

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 日本原子力研究開発機構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

放射性廃棄物にかかわる環境負荷低減技術の基盤データとして、放射性核種の核データの精度向上が求められている。特に、従来測定が困難であるため測定誤差が大きい放射性核種 (MA 及び長寿命核分裂生成核種 (LLFP)) に対して、各種核変換システムによる環境負荷低減効果の定量的評価とシステムの設計を行うために、中性子核データの高精度化が必要である。

経済協力開発機構原子力機関 (OECD/NEA) 等により、各種核変換システムの設計に必要な核データ精度が、系統的かつ定量的に評価された背景もあり、そのニーズに応えるため、核データ測定研究が世界的に活性化している。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研究が、欧州では原子核研究機構 (CERN)、米国ではロスアラモス国立研究所、我が国では大強度陽子加速器施設 (J-PARC) を中心に実施されており、中性子飛行時間測定 (TOF) 法を適用した中性子捕獲断面積のエネルギー依存性が高い統計精度で整備されつつある。一方、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。

平成25年度を初年度として開始した本研究開発事業は、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全中性子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するものである。

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誤差低減に欠かせない系統誤差要因を抽出することも目指している。

平成25年10月から、約2年間に実施した研究開発で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

(1) 独立分析手法の組合せによる高精度決定

本研究では、中性子照射によりサンプルを放射化し、生成核種を α 線及び γ 線分光法適用して熱中性子捕獲断面積値を高精度で決定することを目標とし、Am-243及びAm-241核種の予備照射試験を実施した。

京都大学研究用原子炉 (KUR) の気送管を用いてAm-243の中性子照射を行い、生成したAm-244からの崩壊 γ 線を測定した。内部転換係数を考慮した全崩壊強度が100%に規格化できることに着目した解析法を適用することで、強度の大きな744-keV崩壊 γ 線放出率の誤差を従来の29%から2%へと大幅に向上することができた。本崩壊 γ 線放出率は、中性子捕獲断面積の高精度決定に反映できる重要な

物理量である。

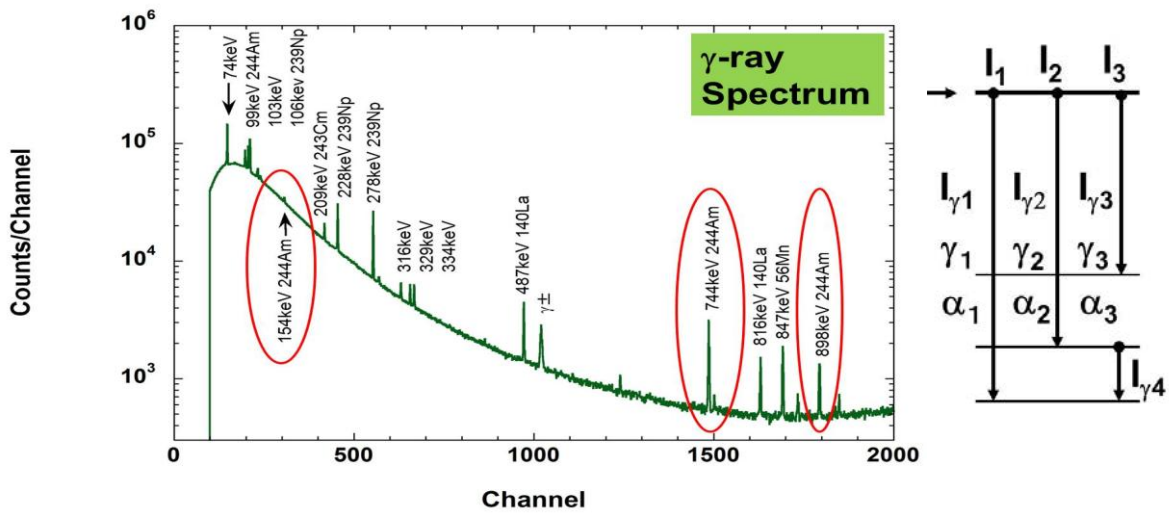
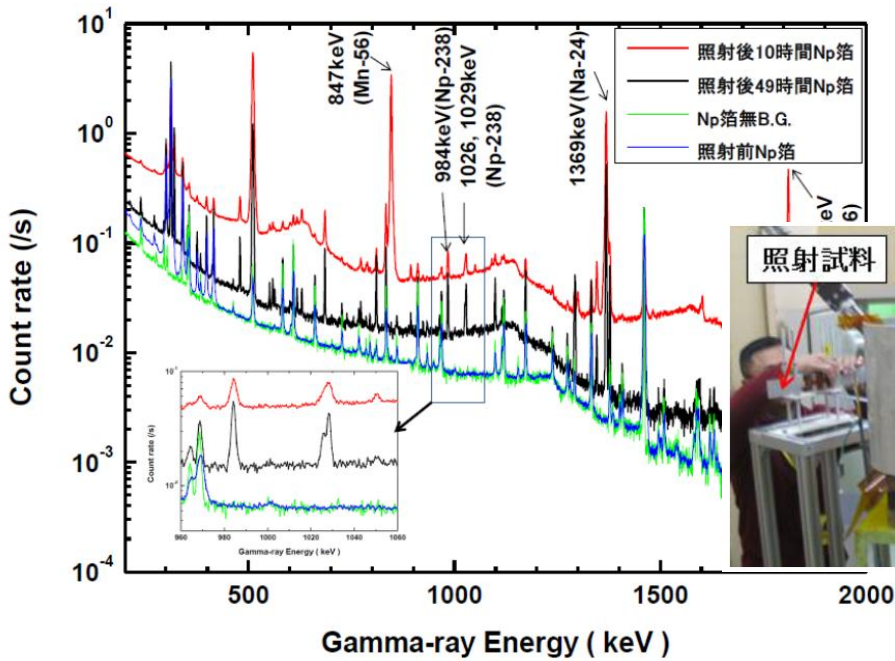


