

MA 核種の高速中性子核分裂断面積の測定

(動力炉・核燃料開発事業団 研究委託内容報告書)

1998 年 3 月

東北大学 工学部 量子エネルギー工学科

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下さい。

〒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

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to : Technology Management Science
O-arai Engineering Center, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 4002 Narita-
machi. O-arai-machi, Higashi-Ibaraki-gun, Ibaraki-Ken, 311-13, Japan

© 動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation) 1998

MA 核種の高速中性子核分裂断面積の測定

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である。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実施した。

本研究では、まず、高精度で高時間分解能を持つ測定手法の開発を行った。本研究で開発したあるいは実験的な改良を加えたものは以下の通りである。(1)密封型核分裂計数管の開発、(2)Li 中性子発生ターゲットの高強度化、(3)飛行時間系測定回路の高時間分解能化、(4)高質量の MA (Np237, Am241, Am243) 試料の導入と(5)高純度のウラン試料の導入である。

これらの改良された測定装置並びに試料を用いて、本研究では、まず、Np237 に対する核分裂断面積測定を実施し、10-100keV の中性子エネルギー領域に対する Np237 の核分裂断面積を測定した。さらに、Am241 及び Am243 については、 $kt=25.3\text{keV}$ の Maxwell 分布を持つ中性子スペクトル平均の核分裂断面積を測定した。

本報告書は、東北大学が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究内容結果である。

契約番号: 090D0215

事業団担当部課室及び担当者: 大洗工学センター基盤技術開発部炉心技術開発室 大川内靖

* 東北大学工学部量子エネルギー工学科 (旧 原子核工学科)

COMMERCIAL PROPRIETARY
PNC TJ9601 98-002
MARCH 1998

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). 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 was measured using Dynamitron Accelerator in Tohoku University.

New or improved techniques and tools with high precision and fast timing capability were developed for this study. Those are as follows: (1) Development of a sealed fission chamber, (2) Intensification of Li neutron target, (3) Improvement of time-resolution of Time-of-Flight (TOF) electronic circuit, (4) Introduction of MA (Np237, Am241 and Am243) samples with large sample mass and (5) Introduction of a U235 sample with high purity.

Using these improved tools and samples, fission cross section of Np237 was measured between 10 to 100 keV. On the other hand, averaged fission cross section for Maxwell distribution spectrum with $kt=25.3$ keV was measured for Am241 and Am243.

Work performed by Tohoku University

under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel development Corporation

PNC Liaison: Yasushi Ohkawachi,

Core Physics Research Section, advanced Technology division

* Department of Quantum Science and Energy Engineering, Tohoku University

目次

1	目的	1
2	データの現状と測定領域の検討	2
2.1	^{237}Np	2
2.2	^{241}Am , ^{243}Am	5
3	サンプルの作製と定量	10
3.1	Np 試料	10
3.2	Am 試料	18
3.3	U 試料	23
4	エネルギー依存 ^{237}Np の核分裂断面積測定	24
4.1	測定原理	24
4.2	実験手法の改良	26
4.2.1	密封型核分裂計数管の開発	26
4.2.2	Li 中性子発生ターゲットの高強度化	32
4.2.3	飛行時間系測定回路の高時間分解能化	34
4.3	測定 I (平成 8 年度)	38
4.3.1	照射	38
4.3.2	実験結果	43
4.3.3	データ処理	55
4.3.4	結果	64
4.4	測定 II (平成 9 年度)	67
4.4.1	照射	67
4.4.2	実験結果	69

4.4.3	データ処理.....	74
4.4.4	結果.....	78
4.5	^{237}Np 核分裂反応断面積測定のまとめ.....	80
5	^{241}Am, ^{243}Am のスペクトル平均核分裂断面積測定.....	82
5.1	はじめに.....	82
5.2	測定原理.....	83
5.3	実験.....	85
5.3.1	数 10keV 領域の中性子源の開発.....	85
5.3.2	測定.....	91
5.3.3	実験手順.....	95
5.3.4	結果・データ処理.....	103
6	結論.....	114
	参考文献.....	115

1 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。そこで、新しい核燃料サイクルの一つとして、環境への負荷低減性に優れているアクチノイドサイクルの検討を実施している。

アクチノイドサイクルでは、炉心燃料にマイナーアクチノイド(MA: Np, Am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、高速及びエピサーマル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 データの現状と測定領域の検討

2.1 ^{237}Np

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-3¹、ENDF/B-VI²およびJEF-2³である。

Fig.2.1.1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}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比較して示す。また、Fig.2.1.2には、 ^{237}Np に対する最も新しい核分裂断面積測定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.2.1.1に示されている ^{237}Np に代表されるように、およそ数100keVに閾値を持つ閾核分裂性核種である。これらの核の核分裂断面積のエネルギー変化は、(a)閾値以上の領域(1MeV以上)のおおむね2barn程度で平坦な変化、(b)閾値付近(100keVから1MeV間)の急激な変化、(c)閾値以下の領域(100keV以下)のおおむね10mbarn程度の平坦な変化に3つで特徴づけられる。

これらの領域に分けて断面積データの現状を見ると、(a)の閾値以上の領域ならびに(b)の閾値付近では測定値間のばらつきも比較的少なくライブラリ間の差もあまり見られれない。これに対し、(c)の閾値以下の領域では、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同様な大きな違いが見られる。この領域の差は、代表的なエネルギー点の10keVで見ると、JENDL-3.2とENDF/B-VIの差は、100%を越える差となっている。さらに、Fig.2.1.2を見ると、両者の間のこの大きな差は1eVから10keV領域についても、同程度の差となっていることがわかり、JENDL-3.2の値が近年測定されたYamanaka⁴の結果によって支持されていることも確認できる。

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、Yamanaka らの測定は数 keV 程度までであることを考えると、(c)の領域の中でも 10KeV から 100keV までの測定が重要であると考えられる。そこで、本研究では、数十 keV 領域の測定を実施することとした。このエネルギー領域は、東北大学ダイナミトン型加速器で通常の発生させている領域(数百 keV 以上)と異なるため、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は、4.3 節で報告する。

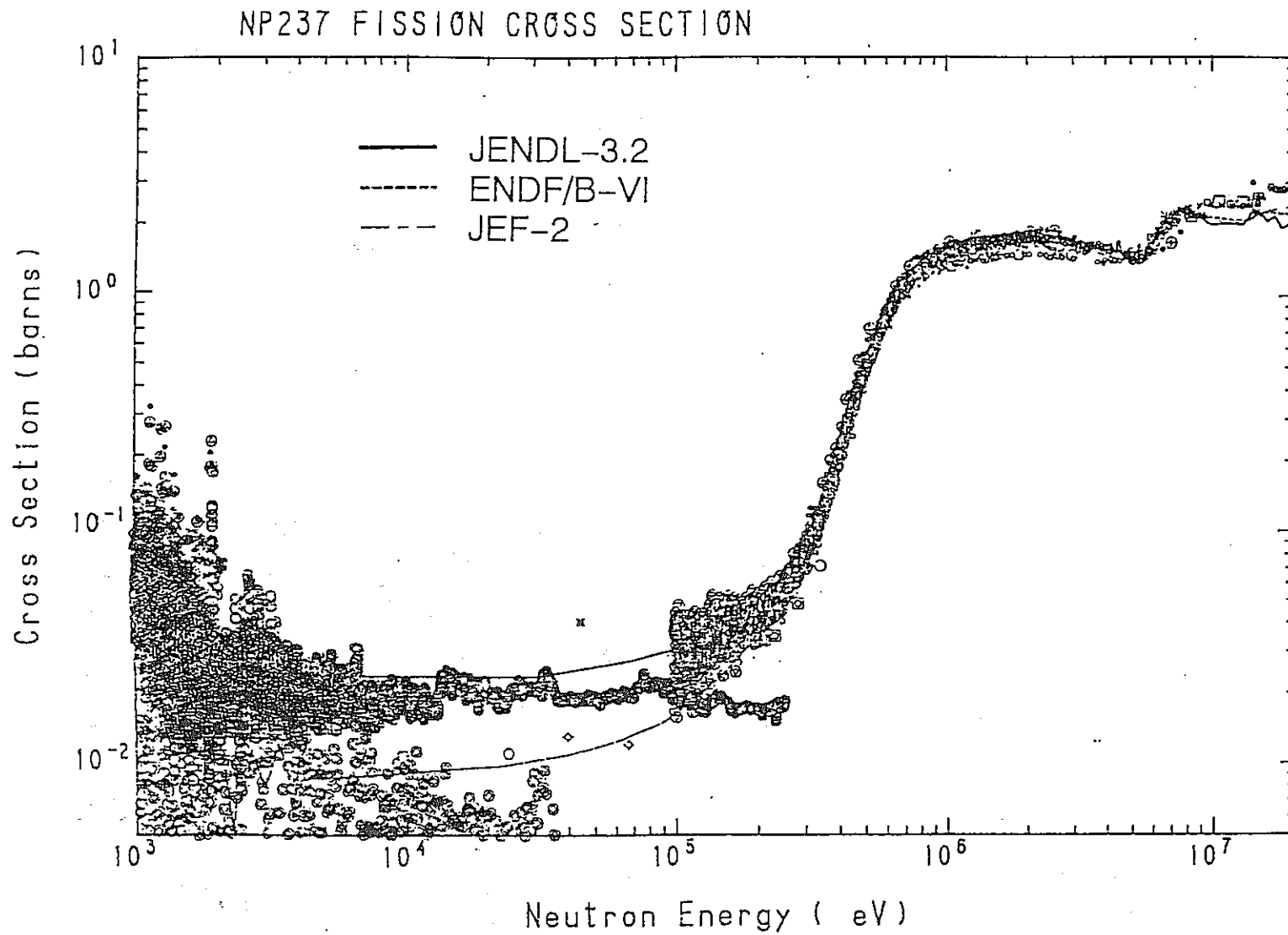


Fig. 2.1.1 Fission cross section of ^{237}Np between 1 keV and 20 MeV

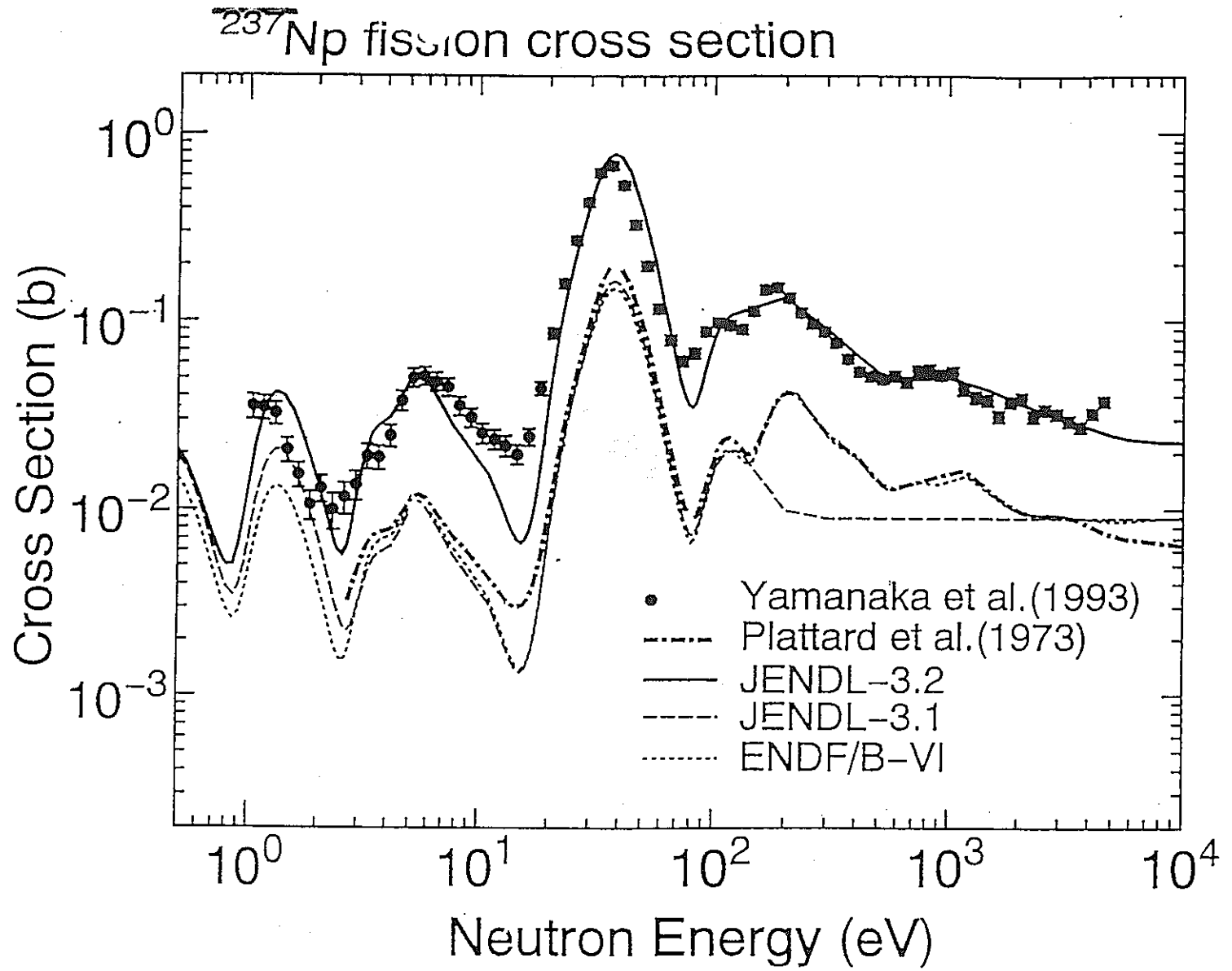


Fig. 2.1.2 Fission cross section of ^{237}Np between 1 eV and 10 keV

2.2 ^{241}Am , ^{243}Am

Fig.2.2.1 及び 2.2.2 に、同じく 1keV~20MeV の間の ^{241}Am 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比較して示す。また、Fig.2.2.3 及び 2.2.4 に、 ^{243}Am に対する同様の図を示す。

^{241}Am の断面積を見ると、断面積の測定値は最新のライブラリ間で良い一致を示しているが、測定値間には大きな差が見られる。 ^{243}Am の場合は、測定自体の数が少ないためかばらつきはあまり大きくないが、核データライブラリ間には大きな差が見られている。

このようなことから、両核に対する測定が ^{237}Np 同様に重要であることが分かる。

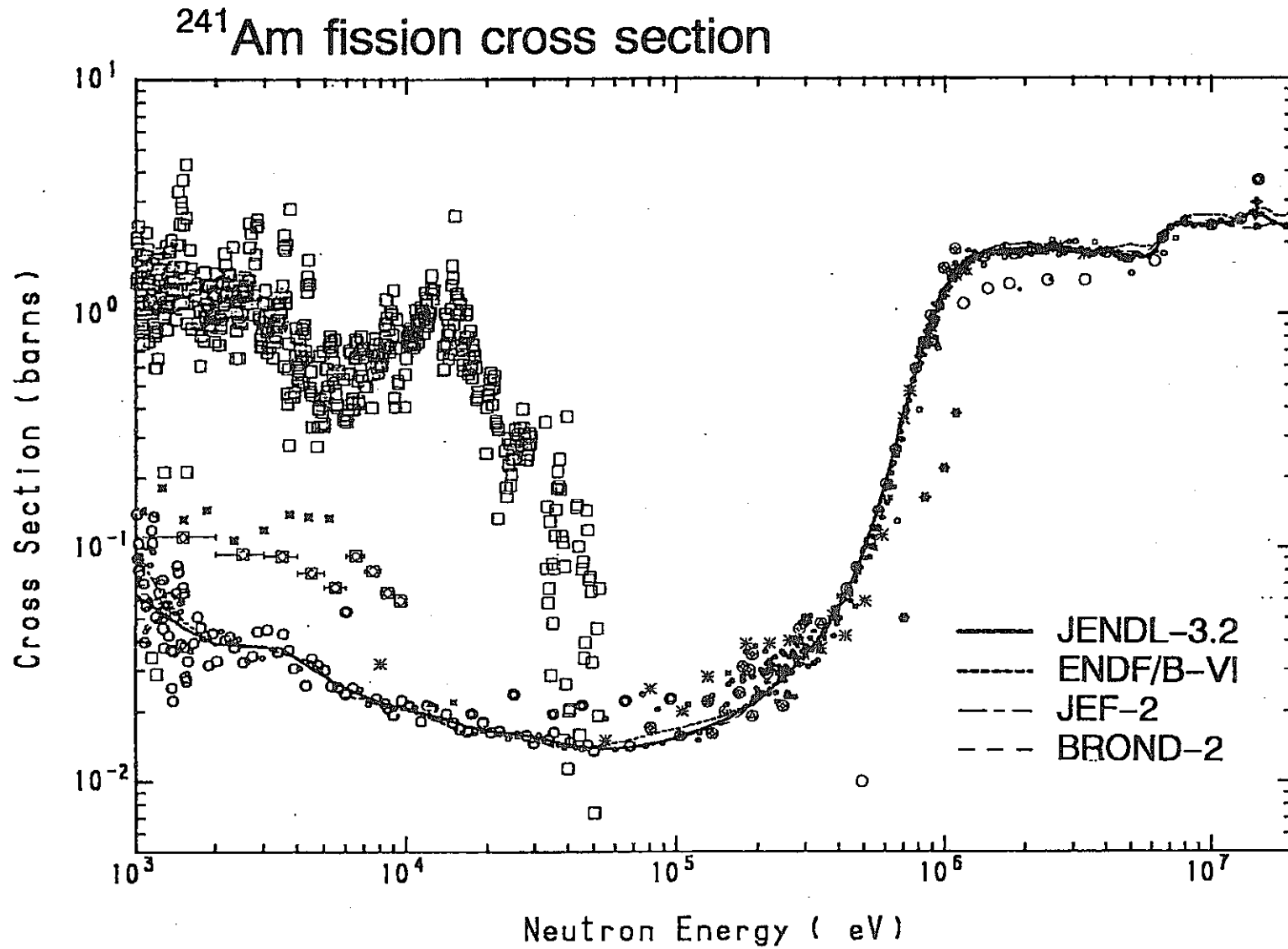


Fig. 1.2.1 Fission cross section of ^{241}Am between 1 keV and 20 MeV

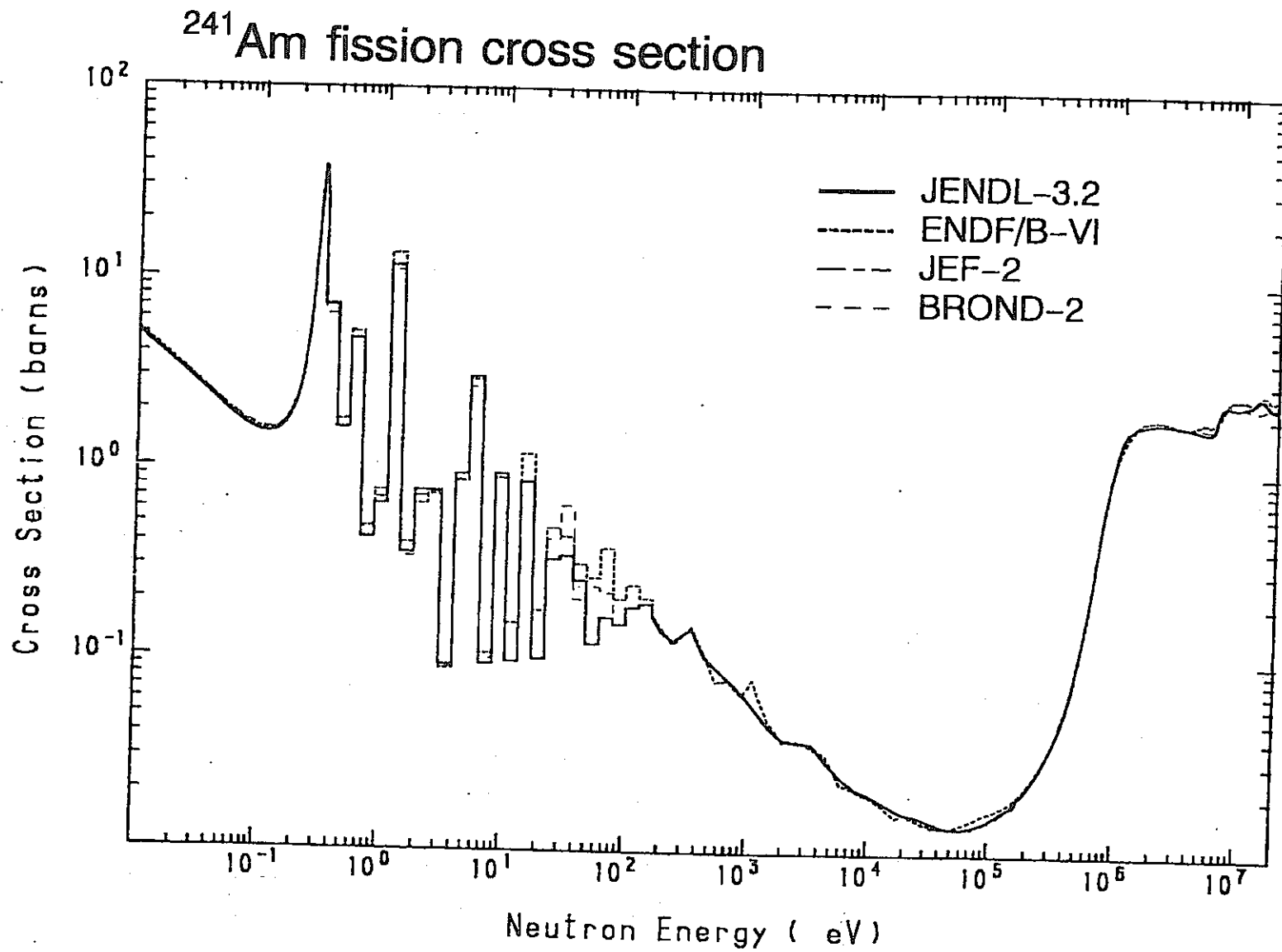


Fig. 1.2.2 Fission cross section of ^{241}Am between 0.01 eV and 20 MeV

5 - 1

AM243 FISSION CROSS SECTION

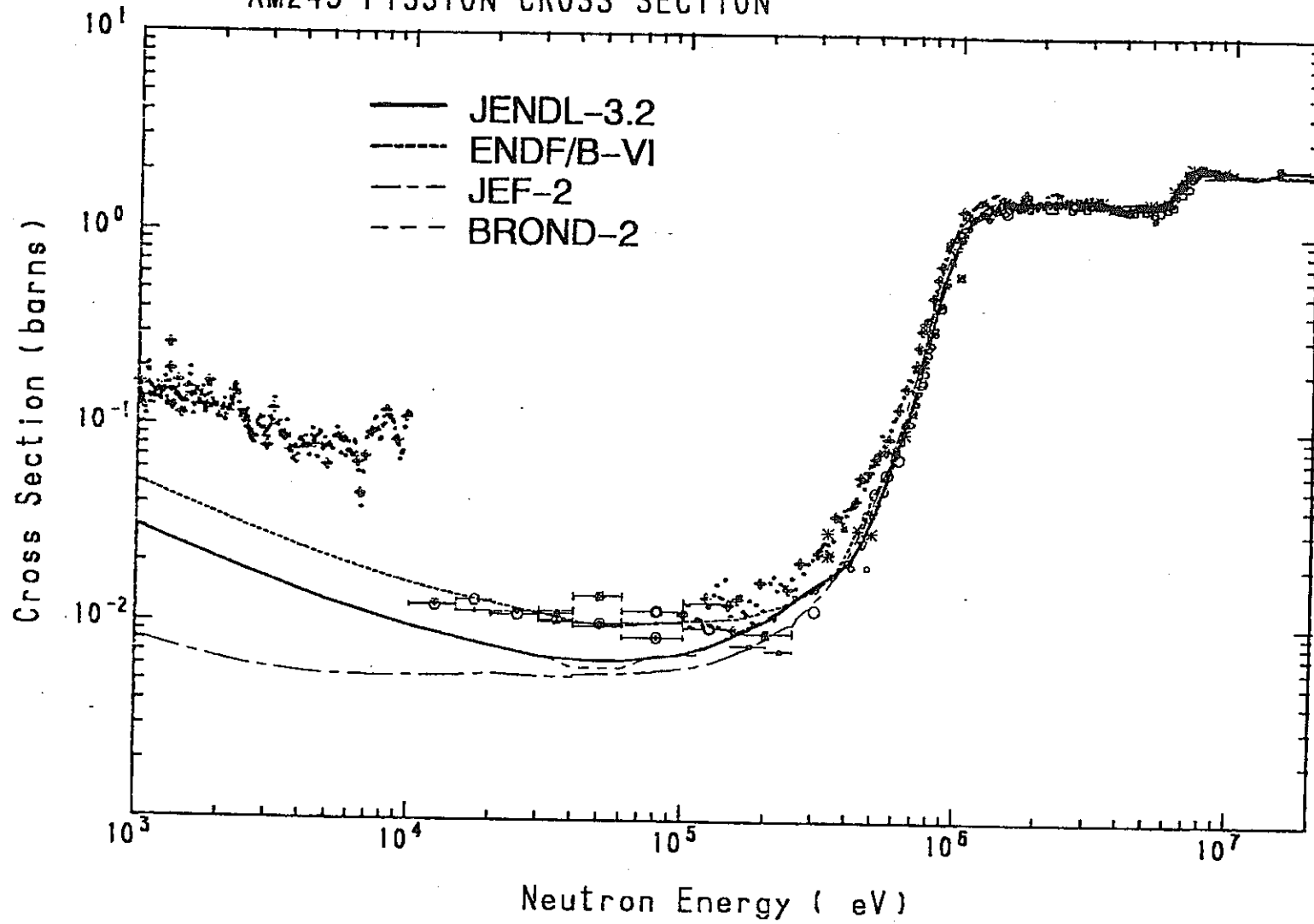


Fig. 1.2.3 Fission cross section of ^{243}Am between 1 keV and 20 MeV

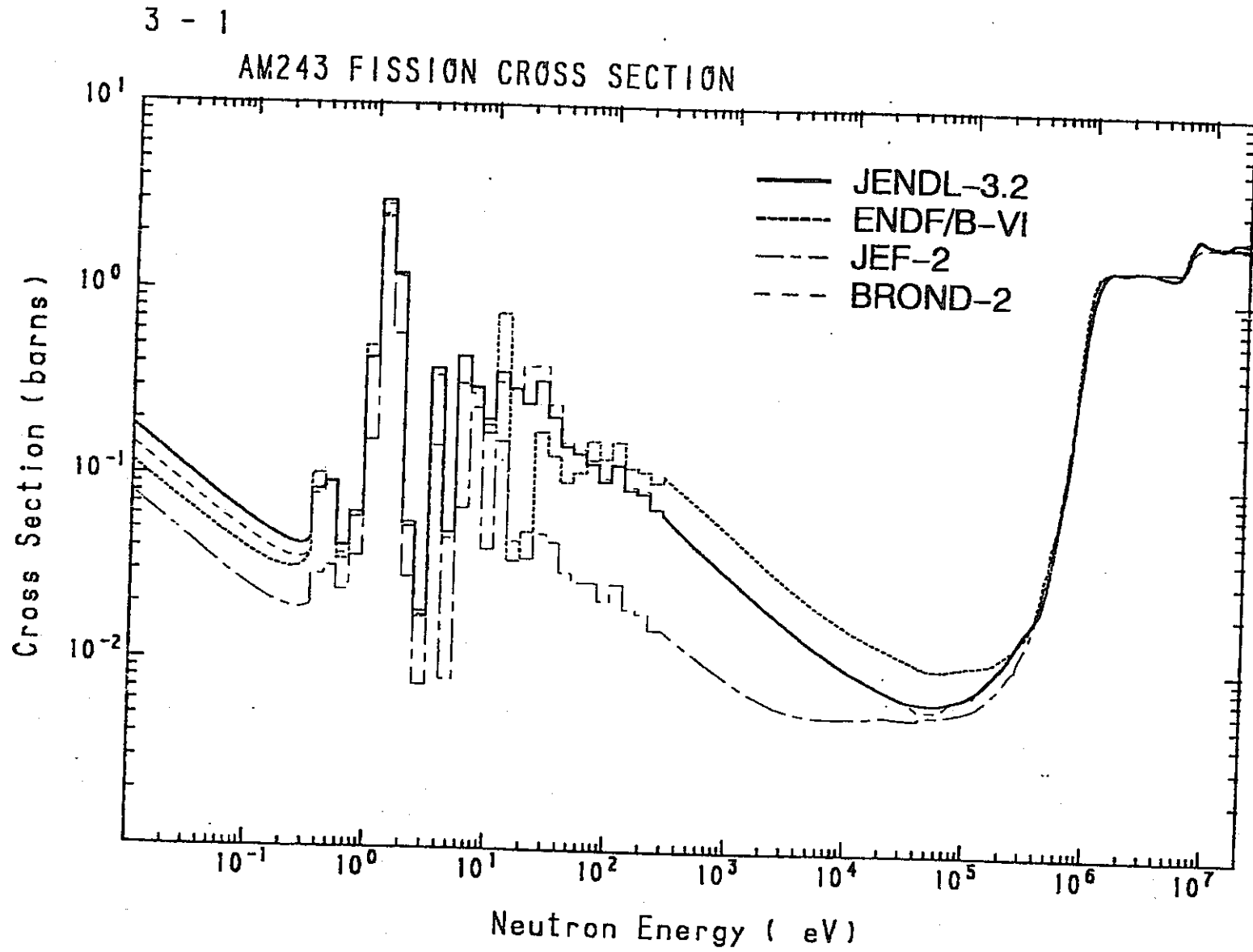


Fig. 1.2.4 Fission cross section of ²⁴³Am between 0.01 eV and 20 MeV

3 サンプルの作製と定量

この章では本研究で使用した ^{237}Np 、 ^{241}Am 、 ^{243}Am 、 ^{235}U 試料の詳細について述べる。

3.1 Np 試料

精製

本研究で使用する ^{237}Np 試料は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で作成した⁵。もとになる ^{237}Np 試料には、ウラン、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}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.3.1.1およびFig.3.1.2に本研究で行った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 (FP+Am,Cm)、Pu、Np、Uを順次イオン交換分離を実施した。さらに、同様の手順を繰り返し行い、Npの精製度を高めた。

Table 3.1.1 に各精製段階での原子数比を示す。最終的に得られた Np 溶液の純度は、各段階の α 線測定データをもとに考えると原子数割合にして不純物割合で 0.1ppm 以下と評価でき、十分な純度の Np 溶液が得られていることが分かる。

Table 3.1.1 Atomic fraction of impurities relative to ^{237}Np in Np solution

	^{237}Np	$^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu}$	^{238}Pu	^{241}Am
Before purification	1.0	7.17E-3	5.95E-6	5.83E-7
After 1st purification	1.0	1.61E-5	2.47E-8	2.69E-9
After 2nd Purification	1.0	--	--	--

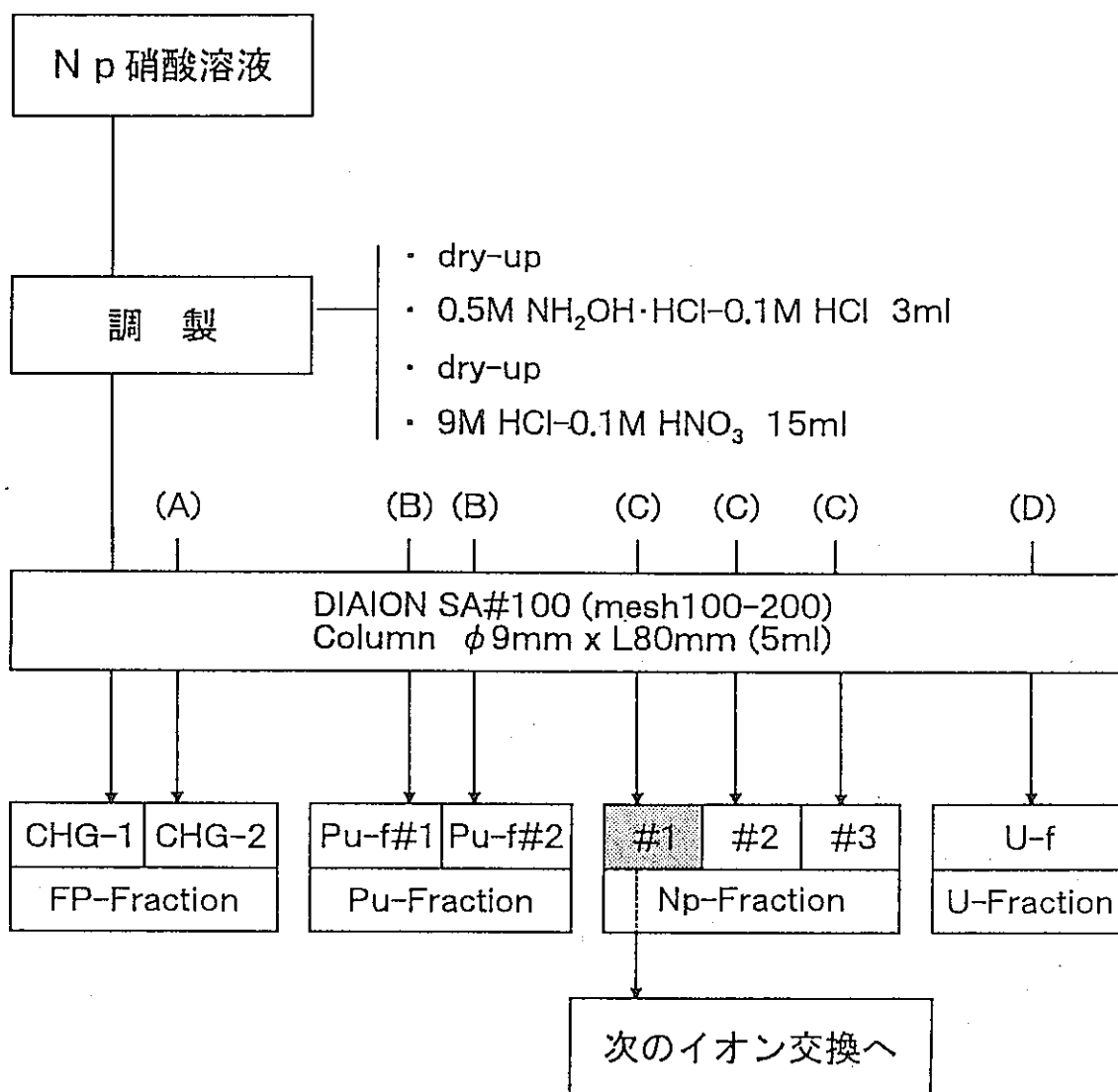
(*) 1.23E-3 : read as 1.23×10^{-3}

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.3.1.3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.3.1.3 参照)。この時、電圧は 800V、電流は 10mA 程度であり、30 分程度を要した。今回作成した Np 電着フィルムは4枚である。

Np試料イオン交換流れ図(1回目)



(A) 9M HCl-0.1M HNO₃ 15ml

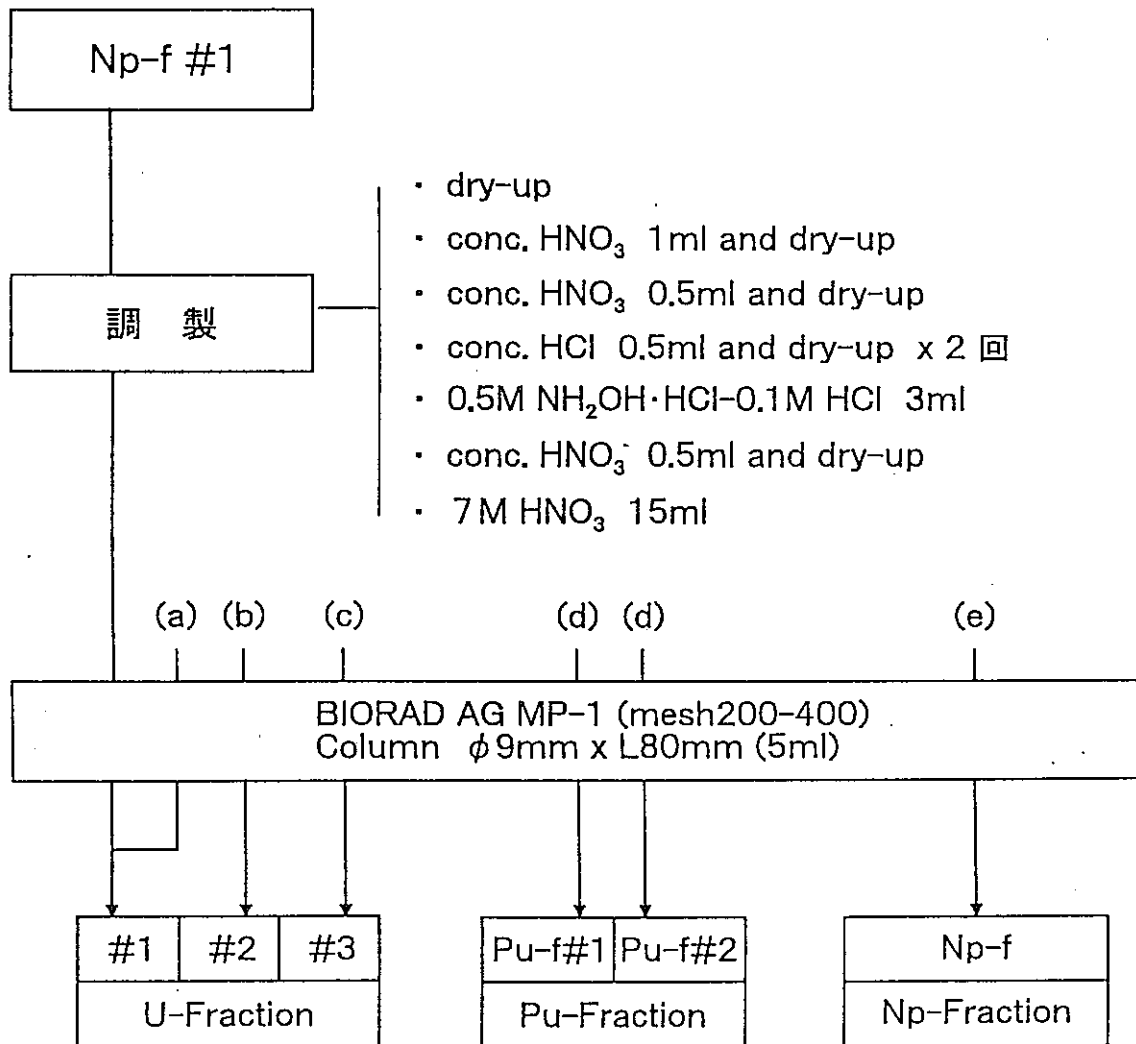
(B) 9MHCl-0.1M HI 30ml

(C) 4M HCl 10ml

(D) 0.1M HCl 15ml

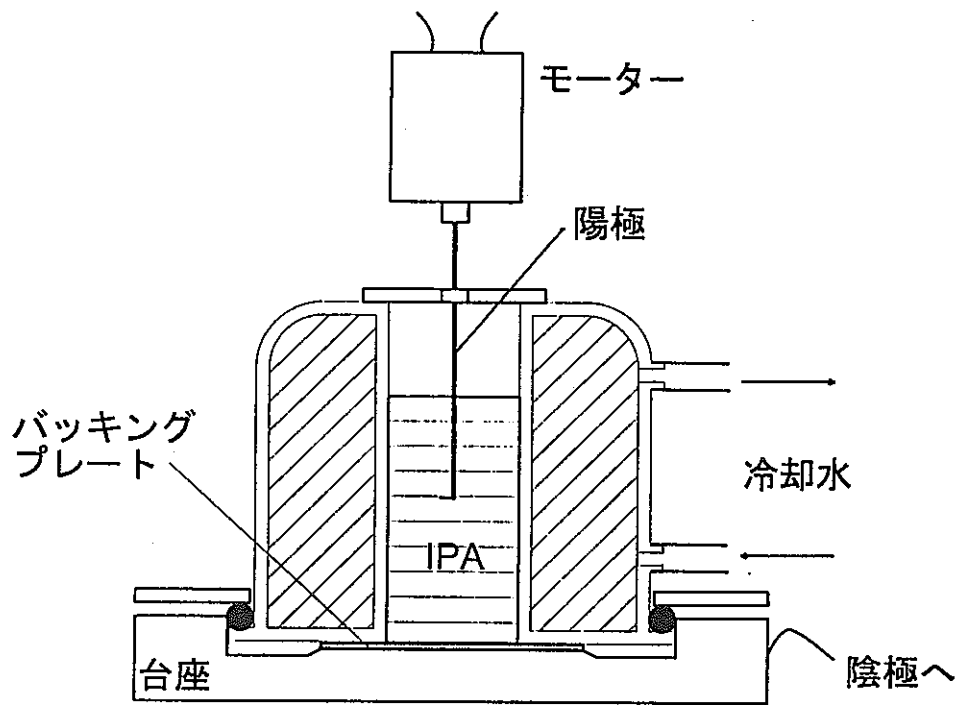
Fig. 3.1.1 Flow chart of ion-exchange separation of ²³⁷Np (1/2)

