

高速中性子束を高精度で検出するための $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積の新たな評価

小迫 和明

(技術研究所)

New Evaluation of $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ Reaction Cross Sections for Detecting the Fast Neutron Flux with High Precision

Kazuaki Kosako

中性子の高速成分を最も容易に測定する方法は、放射化箔による $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応率の測定である。輸送計算コードで実験解析することにより、高速中性子束とスペクトルの計算の正確度を評価することができる。この実験解析には $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積が必須であるが、汎用の評価済核データファイルは 20 年以上に渡ってこの断面積の更新がなされていない。そのため、断面積の精度向上を目的として新たな評価を実施した。新たな評価により $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応率の計算精度が既存のものよりも約 10%改善することを実験解析により確認した。

The $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ reaction rates by the radioactivation foil can measure the fast neutron fluxes most easily. The experiment analysis using the transport calculation code is able to estimate the calculated accuracy of the fast neutron fluxes and spectra. The $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ reaction cross section is essential to the experiment analysis. The cross section has not been updated more than 20 years in the evaluated nuclear data files for general purposes. Therefore, we carried out a new evaluation for the purpose of the accuracy improvement of the cross section. We confirmed that the calculation accuracy of $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ reaction rate used the new evaluation was improved about 10% than old data by the experiment analysis.

1. はじめに

中性子の高速成分に関する情報を実験により得る必要がある場合、NE213 検出器や ^3He ガス比例計数管などの高度な測定機器が利用できない条件下において、最も容易で実績の多い方法は放射化箔を用いた測定である。放射化箔法は、箔内部で起きた入射中性子による放射化反応を利用するものであり、生成した放射性核種の崩壊ガンマ線を高純度 Ge 検出器等で測定し、そのピーク面積から放射化反応率を導出する。得られた反応率から実験解析により中性子束の情報を推定できる。2 MeV 以上の高速中性子を放射化箔法で測定する場合には、アルミニウム箔を用いて $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応 (^{27}Al に中性子 n が入射し複合核が形成され、その直後に陽子 p が放出され残留核として ^{27}Mg が生成される核反応) を利用することが多い。この理由は、99.99%以上の高純度の Al 箔が適切な価格で入手可能であること、Al 元素の天然同位体は ^{27}Al のみであること、 ^{27}Al から ^{27}Mg の生成過

程に競合反応がないこと、 $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積が約 0.1 barns と比較的大きくかつ閾エネルギー (1.897 MeV) からの反応断面積の立ち上がり形状がスムーズであること、生成核種 ^{27}Mg の β -崩壊の半減期が 9.458 分であるため中性子照射直後に採取できれば短時間で目的の崩壊ガンマ線を多数測定できること、崩壊ガンマ線のエネルギーが比較的高いこと (0.844 MeV (1 崩壊当たり) の放出率: 71.8%) と 1.014 MeV (28.0%)) である。

このように放射化箔検出器として優れた特性を持ちかつ測定し易い $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ の反応断面積は、1950 年代から多数の測定が実施されたため、多くの実験データが EXFOR データベース¹⁾に登録されている。ユーザーが $^{27}\text{Al}(n,p)$ 反応断面積データを実際に使用する場合は、評価済核データファイルに格納されているその断面積データを利用目的の形式やエネルギー群構造に変換した上で、反応率や高速中性子束の導出などに用いる。国内で使用される代表的な評価済核データファイルの $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積を図-1 に示す。図-1 の $^{27}\text{Al}(n,p)$ 反応断面積

は、立ち上がりから分布形状まで核データファイル間に大きな違いはないが、断面積の絶対値としては JENDL-4.0²⁾が高く、ENDF/B-VIII.0³⁾が低く、JENDL/D-99⁴⁾がその中間となっており、詳細に見れば差があることがわかる。そのため、標準的な放射化箱検出器である $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積の精度向上を目的として、評価値の状況を精査した上で新たな評価値を作成した。

