

α 粒子による化合物からの中性子発生量

法政大学 中 嶋 龍 三

1. はじめに

使用済み核燃料の取扱いなどにおいて、アクチナイド核種から放出される α 粒子による中性子発生データが必要である、ということはおかねてから指摘されている¹⁾。部分的にはあるがこれらの要求に応えるために、さきに、10 MeV 以下の (α, n) 反応の微視断面積を収集・検討して、Ziegler²⁾ のまとめた阻止能データを使って中性子の厚いターゲット収量を計算した³⁾。その際に、断面積データについてもまた阻止能データについても、もっと検討すべき問題をいくつか残していた。ここでは、それらの中で厚い化合物ターゲットの問題について考察する。

2. Bragg の関係式は成立つか?

十分に厚いターゲットに対して、(α, n) 反応による中性子収量 Y_t は、

$$Y_t = \int_0^{E_a} \frac{\sigma}{\epsilon} dE$$

で表わされる。ここで E_a は入射 α 粒子のエネルギー、 σ は (α, n) 反応の微視断面積、 ϵ は阻止能である。ターゲットが $A_m B_n$ という形の化合物の場合の阻止能 ϵ は、元素 A と B の阻止能をそれぞれ $\epsilon(A)$ 、 $\epsilon(B)$ とすると、

$$\epsilon = m \epsilon(A) + n \epsilon(B)$$

で与えられる。これを Bragg の関係式という。この関係式はどんな場合にでも成立っている、と考えてよいのだろうか?

徳田は Si, SiO₂, Al, Al₂O₃ からの 1 乃至 2 MeV α 粒子の後方散乱スペクトルを測定して解析した結果、Al 自体の阻止能にも若干の問題があるものの、一般に酸化物からのスペクトルは、数百 keV 以下で Bragg の関係式を使ったものとは明瞭なくい違いを示すことを見出した⁴⁾。これは、特に低エネルギー側で問題になる阻止能に対する電子殻からの影響が正しく取入れられていないためであろうとも考えられるが、たとえば Si の場合には Ziegler の与えた阻止能を使って実験のスペクトルをうまく説明できるのに SiO₂ では一致しないということは、低エネルギー側で酸素の阻止能に問題があるのか、あるいは Bragg の関係式の適用に問題があるかのどちらかであろう。

1 乃至数 MeV α 粒子に対する U と U_{0.85} · Pu_{0.15} の炭化物⁵⁾ と Th, U, U_{0.8} · Pu_{0.2}

の酸化物⁶⁾の阻止能の測定が報告されている。Ziegler²⁾はUまでのすべての元素に対する阻止能を与えているが、Puについては与えられていないので、UCと UO_2 および ThO_2 に対してBraggの関係式を使ってZieglerの値から求めたものと実験値とを比較したのが第1図である(Th O_2 の実際の値は UO_2 とごくわずかに異なるだけなので、Ziegler値/実験値だけを示した)。この図から明らかなように、UCの実験値はZieglerの値にくらべて十数%から20%ぐらい大きい。また UO_2 の場合には実験値が数%大きい、入射エネルギーが大きくなるにつれてこの不一致は徐々に減少する傾向を示している。しかし、この比較だけではBraggの関係式の問題について論ずることは不可能である。

3. α 粒子による化合物からの中性子発生量

3.1 重い元素の炭化物および酸化物

第2図は、Zieglerの阻止能データとBraggの関係式を使ってさきに計算した UO_2 とUCからの(α, n)反応による中性子収量³⁾を、West and Sherwoodの実験結果⁷⁾と比較したものである。計算値は、 UO_2 については約5 MeV以下で約20%ぐらい、UCでは5乃至6 MeVで約10%ほど小さくなるが、概して一致は良いといってもよからう。もし第1図に示した実測された阻止能^{5), 6)}を使うと、当然のことながら中性子収量は第2図の計算値よりさらに小さくなって、Westらの実験値との不一致が顕著になる。

