

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 先端基礎研究センター

(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

軽水炉の高燃焼度化やPuから燃焼の始まる高速炉の運転に伴い、原子炉で発生するマイナーアクチノイド及び核分裂生成物の量が増加する。これらの多くの原子核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の直接測定が困難で、そのために高速炉の高燃焼時に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実験の手法を適用・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放射性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、その崩壊の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し、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を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

代理反応測定では重イオン核反応で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過程である核分裂、あるいはガンマ線放出を検出することで複合核の崩壊率を求める。これらに必要な、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 $\Delta E-E$ 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)とデータを取得する回路を開発した。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MWPCは、大立体角をカバーす

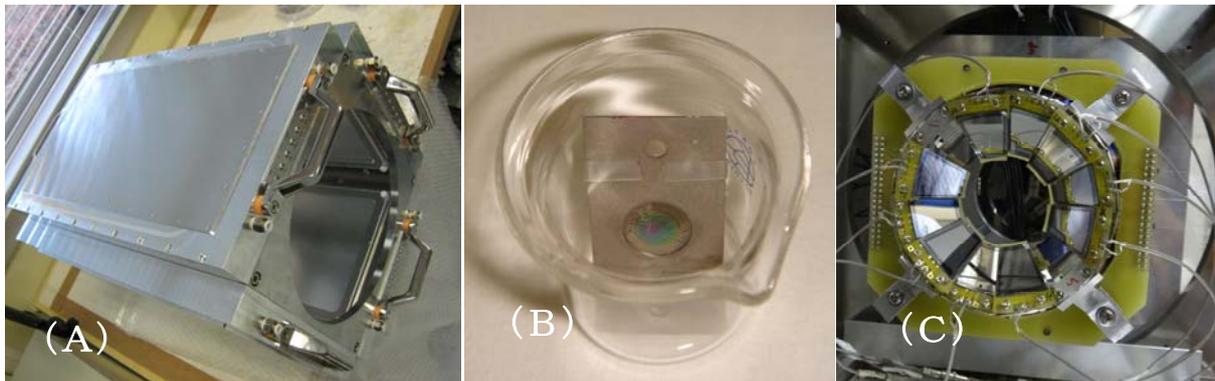


図1 核分裂断面積測定装置の開発。(A)多芯線比例計数管、(B)電着法で作成したウラン238薄膜標的、および(C)荷電粒子を検出する $\Delta E-E$ 検出器。

るため有感面積 $400 \times 200 \text{mm}^2$ の大面積型を4台開発した。本MWPCは、カソードとなるフィルム電極と、これをはさむ形でカソードの両側に張ったグラウンド・ワイヤー平面で構成し、イソブタンガスで動作させるためガスの圧力と流量を自動で制御するシステムも構築した。作成したMWPCを図1の(A)に示す。互いに向き合うMWPC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計となっている。

②標的、シリコン検出器の開発

高エネルギー分解能を実現するため厚さの一樣性に優れる薄膜標的が必須である。そこで、ウラン薄膜標的を作成する電着装置を開発し、 $90 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ のニッケル箔上にウラン試料を直径5 mm内に電着することで薄膜標的を作成した。電着のための溶媒としてイソプロパノールを用い、ここに硝酸ウラニル溶液を必要量だけ滴下し、電極間に高電圧を印加して電着を行った。作成した ^{238}U の薄膜標的を図1(B)に示す。ウランから放出される α 粒子の計数率とエネルギースペクトルの測定から、厚さの一樣性に優れる $84 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ (^{238}U)の薄膜の作成に成功した。また、タンデム加速器からの重イオンビームで照射して標的の健全性を確認した。

次に ^{238}U (^{18}O , ^{16}O) ^{240}U 等の反応で生成される放出粒子を同定し、運動エネルギーを分析するための高効率シリコンの ΔE -E検出器を開発した。核子移行反応で飛び出した荷電粒子を効率良く測定するため図1(C)に示すような円環形状の設計とした。図で、台形の検出器が ΔE 検出器であり、この後方に円環型のE検出器を設置した。 ΔE 検出器は、厚さの一樣性を $\pm 1.0 \mu\text{m}$ 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ミクロン、内径48 mmから外径96 mm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2に示す。様々な反応からの放出粒子がアイソトープ毎に識別できている。これにより生成された複合核の種類と励起エネルギーの特定が可能となった。