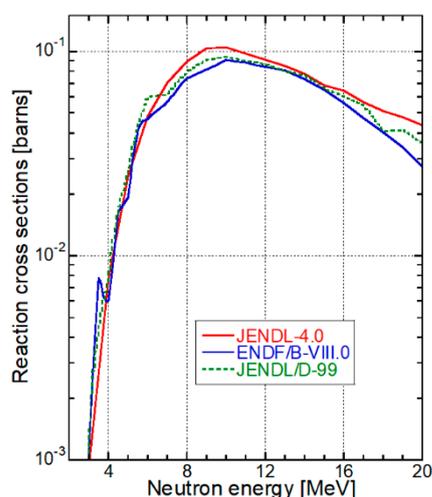


図-1 代表的な $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積

2. 評価済核データファイルの現状

日本の評価済核データファイルの $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積 (ENDF 書式: MF=3/MT=103 サブセクション) の評価は、汎用ファイルとして JENDL-3.1 (1990年公開) から最新の JENDL-4.0 (2010年; J40 と略記) まで全て同じ断面積データであり変更されてない。特殊目的ファイルのドシメトリーファイルは、JENDL/D-91 (1991年) と JENDL/D-99 (1999年; JD99 と略記) があり、データは SAND-II 形式の 640 群構造であり、pointwise 形式ではない。JENDL/D-91 の断面積は J40 と同等だが、JD99 は小林捷平教授 (京都大学) により 図-1 に示した 6~7 MeV に肩がありピークが少し低目の断面積に変更された。放射化断面積ファイルの JENDL/A-96 (1996年) と核融合ファイルの JENDL/F-99 (1999年) は、JENDL-3.2 (1994年) のデータが採用されたので J40 と同じである。高エネルギーファイルの JENDL/HE-2007 (2007年) は、JENDL-3.3 (2002年) のデータが採用されたので J40 と同じである。JENDL-4.0/HE (2015年) は J40 が採用された。従って、J40 の $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積と異なる評価は JD99 のみである。

米国では ENDF/B-IV の $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積を 1973 年に P.G. Young が R.L. Henkel (1954), J.A. Grundl (1967), G. Calvi (1962), R. Bass (1966), G.S. Mani (1960) の実験値をベースに評価した。この評価値は、ENDF/B-V と ENDF/B-VI.0 にも採用され、JENDL-3.1 でも基本的に踏襲された (4 MeV 付近のピーク構造と 18 MeV 以上に部分的な違いがある)。IAEA の国際標準ドシメトリーファイルの IRDF-90⁵⁾ が 1990 年に公開され (D. Hetrick と C.Y. Fu の評価)、ENDF/B-VI.3 と VI.4 に採用された (20~40 MeV は P.G. Young による評価値)。1999 年の ENDF/B-VI.6 は、MT=103 サブセクションの 20 MeV 以下の評価値は IRDF-90 のままであるが 20 MeV 以上は MT=5 で与えられた LA150 の評価値 (C.B. Chadwick と P.G. Young) に変更された (図-2 参照)。その後の ENDF/B-VI.8, VII.0, VII.1, VIII.0 (2018年; B80 と略記) でも変更されず、そのまま採用されている。

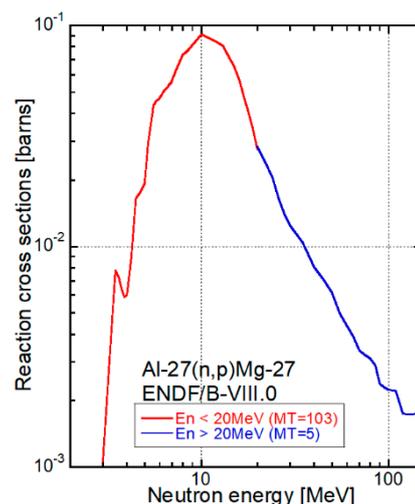


図-2 B80 の $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積

欧州では JEFF-2.2 が ENDF/B-V を採用し、次の JEFF-3.0 では ENDF/B-VI.6 を採用した。その後の JEFF-3.1, 3.1.1, 3.2, 3.3 (2017年) でも変更されていないため、B80 と同じであり独自の評価値はない。

IAEA の国際標準ドシメトリーファイルは、IRDF-90 以降も改訂作業が継続され $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積の改訂版として IRDF-2002 (2002年)、IRDF v1.02 (2012年)、IRDF-II (v1.05)⁶⁾ (2020年) が公開された。IRDF-2002 はロシアのドシメトリーファイル RRDF-98 (1990年の K.I. Zolotarev, A. Pashchenko, J. Csikai の評価値) が採用された。IRDF v1.02 は A. Trkov による修正値が採用された。最新の IRDF-II は RRDF-2015 (2015年の K.I. Zolotarev の評価値) が採用された。

