

話題・解説(III)

## 2022 年度核データ部会賞

### 奨励賞

#### ーアメリシウム 243 の 23.5 keV 近傍での 中性子捕獲断面積の測定ー

東京工業大学

環境・社会理工学院 融合理工学系 原子核工学コース

児玉 有

[kodama.y.ae@m.titech.ac.jp](mailto:kodama.y.ae@m.titech.ac.jp)

#### 1. はじめに

原子力発電所から排出される高レベル放射性廃棄物(High Level Waste; HLW)の環境負担低減・減容を目的とした核変換システムの開発が行われている[1]。核変換システムは、中性子核反応(核分裂反応、中性子捕獲反応)を基に HLW に含まれるマイナーアクチニド(Minor Actinides; MA)を含む長寿命の放射性核種を短寿命または安定な核種に変換するものである。その核変換システムの候補の一つとして、加速器駆動未臨界システム(Accelerator-Driven System; ADS)の研究が進められている。この核変換システムの開発には、変換する長寿命放射性核種と中性子との反応断面積のデータが高精度で必要とされている。反応断面積とは、原子核と中性子との相互作用の起こりやすさを表すものであり、実効増倍率等の炉物理パラメータの計算で必要とされる物理量の一つである。しかし、現状の長寿命放射性核種の断面積データは核変換システム開発で要求される精度を十分に満たしておらず、核データの精度向上が核変換システムを実現する上で課題の一つとなっている[2]。

$^{243}\text{Am}$  は HLW に含まれる MA 核種の一つである。高速中性子を用いる ADS では、keV 領域の  $^{243}\text{Am}$  の中性子捕獲断面積が重要となる。OECD/NEA の WPEC(SG26)では、 $^{243}\text{Am}$  の中性子捕獲断面積の核データの要求精度は 2%とされているが、現状の断面積データの不確かさは 10%以上と評価されている。その原因として、過去の実験値の不確かさと食い違いが挙げられる。keV 領域における  $^{243}\text{Am}$  の中性子捕獲断面積の実験データは、1980

年代に測定された 2 件のみである。1983 年にカールスルーエ工科大学で Wisshak らが、1985 年にオークリッジ国立研究所で Weston らが測定した 2 件の測定結果である。それらの測定値は誤差の範囲内で一致しているものの、その誤差自体は大きく、系統的な不一致が見られる。以上のことから、核データの精度向上に向けて、keV 領域の  $^{243}\text{Am}$  の中性子捕獲断面積の新しい測定が必要とされている。

本研究では、大強度陽子加速器施設(Japan Proton Accelerator Complex; J-PARC)の物質・生命科学実験施設(Materials and Life science Facility; MLF)に設置された中性子核反応装置(Accurate Neutron-Nucleus Reaction Measurement Instrument; ANNRI)にて、 $^{243}\text{Am}$  の中性子捕獲断面積測定を行った。測定には、ANNRI に新しく設置された中性子フィルター[3]を用いて、23.5 keV で準単色化させた中性子ビームを用いた。捕獲反応イールド(反応数)は、波高重み法を用いて計算した。また、金の断面積を基準として、 $^{243}\text{Am}$  の中性子捕獲断面積を導出した。本稿では、これらの実験及び結果、考察について紹介する。

