分に若干の "walk" による曲がった成分を持つが観測された。

なお、この図を TOF1 次元化して得られる TOF スペクトルを **Fig. 4. 2. 10** に示す。両核分裂計数管とも時間幅は、半値幅で 10nsec、全幅で 15nsec 程度であり、前節で得られた時間分解能が保持されている。

核分裂測定結果

以上の測定後、核分裂本測定を実施した。測定結果を、**Fig. 4. 2. 11** に U235 測定 2次元スペクトル、**Fig. 4. 2. 12** には Np237 測定 2次元スペクトルを示す。図中の各枠はデータ処理の際に設定したエネルギービンを示している。(詳細は後述)

54 時間の測定の結果得られた核分裂イベント数は、補正前の全計数で、Np237 に対して 2,504 カウント、U235 に対して 126,022 カウントであった。標準サンプルである U235 に対しては 12 万以上のカウント数が得られており、十分な精度が得られている。一方、Np237 は総カウント数で 2500 であり決して多くないものの、統計学上の標準偏差を考えると (2%)、妥当なカウント数は取得できたと考えられる。なお、このように総カウント数が比較的少なくなったのは、TOF 測定時のエネルギー分解能をあまり落とさないような飛行距離 13.2cm を設定したためである。

今回の測定では、以下に述べる各補正量自体がほぼ数%以下と小さいことから、今回の測定の精度はNp237のカウンタ数によってほぼ支配されていると言える。

4.2.4 データ処理

以上今回の測定で得られた2次元データを以下の順に処理し、Np237/U235核分裂断面積比及びNp237核分裂断面積を得た。本節では、これらの手続きについて述べる。

エネルギービンの決定

得られた2次元スペクトルの内、TOF軸をエネルギー軸に換算する必要がある。検出器の時間分解能とチャンネル幅が同程度で、十分なカウンタ数が得られている場合には、単純な各TOFチャンネルをエネルギーに変換すればよい。しかし、本研究の様に、時間分解能及び計数の点で十分でない場合、検出器の時間分解能を上回るチャンネル幅にTOFチャンネルをバンチする手法が取られるのがふつうである。これにより、検出器の時間分解能に見合ったエネルギー分割、また各エネルギービンの計数を極端に悪化させることを防ぐことができる。

本研究では、先に求めた単色エネルギー中性子に対するレスポンスを用いて、TOFビンを分割し、エネルギービンを決定した。**Fig. 4.2.11**及び**12**には、ここで設定した8個のTOFビンを示している。今回は、このTOFビン決定に当たっては、Np237の計数があまり多くないこと、結果として得られる核分裂断面積のエネルギー依存性がきわめて小さいことを考慮し、最終的な結果を得る段階では計数の少ないビン低エネルギー部分をさらにバンチして、113.7keV以下5.7keVまで5分割のエネルギービンを設定した。

ここで得られた各ビンに対して波高分布を求め、以下に記す補正を行うと、最終的な計数値を得ることができる。得られた各ビンの波高分布の例を**Fig. 4.2.13**に示す。上部がNp237、下部がU235である。

室内散乱中性子の補正

ターゲットから発生して検出器以外の方向に向かった中性子の内、ある部分は床あるいは実験室構造材で散乱して検出器に入射する。これらは、測定上バックグラウンドとなる。このバックグラウンド中性子に伴う事象は、正規の飛行時間とは大きく異なるTOFビンに入ることになるため、TOF測定を行っている今回の測定では、正規の中性子スペクトル以外の部分の事象がこの中性子による事象と考えられる。

本研究では、Fig. 4. 2. 11 及び 4. 2. 12 に示した("room back")部分を取り、室内散乱中性子の事象を評価した(Fig. 4. 2. 13 参照)。この補正の大きさは、エネルギービンによって変わり、フォラグラウンド事象の多いビンでは 0.8%、少ないビンでは 8%程度であった。なお、サンプルの種類(Np237 及び U235)によって補正量には差はなかった。

ゼロ波高への外挿

核分裂して放出される核分裂片の内、波高の小さい成分は試料からの α 事象や検出器材の (n, p), (n, α) 事象あるいは検出器の電気ノイズに埋もれてしまうため、この数を推定し補正する必要がある。この量を推定するために、 α 事象の影響を受けていないと考えられる部分の波高スペクトルを指数関数で最小自乗フィッティングを行い、これをパルサーにより調べたゼロ波高まで外挿を行って α 事象に埋もれている成分の量を推定した。

Fig. 4. 2. 14 には U235 に対するフィッティング対象領域の波高分布、フィットされた関数並びに外挿した関数を示した。今回の測定の場合、この補正量は U235 に対して 1.0%、Np237 に対しては 4.7%であった。Np237 に対して大きめの補正量となったのは、Np237 の α アクティビティーが U235 に比して格段に高いためである。なお、この補正量は、どのエネルギービンでも同じであった。

自己吸収の補正

核分裂試料中で生じた核分裂片の内、一部分は試料中ですべてのエネルギーを失い止まってしまう。この成分(自己吸収成分)は、計数する事ができないため、計算により評価し補正する必要がある。この自己吸収の補正のための評価式として、G. W. Carlson の計算式⁴を用いた。この評価式は、核分裂片の運動量、放出角度の異方性を考慮したもので、以下の式で与えられる。

$$I = \left(\frac{t}{2 \cdot R} + \eta \right) \cdot \left(1 - \frac{a_2}{2} \right)$$

- ここで、
- I : 自己吸収の割合
 - t : 核分裂試料の厚さ
 - R : 核分裂試料中での核分裂片の平均飛程
 - η : 核分裂片の平均速度に対する平均の相対速度
 - a_2 : 核分裂片の角度分布の 2 次のルジャンドル展開係数

これらの各因子の内、 a_2 は今回の実験の入射エネルギー(100keV 程度)の場合、ほぼ 0 となることから、今回の実験の自己吸収割合 I は上式の第 1 項で決まる。第 1 項の各因子に U235 及び Np237 試

料それぞれの値を代入すると、自己吸収割合 I は、 Np237 に対して 1.4%、 U235 に対して 0.75% となる。 Np237 試料は、 U235 試料に比べて厚いためこの自己吸収割合も大きくなっている。この補正係数は、中性子エネルギーによらず一定である。

サンプル内不純物核種の補正

試料中に測定対象核に比べて断面積の大きな核種が不純物として混入している場合、それらによる核分裂事象をバックグラウンドとして差し引く必要がある。今回の試料の同位体組成は、前節に示したとおり、 U235 、 Np237 とも 99.9%以上の純度であることから、サンプル内不純物核種の補正は無視できるほど小さい。

ターゲット-チェンバー散乱中性子の補正

ターゲット並びにチェンバーで散乱した中性子が核分裂サンプルに入り、起こす核分裂事象はバックグラウンドとして差し引く必要がある。しかし、これらによって散乱した中性子の多くは、エネルギーあるいは飛行距離が正規のものとはほぼ変わらないため、室内散乱中性子のように実験的に評価することはできない。このため、このターゲット及びチェンバー散乱中性子の補正として、何らかの計算手法により核分裂試料位置での中性子束を、散乱体がある場合とない場合の二つについて計算する必要がある。

本研究では、モンテカルロコード“MCNP4A”を用いて、核データライブラリには JENDL3.2 ポイントワイズライブラリを使用して計算を実施した。体型のモデル化時には、ターゲットセルと二つの核分裂計数管を考慮した。ここで用いた計算体系モデルを Fig. 4.2.15 に示した。

MCNP では、二つのサンプル位置での中性子エネルギー分布を計算するとともに、JENDL3.2 の U235 及び Np237 のエネルギー依存核分裂断面積を用いて U235 及び Np237 の核分裂率を計算した。そして、ターゲット及びチェンバーありなしの体系についての二つの MCNP 計算を行い、両者の比を持って補正係数とした。なお、MCNP の計算に必要となる中性子源スペクトルは、昨年度本研究で作成した $\text{Li}(p, n)$ 中性子源シミュレーションコード “NESTL” を用いて作成した。この計算により得られた角度依存の中性子源スペクトルを Fig. 4.2.16 に示す。

Fig. 4.2.17 には、MCNP 計算によって得られた二つのフォイル位置での中性子束スペクトルを示す。散乱体が存在する時のスペクトルが、散乱体なしのスペクトルより大きな値を示していることが確認できる。各エネルギービンに対する散乱中性子量は、散乱体なしの中性子量に対して 20-40% となった。この散乱中性子の大部分は、検出器が鉄製であり、また大きなフランジ部が存在することに起因していることから、今後検出器の改良(特に、材質、フランジ部)が重要な改良項目であることが分かる。なお、先にも述べたとおり、本研究で採用している back-to-back 型測定法においては、測定対象核並びに参照核が同一位置に置かれた測定がなされ、その比として核分裂断面積が測

定されることとなるため、散乱中性子量の大きさが直接結果に影響していない。実際に、この計算により求められた核分裂比に対する補正量は、Np と U、あるいはエネルギービンにより変わるものの、最大で1.9%以下であった。

4.2.5 結果

前節のデータ処理により得られた Np237/U235 核分裂断面積比を **Fig. 4.2.18** に、U235 断面積として JENDL3.2 を用いて導出した Np237 核分裂断面積を **Fig. 4.2.19** 及び **Table 4.2.1** に示す。

Table 4.2.1 Experimental result of Np237 fission cross section measurement

En (keV)	Present	Present %Error	JENDL3.2	ENDF/B-6 & JEF-2
8.4	19.9	23.7%	23.0	8.8
15.2	17.3	11.8%	23.0	9.4
25.0	16.1	9.9%	23.0	9.9
41.7	17.8	7.4%	23.7	11.3
83.5	16.0	7.1%	28.5	14.5

この表にあてられている誤差は、ターゲットチェンバー散乱中性子補正以外の補正に関する誤差に、統計誤差及びサンプル定量誤差が含まれている。実質的には、統計誤差(Np237 の)が全誤差を支配している。

結果を示した図中には、NEA data bank 内の EXFOR データファイルから取り出した実験データ及び JENDL3.2⁵、ENDF/B-IV⁶及び JEF-2⁷の核データライブラリ評価値をあわせて示している。過去実験データの中で、本研究で対象とした数 10keV 領域で Np の核分裂断面積を測定しているのは、**Table 4.2.2** に示す 4 例あるが、**Fig. 4.2.19** 及び **Table 4.2.1** から分かるとおり、今回の結果はもっとも新しい実験結果である Hoffman の値とよく一致していることが分かる。今回の実験結果は、Hoffman の結果を再現した結果となった。

一方、**Fig. 4.2.19** 及び **Table 4.2.1** に示す通り、今回の測定結果は 16-20 mbarn 程度であるのに

対し、ENDF/B-6 及び JEF-2(両者は全く同一)の値は 9.0 -15 mbarn (10 - 100keV)、JENDL3.2 は 23-30 mbarn (10 - 100 keV)である。この結果から、今回の測定結果は評価済み核データファイルの値と比べると、50keV 以下では、JENDL3.2 に近く、83.5keV の 1 点は ENDF/B-6 に近い結果となった。

Table 4.3.2 Reported study for Np237 fission cross section around several 10 keV

Author	reported year	Laboratory (country)	Remarks
Hoffman	1976	Los Alamos, (USA)	Nuclear explosion
Platterard	1973	Saclay (France)	60 MeV Linac
Perkin	1965	Awre Aldermaston, (UK)	Fe filtered beam
White	1965	Awre Aldermaston, (UK)	p-Li monoenergetic source, relative to U235

4.3 Am241 及び Am243 に関する調査と試料の導入

4.3.1 Am241 及び Am243 の断面積の現状調査

MA の核分裂断面積の測定データならびに核データライブラリの現状を調査した。核データライブラリとして調査対象としたものは、日本、米国および欧州で最新の核データライブラリである JENDL-3.2、ENDF/B-VI および JEF-2 である。

Fig. 4.3.1 及び **4.3.2** に、高速炉内で支配的な中性子エネルギー領域である $1\text{keV}\sim 20\text{MeV}$ の間の Am241 の核分裂断面積の測定データならびに核データライブラリの値を比較して示す。また、**Fig. 4.3.3** 及び **4.3.4** に、Am243 に対する同様の図を示す。

Am241 の断面積を見ると、断面積の測定値は最新のライブラリ間で良い一致を示しているが、測定値間には大きな差が見られる。Am243 の場合は、測定自体の数が少ないためかばらつきはあまり大きくないが、核データライブラリ間には大きな差が見られている。

このようなことから、両核に対する測定が Np237 同様に重要であることが分かる。

4.3.2 Am241 及び Am243 の試料の導入

Am241 及び Am243 試料を原研より導入し、予備的定量を実施した。試料の形状並びにバックング材などは、Np237 と全く同一である。定量の結果を、**Table 4.3.1** に示す。Np237 の試料量 1mg と比べると、Am241 は約 1/100、Am243 は 1/11 である。

これらの試料量は、放射性物質の管理上、本研究施設で利用可能な試料の放射能が 100 μ Ci 以下に制限されているため、この放射能制限から両試料とも試料量が決められている。現状では、これ以上の試料量の Am241, Am243 試料の導入は難しいと考えられる。両核に対する測定を、実施するためにはこの試料量で有効な測定手法の開発が必要である。

Table 4.3.1 Am241 and Am243 samples

Sample	Isotope	Number of atoms	Total mass (μ g)	α activity (μ Ci)
Am241	Am241	2.637E16 (100%)	10.6	36.2
Am243	Am241	3.90E13 (0.018%)	86.7	40.5
	Am243	2.16E17 (99.66%)		
	Cm244	7.05E14 (0.326%)		

5. まとめ

新しい核燃料サイクルの一つとして考えられているアクチニドリサイクルにおいては、炉心燃料にマイナーアクチニド(MA: Np, Am, Cm 等)を比較的多く含有することとなるため、これら MA の高速炉の炉心特性への影響を精度良く評価することが不可欠となる。そのためには、正確な MA の核反応断面積が必要である。そこで本研究では MA 核種の高速中性子微分核分裂断面積の測定を実施した。

本年度においては、昨年度の研究の結果をふまえ、下記の点について、実験的な改良を加えた。(1)密封型核分裂計数管の開発、(2)Li 中性子発生ターゲットの高強度化、(3)飛行時間系測定回路の高時間分解能化、(4)高質量のネプチウム試料の導入と(5)高純度のウラン試料の導入である。これらの改良された測定装置並びに試料を用いて Np237 に対する核分裂断面積測定を実施し、5-100keV の中性子エネルギー領域に対する Np237/U235 の微分核分裂断面積比及び Np237 の核分裂断面積を得た。

一方、Np と同様に高速炉炉心に大きな影響を持つとされている Am 試料に対して、Am241 及び Am243 の核分裂断面積の現状を調査するとともに、両試料を入手し、定量を実施した。

参考文献

- ¹ T.Iwasaki et al, J.Nucl.SciTecnol, 26,pp11-14(1989)
- ² M.Baba et al, J.Nucl.Sci.Tecnol., 27,pp895-898(1990)
- ³ N.Shinohara et al, JAERI-memo 02-418 (1991)
- ⁴ G.W.Carlson et al, Nucl.Sci.Eng.,80,pp282 (1982)
- ⁵ K.Schibata et al, JAERI-1319 (1990)
- ⁶ P.F.Rose et al, BNL-NCS-17541 (1993)
- ⁷ H.D.Lemmel et al, IAEA-NDS-120 (1993)