J40 と B80 の $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積の評価値とそれらとは異なる ENDF/B-V と IRDFF-II の評価値の比較図を図-3 に示す。

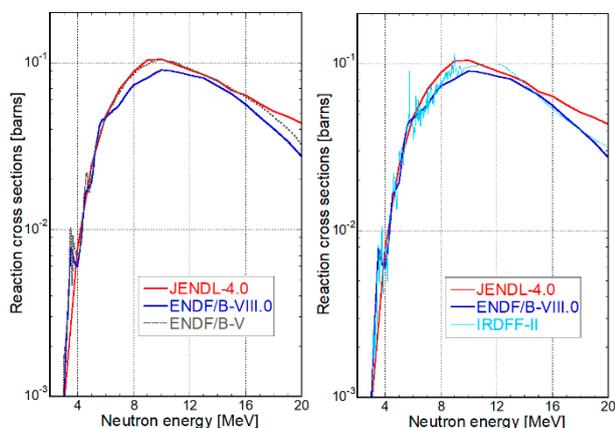


図-3 J40 と B80 の $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積と ENDF/B-V と IRDFF-II の評価値の比較図

3. 新たな評価

現在国内で利用可能な $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積は、2章で述べたように ENDF/B-V を受け継ぐ J40、IRDFF-90 を受け継ぐ B80、最新版の IRDFF-II、独立な JD99 の 4 種類がある。最新の汎用の評価済核データファイルである J40 と B80 に格納されている $^{27}\text{Al}(n,p)$ 反応断面積の元の評価値は 1990 年以前のものであり、JD99 も 1999 年公開であるため 20 年以上の間新たな知見が取り入れられていない。そのため、 $^{27}\text{Al}(n,p)$ 反応断面積の精度向上を目的として、EXFOR から利用可能な $^{27}\text{Al}(n,p)$ 反応断面積の実験値を網羅した上で、精査した実験値に基づく新たな評価値を作成した。

EXFOR から検索された $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積の実験値の半数以上は、D-T 反応中性子源で発生した 13~15 MeV の中性子を用いて測定されたものである。このエネルギー領域で測定された $^{27}\text{Al}(n,p)$ 反応断面積は、0.05~0.2 barns の範囲内に実験誤差を超えて広く分散しており、断面積が中性子エネルギーに逆比例すること以外に明確な規則性は見られない。また、実験値が測定年代と共に収斂するという傾向もない。そのため、中性子入射エネルギーが 20 MeV 以下の全ての実験値を精査し、それらの中から信頼できる参照すべき実験値の選択を行い、それらに基づく新たな断面積の評価を行った。 ^{27}Al の

全断面積や他の反応断面積との調整は行っていないため、核データファイルに格納する場合には再調整が必要となるかもしれない。今回の評価で主に参照した実験値は、D.L. Smith (1975), R.L. Henkel (1954), G. Calvi (1962), M. Furuta (2008), R. Bass (1966), W. Enz (1985), W. Mannhart (2007), Yu.A. Nemilov (1974), Y. Ikeda (1993), K. Kudo (1988), A. Fessler (2000) によるものである。太字で示した 2000 年以降の新しい実験値は 3 つのみであり、新たな測定が殆ど行われていない現状を表している。

最新の評価済核データファイル J40 と B80、IRDFF-II と新たな評価の $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積の評価値と実験値の比較図を図-4 に示す。図中で赤色の実線が J40、青色の実線が B80、緑色の破線が IRDFF-II、水色の実線が今回の新たな評価 (new-evaluation) を示す。丸や四角などの記号は実験値を示し、白抜き記号は 1 つのグラフ中に実験値が 1 個または 2 個だけのものを表し (10~13 MeV グラフ中の J.M. Ferguson の実験値だけは考慮対象から外したことを明示するため白抜きで表示)、塗り潰した記号は実験値が複数あることを表す。大きく外れた実験値は図が見難くなるため図中に表示していない。