## 2. 実験

先に述べたように、実験は核データ測定研究のために設置された J-PARC/MLF/ANNRI にて行った[4]。ANNRI ビームラインの概観図を図 1 に示す。核破碎反応により生成された中性子ビームは、まず上流側に設置された既存の中性子フィルターである Cd フィルターを用いて、低エネルギーの中性子をカットした。そして、ロータリーコリメータに新しく設置された中性子フィルター(図 1 の中央の赤で示される)により、中性子ビームを準単色化した。中性子フィルターは、J-PARC の加速器運転のダブルバンチ構造に関連した問題を解決するために設置した。J-PARC では、中性子を大強度化するために二つの陽子パルスを 600 ナノ秒の時間差をおいて核破碎ターゲットに入射させるダブルバンチモードで運転が行われており、中性子はダブルパルスの時間構造が反映されている。このことから、測定で得られた断面積は二つの中性子エネルギーに対応し、keV 領域ではこの影響が分離できないという問題がある。本実験では、23.5 keV で中性子透過率が大きくなる鉄を利用し、中性子ビームを準単色化することでダブルバンチの影響を排除した。この準単色化された中性子ビームを実験エリア 2 に設置された測定試料に照射した。そして、中性子捕獲反応により生じる即発ガンマ線を NaI(Tl)検出器で検出し、飛行時間(Time-of-Flight; TOF)と波高(Pulse-Height; PH)を記録し、オフラインでデータ解析を行った。測定試料には、同位体濃縮され Al ケースに封入された  $^{243}\text{Am}$  試料(281.8 MBq) を用いた。ケースによるバックグラウンド測定のための  $^{243}\text{Am}$  を含まないダミーケース、散乱中性子によるバックグラウンド測定のための炭素試料それぞれの測定も合わせて行った。また、金試料を用いた標準測定も行った。さらに、中性子エネルギースペクトルを得るために、ホウ素試料の測定を行った。これは、 $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$  反応で得られる 478 keV ガンマ線を測定することで得られる。

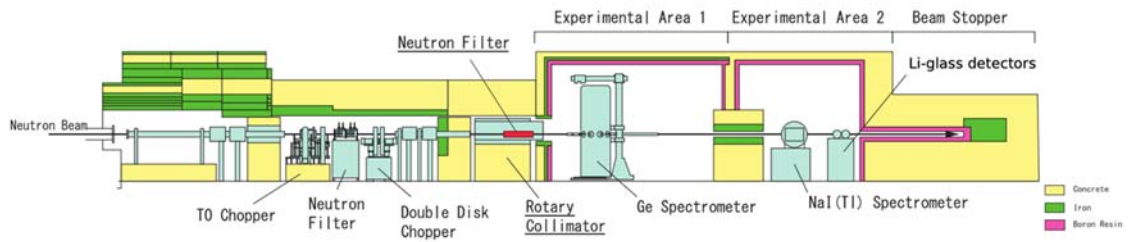


図1 ANNRIの概観図 [3]

### 3. データ解析

鉄フィルターを用いた測定で得られた TOF スペクトルを図2に示す。上側の x 軸は、TOF に対応した入射中性子エネルギーである。青色の領域が鉄フィルターにより準単色化 (23.5 keV 近傍) された中性子との反応によるピークである。黒のホウ素、赤の  $^{243}\text{Am}$  試料の TOF スペクトルにおいて、加速器のダブルバンチの構造が二つのピークとして反映されているのがわかる。次に、青色の領域にゲートをかけて得られる PH スペクトルの解析を行った。