Np-F#1試料イオン交換流れ図(2回目)

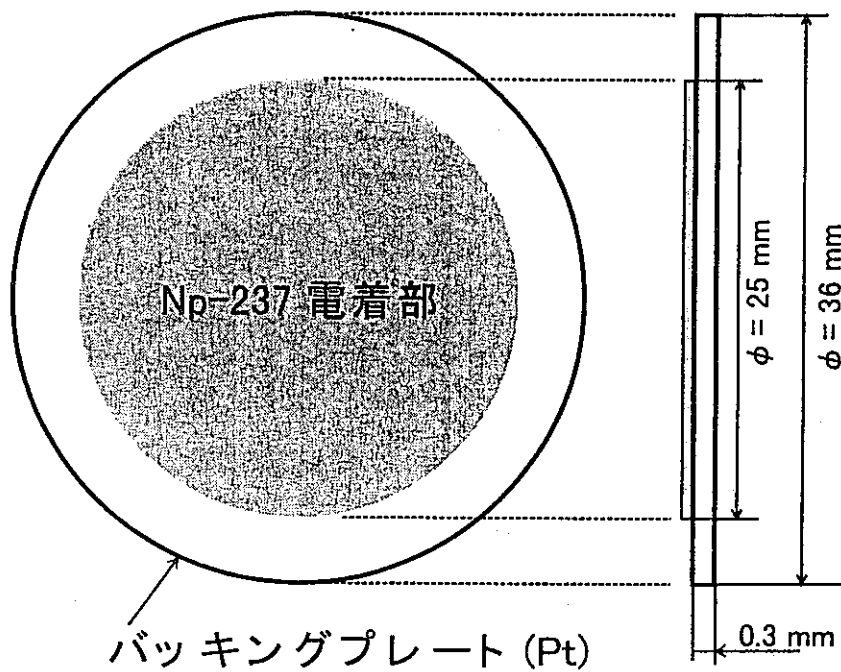


- (a) 7M HNO₃ 35ml
 (b) 7MHNO₃ 65ml
 (c) 12M HCl 15ml
 (d) 9M HCl-0.1M HI 30ml
 (e) 4M HCl 30ml

Fig. 3.1.2 Flow chart of ion-exchange separation of ²³⁷Np (2/2)



電着体系図



Np-237 試料

Fig. 3.1.3 Electro-deposit system and sample foil

定量

作成した試料の定量は、 α スペクトロメトリにより行った。Fig.3.1.4に定量システムの構成を示す。 α 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している。今回使用した試料-検出器間距離は約10cm、検出器前のアパチャー径は約6mmとした。このシステムの幾何学的検出効率は、Pokshevaの式により導出し、 2.175×10^{-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かわるが、ここで用いた条件では誤差1%以下である。

Fig.3.1.5には、この定量によって得られた α 線スペクトルを示す。この図から、Npの α 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 3.1.2 に示す。定量精度は、統計誤差、幾何効率(1%)の誤差等を複合して最高で1.1%であった。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270mgである。なお、薄い試料は試料の厚さ依存性をチェックするために用いる予定である。

作成した試料の定量は、 α スペクトロメトリにより行った。今回作成した4枚の試料の定量結果を、Table 3.1.2 に示す。この時の定量誤差は、Table 3.1.3 に示すとおりである。

Table 3.1.2 Result of sample assay for four Np samples

Foil No.	Deposited mass (mg)	Error (%)
6	0.2757	1.35
8	1.083	1.34
9*	1.051	1.34
11	1.042	1.34

*used in the present measurement

Table 3.1.3 Errors in sample assay of Np sample

	Error (%)
Statistical	0.2
Extrapolation	0.001
Equation for Efficiency	1.0
Geometry for Efficiency	1.033

試料の一様性

定量用 α スペクトロメータを用い、試料上部に5.5mm直径のアパチャー径を持つ遮蔽銅板により遮蔽し、試料の一部分だけの試料量を定量する事により、試料の一様性の測定を実施した。Table 3.1.4 に中心部と再外周にアパチャーをセットしたときの結果を示す。

サンプル8では、10%ほど試料付着量に差が見られたものの、サンプル9及び11の中心と再外周の差は4%程度であり、良い一様性が得られている。

Table 3.1.4 Measurement result of uniformity of Np samples

Foil No.	Center (cps) (A)	Most outer region (cps) (B)	Difference (%) $100*(B-A)/A$
8	0.65	0.59	10
9*	0.65	0.68	4
11	0.65	0.68	4

*used in the present measurement

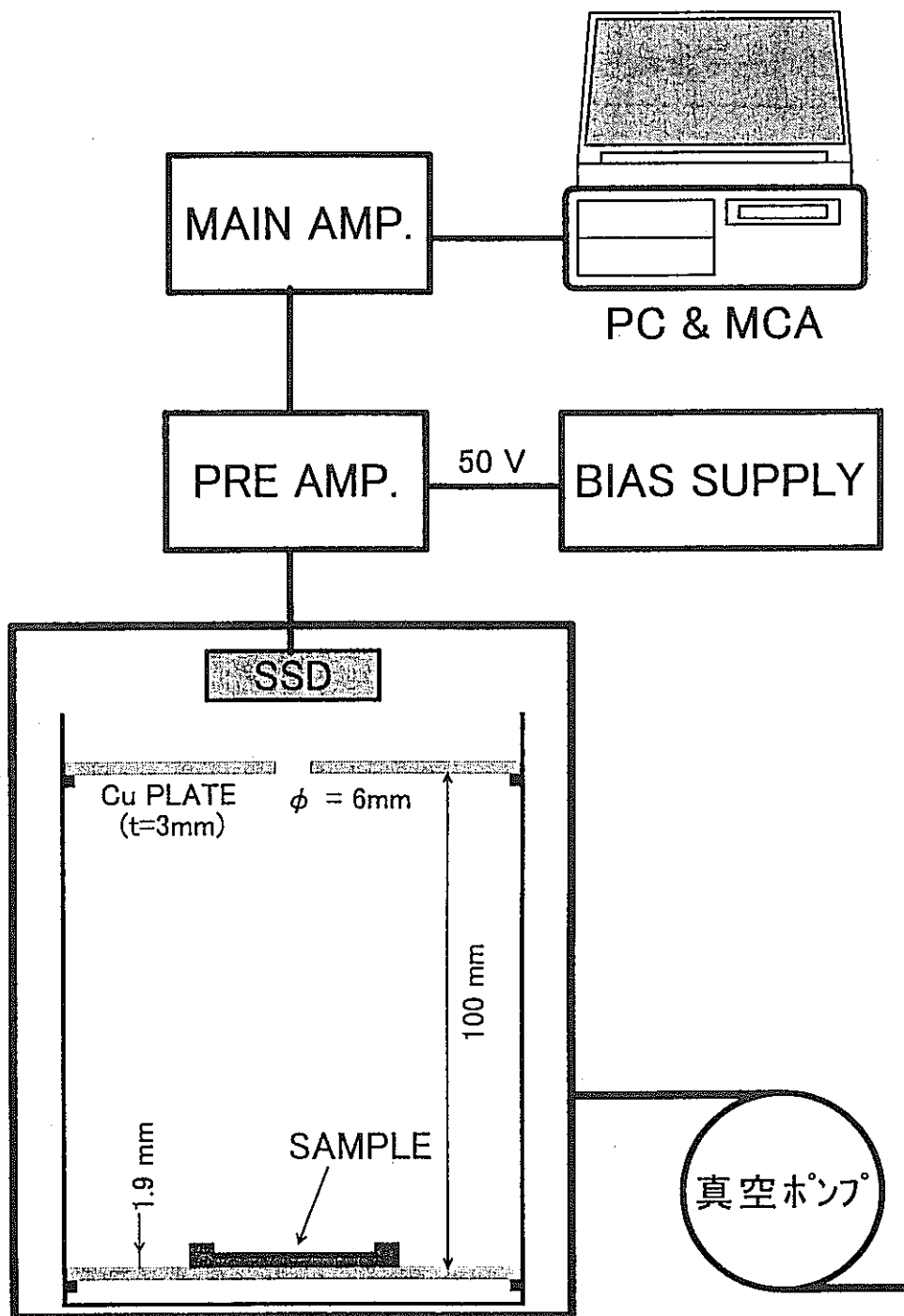


Fig. 3.1.4 Alpha-spectrometry system

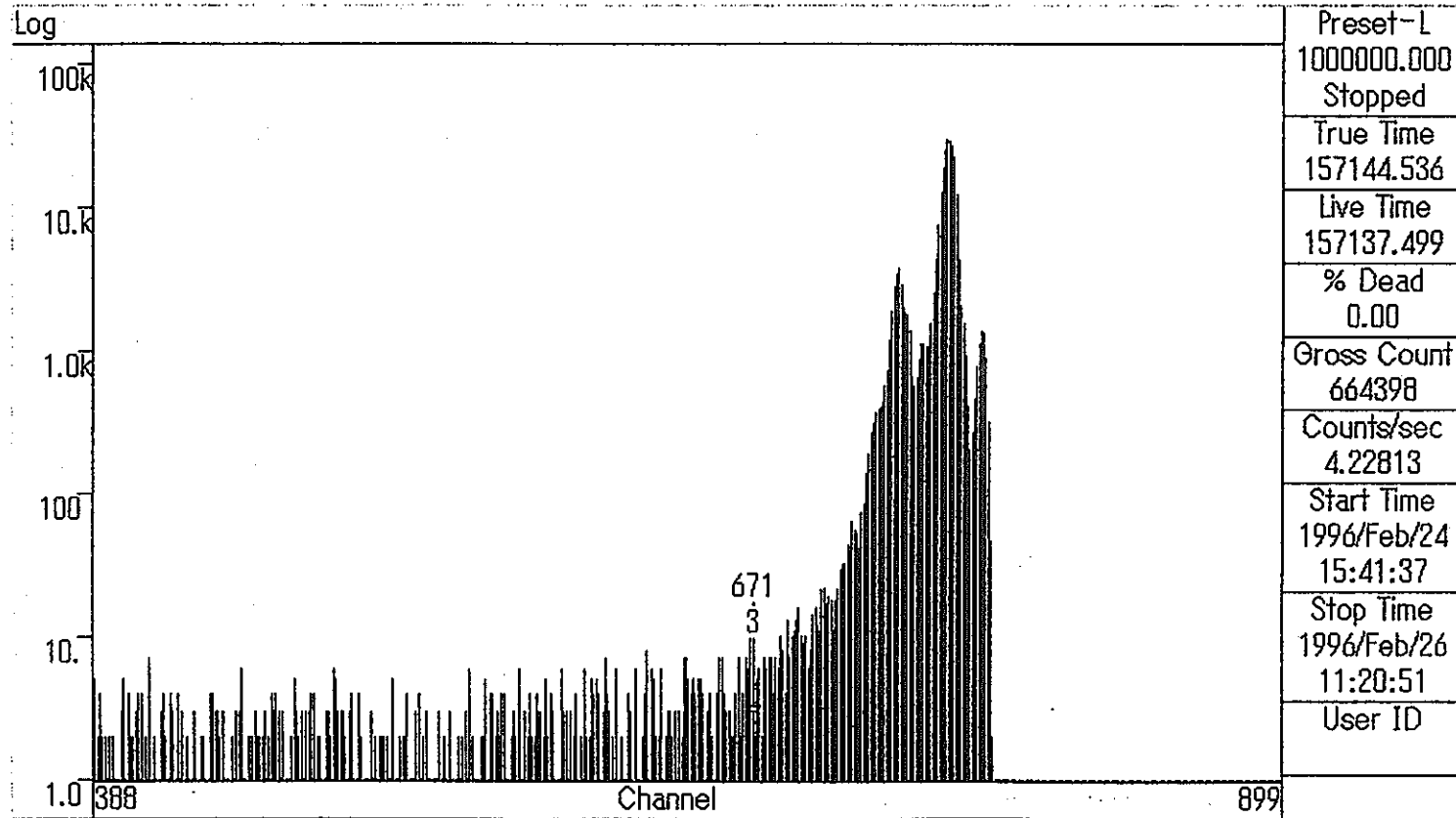


Fig. 3.1.5 Alpha spectrum of ^{237}Np

3.2 Am 試料

^{241}Am 及び ^{243}Am 試料を原研より導入し、3-1 節の ^{237}Np 試料と同様な定量を行なった。試料の形状並びにバックング材などは、 ^{237}Np 試料と全く同一である。

これらの試料量は、放射性物質の管理上、本研究施設で利用可能な試料の放射能が $100\ \mu\text{Ci}$ 以下に制限されているため、この放射能制限から両試料とも試料量が決められている。現状では、これ以上の試料量の ^{241}Am , ^{243}Am 試料の導入は難しいと考えられる。

^{241}Am 試料

^{237}Np 試料と同様な α スペクトロメトリによって得られたスペクトルを Fig.3.2.1 に示す。このスペクトルから導出された原子数を Table 3.2.1 に示す。

Table 3.2.1 ^{241}Am sample (1997/12/11)

Sample	Isotope	Number of atoms	Total mass (μg)	α activity (μCi)
^{241}Am	^{241}Am	2.508E+16 (100%)	10.04	34.4

^{243}Am 試料

α スペクトロメトリによって得られたスペクトルを Fig.3.2.2 に示す。このスペクトル中、 ^{243}Am の他に不純物として ^{241}Am , ^{244}Cm が確認される。このうち ^{243}Am について導出された量を Table 3.2.2 に示す。ただしこの結果はすぐ後で述べるように参考値とする。

Table 3.2.2 ^{243}Am sample (1997/12/12)

Sample	Isotope	Number of atoms	Total mass (μg)	α activity (μCi)
^{243}Am	^{243}Am	2.140E+17 (99.66%)	10.04	17.2

^{243}Am 試料の場合、作成日から本研究の測定日までの経過日数を考慮すると、試料中において ^{243}Am の孫核種である ^{239}Pu をはじめとして多くの不純物核種の蓄積が予想される。特に ^{239}Pu の核分裂断面積が本研究で用いるエネルギー ($E_n = 25\text{keV}$ 付近) で ^{243}Am の約 200 倍程度の大きさであることから、わずかな量でも核分裂量に影響するため、その量を知っておく必要がある。しかしながら試料に含まれる ^{239}Pu を α スペクトロメトリで定量することは困難であるため、試料作成時 (1982/11/26) において行われた質量分析のデータを用いて、測定日 (1997/12/12) での同位体組成を計算して評価した。結果を Table 3.2.3 に示す。この結果をみると主要構成元素である ^{243}Am の原子量が今回の定量結果と 1% 以内で一致していることが分かる。このため、測

定でのデータ処理においてはこれらの同位体組成を用いることにする。

Table 3.2.3 Calculated atomic numbers of isotopes in ^{243}Am sample

sample	Isotope	Number of atoms (%)
^{243}Am	^{241}Am	3.90×10^{13} (0.018)
	^{237}Np	9.317×10^{11} (0.00043)
	^{243}Am	2.16×10^{17} (99.52)
	^{239}Np	1.889×10^{11} (0.000009)
	^{239}Pu	3.052×10^{14} (0.141)
	^{244}Cm	3.958×10^{14} (0.182)
	^{240}Pu	3.090×10^{14} (0.142)
	^{235}U	2.713×10^{11} (0.000125)

なおここで考慮した崩壊図、および利用した過去の質量分析のデータはそれぞれ、Fig.3.2.3、Table 3.2.4 のようになっている。

Table 3.2.4 mass-spectrometry data of ^{243}Am sample (1982/11/26)

Sample	Isotope	Number of atoms	Total mass (μg)	α activity (μCi)
^{243}Am	^{241}Am	3.90E13 (0.018%)	86.4	40.5
	^{243}Am	2.16E17 (99.66%)		
	^{244}Cm	7.05E14 (0.326%)		

^{237}Np の試料量 1mg と比べると、 ^{241}Am は約 1/100、 ^{243}Am は約 1/11 である。

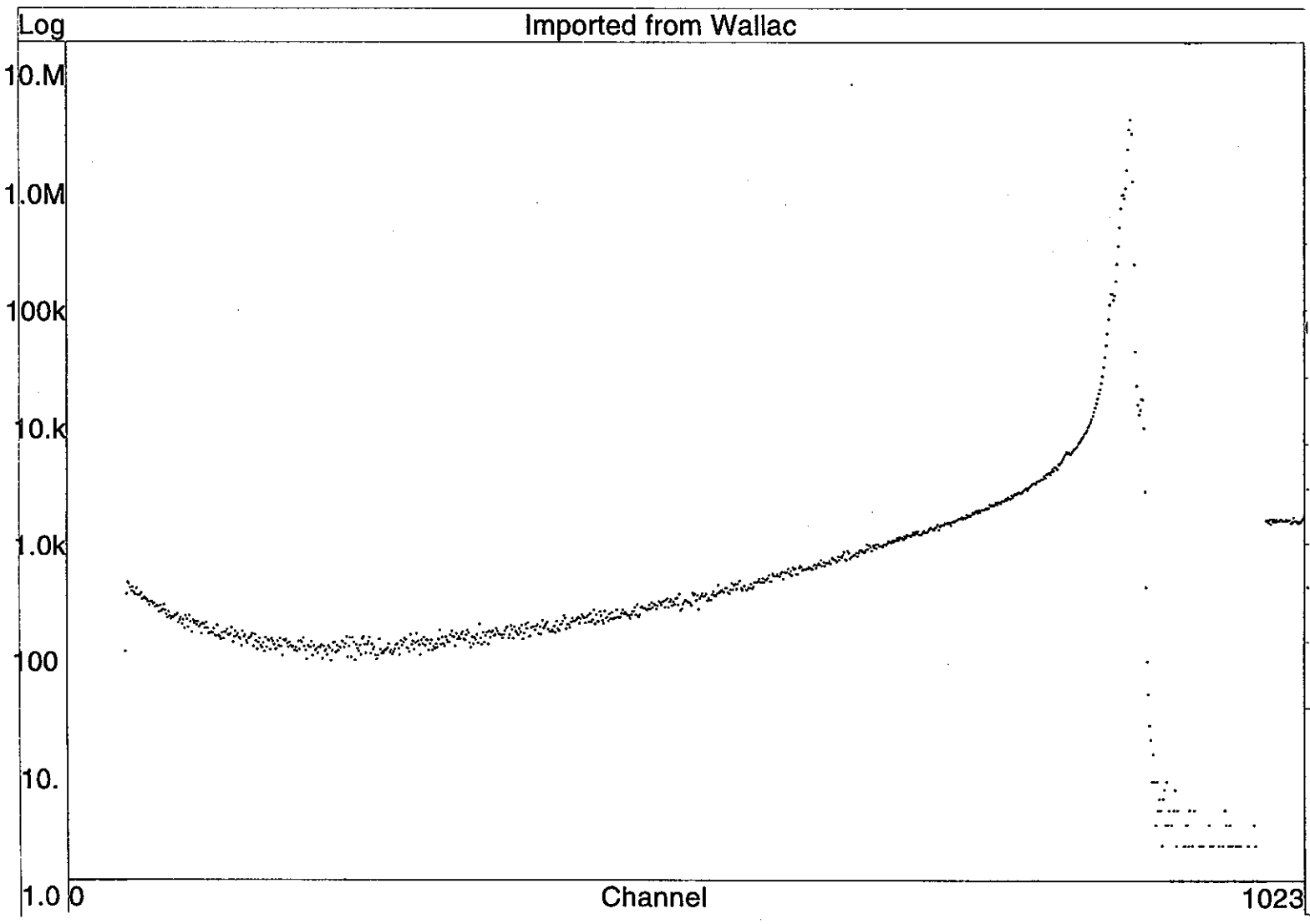


Fig. 1.2.1 Alpha spectrum of ²⁴¹Am

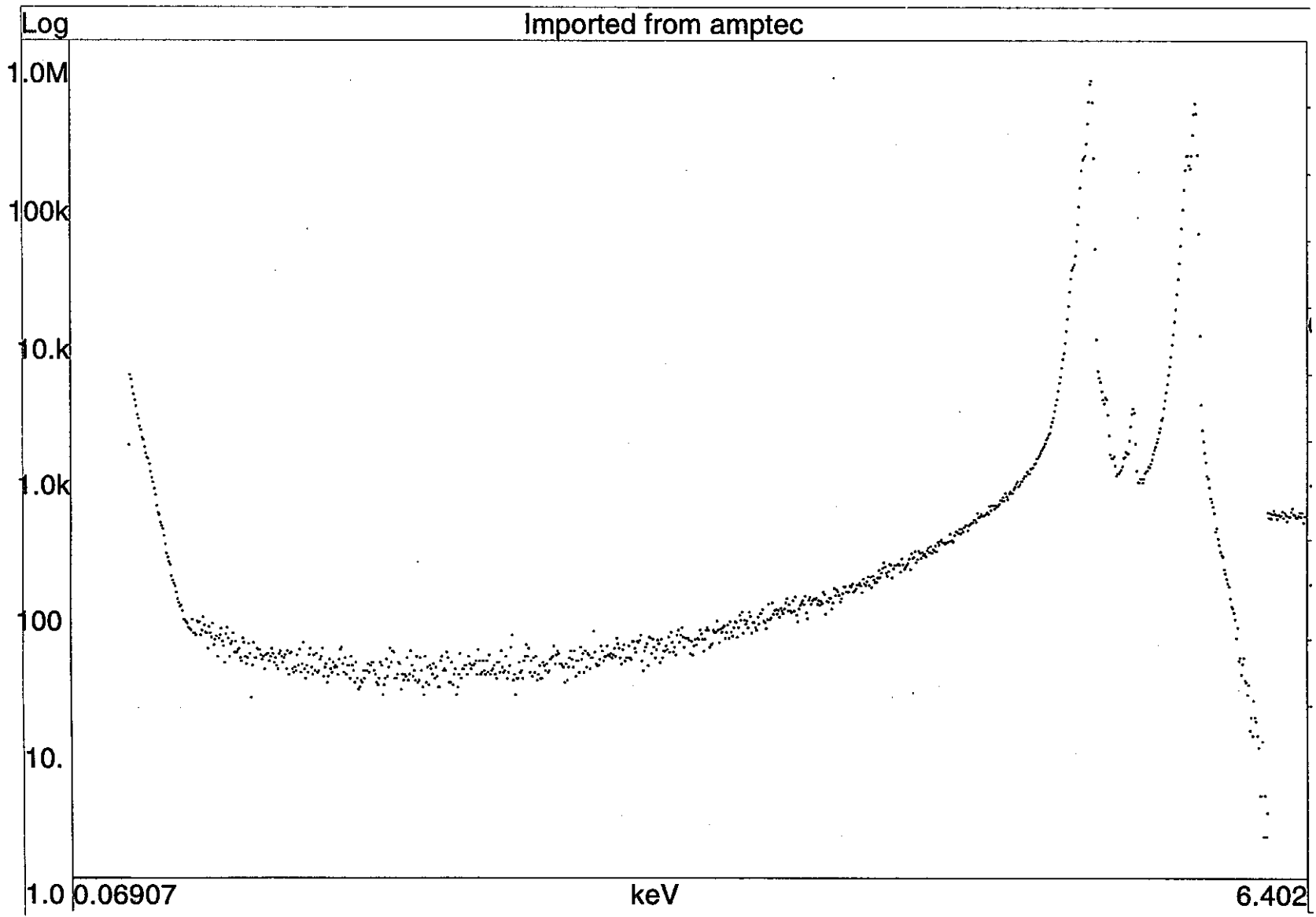


Fig. 1.2.2 Alpha spectrum of ²⁴³Am

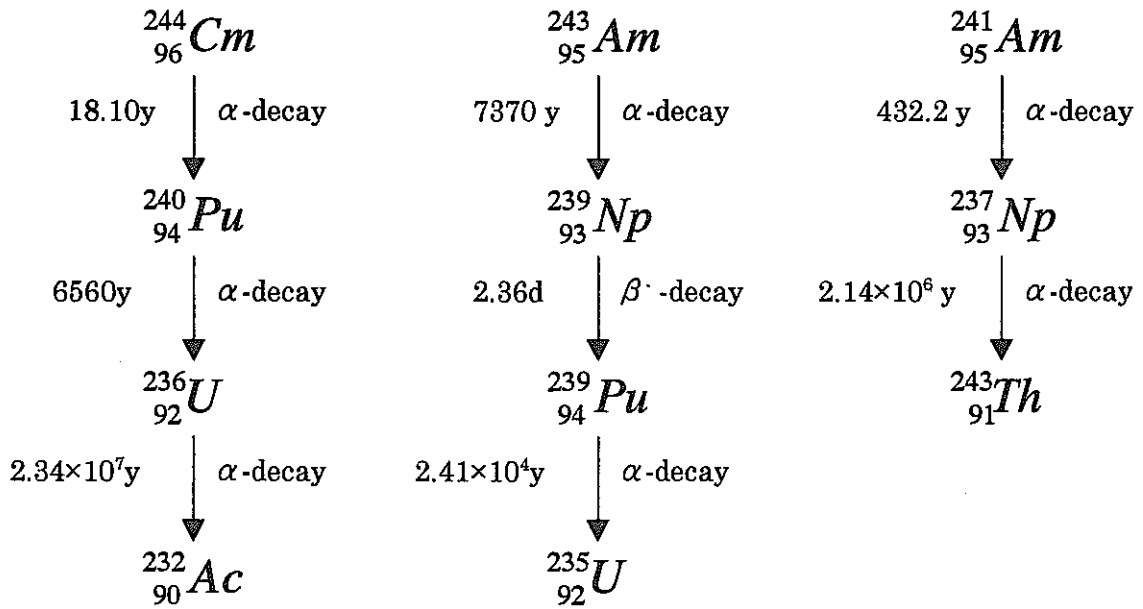


Fig. 1.2.3 Decay chain of nuclides included in ^{243}Am sample

3.3 U 試料

平成7年度の予備測定において使用したウラン試料は ^{235}U 純度が約 92.7%であった。

このような核分裂試料中に核分裂性の不純物が混入している場合、中性子照射により不純物核種も核分裂を起こし、測定対象核種のバックグランドとなる。従って、不純物の純度の少ない試料の方が望ましい。そこで本測定で用いる試料として、平成8年度に純度 99.9%の高い ^{235}U 試料の導入を行なった。

なお、このウラン試料は、ネプチニウムと全く同じ形状の試料(電着部 25mm 直径、バックリング 36mm 直径)である。以下、高純度ウラン試料の同位体組成測定結果及び定量結果を述べる。

同位体組成

このウラン試料の同位体組成の測定には、もっとも精度の高い測定が可能な質量分析器測定を実施した。この質量分析法は、半減期が長い ^{235}U あるいは ^{238}U のような試料に対しては特に有効である。測定結果の詳細は Table 3.3.1 に示しているとおりでであるが、 ^{235}U の純度で見ると 99.9%であった。

定量

定量は、ネプチニウムと同じく α スペクトロメータにより行った。 ^{235}U 試料の場合には、目的核である ^{235}U に比べて半減期が短い不純物核である ^{234}U あるいは ^{236}U のバックグランド α 成分を削除する手段が必要となる。ここでは、上記の通り、高精度の同位体組成が得られているため、この組成並びに半減期データ及び α 崩壊データを用いてバックグランド成分を評価し、 ^{235}U 量を導出した。

定量の結果を、同位体組成とともに Table 3.3.1 に示す。純度は、99.912%、 ^{235}U 試料量は 10.40×10^{17} atoms である。

Table 3.3.1 Result of sample assay of U sample

Isotope	Total Activity (Bq)	Isotopic Composition (%)	Relative Activity (%)	Number of Atoms ($\times 10^{17}$)	Areal Density ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$)
U-233	60.55 \pm 0.55	< 1ppm	<0.24	-	94.0
U-234		0.0298	45.84	0.003	
U- 235		99.912	53.66	10.40 \pm 0.11	
U-236		0.0165	0.27	0.002	
U-238		0.0414	-	0.004	

4 エネルギー依存 ^{237}Np の核分裂断面積測定

4.1 測定原理

核分裂比測定

基本的に、BTB 検出器により、標準核種である ^{235}U と目的核種である ^{237}Np の核分裂率を同時に測定し、 $^{237}\text{Np}/^{235}\text{U}$ 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。

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

ここで	R	: $^{237}\text{Np}/^{235}\text{U}$ 断面積比
	C_{237}	: ^{237}Np の核分裂計数
	C_{235}	: ^{235}U の核分裂計数
	N_{237}	: ^{237}Np の原子数
	N_{235}	: ^{235}U の原子数
	添字 f	: 試料がターゲットに面した時
	添字 b	: 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、試料バックング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極めて高いものとなる。なお、核分裂計数の導出に当たっては、 α 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。

中性子エネルギー決定法

シンチレーション検出器などを用いる飛行時間測定においては、ターゲットから放出される γ 線の飛行時間を基準として、中性子飛行時間からエネルギーに換算する。しかし、核分裂計数管を用いる場合、ターゲット γ 線による核分裂が期待できず、またガス型検出器の場合 γ 線そのものが検出器に落とすエネルギーが小さいため、 γ 線によるイベントをつかめむことができない。このため、先のようなガンマ線基準法を用いることができない。

そこで、本研究では核分裂計数管については以下の手順を用いてエネルギーを決定した。

a) 最高中性子エネルギーの実測

Li6 ガラスシンチレータによる TOF 測定を実施し、発生中性子エネルギーの最大値(今回の場合は、最高中性子エネルギー)を決定する。

b) 最小飛行時間チャンネルの決定

核分裂計数管による TOF スペクトルから最小の飛行時間に対応するチャンネルを決定し、そのチャンネルを(a)で求めた最大中性子エネルギーに対応づける。これを中性子エネルギー換算の基準チャンネルとすることにより、TOF スペクトルを中性子エネルギースペクトルに換算する。

c) Fe 透過スペクトルによるエネルギー軸の確認

ターゲット-核分裂計数管の間に鉄材を置き、鉄透過スペクトル下での核分裂計数管 TOF スペクトルを測定する。鉄透過スペクトルでは、約 28eV に大きな共鳴があり、核分裂計数管 TOF スペクトル上にこれに対応する”dip”(谷)が観測される。a)及びb)で決定したエネルギー換算法により、ここで観測された”dip”のエネルギーが約 28eV と一致することを確認する。

4.2 実験手法の改良

予備測定で得られた問題点を考慮し、測定に先立って次のような準備を行なった。

- (1) 密封型核分裂計数管の作成
- (2) Li 中性子発生ターゲットの高強度化
- (3) 飛行時間系測定回路の高時間分解能化

(1)は放射線管理上好ましいことから、(2)は断面積が非常に小さく測定が困難であることに対処、そして(3)は測定精度を向上するために行なった。

4.2.1 密封型核分裂計数管の開発

BTB 検出器を用いた相対測定法による ^{237}Np の核反応断面積行なうに当たって、本研究では 2 種類の密封型核分裂計数管を測定に使用した。1つは平成8年度に開発したステンレス製の平行平板型電離箱であり、もう 1 つは平成 9 年度に構造、材質的な改良を加えて作成したアルミニウム製の小型電離箱である。本研究ではそれぞれの年度でおおのこの検出器を用いて測定を行ない、計 2 回の測定を行なっている。以下では計数管の詳細について述べる。

ステンレス製密封型核分裂計数管

当研究室では、従来よりガスフロー型平行平板電離箱タイプの核分裂計数管を用いてアクチニド核の核分裂断面積を測定してきた^{6,7)}。本研究において平成 7 年度に行なった予備測定においても、同様にガスフロー型検出器を使用した。

このガスフロー型検出器の場合、常に検出ガスが置換されるため密封性があまり重要ではなく、検出器をきわめて薄型・小型にできる特長がある。しかし、ガスフロー型の場合、核分裂反応により生成されるガス状の放射性物質や電着固着された試料からのスパッタリング等により飛散する放射性的サンプルアクチニドの混入が原理的に避けられない。このため、多くの実験施設では、このガスフロー型検出器の利用が許可されておらず、アクチニド核の核分裂断面積の測定精度向上に必要な広いエネルギー範囲における実験・測定が実施できない欠点を生じている。さらに、本研究を行う東北大学工学部高速中性子実験室では、ガスフロー型核分裂計数管を用いた実験そのものは実施可能であるが、検出器より放出されるガスの管理等の問題は厳しい問題であり、これを排除できる検出器が実験遂行上好ましい。このため、本研究では、ガスフロー型に変わる密封可能型(平行平板)核分裂検出器を開発した。

作成に当たっては、

- a) 数日間程度、核分裂片の波高信号が安定していること及び
- b) ガスフロー型としても動作可能とすること

を基本仕様として、材料としては

c)強度並びに加工性を考慮してステンレス鋼(SUS304)と、

d)密封には O リング

を用いることとした。

Fig.4.2.1 に本研究で作成した核分裂計数管を示す。大きさは、外直径 72mm、高さ 39mm で、O リングを収納するフランジ部の外直径 86mm である。作成された検出器の密封度はヘリウムリーク検出器で測定しており、リーク率 1×10^{-7} Torr/sec 以下の十分な密封性能を持つことを確認した。本研究では、この密封可能型検出器を用いて実験測定を実施している。

なお、この検出器は、今まで当研究室で使用してきたガスフロー型検出器の外径 44mm、高さ 16mm に比してかなり大きい。これは、密封用の O リングを収納するための大きなフランジ部が付されていることが大きな原因であるが、このように検出器が大きくなったことは散乱中性子量に大きく影響する。実際に、本研究で実施した散乱中性子解析(詳細は、4.3 節)を見ると、この検出器による散乱中性子量は従来のものに比してかなり大きな値を示していた。これは、大きな構造材(SUS)中の主成分である Fe の散乱断面積が数 10keV で大きな値を有していることが大きく寄与している。今後、散乱中性子量を少なくする構造(大きさ、材質)を検討する必要がある。ただし、本研究で採用している back-to-back 型測定法においては、測定対象核並びに参照核が同一位置に置かれた測定がなされ、その比として核分裂断面積が測定されることとなるため、散乱中性子量の大きさが直接結果に影響しないことに注意をする必要がある。実際に、本研究での散乱中性子に対する補正係数は最大で 2%程度と小さい値にとどまっている(第 4.3 節に述べる)。

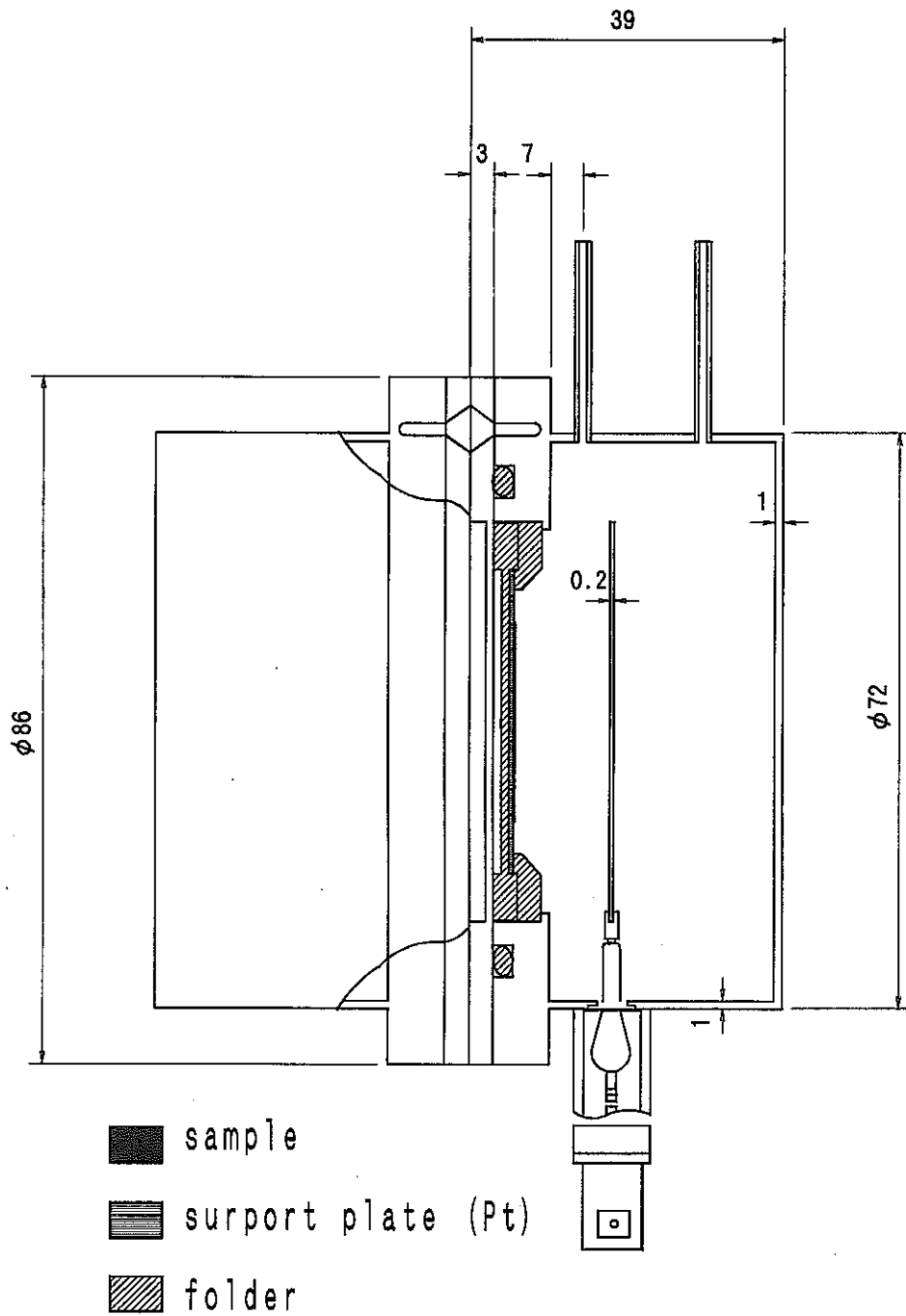


Fig. 1.2.1 Sealed Fission Chamber made of SUS304

アルミニウム製小型核分裂計数管

上記の中性子ビームの歪みが最小限となるように改良して作成したものである。断面図を Fig.4.2.2 に示す。検出器は上記の検出器と同様に本体、サンプルホルダー、サンプルの3つで構成されている。検出器本体およびサンプルホルダーは中性子散乱の影響が少ないアルミニウムを主構造材としてあり、ターゲットとサンプル間に存在する検出器の壁は可能な限り薄くしてある。

参考にモンテカルロコード MCNP4A を用いて SUS304 製の検出器と新しいアルミニウム製検出器での散乱中性子の影響を計算した結果を Fig.4.2.3 に示す。この計算は 4.3,4.4 節で後述するように、 ^{237}Np の核分裂断面積の測定に利用する keV 領域の連続中性子スペクトルを用いて 2 種の検出器本体によるスペクトルの歪みをサンプル位置で求めたものである。このグラフから、以前使用していた検出器ではソーススペクトルより散乱を考慮したスペクトルの方が全体的に高めになっていることが分かる。これはステンレスの散乱断面積が大きく、さらに中性子がサンプル位置まで到達するのに通過する検出器の壁が厚いためであることが後の計算で確かめられた。一方で新しい検出器では肉圧が薄く小型であり、アルミニウム製であるためにスペクトルの歪みは大幅に改善されていることが分かる。

