

# 14 MeV 中性子によるコンクリート放射化実験および解析

大石 晃 嗣  
(技術研究所)

## § 1. はじめに

最近、核融合実験施設や医療用施設などの高エネルギー中性子発生施設における中性子量の増大に伴い、コンクリートの放射化が問題となってきている。原子炉では特に問題となるのは廃炉時の放射性廃棄物の増大であるが、これら中性子のエネルギーが原子炉より高く、発生量も大きい施設においては、それに加えて作業員の被曝低減のための精度よい放射化量の評価も重要となってくる。特に最近では、核融合研究の推進のための D-T 反応による自己点火条件の実証を目的とした核融合装置を直接コンクリートで遮蔽している設計例もある (CIT-プロジェクト<sup>1)</sup>)。また、実験炉などの場合も周辺機器の放射化や建屋への遮蔽負荷を極力少なくするために、イグルーと呼ばれるコンクリート中間遮蔽体も考案されている<sup>2)</sup>。このような中間遮蔽体は、線源の近くに設置されるため放射化の程度も大きく、それ自体が  $\gamma$  線源となり、運転終了後のメンテナンス時などの被曝の原因ともなり得る。したがって、特に実用の施設の設計に当たっては、精度よい放射化量の評価が重要な課題の一つとなってくる。さらに、核融合施設のような施設では 14 MeV という高エネルギー中性子が発生するため、原子炉などと異なって中性子の透過力が強く放射化量が増大するばかりでなく、(n, p), (n, np), (n, 2n) などの閾値反応も重要となってくる。ところが、これらの反応についてはその反応断面積の不確かさから、放射化量の精度よい評価が難しくなっているのが現状である。核融合炉システムの放射化計算はいくつか報告されているが<sup>3)-6)</sup>、それを検証する実験は非常に少ない<sup>7)</sup>。さらに遮蔽体としてのコンクリートに関して

はほとんどない<sup>8)</sup>。

そこで、コンクリートの構成材料 (砂, 骨材, セメント) のうち代表的なものを数種選んで、14MeV 中性子による照射実験を行ない、その放射化特性を調べた。さらに、実験結果と設計計算に用いられる計算コードによる計算結果との比較により、

- (1) 計算コードの検証
- (2) 計算の入力に用いた放射化断面積の評価を行なうとともに、
- (3) 放射化断面積の不確かなものについては、その精度よい測定を行ない、放射化量の評価の精度向上を目指した。

## § 2. コンクリート放射化実験

### 2.1 実験施設

実験は、日本原子力研究所 (原研) 核融合炉物理研究

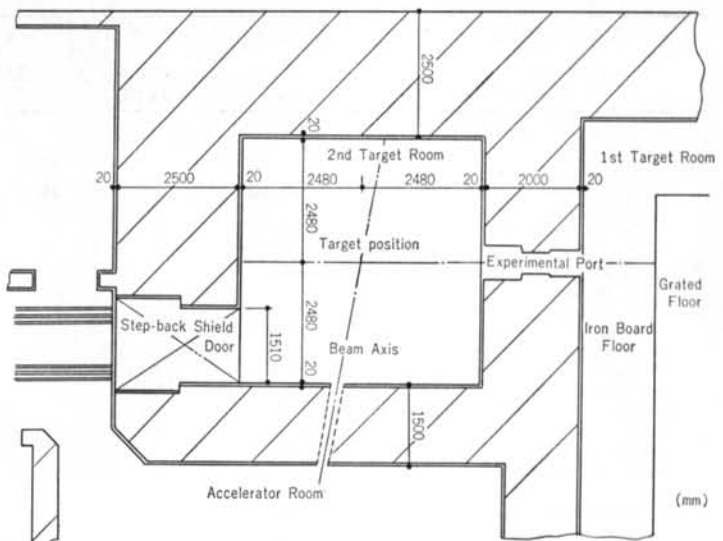


図-1 FNS 第2ターゲット室の平面図

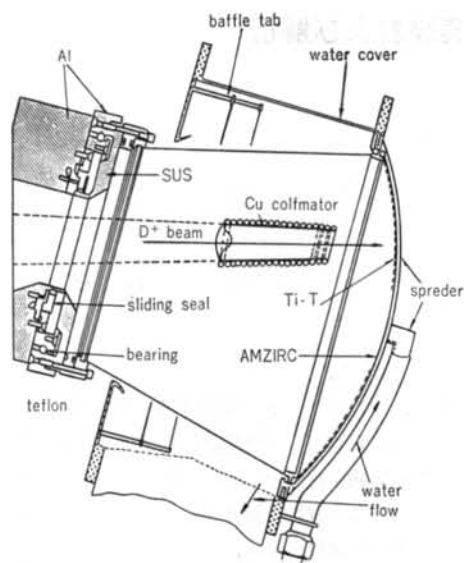


図-2 回転ターゲットの構造図

室(FNS)<sup>9)</sup>の第2ターゲット室で行なった。第2ターゲット室の平面図を図-1に示す。照射のための14MeV中性子は、 $d^+$ ビームを310kVで加速させ、回転ターゲットのTi蒸着面に含まれるトリチウム(T)との反応によって発生する。このシステムでは、主として重照射を目的としているため電流値も20mAと高く、Tの消耗やターゲットの冷却のために回転ターゲットを用いている。図-2に、回転ターゲットの構造図を示す。この中性子発生装置は、表-1に示すように世界でも有数の14MeV中性子発生装置で、中性子発生量でも米国ローレンス・リバモア研究所のRTNSに次ぐ大規模な装置で

ある。

## 2.2 実験方法

照射試料は、表-2に示すような代表的なコンクリート骨材およびセメント等を8種類選んだ。各試料の成分は、あらかじめ化学分析注)によって求めた。照射に際し生成放射能の散逸を防ぐために、各試料を内径16mm、高さ5mm(実効容積、約1cc)の亚克力ケースに密封した。このようにして作成した各サンプルを、照射時に加速器の $d^+$ ビームラインに対し45°方向で、ターゲット中心から約25cmの位置に配置した。照射配置図を図-3に示す。照射は2回の分割照射で、先ず10時間の照射を行ない、約100時間の冷却後33時間、合計43時間行なった。各サンプルへの入射中性子束は、14MeV付近で断面積が比較的フラットなNb箔をサンプルの前後に取り付け、それぞれの反応率から求めた値の平均値として求めた。さらに、ターゲットでの全発生中性子量をシステム

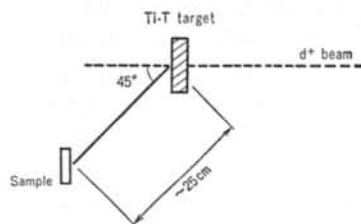


図-3 コンクリート放射化実験の試料の配置図

注)セメント協会標準試験方法(CATS)I-12:“けい酸原料の化学分析法”。関連規格:JIS K0115“吸光度分析通則”, JIS K0121“原子吸光分析通則”

