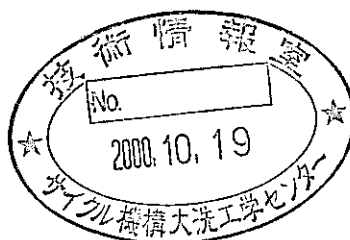


# MA核種の高速中性子微分核分裂断面積の測定

(核燃料サイクル開発機構 研究委託内容報告書)

2000年6月



東北大学工学部量子エネルギー工学科

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4-49

核燃料サイクル開発機構

技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :

Technical Cooperation Section,

Technology Management Division,

Japan Nuclear Cycle Development Institute

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184

Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

2000

# MA核種の高速中性子微分核分裂断面積の測定

(核燃料サイクル開発機構 研究委託内容報告書)

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となる。

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行う。本年度においては、(1)断面積ライブラリの現状調査と測定エネルギー領域の検討、(2)  $^{237}\text{Np}$ 試料の作成および定量、(3) 数十keV領域の中性子源の検討、(4)  $^{237}\text{Np}$ の核分裂断面積の予備測定 (東北大学ダイナミトロン型加速器) を実施した。

これらにより、 $^{237}\text{Np}$ 試料をイオン交換法および電着法を用いて4枚作成し、 $\alpha$ スペクトロメトリにより試料量を誤差1.2%程度で定量した。また、作成した中性子源シミュレーションコードによる解析から、MA核の微分核分裂断面積測定用の中性子を、厚いLiターゲットによる $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ 中性子源により発生できることを確認した。さらに、核分裂検出器・回路測定系の構築・東北大学ダイナミトロン型加速器を用いた $^{237}\text{Np}$ の核分裂断面積の予備測定を実施し、核分裂断面積測定のための環境を整えた。

---

本報告書は、東北大学が動力炉・核燃料開発事業団 (現 核燃料サイクル開発機構) の委託により実施した研究成果に関するものである。

機構担当部課室：大洗工学センター 基盤技術開発部 炉心技術開発室  
(現 システム技術開発部 炉心技術開発グループ)

\*東北大学 工学部 量子エネルギー工学科

## 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 followings were performed in this fiscal year; (1) Research of nuclear data of MA, (2) Sample preparation and sample mass assay, (3) Investigation of neutron sources with the energy of several 10 keV, (4) Preliminary measurement of fission cross section using Dynamitron accelerator.

As the result, four  $^{237}\text{Np}$  samples were prepared and the sample mass were measured using alpha-spectrometry with the accuracy of 1.2%. Then, it was confirmed that a neutron source via  $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$  reaction using a Li-thick target is suitable for measuring fission cross section of MA in the energy region of several 10 keV. Furthermore, it was verified by the preliminary measurement that the measurement of fission cross section of MA is available using a fission chamber and electronics developed in this study.

---

Work was performed by Tohoku University under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation( Japan Nuclear Cycle Development Institute)

JNC Liaison: core Physics Research Section, Advanced Technology Division  
( Reactor Physics Research Group, System Engineering Technology Division)

\* Department of Quantum Science and Energy, Faculty of Engineering, Tohoku university

## 目次

|                                    |    |
|------------------------------------|----|
| 1. 研究目的                            | 1  |
| 2. 研究内容                            | 1  |
| 3. 研究結果                            | 3  |
| 3.1 断面積ライブラリの現状調査と測定エネルギー領域の検討     | 3  |
| 3.2 $^{237}\text{Np}$ 試料の作成および定量   | 7  |
| 3.3 数10keV領域の中性子源の検討               | 15 |
| 3.4 $^{237}\text{Np}$ の核分裂断面積の予備測定 | 23 |
| 4. まとめ                             | 35 |
| 参考文献                               | 37 |

## 図リスト

|           |  |    |
|-----------|--|----|
| Fig.3.1.1 | Fission cross section of Np-237 between 1 keV and 20 MeV             | 5  |
| Fig.3.1.2 | Fission cross section of Np-237 between 1 eV and 10 keV              | 6  |
| Fig.3.2.1 | Flow chart of ion-exchange separation of Np-237(2/1)                 | 10 |
| Fig.3.2.2 | Flow chart of ion-exchange separation of Np-237(2/2)                 | 11 |
| Fig.3.2.3 | Electro-deposit system and sample foil                               | 12 |
| Fig.3.2.4 | Alpha-spectrometry system  | 13 |
| Fig.3.2.5 | Alpha spectrum of Np-237   | 14 |
| Fig.3.3.1 | Neutron spectrum of quasi-Maxwell distribution from Li(p,n) reaction | 19 |
| Fig.3.3.2 | Flow chart of NESTL  | 20 |
| Fig.3.3.3 | Cross section of Li(p,n) reaction                                    | 21 |
| Fig.3.3.4 | Neutron distributions from Li-thick target                           | 22 |
| Fig.3.4.1 | experimental setup and electronics                                   | 29 |
| Fig.3.4.2 | Li-target  | 30 |
| Fig.3.4.3 | Back-to-Back Fission chamber   | 31 |
| Fig.3.4.4 | Determination of Li(p,n) threshold energy                            | 32 |
| Fig.3.4.5 | Fission spectrum from U-235 sample                                   | 33 |
| Fig.3.4.6 | Fission spectrum from U-237 sample                                   | 34 |

## 表リスト

|             |   |    |
|-------------|---|----|
| Table 3.2.1 | Result of alpha-spectrometry for Np-237 samples . . . . .       | 9  |
| Table 3.3.1 | Flight time and time resolution . . . . .                       | 17 |
| Table 3.4.1 | Np and U samples used in this experiment . . . . .              | 25 |
| Table 3.4.2 | Preliminary result of fission cross section ratio . . . . .     | 27 |
| Table 3.4.3 | Preliminary result of fission cross section of Np-237 . . . . . | 28 |

## 1 研究目的

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。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は、環境への負荷低減性に優れているなどの利点があり、その検討が重要である。

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、高速及びエピソード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 (FNL) 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

FNLの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 ( $^{237}\text{Np}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Am}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ ) の微分核分裂断面積を測定する。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 $^{235}\text{U}$ を標準とするバックツーバック (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タイムオブフライト (TOF) 法を採用して、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年度は、これら測定系の整備を行うとともに、 $^{237}\text{Np}$ についての測定を実施した。平成7年度に行った研究項目は、下記の通りである。



- (1) 断面積ライブラリの現状調査と測定エネルギー領域の検討
- (2)  $^{237}\text{Np}$ 試料の作成および定量
- (3) 数十keV領域の中性子源の検討
- (4)  $^{237}\text{Np}$ の核分裂断面積の予備測定

以下、これらの項目について次章で順に報告する。

### 3 研究結果

#### 3.1 断面積ライブラリの現状調査と測定エネルギー領域の検討

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(1)、ENDF/B-VI(2)およびJEF-2(3)である。

Fig.3.1.1に、高速炉内で支配的な中性子エネルギー領域である1keV～20MeVの間の $^{237}\text{Np}$ 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示す。また、Fig.3.1.2には、 $^{237}\text{Np}$ に対する最も新しい核分裂断面積測定結果であるYamanakaら(4)の結果を核データライブラリと比較して示している。

本研究で対象とするMAは、Fig.3.1.1に示されている $^{237}\text{Np}$ に代表されるように、およそ数100keVにしきい値を持つ断面積変化をするしきい核分裂性核種である。これらの核の核分裂断面積は、

- (a)しきい値以上の領域（約1MeV以上）： 2 barn 程度で平坦、
- (b)しきい値付近（約100keVから1MeV間）： 急激に変化、
- (c)しきい値以下の領域（約100keV以下）： 10 mbarn 程度で平坦

の3つエネルギー領域に大別できる。

これらの領域それぞれの断面積データの現状を見ると、(a)のしきい値以上の領域ならびに(b)のしきい値付近では当機関を含め数多くの測定がなされており、ライブラリ間の差はあまり見られない。これに対し、(c)のしきい値以下の領域では、測定データ間に顕著な差が見られ、これにより核データ間にも大きな違いが存在する。JENDL-3.2とENDF/B-VIの間にはこの領域で、100%を越える差がある。さらに、Fig. 3.1.2を見ると、両者の間のこの大きな差は10keV以下の領域についても、同様であることが確認できる。近年測定されたYamanakaらの結果はこれらの間でJENDL-3.2の値を支持する結果になっている。

以上の調査から、(c)の領域における断面積の測定が急務であることがわかる。特に、鉛スペクトルメータを用いるYamanakaらの測定手法では、エネルギー的に10keV程度までが上限であると考えられるので、(c)の領域の中の、10keV以上100keVまでの測定が現在最も重要なものであると考えられる。そこで、本研究では、この数十keV領域の測定を実施することとする。このエネルギー領域は、FNLダイナミト

ロン型加速器を用いて通常の発生させているエネルギー領域（数百keV以上）と異なるため、新たな中性子源の開発が必要となる。この中性子源の開発について、3.3節で報告する。

