

話題・解説(IV)

## 2017 年度核データ部会賞

### 奨励賞

—JENDL-4.0 における  $^{102}\text{Ru}$  の熱中性子捕獲断面積評価値の検証—

東京工業大学  
大学院理工学研究科  
原子核工学専攻

寺島 敦仁

[terashima.a.aa@m.titech.ac.jp](mailto:terashima.a.aa@m.titech.ac.jp)

#### 1. はじめに

従来の核燃料サイクルにおいて、原子力発電に伴って生じる使用済み核燃料に含まれる核分裂生成物(Fission Products; FP)は、放射性廃棄物として扱われています。しかしながら、FP には軽白金族元素や希土類元素などといった有用な元素が豊富に含まれていることから、それらを分離回収することで資源利用を目指すという先進的な核燃料サイクルが提案されており、要素技術の研究開発が進められています[1,2]。一方で、FP 中には  $^{107}\text{Pd}$  等、半減期の長い放射性核種も含まれており、それらに対しては、原子炉や加速器を用いた核変換技術の研究開発が進められています[3,4]。私たちは、そのような研究開発を踏まえ、FP の分離・核変換によって有用な元素資源を創製することを目的とした基礎研究を実施しています[5-7]。

原子炉内で発生した中性子を用いた FP 核種の核変換を考える上で、対象となる核種と中性子との相互作用の起こりやすさを表す断面積は、最も基本的かつ重要な物理量の一つです。 $10^{-3} \sim 10^7 \text{ eV}$  という入射中性子の広域なエネルギー範囲にわたる断面積データは、評価済み核データライブラリという形で公開されています。私たちは、核変換に関する計算機シミュレーションにおいて、国産ライブラリ JENDL-4.0[8]を主に使用しています。

計算機による核変換シミュレーションの妥当性を確認する上で、原子炉実験で得られる測定結果との比較を行うことは非常に有益であると考えられます。そこで私たちは、米国カリフォルニア大学アーバイン校の研究用原子炉 TRIGA<sup>®</sup>炉を用いて、FP 領域の元素に対する中性子照射実験を実施し、中性子放射化反応によって生成した放射性核種の原子個数密度について、実験測定値(E)と計算値(C)を比較しました。

当初の目的としては、燃焼計算コード MVP-BURN[9,10]で得た計算値(C)がどの程度実験測定値(E)を再現できるかを確認するだけのつもりであり、希土類元素中の多くの核種について、計算値と測定値の差異(C/E-1)を押し並べて見てみると、+5%程度(計算値が過大)に収まりました。しかしながら、軽白金族元素の一つであるルテニウム(Ru)の安定同位体  $^{102}\text{Ru}$  の中性子捕獲反応で生じる  $^{103}\text{Ru}$  の生成量については、他の核種の結果と比べてより大きな差異が生じることが明らかとなりました。そこで本研究では、JENDL-4.0における  $^{102}\text{Ru}$  の熱中性子捕獲断面積  $\sigma_0$  の評価値に注目し、その値の確からしさを検証することを目指しました[11,12]。

## 2. JENDL-4.0 における $^{102}\text{Ru}$ の熱中性子捕獲断面積評価値

評価済み核データライブラリにおける熱中性子捕獲断面積  $\sigma_0$  の値は、理論的に推定することが困難であるため、実験測定値に基づいて評価値が与えられています。 $^{235}\text{U}$  等、重要性の高い核種については、これまでに多くの実験測定値が得られており、その測定精度も向上してきているため、それに基づく評価値は高い信頼性を有していると考えられます。一方で、FP 領域の核種については、現状では実験測定値の数と精度が十分にあるとは言えず、評価済みライブラリ間で値が大きく異なるような核種も見受けられます。

