

話 題 (そのⅠ)

Reactor Dosimetry Cross Section について 第1回 ASTM—Euratom Symposium on Reactor Dosimetry から

木村 逸郎 (京大原子炉実験所)

1. Introduction

1975年9月22日から26日まで、オランダ国PettenのReactor Centrum Nederlandに隣接したEuratomのPetten EstablishmentにおいてASTM (American Society for Testing and Materials) とEuratom共催の第1回 Reactor Dosimetryに関する国際シンポジウムが開催された。この会の概略については既報¹⁾にゆずるとして、ここではこのシンポジウムで発表された論文を中心に、いわゆる reactor dosimetry cross section とこれに関連したことについて紹介する。

2. Needs, Accuracies and Implications

これは本シンポジウムの第1セッションの名称である。即ち、このセッションでは reactor dosimetry の必要性、精度それに意義についての総括的な話がいくつかあった。

まず、Westinghouse Hanford Company, HEDLのW.L.McElroyらが“Neutron Environmental Characterization Requirements for Reactor Fuel and Material Development and Surveillance Program”という論文を発表した。以下にその概要を述べよう。

表題のように、原子炉燃料材料の開発と健全性監視という点から neutron dosimetry と照射損傷評価との標準化が国際的に進められている。これによって、FBRその他の原子炉の燃料材料の寿命を延長し、原子炉の安全性を増進することが可能である。また、FBRでは、燃料材料の工学的性質をより正確に知ることによって倍増時間を短縮することも可能である。こうしたことによって、原子力発電の原価低減に寄与できる。さらに、この手法を核融合炉の開発へ応用できよう。

FBRを経済的に可能にするためには、その燃料材料に対し、 $E > 1 \text{ MeV}$ の中性子を 2.5×10^{23} まで照射することを考えなければならない。この場合、中性子線量測定と照射損傷評価は極めて大きな意味をもってくる。このFBR計画に対する検討の結果からして、核分裂率、燃焼及び中性子束とフルエンスの目標精度は1~3%となる。現状では、フルエンス測定精度は5~10%だが最新の dosimetry の手法を応用すれば、これは2~5%になりうる。一方、計算によってこの値を出せば25%ないしはそれより悪い精度しか得られない。

一方、核融合がITERについては、フルエンスの精度5%が数年間の目標となるのが、現在でもすでに、5~10%に達している。しかし照射損傷や誘導放射能の点から重要なスペクトルに関しては、最も良い場合でも25%の精度しか得られていない。とくに100~400 keV と6~12 MeV の間の値が不確かさが大きく、前者で200~400%, 後者が±50%という値であ

る。そこで、目標は、 $10 \sim 20 \text{ MeV}$ にわたり、分解能 $100 \sim 400 \text{ keV}$ 、精度 $\pm 25\%$ 以下とすることである。CTRの開発にも関連して、大型加速器による spallation source の使用が試みられはじめている。この場合、 $15 \sim 20 \text{ MeV}$ というような高エネルギー中性子の線量測定の問題が生じる。スペクトルについては、飛行時間法によるしかない。一般的なフルエンス測定精度は最良の場合でも $\pm 20\%$ しかない。第1表は現状における原子炉と CTR の environmental な特性の不確かさを表にしたものである。

1例として、EBR-IIにおいて、炉物理計算によって求めた中性子束といくつかの放射化箱を用いて SAND-II 法によってデータ処理して求めた中性子束の違いを第1図に示す。これからみると、最大の相違は 40% にもなるが、全フルエンスを考えた積分値を出すと $5 \sim 10\%$ 以内で一致する。CTRではこのような試みはまだない。

このように、McElroyが唱えた中性子フルエンスの目標精度 $1 \sim 3\%$ からすると reactor dosimetry cross section の目標精度はやはり $1 \sim 3\%$ 以内ということになる。筆者は、これは非常に難しいことだろうと考えている。

このあと、イタリーの Prof. Farinelli の “Dosimetry Methods for Structural Material Irradiation in the European Countries” というレビューがあった。この中で、reactor dosimetry の方法はかなり進歩したものの、実際には、まだ多くの問題が存在していることが示された。次に、米国原子力規制委 NRC の C. Z. Serpan, Jr. が “Influence of Neutron Dosimetry on Radiation Damage Considerations in LWR Pressure Vessels” という論文を発表した。