図1 Am-244から放出される崩壊 γ 線スペクトルと γ 線放出率導出原理図

(2) 可変中性子スペクトル場照射による精度検証

本研究では、可変中性子スペクトル場を生成し、MA核データの精度検証に資することを目標に、京大炉ライナックの光中性子源の軽水モデレータの改良を行い、軽水中にホウ酸水を添加することにより可変中性子スペクトル場を構築した。本可変中性子スペクトル場を用いて、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。図2に示すように、中性子捕獲反応で生成したNp-238からの崩壊 γ 線を統計精度2%以下で求める見通しを得た。また、中性子飛行時間



法を適用し、精度検証で必要となる照射場の中性子エネルギースペクトルを導出した。

図2 可変中性子スペクトル場（右図）で照射したNp-237試料からの崩壊 γ 線スペクトル

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

(1) 崩壊 γ 線放出率の高精度測定

TOF 測定に用いる MA 試料の絶対量を高精度に定量するために、Am-241、Am-243 及びその娘核である Np-239 の γ 線放出率を 2% 以下の高精度で決定できる技術の開発を進めた。 γ 線の測定にでは、試料と γ 線検出器の距離を大きく離すことにより、カスケード γ 線計測による補正を低減する等の工夫を行うとともに、モンテカルロシミュレーションにより得られる検出効率のエネルギー依存情報を活用することで、約 0.5% という高い精度で検出効率曲線を決定した。この結果、崩壊 γ 線放出率の標準値として広く利用される評価値の精度を更新した。

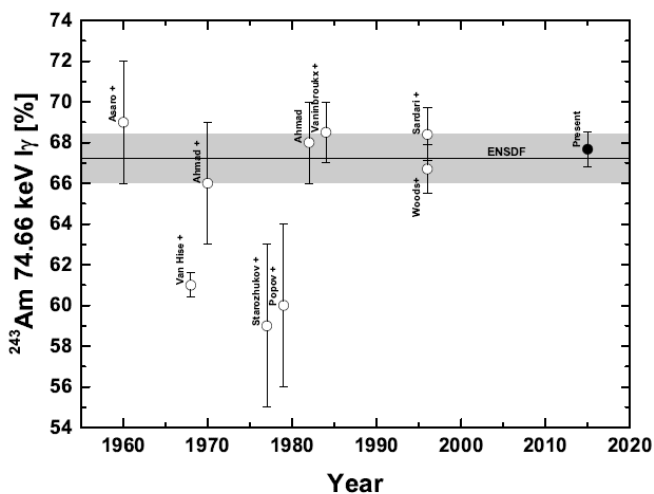


図3 γ 線放出率の測定例

(2) カロリメータを適用した放射能絶対値測定

崩壊 γ 線測定とは独立にサンプル量の絶対値を熱量測定により決定するために、整備すべきカロリメータの機器選定および適用性評価研究を進めた。測定サンプルからの崩壊 γ 線が、機器を透過することにより生じる熱量測定への系統誤差を評価するため、モンテカルロシミュレーションを用いた評価を行い、1cm 厚の鉛版でサンプルを挟む工夫により、熱量測定への系統誤差は、十分に軽減できることを確認した。

(3) MA サンプルの整備と同位体分析

TOF 測定に用いる MA 試料に含有される不純物を分析するため、表面電離型質量分析装置の整備を進め、Gd サンプルに対して分析精度検証試験を行った。分析結果は、国際純粋・応用化学連合 (IUPAC) の推奨値及び米国オークリッジ国立研究所の成分表の値と誤差範囲内で一致するとともに、推奨値又は成分表に示された分析精度より 1 桁以上良い精度を示した。次に、TOF 測定用サンプルと同じ組成の Am-241、243 の非密封試料を準備し、分析試験を実施した。その結果、Am-241 サンプル中に含まれる Am-243 の量は検出限界以下であり、極めて同位体純度の高いサンプルであることを確認した。一方、Am-243 サンプルにおける Am-241/Am-243 原子核数比を 2.3% と求めた。本結果は、アルファ線分析装置による測定結果と無矛盾であることを確認した。

