

解説 (I)

鉛スペクトロメータを用いた $^{241}, ^{243}\text{Am}$ の 核分裂断面積測定

京都大学原子炉実験所

小林 捷平

e-mail: koba@rri.kyoto-u.ac.jp

1. はじめに

ネプツニウム(Np)、アメリシウム(Am)、キュリウム(Cm)などは、いわゆるマイナーアクチニド(MA)と称される代表的な核種であって、核燃料の燃焼と共に原子炉内で生成蓄積される。図1は、これらのMA核種の生成と変換の過程を示している。100万 kWe級の軽水炉一基あたり、MAは一年間に約20数kg生成されると言われている(表1)。MA核種の大部分は、超長半減期の高レベル α 放射性核種であるため、燃料再処理や放射性廃棄物の取扱時には問題となる。こうしたMAを負の遺産として、またそのリスクを次の世代に残さないためにも、これらの高レベル放射性廃棄物をどの様に処理処分するかが、今日の我々に課せられた大きな課題となっている^{1,2)}。

我々は、長半減期の高レベル放射性廃棄物とされるマイナーアクチニド核種について、その消滅処理に関する基礎的データの取得を目的として、まず、Np-237³⁾、次いでAm-241⁴⁾、Am-243⁵⁾に関する核分裂断面積を共鳴中性子領域において測定した他、熱中性子場や1/E中性子場を用いて熱中性子断面積および共鳴積分についても測定⁶⁾を行ってきた。本報告では、最近、我々が鉛スペクトロメータを用いて0.1eVから10keV領域において測定したAm-241及びAm-243の核分裂断面積の測定法とその結果を中心に紹介する。

2. 京都大学 鉛スペクトロメータ

2.1 鉛スペクトロメータとその特徴

大きな鉛集合体のほぼ中央部にパルス状高速中性子が打ち込まれると、鉛は中性子吸収断面積が小さいため(熱中性子に対して0.17b)、中性子は弾性散乱(0.57MeV以上では非弾性散乱も起こり得るが)を繰り返し減速して行く。高エネルギー側の中性子はそれだけ速くエネルギーを失うため、エネルギーのfocus現象が起り、50~100keV以下の中性子になると、減速時間に対応してほぼガウス分布に近いエネルギー分布を持

つようになる。その平均中性子エネルギーは減速時間の自乗に反比例する関数として導かれる^{7,8)}。減速途中の中性子 velocity group が持つエネルギー分解能（半値幅）は、鉛スペクトロメータ固有の核的な特性により 30~40%と広がっている。この点が鉛スペクトロメータ最大の短所と言える。しかし、鉛スペクトロメータの最大の特徴は、中性子源より僅か数 10cm の場所で行えることであって、強力な中性子束が得られることである。例えば、通常の飛行時間分析実験に比べ、中性子強度が数千倍から 1 万倍（飛行路が 5 m の場合）にもなると言われている⁹⁾。Block 等は、鉛スペクトロメータを用いて核分裂断面積を測定する場合、測定可能となる最低条件として「 $1 \mu\text{g b}$ 」と言う表現を使っている⁹⁾。即ち、 $1 \mu\text{g}$ 以上の試料があれば 1 b の核分裂断面積の測定が可能であり、 1 g 以上の試料があれば $1 \mu\text{b}$ の核分裂断面積測定が可能となる一つの目安を示している。 α 崩壊、 β 崩壊を伴うため実験上のバックグラウンドが高くなるアクチナイド核種、試料量を十分入手できない F P 核種、断面積の小さい核種等の核データ測定の外に、物質の assay 等の基礎的な研究に対しても鉛スペクトロメータは、その特徴を生かして活用されている⁹⁻¹⁵⁾。

2.2 鉛スペクトロメータ K U L S の特性

京都大学原子炉実験所では、平成 3 年に既設の 46MeV 電子線型加速器と組み合わせ鉛スペクトロメータ（K U L S : 図 2）が設置された¹⁶⁾。この京都大学鉛スペクトロメータ（K U L S）に打ち込まれたパルス状高速中性子の時間的な振舞いは、連続エネルギー減速モンテカルロコード MCNP/17/による計算から求められた。一方、共鳴フィルターを使った中性子透過法、即発 γ 測定法によっても、中性子の減速時間（ $t \mu\text{s}$ ）とエネルギー（ $E \text{ keV}$ ）の関係（ $E = K / t^2$: K は減速時間定数）、およびエネルギー分解能の測定（半値幅にして約 40%）が行われたが、MCNP 計算値もこれらとよい一致を示した¹⁶⁾。

