

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 11 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23561019

研究課題名(和文)放射性廃棄物核種の中性子捕獲断面積高精度化研究

研究課題名(英文) Study of precise measurement of neutron capture cross section for radioactive nuclear wastes

研究代表者

中村 詔司 (NAKAMURA, Shoji)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門・原子力基礎工学研究センター・研究副主幹

研究者番号：90421461

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,400,000円、(間接経費) 1,320,000円

研究成果の概要(和文)：京大原子炉KURを用いてNp-237試料を中性子照射し、放射化法により中性子捕獲断面積を測定した。Np-237の0.489-eV共鳴に注意してGd箔を用いて、Cut-off energyを0.13eVに設定した。Pa-233およびNp-238からのγ線を計測して、Np-237試料の量とNp-238の生成量を求めた。Au/Al、Co/Al合金線を用いて照射位置における中性子束をモニタした。Np-238の中性子捕獲によるNp-238の生成量、および中性子束情報から、熱中性子捕獲断面積を求めた。得られた熱中性子捕獲断面積として、 $198 \pm 10(b)$ を求め、評価値より10%ほど大きいことが分かった。

研究成果の概要(英文)：The neutron capture cross-section was measured by an activation method at Kyoto Reactor Research Institute. A Gd foil was used to set Cut-off energy as 0.13eV to pay attention in the 0.489-eV resonance of Np-237. The amount for Np-237 and Np-238 were measured from measurements of gamma-rays emitted from Pa-233 and Np-238. The neutron fluxes were monitored with Co/Al and Au/Al alloy wires. The thermal-neutron capture cross-section of Np-237 was derived from the production amount of Np-238 and neutron fluxes, and obtained as $198 \pm 10(b)$. It was found that this result was about 10% larger than the evaluated value ($178.1(b)$).

研究分野：基盤研究(C) 工学

科研費の分科・細目：総合工学 原子力学

キーワード：原子力施設 - 放射線 中性子捕獲断面積 放射性核種 マイナーアクチニド 核データ

1. 研究開始当初の背景

(1)高燃焼燃料中には、長寿命で放射性毒性の高いマイナーアクチノイド(MA)、並びに長寿命核分裂生成核種(LLFP)が蓄積されている。これら放射性核廃棄物の処理処分法として、核種変換による減容・半減期の人工的加速をはじめ、高速炉に装荷して燃焼させる等の研究が進められている。また、高速炉開発やその他の革新的原子炉の開発においては、MAやLLFP核種の燃焼チェーン、生成量を正確に評価する必要がある。そのためには、MAやLLFPに関する核的特性、特に中性子捕獲断面積データを整備することが極めて重要である。

(2)近年では、MA、並びにLLFPに関する研究の重要性が再認識され、国内外において高い関心もたれてきている。燃料サイクルの見直しや高度化の検討が世界的に進められてきており、放射性核廃棄物の処理処分、分離回収技術、核種変換研究と併せて、MA並びにLLFP核種に関する研究の必然性は、一層高まってきている。CERN(Swiss)、Institute for Reference Materials and Measurements: IRMM (Belgium)、Los Alamos National Lab.: LANL(USA)、Oak Ridge National Lab.: ORNL(USA)、CEA(France)等のような諸研究機関で、MA核種の中性子捕獲断面積データの研究競争が始まっている。

2. 研究の目的

(1)高速炉開発や革新的原子炉システムの開発においては、中性子捕獲断面積データが、熱中性子領域(25meV)から高速中性子領域(20MeV)までの広いエネルギー範囲にわたって必要である。しかしながら、高レベル放射性廃棄物量評価等に重要なマイナーアクチノイド(MA)核種等の断面積データには、データの誤差が大きいものや報告値間の不整合が見受けられ、そのデータ整備は十分であると言えない。本研究では、MA核種のうち高速炉の燃焼チェーンでPu-239の生成に寄与するNp-237と長寿命Cm同位体の生成に寄与するAm-243の2核種を取り上げて、それらの中性子捕獲断面積データの高精度化を目的とする。

(2)データの高精度化を阻む一つの要因に、解析に使用する核データ(半減期やγ線放出率データ)の誤差が挙げられる。従って、誤差の主要因となっている核データを高精度で測定する手法を開発するとともに、MA核種の中性子捕獲断面積データの高精度化を達成することを目的とする。

本研究では、MA核種のうち高速炉のMA含有燃料の燃焼チェーンでPu-239の生成に寄与するNp-237を選定した。

3. 研究の方法

原子炉中性子を用いた中性子放射化法に

より、Np-237(n, γ)Np-238反応について、中性子の吸収のし易さを表す物理量：中性子捕獲断面積を調べる。

4. 研究成果

(1)マイナーアクチノイド核種の中のNp-237は、高速炉の燃焼チェーンでPu-239の生成に寄与するとともに、半減期が214万年と長寿命であるために重要な核種である。Np-237(n, γ)Np-238反応について、京都大学原子炉実験所の研究炉を利用して照射実験を行なった。

