

鉛 - ビスマス冷却材と keV 中性子捕獲断面積

α 放射核 ^{210}Po と $^{210\text{m}}\text{Bi}$ の生成量評価のために

東京工業大学
原子炉工学研究所
井頭 政之
iga@nr.titech.ac.jp

1. 鉛 - ビスマス冷却材中での ^{210}Po と $^{210\text{m}}\text{Bi}$ の生成

鉛 - ビスマス合金 (以後 Pb-Bi と略す。代表的混合比: Pb:Bi=44.5:55.5) はナトリウムと比較して化学的に不活性であり、沸点が高く (1670) 中性子減速効果が小さい、等の長所のため高速炉の冷却材及び核破砕反応中性子源ターゲットとして研究が行われている。しかし、密度が大きい (10.5 g/cm³) ^{209}Bi の中性子捕獲によって α 放射核である ^{210}Po (半減期: 約 140 日) が生成される、等の欠点もあり、特に ^{210}Po 生成は重要な問題点の一つである。

図 1 に示す様に ^{210}Po は、 $^{209}\text{Bi}(n,\gamma)^{210\text{g}}\text{Bi}(\beta^-)^{210}\text{Po}$ の中性子捕獲反応及び β 崩壊で生成される。高速炉において中性子束 10^{15} n/cm²/s、 $^{209}\text{Bi}(n,\gamma)^{210\text{g}}\text{Bi}$ 反応断面積 1 mb、Pb-Bi 冷却材の炉心内滞在時間比 0.01、を仮定すると、冷却材中の ^{210}Po の飽和比放射能は 10 MBq/g にも達する。冷却材流出事故時等では ^{210}Po は Pb-Bi 冷却材中に安定に留まらず、冷却材外部に出てくると考えられる。従って Pb-Bi 冷却材を用いた高速炉の安全性評価において、Pb-Bi 冷却材から放出される ^{210}Po の量を精度良く評価する必要がある。このためには Pb-Bi 冷却材中の ^{210}Po 生成量の精度良い評価が重要であり、その生成量評価のためには keV 中性子領域における精度良い $^{209}\text{Bi}(n,\gamma)^{210\text{g}}\text{Bi}$ 反応断面積データが必要となる。

また図 1 から分かるように、 $^{209}\text{Bi}(n,\gamma)^{210\text{m}}\text{Bi}$ 反応によって非常に長寿命 (半減期: 約 300 万年) の α 放射核である $^{210\text{m}}\text{Bi}$ (第 2 励起準位) が生成される。長寿命のため、 $^{210\text{m}}\text{Bi}$ は Pb-Bi 冷却材中に原子炉の運転時間に比例して蓄積され、 $^{209}\text{Bi}(n,\gamma)^{210\text{m}}\text{Bi}$ 反応断面積 1 mb を仮定すると、50 年間の運転で $^{210\text{m}}\text{Bi}$ の比放射能は 100 Bq/g に達する。この値は我が国の法令で定められている放射性物質の比放射能の下限 74 Bq/g を上まわっている。即ち、使用済みの Pb-Bi 冷却材の処理・処分の際に問題が生じる可能性がある。従って、