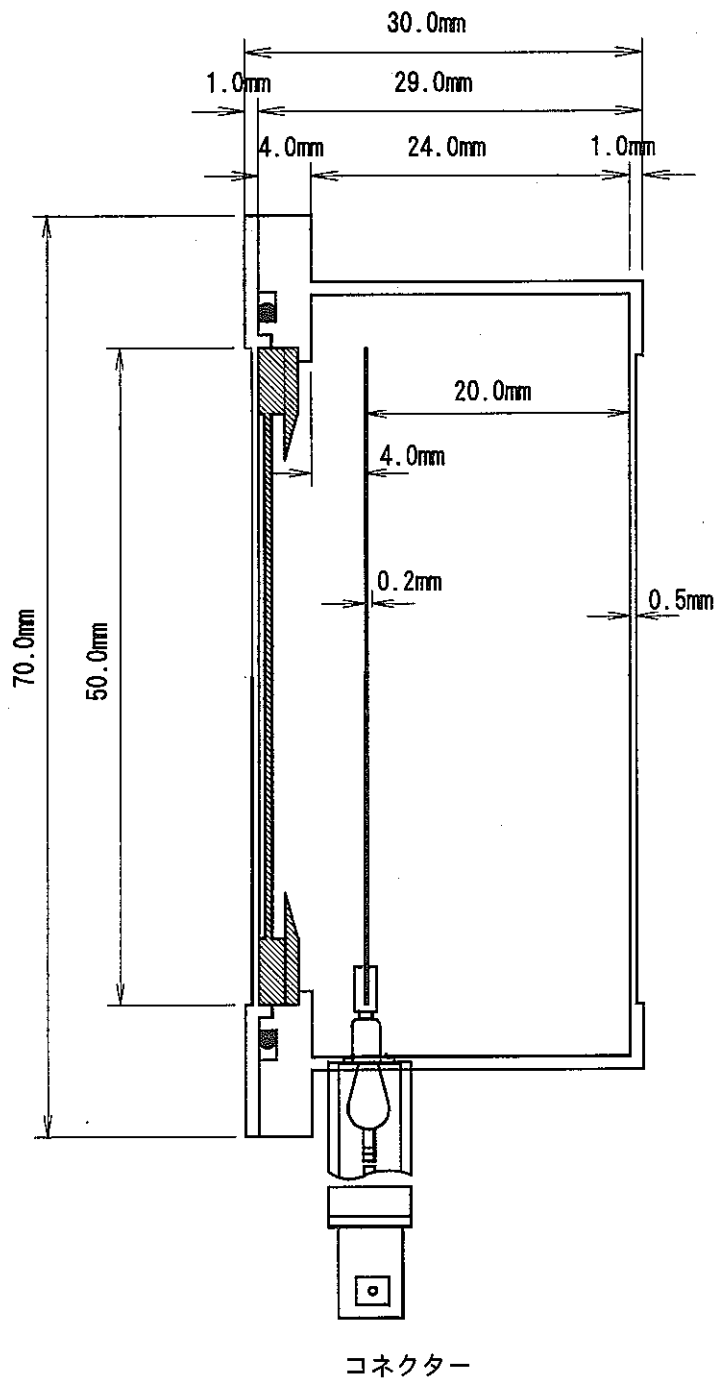


Fig. 1.2.2 Sealed Fission Chamber made of Aluminum

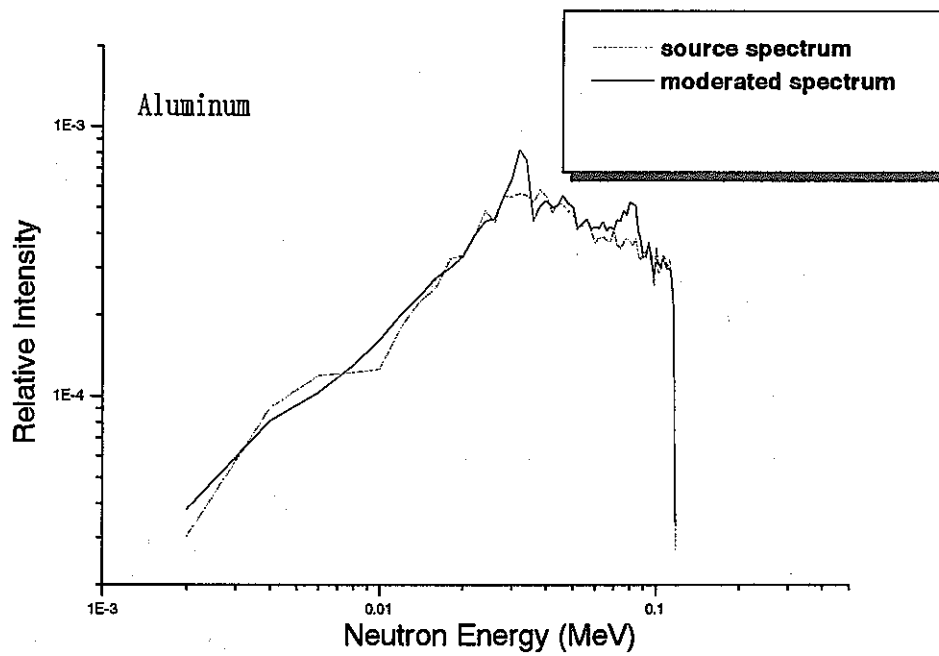
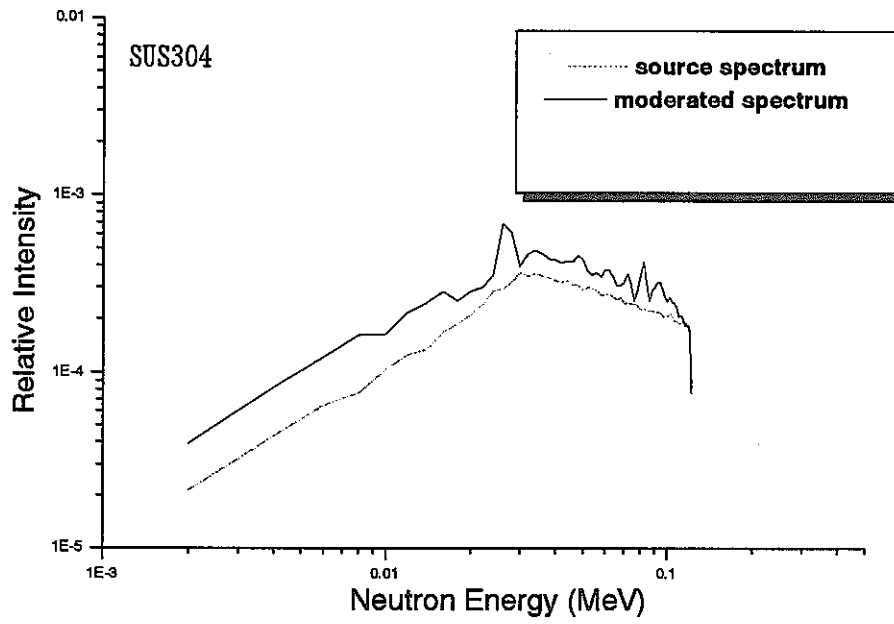


Fig. 1.2.3 Comparison of scattered neutron spectrum between two Fission Chambers

4.2.2 Li 中性子発生ターゲットの高強度化

平成 7 年度の予備測定では、LiF を銅セルに蒸着したターゲットを使用し、加速器より 3~4 μA 程度を入射させ、中性子を発生させていた。このターゲット及びビーム電流で発生できる中性子量は、予備的検討から、本年度に計画した TOF 法による数十 keV 領域での ^{237}Np 核分裂反応の微分断面積測定には十分でないと予測された。

このため、本研究では、原子数密度の点で LiF に比して 3 倍ほど大きな値を持つ金属 Li を使用すること及びターゲットの冷却性能を向上させ少なくとも昨年より 2 倍以上のビーム量を入射可能とすることを検討する事により、中性子発生ターゲットの高強度化を試みた。

ターゲット冷却性能の向上

従来は、基本的に、数気圧程度まで加圧した空気をターゲット表面に噴射させる空冷ターゲットを用いていた。このターゲットの場合、過去の実績から 5 μA 程度がビーム電流の上限とされ、それ以下のビーム量となるよう加速器を運転していた。本研究では、これを倍程度まで入射可能となるよう、水冷ターゲットを試作した。

ここで作成したターゲットは、Fig.4.2.4 に示す通り、銅製のターゲット部に銅製のパイプを 2 回転巻き付けた後、半田付けしたものである。このターゲットの冷却は、巻き付けたパイプ中に数気圧程度加圧した冷却水を通すことにより行う。また、ビームが入射する部分から冷却パイプまでの距離を極力短くするよう改良することにより、冷却性能を向上させるよう工夫を施している。

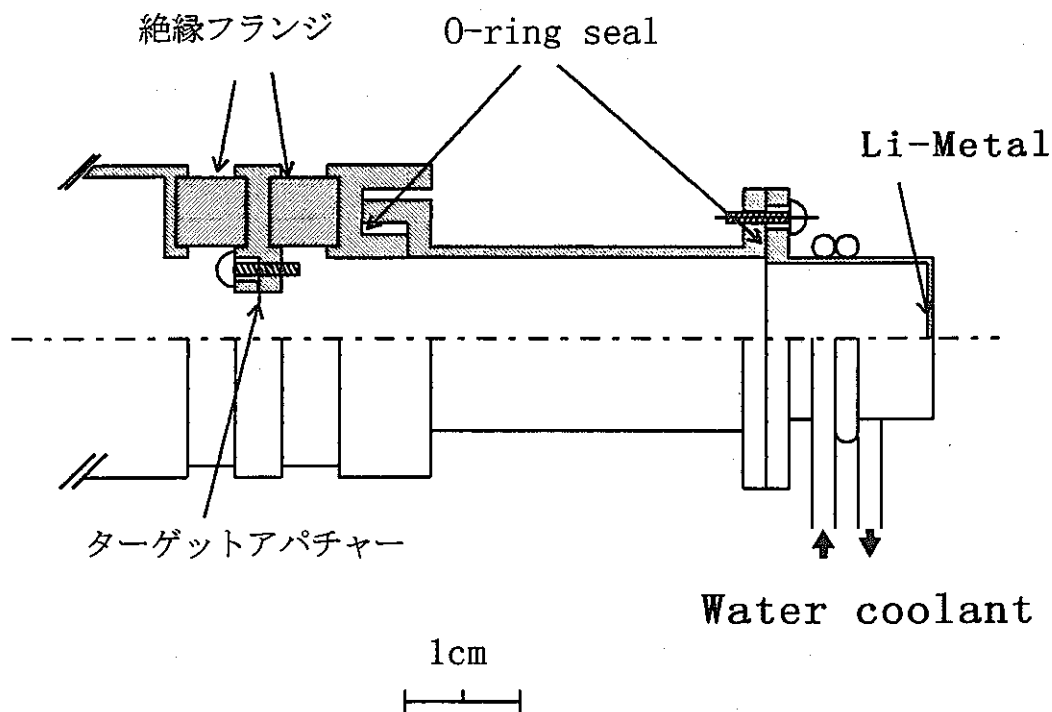


Fig. 1.2.4 Water cooled Li target

金属 Li の蒸着

LiF が空気中で安定なのに比べて、金属 Li は空気中ですぐに酸化する。このため、金属 Li ターゲットの製作時には、極力空気に触れない製作手段、すなわち

- a) 乾燥窒素中での Li の加工、
- b) 高真空真空ベルジャー中での蒸着そして
- c) 蒸着後のターゲットの速やかな取り付け

が必要となる。本研究では、上記の水冷ターゲットに対して、これらの手順を極力速やかに行うことにより、金属 Li をターゲットに蒸着した水冷ターゲットセルを製作した。

冷却性能並びに中性子発生量の確認

様々なビーム量の陽子ビームを入射させ、赤外線温度計によりターゲットセル外面温度を、 ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレータにより中性子発生量(次節で述べる測定回路により)を測定した。

Fig.4.2.5 に入射ビーム量に対する中性子発生量並びにターゲットセル外面温度を示す。この図に示した中性子発生量は積算入射ビーム量あたりの ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレータモニターの計数值である。この図を見ると分かる通り、 $10\ \mu\text{A}$ 程度まで、ターゲット外表面温度が 10°C 程度で安定していることが分かる。 $10\ \mu\text{A}$ を越えるとターゲット外表面温度がわずかながら上昇ははじめ、 $12\ \mu\text{A}$ では 13°C を示した。また、この間、単位ビーム量あたりの中性子発生量はほぼ安定した値を示していた。

この結果から、ここで開発したターゲットにより、当初目標とした金属 Li を使用し、 $10\ \mu\text{A}$ 程度まで安定した中性子発生が可能であるターゲットが開発された。

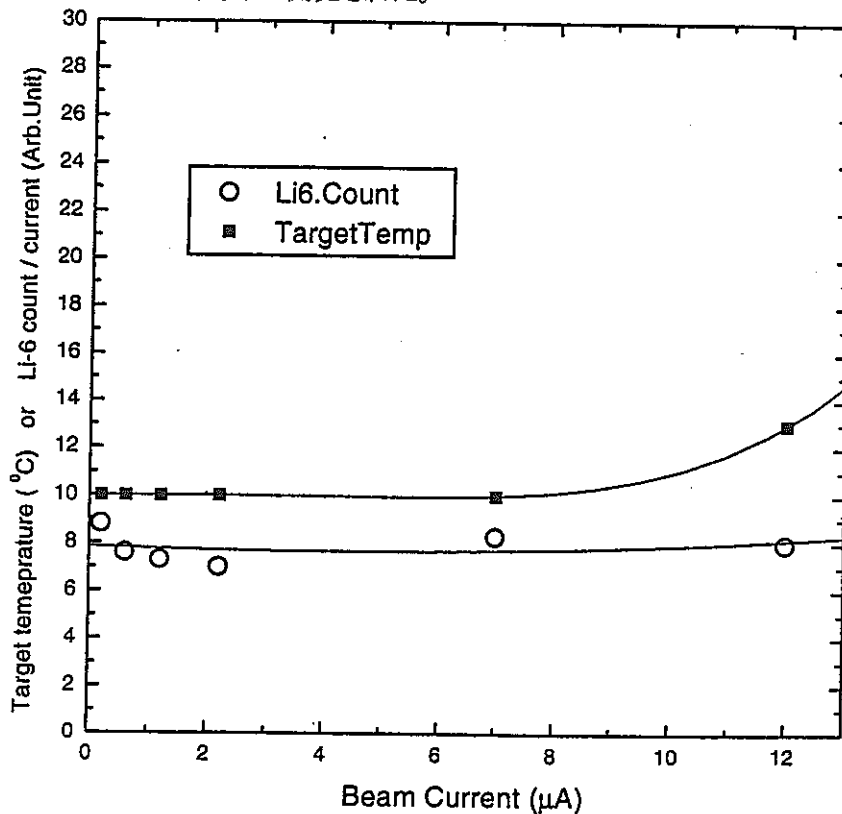


Fig. 1.2.5 Target temperature and neutron production rate of water cooled Li target

4.2.3 飛行時間系測定回路の高時間分解能化

平行平板電離箱型の核分裂計数管の固有の時間分解能は、検出ガスの電子移動度並びに電極間の電界によって決まる。しかし、実際には、この検出器固有の時間分解能そのものではなく、数多くの悪化因子の影響により悪化した時間分解能となる。

ここでは、これら時間分解能に影響を及ぼす因子の内、下記の項目について検討を行い、高時間分解測定システム・回路を探った。

a) 検出ガス

Ar-CO₂ガス、CH₄ガス

b) 核分裂計数管への印可電圧

500V, 1000V, 1500V, 2000V

c) 測定回路構成

- ・Pulse Height-Timing 信号の処理回路の分離(Timing Filter Amp の使用)
- ・回路内ケーブルの低容量化(特に、核分裂計数管と前置増幅器間)

これらの項目に対する実験的な検討に当たっては、薄膜 LiF ターゲットを用い、500keV 程度の中性子を発生させ、⁶Li ガラスシンチレータにより中性子飛行時間(TOF)-波高 2 次元スペクトル及び時間分解能を測定した。

Fig.4.2.6 及び 4.2.7 に 2 つの中性子飛行時間(TOF)-波高 2 次元スペクトルとそのスペクトルを 1 次元化した TOF スペクトルを示す。Fig.4.2.6 は、平成 7 年度に報告した回路による測定結果であり、Fig.4.2.7 は、今回の検討の結果得られた最良の時間分解能を持つ回路に基づく測定結果である。Fig.4.2.7 にこの測定に用いられた回路を示す。改良以前の回路に基づく時間分解能は、1 次元 TOF スペクトルのピーク部分の半値幅で約 27nsec であった。これに対し、改良後の回路による時間分解能は、同じく 1 次元スペクトルのピーク部分の半値幅で約 10nsec、全幅でも 15nsec と大幅に向上していることが分かる。改良後の回路は Fig.4.2.8 に示した。

本研究で測定を行う予定の数十 keV 領域の測定に対して、ここで得られた 10nsec 程度の時間分解能は十分である。

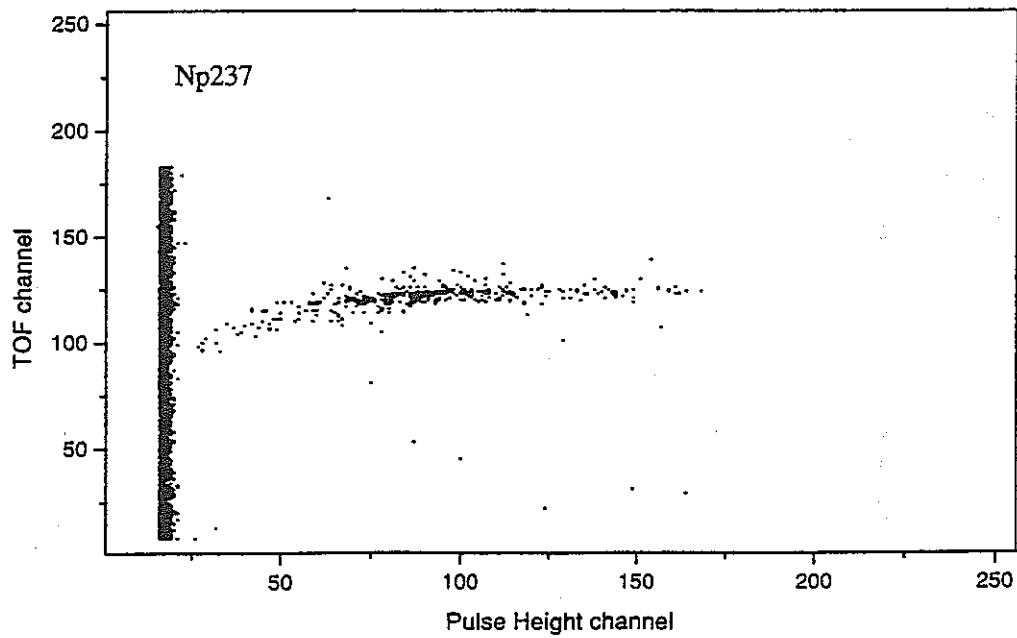
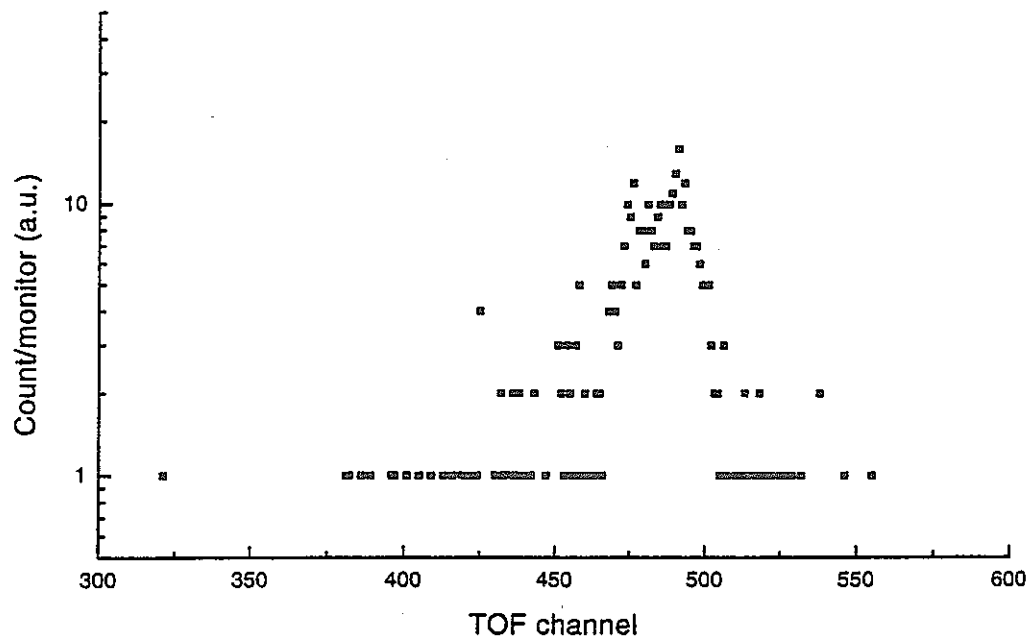


Fig. 4.2.6 Time resolution by original TOF equipment

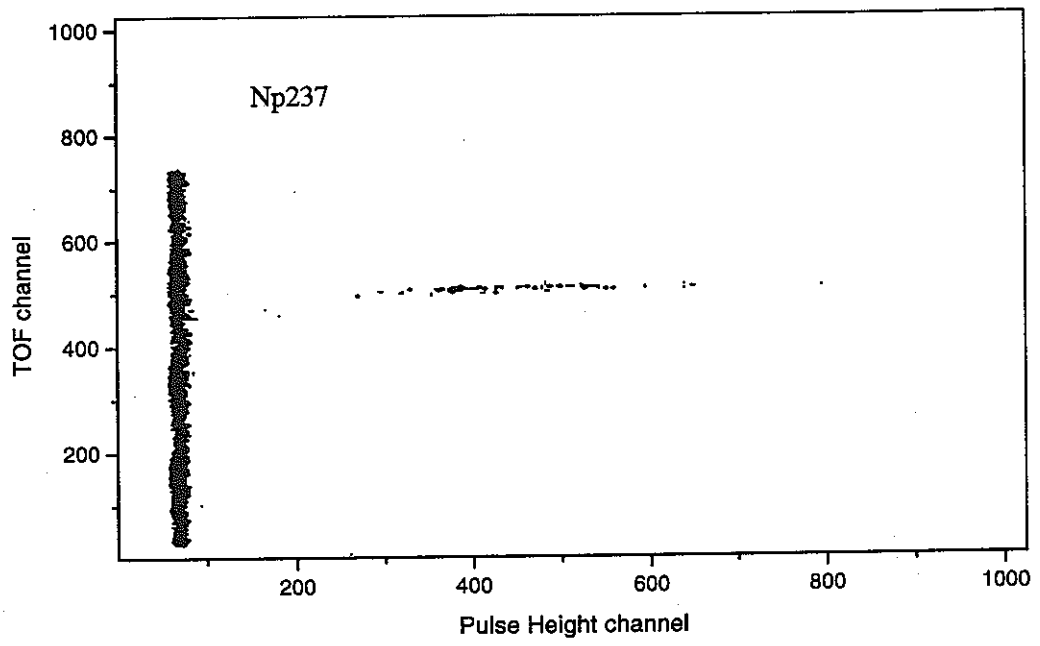
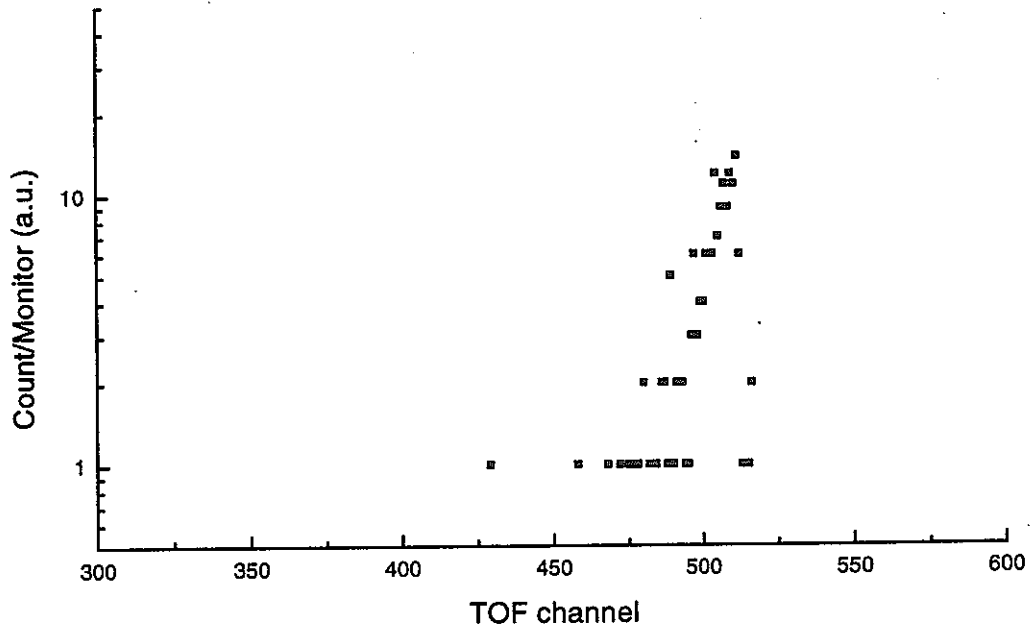


Fig.4.2.7 Time resolution by improved TOF equipment

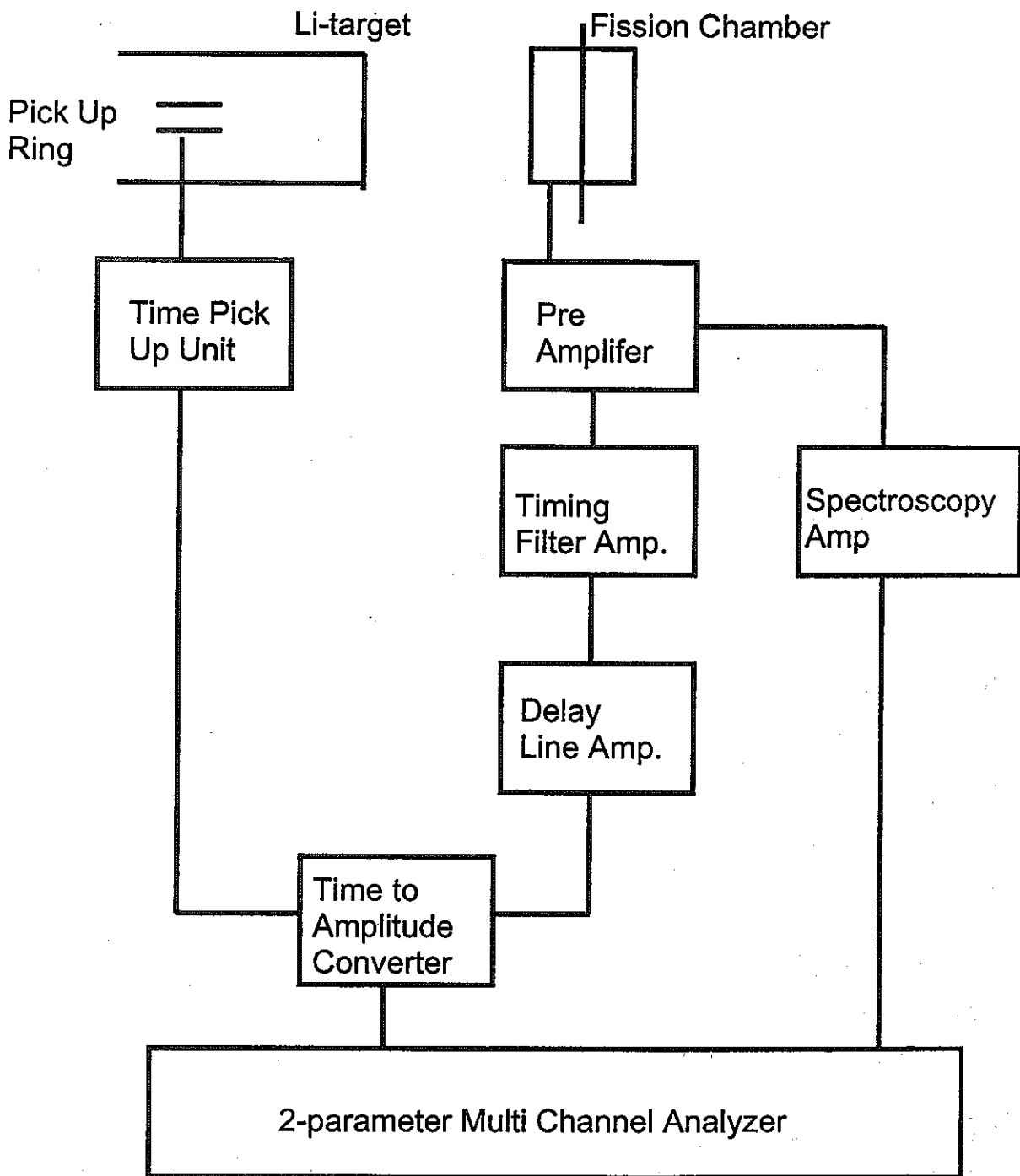


Fig.4.2.8 TOF circuit flow chart

4.3 測定 I (平成 8 年度)

この節では平成 8 年度にステンレス製核分裂計数管を用いて行なった測定(測定 I と称す)の詳細について述べる。

4.3.1 照射

実験配置

実験配置を Fig.4.3.1 に示す。核分裂検出器は Li ターゲットから 0 度方向 13.2cm の位置に配置している。また、核分裂計数管の後方 83cm(ターゲットから)の位置には、中性子発生量並びにエネルギーをモニターする ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレータを配置した。また、発生中性子量をモニターするための BF_3 検出器を核分裂検出器の 90 度方向 2.3m の位置にセットした。

測定回路

本測定に使用した測定回路を、Fig.4.3.2 及び 4.3.3 に示した。Fig.4.3.2 は核分裂計数管系の測定回路を示しており、前節で設定した TOF-波高 2 次元測定回路であり、データ収集には二つの核分裂計数管それぞれについて Labo MPC-1600 型の MCA を使用して 2 次元リストデータの取得した。Fig.4.3.3 には ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレータ及び BF_3 検出器の回路を示している。

実験手順

測定は、以下の手順で行われた。

a) 発生中性子エネルギー分布測定 (${}^6\text{Li}$ -6 ガラスシンチレータ)

先に述べた通り、 ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレータを用い、所定のエネルギーの中性子が発生していることを確認する。また、この時ターゲット-検出器間に鉄ブロックを挿入して作成した Fe 透過スペクトルに対する測定も実施している。

b) ターゲット厚さの確認(${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレータ)

上記測定では、ターゲットから発生している中性子の下限値を測定するのは難しい。そのため、本研究では、加速陽子エネルギーを 500keV ほど上昇させ、Li ターゲットの厚さを確認する。

c) 核分裂計数管スペクトルのエネルギー校正

核分裂計数管を所定の位置に置き、Fe 透過スペクトル下で TOF 測定を実施する。鉄透過スペクトルの約 28eV の "dip"(谷)からエネルギー軸の確認を行う。

d) 核分裂計数管の TOF 波高レスポンス測定

TOF 波高の 2 次元測定を実施する場合、データ処理の際に単色中性子に対する TOF 波高応答関数(レスポンス)が必要となる。ここでは、薄型ターゲットを使用して単色中性子(今回は約 $500\text{keV}\pm 50\text{keV}$)を発生させ、TOF 波高レスポンスを測定した。

e) 核分裂測定

以上の測定の後、核分裂断面積の測定を実施した。陽子電流は $6\sim 10\ \mu\text{A}$ 程度で、総測定時間は 54 時間であった。この測定期間中、 BF_3 検出器及びターゲット部入射陽子電流計によりモニターした発生中性子量は安定しており、また、 ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレータでモニターした中性子エネルギーも有意の変化は示さなかった。

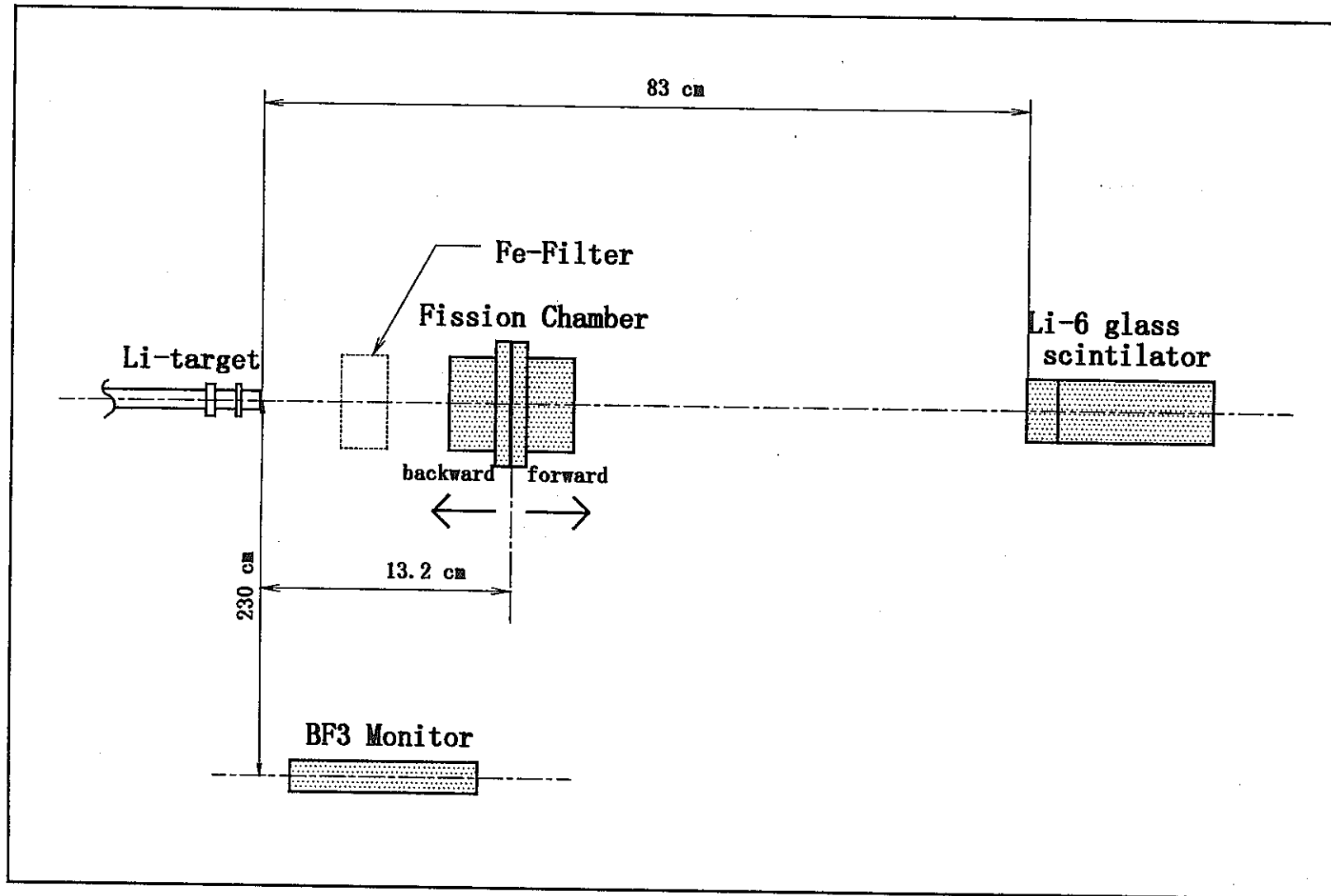


Fig.4.3.1 Experimental Setup

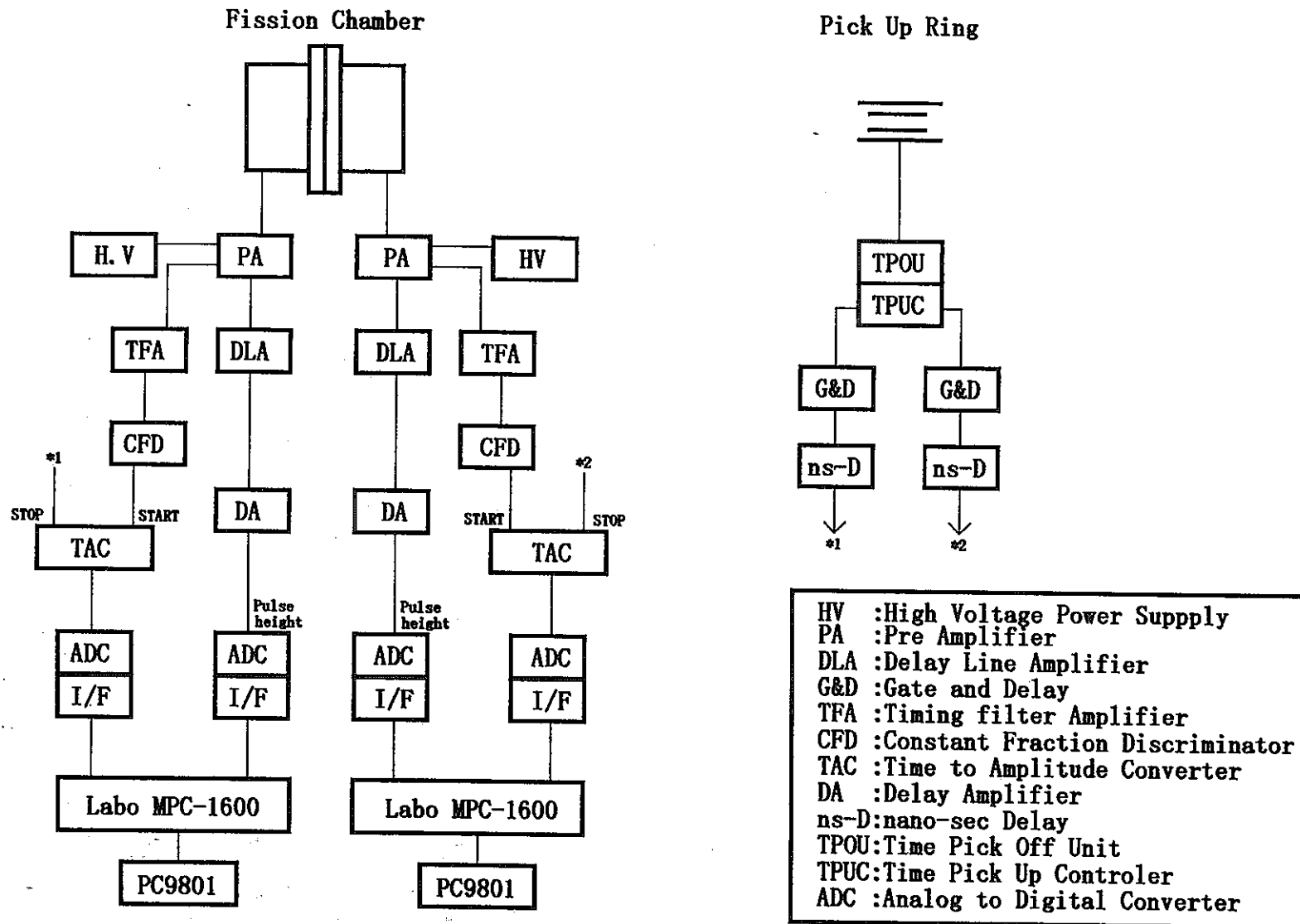
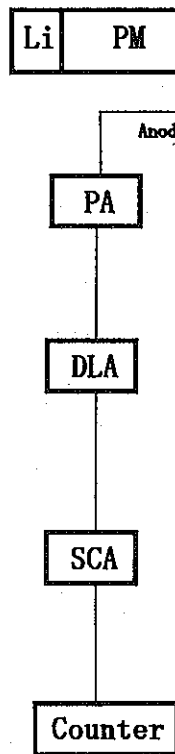
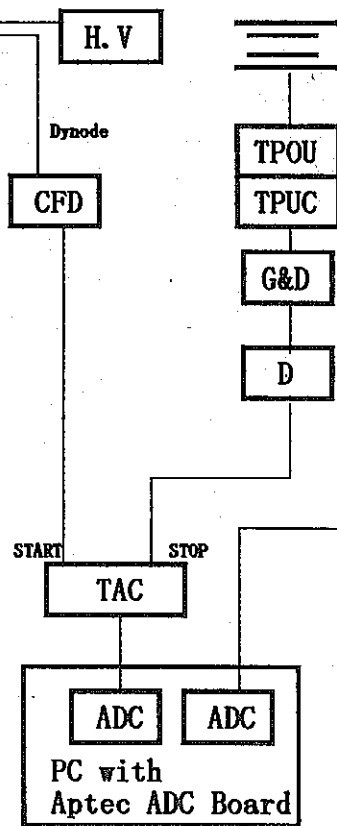


Fig.4.3.2 Electronics of Fission Chamber

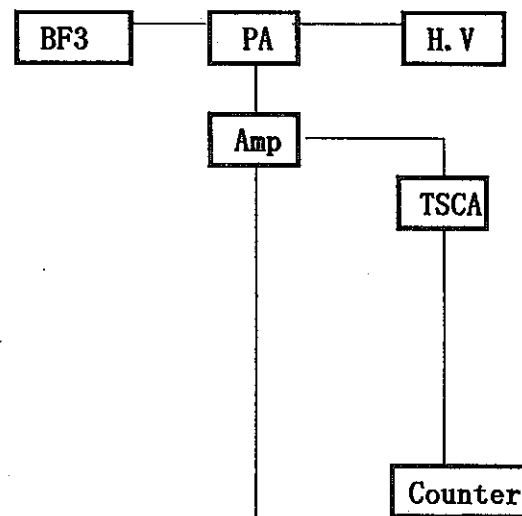
Main Monitor



Pick Up Ring



BF3 Counter



- HV :High Voltage Power Supply
- PA :Pre Amplifier
- DLA :Delay Line Amplifier
- G&D :Gate and Delay
- CFD :Constant Fraction Discriminator
- TAC :Time to Amplitude Converter
- DA :Delay Amplifier
- D :Delay
- TSCA:Timing Single Channel Analyzer
- SCA :Single Channel Analyzer
- ADC :Analog to Digital Converter
- TPOU:Time Pick Off Unit
- TPUC:Time Pick Up Controler