3. Dosimetry Applications のトピックス

上述のセッションに引き続いて、Spectrometry, Activation and Unfolding, Calculations, Reaction Rate Measurements (Fission Techniques, Non-Fission Techniques), Nuclear Heating などのセッションがもたれた。また、Unfolding, Solid State Track Recording, High Energy Dosimetry and CTR Applications, Dosimetry Materials with Emphasis on High Temperature Application などに関する workshops が開かれた。これらはいずれも興味あるものであったが、ここでは省略し、次の Dosimetry Applications セッションで中性子断面積と関係のありそうなトピックスについて触れる。

まず第1は、H. Farrar 等のレビュー論文 “Dosimetry for Fluence Applications” がある。これは、表題のとおり中性子フルエンス測定、すなわち neutron dosimetry のレビューであり、第2表のようなまとめを行っていた。こうした一般的な話よりも、むしろこの論文の中で詳しく紹介された Farrar 自身の仕事、すなわち (n, α) 反応で生成するヘリウムを測定することが非常に面白かった。これは、小型のバナジウムキャプセルにつめられた試料中の (n, α) 反応生成ヘリウムを質量分析器で測定するものであって、現在約 2% の精度という。彼らが試みている核種とそれを含む試料を第3表に示しておこう。このような手法は今後発展するのではなからうか。

次に、 $^{93}\text{Nb}(n, n')^{93\text{m}}\text{Nb}$ 反応とその利用に関する話が2篇あった。1つは、フランスの R. Lioret の“Application of the $^{93}\text{Nb}(n, n')^{93\text{m}}\text{Nb}$ Reaction to the Dosimetry of the Testing Material Irradiations”であり、他はスイスの F. Hegedues の“Utilization of the Reaction $^{93}\text{Nb}(n, n')^{93\text{m}}\text{Nb}$ for Fast Neutron Fluence Measurement”である。この反応はしきい値の低いしきい反応としてかねてから注目されてきているが、その断面積の形状が正確にわからなかったし、また誘導放射能の測定にも問題が多かった。これらの論文では、いずれも Si(Li) カウンターで誘導放射能を測る方法を用いている。エネルギー依存断面積については Hegedues の学位論文の仕事があり、また、原子炉スペクトルの中性子に対する平均断面積としては、 $102 \pm 30\text{mb}$ とか $97 \pm 35\text{mb}$ という値があることも示されている。 $^{93\text{m}}\text{Nb}$ の半減期については 11.4 ± 0.9 年という値がとられている。また、相当に問題があるように思われるものの、この反応を利用することの途が大分開かれたことは、かねてからこの反応に注目していたものの一人として嬉しい気がするのとともに、やられたという気もした。なお、ニオブ中に Ta があると妨害をするとのことであった。Lioret の論文からニオブに関するデータを第4表に引用しておく。

4. Cross Sections and Benchmarks

上述のセッションの次には、Damage Analysis のセッションがあり、その次に Cross Sections and Benchmarks のセッションがあった。もちろん、Damage Analysis も中性子断面積と深い関係を有しているが、ここでは省略する。

ところで、Cross Sections and Benchmarks のセッションの冒頭には、Euratom の Geel の A. Paulsen と米国 BNL の B. A. Magurno 連名の“Differential Neutron Data for Reactor Dosimetry”というレビューがあった。現在、ENDF/B-IV には26核種の36反応に及ぶ dosimetry cross section が含まれているが、²⁾このレビューでは、これとそれ以外のライブラリについていろいろと説明していた。現在、主なライブラリに含まれる反応の一覧を第5表に引用しておこう。さらにこの論文では Fabry の積分測定による平均断面積との比較がなされていた。

次は、ベルギーの A. Fabry らの“Reactor Dosimetry Integral Reaction Rate in LMFBR Benchmark and Standard Neutron Fields : Status, Accuracy and Implications”というレビューであった。これは、いくつかの高速中性子標準場で測定された平均断面積と前述の Paulsen らのいうエネルギー依存断面積から計算して求めた平均断面積の比較の話が中心であった。

