

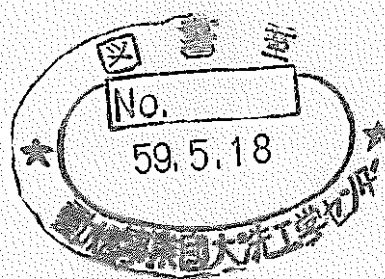
「高速炉ドシメトリー手法に関する研究」

技術資料コード	
開示区分	レポートNo.
T	J960 84-01

この資料は 図書室保存資料です
閲覧には技術資料閲覧票が必要です

動力炉・核燃料開発事業団大洗工学センター技術管理室

昭和59年1月



関口 晃, 中沢正治, 谷口武俊, 植田伸幸
(東京大学, 工学部)

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせください。

〒311-13 茨城県東茨城郡大洗町成田町4002

動力炉・核燃料開発事業団

大洗工学センター システム開発推進部・技術管理室

Enquires about copyright and reproduction should be addressed to: Technology Management Section O-arai Engineering Center, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 4002 Narita-cho, O-arai-machi, Higashi-Ibaraki, Ibaraki-ken, 311-13, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)

「高速炉ドシメトリー手法に関する研究」

研究成果報告書 目 次

第Ⅰ章 ドシメトリー用アンフォールディングコード NEUPAC-83 の完備化.....	1
(本章の内容は、別冊にマニュアルとしてまとめられているので、ここでは省く。)	
第Ⅱ章 ドシメトリー用定数の作成と評価.....	2
II-1, ドシメトリー断面積ライブラリー（第1版）.....	2
II-2, 反応断面積の共分散誤差ライブラリー（第1版）.....	2
II-3, ドシメトリー断面積ライブラリーの検討.....	3
II-4, 反応断面積の共分散誤差ライブラリーの検討.....	4
II-5, NEUPAC-83 ドシメトリー断面積ライブラリー（新版）.....	5
II-6, NEUPAC-83 共分散誤差ライブラリー（新版）.....	6
II-7, 結論.....	8
References	9
Appendix 2	18
2-1, ENDF/B-V Covariance File	18
2-2, 共分散誤差処理プログラム "COURX".....	20
第Ⅲ章 新しいドシメトリー手法の検討・調査.....	30
III-1 フルーエンスモニター ^{93}Nb (n, n') $^{93\text{m}}\text{Nb}$ 反応の研究現況調査.....	30
(1) 緒言.....	30
(2) PTB における研究例 (Cf-252 に対する平均断面積測定).....	30
(3) Tourwé らの研究	35
(4) EBR-II と BR-2 での Nb ドシメトリー相互比較	38
(5) 国内での研究など.....	43
III-2 Damage-monitor の研究調査	46
III-3 まとめ及び今後の課題.....	52

緒 言

本研究報告書は、動力炉核燃料開発事業団の受託研究（昭和 57, 58 年度）を中心にして、高速実験炉「常陽」の炉内中性子ドシメトリーの確立を目標にして行なった研究・調査結果の成果報告書である。高速実験炉「常陽」は MARK-I 炉心から MARK-II 炉心 100 MW 運転への移行も無事終了し、今後は主として燃料・材料の照射試験に供される予定になっており、この様な照射研究に対応する高速中性子ドシメトリー技術の確立を目標にしたものである。

本研究は、東京大学・工学部の弥生炉におけるドシメトリー研究を発展させる形で、既に 5 年間、常陽担当部門の方々と協力して継続してきているものであり、アンフォールディングコード・NEUPAC はその開発成果であった。これを用いて、日米の高速炉ドシメトリーに関する技術的な相互比較研究が常陽と EBR-II を対象に PNC-DOE・HEDL の間で成功裏に実施された。今回は、これらの経験を基に、より利用し易いコードにするための入出力部の改良及びドシメトリー断面積の整備を実施し、NEUPAC-83 としてまとめたものである。

又、新しいドシメトリー法としては、長半減期且つ低エネルギーに閾値を有する⁹³Nb (n, n')^{93m}Nb ドシメータの研究状況及び Damage モニターについての調査研究を行なった。これらは、現在研究段階にあるとは言え一部国外にて先行的に実用化されているので、常陽においても実用研究を開始することが望ましいと考えられるものである。なお、HAFM (Helium Accumulation Fluence Monitor) のレビューについては、別途、行なう予定にしているが、これも材料照射実験のドシメトリーに極めて有効と考えられるので今後の実用化研究が期待される。本研究を進めるに当り、動燃の方々及びプログラム改良を担当された三菱総研には大変お世話になりましたので、ここに御礼申し上げたいと存じます。

関口 晃、中沢正治、谷口武俊、植田伸幸

第Ⅰ章 ドシメトリー用アンフォールディングコード

先に作製した NEUPAC - コードについて、従来の使用経験を基に、いくつかの改良を行なった。その主たる点は

- ① 入出力部分の簡略化
- ② ドシメトリー断面積の整備
- ③ その他、内蔵スペクトル群、自己遮蔽因子補正ルーチンなどの未使用部の削除などが中心であった。

②については、第Ⅱ章に詳述されるほか、①と③については、使用マニュアル^(*)に詳しく説明されているので、ここでは省略する。なお、この改良された NEUPAC コードは NEUPAC - 83 と命名されている。

(*) NEUT - Research Report 83 - 10 " Neutron Unfolding Package Code " NEUPAC - 83 " T. Taniguchi, N. Ueda, M. Nakazawa and A. Sekiguchi, Department of Nuclear Engineering, University of Tokyo (1983)

第II章 ドシメトリー用定数の作成と評価

NEUPAC-83 コードは、従来の NEUPAC コード⁽¹⁾における問題点の 1つとして挙げられている入力データの煩雑さを考慮し I/O の簡略化を中心として改良された。この入力データの煩雑化という点で、最も考慮すべきものの 1つとして、アンホールディングの際に使用する核反応断面積と共に分散誤差情報の取り扱いが挙げられる。本研究では、I/O の簡略化を目的とした NEUPAC-83 コード専用の第 1 版のドシメトリー断面積ライブラリーを作成した。続いて、この第 1 版の断面積ライブラリーの種々の問題点を検討し、これらの点を改善し、第 2 版のドシメトリー断面積の整備、作成を行なった。

II-1 ドシメトリー断面積ライブラリー（第 1 版）

本ドシメトリー断面積ライブラリーは、高速増殖炉“常陽”のサーベイランス・ドシメトリー解析を目的とし、常陽におけるドシメトリー実験で用いられるドシメトリー・センサーの核反応断面積を中心として、一般的なドシメトリー断面積も含め、23種の反応断面積が納められている。Table 2-1に本ライブラリーに納められている反応断面積の一覧表を示す。

本ライブラリーの反応断面積は、Table 2-2 に示すエネルギー構造を有する 103 群構造の群平均断面積である。使用した核データファイルは、ENDF/B-V の Dosimetry File (Tape 531) である。作成方法は、核データファイルより、ポイントワイズ断面積を作成する RESEND コードと無限希釈群平均断面積を作成する COMIC コードをカップリングした COMICR コードを使用した。この COMICR コードについては、Ref. 2 を参照されたい。

II-2 反応断面積の共分散誤差ライブラリー（第 1 版）

NEUPAC-83 コードでは、前述した様に、入力データとして反応断面積とともに、各反応断面積に関する共分散誤差情報が必要である。この共分散誤差データは、例えば、エネルギー構造 103 群の解析の場合、1 つの反応断面積に関し、 103×103 個のデータとなり、非常に膨大なデータ量となる。よって、NEUPAC-83 コードにおける I/O の簡略化の点からも断面積ライブラリーの作成とともに、共分散誤差ライブラリーの作成も行なった。

反応断面積の共分散誤差のデータベースとしては、断面積作成に用いた ENDF/B-V Dosimetry File に納められている通常 Covariance File と呼ばれている File 33 を使用した。この Covariance File に関する詳しい説明は Appendix 2-1 に示されている。Table 2-1 に、

本共分散誤差ライブラリーのデータベースとした ENDF/B-V の誤差データの一覧表を示す。

しかしながら、File 33 に納められている共分散誤差データの現状は、誤差評価も含めた反応断面積測定データ不足及び反応断面積の統一的な評価法が確立されていないというような基本的な問題点が残されているため、実際に有効なデータとしては、まだ粗いエネルギー領域についての分散データしかないというものが多く、加えて、反応断面積毎に分散データの与えられているエネルギー領域が違っているという問題点がある。

以上の事を考え、本研究では、ENDF/B-V の Covariance File. File 33 のデータより、任意のエネルギー群構造をもつ反応断面積の共分散誤差行列を作成する COVRX プログラムを作成した。このプログラムは、Appendix 2-2 で説明するが、LB=1, 2, 5, に関する誤差データしか取り扱えない。さらに、II-4 でも説明するが、共鳴パラメータ (File 2) の共分散誤差データ (File 32) も取り扱えない。一例として ENDF/B-V Dosimetry File の ^{63}Cu (MAT=6435) の File 33 のデータを用い、COVRX プログラムにより計算したエネルギー群構造 15 群の共分散誤差行列の結果を Table 2-2-2 に示す。

II-3 ドシメトリー断面積ライブラリーの検討

本ライブラリーの群平均断面積は、II-1 でも述べられた様に、ENDF/B-V Dosimetry File より、RESEND コードを用い、0°K の温度に対するポイントワイズ断面積を作成し、COMIC コードにより重みスペクトルとして、Maxwell +1/E +Fission スペクトルを用い、群平均化した無限希釈断面積である。

しかしながら、本ドシメトリー断面積にはいくつかの問題点が挙げられる。

最初に断面積ファイルを処理する群定数作成コードについて述べる。本ライブラリー作成には、前述した RESEND コードと COMIC コードをカッピングした COMICR コードが使用された。しかし、この RESEND コードに関して、最近、IAEA のエネルギー依存断面積計算コード国際比較⁽³⁾を通じ、原研、長谷川他によって、いくつかの問題点が指摘された。この国際比較は、RESEND、RESENDD、RECENT コードにより、ENDF/B-V Dosimetry File から、0°K のポイントワイズ断面積及び 620 群 SAND-II タイプの平均断面積を計算し、比較したものである。この比較結果より指摘された点は以下の事である。

- (1) RESEND コードの公式版の使用は、まったく推められない。理由としては、分離共鳴領域において、全断面積の形しかチェックしないため、他の部分断面積に大きな誤差を与える。
- (2) RESENDD コードについては、次に述べる 3 つの事が挙げられる。(i)ENDF/B ファイルの File 3 の断面積に対して内挿公式 1 で与えられる断面積の取り扱いに不備がある。(ii)非常に狭い分離共鳴レベルについて、発生データ点が十分でないため、最悪の場合、共鳴積分値に対して、数十%の過大評価となる場合がある。(iii)非分離共鳴の処理にあたって、非分離

共鳴パラメータが与えられているエネルギー点での断面積の内挿によるべきであって、非分離共鳴パラメータの内挿であってはならないのに対し、これを行なっている。

(3) 以上、述べた事より、現時点ではRECENTコードの採用が望ましい。

ここで一例として ^{58}Fe (n, γ) 反応断面積の結果を示す。Fig. 2-1に ^{58}Fe (n, γ) 反応断面積に関するRECENT/RESENDD、及びRESEND/RESENDDの計算による断面積比を示す。これから、6.2 KeVの共鳴において断面積に大きな違いがある事がわかる。この原因としては、前述した様にRECENTコード及びRESENDDコードにおける狭い幅の共鳴に対するポイントワイズ断面積の発生データ点の違いによるものが考えられる。実際にRESENDDコードでは6.17618 KeVから6.19900 KeVで2点のデータしか作成されないのに対し、RECENTコードでは、このエネルギー範囲で87点のデータが作成されている。又、この様な現象は ^{232}Th (n, f)、 ^{238}U (n, γ) 反応断面積においても生じている。この様な原因からFig. 2-2に示す6.2 KeVの共鳴領域の断面積及び共鳴積分値にも明らかな差が見られる。

次に挙げられる問題点としては、高速実験炉“常陽”解析用断面積ライブラリーの場合、ドシメータの照射位置での温度がサーベイランス位置で約400~450°Cであるため、ドップラー効果を考慮する必要がある。更にドシメータの自己遮蔽効果を考慮しなければならない。

本研究で作成した第1版のドシメトリー断面積ライブラリーは、現段階では以上述べた様な問題点をもつため、これらの点を考慮した断面積ライブラリーの整備が次の重要な課題である。

II - 4 反応断面積の共分散誤差ライブラリーの検討

反応断面積の共分散誤差ライブラリーに関しては、II-2で述べられているが、この誤差ライブラリーの問題点としては、次に述べる様な点が挙げられる。

- (1) 任意のエネルギー群構造への共分散データの変換方法に物理的条件が含まれていない。
- (2) 共鳴領域の断面積誤差評価が不十分である。
- (3) 相対測定により得られた反応断面積間の相関誤差が考慮されていない。
- (4) 断面積の群定数化に伴なう誤差評価が行なわれていない。

以上の事が挙げられるが、(1)及び(2)項は本研究で作成したCOVRXプログラムの改良が必要である。次にその改良点につき考えてみる。

まず、共分散データの変換方法に関しては物理的条件として、反応率 $\int \sigma(E) \phi(E) dE$ を保存するという条件を加えた変換方法を考える。初期のエネルギー群構造 i をもつ群定数を

$$\bar{\sigma}_i = \int_{E_i}^{E_{i+1}} \sigma(E) \phi(E) dE / \int_{E_i}^{E_{i+1}} \phi(E) dE$$

とする。

ここで、 $\int \sigma(E) \phi(E) dE$ を保存するという条件を加え、初期の群構造 i から群構造 m へ Fig.

2-3に示す3つの場合を考え、変換行列 \mathbf{T} ($=\mathbf{T}_{im}$)を作成する。添字 i は初期データ、 m は変換後のデータに関するものである。作成された変換行列 \mathbf{T} を用い、次式より、任意のエネルギー群構造の共分散誤差行列 \mathbf{C}_m を作成する。

$$\mathbf{C}_m = \mathbf{T}^T \mathbf{C}_i \mathbf{T}$$

ここで \mathbf{C}_i は ENDF/B-V に与えられている反応断面積の相対共分散誤差行列である。 \mathbf{T}^T は変換行列 \mathbf{T} の転置行列である。

共鳴領域の断面積の誤差は、ENDF/B-V の Covariance File (File 32) に共鳴パラメータの不確定性データが与えられているので、これらのデータを Breit-Wigner の一準位公式を用い、評価し、従来のスムーズ断面積の誤差に加え合せれば良いと考えられる。しかしながら、現在の不確定性データでは、各共鳴間の相関は与えられていないため、共鳴領域で細かいエネルギー群構造を有する群平均断面積を作成する場合には、まだ問題点は残る。

次に標準断面積 (^{10}B (n, α), ^{235}U (n, f))との相対測定により得られた反応断面積の誤差評価は、実験データ及び核データ評価法の点からも現段階では不十分であり、今後の課題であろう。

最後に微視断面積の群定数化に伴なう誤差⁽⁴⁾としては、従来の断面積の誤差に加え、次に示す様な項を考えることである。

$$\begin{aligned}\bar{\sigma}_g &= \int_{u_g} \sigma \phi du / \int_{u_g} \phi du \\ \Delta \bar{\sigma}_g &= \frac{1}{\int_{u_g} \phi du} \left[\int_{u_g} \Delta \sigma \cdot \phi du + \int_{u_g} (\sigma - \bar{\sigma}_g) \Delta \phi du \right]\end{aligned}$$

この式の第2項成分が、群定数化に伴なう誤差で、重みスペクトル $\phi(u)$ の不確定性によって生じる項である。この項を群定数の共分散の形で示すと、

$$(\Delta \sigma_g \Delta \sigma_k) = \frac{1}{\int_{u_g} \phi du \int_{u_k} \phi du} \int_{u_g} du_1 \int_{u_k} du_2 \{ \sigma(u_1) - \bar{\sigma}_g \} \{ \sigma(u_2) - \bar{\sigma}_k \} \overline{\Delta \phi(u_1) \Delta \phi(u_2)}$$

となり、 $\overline{\Delta \phi(u_1) \Delta \phi(u_2)}$ を如何に与えるかによって、群定数には極めて大きな共分散が入る可能性があると言える。しかしながら、現状としては、この重みスペクトルの共分散を定量的に評価するのが問題となるため、この群定数化に伴なう誤差評価も今後の大変な課題となるであろう。

II - 5 NEUPAC-83 ドシメトリー断面積ライブラリー（新版）

NEUPAC-83 コードの I/O の簡略化を目的として作成された第1版のドシメトリー断面積

ライブラリーの問題点は、II-3で述べられているが、これらの点を改善するため、本研究ではロスアラモス国立研究所（LANL）で開発されている群定数作成システム NJOY⁽¹⁰⁾を用いて、ライブラリーの整備を行ない、NEUPAC-83コード専用のドシメトリー断面積ライブラリー新版を作成した。

核データファイルとしては、第1版と同様ENDF/B-VのDosimetry Fileを使用した。本ライブラリーの反応断面積をTable 2-4に示す。新版のライブラリーには、第1版に加え、新たに⁶Li(n, α), ¹⁰B(n, α), ²³Na(n, r), ³²S(n, p), ⁴⁷Ti(n, n'p), ⁴⁸Ti(n, n'p), ⁵⁵Mn(n, 2n), ⁵⁹Co(n, 2n), ⁹³Nb(n, n'), ¹¹⁵In(n, r), ¹¹⁵In(n, n'), ¹²⁷I(n, 2n), ¹⁸²Ta(n, r), ¹⁹⁷Au(n, r)の14反応が追加され、37の反応断面積が納められている。これらのうち、¹⁸²Ta(n, r)反応断面積はENDF/B-Vを用いて作成した。さらに⁹³Nb(n, n')反応断面積はIAEAで作成されたIRDF-82（International Reactor Dosimetry File）の620群平均断面積より、Maxwell+1/E+Fissionスペクトルを用い縮約作成した。

