

## 実測データの無いときの予測精度向上に向けて

### —核融合炉材の放射化断面積測定と系統式—

名古屋大学大学院工学研究科

河出 清

a40590a@nucc.cc.nagoya-u.ac.jp

#### 1. はじめに

エネルギー問題の究極的な解決を目指して、核融合炉の研究が進められている。D-T核融合炉を完成するには、耐久性、安全性および経済性等の問題を解決する必要があるが、核融合反応により発生する強力な 14 MeV 中性子に耐える炉材の開発および放射化量の低減は重要課題である。

14 MeV 中性子と炉材との相互作用により、 $(n,2n)$ ,  $(n,p)$ ,  $(n,np)$ ,  $(n,t)$ ,  $(n,\alpha)$ ,  $(n,n\alpha)$ ,  $(n,n')$ ,  $(n,\gamma)$  などの多様な核反応が起こり、生成核が放射性壊変をする時は誘導放射能を発生させる。この反応断面積を放射化断面積という。放射化断面積はその誘導放射能強度を計測して決定している。半減期の長い放射能は残留放射能としても問題になるが、半減期の長短に関わらず、 $(n,p)$ ,  $(n,\alpha)$ ,  $(n,np)$  反応からは水素、ヘリウム気体が発生し材料脆弱化の、 $(n,2n)$  や  $(n,n')$  反応からは二次中性子の発生と言う問題が起こる。核融合炉の設計・安全確保のためにも主要核種に対して 20 MeV 程度までの放射化断面積データが必要である。

半減期が長くて誘導放射能が弱すぎるとか、逆に短すぎるもの、誘導放射能からほとんど $\gamma$ 線を放射しないものなどは、計測が困難である。また、測定対象の安定同位体の存在比が小さいため十分な量の試料の入手が難しいものもある。これらの理由により現状は、測定できているものは 1/3 にも満たない。しかも測定されているエネルギー領域は、利用できる中性子源がほとんど d-T であるため、14 MeV 付近に限られている。また取得されている実験データは、測定が容易な半減期の比較的長いものに限られ、半減期が 20 分以下の短寿命核生成断面積は不十分である。

必要な実験データが無い時はどうすれば良いのだろうか。種類の核計算に頼ったり、測定されている周辺の実験値から類推するのではないだろうか。その計算自身も最終チェックに実験データを必要とする。従って、多くの実験値の傾向を調べ、系統性の発見に努める。そして実験値全体にフィットする、出きるだけ簡潔な数式で表した系統式を

作ってこれを活用することになる。

ところが、系統式の基礎になる実験値が測定者により誤差を超えて散らばり、どれを信頼すれば良いのか判断に迷う事がある。測定者それぞれが、確信を持って発表している値がどうして散らばるのか。

ここでは、OKTAVIAN を用いて系統的に測定して得たデータとそれに基いて作り上げた系統式および今後の展望について述べる。

## 2. 研究の目的

1983 年以来、原研 FNS 施設を用いて原研と名古屋大学との協力研究により、半減期が主に 20 分以上の約 200 反応の測定できるもののほぼ全ての放射化断面積測定を完了した<sup>1,2)</sup>。同じ頃より大阪大学の OKTAVIAN 施設を用いて、名古屋大学と大阪大学との協力および原研核データセンターの援助により、主に半減期 20 分以下の放射化断面積測定を開始した。これらの日本のデータがデータベース構築に貢献してきた。主な目的は以下の 3 つである。

- 1) 測定値が誤差を超えて散らばる原因を解明し、信頼できる測定方法を確立する。
- 2) データの不足している 13.4~14.9 MeV のエネルギー範囲の中性子に対する、半減期が約 20 分以下の短寿命核生成断面積を可能な限り測定する。誘導放射能が短寿命なものは質量数の小さい核種が比較的多い。表 1 に OKTAVIAN で測定した約 100 反応を示す。
- 3) 自分達のデータに基づいて 14 MeV 付近の、 $(n,2n)$ 、 $(n,p)$ 、 $(n,np)$  および  $(n,\alpha)$  の放射化断面積の値を 20~30% 程度の精度で予測できる系統式を提案する。既に述べたように、全てが測定できるわけではないので、データの無いものに対する信頼度の高い系統式は有益である。