照射試料としてNp-237標準溶液を用い、200 Bq 溶液を分抽し、それをろ紙に滴下し、乾燥させた後にポリエチ袋に封入した。Np-237試料の量は、Pa-233との放射平衡を利用してγ線計測により定量した。また、共鳴積分(RI:熱外中性子に対する吸収のし易さを表す量)も求めるために、Gd遮蔽を用いた試料も用意した。Np-237は、**図1**のように0.489-eVに共鳴を持つことから、通常、カドミニウム(Cd)を使って遮蔽する方法に対して、50μm厚のガドリニウム(Gd)箔を用いて中性子を遮蔽するエネルギーを0.13eVに設定する手法を提案した。**(図2参照)**

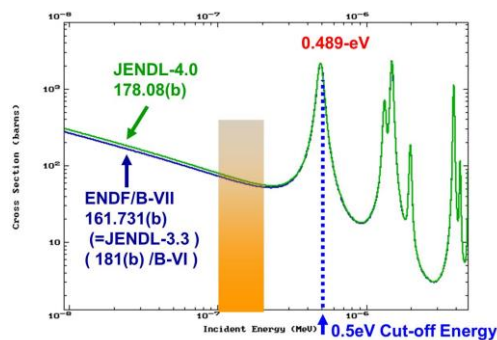


図1 Np-237の中性子捕獲断面積

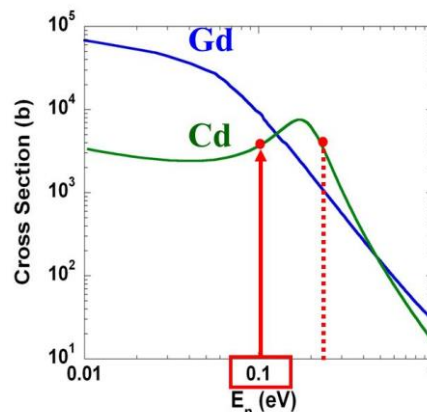


図2 Gd箔による遮蔽エネルギーの設定

Cdを用いると、中性子断面積がピークを持つために低いエネルギー0.1eVで遮蔽しようとしても、少し高いエネルギーの中性子を透過させてしまうが、Gdは、なだらかな曲線をも

つために、厚みを適当に選ぶことで、任意に中性子を遮蔽するエネルギーを設定することができる。

中性子照射は、京都大学原子炉実験所の研究炉 KUR の気送管 Pn-2 を用い、Gd 遮蔽なし・あり場合で、Np 試料を中性子束モニタ (Au/Al、Co/Al 合金線) とともに、それぞれ 10 分、5 分間照射した。照射後、Np 試料及びモニタ試料からの γ 線を高分解能 Ge 検出器で測定した。図 3 に得られた γ 線スペクトルの例を示してあります。

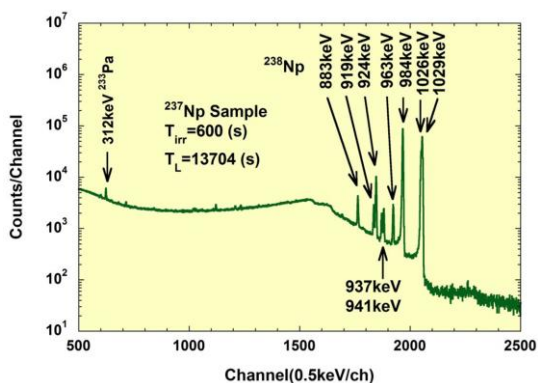


図 3 Np-237 試料を照射して得られた γ 線スペクトルの一例

Pa-233 からの 312 keV γ 線、及び Np-238 からの 883 keV~1029 keV までの γ 線を良い信号対雑音比で測定することができています。

得られた γ 線の収量から Np-238 の生成量と Np-237 試料の量を求め、反応率を導出した。中性子束モニタから照射位置における中性子束成分を測定した。得られた反応率と照射位置の中性子束情報を、Westcott's convention という定義に基づいて解析し、熱中性子捕獲断面積 (25meV のエネルギーを持つ中性子の吸収のし易さを表す量) 及び共鳴積分 (RI 熱外中性子に対する吸収のし易さを表す量) を導出した。表 1 に得られた結果とともに、過去の報告値を纏めてあります。