Accelerator Name	RTNS-I	RTNS-II	FNS	OKTAVIAN	LOTUS
Location & Facility	U.S.A LLNL	U.S.A LLNL	JAPAN JAERI	JAPAN Osaka Univ.	SWITZ. EPFL
High Voltage(KV)	400	380	400	300	250
Ion Source Data					
Type	Duoplasmatron	Duoplasmatron	Duoplasmatron	Duoplasmatron	Toroidal
Ion beam	$D^+$	$D^+$	$D^+$	$D^+$	$D^+ + T^+$
Current(mA)	40	150~400	35	35	500
Analyzing Magnet at Ion Source Outlet	with	with	with	with	without
Target Data					
Diameter(cm)	23	23(50)	23	20	4(conical)
Beam spot size in diam.(cm)	0.6	1.0(1~2)	1.5	3	50cm <sup>2</sup>
Beam current(mA)	25	130	20	23	500
Rotating speed(rpm)	1100	5000	1100	800	—
Cooling medium	Water	Water	Water	Water	Water
Target lifetime(h)	100	100	100	100	500
Continuous Neutron Yield(n/sec)	$6 \times 10^{12}$	$3 \times 10^{13}(10^{14})$	$5 \times 10^{12}$	$4 \times 10^{12}$	$5 \times 10^{12}$
Pulsed Beam Width(nsec in FWHM)	1.5	—	2	1.5	—

表-1 世界の強力14MeV中性子源

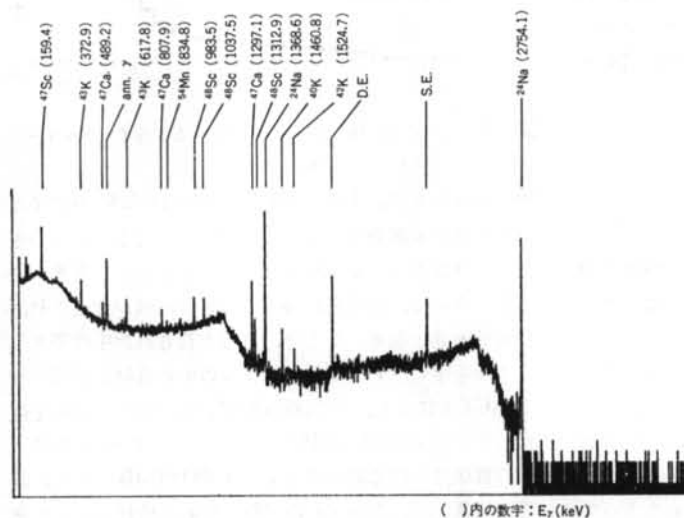
試料	主要成分(重量%)				
	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	MgO
普通骨材	61.6	12.8	12.0	4.0	2.4
軽量骨材	69.7	16.0	4.7	1.5	0.6
石灰岩骨材	0.1	0.02	0.02	55.7	0.22
普通ポルトランドセメント	22.0	5.3	2.9	63.1	1.7
高炉セメント	28.4	9.6	1.6	50.5	4.2
アルミナセメント	3.2	39.3	16.4	38.9	0.3
フライアッシュ(A)	53.5	23.7	4.81	7.28	2.22
フライアッシュ(B)	56.6	26.2	3.86	3.40	1.18

表一 照射試料およびその主要成分

に内蔵されているα-モニタを用いて算出した<sup>10)</sup>。その結果、今回得られた全中性子発生量は $3.4 \times 10^{17}$ であった。

照射終了後、放射化した試料から放出されるγ線を、ORTEC社製のGe(Li)検出器を用いて測定した。各試料の測定条件を表一三に示す。測定は照射終了後1日から5ヶ月にわたって、それぞれの試料について4回行なった(試料によってはその一部を省略した)。

Ge(Li)検出器からの信号を、CANBERRA社製のMCA(シリーズ88)で波高分析し、得られたγ線のピークを原研で開発されたγ線スペクトル解析コードBOB75<sup>11)</sup>を用いて解析することによってピーク面積を求めた。さらに、補正としては検出器の効率補正、γ線のサンプル中での自己吸収補正、ならびに照射中の中性子束の変動による補正等を行ない、先に求めたピーク面積から反応率を算出した。



図一四 普通ポルトランドセメントのγ線スペクトル(冷却時間: 1.15日, 測定時間: 1,000秒)

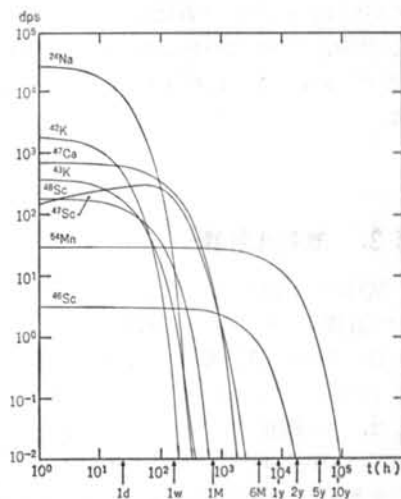
## 2.3 実験結果

図一四に、コンクリートの典型的なγ線スペクトルの一例として、普通ポルトランドセメントの結果を示す。図一四に現われているピークから、主要放射性核種として半減期の短かい順に、<sup>42</sup>K, <sup>24</sup>Na, <sup>43</sup>K, <sup>46</sup>Sc, <sup>47</sup>Sc, <sup>47</sup>Ca, <sup>46</sup>Sc, <sup>54</sup>Mnの核種が挙げられる。ここで得られた各放射性核種の親核種は、KについてはCaの同位体、<sup>24</sup>Naについては<sup>27</sup>Alおよび<sup>24</sup>Mg, また<sup>54</sup>Mnについては主として<sup>54</sup>Feであり、これらはすべてコンクリート中

	第1回測定	第2回測定	第3回測定	第4回測定
冷却時間	1~2day	3~4day	~1month	~5month
測定時間(sec)	3,000	10,000	10,000	100,000
普通骨材	24.89	69.15	718.79	3,498.29
軽量骨材	25.75	71.95	721.59	3,805.53
石灰岩骨材	26.62	74.77	724.40	—
普通ポルトランドセメント	27.49	114.39	727.20	3,550.00
高炉セメント	28.37	91.39	730.02	3,837.05
アルミナセメント	29.24	94.20	732.84	3,577.98
フライアッシュ(A)	27.30	97.00	735.64	3,639.37
フライアッシュ(B)	38.24	99.82	738.45	—

(表中の値は冷却時間(h))

表一三 照射試料のγ線測定条件



図一五 普通ポルトランドセメントの放射能の時間的変化の計算

	$^{24}\text{Na}$ ( $T_{1/2}=15.02\text{h}$ )	$^{54}\text{Mn}$ ( $T_{1/2}=312.5\text{d}$ )
普通骨材	2.548±0.110	1.247±0.095
軽量骨材	2.542±0.110	0.481±0.047
石灰岩骨材	0.068±0.003	—
高炉セメント	2.171±0.094	1.088±0.080
アルミナセメント	6.540±0.282	0.518±0.050
フライアッシュ	3.779±0.165	0.435±0.050