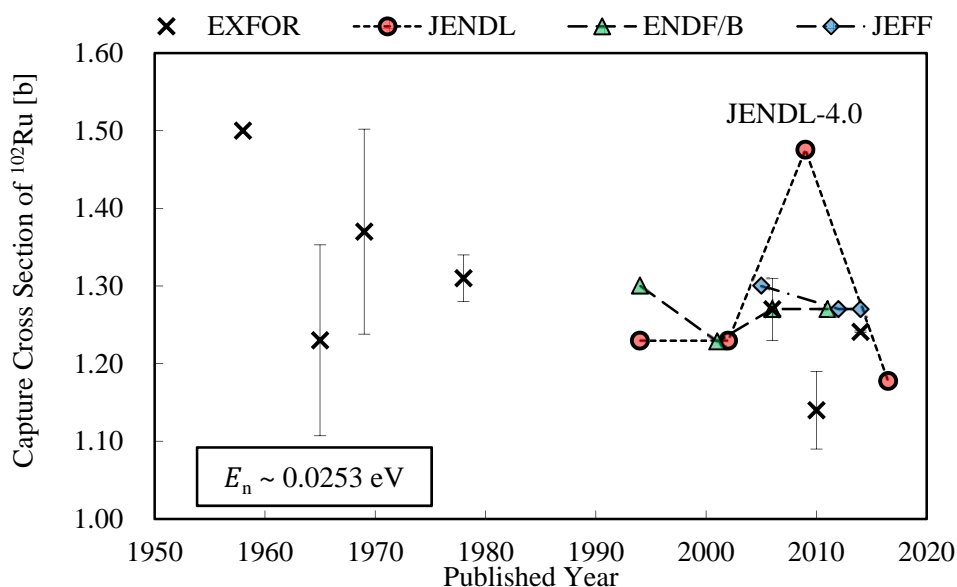


図 1  $^{102}\text{Ru}$  の熱中性子捕獲断面積の測定値および評価値の変遷[12]

本研究で注目した  $^{102}\text{Ru}$  の熱中性子捕獲断面積  $\sigma_0$  の測定値および評価値の変遷を、図 1 に示します。なお、×印でプロットした測定値については、実験核反応データベース EXFOR[13]より取得しました。また、評価済み核データライブラリ JENDL につい

ては、JENDL-3.2,3.3,4.0に加えて、JAEAの岩本信之氏よりご提供いただいた公開前の廃止措置用放射化ライブラリ JENDL/AD-2017[14]における値をプロットしました。

図1より、他のライブラリや近年の測定値と比べて、JENDL-4.0の値(1.48 b)のみが特異的に大きいことがわかります。この評価値について評価者の中川庸雄氏にお伺いしたところ、当時の $^{96}\text{Ru}$ の断面積値(0.21 b)を基にして得られた1969年のH. Ishikawaの測定値(1.37 b)[15]を、JENDL-4.0で採用した $^{96}\text{Ru}$ の断面積値(0.27 b)に基づいて補正( $1.37\text{ b} \times 1.29 = 1.76\text{ b}$ )した上で、その値に最も大きな重みをつけて評価した結果、1.48(16) bという評価値が採用されたことがわかりました。

一方、JENDL/AD-2017では、主に2010年のK. S. Kraneの測定値(1.14 b)[16]に基づいて、1.18 bという評価値を採用する予定であることがわかりました。また、最新のENDF/BおよびJEFFの評価値は共に、2006年のS. F. Mughabghabの評価値(1.27 b)[17]をそのまま採用していることがわかりました。

### 3. $^{102}\text{Ru}$ の熱中性子捕獲断面積評価値の検証および推定

図1より、 $^{102}\text{Ru}$ の $\sigma_0$ については、評価済みライブラリ間で大きな差異があることがわかりました。そこで、熱中性子束が支配的なTRIGA炉の中中性子を用いた $^{102}\text{Ru}$ の放射化実験に関する計算機シミュレーションにおいて、複数の評価済みライブラリを使用し、実験測定値との差異の大きさを比較することで、どの評価値がより確からしいかを調査しました。

また、中性子捕獲断面積の評価済みデータの作成においては、一般的に、Negative Resonance Parameterを調整することで、熱中性子領域で $1/v$ の傾きを持つ断面積の直線が $\sigma_0$ の評価値を通るようにしています。したがって、Negative Resonance Parameterのみを変更することで、図2のように $\sigma_0$ の値が異なる断面積データを作成することが可能です。そこで本研究では、JENDL-4.0における $^{102}\text{Ru}$ の中中性子捕獲断面積データを基に、 $\sigma_0$ の値を変更した断面積データをいくつか作成し、それらを用いて同様の計算を実施することで、より確からしい $\sigma_0$ 値の推定を試みました。

