

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 6 日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2011

課題番号：22760675

研究課題名（和文） 大強度ペンシルビーム高速中性子源を用いた高精度中性子捕獲反応断面積測定

研究課題名（英文） Neutron-capture cross-section measurements with high intensity pencil neutron beam

研究代表者

木村 敦（KIMURA ATSUSHI）

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学研究部門・研究副主幹

研究者番号：30360423

研究成果の概要（和文）：本研究ではペンシルビーム状の中性子ビームを作成するコリメータ体系を製作し、試料以外のケース部分に当たる中性子の比率を低減させた。これにより、ビーム強度は 25 分の 1 になるものの、S/N 比は 3 倍以上改善された。その結果、断面積の誤差は ^{244}Cm 及び ^{246}Cm の 7.661 及び 4.314eV の共鳴のピークで 5.8% 及び 6.6% と高精度の結果を得た。

研究成果の概要（英文）： In this study, new collimators were designed and installed in the ANNRI. Using the collimators, the neutron beams are collimated to pencil beam with a diameter of 15 mm. Although beam intensity dropped to 1/25, the signal-to-noise ratio increased 3 times. The uncertainties of the obtained cross sections or curium isotopes are 5.8% at the top of the first resonance of ^{244}Cm and 6.6% at that of ^{246}Cm .

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	1,600,000	480,000	2,080,000
2011 年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,100,000	630,000	2,730,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学、原子力学

キーワード：炉物理・核データ

1. 研究開始当初の背景

エネルギーの長期的確保を可能とするマイナーアクチノイド (MA) を含む革新的高速炉システム (革新炉) の技術開発及び核燃料サイクルの廃棄物処理においては、 ^{244}Cm – ^{246}Cm などのマイナーアクチノイド核種 (MA) や ^{129}I , ^{99}Tc などの長寿命核分裂生成物 (LLFP) の中性子反応の影響を精度良く評価する必要がある。しかし、MA や LLFP は放射性核種であり、測定に使えるサンプル量が微量かつ比放射能が高いことから、中性子反応断面積測定が困難である。また現状では、理論計算による断面積予測精度も悪いため、その誤差はエネルギー領域によっては 30% 程度から 100% 迄にも及び、上記要請 (～10%) を満たしていない。そのため、米国や欧州にある多くの中性子核データ測定に関わる研究機関では、これらのデータ精度向上のための研究が継続して行われている [1, 2]。

このような状況の中、研究代表者が所属するグループでは、大強度中性子源である J-PARC 物質・生命科学実験施設 (MLF) に中性

子核データ測定に必要となる高精度の中性子源を構築し、MA や LLFP の中性子反応断面積測定に活用する。

中性子核反応実験装置(中性子ビームライン、コリメータ、遮蔽体、多数の Ge 検出器からなる全立体角 Ge スペクトロメータ、NaI 検出器等を含めた全体システム：図1参照)を整備し、MA と LLFP の中性子捕獲反応断面積測定を実施している。

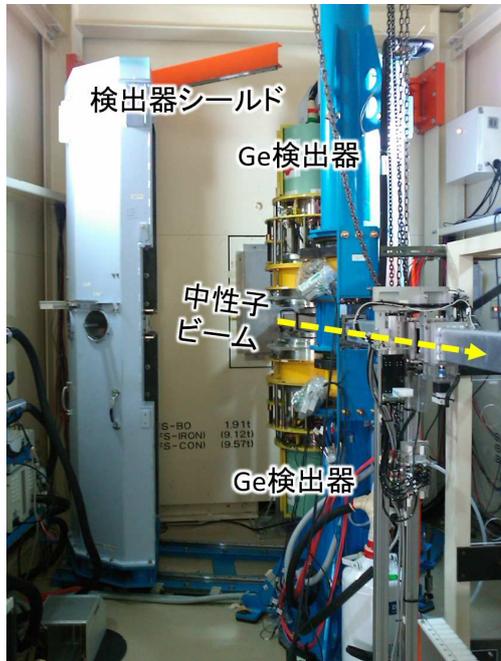


図1 中性子核反応実験装置内部

中性子核反応実験装置での測定例として、 ^{244}Cm の TOF スペクトルを図2に示す。 ^{244}Cm 密封線源 1.8GBq (0.6mg) を試料に用い約 20 時間の測定を実施した結果である。測定の結果、 $^{244}\text{Cm}(n, \gamma)$ 反応による多数の共鳴吸収を明瞭に確認することができた(1969年に実施された原爆実験以降初めてのデータ[3])。一方で、密封線源(試料)のケースによる中性子の散乱で、100eV 以上での S/N 比が大幅に悪化していることも確認できる。

