

高速実験炉「常陽」における  
Nbドシメータを用いた  
高速中性子照射量評価

(研究報告)

2004年3月

核燃料サイクル開発機構  
大洗工学センター

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村松4番地49  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課  
電話：029-282-1122（代表）  
ファックス：029-282-7980  
電子メール：jserv@jnc.go.jp

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)  
2003

2004 年 3 月

## 高速実験炉「常陽」における Nb ドシメータを用いた高速中性子照射量評価 (研究報告)

伊藤主税<sup>\*1</sup>、吉川和伸<sup>\*2</sup>、助川一弥<sup>\*2</sup>

### 要旨

原子炉における燃料、材料等の照射試験やサーベイランス試験では、中性子照射量を精度良く評価することが重要である。このため、高速実験炉「常陽」では、多重放射化箔法による中性子照射量測定を実施してきた。

多重放射化箔法で用いられるドシメータのうち、Nb ドシメータは、<sup>93</sup>Nb の非弾性散乱反応のしきい値が約 30keV と比較的低く、0.1MeV 以上の高速中性子測定に用いられる他、そのエネルギー依存性は鉄の弾き出し損傷関数に類似しており、鉄の dpa 評価に適している。さらには、この反応の生成核種である <sup>93m</sup>Nb は半減期が 16.4 年と長く、長期積算型モニタになる。しかし、Nb ドシメータの反応率測定では、反応生成物から放出される低エネルギーの特性 X 線を測定する必要があり、ドシメータ自身の自己吸収効果による測定精度の低下が課題となっていた。

そこで、本研究では、Nb ドシメータを溶解・乾燥固化処理することにより、低エネルギーの特性 X 線を高精度で測定するとともに、誘導結合プラズマ質量分析装置での重量を精度良く求め、反応率を測定する方法を導入した。この手法を「常陽」のドシメトリーに適用し、0.1MeV 以上の高速中性子照射量を求め、多重放射化箔法による中性子スペクトルから得られた高速中性子照射量と比較した。

その結果、Nb ドシメータによる測定値と多重放射化箔法による評価値の比は 0.97 ~ 1.03 であり、両者の誤差の範囲内で一致し、Nb ドシメータによる高速中性子照射量測定法の信頼性が確認された。Nb ドシメータにより測定した高速中性子照射量の測定誤差は、4.5% (炉中心) ~ 10.1% (燃料貯蔵ラック) であり、Nb ドシメータにより高速中性子照射量を高精度で測定できることを確認した。

今後は、「常陽」 MK-III 炉心の核特性評価や照射試験に本手法を適用していく予定である。

---

\*1 大洗工学センター照射施設運転管理センター実験炉部技術課

\*2 検査開発株式会社

JNC TN9400 2003-091  
March 2004

Fast Fluence Measurement for JOYO Irradiation Field Using Niobium Dosimeter  
(Research Document)

Chikara Ito<sup>\*1</sup>, Kazunobu Yoshikawa<sup>\*2</sup> and Kazuya Sukegawa<sup>\*2</sup>

Abstract

Neutron fluence and spectrum are key parameters in various irradiation tests and material surveillance tests so they need to be evaluated accurately. The reactor dosimetry test has been conducted by the multiple foil activation method, and a niobium dosimeter has been developed for measurement of fast neutron fluence in the experimental fast reactor JOYO. The inelastic scattering reaction of <sup>93</sup>Nb has a low threshold energy, about 30 keV, and the energy distribution of reaction cross section is similar to the displacement cross section for iron. Therefore, a niobium dosimeter is suitable for evaluation of the fast neutron fluence and the displacement per atom for iron. Moreover, a niobium dosimeter is suited to measure neutron fluence in long-term irradiation test because <sup>93m</sup>Nb, which is produced by the reaction, has a long half-life (16.4 years).

This study established a high precision measurement technique using the niobium reaction rate. The effect of self-absorption was decreased by the solution and evaporation to dryness of niobium dosimeter. The dosimeter weight was precisely measured using the inductively coupled plasma mass spectrometer. This technique was applied to JOYO dosimetry. The fast neutron fluences ( $E > 0.1$  MeV) found by measuring the reaction rate in the niobium dosimeter were compared with the values evaluated using the multiple foil activation method.

The ratio of measured fast neutron fluences by means of niobium dosimeter and multiple foil activation method range from 0.97 to 1.03 and agree within the experimental uncertainty. The measurement errors of fast neutron fluence by niobium dosimeter range from 4.5 % (fuel region) to 10.1 % (in-vessel storage rack). As a result of this study, the high precision measurement of fast neutron fluence by niobium dosimeters was confirmed.

The accuracy of fast reactor dosimetry will be improved by application of niobium dosimeters to the irradiation tests in the JOYO MK-III core.

---

<sup>\*1</sup> Reactor Technology Section, Experimental Reactor Division, Irradiation Center,  
O-arai Engineering Center

<sup>\*2</sup> Inspection Development Company, Ltd.

## 目 次

1. 緒言	1
2. Nb ドシメータの反応率測定法	3
2.1 Nb ドシメータの放射化量測定	3
2.2 Nb ドシメータの重量測定	3
2.3 反応率の算出	4
2.4 誤差評価	4
2.5 Nb 中の Ta 不純物の影響	5
3. 「常陽」での Nb ドシメータの照射試験	11
3.1 照射試験条件	11
3.2 多重放射化箔法による中性子照射量評価	11
3.3 Nb ドシメータによる高速中性子照射量測定	12
4. 試験結果	17
4.1 高速中性子照射量測定結果	17
4.2 誤差評価	17
5. 結言	21
謝辞	22
参考文献	23

表リスト

表 2.1 Nb ドシメータの放射化量測定値の誤差	7
表 2.2 Nb ドシメータの重量測定値の誤差	8
表 4.1 高速中性子照射量測定結果	18
表 4.2 Nb ドシメータによる高速中性子照射量測定値の誤差の内訳	19

## 図リスト

図 1.1 $^{93}\text{Nb}(\text{n},\text{n}')$ 反応断面積及び「常陽」炉中心での反応率	2
図 2.1 Nb ドシメータの放射化量測定フロー	9
図 2.2 Ta 不純物の影響の経時変化	10
図 3.1 Nb ドシメータ及び多重放射化箔セットの照射位置 (炉心構成図)	13
図 3.2 Nb ドシメータ及び多重放射化箔セットの照射位置 (断面図)	14
図 3.3 多重放射化箔法による中性子照射量解析フロー	15
図 3.4 Nb ドシメータ照射位置の中性子スペクトルと Nb の 90% 感度範囲	16
図 4.1 高速中性子照射量 ( $> 0.1\text{MeV}$ ) 測定結果	20

## 1. 緒言

原子炉における燃料、材料等の照射試験やサーベイランス試験では、中性子照射量を精度良く評価することが重要である。このため、高速実験炉「常陽」では、多重放射化箔法による中性子照射量測定を実施してきた。