Westらの中性子収量の実験値が正しいと仮定すると、計算の際に選んだCとOとに対する(α, n)反応断面積とZieglerの阻止能およびBraggの関係式とは、ほとんど問題はないことを第2図は示していると考えてよからう。しかし約5 MeV以下の UO_2 に対する計算値のずれは、O(α, n)反応断面積に見られる共鳴構造を平均化して200 keV間隔で数値積分した計算の粗さによるものであろう。ここではこの計算の粗さには目をつむることにして、文献5)と6)で測定した($U_{0.85} \cdot Pu_{0.15}$)Cと($U_{0.8} \cdot Pu_{0.2}$) O_2 の阻止能がUCと UO_2 の場合と同じ割合で大きくなっていると仮定してそれを補正したのち、これらからの中性子収量を計算した結果を第1表に示す。

第1表で、UC、 ThO_2 、 UO_2 に対してはZieglerの阻止能を使い、($U_{0.85} \cdot Pu_{0.15}$)Cと($U_{0.8} \cdot Pu_{0.2}$) O_2 に対しては第1図のUCと UO_2 に対するZiegler値/実験値によって補正した阻止能を使っている。有効数字を3桁まで出してあるが、これはまったく無意味である。ただ炭化物同士、酸化物同士でほとんど中性子収量が変わらないので、わずかな差を示すために3桁まで書いたに過ぎない。また($U_{0.85} \cdot Pu_{0.15}$)Cからの中性子収量がUCからのものより大きくなっていて、酸化物の場合と逆の傾向を示しているが、これは前述の補正に問題があるものと思われる。

3.2 軽い元素の化合物

West and Sherwood⁷⁾の厚いターゲット中性子収量の実験では、BNとBeOについても測定が行われているので、これらについてZieglerの阻止能とBraggの関係式を使って計算した結果を比較したのが第3図である。

まずBNの場合であるが、計算結果は測定値より約30%ほど大きい。ここで使用した (α, n) 反応の断面積は ^{nat}B について測定されたもので、これはさきに指摘したように³⁾、 ^{10}B と ^{11}B とに対する断面積から合成されたものよりもどちらかといえばやや低めの値である。ただ、さきに ^{nat}B からの中性子収量をBairら⁸⁾の測定値と比較したときには、計算値が20数%大きくなった³⁾。したがって、ここで選んだ $^{nat}B(\alpha, n)$ の断面積がまだ大きめなのだとも考えられる。しかしながら、BairらのBe, Mg, Al, Siなどに対する測定値はWestらの測定値よりも10%ぐらい小さい傾向を示しているので、かならずしも (α, n) 反応断面積だけの問題であると断定することはむずかしい。重い元素の化合物の場合とは違って、いまの場合にはBとNの阻止能の大きさは同じ程度である。したがってBraggの関係式から求めた阻止能の値にも問題があるのかも知れない。

第3図に示したBeOに対する計算値は、実は誤りである。というのは、ちょうど個々の同位元素に対する断面積からnatural elementの断面積を求めるのと同じ処方で、BeOという分子に対する核反応断面積(この考え方も誤り)をでっちあげ、それを使って計算しているからである。正しくは、BeOの中のBe (α, n) 反応による中性子収量とO (α, n) 反応からの中性子収量とをBeOに対する阻止能を使って別々に求め、それぞれを加え合わせるべきである。こうして求めた中性子収量を第3図に点線(……)で示してある。Westらの実験値より約10%ほど大きめだが、エネルギーが高くなるにしたがって一致がよくなる傾向がある。この場合にもWestらの測定結果が正しいものとすれば、Beについての中性子収量の計算値³⁾が彼らの測定値より約10%ぐらい大きくなるので、BeOの不一致はBe (α, n) 反応の断面積に問題がある、といえそうである。しかし、この問題は今後もっと検討するつもりである。

