<<p>話題・解説(I)

2024年度核データ部会賞

学術賞

-中性子放射化分析による

中性子捕獲断面積の高精度測定手法の開発ー

原子力研究開発機構 核データ研究グループ 中村 詔司 <u>nakamura.shoji@jaea.go.jp</u>

1. はじめに

私の研究テーマとして、長年にわたり中性子放射化分析による中性子捕獲断面積の測 定研究を実施してきました。それに対し、この度、核データ部会より学術賞の評価を頂き まして、ありがとうございます。受賞は、私の単名でしたが、本研究は諸先生・先輩方が 始められた仕事を引き継いできたものです。この点から私は、ただ本研究の代表として頂 いたのだと認識しております。元々、核理論の核力の研究で、2体相互作用から Pauli 禁 止状態を数値的に除去する方法を議論し、ゆくゆくは3体、少数多体系[1]へと展開する ことを考えておりましたが、何を思ったか、ご縁があり原子力の世界へ足を踏み入れまし た。(人生、とかく不思議なご縁というものがあります。)平成5年に、ブルックへブン国 立研究所に留学されておりました原田秀郎博士が帰国され、私の上長になられ、断面積測 定研究を始めることになりました。当時、実験に全くのド素人の私が居て、原田様も頭を 抱えたのではないかと思います。(当時の原田様、怖かった(苦笑)。多分、チームとして 確実に論文成果が出ないとお取り潰しになる緊張と厳しさがあったためではないかと、 推察します。)大学の恩師である尾立晋祥教授に、「これから原子炉の核燃料から派生する 放射性核種に対して中性子断面積測定を行うことになります。」、と近況を報告に行った。 多分、何か教科書で「放射化法は定性分析には適しているが、定量分析には適していな い」、ということを読んで不安になり相談に行ったのかもしれない。「中性子のエネルギー は?」と聞かれ、「25.3 meV です」と答えると、尾立先生曰く、「低エネルギーなら、低エ

ネルギーに徹するのも手かもしれない」。「低エネルギーに徹する」その言葉が、私の心に 五寸釘で打ち込まれた。私の腹は決まった。

虎の子の相対効率 90%の Ge 検出器 1 台を抱えて、立教大原子炉、原研研究炉 JRR-3、 そして京都大原子炉 KUR と放射性廃棄物核種からマイナーアクチノイドへと測定核種を 広げていった。正しく分析すれば、放射化法は断面積という微小量の定量分析へ適用がで きるはずと、古い手法に固執したのは、私の愚直さによるものである。主要な長寿命放射 性核種やマイナーアクチニド核種、さらに廃止措置におけるクリアランスレベルに係る 核種の測定を行ってきた。本稿は、受賞対象の研究を概説します。

2. 研究の目的

原子炉から発生する高レベル放射性廃棄物には、非常に長い半減期を持つ核分裂生成 核種が含まれているため、その処分管理は長期に渡って慎重に行われなくてはならない。 そこで、高レベル放射性廃棄物を幾つかの元素群に分離して、有用な核種は再利用し、1 万年以上の長半減期の核種は、原子炉や加速器等を利用して短半減期核種や安定核種に 核変換し、処分管理する時間を短縮することが考えられている。(1980年代に議論され、 Ω(オメガ)プロジェクトとして知られている。)高レベル放射性廃棄物の核変換対象核種 は29種類が知られており、その中でも優先順位の高い核種としては、核燃料の核分裂反 応で生成する ⁹⁹Tc、¹³⁷Cs、¹²⁹I、⁹⁰Sr などの核種と核燃料の中性子捕獲反応で生成する ²³⁷Np、 ²⁴¹Am などのマイナーアクチニド核種がある。これらの核種を核変換させるためには豊富 な中性子源を有する原子炉を利用するのが有効な手段の1つであろう。この手段におい ては、核変換率に直接関係する熱中性子捕獲断面積や共鳴積分の精度の高い核データの 知識が不可欠である。これらの核データは、原子炉の黎明期である 1950 年代から 1980 年 代にかけて精力的に整備されてきたが、現在の観点から見るとその測定の信頼性は低く、 核種によってはデータがないものもあり(熱中性子断面積データがなければ、代わりに中 性子平均断面積が採用)、またその後の測定はほとんどなされていない。しかし近年、具 体的には 2000 年頃から再測定が行われてきている。本研究の目的は、高い精度で熱中性 子捕獲断面積や共鳴積分のデータを収集する新しい方法を提案し、対象となる核種に応 用し、方法論の確立と信頼できる核データを得ることである。

3. 原理

3.1. カドミウム比法

原子炉を用いた放射化法は、生成核種からの放射線により感度が高い分析ができるので、元素の<u>定性分析</u>として広く使われている。これを用いて、原子炉の中性子モニタリン グのために<u>カドミウム比法(Cd ratio method)</u>[2]が提案された。

$$R = \sigma_0 \phi_{th} + RI \phi_{epi} \,, \tag{1}$$

(2)