$^{209}\text{Bi}(n,\gamma)^{210\text{m}}\text{Bi}$ 反応断面積データも重要となる。

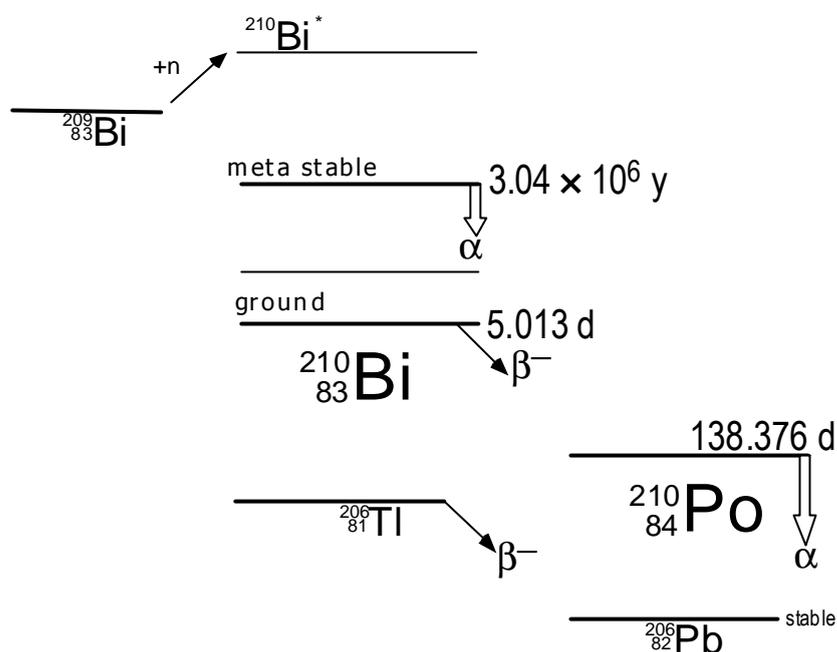


図 1. ^{209}Bi の中性子捕獲反応、引き続き β 崩壊並びに α 崩壊に関連する核種の主なレベルスキーム。

2. 評価データの現状

(1) 全捕獲断面積

全捕獲断面積、即ち $^{209}\text{Bi}(n,\gamma)^{210\text{g+m}}\text{Bi}$ 反応断面積は JENDL-3.2 と ENDF/B-VI に格納されている。keV 領域においては、双方ともに ORNL の ORELA を用いた Macklin 等の測定値[1]を基に評価を行っているので、格納されている断面積の値に大差は無い。

Macklin 等は E_n 70 keV の領域において実験的に分離された共鳴に対して共鳴パラメータを与えており、また、25 keV E_n 900 keV の領域において「分離されなかった共鳴による捕獲断面積」を表に与えている。従って、Macklin 等の測定結果を評価に採用するのならば、分離共鳴領域においては、共鳴パラメータの他に Macklin 等の与えた「分離されなかった共鳴による捕獲断面積」をバックグランド断面積として採用すべきである。しかし JENDL-3.2 及び ENDF/B-VI とともに Macklin 等の共鳴パラメータを採用しているにもかかわらず、Macklin 等のバックグランド断面積を採用していない。後で詳しく述べるが、25 keV E_n 70 keV の領域では、Macklin 等のバックグランド捕獲断面積は分離共鳴による捕獲断面積よりも約 5 倍も大きい。

以上のことから、もしも Macklin 等のバックグランド捕獲断面積が正しいものならば、

JENDL-3.2 及び ENDF/B- では ^{209}Bi の全捕獲断面積を約 1/5 に過小評価していることになる。

(2) ^{210}Po 及び $^{210\text{m}}\text{Bi}$ 生成断面積

^{210}Po 及び $^{210\text{m}}\text{Bi}$ 生成断面積、即ち $^{209}\text{Bi}(n,\gamma)^{210\text{g}}\text{Bi}$ 及び $^{209}\text{Bi}(n,\gamma)^{210\text{m}}\text{Bi}$ 反応断面積は JENDL 放射化断面積ファイルに格納されている。keV ~ MeV 領域では統計模型による計算によって評価を行っており、両方の断面積の和、即ち全捕獲断面積の計算結果が Macklin 等の測定値及び 0.5 ~ 3MeV 領域の Voignier 等の測定値[2]をほぼ再現する様に規格化している。Macklin 等の測定値としては上で述べたバックグラウンド断面積も考慮に入れたものを採用しているため、JENDL 放射化断面積ファイルの $^{210\text{g}}\text{Bi}$ 及び $^{210\text{m}}\text{Bi}$ 生成断面積の和から求めた全捕獲断面積は、JENDL-3.2 のそれと比べて $E_n=10 \sim 100$ keV の領域では数倍大きな値となっている。

keV 領域の測定値としては、24 keV における Booth 等の $^{209}\text{Bi}(n,\gamma)^{210\text{g}}\text{Bi}$ 反応断面積の結果 (1.8 ± 0.7 mb) [3]があるのみで、JENDL 放射化断面積ファイルの評価値の約 1/5 の値である。もしも Booth 等の測定値が正しいならば、JENDL 放射化断面積ファイルの評価値を用いて高速炉の Pb-Bi 冷却材中の ^{210}Po 生成量を評価すると、数倍も過大評価するものと考えられる。

3 . 最近の測定との比較

以上の様な状況から我々は、全捕獲断面積及び ^{210}Po 生成断面積の測定を現在行っている[4]。尚、 $^{210\text{m}}\text{Bi}$ 生成断面積は、両者の断面積の差から得られる。