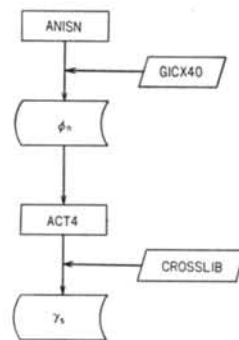
表一四 普通ポルトランドセメントの放射化量を1としたときの他の試料の放射化量の比

の主要成分元素に含まれる。ところが、Sc についてはその親核種は Ti の同位体であり、その成分は普通ポルトランドセメントでは0.36%と非常に少ないにもかかわらず、主要放射性核種の一つであるという事実はコンクリートの放射化を評価するうえで非常に重要である。

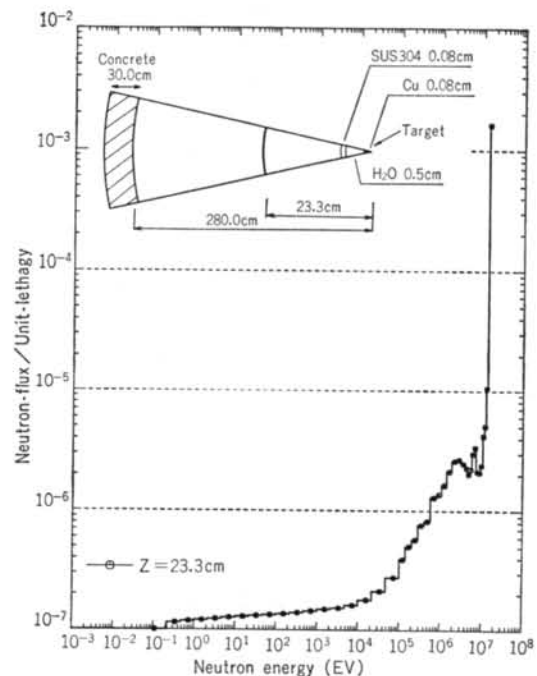
さらに、これら放射化核種の照射後の経時変化の計算結果を図一五に示す<sup>12)</sup>。横軸は冷却時間で、単位は時間である。縦軸は各核種の崩壊率を表す。計算条件としては、中性子源を14MeV単色と仮定して、断面積はCROSSLIB<sup>13)</sup>の値を用いた。この結果から、経時変化を加味したときの普通ポルトランドセメントの放射化特性は、照射終了時から約1週間は $^{24}\text{Na}$ 、約1ヶ月間は $^{47}\text{Ca}$ および $^{47}\text{Sc}$ 、それ以後は $^{54}\text{Mn}$ が主要放射性核種であることが分かる。そこで、短半減期および長半減期の核種として $^{24}\text{Na}$ および $^{54}\text{Mn}$ についての各試料の放射化量を、普通ポルトランドセメントを1としたときの比として表一四に示す。ここで、統計量の不十分なものについては除外した。これによると、主要放射性核種である $^{24}\text{Na}$ 、 $^{54}\text{Mn}$ については、石灰岩骨材が他の試料に比べて少なくとも1/30以下であるという結果が得られた。

### § 3. 放射化計算

試料の放射化量の計算は、原研で開発された核融合放射化計算コードシステム THIDA<sup>14)</sup>を用いて行なった。計算の流れ図を図一六に示す。先ず、試料に入射する中性子束を一次元輸送計算コード ANISN を用いて計算した。その際用いたライブラリーは、中性子42群、 $\gamma$ 線21群の GICX 40<sup>15)</sup>である。GICX 40のエネルギー群構造を表一五に示す。線源は、FNSの回転ターゲットの構造をそのまま取り入れて、モンテカルロ計算によって得られたものを用いた。図一七に、ターゲットから23.3cmの地点での試料中の中性子スペクトルを示す。図から



図一六 放射化計算コード THIDA の流れ図



図一七 試料位置 ( $z=23.3\text{cm}$ ) における中性子エネルギースペクトル (計算値)

明らかなように、実験の照射位置では14MeV中性子による寄与が大部分であることが分かる。ここで、この中性子がコンクリート試料と核反応を起こし、核変換が生じる。さらに、核変換に伴って放射性核種が生成され、誘導放射能となる。そこで、計算で得られた中性子スペクトルを用い、THIDAシステムの中の放射化計算コード ACT4により、各試料の残留 $\gamma$ 線の強度の計算を行なった。この際用いた核データライブラリーは、GICX 40の群構造と同じ群構造をもつ CROSSLIBである。計算の結果から、それぞれの試料の放射性核種の壊変率を求め、実験との比較を行なった。

Group	Energy	Limits	Mid-Point Energy
1	15.000	— 13.720	MeV 14.360 MeV
2	13.720	— 12.549	13.135
3	12.549	— 11.478	12.014
4	11.478	— 10.500	10.989
5	10.500	— 9.314	9.907
6	9.314	— 8.261	8.788
7	8.261	— 7.328	7.795
8	7.328	— 6.500	6.914
9	6.500	— 5.757	6.129
10	5.757	— 5.099	5.428
11	5.099	— 4.516	4.808
12	4.516	— 4.000	4.258
13	4.000	— 3.162	3.581
14	3.162	— 2.500	2.831
15	2.500	— 1.871	2.186
16	1.871	— 1.400	1.636
17	1.400	— 1.058	1.229
18	1.058	— 0.800	0.929
19	0.800	— 0.566	0.683
20	0.566	— 0.400	0.483
21	0.400	— 0.283	0.342
22	0.283	— 0.200	0.242
23	0.200	— 0.141	0.171
24	0.141	— 0.100	0.121
25	100.0	— 46.5 keV	73.25 keV
26	46.5	— 21.5	34.0
27	21.5	— 10.0	15.75
28	10.0	— 4.65	7.325
29	4.65	— 2.15	3.40
30	2.15	— 1.00	1.575
31	1.00	— 0.465	0.733
32	0.465	— 0.215	0.340
33	0.215	— 0.100	0.158
34	100.0	— 46.5 eV	73.25 eV
35	46.5	— 21.5	34.0
36	21.5	— 10.0	15.75
37	10.0	— 4.65	7.325
38	4.65	— 2.15	3.40
39	2.15	— 1.00	1.58
40	1.00	— 0.465	0.733
41	0.465	— 0.215	0.340
42	0.215	— 0.001	0.108

表一五 GICX40 および CROSSLIB のエネルギー群構造

#### § 4. 実験と計算との比較

各試料から得られた実験値のうち、統計量の多いものについて計算との比較を行なった。比較は、計算値と実験値との比、すなわち  $C/E$  値で行なった。表一六に主要放射性核種の  $C/E$  値を示す。実験と計算との比較から、 $^{24}\text{Na}$  と  $^{54}\text{Mn}$  については両者は非常に一致をしている。これは、 $^{24}\text{Na}$  や  $^{54}\text{Mn}$  はその生成反応断面積の測定例も多く、また評価の精度も高いことに起因し