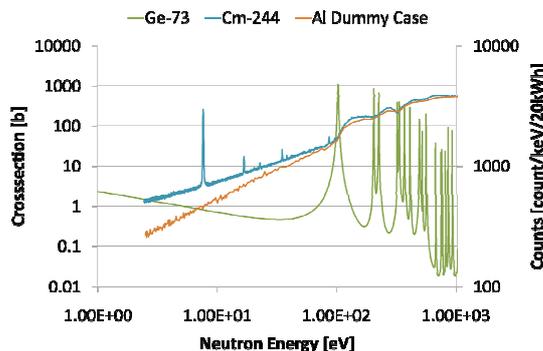


図2 ^{244}Cm 及び Al ケースの TOF スペクトル(右軸)を ^{73}Ge の中性子捕獲反応断面積(左軸)と比較したもの。Al ケースにより散乱された中性子が Ge 検出器の ^{73}Ge に捕獲されたため、100eV 以上での S/N 比が大幅に悪化している。

[1] DOE, AECL, Euratom 主催 : International Workshop on Nuclear Data Needs for Generation IV Nuclear Energy System, Antwerp, April 5-7, 2005

[2] OECD/NEA, IAEA, USDOE, Los Alamos National Laboratory 主催 : International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Santa Fe, September 26-October 1, 2004

[3] "Analysis of the Fission and Capture Cross Sections of the Curium Isotopes" M. S. Moore and G. A. Keyworth, Physical Review C, (1971) Vol. 3, p.1656-1667

2. 研究の目的

この 100eV 以上での S/N 比悪化の原因である密封線源のケースによる中性子散乱は、拡がってしまった中性子によって引き起こされる。したがって、中性子ビームの本影(ビームが強い領域)に比べ、半影(ビームがぼやけて広がっている領域)を小さくし、ケース部分に当たる中性子と線源に当たる中性子の比率を改善する工夫が必要である。(線源は 9mmφ1.5mmt のアルミニウムケースに 5mmφ0.5mmt の線源が封入されている。)

そこで、本研究では、ペンシルビーム状のコリメータ体系を製作し、中性子ビームの半影を小さくし、線源以外のケース部分に当たる中性子の比率を低減させる。これにより、ビーム強度は 25 分の 1 になるものの、S/N 比が改善されることが期待できる。ビーム強度の低下に関しては、J-PARC の出力増強から、結果的にビーム強度は現在の半分程度が確保できる。以上から、ペンシルビーム状のコリメータ体系への変更により、中性子核反応実験装置は、他に類を見ない大強度で S/N 比の良い高品質の高速中性子源を有することとなり、様々な高精度断面積測定に利用が可能となる。本研究では、その実証として、 ^{244}Cm 、 ^{246}Cm について、～数百 eV の領域まで高精度で測定する。

3. 研究の方法

(1) コリメータ体系の改良

図3に現在のコリメータ体系を図4に最下流部のロータリーコリメータの図を示す。現在のコリメータ体系は最下流部が4種類のコリメータ径を選択できるロータリーコリメータとなっている。また、図4で見えるように、ロータリーコリメータは内挿入物のコリメータ部分が交換できる設計となっている。そこで、本研究においては、ペンシルビーム作製のため、長さ 1.3m のロータリーコリメータ用にビーム幅が 3.5mmφの内挿入物を新規に設計・製作し、現在の挿入されている内挿入物の一つと交換する。なお、内挿入物は高速中性子の遮蔽用の Fe を 100cm、減速及び

熱中性子遮蔽用のボロン入りポリエチを 20cm、 γ 線遮蔽用のPb10cmからなる構造とする。これにより、21.5mのターゲット位置で本影 3.5mm・半影 7mmとなるペンスルビウムに近い中性子ビームを得ることができる。