多重放射化箔法で用いられるドシメータのうち、Nb ドシメータ<sup>[1]</sup>は、<sup>93</sup>Nb の非弹性散乱反応 (<sup>93</sup>Nb(n,n')<sup>93m</sup>Nb) のしきい値が 30.73keV と比較的低く、0.1MeV 以上の高速中性子測定に用いられる他、その断面積<sup>[2]</sup>は図 1.1 に示すとおりで、そのエネルギー依存性は鉄の弾き出し損傷関数に類似しており、鉄の dpa 評価に適している。さらには、この反応の生成核種である <sup>93m</sup>Nb は半減期が 16.4 年と長く、長期積算型モニタになる<sup>[1,3]</sup>。しかし、<sup>93m</sup>Nb の反応率測定には、<sup>93m</sup>Nb が放出する特性 X 線を測定する必要があるが、そのエネルギーが 16.6keV、18.6keV と低いため、ワイヤや箔の形状のままではその厚みによる自己吸収効果が大きく、測定精度が低下する。

そこで、本研究では、照射済の Nb ドシメータを溶解し、乾燥固化処理することにより精度良く反応率を測定する手法を導入し、その手法を「常陽」実機の様々な中性子照射場の高速中性子照射量測定に適用し、従来から実施している多重放射化箔法の評価値と比較して、Nb ドシメータの高速炉ドシメトリーへの適用性を評価した。

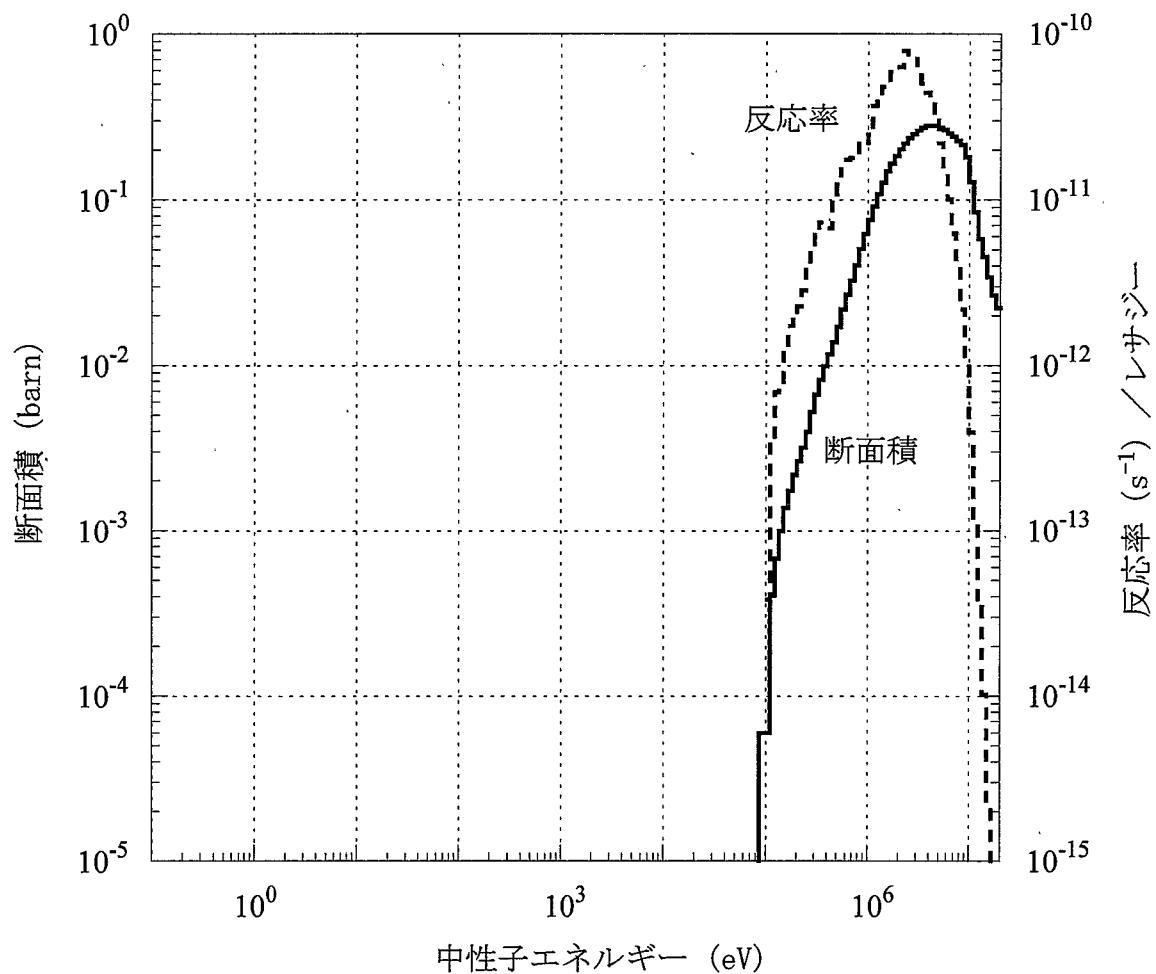


図1.1  $^{93}\text{Nb}(n,n')$  反応断面積及び「常陽」炉中心での反応率

## 2. Nb ドシメータの反応率測定法

### 2.1 Nb ドシメータの放射化量測定

中性子照射による非弾性散乱反応で生成する  $^{93m}\text{Nb}$  は、100% 内部転換により基底状態の  $^{93}\text{Nb}$  に遷移する。この内部転換により軌道電子が放出されて生じた空孔に、より外殻の軌道電子が遷移し、そのエネルギー差に等しい特性 X 線が放出される。特性 X 線のエネルギーは、L 殼から K 殼への遷移時が 16.6keV、M 殼から K 殼への遷移時が 18.6keV である。

Nb の反応率測定では、これらの低エネルギーの X 線を測定する必要があり、ワイヤや箔状のままで測定すると自己吸収の影響が大きく、測定精度が大幅に低下する。そのため、Nb ドシメータを酸で溶解し、さらに乾燥固化させて自己吸収の影響を無視できるレベルまで低減させてから、特性 X 線のピーク強度を測定し、放射化量を求めた。

この放射化量測定フローを図 2.1 に、測定手順の詳細を以下に示す。

#### (1) 試料の溶解

照射済のワイヤ又は箔状の Nb ドシメータを硝酸とフッ酸の混合溶液で溶解し、これを純水で希釈して  $^{93m}\text{Nb}$  の溶液試料を作製する。電子天秤により溶液の重量を測定する。

#### (2) 乾燥固化試料の作製

作製した溶液から  $10^{-1}\text{ml}$  程度を分取し、乾燥させて固化試料を作製する。分取量は、分取時に電子天秤でその重量を測定することにより求める。

#### (3) 特性 X 線スペクトル測定

高純度 Ge 半導体検出器を用いて特性 X 線を測定し、得られたスペクトルから  $^{93m}\text{Nb}$  が放出する 16.6keV、18.6keV の X 線のピーク強度を求める。そのピーク強度から、検出器の検出効率、X 線の放出率、溶液重量及び固化試料作製時の分取量を用いて放射能強度を算出し、冷却時間による減衰分を補正して照射終了時のドシメータの放射化量を求める。

高純度 Ge 半導体検出器の校正については、 $^{93m}\text{Nb}$  の標準溶液からドシメータの場合と同様の手順で乾燥固化試料を作製して測定し、校正值（検出効率）を求めておく。

### 2.2 Nb ドシメータの重量測定

反応率を得るために必要な Nb 原子数は、ドシメータの重量を測定して求めるが、

高フルエンス測定用の箇では、mg 未満の極微量になる場合もある。照射後炉内から取り出された箇は崩れやすくなつており、極微量の箇状ドシメータから剥がれ落ちた小片まですべて回収して精度良く重量及び特性 X 線測定することは困難であり、未回収分の不確かさにより反応率の測定精度が低下する。