Nuclide	Decay time			
	C/E value			
	1.15day	4.77day	4.33week	5.0month
$^{42}\text{K}$	0.91±0.07	—	—	—
$^{24}\text{Na}$	0.99±0.03	0.99±0.03	—	—
$^{40}\text{K}$	1.50±0.08	1.46±0.14	—	—
$^{48}\text{Sc}$	1.10±0.05	1.14±0.04	—	—
$^{47}\text{Sc}$	0.77±0.03	0.90±0.03	1.00±0.04	—
$^{47}\text{Ca}$	0.94±0.03	0.92±0.03	—	—
$^{46}\text{Sc}$	—	0.92±0.06	—	0.91±0.06
$^{54}\text{Mn}$	—	1.00±0.04	0.94±0.04	0.98±0.02

表一六 CROSSLIB の断面積を用いて放射化量を計算した結果と実験結果との比

ている。さらに、このことは放射化計算コードシステム THIDA の正当性の評価につながる。

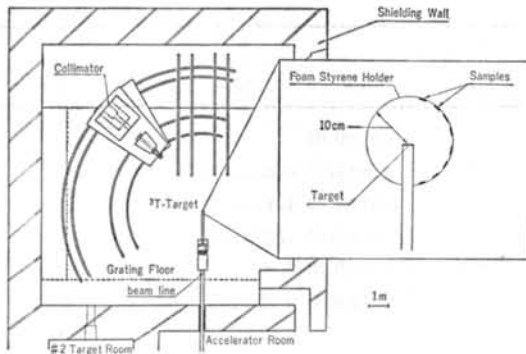
それに対して、他の核種は実験と計算との不一致が大きくなっている。前述のように計算コードが検証されているので、不一致の原因は計算に使用した放射化断面積にあると思われ、以下のように結論することができる。

- $^{42}\text{K}$  については  $C/E$  値が $\sim 0.9$ ということから、 $^{42}\text{Ca}(n, p)^{42}\text{K}$  および  $^{43}\text{Ca}(n, np)^{43}\text{K}$  反応の断面積が過小評価されている。
- $^{40}\text{K}$  については  $C/E$  値が $\sim 1.5$ ということから、 $^{40}\text{Ca}(n, p)^{40}\text{K}$  および  $^{44}\text{Ca}(n, np)^{44}\text{K}$  反応の断面積が約 50% 過大評価されている。
- $^{47}\text{Ca}$  については  $C/E$  値が $\sim 0.94$ ということから、 $^{48}\text{Ca}(n, 2n)^{47}\text{Ca}$  および  $^{50}\text{Ti}(n, \alpha)^{47}\text{Ca}$  反応の断面積が過小評価されている。
- $^{48}\text{Sc}$  を生成する  $\text{Ti}$  に起因する反応は、 $C/E$  値が 0.77 $\sim$ 1.14 の範囲でばらついており、これらの反応の断面積の値に不確実性が残っている。

以上、これらの結論はすべて 14MeV 近辺のエネルギーでの放射化断面積の評価が不十分であることを示している。そのため、比較的实验データの少ないこれらの断面積の精度よい測定は、精度よい放射化量の評価にとって非常に重要となる。

#### § 5. 放射化断面積測定および解析

§ 4. で述べたように、その放射化断面積に不確かさのある核種の放射化量の評価が、設計の精度に大きな影響を与えることが実験と計算の比較から明らかになった。そこで、このような核種が生成される反応断面積の精度よい測定<sup>10)</sup>を行ない、CROSSLIB の断面積との比較お



図一 8 FNS 第1ターゲット室の平面図および放射化断面積測定実験体系

Reaction	$T_{1/2}$	$E_T(\text{MeV})$	$I_T(\%)$
$^{40}\text{Ca}(n, p)^{40}\text{K}$	12.36 h	1.5247	17.9
$^{43}\text{Ca}(n, p)^{43}\text{K}$	22.4 h	0.3729 0.6178	86.7 80.0
$^{44}\text{Ca}(n, np)^{43}\text{K}$	''	''	''
$^{46}\text{Ca}(n, 2n)^{47}\text{Ca}$	4.536 d	1.2971	76.0
$^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$	83.8 d	0.88925 1.12051	100.0 100.0
$^{47}\text{Ti}(n, np)^{46}\text{Sc}$	''	''	''
$^{47}\text{Ti}(n, p)^{47}\text{Sc}$	3.35 d	0.1594	68.0
$^{48}\text{Ti}(n, np)^{47}\text{Sc}$	''	''	''
$^{48}\text{Ti}(n, p)^{48}\text{Sc}$	43.7 h	0.9835 1.03750 1.31209	100.0 97.5 100.0
$^{49}\text{Ti}(n, np)^{48}\text{Sc}$	''	''	''
$^{50}\text{Ti}(n, \alpha)^{47}\text{Ca}$	4.536 d	1.2971	76.0

表一 7 放射化断面積を測定した反応および核データ  
よび検討を行なった。

### 5.1 放射化断面積測定

測定は、原研 FNS の第1ターゲット室で行なった。原研 FNS の第1ターゲット室の平面図を、図一 8 に示す。14 MeV 中性子は、 $d^+$  ビームを 330 kV で加速し、水冷トリチウムターゲットで反応させることによって発生する。照射時のビーム電流は 1.0~1.5 mA であった。このターゲットシステムは、重照射用の第2ターゲット室のシステムと比べると、より精度のよい実験に適したシステムであり、放射化断面積測定用に特に用意したものである。

測定反応は、§ 4. で示したように  $^{42}\text{K}$ ,  $^{43}\text{K}$ ,  $^{47}\text{Ca}$ ,  $^{46}\text{Sc}$ ,  $^{47}\text{Sc}$ ,  $^{48}\text{Sc}$  を生成する主要反応で、表一 7 に示す各反応である。表一 7 にはデータ解析に用いた半減期、 $\gamma$  線のエネルギーおよび放出確率も同時に示した<sup>17)</sup>。表

### (1)Ca ( $\text{CaCO}_3$ )

試料	質量数	40	42	43	44	46	48
$^{40}\text{Ca}$		5.55	93.77	0.13	0.54	<0.003	0.01
$^{44}\text{Ca}$		1.25	0.04	0.02	98.68	<0.005	0.008
$^{n}\text{Ca}$		96.97	0.64	0.145	2.06	0.0033	0.185

### (2)Ti ( $\text{TiO}_2$ )

試料	質量数	46	47	48	49	50	natural
$^{46}\text{Ti}$		81.20	2.10	14.50	1.10	1.10	7.99
$^{47}\text{Ti}$		3.0	68.5	25.0	1.8	1.6	7.32
$^{48}\text{Ti}$		0.08	0.11	99.65	0.09	0.07	73.99
$^{49}\text{Ti}$		0.22	0.22	2.71	96.25	0.60	5.46
$^{50}\text{Ti}$		0.27	0.25	2.40	0.33	96.75	5.25

表一 8 放射化断面積測定試料の同位体の成分比

反 応	照射時間	測定時間
$^{40}\text{Ca}(n, p)^{40}\text{K}$	6 h	1~2 h
$^{44}\text{Ca}(n, np)^{43}\text{K}$	6 h	3~30 h
$^{43}\text{Ca}(n, p)^{43}\text{K}$	6 h	3~30 h
$^{46}\text{Ca}(n, 2n)^{47}\text{Ca}$	6 h	4~24 h
$^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$	6 h	3~14 h
$^{47}\text{Ti}(n, np)^{46}\text{Sc}$	6 h	3~16 h
$^{47}\text{Ti}(n, p)^{47}\text{Sc}$	6 h	33 min
$^{48}\text{Ti}(n, np)^{47}\text{Sc}$	6 h	2.5~13 h
$^{48}\text{Ti}(n, p)^{48}\text{Sc}$	6 h	2.5 h
$^{49}\text{Ti}(n, np)^{48}\text{Sc}$	6 h	1~5 h
$^{50}\text{Ti}(n, \alpha)^{47}\text{Ca}$	6 h	2.5~12 h