ただし、作成したENDF形式の断面積データをMVPコードで使用可能なファイル形式に変換するためには、核データ処理システムLICEM[18]を使用する必要があります。今回は、JAEAの平成28年度夏季休暇実習において長家康展氏のご指導の下、この作業を実施しました。

作成した断面積データを含む各評価済みデータを計算で使った場合における $^{103}\text{Ru}$ の生成量の(C/E-1)値を、図3に示します。なお、誤差については、モンテカルロ計算における捕獲反応率の統計誤差(<1%)と、実験測定における崩壊定数およびガンマ線の放出強度の不確かさ、計数率の統計誤差、並びに検出器効率の誤差を考慮しました。なお、本(C/E-1)値は、 $^{105}\text{Ru}$ についての(C/E-1)値で規格化したものです[11,12]。

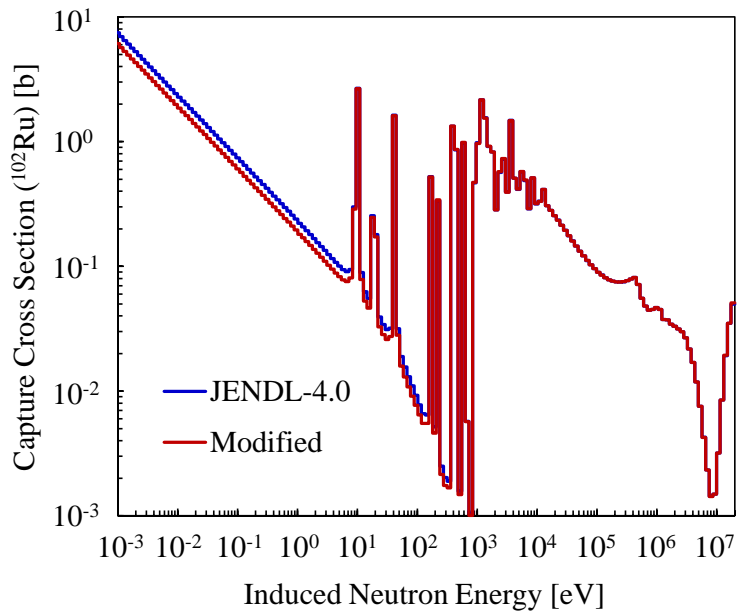


図 2 JENDL-4.0 における  $^{102}\text{Ru}$  の中性子捕獲断面積データとそれに基づいて  $\sigma_0$  の値を変更した断面積データ (Modified) の例