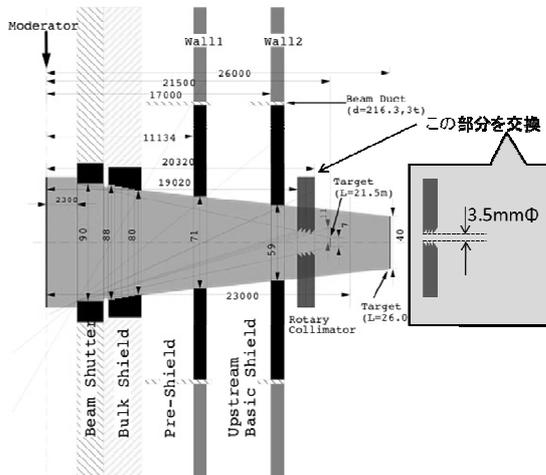


図3 新規に作成するコリメータ体系

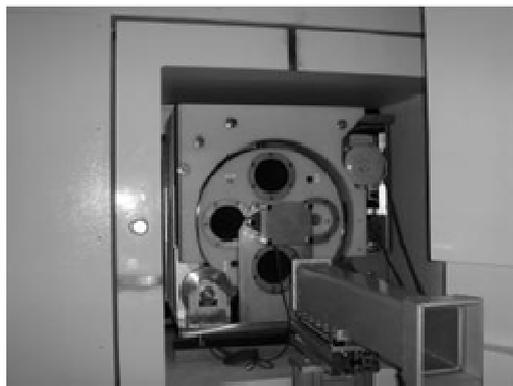


図4 ロータリーコリメータ外観

(2) ^{244}Cm 、 ^{246}Cm の測定

手持ちの ^{244}Cm 試料 (^{244}Cm : 1.8GBq, 0.6mg 同位体比 91.6%)、 ^{246}Cm 試料 (^{244}Cm : 1.7GBq, 0.6mg 同位体比 29.0%、 ^{246}Cm : 12.1MBq, 1.1mg 同位体比 58.0%) を用い、 ^{244}Cm 、 ^{246}Cm について、～数百 eV の領域まで中性子捕獲反応断面積を測定する。

4. 研究成果

J-PARC/MLF の BL04 の全立体角 Ge スペクトロメータ設置箇所中心位置 (L=21.5m) に、 ^{244}Cm 試料 (^{244}Cm : 1.8GBq, 0.6mg 同位体比 91.6%)、 ^{246}Cm 試料 (^{244}Cm : 1.7GBq, 0.6mg 同位体比 29.0%、 ^{246}Cm : 12.1MBq, 1.1mg 同位体比 58.0%) を設置し、全立体角 Ge スペクトロメータを用いて測定した。各々の試料の測定時間は 32 時間及び 48 時間である。

測定時の J-PARC の運転状況は「25Hz、120kW、ダブルパンチモード」である。また、バックグラウンドの低減のため、追加遮蔽として検出器の前面に 5mmt の鉛板及び 10mmt の

90wt%B4C 入りゴムを設置した。ビームダクト中の空気による中性子の散乱低減であるが、RI 試料はその構造上真空状態では使用できないため、ビームダクトに He ガスを流した状態で測定を行った。

また、高速データ収集システムの不感時間の補正のために、ランダムパルスジェネレータで作製したランダムタイミングパルスを、全ての Ge 検出器の Pre. Amp. の test 入力に分岐して入力し、高速データ収集システムで測定するとともに、デジタルカウンターを用いて入力した波形の数を別途測定した。より詳細なバックグラウンド評価のために、Cm 試料と同一の構造を持つ Al ダミーケース (286mg) 及び Blank (Sample Holder のみ) についても同様の測定を実施した。

測定核種の一つである ^{244}Cm は

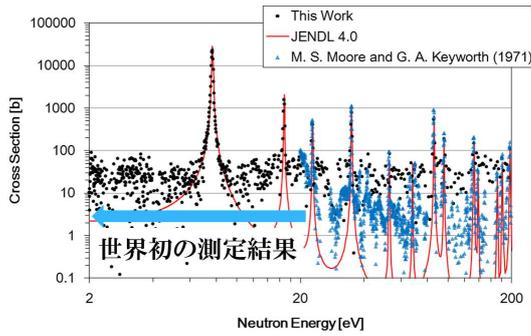
1. 半減期が 18.1 年と短く比放射能が高い。
(今回の ^{244}Cm 試料の場合、試料重量 0.6mg で放射能は 1.8GBq)
2. 自発核分裂する核種である。
3. 不純物として混じりこむ ^{245}Cm 、 ^{247}Cm の核分裂反応断面積が大きい。