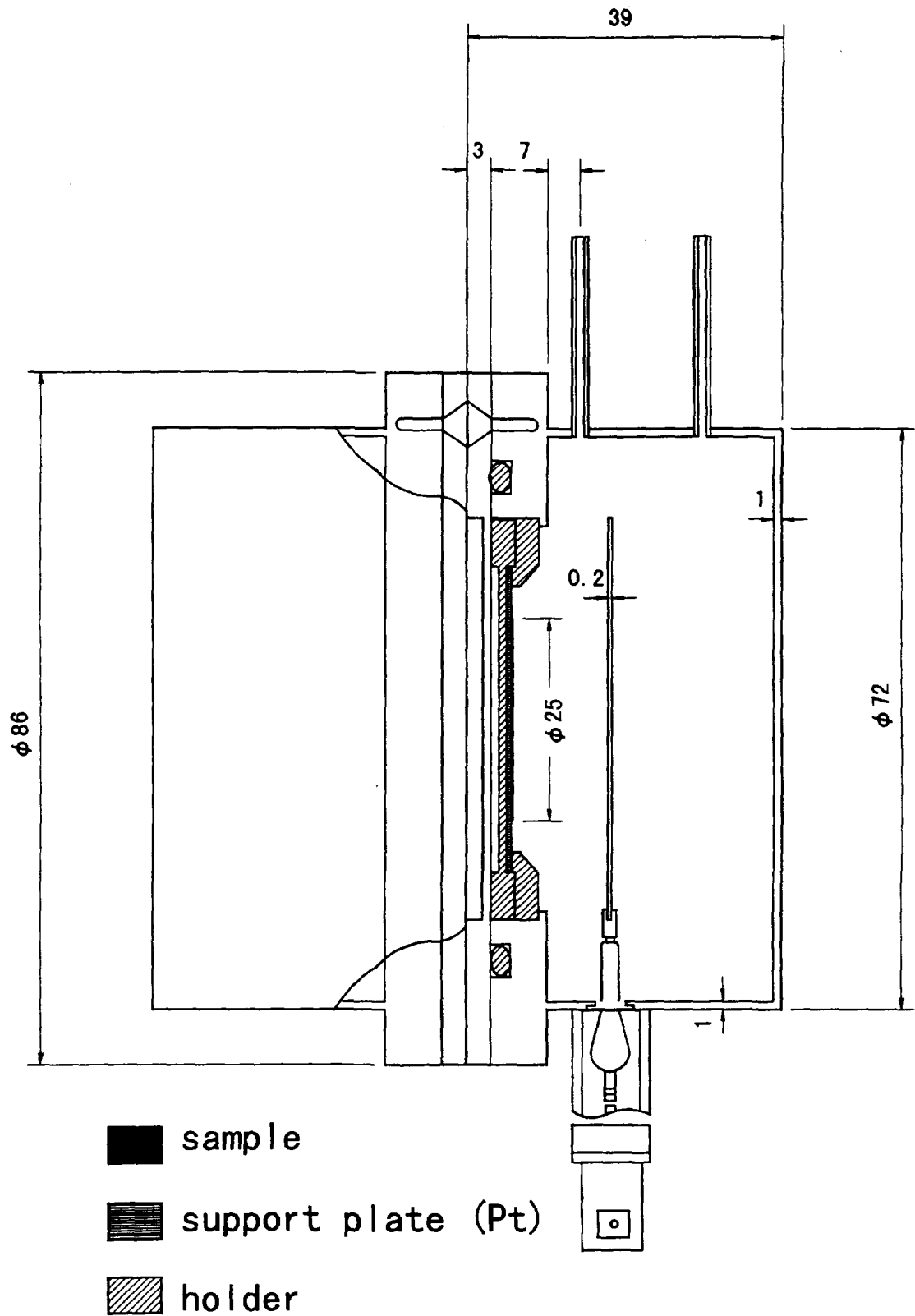


Fig.4.1.1 Sealed Fission Chamber

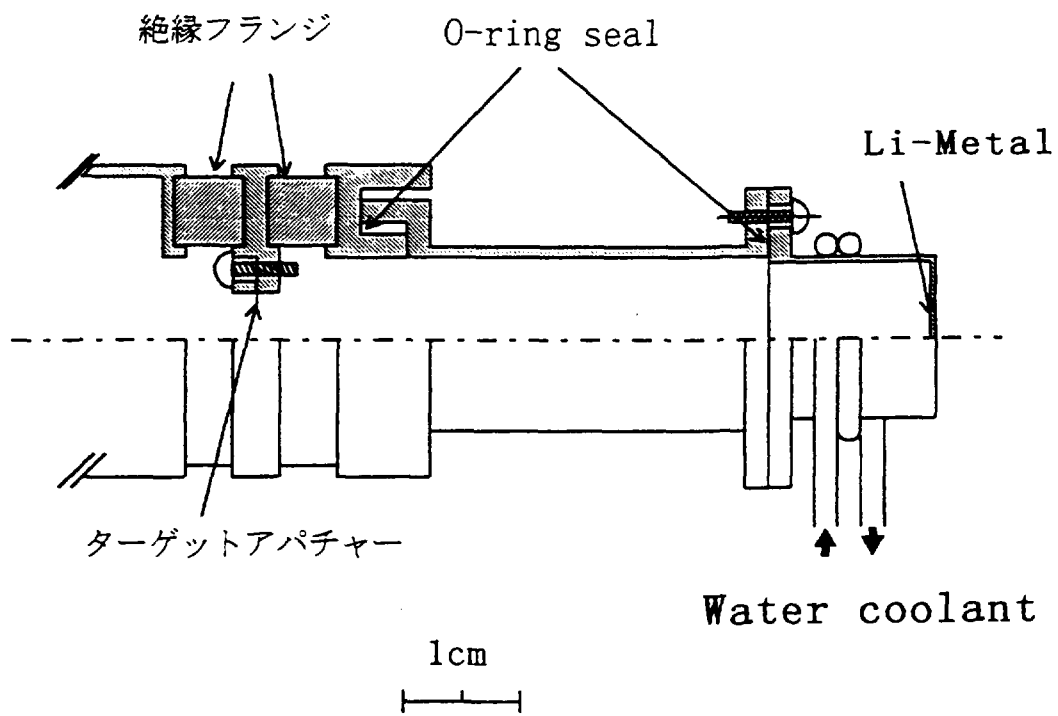


Fig.4.1.2 water cooled Li target

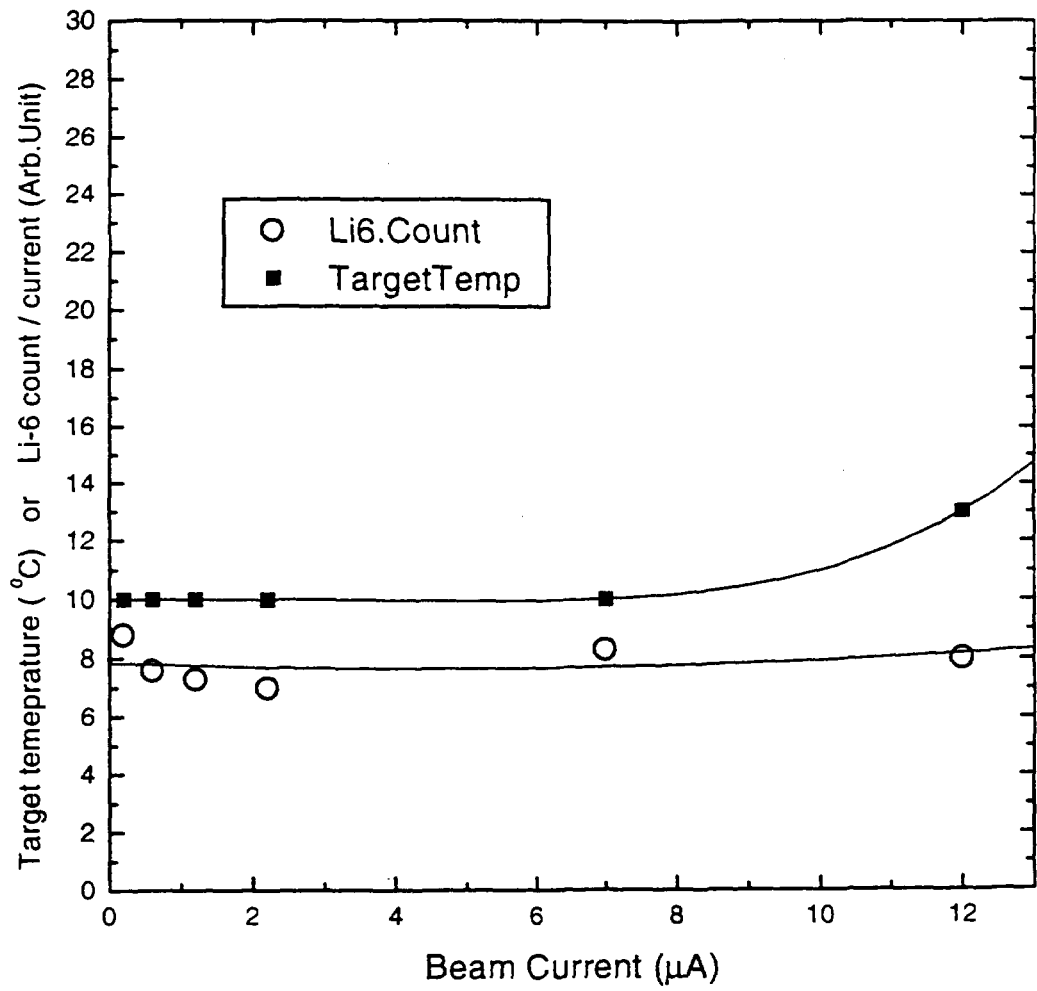


Fig.4.1.3 Target temperature and neutron production rate of water cooled Li target

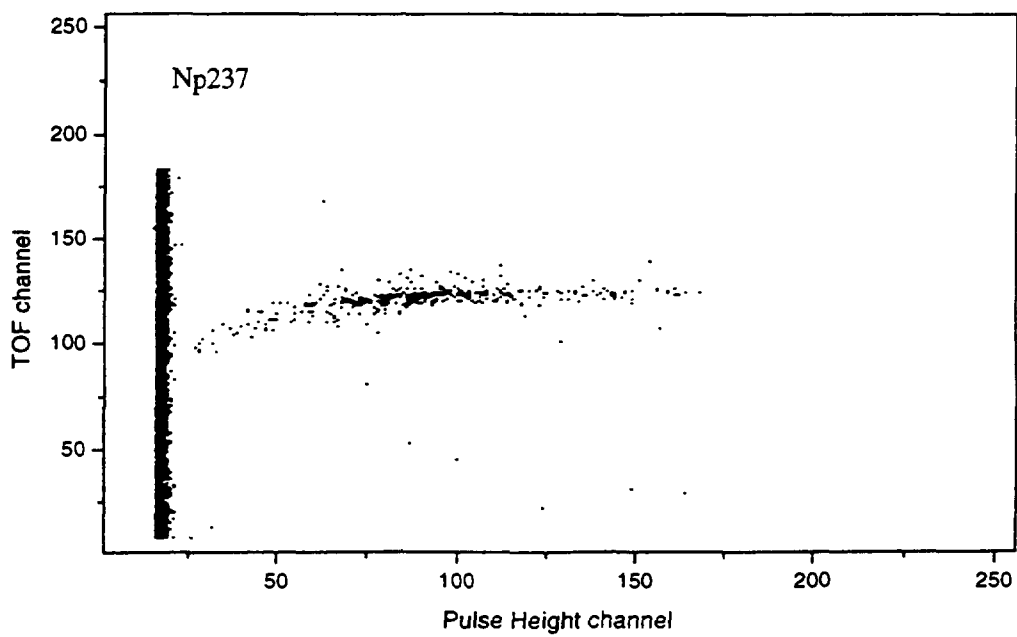
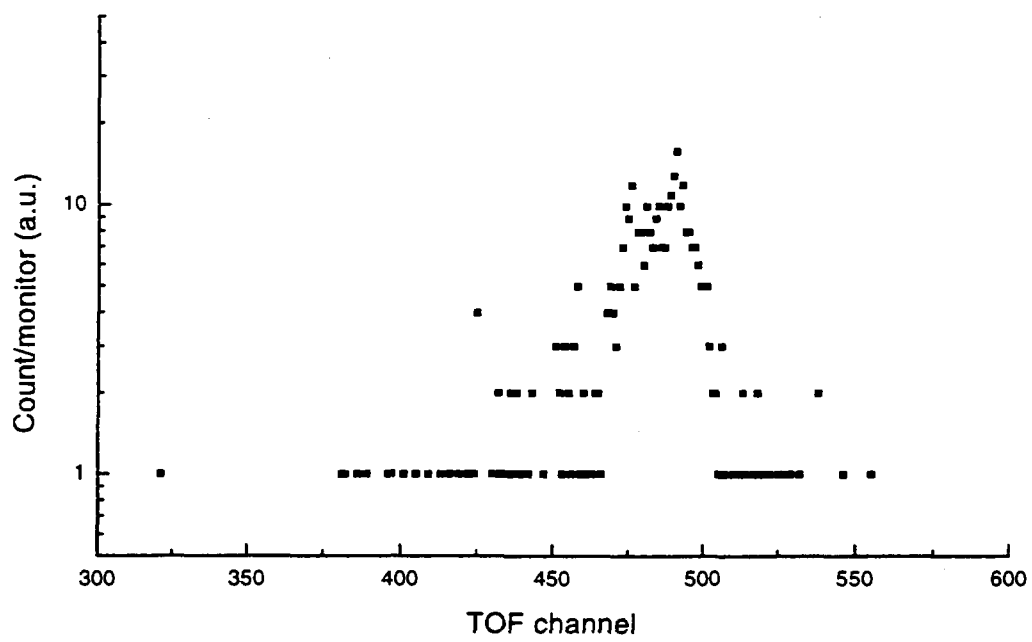


Fig.4.1.4 Time resolution by original TOF equipment

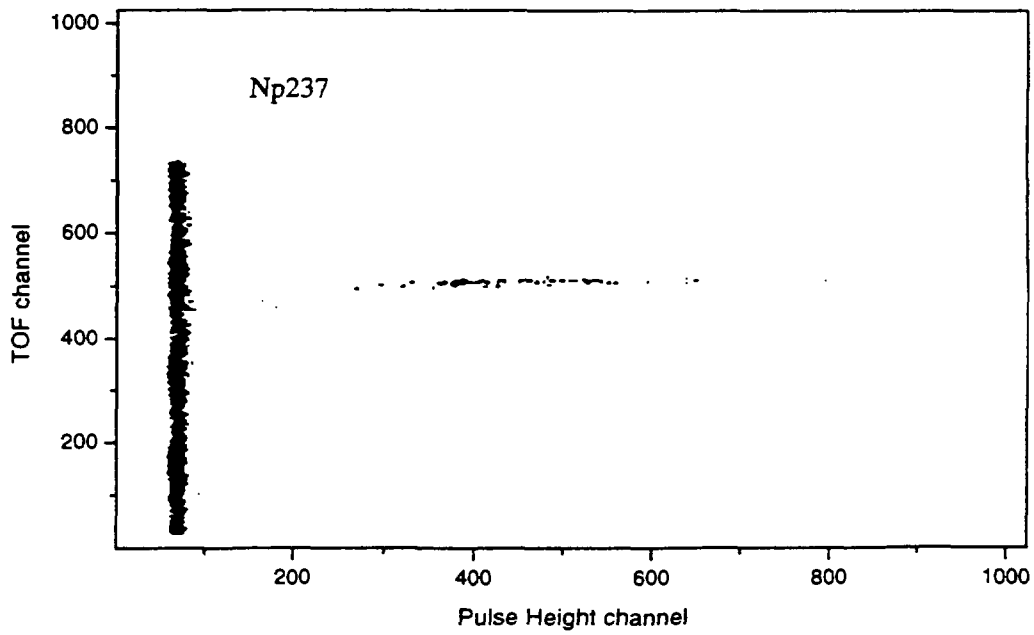
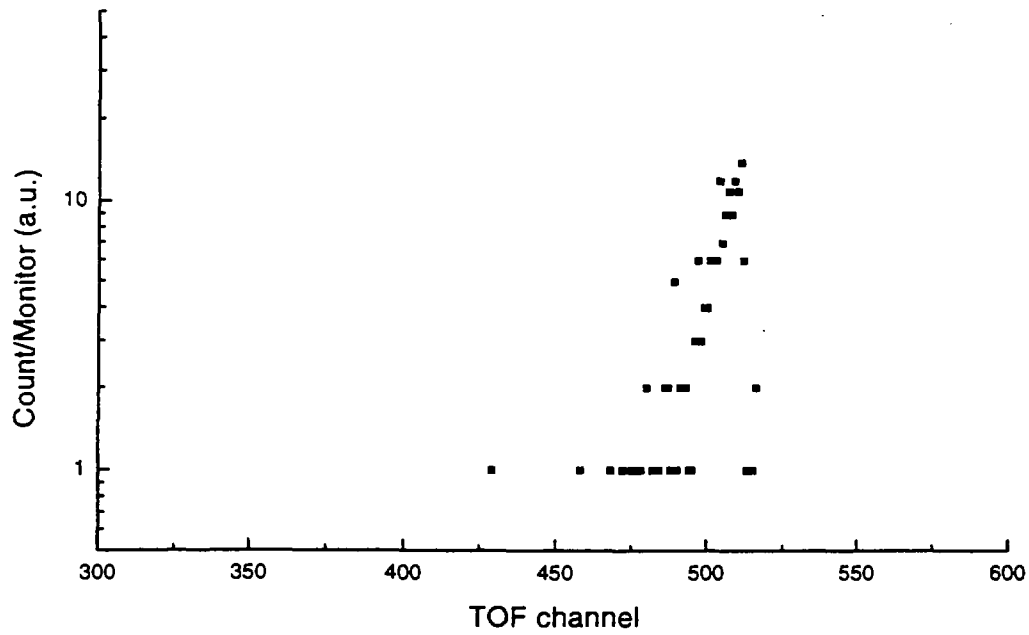