今回、整備された反応断面積は、ドップラー効果を考慮し、300 °K及び700 °Kの二通りについて計算したが、両者にはほぼ差違は見られなかったため、300 °K(室温)での値を採用した。更に共鳴遮蔽因子は $\sigma_0 = 10^{10}$ (barn)として計算を行なった。

本ライブラリーの断面積は後述するBoxer formatにより与えられており、NEUPAC-83コードでは、新たに追加されたサブルーチン TRIEVRにより処理し、従来同様の入力データとなる様に変換される。

II-6 NEUPAC-83共分散誤差ライブラリー（新版）

本研究では、NEUPAC-83ドシメトリー断面積ライブラリーの整備とともに、共分散誤差ライブラリーの整備、改善を行なった。第1版の共分散誤差ライブラリーの検討項目に関しては、II-4で述べたが、これらの点を考慮し、新版は断面積ライブラリー作成で使用したNJOYシステムを用い、断面積ライブラリーとの一貫性を保つと同時に問題点の改善を行なった。

本研究では、II-4で指摘した任意のエネルギー群構造への共分散データの変換にNJOYシステムのERRORRモジュールを使用した。この変換方法はFig. 2-4に示すユーザーの入力エネルギー群構造とENDF/Bに与えられているエネルギー群構造から合成エネルギー群構造を作成し、NJOYシステムのRECONRモジュールにより作成されたポイントワイズ断面積を用い、以下に示す関係式により計算する。

$$X_i = \frac{\sum_{K(i)} \phi_K Z_K}{\sum_{K(i)} \phi_K} \quad (1)$$

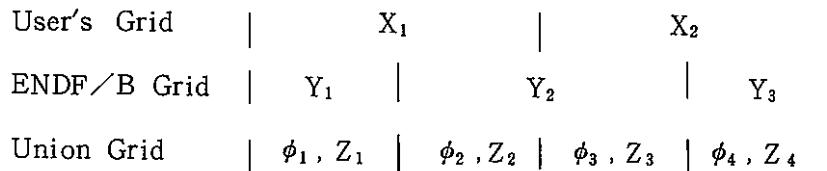


Fig. 2-4 エネルギー群構造の関係

ここで X_i はユーザーのエネルギー群構造を有する群平均断面積である。 ϕ_K 及び Z_K は、合成エネルギー群構造における重みスペクトルと群平均断面積である。本研究では重みスペクトルとして、Maxwell + 1/E + Fission を用いた。次に群平均断面積 X_i の共分散は、次の式より計算する。

$$C_{\text{ov}}(X_i, X_j) = \sum_{\substack{K(i) \\ 1(j)}} a_{ik} a_{jk} C_{\text{ov}}(Z_K, Z_1) \quad (2)$$

ここで重みスペクトル $\phi(E)$ の不確定性はないと仮定した。 a_{ik} は sensitivity coefficient と呼ばれるもので、次式で定義される。

$$a_{ik} = \frac{\phi_K}{\sum_{K(i)} \phi_K} \quad (3)$$

ここで $C_{\text{ov}}(Z_K, Z_1)$ は、ENDF/B の共分散情報より作成された絶対共分散である。最後に相対共分散誤差は

$$\text{Rel. } C_{\text{ov}}(X_i, X_j) = \frac{C_{\text{ov}}(X_i, X_j)}{X_i \cdot X_j} \quad (4)$$

により計算する。

更に ERRORR モジュールにより、第 1 版で指摘された共鳴領域の断面積の誤差評価を行なった。これは、ENDF/B-V の共分散ファイル (File 32) に与えられている共鳴パラメータの不確定性情報を用い、Breit-Wigner の式を共鳴パラメータにより偏微分した式から(2)式と同様に $C_{\text{ov}}(A_\gamma, A_\gamma)$, $C_{\text{ov}}(A_\gamma, A_f)$, $C_{\text{ov}}(A_f, A_f)$ を計算した。これらの値は前述した群平均断面積の誤差に加え合せた。しかしながら、File 32 には各共鳴間の相関は与えられていないため、この共鳴パラメータの不確定性による寄与は、共分散行列の対角成分にのみにだけ考慮されている。

標準断面積との相対測定により得られた反応断面積の誤差評価について述べる。本ライブラリーの $^{238}\text{U}(n, \gamma)$ 反応 (MAT=6398) は、4 KeV ~ 20 KeV で $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ 標準反応断面積との相対測定により得られたデータである。この $^{238}\text{U}(n, \gamma)$ 反応に関しては、ENDF/B-V の標準断面積ファイル (Tape 511) により、現在解析中である。

以上、新版の共分散誤差ライブラリーは、第 1 版で指摘された群定数化に伴なう誤差を除き、現時点での問題点は改善されている。更に、群平均断面積と同様、共分散誤差情報はデータ量の

縮少化をはかった Boxer Format により与えられている。この表現法は Fig. 2-5 に示すもので、従来の約 1/50 とデータ量が縮少された。一例として、 ^{23}Na (n, r) 反応断面積に関する群平均断面積、共分散誤差を Fig. 2-6 に示す。

II-7 結論

本研究において作成された共分散誤差情報も含めた新版の NEUPAC-83 ドシメトリー断面積ライブラリーは、当初の目的とした NEUPAC-83 コードの簡略化に大きく寄与するとともに、現時点では、データの質も最善のものであると言える。

References

- 1) M. Sasaki and M. Nakazawa, "Production of Analysis Code for "JOYO" Dosimetry Experiment: User's Manual of Neutron Unfolding Package "NEUPAC""", PNC N941 80-192Tr, Jan. 1980.
- 2) T. Ikegami, Private Communication.
- 3) A. Hasegawa and T. Narita, "Comparisons of Energy Dependent Point-Wise Cross-Section Generation Codes: RESEND, RESENDD, RECENT", JAERI-M-82-128, 1982.
- 4) M. Nakazawa, "Influences of the Covariance Matrices over Reactor Neutron Dosimetry", JAERI-M 9523, 1981.
- 5) T. Taniguchi, "Fast Reactor Dosimetry and Its Uncertainty Analysis", Master Thesis, Univ. of Tokyo, 1981.
- 6) Proceeding of 2nd PNC/DOE Specialists' Meeting on Collaborative Dosimetry Test, SA013 FWG81-01
- 7) N.J.C.M. van der Borg, Personal Communication.
- 8) F. G. Perey, "The Data Covariance Files for ENDF/B-V", ORNL-TM-5928, 1977.
- 9) D. E. Cullen et al., "The International Reactor Dosimetry File (IRDF-82)", IAEA-NDS-42/R, 1982.
- 10) "The NJOY Nuclear Data Processing System, Vol. I, II", LA-9303-M (ENDF-324), 1982.

TABLE 2-1
 UNFOLDING CODE NEUPAC-83 DOSIMETRY CROSS SECTION
 LIBRARY AND UNCERTAINTY LIBRARY

INDEX NO.	REACTION TYPE	ERROR DATA SOURCE
1	27Al(N,A)24Na	VARIANCE (ENDF/B-V)
2	27Al(N,P)27Mg	VARIANCE (ENDF/B-V)
3	45Sc(N,P)46Sc	VARIANCE (ENDF/B-V)
4	46Ti(N,P)46Sc	VARIANCE (ENDF/B-V)
5	47Ti(N,P)47Sc	VARIANCE (ENDF/B-V)
6	48Ti(N,P)48Sc	VARIANCE (ENDF/B-V)
7	54Fe(N,P)54Mn	COVARIANCE (ENDF/B-V)
8	56Fe(N,P)56Mn	COVARIANCE (ENDF/B-V)
9	58Fe(N,G)59Co	COVARIANCE (ENDF/B-V)
10	58Ni(N,P)58Co	VARIANCE (ENDF/B-V)
11	58Ni(N,2N)57Ni	VARIANCE (ENDF/B-V)
12	59Co(N,A)56Mn	VARIANCE (ENDF/B-V)
13	59Co(N,G)60Co	VARIANCE (ENDF/B-V)
14	60Ni(N,P)60Co	VARIANCE (ENDF/B-V)
15	63Cu(N,A)60Co	COVARIANCE (ENDF/B-V)
16	63Cu(N,G)64Cu	VARIANCE (ENDF/B-V)
17	65Cu(N,2N)64Cu	COVARIANCE (ENDF/B-V)
18	232Th(N,G)	VARIANCE (ENDF/B-V)
19	232Th(N,F)	VARIANCE (ENDF/B-V)
20	235U(N,F)	COVARIANCE (ENDF/B-V)
21	237Np(N,F)	VARIANCE (ENDF/B-V)
22	238U(N,F)	VARIANCE (ENDF/B-V)
23	238U(N,G)	VARIANCE (ENDF/B-V)

TABLE 2-2 103 Energy Group Structure in Units of eV

Group	Upper	Lower
1	2.0000E+07	1.8220E+07
2	1.8220E+07	1.6490E+07
3	1.6490E+07	1.4918E+07
4	1.4918E+07	1.3499E+07
5	1.3499E+07	1.2214E+07
6	1.2214E+07	1.1052E+07
7	1.1052E+07	1.0000E+07
8	1.0000E+07	9.0484E+06
9	9.0484E+06	8.1873E+06
10	8.1873E+06	7.4082E+06
11	7.4082E+06	6.7032E+06
12	6.7032E+06	6.0653E+06
13	6.0653E+06	5.4881E+06
14	5.4881E+06	4.9659E+06
15	4.9659E+06	4.4933E+06
16	4.4933E+06	4.0657E+06
17	4.0657E+06	3.6788E+06
18	3.6788E+06	3.3287E+06
19	3.3287E+06	3.0119E+06
20	3.0119E+06	2.7253E+06
21	2.7253E+06	2.4660E+06
22	2.4660E+06	2.2313E+06
23	2.2313E+06	2.0190E+06
24	2.0190E+06	1.8268E+06
25	1.8268E+06	1.6530E+06
26	1.6530E+06	1.4957E+06
27	1.4957E+06	1.3534E+06
28	1.3534E+06	1.2246E+06
29	1.2246E+06	1.1080E+06
30	1.1080E+06	1.0026E+06
31	1.0026E+06	9.0718E+05
32	9.0718E+05	8.2085E+05
33	8.2085E+05	7.4274E+05
34	7.4274E+05	6.7206E+05
35	6.7206E+05	6.0810E+05
36	6.0810E+05	5.5023E+05
37	5.5023E+05	4.9787E+05
38	4.9787E+05	4.5049E+05
39	4.5049E+05	4.0762E+05
40	4.0762E+05	3.6883E+05
41	3.6883E+05	3.3373E+05
42	3.3373E+05	3.0197E+05
43	3.0197E+05	2.7324E+05
44	2.7324E+05	2.4724E+05
45	2.4724E+05	2.2371E+05
46	2.2371E+05	2.0242E+05
47	2.0242E+05	1.8316E+05
48	1.8316E+05	1.6573E+05
49	1.6573E+05	1.4996E+05
50	1.4996E+05	1.3569E+05

(Continued)

(cont'd)

Group	Upper	Lower
51	1.3569E+05	1.2277E+05
52	1.2277E+05	1.1109E+05
53	1.1109E+05	8.6617E+04
54	8.6617E+04	6.7379E+04
55	6.7379E+04	5.2475E+04
56	5.2475E+04	4.0868E+04
57	4.0868E+04	3.1828E+04
58	3.1828E+04	2.4788E+04
59	2.4788E+04	1.9305E+04
60	1.9305E+04	1.5034E+04
61	1.5034E+04	1.1709E+04
62	1.1709E+04	9.1188E+03
63	9.1188E+03	7.1017E+03
64	7.1017E+03	5.5308E+03
65	5.5308E+03	4.3075E+03
66	4.3074E+03	3.3546E+03
67	3.3546E+03	2.6126E+03
68	2.6126E+03	2.0347E+03
69	2.0347E+03	1.5846E+03
70	1.5846E+03	1.2341E+03
71	1.2341E+03	9.6112E+02
72	9.6112E+02	7.4852E+02
73	7.4852E+02	5.8295E+02
74	5.8295E+02	4.5400E+02
75	4.5400E+02	3.5357E+02
76	3.5357E+02	2.7536E+02
77	2.7536E+02	2.1445E+02
78	2.1445E+02	1.6702E+02
79	1.6702E+02	1.3007E+02
80	1.3007E+02	1.0130E+02
81	1.0130E+02	7.8893E+01
82	7.8893E+01	6.1442E+01
83	6.1442E+01	4.7851E+01
84	4.7851E+01	3.7267E+01
85	3.7267E+01	2.9023E+01
86	2.9023E+01	2.2603E+01
87	2.2603E+01	1.7603E+01
88	1.7603E+01	1.3710E+01
89	1.3710E+01	1.0677E+01
90	1.0677E+01	8.3153E+00
91	8.3153E+00	6.4760E+00
92	6.4760E+00	5.0435E+00
93	5.0435E+00	3.9279E+00
94	3.9279E+00	3.0590E+00
95	3.0590E+00	2.3824E+00
96	2.3824E+00	1.8554E+00
97	1.8554E+00	1.4450E+00
98	1.4450E+00	1.1254E+00
99	1.1254E+00	8.7642E-01
100	8.7642E-01	6.8256E-01
101	6.8256E-01	5.3158E-01
102	5.3158E-01	4.1399E-01
103	4.1399E-01	1.0000E-03