このあと、西ドイツの W. G. Alberts らが“Measurements of Integral Cross Sections in the Californium-252 Fission Neutron Spectrum”という論文を発表した。表題のとおりの内容である。エネルギー依存断面積の評価の上で、この方法も有効であろう。

次に、筆者らが“Intercomparison of Reactor Dosimetry Cross Sections Measured in a Thermal Reactor, in a Fast Reactor and with an Enri-

ched Uranium Fission Plate”という論文を発表した。これは、熱中性子炉としてKUR炉心内、高速中性子炉としてYAYOI炉心内、それにKUR重水設備に置かれた濃縮ウラン核分裂板とでそれぞれ求められたしきい反応平均断面積の相互比較とさらに他の値との比較を行なったものである。筆者らの平均断面積と前述のFabryグループのそれを比べると大略10%筆者らの値が小さいのが常であり、目下論争中である。実際、このシンポジウムでも、発表に先立ってFabryらの泊っているホテル(ペンション)において、IAEAのVlasovらをはさみ、筆者とFabryとの長い論議があった。筆者は、Fabryの標準がおかしいのではないかと訴えていることを訴えたが、Fabryはなっとくしない。そこで、IAEAに頼んで、国際比較をしたらどうかという話になった。もっとも、その後、約4ヶ月余になるが話の進展してきた様子がないのでどうしたのだろうかと考えていたら、今日になってVlasovから、目下検討中という手紙がきた。

次に、米国ANLのN.D.Dudeyらが“A Detailed Comparison of Differential and Integral Cross Section Measurements”という論文を発表した。これは表題の割にはあまり大したことのない話のように思われた。

次に、イタリアのM.Martiniが“The TAPIRO Fast Source Reactor as a Benchmark to Test Activation Detector Cross Sections”という論文を発表した。これは、筆者らが東大のYAYOIを使わせて頂いて、しきい反応平均断面積を測定したのと似た仕事であるが、また実際の測定はこれからという感じであった。

最後に、“Needs for Reactor Dosimetry Work in Radiation Damage Investigations”というパネル討論会があった。オランダのZijp、米国のMcElroy, Dudey, Serpan, Grundl, フランスのGenthon, イタリアのFarinelli, 西ドイツのSchneider, 英国のWrightというお歴々が段上にあって、話をうまくまとめていった。この中で出た話としては、① 国際協力が必要であること、② 核融合炉のdosimetryのこと、③ 核データのこと、④ データのcostのこと、⑤ 他の分野のグループとの幅広い協力が必要であること、などであった。

5. ま と め

既報¹⁾でも述べたが、このシンポジウムの印象としては、やはり米国とヨーロッパの関係者の仲間うちの感じがしたことである。これは主催者の性格上しかたなかったことかも知れないが、日本でも、こうしたreactor dosimetryやneutron spectroscopyを行なっているグループはかなりあり、そのレベルも決して低くないので、次回^{*}にはもっと沢山の論文発表を期待するとともに、米国とヨーロッパの「仲間うち」の中まで入りこんで大いに議論しあえるようにしたいものである。もう一つは、わが国の中でも、他の分野の人々との交流を含めて、ある程度の組織的な研究が有効ではないかと考えている。

注) * 次回は1977年9月に米国で開催の予定。

文 献

- 1) 木村逸郎：原子力学会誌, 17, 657 (1975)
- 2) B. A. Magurno : ENDF/B-M Dosimetry File, BNL-NCS-50446, 1975

第1表 1975 STATUS - U.S. TEST FACILITIES
ENVIRONMENTAL CHARACTERIZATION PARAMETER UNCERTAINTY ESTIMATES (10)

