

## 資料紹介

### その 4

#### Proceedings of a Consultants' Meeting on Nuclear Data for Reactor Neutron Dosimetry

INDC(NDS)-56/U

#### 原子炉中性子線量測定のための核データに関する会議提出論文集

宮坂 駿一(原研)

1973年9月Viennaで開かれた上記表題の会議に提出された9編の論文と、会議における結論と勧告についてまとめたものである。1971年原子炉放射線測定に関する国際ワーキンググループが、高速炉の開発、特に放射線損傷の研究にとって放射化法による中性子計測の重要性を強調したのをうけて、IAEAのNuclear Data Sectionが放射化法に用いられる核反応のサーベイを行なった(INDC(NDS)-47/L, Part 1, Part 2)。一方、原子炉線量計測に関するEURATOMワーキンググループは、現在の線量計測の誤差の最大の原因は核データの不確かさによるという意見を出した。今回の会議はこのような経過のもとに開かれたものである。

以下簡単に、会議で報告された論文の内容を紹介する。

#### 1. Need for Internationally Recommended Cross Sections for Neutron Dosimetry Reactions (U. Farinelli)

— 中性子線量測定反応に関する断面積について国際的勧告の必要性 —

検出器の断面積の精度は、それを用いて測定した積分量の要求精度によって決定される。放射線損傷問題などではその精度が10%ないし20%といわれている。この精度を与えるためには、検出器の微断面積にはさらにきびしい精度が要求されることになる。

この会合の最終目標は、この論文に明確に述べられている。

#### 2. Remark on Fluence Determination by Activation Methods (W. L. Zijp)

— 放射化法によるフルューエンス決定上の注意事項 —

放射化法によって中性子束を求める際の一般的注意事項を述べたもので、放射化法による測定を行なおうとする研究者にとっていろいろと参考になるであろう。放射化法による測定の精度は、主

として使用する核データに依存するので、使用した断面積を常に明らかにしておく必要があることを強調している。

### 3. Fast Reactor Flux-Spectral Characterization

(W.N. McElroy)

種々の放射化検出器の反応率からSAND-IIを用いて中性子スペクトルを求め、その精度と誤差の評価を行なった結果について報告している。ここで用いている放射化検出器群を用いることにより、高速炉の中性子スペクトルを±10〜30% (1σ)の精度で求めることができる。

この結果を反映させながら、反応断面積に対するENDF/Bファイルを作成中である。その精度はEBR-IIとFTRでの $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{U}$ の fission reaction rate に対して±5%, 残りの fission reaction rate と fission 以外の reaction rate に対して±10%以内が目標値である。

### 4. Remarks on Response Ranges of Activation Detectors

(W.L. Zijp) — 放射化検出器の応答領域に関する注意事項 —

放射化検出器にCdあるいは $^{10}\text{B}$ のカバーをつけたときと、つけない裸の場合とで、その閾反応の全応答の大きさにどの程度の違いがあるかを、種々の中性子エネルギースペクトル場について検討したもので、

1. 閾検出器の場合、Cdカバーの有無で約2%の差がある。
2. 典型的な熱中性子スペクトルに対して、約600eV ( $^{63}\text{Cu}(n, \gamma)$ 反応)から475keV ( $^{237}\text{Np}(n, f)$ )までのエネルギー範囲内に90%応答領域をもつ裸の検出器はない。
3. 2と同じスペクトルに対して、約10keV ( $^{63}\text{Cu}(n, \gamma)$ )から約475keV ( $^{237}\text{Np}(n, f)$ )までのエネルギー範囲内に90%応答領域をもつCdカバー検出器はない。
4. あるスペクトルに対して、ある2つの検出器が90%の応答領域をもっているとしても、それらが自動的に他のスペクトルに対しても90%の応答領域をもつとは限らない。

以上の議論を3つの表と12枚の図をもって説明している。

### 5. Critical Comparison of Spectrum Unfolding Codes

(R. Diercks) — スペクトル解析コードの相互比較 —

スペクトルをunfoldingするコード, PARAMETER, RDMM, MESCO,

SPECTRAおよびSAND-IIについて、それぞれ簡単な説明を行ない、続いて各コード間の比較を行なっている。Table 1 に各コード間の比較を行なった結果について示す。その結果から次の結論を下している。