そこで、特性 X 線スペクトル測定のために溶液試料を作製することを利用し、誘導結合プラズマ質量分析装置 (ICP-MS) でこの溶液試料中の Nb 濃度を測定して重量を求めた。このフローを図 2.1 に示す。ICP-MS の校正は、Nb 標準溶液から実際にドシメータを溶解する場合の濃度範囲の溶液を作製して、ICP-MS でそのイオン強度を測定し、Nb 濃度との関係を求めることにより行った。得られた溶液試料中の Nb 濃度と溶液試料の重量から、ドシメータの重量を求めた。

### 2.3 反応率の算出

前述で得られた照射終了時のドシメータの放射化量をその重量で除して単位重量あたりの放射化量を求め、「常陽」データ処理装置 “JOYDAS” により採取した原子炉運転履歴データを用いて、Nb 原子数あたりの反応率を算出した。

### 2.4 誤差評価

反応率の誤差を、高純度 Ge 半導体検出器システムによる放射能測定に係る誤差と ICP-MS による重量測定に係る誤差に分けて評価した。

#### (1) 放射能測定に係る誤差

放射能測定に係る誤差の評価結果を表 2.1 に示す。

まず、統計誤差を求めるために、Nb 標準溶液を用いて乾燥固化させた試料を 5 試料作製し、それぞれ高純度 Ge 半導体検出器で X 線のピーク強度を測定した。5 試料の測定値のばらつきは、試料の採取に係る誤差と高純度 Ge 半導体検出器での放射能測定による統計誤差の和となる。一方、このうちの 1 試料のみを前述の 5 試料の測定と同一時間測定すると、放射能測定による統計誤差のみが得られる。両者の差（自乗の差の平方根）は、試料の採取誤差である。これらの評価結果は、表 2.1 のとおりであり、統計誤差の合計で 1.1% と評価した。なお、放射能測定の測定誤差は、16.6keV と 18.6keV の 2 本の X 線ピークについて誤差の重みで平均することにより低減することができる。

次に、系統誤差を求めた。この誤差としては、検出器の校正に用いる Nb 標準溶液線源の線源強度の誤差があり、購入先の AEA Technology 社の検定書に記載された線源強度の誤差 1.6% を採用した。

統計誤差と系統誤差を合わせた放射能測定に係る誤差の合計は、2.7% と評価された。

## (2) 重量測定に係る誤差

重量測定に係る誤差の評価結果を表 2.2 に示す。重量測定に係る誤差についても、放射能測定に係る誤差と同様に、統計誤差と系統誤差に分けて評価した。

まず、統計誤差は、ICP-MS による測定値のバラツキと測定に供される Nb 溶液の採取に係る誤差があり、放射能測定と同様の方法で誤差を求めた結果、統計誤差の合計で 1.2% と評価された。

次に、統計誤差としては、ICP-MS の校正に用いる Nb 標準溶液作製時の Nb 標準試料の重量測定誤差があり、電子天秤による測定誤差から 0.86% と求められた。

統計誤差と系統誤差を合わせた放射能測定に係る誤差の合計は、2.1% と評価された。

## 2.5 Nb 中の Ta 不純物の影響

Nb は、その主要鉱物であるタンタル石、コンブル石中に Ta と共に存しており、Nb 精製後も Ta が不純物として残留しやすい。「常陽」のドシメトリー試験に用いている Reactor Experiments 社の高純度 Nb 箔の Ta 不純物濃度は 500ppm である。 $^{181}\text{Ta}$  は、 $1/\nu$  型の中性子捕獲反応断面積を有し、低エネルギー中性子の寄与が大きい照射場のドシメトリーにおいては、この反応生成物である  $^{182}\text{Ta}$  が  $^{93\text{m}}\text{Nb}$  の特性 X 線測定を妨害する。具体的には、 $^{182}\text{Ta}$  が放出する  $\gamma$  線により  $^{93}\text{Nb}$  が励起され、16.6keV と 18.6keV の特性 X 線を放出し、 $^{93\text{m}}\text{Nb}$  が放出する特性 X 線に加算される。

図 2.2 の○は、「常陽」の軟スペクトル場である原子炉安全容器サーベイランス孔(M3 マンホール) で照射した Nb ドシメータを取り出し、溶解・乾燥固化処理して測定した結果である。一方、同図中の□は、この Nb ドシメータを溶解し、未照射の  $^{93}\text{Nb}$  を添加して、乾燥固化処理して測定したものである。照射済 Nb のみの試料(○)と未照射 Nb 添加試料(□)の  $^{93\text{m}}\text{Nb}$  の重量は同一であるが、 $^{93}\text{Nb}$  の重量は、未照射 Nb 添加試料が未添加試料のおよそ 2 倍になっている。最初の X 線ピーク強度の比もおおよそ同様であり、ピークカウントの大半は、 $^{93\text{m}}\text{Nb}$  によるものではなく、 $^{182}\text{Ta}$  が  $^{93}\text{Nb}$  を励起したものによることがわかる。

$^{182}\text{Ta}$  の半減期は 114 日であり、 $^{93\text{m}}\text{Nb}$  の 16.4 年と比べて大幅に短いので、適切な冷却期間を置いて  $^{182}\text{Ta}$  を減衰させてから  $^{93\text{m}}\text{Nb}$  を測定する必要がある。図 2.2 に示したように、 $^{93\text{m}}\text{Nb}$  の重量が同一になるように作製した照射済 Nb のみの試料と未照射 Nb を添加した試料の X 線ピーク強度の差は、 $^{182}\text{Ta}$  が  $^{93}\text{Nb}$  を励起したものによる差なので、両試料のピーク強度を定期的にモニタする。 $^{182}\text{Ta}$  による  $^{93}\text{Nb}$  の励起の影響が無視できるレベルまで  $^{182}\text{Ta}$  が減衰すれば、両試料の特性 X 線強度は一致し、 $^{93\text{m}}\text{Nb}$  から放出された特性 X 線によるもののみと見なすことができる。また、図 2.2 のように、適当な日数をモニタし、減衰曲線を外挿することにより、 $^{93\text{m}}\text{Nb}$  から放出される

特性 X 線のおおよその強度とそのデータが得られるまでの冷却時間を推定することができる。図 2.2 では、約 700 日後に測定可能となり、ピーク計数率は約  $7 \times 10^{-3}$  cps と予測される。

以上より、Ta 不純物の影響を適切に除去できる冷却時間の設定及びその確認方法を確立できた。

表2.1 Nb ドシメータの放射能測定値の誤差

誤差の種類	誤差要因		誤差( $1\sigma\%$ )			
統計誤差	放射能測定の統計誤差	16.6 keV	0.20	0.18	1.08	2.68
		18.6 keV	0.45			
	Nb溶液の採取誤差			1.06		
系統誤差	Nb標準線源の放射能強度の誤差		1.6	1.6		

表2.2 Nb ドシメータの重量測定値の誤差

誤差の種類	誤差要因	誤差( $1\sigma\%$ )		
統計誤差	ICP-MSによる濃度測定の統計誤差	0.38	1.23	2.09
	Nb溶液の採取誤差	1.17		
系統誤差	Nb標準試料の重量誤差	0.86	0.86	