# NP237 FISSION CROSS SECTION

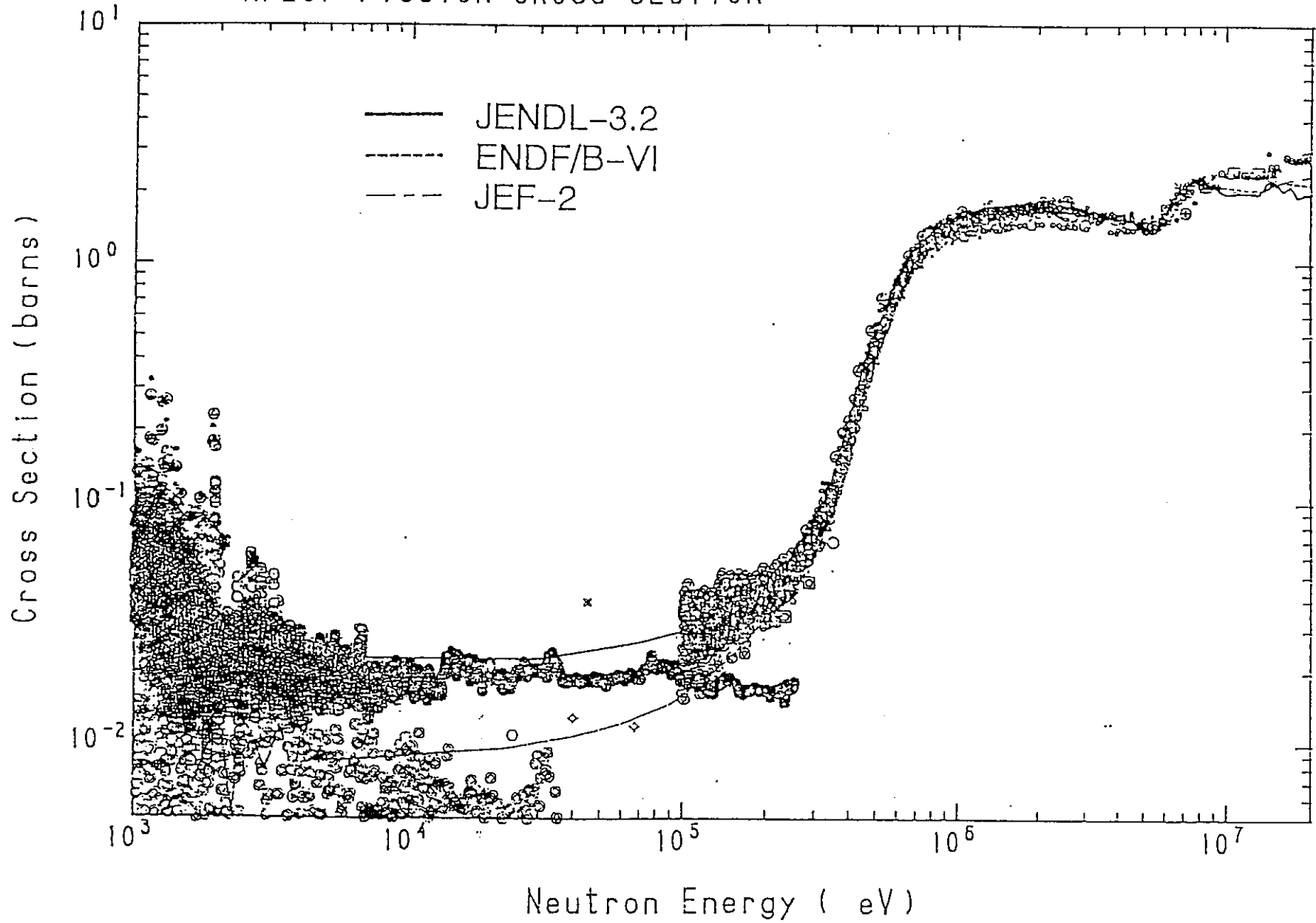


Fig.3.1.1 Fission cross section of Np-237 between 1 keV and 20 MeV

# $^{237}\text{Np}$ fission cross section

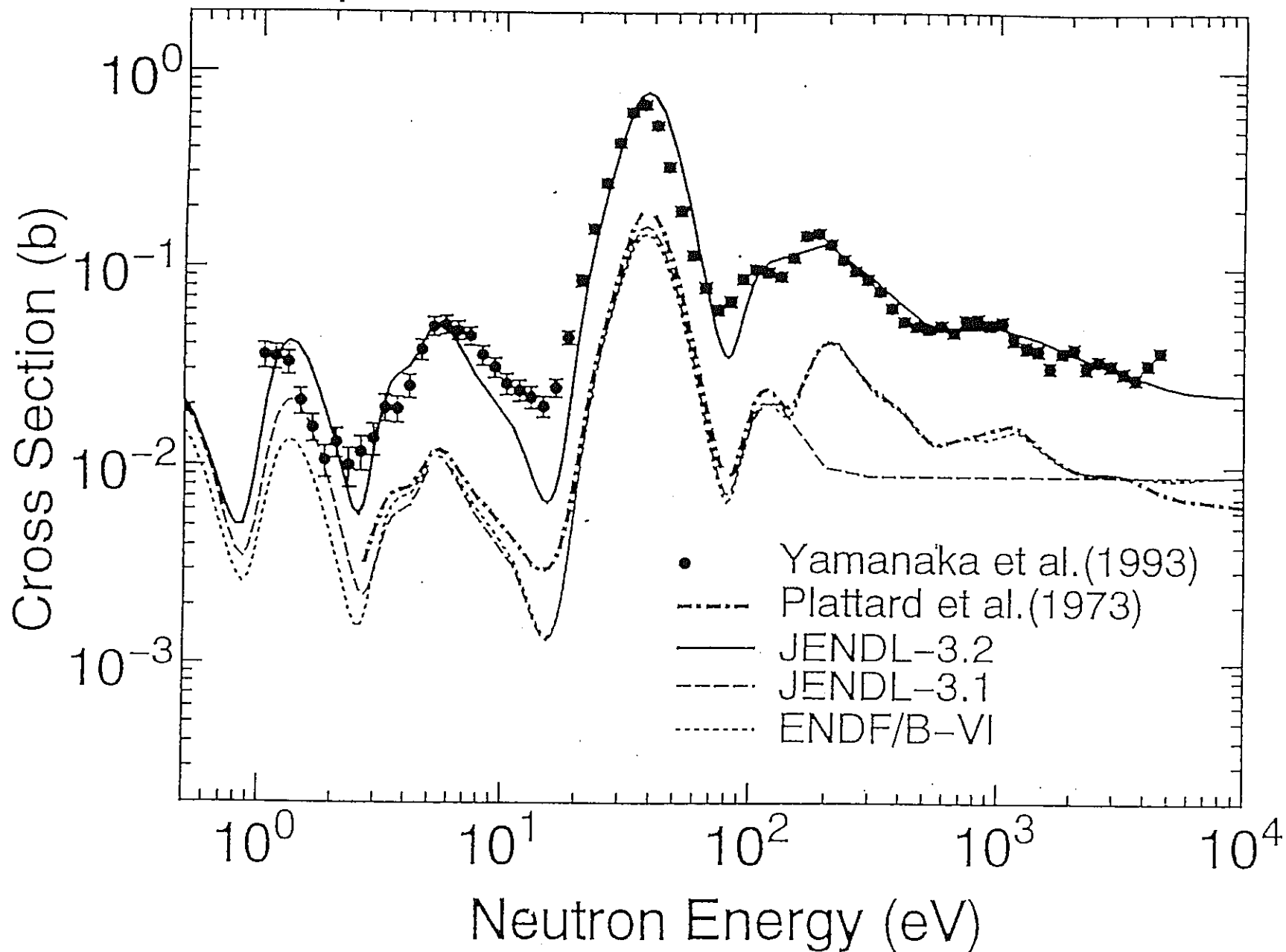


Fig.3.1.2 Fission cross section of Np-237 between 1 eV and 10 keV

### 3.2 $^{237}\text{Np}$ 試料の作成および定量

本研究で使用するための $^{237}\text{Np}$ 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。

#### (1) $^{237}\text{Np}$ の精製(5)

もともとなる $^{237}\text{Np}$ 試料には、ウラン、プルトニウム、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、これらを分離精製して高純度の $^{237}\text{Np}$ 溶液を得る必要がある。本研究では、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、試料調整（価数の調整）・溶液のpHをコントロールすることにより多種の元素の分離を行うものである。

Fig.3.2.1および3.2.2に本研究で行ったイオン交換法の具体的な手順を示す。Npを硝酸にて溶解した後、酸化還元剤（塩酸ヒドロキシルアミン）および9M塩酸-0.1Mヨウ化水素等を用いてNpの価数を4価に、Puを3価に揃えた後、pHの異なる塩酸溶液を用いて、FP+Am,Cm、Pu、Np、Uを順次イオン交換分離した。この手順を、2度繰り返すことにより、Npの精製度を高めている。

本手順により、Npの精製前後の不純物割合は、各段階の $\alpha$ 線測定データをもとに評価すると、原子数割合にして

|                 |                         |           |
|-----------------|-------------------------|-----------|
| Impurity / Np = | $7.2 \times 10^{-3}$    | (分離精製前)   |
|                 | $1.6 \times 10^{-5}$    | (1回分離精製後) |
|                 | $3.6 \times 10^{-8}$ 以下 | (2回分離精製後) |

となる。今回行った方法により作成されたNp試料中の不純物割合は0.1ppm以下であり、十分な精製が行われていると考えられる。

#### (2) $^{237}\text{Np}$ の電着

精製されたNp試料をイソプロピルアルコールに溶かし、電着装置にセットした。電着装置は、Fig.3.2.3に示すとおり、ステンレス台座の上に溶液を保持するガラスセル置いたものであり、上部から白金製の陽極を挿入して電着をおこなう。陽極は、

電着密度を一定にするために、モーターによって回転させている。

試料を電着させるバッキングには36mm直径、0.3mm厚の白金板を使用し、ステンレス台座の上に置き、ガラスセルの大きさで決まる25mm直径の部分にNpを電着した(Fig.3.2.3参照)。実際の電着においては、電圧を800V、電流を10mA程度とし、電着に要した時間は30分程度であった。今回作成したNp電着フォイルは4枚である。

### (3)<sup>237</sup>Npの定量

作成したフォイル試料の定量は、 $\alpha$ スペクトロメトリにより行った。Fig.3.2.4に定量システムの構成を示す。 $\alpha$ 検出器には表面障壁型Si半導体検出器を用いており、試料とともに真空容器内にセットされる。今回使用した試料-検出器間距離は10cm、検出器前のアパチャー径は6mmとした。このシステムの幾何学的検出効率 $\epsilon_g$ は、Pokshevaの式(6)により導出し、 $2.175 \times 10^{-4}$ であった。ここで用いたPoskshevaの式の精度は、試料径、検出器径、試料-検出器間距離によって変わるが、ここで用いた条件では誤差1%以下である。

Fig.3.2.5には、この定量によって得られた $\alpha$ 線スペクトルを示す。この図から、Npの $\alpha$ 崩壊に伴い放出される3種類のエネルギーピークが分離されていることがわかり、十分なエネルギー分解能があることが確認できる。

今回作成した4枚の試料の定量結果を、Table 3.2.1に示す。各測定の統計誤差は、0.15-0.44%程度であり、幾何効率(1%)の誤差等を総合したとしても定量の全誤差は最高で1.2%程度である。

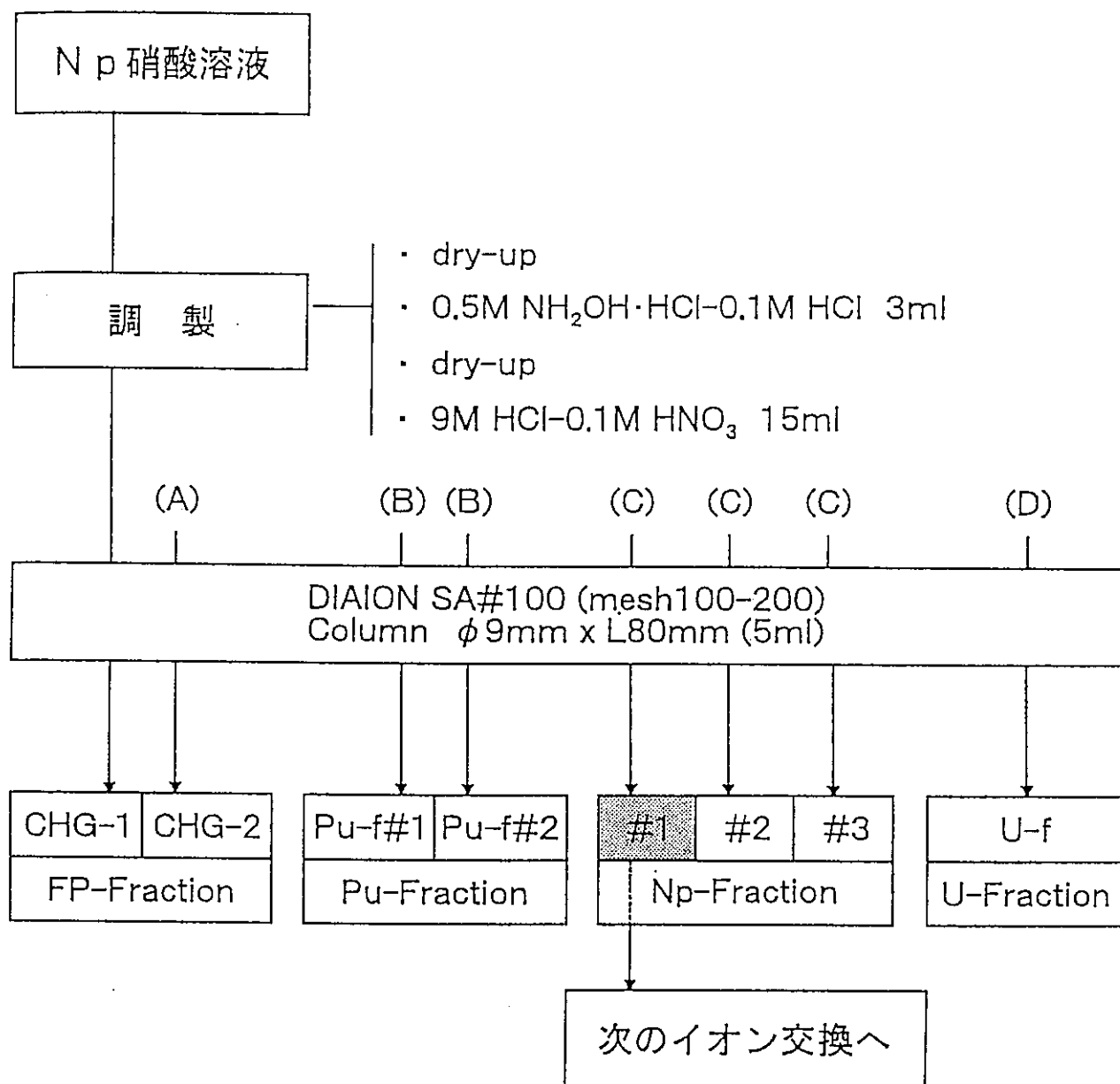
この表から、今回作成した試料4枚の内、3枚は約1mg、残り一枚は約270 $\mu$ gである。なお、一枚作成した薄い試料は、核分裂測定時に試料の厚さ依存性要因をチェックするために用いる予定である。