Fig.4.3.3 Electronics of ⁶Li-glass and BF₃ detectors

4.3.2 実験結果

発生中性子スペクトル及びエネルギー

Fig.4.3.4 に ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレータにより測定した発生中性子 TOF スペクトルを示す。 γ ピークと中性子による連続したスペクトル成分が見られる。このスペクトルの中性子ピークの半波高チャンネルから最大中性子エネルギーを求めた。この結果、最大中性子エネルギーは 113.7keV であった。

なお、発生中性子の低エネルギー部分は、加速陽子パルスの繰り返し周期が 0.5MHz であるため、 γ ピークの前後に分布している。このため、発生中性子のエネルギー下限を導出することはできず、ターゲットの厚さは決定できないことが分かる。

Fe 透過中性子スペクトル

ターゲット- ${}^6\text{Li}$ 検出器間に鉄板(2cm)を挿入し、Fe 透過中性子スペクトルを作成し ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレータにより測定した。Fig.4.3.5 にその TOF スペクトルを示す。 γ ピーク並びに中性子による連続スペクトルが見られるものの、中性子スペクトル部分には、Fe の共鳴に対応したいくつかの dip(谷)が見られる。この谷の内、もっとも大きな谷は 200 チャンネル付近のもので、エネルギーに換算すると 28keV となった。このエネルギーは Fe の共鳴エネルギーと一致しており、TOF-エネルギー換算処理が正しく行われていることが確認された。

ターゲット厚さの測定

陽子エネルギーを 500keV ほど上げて高エネルギー中性子を発生させ、TOF 測定を実施した。Fig.4.3.6 に測定結果を示す。 γ ピークの他、ピーク上の中性子成分が観測されている。このスペクトルから得られる中性子エネルギーは、

$$\text{最大エネルギー} = 496 \text{ keV}$$

$$\text{最小エネルギー} = 181 \text{ keV}$$

であった。これらのエネルギーの差が、ターゲットの厚さに相当することから、今回作成したターゲットの厚さは 315 keV であることが分かる。従って、最大中性子エネルギーが 113.7keV に対して、このターゲットは“thick target”となっている。

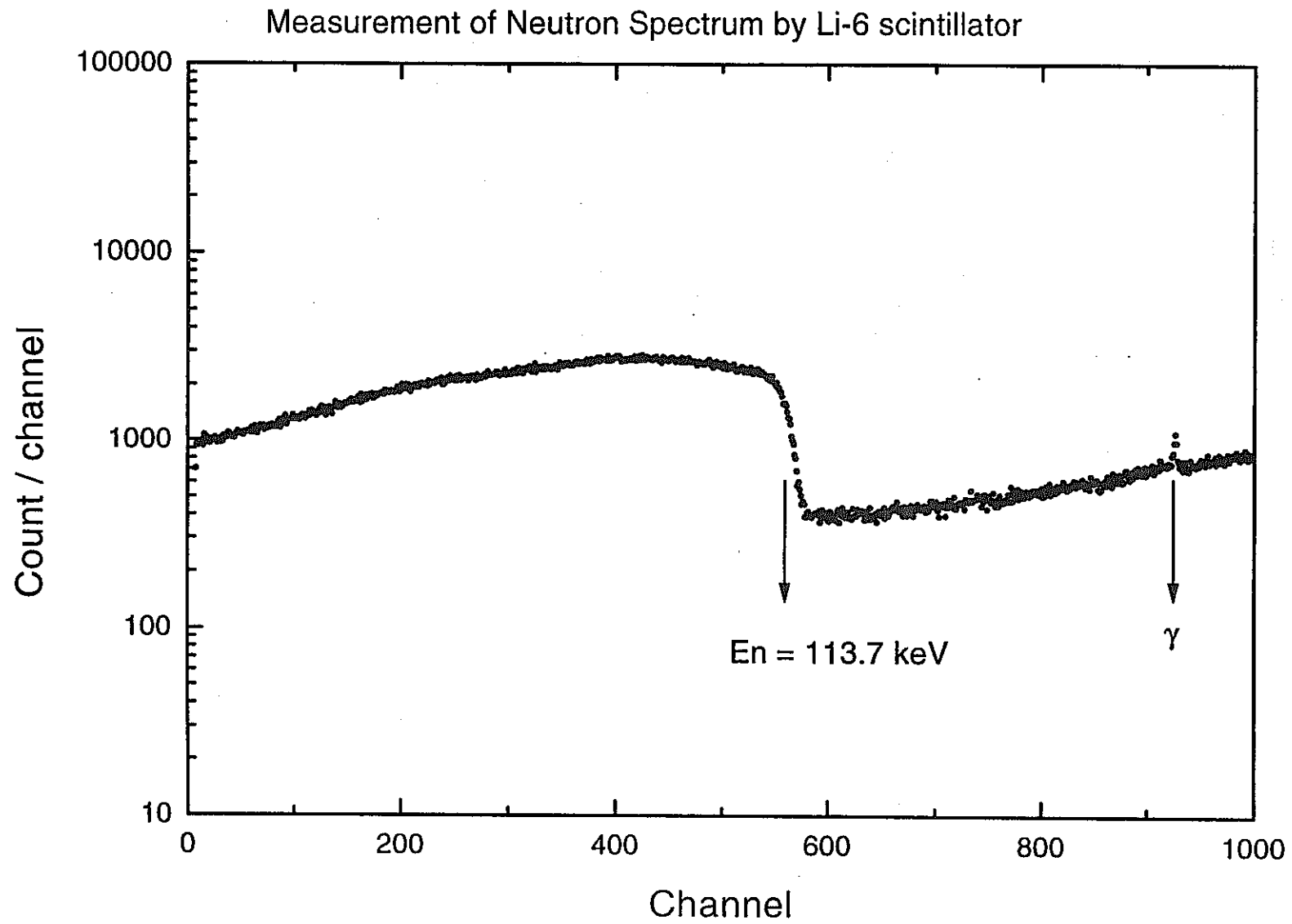


Fig.4.3.4 Neutron spectrum measured by ^6Li -glass scintillator

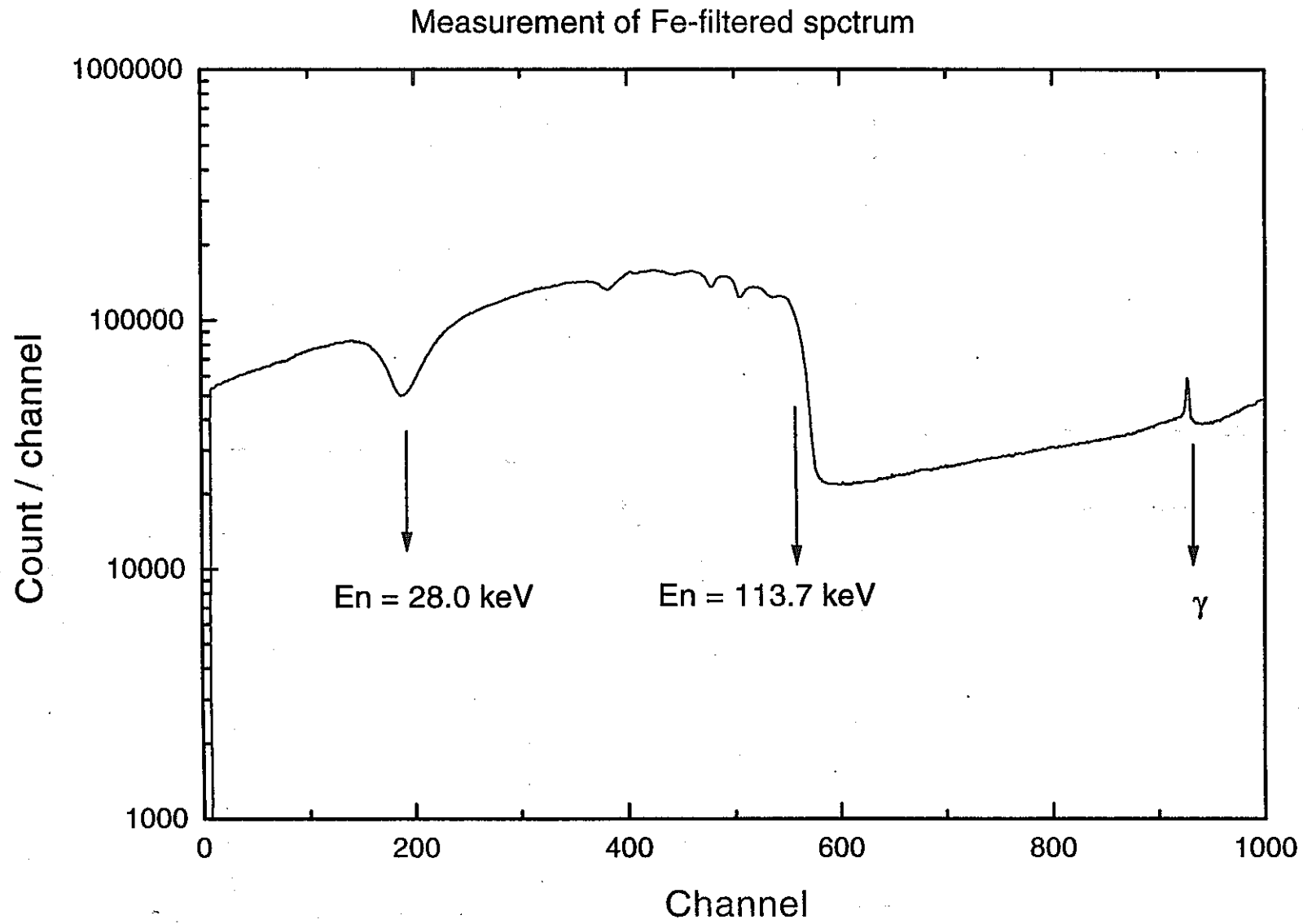


Fig.4.3.5 Fe filtered spectrum measured by ^6Li -glass scintillator

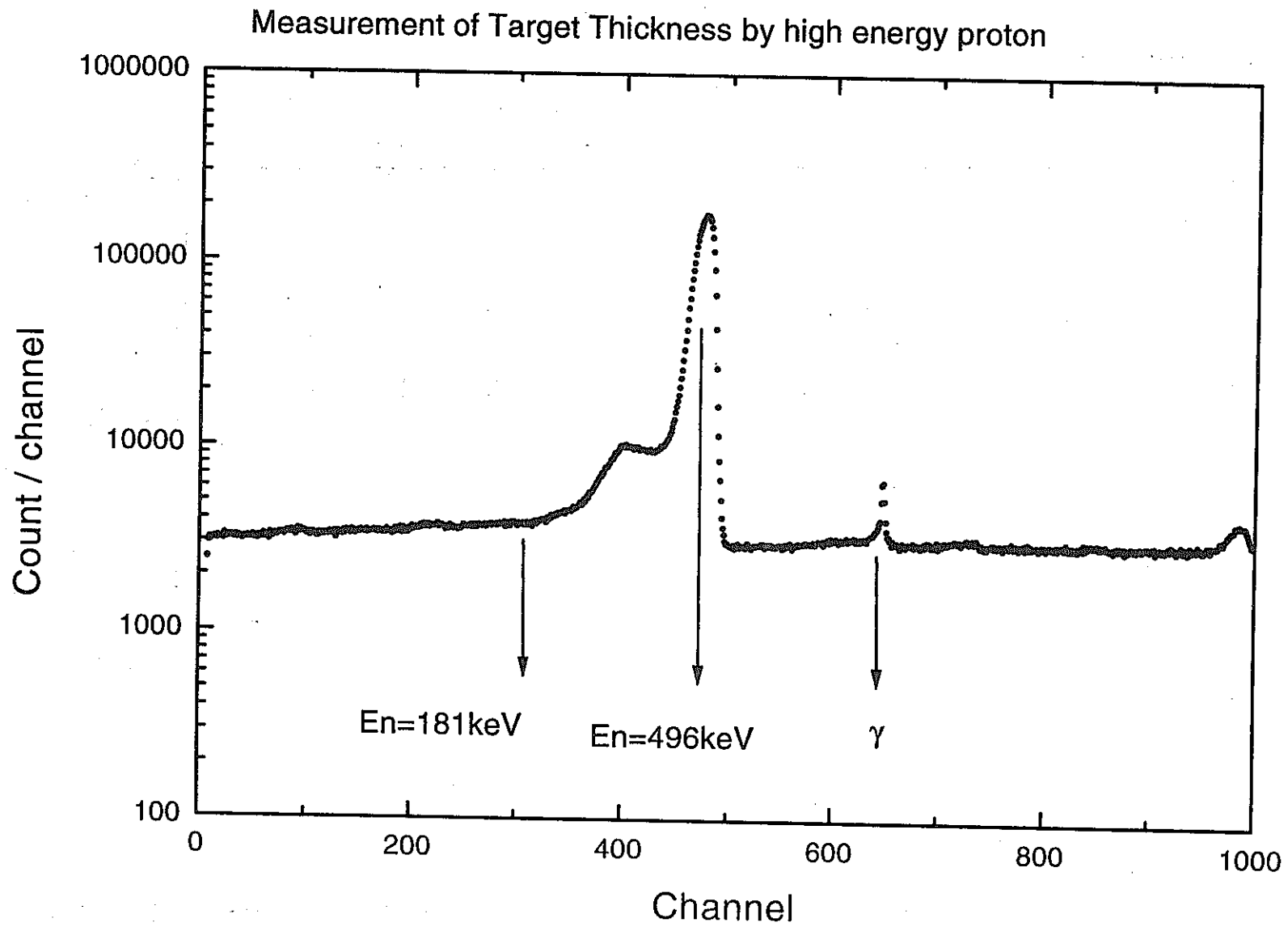


Fig.4.3.6 Measurement of Target thickness by using high energy proton

核分裂計数管の TOF スペクトル

Fig.4.3.1 の通り核分裂計数管をターゲットから 13.2cm の位置に置き、また鉄板を両者の間に挿入して検出器を Fe 透過スペクトル下に置いて TOF-波高 2 次元データを測定した。Fig.4.3.7 に 2 次元データから TOF 軸に沿って整理して得られる 1 次元 TOF スペクトルを示す。この図の上部は全体図であり、下部はピーク部分を拡大したときのスペクトルを示している。

先にも述べた通り、この TOF スペクトルにはピークは存在しない。このため、この TOF スペクトルのエネルギー変換には、先に決定された最大中性子エネルギー(113.7keV)をこの TOF スペクトルのピーク半波高チャンネルに対応付けることにより行う手法を採用した。

この手法の妥当性の確認は、同図の下図に見られるように Fe 透過スペクトルの”dip”(谷)に対応するチャンネル(下図)をエネルギー換算することにより行った。図中に見られる谷に対応するチャンネルは 548 チャンネルであり、このチャンネルのエネルギーは 27.9keV と換算された。このエネルギーが Fe の共鳴エネルギー位置 28keV とよく一致していることから、今回のエネルギー換算手法が妥当であることが確認された。

核分裂計数管のレスポンス測定

ターゲット厚さの測定を行った約 500keV の単色中性子を利用して、核分裂計数管のレスポンスを測定した。ここで用いた中性子エネルギー(500keV)とそのエネルギー幅(± 50 keV)そしてターゲット-核分裂計数管距離(13.2cm)を考えると、ターゲットから発生した中性子の飛行時間の幅は ± 0.8 nsec となり十分小さく、この中性子による検出器のレスポンスは検出器そのものの応答を与える。

測定されたスペクトルを、Fig.4.3.8(^{235}U)及び 4.3.9(^{237}Np)に示す。両者とも高波高成分はほぼまっすぐであり、低波高部分に若干の”walk”による曲がった成分を持つが観測された。

なお、この図を TOF 軸で 1 次元化して得られる TOF スペクトルを Fig.4.3.10 に示す。両核分裂計数管とも時間幅は、半値幅で 10nsec、全幅で 15nsec 程度であり、前節で得られた時間分解能が保持されている。

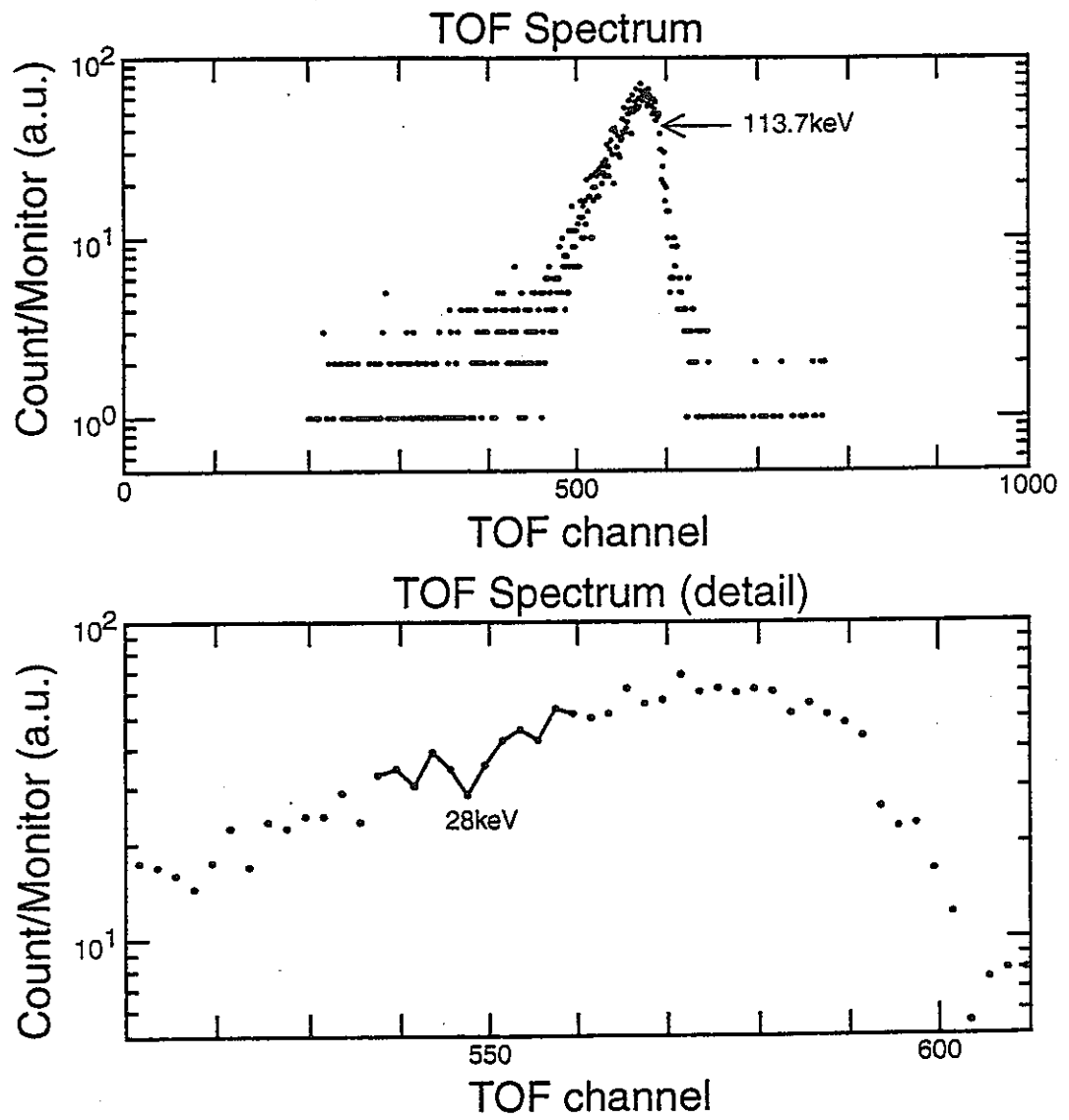


Fig.4.3.7 Fe filtered spectrum by Fission Chamber

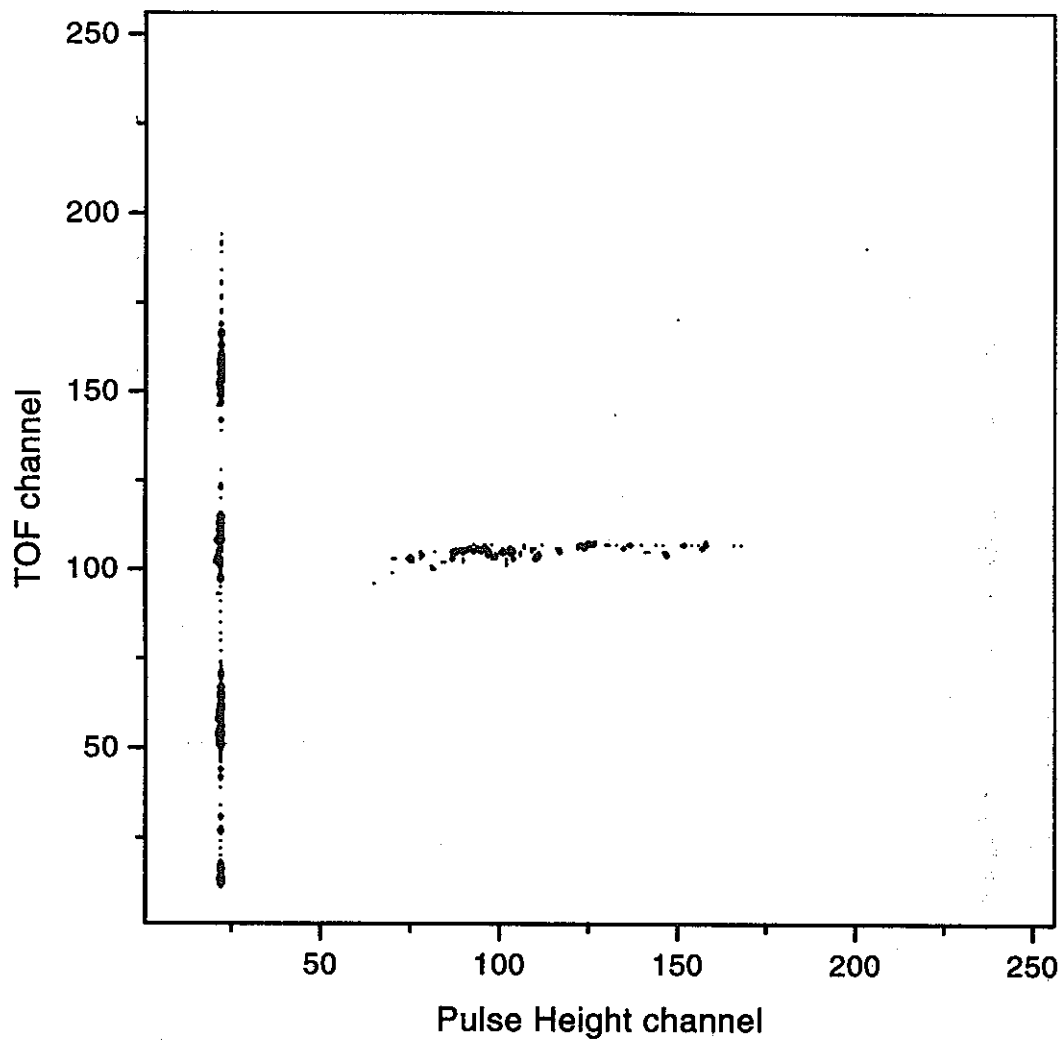


Fig.4.3.8 TOF-pulse height response of Fission Chamber (^{235}U)

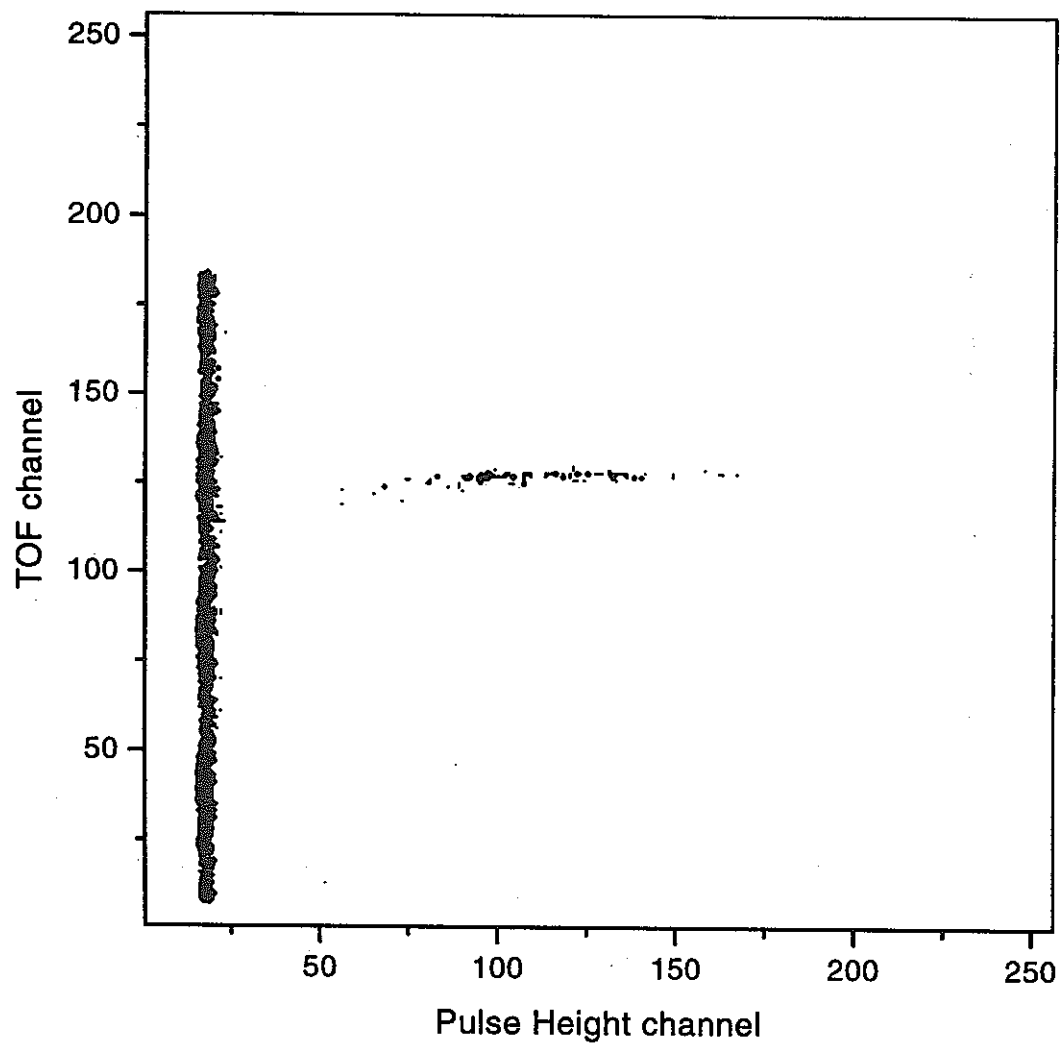


Fig.4.3.9 TOF-pulse height response of Fission Chamber (^{237}Np)

TOF Spectrum of F.C.

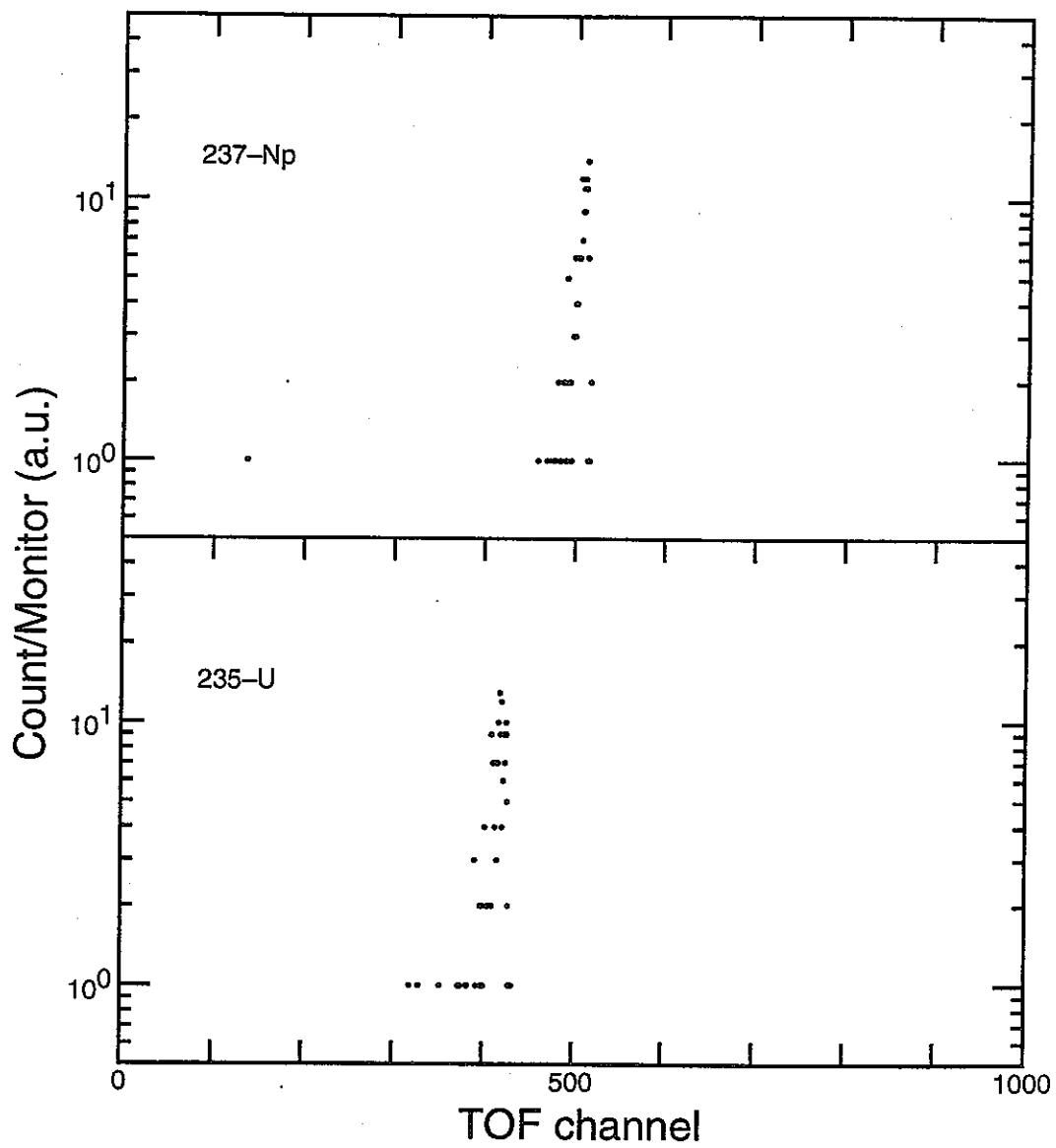


Fig.4.3.10 One dimensional TOF spectrum for Fission Chamber of ^{235}U and ^{237}Np

核分裂測定結果

以上の測定後、核分裂本測定を実施した。測定結果を、Fig.4.3.11 に ^{235}U 測定 2 次元スペクトル、Fig.4.3.12 には ^{237}Np 測定 2 次元スペクトルを示す。図中の各枠はデータ処理の際に設定したエネルギービンを示している。(詳細は後述)

54 時間の測定の結果得られた核分裂イベント数は、補正前の全計数で、 ^{237}Np に対して 2,504 カウント、 ^{235}U に対して 126,022 カウントであった。標準サンプルである ^{235}U に対しては 12 万以上のカウント数が得られており、十分な精度が得られている。一方、 ^{237}Np は総カウント数で 2500 であり決して多くないものの、統計学上の標準偏差を考えると(2%)、妥当なカウント数は取得できたと考えられる。なお、このように総カウント数が比較的少なくなったのは、TOF 測定時のエネルギー分解能をあまり落とさないような飛行距離 13.2cm を設定したためである。

今回の測定では、以下に述べる各補正量自体がほぼ数%以下と小さいことから、今回の測定の精度は ^{237}Np のカウント数によってほぼ支配されていると言える。

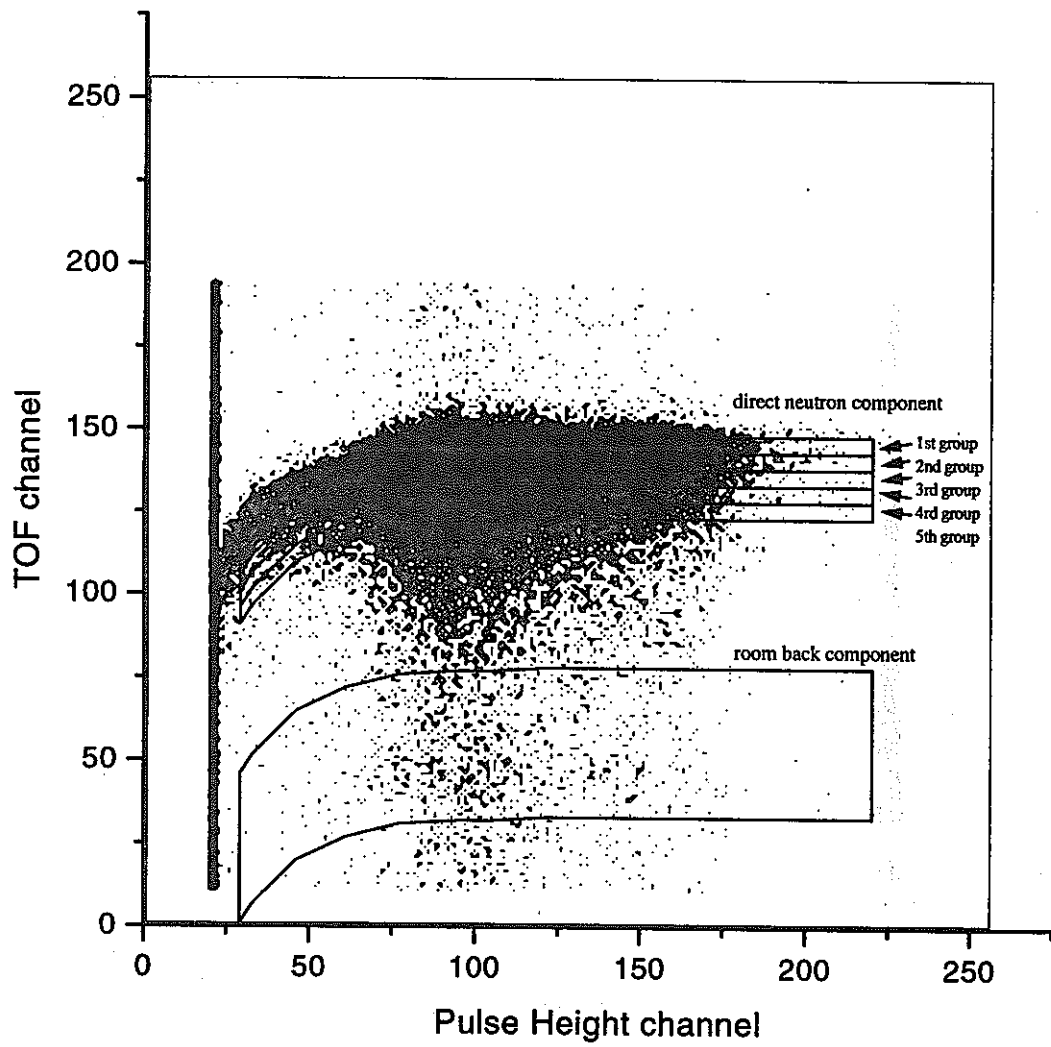


Fig.4.3.11 Measured 2-dimentional spectrum for ^{238}U sample

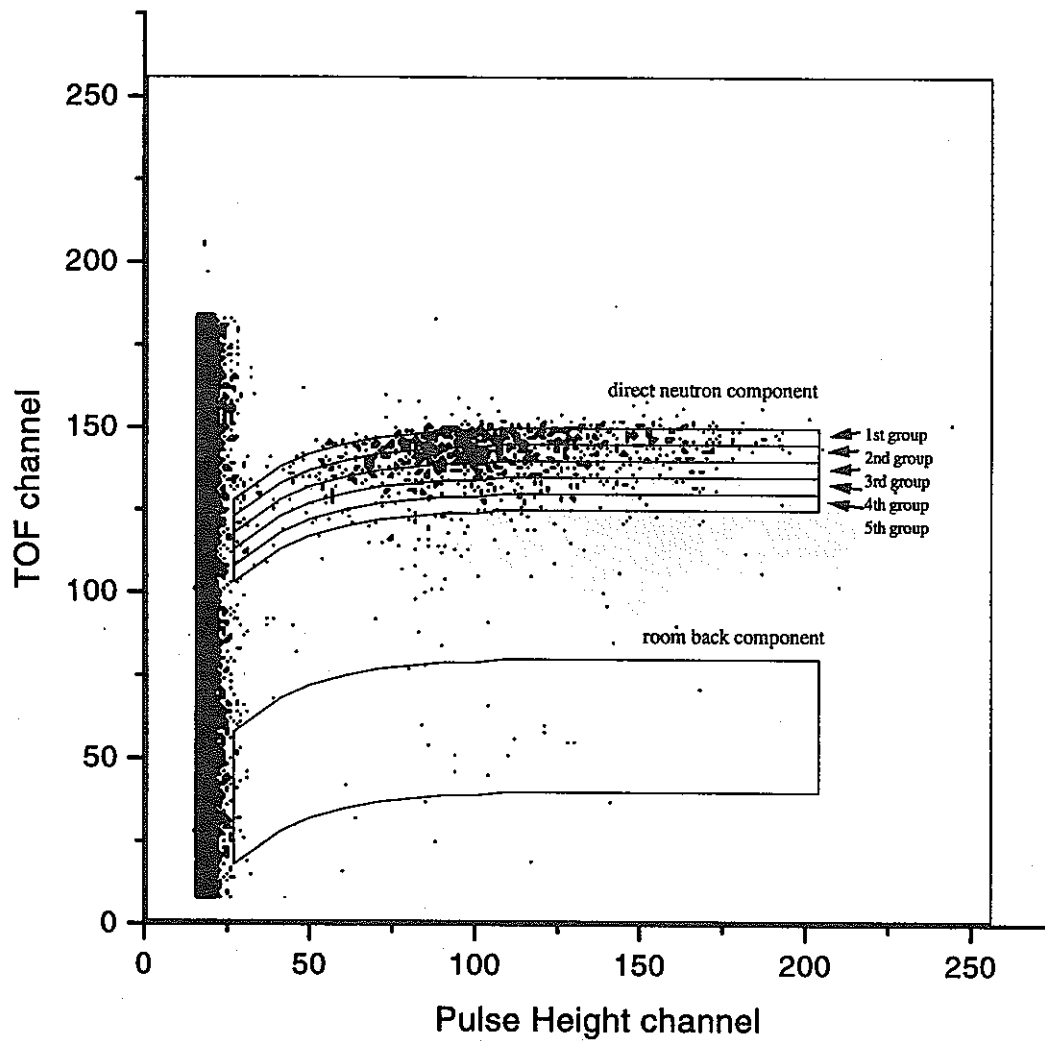


Fig.4.3.12 Measured 2-dimensional spectrum for ^{237}Np sample

4.3.3 データ処理

以上測定 I で得られた 2 次元データを以下の順に処理し、 $^{237}\text{Np}/^{235}\text{U}$ 核分裂断面積比及び ^{237}Np 核分裂断面積を得た。本節では、これらの手続きについて述べる。

エネルギービンの決定

得られた 2 次元スペクトルの内、TOF 軸をエネルギー軸に換算する必要がある。検出器の時間分解能とチャンネル幅が同程度で、十分なカウント数が得られている場合には、単純な各 TOF チャンネルをエネルギーに変換すればよい。しかし、本研究の様に、時間分解能及び計数の点で十分でない場合、検出器の時間分解能を上回るチャンネル幅に TOF チャンネルをバンチする手法が取られるのがふつうである。これにより、検出器の時間分解能に見合ったエネルギー分割、また各エネルギービンの計数を極端に悪化させることを防ぐことができる。

本研究では、先に求めた単色エネルギー中性子に対するレスポンスを用いて、TOF ビンを分割し、エネルギービンを決定した(Table 4.3.1)。前述の Fig.4.3.11 及び 4.3.12 には、ここで設定した 8 個の TOF ビンを示している。今回は、この TOF ビン決定に当たっては、 ^{237}Np の計数があまり多くないこと、結果として得られる核分裂断面積のエネルギー依存性がきわめて小さいことを考慮し、最終的な結果を得る段階では計数の少ないビン低エネルギー部分をさらにバンチして、113.7keV 以下 6.38keV まで 5 分割のエネルギービンを設定した。

ここで得られた各ビンに対して波高分布を求め、以下に記す補正を行うと、最終的な計数値を得ることができる。得られた各ビンの波高分布の例を Fig.4.3.13 に示す。上部が ^{237}Np 、下部が ^{235}U である。

