

話 題 (Ⅲ)

原子炉・核融合炉構造材核種の 中性子生成二重微分断面積に関する実験的研究 (日本原子力学会特賞を受賞して)

東北大学工学部
馬場 護、松山 成男

1. はじめに

標記の題で何か書くようにとのことですが、まず今回の受賞そして本研究の成果は多くの方々からの支援、援助のおかげであり深く感謝申し上げます。そもそも、この仕事は、JENDL-2 から JENDL-3 へ、そして核融合炉データの整備に向けた核データ活動の昂揚の中でこそ可能であったと思っています。阪大オクタビアンでの DDX や積分実験、原研 FNS での微積分実験、そして新しい評価などから次々と刺激を受け、半ば尻を叩かれたことが仕事の原動力となりました。とりわけ、阪大グループと張り合いながら仕事できたことは非常な幸運であり、これによって多くを得ることができました。また、「核融合炉工学」や「トリウム燃料」の科学研究費グループに参加できたことも大きな支えになりました。

仕事の概要は原子力誌 Vol.37³⁾ に紹介されていますが、せっかくの機会ですので、裏話も含め経過などを振り返ってみたいと思います。

2. 動機と経過など

本研究は東北大 4.5MV ダイナミトロン加速器を可変エネルギーの単色中性子源とし、表 1 に挙げる ${}^6, {}^7\text{Li}$ から ${}^{232}\text{Th}$ 、 ${}^{238}\text{U}$ までの 27 核種について、14MeV を中心に 18MeV、1 ~ 7MeV の入射エネルギーでの中性子生成二重微分断面積 (DDX) を測定し、半実験的なモデル化を行なったもので、Th、U については核分裂スペクトルも得た。18MeV を含む種々の入射エネルギーでの系統的なデータは、世界的にも初めてのものといえる。その基礎として高性能の TOF スペクトロメータ及びデータ解析法を開発し、弾性散乱から数 100keV までにわたって二次中性子スペクトルのほぼ全容を明らかにすることができた。DDX よりスペクトル、角度分布、部分断面積などの情報も導出し、EXFOR に登録するとともに世界各地に送付した。これらは評価や計算のベンチマーク

データとして JENDL-3 などの整備に貢献できたと思う。

中性子散乱断面積、特に非弾性散乱の重要性は言うまでもないが、研究を始めた '77 年ごろまでの実験は主に高速炉領域での離散準位への非弾性散乱に関するものであった。 ^{238}U などについても、低励起準位を如何に分離して測定するかが主要な関心事のように見えた。しかし、炉のスペクトル形成にはむしろ、高励起準位や連続準位など減速効果の大きい成分が重要ではないか、と考えたことが DDX に着目する動機であった。DDX を意識した実験は Dresden 工大、LLNL、AWRE そして九大などでなされていたが、入射エネルギー、二次中性子のエネルギー範囲ともに限られたものであった。

いざ実験を始めてみると、広いエネルギー範囲を高い分解能で測定することは簡単ではないし、多重散乱やバックグラウンドの補正にも新しい方法が必要であった。そんな訳で実験法やデータ補正法には随分と時間と労力を費やすことになったが、そのおかげで種々の副産物を得、従来看過されていた問題点を知ることもできた。また、実験結果との比較で、評価値には随分と問題のあることが分かったので、簡単な計算で実験値を再現する試みをいくつか行なった。

我々の実験は核融合炉に関連する軽核から出発した。軽核ではブレイクアップによる連続中性子の割合が大きく、これらは実験的にも余り調べられていないし、理論的にも面白い問題を含んでいそうに思えた。正直言えば構造材やアクチニドについては、先行グループに俄には太刀打ちできそうにないという理由もあった。最初に Be について 3.2 ~ 7.2 MeV での測定結果を得、スペクトルの解析と併せて 1978 年の Harwell 核データ国際会議¹⁾ で発表した。この実験を始めた直後、LANL の Drake らの論文が NSE に発表されて出鼻を挫かれたものの、同じ考えの人もいるのだと気を取り直して実験を進めた。幸い、この論文は Stewart 女史 (LANL) らから大いに激励を受け、DDX の実験を続ける勇気を得た。