表一 9 放射化断面積測定の照射および測定条件

一 7 から分かるように、注目核種を生成する反応は一つとは限らず、二つ以上の競合反応から成っているものが多い。そこで、今回は CROSSLIB の断面積との比較検討も含め、より精度よい測定のために安定同位体による照射実験を行なった。それぞれの試料の化学形および濃縮度を表一 8 に示す。ここで、 $^{40}\text{Ca}$  については競合反応の影響がほとんどないので天然の  $\text{CaCO}_3$  を用い、また  $^{43}\text{Ca}(n, p)$  反応は  $^{43}\text{Ca}$  の入手が困難なため天然の  $\text{Ca}$  および  $^{44}\text{Ca}$  の両者の測定結果から断面積を算出した<sup>8)</sup>。安定同位体は、全て米国のオークリッジ国立研究所で同位体分離されたものを用いた。

照射試料の重量は、各試料とも約50mgのものを葉包紙で包み6~8個作成し、ターゲットの  $d^+$  ビームラインに対して  $2.8^\circ \sim 165^\circ$  の範囲でターゲットから約10cm離れた位置にセットした(図一 7)。各試料への入射中性子エネルギーは、約 13.5~15.0 MeV である。

照射は、各試料の生成核種の半減期が短いものでも12

時間以上であるので、6時間に統一して行なった。照射中の試料への入射中性子束は、Nb 箔を用いモニターした。測定は、数台の Ge 検出器を用いて行ない、生成核種の統計エラーが少なくとも3%以下になるように測定時間を決定した。表-9に、各試料の照射および測定条件を示す。

競合反応については、成分比の異なる2種の同位体を同一照射場で照射することによって処理した<sup>19)</sup>。競合反応に関わる親核種  ${}^m\text{A}$  および  ${}^n\text{A}$  の原子数を  $N_i({}^m\text{A})$ ,  $N_i({}^n\text{A})$ , また求めたい放射化断面積を  $\sigma({}^m\text{A})$ ,  $\sigma({}^n\text{A})$  とし、各照射時の入射中性子束を  $\phi_t$  とすると次の関係式が成り立つ。

$$N_i({}^m\text{A})\sigma({}^m\text{A})\phi_t + N_i({}^n\text{A})\sigma({}^n\text{A})\phi_t = R_i$$

$$\text{ただし, } R_i = \frac{\lambda c_i}{(1 - e^{-\lambda t_{irr,i}})e^{-\lambda t_{c,i}}(1 - e^{-\lambda t_{m,i}})\epsilon \cdot b}$$

ここで、 $\lambda$ : 崩壊定数

$c_i$ : ピーク・カウント

$t_{irr}$ : 照射時間

$t_c$ : 冷却時間

$t_m$ : 測定時間

$\epsilon$ : 検出効率

$b$ :  $\gamma$ 線放出比

したがって、 $\sigma({}^m\text{A})$  および  $\sigma({}^n\text{A})$  の値は2種の成分比の異なる同位体 ( $i=1, 2$ ) を照射すれば、一意的に決定される。

また、補正に関しては2.2に述べた方法をここでも同様に用いた。データ処理の結果、安定同位体を用いなかった一部の反応を除いて、放射化断面積の絶対値を求めるための Nb モニター箔の断面積の誤差<sup>20)</sup>も含めて、全体として $\pm 6\%$ 以内の精度で放射化断面積の値を決定することができた。

## 5.2 測定結果

得られた反応の放射化断面積を、図-9~図-19に示す。横軸は中性子のエネルギーで、縦軸は放射化断面積である。同時に、図には他の実験者のデータ、また評価値がある場合については評価値も示した。さらに、CROSSLIB の断面積データを一点鎖線で示した。

### (1) ${}^{42}\text{K}$

${}^{42}\text{K}$  の生成反応としては、 ${}^{42}\text{Ca}(n, p)$  および  ${}^{43}\text{Ca}(n, np)$  の2つの反応がある。今回は、後者については  ${}^{42}\text{Ca}$  の安定同位体が入手できなかったので十分な統計量が得られなかったが、過去のデータおよび存在比からするとその寄与は5%以下なので前者についてのみ考える。図-9から分かるように、CROSSLIB の断面積は今回得ら