$$R' = RI\phi_{epi}.$$

ここで、記号 R, R'は Cd 遮蔽無し、有りの反応率、σ0 は熱中性子捕獲断面積、RI は共鳴 積分(Resonance Integral)を表す。 ϕ_{th}, ϕ_{epi} は、それぞれ熱中性子束、熱外中性子束成分を 表す。原子炉の定常中性子束に対して、中性子吸収の大きい Cd を用いて、熱中性子束成 分を遮蔽することにより、人為的に異なる中性子場を用意して照射することになる。式 (1),(2)から明らかなように、差を取ると、熱中性子束の項が残り、良く分かっている熱中 性子断面積データを持つ核種を選定すれば、熱中性子束を求めることができる。また、式 (2)から熱外中性子束成分を求めることができる。差を取ることから、カドミウム差法 (Cd differential method)とも呼ばれる。この方法は、簡便である一方、Cd 遮蔽により熱領域の 中性子束を完全に遮蔽できると仮定している。(実際は、Cdの低エネルギー領域における 断面積の振舞から、中性子の染み出しが懸念される。そのため、式(2)の反応率は過大評 価が予想され、そして式(1)からの差し引きで、熱中性子束の過小評価が懸念される。)さ らに、用いるモニタ核種が、熱・熱外中性子に対する"感度"の点で問題がある。熱中性子 に対して感度があるが、熱外中性子に対する感度が小さい場合、熱外中性子成分を精度良 くモニタ出来ないために、今度は逆に熱中性子束を過大評価することが懸念される。この ように、カドミウム比法そのものに欠陥が指摘される。カドミウム比法では、中性子束成 分の比を求めるのに、1 核種しか用いておらず、また過去の多くの場合では、⁵⁹Coか¹⁹⁷Au のどちらかのみを用いている。 59Coは、共鳴積分が 37(b)と小さく、熱外中性子に対して は感度が低いが、その反面、熱中性子を求めるのに適している。一方、¹⁹⁷Auは共鳴積分 が 1550(b)と大きく、59Coの場合と比して熱外中性子に対して感度が高い。このように、 モニタとして用いる核種には、一長一短がある。2つの中性子成分を精度良く求めるため には、モニタ核種を複数用いて、用いる核種の長所、短所を補うようにするのは自然な着 想であろう。つまり、"パラメータを増やせばうまくいく"、である。

3.2. Westcott's Convention

先ず、Westcott's convention[3,4]について概説する。原子炉中性子束を、熱・熱外中性子成分の2成分で表せるとして、反応率は実効断面積を用いて次式で表せる。 反応率Rは、実効断面積 $\hat{\sigma}$ を用いて次のように与えられる。

$$R = n \upsilon_0 \hat{\sigma} \tag{3}$$

ここで、

- n : 熱中性子及び熱外中性子を含む中性子密度
- *v*₀ : 速度 2,200m/sec

原子炉中性子スペクトルが、図1に示したように2つの成分、即ち、Maxwell分布と熱 外 1/E 中性子分布の和で表せることは良く知られている。この時、中性子密度: *n(v)*は 次のように表せる。

$$n(\upsilon) = n(1 - f)\rho_m(\upsilon) + nf\rho_e(\upsilon)$$
(4)

ここで、

f:中性子束における熱外中性子束の割合 $ho_m(v)$:Maxwell分布関数 $ho_e(v)$:熱外中性子分布関数

これらの分布関数は、
$$\int_{0}^{\infty} \rho_m(v) dv = \int_{0}^{\infty} \rho_e(v) dv = 1$$
と規格化されている。



図1 原子炉中性子スペクトル。 μkT のエネルギー点で、Maxwell 分布と 1/E 分を滑らかに接続させる。 μ は、D₂O 炉で約5 である。

Energy: kTを持つ中性子の速度を v_T とすると、 $\rho_m(v)$ は次式のように書き表せる。

$$\rho_m(\upsilon) = \frac{4\upsilon^2}{\sqrt{\pi}\upsilon_T^3} e^{-(\upsilon/\upsilon_T)^2}$$
(5)

また、図1に示すように step-function Δ (E> μkT の時 Δ =1、E< μkT の時 Δ =0) を用いて、 μkT の点で、Maxwell 分布関数と 1/E 分布関数を接続することを考えると、 $\rho_e(v)$ は、

$$\rho_e(\upsilon) = \upsilon_T \mu^{1/2} \upsilon^{-2} \Delta \tag{6}$$

と書ける。式(4-6)を用いて、反応率を書き表せば、 ô の式(3)から、

$$R = n\upsilon_0 \hat{\sigma} = \int_0^\infty n(\upsilon)\sigma(\upsilon) \cdot \upsilon d\upsilon$$

$$= n(1-f) \int_0^\infty \frac{4\upsilon^3}{\sqrt{\pi}\upsilon_T^3} e^{-(\upsilon/\upsilon_T)^2} \sigma(\upsilon) d\upsilon + nf\upsilon_T \mu^{1/2} \int_0^\infty \frac{\Delta}{\upsilon} \sigma(\upsilon) d\upsilon$$
(7)
(7)

ここで、中性子束が、Maxwell 分布成分のみの場合、即ちf=0、この時の反応率は、(7)式の右辺の第一項の積分だけになる。この場合の実効断面積を、 $\hat{\sigma}_m$ とすると、

$$R = n\upsilon_0 \hat{\sigma}_m = n \int_0^\infty \frac{4\upsilon^3}{\sqrt{\pi}\upsilon_T^3} e^{-(\upsilon/\upsilon_T)^2} \sigma(\upsilon) d\upsilon$$
(8)

となるから、 $\hat{\sigma}_m$ は積分項を速度 v_0 で割って与えられる。即ち、

$$\hat{\sigma}_{m} = \frac{1}{\nu_{0}} \int_{0}^{\infty} \frac{4\nu^{3}}{\sqrt{\pi}\nu_{T}^{3}} e^{-(\nu/\nu_{T})^{2}} \sigma(\nu) d\nu$$
(9)