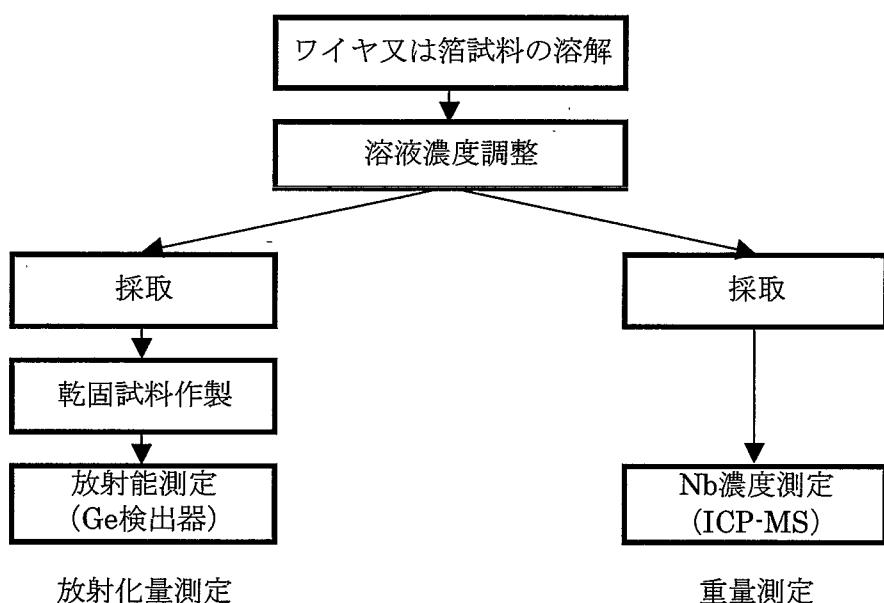


図2.1 Nb ドシメータの放射化量測定フロー

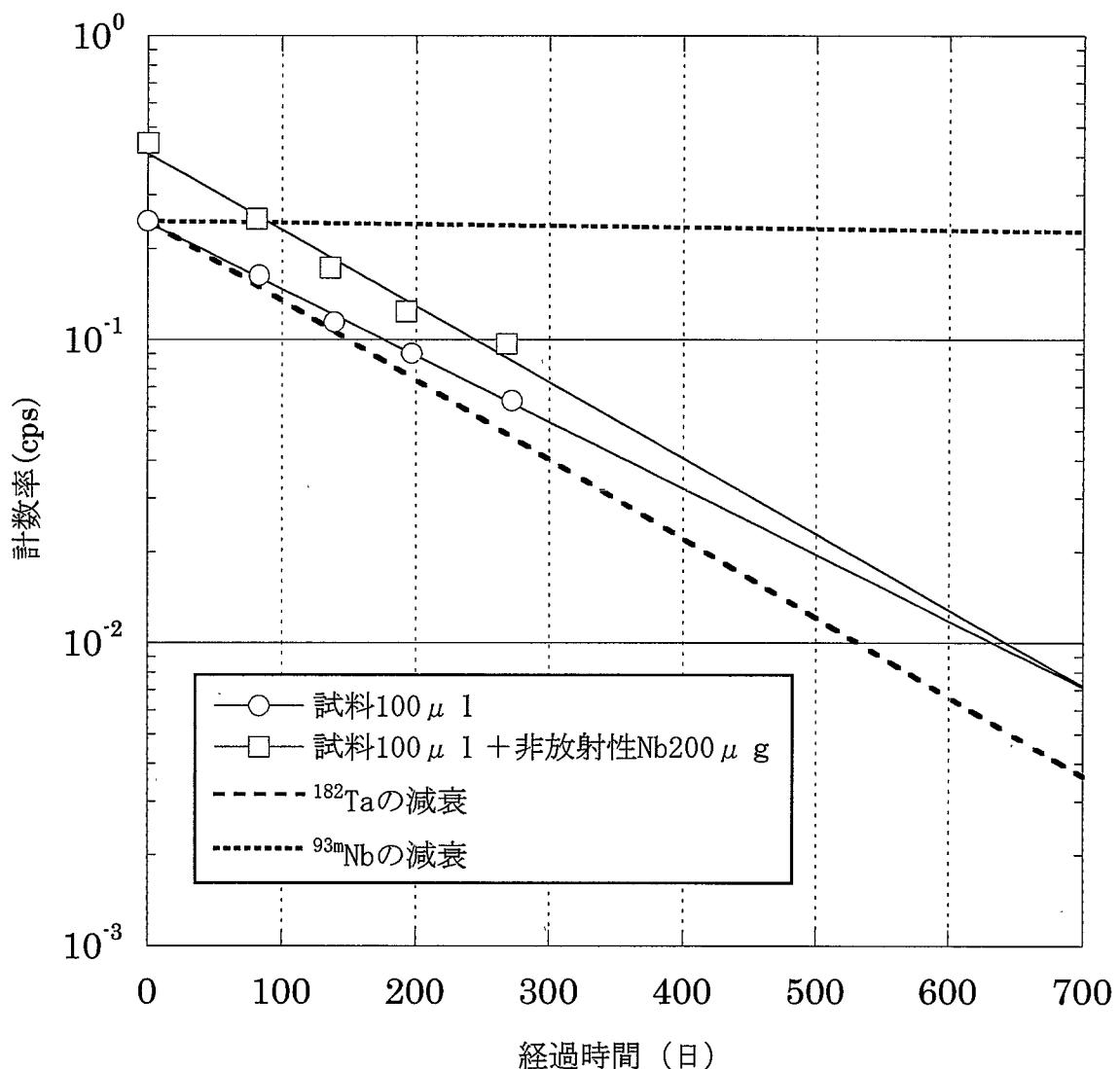


図2.2 Ta不純物の影響の経時変化

### 3. 「常陽」での Nb ドシメータの照射試験

#### 3.1 照射試験条件

「常陽」実機で Nb ドシメータを照射し、反応率を測定して 0.1MeV 以上の高速中性子照射量を求め、高速炉ドシメトリーへの適用性を評価した。

本照射試験では、Reactor Experiments 社製の高純度 Nb 箔(厚さ 2.5μm、純度 99.9%、Ta 不純物含有量 500ppm) を用い、数 mm 四方の寸法に調製した。この Nb ドシメータをサーベイランス試験条件評価用材料照射用反射体 (SVIR-1~3) に装荷して、1999 年 11 月 22 日から 2000 年 6 月 1 日まで、MK-III 移行炉心である 100MW 第 34~35 サイクルにおいて原子炉積算運転時間 117.1EFPD (100MW 換算) 照射した<sup>[4]</sup>。Nb ドシメータの照射位置は図 3.1 及び図 3.2 に示すとおり、①炉中心(炉心アドレス[000])に装荷した SVIR-1 の軸方向炉中心レベル、②SVIR-1 の燃料領域上端部の+258mm 位置、③炉心第 9 列 (炉心アドレス[9B1]) に装荷した SVIR-2 及び④炉内燃料貯蔵ラック (ラック No. 11) に装荷した SVIR-3 の軸方向炉中心レベルの合計 4箇所を選定した。