Table 3.2.1 Result of alpha-spectrometry for Np-237 samples

| Sample No. | Run No. | Counting Rate (cps) | Activity (Bq) | Mass ( $\mu$ g) | Error (%) |
|------------|---------|---------------------|---------------|-----------------|-----------|
| 6          | 1       | 1.554               | 7.14E+3       | 274             | 0.28      |
| 6          | 2       | 1.547               | 7.11E+3       | 272             | 0.20      |
| 8          | 1       | 6.077               | 2.79E+4       | 1070            | 0.44      |
| 9          | 1       | 5.910               | 2.72E+4       | 1041            | 0.44      |
| 11         | 1       | 5.879               | 2.70E+4       | 1036            | 0.15      |



Np試料イオン交換流れ図(1回目)



(A) 9M HCl-0.1M HNO<sub>3</sub> 15ml

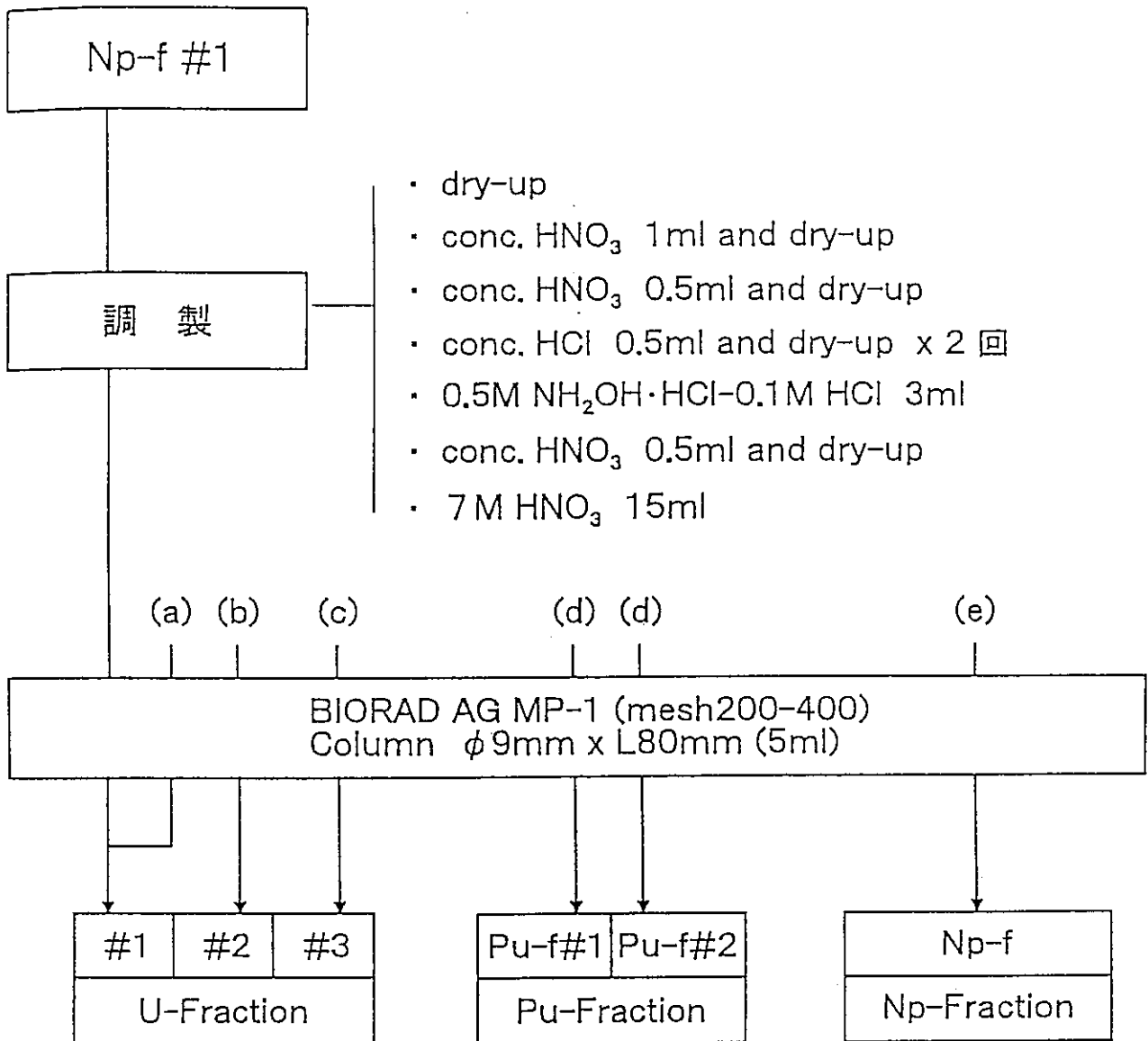
(B) 9MHCl-0.1M HI 30ml

(C) 4M HCl 10ml

(D) 0.1M HCl 15ml

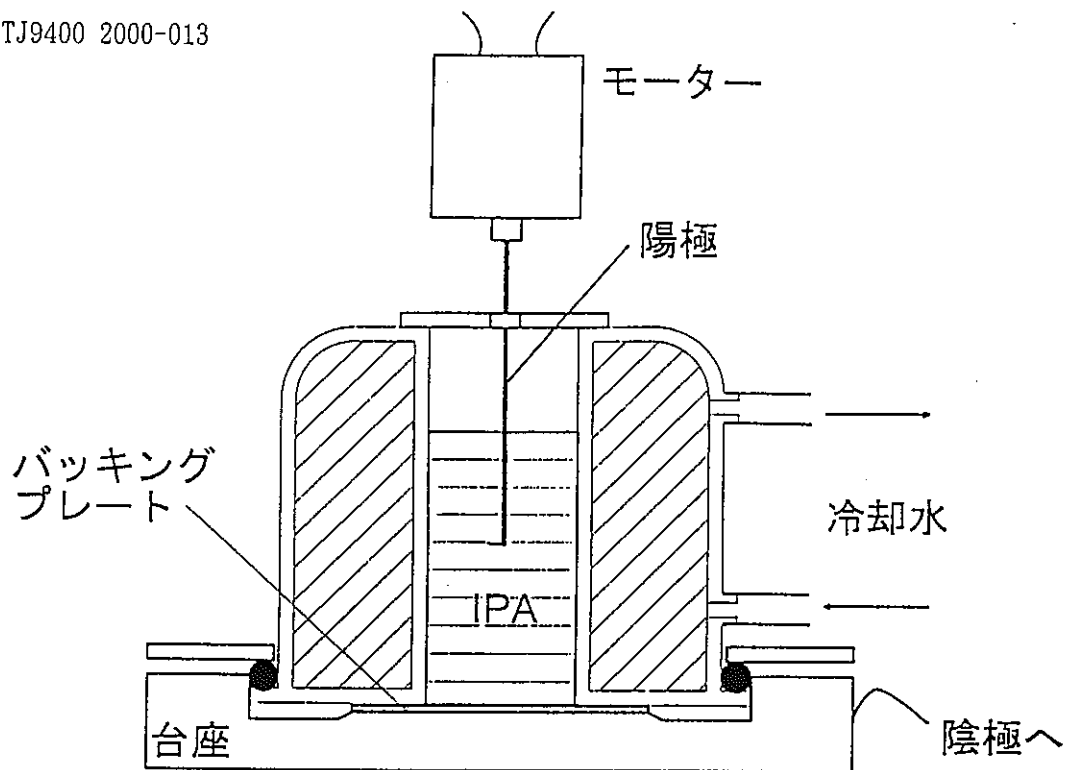
Fig.3.2.1 Flow chart of ion-exchange separation of Np-237 (1/2)

Np-F#1試料イオン交換流れ図(2回目)

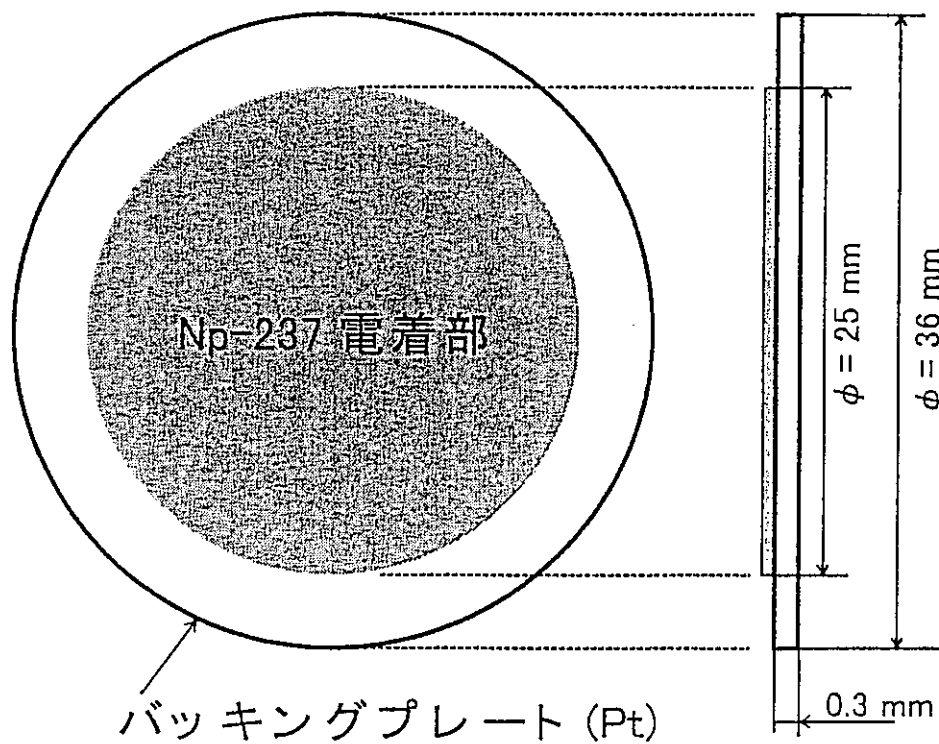


- (a) 7M HNO<sub>3</sub> 35ml
- (b) 7MHNO<sub>3</sub> 65ml
- (c) 12M HCl 15ml
- (d) 9M HCl-0.1M HI 30ml
- (e) 4M HCl 30ml