我々の K U L S の特徴は、核分裂実験においてバックグラウンドとなる恐れのある鉛からの高エネルギー即発 γ 線を遮蔽するため、ビスマス層（10~15 cm 厚）で覆った実験孔を設けていることである。鉛孔とビスマス孔ではエネルギー分解能に殆んど違いはないが、中性子の減速時間とエネルギーの関係には有意な差異が観測された（ビスマス孔では $K = 190 \pm 2 \text{ keV } \mu\text{s}^2$ 、鉛孔では $K = 156 \pm 2 \text{ keV } \mu\text{s}^2$ ）。エネルギーと減速時間の関係及びエネルギー分解能を図 3、図 4 にまとめる。また、K U L S 内の中性子スペクトルは、MCNP コード計算、飛行時間分析法を用いた測定、および多数組の放射化箔による解析結果から求められたが、図 5 は、3 種類の定数による計算値と飛行時間分析実験による K U L S 内の中性子スペクトルを示している。K U L S の特性に関する詳細は、別報に譲る^{3,16)}。

3. 鉛スペクトロメータを用いたマイナーアクチニド核分裂断面積の測定

3.1 アメリシウム試料と核分裂電離箱

Am-241、Am-243 試料は何れも、これらに含まれる不純物を除去するために、まず、イオン交換樹脂によって化学的に分離精製された¹⁸。これを厚さ 0.2mm、直径 28mm のステンレス板の中央部に、何れも酸化物として直径 20mm の円板形状に電着し、その後電着膜がはく離しないようバーナで軽く焼固めている。U-235 試料（純度：99.91%）もアメリシウム試料同様、電着膜として作成された。Am-241 の核分裂断面積の測定用として、Am-241 と U-235 の電着膜を、図 6 のように、背中合わせにセットしたいわゆる back-to-back (BTB) 型の核分裂電離箱¹⁹として封じ込め、これに電離ガスとしてアルゴン 97%、窒素 3% の混合ガスを 1 気圧封入した。U-235 電着膜は、標準断面積用試料として Am-241 試料に入射する中性子束をモニターするために使用された。²⁴³Am(n,f)反応断面積の測定においても、Am-241 の場合と同様、U-235 電着膜と組み合わせた BTB チェンバーを使用した。

Am-241、Am-243 及び U-235 試料の原子数は、表面障壁型シリコン検出器による α 線スペクトルの測定結果と、その検出効率、半減期データから算出した。さらに、高純度 Ge 検出器 (HPGe) を用いて γ 線測定も行ったが、これらの方法によって求めた各試料の原子数は何れも α 線測定の結果と 3% 以内で一致した。また、Am-241,243 試料の純度は高く、これらに含まれる不純物については化学精製後に行った α 線スペクトル測定の結果から、核分裂断面積値に殆んど影響を与えないことを確認している²⁰。

3.2 核分裂断面積の測定

鉛スペクトロメータ KULS を用いた ²⁴¹Am(n,f) および ²⁴³Am(n,f) 反応断面積の測定法は、我々が先に行った ²³⁷Np(n,f) 反応断面積測定の場合と基本的には同じである³。²⁴¹Am(n,f) 反応断面積は次式によって導かれるが、²⁴³Am(n,f) 反応断面積は Am-241 を Am-243 と置き換えれば求まる：

$$\sigma_{Am}(E) = \frac{Am-241の核分裂}{U-235の核分裂} \times \frac{N_U}{N_{Am}} \times \sigma_U(E)$$

ここで、 N_{Am} 、 N_U : Am-241 及び U-235 の原子数、
 $\sigma_U(E)$: ²³⁵U(n,f) 反応断面積。

本実験に用いた ²³⁵U(n,f) 反応標準断面積は、評価済核データファイル ENDF/B-VI/21 に収納されているデータから引用し、KULS のエネルギー分解能で broadening した結果である。

²⁴¹Am(n,f) 反応断面積測定における電子線型加速器の運転条件は、パルス幅 10~22 ns、パルスの繰り返し数 150~200 Hz、ピーク電流値 500~800 mA、加速電子エネルギー 30

～32 MeV で、約 250 時間の実験の中程で、核分裂電離箱内の Am-241 と U-235 電着試料の位置を入れ換えた。²⁴³Am(n,f)反応断面積測定の場合もほぼ同じ実験方法によった。