Table 4.3.1 Energy bins

Energy Bin	High Energy (keV)	Low Energy (keV)	Center (keV)
#1	113.70	53.23	83.5
#2	53.23	30.07	41.7
#3	30.07	20.03	25.1
#4	20.03	10.43	15.2
#5	10.43	6.38	8.4

室内散乱中性子の補正

ターゲットから発生して検出器以外の方向に向かった中性子の内、ある部分は床あるいは実験室構造材で散乱して検出器に入射する。これらは、測定上バックグラウンドとなる。このバックグラウンド中性子に伴う事象は、正規の飛行時間とは大きく異なる TOF ビンに入ることになるため、TOF 測定を行っている今回の測定では、正規の中性子スペクトル以外の部分の事象がこの中性子による事象と考えられる。

本研究では、Fig.4.3.11 及び 4.3.12 に示した("room back")部分を取り、室内散乱中性子の事象を評価した(Fig.4.3.13 参照)。この補正の大きさは、エネルギービンによって変わり、フォラグラウンド事象の多いビンでは

0.8%、少ないピンでは 8%程度であった。なお、サンプルの種類(^{237}Np 及び ^{235}U)によって補正量には差はなかった。

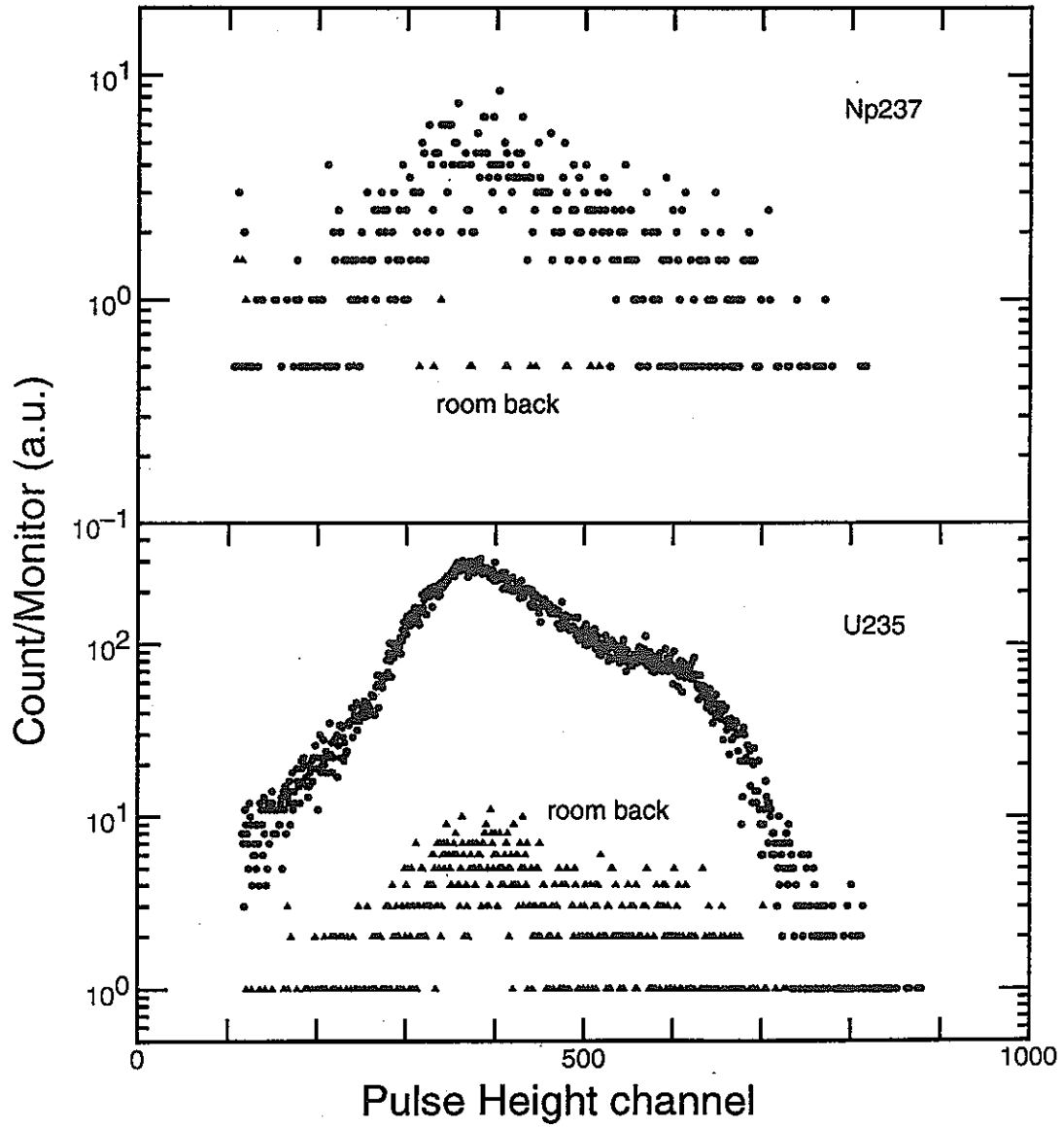


Fig.4.3.13 Typical Pulse Height Spectrum for ^{237}Np and ^{235}U

ゼロ波高への外挿

核分裂して放出される核分裂片の内、波高の小さい成分は試料からの α 事象や検出器材の(n,p),(n, α)事象あるいは検出器の電気ノイズに埋もれてしまうため、この数を推定し補正する必要がある。この量を推定するために、 α 事象の影響を受けていないと考えられる部分の波高スペクトルを指数関数で最小自乗フィッティングを行い、これをパルサーにより調べたゼロ波高まで外挿を行って α 事象に埋もれている成分の量を推定した。

Fig.4.3.14 には ^{235}U に対するフィッティング対象領域の波高分布、フィットされた関数並びに外挿した関数を示した。今回の測定の場合、この補正量は ^{235}U に対して 1.0%、 ^{237}Np に対しては 4.7%であった。 ^{237}Np に対して大きめの補正量となったのは、 ^{237}Np の α アクティビティーが ^{235}U に比して格段に高いためである。なお、この補正量は、どのエネルギービンでも同じであった。

自己吸収の補正

核分裂試料中で生じた核分裂片の内、一部分は試料中ですべてのエネルギーを失い止まってしまう。この成分(自己吸収成分)は、計数する事ができないため、計算により評価し補正する必要がある。この自己吸収の補正のための評価式として、G.W.Carlson の計算式⁹を用いた。この評価式は、核分裂片の運動量、放出角度の異方性を考慮したもので、以下の式で与えられる。

$$I = \left(\frac{t}{2 \cdot R} + \eta \right) \cdot \left(1 - \frac{a_2}{2} \right)$$

ここで、I: 自己吸収の割合

t: 核分裂試料の厚さ

R: 核分裂試料中での核分裂片の平均飛程

η : 核分裂片の平均速度に対する平均の相対速度

a_2 : 核分裂片の角度分布の2次のルジャンドル展開係数

これらの各因子の内、 a_2 は今回の実験の入射エネルギー(100keV 程度)の場合、ほぼ 0 となることから、今回の実験の自己吸収割合 I は上式の第 1 項で決まる。第 1 項の各因子に ^{235}U 及び ^{237}Np 試料それぞれの値を代入すると、自己吸収割合 I は、 ^{237}Np に対して 1.4%、 ^{235}U に対して 0.75%となる。 ^{237}Np 試料は、 ^{235}U 試料に比べて厚いためこの自己吸収割合も大きくなっている。この補正係数は、中性子エネルギーによらず一定である。

サンプル内不純物核種の補正

試料中に測定対象核に比べて断面積の大きな核種が不純物として混入している場合、それらによる核分裂事象をバックグラウンドとして差し引く必要がある。今回の試料の同位体組成は、前節に示したとおり、 ^{235}U 、 ^{237}Np とも 99.9%以上の純度であることから、サンプル内不純物核種の補正は無視できるほど小さい。

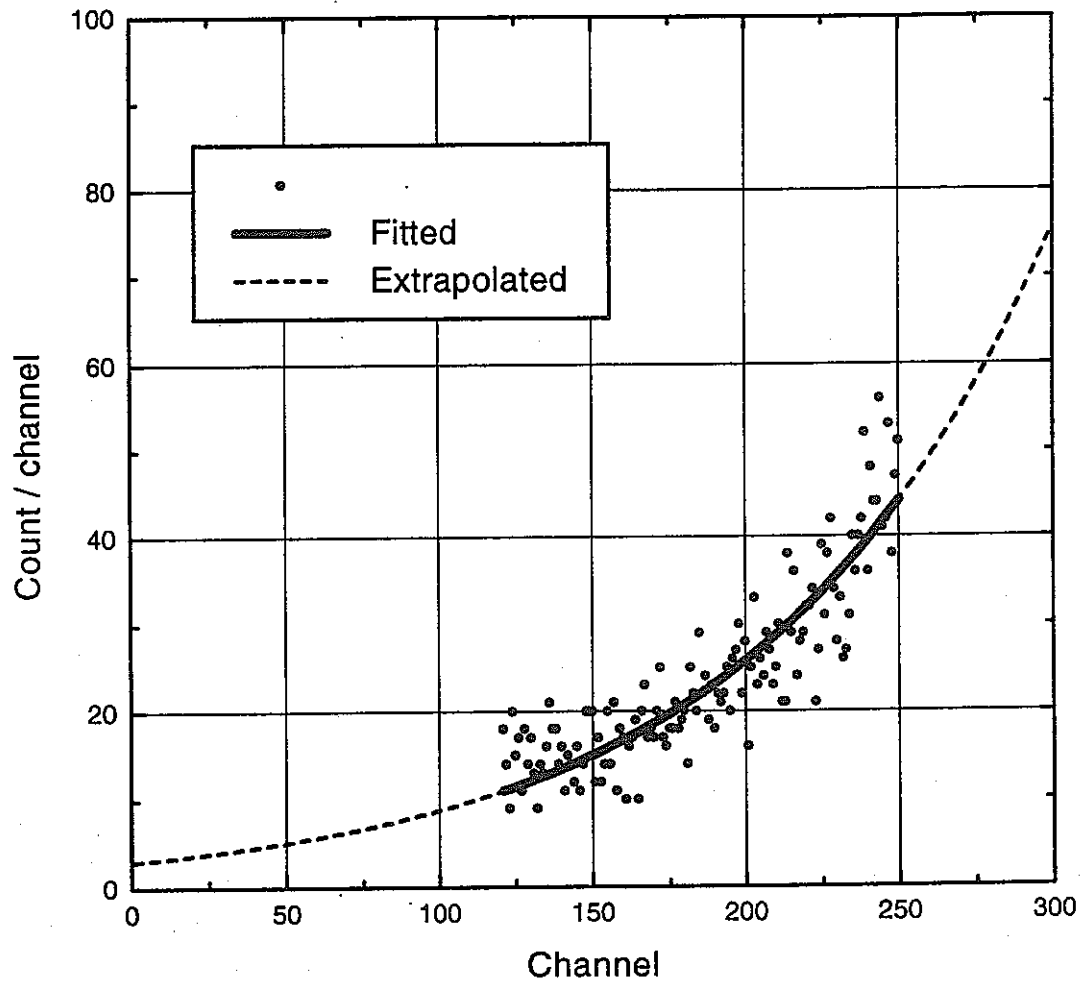


Fig.4.3.14 Pulse height Spectrum and fitted Curve for extrapolation

ターゲット-チェンバー散乱中性子の補正

ターゲット並びにチェンバーで散乱した中性子が核分裂サンプルに入り、起こす核分裂事象はバックグラウンドとして差し引く必要がある。しかし、これらによって散乱した中性子の多くは、エネルギーあるいは飛行距離が正規のものとはほぼ変わらないため、室内散乱中性子のように実験的に評価することはできない。このため、このターゲット及びチェンバー散乱中性子の補正として、何らかの計算手法により核分裂試料位置での中性子束を、散乱体がある場合とない場合の二つについて計算する必要がある。

本研究では、モンテカルロコード”MCNP4A”を用いて、核データライブラリには JENDL3.2 ポイントワイズライブラリを使用して計算を実施した。体型のモデル化時には、ターゲットセルと二つの核分裂計数管を考慮した。ここで用いた計算体系モデルを Fig.4.3.15 に示した。

MCNP では、二つのサンプル位置での中性子エネルギー分布を計算するとともに、JENDL3.2 の ^{235}U 及び ^{237}Np のエネルギー依存核分裂断面積を用いて ^{235}U 及び ^{237}Np の核分裂率を計算した。そして、ターゲット及びチェンバーありなしの体系についての二つの MCNP 計算を行い、両者の比を持って補正係数とした。なお、MCNP の計算に必要な中性子源スペクトルは、本研究で作成した Li(p,n)中性子源シミュレーションコード "NESTL (5.3 節第 1 項で述べる)" を用いて作成した。この計算により得られた角度依存の中性子源スペクトルを Fig.4.3.16 に示す。

Fig.4.3.17 には、MCNP 計算によって得られた二つのフォイル位置での中性子束スペクトルを示す。散乱体が存在する時のスペクトルが、散乱体なしのスペクトルより大きな値を示していることが確認できる。各エネルギービンに対する散乱中性子量は、散乱体なしの中性子量に対して 20-70%となった(Table 4.3.2)。この散乱中性子の大部分は、検出器が鉄製であり、また大きなフランジ部が存在することに起因していることから、今後検出器の改良(特に、材質,フランジ部)が重要な改良項目であることが分かる。なお、先にも述べたとおり、本研究で採用している back-to-back 型測定法においては、測定対象核並びに参照核が同一位置に置かれた測定がなされ、その比として核分裂断面積が測定されることとなるため、散乱中性子量の大きさが直接結果に影響していない。実際に、この計算により求められた核分裂比に対する補正量は、Np と U、あるいはエネルギービンにより変わるものの、最大で -0.93%以下であった。

Table 4.3.2 Calculated result by MCNP4A

Energy Bin	Np		U	
	Np- target side	U- target side	U- target side	Np- target side
#1	1.30	1.18	1.30	1.18
#2	1.33	1.17	1.33	1.17
#3	1.56	1.23	1.54	1.22
#4	1.54	1.34	1.55	1.34
#5	1.72	1.36	1.73	1.37

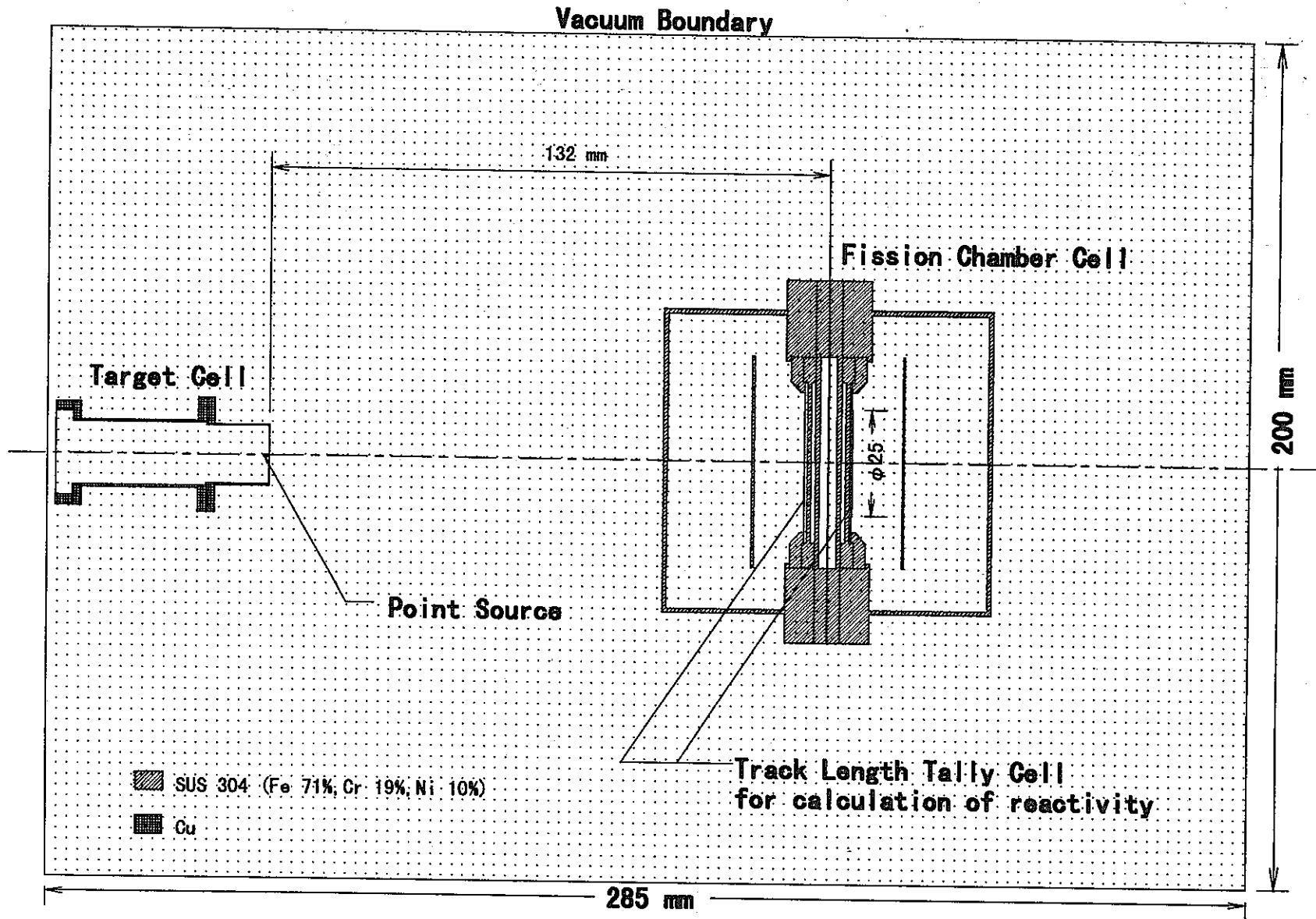


Fig.4.3.15 Calculation Model of MCNP4A calculation

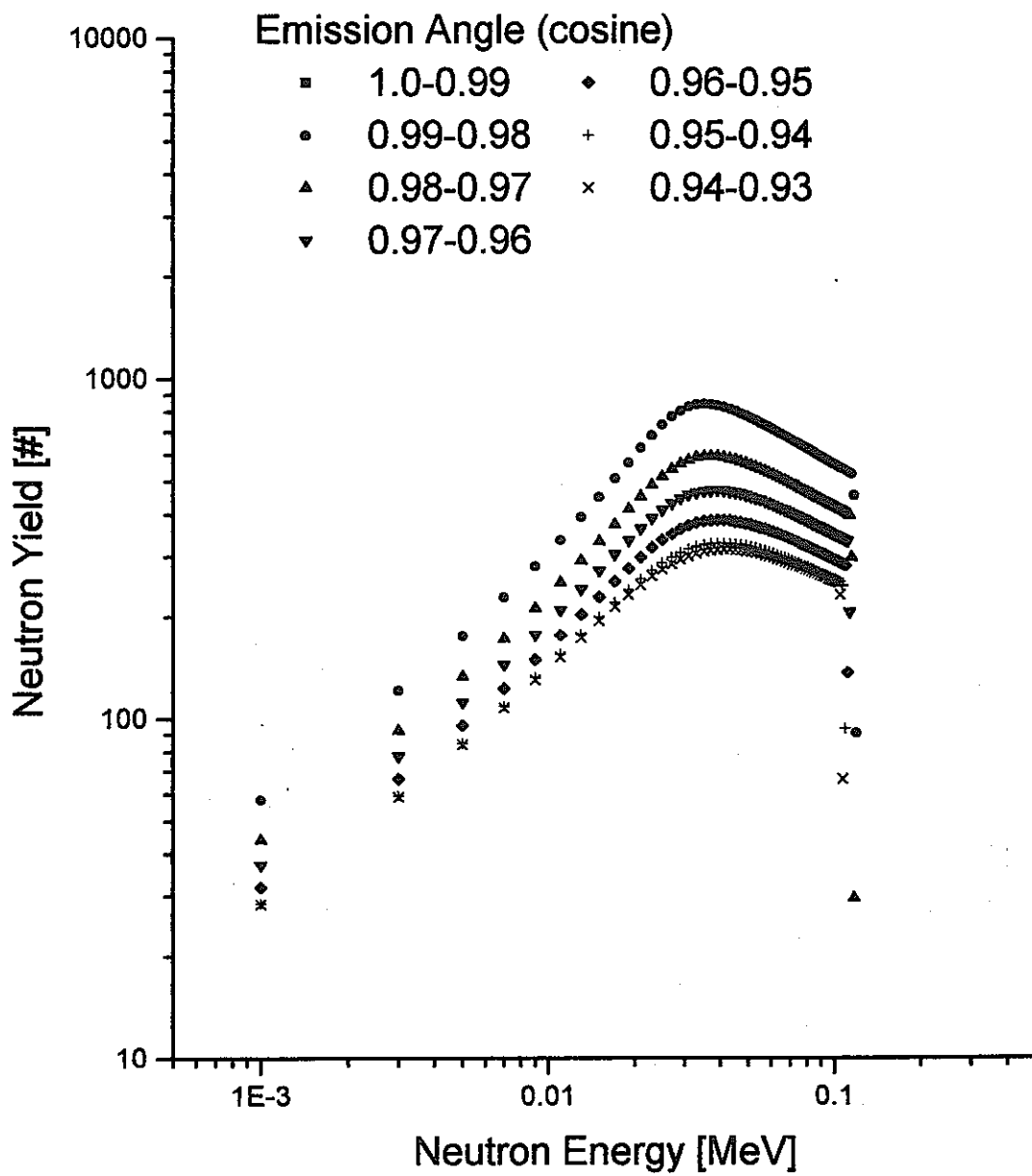


Fig.4.3.16 Neutron Source Spectrum for MCNP4A calculation

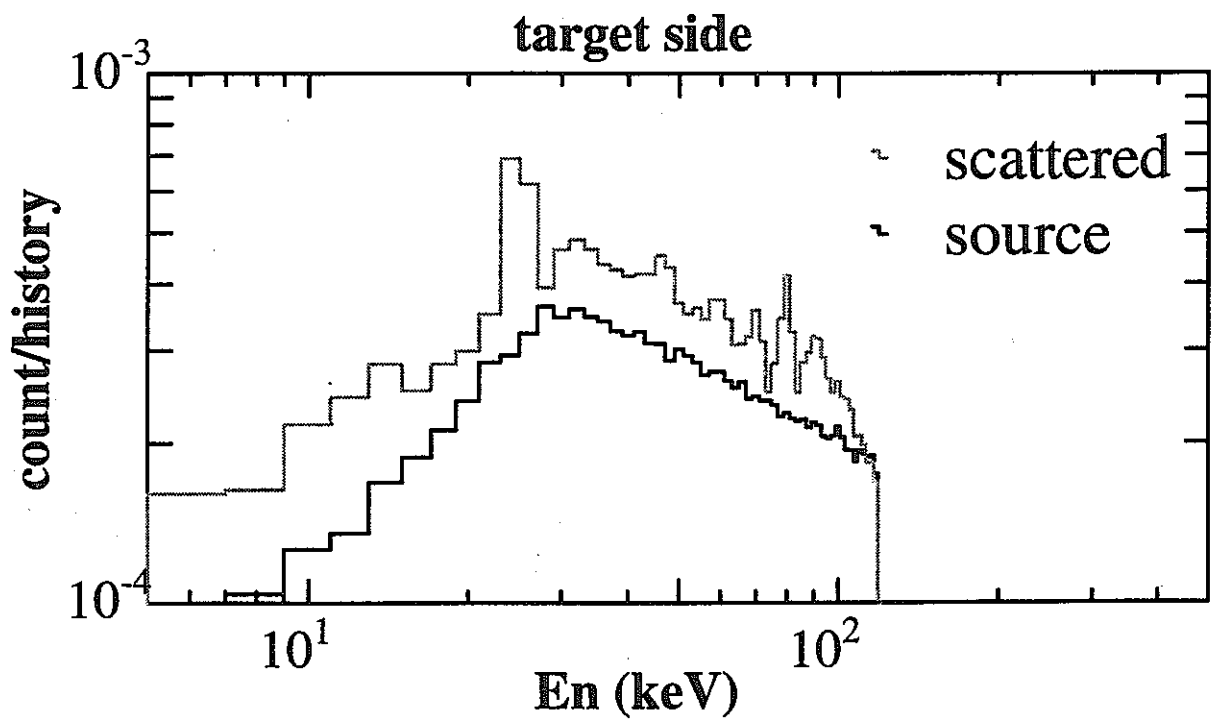
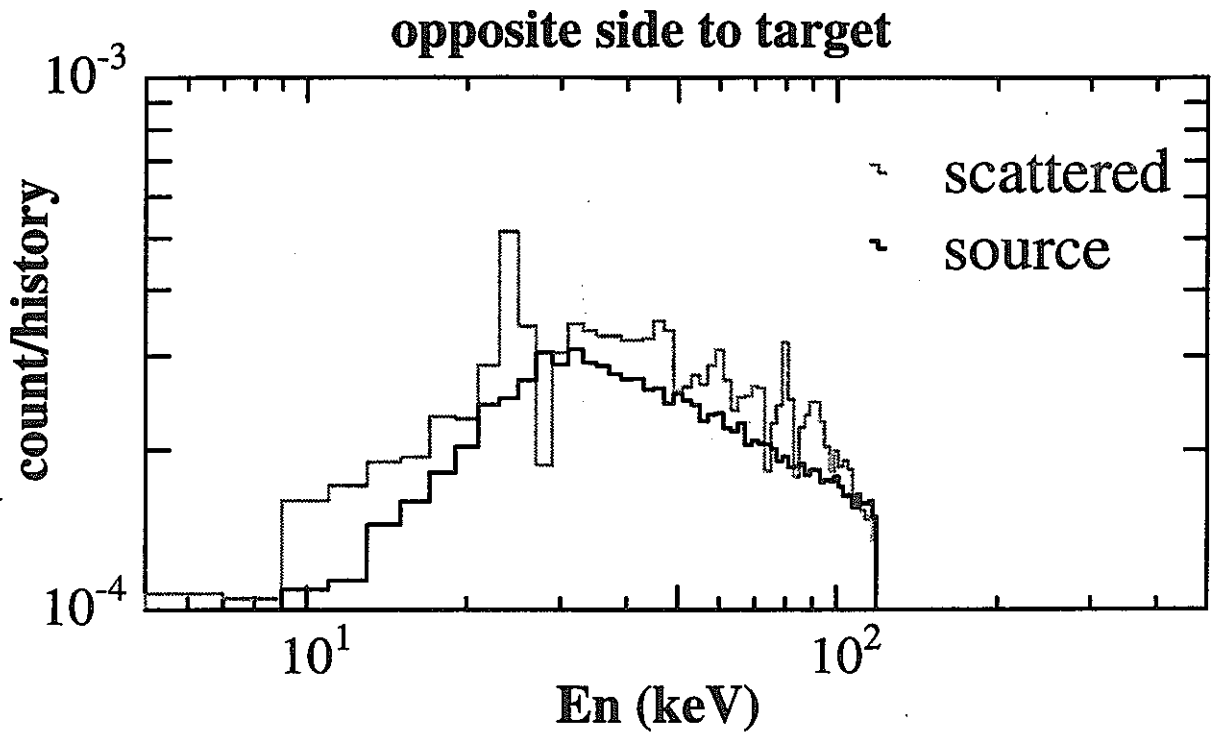


Fig.4.3.17 Calculated neutron spectrum at sample foils by MCNP4A

補正量のまとめ

以上の補正操作による、核分裂比に対する補正量を項目ごとにまとめると Table 4.3.3 のようになる。相対測定であることから、いずれの項目でも U, Np での計数補正が相殺しており、比較的小さな量となっている。総補正量は最大のビンで +4.6%となった。結果的に補正量の大部分を占めたのは、外挿による補正であった。

Table 4.3.3 Correction for Measurement I

Collection Energy Bin	Extrapolation (%)	Self- absorption(%)	Room-back neutron (%)	Scattered neutron(%)	total (%)
#1	+ 3.66	+ 0.66	+ 0.03	+ 0.24	+ 4.62
#2	+ 3.66	+ 0.66	- 0.02	- 0.13	+ 4.19
#3	+ 3.66	+ 0.66	- 0.24	- 0.93	+ 3.12
#4	+ 3.66	+ 0.66	- 0.95	+ 0.61	+ 3.99
#5	+ 3.66	+ 0.66	- 2.39	+ 0.76	+ 2.62

4.3.4 結果

前節のデータ処理により得られた $^{237}\text{Np}/^{235}\text{U}$ 核分裂断面積比を Fig.4.3.18 に、 ^{235}U 断面積として JENDL3.2 を用いて導出した ^{237}Np 核分裂断面積を Fig.4.3.19 及び Table 4.3.4 に示す。

Table 4.3.4 Experimental result of ^{237}Np fission cross section measurement

En (keV)	Present Measurement I (mb)	Present %Error	JENDL3.2	ENDF/B-6 & JEF-2
8.4 (10.43-6.37)	19.9	23.7%	23.0	8.8
15.2 (20.03-10.43)	17.3	11.8%	23.0	9.4
25.0 (30.07-20.03)	16.1	9.9%	23.0	9.9
41.7 (53.23-30.07)	17.8	7.4%	23.7	11.3
83.5 (113.70-53.23)	16.0	7.1%	28.5	14.5

この表にあてられている誤差は、ターゲットチェンバー散乱中性子補正以外の補正に関する誤差に、統計誤差及びサンプル定量誤差が含まれている。実質的には、統計誤差(^{237}Np の)が全誤差を支配している。

結果を示した図中には、NEA data bank 内の EXFOR データファイルから取り出した実験データ及び JENDL3.2、ENDF/B-IV 及び JEF-2 の核データライブラリ評価値をあわせて示している。過去実験データの中で、本研究で対象とした数 10keV 領域で Np の核分裂断面積を測定しているのは、Table 4.3.5 に示す 4 例あるが、Fig.4.3.19 から分かるとおり、今回の実験結果は、Hoffman の結果を再現した結果となった。

一方、Table 4.3.4 に示す通り、今回の測定結果は 16-20 mbarn 程度であるのに対し、ENDF/B-6 及び JEF-2(両者は全く同一)の値は 9.0 -15 mbarn (10 - 100keV)、JENDL3.2 は 23-30 mbarn (10 - 100 keV)である。この結果から、今回の測定結果は評価済み核データファイルの値と比べると、50keV 以下では、JENDL3.2 に近く、83.5keV の 1 点は ENDF/B-6 に近い結果となった。

Table 4.3.5 Reported study for ^{237}Np fission cross section around several 10 keV

Author	reported year	Laboratory (country)	Remarks
Hoffman ⁹	1976	Los Alamos, (USA)	Nuclear explosion
Platterard ¹⁰	1973	Saclay (France)	60 MeV Linac
Perkin ¹¹	1965	Awre Aldermaston, (UK)	Fe filtered beam
White ¹²	1965	Awre Aldermaston, (UK)	p-Li monoenergetic source, relative to ^{235}U

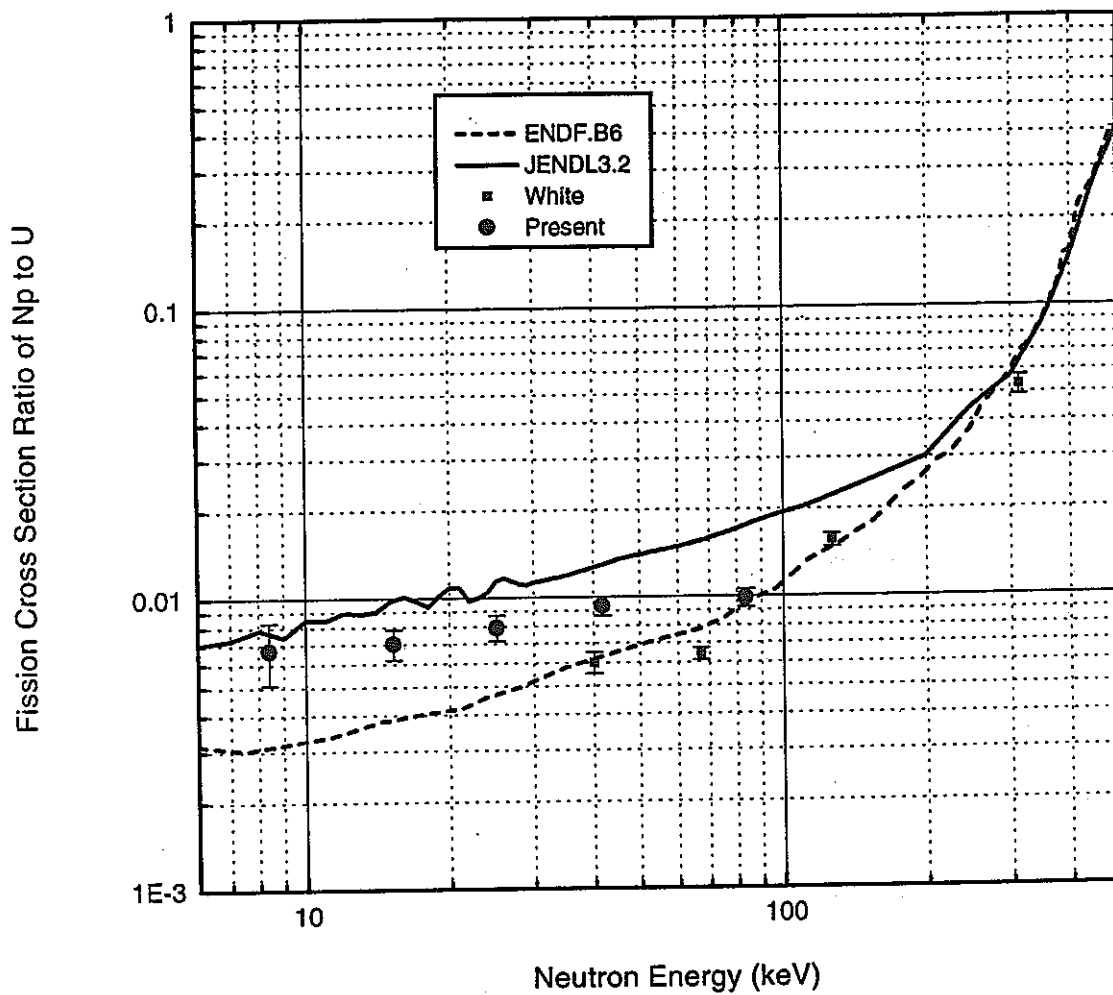


Fig.4.3.18 Experimental result of ^{237}Np fission cross section ratio

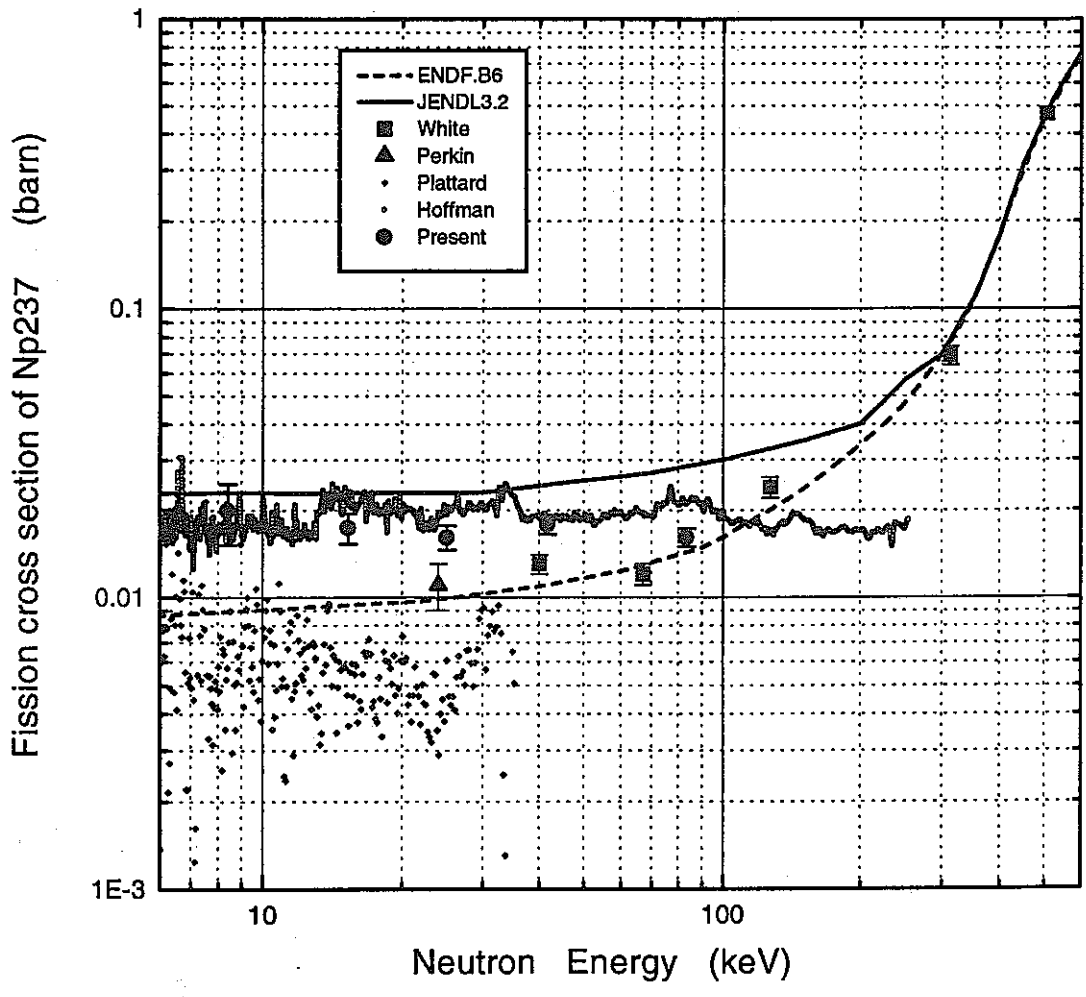


Fig.4.3.19 Experimental result of ^{237}Np fission cross section

4.4 測定Ⅱ(平成9年度)

この節では平成9年度にアルミニウム製小型核分裂計数管を用いて行なった測定(測定Ⅱと称す)について述べる。測定の手法は4-3節に記した測定Ⅰと同一であるため、重複する記述は一部割愛する。

4.4.1 照射

実験配置

実験配置を Fig.4.4.1 に示す。新しく作成したアルミニウム製核分裂検出器は測定Ⅰと同様に Li ターゲットから0度方向 13.2cm の位置に配置した。その他も測定Ⅰと同様である。

測定回路

用いた測定回路は測定Ⅰと同様である。

実験手順

測定は、以下の手順で行われた。ただし、核分裂計数管の TOF 波高レスポンス測定は、核分裂検出器が前回と異なるものの、測定Ⅰと同様な高分解能が容易に予想されるために特に行っていない。

- a)発生中性子エネルギー分布測定 (${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレータ)
- b)ターゲット厚さの確認(${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレータ)
- c)核分裂計数管スペクトルのエネルギー校正
- d)核分裂測定

以上の測定の後、核分裂断面積の測定を実施した。陽子電流は $4.3\sim 6.5\ \mu\text{A}$ 程度で、総測定時間は 20 時間であった。この測定期間中、 BF_3 検出器及びターゲット部入射陽子電流計によりモニターした発生中性子量は安定していた。

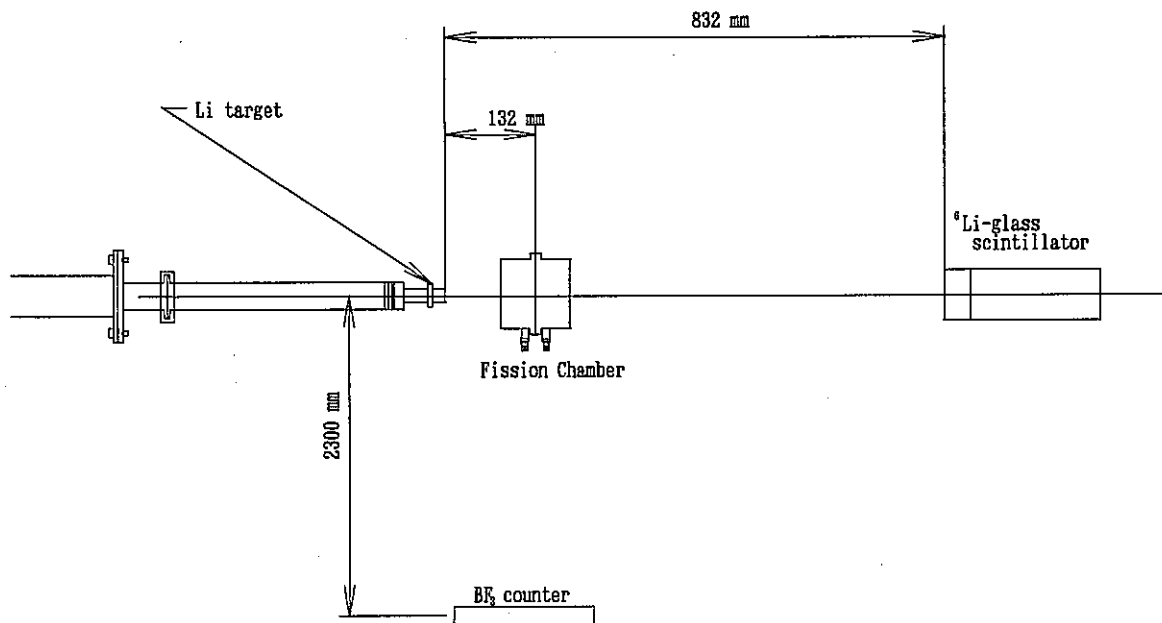


Fig.4.4.1 Experimental Setup

4.4.2 実験結果

発生中性子スペクトル及びエネルギー

Fig.4.4.2 に ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレータにより測定した発生中性子 TOF スペクトルを示す。この結果、最大中性子エネルギーは 120.1keV であった。