#### 3.2 多重放射化箔法による中性子照射量評価

照射位置における中性子照射量等の照射条件は、Nb ドシメータと同時に照射した放射化箔を用いて、従来から「常陽」で実施している放射化箔法<sup>[5]</sup>により評価した<sup>[4]</sup>。

放射化箔は、「常陽」の照射試験で標準的に使用しているドシメータセットを用いた。本試験に用いた箔の反応形式は、<sup>63</sup>Cu(n,α)、<sup>46</sup>Ti(n,p)、<sup>54</sup>Fe(n,p)、<sup>58</sup>Ni(n,p)、<sup>237</sup>Np(n,f)、<sup>235</sup>U(n,f)、<sup>58</sup>Fe(n,γ)及び<sup>45</sup>Sc(n,γ)であり、高速炉内の中性子の主要なエネルギー範囲をカバーするように選定している。

ドシメータの照射から中性子照射量を算出するまでの流れを図 3.3 に示す。照射後、炉内から取り出したドシメータの放射化量を高純度 Ge 半導体検出器で測定し、これと原子炉運転履歴データから反応率を測定した。この反応率測定値と断面積セットを用い、2 次元輸送計算コード DORT<sup>[6]</sup>から求めた計算スペクトルを初期推定値として、中性子スペクトル解析コード NEUPAC-Jlog<sup>[7]</sup>によりアジャストし、中性子スペクトルの最適解を求めた。断面積セットには、評価済み核データライブラリ JENDL-3.2<sup>[8]</sup>ベースのドシメトリーファイル JENDL/D-99<sup>[9]</sup>から作成した共分散誤差付きの 103 群 (上限エネルギー 20MeV、下限エネルギー 0.001eV) 断面積セットを用いた。

得られた中性子スペクトルと照射した Nb ドシメータの 90% 感度範囲を図 3.4 に示す。Nb ドシメータの感度範囲はスペクトルの形状に応じて若干異なるが、1 MeV 前後に感度を有する結果となった。得られた中性子束を「常陽」の運転履歴に基づいた定格出力換算の運転日数で積分して中性子照射量を求めた。

### 3.3 Nb ドシメータによる高速中性子照射量測定

照射終了後、Nb ドシメータを取り出し、 $^{182}\text{Ta}$  の影響が無視できることを確認して、2.に示した手順により  $^{93}\text{Nb}(\text{n},\text{n}')^{93m}\text{Nb}$  反応率を測定した。得られた反応率測定値を Nb ドシメータ照射位置の中性子スペクトルで縮約した平均断面積で除し、積算照射時間を感じて高速中性子照射量を求めた。平均断面積の算出には 3.2 に示した多重放射化法で得た中性子スペクトルを用い、これと JENDL/D-99 から作成した 103 群構造の  $^{93}\text{Nb}(\text{n},\text{n}')^{93m}\text{Nb}$  断面積を乗じ、多重放射化法で得た中性子スペクトルを 0.1MeV 以上エネルギー範囲で積分して求めた高速中性子束で除した。得られた平均断面積により、Nb ドシメータを用いた 0.1MeV 以上の高速中性子照射量を算出した。

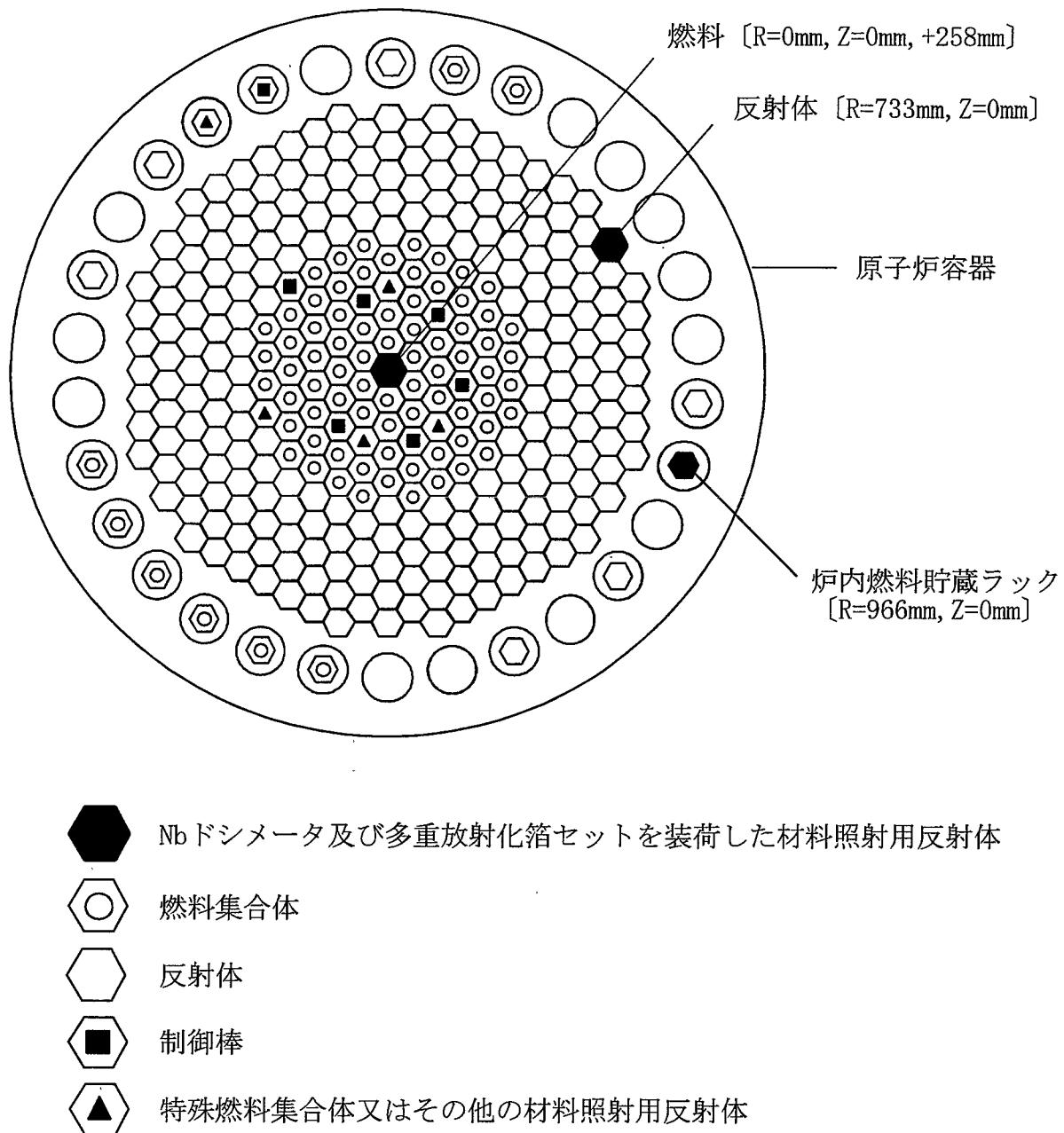


図3.1 Nb ドシメータ及び多重放射化箔セットの照射位置 (炉心構成図)