中性子源としては東工大原子炉研の 3UH-HC ペレトロン加速器から得られる 1.5 ns パルス陽子ビームによる $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ 反応中性子を用い、 $^{209}\text{Bi}(n,\gamma)^{210\text{g+m}}\text{Bi}$ 反応断面積測定には「即発ガンマ線測定法」、 $^{209}\text{Bi}(n,\gamma)^{210\text{g}}\text{Bi}$ 反応断面積測定には「放射化法」を用いている。通常、「放射化法」ではパルス化していない中性子で試料を照射するが、今回は幾つかの理由からパルス中性子で照射している。(実験方法の詳細なので、本稿では説明を割愛する。)「即発ガンマ線測定法」では、重遮蔽体付きの大型コンプトン抑止型 NaI(Tl)検出器を用いて捕獲ガンマ線を測定している。「放射化法」では中性子照射で生成した ^{210}Po からの α 線を表面障壁型 Si検出器で測定している。「放射化法」においては、照射された試料からの γ 線を測定するのが普通であるが、 $^{210\text{g}}\text{Bi}(\beta^-)^{210}\text{Po}(\alpha)^{206}\text{Pb}$ の過程で γ 線は放出されないため β か α を測定するしかない。我々は ^{210}Po の挙動にも興味があったので、 ^{210}Po から放出される α 線の測定を選択した。

(1) 全捕獲断面積

全捕獲断面積の我々の結果を、これまでの測定値及び JENDL-3.2 の評価値と比較して

図 2 に示す。30keV 以上では我々の結果の誤差は $\pm 5\%$ 程度なので、誤差棒は大きな印で隠れている。

図から分かるように $E_n < 60$ keV の領域では、我々の結果は最近の Geel の GELINA での Mutti 等の測定値[5]と誤差の範囲内で一致している。Mutti 等と我々とは測定方法が全く異なるので、この一致は両方の測定結果の信頼性が高い事を示していると考えられる。(蛇足ではあるが、我々が Mutti 等の測定結果の存在を知ったのは、我々の $E_n < 60$ keV での結果が出た後である。)

これに対して、我々の $E_n=520$ keV での測定結果は、Voignier 等の $E_n=500$ keV での測定結果及び Macklin 等の 500 keV 付近の測定結果の約 1/2 である。

Voignier 等の実験装置及び測定方法は我々のものと本質的には同じである。違いは実験装置の検出感度、言い換えれば中性子捕獲実験における信号対雑音比(SN比)である。一般に keV 中性子捕獲実験においてはバックグラウンドの評価が難しく、SN比が悪いと評価が困難になる。彼等のバックグラウンド評価を検討するため、我々の測定した捕獲ガンマ線スペクトルを彼等の測定したスペクトルと比較して図 3 に示す。我々の $E_n=520$