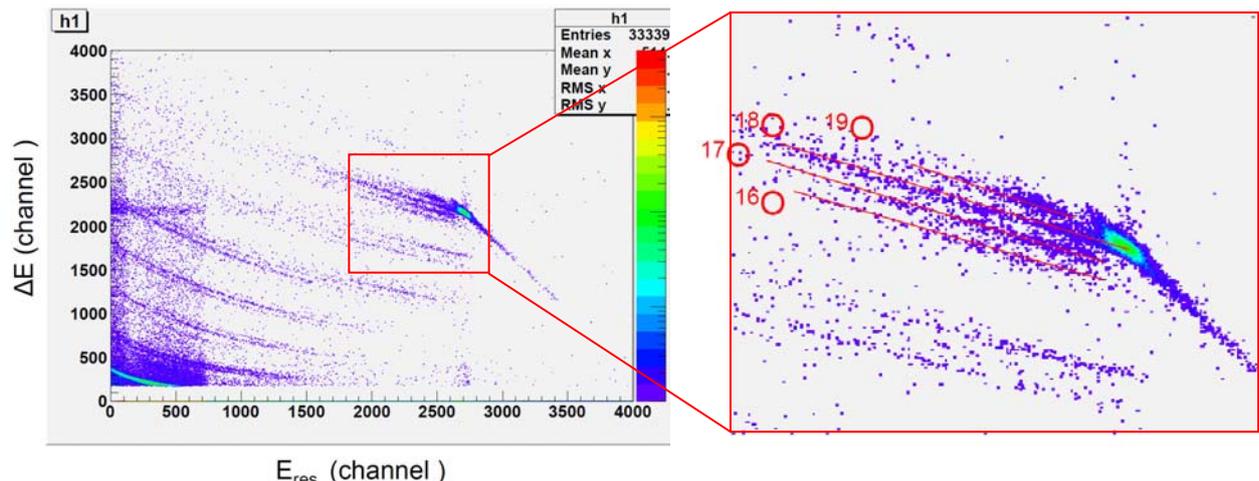


図2 ΔE -E 検出器で検出した荷電粒子のスペクトル。同位体が分離できている。

③代理反応実験

開発した測定装置のテストとして $^{18}\text{O} + ^{208}\text{Pb}$, ^{238}U 反応によって生成される核分裂片をMWPCで検出した。この結果、(1) MWPCのカソード・パルス信号の積分値から核分裂片と他の荷電粒子が識別できること、(2) 核分裂片の入射位置(X, Y)を設計どおり分解能 4 mmで決定できること、(3)

2つの核分裂片を同時に検出できること、を確認した。また、荷電粒子と核分裂片の同時計測を確認し、核分裂断面積と核分裂特性の測定が可能となった。

(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3)の開発を行った。世界最大級のLaBr₃(Ce)シンチレータ側面に環状BGO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BGOシンチレータの側面及び前面に鉛遮蔽を設置した。

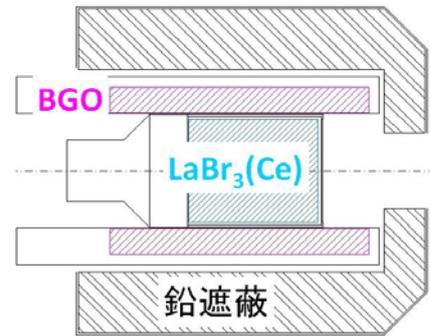


図3 コンプトン抑止型
ガンマ線測定装置

②標的、シリコン検出器の開発

中性子捕獲断面積の導出には複合核から発生するガンマ線を測定する必要があるが、一般にガンマ線放出の分岐比は小さいため、統計精度良くガンマ線スペクトルを観測するために比較的厚い(500~1000 μg/cm²)の標的が必要となる。そのため、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¹⁵⁶Gd標的(877 μg/cm²)を製作した。

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ΔE-Eシリコン検出器の開発を行った。市販の525ミクロンのシリコンウェハを調厚して65ミクロン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(図4)、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。エネルギー決定用のE検出器としては、荷電粒子の散乱角を限定するために円環型に電極を分割した円環型シリコン検出器を採用した。

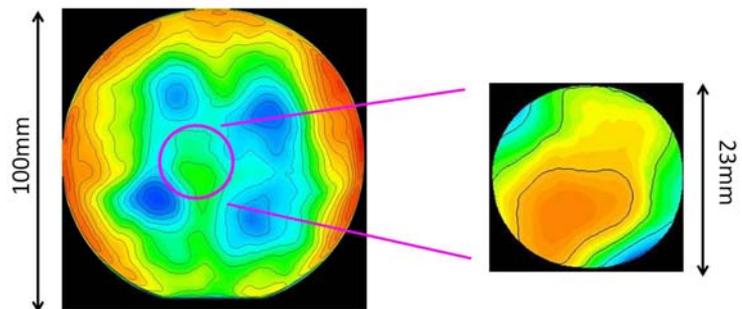


図4 シリコンウェハの厚み分布。円で囲んだ等高線(0.5ミクロン毎)の少ない部分を切り出して直径23mmの検出器の材料(右)とした。

③代理反応実験

開発した装置の性能確認のテストとしてタンデム加速器からのエネルギー152MeVの¹⁸Oビームを¹⁵⁶Gd標的に照射して散乱粒子及びガンマ線の測定を行った。図5は荷電粒子とガンマ線の時間差を測