更に、 $\hat{\sigma}_m$ と熱中性子断面積 σ_0 の比、g-factor を定義する。

$$g = \frac{\hat{\sigma}_m}{\sigma_0} = \frac{1}{\nu_0 \sigma_0} \int_0^\infty \frac{4\nu^3}{\sqrt{\pi}\nu_T^3} e^{-(\nu/\nu_T)^2} \sigma(\nu) d\nu$$
(10)

g-factor は、熱中性子領域における断面積の 1/v則からのズレを表す量である。1/v則が 成立する時は、g=1 である。

f ≠ 0 の場合、式(9)の定義を用いて、式(7)を書き直せば、

$$R = n(1-f)\upsilon_0\hat{\sigma}_m + nf\upsilon_T\mu^{1/2}\int_0^\infty \frac{\Delta}{\upsilon}\sigma(\upsilon)d\upsilon$$

$$= n\upsilon_0\hat{\sigma}_m + nf\left[\upsilon_T\mu^{1/2}\int_0^\infty \frac{\Delta}{\upsilon}\sigma(\upsilon)d\upsilon - \upsilon_0\hat{\sigma}_m\right]$$
(11)

式(7)と(10)を用いて、式(11)から、ôについて次式を得る。

$$\hat{\sigma} = g\sigma_0 + \frac{f\mu^{1/2}}{2} \frac{\upsilon_T}{\upsilon_0} \int_0^\infty \left[\sigma(\upsilon) - \frac{\upsilon_0 \hat{\sigma}_m}{\upsilon} \right] \frac{\Delta}{E} dE$$
(12)

ここで、次のような指数を導入する。

$$r \equiv \frac{f\sqrt{\pi\mu}}{4} \tag{13}$$

式(13)を用いて、式(12)を整理すると、

$$\hat{\sigma} = g\sigma_0 + r \cdot \left(\frac{4T}{\pi T_0}\right)^{1/2} \int_0^\infty \left[\sigma(\upsilon) - \hat{\sigma}_m \frac{\upsilon_0}{\upsilon}\right] \frac{\Delta}{E} dE$$
(14)

を得る。式(14)の右辺の積分の項は、中性子断面積カーブから1/v則による寄与を差し引き、energy で weight を付けて積分した量、共鳴積分("Reduced Resonance Integral")を表している。式(14)中のこの項を、次式のように I_0^{\prime} と置く。

$$I_0^{\prime} = \int_0^{\infty} \left[\sigma(\upsilon) - \hat{\sigma}_m \frac{\upsilon_0}{\upsilon} \right] \frac{\Delta}{E} dE$$
(15)

式(14)において、右辺第2項の積分にかかる係数項を整理するために、s という量(パ ラメータ、無次元量)を次のように定義する。

$$s = \frac{1}{\sigma_0} \sqrt{\frac{4T}{\pi T_0}} I_o^{\prime} \tag{16}$$

また、 $s \cdot (T/T_0)^{1/2} \equiv s_0$ という温度に依存したパラメータを定義すると、 s_0 は共鳴積 分 I'_0 と関係付けられて、

$$s_0 = \frac{2I_0'}{\sqrt{\pi}\sigma_0} \tag{17}$$

と表すことができる。

以上を整理すると、良く熱化された熱中性子による反応の実効断面積 ô は、式(14)から式(15)と(16)を用いて、次式のように与えることができる。

$$\hat{\sigma} = \sigma_0 (g + r \cdot s) = \sigma_0 (g + r(T/T_0)^{1/2} \cdot s_0)$$
(18)

ここで、(18)式の各変数の意味を以下のようにまとめておく。

σ₀ : 2,200 m/s 中性子に対する熱中性子捕獲断面積

g : 熱中性子領域における 1/ 則からの断面積のズレ

$$r(T/T_0)^{1/2}$$
: Westcott の熱外指数であり、中性子スペクトルにおける
熱外中性子成分の割合を表す。

T :中性子温度

*T*₀ : 常温 293.6°K (20.44°C)

(18)式において、熱中性子及び熱外中性子に対する自己吸収を補正する係数を導入し、 それぞれ G_{th}および G_{epi} とすると、

$$\hat{\sigma} = \sigma_0 (gG_{th} + r(T/T_0)^{1/2} \cdot s_0 G_{epi})$$
(19)

を得る。自己吸収が無い場合は、 $G_{th}=G_{epi}=1$ となる。熱中性子に対する自己吸係数 G_{th} [5]、 及び熱外中性子に対する自己吸収係数 G_{epi} [6]の計算方法を、Appendix に概説したので、 参考になれば幸いである。

最終的に反応率 R は、次式のように表せる。

$$R = n\nu_0 \hat{\sigma} = n\nu_0 \sigma_0 (gG_{th} + r(T/T_0)^{1/2} \cdot s_0 G_{epi})$$
(20)

3.3. 複数箔放射化検出器法

熱中性子捕獲断面積に関する理論的標準化を示した Westcott's Convention (1958) [3,4]に 従ってかカドミウム比法の改良を行い、複数箔放射化検出器を用いた方法[7]が提案され た。(20)式について、中性子束の項を纏めて、次式のように簡素化して記述する。

$$R/(gG_{th}\sigma_0) = \phi_1 + \phi_2 \cdot s_0 \cdot (G_{epi}/gG_{th})$$
⁽²¹⁾

中性子束成分が2個あるので、モニタを2個にすれば良い。モニタ1,2を用意し、それ らに対して式(21)を作れば良く、

$$R_1 / (gG_{th}\sigma_{0,1}) = \phi_1 + \phi_2 \cdot s_{0,1} \cdot (G_{epi}/gG_{th})$$
(22)

$$R_2/(gG_{th}\sigma_{0,2}) = \phi_1 + \phi_2 \cdot s_{0,2} \cdot (G_{epi}/gG_{th})$$
(23)