これまでに、13.4~14.9 MeV のエネルギー範囲の、半減期が約 20 分以下の短寿命核生成断面積のうち、 $(n,p)$  と  $(n,\alpha)$  反応は公表した<sup>3,4)</sup>。 $(n,2n)$  および  $(n,np)$  はデータの取りまとめを終わり公表準備中である。

3~7 MeV のデータは名古屋大学 3.75MV のバンデグラーフ加速器 (VdG) により得られる d-D 中性子源を用いて 2 年前より測定を開始した。2~3 MeV は FNS の d-D 中性子源を用いて 2 年前より開始した。

現在はまだまだほとんど 14MeV 付近のデータしか無いので、先ず 14 MeV 付近の系統式を提案する。今後データを取得し、ある程度の反応数が蓄積できたところで、7 MeV および 3 MeV 付近の系統式を作り上げた。次に、これら 3 つのエネルギー領域の系統式を、統合して一つの系統式にする。このようにして、最終的には核種と 2~15 MeV 範囲の任意の中性子エネルギー値を与えれば、 $(n,2n)$ 、 $(n,p)$ 、 $(n,np)$ 、 $(n,\alpha)$  および  $(n,n')$  の放射化断面積の値を 20~30% 程度の精度で予測できるようにしたい。

### 3. 実験方法

14MeV 中性子は (5~7) mA の 300keV に加速した重陽子ビームで、 $^3\text{T}$  吸蔵量が  $3.7 \times 10^{11} \text{Bq}$  のターゲットを照射して得た。中性子照射には図 1 に示すような気送管式照射台を用いて、測定試料を 0.2mm 厚の 2 枚の Al 板で挟んだ後カプセルに入れ 15cm の位置に送り照射した。Al 板の  $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$  反応により照射位置での中性子フルエンスを決定した。平均的なフルエンス率は  $1.5 \times 10^8 \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$  である。入射重陽子ビームに対し  $0^\circ \sim 155^\circ$  まで 6 つの角度を設定して、14.9~13.4 MeV のエネルギー範囲の中性子を得た。中性子エネルギー決定の誤差は  $\pm 50 \text{keV}$  程度である。照射試料の大きさは 1cm 角、重さは 50~90mg 程度である。測定には Ge 検出器を用いた。実験の詳細は文献 5 に述べられている。

### 4. 結果

結果に及ぼす誤差源は、(1) 照射に用いた中性子源、(2) 誘導放射能の強度測定、(3) 断面積決定に用いた入力核データに関するもの、の 3 つに大きく分けられる。表 2 に補正を加えた時の補正方法自体に含まれる曖昧さから来る誤差の量を挙げてある。補正量自体はこの数倍から 10 倍はある。図 2、図 3 に補正の例を示す。図 2 では測定試料の厚みによる検出効率の変化による補正を示す。2mm 厚で 8% 程度の補正が必要になる。図 3 では周辺物体による散乱の影響を受けて中性子は単色ではなく低エネルギー部分に成分を持つ。これによる補正を 14MeV 付近の励起関数の傾きの関数として示す。傾きが負の領域では、14MeV より低いエネルギー領域に励起関数の最大値があるので影響が大きい。他にも、種々の補正があるので、気づかないでいると 20~30% はずれる。

実験条件を詳細に記述している例は少ないので、データが散っている原因は推測するしかないが、利用している中性子源強度が結果の信頼度に関係しているようである。複数のエネルギー点で断面積を測っているグループと、1 点エネルギーのグループのデータとを比較する。筆者らのデータを仮に正しいとして、これと  $\pm 20\%$  以上ずれているデータの数は、多点エネルギーデータでは 80 例中 15 例あり 19%、1 点データでは 351 例中 120 例あり 37% を占める。多点エネルギーデータに比べ、1 点データは 20% 以上ずれているものが約 2 倍多い。弱い中性子源では、中性子源と照射試料間の距離を十分取る事が出来ず密着で照射することになっているのであろう。当然、照射試料の量も多くなり放射能測定でも検出器に近いところに試料を置くといった無理な条件下で行っている可能性が高い。