Fig.4.1.5 Time resolution by improved TOF circuit

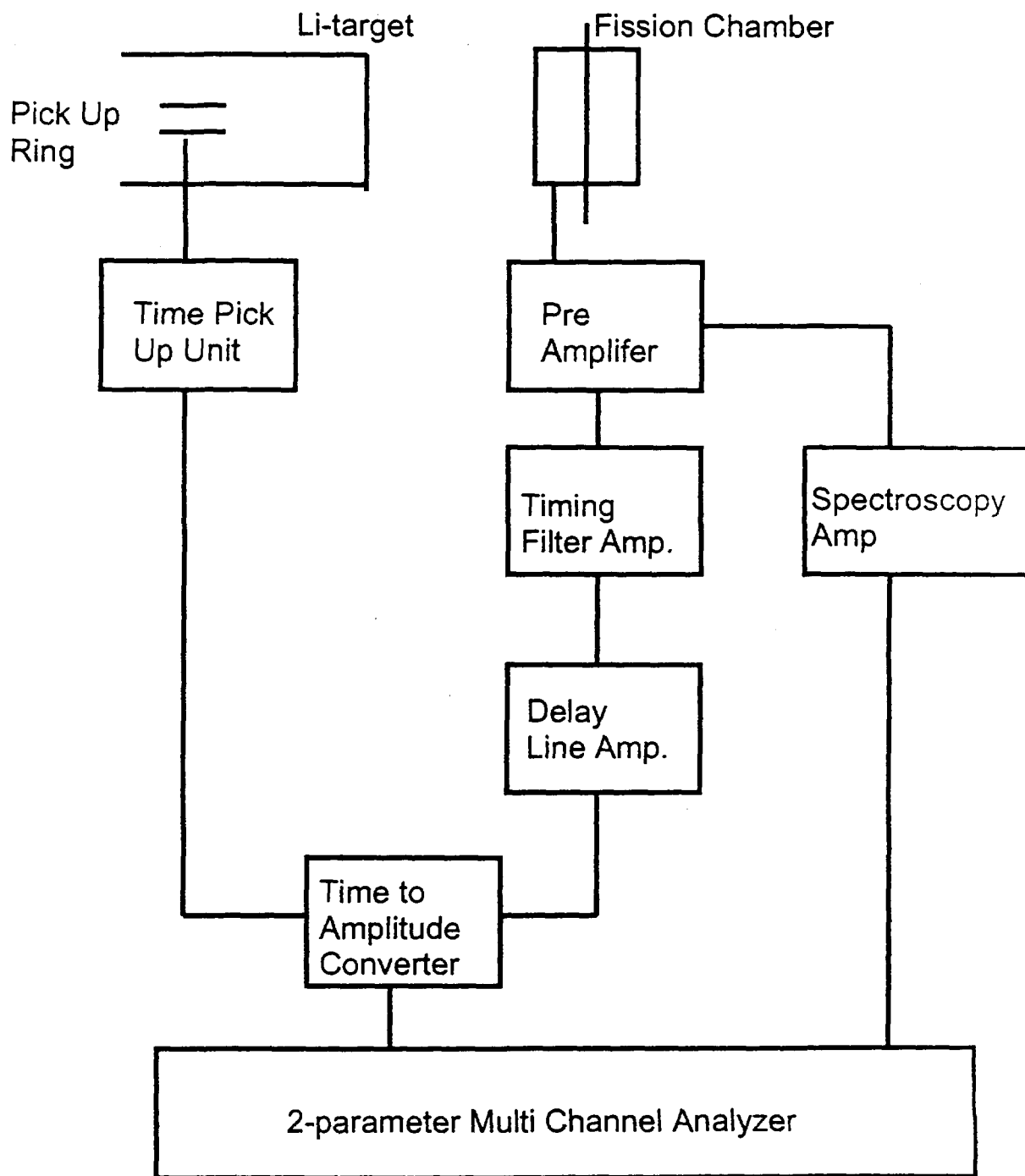


Fig.4.1.6 TOF circuit flow chart

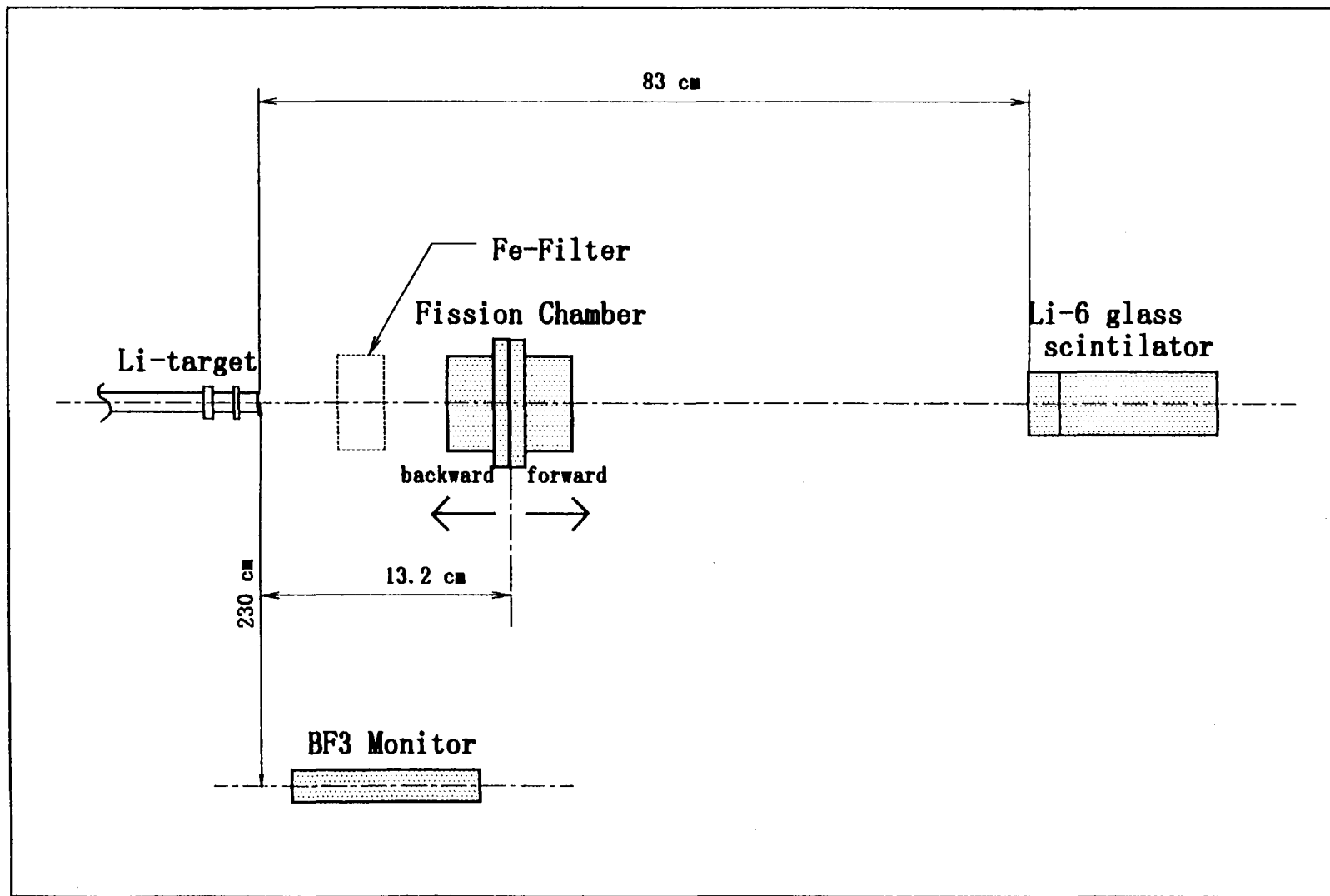


Fig.4.2.1 Experimental Setup

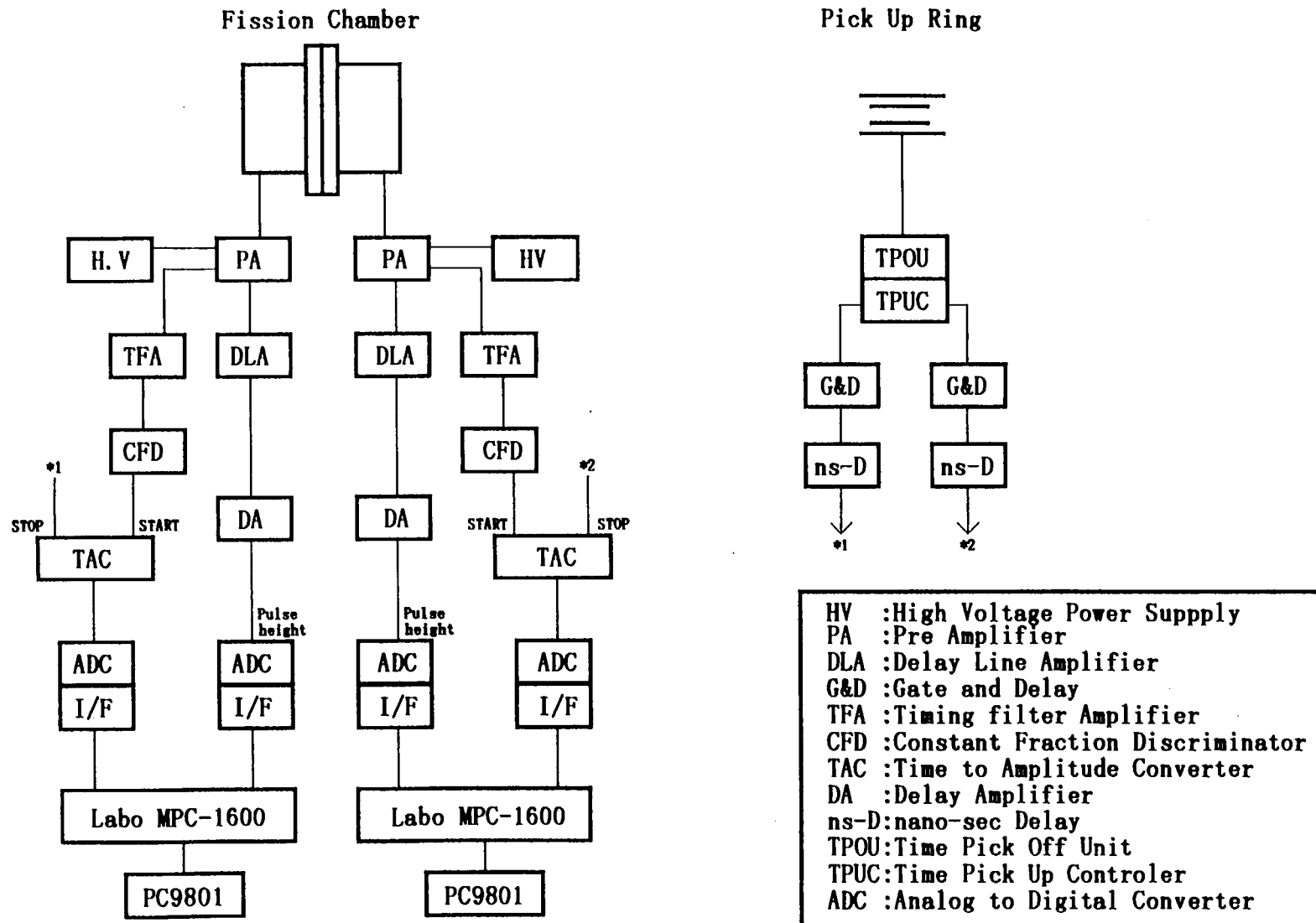


Fig.4.2.2 Electronics of Fission Chamber

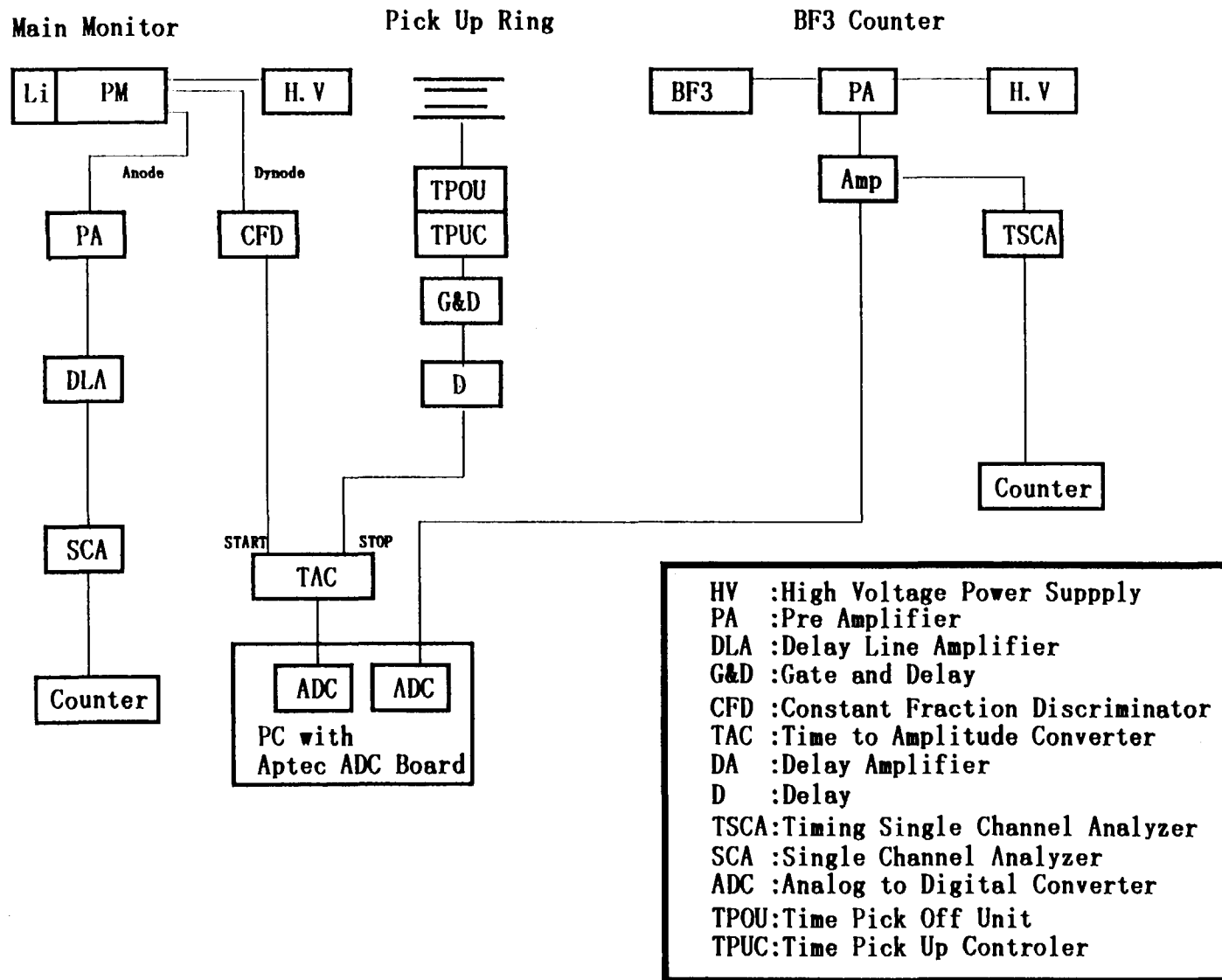


Fig.4.2.3 Electronics of Li-6 and BF₃ detectors