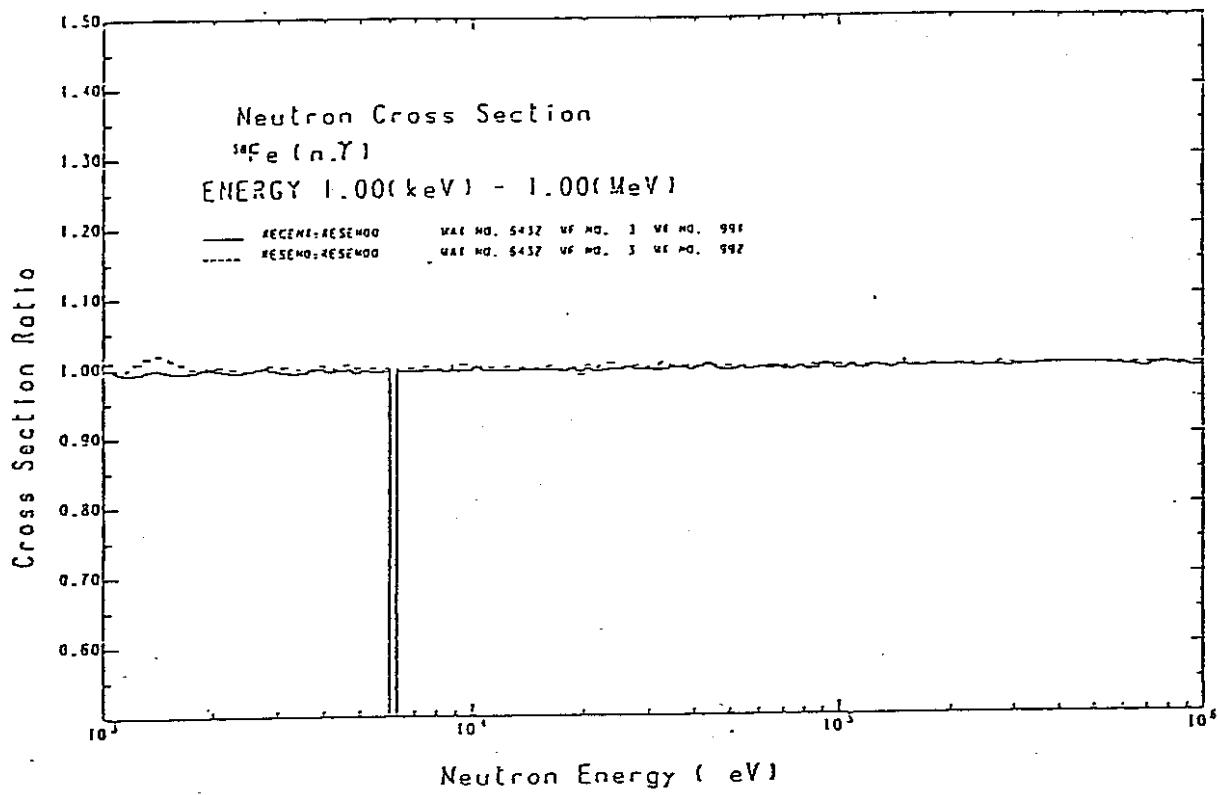


Fig. 2-1 Cross-section ratio for Fe-58 (n, γ) in SAND-II
620-group structure

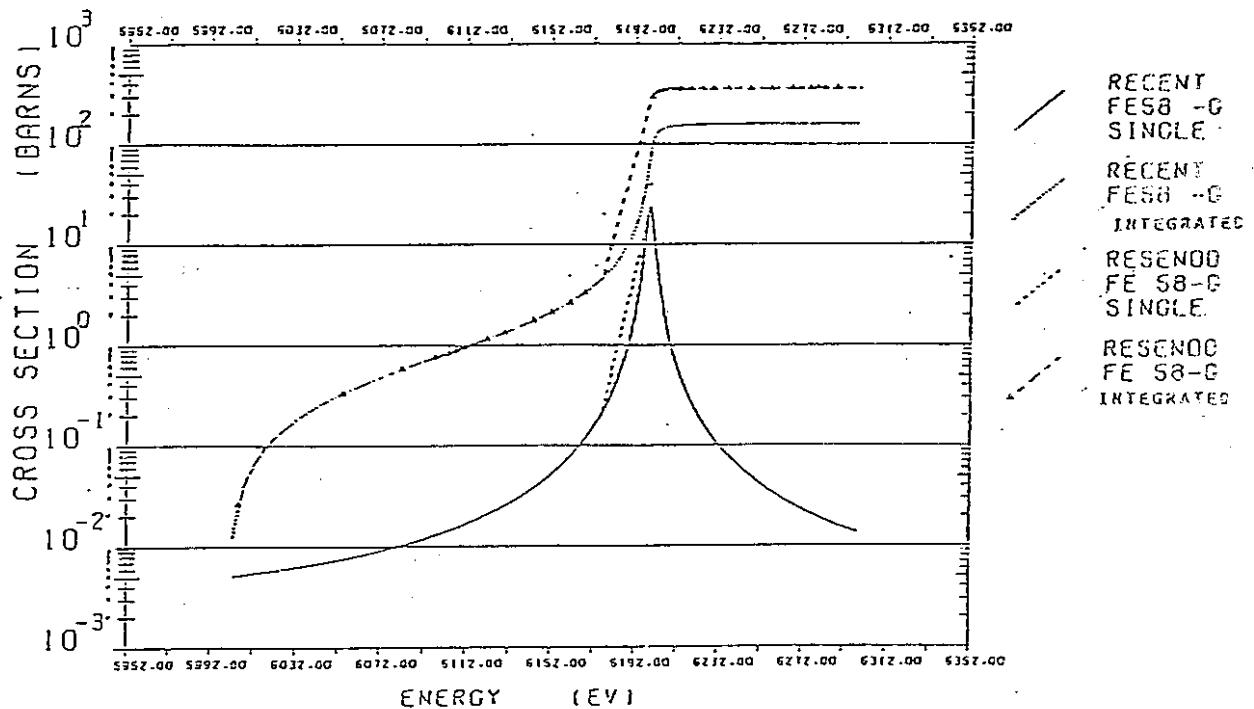
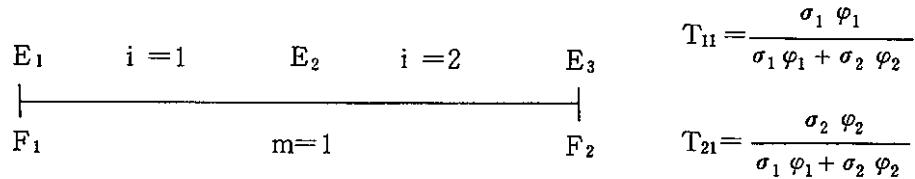
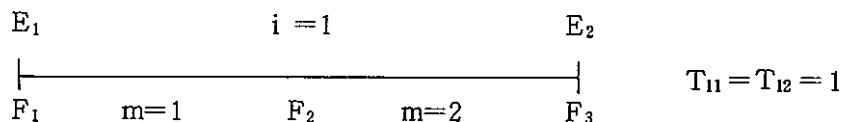


Fig. 2-2 Fe-58 (n , gamma) cross-section curve and integrated one for RECENT and RESEND codes

Case -1 Compression (energy limits conserved)



Case -2 Expansion (energy limits conserved)



Case -3 Energy limits not conserved

$$T_{11} = \frac{\sigma_1 \varphi_1'}{\sigma_1 \varphi_1' + \sigma_2 \varphi_2'}$$

$$T_{21} = \frac{\sigma_2 \varphi_2'}{\sigma_1 \varphi_1' + \sigma_2 \varphi_2'}$$

$$\left(\because \varphi_1' = \int_{F_1}^{E_2} \varphi(E) dE, \quad \varphi_2' = \int_{E_2}^{F_2} \varphi(E) dE \right)$$

Fig. 2-3

Table 2-4 ライブライリー中に含まれる核反応および識別番号

X - sec I.D.No.	Reaction	備考
1	^{23}Na (n, γ)	
2	^{27}Al (n, p)	
3	^{27}Al (n, α)	
4	^{55}Mn (n, 2n)	
5	^{59}Co (n, 2n)	
6	^{59}Co (n, γ)	
7	^{59}Co (n, α)	
8	^{237}Np (n, f)	
9	^{197}Au (n, γ)	
10	^{232}Th (n, f)	
11	^{232}Th (n, γ)	
12	^{235}U (n, f)	
13	^{238}U (n, f)	covariance は COVRX コード を用いて処理したもの
14	^{238}U (n, γ)	Library 中には含まず
(15)	(^{239}Pu (n, f))	
16	^6Li (n, α)	
17	^{10}B (n, α)	
18	^{45}Sc (n, γ)	
19	^{46}Ti (n, p)	
20	^{47}Ti (n, n')	
21	^{47}Ti (n, p)	
22	^{48}Ti (n, n'p)	
23	^{48}Ti (n, p)	
24	^{54}Fe (n, p)	
25	^{56}Fe (n, p)	
26	^{58}Fe (n, γ)	
27	^{58}Ni (n, 2n)	
28	^{58}Ni (n, p)	
29	^{60}Ni (n, p)	
30	^{63}Cu (n, γ)	
31	^{63}Cu (n, α)	
32	^{65}Cu (n, 2n)	
33	^{115}In (n, n')	
34	^{115}In (n, γ)	
35	^{127}I (n, 2n)	
36	^{32}S (n, p)	
37	^{181}Ta (n, γ)	ENDF/B-V
38	^{93}Nb (n, n')	" IRDF*

* International Reactor Dosimetry File

Original Data Set

		j						
		a	a	b	b	0	0	.
		a	a	b	b	0	0	
		b	b	b	b	0	0	
		b	b	b	b	0	0	
		0	0	0	0	c	c	
		0	0	0	0	c	d	

Boxer Format, Symmetry Flag Off

a	b	b	0	c	d			
-2	-2	8	-4	8	-4	-2	5	-1

Boxer Format, Symmetry Flag On

a	b	c	d					
-2	-2	14	-2	-1				

Fig. 2-5. Illustration of Boxer Format

Fig. 2-6 Example of NEUPAC-83 Cross Section Library

Appendix 2

2-1 ENDF/B-V Covariance File

ここでは、ENDF/B-V の Dosimetry File を取り上げ、共分散誤差ファイル、通常 Covariance File と呼ばれているものを中心に説明する。この Covariance File には、以下で説明する File 31, 32, 33 があるが、現在の Dosimetry File には、File 32 及び 33 しかないため、これらについて説明を行なう。

File 32

これは File 2 に納められている共鳴領域における共鳴パラメータの共分散誤差情報である。これらの情報としては、共鳴エネルギー E_r の分散 $(\Delta E_r)^2$ 、中性子幅 Γ_n の分散 $(\Delta \Gamma_n)^2$ 、ガンマ線放出幅 Γ_γ の分散 $(\Delta \Gamma_\gamma)^2$ 、核分裂幅 Γ_f の分散 $(\Delta \Gamma_f)^2$ 、 Γ_n と Γ_γ の共分散、 Γ_n と Γ_f の共分散、 Γ_γ と Γ_f の共分散等が各共鳴エネルギーに対して与えられている。ただし、各共鳴間の相関データは与えられていない。これらの各共鳴に関するパラメータ間の共分散データはドッパー効果、自己遮蔽の不確定性解析あるいは共鳴幅に比べ、非常に狭い群平均断面積の共分散誤差計算に有効である。但し、現在のデータは Breit-Wigner の一準位、多準位公式に対してのものだけであり、まだ、データの質ともにまだ不十分であると考えられる。

File 33

このファイルには、File 3 (microscopic cross section) に与えられているデータに関する共分散誤差が納められている。データとしては後述する様に、(a)群平均断面積の分散、(b)いくつかの近接グループ間の相関、(c)いくつかのグループにわたる広い範囲での相関等がある。

次にこの File 33 の構造について、簡単に説明する。Table 2-1-1 に File 33 の構造を示す。

File 33 は ENDF/B-V Dosimetry File の場合、35 の sections から構成されており、各 section には物質番号 (MAT) と反応コード (MT) により表わされる反応断面積についての共分散誤差データが与えられている。1つの section は、NL 個の sub-sections から構成されており、各 sub-section は sub-section 内に指定されている (MAT 1, MT 1) と section 内で指定されている (MAT, MT) により、次の二つの場合がある。

- (1) MAT 1 がゼロの時は (MAT, MT) の反応断面積の共分散誤差が与えられる。

(2) (MAT 1, MT 1) が (MAT, MT) と違う場合は違った反応断面積の共分散誤差が与えられる。これは、いわゆる標準断面積を用い、相対測定により求められた反応断面積の場合であり、反応断面積間の共分散、cross-correlation と呼ばれるもののデータベースである。

次に各 sub-section はいくつかの sub-sub-sections から構成されている。各 sub-sub-section には sub-section の中にある共分散誤差行列の独立した成分が含まれている。言い換れば、sub-section の共分散誤差行列は、いろいろな sub-sub-sections におけるデータの総和から構成されているのである。各 sub-sub-section には次に示す二つのタイプのデータがある。

(1) NC - タイプの sub-sub-section

これは、他の評価済断面積セットから (MAT, MT) の反応断面積の共分散誤差データを表わしたもので、前述した相対測定データを用いたものである。現在の File 33においては、データが不十分なため、 ^{238}U (n, r) と ^{239}Pu (n, f) に関するデータしか含まれていない。

(2) NI - タイプの sub-sub-section

このタイプのデータは、LB というフラッグによって、データが相対値か絶対値か、及びエネルギーの関数として、相関の種類が識別されている。LB には、0, 1, 2, 3, 4, 5があるが、ENDF/B-V Dosimetry File では、LB=1, 2, 5のみが与えられているため、ここでは、これらのデータについて簡単に解説する。

(a) LB = 1

$$C_{\text{ov}}(X_i, Y_j) = \sum_k P_j^{i; k} F_{XY, k} X_i \cdot Y_j$$

各エネルギー領域 E_K 内のみでの共分散を表わす。いわゆる $E_K < E_i < E_{K+1}$ と $E_K < E_j < E_{K+1}$ の場合の E_i 及び E_j での共分散である。

(b) LB = 2

$$C_{\text{ov}}(X_i, Y_j) = \sum_{k, k'} P_j^{i; k} F_{XY, k} F_{XY, k'} X_i \cdot Y_j$$

これは、 $E_K < E_i < E_{K+1}$ と $E_{K'} < E_j < E_{K'+1}$ の場合のエネルギー E_i と E_j での断面積の共分散である。相対共分散は $F_K \times F_{K'}$ で表わされる。

(c) LB = 5

$$C_{\text{ov}}(X_i, Y_j) = \sum_{k, k'} P_j^{i; k} F_{XY; k, k'} X_i \cdot Y_j$$

これがエネルギー E_i と E_j の断面積値の相対共分散行列 $F_{XY; k, k'}$ の形で与えられているものである。LB=5 には、以下の 2 つのものがある。

(i) LS=0 非対称行列で、ENDF/B のファイル 33 に指定されているエネルギー点数

NE を用いて表わすと $(NE - 1)^2$ 個の行列要素が与えられている。

(ii) $LS = 1$ 対称行列で、上三角要素のみで $(NE + (NE - 1)/2)$ 個のデータが与えられている。

ここで、 X_i 及び Y_j は、それぞれ反応断面積 X 及び Y のエネルギー i, j での値である。 $P_{j; k'}^{i; k}$ は、エネルギー i がエネルギー範囲 $E_k \sim E_{k+1}$ 及びエネルギー j がエネルギー範囲 $E_{k'} \sim E_{k'+1}$ にある時のみ 1 でそれ以外では 0 を示す。

2-2 共分散誤差処理プログラム "COVRX"

本研究では II-2 でも述べられている様に ENDF/B-V の Covariance File (File 33) のデータより、任意のエネルギー群構造をもつ反応断面積の共分散誤差行列を作成するプログラムを COVSIG コードを改良、作成した。

本 Appendix には、COVRX プログラムのフローチャートを Fig. 2-2-1 に、入力データの説明及び例を Table 2-2-1 に示す。Table 2-2-2 には、ENDF/B-V Dosimetry File に納められている ^{60}Cu (n, α) 反応断面積の共分散誤差行列を COVRX プログラムにより SAND-II コードで用いられるエネルギー群構造 15 群で解析した結果を示す。なお、COVRX プログラムのソースリストをあわせてのせる。

TABLE 2-1-1 STRUCTURE OF FILE 33 IN ENDF/B-V

- 21 -

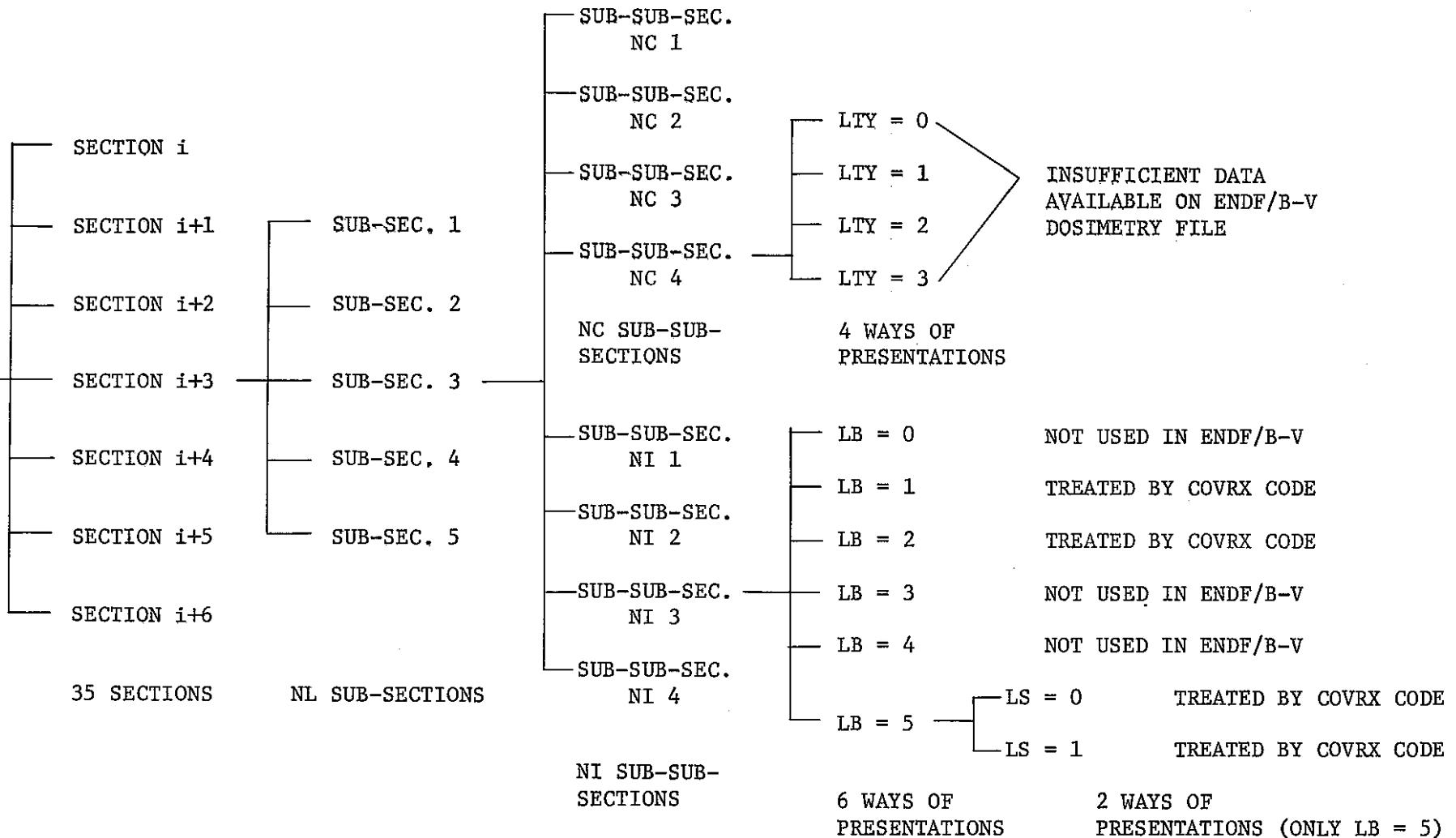


Table 2-1-2. Relative covariance matrix components

$^{54}\text{Fe}(\text{n},\text{p})^{54}\text{Mn}$			ENDF/B-V		MAT=6430, MF=33, MT=103					
Energy range (eV)			1	2	3	4	5	6	7	8
1	1.00-5	1.00+6	0.00	0.00	0.00	2.50-2	6.60-3	3.70-4	8.20-4	5.50-4
2	1.00+6	2.00+6		6.30-4	1.00-3	1.00-3	5.20-3	1.10-3	8.10-4	6.30-4
3	2.00+6	4.00+6			5.40-4	6.00-4	5.50-4	2.20-3	1.00-3	6.60-4
4	4.00+6	6.00+6				5.70-4	4.90-4	4.30-4	1.50-3	1.00-3
5	6.00+6	8.00+6					6.20-4	5.40-4	4.40-4	1.40-3
6	8.00+6	1.20+7						1.00-3	3.30-4	3.00-4
7	1.20+7	1.60+7							2.00-3	1.30-3
8	1.60+7	2.00+7								5.00-4

