

放射化学的手法による $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ 反応の励起関数の測定

高宮幸一*

京都大学原子炉実験所

[はじめに]

銅に速中性子を照射した際に起こる反応 $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ は、速中性子線量の見積りに利用することができる。この反応で生成する ^{63}Ni は γ 線を放出せず、低エネルギーの β 線 ($Q_{\beta} = 67 \text{ keV}$) のみを放出して壊変する。このため放射能の測定および定量は容易ではないが、半減期が約 100 年と長いので、原爆により放出された速中性子線量の見積りには非常に有効である。しかし定量的に線量を得るためにはこの反応の励起関数が必要であるが、 ^{63}Ni の定量の困難さゆえに励起関数に関する実験データは少なく、その実験値の誤差および実験値間の相違は大きい^{1, 2)}。そのため統計モデル計算による評価済核データである JENDL-3.3³⁾, ENDF/B-VI⁴⁾, FENDL/A-2.0⁵⁾ による励起関数にも相互に不一致が見られる。そこで原爆から放出される速中性子線量の見積りにあたって、特に影響の大きいエネルギー領域 ($E_n < 7 \text{ MeV}$) での励起関数を詳細に得るために、銅試料に対する速中性子の照射実験を行った。

[実験]

照射実験は東北大学高速中性子実験室(FNL)の 4.5 MV ダイナミトロン加速器を用いて重陽子もしくは陽子を加速し、重水素もしくは三重水素を吸蔵したカドミウム箔に照射し、D(d,n), T(d,n), T(p,n) 反応で生成する速中性子を銅試料に照射して行った。計 7 回の照射実験を行ったが、照射には二種類の方法を用いた。まずひとつの照射実験は、中性子源のまわりに銅板 (20 mm × 20 mm × 1 mm (t)) を配置することにより行った。もうひとつの照射実験では、中空の銅球をその中心が中性子源となるよう配置し、銅球の内側から中性子の照射を行った。銅球の大きさは 1 回目と 2 回目の実験では外径が 60 mm のものを、3 回目の実験では 80 mm のものを、そして 4 回目の実験では 110 mm のものを用い、すべての実験において銅試料の厚さは 3 mm のものを用いた。これらの銅球は中性子源からの立体角が等しくなるようにあらかじめ分割されており、分割された各照射試料は同じ中性子エネルギーで照射される。銅試料には純度の高い無酸素銅を用いた。図 1 にこれらの照射実験における照射試料などの配置を示す。また 7 回の照射実験における照射条件を表 1 に示す。

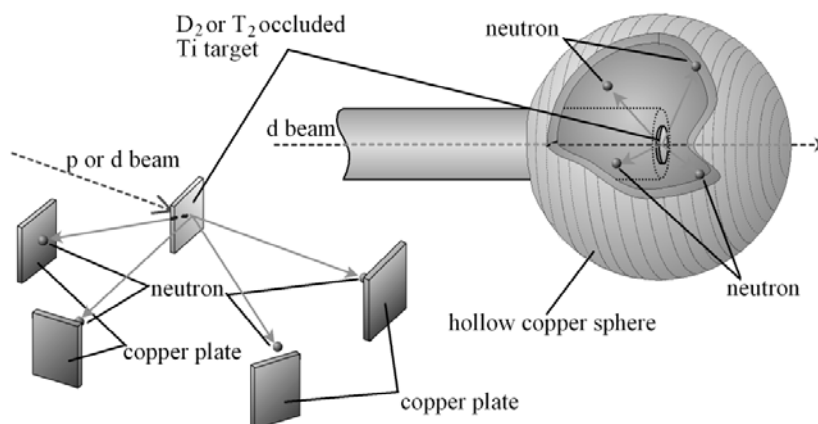


図 1 銅板 (左側) および中空銅球 (右側) を用いた照射実験における中性子源および銅試料の配置。

* TAKAMIYA Koichi, Kyoto University; takamiya@HL.rri.kyoto-u.ac.jp

表 1 銅の照射実験に用いた試料の形状、中性子生成反応、および中性子エネルギー

ID	shape	reaction	E_n (MeV)
1	plate	D(d,n) ³ He	1.8 - 6.46
2	plate	T(d,n) ⁴ He	13.43 - 14.85
3	plate	T(p,n) ³ He	0.35 - 1.55
4	sphere	D(d,n) ³ He	1.88 - 6.73
5	sphere	D(d,n) ³ He	1.75 - 6.58
6	sphere	D(d,n) ³ He	1.75 - 6.58
7	sphere	D(d,n) ³ He	1.77 - 6.48