ターゲット厚さの測定

陽子エネルギーを 500keV ほど上げて高エネルギー中性子を発生させ、TOF 測定を実施した。この結果、作成したターゲットの厚さは 400 keV であることが分かり、最大中性子エネルギー 120.1keV に対して、“thick target”となっていることを確認した。

核分裂計数管の TOF スペクトル

Fig.4.4.1 の通り核分裂計数管をターゲットから 13.2cm の位置に置き、また鉄板を両者の間に挿入して検出器を Fe 透過スペクトル下に置いて TOF-波高 2 次元データを測定した。Fig.4.4.3 に 2 次元データから TOF 軸に沿って整理して得られる 1 次元 TOF スペクトルを示す。

測定 I と同様な手法により、先に決定された最大中性子エネルギー(120.1keV)をこの TOF スペクトルのピーク半波高チャンネルに対応付けて、TOF チャンネルからエネルギーに換算した(Fig.4.4.3 上)。

また、妥当性を確認するために“dip”(谷)の下位にあるピークのエネルギー 28keV が Fe の共鳴エネルギー位置 28keV とよく一致していることを確かめた (Fig.4.4.3 下)。

核分裂測定結果

以上の測定後、核分裂測定を実施した。測定結果を、Fig.4.4.4 に ${}^{235}\text{U}$ 測定 2 次元スペクトル、Fig.4.4.5 には ${}^{237}\text{Np}$ 測定 2 次元スペクトルを示す。図中の各棒はデータ処理の際に設定したエネルギービンを示している。(詳細は後述)

20 時間の測定の結果得られた核分裂イベント数は、補正前の全計数で、 ${}^{237}\text{Np}$ に対して約 1500 カウント、 ${}^{235}\text{U}$ に対して約 74,000 カウントであった。標準サンプルである ${}^{235}\text{U}$ に対しては 12 万以上のカウント数が得られており、十分な精度が得られている。一方、 ${}^{237}\text{Np}$ は総カウント数で 1500 であり決して多くないものの、統計学上の標準偏差を考えると(3%)、妥当なカウント数は取得できたと考えられる。

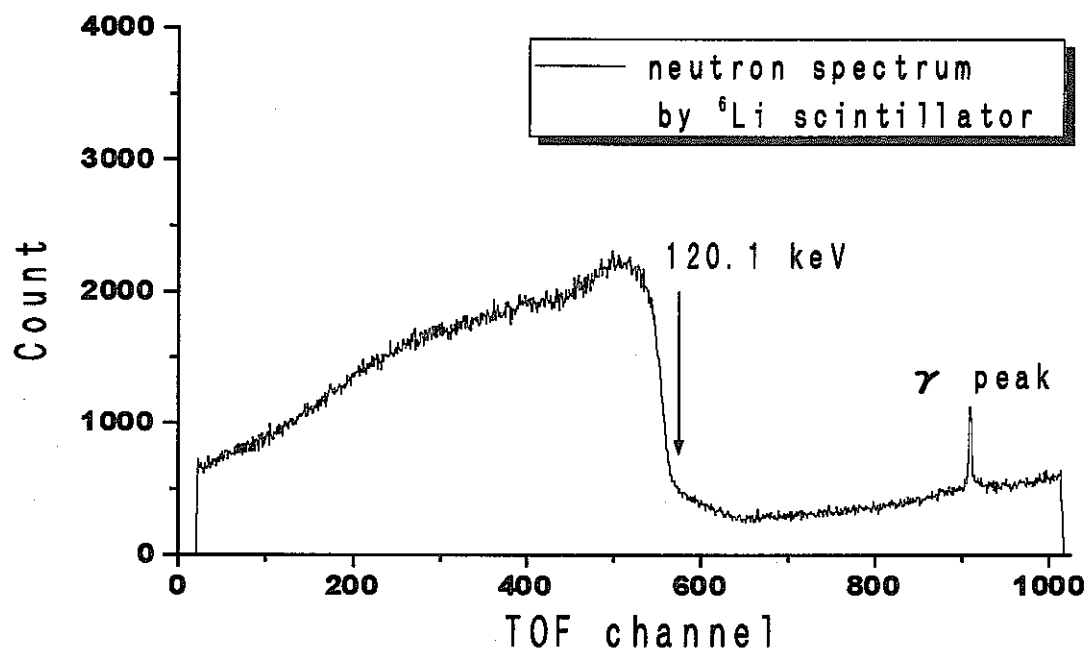


Fig.4.4.2 Neutron spectrum measured by ${}^6\text{Li}$ -glass scintillator

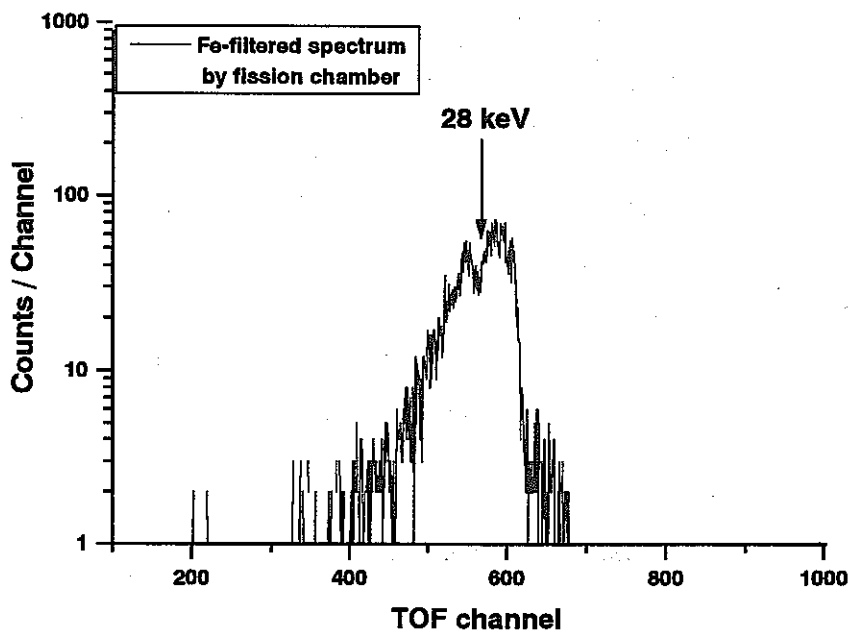
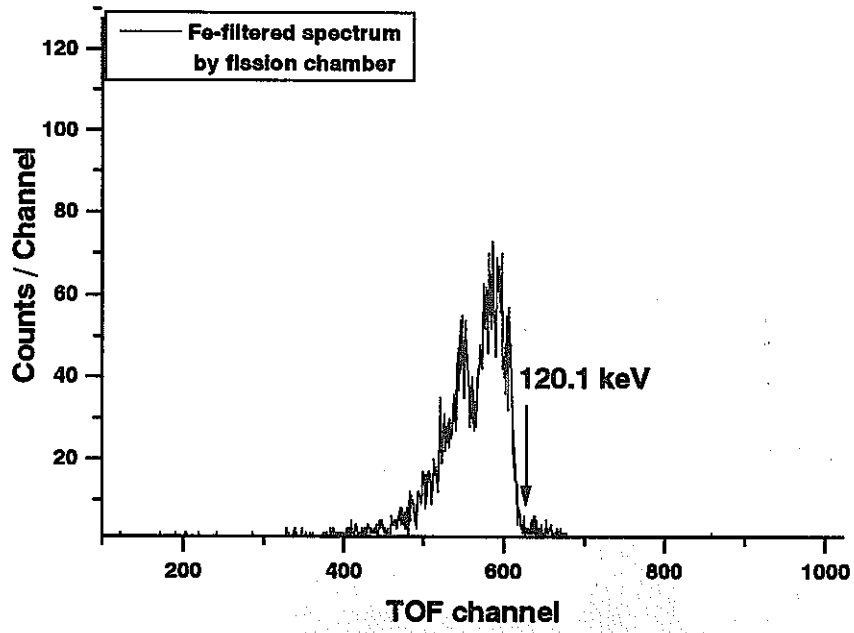


Fig.4.4.3 Fe filtered spectrum by Fission Chamber

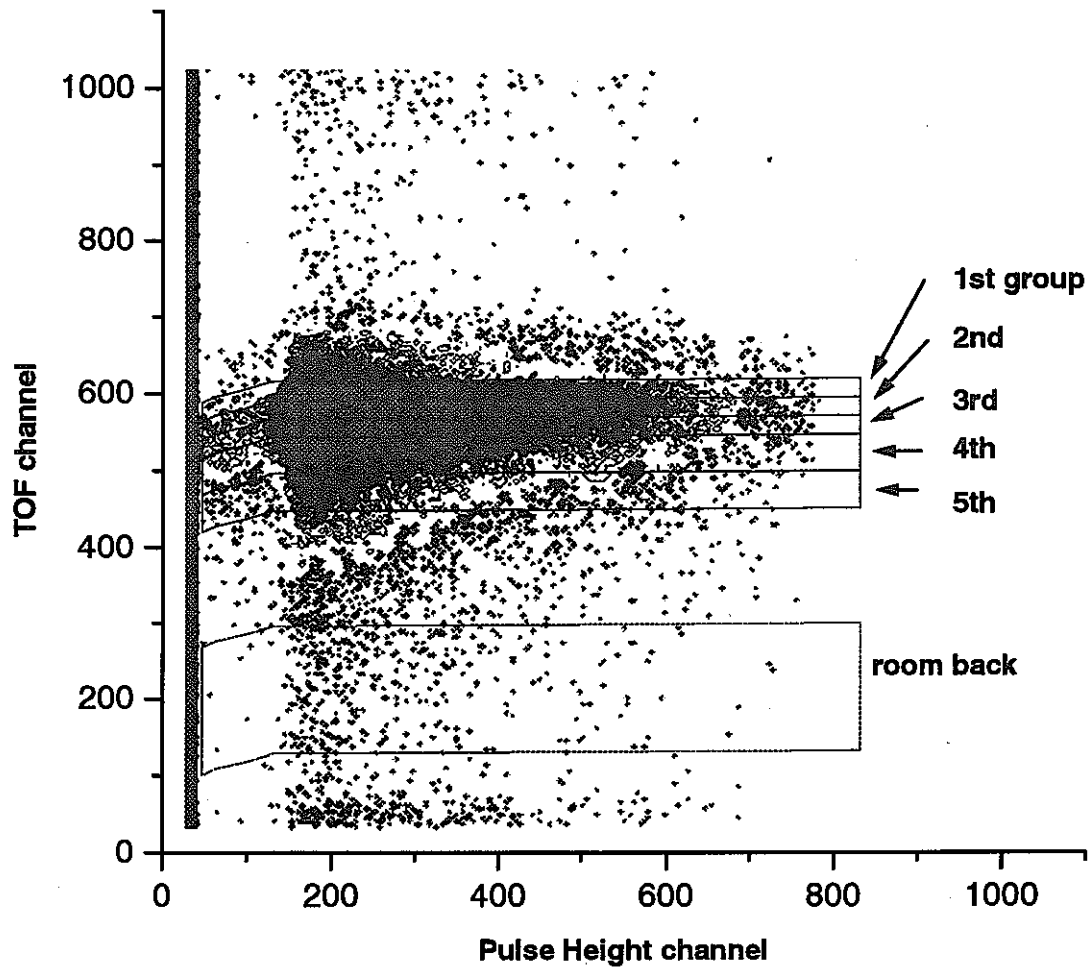


Fig.4.4.4 Measured 2-dimentional spectrum for ²³⁵U sample

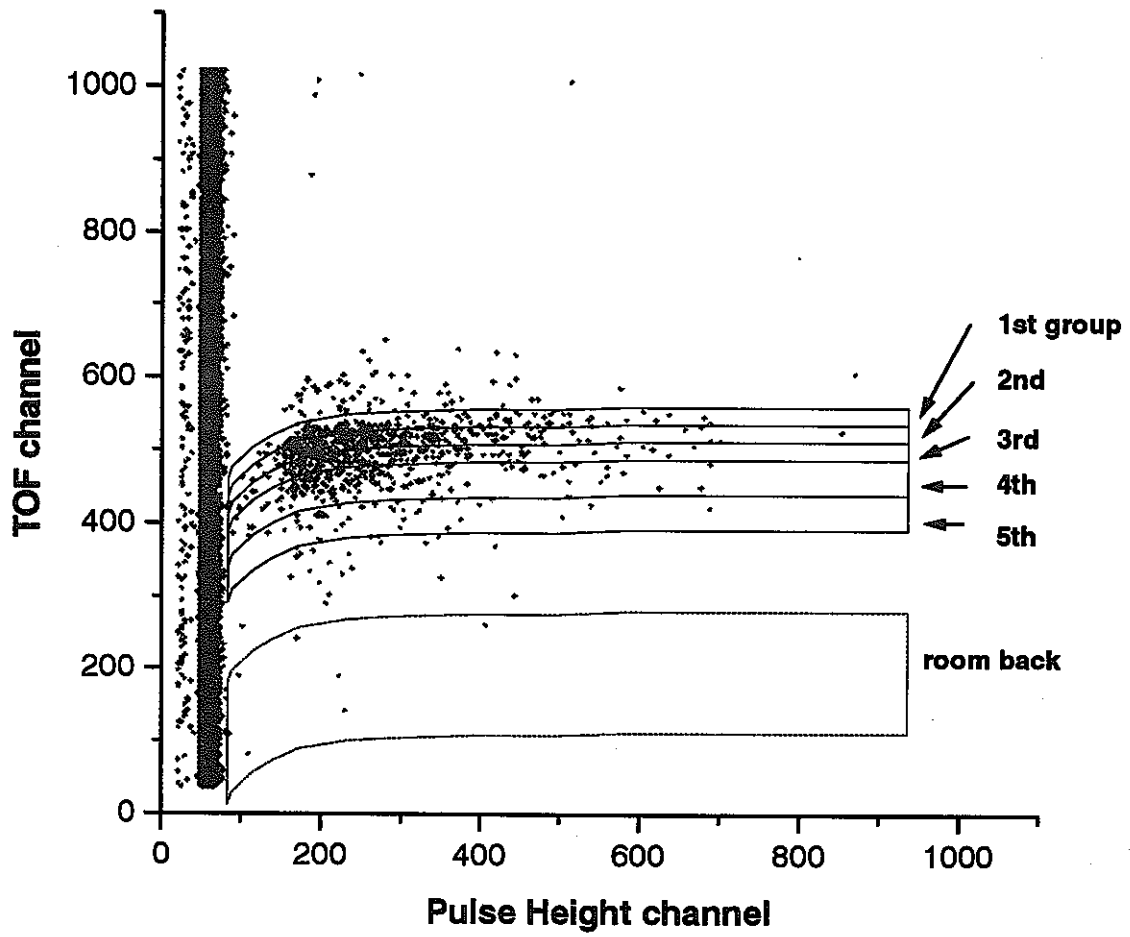


Fig.4.4.5 Measured 2-dimensional spectrum for ^{237}Np sample

4.4.3 データ処理

測定Ⅱで得られたデータについて、測定Ⅰと同様な処理を行なった。

エネルギービンの決定

TOF-波高 2 次元分布において、核分裂収量と統計誤差の兼ね合いから Table 4.4.1 のようにエネルギービンを設定した。ただし、測定Ⅰと比較するとほぼ同様なエネルギー領域のビンとなっているが、最高中性子エネルギーの違いなどから正確に一致はしていない。

Table 4.4.1 Energy bins

Energy Bin	High Energy (keV)	Low Energy (keV)	Center (keV)
#1	120.10	53.23	86.7
#2	53.23	30.07	41.7
#3	30.07	20.03	25.1
#4	20.03	10.43	15.2
#5	10.43	6.38	8.4

ゼロ波高への外挿

α 事象の影響を受けていないと考えられる部分の波高スペクトルを指数関数で最小自乗フィッティングを行い、これをパルサーにより調べたゼロ波高まで外挿を行って α 事象に埋もれている成分の量を推定した。

Fig.4.4.6 には ^{235}U に対するフィッティング対象領域の波高分布、フィットされた関数並びに外挿した関数を示した。今回の測定では α 事象との分離が比較的良好であったために補正量は測定Ⅰに比べて小さく、 ^{235}U に対して 0.8%、 ^{237}Np に対しては 1.0%であった。なお、この補正量は、どのエネルギービンでも同じであった。

自己吸収の補正

サンプルは測定Ⅰで使用したものと同一であることから、自己吸収割合Ⅰは ^{237}Np 、 ^{235}U でそれぞれ 1.4%、0.75%である。

室内散乱中性子の補正

この補正の大きさは、エネルギービンによって変わる。フォアグラウンド事象の多いビンでは 0.6%、少ないビンでは 5.4%程度であった。なお、サンプルの種類(^{237}Np 及び ^{235}U)によって補正量には差はなかった。

サンプル内不純物核種の補正

測定Ⅰと同様に高純度サンプルであることから補正は行なわなかった。

ターゲット-チェンバー散乱中性子の補正

測定 I と同様に、モンテカルロコード"MCNP4A"を用いて補正計算を実施した。なお、MCNP の計算に必要となる中性子源スペクトルは、本研究で作成した Li(p,n)中性子源シミュレーションコード " NESTL" を用いて作成した。

MCNP 計算によって得られた二つのフォイル位置での中性子束スペクトルを Fig.4.4.7 に示す。検出器本体による中性子スペクトルの歪みは測定 I での結果と比較して相当改善されている。また、検出器なし(ソーススペクトルそのもの)の場合に対する検出器有り(散乱を含んだスペクトル)の場合の核分裂数の比を Table 4.4.2 に示す。この表中にはそれぞれのサンプルについて、ターゲット側を向いたとき及び反対側を向いたときの 2 パターンずつ記してある。測定 I では、散乱中性子による影響が最も大きいビンにおいて 70%程度の核分裂増加が見られたが、今回の測定では最大で14.1%の増加に抑えられている。

前にも述べたように、本研究では Back-to-Back 型の測定を行なっているためこれらは相殺する。この計算結果を用いて導出した核分裂比に対する補正量は、エネルギービンにより変わるものの、最大で 0.65%であった。

Table 4.4.2 Calculation result by MCNP4A

Energy Bin	Np		U	
	Np- target side	U- target side	U- target side	Np- target side
#1 (120.10-53.23 keV)	1.14	1.10	1.14	1.11
#2 (53.23-30.07 keV)	1.18	1.06	1.19	1.07
#3 (30.07-20.03 keV)	1.06	1.03	1.06	1.03
#4 (20.03-10.43 keV)	1.00	1.01	1.00	1.02
#5 (10.43-6.38 keV)	1.10	1.17	1.10	1.17

補正量のまとめ

以上の補正操作による、核分裂比に対する補正量を項目ごとにまとめると Table 4.4.3 のようになる。相対測定であることから、いずれの項目でも U, Np での計数補正が相殺しており、小さな量となっている。総補正量は最大のビンで -3.27%となった。また、測定 I と比較して外挿による補正量がかなり小さかったため、総補正量は比較的小さな値となった。

Table 4.4.3 Correction

Collection Energy Bin	Extrapolation (%)	Self-absorption(%)	Room-back neutron (%)	Scattered neutron(%)	total (%)
#1 (120.10-53.23 keV)	+ 0.20	+ 0.66	- 0.47	+ 0.27	+ 0.65
#2 (53.23-30.07 keV)	+ 0.20	+ 0.66	- 0.28	+ 0.66	+ 1.24
#3 (30.07-20.03 keV)	+ 0.20	+ 0.66	- 0.41	- 0.24	+ 0.20
#4 (20.03-10.43 keV)	+ 0.20	+ 0.66	- 1.02	+ 0.25	+ 0.07
#5 (10.43-6.38 keV)	+ 0.20	+ 0.66	- 4.09	+ 0.00	- 3.27

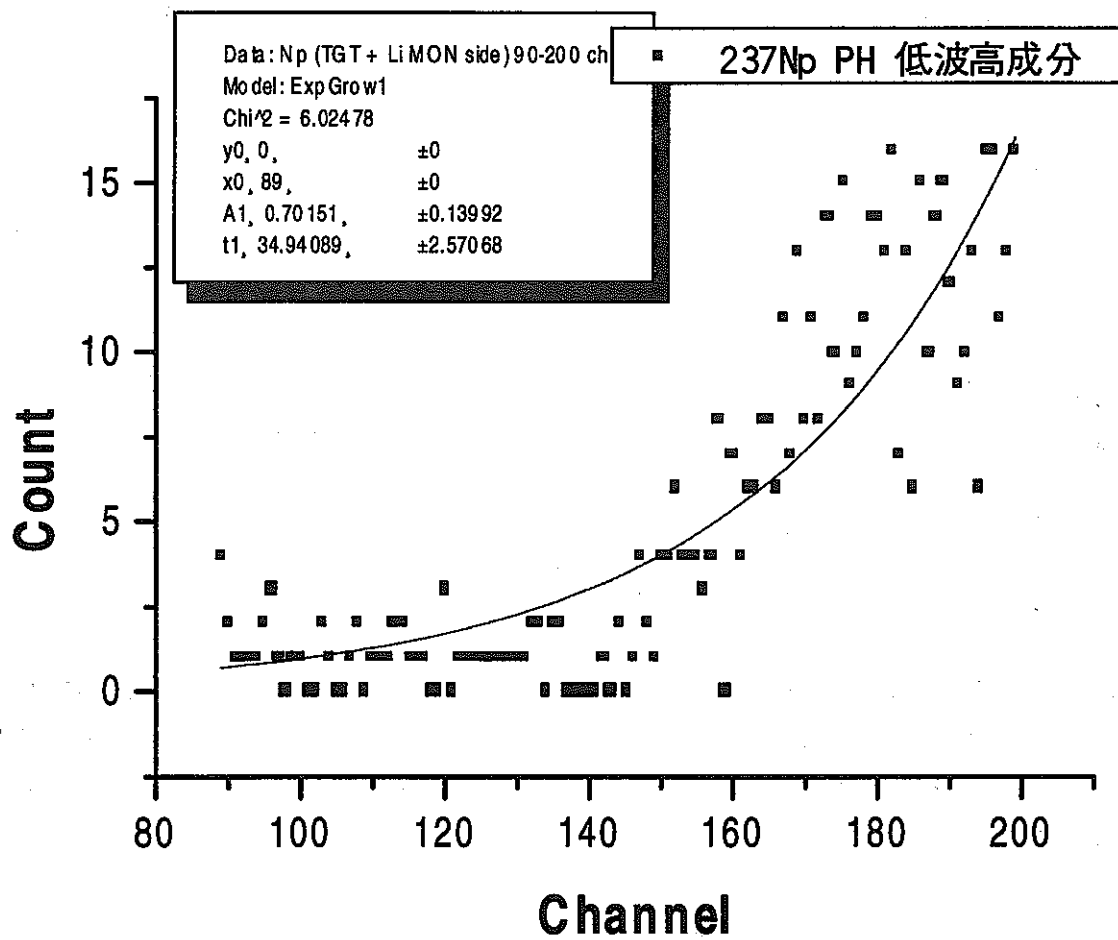


Fig.4.4.6 Pulse height Spectrum and fitted Curve for extrapolation

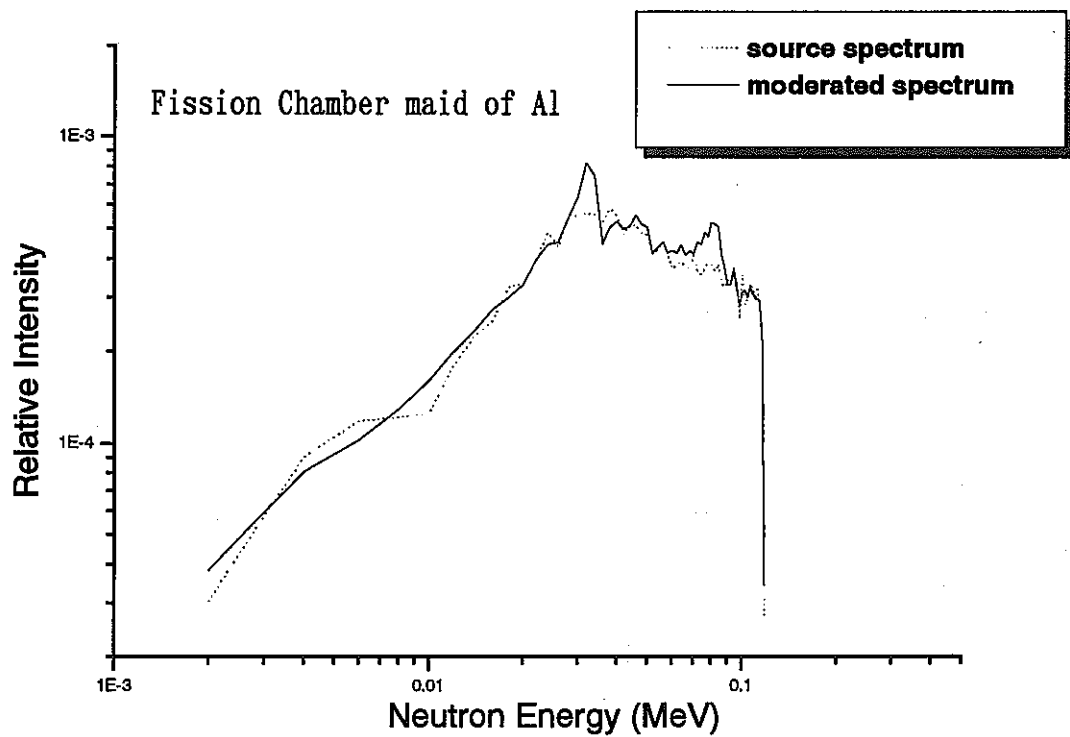


Fig.4.4.7 Calculated neutron spectrum at sample foils by MCNP4A

4.4.4 結果

前節の補正を行なった後に得られた核分裂断面積比を測定 I の結果とともに Fig.4.4.8 に示す。なお、エネルギー軸の誤差はエネルギービンの幅に対応している。

この図から最大のエネルギービン以外の 4 点については非常に良好な再現性を示していることが分かる。測定 I に比べ今回の測定 II において、最大のエネルギービンで約 20%低い値となっている原因としては、このエネルギー領域の中性子が照射中にシフトした可能性も考えられる。このエネルギービンはエネルギー幅が他のビンに比べ広いことから、入射する最大中性子エネルギーは変化せずとも、スペクトルの形状の変化による影響を受けやすい。実際、分割して行なっている今回の照射それぞれを比較したところ、最大中性子エネルギー付近のスペクトル形状に若干の変化が生じていたことが分かったため、今回の最大エネルギービンでの値は参考値とすることにする。

JENDL3.2 の ^{235}U 断面積を用いて導出した ^{237}Np 核分裂断面積を Table 4.4.4 に示す。なお、断面積比および断面積が平坦な形状であることから、各ビンのエネルギーとして中央値を用いた。

Table 4.4.4 Experimental result of ^{237}Np fission cross section measurement II

En (keV)	Present measurement II (mb)	Present %Error	JENDL3.2 (mb)	ENDF/B-6 & JEF-2 (mb)
8.4 (10.43-6.37)	22.5	24.8	23.0	8.8
15.2 (20.03-10.43)	20.2	11.3	23.0	9.4
25.0 (30.07-20.03)	16.8	9.7	23.0	9.9
41.7 (53.23-30.07)	18.2	8.2	23.7	11.3
86.7 (120.1-53.23)	(12.3)*	10.6	28.4	14.3

*reference value

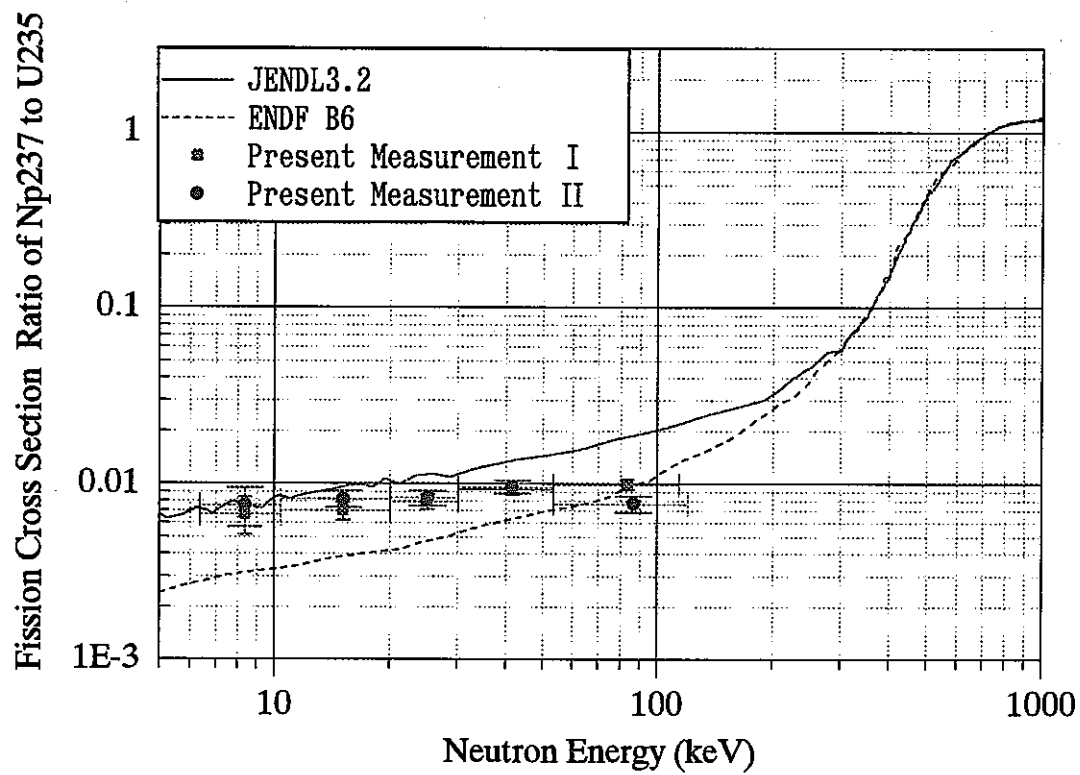


Fig.4.4.8 Experimental result of $^{237}\text{Np} / ^{235}\text{U}$ fission cross section ratio

4.5 ^{237}Np 核分裂反応断面積測定のとめ

以上の測定 I 及び測定 II で得られた断面積比はおおむね良好な一致を示した。本研究での ^{237}Np 核分裂断面積測定では、この 2 測定の平均値をもって最終結果とする。ただし前節で述べたように測定 II の最大エネルギービンの断面積値は参考値とし結果には含めていない。導出された断面積値および実験誤差を Table 4.5.1 に示す。また、プロットしたものを Fig.4.5.1 に示す。

Table 4.5.1 Experimental result of ^{237}Np fission cross section measurement

En (keV)	Present (mb)	Present Error	JENDL3.2	ENDF/B-6 & JEF-2
8.4 (10.43-6.37)	21.2	34.3 %	23.0	8.8
15.2 (20.03-10.43)	18.8	16.3 %	23.0	9.4
25.0 (30.07-20.03)	16.5	13.9 %	23.0	9.9
41.7 (53.23-30.07)	18.0	11.0 %	23.7	11.3
83.5 (113.70-53.23)	16.1	7.1 %	28.5	14.5

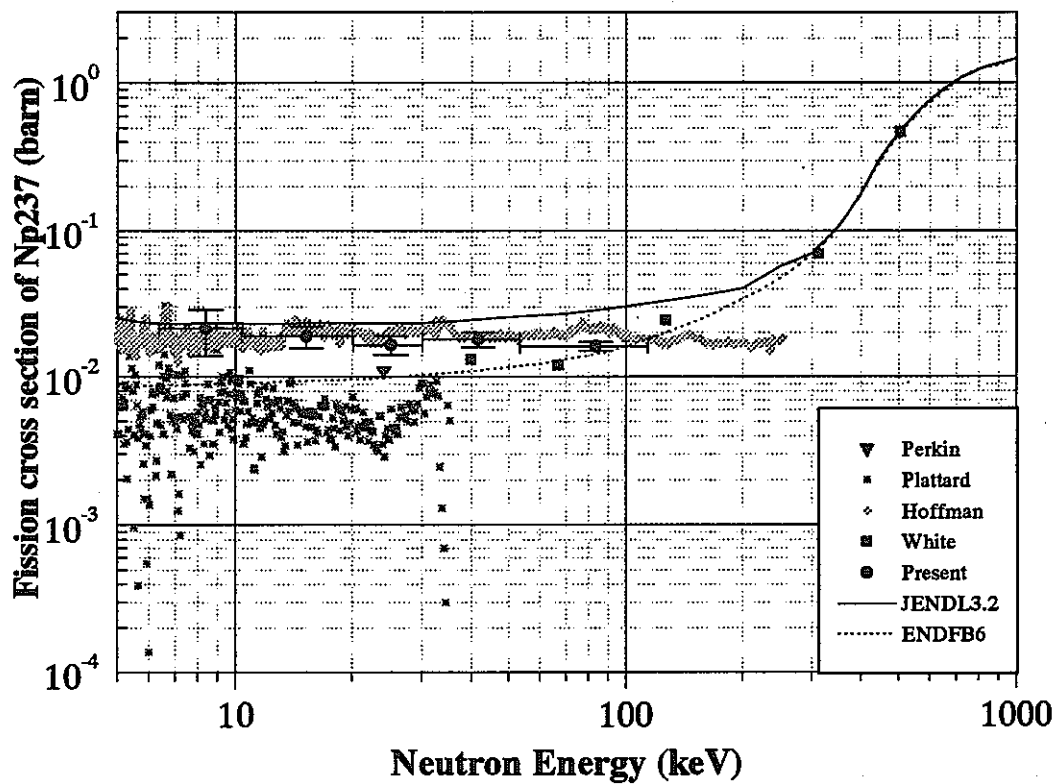


Fig.4.4.9 Experimental result of ^{237}Np fission cross section

5 ^{241}Am , ^{243}Am のスペクトル平均核分裂断面積測定

5.1 はじめに

本研究施設では放射性物質の管理上、利用可能な試料の放射能が $100\ \mu\text{Ci}$ 以下に制限されており、導入できる $^{241,243}\text{Am}$ 試料量は限られている。試料の定量の項(3章)でも述べたように、 $^{241,243}\text{Am}$ の量は ^{237}Np 試料と比較して、数 10keV 領域において同程度の反応断面積を持つ割に試料量が 10 分の 1 以下であり、測定は困難なことが予想される。

そこで、比較的大強度の中性子フラックスが得られる $^7\text{Li}(p,n)$ 反応による、Maxwell 型中性子源 ($kT=25.3\text{keV}$) の開発を行ない、これを用いて ^{235}U を基準とする相対測定を行なう。この測定からは Maxwell 型スペクトル平均の核分裂断面積比を得ることができる。

最初に手法の妥当性を確認するために ^{237}Np の測定を行ない、4.5 に示した過去の結果と比較する。次に $^{241,243}\text{Am}$ 反応断面積測定についての測定を行なう。

5.2 測定原理

【Maxwell 型スペクトル平均の反応断面積】

一般的に、広範なエネルギースペクトルを持つ中性子を用いて測定を行なう場合に得られる結果は、このスペクトル領域での断面積変化を含んだものとなる。本研究のように Maxwell 型連続中性子を用いて測定を行なう場合、Maxwell 平均断面積 σ_{Max} は次の式で定義される。

$$\sigma_{MaxE} = \frac{\int \phi_{Max}(E_n) \cdot \sigma(E_n) dE_n}{\int \phi_{Max}(E_n) dE_n}$$

$\phi_{Max}(E_n)$: Maxwell型中性子スペクトル

このとき相対測定を行なって得られる断面積比は次のようになる。

$$R = \frac{\sigma_{Max-X}}{\sigma_{Max-S}} = \frac{N_s}{N_x} \cdot \frac{C_s}{C_x}$$

σ_{Max} : Maxwell平均核分裂断面積
 C : 規格化された核分裂数
 N : サンプル原子数
 X, S : それぞれ目的核種、参照核種

さらに、導出された断面積のエネルギー軸上の位置を与えるのものとして、次の式のように、中性子スペクトルを考慮して Maxwell 平均エネルギーを定義する。

$$E_{Max} = \frac{\int E_n \cdot \phi_{Max}(E_n) dE_n}{\int \phi_{Max}(E_n) dE_n}$$

E_{Max} : Maxwell平均エネルギー

また、測定においては、室内散乱中性子や α 線、自発核分裂などのバックグラウンド成分の寄与を小さくし、かつ正確な評価が行なえるようパルス中性子を用いた飛行時間法を利用する。

【核分裂検出器】

核分裂検出器には、第4章で行なった ^{237}Np の測定Ⅱで用いたアルミニウム製の小型核分裂検出器を用いる。前述したようにこの検出器は、測定Ⅰで用いたSUS304製のものより散乱中性子による影響が抑えられている。

【核分裂試料の組成と定量】

使用する ^{235}U 、 ^{241}Am 、 ^{243}Am 試料は第3章で述べたように、厚さ0.3mm、直径36mmのPtバックキングの中心に直径25mmで酸化物として電着されている。

5.3 実験

5.3.1 数10keV領域の中性子源の開発

測定に必要な数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Maxwell型スペクトル中性子を利用した研究例

数10keV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、 ${}^7\text{Li}(p,n)$ 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粒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.5.3.1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。この分布を持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^{13,14,15,16}。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^{17,18}。

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持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応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

・ ${}^7\text{Li}$ 中での陽子エネルギー損失

このコードのフローチャートをFig.5.3.2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。このとき、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おり、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¹⁹。 ${}^7\text{Li}(p,n)$ 反応断面積は、アメリカのOak Ridge国立研究所のMacklin²⁰らのものを用いた。この反応断面積はFig.5.3.3に示すように精度良く測定されており、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、 ${}^7\text{Li}$ 中での陽子のエネルギー損失データとしてJ.F.Janniによる実験値に基づいたもの²¹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.5.3.4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示したものである。この図から陽子エネルギーを変えることにより容易に中性子エネルギースペクトルを変えることができることが確認できる。陽子エネルギーを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。