OKTAVIAN で測定した数例を図 4 に示す。サブミリバーン程度の断面積になると測定例がほとんど無く、筆者らのものが初めてのことが多い。強力中性子源と短寿命核の微弱放射能測定技術が重要である。

どの文献値を用いるかによって得られる系統式が異なってくる可能性がある。これま

で提案された系統式は測定グループの異なるデータを用いている。入力データに付けられている誤差の信頼度のばらつきに問題があるが、具体的な改善の方策は無い。筆者らはこの問題解決のため可能な限り測定することにした。自分達で測定した約 300 反応のデータのみを用いて系統式を新たに提案した。図 5 に  $(n, \alpha)$  についての 14MeV 付近の部分励起関数の系統式と実験値との比較を示す。広い質量範囲で再現性がよい。図 6～図 9 に  $(n,p)^3$ ,  $(n,\alpha)^4$ ,  $(n,2n)^8$ ,  $(n,np)^9$  のデータの一致具合を示す。 $(n,np)$ を除いて概ね 2/3 の実測点は 20～30%以内で系統式により再現されている。 $(n,np)$ については初めての系統式である。今後もう少し関数形を工夫すれば、20～30%以内に収束するものと期待している。系統式の具体的な関数形等は文献を参照して頂きたい。

## 5. 結論

13.4～14.9MeV のエネルギー範囲の、0.1mb 以上の半減期が数秒～20 分の短寿命核生成断面積約 100 断面積データを強力中性子源 OKTAVIAN 施設を用いて得た。これと FNS のデータと合わせて約 300 反応のデータに基いて、予測精度 20～50%で、14MeV 付近の部分励起関数を再現できる、 $(n,p)$ ,  $(n,\alpha)$ ,  $(n,2n)$ ,  $(n,np)$  の系統式を得た。入力データをすべて自分達で測定したもののみを用いている系統式の提案は初めてである。

中性子源の強度が重要であることおよび結果に及ぼす実験上の誤差源を実験により把握した。実験条件を詳細に記述しておくことは重要である。

## 6. 今後の課題

14MeV 付近の測定できるものはほぼ完了した。今後 3MeV と 7MeV 付近のデータを積み上げ、それぞれのエネルギーにおける系統式を検討する。そしてこれら 3、7、14MeV の系統式を一つの系統式に統一する。

理解不可能ほど値がずれているデータをどう扱うか、系統式を安心して提案するには自分で可能な限り測定するのがよいと判断した。これは提案した系統式に責任を持つということであり、将来他人のデータを入力データに用いていたからという言い訳をしないためである。

報告されたデータを公平に取扱い極力信頼度の高い評価値を出すと言う評価者から見れば、私達のやり方は公平性に欠けていて、問題があるであろう。なぜなら、いくら一貫した方法で取得したデータであるからといって、他にも確信を持って報告された値があることを筆者らは考慮していないからである。しかし、公平性と信頼性とは別であり、信頼性と言う点では筆者らの方法の方が優れていると、私達は考えている。

データを出している実験者の立場からは、報告された値全てについて“公平”な扱いをしないで欲しい、どれか最も信頼できる値一つを採用してもらいたい、平均値に真実は無いと言いたい、のが正直な気持ちです。自分達の値が採用されない時は寂しい気持

ちにはなるとは思いますが。

この研究は、春日井好己(現、原研)、坂根仁、柴田理尋、山本洋(以上名大)、高橋亮人、飯田敏行(以上阪大)、池田裕二郎(原研)、研究室の卒業生、高橋研究室職員の方々の協力を得て行いました。原研核データセンターには物心両面から長年援助を頂き心より感謝申し上げます。

### 参考文献

1. Y. Ikeda, et al., *JAERI* 1312 (1988).
2. C. Konno, et al., *JAERI* 1329 (1993).
3. Y. Kasugai, et al., *Ann. Nucl. Energy*, **25**, 23 (1998).
4. Y. Kasugai, et al., *Ann. Nucl. Energy*, **25**, 1485(1998).
5. K. Kawade, et al., to be published in *Nucl. Instr. Meth.*
6. Y. Kasugai, et al., *Ann. Nucl. Energy*, **18**, 1429 (1996).
7. Y. Kasugai, et al., *Ann. Nucl. Energy*, **25**, 421(1998).
8. Y. Kasugai, et al., *JAERI-Conf* 1312 (1988).
9. H. Sakane, et al., *JAERI* 1329 (1993).