4. おわりに

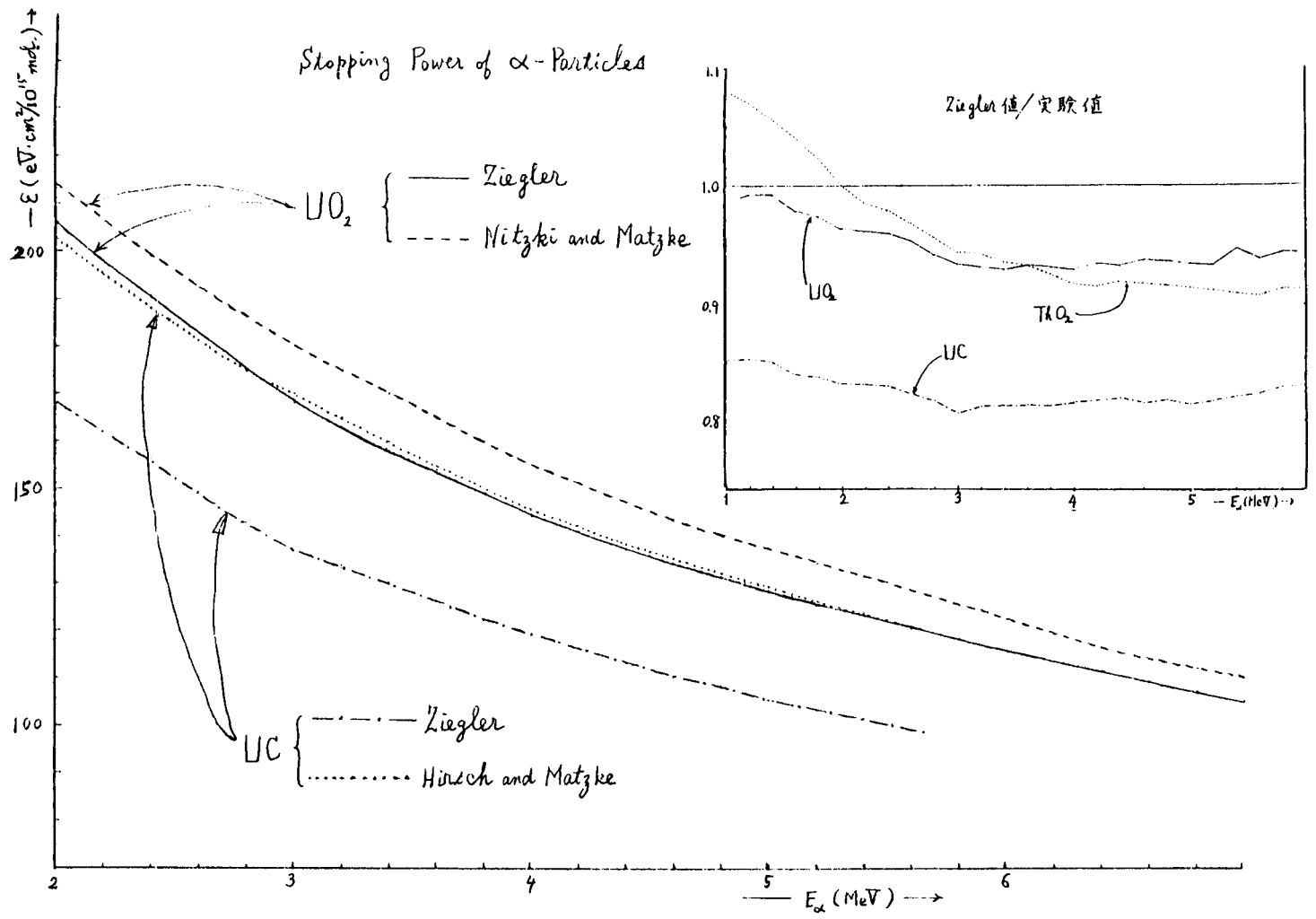
ここで行った計算はすべて電卓による手計算である。したがって、数値積分の際のメッシュも粗いために個々の数値に対する信頼度は低いが、大まかな傾向はうかがえる筈である。その結果、化合物ターゲットからの (α, n) 反応による中性子収量にはさらに検討すべき問題がある、ということが明らかになったと思われる。