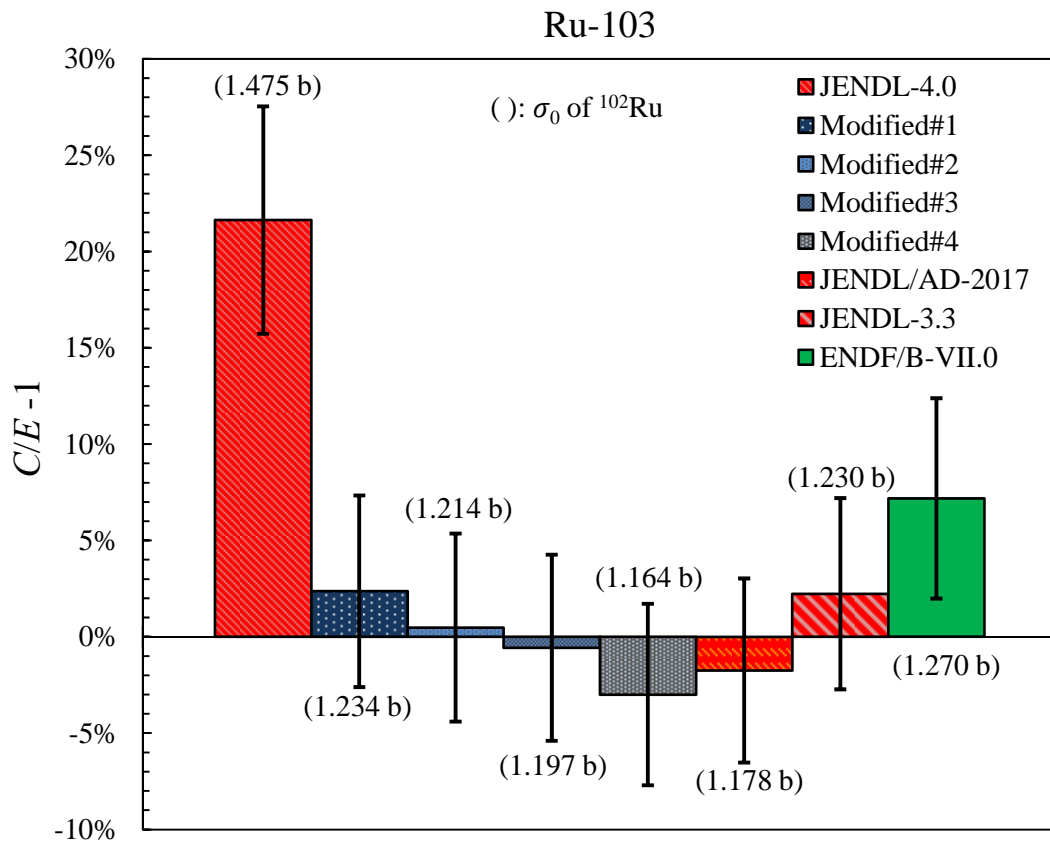


図 3 各評価済みデータを使用した場合における  $^{103}\text{Ru}$  の生成量の  $(C/E-1)$  値の比較[12]

図 3 より、JENDL-4.0 を用いた場合の(C/E-1)値は+20%以上となったことから、誤差を考慮しても、計算値が有意に過大評価であることが明らかとなりました。また、ENDF/B-VII.0 を用いた場合についても+7%程度となり、計算値が過大評価となっている可能性が高いことが示唆されました。一方、JENDL-3.3、JENDL/AD-2017、および作成した各ライブラリ(Modified#1~4)を使用した場合には、誤差棒の範囲内に C/E-1=0 が入っており、妥当性の高い計算値が得られたと考えられます。したがって、JENDL/AD-2017 における  $\sigma_0$  の評価値は、JENDL-4.0 のおける評価値と比較して、より確からしい値に改善されていることを検証することができました。