1. 上記unfoldingコードの中ではSPECTRA-REPETE, SAND-IIが推薦される。
2. unfolding code に用いる初期スペクトルは、そのスペクトルを用いて求めた検出器の放射化量と実験から得られた放射化量との比が30%を越えないものを用いるべきである。
3. SPECTRA-REPETEとSAND-IIは同じ結果が得られた。
4. SAND-IIは、他のコードに比し、数学的取扱いが簡単で、計算時間が早く、初期スペクトルに影響されにくいなどの利点を持ち、優れている。

さらにSPECTRAとSAND-IIを用いて誤差の解析を行なっている。誤差の原因としては、①数学上の取扱いから生じる本質的な誤差、②検出器の断面積の不確かさ、③unfolding codeで求める中性子束のエネルギー点の数、④放射化量の測定誤差、⑤初期スペクトルの影響などが考えられる。これらの誤差が最終的に求めるスペクトルに及ぼす影響を確かめた結果、SPECTRAとSAND-IIは微分中性子スペクトルを±5%以内で定めることができ、スペクトルの積分値は標準スペクトルと1~2%以内で一致させることができることを示している。ただし、計算条件として次の点を仮定した。①放射化量の測定誤差が1~2%、②求めるエネルギー範囲を検出器がカバーしている。③初期スペクトルには、反応率で比較する場合、実験値と±30%以内にある。

## 6. Role of Standard Neutron Spectra in Differential Flux Determination (R. Dierckx)

— 微分中性子束決定のための標準中性子スペクトルの役割 —

放射化法による速中性子スペクトルの測定には、2つの誤差、即ち放射化量の絶対測定と放射化断面積の不確かさである。この誤差を減じる一つの方法として、熱中性子束測定に用いられている標準中性子場と同様に速中性子に対しても標準中性子場を設定し、相互比較による較正が有効であることを例をもって示している。

## 7. Methods for Detection of Radiation in Monitors Irradiated by Neutrons (K.H. Czock)

— 中性子照射されたモニタ箔の放射化量の決定方法 —

TABLE 1 : COMPARISON OF THE DIFFERENT CODES

	PARAMETER	RDMN	MESCO	SPECTRA REPETE	SAND II
energy range coverable	thermal to fast (14 MeV)				
computing time ***	0.6 m	0.8 m	10 m	5 m 8 m(V)	1 m (V)
solution model	simple	matrix equations (sensitive to ill conditioning)			simple no matrix equations
solution	physical bound to mathematical expressions	not always physically acceptable	sometimes no solution is found	lowest Q* avoiding oscillations and negative fluxes	
Q attainable	moderate bound to solution imposed			as low as one likes to have it	
sensitivity to trial spectrum	not	great	greatest	small	smallest
spectral details	few, bound to solution imposed			moderate bound to broad resolution of detectors	
error in the ** integral spectrum	+2-3% relative to the standard spectrum				
error in the ** differential spectrum	bound to solution imposed			+5% in each point	

\*Q is the least squares difference between the measured and calculated activities

\*\* in the energy range covered by the detectors for detector activity errors of better than ±2% (intercalibrated in a standard spectra)

\*\*\* on IBM 360/65 for a typical case, except(U) on UNIVAC 1108

原子炉中の速中性子モニタのための最も手軽な方法として閾検出器の利用は広く行なわれている。その測定には、放射化量の便利な測定方法とエネルギーの関数として反応断面積の正確な情報が必要である。報告の前半では放射化量の絶対測定に関する一般的事項を述べ、後半では $^{103}\text{Rh}(n, n')$   
 $^{103m}\text{Rh}$  反応について述べている。Rh は 0.01 MeV から 1 MeV までのエネルギー範囲に対して最も期待される反応である。このエネルギー範囲は放射化法によるエネルギースペクトル測定でギャップとされて来たエネルギーである。