表1 OKTAVIANでの14MeV中性子による放射化断面積測定反応と核種

反応	標的核種
(n, 2n)	$^{14}\text{N}$ , $^{31}\text{P}$ , $^{54}\text{Fe}$ , $^{63}\text{Cu}$ , $^{79}\text{Br}$ , $^{87}\text{Rb}$ , $^{92}\text{Mo}$ , $^{108}\text{Pd}$ , $^{113}\text{In}$ , $^{132}\text{Ba}$ , $^{138}\text{Ba}$ , $^{140}\text{Ce}$ , $^{141}\text{Pr}$ , $^{144}\text{Sm}$ , $^{165}\text{Ho}$
(n, p)	$^{19}\text{F}$ , $^{27}\text{Al}$ , $^{28,29}\text{Si}$ , $^{37}\text{Cl}$ , $^{50}\text{Ti}$ , $^{52,53,54}\text{Cr}$ , $^{60,62}\text{Ni}$ , $^{66,68}\text{Zn}$ , $^{81}\text{Br}$ , $^{86,88}\text{Sr}$ , $^{97}\text{Mo}$ , $^{101,102,104}\text{Ru}$ , $^{104,105,108}\text{Pd}$ , $^{107}\text{Ag}$ , $^{110,116}\text{Cd}$ , $^{112,119,120}\text{Sn}$ , $^{122,128,130}\text{Te}$ , $^{146}\text{Nd}$ , $^{162,163,164}\text{Dy}$ , $^{174,176}\text{Yb}$ , $^{181}\text{Ta}$ , $^{185}\text{Re}$
(n, n'p+d)	$^{26}\text{Mg}$ , $^{29,30}\text{Si}$ , $^{53,54}\text{Cr}$ , $^{67}\text{Zn}$ , $^{87}\text{Sr}$ , $^{98,100}\text{Mo}$ , $^{102}\text{Ru}$ , $^{105,106,108}\text{Pd}$ , $^{123}\text{Te}$ , $^{163}\text{Dy}$ , $^{179}\text{Hf}$ , $^{189}\text{Os}$ , $^{181}\text{Ta}$ , $^{186}\text{W}$
(n, t)	$^{32}\text{S}$ , $^{58}\text{Ni}$ , $^{141}\text{Pr}$
(n, $\alpha$ )	$^{26}\text{Mg}$ , $^{30}\text{Si}$ , $^{31}\text{P}$ , $^{54}\text{Cr}$ , $^{63}\text{Cu}$ , $^{64}\text{Ni}$ , $^{69,71}\text{Ga}$ , $^{87}\text{Rb}$ , $^{89}\text{Y}$ , $^{104}\text{Ru}$ , $^{112}\text{Cd}$ , $^{128,130}\text{Te}$ , $^{148}\text{Nd}$ , $^{154}\text{Sm}$ , $^{158}\text{Gd}$ , $^{165}\text{Ho}$ , $^{170}\text{Er}$ , $^{184,186}\text{W}$
(n, n $\alpha$ )	$^{92}\text{Mo}$

表2 OKTAVIAN 施設を用いた放射化断面積測定での誤差源

誤差源	誤差 (%)
散乱中性子の補正	. 2
中性子束の時間変動補正	. 0.4
γ線計測の統計	1 - 30
γ線検出効率	1.5 - 5.0
γ線ピーク面積の見積もり	0.5
γ線のカスケードサム補正	. 0.6
γ線ランダムサム補正	. 0.1
γ線ガンマ線自己吸収補正	0.2 - 4.0
試料の厚みによる効率変化	0.1
γ線試料の重さ	0.1
核データによる誤差	誤差 (%)
基準断面積 $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	3.0
γ線放出率	0.1 - 20
半減期	0-10