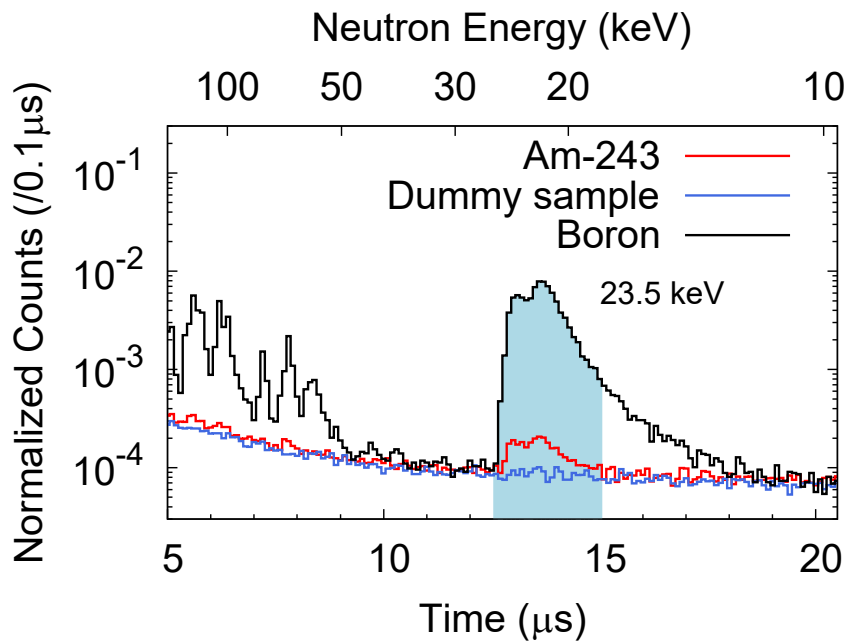


図2 鉄フィルターを用いた測定で得られた TOF スペクトル

TOF ゲートかけた PH スペクトルを図3に示す。赤が  $^{243}\text{Am}$ 、青がダミーケース、緑が炭素の 23.5 keV 付近でゲートをかけて得られる PH スペクトルである。本解析では、 $^{243}\text{Am}$  の崩壊ガンマ線等の飛行時間に依存しないバックグラウンドの PH は、遅い飛行時間の領域にゲートをかけることで導出した。Cd フィルターを用いているので、ほとんど

中性子が到来しない時間帯があり、その領域にゲートをかけて得られた PH スペクトルは黒で示した。 $^{243}\text{Am}$  の崩壊ガンマ線は非常に強く、500 keV 領域にピークとして現れている。 $^{243}\text{Am}$  とダミーケースの PH スペクトルにおいて、6826 keV にピークが現れている。これは、Al ケース等によって散乱された中性子が NaI(Tl) 検出器に含まれる  $^{127}\text{I}$  と反応して生じる捕獲ガンマ線である。ダミーケース、炭素試料の PH スペクトルの 500 keV 付近で見られるピークは、検出器付近にある中性子遮蔽体に含まれる  $^6\text{Li}$  や  $^{10}\text{B}$  により生じる 478 keV ガンマ線や 511 keV の対消滅ガンマ線によるものと考えられる。この PH スペクトルを用いてバックグラウンドを差引き、捕獲ガンマ線 PH スペクトルを導出した。さらに、波高重み法[5]を用いることで捕獲反応数を計算した。金の測定データも同様に PH スペクトル解析を行い、捕獲反応数を計算した。そして、金の断面積を基準として、23.5 keV 近傍の  $^{243}\text{Am}$  の中性子捕獲断面積を決定した。

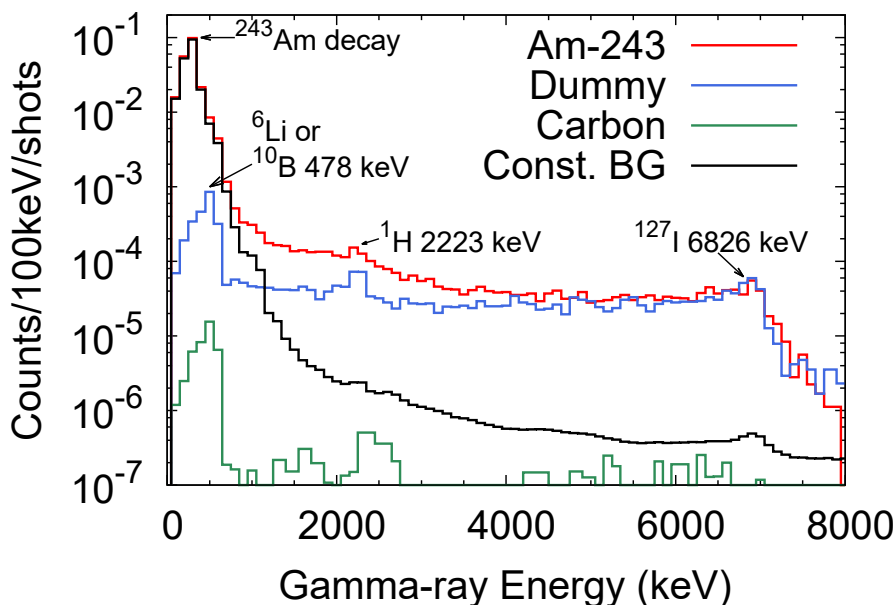


図3 TOF ゲートをかけて得られた PH スペクトル

#### 4. 結果と考察

本測定で、23.5 keV 近傍の  $^{243}\text{Am}$  の中性子捕獲断面積は  $2.52 \pm 0.14 \text{ b}$  という結果が得られた。図 4 に鉄フィルターを用いた測定で得られた結果、過去の測定値及び評価値を示す。青で示される Weston らの結果は、2つの異なる加速器運転において実験を行ったため、2つの測定データが報告されている。また、グレーで示される Wisshak らの結果は、モクソン・レー検出器を用いて測定された。この検出器は、捕獲ガンマ線を測定試料と検出器の間に設置したコンバータによって電子に変換し、その二次電子を検出する。Wisshak らは異なるコンバータ、2つの飛行距離、2種類の中性子源の組み合わせによる、8つの