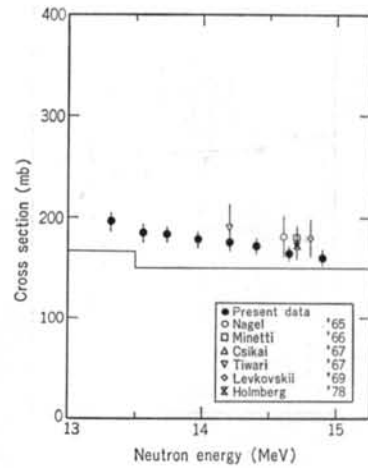


図-9  ${}^{42}\text{Ca}(n, p){}^{42}\text{K}$  の放射化断面積

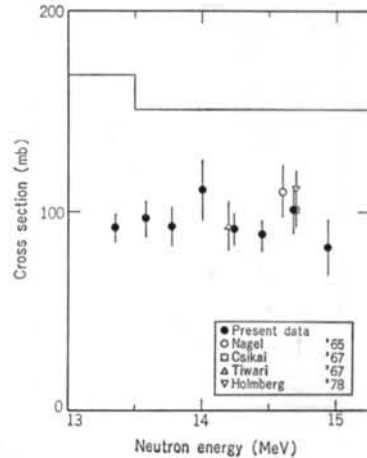


図-10  ${}^{43}\text{Ca}(n, p){}^{43}\text{K}$  の放射化断面積

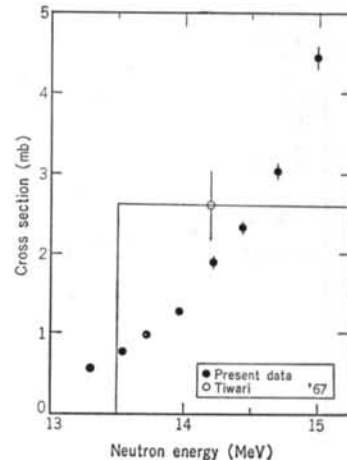


図-11  ${}^{42}\text{Ca}(n, np){}^{42}\text{K}$  の放射化断面積

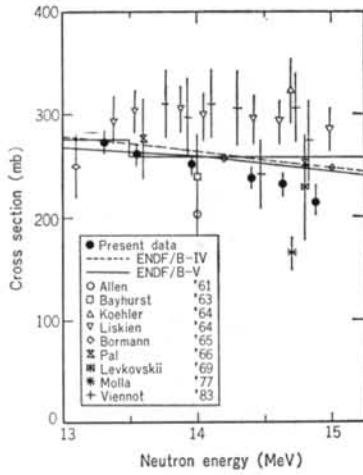


図-12  $^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$  の放射化断面積

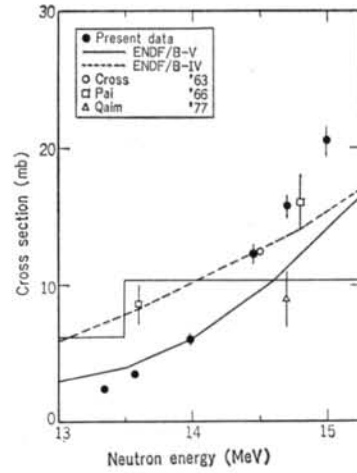


図-15  $^{48}\text{Ti}(n, np)^{48}\text{Sc}$  の放射化断面積

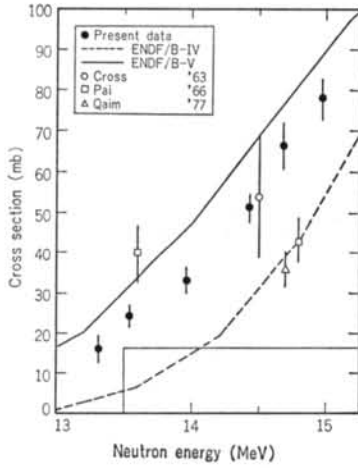


図-13  $^{41}\text{Ti}(n, np)^{46}\text{Sc}$  の放射化断面積

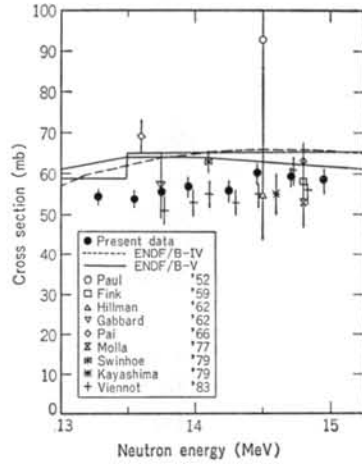


図-16  $^{48}\text{Ti}(n, p)^{48}\text{Sc}$  の放射化断面積

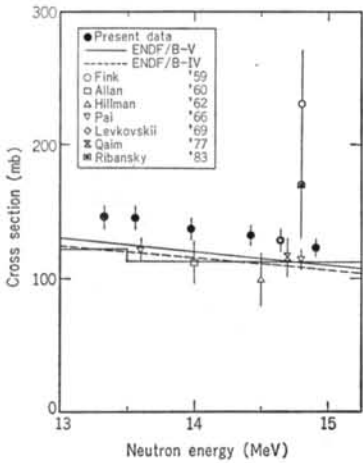


図-14  $^{47}\text{Ti}(n, p)^{47}\text{Sc}$  の放射化断面積

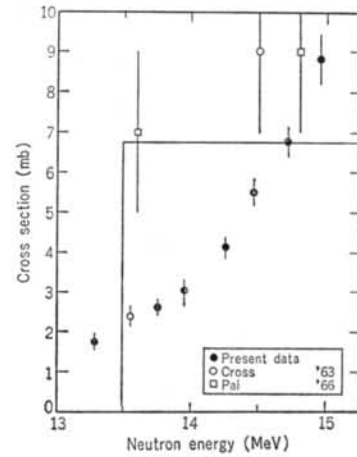


図-17  $^{49}\text{Ti}(n, np)^{49}\text{Sc}$  の放射化断面積



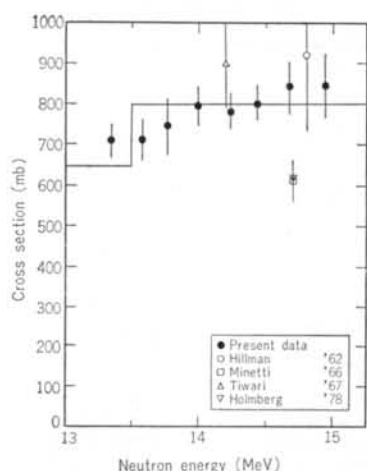


図-18  $^{48}\text{Ca}(n, 2n)^{47}\text{Ca}$  の放射化断面積

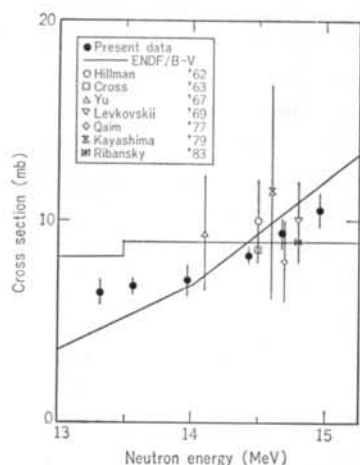


図-19  $^{50}\text{Ti}(n, \alpha)^{47}\text{Ca}$  の放射化断面積

れた値と比較すると、約10%の過小評価となっている。

(2) $^{43}\text{K}$

$^{43}\text{K}$ の生成反応としては、 $^{43}\text{Ca}(n, p)$ および $^{44}\text{Ca}(n, np)$ の2つの反応がある。前者については、図-10から分かるように CROSSLIB の値は約40%過大評価している。これは、コンクリート放射化実験での  $C/E$  の値が1.46~1.50であったことに対応している。図-11に示す後者の反応については、 $(n, np)$  反応ということで閾エネルギーも高くその傾きが急なため、42群の群構造では十分断面積を表わすことができない。しかしながら、中性子のエネルギースペクトルが14.7 MeV を中心にガウス分布しているとすると、コンクリート放射化実験の中性子場では、CROSSLIB の値はよい近似となっていることが分かる。

(3) $^{46}\text{Sc}$

$^{46}\text{Sc}$ の生成反応についても、 $^{46}\text{Ti}(n, p)$ および $^{47}\text{Ti}(n, np)$ の2つの反応がある。図-12から分かるように、前者の反応では CROSSLIB は10%程度過大評価しているが、図-13に示す後者の反応では群構造を考慮しなくても全体として過小評価になっている。 $^{46}\text{Sc}$ および $^{47}\text{Sc}$ の存在比がほぼ同じで、断面積の値の違いを考慮すると、全体として CROSSLIB の値は過小評価になっている。さらに、断面積の大きな  $^{45}\text{Sc}(n, \gamma)^{46}\text{Sc}$  反応については、入射中性子スペクトルおよび Sc の試料中の存在比を考慮すると、ここでは無視できる。

(4) $^{47}\text{Sc}$

$^{47}\text{Sc}$ の生成反応についても  $^{47}\text{Ti}(n, p)$  および  $^{48}\text{Ti}(n, np)$  の2つの反応がある。図-14に示すように、前者の反応では CROSSLIB の値は約10%以上の過小評価になっている。さらに、図-15に示す後者の反応は断面積の傾きが急であるために、CROSSLIB のもつ群構造では十分断面積を表わすことができていない。さらに、絶対値としても過小評価となっている。特に、 $^{48}\text{Ti}$  は天然の存在比が73.99%と大きいために  $^{47}\text{Ti}(n, p)$  反応と同程度の反応率となるため、断面積の精度のよい評価は重要となってくる。