3.3 測定結果

本実験において求めた ²⁴¹Am(n,f)反応断面積の測定結果と JENDL-3.2/22/、ENDF/B-VI の評価済核データの結果を図 7 に示す。ここに示した評価データは、KULS の持つエネルギー分解能（半値幅）～40%により broadening された結果である。本実験において考慮した主な実験誤差は、① 統計誤差（Am-241：0.08～3.19%、U-235：0.06～0.33%）、② Am-241、U-235 原子数の測定・算出に関わる誤差（Am-241：1.3%、U-235：1.2%）、③ 核分裂片パルス波高弁別位置と信号の測定に関わる誤差（Am-241：< 1.9%、U-235：< 0.65%）、④ 標準断面積として用いた ²³⁵U(n,f)反応断面積の誤差（2～4%）などである。ENDF/B-VI と JENDL-3.2 の両評価値と KULS の実験値は 2～4eV 領域を除けば全体によい一致を示している。しかし、JENDL-3.2 に関しては 22～140eV 領域で 1.2～2.3 倍小さくなっている。

図 8 は、従来の ²⁴¹Am(n,f)反応断面積の実験データを KULS のエネルギー分解能で broadening し、本測定値と比較した結果である。Dabbs ら/23/の実験データは KULS の実験値とよい一致を示している。Gayther ら/24/の測定値は本実験値と比べて 55eV 以上の領域で 50～100%高く、Bowman ら/25/の測定値も 200eV 以上で倍の大きさを示している。数 10eV 以下では、Bowman、Gerasimov/26/、Derrien/27/らの測定結果は本実験値に近くなっている。Leonard ら/28/のデータは 2～5 eV 領域で高い。Seeger ら/29/の測定は 20eV 以上で著しく大きいことが分かる。

²⁴³Am(n,f)反応断面積の測定結果を、Am-241 の場合同様、各評価データについてエネルギー分解能で broadening した結果と共に図 9 に示す。これは Am-243 試料の化学精製後約 4 週間経た後に実験を行った結果であり、その間に生成蓄積した Pu-239 の影響については、0.2eV 前後の断面積極小値前後領域（でほぼ 18%の補正）を除けば、殆んど問題ないことが分かった/20/。評価値間では、0.3eV 以下と 15eV 以上の領域で差異が見られる。ENDF/B-VI データは、概して KULS の実験値と一致の傾向にあるが、15～60eV 領域では低すぎる。JENDL-3.2 データは、我々の実験値に比べ 100eV 以上で全体に低目の傾向にある。

4. おわりに

京大原子炉実験所の電子線型加速器と組み合わせた鉛スペクトロメータを用いて行った 0.1 eV ～ 10 keV 領域の ²³⁷Np(n,f)反応断面積測定に続き、今回、我々は Am-241 と Am-243 の核分裂断面積測定を実施した。当初、市販の Am-241、Am-243 試料を用いて

実験を行ったが、試料中の不純物による影響が顕著に現れ、いずれの断面積値も大きく乱される結果となった。その後、我々の手で化学的に精製し、純度の高い試料を使用することができたが、このような実験、特にアクチニド関連の核データ実験においては、素性の知れた高純度試料の必要性を改めて感じさせられた。