Measurement of Neutron Spectrum by Li-6 scintillator

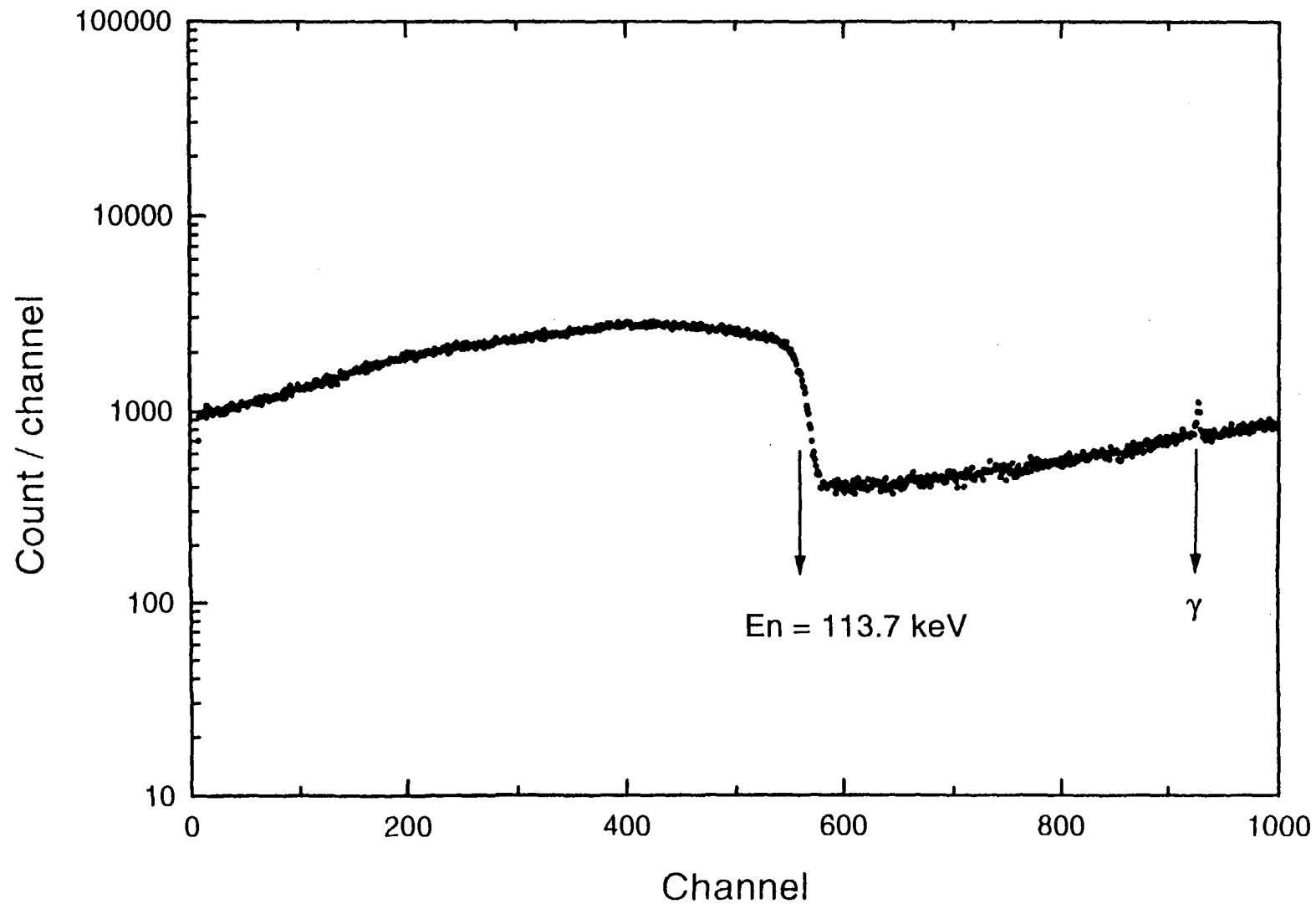


Fig.4.2.4 Neutron spectrum measured by Li-6 scintillator

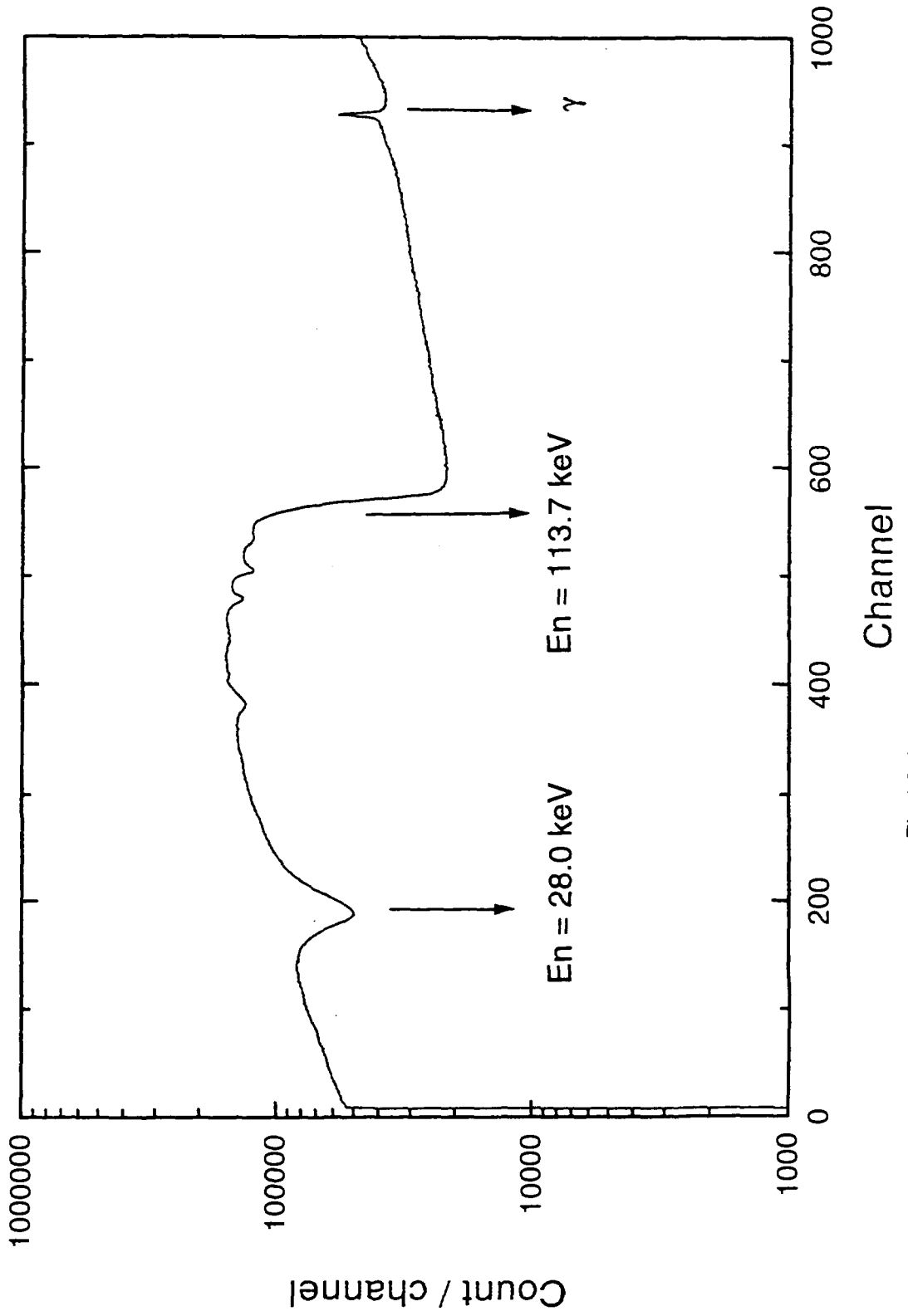


Fig.4.2.5 Fe filtered spectrum measured by Li-6 scintillator

Measurement of Target Thickness by high energy proton

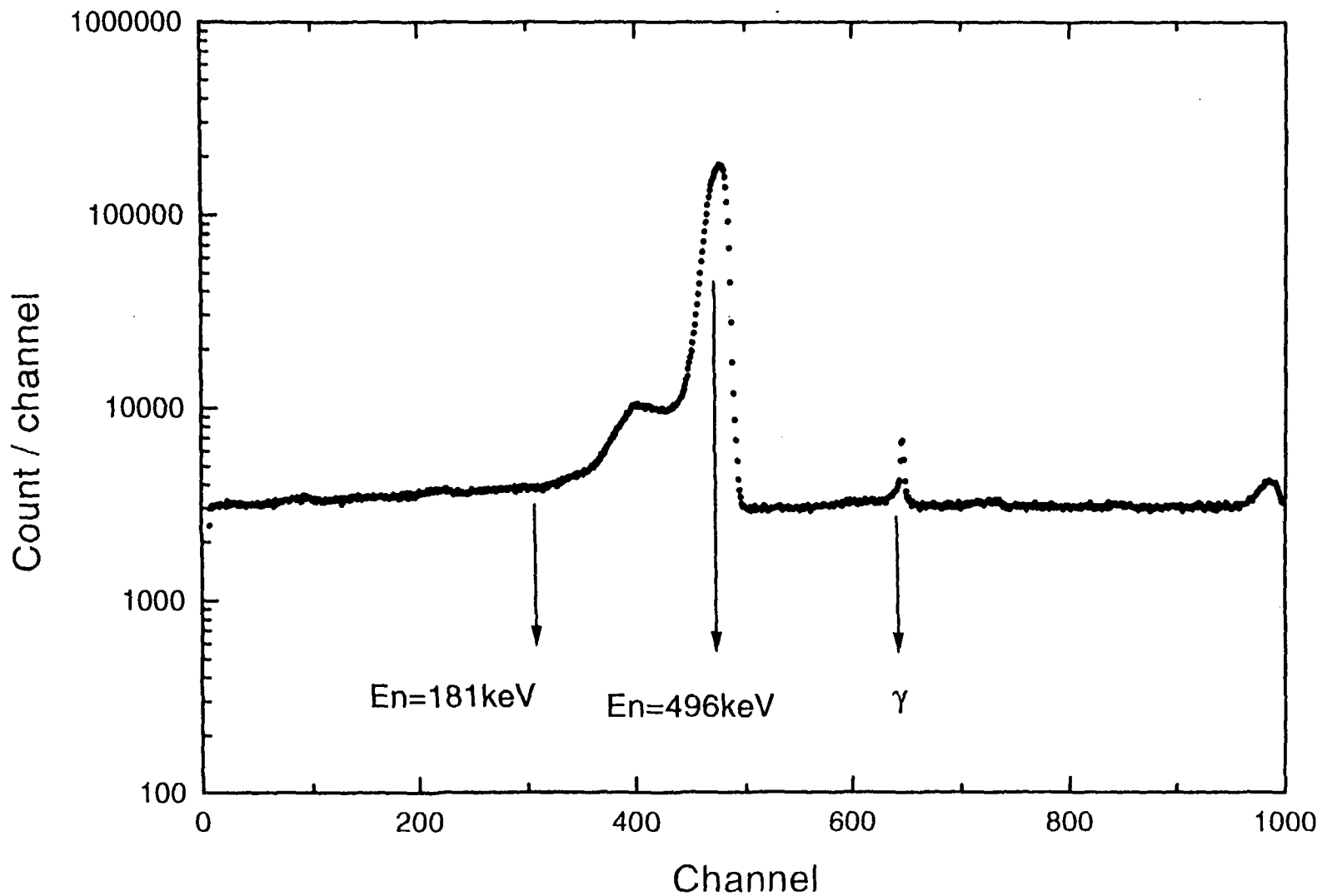