Fig.3.2.2 Flow chart of ion-exchange separation of Np-237 (2/2)



### 電着体系図



### Np-237 試料

Fig.3.2.3 Electro-deposit system and sample foil

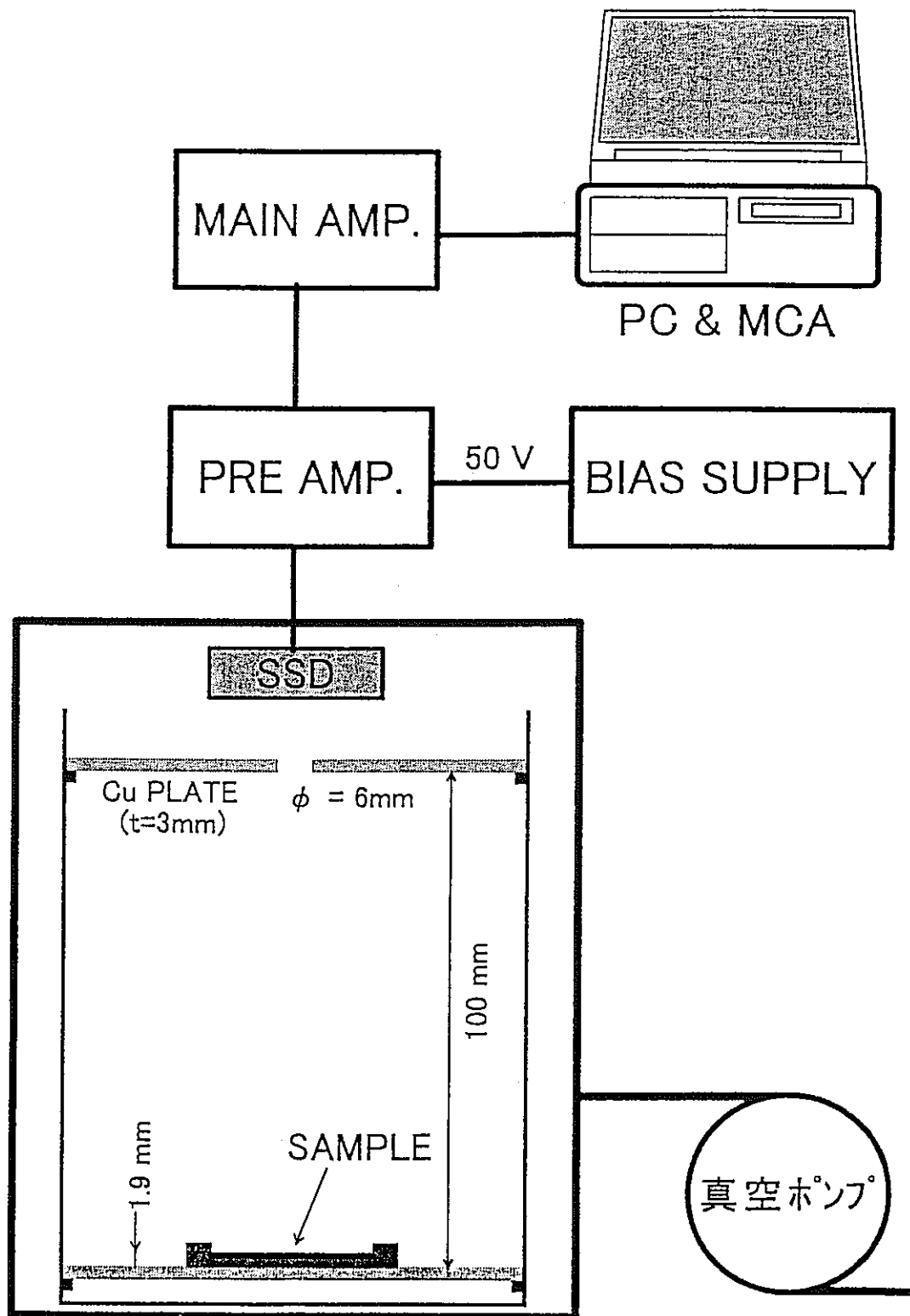


Fig.3.2.4 Alpha-spectrometry system

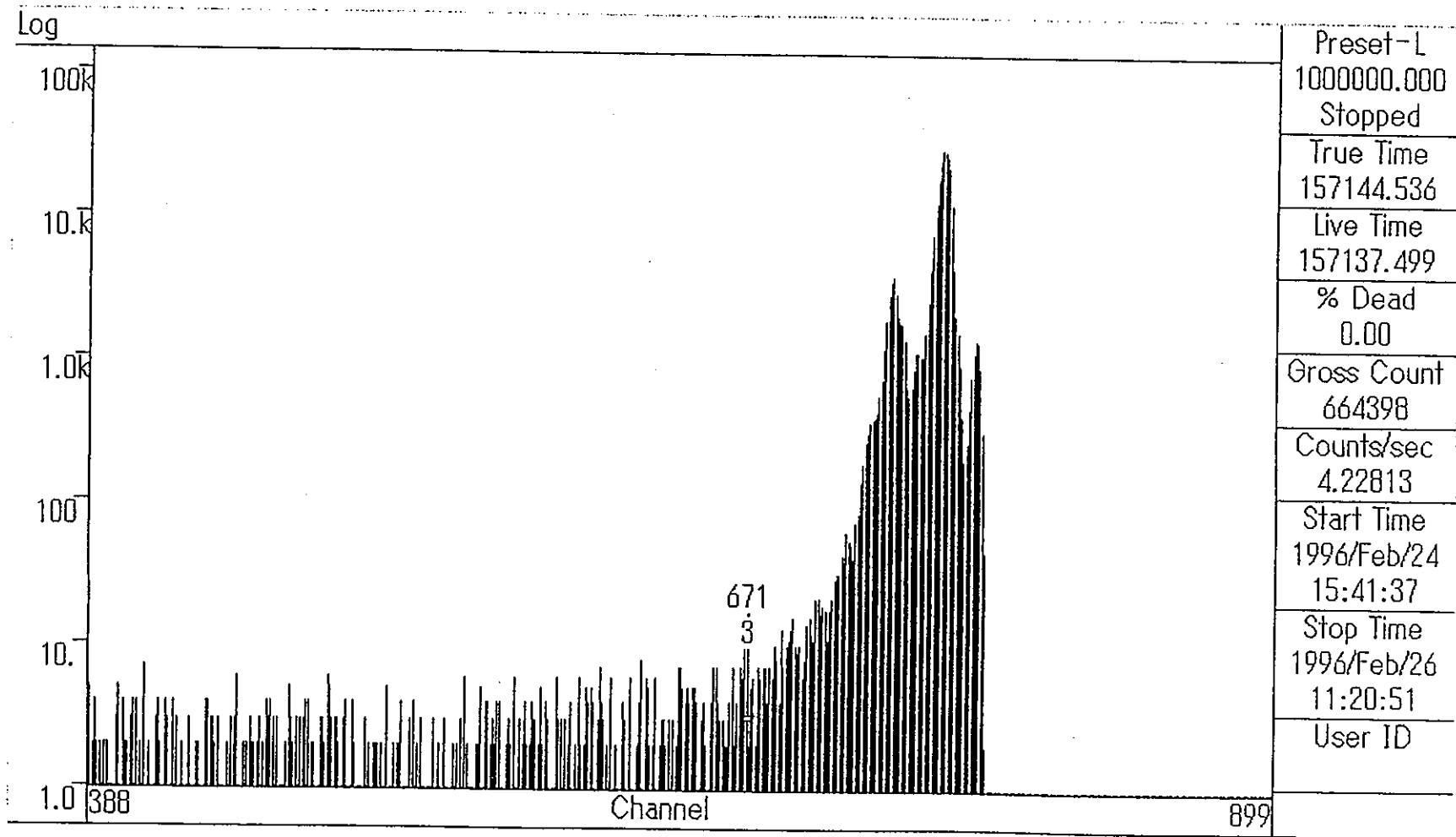


Fig.3.2.5 Alpha spectrum of Np-237

### 3.3 数10keV領域の中性子源の検討

3.1節での検討結果を踏まえ、本研究では数10keV領域の中性子源の開発を行った。

#### (1) ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ 反応による数10keV中性子を利用した研究

数十KeVのエネルギー領域の中性子を発生できる反応は、

- ・  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$        $E_{th}=1.881\text{MeV}$
- ・  $\text{T}(p,n){}^3\text{He}$        $E_{th}=1.019\text{MeV}(\text{fwd})$

が考えられる。本研究では ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ 反応を用いた。この ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ 反応は、 $\text{T}(p,n){}^3\text{He}$ 反応に比べて、測定に必要な条件を持つターゲットが比較的容易に作成できるという利点がある。

${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ 反応を、

- ・ 入射陽子エネルギーが約1.912MeV
- ・  ${}^7\text{Li}$ ターゲットの厚さが入射陽子の飛程に比べ十分長い

という条件で用いると、発生する中性子はFig.3.3.1に示すような $kT \approx 25.3\text{keV}$ のMaxwell型に近いエネルギー分布となる。この分布をもつ中性子に対する断面積は、宇宙物理学の元素合成計算において有用であることから、これまで主にドイツのKarlsruhe研究所で利用されている(7)(8)(9)(10)。また、当研究機関でも、同様の断面積の測定のために、同じ準Maxwell型中性子源を開発し、 ${}^{14}\text{N}(n,p){}^{14}\text{C}$ 断面積の測定に応用した研究も行っている(11)(12)。

本研究では、この厚いLiターゲットによる ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ 中性子源開発の経験を踏まえ、数10keV領域のMA核の微分核分裂断面積の測定にふさわしい中性子源の開発を行う。ここで目的とする中性子源は準Maxwell型中性子源よりも高いエネルギー領域まで連続的にカバーする分布をもつ中性子の発生が必要であるため、 ${}^7\text{Li}(p,n)$ 中性子源シミュレーションコード"Analysis code of Neutron Spectrum Thick Lithium Target - NESTL"を作成し、これにより厚いターゲットを用いた ${}^7\text{Li}(p,n)$ 反応による中性子のエネルギー分布をシミュレーションして、数10keV領域でのMA核の微分核分裂断面積の測定に適用可能な中性子発生が可能かどうか検討した。

## (2) シミュレーションコード"NESTL"の作成

このコードでは、主として以下の項目を考慮し、中性子源回りの任意の点、あるいは領域の発生中性子のエネルギー分布を解析するものである。

- ・  ${}^7\text{Li}(p,n)$ のkinematics
- ・  ${}^7\text{Li}(p,n)$ 反応断面積
- ・  ${}^7\text{Li}$ 中での陽子のエネルギー損失