Parameter	Fast Fission Sources		Fusion Simulation Sources
	In-Core	Out-of-Core	
Reactor Prim Flow	3%		NA*
Subassembly Flow	5%		NA
Reactor Power	3%		NA
Subassembly Power	5-10%		NA
Pin Power	5%		NA
Neutron Flux [Total]	5%	5-20%	10-50%
[0.1<E<15 MeV]	5%	5-30%	10-50%
[1<E<15 MeV]	5-10%	5-20%	5-50%
[E>15 MeV]	NA	NA	>50%
Neutron Fluence [Total]	5-10%	5-30%	10-50%
[0.1<E<15 MeV]	5-15%	5-30%	10-50%
[1<E<15 MeV]	5-20%	5-30%	10-50%
[E>15 MeV]	NA	NA	>50%
Damage Correlation Parameters (a)			
(For Stainless Steel)			
[dpa/sec]	10-30%	10-40%	>30%
[dpa]	20-40%	20-50%	>40%
(Other Materials)			
[dpa/sec]	TBD	TBD	TBD
[dpa]	TBD	TBD	TBD
γ Flux	~10%	>10%	TBD
γ Heat	~10%	>10%	TBD
Isotopic Fission Rate			
[²³⁵ U and ²³⁹ Pu]	5%	5%	10-30%
[²³⁸ U]	5-10%	>5-10%	10-30%
Fuel Burnup			
[Test Sample]	3-5%	NA	NA
[Pin]	5-15%	NA	NA
Other Reaction Rates			
[²³⁸ U Capture]	5-10%	5-20%	NA
[(n,γ)s, (n,p)s, (n,α)s] etc.		2-7%	2-30%
Number of Reactions			
[Long t ^{1/2} , Stable Products]		2-5%	2-20%

* Not applicable.

TBD To be determined.

(a) Two major sources of errors exist in the dpa computational models, the energy partition calculation and the secondary displacement model. A portion of the former and all of the latter error exist as a bias rather than a random error. Thus absolute dpa computations may have large absolute errors (30-40%); however, the random portion may be of the order of ±10%. For most irradiation effects applications, the bias error is of little consequence particularly when empirical correlations are utilized. Thus, flux and fluence data are required to accuracies of less than ±10% for use with relative damage correlation parameters.

第 2 表 DETECTORS USED TO OBTAIN NEUTRON FLUENCE

DETECTOR TYPE	USEFULNESS FOR DETERMINING NEUTRON FLUENCE
<p><u>INSTRUMENTED DEVICES</u></p> <p>Low Flux Detectors (e.g. BF₃, ³He proportional chambers)</p> <p>Fission Chambers and Ionization Chambers</p> <p>Self Powered Nuclear Detectors</p> <p>Spectrum Measurement Devices (e.g. Proton Recoil, ⁶Li Solid State)</p>	<p>Devices measure only flux and must be electrically connected, which restricts available reactor positioning.</p> <p>Can be used in low flux environments only.</p> <p>Different fission foils give flux for different energy ranges.</p> <p>Have been used in high flux thermal neutron power reactors.</p> <p>Provide differential energy spectrum in low flux environments only.</p>
<p><u>SOLID STATE DETECTORS</u></p> <p>Solid State Track Recorders</p> <p>Graphite Damage Detectors</p>	<p>Provide little energy information.</p> <p>Different fissioning materials give fluence in different energy ranges.</p> <p>Give fluence over single broad energy interval.</p>
<p><u>RADIOMETRIC FOILS</u></p> <p>Non-fission Foils with $t_{1/2} < 1$ y (e.g. ²⁴Na, ⁵⁹Fe, ¹⁹⁸Au)</p> <p>Non-fission Foils with $t_{1/2} > 1$ y (e.g. ³H, ⁶⁰Co)</p> <p>Fission Foils</p>	<p>Combinations provide flux, fluence and energy spectrum by integral means.</p> <p>To get fluence for >1 year period requires constant spectrum and knowledge of local time-history.</p> <p>Provide short and long term fluence.</p> <p>Short and long half-lived products give flux and fluence.</p>
<p><u>STABLE PRODUCT REACTIONS</u></p> <p>Fission Foils - Stable Products (e.g. ¹⁴⁸Nd, xenon isotopes)</p> <p>Ratio Mass Spectrometry (e.g. ¹⁰B/¹¹B, ²³⁵U/²³⁸U)</p> <p>Chemistry Separation (e.g. ⁷Li in Boron)</p> <p>Helium Accumulation Fluence Monitors (HAFM's)</p>	<p>Combinations provide fluence and energy spectrum by integral means. Usually limited to high fluence applications.</p> <p>Complements radiometric measurements for long irradiations.</p> <p>Maximum fluence restricted by burn-up. Has only been applied to a few elements.</p> <p>Maximum fluence restricted by burn-up of ¹⁰B.</p> <p>Numerous available materials provide short and long term fluence for many overlapping energy ranges.</p>