Fig.4.2.6 Measurement of Target thickness by using high energy proton

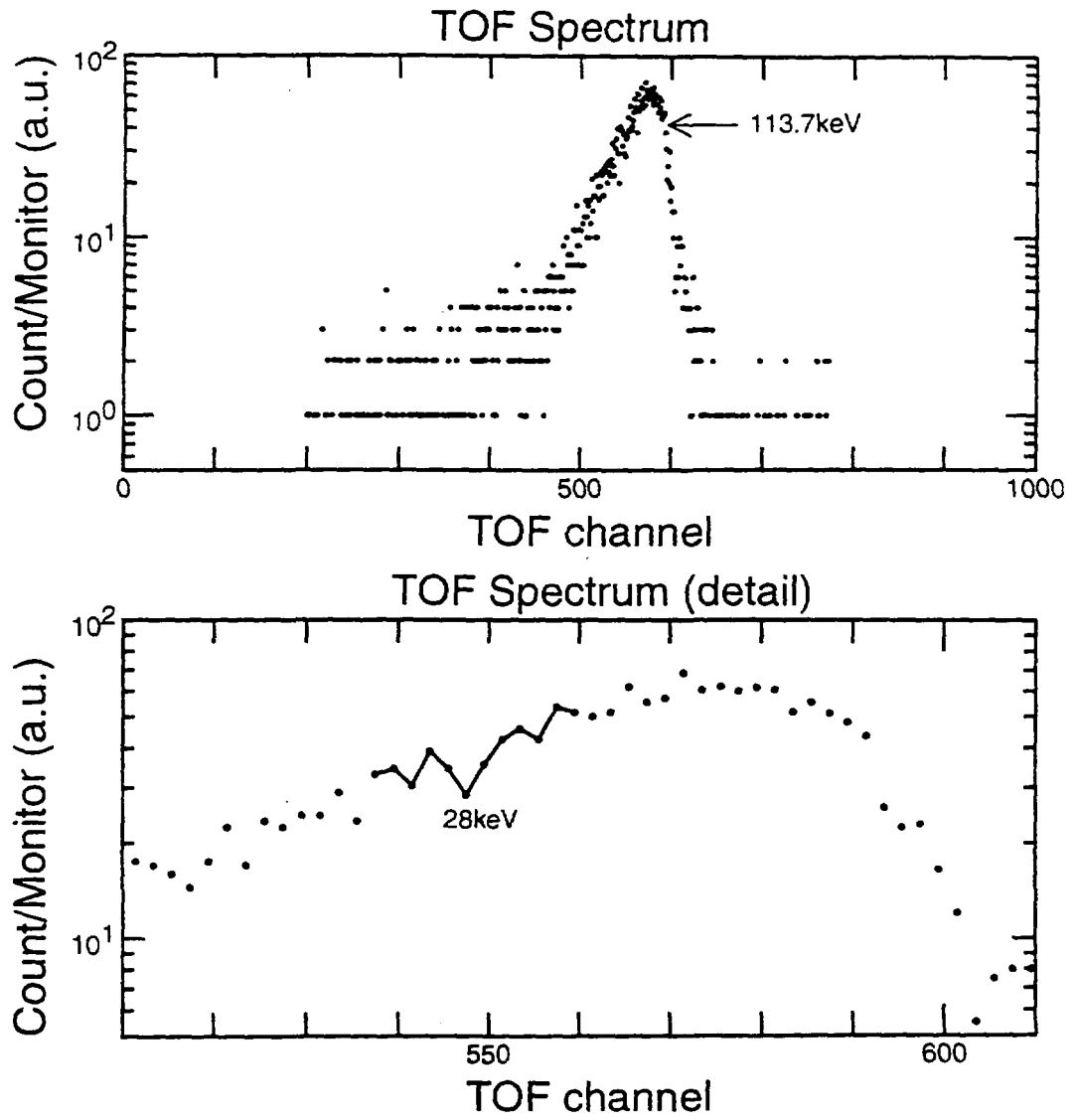


Fig.4.2.7 Fe filtered spectrum by Fission Chamber

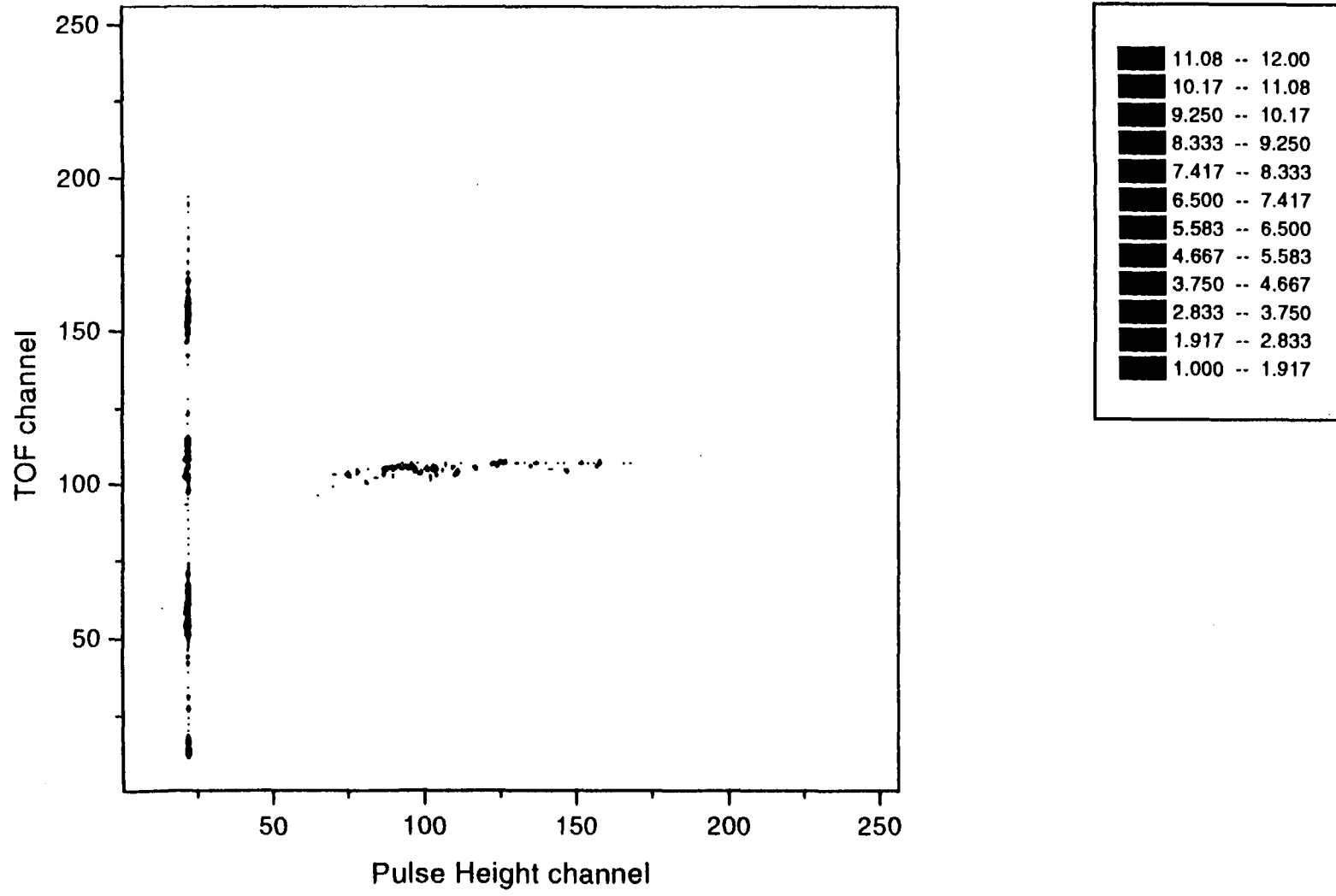


Fig.4.2.8 TOF-pulse height response of Fission Chamber (U235)

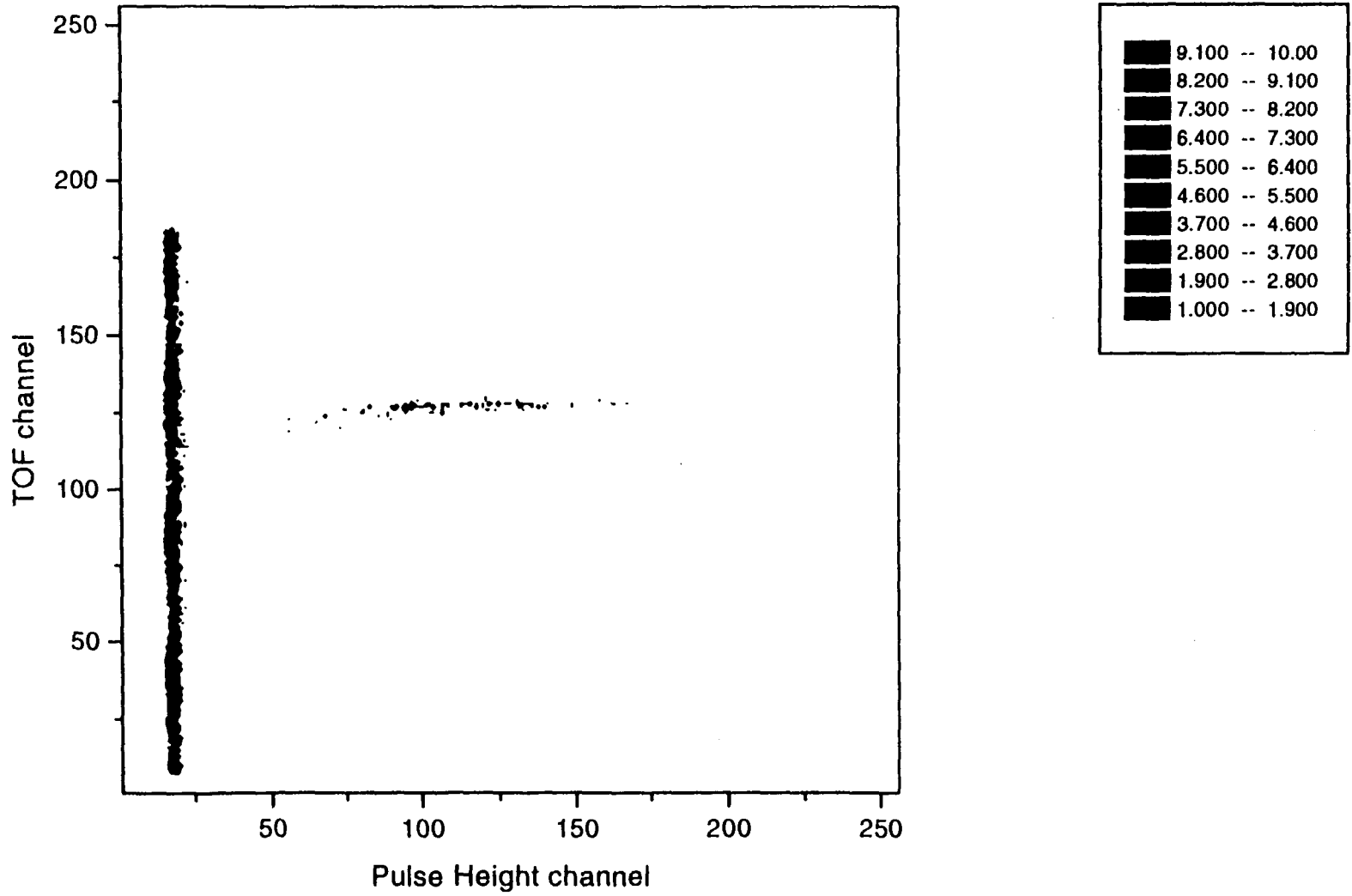


Fig.4.2.9 TOF-pulse height response of Fission Chamber (Np237)

TOF Spectrum of F.C.