Rh は断面積、decay scheme の不確かさ、 $^{103m}\text{Rh}$  の較正の困難、Rh 箔内での 20 keV K-X 線の非常に強い自己吸収効果、さらに純度 99.99% 以上の Rh 金属の加工ができないなど多くの問題をかかえているが、しかし $^{103}\text{Ru}$  や $^{103}\text{Pd}$  などの反応を利用することによりその困難を克服できる可能性がある。

## 8. Important Nuclear Reactions and Nuclear Quantities

Required (W.L.Zijp) — 要求される核反応と核データ —

中性子線量測定の分野では、多くの核反応(約 75 種類)が利用されているが、これらの反応の核データ、崩壊型、あるいは断面積などの諸データが十分精度よく与えられていない。例えば断面積における誤差は 15%~25% 以上もある。0.01 MeV~1 MeV で興味のある $^{103m}\text{Rh}$  のデータ、unfolding code で必要とされる検出器の数を減らすための multi-responce detector (Ex.  $^{54}\text{Fe}(n, p)$ ,  $^{56}\text{Fe}(n, p)$ ,  $^{58}\text{Fe}(n, \gamma)$ ) の利用、放射化箔の burn-up による 2 次反応の生成、熱中性子によるかぶり、その他多くの問題がある。

これらの問題点に関して、データの収積、評価を積極的に行なう必要のあることを例をあげながら述べ、最後に IAEA の Nuclear Data Section はこれらの反応について、断面積の現状、推薦すべき decay scheme の編集、評価等について継続的に報告するとともに、これらのデータの比較、評価に関する作業を促進(助成)すべきであることを述べている。

## 9. Remarks Concerning Cross Sections for Threshold Detector (H. Liskien and A. Paulsen)

— 閾検出器の断面積に関する注意 —

閾検出器の断面積の測定に関する要求が WREND A によせられているが、しばしばそのエネルギー範囲が 15~18 MeV にまで及んでいる。しかしある反応については、必ずしもそのように高いエネルギーまで必要としない。微断面積の測定精度および積分測定の精度から、断面積測定エ

エネルギーの上限を閾エネルギーに 6 MeV 加えた点までとれば充分であると提案している。

微分断面積に関しては、6-12 MeV のエネルギー範囲の測定データが極めて少ない。これは加速器の条件にもよるが、より積極的な測定が望まれる。また理論計算による断面積データは、direct reaction mode や pre-equilibrium emission の無視あるいはパラメータ（レベル構造や転移係数）に関する不十分な知識のため、あまり精度のよい結果を与えていない。その他 subthreshold response や、積分データの精度等について論じ、最後に現在利用可能なデータの現状について、各種の機関における compilation の状況を総括している。

## 10. Conclusion and Recommendation of the Meeting

### — 本会議における結論と勧告 —

会議の結論と勧告を3つのカテゴリーに分けて行なっている。

#### I 一般的結論と勧告

放射化法による中性子線量測定的重要性が増大しているにもかかわらず、それらの検出器の断面積、崩壊定数等に関する不確かさがいぜんとして残されている。特に断面積の積分測定と微分測定との間には許容できない差異が存在する。断面積測定のための標準中性子場の設定、ベンチマーク実験の実施などが望まれる。またデータの交替などに関する各研究機関の協力が必要である。IAEA の Seibersdorf Laboratory と他の標準的研究所はこの分野における重要な役割を積極的に果たすべきである。

#### II 核データに関する結論と勧告

過去15年間にわたる努力にもかかわらず、断面積の精度が最終目標値である±5%で得られている反応はきわめて少ない。これは核データに関する知識の不足と、測定手段あるいは測定条件の設定が不適切であったためと考える。本会議では、検出器を2つのカテゴリーに分け (Table 2, Table 3 参照)、それぞれについてベンチマーク実験を行なうことを勧告している。ベンチマーク実験として9種類の中性子スペクトルをもつ線源を提案している。

#### III その他の結論と勧告

もし可能ならば標準中性子場における検出器の inter-calibration を行なうことは、反応率の決定における誤差を減ずることができるという観点から、この計画を核分裂スペクトル場をもつそれぞれの研究機関で行なうことを勧告している。この intercalibration を行なうためには、それに用いる検出器の物理、化学的性質および加工条件などを一定に保つ必要がある。こ