文 献

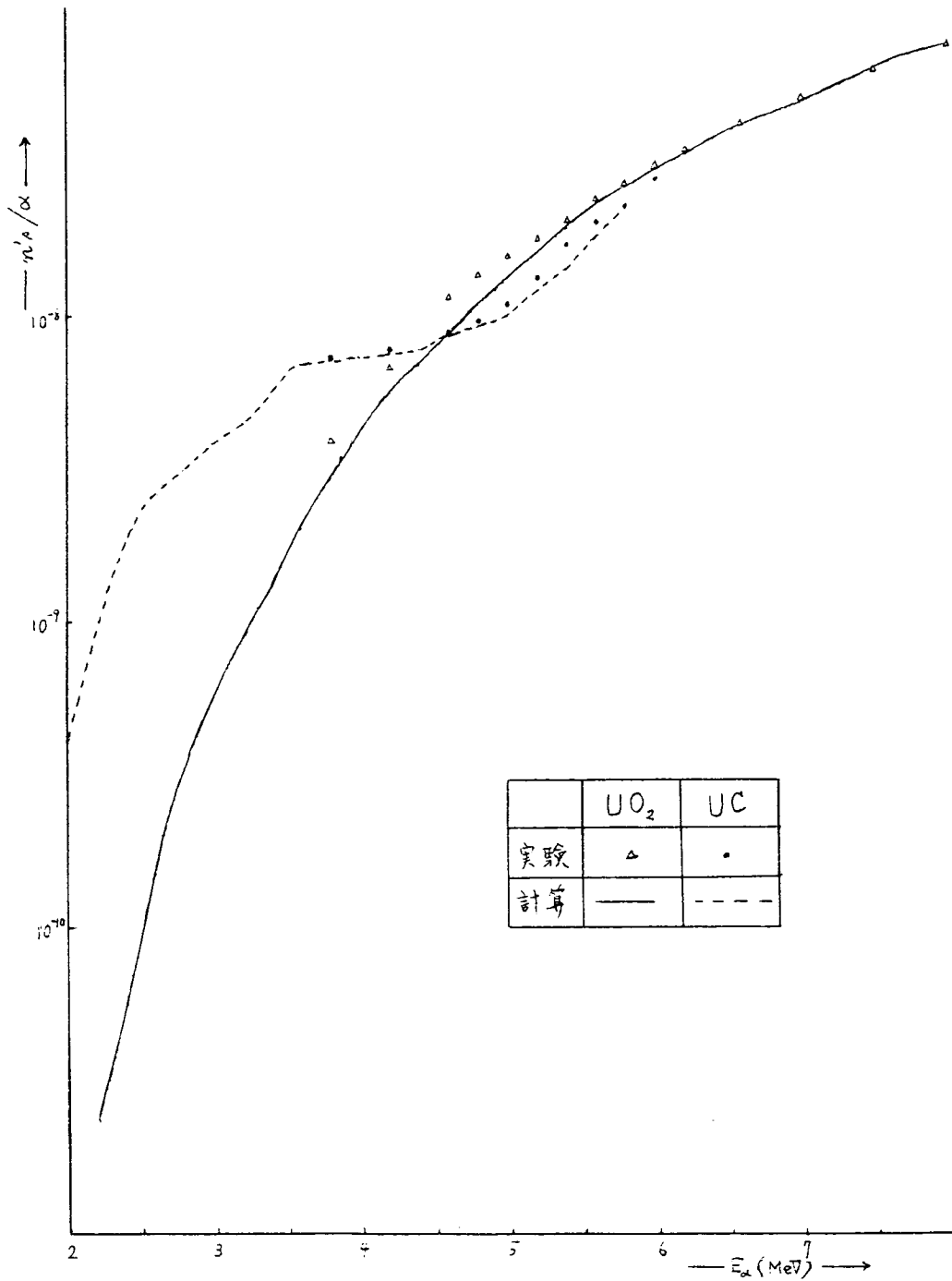
- 1) シグマ委員会, 燃料サイクル核データ・ワーキンググループ報告書
JAERI - M 9993 (1982). 村田徹, 田村俊幸, 日本原子力学会誌 24, 2 (1982)
- 2) J. F. Ziegler, "Helium Stopping Powers and Ranges in All Elements"
Pergamon Press (1972)
- 3) 中嶋龍三, JAERI - M 82-117 (1982)
- 4) 徳田清仁, 法政大学イオンビーム工学研究所報告 No 3, 18 (1983)
- 5) H. J. Hirsch and Hj. Matzke, J. Nucl. Mater. 45, 29 (1972/73)
- 6) V. Nitzki and Hj. Matzke, Phys. Rev. B8, 1894 (1973)
- 7) D. West and A. C. Sherwood,
- 8) J. K. Bair and J. Gomez del Campo, Nucl. Sci. Eng. 71, 18 (1979)