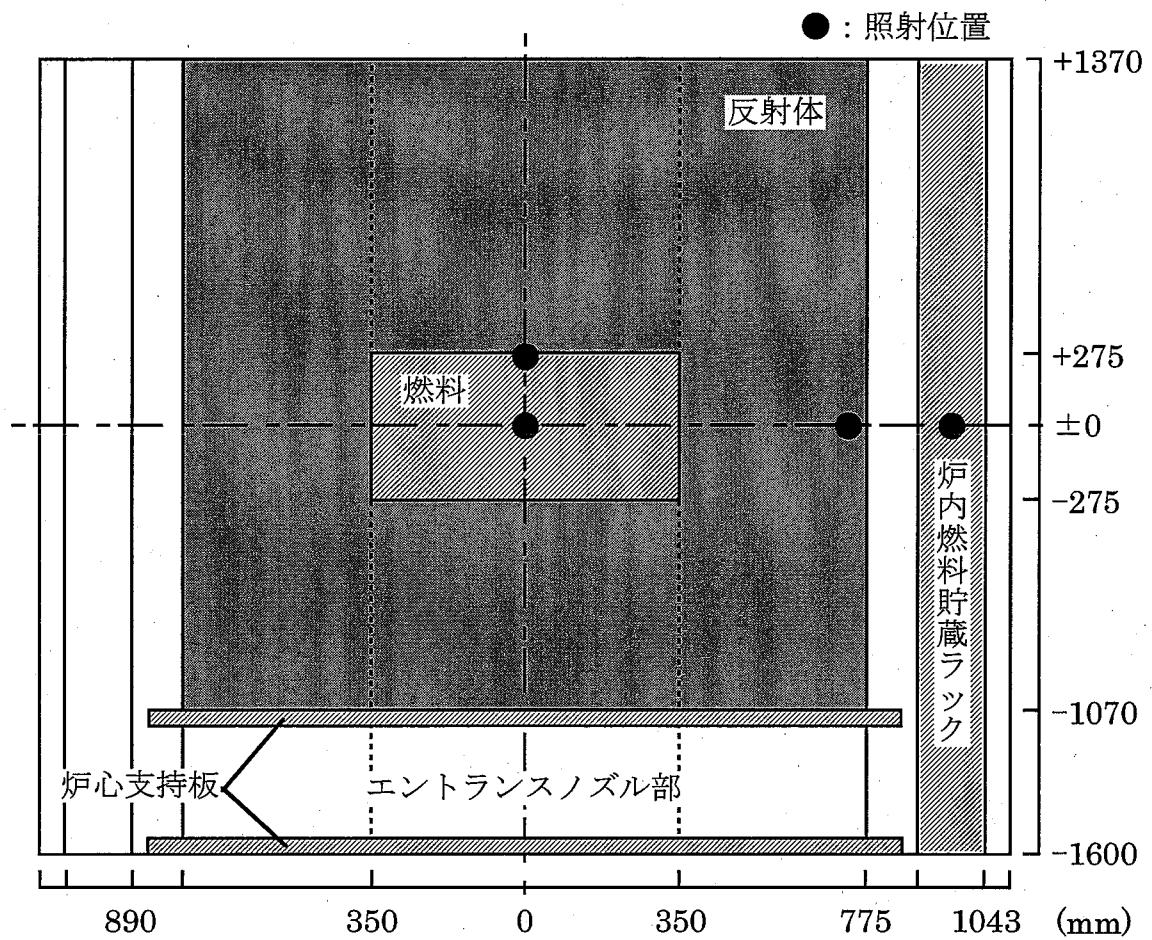


図3.2 Nb ドシメータ及び多重放射化箔セットの照射位置（断面図）

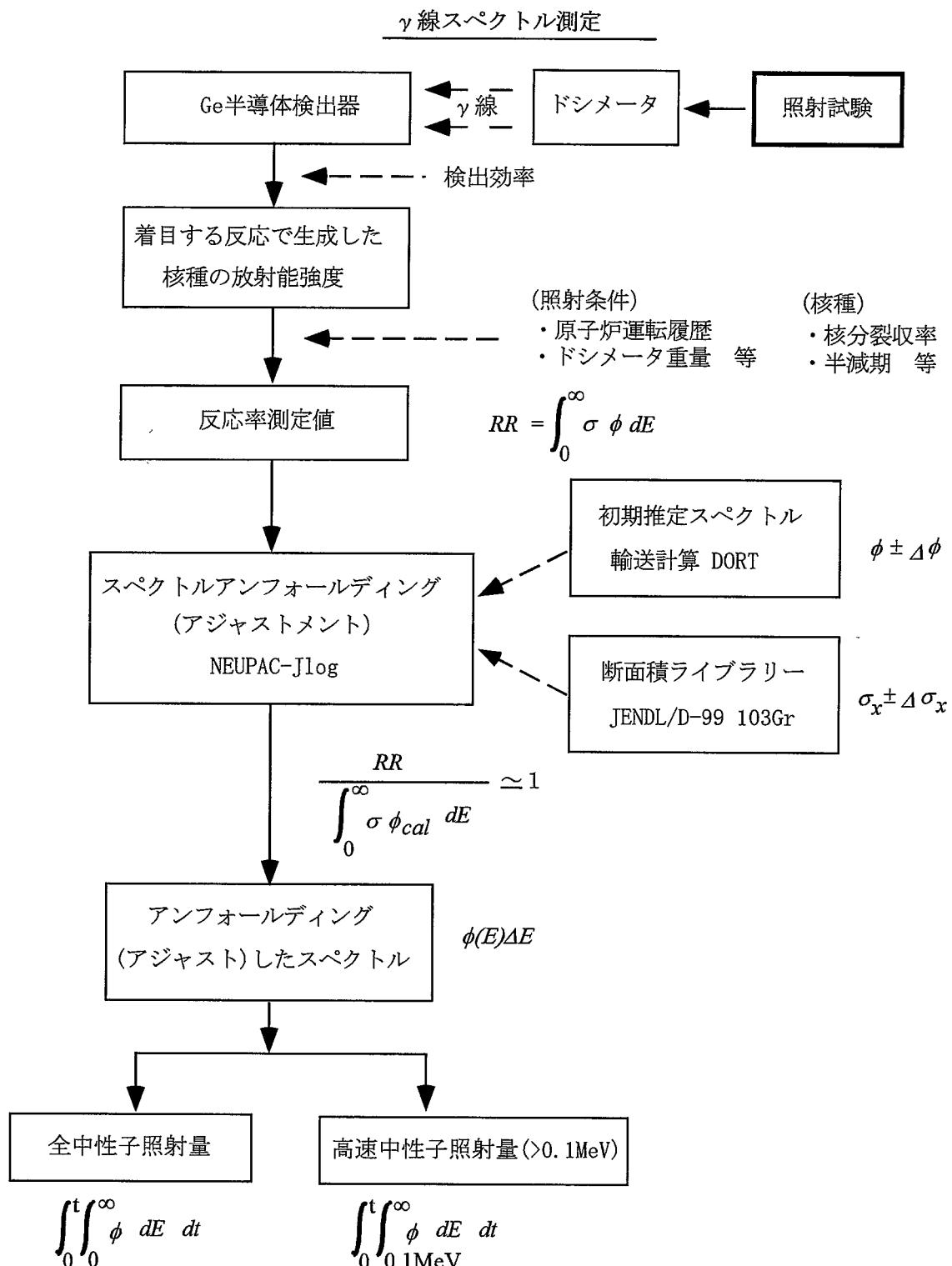


図3.3 多重放射化法による中性子照射量解析フロー

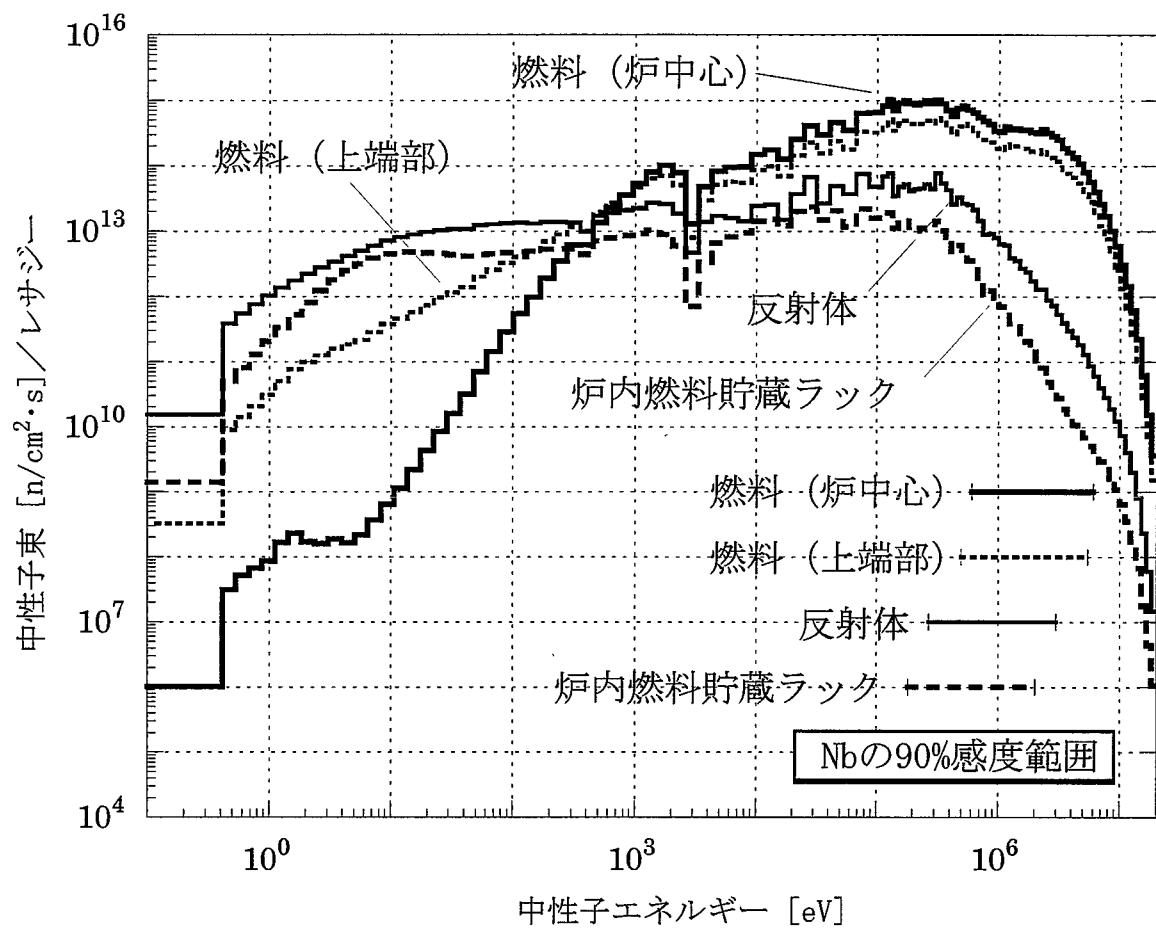


図3.4 Nb ドシメータ照射位置の中性子スペクトルとNbの90%感度範囲

## 4. 試験結果

### 4.1 高速中性子照射量測定結果

Nb ドシメータを用いて  $^{93}\text{Nb}(n,n')$  $^{93m}\text{Nb}$  反応率を測定し、これから求めた 0.1MeV 以上の高速中性子照射量は、 $2.09 \times 10^{20} \text{n/cm}^2 \sim 2.35 \times 10^{22} \text{n/cm}^2$  であった。これらを多重放射化箔法による評価値と比較して表 4.1 及び図 4.1 に示す。炉中心から炉心構成要素外周の燃料貯蔵ラックまでの広範な照射場にわたり、両者の比は 0.97～1.03 であった。これは、それぞれの測定誤差（表 4.1 に示す。）より小さい 3% 以内で一致し、Nb ドシメータによる高速中性子照射量測定法の信頼性が確認できた。測定誤差は、表 4.1 に示すように 4.5%～10.1% であった。

### 4.2 誤差評価

Nb ドシメータにより測定した高速中性子照射量測定値の誤差は、反応率測定値及び平均断面積のそれぞれの誤差からなる。反応率の誤差は、2.4 に示したとおりである。また、平均断面積の誤差は、断面積の各群の誤差を縮約に用いた中性子スペクトルの重みで平均した。

これらの誤差の内訳を表 4.2 に示す。照射時間の誤差は照射位置に関わらず同一であり、反応率の測定誤差は、いずれの照射位置においても Ge 半導体検出器による特性 X 線測定や ICP-MS による Nb 濃度測定で十分な計数率を得ているため、照射位置によらず誤差は大きく変わらない。