等の問題がある。そこで、中性子捕獲反応断面積の高精度な測定の実現のため、

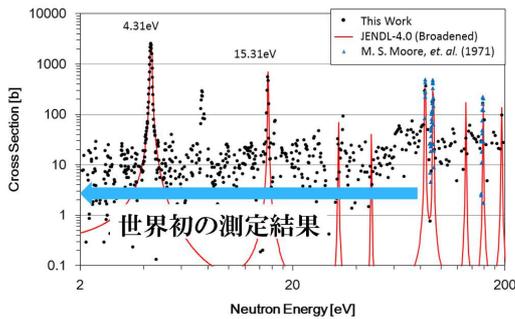
- ・3秒に1度長時間の測定ができる J-PARC 特有の運転パターンに着目し、1 回前の中性子パルスの影響及び崩壊 γ 線、自発核分裂等の影響による B. G. を精度よく決定する手法。
- ・パルサーからのランダムタイミングパルスを即発 γ 線と同時に測定する事により、データ収集系の不感時間を $1\mu\text{s}$ 単位で高精度に補正する手法。
- ・IP を用いて得られた詳細な中性子束の 2 次元分布を用い、モンテカルロ計算により自己吸収及び多重散乱の補正と試料の設置位置のずれによる系統誤差の評価を行う手法。
- ・核分裂反応に起因する γ 線の影響を ^{245}Cm の核分裂反応の共鳴から評価・補正する手法。
- ・娘核種の ^{240}Pu の第一共鳴を用いて規格化を行う事により、試料重量に起因する誤差を低減する手法

等の開発をコリメータの改良とともに実施し、1～300 eV の範囲で中性子捕獲反応断面積を導出した。

図 5 に今回得られた ^{244}Cm 、 ^{246}Cm の中性子捕獲反応断面積を JENDL-4.0 及び過去の実験値 [4] と比較したものを示す。図からわかる通り、20 eV 以下の 4 本の共鳴については世界で最初に得られた実験値です。また、測定結果は JENDL-4.0 の評価値を支持する結果となり、JENDL-4.0 の信頼性を実験により確認することができた。また、得られた中性子捕獲反応断面積の誤差は ^{244}Cm 及び ^{246}Cm の 7.661 及び 4.314eV の共鳴のピークで 5.8% 及び 6.6% と高精度の結果を得、要求精度を満足することができた。



(a) ^{244}Cm の中性子捕獲反応断面積



(b) ^{246}Cm の中性子捕獲反応断面積

図5 ^{244}Cm (a)及び ^{246}Cm (b)の中性子捕獲反応断面積値。ANNRIでの測定結果(黒丸印)を評価値(JENDL-4.0、赤線)及び過去の実験値(青三角印)と比較したもの。20 eV以下の4本の共鳴は、過去の実験で測定されておらず、世界で最初に得られた実験値である。

これらのことから改良されたANNRIは、原子力基盤データとして重要な放射性核種の核データの整備に大きく貢献することが期待されます。

[4] 1] M. S. Moore et al., Physical Review C, 3, 1656 (1971).

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)

[雑誌論文] (計1件)

A. Kimura, T. Fujii, S. Fukutani, K. Furutaka, S. Goko, K. Y. Hara, H. Harada, et al. "Neutron-capture cross-sections of ^{244}Cm and ^{246}Cm measured with an array of large germanium detectors in the ANNRI at J-PARC/MLF", J. Nucl. Sci. Technol., 査読有, Vol 49, 2012, pp. 708-724
DOI:10.1080/00223131.2012.693887

[学会発表] (計3件)

A. Kimura, T. Fujii, S. Fukutani, K. Furutaka, S. Goko, K. Y. Hara, H. Harada, et al. "Neutron capture cross section

measurements for radio isotopes using the ANNRI in J-PARC/MLF", KNS/AESJ Joint Workshop on Reactor Physics and Nuclear Data (招待講演), 2013年03月25日、近畿大学(大阪府)

A. Kimura and H. Harada, "Nuclear Data Measurements using the ANNRI in J-PARC/MLF", The 12th Korea-Japan Meeting on Neutron (招待講演), 2013年02月05日、琉球大学(沖縄県)

A. Kimura, "Activities of Nuclear Data Measurements using the ANNRI in J-PARC/MLF", Italy-Japan Symposium on Heavy Ion Physics (招待講演), 2012年11月22日、ミラノ(イタリア)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

木村 敦 (KIMURA ATSUSHI)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学研究部門・研究副主幹
研究者番号: 30360423