図-4 の中性子入射エネルギーが 4~6 MeV のグラフから以下のことがわかる：J40 が 4, 5, 6 MeV の実験値の平均を直線で結んだものであり、B80 が D.L. Smith, R.L. Henkel と G. Calvi の実験値を平均化して階段状の分布にしたもの、IRDFF-II が D.L. Smith の実験値を完全にトレースした微細構造で表現したもの、新たな評価が M. Furuta の実験値に基づくものである。D.L. Smith と R.L. Henkel の実験値は大体一致し、M. Furuta と G. Calvi の実験値は近接しているが、D.L. Smith と M. Furuta 間には一部に違いが見られる。

図-4 の 6~8 MeV のグラフから以下のことがわかる：J40 が R. Bass の実験値を平滑化して J.A. Grundl の実験値に合わせたもの、B80 が D.L. Smith の実験値を直線で結んだもの、IRDFF-II が R. Bass の実験値に基づく共鳴の微細構造を D.L. Smith の実験値で規格化し直したもの、新たな評価が W. Enz の実験値をベースに R. Bass のピーク値を考慮したものである。R. Bass と D.L. Smith の実験値間には約 20% の系統的な違いが見られ、D.L. Smith の方が低い。

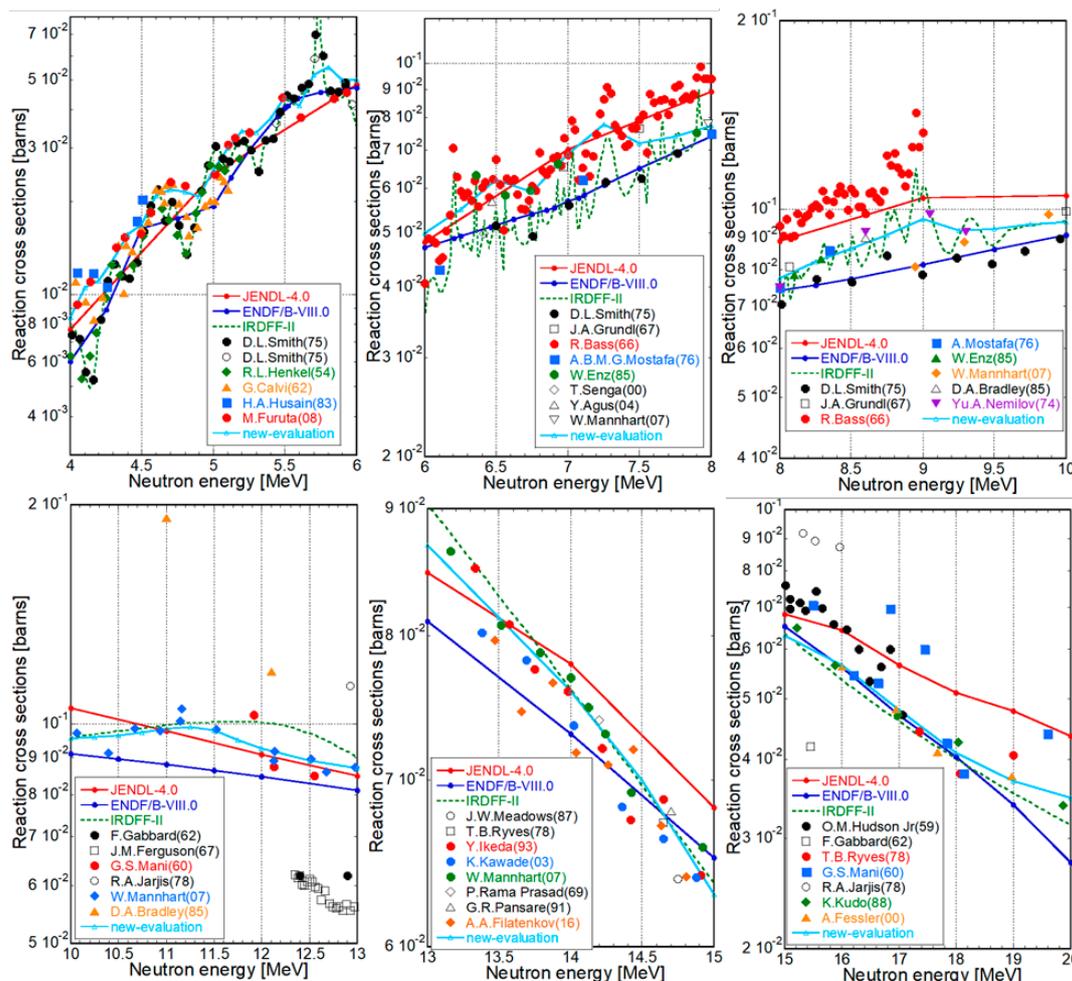


図-4 $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積の実験値と主な評価値の比較図

図-4の8~10 MeVのグラフから以下のことがわかる：J40がR. Bassの実験値の下限に合わせたもの、B80がD.L. Smithの実験値を直線で結んだもの、IRDFF-IIがR. Bassの共鳴の微細構造を約20%下げたもの、新たな評価がW. Enz, Yu.A. NemilovとW. Mannhartの実験値をベースに直線で結んだものである。R. BassとD.L. Smithの実験値間には約30%の系統的な違いがある。

図-4の10~13 MeVのグラフから以下のことがわかる：J40とB80が12.5 MeVのG.S. Maniの実験値を考慮した直線、IRDFF-IIが11.5 MeV以下のW. Mannhartと11.9 MeVのG.S. Maniの実験値を考慮したもの、新たな評価がW. Mannhartの実験値をベースに直線で結んだものである。

図-4の13~15 MeVのグラフから以下のことがわかる：J40がJ.E. Strain (1965)とJ. Csikai (1963)の実験値を考慮した直線、B80がT.B. Ryvesの実験値を考慮した直線、IRDFF-IIと新たな評価がY. IkedaとW. Mannhartの実験値をベースにした直線である。