一方、平均断面積の誤差は照射位置による差が生じ、反射体領域や燃料貯蔵ラック位置で誤差の低下が見られた。これは、照射位置により中性子スペクトルが異なり、これに応じて Nb の感度領域も若干異なるためである。反射体領域や炉内燃料貯蔵ラック位置では、燃料領域と比較すると中性子スペクトルが相対的に軟化して感度範囲が低エネルギー側にシフトし、 $^{93}\text{Nb}(n,n')$  $^{93m}\text{Nb}$  反応断面積がしきいエネルギーから立ち上がり勾配が大きい領域をほとんどが占める（図 1.1 及び図 3.4 参照）。この勾配の大きい領域の誤差は大きく（使用した 103 群断面積の各群ごとの自己分散誤差は、1.5MeV～8MeV では約数%だが、1MeV 以下では 30% 以上である。）、平均断面積の誤差が大きくなると考えられる。

表4.1 高速中性子照射量測定結果

照射位置	高速中性子照射量 ( $n/cm^2$ )				(1)/(2)	
	(1)Nb ドシメータ		(2)多重放射化箔法			
	$\Phi_{>0.1MeV}$	誤差( $1\sigma\%$ )	$\Phi_{>0.1MeV}$	誤差( $1\sigma\%$ )		
燃料 (炉中心)	$2.35 \times 10^{22}$	4.50	$2.28 \times 10^{22}$	8.34	1.03	
燃料 (上端部)	$1.17 \times 10^{22}$	4.64	$1.16 \times 10^{22}$	9.07	1.01	
反射体	$9.81 \times 10^{20}$	8.52	$9.50 \times 10^{20}$	13.3	1.03	
炉内燃料貯蔵ラック	$2.09 \times 10^{20}$	10.1	$2.15 \times 10^{20}$	14.9	0.97	