表 1 本研究での測定核種

$^6\text{Li}^{**}$, $^7\text{Li}^{**}$, Be^{**} , ^{10}B , ^{11}B , C^* , N , O^* , F , Al^* , Si^* , Ti , V , Cr , Mn , Fe^* , Ni^* , Cu^* , Zr^* , Nb^* , Mo , Ta^* , W , Pb , Bi^* , Th^{**} , U^{**}

*; 18 MeV を含む、**; 1 ~ 7 MeV 及び 18 MeV を含む

3. 実験法の改善とサンプルの入手

Be に続いて Li^{23} や構造材、Th など他の核種や、14MeV 中性子にも手をのばした。この間梶山先生らの努力で特別設備費が認められ、加速器ビームコースの増強や中性子コリメータの改良が行なわれた。写真に示す新しいコリメータ（岩崎信氏の設計による）は～20MeV までの遮蔽性能に加えて開口部可変という特長を持ち、種々の実験条件に対応できるので、本研究に大きく寄与した。

これらによってスペクトル全体を測ることは可能になったが、14MeV の結果はエネルギー分解能の点で満足のいくものではなかった。そのうち、オクタビアンから目の覚めるような高分解能データが続々と報告され、ダイナミトロンでも競争できる分解能を得、同時にオクタビアンでの問題点——リングジオメトリのため散乱角度毎に入射エネルギーが異なる——もクリアしたいと考えた。当時、14MeV の実験はダイナミトロンの実用的な下限である 1.5MeV の重陽子ビームによる d-T 反応の 0° 方向中性子を用いて行っており、分解能の低さはここに原因があった。中性子源のエネルギー幅が大きかったのである。 90° 近傍への中性子を用いれば大幅に改善できることに気がつき、

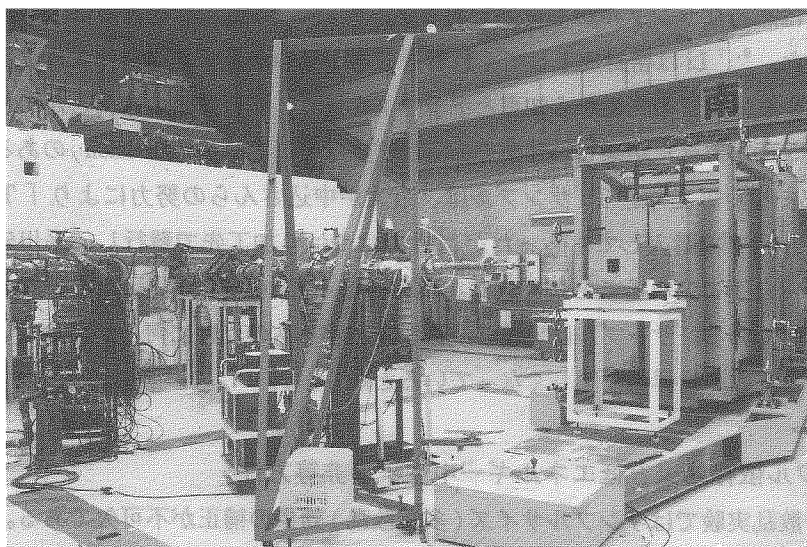


写真 DDX 測定用中性子コリメータ

本体は長さ約 3.0m で、パラフィン、水、鉛など総重量約 20 トン。回転台上に設置され、最大飛行距離 6.5m で $-20^\circ \sim 155^\circ$ の範囲で測定可能。写真の小型プリコリメータは大型のものに改善されている。手前のヤグラはサンプルチェンジャーで、いくつかのサンプルを釣糸でつり下げ、ステッピングモータで駆動する。