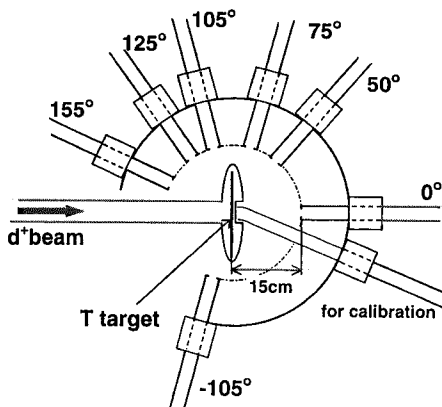


図1 気送管式照射台。入射d<sup>+</sup>ビームに対し、6方向の角度、15cmの位置で照射できる。

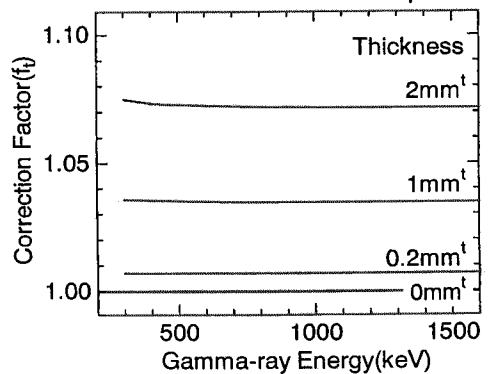


図2 測定試料の厚さによりGe検出器から測定位置がずれることによる、検出効率の低下の補正係数。

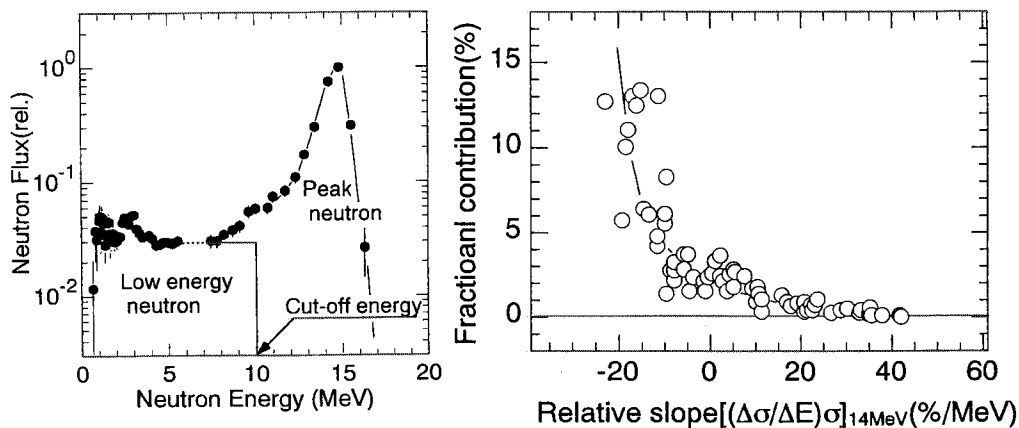


図3 70° 方向で測定された 14MeV 中性子スペクトルと低エネルギー成分の存在による補正係数。