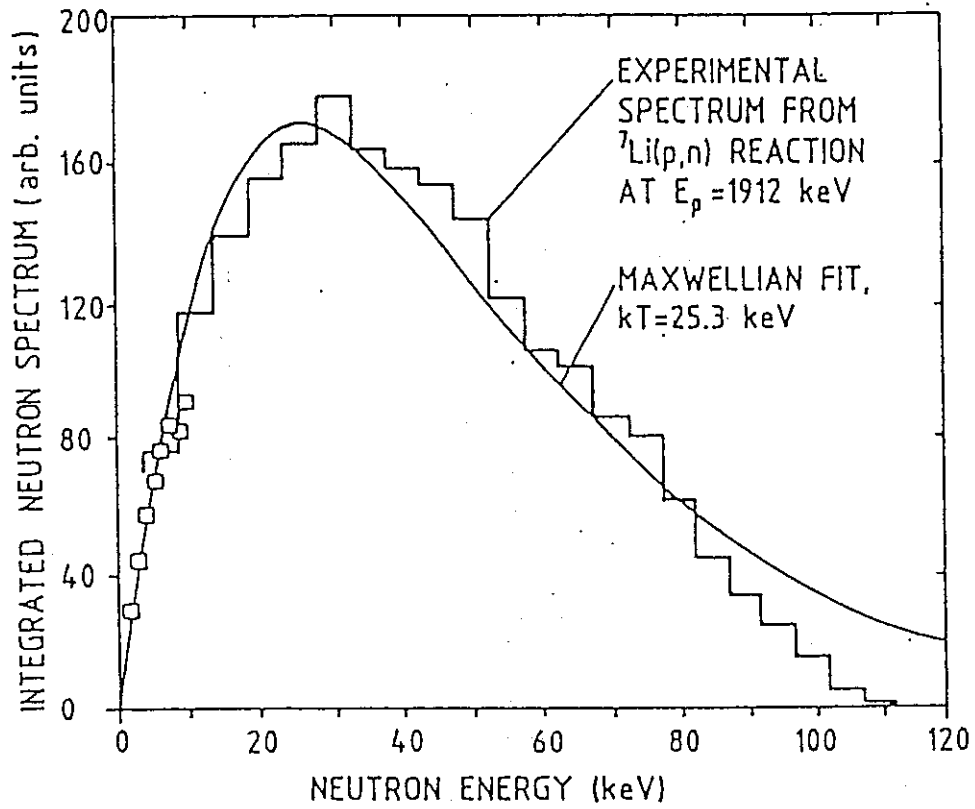


Fig.5.3.1 Neutron spectrum of quasi-Maxwell distribution from Li(p,n) reaction

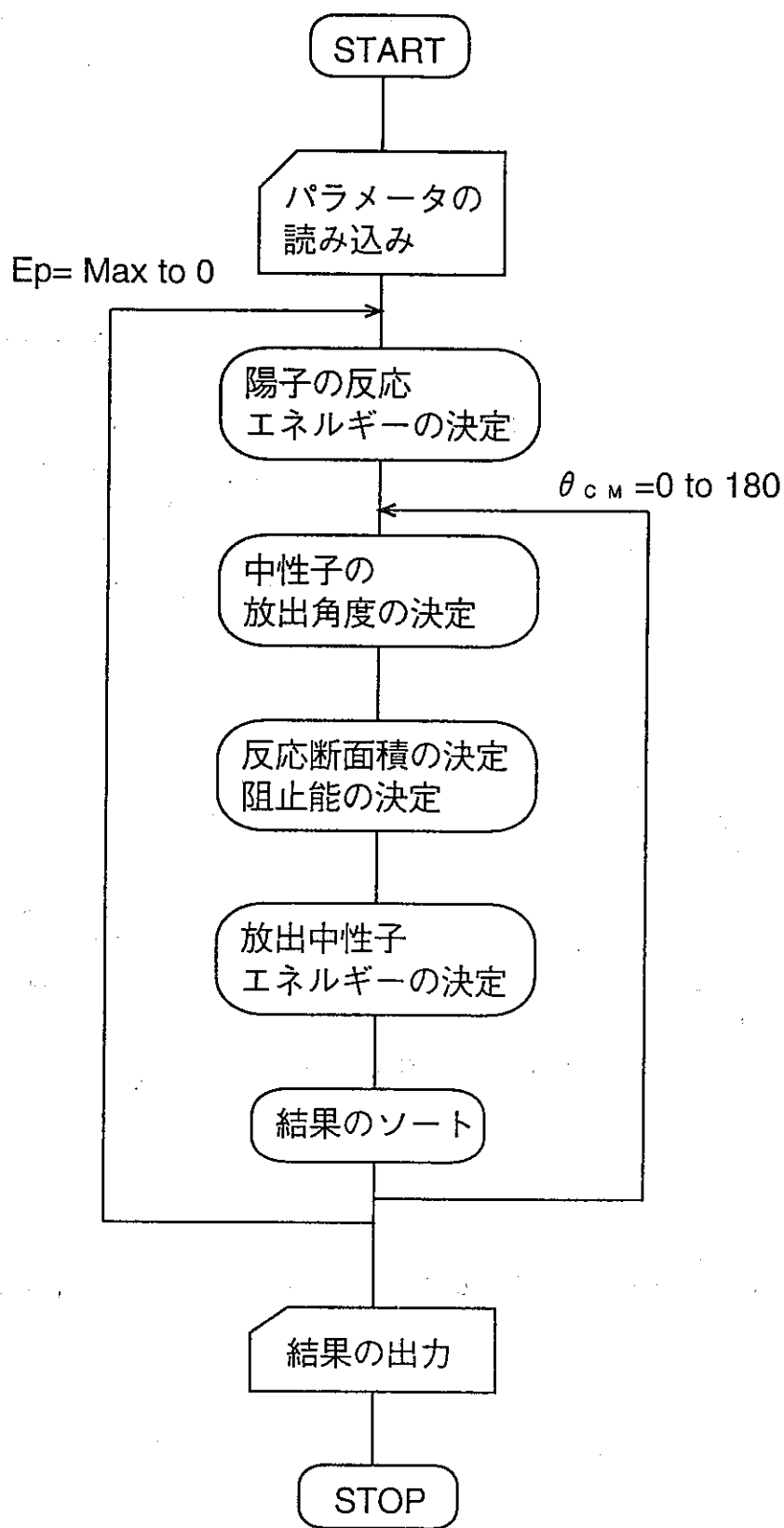


Fig.5.3.2 Flow chart of NESTL

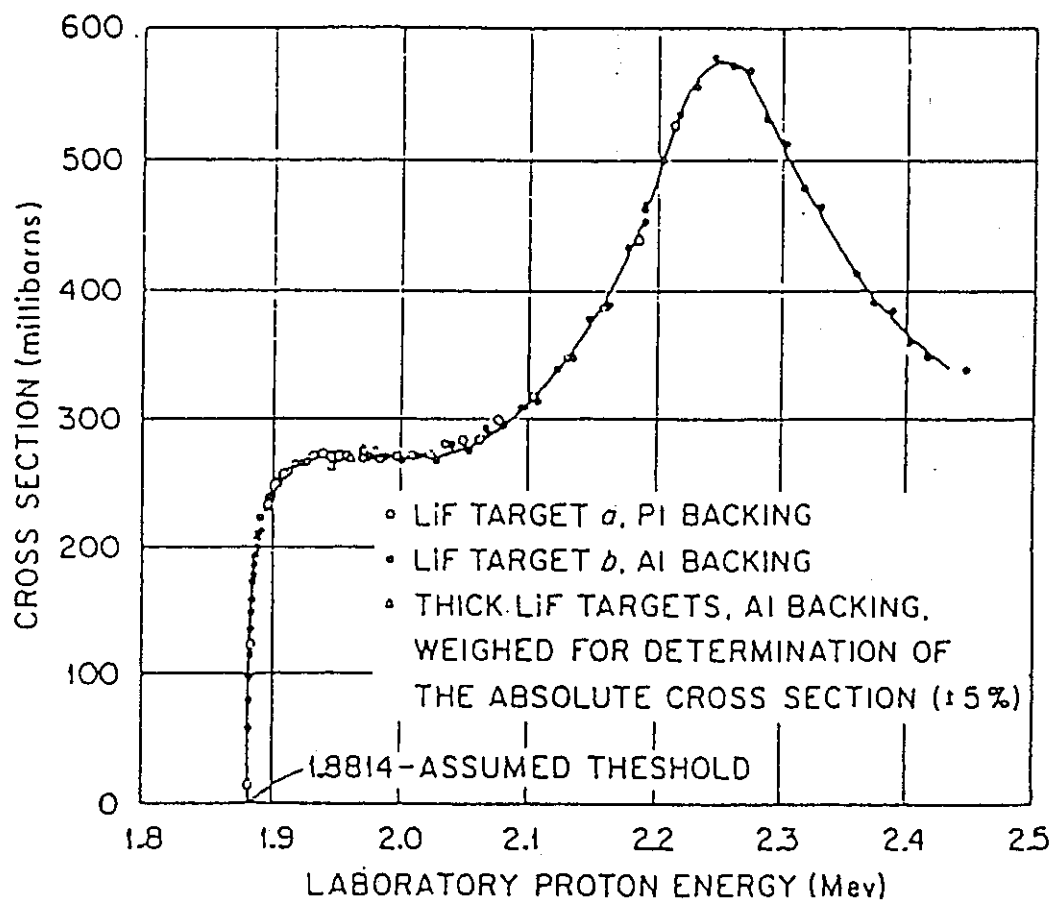


Fig.5.3.3 Cross section of Li(p,n) reaction

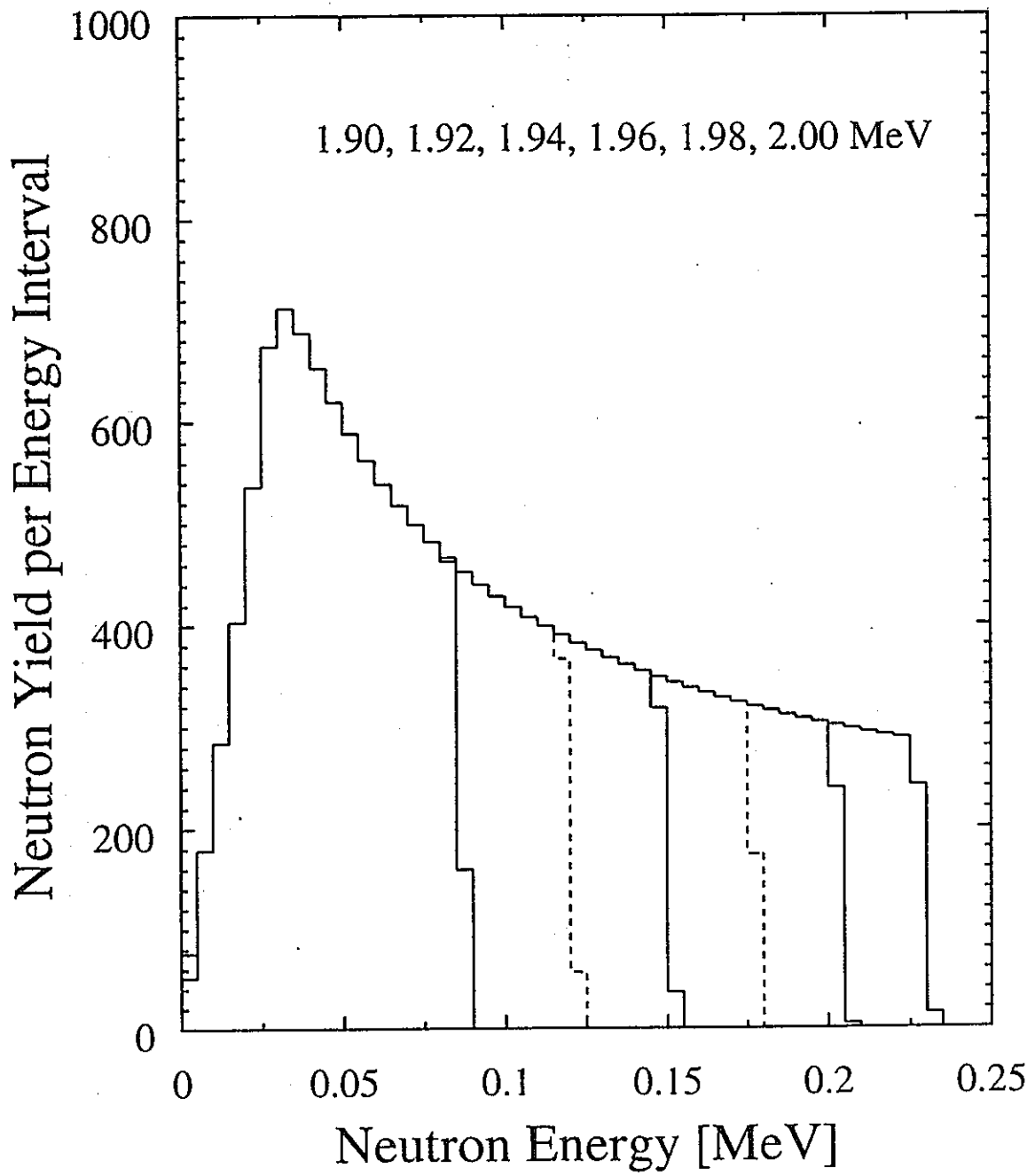


Fig.5.3.4 Neutron distribution from Li-thick target

5.3.2 測定

(A) 概要

実験は東北大学工学部高速中性子実験室で行った。 ${}^7\text{Li}(p,n)$ 反応を用いて $kT=25.3\text{keV}$ の Maxwell 型中性子を発生させ、核分裂検出器内に密封された試料の核分裂計数を飛行時間法 (TOF 法) と波高との 2 次元測定を行なった。

測定の内容として、まず本手法の妥当性を確認するために ${}^{237}\text{Np}$ の照射を行ない、既に前章で述べた背中合わせ型電離箱を用いた測定によって与えられた ${}^{237}\text{Np}$ の核分裂断面積 ($8\text{keV} < E_n < 100\text{keV}$ での 5 点) との整合性を検証する。次に本研究の目的核種である、 ${}^{241}\text{Am}$ 、 ${}^{243}\text{Am}$ の照射を行ない、核分裂断面積比を測定する。以下に照射グループとしてまとめる。

照射グループ

- ${}^{237}\text{Np}$ (参照核種 ${}^{235}\text{U}$)
- ${}^{241}\text{Am}$ (参照核種 ${}^{235}\text{U}$)
- ${}^{243}\text{Am}$ (参照核種 ${}^{235}\text{U}$)

これら各々の照射グループはそれぞれ、測定対象核種と参照核種の照射のペアで構成されている。なお、 ${}^{241}\text{Am}$ 、 ${}^{243}\text{Am}$ は断面積が非常に小さいため、測定は長時間となる。そのため中性子ビーム変動の影響を受けないように照射時間を分割して、その都度目的核種と参照核種の交換を行なうようにした。

(B) 実験配置

実験配置を Fig.5.3.5 に示す。測定対象核種、参照核種は先に記した検出器 1 つにつき1核種ずつ密封した。核分裂検出器の位置は Maxwell 型中性子源から 60 度コーン状に発生する中性子が直径 25mm のサンプル位置に収まるように、ターゲットから 3.0mm とした。この場合、検出器位置がターゲットから至近距離であるため、核種の交換時での検出器位置の正確を期するために専用の取り付けアームを製作した。これを Fig.5.3.6 に示す。検出器は薄いアルミニウム板に取り付けられた後、ビーム輸送管に固定されたアルミニウム製取り付けアームのスリット部に差し込まれるようになっており、試料の交換が正確かつ容易に行なえる。アームは実験の最初に、検出器中心がビーム軸上にくるように調整ネジを使ってあらかじめ調整しておく。なお、照射間の計数の規格化のために斜め後方に BF_3 検出器を設置した。また、照射中性子の 0 度方向スペクトルを確認するために、核分裂検出器の後方に $^6\text{Li-glass}$ シンチレーターを設置した。

なお、実験回路は 4.3、4.4 と同様である。Fig.5.3.7 に示すような回路を参照核種用と測定対象核種用にそれぞれ 1 セットずつ準備した。

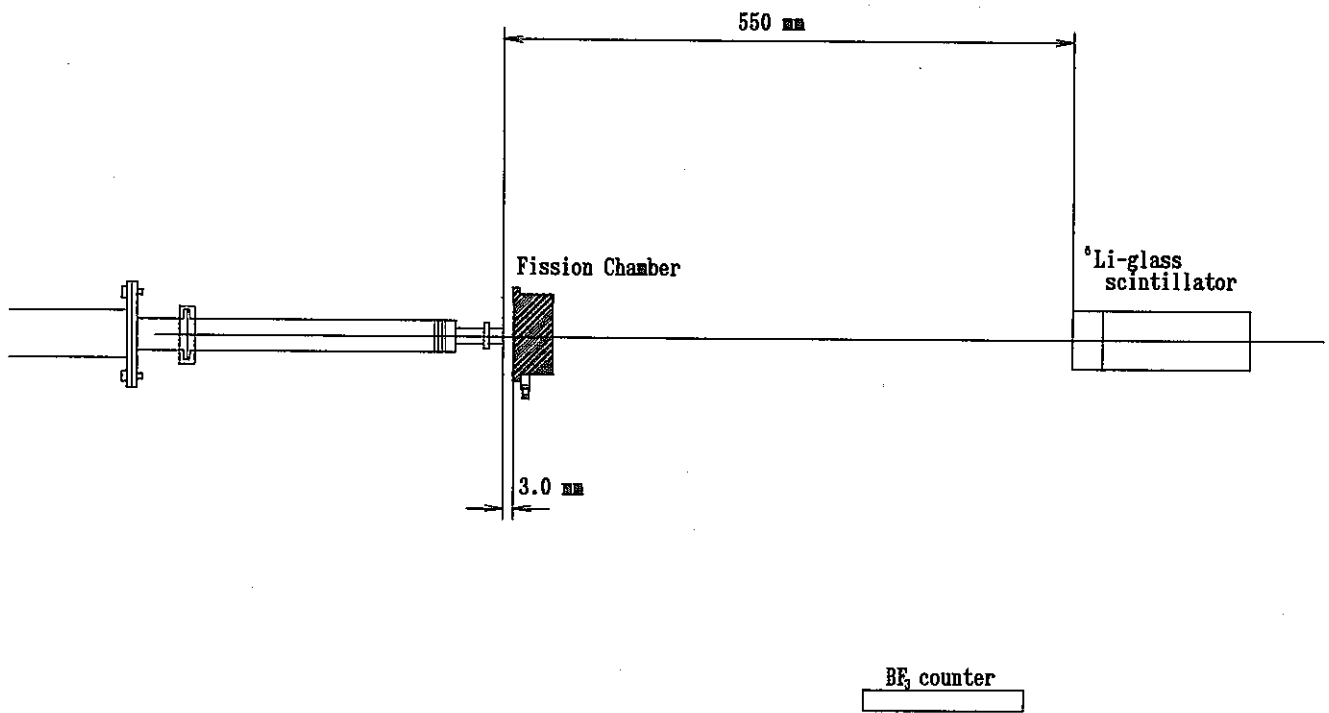


Fig. 5.3.5 Experimental Setup

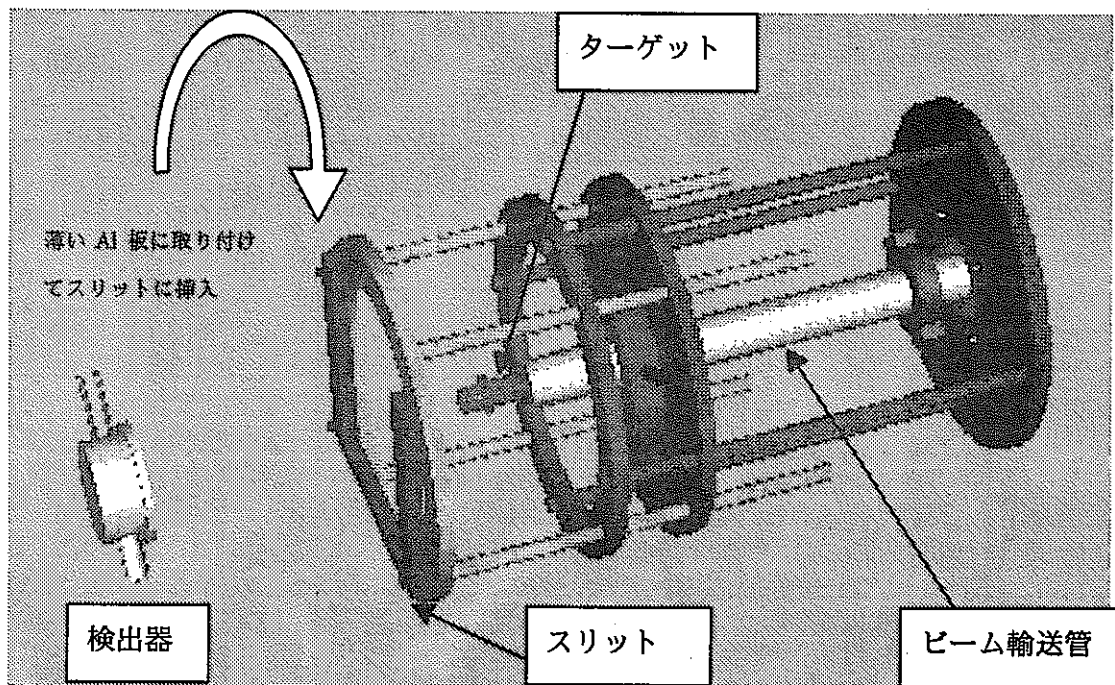
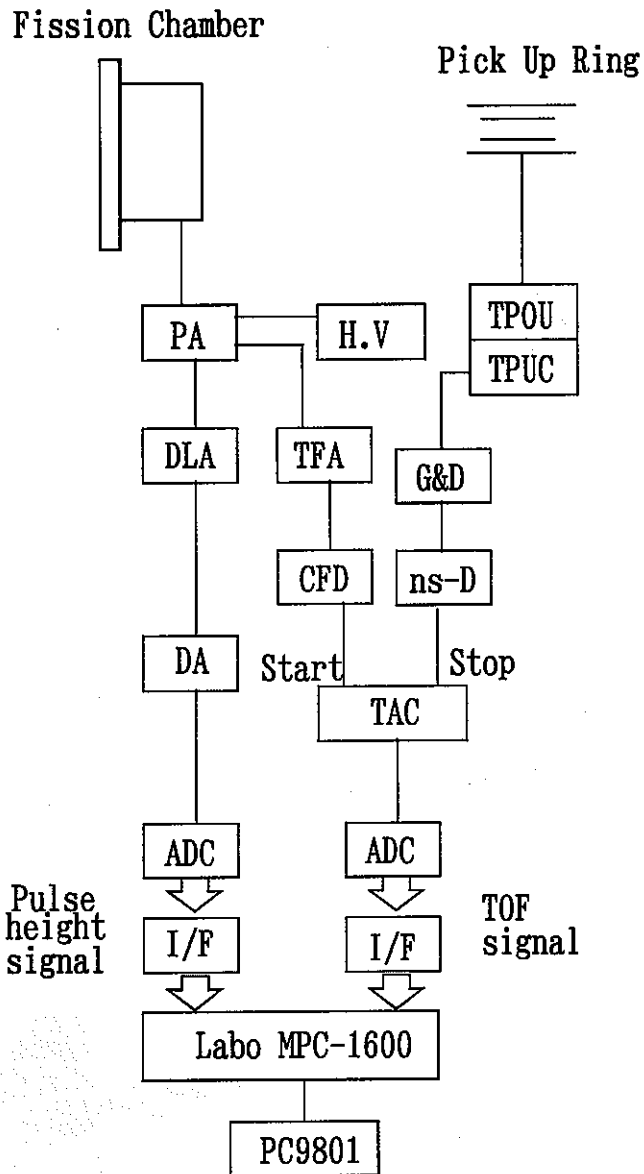


Fig. 5.3.6 Arm for setting of Fission Chamber



- | | |
|------|----------------------------------|
| HV | :High Voltage Power Supply |
| PA | :Pre Amplifier |
| DLA | :Delay Line Amplifier |
| G&D | :Gate and Delay |
| TFA | :Timing filter Amplifier |
| CFD | :Constant Fraction Discriminator |
| TAC | :Time to Amplitude Converter |
| DA | :Delay Amplifier |
| ns-D | :nano-sec Delay |
| TPOU | :Time Pick Off Unit |
| TPUC | :Time Pick Off Controller |
| ADC | :Analog to Digital Converter |

Fig. 5.3.7 Electronics of Fission Chamber

5.3.3 実験手順

この節では実験の詳細を進行に沿って述べる。

(A) ターゲット厚さの確認

蒸着したターゲットの厚さを秤などを用いて測定することは不可能であるが、ターゲットに高エネルギーのビームを入射させ、中性子スペクトルの上限値と下限値の差を測定すれば蒸着層の厚さを知ることができる。これは蒸着層の表面で発生した中性子と、最深部で発生した中性子のエネルギーの差が、蒸着層厚さの阻止能の積分に相当するためである。

この方法により、ビームの加速エネルギーをしきい値から 500keV 程度上昇させて、 ${}^6\text{Li}$ -glass シンチレーターを用いて TOF 法によりターゲット厚さの確認を行なった。結果を Fig.5.3.8 に示す。この測定からターゲット厚さは約 300keV と十分厚いことが確認された。

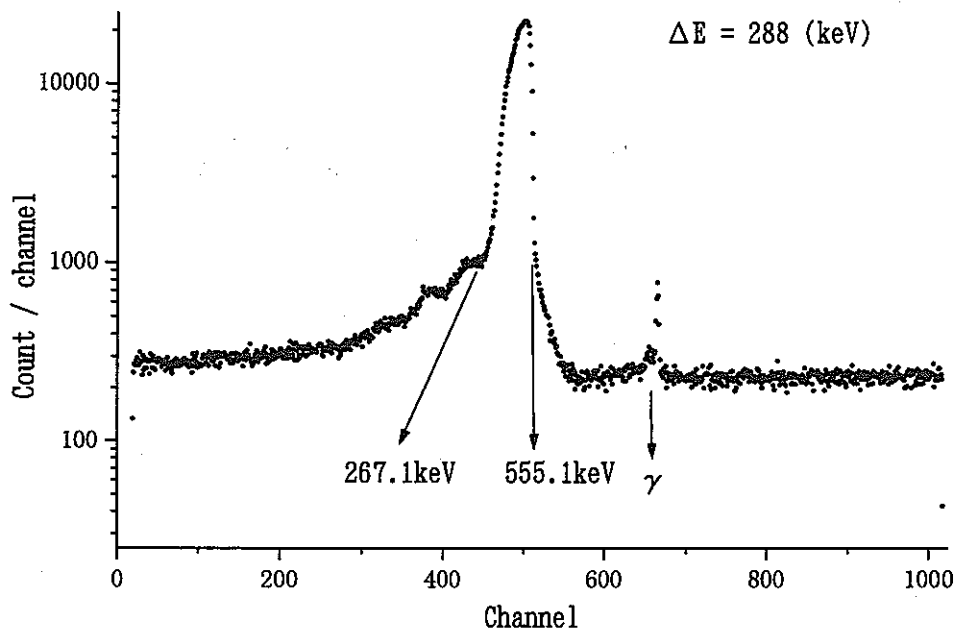


Fig. 5.3.8 Measurement of Target thickness by using high energy proton

(B) 加速エネルギー調整

Maxwell 型中性子を発生させるためには加速器電圧のコースポテンシオメータ(C.P)、ファインポテンシオメータ (F.P.)を操作して、陽子の加速エネルギーを正確に 1.912MeV に調整しなくてはならない。

そのために BF_3 検出器をビーム軸 0 度方向に配置し、加速器の高圧を徐々に上昇させ、中性子の発生が始まるしきい値 1.881MeV となる F.P.値を実験的に決定する。次にこのときの F.P.値を基準にデータに基づいて 1.912MeV となるよう調整を行なう。

最初に C.P.を 2.26 に決定し、次に F.P.を 0.03 から 5 まで刻みながら BF_3 検出器での収量の変化を調べた。この結果を Fig.5.3.9 に示す。グラフ中、正方形の点が実験値を表しており、F.P.の上昇とともに収量も増加している。ターゲットが厚いために F.P.を 2.0 付近まで上げても収量は増加しつづけていることが分かる。よってこのグラフ中の 1.0 から 2.25 までの範囲で一次フィットして、しきい値となる F.P.値を計算によって 0.83 と求めた。

次に過去の実験で得られている単位 F.P.あたりの加速エネルギー増加が 0.0063 (MeV / F.P.) であることを利用し、 $(1.912 - 1.881) / 0.0063 = 4.92$ より、F.P.を 4.92 増加させて F.P. = 5.7 と設定して、加速エネルギーを 1.912MeV に最終調整した。

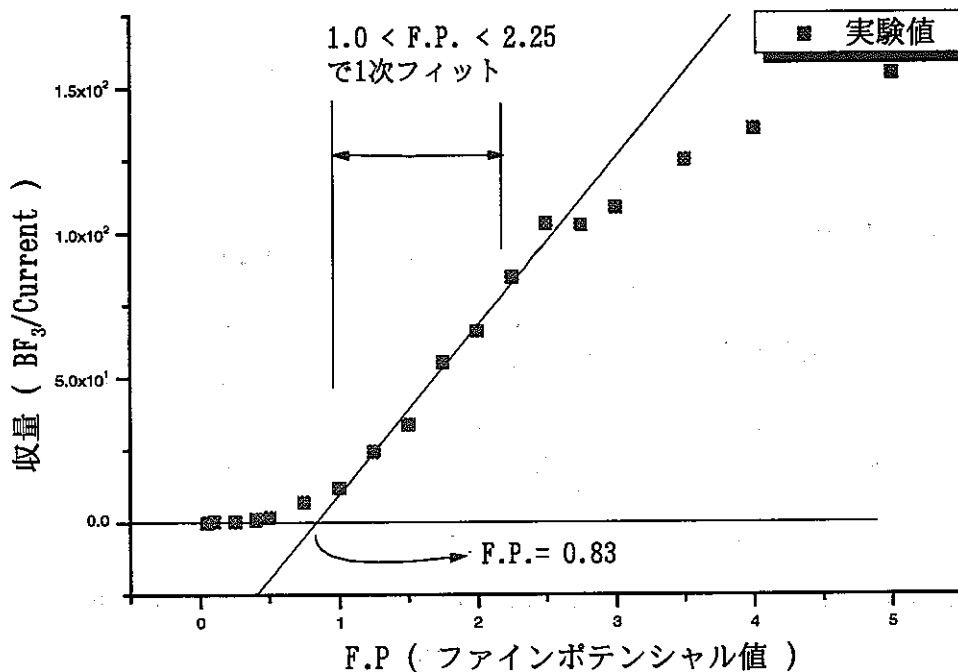


Fig. 5.3.9 Adjustment of proton energy

(C) 照射条件の確認

今回の照射では直径 25mm の試料内に Maxwell 型中性子がすべて入射してはならない。このために検出器側は前述のように専用の取り付けアームで正確に配置されているが、一方で発生している中性子が最大 60 度で放出されていることを何らかの手法で確認しなくてはならない。

方法として、BF₃ 検出器などを用いて角度ごとに測定を行なうことも考えられるが、イメージングプレートを応用した手法²²によれば 2 次的に中性子プロファイルが得られるため、この手法で確認を行なった。

【中性子プロファイル測定概要】

従来の X 線写真フィルムに代わる新しい 2 次元放射線検出器であるイメージングプレート(IP)を応用する。

IP 単独では中性子に対して感度を持たないため、IP 表面(IP:富士フィルム社製 BAS-UR、12.7×12.7cm)に中性子コンバータとして⁶LiFをアルミ箔に蒸着したもの(Al-foil:10×10cm、蒸着領域 7×7cm、約 100 μg/cm²)を取り付けて IP に中性子感度を与える。また、中性子源で発生するバックグラウンドγ線の影響を評価するために、コンバータ有りとなしの 2 測定(フォアグラウンド測定とバックグラウンド測定)を行なう。このときコンバータなしの状態での測定結果はバックグラウンドγ線事象のみを含み、有りの場合は同程度のバックグラウンドγ線事象に加え、中性子事象を含むと考えられるためである。

【プロファイル測定】

プロファイル測定の実験配置は Fig.5.3.10 のようになっている。

予備的な測定から、ある程度のバックグラウンドγ線遮蔽が必要であることが分かっていたため、高さ 20cm、幅 10cm、厚さ 5cm の Pb ブロックを 3 個並列して台に乗せ、ターゲットと IP の間に挿入した。コンバータは 2mm 厚のアクリル板を用いて IP に密着させた。このときコンバータが IP の半分を覆うようにして、同時にフォアグラウンドとバックグラウンドが取得できるようにした。

以上の配置で中性子放出角度 60 度付近のプロファイル測定を行なった。なおこのときの⁶Li-glass シンチレータによって測定された TOF スペクトルを Fig.5.3.11 に示す。

【結果】

得られた 2 次元の像から 1 次元にデータを抽出したものを Fig.5.3.12 に示す。プロットされている全域が IP の測定領域に対応しており、コンバータありとなしについてプロットしてある。

コンバータありの場合は、コンバータのサイズに対応した位置において有意な中性子事象が現れていることが分かる。この結果において 60 度位置での 2 プロットの差がほぼ無くなることから、中性子の放出角度は 60 度となっていることを確認した。

TOP VIEW

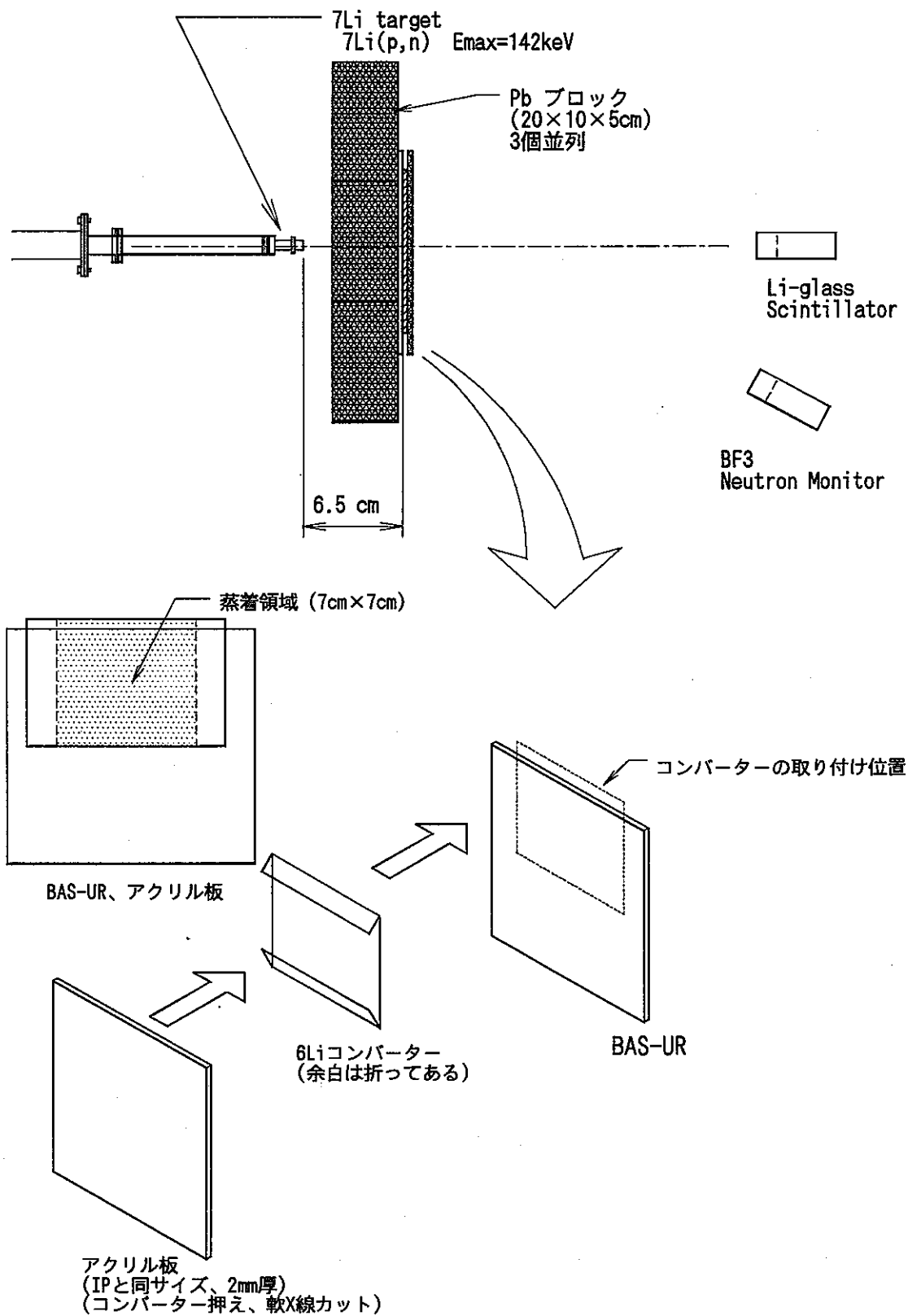


Fig. 5.3.10 Experimental Setup of measurement of neutron profile

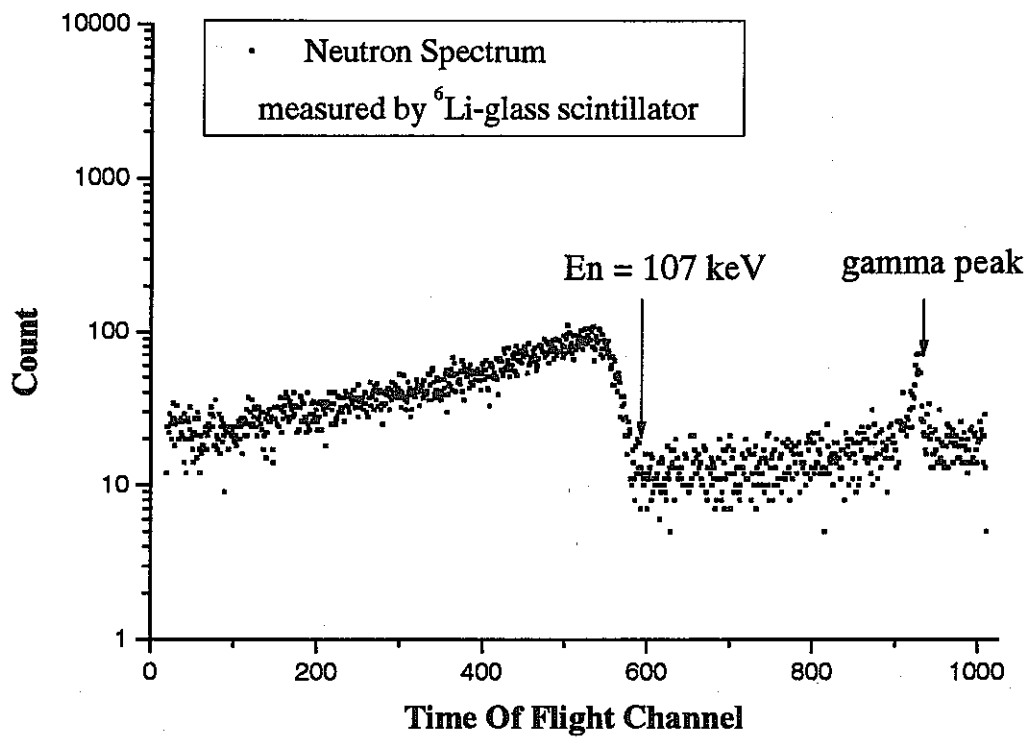


Fig.5.3.11 Neutron spectrum measured by ^6Li -glass scintillator

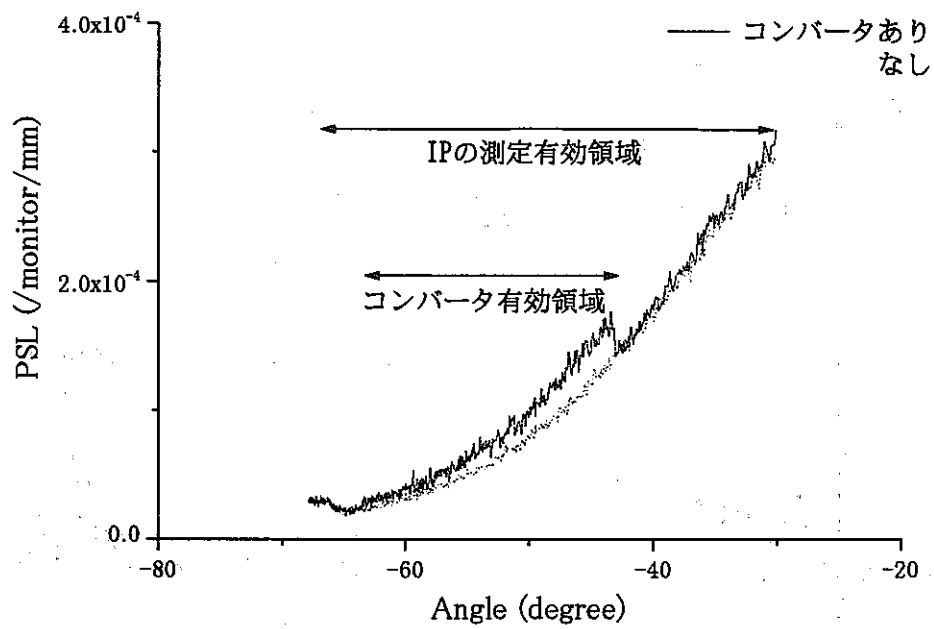


Fig. 5.3.12 Measured neutron profile at 60-degree respect to beam axis

(D) 核分裂測定

先述した3グループについて Maxwell 型中性子を用いて行なった照射の詳細を以下で述べる。

【²³⁷Np の測定】

最初に参照核種の ²³⁵U について 2MHz パルスビームを電流 4 μA で 1000 秒の照射を行なった。次に ²³⁷Np が密封された同型の検出器に交換し、3.8 μA で 10000 秒の照射を行なった。

このとき 2 次元測定のコソール上で確認されたフォアグラウンドとバックグラウンドの計数の合計は Table 5.3.1 のようであった。

Table 5.3.1 ²³⁷Np measurement

	Foreground	Background
²³⁵ U 試料	6035	4
²³⁷ Np 試料	1428	0

【²⁴¹Am の測定】

最初におおよその計数率を確認するために試験的な照射を行ない、ビーム電流 6 μA で cps が 0.003 (count / s) 程度と非常に少ないことが分かった。このため長時間の測定を行なわなくてはならず、この間に中性子スペクトルの変動が起こる可能性も考えられる。