90° ジオメトリなるものを考えた。90° に検出器を固定しサンプルをターゲットの周りで回転させて散乱角度を変えるという変則的な配置である³⁾。結果は非常に良好でエネルギー分解能は見違えるほどに改善され、 ${}^6, {}^7\text{Li}$ 、C などの非弾性散乱ピークを明瞭に観測し、種々の核について DDX データを得ることができた^{3, 4)}。なお、90° 中性子の利用では偏極の影響が気になったが、この重陽子エネルギーでは問題なさそうであった (<5%)。

平行して、2- バイアス $n-\alpha$ 法の採用、光電子増倍管ベースの改良などを進め回路系の分解能も向上したことから、18MeV での測定にも取り組んだ。18MeV というエネルギーは 14MeV より高く、中性子源の寄生成分も程々ということで選んだものである。ダイナミトロンでは 20MeV 程度まで可能であるが、エネルギーを更に上げると C(d,n)、O(d,n) などの寄生成分が増加して DDX の導出が困難になる。但し、18MeV でもこの影響は小さくはなく、モンテカルロ計算で面倒な補正が必要ではある。

また、'87~'88 年には、ポストチョッパー (PACS)⁵⁾ を自作し、懸案であったダイナミトロンのパルス幅を改善した結果、データの質はさらに大きく改善された。

実験には適当なサンプルが不可欠であるが、 ${}^6, {}^7\text{Li}$ 、Th、U などでは入手は簡単ではなかった。 ${}^6, {}^7\text{Li}$ は密封加工してくれるところが見つからず結局自作することとなった。化学や液体金属の先生から知恵とドラフトを借り、試行錯誤の末何とかこれらの缶詰を作ることができたが楽しい仕事であるはずはなく、Sample Division のある研究所がうらやましく思えた。Th サンプルは、京大炉中込さんらの努力により「Th 燃料」科研費グループで購入してもらったが、U ではやはり加工先で難行し、平川先生の骨折りでやっと手にいれることができた。現在行なっている (n, α) 実験用の薄膜サンプルでも苦勞している。サンプルは実験の成否を左右するものだけに何とかならないものかと思う (現在は、世界的に難しくなっているとか)。

4. サンプル依存効果と低エネルギー中性子の非等方性

中性子散乱実験ではサンプルサイズ (多重散乱) 効果の補正が不可欠である。離散準位の場合にはいくつかの補正法が開発されていたが、いずれも多重非弾性散乱を removal として扱い、繰り返し計算で self-consistent な角分布を求める方式である。DDX の場合、多重散乱中性子のほとんどが本来と異なったエネルギーや角度で観測にかかるため、中性子の散乱過程を追跡し、1 回散乱によるもののみを選び出すことが必要となる。これ自体はモンテカルロ法を用いれば可能であるが、問題なのはサンプル核種の DDX (散乱過程) がかなりの程度分かっていないとまともな補正にならないことで

ある。DDX が分かっているならば実験をやる必要もない訳で、これはデータ補正に常に付きまとう自己撞着である。これを絶ち切るには、多重散乱の量自体を減らし、DDX の近似値を実験値から求める以外に手がない（当時、評価値の多くは近似値としても不十分であった）。大き過ぎないサイズを選び、実験結果にモデルをフィットしてパラメータ化することとした。補正には、幾何学的条件や角度分布、カイネマ (Kinematics) を考慮したモンテカルロプログラムを作成し、DDX モデルを組み込んだ⁶⁾。軽核と中重・重核に応じて次節のような種々のモデルを用意した。何度かの改良を経て一応合理的な補正法に辿り着けたのではと考えている。