Symmetric values

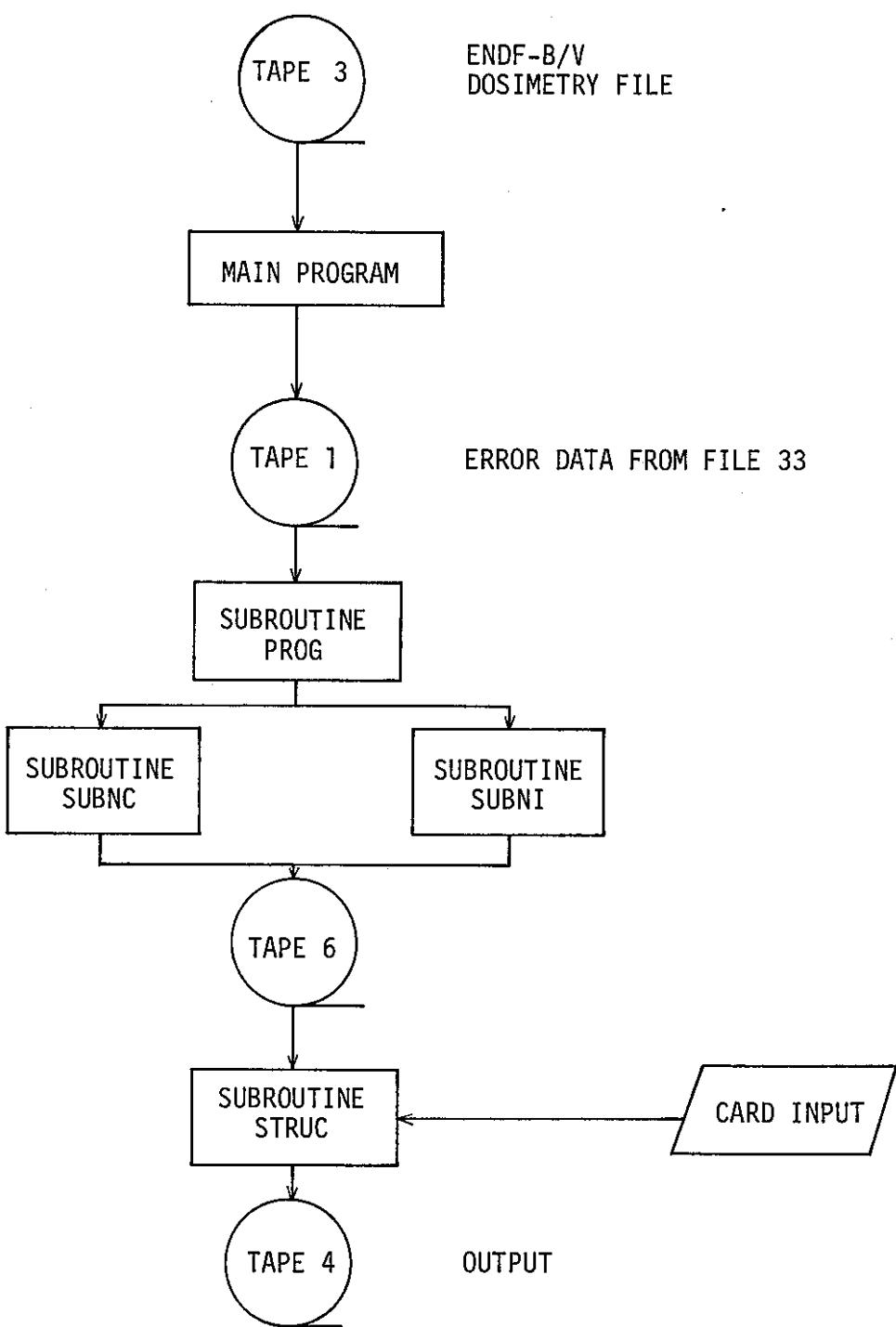


FIG. 2-2-1 FLOW CHART OF COVRX PROGRAM

Table 2-2-1. Input Data for COVRX program
 (Card input for subroutine STRUC)

1. NMAC (I3) ; Number of input energy points.
2. EMAC (5E12.5) ; Input energy structure (eV)
 from low energy to high energy.

Example

16

1.00000E-04	4.00000E-01	1.00000E+01	1.00000E+04	1.00000E+05
6.00000E+05	1.40000E+06	2.20000E+06	3.00000E+06	4.00000E+06
5.00000E+06	6.00000E+06	8.00000E+06	1.10000E+07	1.30000E+07
2.00000E+07				

TABLE 2-2-2. COVRX output for ^{63}Cu (MAT=6435) Correlation Matrix

$\cdot 29063\text{E}+05$	$\cdot 62930\text{E}+02$	0	107	6435	107												
0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	
4	0	0	0	0	0	0	100	100	49	34	24	19	13	6	3		
20	0	0	0	0	0	0	100	100	49	34	24	19	13	6	3		
15	0	0	0	0	0	0	49	49	100	49	34	28	18	8	5		
10	0	0	0	0	0	0	34	34	49	100	49	40	26	11	7		
8	0	0	0	0	0	0	24	24	34	49	100	56	37	16	10		
7	0	0	0	0	0	0	19	19	28	40	56	100	64	29	17		
6	0	0	0	0	0	0	13	13	18	26	37	64	100	50	30		
6	0	0	0	0	0	0	6	6	8	11	16	29	50	100	58		
6	0	0	0	0	0	0	3	3	5	7	10	17	30	58	100		

SOURCE LIST OF COVRX PROGRAM

```

88888888 C
88888888 C      SUBROUTINE STRUC
88888888 C
2222222210      SUBROUTINE STRUC
2222222220      DIMENSION EMAC( 200 ), E( 200 ), CMAC( 200, 200 ), COV( 200, 200 ), NINT( 200 )
2222222230      DIMENSION EPIJN( 200 ), CFIGN( 200, 200 )
2222222240      DIMENSION COR( 200, 200 ), ICOR( 200, 200 ), SDEV( 200 ), IDEV( 200 )
2222222250      DIMENSION A( 200, 200 )

2222222260 C
2222222270 C***** NUMBER OF INPUT ENERGY POINTS *****
2222222280 C
999999690      READ( 7, 88 ) NMAC
222222700      88 FORMAT( I5 )
222222710      NMACM=NMAC-1
222222720 C
222222730 C***** INPUT ENERGY STRUCTURE ( EV )  LOW --- HIGH *****
222222740 C
222222750      READ( 7, 89 ) ( EMAC( I ), I=1, NMAC )
222222760      89 FORMAT( SE12.5 )
222222770      EMAC( NMAC ) = 2.0E+37
222222780      66 READ( 6, 11, END=111 ) DUM
222222790      11 FORMAT( AI )
222222800      GO TO 77
222222810      77 READ( 6, 12 ) ZA, AWR, MAT1, MT1, MAT, MT
222222820      WRITE( 4, 13 )
222222830      13 FORMAT( '-----' )
222222840      WRITE( 4, 12 ) ZA, AWR, MAT1, MT1, MAT, MT
222222850      12 FORMAT( ZE12.5, 4I6 )
222222860 C
222222870 C***** NUMBER OF ENERGY POINTS IN ENDF/B FILE *****
222222880 C
222222890      READ( 6, 18 ) NE
222222900      18 FORMAT( I5 )
222222910      NEM=NE-1
222222920 C
222222930 C***** ENERGY STRUCTURE IN ENDF/B FILE *****
222222940 C
222222950      READ( 5, 20 ) ( E( I ), I=1, NE )
222222960      NEM=NEM-1
222222970      20 FORMAT( SE10.3 )
222222980 C
222222990 C***** COVARIANCE DATA IN ENDF/B FILE *****
222223000 C
222223100      DO 30 I=1, NEM
222223110      READ( 6, 20 ) ( COV( I, J ), J=1, NEM )
222223120      30 WRITE( 2, 22 ) ( COV( I, J ), J=1, NEM )
222223130      K=1
222223140      I=1
222223150      DO 50 J=1, 200
222223160      EPIJN( J ) = AMIN1( E( K ), EMAC( I ) )
222223170      IF( EPIJN( J ) / E( K ) .GT. 0.99999 ) K=K+1
222223180      IF( EPIJN( J ) / EMAC( I ) .GT. 0.99999 ) I=I+1
222223190      IF( EPIJN( J ) .GE. 1.00000E+07 ) GO TO 40
222223200      50 NPFIJN=J
222223210      40 NPFIJN=NPFIJN+1
222223220 C
222223230 C***** EPIJN IS THE FINEST STRUCTURE OF E AND EMAC *****
222223240 C
222223250      WRITE( 2, 23 ) ( EPIJN( I ), I=1, NPFIJN )
222223260      23 FORMAT( SE10.3 )
222223270      NPFM=NPFIJN-1
222223280      KK=1
222223290      DO 200 K=1, NPFM
222223300      LL=1
222223310      IF( EPIJN( K ) / E( LL+1 ) .GT. 0.99999 ) KK=KK+1
222223320      DO 220 L=1, NPFM ...
222223330      IF( EPIJN( L ) / E( LL+1 ) .GT. 0.99999 ) LL=LL+1
222223340      CFIJN( K, L ) = COV( KK, LL )
222223350      220 CONTINUE
222223360      WRITE( 2, 22 ) ( CFIJN( K, L ), L=1, NPFM )
222223370      22 FORMAT( SE10.3 )
222223380      200 CONTINUE
222223390      K=0
222223400      DO 60 I=1, NMAC
222223410      60 K=K+1
222223420      IF( EMAC( I ) / EPIJN( K ) .GT. 1.00001 ) GO TO 70
222223430      60 NINT( I ) = K-1
222223440      WRITE( 2, 19 ) ( NINT( I ), I=1, NMAC )

```

```

000001360 C
000001370 C***** NINT(I) IS NUMBER OF FINE INTERVALS BELOW EMAC(I) *****
000001380 C
000001390      DO 90 I=1,NMACM
000001400      DO 100 J=1,NMACM
000001410 100  CMAC(I,J)=0.0
000001420 90  CONTINUE
000001430      J=1
000001440      DO 110 K=1,NPEFM
000001450      IF(K.LE.NINT(1)) GO TO 110
000001460      I=1
000001470      DO 120 L=1,NPEFM
000001480      IF(L.LE.NINT(1)) GO TO 120
000001490      OP=ALOG(EFIJN(L+1)/EFIJN(L))* ALOG(EFIJN(K+1)/EFIJN(K))
000001500      CMAC(I,J)=CMAC(I,J)+OP*CFIJN(K,L)
000001510      IF(L.EQ.NINT(I+1)) I=I+1
000001520 120  CONTINUE
000001530      IF(K.EQ.NINT(J+1)) J=J+1
000001540 110  CONTINUE
000001550      DO 300 I=1,NMACM
000001560      DO 310 J=1,NMACM
000001570      OP=ALOG(EMAC(I+1)/EMAC(I))*ALOG(EMAC(J+1)/EMAC(J))
000001580 310  CMAC(I,J)=CMAC(I,J)/OP
000001590      WRITE(2,20) (CMAC(I,J),J=1,NMACM)
000001600 300  CONTINUE
000001610      DO 400 I=1,NMACM
000001620      SDEV(I)=SQRT(CMAC(I,I))*199.0
000001630 400  IDEV(I)=IFIX(SDEV(I)+0.5)
000001640      DO 410 I=1,NMACM
000001650      DO 420 J=1,NMACM
000001660      A(I,J)=SDEV(I)*SDEV(J)
000001670      IF(A(I,J).EQ.0.0) GO TO 2
000001680      COR(I,J)=1.0E+06*CMAC(I,J)/A(I,J)
000001690      GO TO 3
000001700 2    COR(I,J)=0.0
000001710 3    ICOR(I,J)=IFIX(COR(I,J)+0.5)
000001720 420  CONTINUE
000001730 410  CONTINUE
000001740      DO 411 I=1,NMACM
000001750      WRITE(4,445) IDEV(I)
000001760      WRITE(4,446) (ICOR(I,J),J=1,NMACM)
000001770 411  CONTINUE
000001780 445  FORMAT(2B15)
000001790 446  FORMAT(3B14)
000001800      GO TO 66
000001810 111  REWIND 4
000001910      RETURN
000001920      END
000001930 C
000001940 C      SUBROUTINE SUBNC(NC)
000001950 C.
000001960      SUBROUTINE SUBNC(NC)
000001970      DIMENSION C(200),X(250)
000001980      DO 10 I=1,NC
000001990      READ(1,15) LTY
000002000 15    FORMAT(3X,111)
000002010      READ(1,30) NCI
000002020 30    FORMAT(55X,111)
000002030      IF(NCI.EQ.0) GO TO 10
000002040      READ(1,40) (C(IK),X(IK),IK=1,NC)
000002050 40    FORMAT(6E11.4)
000002060 10    CONTINUE
000002070      RETURN
000002080      END

```

```

      000002390 C
      000002150 C      SUBROUTINE SUBNI(NI)
      000002110 C
      000002120      SUBROUTINE SUBNI(NI)
      000002130      DIMENSION E1(200),F1(200,200),E2(200),F2(200,200),EPIJN(200),
      000002140      #          FFIJN(200,200)
      000002150      DIMENSION X(3200)
      000002160      DIMENSION B(200,200),F3(200,200)
      000002170      E1(1)=1.E-85
      000002180      E1(2)=2.E+07
      000002190      F1(1,1)=0.0
      000002200      F1(1,2)=0.0
      000002210      F1(2,1)=0.0
      000002220      F1(2,2)=0.0
      000002230      REWIND 5
      000002240      NIT=NI
      000002250      3 NI=NI-1
      000002260      READ(1,1) LT,LB,NPO,NP
      000002270      1 FORMAT(22X,4I11)
      000002280      WRITE(5,1) LT,LB,NPO,NP
      000002290      IF(LB.EQ.1.OR.LB.EQ.2) GO TO 23
      000002300      IF(LB.EQ.5) GO TO 24
      000002310      WRITE(2,27)
      000002320      27 FORMAT('1 LB .NE. 1,2 OR 5')
      000002330      STOP
      000002340      23 READ(1,10) (E2(I),F2(I,I),I=1,NP)
      000002350      WRITE(5,11) (E2(I),F2(I,I),I=1,NP)
      000002360      11 FORMAT(6E13.6)
      000002370      15 FORMAT(6E11.4)
      000002380      GO TO 333
      000002390      24 LS=LT
      000002400      NT=NPO
      000002410      NE=NP
      000002420      NF=NT-NE
      000002430      READ(1,19) (X(I),I=1,NT)
      000002440      WRITE(5,11) (X(I),I=1,NT)
      000002450      DO 32 I=1,NE
      000002460      32 E2(I)=X(I)
      000002470      333 CONTINUE
      000002480      K=1
      000002490      L=1
      000002500      DO 39 I=1,200
      000002510      EPIJN(I)=AMIN1(E1(K),E2(L))
      000002520      IF(EPIJN(I)/E1(K).GT.0.99999) K=K+1
      000002530      IF(EPIJN(I)/E2(L).GT.0.99999) L=L+1
      000002540      IF(EPIJN(I).GE.1.99999E+67) GO TO 49
      000002550      39 NPEIJN=I
      000002560      40 NPEIJN=NPEIJN+1
      000002570      WRITE(2,51) (EPIJN(I),I=1,NPEIJN)
      000002580      51 FORMAT(8E10.3)
      000002590      DO 60 I=1,NPEIJN
      000002600      60 E1(I)=EPIJN(I)
      000002610      IF(NI.NE.0) GO TO 3
      000002620      NI=NIT
      000002630      REWIND 5
      000002640      DO 119 I=1,NPEIJN
      000002650      DO 199 J=1,NPEIJN
      000002660      158 FFIJN(I,J)=0.0
      000002670      F1(I,J)=0.0
      000002680      119 CONTINUE
      000002690      199 NI=NI-1
      000002700      READ(5,1) LT,LB,NPO,NP
      000002710      IF(LB.EQ.5) GO TO 99
      000002720      READ(5,11) (E1(I),F1(I,I),I=1,NP)
      000002730      GO TO 199
      000002740      99 LS=LT
      000002750      NT=NPO
      000002760      NF=NT-NE
      000002770      READ(5,11) (X(I),I=1,NT)
      000002780      IF(LS.EQ.1) GO TO 77
      000002790      DO 61 I=1,NE
      000002800      61 E1(I)=X(I)
      000002810      NEM=NE-1
      000002820      J=NE