(5) $^{48}\text{Sc}$

この反応も、他の反応同様  $^{48}\text{Ti}(n, p)$  および  $^{49}\text{Ti}(n, np)$  の2つの競合反応である。前者の反応断面積を図-16に示す。CROSSLIB は、主として ENDF/B-IV を元にして作成されているので、約10%の過大評価となっている。ここで、ENDF/B-V の評価値は今回測定した値に近づいてくることが分かる。図-17に後者の反応を示す。ここでも群構造が問題となるが、 $^{49}\text{K}$  の場合と同様に実験の中性子場に対してはよい近似となっている。

(6) $^{47}\text{Ca}$

この生成反応としては異なった親核種が考えられる。一方は  $^{48}\text{Ca}(n, 2n)$ 、他方は  $^{50}\text{Ti}(n, \alpha)$  反応である。図-18, 19に示すように、断面積としては前者が後者に比べて約8倍以上あり、実験の試料の  $^{48}\text{Ca}$  の存在比が  $^{50}\text{Ti}$  に比べて約6倍以上であるため、 $^{48}\text{Ca}(n, 2n)$  によるものが大部分である。図-18に示すように、 $^{48}\text{Ca}(n, 2n)$  の断面積測定には安定同位体を用いなかったため誤差が大きくなっているが、絶対値としては CROSSLIB の評価はやや過小評価となっている。

## § 6. 測定結果の放射化実験解析への適用

以上のようにして、CROSSLIB の断面積と今回測定

Reaction	CROSSLIB $\sigma$ (mb)	PRESENT <sup>*</sup> $\sigma$ (mb)	Abundance (%)	CROSSLIB/PRESENT
$^{42}\text{Ca}(n, p)^{42}\text{K}$	152.0	165.4	0.65	0.92
$^{42}\text{Ca}(n, np)^{42}\text{K}$	30.0	—	0.145	
$^{42}\text{Ca}(n, p)^{43}\text{K}$	154.0	103.0	0.145	1.36
$^{44}\text{Ca}(n, np)^{44}\text{K}$	2.6	2.6	2.09	
$^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$	258.36	229.28	7.99	0.94
$^{47}\text{Ti}(n, np)^{46}\text{Sc}$	17.60	66.47	7.32	
$^{47}\text{Ti}(n, p)^{47}\text{Sc}$	112.34	128.60	7.32	0.76
$^{48}\text{Ti}(n, np)^{47}\text{Sc}$	10.60	15.74	73.99	
$^{48}\text{Ti}(n, p)^{48}\text{Sc}$	65.40	59.32	73.99	1.10
$^{48}\text{Ti}(n, np)^{48}\text{Sc}$	6.80	6.78	5.46	
$^{50}\text{Ti}(n, \alpha)^{47}\text{Ca}$	9.00	9.39	5.25	0.95
$^{48}\text{Ca}(n, 2n)^{47}\text{Ca}$	800.00	843.74	32.43*	

表-10 CROSSLIB の断面積と今回測定した断面積との比較 (\*印は試料中の Ca/Ti 比を乗じた値)

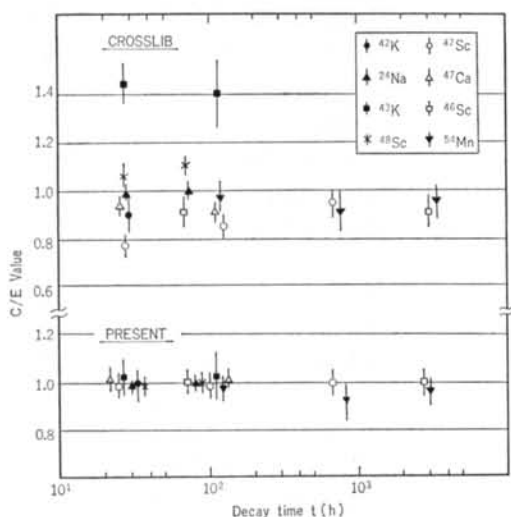


図-20 CROSSLIB の断面積を入力データとしたときの C/E 値と今回の測定結果を入力データとしたときの C/E 値との比較

したものととの比較を行なったが、測定で得られた断面積は中性子エネルギーが 13.5~15.0 MeV の範囲内でエネルギー依存性をもっているのに対して、CROSSLIB の場合断面積の値はそのエネルギー群構造の関係で、このエネルギー範囲では 1 群に近似され定数化されている。そこで今回の測定結果を、先に行なった放射化実験に適用するためには注意が必要である。放射化実験の試料への入射中性子束は計算の結果、図-7 に示したように第 1 群 (13.5~15.0 MeV) が大部分のスペクトルになっている。断面積のエネルギー依存性が少ない反応については、今回のデータと CROSSLIB のデータとを直接比較することは可能であるが、依存性の大きい反応 ((n, np) 反応) についてはその比較が難しい。そこで、モンテカ

ロ計算の結果を利用して放射化実験の実験配置 ( $d^+$  ビームラインに対して  $45^\circ$  の方向) での入射中性子が中性子エネルギー 14.7 MeV でガウス分布しているとして、実効平均反応エネルギーに相当する断面積の値を用いて CROSSLIB の断面積との比較を行なった。

表-10 に比較の結果を示す。すべての反応とも、競合反応あるいは親核種の異なる反応であるので、比としては各親核種の存在比を断面積に乗じたもので比較した。さらに、 $^{47}\text{Ca}$  については異なる親核種から生成するため、試料中の成分比を用いて  $^{48}\text{Ca}$  の  $^{50}\text{Ti}$  に対する比として存在比を求めた。

ここで得られた比を用いて、再度放射化実験で得られた放射化量と計算で得られたものとの比 (C/E) について、CROSSLIB のデータを入力とした計算と今回のデータを入力としたものとの比較を行なった。その結果を図-20 に示す。横軸は冷却時間を、縦軸は C/E を表わす。図-20 から分かるように、当初みられていた実験と計算との不一致 (-20%~+40%) は改善され、中心値で  $\pm 10\%$  以内というよい一致となった。したがって、今回の放射化断面積の精度よい測定および適切な評価方法は、放射化量の評価の精度を著しく向上させるのに役立った。

## § 7. 結論

核融合施設や医療用施設の構造材の一つであるコンクリートの放射化特性を実験的に調べるために、14 MeV 中性子によるコンクリート構成材料の放射化実験を行ない、放射化計算コードによる計算結果との比較検討を行なった。その結果、以下に示すような結論が得られた。