このようにしてサンプルサイズ補正を行なった後でも、まだバックグラウンドとおぼしい成分が残った。Fe など中重核の低エネルギー部分に見られる緩やかな前方性（重心系でも）がその例である。これらの中中性子は蒸発過程によると考えられることから理解し難いことで、隈部先生らからも度々指摘された。結局、これは中中性子源の不純物（ターゲット散乱中中性子及び寄生中中性子）のサンプルでの散乱を考えて補正を行なうとほぼ消えることが分かった^{6, 7)}。以来、ターゲットを極力軽量化しバックグラウンドの低減を計ってきた。阪大グループはこの影響を C などについて検討した。

水戸会議で発表した我々の中重核のデータ⁸⁾はこの影響が未補正で前方性を示し、阪大のデータも同様であった。これらについてオーストラリア国立大の Kun 氏が複合核過程に関する“Bohr 仮定（記憶の喪失）”の破れを示す例として論文を書いて話題を呼んだ [Phys. Lett., B319 16(1993); Z.Phys., A348, 273(1994)]。最近届いた論文では、Ohio 大の 20MeV でのデータも引用して同様の主張を行なっている。この前方性は補正を行なった我々のデータでは阪大や Ohio 大の数分の一と小さいので、見掛上のものと考えているが、彼は重イオン反応についても同様の主張を行っており、他反応も含めてさらに検討する意味があるかも知れない。前方角での測定はいろいろと擾乱が入りやすく、中中性子に限らず難しいもののようである。現在、九大渡辺さん達が (p,p') について検討を進めている。

5. DDX の検討

軽核の場合、当時の JENDL-2 や ENDF/B-IV などではスペクトルの形状はもとよりエネルギー範囲すら怪しいものであった。軽核の DDX は核によって著しく異なるが、連続中中性子が主要な役割を演じる点で共通性が見られた¹⁻³⁾。^{6, 7} Li, C については 3 体、4 体などの位相空間分布 (PS) を実験室系に変換するだけで、角度依存性を含め実験値をかなり良く再現できた^{2, 3)}。（これは "moving source model" の 1 種になるかと

思う)。

Be の場合には、スペクトルは 2、3 の離散準位と連続成分からなり、離散成分は最終的に粒子崩壊する； $n + {}^9\text{Be} = n' + {}^9\text{Be}^*$ 、 ${}^9\text{Be}^* \rightarrow n + \alpha + \alpha$ 。崩壊過程を第 2 の同時多体崩壊と考えて粒子スペクトルを PS で近似し、残りの連続成分を 4 体 PS で表してやると実験値をほぼ追従することができた⁹⁾。かくして、軽核 DDX は主として同時多体崩壊とカイネマによって支配されるという簡単なイメージが描けるように思われる。これらの計算は、角運動量やスピンなどを無視した荒っぽいものであるが、他に厳密で実用的な計算法が見つからない現在、工学的には有用なものといえ、JENDL-3 などの軽核 DDX 評価に採用されている。核データセンターの柴田さんによる D についての Faddeev 計算は、魅力的であったがこれらの核には簡単に適用できそうになかった。

中重・重核の場合も、評価値に前平衡成分がない、あってもスペクトルや角度依存性が合わないなどの問題が見られた^{7, 8)}。前平衡過程の非等方性は中性子輸送や反跳原子スペクトルにもききそうであった。前平衡過程については、一般化励起子モデル、多段階直接過程、FKK モデルなどがあったが、計算が複雑で再現性も今一つと思われたので、primitive ではあるがスペクトルを励起子と蒸発ないしはカスケードスペクトルで、角度分布を Kalbach と Mann の系統性 (K-M) で表現し比較してみた。K-M は高エネルギー荷電粒子反応データから導かれたが、低エネルギー中性子反応にも適用できれば実用的と思われた。K-M は中性子を多段階直接過程 (MSD) と多段階統計過程 (MSC) に分類し、前者が前方性の、後者が 90° 対象の分布を持つとして、MSD の角度分布をエネルギーのみの関数として与えた。MSD と MSC への分離であるが、便宜的に MSD が励起子、MSC が蒸発スペクトルに等価であるとし、実験値をフィットして求めた。これで計算した結果は、スペクトル、角度分布とも比較的良く実験値を再現したが、前方性が強過ぎ軽い核ほどその傾向が強く見られた。隈部先生らはそれを改良するため、K-M パラメータの修正を行なった。後に Kalbach が出した新しい系統性はより良い結果を与えたが、まだ前方性を強調し過ぎるように見えた。