第3表 HELIUM PRODUCTION ENERGY RESPONSES IN A TYPICAL FAST REACTOR NEUTRON SPECTRUM

Approximate Energy Response Lower Bound	Isotopes of Interest	Elements & Compounds Included in Experimental HAFM Capsules
0 - 1 MeV	${}^6\text{Li}$, ${}^{10}\text{B}$	${}^6\text{LiF}$, B
1 - 2 MeV	${}^{14}\text{N}$, ${}^{32}\text{S}$, ${}^{36}\text{S}$	TiN, ZrN, Cu_2S , PbS
2 - 3 MeV	${}^{35}\text{Cl}$, ${}^{39}\text{K}$, ${}^{40}\text{Ca}$, ${}^{43}\text{Ca}$, ${}^{47}\text{Ti}$	NaCl, KCl, KI, CaF_2 , Ti
3 - 4 MeV	${}^7\text{Li}$, ${}^{16}\text{O}$, ${}^{19}\text{F}$, ${}^{58}\text{Ni}$, ${}^{73}\text{Ge}$	${}^7\text{LiF}$, Al_2O_3 , SiO_2 , V_2O_5 , GeO_2 , NaF, CaF_2 , FeF_2 , NdF_3 , Ni
>4 MeV	${}^{12}\text{C}$, ${}^{27}\text{Al}$, ${}^{28}\text{Si}$, ${}^{51}\text{V}$, ${}^{54}\text{Fe}$, ${}^{55}\text{Mn}$, ${}^{56}\text{Fe}$, ${}^{63}\text{Cu}$, ${}^{93}\text{Nb}$	C, Al, Si, V, Mn, Fe, Cu, Nb

Réaction	Section efficace	Période du corps formé	Type de désintégration	Rayonnement caractéristique observé	Sens de l'effet sur l'activité X
1 $Nb^{93}(n,n')Nb^{93m}$	$\sigma_f = 97 \pm 35 \text{ mb}^{[2]}$ $= 102 \pm 30$	$11,4 \pm 0,9 \text{ a}^{[2]}$	Transition à 29,2 keV totalement convertie	X Nb $K_{\alpha} = 16,58 \text{ K}_{\beta} = 18,65 \text{ keV}$ Electrons de conversion	
2 $Nb^{93}(n,p)Zr^{93}$	$\sigma_f \sim 1,8 \text{ mb}$	$\sim 10^6 \text{ a}$	Transition β à 25% vers niveau Nb^{93m}	- id -	Accroissement
3 $Nb^{93}(n,2n)Nb^{92}$	$\sigma_f \sim 1,4 \text{ mb}$	10,2 j.	Capture électronique puis γ vers niveau Zr^{92}	γ 900 et 930 keV X Zr $K_{\alpha} = 15,75 \text{ K}_{\beta} = 17,69 \text{ keV}$	
4 $Nb^{93}(n,\gamma)Nb^{94}$	$\sigma_0 = 1,16 \text{ b}$ $I_{\text{eff}} = 14 \text{ b}$	$\sim 2 \cdot 10^4 \text{ a}$	$\beta - \gamma$ vers Mo^{94}	γ 700 et 870 keV non convertis	Consommation donc diminution
5 $Nb^{93m}(n,\gamma)$?				- id -
6 $Nb^{92}(n,\gamma)Nb^{93m}$?				accroissement
7 $Nb^{94}(n,\gamma)Nb^{95}$	$\sigma_0 = 15 \text{ b}$	95 m ↓ 84 h.	Transition γ en partie convertie	X Nb	accroissement mais courte période
		95 ↓ 35 j.	$\beta - \gamma$ vers Mo^{95} convertie $\alpha_K \sim 2 \cdot 10^{-3}$	γ 768 keV X Mo $K_{\alpha} = 17,45$ $K_{\beta} = 19,65$	
8 $Ta^{181}(n,\gamma)Ta^{182}$	$\sigma_0 = 19 \text{ b}$ $I \sim 1200 \text{ b}$	115 j.	β - nombreux γ fortement convertis	X W γ Ta^{182}	accroissement mais négligeable si le flux thermique est fort.