条件で測定を行った。このことから、8つの測定データが報告されている。これらの測定値は、今回の結果と比較して数%から20%小さい。さらに、評価済み核データの JENDL-4.0 は、7%小さい。一方で、ENDF-B/VIII.0 は、5%大きい誤差の範囲内で一致している。

まず、過去の測定値との差異についての考察を行った。Wisshak ら、Weston らは古い評価値を基準として  $^{243}\text{Am}$  の中性子捕獲断面積を決定していた。Wisshak らは、ENDF/B-V の金を基準として断面積を導出していた。JENDL-4.0 と ENDF/B-V の金の断面積を比較すると約5%小さいことがわかった。さらに、Weston らは、ENDF/B-V の  $^{243}\text{Am}$  の熱中性子捕獲断面積を基準として keV 領域の断面積を導出していた。 $^{243}\text{Am}$  の熱中性子断面積は、ENDF/B-V では 74.8 b に対して、木村らによる最新の測定値は 87.7 b である[6]。ENDF/B-V は、最新の測定値と比較して15%小さいことがわかった。このことから、過去の測定データは古い評価値を基準として用いたことで過小評価していたことが明らかになった。

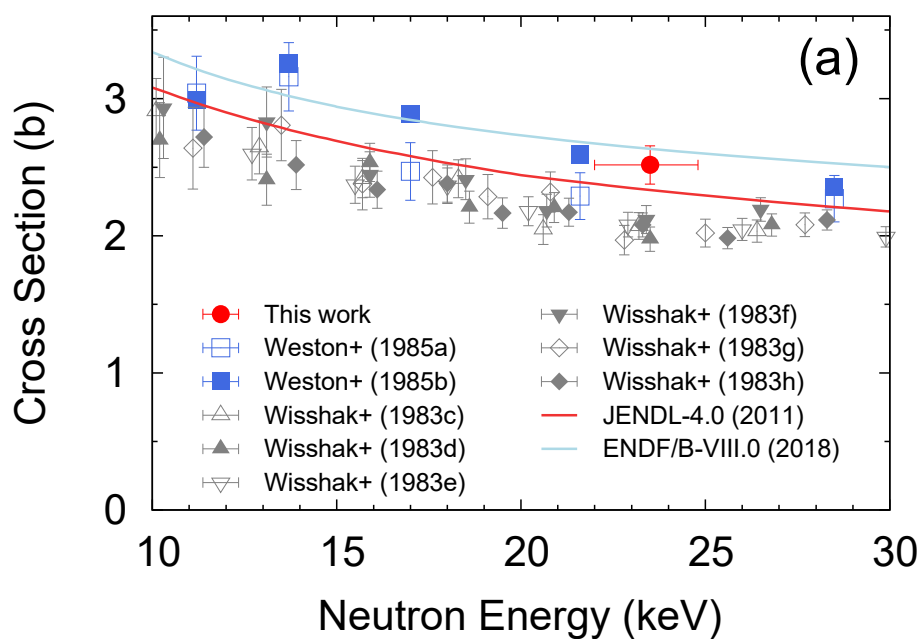


図4 keV 領域の  $^{243}\text{Am}$  の中性子捕獲断面積

次に、最新の断面積を基準として過去の測定データを再規格化したものと本結果を比較した。Wisshak らの測定結果を JENDL-4.0 の金の断面積を用いて再規格化した結果と、Weston らの測定結果を木村らによる  $^{243}\text{Am}$  の熱中性子捕獲断面積の測定値で再規格化した結果を図5にプロットした。本結果と比較して、Weston らの測定データとの差異は改善された。しかし、Wisshak らの測定データは小さいままであった。この原因として、測定に使用した  $^{243}\text{Am}$  の量が影響していると考えられる。Wisshak らは、質量測定から  $^{243}\text{Am}$  の量を決定している。放射性核種の量は、崩壊ガンマ線、アルファ線等の測定で得られる