MSD= 励起子、MSC= 蒸発 とする上の仮定は Kalbach からも認めていたし、他の応用例でもしばしば用いられていたが、気になるころであった。'90 年に九大渡辺さんを通じて Drseden の Kalka が作った統計的多段階模型コード EXIFON を入手し、計算に適用した。このコードは、角度積分スペクトルの実験値を振動励起も含めてすばらしく良く再現した。そして、EXIFON による MSD、MSC を用いると、どちらの系統性でも実験値との一致が良くなり、さらに実験値に見られる前方性の質量依存性も追従できることが分かった。MSD= 励起子の仮定では、等方分布に近いであろう励起子数の大

きな状態までも MSD とみなされていたわけで、これが改善されたためと解釈している。

Th、U の場合には、手持ちの EXIFON で核分裂と散乱の競合を取り扱えないので励起子/蒸発の取扱しか試みていないが、核分裂中性子を等方と仮定すれば DDX の実験値を再現できた^{10, 11)}。

このようなエネルギーで何故系統性が成り立つかについて、最近 M.Chadwick らによって説明が与えられたので、これらの系統性は理論的にも基礎付けができたことになるう。

6. ²³⁸U、²³²Th の核分裂スペクトルと DDX

この両核種の場合、非弾性散乱中性子スペクトルを導出するのに、核分裂中性子単独のデータが必要であった。Th については岩崎信氏らの実験があったが、高分解能化の成果を生かして高エネルギー部までの測定を狙った。本来、核分裂計数管を用いて核分裂中性子を散乱中性子から識別するのが望ましいが、核分裂計数管ではサンプル量がせいぜいグラム程度と少なく、とても実験になりそうになかった。そこで～1モルの金属サンプルを用い、中性子エネルギーをしきい値ギリギリ(～2MeV)にして測定可能範囲を拡げた。スペクトルに何の構造もないので、エネルギー軸や検出効率の校正には神経を使う必要があったが、高分解能化とコリメーションの進歩のおかげで、10MeV 以上までの領域について結果を得ることができた。U の結果は、Madland-Nix モデルで評価された JENDL-3T と比べ、²⁵²Cf、²³⁵U などと指摘されていたと同様ならずを示した。Th では即発中性子数 ν と Maxwell 温度の関係から評価された値とほぼ合致した。

DDX 測定では、各準位を分離することよりは、集団運動や蒸発などによるグロスな構造を調べることに主眼をおいた^{10, 11)}。核分光的な情報は乏しいものの、減速行列の評価に有効で何か新しい情報が得られるかもとの期待もあった。1.2MeV から 18MeV までの6点について測定を行ない、6MeV までは回転、 β -、 γ -振動などによる構造を観測できた。U についての JENDL-3T は実験値と大きな差異を示したが、主として $(n,n'\gamma)$ による非弾性散乱断面積値を採用したためと判明した。こうした重核では、ガンマ線分岐比が不確かであるため、ガンマ線測定で非弾性散乱断面積を求めることは困難なようである。なお、A.B.Smith らが従来より指摘している $(n,n'\gamma)$ の寄与については、我々のデータからは何も言えないが、断面積の大きさによっては他の種々の問題にも関連する点で興味がある。