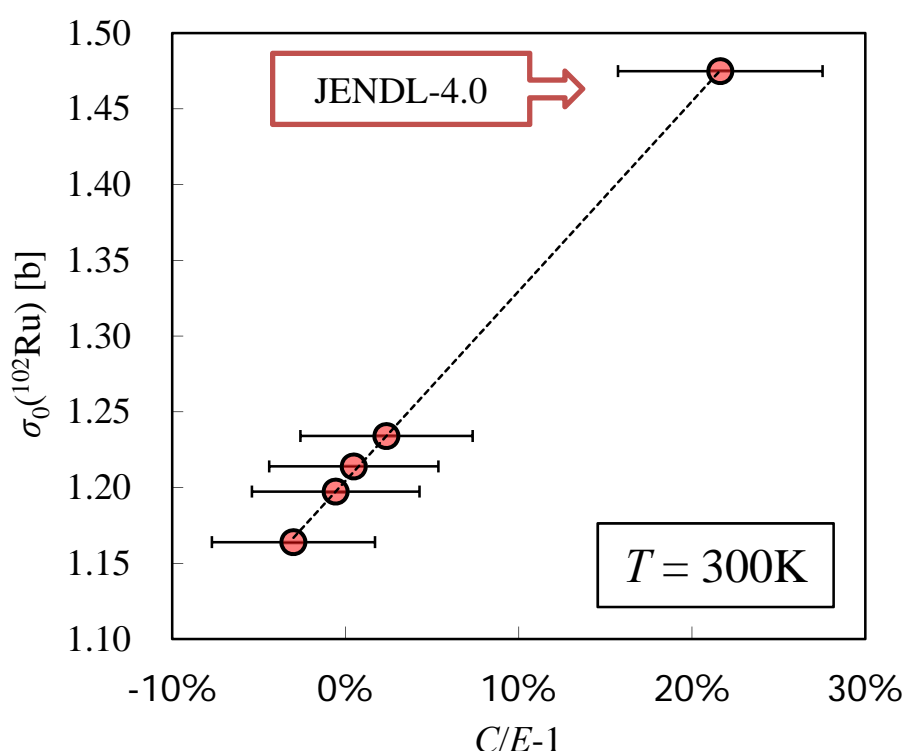


図 4 JENDL-4.0 とそれに基づく断面積データを用いた場合の(C/E-1)値と  $\sigma_0$  値の相関

さらに、JENDL-4.0 とそれに基づいて作成した各断面積データを用いた場合の (C/E-1)値と  $\sigma_0$  値の相関を、図 4 に示します。各断面積データの違いは、おおむね、Negative Resonance Parameter の調整による  $\sigma_0$  値の差異のみであることから、(C/E-1) 値と  $\sigma_0$  値の間できれいな直線が得られました。そこで、C/E-1=0 となる  $\sigma_0$  値を算出することで、1.204(59) b という推定値を導出しました[12]。本推定は、計算値と実験値の差異の要因の全てが  $\sigma_0$  値に由来すると仮定しており、非常に大雑把な手法ではあるものの、2014 年の F. F. Arboccò らによる最新の実験測定値 1.241(1) b[19]および JENDL/AD-2017 での評価値をサポートすることから、妥当な値であると考えられます。

#### 4. おわりに

本研究では、JENDL-4.0における $^{102}\text{Ru}$ の熱中性子捕獲断面積 $\sigma_0$ の評価値に注目し、その値を検証すること、さらにはより確からしいと考えられる推定値を提案することを目的として、研究用原子炉 TRIGA 炉を用いた中性子照射実験と、燃焼計算コード MVP-BURN を用いた計算機シミュレーションの双方に取り組みました。その結果、JENDL-4.0における $\sigma_0$ の評価値は20%程度の過大評価となっている可能性が高いことを明らかとしました。一方、JENDL/AD-2017ではより確からしい値に改善されていることを確認することができました。また、 $\sigma_0$ 値を変更した複数の断面積データを用意することで、1.204(59) b という推定値を導出しました。

本研究に取り組む前の私は、ユーザーとして、与えられた核データを妄信して使用するだけであったように思います。しかしながら、本研究を通じて、核データの裏側にある評価プロセスの難しさ、実験測定値の重要性、不確かさ評価の必要性等、様々なことを学ぶことができ、核データの見方が大きく変わったように感じております。今後も、基本的にはユーザーとして核データと接することになるかと思われませんが、ただ闇雲に利用するのではなく、よく理解した上で利用することを心掛けたいと思います。また、最終的な炉物理計算の信頼性向上を目的として、その根幹を成す核データの信頼性向上に資するような活動ができるよう、尽力していきたいと思っております。

#### 謝辞

本研究は、東京工業大学環境エネルギー協創教育院およびJSPS 科研費 15J12066 の助成を受けたものです。本研究を遂行する上で、旧指導教員の小澤正基名誉教授および現指導教員の千葉敏教授には、幾度も懇切丁寧かつ熱心なご指導およびご鞭撻を賜りましたことを、心より御礼申し上げます。米国カリフォルニア大学アーバイン校での中性子照射実験におきましては、受け入れ教員のMilael Nilsson 准教授を筆頭に、Athan J. Shaka 教授、George E. Miller 博士、Jonathan Wallick 氏、およびUCI Nuclear Group のメンバーには、TRIGA 炉の運転やHPGe 半導体検出器の使用に関するご指導等、多大なご協力をいただきました。元JAEAの中川庸雄博士には、JENDL-4.0における $^{102}\text{Ru}$ の熱中性子捕獲断面積の評価手順をご教示いただきました。JAEAの長家康展博士には、平成28年度夏期休暇実習にてMVP計算の高度化およびMVP用断面積ライブラリの作成に関して、多大なご協力およびご助言を賜りました。同じくJAEAの岩本信之博士には、公開前のJENDL/AD-2017のご提供および貴重なご助言をいただきました。また、JAEA 夏期休暇実習においては、炉物理標準コード研究グループの皆様および核データ研究グループの皆様から、大変有益なご助言をいただきました。その他にも、多くの方からのご協力をいただいたおかげで、本研究を遂行することができました。この場をお借りして、皆様に深く感謝申し上げます。