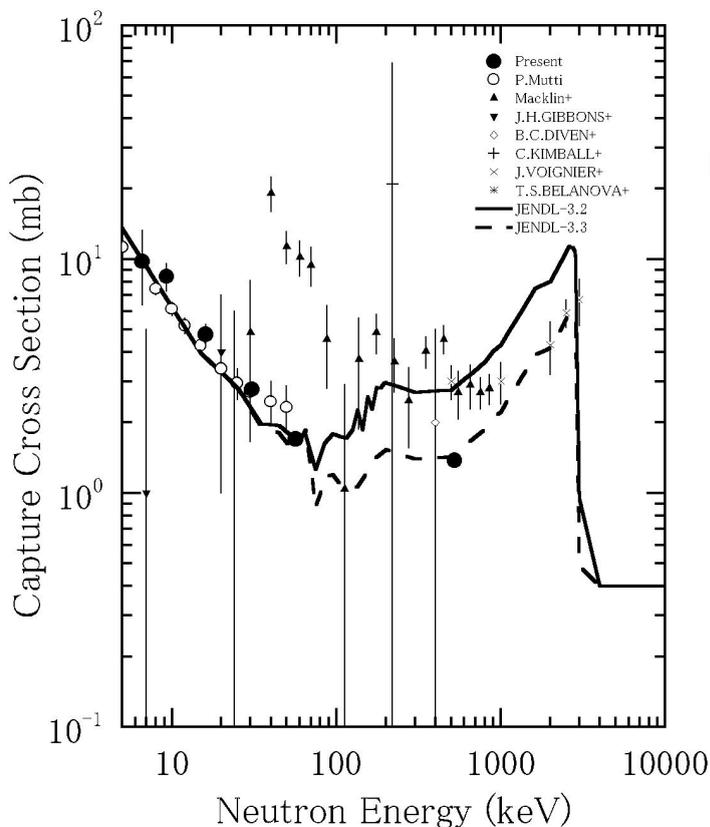


図 2. ^{209}Bi の中性子捕獲断面積の測定値と評価値。JENDL-3.3 では我々の 500 keV の測定値を参考に修正がなされている。

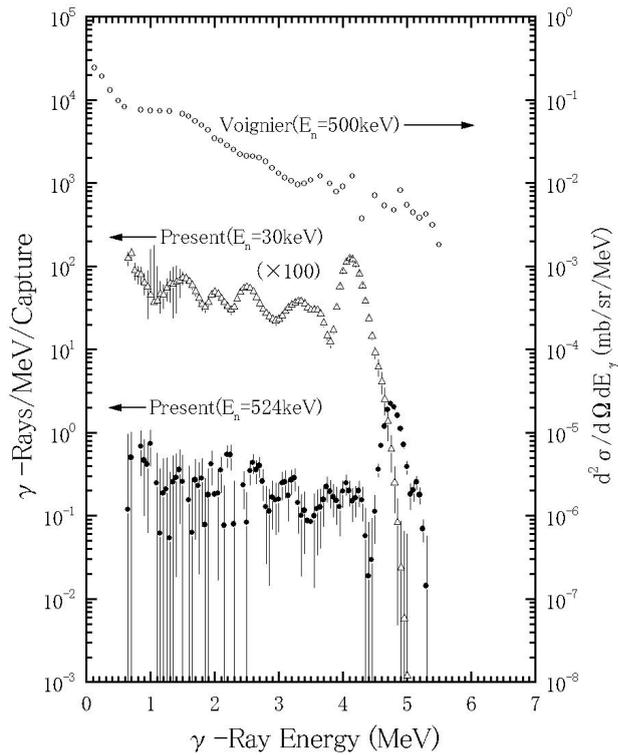


図 3. ^{209}Bi の keV 中性子捕獲 γ 線スペクトル測定値の比較。Voignier 等の測定では SN 比が悪く、4.7MeV 付近のピークが観測されていない。

keV のスペクトルでは、4.7 MeV 付近の非常に強いピークが特徴的である。これは、中性子捕獲状態から ^{210}Bi の励起エネルギー $0.271 \sim 0.669$ MeV 領域の約 10 の準位への 1 次遷移ガンマ線によるものである。従って、 $E_n=30$ keV のスペクトル中では、入射中性子のエネルギー差（中性子捕獲状態のエネルギー差）だけ低い 4.2 MeV 付近にこのピークが現れている。我々のスペクトルと異なって Voignier 等の $E_n=500$ keV のスペクトルでは、高エネルギー領域に強いピークは観測されておらず、また、低エネルギー側が相対的に強いソフトなものとなっている。これは、彼らのバックグラウンドの評価が適切になされなかったことを示している。

図 2 中の Macklin 等の測定値は、「分離されなかった共鳴による捕獲断面積」である。上で述べた様に $E_n = 70$ keV の領域では、この他に分離された共鳴に対して共鳴パラメータを与えている。 $E_n > 70$ keV の領域では分離された共鳴は無いので、図に示した値が全捕獲断面積と考えて良い。Macklin 等の測定方法は Mutti 等のものと本質的には同じであるが、用いた液体シンチレーション検出器が異なる。Macklin 等が C_6F_6 シンチレータを用いたのに対して、Mutti 等は C_6D_6 シンチレータを用いている。 C_6D_6 ガンマ線検出器は C_6F_6 検出器と比較して中性子に対する感度が約 1/10 である。電子線形加速器を用いた中性子捕獲実験では測定用試料によって散乱された中性子に起因するバックグラウンドの評価が難しく、測定に用いるガンマ線検出器の中性子感度によって、測定可能な「(散乱断面積) / (捕獲断面積)」の上限が決まる。 C_6F_6 検出器の場合、この上限値は

約 1,000 と考えられており、 ^{209}Bi の keV 領域の断面積比 (約 5,000) よりもかなり小さい。このことから、Macklin 等の与えた「分離されなかった共鳴による捕獲断面積」の大部分は、試料によって散乱された中性子に起因するバックグラウンドによるものと考えられる。

JENDL-3.2 及び JENDL-3.3 では $E_n = 200$ keV の領域を分離共鳴領域としているので、測定値と比較し易くするため、この領域では適当な平均を行って図 2 に示している。図から分かる様に、JENDL-3.2 の 500keV 付近の評価値は我々の測定値の約 2 倍となっている。これまで述べた事情をシグマ委員会中重核評価 WG リーダーの柴田さんに報告しておいたので、最近公開された JENDL-3.3 の評価値は図に示されている様に修正がなされている。