図-4の15~20 MeVのグラフから以下のことがわかる：J40がO.M. Hudson Jrの実験値を考慮した直線、B80がK. KudoとT.B. Ryvesの実験値を考慮した直線、IRDFF-IIがK. Kudoの実験値を考慮した直線、新たな評価がK. KudoとA. Fesslerの実験値を考慮した直線である。

図-4全体から6 MeV以上でJ40とB80は5~20%離れた平行関係にあり、B80とIRDFF-IIは10~14 MeVにおけるIRDFF-IIの過大評価傾向を除いて大体一致しており、新たな評価は7 MeVまで高めの評価であるがそれ以上ではJ40とB80の間に位置している。

4. 反応率の比較

$^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積の評価の違いが実際の中性子場の反応率にどのように現れるのかを調べるために、北海道大学45MVライナック施設で実施された銅とタングステンターゲットに18, 28と38 MeV電子を照射して生成する光中性子の角度分布

測定実験⁷⁾の結果と比較した。実験解析で使用した輸送計算コードは3次元モンテカルロ計算コードMCNP5⁸⁾、断面積ライブラリは電子・光子カスケード反応のEL3⁹⁾、光子相互作用のMCPLIB84⁹⁾、中性子反応のFSXLIB-J40¹⁰⁾、光核反応のLA150⁹⁾である。 $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応率の測定は、高純度のAl箔(直径1.0 cmと厚さ0.2 cm)を放射化箔検出器として用いて行われた。光中性子の角度分布は、等方的であり顕著な分布傾向はない。しかし、実験で使用したAl箔自体での制動放射線による光核反応で光中性子が生成するため極前方方向の実験値は0度をピークとして急激に増加する。そのため極前方方向の実験値を除外し、10~120度(10, 30, 45, 60, 90, 120度)の実験値を比較対象とした。

MCNP5計算の点検出器で得られた各角度の中性子束に4種類の $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積を掛けて求めた $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応率と実験値の比較図を図-5に示す。 $^{27}\text{Al}(n,p)$ 反応断面積は、J40(青の実線)、B80(緑の点線)、IRDFF-II(黒の破線)と新たな評価(赤の一点鎖線)に基づく4種類を使用した。