更に、断面積データが良く分かっており 1/v 則からの断面積のズレが g=1 であるような 核種をモニタに選定し、かつ薄い金属箔やアルミニウム合金線などモニタの仕様を検討 して自己吸収を抑えれば、次式のように非常に簡素な式になる。

$$R_1/\sigma_{0,1} = \phi_1 + \phi_2 \cdot s_{0,1} \tag{24}$$

$$R_2/\sigma_{0,2} = \phi_1 + \phi_2 \cdot s_{0,2} \tag{25}$$

式(24),(25)は、パラメータ s₀に対して、1 次関数であるから、x 軸をモニタ核種のパラメー タ s₀に、y 軸を R/σ_0 に取り、いくつかのモニタ核種についてプロットすれば、図 2 のよ うになる。



図2 パラメータ $s_0 \ge R/\sigma_0$ の関係

y 軸切片が、熱中性子束 ϕ_1 を与え、傾きが ϕ_2 を与える。図2から実験条件に合わせて、 適当に2個以上のモニタを選定して、中性子束の次元を持つ R/σ_0 の測定値を1次関数で フィットするなりして中性子束成分をモニタリングすることができる。得られる傾き ϕ_2 を ϕ_1 で除すれば、

$$\phi_2/\phi_1 = r(T/T_0)^{1/2} \tag{26}$$

となり、Westcott の熱外指数も求めることができる。

モニタ核種で得られる図2のラインに対して、ある核種の測定値 R/σ_0 が逸脱する場合、 その熱断面積データ σ_0 及びパラメータ s_0 (ないし共鳴積分 I_0)を見直す必要があること になる。このことから、図2は、モニタ核種の断面積データを用いて用意する"<u>断面積の</u> 検量線"という見方もできるだろう。

3.4. 改良カドミウム比法(Modified Cadmium Ratio Method)

複数箔放射化検出器法により中性子束をモニタリングできるのであれば、このことを 利用して、核種xに対してその断面積測定へ適用するのは自然な流れであろう。核種xを ある中性子束で照射すれば、先ず次式が得られる。

$$R_{x}/\sigma_{0,x} = \phi_{1} \cdot G_{th,x} + \phi_{2} \cdot s_{0,x} \cdot G_{epi,x}$$
(27)

熱中性子断面積と共鳴積分に関係するパラメータ so 0 2 つの未知数を求めることになる から、もう一つ式が必要になる。そこで、カドミウム比法を適用して、人為的に中性子場 を変えて核種 x の照射を行う。カドミウム遮蔽をした場合の照射を、ダッシュを付けて 区別して、次のように記述する。

$$R'_{x}/\sigma_{0,x} = \phi'_{1} \cdot G_{th,x} + \phi'_{2} \cdot s_{0,x} \cdot G_{epi,x}$$
(28)

カドミウム比法では、Cd 遮蔽により熱中性子成分を完全に0に置いているが、中性子の 漏れ出しは否めない。そこで、"補正量"として*ϕ*₁ を考えておく。

式(27),(28)を連立して2つの未知数を求める時、中性子束成分が4つあるので、核種x と一緒に、Cd 遮蔽無し、有りの照射を行い、中性子束成分に対する式を4つ用意すれば 良い。Au と Co のモニタを用意すれば、次式のように書き出せる。

$R_{Au}/\sigma_{0,Au} = \phi_1 \cdot G_{th,Au} + \phi_2 \cdot s_{0,Au} \cdot G_{epi,Au}$	(29.a)
$R_{Co}/\sigma_{0,Co} = \phi_1 \cdot G_{th,Co} + \phi_2 \cdot s_{0,Co} \cdot G_{epi,Co}$	(29.b)
$R'_{Au}/\sigma_{0,Au} = \phi'_1 \cdot G_{th,Au} + \phi'_2 \cdot S_{0,Au} \cdot G_{epi,Au}$	(29.c)
$R'_{Co}/\sigma_{0,Co} = \phi'_1 \cdot G_{th,Co} + \phi'_2 \cdot s_{0,Co} \cdot G_{epi,Co}$	(29.d)

以上、式(27),(28),(29)を解けば、核種 x の熱中性子断面積、及びパラメータ so 即ち共鳴 積分を導出することができる。上記の式ではカドミウム遮蔽用いて同一の照射孔で異な る 2 つの中性子場を用意している。原理的には、中性子成分が異なる 2 つの照射場を用 いても可能である。例えば、非常に熱化された熱中性子場と適当な硬さを持った中性子場 を用いて照射を行い、上記の式を用意すれば良い。

4. Highlight Data

本手法を核分裂生成核種、マイナーアクチニド核種、及び廃止措置に係るクリアラン ス対象核種について適用して、断面積測定を行った。本研究で、得られた成果を表1-3 に、それぞれ纏めてある。それぞれの実験について述べると冗長になるので、文献を参照 して頂ければ幸いである。