```

```

00002830      DO 62 I=1,NEM
00002840      DO 64 IK=1,NEM
00002850      J=J+1
00002860      64   F1(I,IK)=X(J)
00002870      62   CONTINUE
00002880      GO TO 199
00002890      77   DO 21 I=1,NE
00002900      21   E1(I)=X(I)
00002910      NEM=NE-1
00002920      J=NE
00002930      DO 22 I=1,NEM
00002940      DO 14 IK=I,NEM
00002950      J=J+1
00002960      F1(I,IK)=X(J)
00002970      14   F1(IK,I)=F1(I,IK)
00002980      22   CONTINUE
00002990      199  KH=1
00003000      DO 300 I=2,NP
00003010      NSUBH=5
00003020      310  NSUBH=NSUBH+1
00003030      KH=KH+1
00003040      IF(FFIJN(KH)/E1(I).LT.9.99999) GO TO 310
00003050      IMIN=I-1
00003060      KHM=KH-1
00003070      KHMN=KH-NSUBH
00003080      KV=1
00003090      DO 320 J=2,NP
00003100      NSUBV=5
00003110      330  NSUBV=NSUBV+1
00003120      KV=KV+1
00003130      IF(FFIJN(KV)/E1(J).LT.9.99999) GO TO 330
00003140      JMIN=J-1
00003150      KVM=KV-1
00003160      KVMIN=KV-NSUBV
00003170      DO 340 IL=KHMN,KHM
00003180      DO 350 ILL=KVMIN,KVM
00003190      IF(LB.EQ.2) GO TO 352
00003200      FFIJN(IL,ILL)=FFIJN(IL,ILL)+F1(IMIN,JMIN)
00003210      GO TO 350
00003220      352  FFIJN(IL,ILL)=FFIJN(IL,ILL)+F1(IMIN,IMIN)*F1(JMIN,JMIN).
00003230      350  CONTINUE
00003240      340  CONTINUE
00003250      320  CONTINUE
00003260      300  CONTINUE
00003270      360  NEP=NPFIJN-1.
00003280      DO 160 I=1,NEP
00003290      160  WRITE(2,180) (FFIJN(I,J),J=1,NEP)
00003300      180  FORMAT(8EL9.3)
00003310      IF(NI.NE.9) GO TO 198
00003320      WRITE(6,5) NPFIJN
00003330      5   FORMAT(15)
00003340      WRITE(6,180) (FFIJN(I),I=1,NPFIJN)
00003350      DO 200 I=1,NEP
00003360      WRITE(6,180) (FFIJN(I,J),J=1,NEP)
00003370      DO 210 J=1,NEP
00003380      B(I,J)=FFIJN(I,I)*FFIJN(J,J)
00003390      IF(B(I,J).LT.1.E-10) GO TO 888
00003400      F2(I,J)=FFIJN(I,J)/SQRT(B(I,J))
00003410      GO TO 999
00003420      888  F2(I,J)=1.0
00003430      999  F3(I,J)=F2(I,J)
00003440      210  CONTINUE
00003450      200  CONTINUE
00003460      DO 211 I=1,NEP
00003470      WRITE(2,230) (F2(I,J),J=1,NEP)
00003480      211  CONTINUE
00003490      230  FORMAT(10F6.3)
00003500      RETURN
00003510      END

```

第III章 新しいドシメトリー手法の検討・調査

III-1 フルーエンスモニター ^{93}Nb (n, n') $^{93\text{m}}\text{Nb}$ の反応の研究現況

1. 緒言

^{93}Nb (n, n') $^{93\text{m}}\text{Nb}$ 反応を用いたドシメータは、半減期が約13年と長いので長期積算型モニターになること、又、しかもその中性子反応断面積の閾値が低く 0.1~1 MeV 領域の中性子にも感度を有している (^{237}Np (n, f) 断面積に似ているが、これより更に低エネルギーに感度を有する。又 ^{103}Rh (n, n') $^{103\text{m}}\text{Rh}$ とは極めてよく似ている。但し Rh - ドシメータの半減期は56分と極めて早い) という特長があるので、材料照射試験用ドシメータとして極めて望ましい性質を有している。

但し、この Nb - ドシメータについては、現在、核データ（断面積、半減期など）がやゝ不確定のこと、放射化量測定が 20 KeV の X線計数になるので誤差が入り易いこと、特に Ta 不純物混入により生ずる X線が照射後、かなりの間 BG として効くことなどの難点を有しており、現在更にドシメータとして開発中のものという位置づけになり、その現状サーベイを行なった。

2. PTB における研究例 (Cf-252 に対する平均断面積測定)

準備した $^{93\text{m}}\text{Nb}$ 放射線計測器は図-1 の通りであり、高純度 Ge 検出器（直径 16.6 mm, 厚さ 5 mm）の前に、コリメータをつけて、散乱線 1 が Ge に入るのを防ぎ且つ Ge の末端効果 (Fig. 1 の Path 2) を防ぐようにしている。測定データの例を Fig. 2 に示した。又、この測定系の光電ピーク効率を各種標準線源で求めた結果を Fig. 3 に示す。なお、用いた標準線源のうち ^{57}Co (14.4 KeV) と ^{241}Am の X_L 線は他のデータと異なるような値を示したので同図から省いてあるとのことである。又、空気層、Be 窓及び Au 電極層での吸収補正及び Ge の K-X 線 Escape 効果の補正を行なうとこの効率は殆んど入射エネルギーに依らなくなる (Ge が Black detector になるから) ので、これを Fig. 3 に plot してある。

この測定系の Nb - K X 線の測定効率について、Nb 箔厚及び線源 - 検出器きより d を変えた場合の変化について Fig. 4 と 5 に示した。この結果、 $^{93\text{m}}\text{Nb}$ からの K-X 線放出確率は 0.107 ± 0.003 と求められた。この誤差の内訳は計数上の統計誤差 0.3%，検出効率が 2.5%，標準 ^{93}Nb 線源強度の誤差が 1.3% である。

以上の準備の後、PTB の標準中性子源 Cf-252 (中性子発生量 $2.3 \times 10^8 \text{n/sec}$) により ^{115}In (n, n') $^{115\text{m}}\text{In}$ 反応をモニターとして ^{93}Nb (n, n') $^{93\text{m}}\text{Nb}$ 反応の平均断面積を測定している。(照射量は 40 日で $1.2 \times 10^{14} \text{n/cm}^2$) なお、Nb の金属箔は直径 10 mm, 厚さ $28 \mu\text{m}$ で

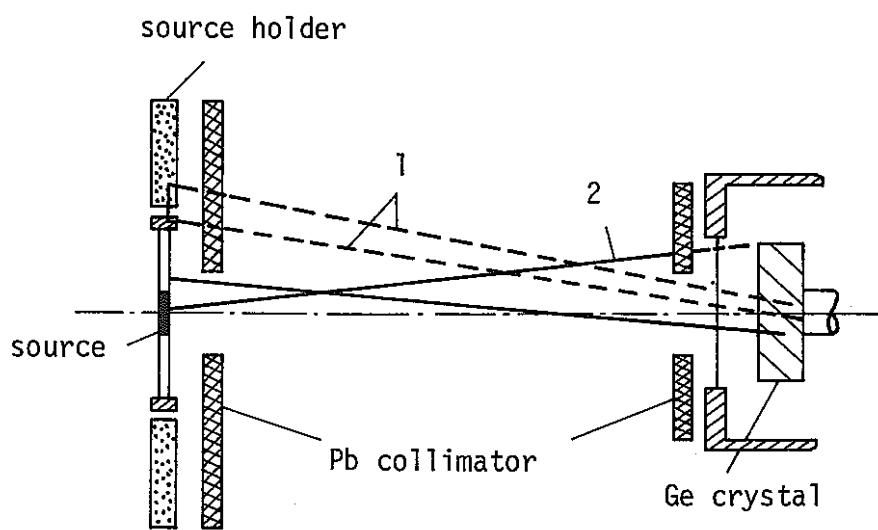


Fig. 1 Detector arrangement in the standard geometry

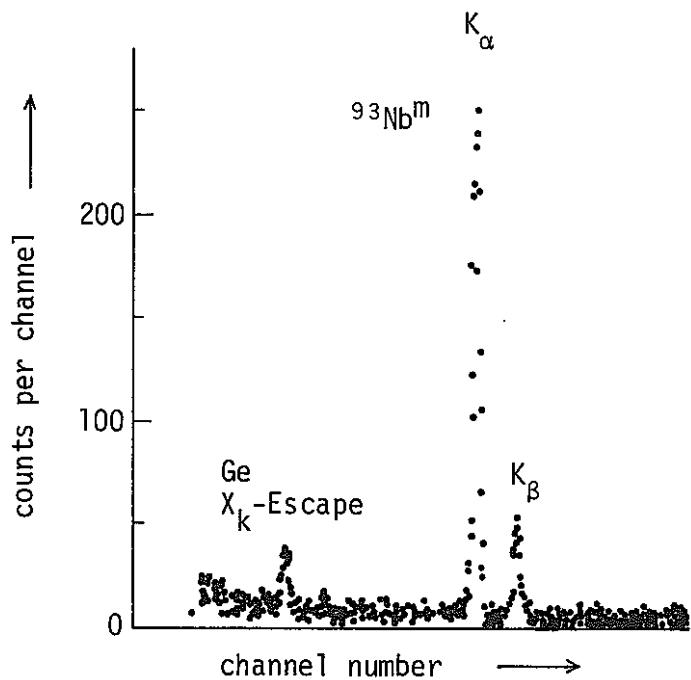


Fig. 2 Pulse height spectrum of Nb Foil 5 obtained with the Ge detector after 80 000 s.

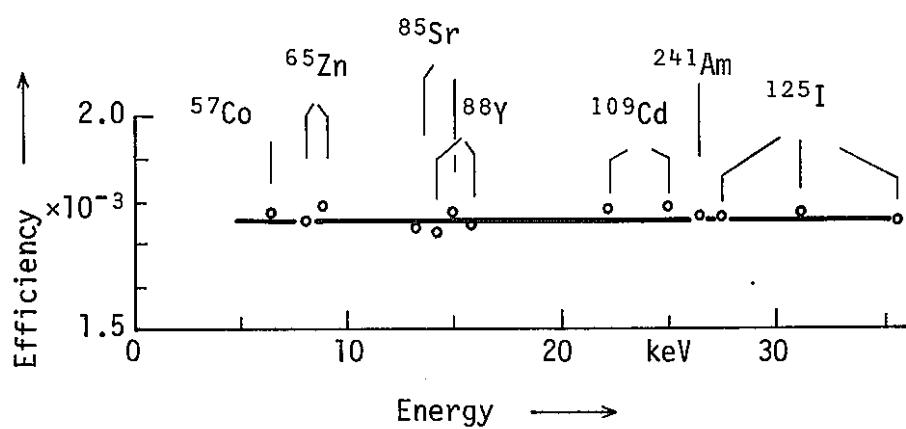


Fig. 3 Corrected efficiency curve for the standard geometry

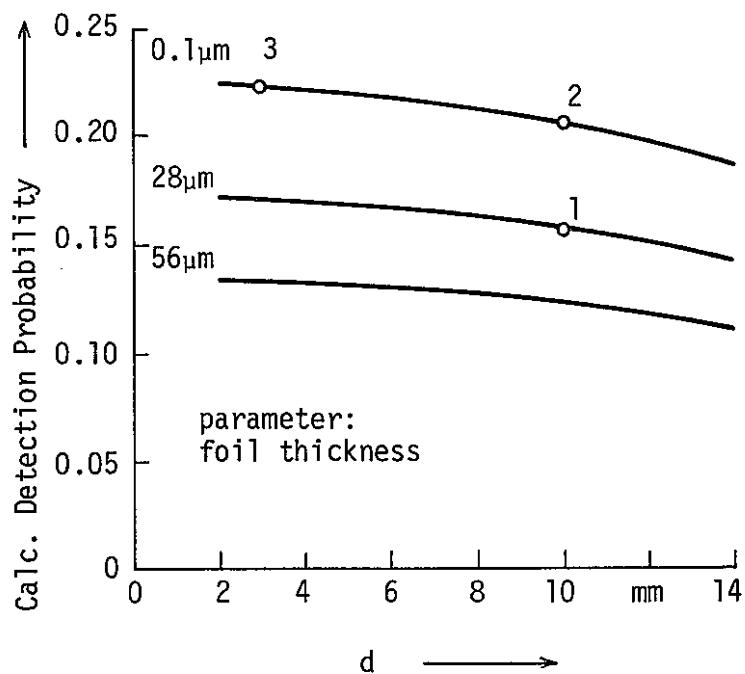


Fig. 4 Variation of the detection probability with the foil diameter d . Foil-detector distance 5 mm, detector diameter 16.6 mm. Numbered points referred to in the text.

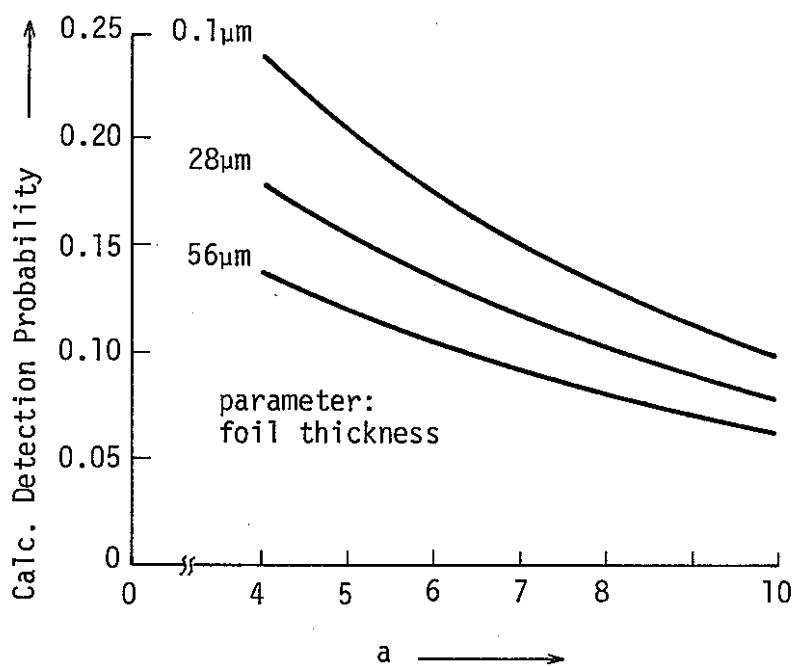


Fig. 5 Variation of the detection probability with the foil-detector distance a . Foil diameter 10 mm, detector diameter 16.6 mm.

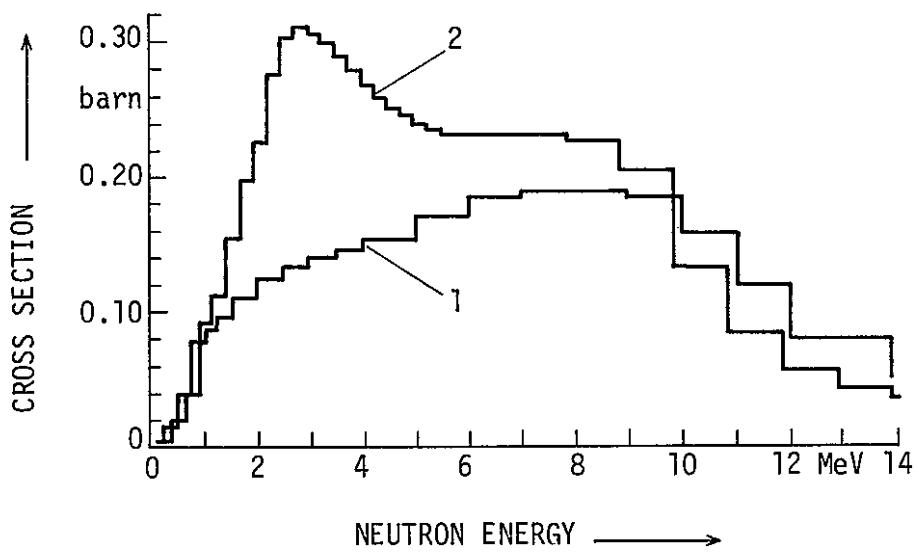


Fig. 6. Cross section for the activation of ^{93}Nb proposed by (1) Hegedüs¹⁹ and (2) Strohmaier et al.¹⁸. Averaging these cross sections over fission neutron spectra (see text) one obtains:
 fission spectrum ^{235}U ^{252}Cf
 $\overline{\sigma}_1$ 97 mb 99 mb
 $\overline{\sigma}_2$ 158 mb 162 mb

Table 1. Emission probabilities
for $^{93}\text{Nb}^m$ X_K-radiation

p_K	= 0.107	\pm 0.003
$p_{K\beta}/p_{K\alpha}$	= 0.195	\pm 0.001
$p_{K\alpha}$	= 0.0892	\pm 0.0025
$p_{K\beta}$	= 0.0174	\pm 0.0005

Table 2. Uncertainty determination
for the cross section

Source of Uncertainty	Rel.Std.Dev. in %
Count rate of Foil 5	3.0
Count rate of standard	0.5
Activity of standard	1.3
Sample-detector distance	0.8
Self-absorption	3.3
$^{93}\text{Nb}^m$ half-life	3.1
Indium cross section	2.5
Indium activity	2.5
Syst. uncertainty of flux determination at	2.0
Nb foil position	
Total	7.0

Table 3. Fission spectrum-averaged
cross sections for $^{93}\text{Nb}(n,n')$ $^{93}\text{Nb}^m$

Reference	Cross Section (mb)
Hegedüs 1971 19	155 \pm 55
Kobayashi 1979 24	164 \pm 12 ⁺
Strohmaier 1980 18	158 \pm 16 ⁺
Sakurai 1981 25	177 \pm 40
Present work	149 \pm 10

⁺Uncertainty does not include
contributions from λ and p_K .