7. おわりに

書いているうちに回顧談風になり、徒に紙面を費やしてしまった気がするが、DDXは実験的には厄介な面が少なくないものの、得られる情報は豊富で、工学的のみならず物理的にも興味深い題材であると改めて感じる。現在、 $(n,x\alpha)$ のDDX測定に取り組んでいる理由もそこにある。JENDL-3で世界的に最も充実したDDXデータが整備された現在、中性子DDXは一段落の感があるが、我々はいわゆる"missing region"でのデータを目的として、11.5 MeV、18MeV 中性子に対する実験を進めている。本研究の資産を生かして中間エネルギー領域での研究に発展させられればと考えている。

最後になりましたが、本研究について多くの方々からご協力、支援いただいたことに紙面をお借りして改めて感謝申し上げます。核データコミュニティの方々、特に高橋亮人、山室信弘、(故)飯島俊吾、大沢孝明、隈部功、渡辺幸信先生には有益な示唆と資料をいただきました。菊池康之、五十嵐信一室長始め核データセンターの方々には、データの入手・登録、討論、受託研究など多岐に亘ってお世話になりました。また「核融合特定研究」、「エネルギー特別研究」の文部省科学研究費に関して、住田健二、木村逸郎先生に特にお世話になりました。

本研究は当研究室の大学院生諸君の実験、解析両面での協力によるものであり、逆瀬卓郎、千葉敏、中島宏、小野正博、薮田尚弘、菊池司、石川真澄、若林秀隆、伊藤伸夫、前田一人、伊藤卓也、大久保剛氏に感謝します。東北大原子核工学科の梶山一典、平川直弘、百田光雄先生、岩崎信、岩崎智彦、神田一隆氏、ダイナミトロン実験室坂本隆司、藤沢政則氏には長年に亘って協力いただきました。

今後共のご支援・ご鞭撻をお願いして結びとします。

参考文献

- (1) Baba,M., Sakase,T., Nishitani,T., Yamada,T., Momota,T.,: Proc. Int. Conf., on Neutron Physics and Nuclear Data, 1978 Harwell, 198 (1979)
- (2) Baba,M., Hayashi,N., Sakase,T., Iwasaki,T., Kamata,S., Momota,T.,: Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology, Knoxville 1979, 43 (1979) 349 (1980)
- (3) Chiba,S., Baba,M., Nakashima,H., Ono, M., Yabuta, N., Yukinori, S., Hirakawa, N.: J. Nucl. Sci. Technol., 22[10] 771 (1985)
- (4) Baba, M., Ono, M., Yabuta, N., Kikuchi, T., Hirakawa,N.: Radiation Effects 92-94 227(1986)

- (5) Matsuyama,S., Fujisawa,M., Baba,M., Iwasaki,T., Iwasaki,S., Sakamoto,R.,Hirakawa,N., Sugiyama,K.: Nucl.Instrum. and Methods, A348 34 (1994)
- (6) Baba,M., Matsuyama,S., Ishikawa,M., Chiba,S., Sakase,T., Hirakawa,N.: Nucl. Instrum. and Methods, to be published
- (7) Baba,M., Matsuyama,S., Ito,T., Ohkubo,T., Hirakawa,N.: J. Nucl. Sci. Technol., 31[8] 757(1994)
- (8) Baba,M., Ishikawa,M., Yabuta,N., Kikuchi,T., Wakabayashi,H., Hirakawa,N.: Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology, Mito 1988, 291
- (9) Baba,M., Ishikawa,M., Kikuchi,T., Wakabayashi,H., Hirakawa,N.: ibid., 209
- (10) Baba,M., Wakabayashi,H., Ito,N., Maeda,K., Hirakawa,N.: J. Nucl. Sci. Technol., 27[7] 601 (1990)
- (11) Baba,M, Matsuyama,S., Ito,T., Ito,N., Maeda,K., Hirakawa,N.: Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology, Jeulich 1991,349(1992)
- (12) Baba,M., Wakabayashi,H., Ishikawa,M., Nakashima,H., Ito,N., Hirakawa,N.: Proc. IAEA Consultants Meeting on Physics of Neutron Emission in Fission, Mito 1988, 149 (1989)