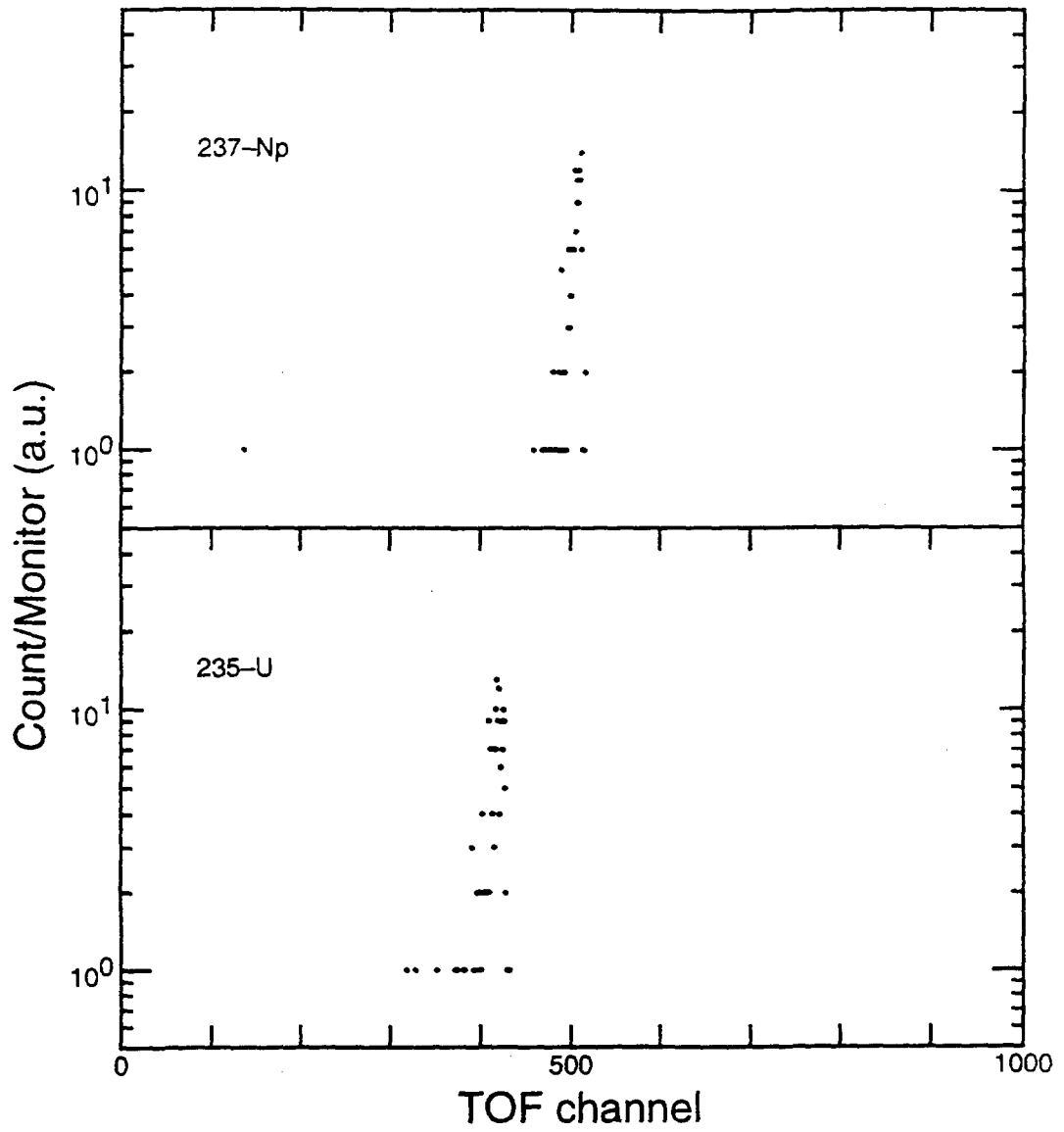


Fig.4.2.10 One dimensional TOF spectrum for Fission Chamber of U235 and Np237

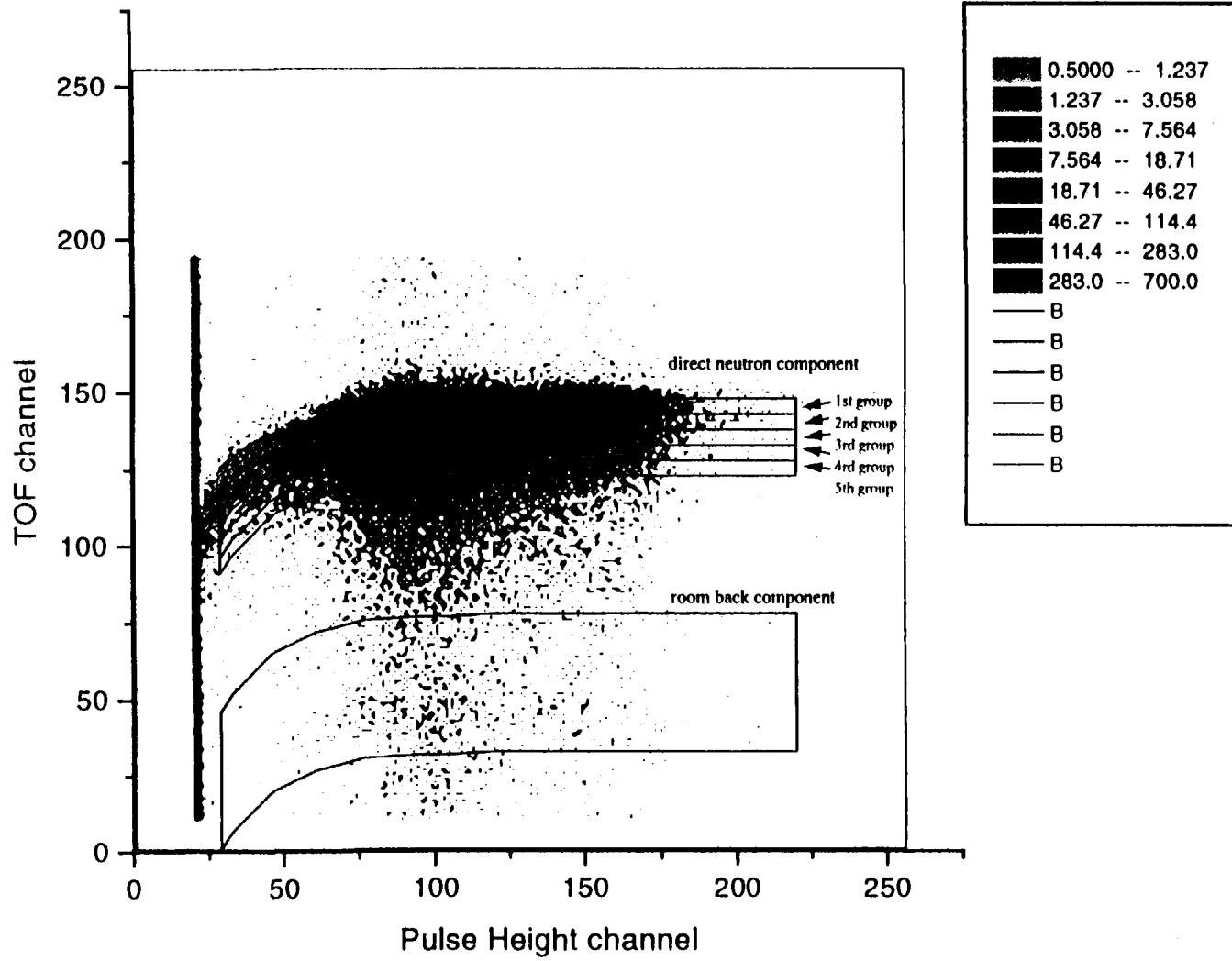


Fig.4.2.11 Measured 2-dimentional spectrum for U235 sample

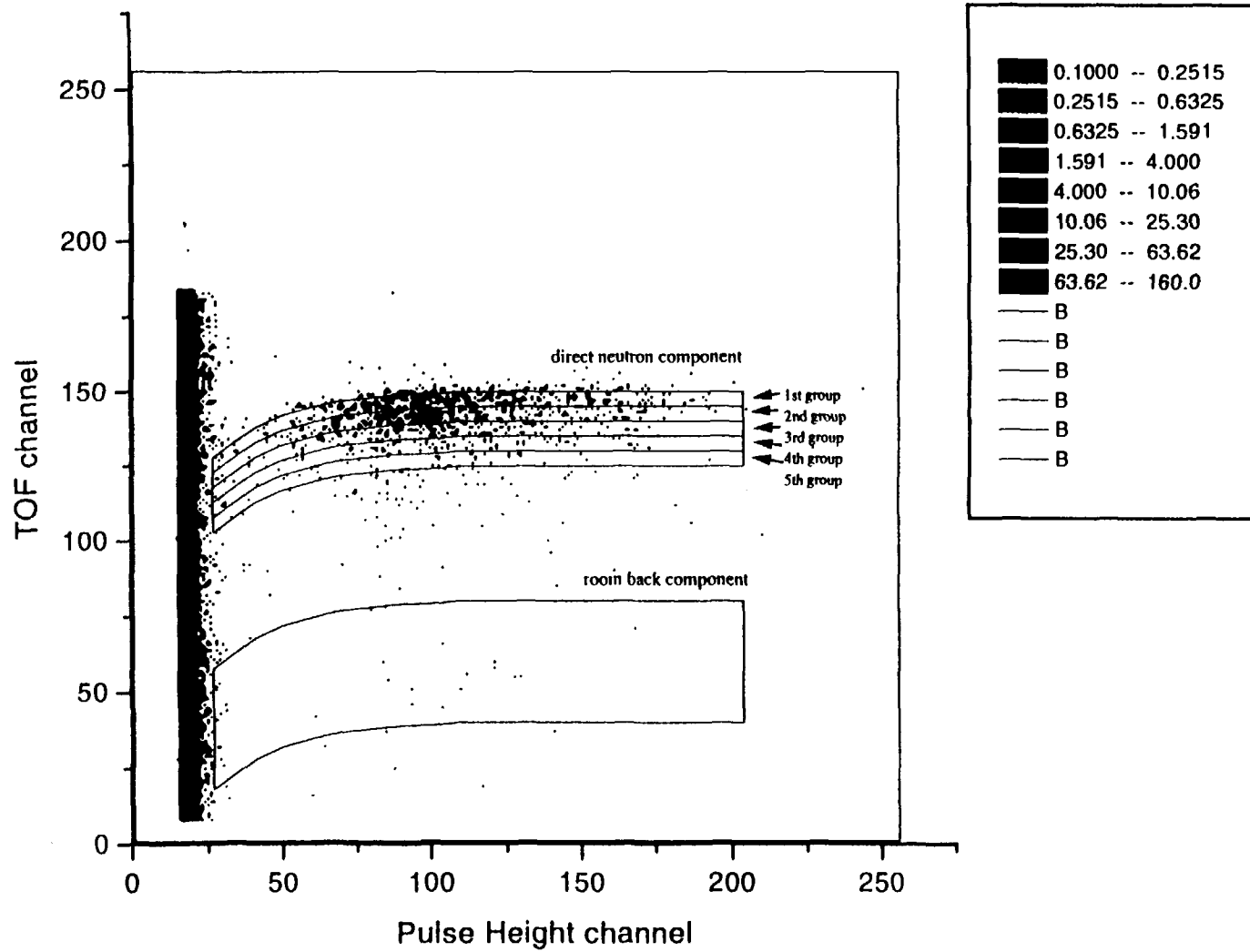


Fig.4.2.12 Measured 2-dimentional spectrum for Np237 sample

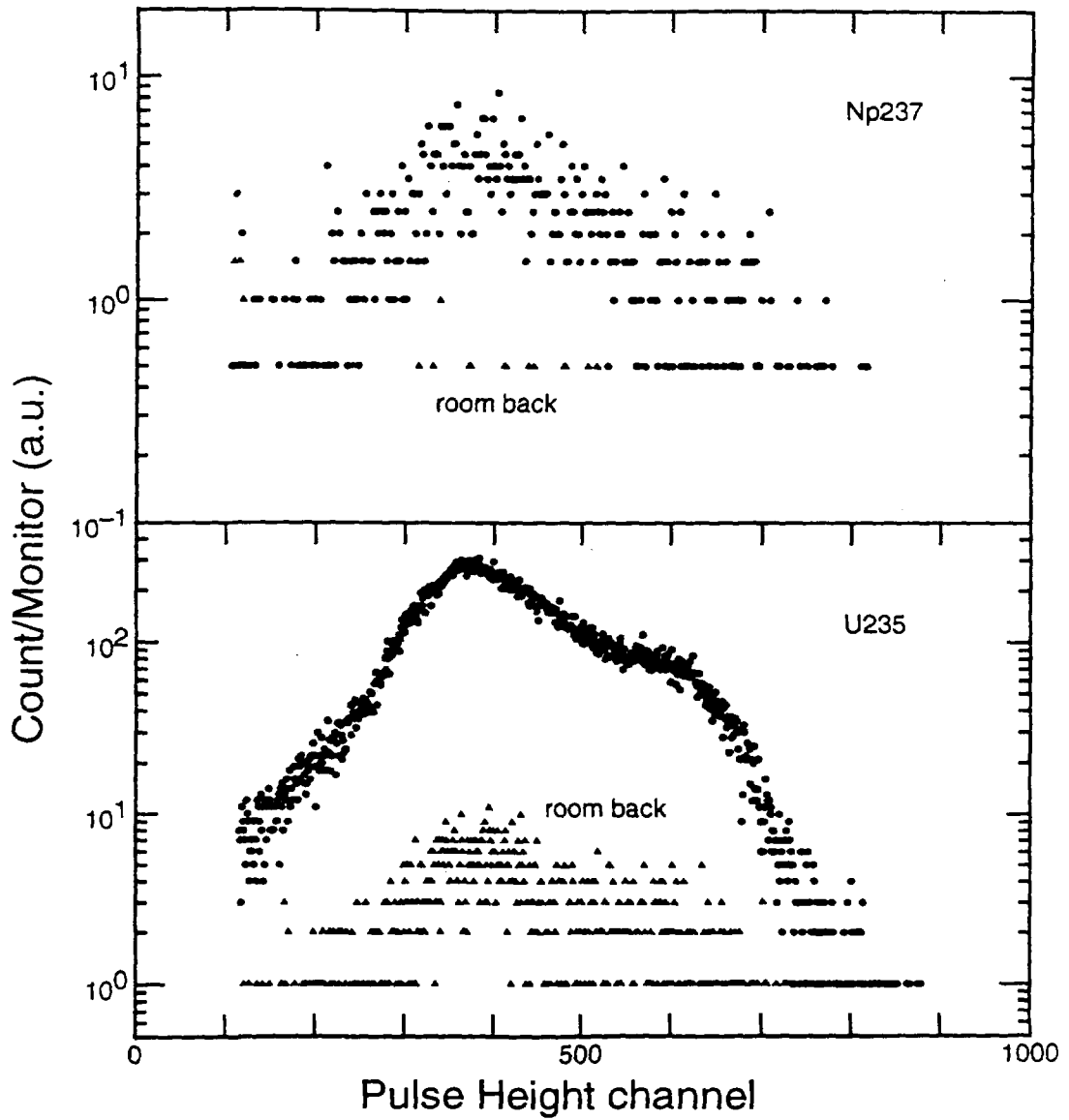


Fig.4.2.13 Typical Pulse Height Spectrum for Np237 and U235