第5表

Coverage of neutron-induced reactions often used in reactor dosimetry
with respect to some data compilations and evaluations

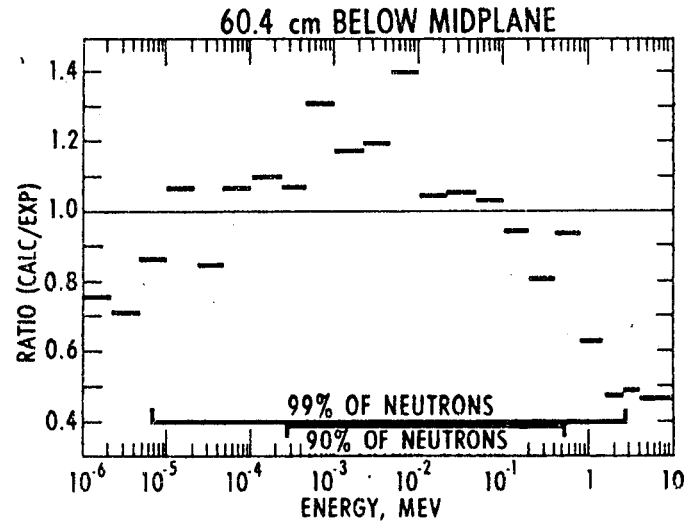
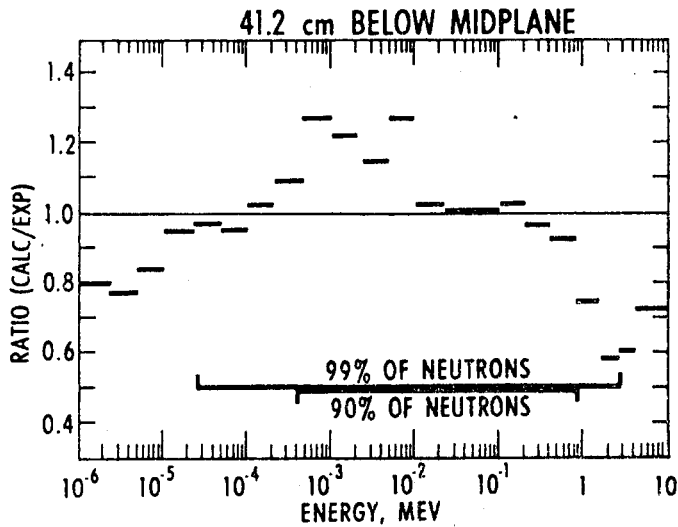
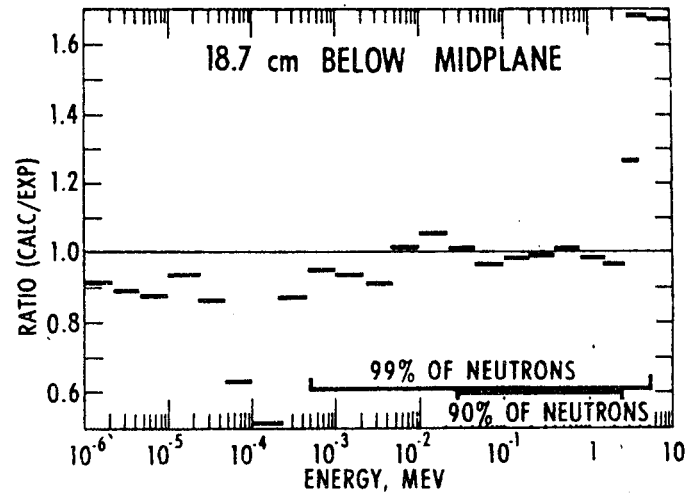
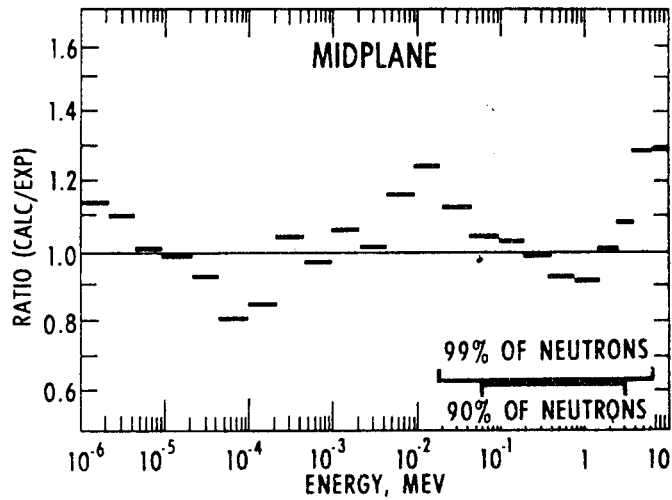
Reaction	ENDF/B Dos.File	Zijp et al. [7]	Simons and McElroy [8]	UKNDL [9]	KEDAK [10]	Schett et al. [11]
$^1\text{H}(n,n)$	*			X	X	
$^3\text{He}(n,p)$	*			X	X	
$^6\text{Li}(n,\alpha)$	X			X		
$^{10}\text{B}(n,\alpha)$	X			X		
$^{23}\text{Na}(n,\gamma)$	X		X	X	X	
$^{24}\text{Mg}(n,p)$				X		X
$^{27}\text{Al}(n,p)$	X	X	X	X		X
$^{27}\text{Al}(n,\alpha)$	X	X	X	X	X	X
$^{31}\text{P}(n,p)$		X		X		X
$^{32}\text{S}(n,p)$	X	X		X		X
$^{45}\text{Sc}(n,\gamma)$	X		X			
$^{46}\text{Ti}(n,p)$	X	X	X	X		X
$^{47}\text{Ti}(n,p)$	X	X	X			X
$^{48}\text{Ti}(n,p)$	X	X	X			X
$^{55}\text{Mn}(n,2n)$	X	X				X
$^{54}\text{Fe}(n,p)$	X	X	X	X	X	X
$^{56}\text{Fe}(n,p)$	X	X	X	X	X	X
$^{58}\text{Fe}(n,\gamma)$	X		X			
$^{59}\text{Co}(n,\alpha)$	X	X	X			X
$^{59}\text{Co}(n,2n)$	X					
$^{59}\text{Co}(n,\gamma)$	X		X			
$^{58}\text{Ni}(n,p)$	X	X	X	X	X	X
$^{58}\text{Ni}(n,\alpha)$					X	X
$^{58}\text{Ni}(n,2n)$	X			X		
$^{60}\text{Ni}(n,p)$	X		X		X	