TABLE 2

reaction	response remarks	general remarks	special remarks
${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$		4 6	
${}^{10}\text{B}(n,\alpha){}^7\text{Li}$		4	
${}^{27}\text{Al}(n,\alpha){}^{24}\text{Na}$	6.4 ... 11.9 MeV	3 4 5 7 8 9 10 a d	
$\text{Ti}(n,x){}^{46}\text{Sc}$	3.4 ... 9.1 MeV	1 3 4 5 7 8 9 10 a d	Comprises ${}^{46}\text{Ti}(n,p)$ and also ${}^{47}\text{Ti}(n,d)$ and ${}^{47}\text{Ti}(n,np)$ .
${}^{55}\text{Mn}(n,\gamma){}^{56}\text{Mn}$	$E_T = 337 \text{ eV}$	2 3 4 7 b d	
${}^{58}\text{Ni}(n,p){}^{58}\text{Co}$	2.1 ... 7.0 MeV	1 3 4 5 6 7 8 10 a d	Includes ${}^{58}\text{Ni}(n,p){}^{58}\text{Co}^m$
${}^{63}\text{Cu}(n,\gamma){}^{64}\text{Cu}$	$E_T = 580 \text{ eV}$	2 3 4 5 7 a b d	
${}^{115}\text{In}(n,n'){}^{115}\text{In}^m$	1.2 ... 5.8 MeV	1 3 4 5 6 7 8 10 a d	Low threshold; of particular importance /4/, /7/.
${}^{127}\text{I}(n,2n){}^{126}\text{I}$	10.0 .. 14.6 MeV	1 3 5 7 8 10 a d	High threshold.
${}^{197}\text{Au}(n,\gamma){}^{198}\text{Au}$	$E_T = 4.90 \text{ eV}$	2 3 4 5 6 7 a b d	
${}^{235}\text{U}(n,f)^*$	0.19 ... 5.1 MeV	3 4 5 6 7 8 a c d	} = The yields for the fission products ${}^{95}\text{Zr}$ , ${}^{137}\text{Cs}$ , ${}^{140}\text{Ba}$ and ${}^{148}\text{Nd}$ belong to the second category.
${}^{238}\text{U}(n,f)^*$	1.5 .... 6.7 MeV	1 3 4 5 6 7 8 10 a c d	
${}^{237}\text{Np}(n,f)^*$	0.69 ... 5.6 MeV	3 5 6 7 8 10 a c d	
${}^{239}\text{Pu}(n,f)^*$	0.27 ... 5.1 MeV	3 4 5 6 7 a c d	