そこで、この影響を最小限にするため、測定を 5 セットの短い照射に分割し、交互に ²⁴¹Am と ²³⁵U を測定した。測定時間と計数の兼ね合いから、このときの 1 セットは、²⁴¹Am をビーム電流約 6 μA で 10000 秒、²³⁵U を 1000 秒程度の組み合わせとした。

合計で約 16 時間の測定を行ない、コソール上で確認されたフォアグラウンドとバックグラウンドの計数は Table 5.3.2 のようであった。

なお、中性子スペクトルをモニターした結果、測定中に有意な変化は示さなかった。

Table 5.3.2 ²⁴¹Am measurement

	Foreground	Background
²³⁵ U 試料	38034	20
²⁴¹ Am 試料	175	1

【²⁴³Am の測定】

はじめに ²⁴¹Am の測定と同様、計数率確認のための試験照射を行なったところ、大体予想される値より 1 桁多い計数率が確認された。

この原因を TOF - 波高 2 次元測定のコソール上で調査した結果、計数の大半が中性子照射によらない核分裂事象であった。発生源として試料内の不純物の自発核分裂を計算したところ、²⁴⁴Cm の自発核分裂数

と非常によく一致しており、中性子による核分裂数の約 10 倍程度のバックグラウンドとなっていることが分かった。

この対策としてビームカレントを増やすことが考えられたが、ターゲットの耐久度を考慮してビームカレントを変更せずに照射を行ない、データ処理段階で TOF-波高 2 次元分布からバックグラウンドを評価することにした。

照射は ^{241}Am と同様に分割した照射を行なうことにし、ビーム電流約 $6.5\ \mu\text{A}$ で ^{243}Am と ^{235}U についてそれぞれ 10000 秒、1000 秒のセットを 4 セット行なった。

合計で約 12 時間の測定を行ない、コンソール上で確認されたフォアグラウンドとバックグラウンドの計数は Table 5.3.3 のようであった。

なお照射中、中性子スペクトルの変動は確認されなかった。

Table 5.3.3 ^{243}Am measurement

	Foreground	Background
^{235}U 試料	35437	27
^{243}Am 試料	5593	4987

5.3.4 結果・データ処理

(A) 計数の導出

まず ^{237}Np について得られた TOF-波高 2 次元分布を Fig.5.3.13 に示す。

2 次元分布上で中央部に水平に分布している事象が核分裂によるものである。TOF 軸に沿って分布している事象は α 崩壊を表している。

この分布では α 崩壊事象と核分裂事象の分離が非常によかったため、図中のような方形状の領域からフォアグラウンドの核分裂計数を容易に得ることができた。同様にバックグラウンド中性子による核分裂事象の計数を得るために同じサイズの領域を設定した。これらの領域中に含まれる事象の 1 次元波高分布を同ページの下に示す。この分布からバックグラウンド中性子による事象はほとんどないことがわかる。これは検出器がターゲットの至近距離であることから床などで散乱した中性子が少なかったためと考えられる。

次に参照核種である ^{235}U について得られた 2 次元分布を Fig.5.3.14 に示す。 ^{235}U については多少 α 事象へ核分裂事象が埋もれているため、得られた計数はパルサーで調べた 0 波高まで外挿しなくてはならない。また、この照射においてもバックグラウンド事象は非常に少なかった。同様に、フォアグラウンド、バックグラウンドについての 1 次元波高分布を同図の下に示す。

次に ^{241}Am についても同様な操作を行なった。TOF 波高 2 次元分布を Fig.5.3.15 に示す。この測定においても α 事象と核分裂事象の分離は良好だった。

^{241}Am については複数回に分割して照射を行なったので、分布に変化のないことを確認した後、各々の照射での計数を足しあわせた。

最後に ^{243}Am の計数を導出する。TOF-波高 2 次元分布を Fig.5.3.16 に示す。先に実験のところで述べたように、 ^{244}Cm の自発核分裂が時間軸と無関係に発生し、分布していることが分かる。このためバックグラウンド量が非常に多い測定となった。中央部に ^{243}Am による核分裂事象が筋状に確認できる。注意深くこの事象を含むように収量を導出する ROI を設定した。バックグラウンドの ROI の位置設定については、実験時に別のシングルの MCA でビーム照射と非照射の 2 つの場合について得たフォアグラウンド、バックグラウンドの比と合うことを確認してから設定し、バックグラウンド計数を導出した。

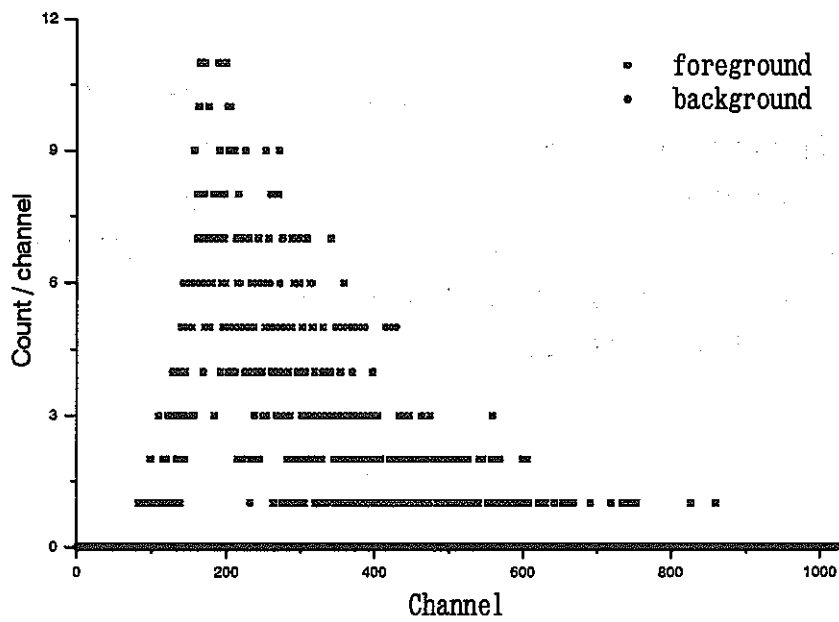
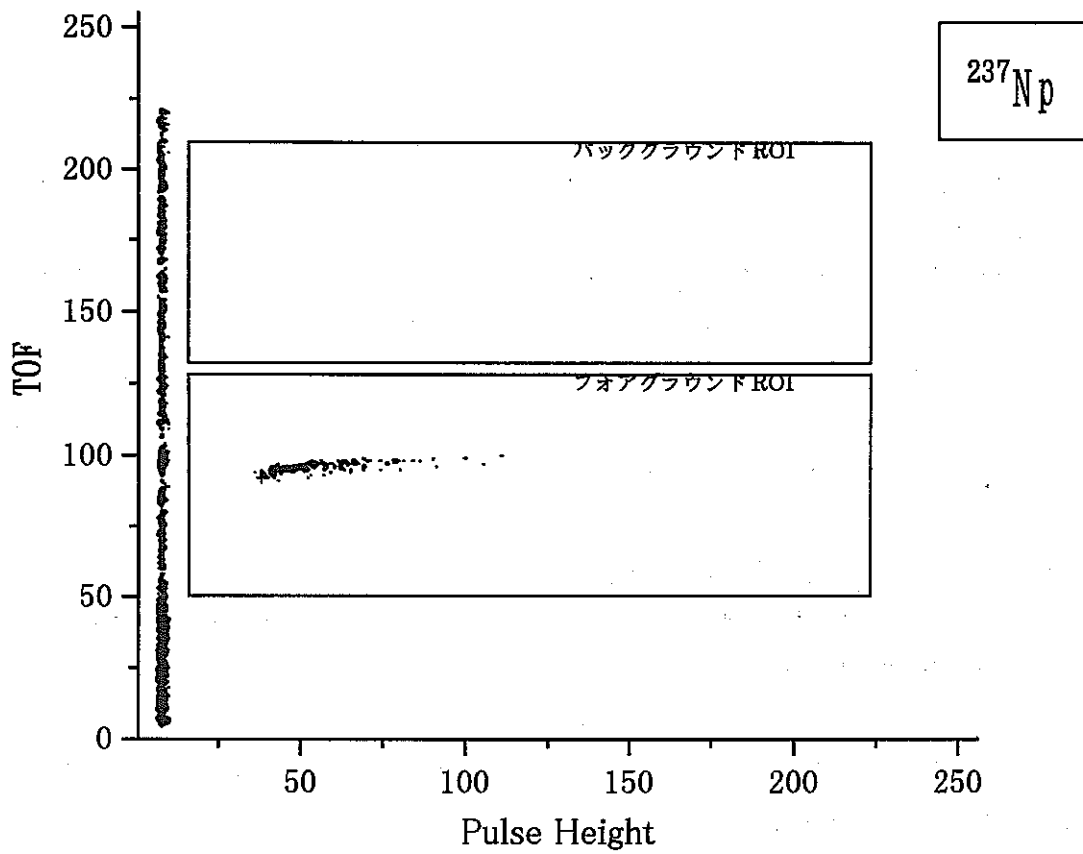


Fig.5.3.13 Measured 2-dimentional spectrum (above) and One dimensional TOF spectrum of ^{237}Np sample (below)

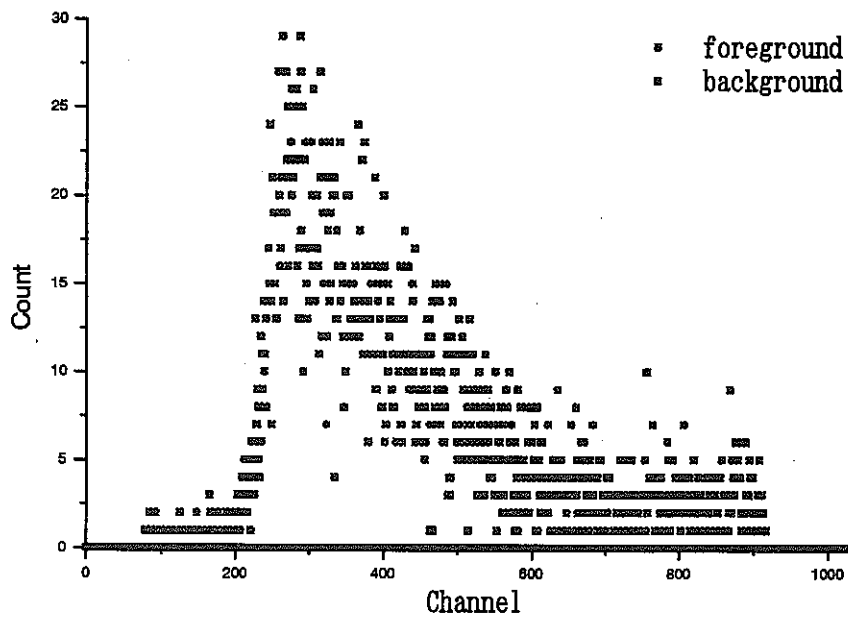
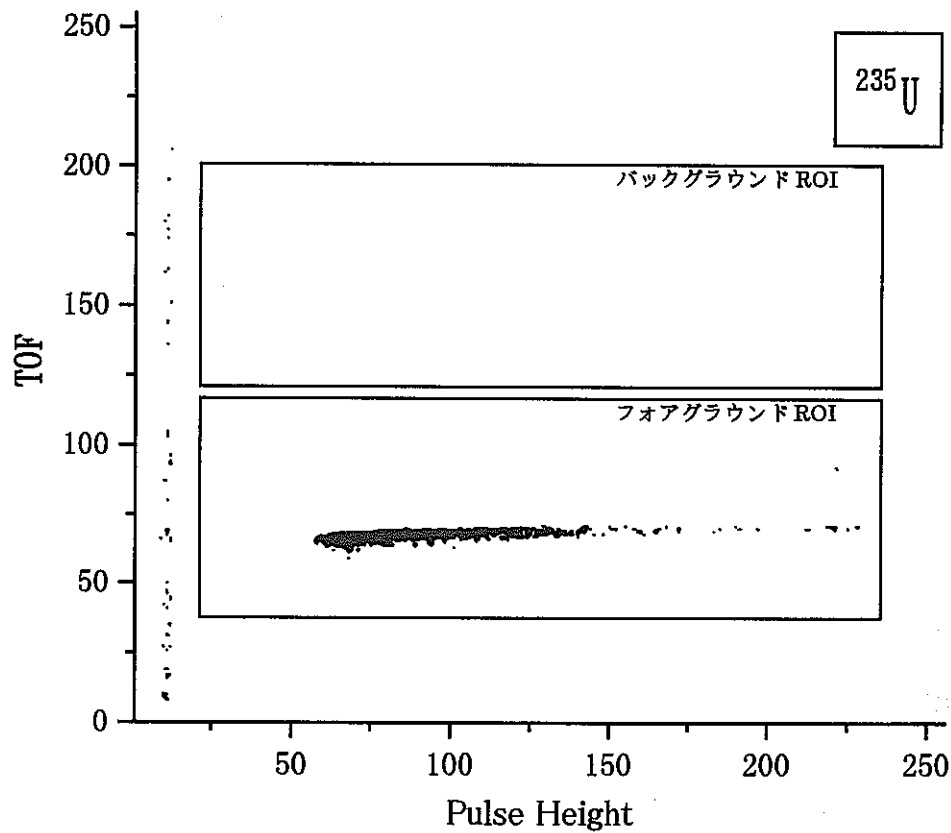


Fig.5.3.14 Measured 2-dimensional spectrum (above) and One dimensional TOF spectrum of ^{235}U sample (below)

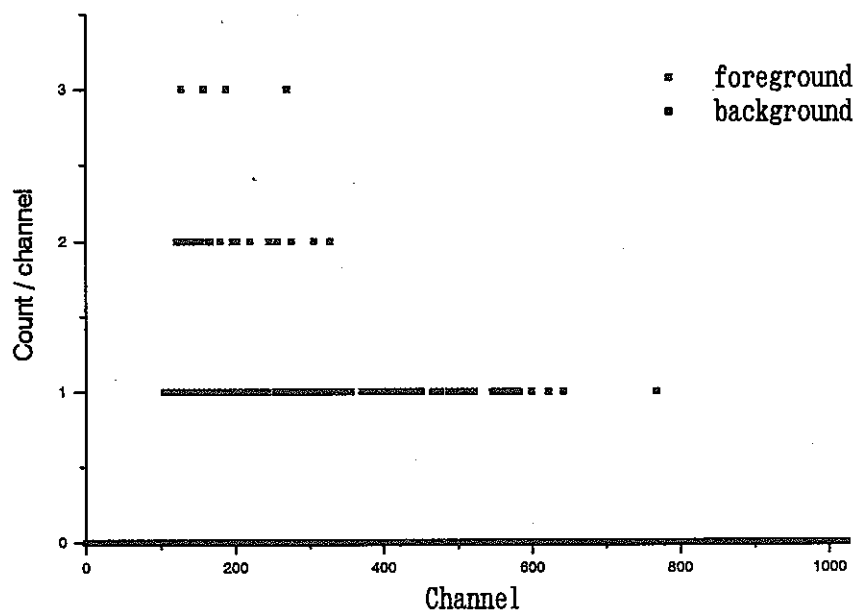
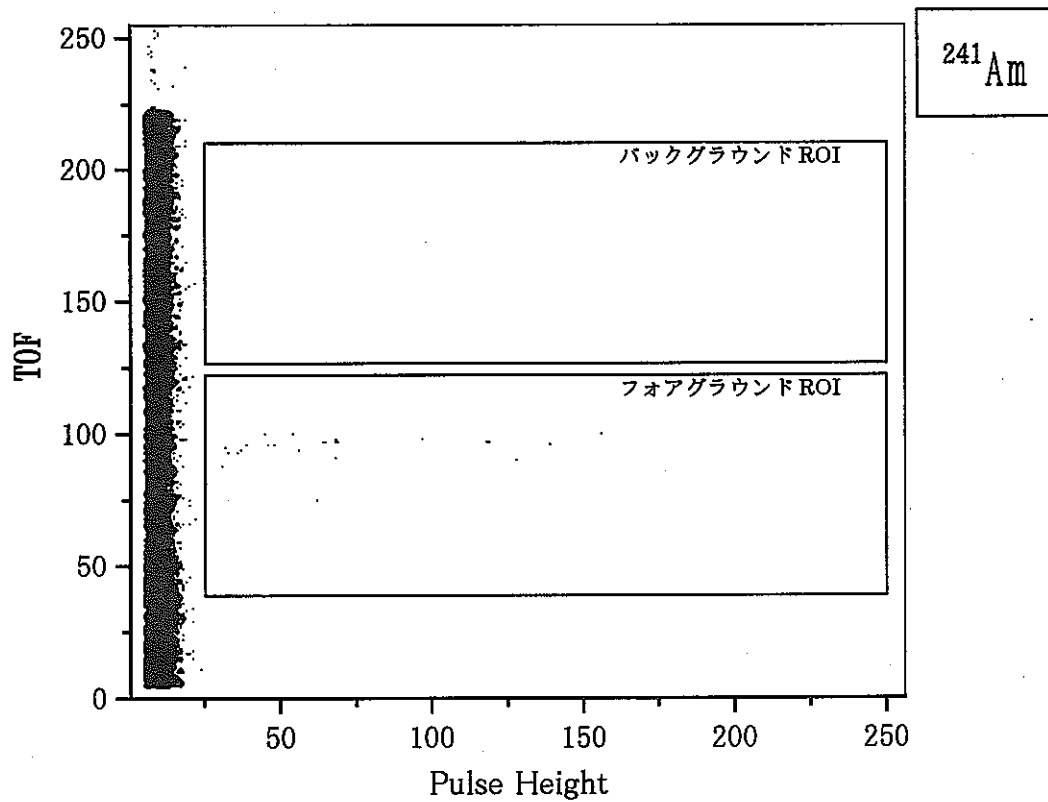


Fig.5.3.15 Measured 2-dimentional spectrum (above) and One dimensional TOF spectrum of ^{241}Am sample (below)

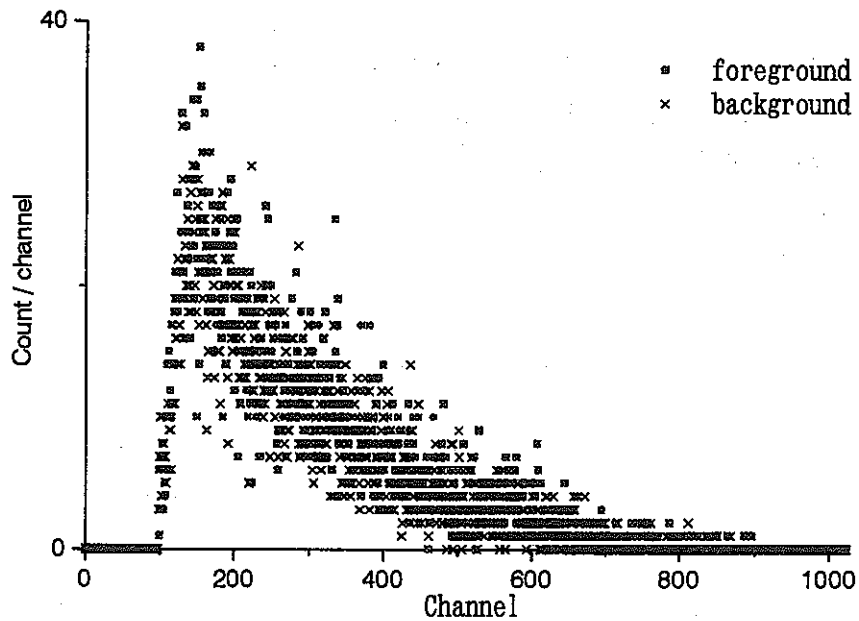
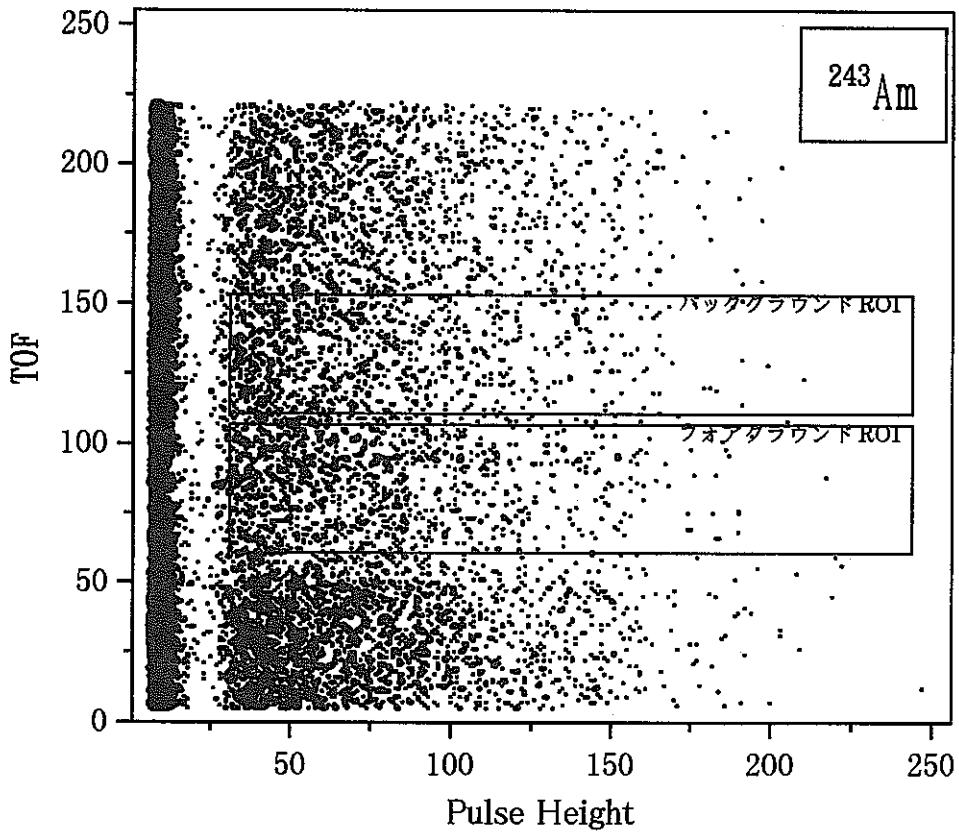


Fig.5.3.16 Measured 2-dimensional spectrum (above) and One dimensional TOF spectrum of ^{243}Am sample (below)

(B) 計数の補正

前節で得られた計数は以下のような補正を行なう必要がある。

- 1) バックグラウンドの補正
- 2) 0波高への外挿
- 3) 核分裂片の自己吸収
- 4) 核分裂性の不純物の補正
- 5) 核分裂検出器中で散乱された中性子の影響の補正

(1)については先に得られたフォアグラウンド、バックグラウンドの収量の差をとることにより行なった。

(2)については今回の実験で全ての照射で α 事象との分離が非常に良好であったため分離の劣っていた ^{235}U についてのみ補正を行なった。補正量は1.0%であった。

(3) 核分裂片は原子番号が大きくエネルギーロスが相当大きいいため、試料外に出られない場合もある。この割合については以下の G.W. Carlson による式を用いて評価した。

$$I = \left(\frac{t}{2 \cdot R} + \eta \right) \cdot \left(1 - \frac{a_2}{2} \right)$$

補正量は、U:0.75%、Np:1.4%、 ^{241}Am :0.02%、 ^{243}Am :0.2%とした。Npは質量がもっとも厚いために補正量が大きくなった。

(4) ^{237}Np 、 ^{241}Am については純度が100%であるため補正は行なわなかった。 ^{243}Am については第3章で記した同位体組成の計算結果におけるそれぞれ核種のMaxwell平均断面積を計算し、それぞれの原子数を考慮して計数中に占める ^{243}Am の割合を推定して補正した。この時の補正は27%の計数のカットとなった。

なお補正計算に必要な核分裂断面積として核データライブラリー JENDL3.2 を利用した。その他に必要なMaxwell型中性子のエネルギースペクトルは、5.3節第1項で述べたシミュレーションコード NESTL を用いて計算した。このシミュレーションコードでは $^7\text{Li}(p,n)$ 反応が重心系で等方であると仮定しており、計算に必要なパラメーターとして陽子の加速エネルギーは $E_p=1.912(\text{MeV})$ 、角度ステップは0.1度毎とし、エネルギーメッシュは1keVとし、最後に5keVエネルギーメッシュでソートした。

(5) については同型の検出器を用いて同様なエネルギー領域で測定を行なった際にモンテカルロコード MCNP4A を利用して評価を行なっている(4.4節第2項参照)。このときの結果を踏まえて今回の核分裂断面積比に対する補正量は $\pm 1\%$ 以内であるとして誤差に含める。

以上の核分裂比に対する補正結果を Table 5.3.2 に示す。

Table 5.3.2 Correction

Correction Measurement	Extrapolation (%)	Self- absorption(%)	Background (%)	total (%)
²³⁷ Np	- 1.0	+ 0.7	+ 0.07	- 0.27
²⁴¹ Am	- 1.0	- 0.7	- 0.54	- 2.25
²⁴³ Am	- 1.0	- 0.6	- 89.2	- 92.15

(C) 核分裂断面積

以上の処理から Maxwell 平均核分裂断面積比を導出し、これに ^{235}U の Maxwell 平均断面積を乗じることにより最終的な断面積を導出した。なお、これらの断面積が与えられるエネルギーとして、5-2 節で定義した Maxwell 平均エネルギーを計算した。この結果を Table 5.3.3 に示す。

なお、断面積導出に用いる JENDL3.2 の ^{235}U 核分裂断面積を Fig.5.3.17 に示す。

【過去の ^{237}Np 測定結果との比較】

得られた ^{237}Np の Maxwell 平均核分裂反応断面積と 4.4 節での結果及び他の実験値との比較を Fig.5.3.18 に示す。4.4 節での結果と誤差内で一致していることから、本手法は妥当であると結論づけられた。

【 ^{241}Am の結果】

核分裂断面積を Fig.5.3.19 に示す。

他の実験値は約 50keV 以下で大きく 2 通りに分かれている。一つは 50keV から急激な減少を示す実験データ群であり、もう一つは低エネルギー側から緩やかな減少を示すデータであり、核データライブラリはこちらのデータを支持している。今回導出された断面積は誤差を考慮しても核データライブラリの値とは著しく異なっており、前者の実験データ群を支持しているようにも取れるが、はっきりさせるには今後エネルギーを下げた測定がなされるべきである。

【 ^{243}Am の結果】

核分裂断面積を Fig.5.3.20 に示す。このエネルギー領域の実験データは非常に少ないが、他者の実験値および ENDFB/6 と誤差内でよく一致している。

今回の測定では核分裂性の不純物核種が多かったために補正量が大きく、また非常に S/N が低い困難な測定であったが、中性子強度が大きかったため統計誤差は 17%程度で押さえることができた。

Table 5.3.3

	E_{Max} (keV)	$\sigma_{\text{Max}} (^{235}\text{U})$	Cross Section Ratio	$\sigma_{\text{max}}(E_{\text{Max}})$ (mb)	Relative Error (%)
^{237}Np	49.8	2001	0.00955	19.12	3
^{241}Am	49.8	2001	0.01858	37.2	7.8
^{243}Am	49.8	2001	0.00584	11.7	17.0

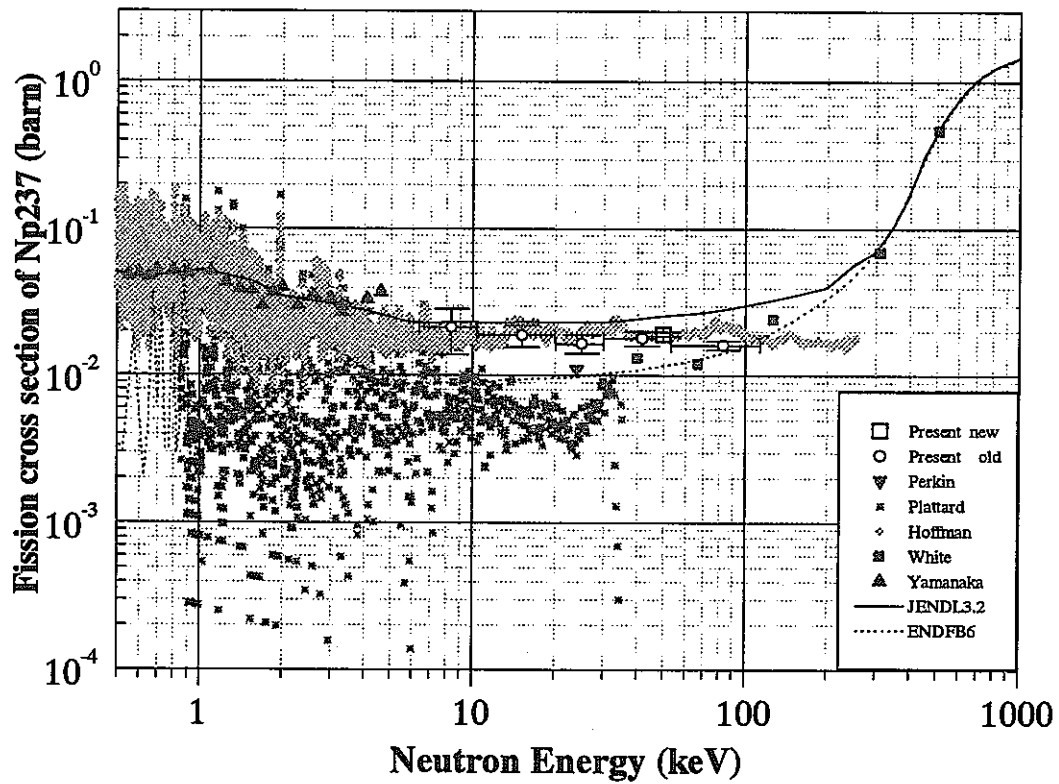


Fig. 5.3.18 Experimental result of ^{237}Np fission cross section

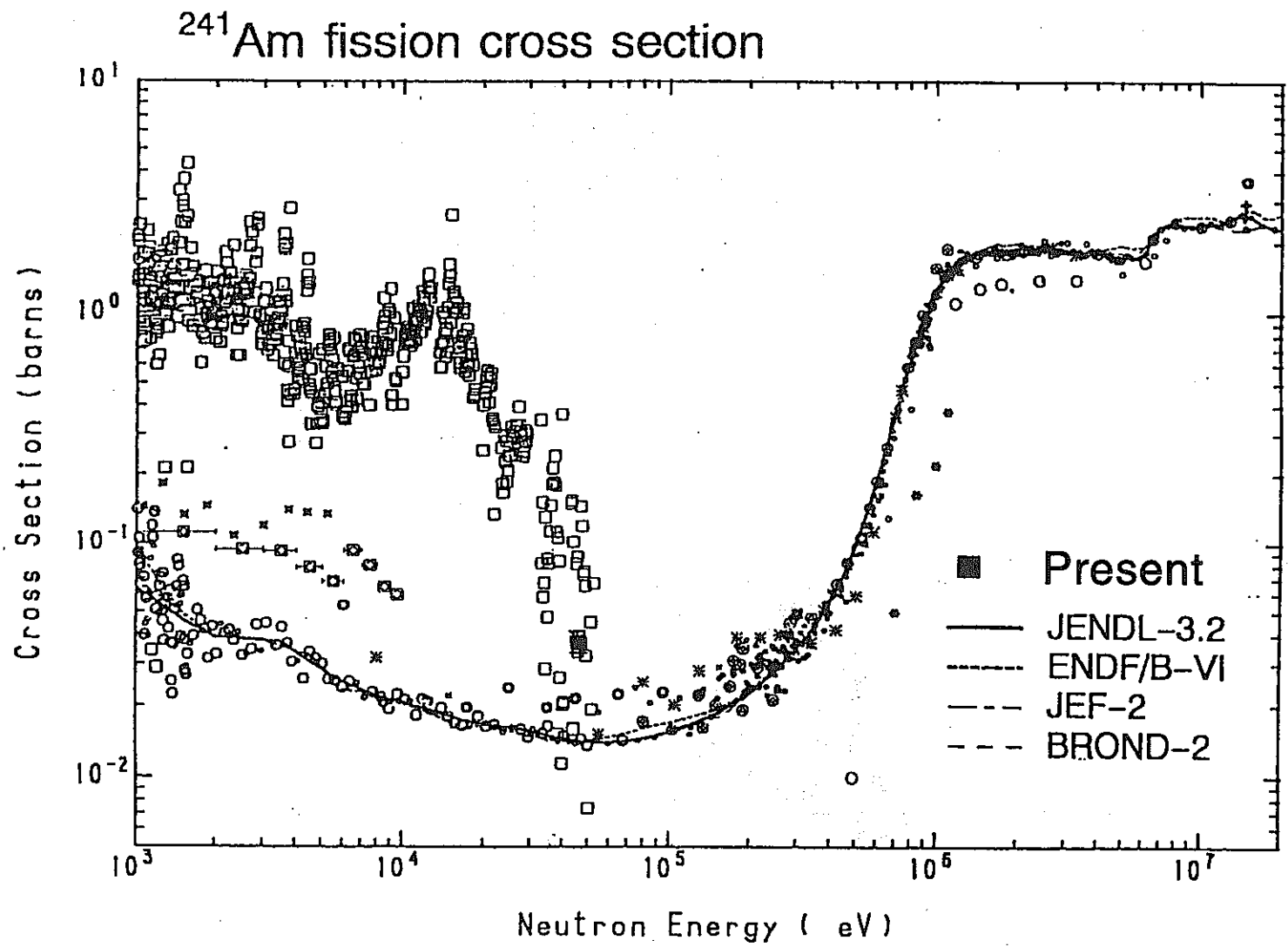


Fig. 5.3.19 Experimental result of ^{241}Am fission cross section

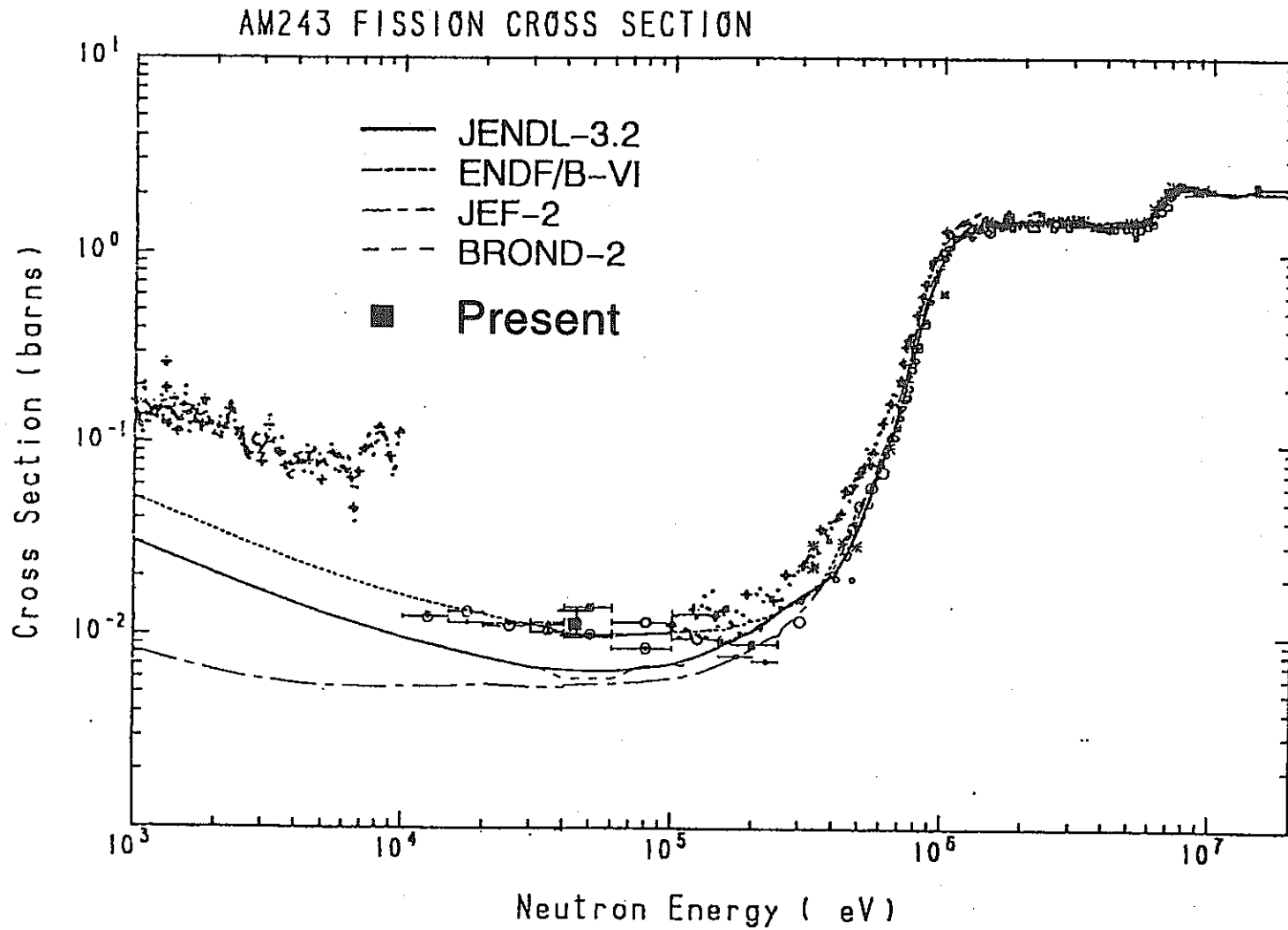


Fig. 5.3.20 Experimental result of ²⁴³Am fission cross section

6 結論

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 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である。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実施した。

本研究では、まず、高精度で高時間分解能を持つ測定手法の開発を行った。本研究で開発したあるいは実験的な改良を加えたものは以下の通りである。(1)密封型核分裂計数管の開発、(2)Li 中性子発生ターゲットの高強度化、(3)飛行時間系測定回路の高時間分解能化、(4)高質量の MA (^{237}Np , ^{241}Am , ^{243}Am) 試料の導入と(5)高純度のウラン試料の導入である。

これらの改良された測定装置並びに試料を用いて、本研究では、まず、 ^{237}Np に対する核分裂断面積測定を実施し、10-100keV の中性子エネルギー領域に対する ^{237}Np の核分裂断面積を測定した。さらに、 ^{241}Am 及び ^{243}Am については、 $kt=25.3\text{keV}$ の Maxwell 分布を持つ中性子スペクトル平均の核分裂断面積を測定し、 ^{237}Np , ^{241}Am , ^{243}Am とも実験データのばらつきに比べて十分高精度で核分裂断面積が得られた。

^{237}Np の結果は、Hoffman 並びに山中の結果を支持する結果を示し、核データファイルと比べると 10keV 程度では JENDL3.2, 100keV 程度では ENDF/B-VI を支持する結果となった。一方、 $kt=25.3\text{keV}$ の Maxwell 分布平均の核分裂断面積は、 ^{237}Np については今回の微分測定結果を、 ^{241}Am については二極化した測定データの内、低めのグループを、そして ^{243}Am については ENDF/B-VI を支持する結果となった。

参考文献

- ¹ K.Schibata et al, JAERI-1319 (1990)
- ² P.F.Rose et al, BNL-NCS-17541 (1993)
- ³ H.D.Lemmel et al., IAEA-NDS-120 (1993)
- ⁴ Yamanaka et al., Nucl. Sci. Technol
- ⁵ 篠原伸夫 JAERI-memo 02-418 (1991)
- ⁶ T.Iwasaki et al., J.Nucl.Sci.Tecnol, 26,pp11-14(1989)
- ⁷ M.Baba et al., J.Nucl.Sci.Tecnol., 27,pp895-898(1990)
- ⁸ G.W.Carlson et al, Nucl.Sci.Eng.,80,pp282 (1982)
- ⁹ Hoffman M. M. et al., Bulletin of American Physical Society, 21, 655 (1975)
- ¹⁰ Plattard S., Univ. Paris-Sud, Orsay, 7311 (1973)
- ¹¹ Perkin J. L. et al., J. Nuclear Energy, AB, 19, 423 (1965)
- ¹² White P. H. et al., Int. Conf. On "Physics and Chemistry of Fission", Salzburg, Austria
- ¹³ K. Brehm et al., Z. Phys., A330, 167 (1988)
- ¹⁴ W. Ratynski et al., Phys. Rev. C37, 595 (1988)
- ¹⁵ H. Beer et al., Phys. Rev. C21, 534 (1980)
- ¹⁶ H. P. Trautvetter et al., Z. Phys., A323, 1 (1986)
- ¹⁷ T. Sanami et al., NETU-62, 14 (1994)
- ¹⁸ M. Baba et al., JAERI-conf. (1995)
- ¹⁹ G. G. Ohlsen, Nucl. Inst. Meth., 37, 240 (1965)
- ²⁰ R. L. Macklin et al., Phys. Rev. 109, 105 (1958)
- ²¹ J. F. Janni, Atomic Data and Nucl. Data Tables, 27, 341 (1982)
- ²² 東北大学工学部量子エネルギー工学科 : 斎藤佳一郎 修士論文 (1997)