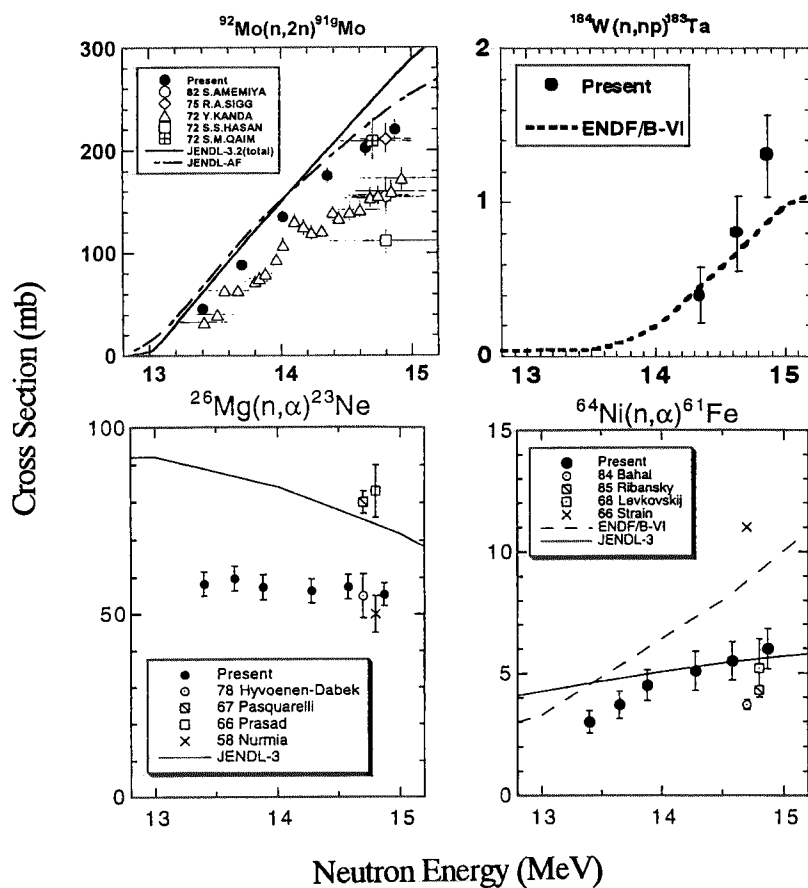


図4 OKTAVIAN 施設で測定された放射化断面積の例。

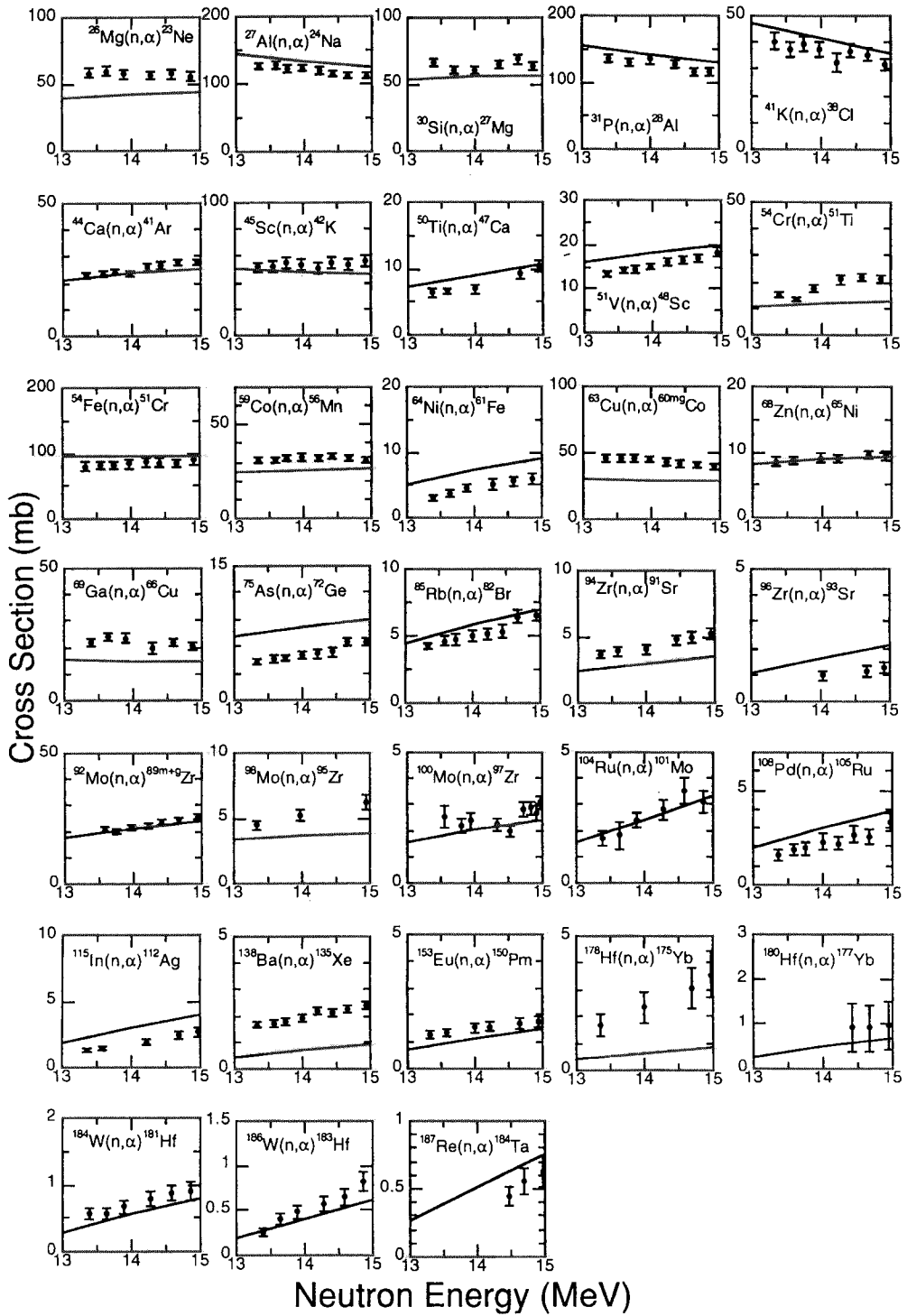


図5 系統式  $\sigma_{14\text{MeV}} = 434.8 \exp\{-33.4(N-Z)/A\}$  と傾き  $S = -1.076 + 0.0788(E_{th} + V_{\alpha})$  で表した 14MeV 付近の (n,  $\alpha$ ) の部分励起関数<sup>7)</sup>。  $E_{th}$  は閾エネルギー、  $V_{\alpha}$  はクーロンバリア。



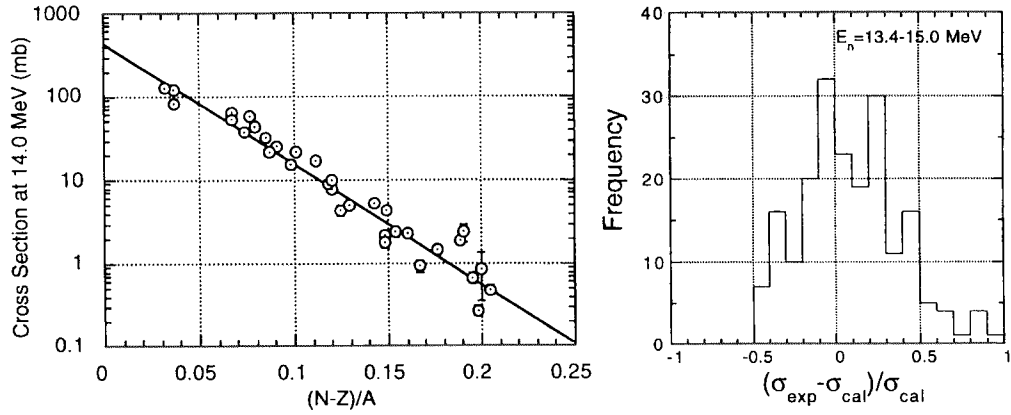


図6 14MeVでの (n,  $\alpha$ ) の放射化断面積の系統式  $\sigma_{14\text{MeV}}=434.8\exp\{-33.4(N-Z)/A\}$  と実験値との比較<sup>6)</sup>。±30%以内に69%の測定値が収まっている。