本実験を行うに当たり、直接、間接お世話になった多くの方々には、この場をお借りして御礼申し上げます。

【参考文献】

- /1/ 「消滅処理研究の現状」、日本原子力学会 消滅処理研究専門委員会 1994.
- /2/ 「高レベル廃棄物の消滅処理研究開発」、日本原子力学会誌、Vol.37, No.3, p.159 (1995).
- /3/ A. Yamanaka, et al., J. Nucl. Sci. Technol., Vol.30, No.9, 863 (1993).
- /4/ K. Kobayashi, et al., JAERI-Conf 96-008, p.117 (1996).
- /5/ 小林捷平 ほか、日本原子力学会「1996 春の年会」、B-20 (1996)、及び「1996 年核データ研究会」に発表の予定.
- /6/ K. Kobayashi, et al., J. Nucl. Sci. Technol., Vol.31, No.12, 1239 (1994).
- /7/ A. A. Bergman, et al.: Proc. 1st Int. Conf. on Peaceful Uses At. Energy, United Nations, 4, 135 (1955).
- /8/ K. H. Beckurts & K. Wirtz: "Neutron Physics", Springer-Verlag, New York, p. 167 (1964).
- /9/ R. E. Slovacek, et al.: Nucl. Sci. Eng., 62, 455 (1977).
- /10/ Y. Nakagome, et al.: Phys. Rev., C43, 1824 (1991).
- /11/ H. T. Maguire, Jr. et al.: Nucl. Sci. Eng., 89, 293 (1985).
- /12/ B. Alam, et al.: Nucl. Sci. Eng., 99, 267 (1988).
- /13/ Y. Danon, et al., Nucl. Sci. Eng., 109, 341 (1991).
- /14/ E. C. Vanterpool, et al.: Nucl. Sci. Eng., 110, 186 (1992).
- /15/ N. M. Abdurrahman, et al.: Nucl. Sci. Eng., 115, 279 (1993).
- /16/ K. Kobayashi, et al., JAERI-M 93-046, p.360 (1993)、及び to be published in Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A.
- /17/ "MCNP - A General Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport, Version 3A", LA-7396-M, Rev.2, Los Alamos National Laboratory (1986).
- /18/ S. Usuda and N. Kohno, Separation Science and Technology, 23, 1119 (1988).
- /19/ 大部 誠、 JAERI-M 9757 (1981).

- /20/ 小林捷平 ほか、日本原子力学会「1996 秋の大会」、J-12 (1996)、及び「1996 年核データ研究会」に発表の予定。
- /21/ R. F. Rose(Ed.), "ENDF/B Summary Documentation", BNL-NCS-17541, 4th Ed. (EDNF/B-VI) 1991.
- /22/ T. Nakagawa, et al., J. Nucl. Sci. Technol., Vol.32, No.12, p.1259 (1995).
- /23/ J. W. T. Dabbs, et al.: Nucl. Sci. Eng., 83, 22 (1983).
- /24/ D. B. Gayther, et al.: 4-th All Union Conf. on Neutron Physics, at Kiev, on 18-22 April 1977.
- /25/ C. D. Bowman, et al.: Phys. Rev. B, 137, 326 (1965).
- /26/ V. F. Gerasimov, Yaderno-Fizicheskie Issledovaniya, 2, 16 (1966).
- /27/ H. Derrien, et al., Proc. Int'l Conf. on Nucl. Cross Sections and Technol., Washington D. C. (1975).
- /28/ B. R. Leonard Jr., Bull. of Am. Phys. Soc., 4, 31(K1) (1959).
- /29/ P. A. Seeger, et al.: Nucl. Phys., A96, 605 (1967).

表1 マイナーアクチニド (MA) の生成量

Nuclide	Half life	3,410 MWt PWR	2,500 MWt FBR
²³⁷ Np	2.14×10 ⁶ (y)	57.9(%)	9.45(%)
²⁴¹ Am	433	27.4	54.9
^{242m} Am	141	0.06	1.38
²⁴³ Am	7,380	11.9	25.4
²⁴³ Cm	28.5	0.03	0.29
²⁴⁴ Cm	18.1	2.67	7.73
²⁴⁵ Cm	8,500	0.15	0.89
Sum		23.8 kg	24.0 kg
Burn up		33 GWd/t	150 GWd/t

計算 : データ JENDL-3, 計算コード SRAC-FPGS

燃焼度 : 33GWd/MT(PWR) 150GWd/MT(FBR)