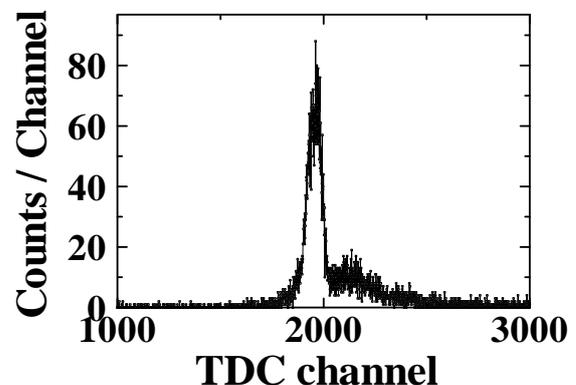


図5 散乱粒子とガンマ線の時間差

定した結果で、荷電粒子とガンマ線が同時に発生していることを示すピークを観測することに成功した。今後、長時間の測定を行って統計精度を向上させ、中性子捕獲断面積を導出する。

2-2 理論計算

前年、任意のスピ分布を有する複合核の崩壊過程を統計模型を用いて計算し、代理比反応法の成立条件を導いた¹⁾が、実際にその成立条件が満たされるかどうかを検証するために統一模型に基づいた動力学的計算手法を開発した²⁾。この模型の利点は、代理反応の全容を一つの枠組みで記述することができ、さらに実験における観測量と直接比較可能な物理量を計算出来ることである。

モデルパラメータをテスト実験のデータを元に決定し、 $^{18}\text{O}+^{238}\text{U}\rightarrow^{16}\text{O}+^{240}\text{U}$ によって生成された ^{240}U のスピ分布を求めた。さらに $^{18}\text{O}+^{238}\text{U}$ と $^{18}\text{O}+^{236}\text{U}$ 反応のスピ分布を比較し、二つの代理反応による生成核のスピ分布が等価であるという結果を得た²⁾(図6)。これらの結果は代理比反応法が成立するための条件¹⁾が満たされていることを示し、本事業で行う代理比反応法が中性子断面積測定手法として成立するという結論を導くことが出来た。さらに、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⁾及びスピ分布と観測量の関係に関する理論的研究⁴⁾を行った。

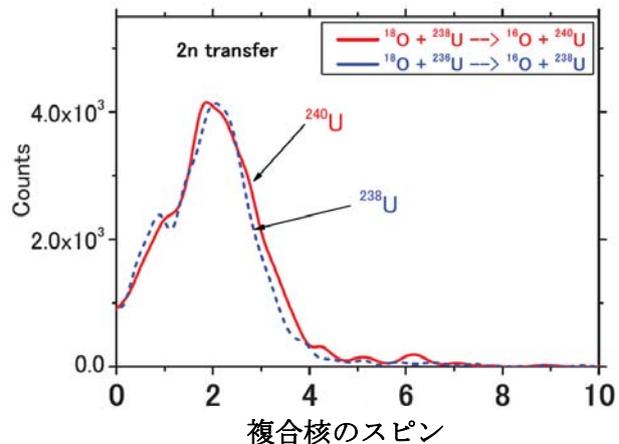


図6 本事業において開発した動的模型による代理反応で生成された複合核のスピ分布²⁾。代理比反応で用いる二つの反応のスピ分布が等しいことが成立条件であるが、本理論の結果はそれが成り立つことを示している

3. 今後の展望

平成22年度内に測定装置の開発を終了した。その後東日本大震災のため半年間加速器がストップしたが、その間、理論研究を進め最適な実験条件の解明を行い、本年9月よりテスト実験を再開した。平成23年度内に全ての実験を行いデータを取得する。それと平行して代理反応データから中性子データの導出を行うために必要な補正方法を開発し全ての計画を終了する予定である。

4. 参考文献

- 1) S. Chiba and O. Iwamoto, "Verification of the Surrogate Ratio Method", 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, "Three-Body Model Calculation of Spin Distribution in Two-Nucleon Transfer Reaction", J. Nucl. Sci. Technol. **48**, 1337-1342 (2011).
- 4) S. Chiba, O. Iwamoto and Y. Aritomo, "Spin-dependent Observables in Surrogate Reactions", Phys. Rev. C **84**, 054602-1-5 (2011).