表 1 Np-237 の熱中性子捕獲断面積 (σ_0) と共鳴成分 (RI) の結果、及び過去の報告値

Authors	Year	σ_0 (barn)	R.I. (barn)	Cut-off Energy (eV)
This Work		198 ± 10	1120 ± 128	0.133
JENDL-4.0	(2011)	178.1	701.1	0.5
Harada et al.	(2006)	169 ± 6	—	—
Letourneau et al.	(2004)	180 ± 5	—	—
Katoh et al.	(2003)	141.7 ± 5.4	—	0.385
Jurova et al.	(1994)	158 ± 4	730 ± 30 860 ± 40	0.5mm ² Cd 0.35mm ²
Kobayashi et al.	(1994)	158 ± 3	652 ± 24	0.5eV
L.W.Weston et al.	(1981)	180 ± 6	—	—
Eberle et al.	(1971)	184 ± 6	805 ± 10	詳細不明

今回、熱中性子断面積として 198 ± 10 (b : 1b=10⁻²⁴cm² 面背の単位をもつ) を得た。過去

の測定を受けて評価されている値は、評価から 178.1 (b) であり、10%程値が大きいことが分かった。この熱中性子捕獲断面積は、中性子の吸収のし易さを表す量であるので、現在考えられているより、10%程、中性子を吸収しやすいこととなります。つまり、寿命が 200 万年と長い Np-237 に、中性子を吸収させると Np-238 に変換され、Np-238 は約 2 日で崩壊するので、放射性物質の寿命を短寿命に加速することが、10%程多くすることが期待される。

(2) 解析に必要なとなるガンマ線放出率を検討した結果を表 2 に纏めてある。

表 2 ガンマ線放出率のデータ

Author	Year	312-keV
Harada et al.	2006	41.6 ± 0.9
Singh & Tuli	2005	38.5 ± 0.4
Schukin et al.	2004	37.5 ± 0.24
Luca et al.	2000	37.8 ± 0.6
Woods et al.	2000	38.7 ± 0.4
Gehrke et al.	1979	38.6 ± 0.5

今回得られた照射データから、評価データ JENDL-4.0 の 178.08 (b)、JEF3.1 の 181.033 (b) を再現するためには、Pa-233 からの 312keV ガンマ線に対して 38.5 %、Np-238 からの 984keV ガンマ線に対して 25.19% のガンマ線放出率を用いなければならないことが分かった。その値を用いた場合、Np-237 熱中性子捕獲断面積は 180 (b) のオーダーになることが分かった。つまり、今回、放出率の値が 10%程大きいこと、中性子断面積が 10%程、大きい値になったことが分かった。

解析に用いるデータにより、最終的な結果が大きく変わってしまうので、用いる基礎物理データの吟味はもちろんのこと、必要があれば再測定して解析に用いる必要があることが分かった。

(3) 実験試料の分析に用いるために、試料から放出される放射線 (γ 線：電磁波の一種、 α 線：ヘリウム原子核) を測定するために、高純度ゲルマニウム (Ge) 検出器システム (図 4)、アルファ線計測システムを整備した。

図 4 ゲルマニウム検出器測定システム



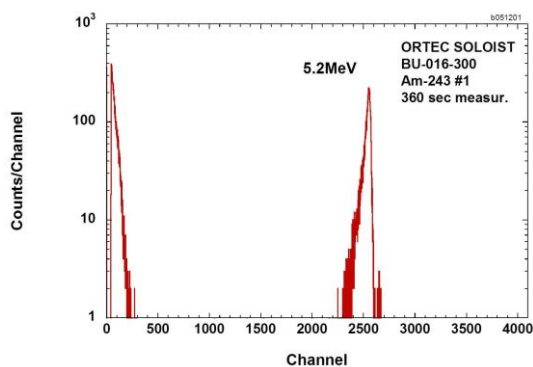
また、**図5**にアルファ計測システムの真空チェンバーを示してある。

図5 アルファ計測用の真空チェンバー



この α 線計測システムを用い、Am-243 試料の分析に用いた場合、得られた α 線スペクトルの一例を**図6**に示してある。

図6 Am-243 試料の α 線スペクトル



Am-243 からの 5.2 MeV のエネルギーを持って放出される α 線を、良い分解能で測定することができる。

今後、放射性廃棄物核種の中性子捕獲断面積測定、及び試料の定量分析に有効である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表] (計 1 件)

中村詔司、北谷文人、原田秀郎、藤井俊行、上原章寛、山名元、“中性子放射化法を用いた Np-237 の中性子捕獲断面積の測定”、2013 年日本原子力学会秋の大会、平成 25 年 9 月 3 日、八戸工業大学 (青森県)

[その他]

ホームページ等

<http://nscience.jaea.go.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中村詔司 (NAKAMURA, Shoji)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・

原子力科学研究部門・原子力基礎工学研究

センター・研究副主幹

研究者番号： 9 0 4 2 1 4 6 1