再処理から群分離までの冷却期間 : 5年

U,Puの回収率 : 100%

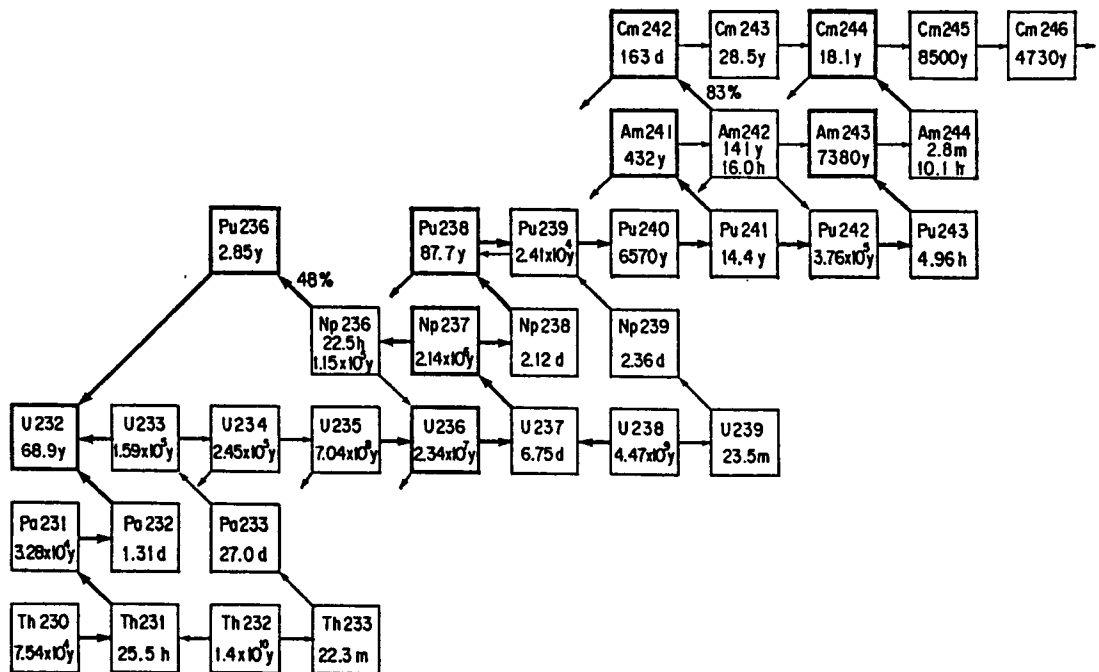


図1 アクチニド核種の生成と崩壊の図

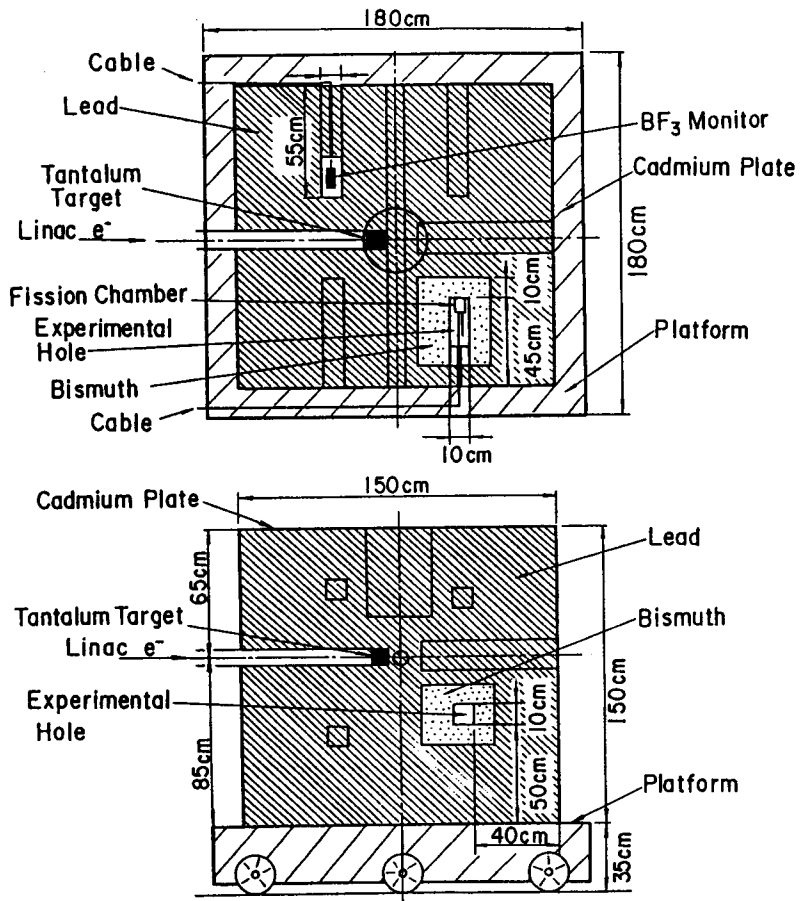


図 2 鉛スペクトロメータKULSの
 平面図（上）と垂直断面図（下）