TABLE 3

reaction	response remarks	general remarks	special remarks
$^{23}\text{Na}(n,\gamma)^{24}\text{Na}$	$E_T = 2850 \text{ eV}$	2 3 4 7	b d
$^{30}\text{Si}(n,\gamma)^{31}\text{Si}$		4 7	
$^{45}\text{Sc}(n,\gamma)^{46}\text{Sc}$		3	d
$^{51}\text{V}(n,\gamma)^{52}\text{V}$	$E_T = 4162 \text{ eV}$	2 4 7	b
$^{58}\text{Fe}(n,\gamma)^{59}\text{Fe}$		3 4 7	c d
$^{58}\text{Co}^m(n,\gamma)^{59}\text{Co}$			) Important to derive burn-up ) correction for nickel as ) fast neutron detector.  $\sigma_0$ , I and $\sigma(2)$ of particular importance /4/.
$^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{59}\text{Co}$			
$^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$	$E_T = 132 \text{ eV}$	2 3 4 6 7	
$^{64}\text{Ni}(n,\gamma)^{65}\text{Ni}$		4 7	
$^{71}\text{Ga}(n,\gamma)^{72}\text{Ga}$	$E_T = 95 \text{ eV}$	2	b
$^{75}\text{As}(n,\gamma)^{76}\text{As}$	$E_T = 47 \text{ eV}$	2	b
$^{80}\text{Se}(n,\gamma)^{81}\text{Se}$	$E_T = 1965 \text{ eV}$	2	b
$^{81}\text{Br}(n,\gamma)^{82}\text{Br}$	$E_T = 101 \text{ eV}$	2	b
$^{93}\text{Nb}(n,\gamma)^{94}\text{Nb}$		4 9	Suggested as possible long term fluence detector /7/.
$^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$	$E_T = 12 \text{ and } 480 \text{ eV}$	2 4 7	b
$^{100}\text{Mo}(n,\gamma)^{101}\text{Mo}$	$E_T = 97.3 \text{ and } 364 \text{ eV}$	2	b
$^{103}\text{Rh}(n,\gamma)^{104}\text{Rh}$	$E_T = 1.257 \text{ eV}$	2 4	b
$^{108}\text{Pd}(n,\gamma)^{109}\text{Pd}$	$E_T = 2.96 \text{ eV}$	2	b
$^{109}\text{Ag}(n,\gamma)^{110}\text{Ag}^m$		4 7	c d  Together with $^{59}\text{Co}(n,\gamma)$ important in double foil technique to de- termine fluence of thermal and intermediate neutrons. Long $t_{1/2}$ replacement for $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$
$^{114}\text{Cd}(n,\gamma)^{115}\text{Cd}$	$E_T = 120 \text{ eV}$	2	b
$^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116}\text{In}^m$	$E_T = 1.46 \text{ eV}$	2 3 4 5 7	a b d
$^{121}\text{Sb}(n,\gamma)^{122}\text{Sb}$		2	b
$^{133}\text{Cs}(n,\gamma)^{134}\text{Cs}$	$E_T = 5.9 \text{ eV}$	2	b
$^{139}\text{La}(n,\gamma)^{140}\text{La}$	$E_T = 72.4 \text{ eV}$	2 4 7	b
$^{151}\text{Eu}(n,\gamma)^{152}\text{Eu}^m$		4 7	
$^{152}\text{Sm}(n,\gamma)^{152}\text{Sm}^m$	$E_T = 8.01 \text{ eV}$	2	
$^{164}\text{Dy}(n,\gamma)^{165}\text{Dy}$		4 7	a
$^{175}\text{Lu}(n,\gamma)^{176}\text{Lu}$		4 7	
$^{176}\text{Lu}(n,\gamma)^{177}\text{Lu}$		4 7	
$^{181}\text{Tm}(n,\gamma)^{182}\text{Tm}$			d  Long $t_{1/2}$ replacement for $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$
$^{186}\text{W}(n,\gamma)^{187}\text{W}$		2 4 7	b
$^{187}\text{Re}(n,\gamma)^{188}\text{Re}$	$E_T = 18.8 \text{ eV}$	2	
$^{191}\text{Ir}(n,\gamma)^{192}\text{Ir}$		2	
$^{198}\text{Pt}(n,\gamma)^{199}\text{Pt}$		2	
$^{232}\text{Th}(n,\gamma)^{233}\text{Th}$		3	
$^{238}\text{U}(n,\gamma)^{239}\text{U}$		3 4 6 7	Of particular importance /4/.