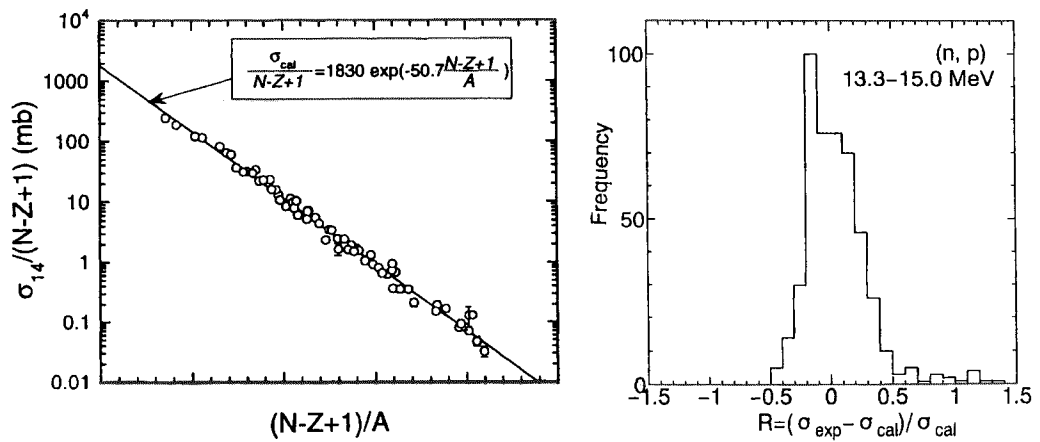


図7 14MeVでの (n, p) の放射化断面積の系統式と実験値との比較<sup>6)</sup>。±20%以内に69%の測定値が収まっている。

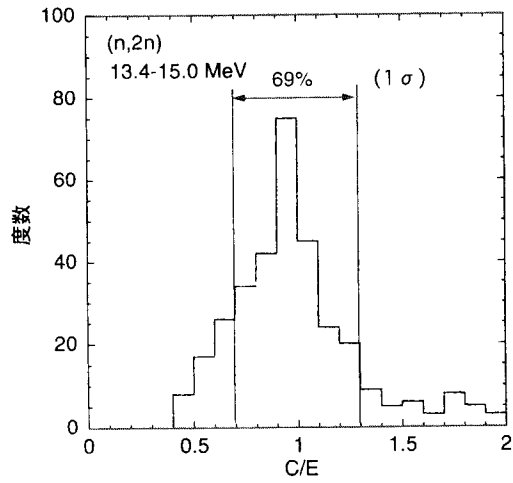


図8 14MeVでの (n, 2n) の放射化断面積の系統式と実験値との比較<sup>8)</sup>。±30%以内に69%の測定値が収まっている。

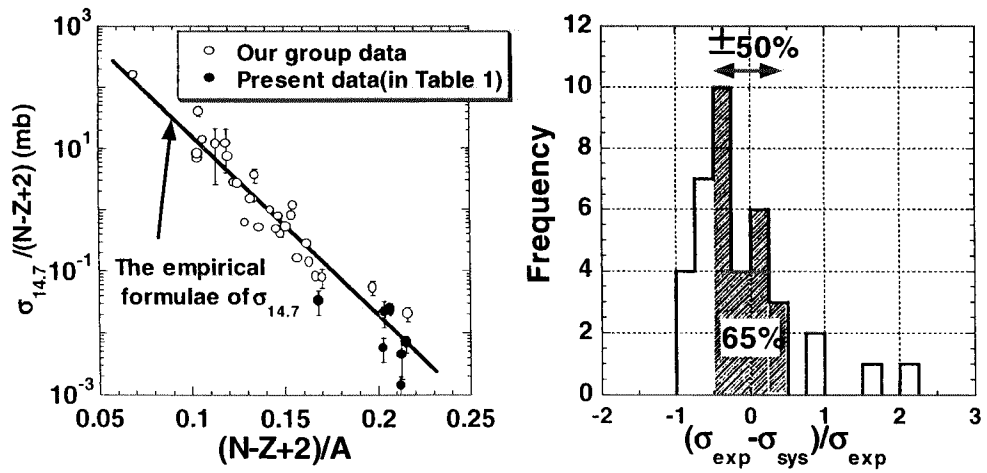


図9 14MeVでの (n, np) の放射化断面積の系統式と実験値との比較<sup>9)</sup>。±50%以内に65%の測定値が収まっている。