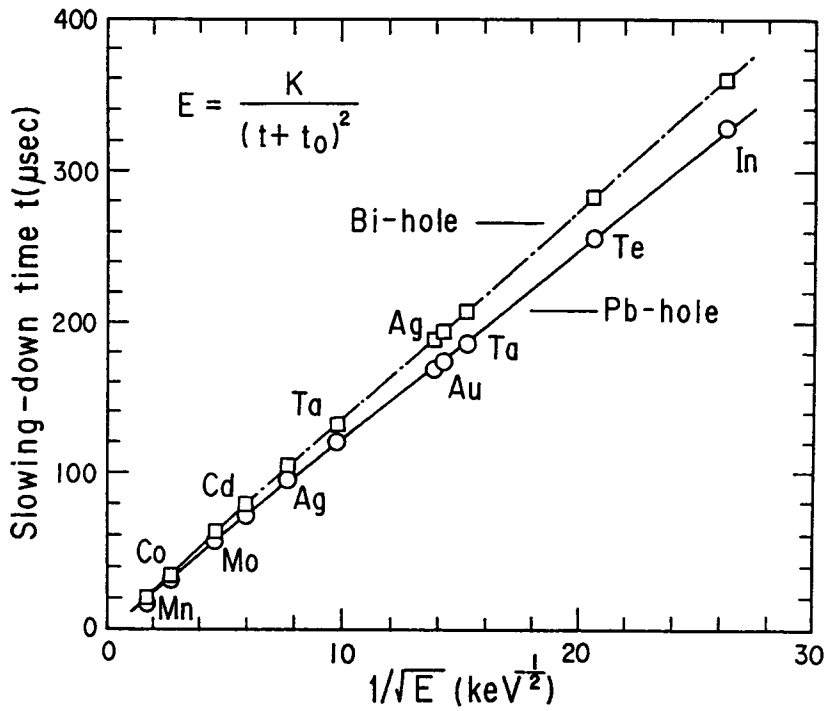


図 3 K U L S のビスマス実験孔と鉛実験孔における中性子減速時間とエネルギーの関係

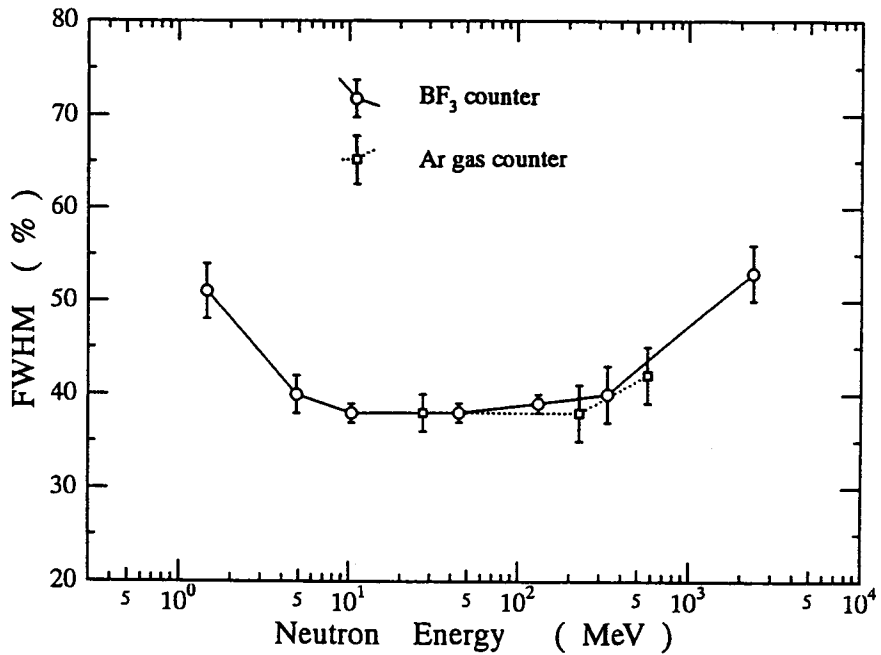


図 4 K U L S における中性子のエネルギー分解能

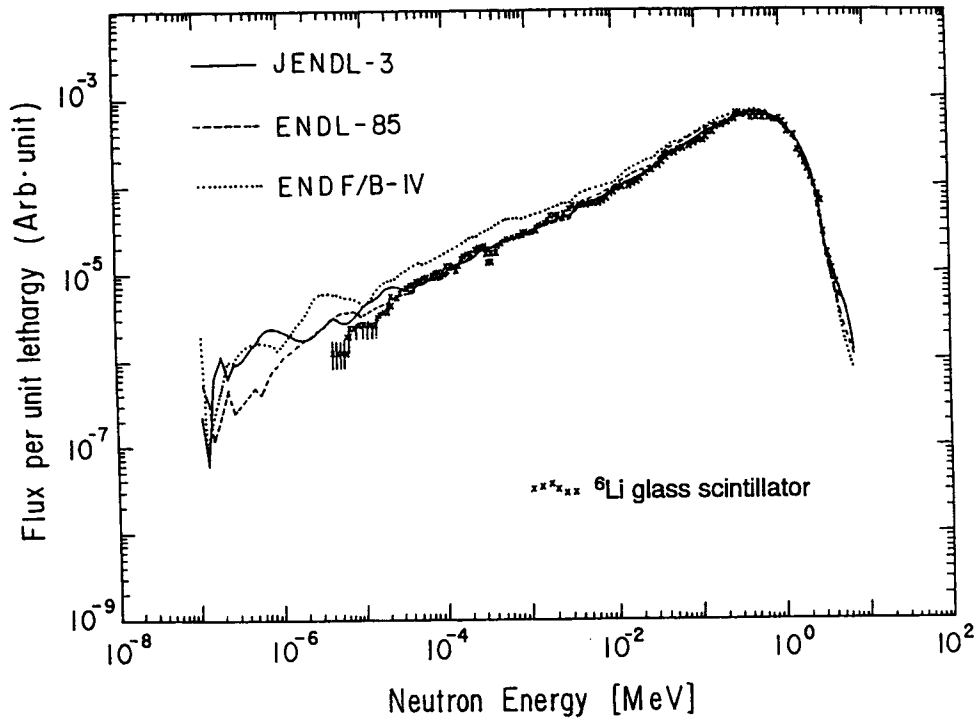


図5 KULSにおける中性子スペクトル