表4.2 Nb ドシメータによる高速中性子照射量測定値の誤差の内訳

照射位置	誤差 ( $1\sigma\%$ )			
	種類	反応率	断面積	合計
燃料(炉中心)	統計誤差	1.64	—	4.50
	系統誤差	1.81	2.21	
燃料(上端部)	統計誤差	1.71	—	4.64
	系統誤差	1.81	2.30	
反射体	統計誤差	1.84	—	8.52
	系統誤差	1.81	6.43	
燃料貯蔵ラック	統計誤差	1.67	—	10.1
	系統誤差	1.81	8.21	

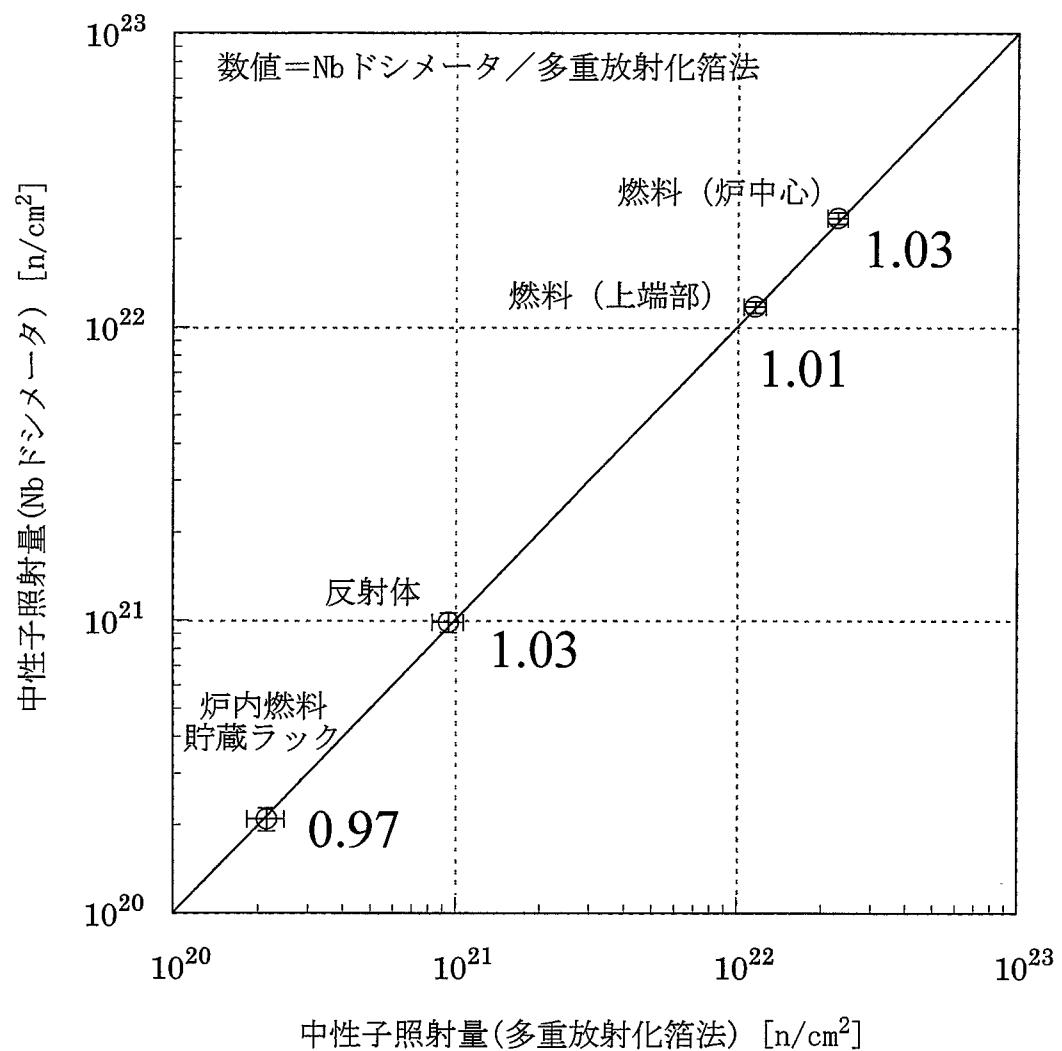


図4.1 高速中性子照射量(>0.1MeV) 測定結果

## 5. 結言

高速炉の高速中性子照射量の測定に用いる Nb ドシメータの反応率測定手法を確立し、「常陽」の照射試験に適用した。

Nb ドシメータの反応率測定については、ドシメータを溶解・乾燥固化処理することにより、低エネルギーの特性 X 線を高精度で測定するとともに、ICP-MS でその重量を精度良く求め、反応率測定値を得た。この手法を「常陽」のドシメトリーに適用し、反応率を測定して 0.1MeV 以上の高速中性子照射量を求め、多重放射化箔法による中性子スペクトルから求めた高速中性子照射量と比較し、両者の測定誤差以下で一致した。これらより、Nb ドシメータによる高速中性子照射量測定法の信頼性が確認でき、高速中性子照射量が精度良く測定できることを確認した。

今後は、「常陽」 MK-III 炉心の核特性評価や照射試験に本手法を適用していく予定である。

謝辞

本研究の実施にあたり、Nb の放射化量測定値から反応率及び高速中性子照射量の算出について検査開発株式会社の舟井智彦氏に、多重放射化箇法による中性子照射量測定について大洗工学センター照射施設運転管理センター実験炉部技術課の前田茂貴研究員及び検査開発株式会社の佐井川拓也氏にご協力をいただきました。ここに記して謝意を表します。

## 参考文献

- [1] American Society for Testing and Materials: “1994 Annual Book of ASTM Standards,” Vol. 12.02, p. 780 (1994)
- [2] K. Kobayashi, T. Iguchi, S. Iwasaki, T. Aoyama, S. Shimakawa, Y. Ikeda, N. Odano, K. Sakurai, K. Shibata, T. Nakagawa and M. Nakazawa: “JENDL Dosimetry File 99 (JENDL/D-99),” JAERI1344 (2002)
- [3] 桜井淳：“JENDL ドシメトリー・ファイルに収納された  $^{93}\text{Nb}(\text{n},\text{n}')$  $^{93\text{m}}\text{Nb}$  および  $^{199}\text{Hg}(\text{n},\text{n}')$  $^{199\text{m}}\text{Hg}$  反応の中性子断面積”, 日本原子力学会誌、Vol. 39, No. 3, p. 231 (1997)
- [4] 石田公一、前田茂貴、佐井川拓也、枠井智彦：“「常陽」炉心支持板等の中性子照射量評価”, JNC TN9400 2002-005 (2002)
- [5] 前田茂貴、佐井川拓也、青山卓史：“放射化法による「常陽」MK-II 炉心の中性子照射量評価の集大成 (データ集)”, JNC TN9410 2001-005 (2001)
- [6] W. A. Rhoades and R. L. Childs: “DORT Two-dimensional Discrete Ordinates Transport Code,” CCC-484 (1989)
- [7] M. Nakazawa and A. Sekiguchi: “The Basic Reports of J1-Unfolding Code “NEUPAC”,” UNTL-R0096 (1981)
- [8] T. Nakagawa, K. Shibata, S. Chiba, T. Fukahori, Y. Nakajima, Y. Kikuchi, T. Kawano, Y. Kanda, T. Ohsawa, H. Matsunobu, M. Kawai, A. Zukeiran, T. Watanabe, S. Igarashi, K. Kosako and T. Asami: “Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version-3 Revision-2: JENDL-3.2,” Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 32, p. 1259 (1995)