Nuclide	Past Data (Author, Year)	JAEA Data	Ref.
⁹⁰ Sr	$\sigma_{eff}{=}0.8{\pm}0.5\text{b}$	$\sigma_0 = 10.1 \pm 1.3 \text{m b}$	
	(Zeisel 1966)	$I_0 = 104 \pm 16 m b$	[8]
		(2001)	
⁹⁹ Tc	$\sigma_0 = 20 \pm 2 \text{ b}$	$\sigma_0 {=} 22.9 {\pm} 1.3 \text{ b}$	
	I_0 '=186±16 b	$I_0 = 398 \pm 38$ b	[9]
	(Lucas 1977)	(1995)	
¹²⁹ I	$\sigma_0=27\pm2$ b	$\sigma_0 \!=\! 30.3 \!\pm\! 1.2 \mathrm{b}$	
	$I_0 = 36 \pm 4 \text{ b}$	$I_0 = 33.8 \pm 1.4 \text{ b}$	[10]
	(Eastwood 1958)	(1996)	[10]
¹³⁵ Cs	$\sigma_0 {=} 8.7 {\pm} 0.5 \mathrm{b}$	$\sigma_0 {=} 8.3 {\pm} 0.3 \mathrm{b}$	
	$I_0 = 61.7 \pm 2.3 \text{ b}$	$I_0 = 38.1 \pm 2.6 \text{ b}$	F1 13
	(Baerg 1958)	(1997)	[11]
		$\sigma_0 {=} 8.57 {\pm} 0.25 \text{ b}$	5103
		$I_0 = 45.3 \pm 3.2 \text{ b}$	[12]
		(2020)	
¹³⁴ Cs	$\sigma_{eff} = 134 \pm 12 \text{ b}$ (Bayly 1958)	σ _{eff} =141±9 b (1999)	[13]

表 1 Cross-Section Data for Fission Products by JAEA

表 2 Cross-Section Data for Minor Actinides by JAEA

Nuclide	Past Data (Author, Year)	JAEA Data	Ref.
²³⁷ Np	$\sigma_0{=}158{\pm}3\text{ b}$	$\sigma_0 {=} 141.7 {\pm} 5.4 \text{ b}$	[14]
	$I_0 = 652 \pm 24 b$	$I_0 = 862 \pm 51 b$	
	(Kobayashi1994)	(2003)	
		$\sigma_0 = (186.9 \pm 6.2 \text{ b})$	[15]
		175.9±6.4 b	
		(2019)	
		$\sigma_0 = 173.8 \pm 4.7 \text{ b}$	[16]
		(2022)	

²³⁸ Np	No Data	$\sigma_{\rm eff} = 479 \pm 24 \text{ b}$ (2004)	[17]
²⁴¹ Am	$\sigma_{0g} = 768 \pm 58 \text{ b}$ $I_{0g} = 1694 \pm 146 \text{ b}$ (Shinohara 1997)	$\sigma_{0g} = 628 \pm 22 \text{ b}$ $I_{0g} = 3.5 \pm 0.3 \text{ kb}$ (2007)	[18]
²⁴³ Am	$\sigma_{0m} = 80 \text{ b}$ $\sigma_{0g} = 4.3 \text{ b}$ $\sigma_{0m+g} = 84.3 \text{ b}$ (Ice 1966)	$\sigma_{eff} = 174.0 \pm 5.3 \text{ b}$ (2006) $\sigma_{0m} = 4.73 \pm 0.27 \text{ b}$ $I_{0m} = 396.5 \pm 8.9 \text{ b}$ $\sigma_{0m+g} = 88.5 \pm 4.0 \text{ b}$ $I_{0m+g} = 2.30 \pm 0.20 \text{ kb}$	[19]
		(2021)	

表 3 Cross-Section Data for Stable Nuclides by JAEA

Nuclide	Past Data (Author, Year)	JAEA Data	Ref.
	$\sigma_0 {=} 4.7 {\pm} 0.2 b$	$\sigma_0{=}6.40{\pm}0.29~b$	
¹²⁷ I	$I_0 = 109 \pm 5 b$	$I_0 = 162 \pm 8 b$	[21]
	(Friedmann 1983)	(1999)	
	$\sigma_0{=}30.4{\pm}0.8~{ m b}$	$\sigma_0 {=} 29.0 {\pm} 1.0 \text{ b}$	
¹³³ Cs	$I_0 = 461 \pm 25 \text{ b}$	$I_0 = 298 \pm 16 \text{ b}$	[22]
	(Baerg 1960)	(1999)	
	$\sigma_0 = 9140 \pm 650 \text{ b}$	$\sigma_{\rm eff} = 3 \pm 1 \ {\rm k} \ {\rm b} \ (2000)$	
1657.7	$I_0 = 1140 \pm 90 b$	$s_{0m}{=}3.11{\pm}0.82k\mathrm{b}$	[22]
Но	(Masyanov 1993)	$I_{0m} = 10.0 \pm 2.7 k b$	[23]
		(2002)	
	$\sigma_0{=}0.61{\pm}0.05~b$	$\sigma_0 {=} 0.593 {\pm} 0.046 \text{ b}$	
⁸⁰ Se	(Goldberg 1966)		[2,4]
	$I_0 = 1.43 \pm 0.16 \text{ b}$	$I_0 \!=\! 1.050 \!\pm\! 0.10 \text{ b}$	[24]
	(Ricabarra 1968)	(2008)	
²⁰⁴ Pb	$\sigma_0 {=} 0.661 {\pm} 0.070 \text{ b}$	$\sigma_{eff}{=}0.536{\pm}0.030b$	[25]
	(Jurney 1967)	(2023)	[25]