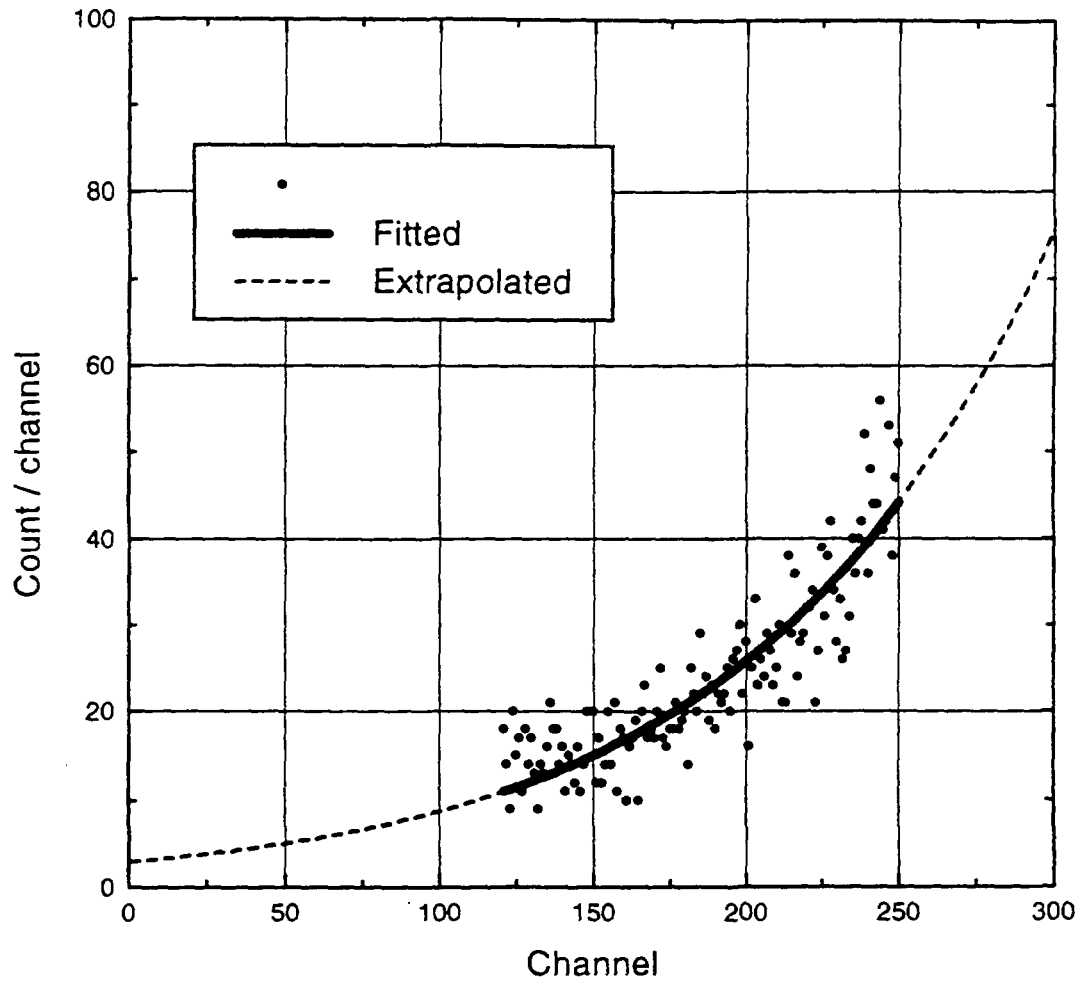


Fig.4.2.14 Pulse height Spectrum and fitted Curve for extrapolation

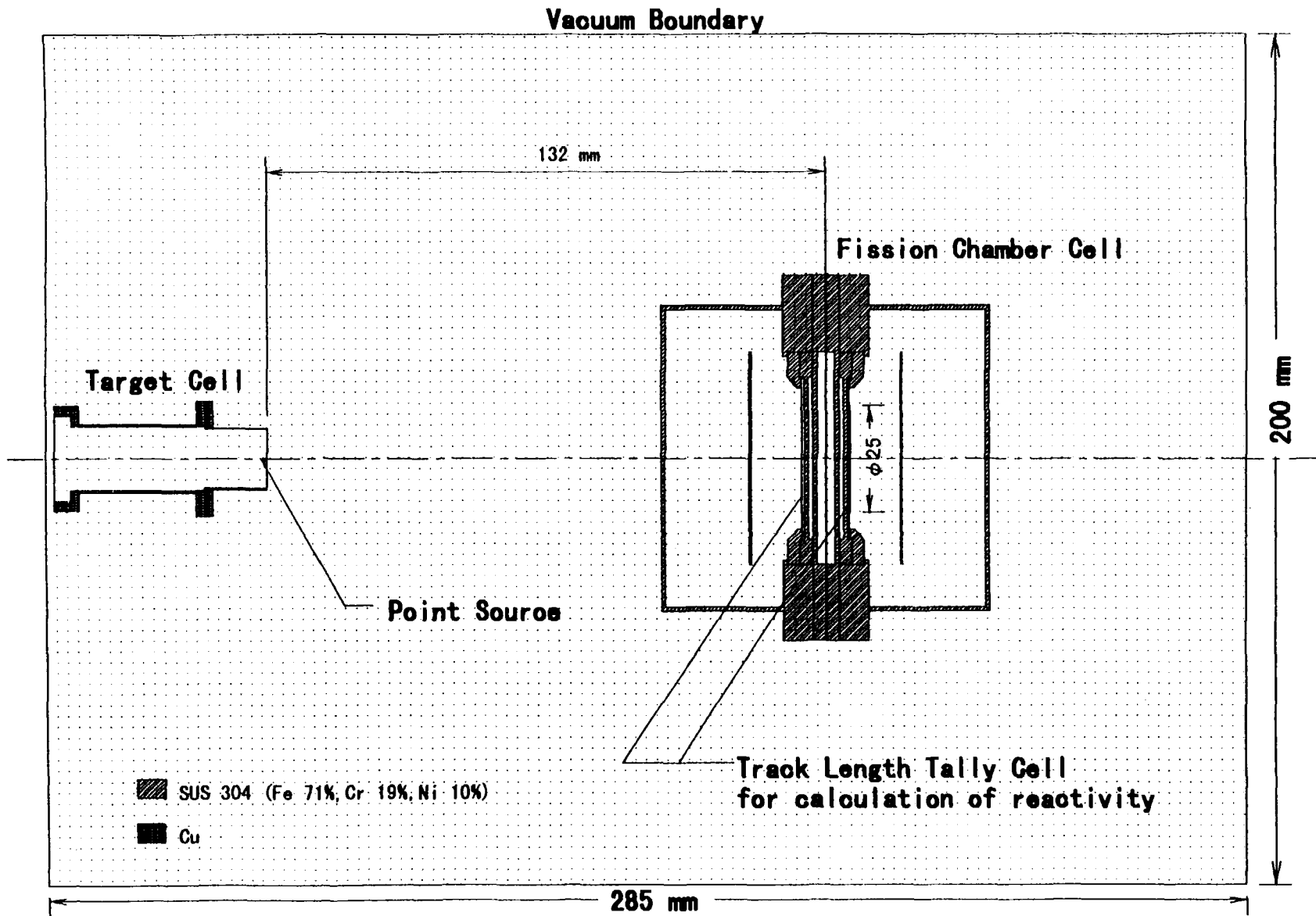


Fig.4.2.15 Calculation Model of MCNP calculation

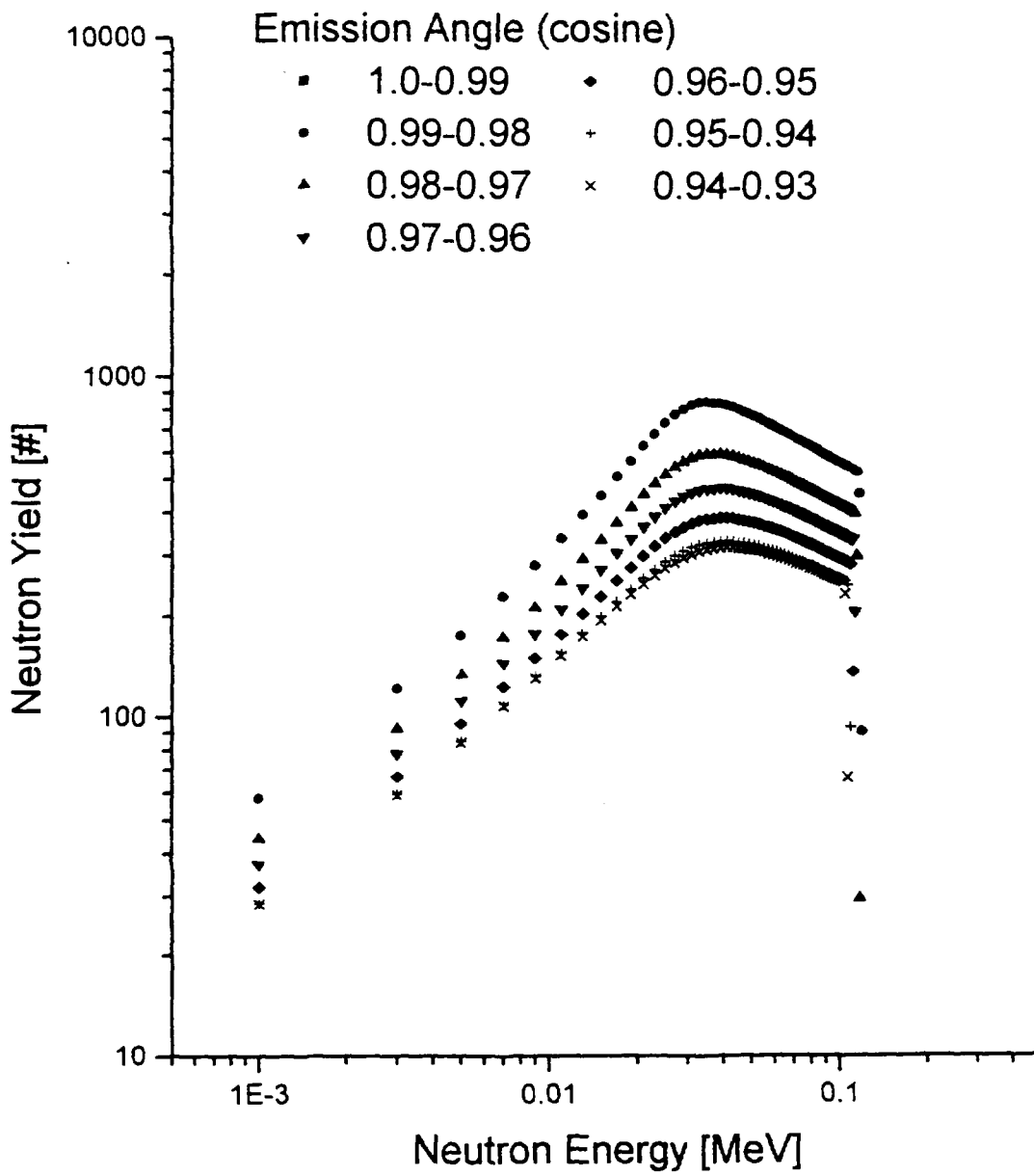


Fig.4.2.16 Neutron Source Spectrum for MCNP calculation

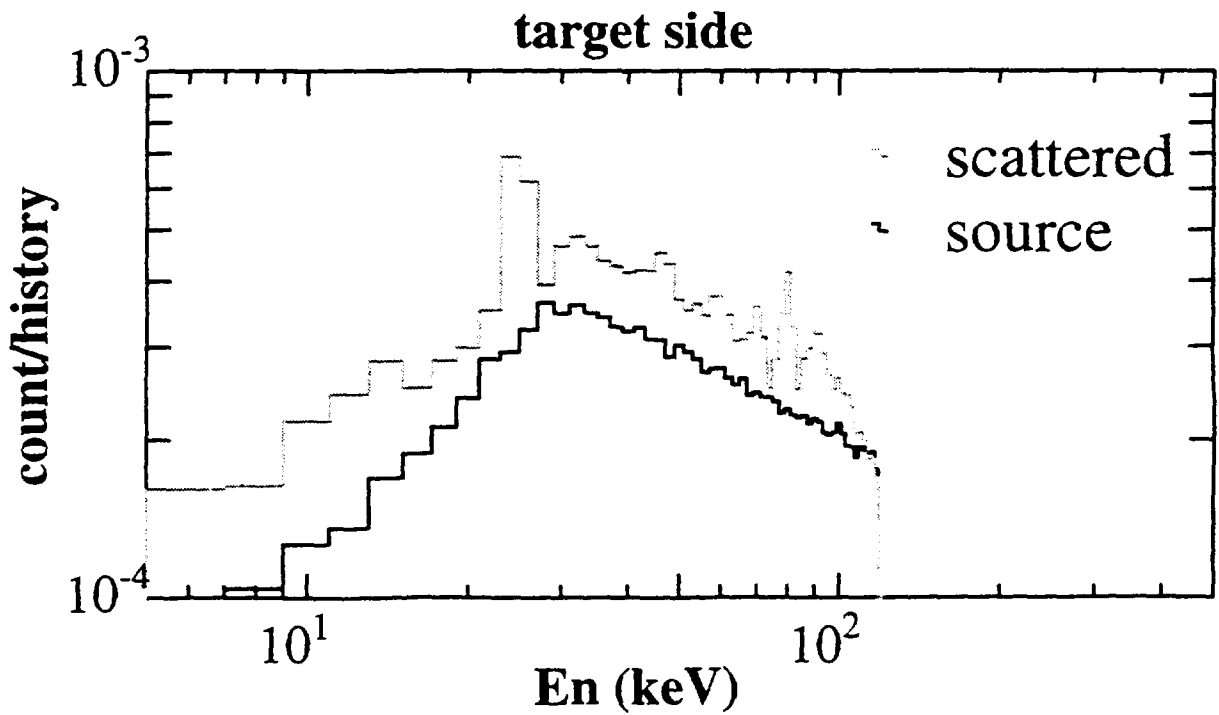
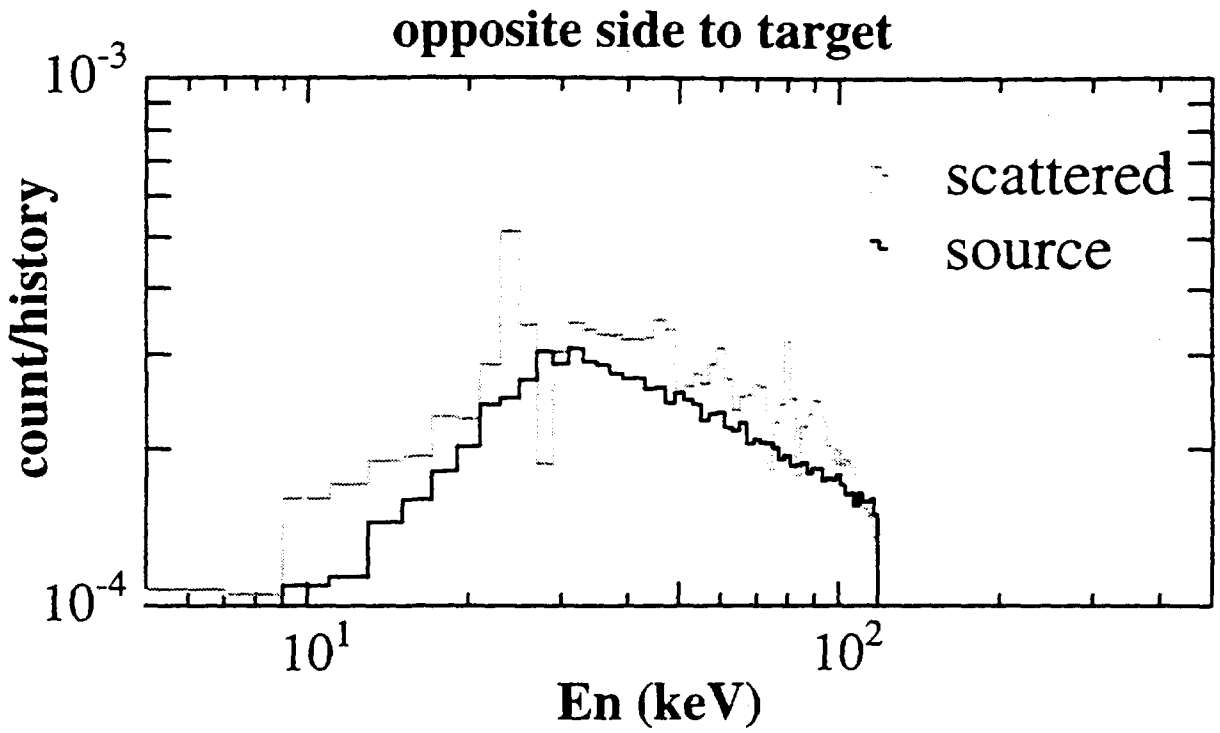