このコードのフローチャートをFig.3.3.2に示す。このコードは入射陽子のエネルギーと重心系での中性子の放出角度をもとに、実験室系放出角度ごとのエネルギースペクトルを与える。この時、重心系の角度分布は等方であると仮定している。ウェイトは上記の3つの項目について考慮してあり、最終的なスペクトル形状にはこれが大きく寄与する。 ${}^7\text{Li}(p,n)$ のkinematicsは重心系から実験室系へのエネルギー変換と重みをヤコビアンで考慮した(13)。 ${}^7\text{Li}(p,n)$ 反応断面積は、アメリカのOak Ridge 国立研究所のMacklinらのものを用いた(14)。この反応断面積はFig.3.3.3に示すように精度よく測定されており、中性子源特性を評価する上で十分である。また、ターゲット中で陽子は、連続的に減速しながら反応することになるため、Li中での陽子のエネルギー損失のデータとしてJ.F.Janniによる実験値に基づいたもの(15)を用いた。なお、エネルギー損失データは本計算コードで用いる領域では比較的平坦な形状を示していることから、kinematics や断面積ほどスペクトル形状には寄与しない。

Fig.3.3.4にこのコードにより得られた結果の例を示す。この図は入射陽子エネルギーを1.9MeVから2.0MeVまで、0.02MeV刻みで変えたときの前方0-10度の方向に発生する中性子のエネルギー分布を計算した結果である。この図から入射陽子エネルギーを変えることにより容易にエネルギースペクトルを変えられるのが確認できる。また、陽子のエネルギーを1.98MeV程度にすることにより、10keVから200keV程度までの連続なエネルギー分布を持つ中性子をなめらかな分布で発生することができることがわかる。

## (3) 微分核分裂断面積測定への応用の検討

${}^7\text{Li}(p,n)$ 反応を用い、ダイナミトロン型加速器を用いて陽子を1.98MeV程度に加速することにより、数10keV領域の中性子発生が可能であることが確認された。この数10keV領域の連続エネルギー中性子源を用いて、核分裂検出器をターゲットの近くに

において微分核分裂断面積を測定するためには、TOF法により中性子エネルギーを弁別しなければならない。

TOF法による中性子エネルギーの分解能はターゲット-検出器間距離により大きく変化する。ターゲット-検出器間距離をL(m)、中性子エネルギーをE(MeV)とすると、中性子の飛行時間Tおよび時間分解能dTは次式で与えられる。

$$T = \frac{72.3 \cdot L}{\sqrt{E}}$$

$$dT = \frac{T}{2 \cdot E} \cdot dE$$

この式をもとに、L=20cmの時のTおよびdTを求めた結果を以下の表に示す。

Table 3.3.1 Flight time and time resolution

| E<br>(keV) | L = 20 (cm) |                       |
|------------|-------------|-----------------------|
|            | T<br>(nsec) | dT/dE<br>(nsec/10keV) |
| 10         | 144.6       | 72.4                  |
| 30         | 83.4        | 14.0                  |
| 50         | 64.6        | 6.6                   |
| 80         | 51.0        | 3.2                   |
| 100        | 45.6        | 2.3                   |

この表から目的とする数十keV領域において、測定系の時間分解能が3～6nsec程度あれば10keVのエネルギー分解能が得られることがわかる。実際の測定において、時間分解能を支配する項目としては、

- ・発生中性子パルス幅
- ・核分裂計数管時間分解能（測定回路込み）

が主たるものである。今までの当研究機関での核分裂断面積の測定の経験から判断



すると他の要因も考慮した総合時間分解能はおおむね3nsec程度、大きくても5nsec程度と考えられるので、検出器-ターゲット間距離を20cm程度とすることにより、十分なエネルギー分離が可能であると推定される。

今後、既存の準Maxwell型 ${}^7\text{Li}(p,n)$ 中性子源に改良を加えることにより、MA核の微分核分裂断面積の測定が実施できるものと考えている。