(2) ^{210}Po 及び $^{210\text{m}}\text{Bi}$ 生成断面積

放射化法による ^{210}Po 生成断面積測定はまだ進行中であり暫定値しか得られていないが、我々の暫定結果を JENDL 放射化断面積ファイルの評価値及び Booth 等の測定値[3]と比較して図 4 に示す。図から分かる様に、 ^{210}Po 生成断面積の暫定結果を JENDL 放射化断面積ファイルの評価値と比較すると、30keV においては約 1/4、500keV においては約 1/2 である。また、 $^{210\text{m}}\text{Bi}$ 生成断面積は図 2 で示した全捕獲断面積 (図 4 中の) から ^{210}Po 生成断面積を引き去ることによって求めているが、評価値より 30~50% 小さい値となっている。尚、24keV における Booth 等の測定値は我々と同じ放射化法によって求めているが、彼らは $^{210\text{g}}\text{Bi}$ からの β 線を測定している。彼らの測定結果は誤差が大きい但我々の測定結果と一致している。

4. おわりに

^{209}Bi の天然存在比が 100% であるにもかかわらず、即ち十分な量の高純度の測定用試料を測定に用いることができたにもかかわらず、断面積が小さいためその中性子捕獲断面積測定が容易でなかったのがこれまでの状況であった。

昨年 2 月末に東工大原子炉研で「Japan-Russia LBE Coolant Workshop」が開催され、筆者も ^{209}Bi の keV 中性子捕獲断面積に関する発表を行った。Workshop での発表 OHP 集[6]が出版されたが、この OHP 集を見た海外研究者から筆者への問い合わせが数件あり少し驚いた。海外でも Pb-Bi 冷却材が注目されていて、ヨーロッパでは IRMM、CEA(Saclay)、及び ILL の共同プロジェクト研究として、2002~2004 年の間に熱 ~ MeV の広いエネルギー領域で ^{209}Bi の中性子捕獲断面積を測る予定だそうだ。

Pb-Bi 冷却材は今「旬」の研究テーマであり、これに関連する核データも「旬」なのかもしれない。核データコミュニティの一員として、このような旬のデータに対しては機を逃さず対応したいと考えている。

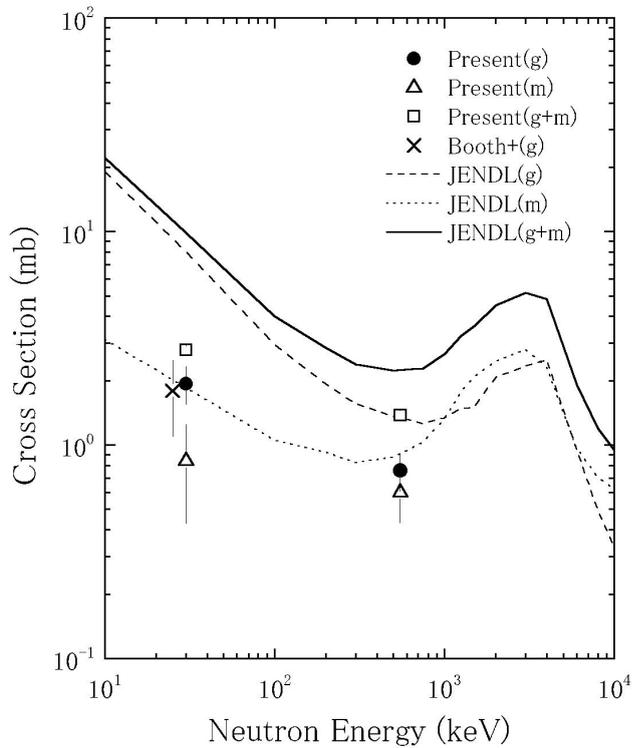


図 4. ^{210}Po 及び $^{210\text{m}}\text{Bi}$ 生成断面
積の比較。評価値は JENDL
放射化断面ファイルの
値。

参考文献

- [1] R. Macklin and J. Halperin, Phys. Rev. C, 14, 1389 (1976).
- [2] J. Voignier et al., Nucl. Sci. Eng., 93, 43 (1986).
- [3] R. Booth et al., Phys. Rev., 112, 226 (1958).
- [4] 川上、他，日本原子力 1999 年秋の大会，C14 (1999);
齋藤、他，日本原子力学会 2001 年春の年会，B30 (2001).
- [5] P. Mutti et al., Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology,
Trieste, Italy, 1997, p.1584 (1997).
- [6] Book of Presentations, Japan-Russia LBE Coolant Workshop, Feb. 22-23, 2001,
Tokyo, Japan (Bull. Research Laboratory for Nuclear Reactors, Special Issue
No.4, 2001)