## 参考文献

- [1] 森田泰治、久保田益充：「原研における群分離に関する研究開発－4 群分離プロセス開発までのレビュー－」、JAEA-Review 2005-041 (2005).
- [2] M. Ozawa, et al.: “A new back-end cycle strategy for enhancing separation, transmutation and utilization of materials (Adv.-ORIENT cycle),” *Prog. Nucl. Energy* **50**, pp.476-482 (2008).
- [3] S. Chiba, et al.: “Method to Reduce Long-lived Fission Products by Nuclear Transmutations with Fast Spectrum Reactors,” *Sci. Rep.* **7**, 13961 (2017).
- [4] H. Wang, et al.: “Spallation reaction study for the long-lived fission product  $^{107}\text{Pd}$ ,” *Prog. Theor. Exp. Phys.* **2017**, 021D01 (2017).
- [5] A. Terashima, M. Ozawa: “Numerical analysis on element creation by nuclear transmutation of fission products,” *Nucl. Sci. Tech* **26**, S010311 (2015).
- [6] A. Terashima, M. Ozawa: “Evaluation of the specific radioactivity of 40 elements created by nuclear transmutation of fission products,” *Prog. Nucl. Energy* **93**, pp.177-185 (2016).
- [7] A. Terashima, et al.: “Separation and Recovery of Palladium from Nitric Acid Solution by Silica Based Benzo-15-crown-5 Ether Resin,” *Energy Procedia* **131**, pp.160-166 (2017).
- [8] K. Shibata, et al.: “JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering,” *J. Nucl. Sci. Technol.* **48**, pp.1-30 (2011).
- [9] Y. Nagaya, et al.: “MVP/GMVP : General Purpose Monte Carlo Codes for Neutron and Photon Transport Calculations based on Continuous Energy and Multigroup Methods,” JAERI 1348 (2005).
- [10] K. Okumura, et al.: “Validation of a Continuous-Energy Monte Carlo Burn-up Code MVP-BURN and Its Application to Analysis of Post Irradiation Experiment,” *J. Nucl. Sci. Technol.* **37**, pp.128-138 (2000).
- [11] A. Terashima, et al.: “Reliability assessment of MVP-BURN and JENDL-4.0 related to nuclear transmutation of light platinum group elements,” *EPJ Web of Conference* **146**, 06008 (2017).
- [12] A. Terashima, et al.: “Verification and Estimation of Thermal Neutron Capture Cross Section of  $^{102}\text{Ru}$ ,” JAEA-Conf 2017-001, pp.147-152 (2018).
- [13] Experimental Nuclear Reaction Data (EXFOR) Database Version of 2018-01-09, IAEA, <https://www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm> (Last access: Jan. 15, 2018).
- [14] K. Shibata, et al.: “Activation Cross-section File for Decommissioning of LWRs,” JAEA-Conf 2016-004, pp.47-52 (2016).
- [15] H. Ishikawa: “Determination of Activation Cross Section by Gamma-Ray Spectrometry,” *J. Nucl. Sci. Technol.* **6**, pp.587-590 (1969).

- [16] K. S. Krane: “Neutron capture by Ru: Neutron cross section of  $^{96,102,104}\text{Ru}$  and  $\gamma$ -ray spectroscopy in the decays of  $^{97,103,105}\text{Ru}$ ,” *Phys. Rev. C* **81**, 044310 (2010).
- [17] S. F. Mughabghab: “Atlas of Neutron Resonances: Resonance Parameters and Thermal Cross Sections. Z= 1-100,” Elsevier (2006).
- [18] 奥村啓介、長家康展：「JENDL-4.0に基づく連続エネルギーモンテカルロコード MVP 用の中性子断面積ライブラリーの作成と ICSBEP ハンドブックの臨界性ベンチマーク解析への適用」、JAEA-Data/Code 2011-010 (2011).
- [19] F. F. Arboc , et al.: “Experimental determination of  $k_0$ ,  $Q_0$  factors, effective resonance energies and neutron cross-sections for 37 isotopes of interest in NAA,” *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **302**, pp.655-672 (2014).