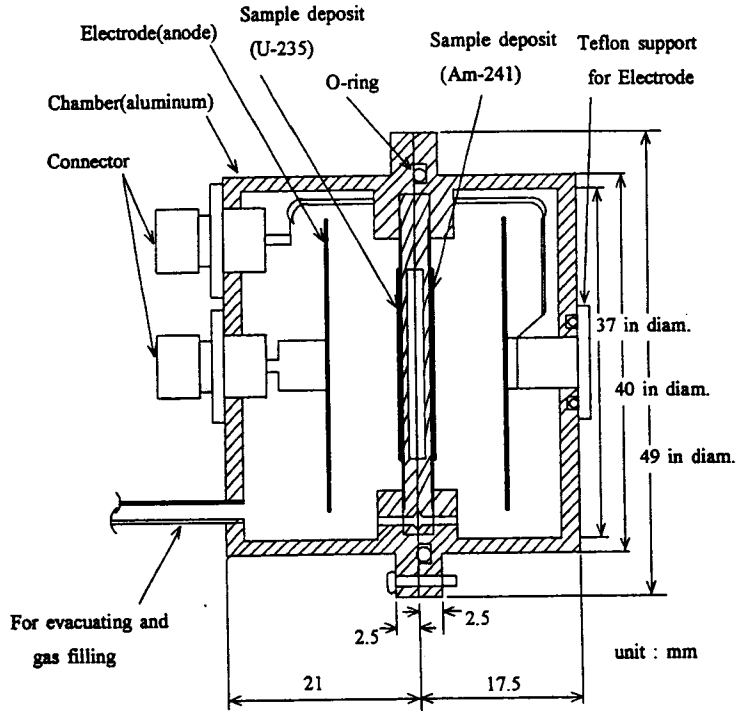


図6 背中合わせ型の核分裂電離箱の断面図

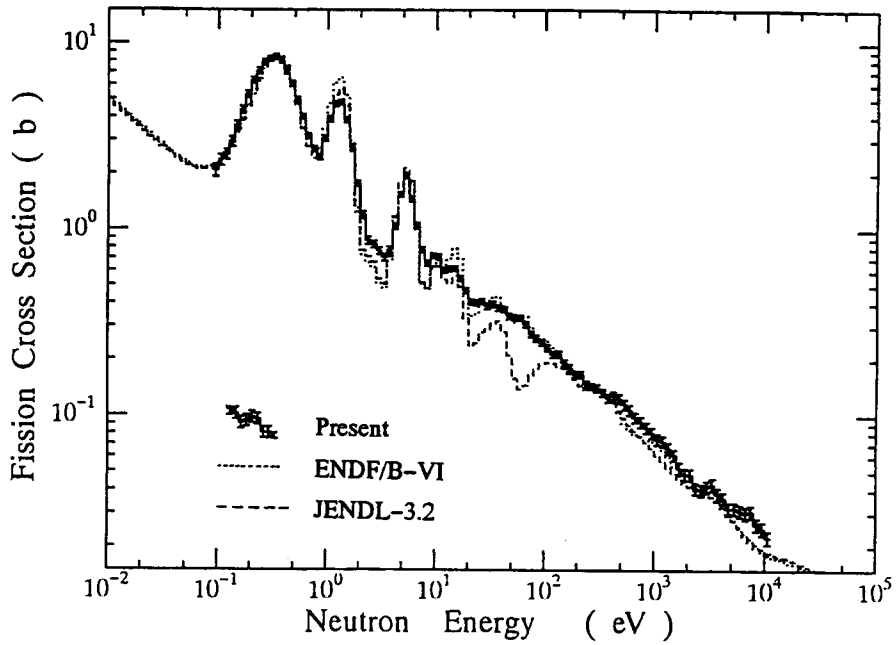


図 7 $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応断面積の測定結果と評価値の比較