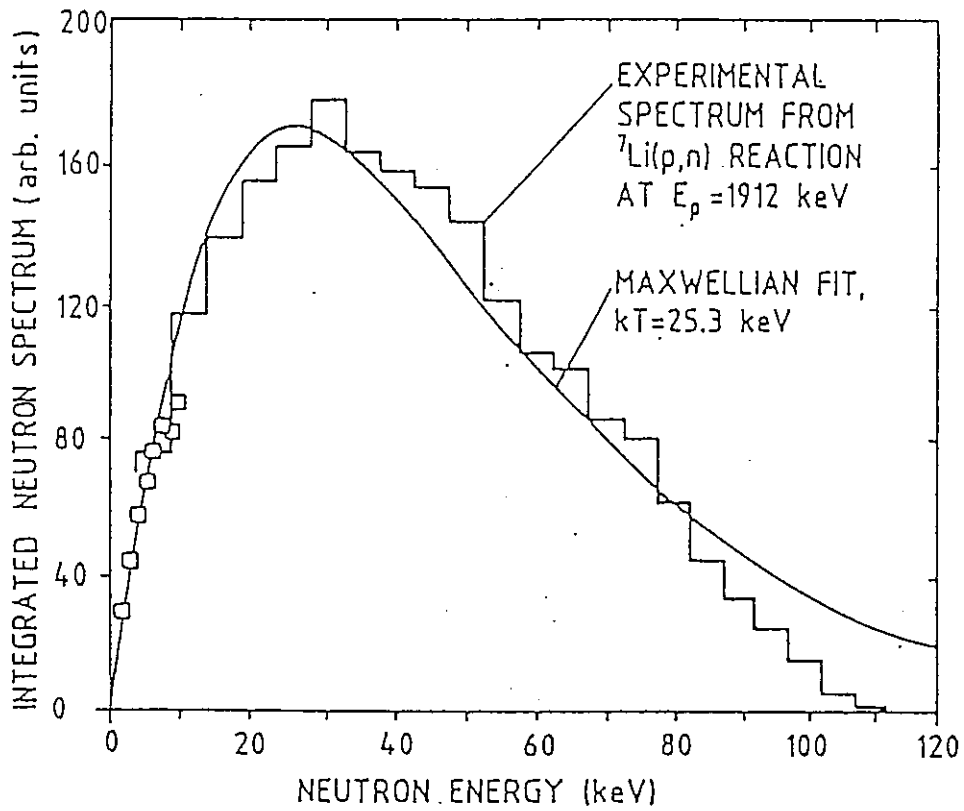


Fig.3.3.1 Neutron spectrum of quasi-Maxwell distribution from Li(p,n) reaction



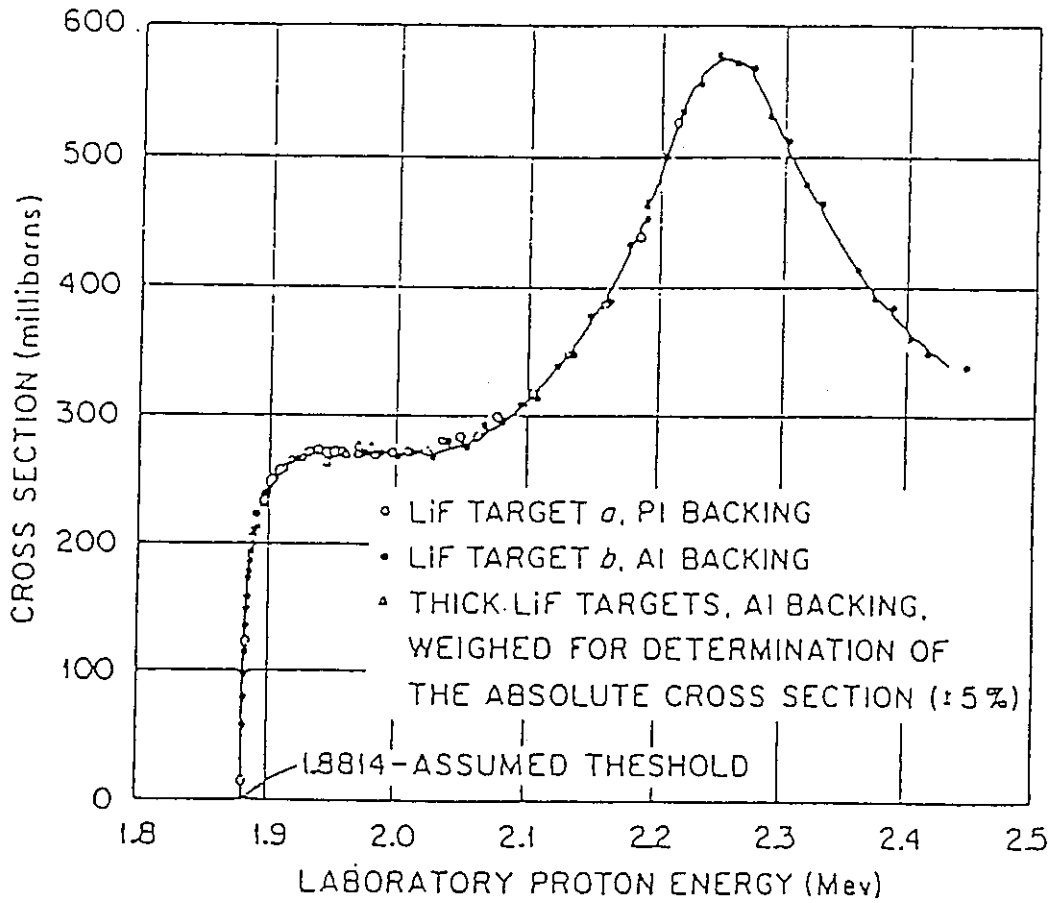


Fig.3.3.3 Cross section of Li(p,n) reaction

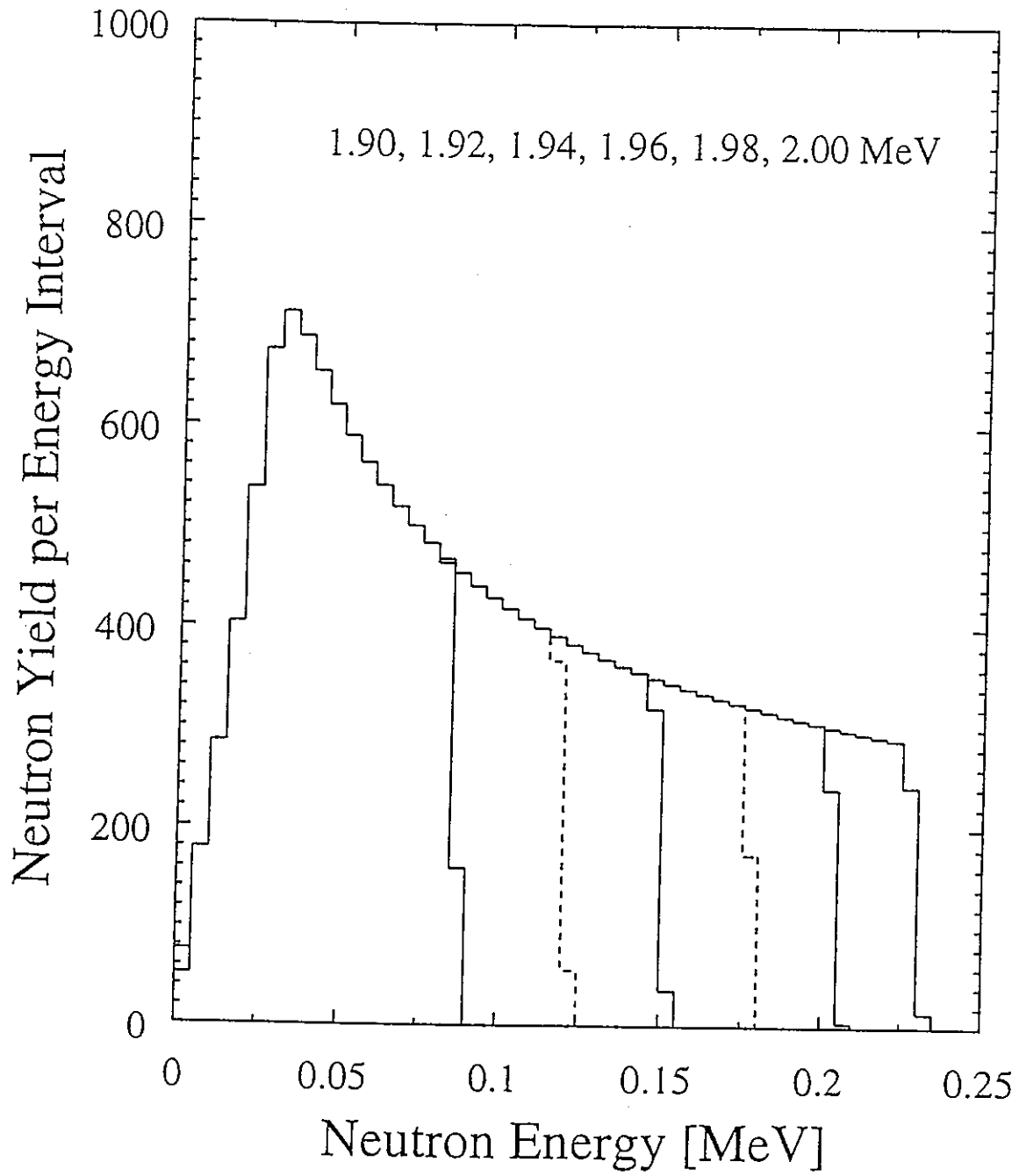


Fig.3.3.4 Neutron distributions from Li-thick target

3.4  $^{237}\text{Np}$ の核分裂断面積の予備測定

平成7年度は、すでに開発済みの $^7\text{Li}(p,n)$ 反応による準Maxwell型中性子源を用い、検出器系の整備を行うとともに、核分裂測定の前備測定を行った。

## (1)測定方法 [添付文献 1,2 参照]

本研究では、BTB (Back-to-Back) 検出器を用い、標準核種として $^{235}\text{U}$ を用い、 $^{237}\text{Np}/^{235}\text{U}$ 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。

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

|     |      |   |                                       |
|-----|------|---|---------------------------------------|
| ここで | R    | : | $^{237}\text{Np}/^{235}\text{U}$ 断面積比 |
|     | C237 | : | $^{237}\text{Np}$ の核分裂計数              |
|     | C235 | : | $^{235}\text{U}$ の核分裂計数               |
|     | N237 | : | $^{237}\text{Np}$ の原子数                |
|     | N235 | : | $^{235}\text{U}$ の原子数                 |
|     | 添字 f | : | $^{237}\text{Np}$ 試料がターゲットに面した時       |
|     | 添字 b | : | $^{237}\text{Np}$ 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、試料バックシールド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高いものとなる。なお、核分裂計数の導出に当たっては、 $\alpha$ 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ものの、過去の経験から判断するとこの補正は数%以下と大きなものとはならない。

## (2)実験配置

ここで行った核分裂断面積測定の実験配置をFig.3.4.1に示す。

### a)中性子ターゲット

今回使用したLiターゲットをFig.3.4.2に示す。このターゲットは、LiFを蒸着した白金板をターゲット先端部に半田付けしたものである。このターゲット部全体はビームダクトに絶縁装着され、ターゲット部に入射した陽子数をモニターできる構造としている。陽子照射時には、ターゲット部の温度上昇をさけるため空気を吹き付け冷却を行っている。なお、今回の実験の時の陽子電流は、 $4\mu\text{A}$ 程度であった。なお、ここで用いたLiはLiFであるが、金属Liを使用すると単位エネルギー損失当たりのLi原子数が約3倍に増やすことができるので、今後の測定には金属Liを用いる予定である。

### b)核分裂検出器

Fig.3.4.3に、BTB型核分裂検出器を示す。検出器全体はステンレス製で、内部に2枚の電極があり、中心部に背中合わせの2枚の試料がセットされる。検出ガスには、Ar+CO<sub>2</sub>ガスを用い、ガスフロー型平行平板電離箱として動作させている。検出器全体は、検出器全体を容易に180度回転できる様な支持金具が取り付けられている。

### c)実験配置

今回の測定に使用した実験配置はFig.3.4.1に示したとおりであるが、核分裂検出器はLiターゲットから約5cmの位置に配置している。この位置に置くことにより、Maxwell型に近い連続中性子スペクトル (Fig.3.3.1) により試料が照射されることとなる。実験においては、発生中性子量をモニターするためのBF<sub>3</sub>検出器が核分裂検出器の後方にセットされた。このBF<sub>3</sub>検出器と先に述べたターゲット部入射陽子電流計により、発生中性子量のモニターを行っている。今回の測定においては、これらのモニター間の比は一定していた。

## d)測定試料

今回使用した試料の形状は、 $^{235}\text{U}$ ならびに $^{237}\text{Np}$ とも前節のFig.3.2.3に示すとおりである。それらの試料中の目的核ならび不純物原子核の割合をTable3.4.1に示した。なお、ここで使用した $^{237}\text{Np}$ 試料は過去当機関で用いていたものであり、本研究で作成したものではない。ここで使用した $^{237}\text{Np}$ 試料中の原子数は、本研究で作成したものの約半分程度であり、本研究で作成した新しい試料を使えば核分裂計数率は倍になると予想される。

Table 3.4.1 Np and U samples used in this experiment