第1表 中性子収量 (neutrons/ α -particle)

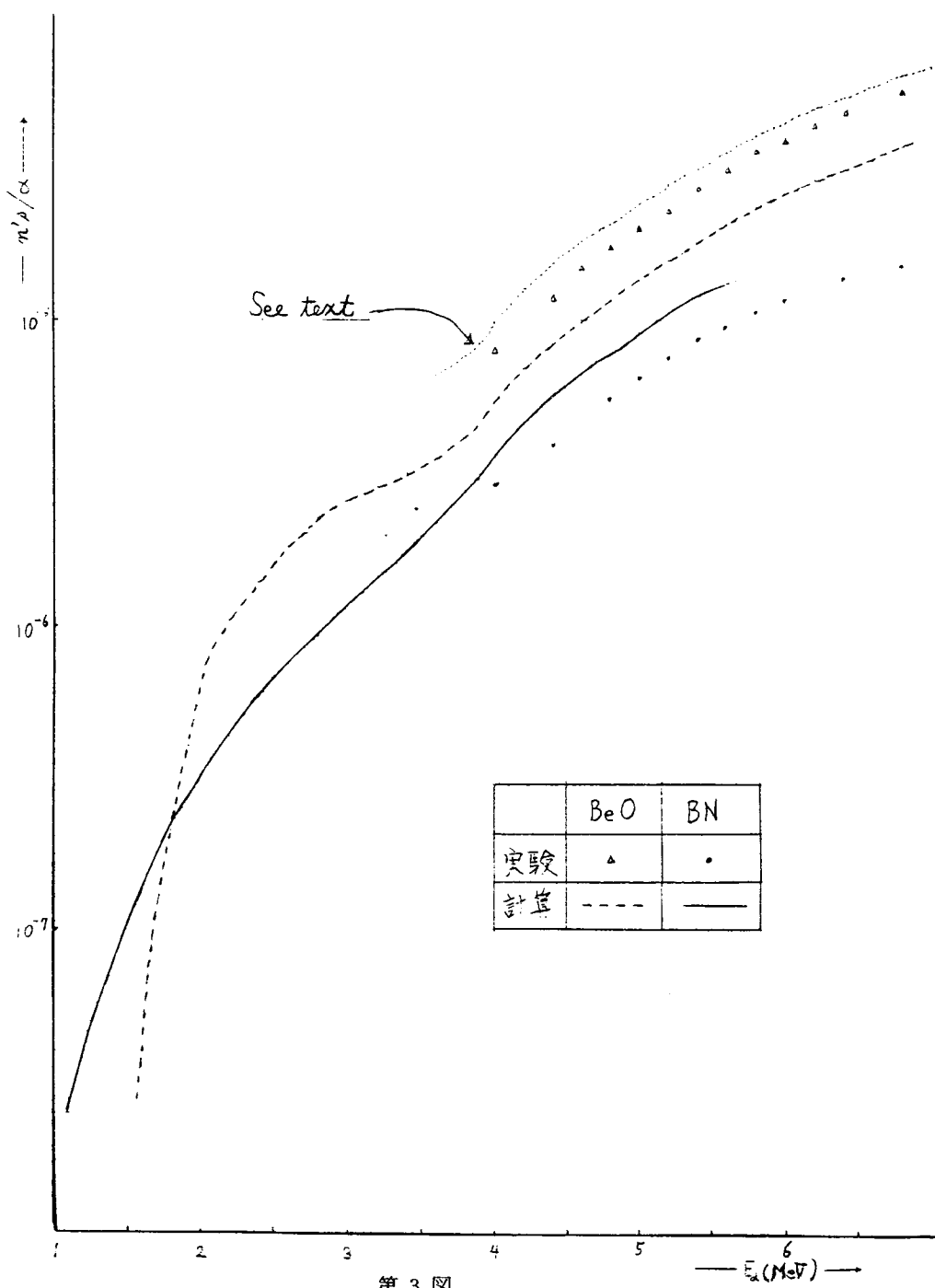
E_α (MeV)	UC	($U_{0.85} \cdot Pu_{0.15}$)C 補正值	ThO ₂	UO ₂	($U_{0.8} \cdot Pu_{0.2}$)O ₂ 補正值
2.0	4.11×10^{-10}	4.18×10^{-10}	8.73×10^{-12}	8.81×10^{-12}	8.63×10^{-12}
2.2	9.44	9.66	2.32×10^{-11}	2.33×10^{-11}	2.29×10^{-11}
2.4	1.78×10^{-9}	1.82×10^{-9}	5.64	5.65	5.54
2.6	2.55	2.58	1.47×10^{-10}	1.47×10^{-10}	1.44×10^{-10}
2.8	3.11	3.14	3.29	3.29	3.23
3.0	3.77	3.79	5.74	5.74	5.64
3.2	4.44	4.45	8.74	8.74	8.60
3.4	5.55	5.63	1.29×10^{-9}	1.29×10^{-9}	1.27×10^{-9}
3.6	6.88	6.93	1.94	1.94	1.92
3.8	7.10	7.19	2.92	2.92	2.88
4.0	7.22	7.28	4.06	4.06	4.01
4.2	7.44	7.48	5.27	5.27	5.20
4.4	7.66	7.78	6.76	6.76	6.67
4.6	8.55	8.65	8.50	8.49	8.38
4.8	9.21	9.28	1.05×10^{-8}	1.05×10^{-8}	1.04×10^{-8}
5.0	9.88	9.93	1.31	1.31	1.29
5.2	1.22×10^{-8}	1.28×10^{-8}	1.61	1.61	1.59
5.4	1.44	1.47	1.94	1.94	1.92
5.6	1.78	1.83	2.28	2.27	2.25
5.8			2.63	2.62	2.59
6.0			2.98	2.97	2.94
6.2			3.35	3.33	3.30
6.4			3.73	3.72	3.69
6.6			4.14	4.13	4.09
6.8			4.58	4.57	4.52
7.0			5.04	5.03	4.98
7.2			5.53	5.51	5.46
7.4			6.03	6.01	5.96
7.6			6.54	6.52	6.46
7.8			7.07	7.05	6.98
8.0			7.62	7.59	7.52