図-5の黒丸で示した実験値は、同一条件での再現実験を行ったため30と90度に2つ存在するものがある。再現実験に基づく反応率の実験誤差は10~30%である。38 MeV電子照射の10度の実験値は、Al箔自体での光核反応による影響が現れており高い反応率となっている。全体として電子の入射エネルギーが高い方が実験と計算の一致度が良くなり、18 MeVの計算値は実験値に対して40~70%の過小評価、28 MeVの計算値は実験値に対して20~40%の過小評価、38 MeVの計算値は概ね10~20%以内で一致している。28 MeV以下の計算値は実験値を確実に過小評価しているため、実際の遮蔽計算では高速中性子の過小評価に注意する必要がある。この過小評価の原因としては、20 MeV以下の光子入射エネルギーで光核反応により生成する光中性子のエネルギースペクトルが考えられる。光核反応ファイルで与えられた光中性子のスペクトルにおいて、非弾性散乱過程による4 MeV以上の成分が過小評価であることを意味する¹¹⁾。LA150の銅とタングステンの光中性子生成断面積には、過小評価の原因とな

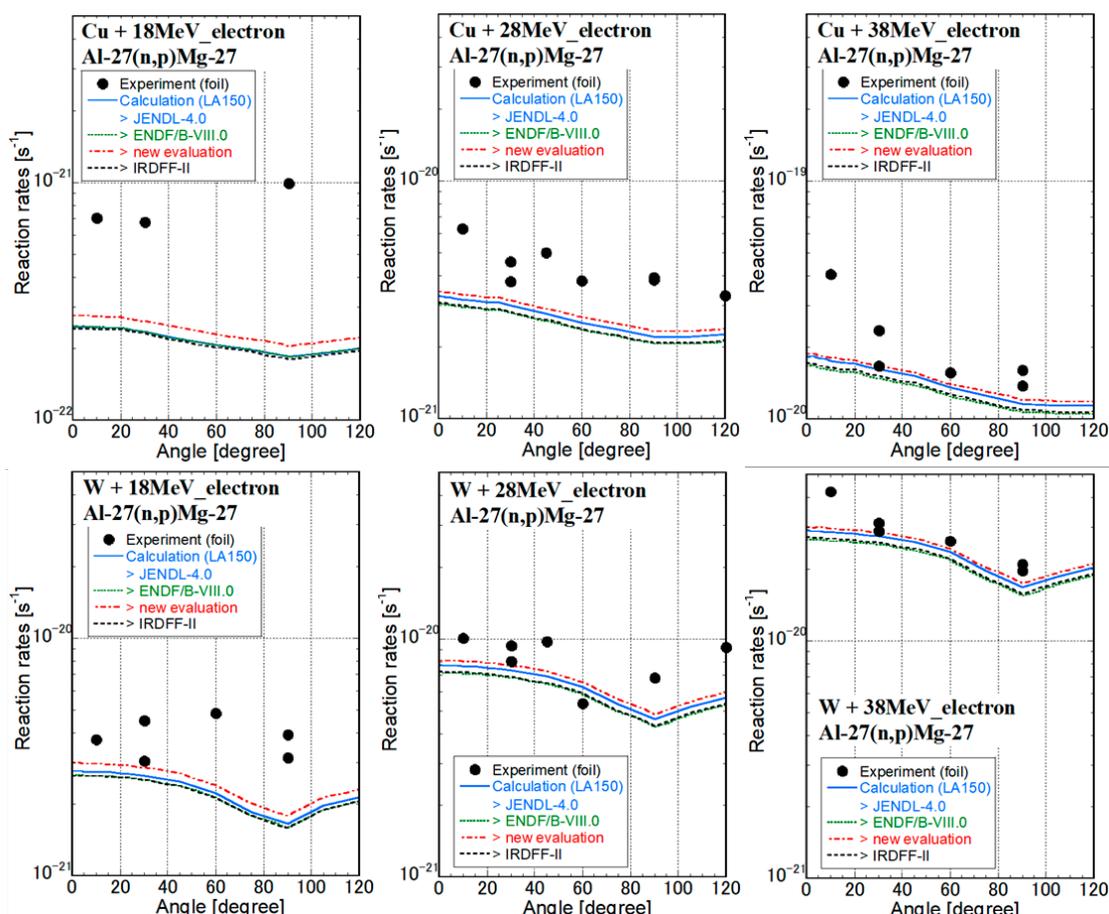


図-5 18, 28 と 38 MeV 電子を照射した銅とタングステンターゲットで生成した光中性子による $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応率の角度分布の実験値と4種類の反応断面積を用いた計算値の比較図