| $^{237}\text{Np}$ |                 |                       | $^{235}\text{U}$ |                 |                       |
|-------------------|-----------------|-----------------------|------------------|-----------------|-----------------------|
| Nuclide           | Atomic Fraction | Total number of atoms | Nuclide          | Atomic Fraction | Total number of atoms |
| Np-237            | 100%            | 9.984E+17             | U235             | 92.649%         | 12.10E+17             |
| Pu-238            | 190ppm          |                       | U234             | 0.774%          |                       |
| -                 | -               |                       | U238             | 6.308%          |                       |

## (3)測定結果

## a)陽子加速エネルギー

前節で述べたとおり、発生中性子中性子エネルギースペクトルは、加速陽子エネルギーに極めて敏感である。このため、加速器の加速エネルギーの決定には通常にはない慎重さが求められる。本研究では、中性子発生量を陽子エネルギーの関数として測定することにより $^7\text{Li}(p,n)$ 反応のしきいエネルギー(1.881MeV)を実効的に決定し、それを基準に加速陽子エネルギーを設定した。この時に用いた中性子モニターは核分裂測定時に使用する $\text{BF}_3$ 検出器である。



Fig.3.4.4に加速器の加速電圧（図では加速電圧メーター指示値）を変えたときのBF<sub>3</sub>検出器の計数率の変化を示した。図中の直線は、有効な計数量を持つ測定データにフィットした直線である。実験時には、この直線から<sup>7</sup>Li(p,n)反応のしきい値に相当する加速電圧メーター指示値を求めた。核分裂測定時の加速陽子電圧は、この値を基準に準Maxwell型分布を与える陽子エネルギーである1.912MeVを決定した。

#### b)核分裂測定

Fig.3.4.5および3.4.6に、<sup>237</sup>Npおよび<sup>235</sup>Uの核分裂片スペクトルを示す。両スペクトルとも $\alpha$ との分離が良好な核分裂片スペクトルが得られていることがわかる。

今回の実験条件における<sup>237</sup>Npの核分裂計数率は0.02cps程度であつることに加え、実験測定系の整備と加速器使用の制限から実際に測定した時間が10時間程度であつたために、十分な計数を取ることができなかった。今後統計誤差の向上や微分断面積測定のためにターゲット-検出器間を20cm程度とする必要がある（20cm位置におくと今回の計数率の1/16程度となる）ことを考えると、<sup>237</sup>Npの計数率を上げるための検討が必要である。現在の所、Li金属ターゲット（約3倍）および今回作成した試料（約2倍）の使用、加速エネルギー増加による中性子収量の増加（約2倍）、陽子電流の増加（約3倍）などによる計数率の改善ならびに加速使用時間の延長（約6倍）により十分な計数が得られるものと考えているが、今後の課題として検討する必要がある。

#### c)断面積比

測定されたスペクトルから低波高核分裂成分の補正を行い、加重平均法により<sup>237</sup>Np/<sup>235</sup>Uの断面積比を導出した。結果をTable3.4.2に示す。今回の測定結果の誤差は、<sup>237</sup>Npの統計誤差に支配され、約8%程度である。

Table 3.4.2 Preliminary result of fission cross section ratio

|    |      | Counts | Corrected Counts* | Cross Section Ratio  |
|----|------|--------|-------------------|----------------------|
| Np | Fore | 609    | 755.2             | 0.0103<br>error 8%** |
|    | Back | 279    | 346.0             |                      |
| U  | Fore | 68225  | 76412             |                      |
|    | Back | 42190  | 47252             |                      |

(\*) Correction factor : 24% for  $^{237}\text{Np}$  and 12% for  $^{235}\text{U}$

(\*\*) Statistical error only

d)  $^{237}\text{Np}$ 核分裂断面積

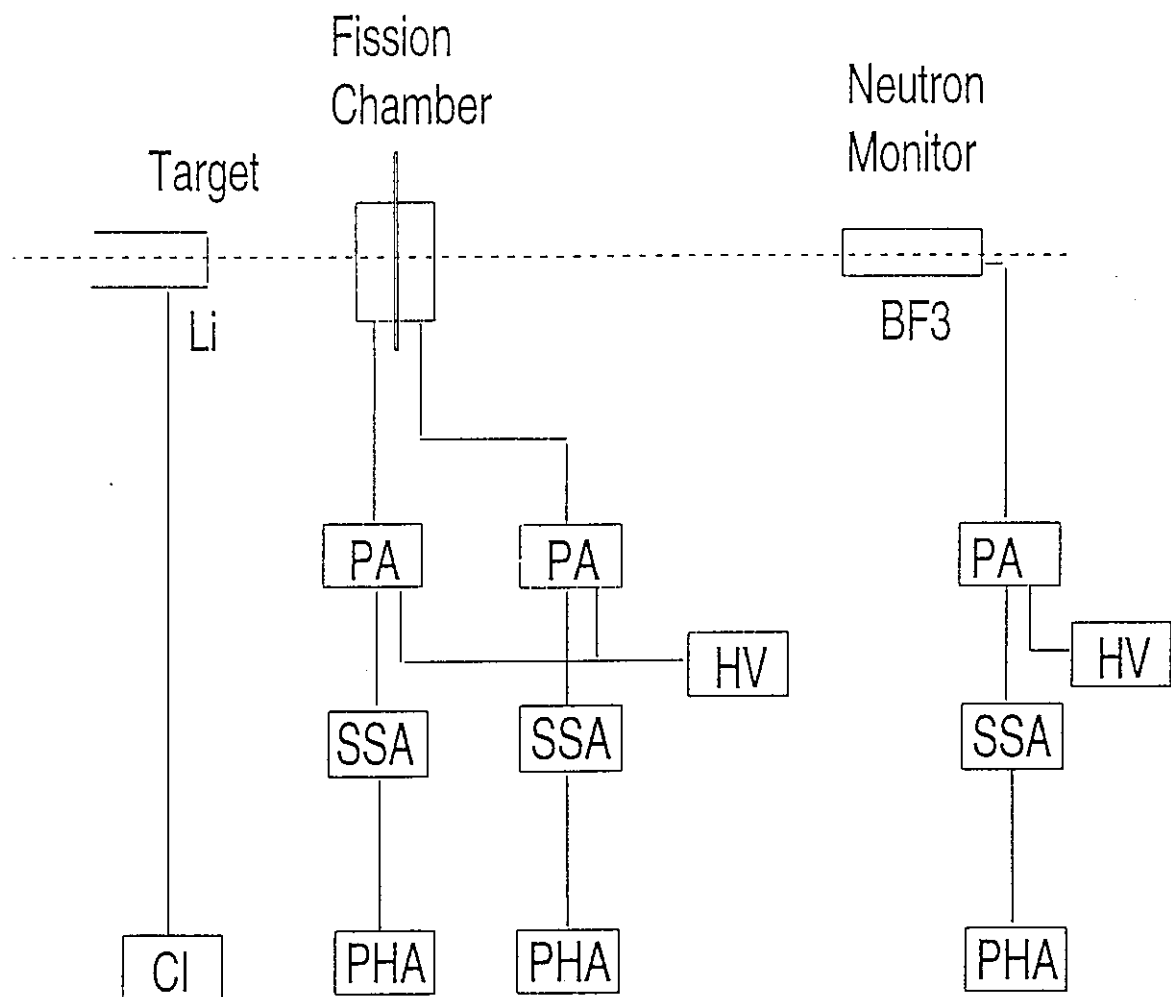
Table3.4.3には、 $^{235}\text{U}$ 断面積として準Maxwell型スペクトル平均の核分裂断面積の値 2.2barn (JENDL-3.2) を標準としたときの $^{237}\text{Np}$ の断面積を示している。