あり Ta 不純物は $180 \mu\text{g/g}$ 含まれているが熱及び熱外中性子がないので Ta の効果は無視できるとしている。照射後 16.6 KeV の $\text{K}_\alpha - \text{X}$ 線を計数し図 4, 5 の補正を行なって Reaction-Rate を求めた。なお、この $28 \mu\text{m}$ の箔は $0.1 \mu\text{m}$ の箔に比べ self-absorption 補正が 1.32 だけ必要であった。又、箔の直径効果を補正し点線源にすると補正 1.082 が必要であり、これらの補正後、標準 $^{93\text{m}}\text{Nb}$ 線源との相対測定により生成 $^{93\text{m}}\text{Nb}$ 量を定めている。

ここで decay 定数は $\lambda = 1.1861 \times 10^{-4} / \text{day}$ (半減期 16 年) を用い、Reaction-rate $R = 5.5 \times 10^{18} / \text{sec}$ が求まり、これを In 箔で求めた中性子束 $\phi = 3.7 \times 10^7 \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ で割って、平均断面積 $\bar{\sigma} = \kappa / \phi = 149 \text{mb}$ が求められた。この不確定性は、Table 2 に示した評価から、約 7 % (1σ) と考えられている。

この平均断面積測定データを基に、従来 2 種類のかなり大きな相違のある微分断面積 (Fig. 6 参照) の検討を行なったところ、大きい方の値 ($\bar{\sigma}_2$, Strohmaier の評価値) により近くなった。又、Cf-252 に対する平均断面積について、他の文献値との比較を行なったものが Table 3 であり、誤差範囲内では、凡そ的一致を示している。以上が、PTB グループの研究データである。

(文献 W.G. Alberts et al., "Measurements with the Niobium Neutron Fluence Detector at the PTB" Proceedings of the Fourth ASTM-EURATOM Symposium on Reactor Dosimetry (NBS, 1982), NUREG/CP-0029 Vol. 1, p 433 (1982))

3. Tourwé (Mol)らの研究

Tourwé らは $\text{Nb}-93\text{m}$ の放射能計測につき検討している。Nb 試料としては、従来、薄い箔 ($X-\text{ray}$ 自己吸収の補正が必要) 又は Nb deposit 法が用いられている。後者は $\text{Ta}-182$ の不純物を減らすことが出来、自己吸収補正もかなり少なくできる。deposit された Nb 量は、Nb-95 又は $\text{Ta}-182$ をトレーサにして定量される。

これに対し Touré らは、トレーサ不要の薄い Nb-deposit を作る方法を開発している。この方法は、

- ① Nb 箔又はワイヤを $0.3 \sim 0.5 \text{m}\ell$ の HF (49.1%) と一緒に、ポリエチ容器に入れる。
- ② ゆっくりと HNO_3 (60%) を数滴入れると Nb が溶ける。このとき、硝酸系の煙が発生する。
- ③ 蒸留水を加えて $2 \text{m}\ell$ 程度にする。この $2 \text{m}\ell$ の値はそれ程厳密でなくてもよいし、Activity に応じて決めればよい。
- ④ これを蒸発を防ぐため口の小さいポリエチビンに入れる。
- ⑤ この溶液中の Nb 濃度 C は

$$C = G / (G_2 - G_1)$$

但し、G は Nb の重量 (1-15mg), G1 は空ビンの重さ, G2 はビンと溶液全体の重さである。

- ⑥ このビンから溶液を数滴 (Activity に応じ 2-4 滴) をロ紙 (直径 10-13 mm, 厚さ~8

mg/cm^2) に落とす。

- ⑦ プラスチックでカバーした Al 箔でこのロ紙ホルダーを作る。HF により Al が溶けるのを防ぐためプラスチックを使う。
- ⑧ 試料中の Nb 量は $(G_4 - G_3) \times C$ である。但し, G_3, G_4 はロ紙へ落とす前と後のビンの重量である。
- ⑨ 1-2 hr 乾燥し, 薄いプラスチックをロ紙面に貼り, ロ紙が歪まない様にする。

以上的方法で約 $300 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の Nb-deposit が 5 枚程作られる。

以上の方法で作った Nb-thin deposit につき, 各種自己吸収, $\text{Ta}-182$, $\text{Nb}-95$ による妨害又, Nb が deposit の外側に多目に存在する効果などを評価し, Si(Li) 検出器より 5 cm 離して計数すれば 1%以下の correction であることが分った。又, この試料作製について再現性も 1%以下であり, 20 日間放置しても計数值に変化を示さなかったとしている。Si(Li) 検出器の効率較正は, 前述の PTB で確立された方法を用いている。参考のために, 標準線源につき表-1 に示した。

以上の試料作製, Nb-93m 計数法を用いて, 小型 PWR の BR-3 炉 (40.9 MWth) の reflector 部で 1.5 年照射し計数した。Nb-93m の $T_{1/2} = 16.4$ 年, $P_X = 0.116$ (= Nb-93m の K-X 線放出等) の定数を用いた。同時に Fe(n, p) モニターを照射し, その比の形でデータをまとめ表-2 に示す。なお, 計算値は, Hegediüs (1971) の断面積を用い, 3 種のスペクトル計算値 (2 次元除去年令拡散コード (23 群, 1965), 1 次元 Sn 法 (40 群, 1977 及び 1979) により求めたもの) を平均して使用した。(このスペクトルによる Nb-activity の差は 7% 程度)。Fe(n, p) については ENDF/B-V の断面積を使用したが, Fabry (IAEA 208-1978, Vol. 1, 233) に示されている bias factor 0.967 を使用した。

High flux reactor BR-2 (80 MWth) の core でも同じように実験した。(照射は 3 週間) このときのスペクトル計算は一次元 Sn 法 (40 群) であり BR-3 と同じコードである。表-3 で測定された放射能比の不確定性は約 7% (Nb-93m の計数 2%, Si(Li) の較正 5%, K-X 線放出率 3%, 半減期 3% 以下, 及び Fe(n, p) の放射能 3%) と評価している。C/M 比が 24-30% 異なっているが, これは Nb(n, n') 断面積の不確定性の上限でもある。Hegediüs の Nb(n, n') 断面積が少なすぎるのではないかということは, W. H. Taylor が SGHWR fuel channel で行なった実験にもあるのでこの点の検討が必要とまとめている。

(文献 H. Tourwe', N. Maene, "Fast Neutron Fluence Measurements with the Nb-93(n, n') Nb-93m Reaction and the Application to long-term Irradiations" EUR-6813 EN-FR (1980) Vol. II., p 1245)

Table 1: Nuclear data used for the calibration
of the Si(Li) detector

Isotope	Half-life	E (keV)	Emission probability (%)
Am-241	432 y.	13.76/13.94	13.2
		15.9 -18.6	19.2
		20.1 -22.2	4.9
		26.35	2.4
Pd-103	16.96 d.	20.07/20.2 22.7	7.0 1.4
Co-57	272 d.	14.41	9.54

Table 2: Comparison of measured and calculated
reaction rates in BR3 and BR2

Location	Nb-93(n,n') reaction rate Fe-54(n,p) reaction rate		C/M
	Calculated C	Measured M	
BR3-reflector	1.33	1.89 ± 0.13	0.70 ± 0.05
BR2-core	1.71	2.25 ± 0.16	0.76 ± 0.05

4. EBR-II と BR-2 での Nb ドシメトリー相互比較

参加機関を表-1に示した。BR-2 での Nb 箔は $20 \mu\text{m}$ 以下で $4 \text{ ppm} \sim 586 \text{ ppm}$ の Ta 不純物を含んでいる。又 EBR-II での Nb 箔も $20 \mu\text{m}$ 以下にしたが、これらはすべて照射中に破損した。そして Powder 状のものが回収されたのでこれを対象にした。（なお照射量は $5.1 \times 10^{19} \sim 1.3 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ で $400 \sim 500^\circ\text{C}$ なので、どうして破損したのか不明、Rapsodie で追試したがこれはなかった。）

Nb 量の重さの測定結果について表-2に示す。計数は殆んどが Si (Li) 検出器で K_α と K_β のピークを加える方式であった。但し P4 は高純度 Ge (低エネルギー用) を、P2 は Si (Li) 以外に液体シンチを用いた。又、P6 は K_α と K_β を分けて計数した。計数用試料作製は、HF 及び HNO_3 に溶かす方法が使われた。これを表-3にまとめた。又、Si (Li) 検出器の較正用標準線源を表-4にまとめた。なお、P2 は液シンで決めた Nb-93m deposit を用いて Si (Li) での計数を行ない、P3 は MTR 型炉内で作った Standard Fluence Source を用いて 1 MeV 以上の fission equivalent fluence の形で求めている。

蛍光効率を考慮した KX 線放出率を表-5に、そして Actirity 結果をまとめて表-6に示した。又、すべての機関が共通に測っている BR 2/-15 のデータで各機関の値を規格化したものが表-7であり、これには各機関固有の Systematic error は除かれている。この様にすると約 2 % 以内で一致することが分る。各機関で行なった不確定性解析結果を表-8に示す。Si (Li) 検出器の効率決定が最も不確定であることが分る。

以上の比較結果より分ることとして述べているのは

- ① 照射 Nb を HF と HNO_3 で溶かす方法はかなり普及していること。
- ② その際に Nb の容量は pycnometer 法がよいこと。
- ③ Foil 計数法は low Ta の pure Nb で蛍光効率について correctrin factor がよく調べられている時ののみ信用できる。
- ④ Nb-93m Activity error は殆んど Si (Li) 検出器の効率較正用の Source の不確定性に依っている。
- ⑤ この相互比較での Reaction -rate の精度は約 2.5 % であり、routine Nb dosimetry でも Activity 4 % Reaction rate 6 % の精度は実現可能であるとまとめている。

(文献、H.Tourwe' et. al., "Niobium Dosimetry Inter-comparison in the EBR II and BR 2", NUREG/CP 0029, Vol. 1, p 401 (1982))

Table 1. Reaction rate and/or activity measurements were performed by seven different laboratories:

- Atomic Energy Establishment, Winfrith, United Kingdom (P1)
- Central Bureau for Nuclear Measurements, Geel, Belgium (P2)
- Centre d'Etudes Nucléaires, Grenoble, France (P3)
- Energieonderzoek Centrum, Petten, Nederland (P4)
- GKSS Forschungszentrum, Geesthacht, Germany (P5)
- Kraftwerk Union, Erlangen, Germany (P6)
- Studiecentrum voor Kernenergie, Mol, Belgium (P7)

TABLE 2. WEIGHT VERIFICATION OF THE Nb DOSIMETERS

LOCATION/LEVEL(cm)	WEIGHT DIFFERENCE IN % $\frac{P_7 - P_1}{P_7} \times 100$																
	EBR II / -1.2	EBR II / -37.8	BR2 / -5	BR2 / -15	BR2 / +5	BR2 / -15	EBR II / -1.2	EBR II / -37.8	BR2 / +5	BR2 / -5	BR2 / -15	EBR II / 0	BR2 / +5	BR2 / -15	BR2 / +5	BR2 / -15	EBR II / 0
P1	0.0	+0.1	+1.5	+1.0													
P2					+0.1	+1.2	-0.2	+0.7									
P4							0.0	-0.5	+0.8								
P5										+1.2	-0.3	+0.4					
P6												-0.3	+0.3	+0.5			

TABLE 3. CHARACTERISTICS OF THE THIN SOURCE DEPOSITS

	SOURCE THICKNESS	NUMBER OF DEPOSITS PER DOSIMETER	BACKING	FRONT COVER	WEIGHT DETERMINATION	UNCERTAINTY ON DEPOSIT WEIGHT (2)
P1	MAX. $60 \mu\text{g cm}^{-2}$	2	COPPER	ADHESIVE POLYETHYLENE FILM	PYCNOMETER METHOD (1)	0.5 %
P2		5	VYNS COATED GLASS DISCS		PYCNOMETER METHOD (1)	0.03 %
P5	MAX. $950 \mu\text{g cm}^{-2}$	2 - 5	GLASS	PLASTIC FOIL	^{94}Nb ACTIVITY MEASUREMENT ON Ge(Li)	1.5 %
P6	MAX. $30 \mu\text{g}$	12			PIPET	0.7 %
P7	MAX. $70 \mu\text{g cm}^{-2}$	5 - 10	ALUMINIUM	PLASTIC	PYCNOMETER METHOD (1)	0.6 %

(1) PYCNOMETER METHOD : THE PYCNOMETER IS WEIGHTED ON A MICROBALANCE BEFORE AND AFTER THE DROPS HAVE BEEN EXPELLED

(2) THE LARGEST ENCOUNTERED UNCERTAINTY IS QUOTED

TABLE 4. Si(Li) DETECTOR CALIBRATION

PARTICIPANT	ISOTOPE (1)	RADIATION ENERGY (EMISSION PROBABILITY IN %)	CALIBRATION UNCERTAINTY (1 σ)
P1	Am-241 (DE)	11.9(0.86 ± .03); 13.9(13.2 ± .35); 17.8(19.25 ± .6); 20.8(4.85 ± .2); 26.35(2.4 ± .1)	3 %
	Cd-109 (DE)	22.1(84.4 ± 3.0); 25.0(17.8 ± .7)	
P2	Nb-93m (DE)	16.6 + 18.6 (not applicable)	1 %
P3	Nb-93m (P)	16.6 + 18.6(11.6)	
	Nb-93m (RF)	16.6 (not applicable)	
P4	Am-241 (P)	26.35(2.40 ± .05)	3 %
	Co-57 (P)	14.41(9.54 ± .13)	
P5	Nb-93m (DI)	16.6 + 18.6(12.0)	2 %
	Y-88 (DE)	14.14 + 15.86(61.6)	
P6	Sr-85(DE); Y-88(DE)		5 %
	Co-57(DE); Mo-99(DE)		
P7	Am-241 (P)	13.76-13.94(13.2 ± .3); 15.9-18.6(19.2 ± .4) 20.1-22.2(4.9 ± .2); 26.35(2.40 ± .05)	5 %
	Co-57 (P)	14.42(9.54 ± .13)	

(1) DE = DEPOSITS; P = MATERIAL BETWEEN POLYETHYLENE FOILS; DI = DISCS;
RF = REFERENCE FLUENCE SOURCE

TABLE 5. DECAY SCHEME PARAMETERS OF Nb-93m

PARTICIPANT	Nb-93m HALF-LIFE (YEAR)	Nb X-RAY EMISSION PROBABILITY	
P1	15.9 ± 0.6	K(X)	0.116 ± 0.004
P2	16.0 ± 0.5	K(X)	0.116 ± 0.004
		K _B /K _A	0.188 ± 0.002
P3	16.4 ± 0.4	K(X)	0.116 ± 0.004
P4	16.4 ± 0.4	K(X)	0.116 ± 0.004
P5	15.0	K(X)	0.12
P6	13.6 ± 0.3	K _A	(0.116 ± 0.004) x (0.841 ± 0.002)
P7	16.4 ± 0.4	K(X)	0.116 ± 0.004

TABLE 6. ^{93m}Nb ACTIVITIES (Bq g $^{-1}$, END OF IRRADIATION)

REACTOR	LEVEL (cm)	AEE Winfrith	CBNM Geel	CEN Grenoble	ECN Petten	GKSS Geesthacht	KWU Erlangen	SCK/CEN Hol
EBR II	0					$2.92 \cdot 10^9$	$3.26 \cdot 10^9$	$2.89 \cdot 10^9$
EBR II	-1.2	$2.89 \cdot 10^9$	$3.01 \cdot 10^9$					$2.88 \cdot 10^9$
EBR II	-37.8	$2.48 \cdot 10^8$	$2.67 \cdot 10^8$					$2.57 \cdot 10^8$
BR2	+5		$7.86 \cdot 10^8$	$7.85 \cdot 10^8$	$8.16 \cdot 10^8$	$8.15 \cdot 10^8$	$8.44 \cdot 10^8$	$7.84 \cdot 10^8$
BR2	-5	$7.77 \cdot 10^8$		$7.99 \cdot 10^8$	$8.21 \cdot 10^8$			$7.90 \cdot 10^8$
BR2	-15	$7.45 \cdot 10^8$	$7.70 \cdot 10^8$	$7.54 \cdot 10^8$	$8.03 \cdot 10^8$	$7.54 \cdot 10^8$	$8.38 \cdot 10^8$	$7.65 \cdot 10^8$

TABLE 7. "BEST" ACTIVITIES OF THE DIFFERENT EBR II AND BR2 SAMPLES

REACTOR	LEVEL (cm)	ACTIVITY RELATIVE TO THAT OF SAMPLE BR2/-15							ACTIVITY OF THE SAMPLES ON THE BASIS ACT. BR2/-15 = $7.76 \cdot 10^8$ Bq g $^{-1}$	OVERALL UNCER- TAINTY
		AEE Winfrith	CBNM Geel	CEN Grenoble	ECN Petten	GKSS Geesthacht	KWU Erlangen	SCK/CEN Hol		
EBR II	0					3.87	3.89	3.78	3.85	0.9 %
EBR II	-1.2	3.88	3.91					3.76	3.85	1.2 %
EBR II	-37.8	0.333	0.347					0.336	0.339	1.3 %
BR2	+5		1.02	1.04	1.02	1.08	1.01	1.02	1.03	1.0 %
BR2	-5	1.04		1.06	1.02			1.03	1.04	0.8 %
BR2	-15	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.0 %

$$(1) \text{ UNCERTAINTY} = \sqrt{\frac{\sum (x_i - \mu)^2}{n(n-1)}}$$

TABLE 8. UNCERTAINTIES IN % THAT CONTRIBUTE TO THE TOTAL UNCERTAINTY ON THE Nb-93m ACTIVITY

TYPE (1)	P1	P2	P5	P6	P7	ACHIEVABLE ACCURACIES AT PRESENT FOR Si(Li) MEASUREMENTS
WEIGHT OF THE DOSIMETER (R)		0.03	0.3	0.6	0.5	0.5
WEIGHT OF THE DEPOSIT (R)	0.5	0.03	1.5	0.7	0.6	0.6
STATISTICAL (R)	0.5	0.2	0.2	0.9	0.5	0.5
Nb X-RAY ABSORPTION IN DEPOSIT, FILTER PAPER, ... (S)	0.1	NEGL.	0.5	0.1		0.1
CALIBRATION OF COUNTING DEVICE (S)	3	1	2	5	5	3
GEOMETRY CORRECTION (S)		NEGL.			0.2	0.2
FLUORESCENCE (S)	NEGL.	NEGL.	0.2		0.1	0.1
[LIQUID SCINTILLATION (S)]		[1]				