Fig.4.2.17 Calculated neutron spectrum at sample foils by MCNP/4A

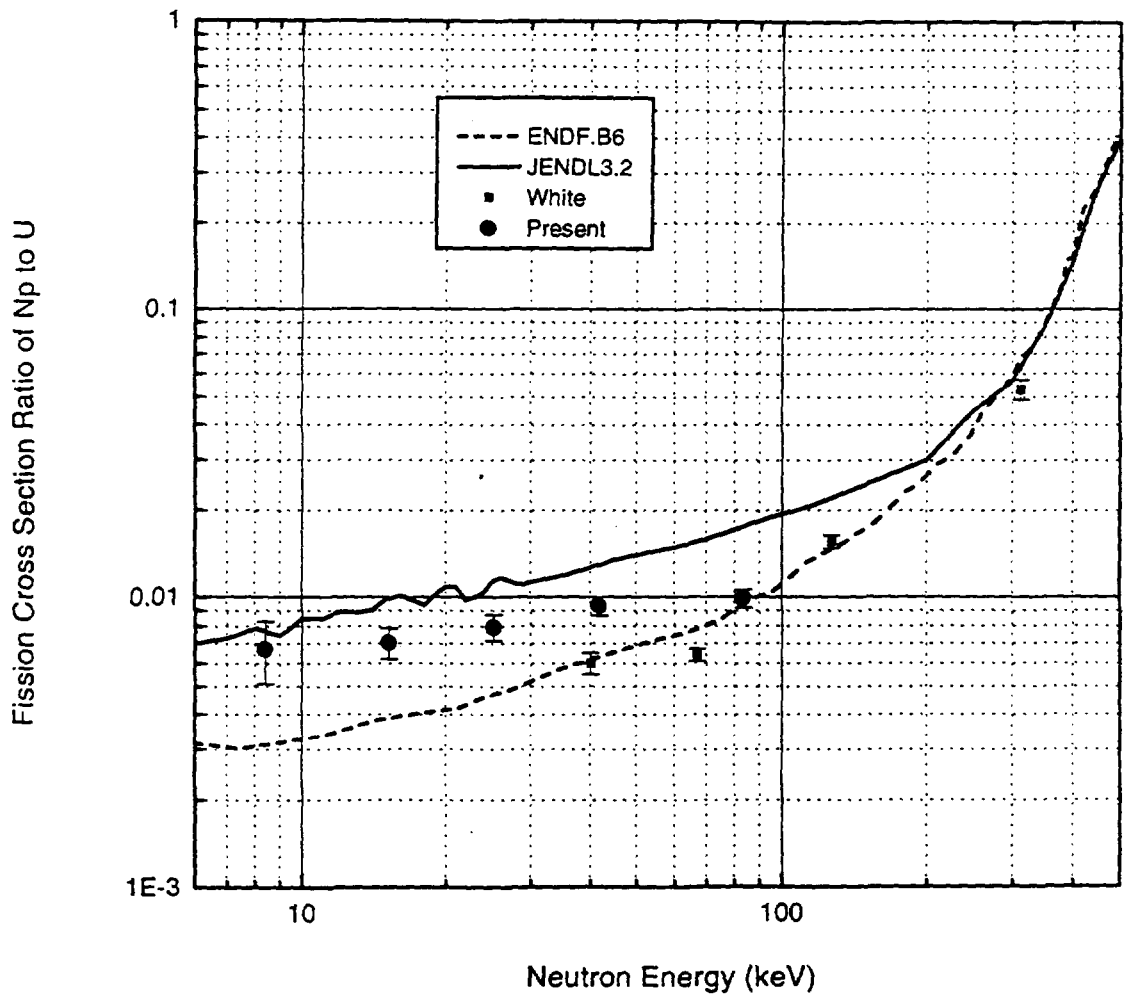


Fig.4.2.18 Experimental result of Np²³⁷/U²³⁵ fission cross section ratio

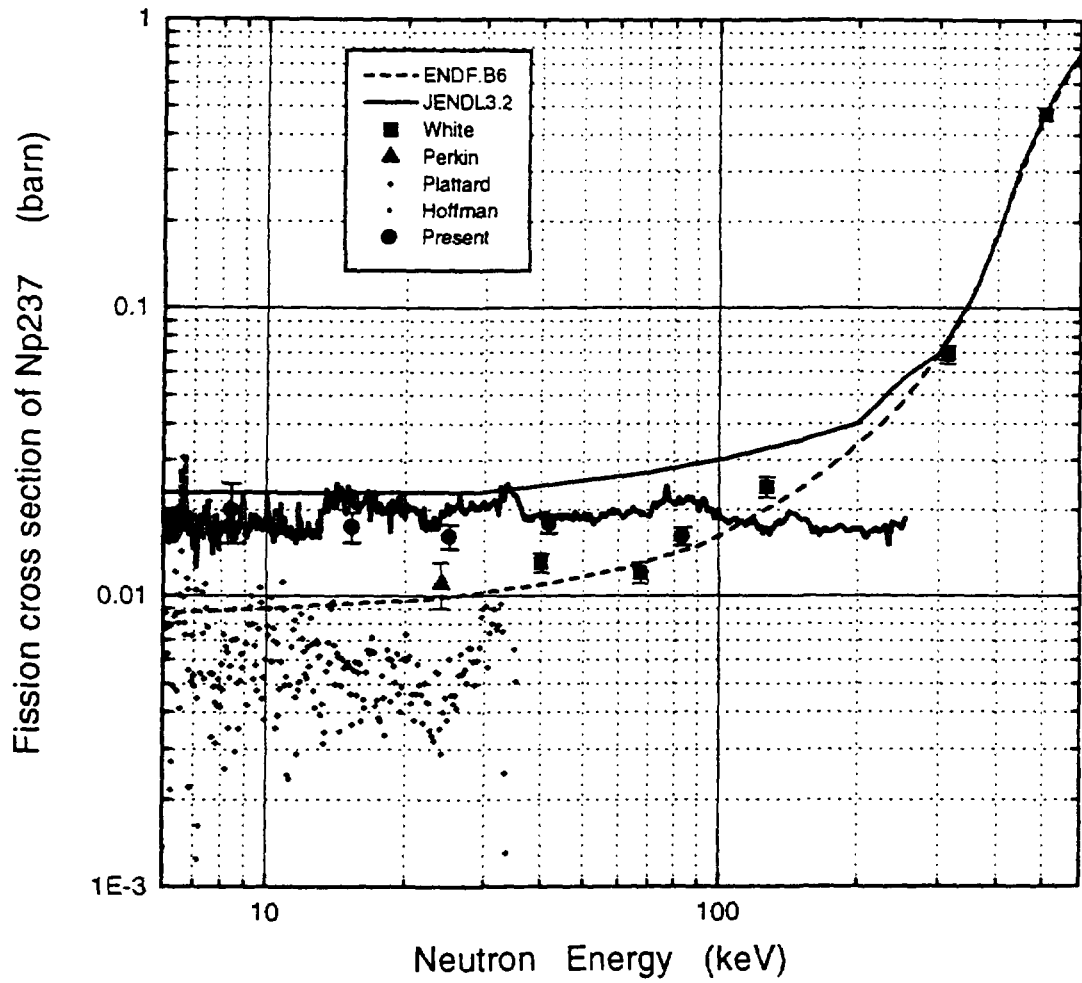


Fig.4.2.19 Experimental result of Np232 fission cross section

^{241}Am fission cross section

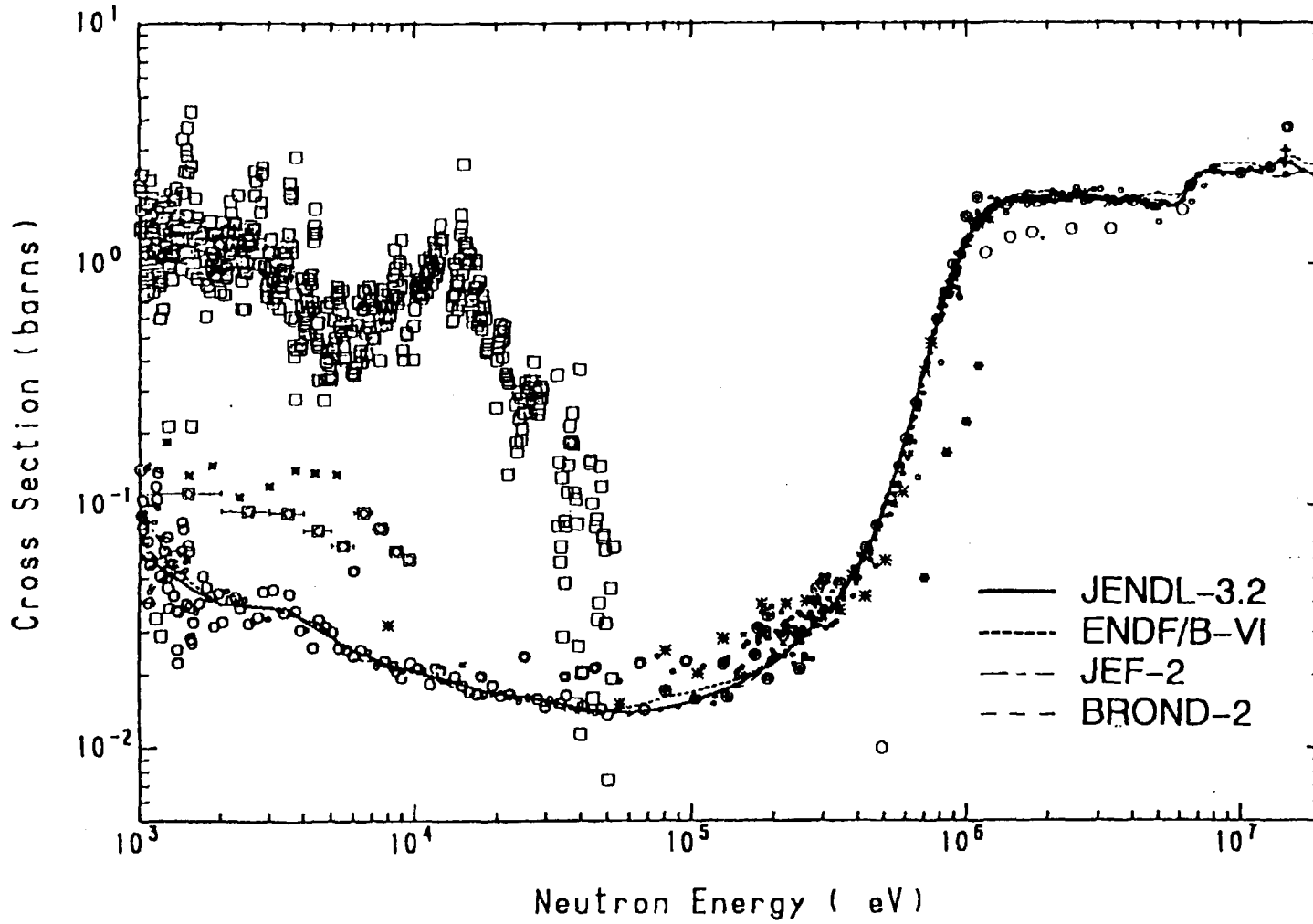


Fig.4.3.1 Am241 fission cross section <Experimental result>

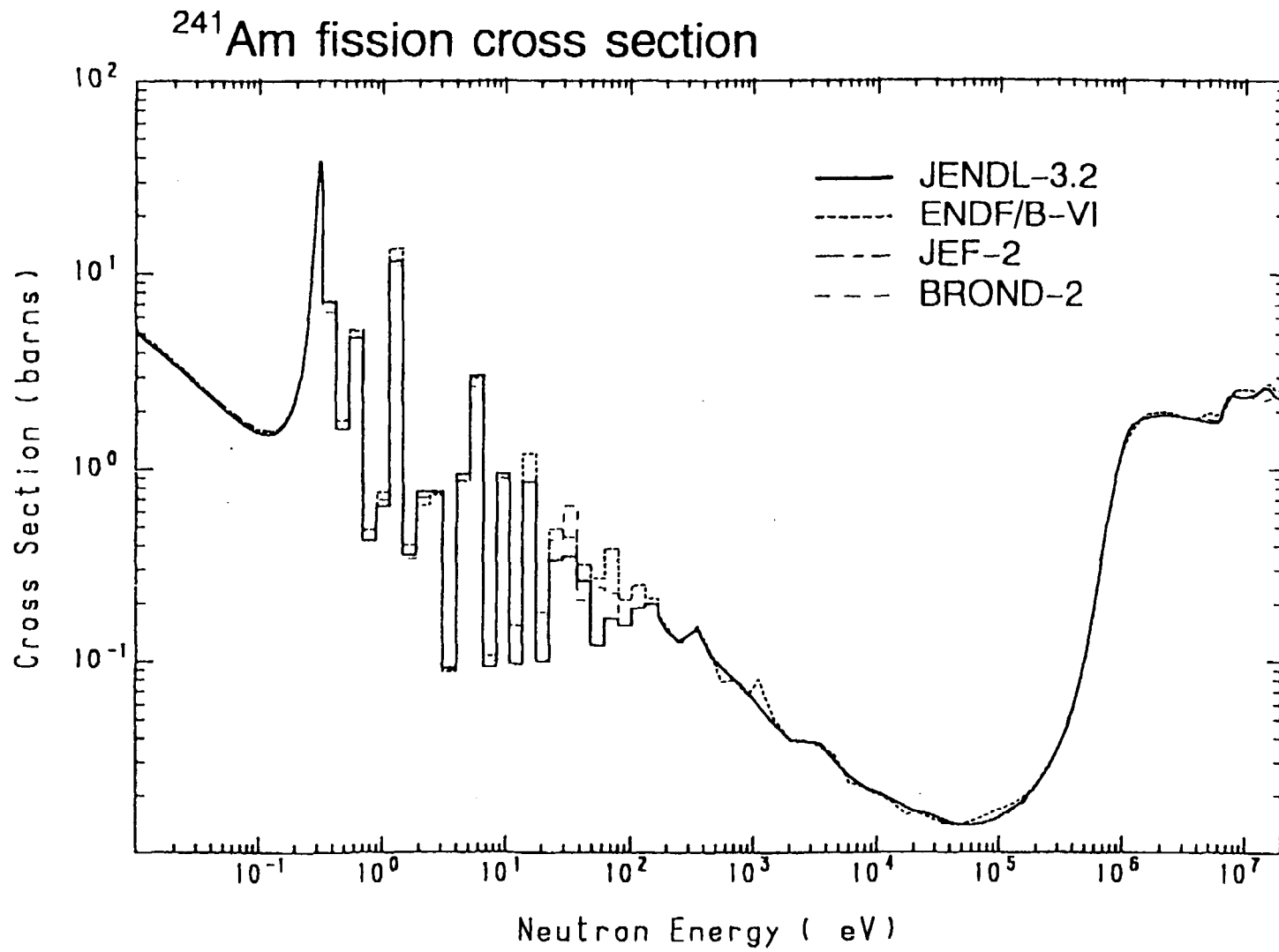


Fig.4.3.2 Am241 fission cross section <Nuclear Data files>

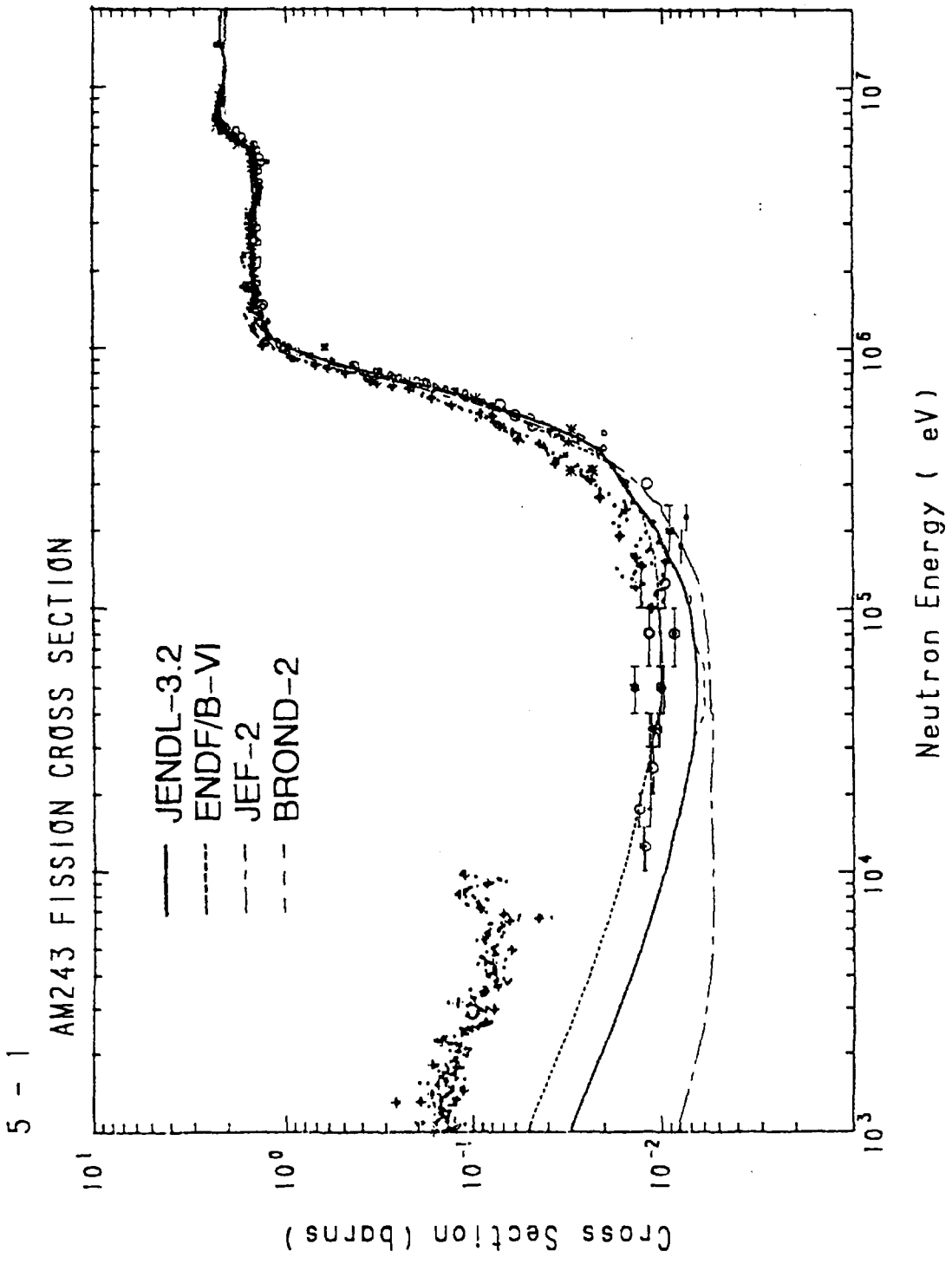


Fig.4.3.3 Am243 fission cross section <Experimental result>

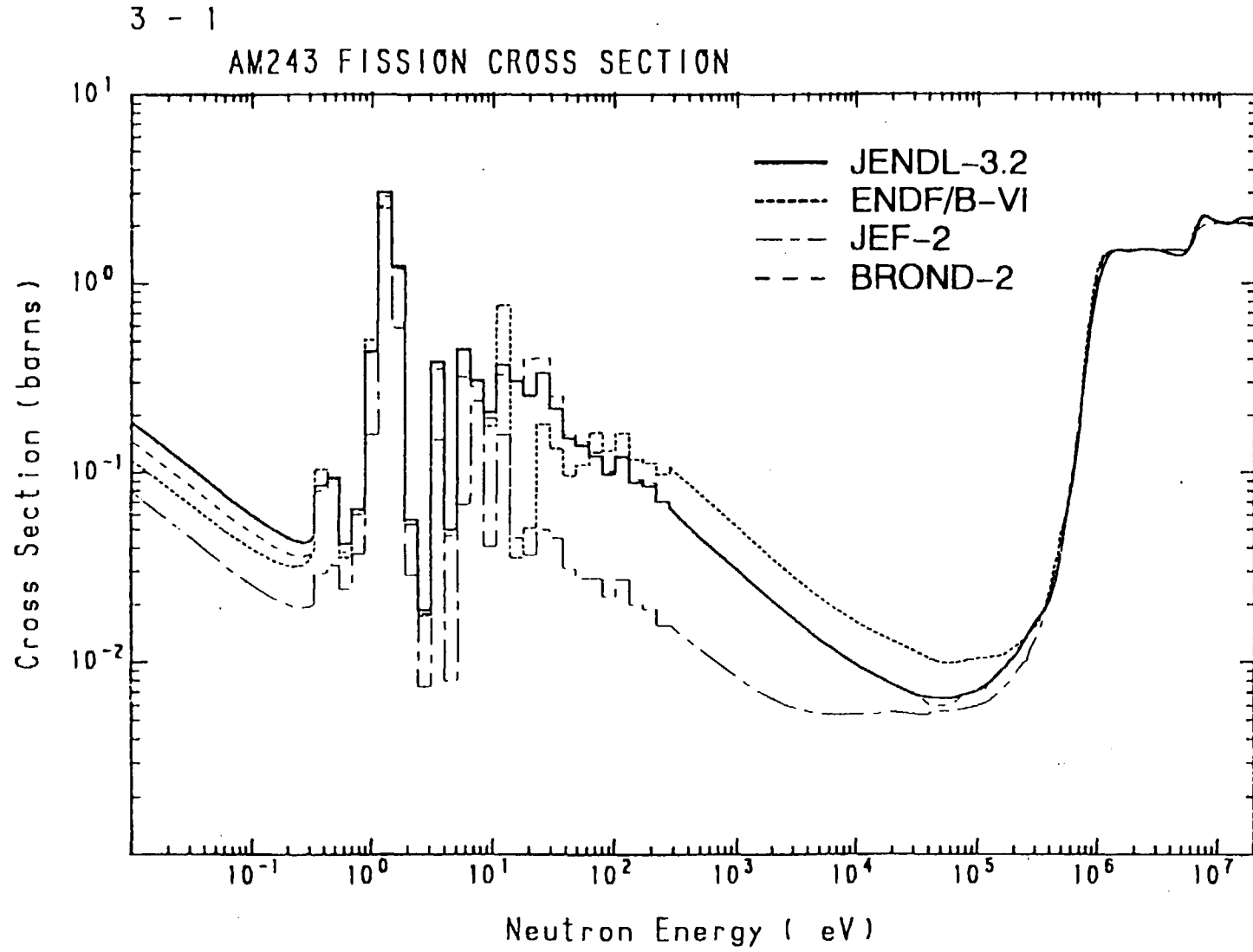


Fig.4.3.4 Am243 fission cross section <Nuclear Data files>