(1)14 MeV 中性子によるコンクリートの主要放射性核種は半減期の順に、

$^{42}\text{K}$ ,  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{48}\text{K}$ ,  $^{48}\text{Sc}$ ,  $^{47}\text{Sc}$ ,  $^{47}\text{Ca}$ ,  $^{46}\text{Sc}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  の8種が実験的に確認された。今回は、 $^{42}\text{K}$  (半減期12.36時間)よりも半減期の短いものは統計量の不足から解析していないが、 $^{28}\text{Al}$ ,  $^{29}\text{Al}$ ,  $^{27}\text{Mg}$ ,  $^{44}\text{K}$ ,  $^{41}\text{Ar}$ ,  $^{56}\text{Mn}$  も観測されている<sup>21)</sup>。さらに、長半減期に関しては現在測定を続けているが(照射後1~2年),  $^{23}\text{Na}(n, 2n)$  反応によって生成される  $^{22}\text{Na}$  (半減期2.6年)も確認されている。

(2)主要放射性核種のうち、短期あるいは長期のメンテナンス時に重要な  $^{24}\text{Na}$  (半減期15.06時間)および  $^{54}\text{Mn}$  (半減期312日)については、石灰岩骨材が他の骨材と比較して非常に有利であることが確認された。

(3)放射化計算コード THIDA の計算結果と実験結果との比較では、 $^{24}\text{Na}$  と  $^{54}\text{Mn}$  については $\pm 10\%$ 以内の一致が示された。これは、 $^{24}\text{Na}$  および  $^{54}\text{Mn}$  の生成反応断面積が精度よく測定されておりその評価の精度も高いこと、また CROSSLIB の第1群の放射化断面積の評価が妥当であることに起因している。

(4)上記(3)で放射化計算コード THIDA の有効性が示されたが、上記以外の反応で Ca および Ti に起因する反応については、計算値と実験値との間に $-20\% \sim +40\%$ の不一致がみられた。この原因としては、一つには放射化断面積の不確かさが考えられ、またもう一つには CROSSLIB の第1群の断面積の縮約の仕方に問題があるものと考えられる。

(5)そこで、不一致を生じた反応の放射化断面積の測定を13.5~15.0 MeV のエネルギー範囲で、そのエネルギー依存性も含めて精度よく行なった。その結果と実験の入射中性子スペクトルから、CROSSLIB の第1群の放射化断面積の再評価を行ない、実験結果に適用したところ $-20\% \sim +40\%$ の不一致は改善され、C/E 値で $\pm 10\%$ 以内の一致が得られた。

放射化計算コード THIDA の群構造は、42群で特に14 MeV 付近の群構造が粗くなっているが、本研究で示されたように14 MeV 付近の放射化断面積を精度よく測定し、中性子スペクトルを加味して放射化断面積を評価すれば、放射化量の評価の精度が著しく向上することが明らかとなった。

この結論は、コンクリートのみならず他の構造材(核融合炉材や医療用加速器材料)にも適用することができ、少数群(42群)による実際の施設の設計計算にとって非常に重要である。この結果に基づいて、現在は構造材中の体系内中性子スペクトル測定および他の反応の放射化断面積の精度よい測定を進めている。

**謝辞** 本研究は、著者が日本原子力研究所に外来研究員として在籍していたときの研究の一部である。本研究を進めるに当たっては、原研核融合炉物理研究室長中村知夫氏には施設の利用からデータ解析に至るまで多大なる助言をいただきました。さらに、同研究室の前川洋主任研究員、池田裕二郎研究員には終始実験および測定に関するご指導を頂きました。紙面を借りて感謝の意を表します。

#### <参考文献>

- 1) C.A. Flanagan, et al.: "Over View of Compact Ignition Tokamak" Trans. Am. Nucl. Soc., Vol. 52 (June 1986) p.133
- 2) R.W. Conn, et al.: "Lower Activation Materials and Magnetic Fusion Reactor" Nucl. Technol./Fusion, Vol. 5 (1983) p. 291
- 3) R.W. Conn, T.Y. Sung & M.A. Abdou: "Comparative Study of Radioactivity and Afterheat in Several Fusion Reactor Blanket Designs" Nucl. Technol., Vol. 26 (1975) p. 391
- 4) D.J. Dudziak & R.A. Krakowski: "Radioactivity Induced in a Theta-Pinch Fusion Reactor" Nucl. Technol., Vol. 25 (1975) p. 32
- 5) W.F. Vogelsang, et al.: "Transmutations, Radioactivity and Afterheat in a Deuterium-Tritium Tokamak Fusion Reactor" Nucl. Technol., Vol. 22 (1974) p. 379
- 6) M.L. Williams, R.T. Santoro & T.A. Gabriel: "The Calculated Performance of Various Structural Materials in Fusion-Reactor Blankets" Nucl. Technol., Vol. 29 (1976) p. 384
- 7) Y. Ikeda, et al.: "Measurements of Induced Activity in Type 316 Stainless Steel by Irradiation in D-T Neutron Fields" Fusion Technol., Vol. 8 (1985) p. 1466
- 8) K. Oishi, et al.: "Measurements and Analysis of Induced Activities in Concrete Irradiated by 14 MeV Neutrons" JAERI-M85-116 (1985)

- 9) T. Nakamura, et al.: "Present Status of the Fusion Neutronics Source (FNS)" Proc. 4th Symp. on Accelerator Sci. & Technol., RIKEN, Saitama, Nov. 24-26 (1982) pp.155~156
- 10) H. Maekawa, et al.: "Neutron Yield Monitors for the Fusion Neutronics Source (FNS)" JAERI-M83-219 (1983)
- 11) H. Baba: "Usage of the BOB75-Series Programs for Analysis of Ge(Li) Gamma-ray Spectra" JAERI-M7017 (1977)
- 12) 大石他: "14 MeV 中性子によるコンクリート放射化実験" 昭和60年日本原子力学会年会予稿集, B39
- 13) Y. Seki, H. Iida & H. Kawasaki: "Graphical Representation of Transmutation and Decay Chain Data, Transmutation Cross Section and Delayed Gamma-ray Emission Data" JAERI-1280 (1982)
- 14) Y. Seki, et al.: "THIDA-2; An Advanced Code System for Calculation of Transmutation, Activation, Decay Heat and Dose Rate" JAERI-1301 (1986)
- 15) Y. Seki & H. Iida: "Coupled 42-group Neutron and 21-group Gamma-ray Cross Section Sets for Fusion Reactor Calculations" JAERI-M8818 (1980)
- 16) K. Oishi, Y. Ikeda & T. Nakamura: "Measurement of Neutron Activation Cross Section of Calcium Isotopes by D-T Neutrons" NEANDC (J)-116/V(1985)
- 17) C.M. Lederer & V.S. Shirley: "Table of Isotopes (7th ed.)"
- 18) 大石他: "D-T 中性子による  $^{40}\text{Ca}$ ,  $^{44}\text{Ca}$  の放射化断面積測定" 昭和60年日本原子力学会分科会予稿集, C45
- 19) 大石他: "14 MeV 中性子による同位体の Ti 放射化断面積測定及び積分実験による評価" 昭和61年日本原子力学会年会予稿集, B3
- 20) Y. Ikeda, et al.: "Measurement of High Threshold Activation Cross Sections for 13.5 to 15.0 MeV Neutron" Int. Conf. on Nuclear Data for Basic and Applied Science, Santa Fe, May 1985.
- 21) 大石, 齊藤: "低放射化コンクリートに関する研究" 日本建築学会大会学術講演梗概集(昭和59年10月)