(1) R : RANDOM S : SYSTEMATIC

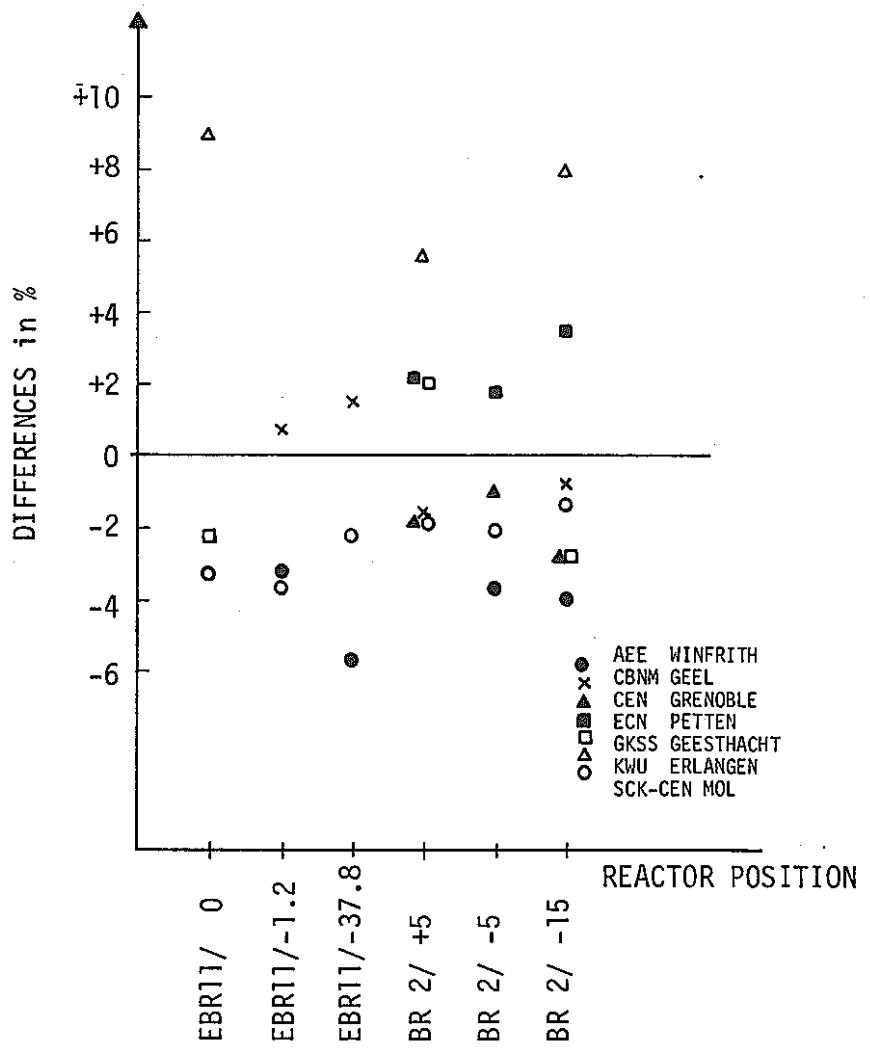


Fig. 1 Comparison of the measured Nb-93m activities.

5. 国内での研究など

PTB の Fission-spectrum Averaged Cross-section の参考値に引用されている様に、国内にても小林（KUR）、桜井（JAERI）らが、この⁹³Nb (n, n') 反応のドシメータとしての研究を行なっている。ここでは、主として、桜井の仕事を報告する。

まず Nb-wire (0.020 ϕ , 純度 99.833%, Reactor Experiments 社より購入) の不純物リストを表-1 に示す。この Nb-wire 1.6 mg と鉄ドシメータ～1 mg を JMTR の J-12 孔で 3 サイクル照射し、412 日 cooling して、110 cm³ の Ge (Li) で計数したデータを図-1 に示す。

Mylar 膜上にこの Nb-wire をおき、HF と HNO₃ を数滴落下して溶かしたものを 200 mm² × 7 mm の高純度 Ge 検出器で計ったデータを図-2 に示す。これにより、Ta の不純物がやゝ影響するが Nb-93m 計数が出来るとしている。なお、半減期及び分岐率等は Table of Isotopes (7 版, 1978) の値、T_{1/2} = 13.6 年、P_{KX} = 0.116 を用いている。

この測定結果を基に、Hegedüs の断面積 (図-3) を用いて、積分中性子束を求めたのが表-2 である。なお、Hegedüs は T_{1/2} = 11.4 年、P_{KX} = 0.122 の値を用いて断面積を求めており、今回

$$\sigma = \frac{13.6}{0.116} \times \frac{0.122}{11.4} \sigma (\text{Hegedüs}) = 1.25 \sigma (\text{Hegedüs})$$

と 1.25 倍して用いている。又、このとき、E_{th} = 0.1 MeV, σ_{eff} = 75.2 mb になり、E_{th} = 0.18 MeV, σ_{eff} = 84.7 mb になった。(但し、JMTR の spectrum に対して)

表-2 より、Nb ドシメータより求めた積分中性子束は、Fe ドシメータに比べ 23% 程大きい、つまり Hegedüs の断面積は約 20% 少なすぎるのではないかとも考えられるが最終的には、T_{1/2}, P_{KX}, σ の誤差などを考えて積分中性子束は約 30% の精度だから両者は誤差範囲内で一致しているとまとめている。

(文献、K. Sakurai, "Measurement of Nentron Fluence Above 0.1 MeV with the Dosimeter ⁹³Nb (n, n') ^{93m}Nb", Nuclear Technology Vol. 57, p 436 (1982))

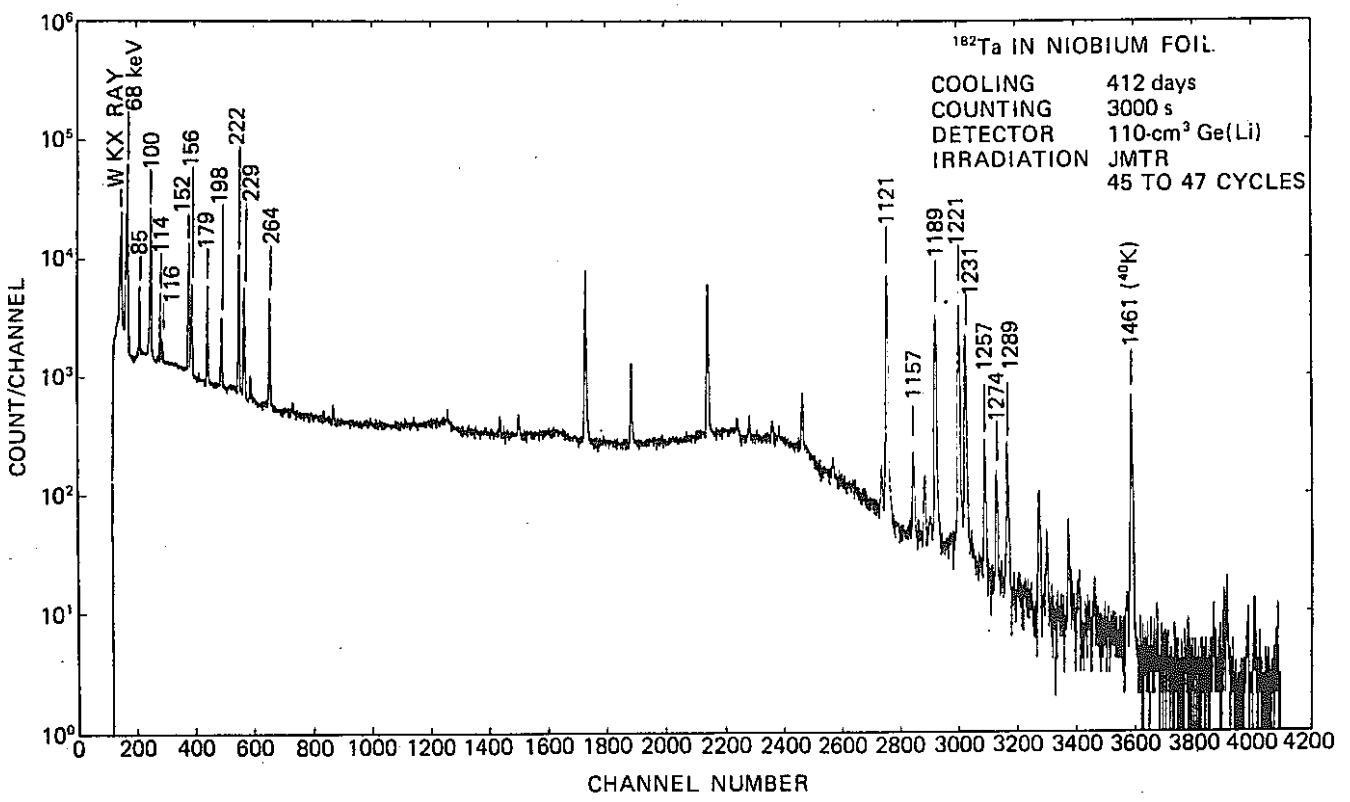


Fig. 1. Gamma-ray spectrum of ^{182}Ta in the niobium dosimeter after 412 days of cooling time

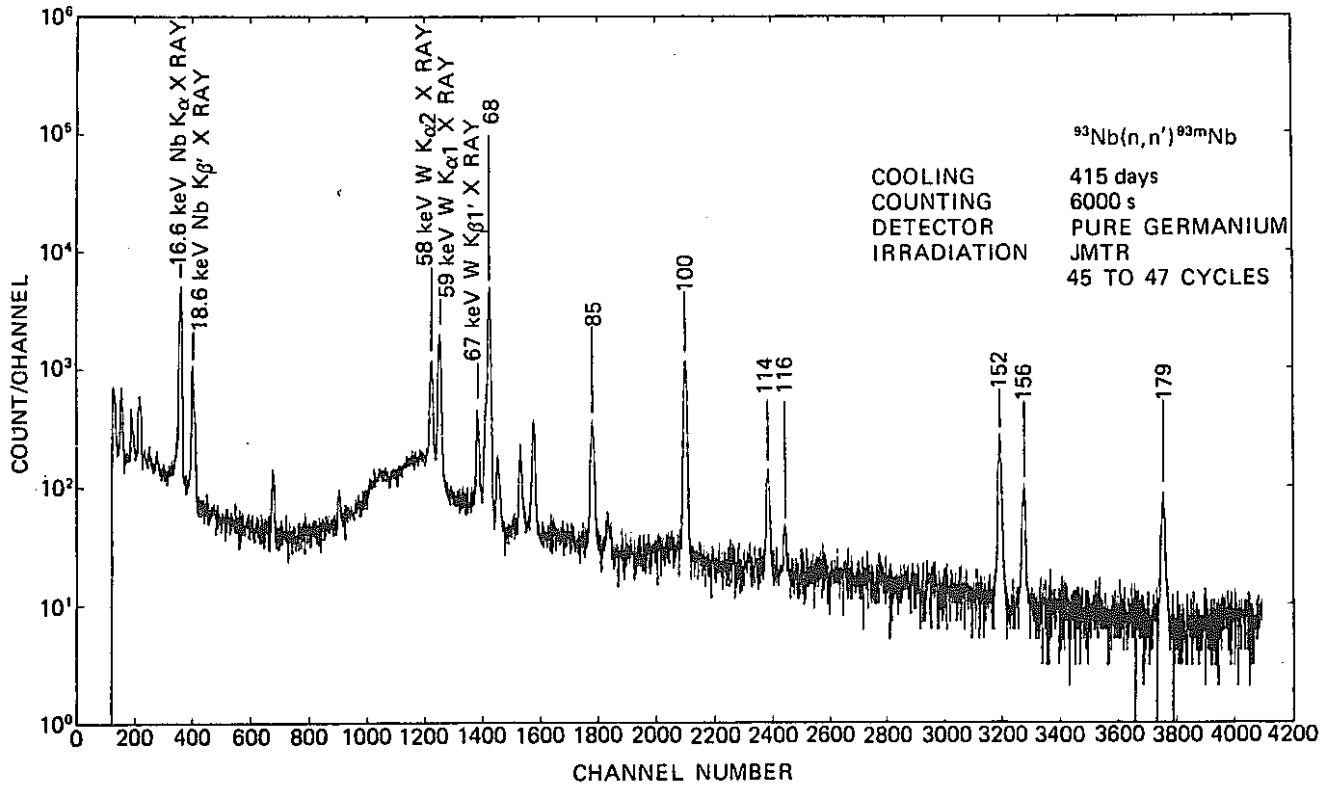


Fig. 2. The KX-ray spectrum of ^{93m}Nb after 415 days cooling time

TABLE I
Impurities of Niobium Wire*

Impurity	Weight Percent	Impurity	Weight Percent
Carbon	0.001	Manganese	0.005
Oxygen	0.003	Calcium	0.001
Nitrogen	0.006	Aluminum	0.001
Hydrogen	0.0005	Copper	0.001
Tantalum	0.045	Tin	0.001
Tungsten	0.010	Chromium	0.005
Zirconium	0.020	Vanadium	0.010
Molybdenum	0.010	Cobalt	0.002
Titanium	0.010	Hafnium	0.010
Iron	0.005	Cadmium	0.005
Nickel	0.005	Lead	0.005
Silicon	0.005		

TABLE II
Neutron Fluence Above 0.1 and 0.183 MeV Monitored with
the Dosimeters $^{93}\text{Nb}(n,n')$ ^{93m}Nb and $^{54}\text{Fe}(n,p)$ ^{54}Mn ,
and Neutron Fluence Above 0.183 MeV
Calculated for JMTR Core

Method	$>0.183 \text{ MeV}$ (n/cm^2)	$>0.1 \text{ MeV}$ (n/cm^2)
JMTR calculation	2.21×10^{20}	---
$^{54}\text{Fe}(n,p)$ ^{54}Mn	2.12×10^{20}	2.46×10^{20}
$^{93}\text{Nb}(n,n')$ ^{93m}Nb	2.61×10^{20}	3.03×10^{20}

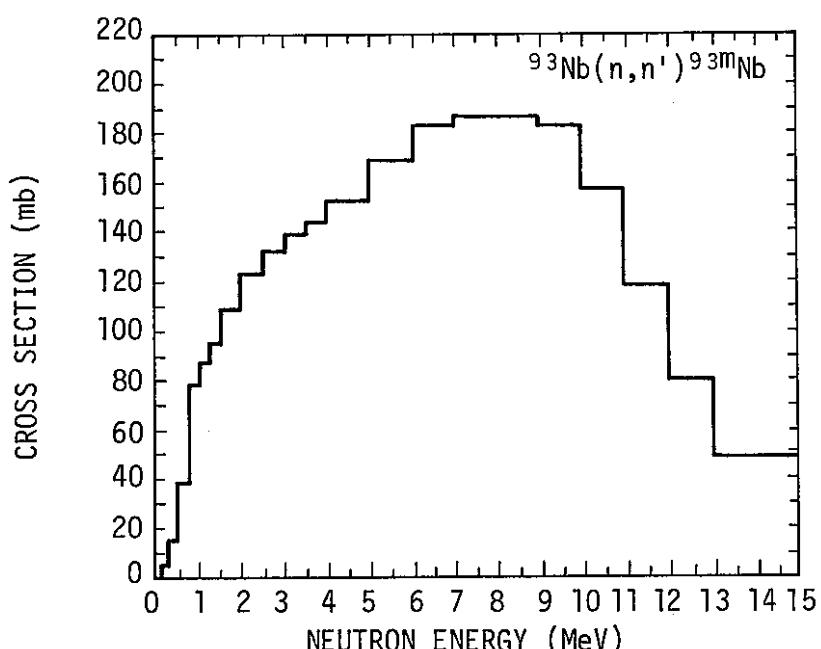


Fig. 3 A $^{93}\text{Nb}(n,n')$ ^{93m}Nb cross-section curve
determined by Hegedüs (Ref. 7).