2. 3 全中性子断面積測定を組み合わせた共鳴パラメータの決定

(1) J-PARC/MLF/ANNRI での測定

中性子捕獲断面積及び全中性子断面積の測定結果より共鳴パラメータを高い精度で決定することを目標に、高速データ収集システムの整備を進めるとともに、S/N比を改善するため中性子遮蔽の強化を実施した。開発した測定システムを、安定核種である標準金試料及び Gd-157 等に適用し、測定技術及び解析技術の開発を進めた。この結果、バックグラウンドの大幅な低減を確認するとともに、中性子捕獲反応断面積測定及び全中性子断面積測定に適用できることを確認した。

(2) 京都大学原子炉実験所の電子線形加速器での測定

パルス時間特性に秀でた京都大学原子炉実験所の電子線形加速器を用いて、中性子捕獲断面積と全中性子断面積を測定し、共鳴パラメータを高い時間分解能で決定することを目標に、パルス中性子の時間分解能関数をモンテカルロシミュレーション計算によって評価するとともに実験的に検証した。

2. 4 測定エネルギー範囲の高速中性子領域への拡張

J-PARC/MLF/ANNRI に設置された NaI (Tl) 検出器を用いて、測定エネルギー範囲を高速中性子領域へ拡張することを目標に、測定回路の高速化を進めるとともに、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。測定回路の高速化を実現するため、独自に開発したパルス幅測定法を適用した。標準金試料を用いた測定システムの性能試験の結果、高速中性子領域までの広いエネルギー範囲にわたって測定が可能となったことを確認した。

2. 5 測定と評価のキャッチボールによる高品質評価

核データ評価者が測定者と共に議論を行い、MA 核種の Np-237, Am-241, 243 及び重要 FP 核種の Gd-155, 157, Tc-99, I-129 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。熱領域の中性子捕獲断面積については、カドミウム (Cd) 比法を用いて導出された測定データに対し、MA 核種に特有な低エネルギー領域の共鳴構造が与える影響を定量的に補正する方法を開発し、補正を行った。この結果、熱中性子捕獲断面積に関する測定データは JENDL-4.0 と比較して±10%以内に収まり、他の測定データとの整合性が向上した。これにより、異なる測定手法間で存在していた系統的な誤差要因を明らかにし、MA 核種の熱中性子捕獲断面積の高精度化に資する知見を得た。

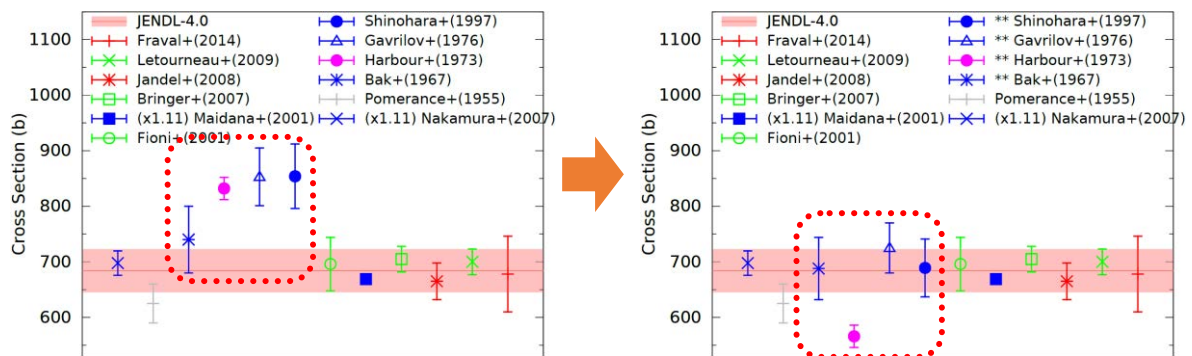


図4 Cd比法によるAm-241熱中性子捕獲断面積の補正（左図：補正前、右図：補正後）

3. 今後の展望

核データの精度向上を達成するために設定した5つの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進捗した。平成27年度下期及び28年度には、これまで整備した測定技術・評価手法を駆使して高精度核データを取得するとともに、系統誤差要因のさらなる把握を目指さすべく、準備を進めている。

4. 参考文献

(1) H. Harada et al., “Accuracy Improvement of Neutron Nuclear Data on Minor Actinides” EPJ Web of Conference 93, 06001 (2015). DOI: 10.1051/epjconf/20159306001/