⁹³ Nb	$\sigma_0{=}1.06{\pm}0.04~b$	$\sigma_0 \!=\! 1.11 \!\pm\! 0.04 \ b$	
	$I_0 \!=\! 10.8 \!\pm\! 1.1 \text{ b}$	$I_0 \!=\! 10.5 \!\pm\! 0.6 \text{ b}$	[26]
	(Krane 2019)	(2023)	
¹⁸¹ Ta	$\sigma_0 = 20.2 \pm 0.1 \text{ b}$	$\sigma_0 = 20.4 \pm 0.3 \text{ b}$	[27]
	(Arbocco 2014)	(2021)	[27]
45 Sc	$\sigma_0 = 27.5 \pm 0.8 \text{ b}$	$\sigma_0 = 27.18 \pm 0.28 \text{ b}$	
	(Nguyen 2015)	(2024)	
⁶³ Cu	$\sigma_0 = 4.28 \pm 0.18 \text{ b}$	$\sigma_0 = 4.34 \pm 0.06 \text{ b}$	
	(Corte 1988)	(2024)	[7 0]
⁶⁴ Zn	$\sigma_0 = 0.70 \pm 0.03 \text{ b}$	$\sigma_0 = 0.719 \pm 0.011 \text{ b}$	[28]
	(Krane 2017)	(2024)	
109 Ag	$\sigma_{0m} = 4.12 \pm 0.10 \text{ b}$	$\sigma_{_{0m}}$ =4.05±0.05 b	
	(Nakamura 2003)	(2024)	
⁵⁸ Fe	$\sigma_0 = 1.30 \pm 0.01 \text{ b}$	$\sigma_0 = 1.36 \pm 0.03 \text{ b}$	[20]
	(Arbocco 2013)	(2024)	[29]

核データニュース, No.140 (2025)

5. おわりに

原子炉中性子を用いた放射化法により中性子捕獲断面積測定のための手法を開発し、 それを主要な核分裂生成核種やマイナーアクチノイド核種について適用し、それらの中 性子捕獲断面積や共鳴積分の導出に成功した。また、廃止措置におけるクリアランスの対 象核種について、それらの生成量に資する核データとして熱中性子断面積測定を測定し た。安定核種については、それらを中性子束モニタとして転用することが可能であり、生 成核種の半減期が長い場合は、比較的長期の中性子照射に耐えるものと期待される。本手 法は、放射化法による断面積導出の手法として完成したと判断している。

本研究は、当然ながら、私一人のみで行った訳ではなく、数多くの共同研究者のお力添 えがあって成しえたものです。ここで、多くの共同研究者の皆様に御礼申し上げます。 ありがとうございます。



写真: 立教大原子炉にて Tc-99 照射実験時の共同研究者近影 写真左より、緒方良至先生(当時、名大アイソトープ総合センター、現在:愛知医科大学)、 原田秀郎博士(現在、JAEA 国際人材育成センター)、加藤敏郎先生(名大名誉教授)、筆者

参考文献

- [1] Oryu S, Samata K, Suzuki T, Nakamura S, and Kamada H. Application of the Alt-Grassberger-Sandhas Equations to the Three-Alpha Model. Few-Body Systems 17, 185-197 (1994).
- [2] Sekine T and Baba H. JAERI-1266 (1980).
- [3] Westcott CH, Walker WH, Alexander TK. Proceedings of Second International Conference Peaceful Uses Atomic Energy; 1958 Sep 1-13; Geneva, Switzerland; United Nations Publication; 1958. P/202, 16: 70-76.
- [4] Walker WH, Westcott CH, Alexander TK. Measurement of Radiative Capture Resonance Integrals in a Thermal Reactor Spectrum, and the Thermal Cross Section of Pu-240. Can J Phys. 1960; 38: 57-77.
- [5] Sekine T, Baba H. Self-shielding and burn-out effects in the irradiation of strongly-neutron absorbing material. J Radioanalytical Chem. 1978; 45: 155-167.
- [6] Scherbakov O and Harada H. Resonance self-shielding corrections for activation cross section measurements. J Nucl Sci Technol. 2002; 39(5): 548-553.