III-2 Damage-monitor の研究調査

現在、原子炉構造材の照射健全性評価を目的とした原子炉サーベイランス試験では、炉内線量評価に関し、放射化箔、ワイヤを使用する Radiometric-method (RM), 固体飛跡検出器 (SSTR), ヘリウムの生成量から評価する Helium-Accumulation-Fluence-Monitor (HAFM) の 3 種類の方法による実験的評価を実施、検討している。これらの実験から得られる全中性子束及び 1 MeV 以上の積分中性子束が、構造材の中性子照射効果を評価する上での指標として用いられている。しかし、近年、材料の中性子照射効果の相関指標として、中性子スペクトルの効果も含めた形で評価可能である dpa (displacement per atom) の採用が重要視されてきている。そこで現在、原子炉圧力容器材の中性子損傷評価のため、鉄の dpa モニターとして種々の Damage-monitor が開発されている。この Damage-monitor は、従来の RM, SSTR, HAFM に比べ、中性子エネルギー領域約 0.01~0.5 MeV の中速領域に感度をもつため、フルエンス・モニターとしても有効であるという特徴をもつ。この Damage-monitor の候補としては、Quartz, Sapphire, Tungsten, Graphite, Si-diode 等が挙げられているが、まだ、照射中における欠陥のアニーリング、温度依存性等の種々の不明な点が残されており、理論的、実験的研究が、今進められているというのが現状である。

本研究では、この Damage-monitor の候補として挙げられているもののうち、Sapphire について調査したので報告する。

一般的に、高速中性子の照射により受ける材料の最終的損傷段階とは次に述べるような因子により支配される。

1. 中性子エネルギースペクトル
2. 中性子フルエンス
3. 照射温度
4. 材料の化学的成分
5. 中性子線量率

dpa 測定検出器として今回とりあげた Sapphire (single crystal $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$) は以下で述べる様に、物理的、化学的性質の点から適していると考えられる。

Sapphire は適当な価格で高純度のものが得られる。さらに非常に硬く（ダイアモンドを 10 とした場合、モール・スケールで硬さ 9），機械的にも強く、劈開面がない。摩いた表面は真空中での加熱、1500°C までの温度で大気中の酸化、還元に影響を受けないため、化学的性質変化はほとんどない。アルミニウム、酸素は中性子照射に対しては安定した元素である。又、炉内中性子に対しての捕獲断面積が非常に小さく、試験片は 10^{20} n/cm^2 までの数日間の照射であって、手によっても安全に扱う事が可能である。この様な点からも原子炉内の苛酷な環境下における検出器としては理想的な材料であると考えられる。

Sapphire の放射線損傷の挙動には特筆すべき点がある。DoranとGravesによれば、鉄とアルミニウムはよく似た dpa 断面積 (Fig. 3-3-1) をもつ。そして、はじき出し損傷により生成される欠陥のほとんどは、適温では動かないという事実が明らかにされている。又、センターを引き起こす放射線の等時アニーリングは、ほとんどのセンターが F-センターを除けば 250°C 以下では安定である。Al の vacancy-center (V-center) はより安定で、400°C 以上に達するまでアニールは始まらず、1100°C で完全にアニールが終了する。さらに 1 dpa 以下の damage dose に対しては、点欠陥は 500°C 以下では集合しないという事実が、電子顕微鏡での観察結果より得られている。

続いて Damage-monitor の測定技術について述べる。アルミニウムの vacancy あるいは interstitial の存在を検出する方法としてはいくつかのものがある。そのうちの 1 つとして、X 線による格子パラメータ測定がある。これは、酸化物あるいは高純度サファイアの場合の放射線損傷で広く用いられている。これは、 10^{17} n/cm^2 以上の照射での放射線損傷で高精度測定が可能である。但し、この測定法は、200 °C 以上の温度に対し、非常に敏感である酸素の sublattice の変化にも影響されるという欠点がある。

次に本研究で調査した Optical spectroscopy について述べる。これはアルミニウムが数種類の V-center を持つており、1 つの broad absorption band (V-band) でオーバーラップし、集まっている V-center を検出するものである。これは、摩いた Sapphire block の optical absorption spectra を Cary 14 dual beam の spectrophotometer により測定する。1 例として、後述する Pells 他が行なった実験結果の optical absorption spectra を Fig. 3-3-2 に示す。横軸は波長で縦軸は optical density $\log_{10}(I_0/I)$ である。 I_0 は入射光強度、 I が測定光強度である。試験片は中性子照射後、ステンレス缶からとり出され、吸収スペクトルの再測定の前に optical equilibrium に達するまで、2~3 週間日光にさらしておく。又、カラーセンターが飽和するように、約 1 Mrad の X 線照射を行なう。

次に、Harwell の Pells 他が行なった Sapphire damage-monitor の実験について説明する。これは、 $2 \times 3 \times 10 \text{ mm}$ の直方体ブロック Sapphire をアルミニウム・ホイルでつつみ、ステンレス缶に封入し、HERALD Swimming Pool Reactor 及び ORNL の Pool-Side Facility (PSF) で $3 \times 10^{16} \sim 2 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2 (>1 \text{ MeV})$ の照射実験である。照射温度は 60°C, 250°C, 及び 290°C である。Fig. 3-3-2 に 250°C で照射された Sapphire の吸収スペクトルを示す。又、Fig. 3-3-3 に高速中性子フルエンスの関数として、X 線照射を行なったものと行なわない試験片の 600 nm での optical density を示す。Fig. 3-3-4 には PSF での実験結果を示す。Fig. 3-3-3 の結果は、同じ中性子スペクトル場におけるもので、Fig. 3-3-4 の結果は、違ったスペクトル場による結果である。両者の結果から、response は non-linear である事がわかる。Fig. 3-3-5 には、dpa を指標として用いた場合の結果を示す。Fig. 3-3-3 におけるデータのはらつきの原因としては、中性子線量測定によるものとアルミニウムの V-center の

フェーディングによる光学的測定のものが考えられる。

Optical spectroscopy の精度について述べる。spectrophotometer の精度及び再現性は、 10^{17} n/cm^2 の中性子線量に対し、~5%， 10^{19} n/cm で <1% である。又、optical absorption value は、試験片の厚さの誤差に比例する。もし、この optical measurement のみが誤差を支配するとすれば、この sapphire damage-monitor は、 $2 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ で ±1.5%， 10^{17} n/cm^2 で ±4.5% の精度が得られる。又、optical pass length を 2 mm から 10 mm に増すと、 10^{17} n/cm^2 以上の中性子線量では 1% 以下になると予想される。

結論として、以上述べてきた事より、Sapphire の Damage-Monitor としての特性は、軽水炉のサーベイランス試験には、適用可能である事がわかる。今後、照射温度 400°C 以上の試験を行ない、高速炉サーベイランス用の Damage-Monitor としての特性評価が必要であると考える。

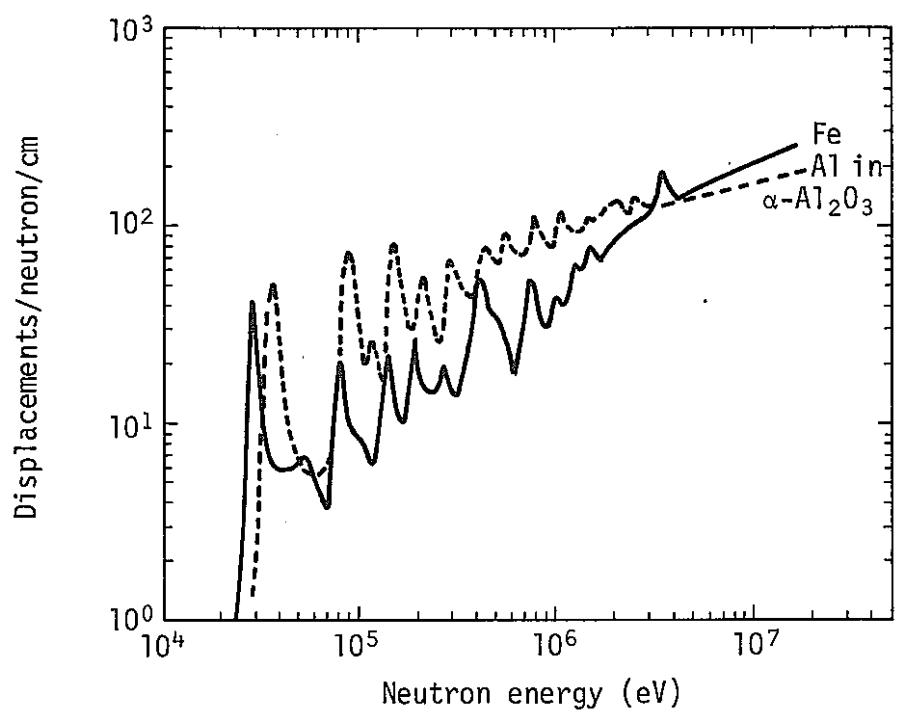


Fig. 3-3-1 DISPLACEMENT DAMAGE CROSS SECTIONS FOR IRON AND ALUMINIUM IN α -ALUMINA (DORAN AND GRAVES)

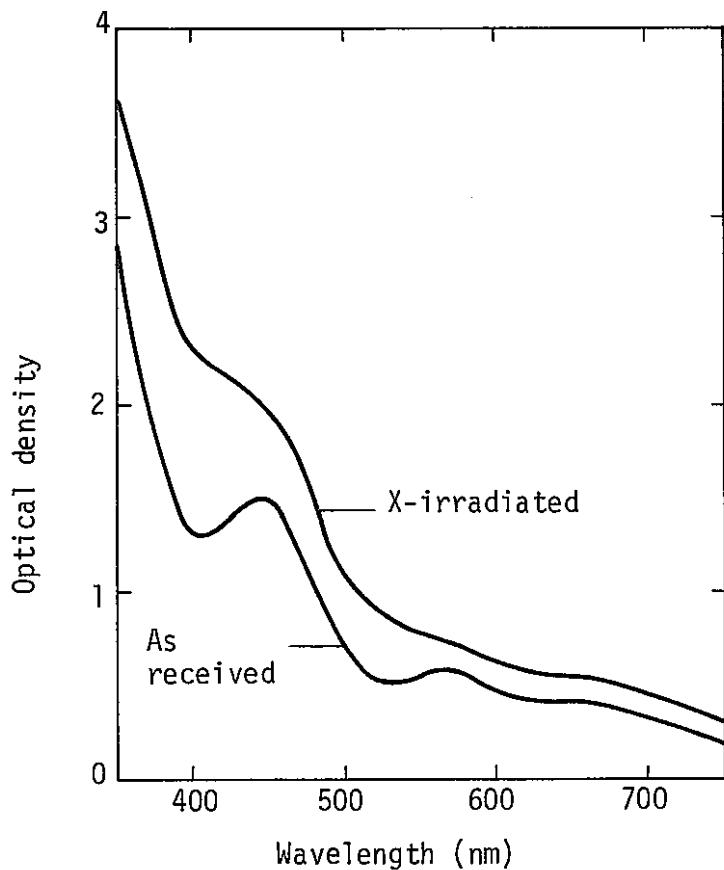


Fig. 3-3-2 OPTICAL DENSITY/WAVELENGTH FOR AN IRRADIATED SAPPHIRE SPECIMEN

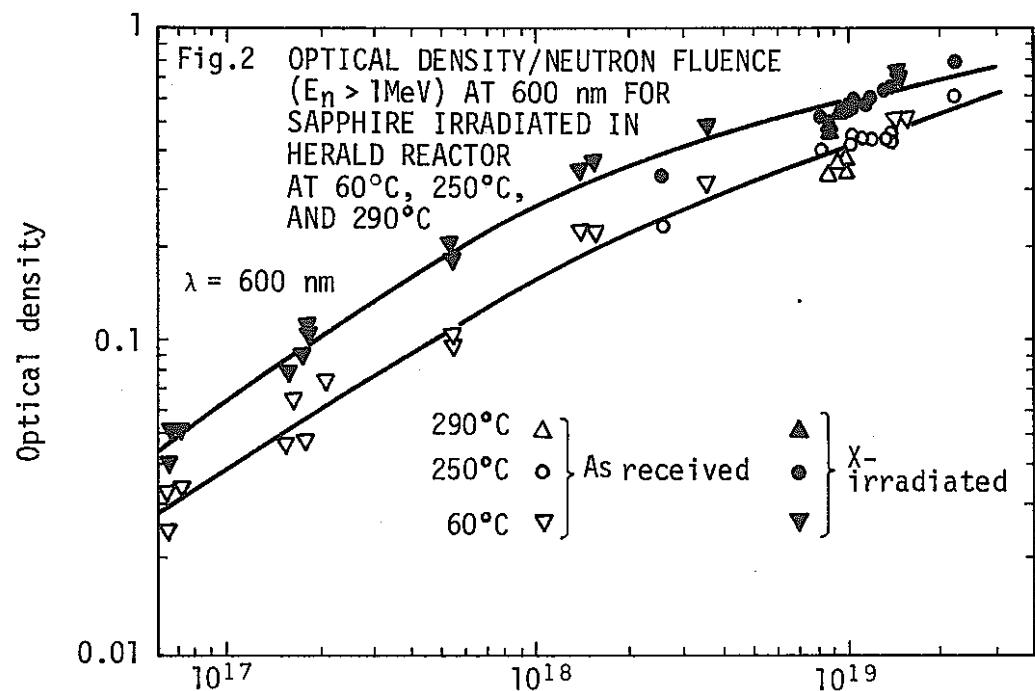


Fig. 3-3-3 Neutron fluence ($E_n > 1\text{MeV}$) (n/cm^2)

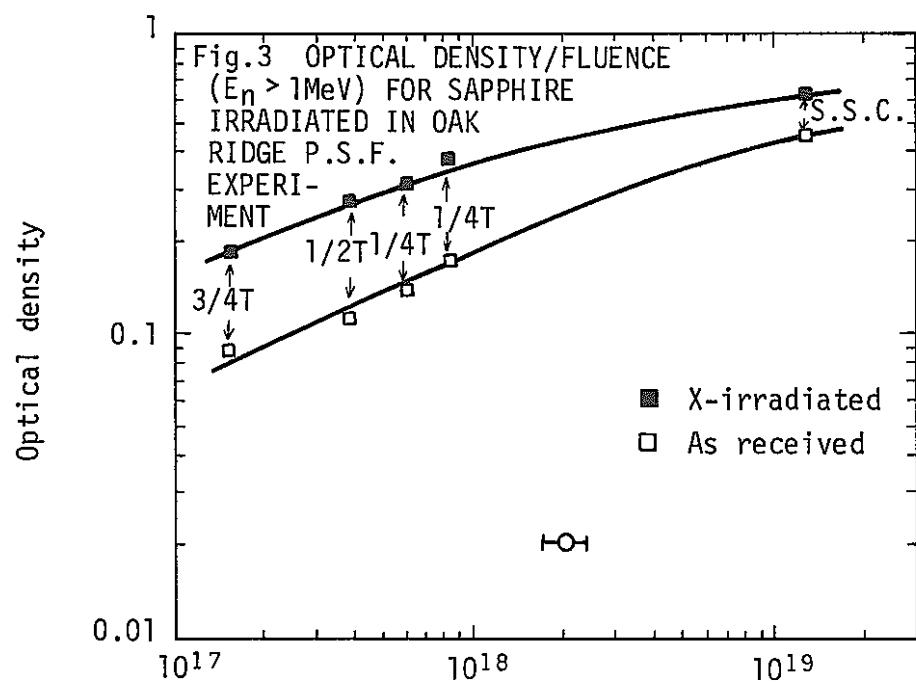


Fig. 3-3-4 Neutron fluence ($E_n > 1\text{MeV}$) (n/cm^2)

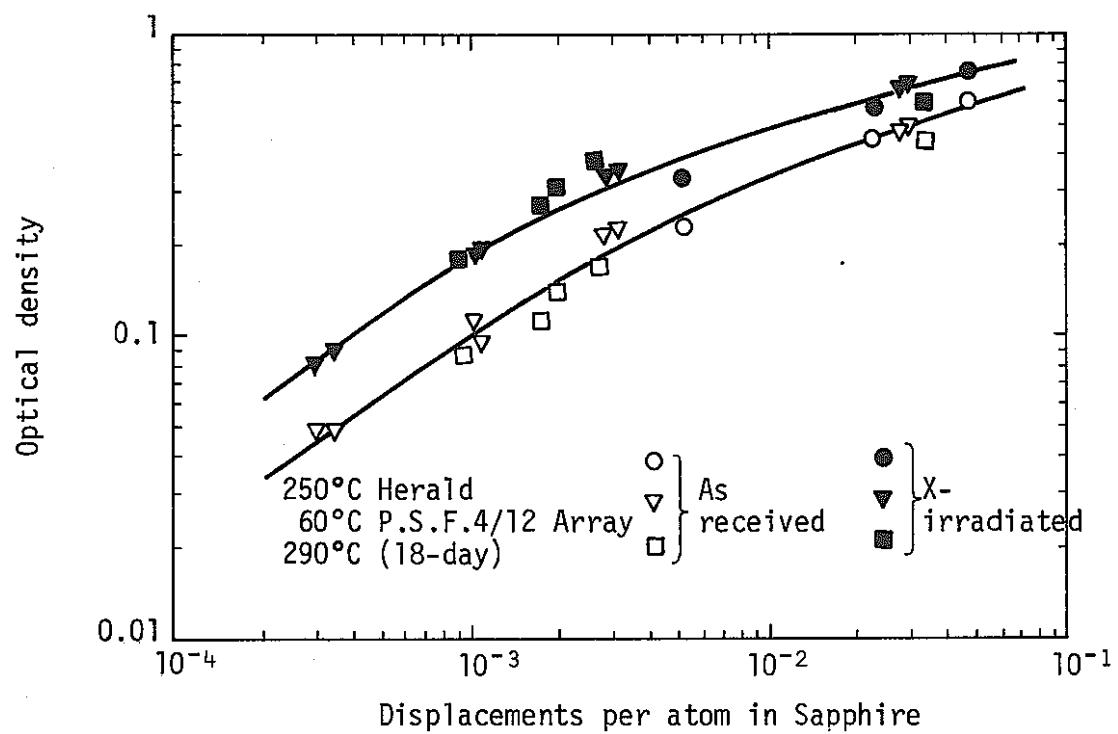


Fig. 3-3-5 OPTICAL DENSITY/DISPLACEMENTS PER ATOM IN SAPPHIRE

III-3 まとめ及び今後の課題

Nb-93 (n, n') Nb-93m ドシメータの現状及びサファイヤを用いた Damage-Monitorについて調査した結果、

- ① Nb-ドシメータについては、常陽自身を用いて実用化のための研究を行ない、特に HF + HNO₃ 溶解法がルーチン処理をするためにどの程度簡略化できるかを不純物の観点から実際にチェックしていくことが望まれよう。
- ② サファイヤを用いた Damage monitor については、400 °C以下では利用可能であるが、高速炉内温度条件にて適用可能であるかどうかについての特性評価が必要である。又、この開発を含め Damage monitor については HEDL の動向に注目すべきである。
- ③ Helium Accumulation Fluence Monitor (HAFM) については、今回詳細なレビューは省いたが、常陽における適用性を確認し特性量の測定のためにその導入を計ることが望ましい。一つの方法として、DOE-HEDLを通して、又は Rockwell-International 社に直接、依頼してみることも可能である。(これは Rockwell-International 社に直接問合せた結果であり、先方は多いに乗り気であった。)

以上。