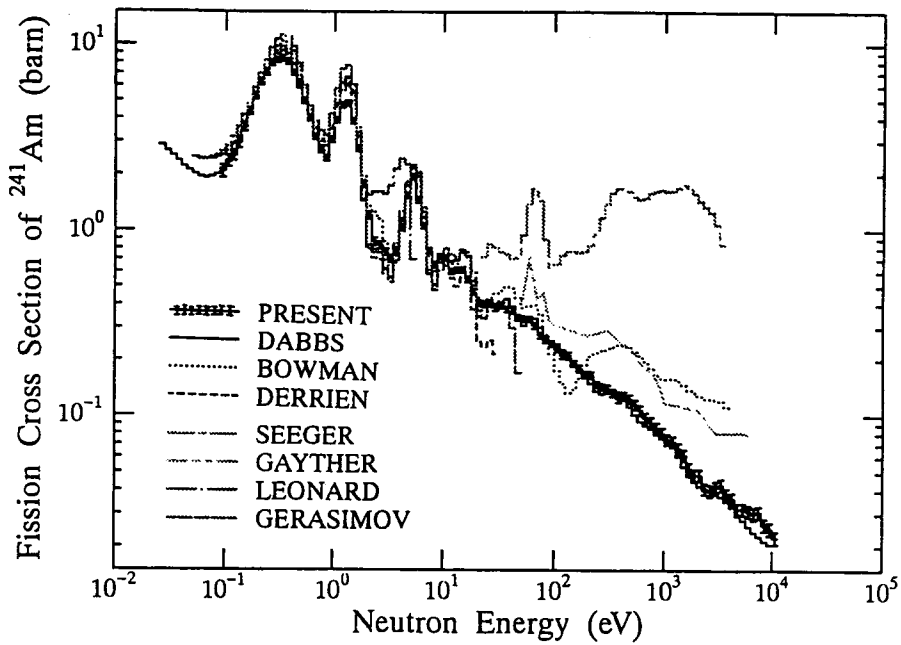


図 8 $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応断面積の測定値と従来の実験値との比較

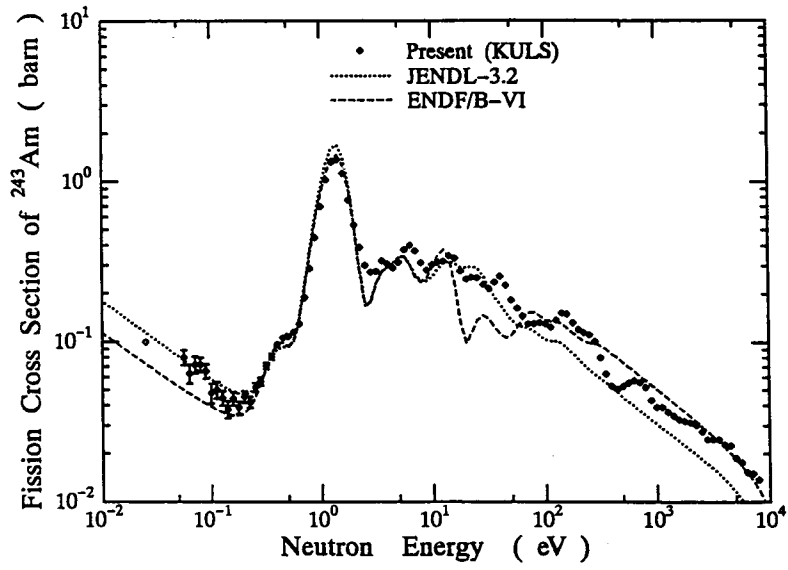


図 9 $^{243}\text{Am}(n, f)$ 反応断面積の測定結果と評価値の比較