- [7] Matsuoka H and Sekien T. Reactor-Neutron Monitoring with multiple Activation Detectors. JAERI-M 9552.
- [8] Nakamura S, Furutaka K, Wada H, Harada H, Katoh T, Fujii T and Yamana H. "Measurement of the Thermal Neutron Capture Cross Section and the Resonance Integral of the ⁹⁰Sr(n,γ)⁹¹Sr Reaction", J.Nucl Sci. Technol., Vol.38, No.12, pp.1029-1034(2001).
- [9] Harada H, Nakamura S, Katoh T and Ogata Y. Measurement of Thermal Neutron Cross Section and Resonance Integral of the Reaction 99 Tc(n, γ) 100 Tc. J. Nucl. Sci. Technol., Vol.32, No.5, p.395(1995).
- [10] Nakamura S, Harada H, Katoh T and Ogata Y. Measurement of Thermal Neutron Capture Cross Section and Resonance Integral of the ${}^{129}I(n,\gamma){}^{130}I$ Reaction. J. Nucl. Sci. Technol., Vol.33, No.4, p.283(1996).
- [11] Katoh T, Nakamura S, Harada H, Hatsukawa Y, Shinohara N, Hata K, Kobayashi K, Motoishi S and Tanase M. Measurement of Thermal Neutron Cross Section and Resonance Integral of the Reaction ¹³⁵Cs(n,γ)¹³⁶Cs. J. Nucl. Sci. Technol., Vol.34, No.5, p.431(1997).
- [12] Nakamura S, Shibahara Y, Kimura A, Iwamoto O, Uehara A, and Fujii T. Measurements of Thermal-Neutron Capture Cross-Section of Cesium-135 by Applying Mass Spectrometry. J. Nucl. Sci. Technol., Vo.57, No.4, pp.388-400 (2020).
- [13] Katoh T, Nakamura S, Harada H, Hatsukawa Y, Shinohara N, Hata K, Kobayashi K, Motoishi S and Tanase M. Measurement of the Effective Capture Cross Section of Cesium-134 by Triple Neutron Capture Reaction Method. J. Nucl. Sci. Technol., Vol.36, No.8, 635-640 (1999).
- [14] Katoh T, Nakamura S, Furutaka K, Harada H, Fujiwara K, Fujii T and Yamana H. Measurement of Thermal Neutron Capture Cross Section and Resonance Integral of the ²³⁷Np(n,γ)²³⁸Np reaction. J. Nucl. Sci. Technol., Vol.40, p.559 (2003).
- [15] Nakamura S, Kitatani F, Kimura A, Uehara A and Fujii T. Measurements of thermal-neutron capture cross section and resonance integral of neptunium-237. J. Nucl. Sci. Technol., Vol.56, No.6, pp.493-502 (2019).
- [16] Nakamura S, Shibahara Y, ENDO S and Kimura A. Thermal-Neutron Capture Cross-Section Measurements of Neptunium-237 with Graphite Thermal Column in KUR. J. Nucl. Sci. Technol., 59(11) 1388-1398(2022).
- [17] Harada H, Nakamura S, Fujii T and Yamana H. Measurement of Effective Capture Cross Section of ²³⁸Np for Thermal Neutrons. J. Nucl. Sci. Technol., Vol.41, No.1, p.1-6 (2004).
- [18] Nakamura S, Ohta M, Harada H, Fujii T and Yamana H. Thermal Neutron Capture Cross-Section and Resonance Integral of Americium-241. J. Nucl. Sci. Technol.,44, p.150 (2007).
- [19] Ohta M, Nakamura S, Harada H, Fujii T and Yamana H. Measurement of Effective Capture Cross Section of ${}^{243}\text{Am}(n,\gamma){}^{244}\text{Am}$ for Thermal Neutrons. J. Nucl. Sci. Technol., Vol.43, No.12,

p.1441(2006).

- [20] Nakamura S, Shibahara Y, Endo S and Kimura A. Thermal-Neutron Capture Cross-Section Measurements of Neptunium-237 with Graphite Thermal Column in KUR. J. Nucl. Sci. Technol., 59(11) 1388-1398(2022).
- [21] Katoh T, Nakamura S, Harada H and Ogata Y. Measurement of Thermal Neutron Capture Cross Section and Resonance Integral of the Reaction ${}^{127}I(n,\gamma){}^{128}I$. J. Nucl. Sci. Technol., Vol.36, No.3, 223-231 (1999).
- [22] Nakamura S, Harada S and Katoh T. Measurement of Thermal Neutron Capture Cross Section and Resonance Integral of the Reaction ¹³³Cs(n,γ)^{134m,134g}Cs. J. Nucl. Sci. Technol., Vol.36, No.10, 847-854 (1999).
- [23] Katoh T, Nakamura S, Furutaka K, Harada H, Baba T, Fujii T and Yamana H. Measurement of Thermal Neutron Capture Cross Section and Resonance Integral of the Reaction ^{166m}Ho(n,γ)¹⁶⁷Ho using Two Step Irradiation Technique. J. Nucl. Sci. Technol., Vol.39, p.705 (2002).
- [24] Nakamura S, Furutaka K, Harada H and Katoh K. Thermal Neutron Capture Cross-Sections and Resonance Integrals of the ⁸⁰Se(n,γ)^{81m,81g}Se Reactions. J. Nucl. Sci. Technol., Vol.45, pp.116-122 (2008).
- [25] Nakamura S, Kimura A, Endo S, Shizuma T and Shibahara Y. Neutron Capture cross-section measurement by Mass Spectroscopy for Pb-204 irradiated in JRR-3. J. Nucl. Sci. Technol., 2023; 60(9): 1133-1142.
- [26] Nakamura S, Shibahara Y, Endo S and Kimura A. Measurements of capture cross-section of ⁹³Nb by activation method and half-life of ⁹⁴Nb by mass analysis. J. Nucl. Sci. Technol., 2023; 60(11): 1361-1371.
- [27] Nakamura S, Shibahara Y, Endo S and Kimura A. Thermal-Neutron Capture Cross-Section Measurement of Tantalum-181 Using Graphite Thermal Column at KUR. J. Nucl. Sci. Technol., 58(10), pp.1061-1070 (2021).
- [28] Nakamura S, Shibahara Y, Endo S, Rovira G and Kimura A. Neutron Capture Cross-Section Measurements for Nuclides of Interest in Decommissioning: ⁴⁵Sc, ⁶³Cu, ⁶⁴Zn, ¹⁰⁹Ag and ¹¹³In. J. Nucl. Sci. Technol., 2024; 61(11): 1415-1430.
- [29] Nakamura S, Shibahara Y, Endo S, Rovira G and Kimura A. Measurements of Neutron Capture Cross-Section for Nuclides of Interest in Decommissioning (II): 58Fe. J. Nucl. Sci. Technol., (Online Published 2024/11/21)