$^{237}\text{Np}$ の断面積はこのエネルギー領域ではほぼ平坦であることから、核データライブラリとの概略の比較が、10および100keVの断面積値と比較することから可能である。JENDL-3.2ならびにENDF/B-VIの値をTable3.4.3に示している。ここでの予備的な測定結果はJENDL-3.2の結果を支持する結果であることがわかる。

Table 3.4.3 Preliminary result of fission cross section of Np-237

|                | Cross Section (barn) |         |
|----------------|----------------------|---------|
| Present Result | 0.022 (error 8%)*    |         |
|                | 10 keV               | 100 keV |
| JENDL3.2       | 0.022                | 0.031   |
| ENDF/B-VI      | 0.008                | 0.015   |

(\*) Statistical error only



PA : Pre Amplifier  
 SSA: Spectroscopy Amplifier  
 PHA: Pulse Height Analyzer  
 HV : High Voltage Power Supply  
 CI : Current Integrator

Fig.3.4.1 Experimental setup and electronics

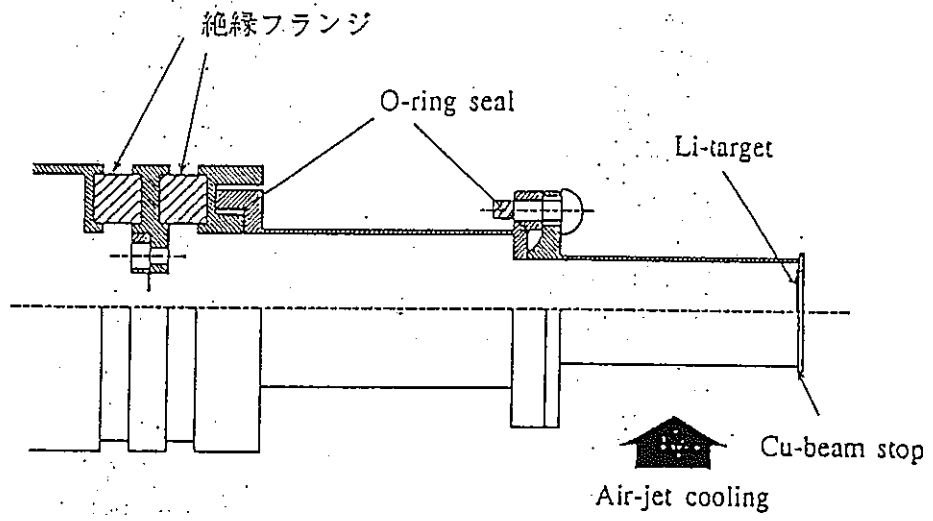


Fig.3.4.2 Li-target

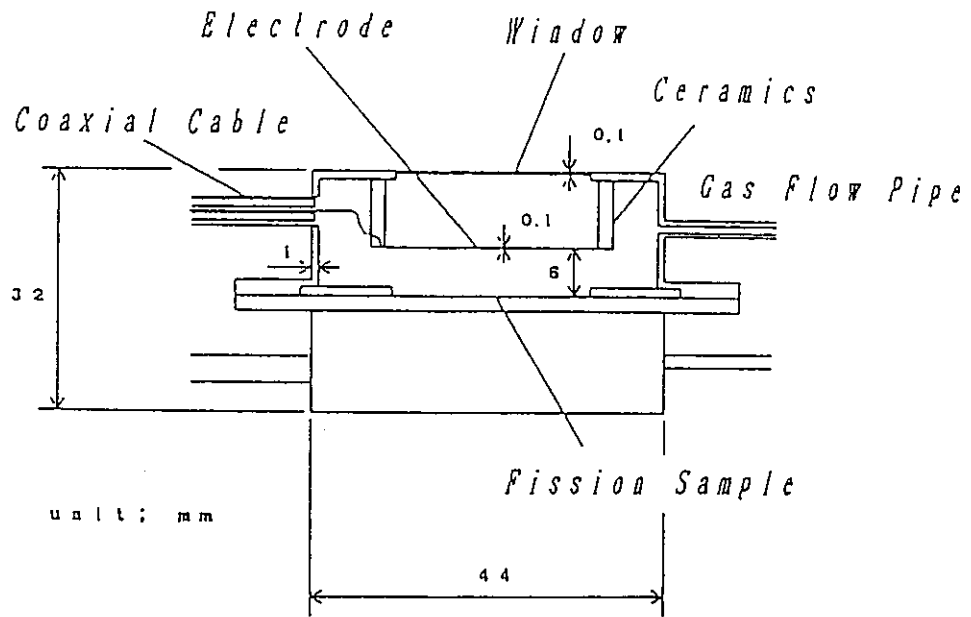


Fig.3.4.3 Back-to-Back Fission chamber

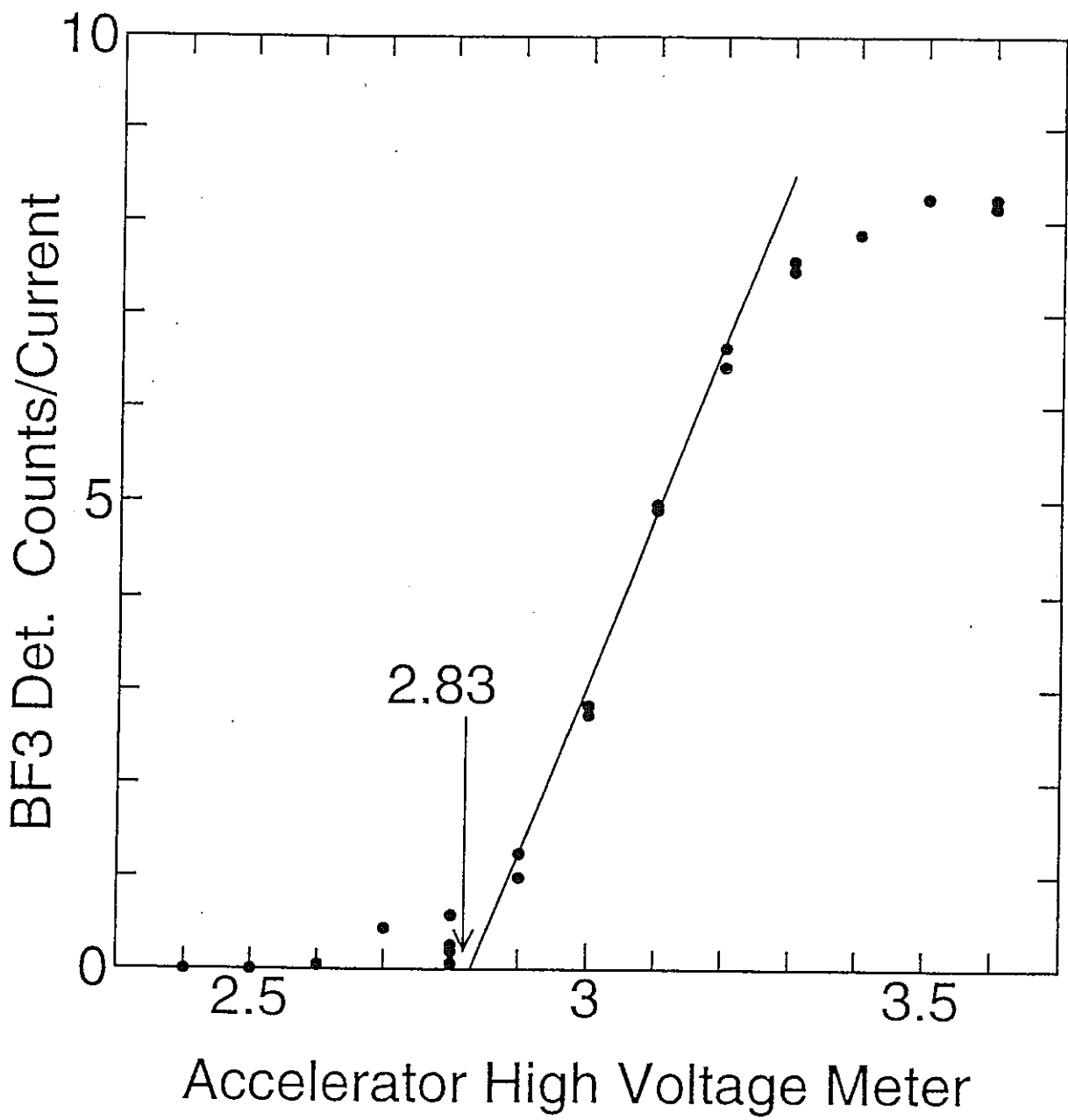


Fig.3.4.4 Determination of Li(p,n) threshold energy

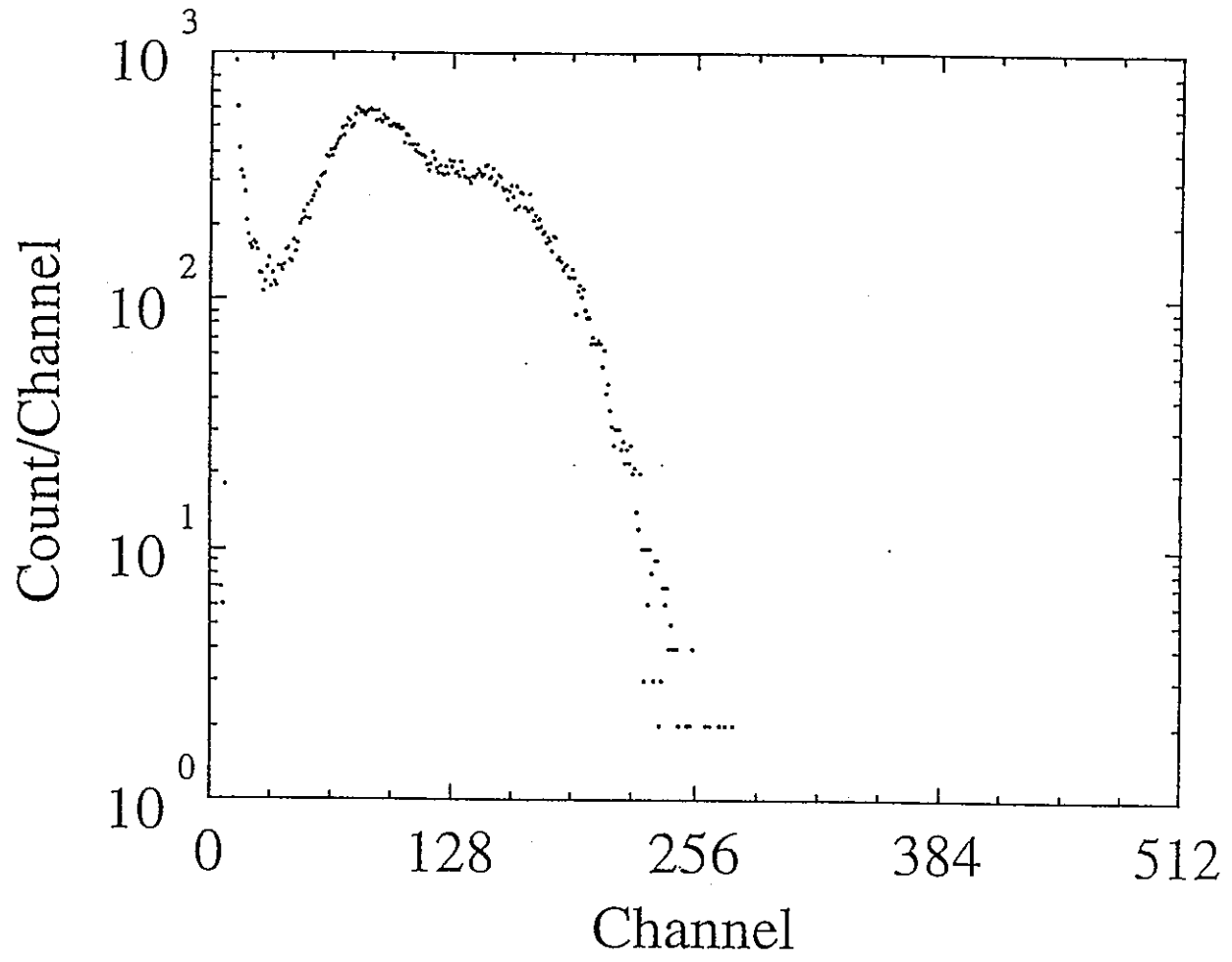


Fig.3.4.5 Fission spectrum from U-235 sample



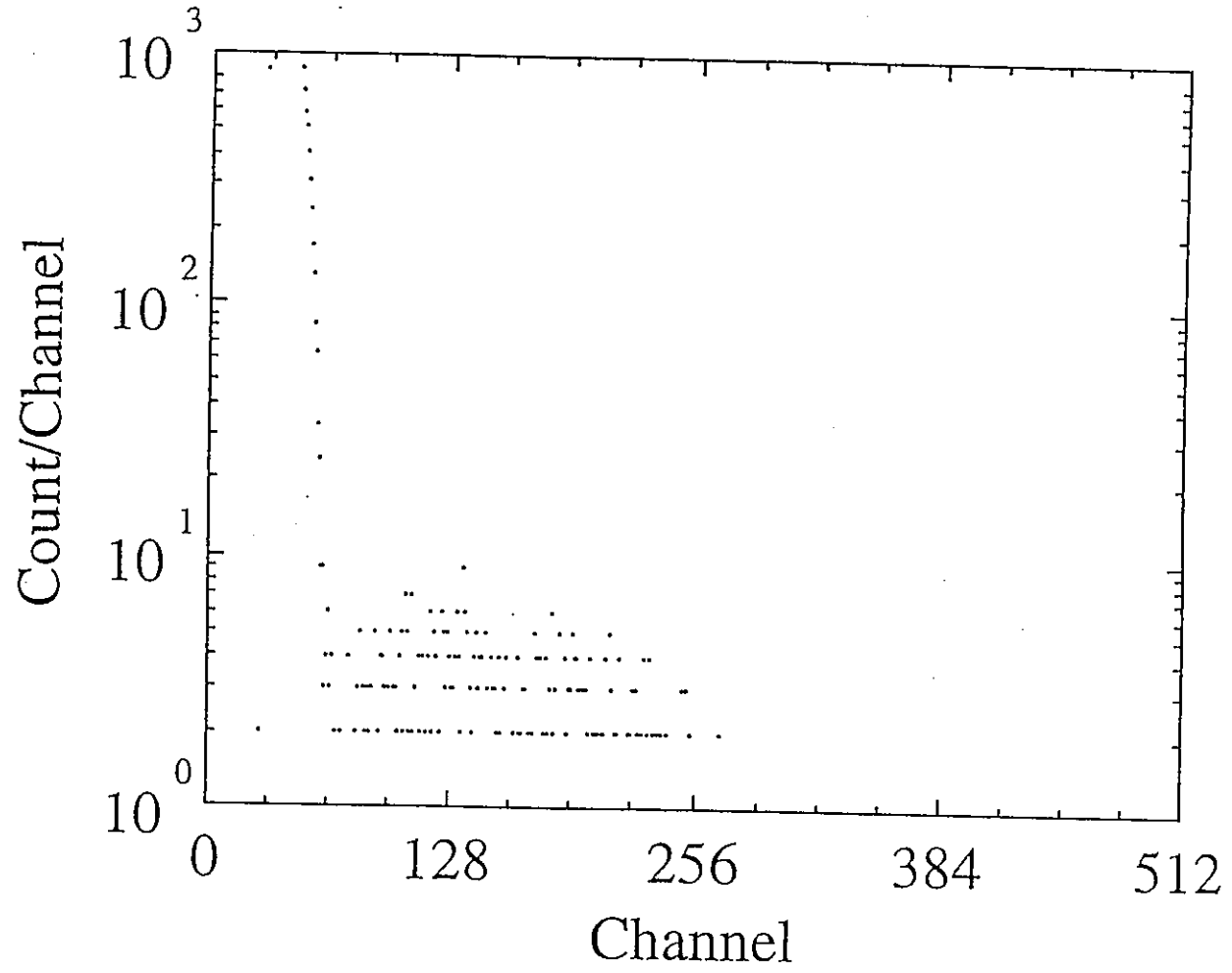


Fig.3.4.6 Fission spectrum from Np-237 sample

#### 4 まとめ

ここでは、アクチニドリサイクルの研究に必要となるマイナーアクチニド (MA) の核反応断面積に関して、東北大学工学部高速中性子実験室 (FNL) のダイナミトロン型加速器による核分裂断面積の測定についての研究を行った。平成7年度に行った研究項目は、下記の通りである。

- (1) 断面積ライブラリの現状調査と測定エネルギー領域の検討
- (2)  $^{237}\text{Np}$ 試料の作成および定量
- (3) 数十keV領域の中性子源の検討
- (4)  $^{237}\text{Np}$ の核分裂断面積の予備測定

これらの研究の結果を以下にまとめる。

- (1) 過去の測定データ、核データライブラリの調査から、100keV以下のエネルギー領域において、測定データ間に顕著な差が見られ、また核データ間にも100%以上の大きな違いが存在することが分かった。このため、100keV以下の領域、特に鉛スペクトルメータを用いるYamanakaらの手法では測定が難しいと考えられる10KeV以上100keVまでの領域に対する測定を本研究では実施する。
- (2)  $^{237}\text{Np}$ 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、イオン交換法および電着法を用いて4枚作成した。作成したフォイル試料について、 $\alpha$ スペクトロメトリにより試料量を誤差1.2%程度で定量した。今回作成した試料4枚の内、3枚は約1mg、残り一枚は約270 $\mu\text{g}$ である。
- (3) 数10keV領域の中性子源として厚いLiターゲットによる $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ 中性子源を考え、中性子源シュミレーションコード"NESTL"を作成し、発生中性子のエネルギー分布を解析した。この結果、陽子のエネルギー1.98MeVで10keVから200keV程度までのなめらかな連続エネルギー分布を持つ中性子の発生が可能であることが分かった。さらに、時間分解能についての検討を行い、数10keV領域におけるMA核の微分核分裂断面積を10keV程度のエネルギー分解能で測定できることを確認した。

- (4) 東北大学ダイナミトロン型加速器を用いて、 $\text{Li}(p,n)$ 反応により準Maxwell型分布の中性子を発生させ、 $^{237}\text{Np}$ の核分裂断面積の予備測定を実施した。検出器には $^{235}\text{U}$ を標準とするバックツープック (BTB) 核分裂検出器を用い、相乗平均法により断面積比を導出した。測定結果は、JENDL-3.2ならびにYamanakaらの結果を支持するものとなり、ENDF/B-VIとは大きな違いを示した。なお、今回の実験条件における $^{237}\text{Np}$ の核分裂計数率は0.02cps程度であり十分な計数が得られなかったため、今後、 $^{237}\text{Np}$ の核分裂計数率を上げるための検討が必要であるが、Li金属ターゲットの作成、今回作成した試料の使用、加速エネルギーの増加、陽子電流の増加および加速使用時間の延長等によって実現できる見通しである。

以上、今年度の研究から、数10keV領域の微分核分裂断面積を測定するための環境がほぼ整備されたと考えている。今後、ここで作成整備した試料・測定系を用い、 $^{237}\text{Np}$ をはじめとするMA核の微分核分裂断面積の測定を行っていく予定である。

参考文献

- (1) K.Schibata et al. JAERI 1319 (1990)
- (2) P.F.Rose et al. BNL-NCS-17541 (1991)
- (3) H.D.Lemmel et al. IAEA-NDS-120 (1993)
- (4) Yamanaka et al. Nucl. Sci. Technol. (1993)
- (5) 篠原伸夫 JAERI-memo 02-418 (1991)
- (6) J.G.Poksheva UCRL-16061 (1965)
- (7) K.Brehm, H.W.Becker, C.Rolfs, H.P.Trautvetter, F.Käppeler and W.Ratynski, Z.Phys., A330, 167 (1988)
- (8) W.Ratynski and F.Käppeler, Phys. Rev. C37, 595 (1988)
- (9) H.Beer and F.Käppeler, Phys. Rev. C21, 534 (1980)
- (10) H.P.Trautvetter, H.W.Becker, U.Heinemann, L.Buchmann, C.Rolfs, F.Käppeler, M.Baumann, H.Freiesleben, H.-J.Lütke-Stetzkamp, P.Geltenbort and F.Gönnenwein, Z.Phys., A323, 1 (1986)
- (11) T.Sanami, M.Baba, I.Matsuyama, S.Matsuyama, T.Kiyosumi, Y.Nauchi and N.Hirakawa, NETU-62, 14 (1994)
- (12) M.Baba et al JAERI-conf. (1995)
- (13) G.G.Ohlsen, Nucl. Instr. and Meth., 37, 240 (1965)
- (14) R.L.Macklin and J.H.Gibons, Phys. Rev. 109, 105 (1958)
- (15) J.F.Janni, Atomic Data and Nucl. Data Tables, 27, 341 (1982)