放射能から決定されるのが一般的である。質量測定では、不純物の混入や同位体濃縮で除ききれっていない同位体不純物が含まれている可能性があり、大きく見積もられることがある。このことから、 $^{243}\text{Am}$  の量を過大評価することで、断面積を過小評価し系統的に測定データが小さくなった可能性が考えられる。Weston らの測定では、熱中性子断面積を基準として決定しているため  $^{243}\text{Am}$  の量は断面積導出に使われていない。

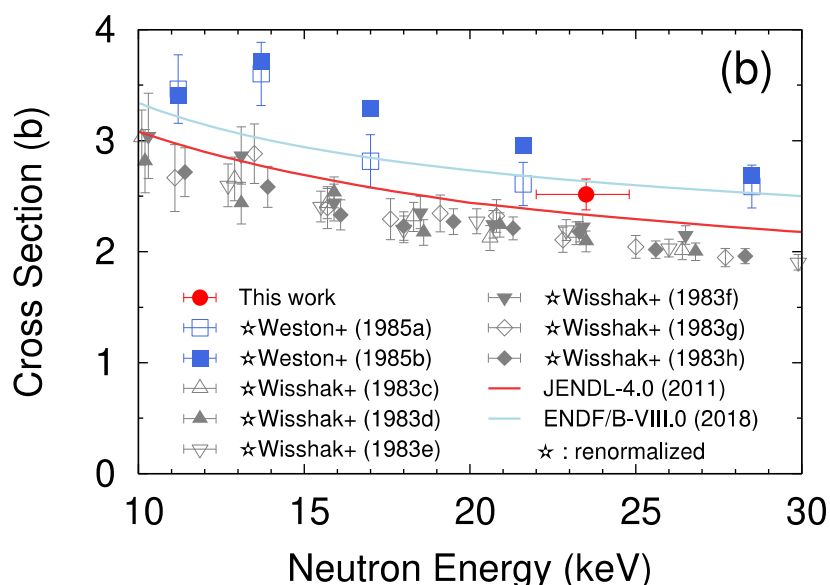


図5 再規格化した過去のデータとの比較

## 5. おわりに

J-PARC/MLF/ANNRIにて、鉄フィルターにより 23.5 keV に準単色化された中性子ビームを用いて、 $^{243}\text{Am}$  の 23.5 keV 近傍の中性子捕獲断面積の測定を行った。本測定で、約 5% の精度で断面積を決定することができた。高速領域の  $^{243}\text{Am}$  の中性子捕獲断面積測定は 1985 年以降行われておらず、本測定は 36 年ぶりの高精度化を実現した。さらに、過去の測定データは、古い評価値を用いて導出していることから過小評価していることが明らかになった。

## 5. 謝辞

本研究を遂行する上で、ご指導いただいた片瀧竜也准教授にはこの場を借りて改めて感謝申し上げます。さらに、実験へのご協力とデータ解析への助言をして頂いた JAEA 核データ研究グループの Gerard Rovira 博士を筆頭に、木村敦博士、中村詔司博士、遠藤駿典氏、岩本信之博士、岩本修博士、京都大学の堀順一准教授、芝原雄司博士、片瀧竜也研究室のメンバーである中野秀仁君、佐藤八起君の皆様に感謝申し上げます。本研究は、文部科学省原子力システム研究開発事業(JPMXD0217942969)の助成を受けたものです。

## 参考文献

- [1] K. Tsujimoto et al., J. Nucl. Sci. Technol. 44, 483-490 (2007).
- [2] M. Salvatore et al., WPEC-26, OECD NEA (2008).
- [3] Rovira Leveroni, Gerard : 「話題・解説 (II)」、核データニュース No.131、p.17 (2022).
- [4] M. Igashira et al., Nucl. Inst. And Meth., 600:332-334(2009).
- [5] R.L. Macklin et al., Phys Rev. 159(4):1007-1012(1967).
- [6] A. Kimura et al., J. Nucl. Sci. Technol. 56(6):479-492(2019).