Appendix A 熱中性子に対する自己吸収係数 Gth の計算

熱中性子に対する自己遮蔽係数 G_{th} を、図 A1 に示したような厚さ d を持つ無限平板体系を仮定して計算する。



図 A1 熱中性子に対する自己吸収係数の計算モデル図

中性子が、平板上面から深さ z の位置まで θ 方向に進んだ距離は、

 $z/\cos\theta$ ($\theta:0\sim\pi/2$) (A1)

であり、また平板下面から、深さzの位置までθ方向に進んだ距離は、

$$(z-d)/|\cos\theta| \quad (\theta:\pi/2\sim\pi)$$
 (A2)

と書ける。位置 z での中性子束を F(z)とすると、次式で与えられる。

$$F(z) = \int_{0}^{\pi/2} \int_{0}^{2\pi} \frac{n\upsilon_0}{4\pi} e^{-\mu z/\cos\theta} \sin\theta d\theta d\phi + \int_{\pi/2}^{\pi} \int_{0}^{2\pi} \frac{n\upsilon_0}{4\pi} e^{-\mu(d-z)/|\cos\theta|} \sin\theta d\theta d\phi$$

$$= \frac{n\upsilon_0}{2} \int_{0}^{\pi/2} \left\{ e^{-\mu z/\cos\theta} + e^{-\mu(d-z)/\cos\theta} \right\} \sin\theta d\theta$$
(A3)

ここで、 nU_0 は中性子束、 μ は吸収係数を表す。

中性子束 F(z)について、自己吸収による減弱がなければ、全立体角 4π で、 nv_0 の中性 子束があることになる。自己吸収係数 G_{th} は、厚さ z について F(z)を積分し、減弱がない 場合の元の中性子束 nv_0 の比を取ることにより与えられる、即ち

$$G_{th} = \frac{1}{n\nu_0 d} \int_0^d F(z) dz$$

$$= \frac{1}{2d} \int_0^d \int_0^{\pi/2} \left\{ e^{-\mu z/\cos\theta} + e^{-\mu (d-z)/\cos\theta} \right\} \sin\theta d\theta dz$$
(A4)

(A4)式の積分を行うと、

$$G_{th} = \frac{1}{2\mu d} - \frac{1}{2\mu d} e^{-\mu d} + \frac{1}{2} e^{-\mu d} - \frac{\mu d}{2} \int_{1}^{\infty} \frac{e^{-\mu dt}}{t} dt$$
(A5)

と計算される。(A5)式の右辺第4項は、"指数積分関数"と呼ばれ、解析的には計算できないので数値計算を行う必要がある。

ここで、µd<<1の場合、即ち、平板が非常に薄い場合では、(A5)式を展開すれば、

$$G_{th} \approx 1 - \frac{\mu d}{2} \tag{A6}$$

となり、簡単な近似式を得ることができる。

Appendix B 熱外中性子に対する自己吸収係数 Gepi の計算

厚みtの試料中で、角度θの熱外中性子が吸収される確率Pは、次式で表せる。

$$P_a(t) = \int_0^1 \mu \cdot d\mu \int_{-\infty}^\infty (1 - e^{-\frac{t}{\mu}N_a \sigma_0 \psi(\theta, x)}) dx$$
(B1)

ここで、 μ は cos θ 、N_a は個数密度(/cm³)、 σ_0 は Total cross-section のピーク値(熱断面積で はない) $\Psi(\theta,x)$ は Doppler broadening function である。

厚さtが0の場合の自己吸収が無い場合との比を取れば、吸収係数を与える。すなわち、

$$G_{epi} = \frac{P_a(t)}{P_a(t \to 0)}$$

$$G_{epi}(\theta, \tau) = \frac{\tau}{\pi} \int_{\tau}^{\infty} \frac{dy}{y^3} \int_{-\infty}^{\infty} (1 - e^{-y\psi(\theta, x)}) dx$$

$$\tau = t N_a \sigma_0 \frac{\Gamma_{\gamma}}{\Gamma}$$
(B2)

ここで、 Γ は共鳴の total width、 $\Gamma\gamma$ は radiative width である。

Doppler broadening function $\Psi(\theta, x)$ は、次式で表せる。Bethe and Placzek. Phys. Rev. 51 (1937).

$$\psi(\theta, x) = \frac{\theta}{2\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-\frac{1}{4}\theta^2 (x-y)^2}}{1+y^2} dy$$
(B3)

ここで、各記号は次式のように定義されている。

$$\theta = \frac{\Gamma}{\Delta}, \qquad \Delta = \sqrt{\frac{4E_0kT}{A}}, \qquad x = \frac{2(E - E_0)}{\Gamma}$$
(B4)

記号 D は Doppler width、 E_0 は共鳴エネルギー、E は中性子エネルギー、Aは質量数、T絶対温度、そして k は Boltzmann's Const.を表す。

自己吸収を求めるにあたり(B2)式を数値積分する必要がある。そこで、計算の効率化の ために、関数Ψ(θ,x)にパデ近似を施して、次式のように有理多項式関数にして行う。

O.Scherbakov et al., J. Nucl.Sci. Technol. 39, 548 (2002).

.

$$\psi(\theta, x) = h \cdot \frac{a_0 + a_2(hx)^2 + a_4(hx)^4 + a_6(hx)^6}{b_0 + b_2(hx)^2 + b_4(hx)^4 + b_6(hx)^6 + b_8(hx)^8}$$

where, $h = \frac{\theta}{2}$ (B5)

.

以上