る問題はない¹¹⁾。

図-5の4種類の $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積による反応率の計算値は、銅とタングステン共に10~15%の範囲内で一致している。4種類の中では新たな評価が最も高い反応率を与えており、B80とIRDF-IIが最も低い反応率となる。B80とIRDF-IIが低くなる理由は、反応断面積の4~4.5 MeVと6~8 MeVにおける過小評価のためと考えられる。J40は、18 MeV電子照射ではB80とIRDF-IIと共に反応率の低いグループを形成しているが、28 MeVでは中間、38 MeVでは新たな評価の高いグループに移る。これはJ40の反応断面積の6~10 MeVにおける過大評価のためと考えられる。これらの結果から、新たな評価は、10%の違いではあるが $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応率の実験値に最も近い結果が得られることがわかった。また、実験誤差が10~30%あることを考慮すると、J40、B80とIRDF-IIのいずれの反応断面積を使用しても妥当な結果が得られることがわかった。

2~16 MeVの高速中性子束に関するAl箔を用いた $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応率の放射化箔測定の実験解析において、新たな評価を使用することで10%以内の計算精度で高速中性子束を評価できる見通しが得られた。

5. まとめ

中性子の高速成分に関する情報を実験により得る必要がある場合、最も容易で信頼できる方法はAl箔を用いた $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応率の測定である。輸送計算により得られた中性子束と $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積の積から導出される反応率を実験値と比較することで高速中性子束の計算精度が検討できる。この計算のために不可欠な $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積は、評価済核データファイルに基づくが20年以上に渡り見直しや再評価がなされていない。そのため、EXFORの実験値を精査し、その中から信頼できるデータに基づく新たな評価を実施し、精度の高い $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応断面積を得た。

銅とタングステンターゲットに電子を照射して生成する光中性子による $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$ 反応率の角度分布測定実験を新たな評価値を用いて解析し、従来の評価値よりも実験値との一致度が10%程度改善することを確認した。

<参考文献>

- 1) IAEA, Nuclear Data Services: "Experimental Nuclear Reaction Data (EXFOR)", <https://www-nds.iaea.org/exfor/> (Oct. 22, 2020).
- 2) K. Shibata, O. Iwamoto, T. Nakagawa, et al.: "JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering," J. Nucl. Sci. Technol., Vol.48, No.1, pp.1-30, 2011.
- 3) D.A. Brown, M.B. Chadwick, R. Capote, et al.: "ENDF/B-VIII.0: The 8th Major Release of the Nuclear Reaction Data Library with CIELO-project Cross Sections, New Standards and Thermal Scattering Data," Nuclear Data Sheets, Vol.148, No.2, pp.1-142, 2018.
- 4) K. Kobayashi, T. Iguchi, S. Iwasaki, et al.: "JENDL Dosimetry File 99," JAERI 1344, 2002.
- 5) N.P. Kocherov and P.K. McLaughlin: "The International Reactor Dosimetry File (IRDF-90 Version 2)," IAEA-NDS-141, Rev. 2, 1993.
- 6) A. Trkov, P.J. Griffin, S.P. Simakov, et al.: "IRDF-II: A New Neutron Metrology Library," Special issue of Nuclear Data Sheets, Vol.163, pp.1-108, 2020.
- 7) K. Kosako, K. Oishi, T. Nakamura, et al.: "Angular Distribution of Photoneutrons from Copper and Tungsten Targets Bombarded by 18, 28, and 38 MeV Electrons," J. Nucl. Sci. And Technol., Vol.48, No.2, pp.227-236, 2011.
- 8) X-5 Monte Carlo Team: "MCNP – A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5," LA-UR-03-1987, 2003.
- 9) RSICC: "Data Libraries for MCNP5," CCC-710/MCNP, Oak Ridge National Laboratory, 2003.
- 10) K. Okumura: "Nuclear Data for Prediction of Isotope Generation and Depletion," JAEA-Conf 2012-001, pp.39-44, 2012.
- 11) 小迫和明, 中村尚司: "医療用リニアック室の遮蔽計算に使用する光核反応ファイルの比較", 日本原子力学会和文論文誌に投稿 (2021年3月号掲載予定)