*) in ENDF/B-IV general purpose file

第5表(つぎ)

Reaction	ENDF/B Dos.File	Zijp et al. [7]	Simons and McElroy [8]	UKNDL [9]	KEDAK [10]	Schett et al. [11]
$^{63}\text{Cu}(n,\alpha)$	X	X	X	X		X
$^{63}\text{Cu}(n,2n)$		X	X	X		X
$^{63}\text{Cu}(n,\gamma)$	X		X			
$^{65}\text{Cu}(n,2n)$	X	X		X		X
$^{64}\text{Zn}(n,p)$		X				X
$^{93}\text{Nb}(n,n')$						X
$^{93}\text{Nb}(n,2n)$		X		X		X
$^{92}\text{Mo}(n,p)$				X	X	X
$^{103}\text{Rh}(n,n')$		X		X		X
$^{115}\text{In}(n,n')$	X	X	X	X		X
$^{115}\text{In}(n,\gamma)$	X			X		
$^{127}\text{I}(n,2n)$	X	X		X		X
$^{197}\text{Au}(n,\gamma)$	X		X	X		
$^{232}\text{Th}(n,f)$	X	X		X	X	X
$^{232}\text{Th}(n,\gamma)$	X			X		
$^{235}\text{U}(n,f)$	X	X	X	X	X	
$^{238}\text{U}(n,f)$	X	X	X	X	X	X
$^{238}\text{U}(n,\gamma)$	X			X	X	
$^{237}\text{Np}(n,f)$	X	X	X	X		X
$^{239}\text{Pu}(n,f)$	X		X	X	X	

文献番号は原論文参考のこと



第 1 图 MEASURED TO CALCULATED SPECTRAL COMPARISON AT FOUR AXIAL LOCATIONS IN ROW 2 - EBR-II RUN 50H