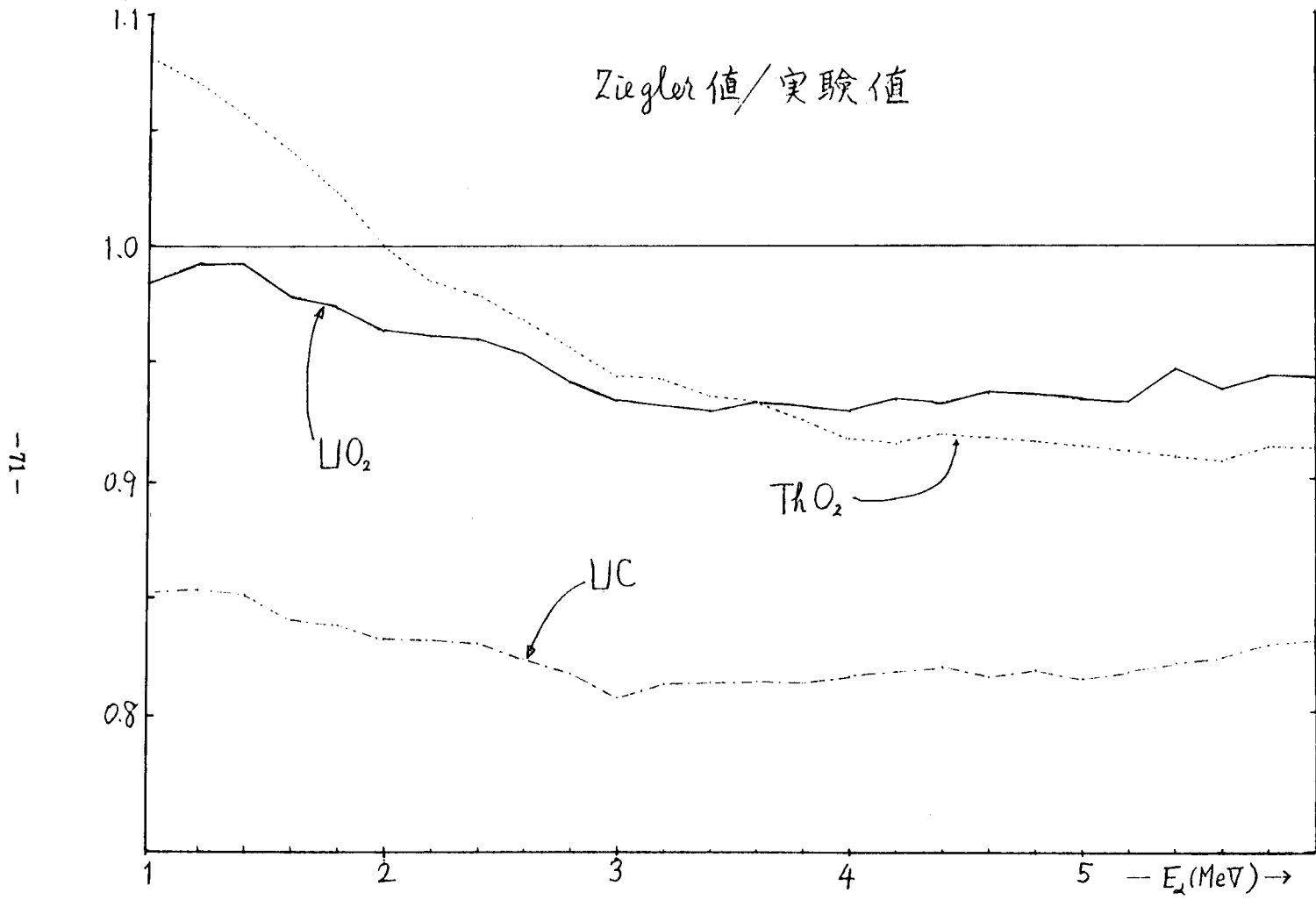
第 1 图



第 2 図



第 3 図



-71-