reaction	response remarks	general remarks	special remarks
$^{23}\text{Na}(n,2n)^{22}\text{Na}$		1	Very high threshold = 12.5 MeV
$^{24}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$	6.5...11.5 MeV	1 3 5 7 10	d
$^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$	3.5... 9.3 MeV	1 3 4 5 6 7 8 10	d Of particular importance [4].
$^{28}\text{Si}(n,p)^{28}\text{Al}$	5.4...10.1 MeV	3	
$^{31}\text{P}(n,p)^{31}\text{Si}$	2.2... 7.0 MeV	1 3 4 5 7 8 9 10	d
$^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$	2.5... 7.5 MeV	1 3 4 5 7 8 9 10 a	d
$^{34}\text{S}(n,\alpha)^{31}\text{Si}$	5.1...10.4 MeV	3	
$^{35}\text{Cl}(n,\alpha)^{32}\text{P}$	3.2... 8.0 MeV	3	
$^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$	3.4... 9.1 MeV	1 3 4 5 7 8 9 10 a c d	
$^{47}\text{Ti}(n,p)^{47}\text{Sc}$	2.1... 7.0 MeV	1 3 4 5 7 8 9 10	d
$^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$	6.6...12.8 MeV	1 3 4 5 7 8 9 10	d
$^{55}\text{Mn}(n,2n)^{54}\text{Mn}$		1 4 5 7 8 9 10	d Possible long term fluence monitor.
$^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$	2.3... 7.8 MeV	1 3 4 5 6 7 8 10 a c d	d Of particular importance [4].
$^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$	5.5...11.0 MeV	1 3 4 5 7 8 9 10	d
$^{59}\text{Co}(n,p)^{59}\text{Fe}$		1	Might be of interest.
$^{59}\text{Co}(n,\alpha)^{56}\text{Mn}$		1 4 5 7 8 9 10	
$^{59}\text{Co}(n,2n)^{58}\text{Co}$		1	
$^{58}\text{Ni}(n,\alpha)^{55}\text{Fe}$		4 6 10	Of particular importance [4].
$^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$	13.2...17.0 MeV	1 3	Very high threshold.
$^{60}\text{Ni}(n,p)^{60}\text{Co}$	2.7... 9.6 MeV	3	
$^{63}\text{Cu}(n,\alpha)^{60}\text{Co}$	6.1...11.3 MeV	1 3 5 6 7 8 10 a c d	d Of particular importance [4].
$^{63}\text{Cu}(n,2n)^{62}\text{Cu}$	11.9...16.4 MeV	1 3 5 7 8 10	
$^{65}\text{Cu}(n,p)^{65}\text{Ni}$		1 3	d
$^{65}\text{Cu}(n,2n)^{64}\text{Cu}$		1 7 8 10	
$^{64}\text{Zn}(n,p)^{64}\text{Cu}$	2.3... 7.8 MeV	1 3 5 7 8 10	d
$^{64}\text{Zn}(n,2n)^{63}\text{Zn}$		1	
$^{90}\text{Zr}(n,2n)^{89}\text{Zr}$	12.5...16.7 MeV	3	d
$^{93}\text{Nb}(n,n')^{93}\text{Nb}^m$		4 6 7 10	Low threshold; of particular importance [4], [7].
$^{93}\text{Nb}(n,2n)^{92}\text{Nb}$		4 5 7 8 10	
$^{92}\text{Mo}(n,p)^{92}\text{Nb}$		5 7 10	
$^{94}\text{Mo}(n,p)^{94}\text{Nb}$			Possible long term fluence monitor.
$^{103}\text{Rh}(n,n')^{103}\text{Rh}^m$		4 6 7 8 10	Low threshold; of particular importance [4], [7].
$^{169}\text{Tm}(n,2n)^{168}\text{Tm}$			
$^{175}\text{Lu}(n,2n)^{174}\text{Lu}$			
$^{232}\text{Th}(n,f)$	1.5... 7.2 MeV	1 3 4 5 6 7 8 10	d Of particular interest [4]; fission product activities contain information on irradiation history.

これらの作業は、IAEAのSeibersdorf Lab.が中心になって他の同じようなセンターと共同して行なりべきである。またスペクトル解析のためのunfolding codeについても、使用するライブラリ、十分なunfolding結果を得るための最低エネルギー群数などについての情報交換が必要である。

以上会議に提出された論文の内容を簡単に紹介したが、我々が常にこの分野で問題となっていることを改めて整理しなおし、IAEAを中心により積極的に各機関の協力の必要性を力説した会議であったよりである。

Rhについては1 MeV から0.01 MeV までのエネルギー領域で使えそうな検出器であるとして、筆者らも使用した経験があるが、会議でも論じられているようにまず信頼のおけるデータが少ないことを痛感した。会議ではベンチマーク実験の提案がなされ、標準中性子場として9種類の中性子源が提案されているが、我が国においても同様の試みが必要であろう。筆者らはunfoldingコードとしてRDMM法にもとづくRUNA-5とSAND-IIを使用した経験があるが、本会議でも述べられているようにSAND-IIの方が優れているよりである。

(以上)