銅試料に照射される中性子のエネルギーは、加速器からのビームに対して 0°方向に放出される中性子のエネルギーをプラスチックシンチレーションカウンターを用いた飛行時間測定法により求め、その値をもとに幾何学的な計算により各銅試料に照射された中性子エネルギーを見積もった。また照射を行ったすべての銅試料の内側と外側には Ni 箔(5 mm × 5 mm × 1 mm (t))を中性子モニターとして貼付し、⁵⁸Ni(n,p)⁵⁸Co で生成する ⁵⁸Co を定量することにより、照射した中性子線束を見積もった。中空の銅を用いた照射では、銅試料中の位置に依存せず中性子線束が均一であることを確認するために、Ni 箔を 4 箇所貼ることにより一試料あたり 8 箇所での中性子モニターを行った。ただし 7 回目の銅球を用いた照射実験では、飛行時間測定によって D(d,n)により放出される中性子以外に ¹²C(d,n)による中性子のスペクトルが観測されたので、Ni モニターによる中性子線束の見積もりの際に ¹²C(d,n)の寄与を計算によって見積もることで、D(d,n)反応による中性子の線束を得た。

照射後、試料中に生成した ⁶³Ni を定量するために、化学分離により銅試料から Ni 成分を単離した。化学分離の手順は以下のとおりである。1) 混酸(HNO₃:H₂SO₄:H₂O = 3:4:16)に銅試料を溶解し、Ni 1 mg と Co 5 mg をキャリアとして加えた。2) 無酸素銅板を陰極、白金線を陽極として、3 V の定電圧で溶液を電気分解した。これによって溶液中のほとんどの銅を銅板へと析出させた。3) 溶液に水酸化ナトリウムを加えることで溶液をアルカリ性とし、Cu, Ni, および Co を水酸化物として沈殿させ、ろ過により沈殿を回収した。4) 沈殿を温水で洗浄した後に 6 N HCl に溶解し、陰イオン交換樹脂 DOWEX 1X8 (100 – 200 mesh)に着点し、9 N, 4 N, および 0.1 N の HCl でそれぞれ Ni, Co, および Cu を分離、溶出した。5) Ni 溶液を一旦蒸発乾固した後に少量の 1 N HCl に溶解し、25% NH₄OH を加え pH 8 に調製した。これにジメチルグリオキシム/エタノール溶液(0.5 g/50 mL)を加えることにより生成した Ni 錯体をクロロホルムによって抽出し、さらに 1 N HCl で逆抽出を行うことで Ni を精製した。6) Ni 溶液に濃硝酸を加えて加熱することにより溶液中の有機物などの不純物を除去し、最終的に塩酸溶液として Ni を調製した。Ni フラクシオンと Co フラクシオンから一部を分取し、ICP-AES によりその濃度を測定し、化学収率を求めた。どちらの化学収率もほとんどの試料について 60 – 100%であったが、特に収率の低いものについては最終的に反応断面積のデータから省いた。Co フラクシオン中には ⁶³Ni(n,α)⁶⁰Co によって生成した ⁶⁰Co が存在するので、Ge 半導体検出器を用いた γ 線スペクトロメトリを行うことで放射能を測定し、化学収率を考慮して照射によって生成した ⁶⁰Co を定量した。

⁶³Ni の β 線測定は、東京大学アイソトープ総合センターにおいて低バックグラウンド液体シンチレーションカウンター(PACKARD: TRI-CARB-2770 TR/SL)を用いて行った。β 線測定のための液体シ

ンチレーターカクテルは、試料の塩酸溶液を蒸発乾固し 1 mL の水で希釈し、5 mL の液体シンチレーター(clearsol-I)を加え攪拌することで調製した。また各試料の測定条件(Ni 濃度)でのクエンチング効果を見積もるために、さまざまな濃度の Ni 溶液に ^{63}Ni 標準溶液を添加した溶液を調製し、前述の液体シンチレーターカクテルと同様の方法でカクテルを調製し β 線の測定を行った。クエンチング効果を含んだ検出効率は 50 – 60%程度であった。

[結果]

液体シンチレーションカウンターによる β 線測定で得られたスペクトル、クエンチング効果を含むその検出効率、Ni モニターの測定により得られた中性子束、および ICP-AES での測定により得られた化学収率から各試料における ^{63}Ni の存在量を見積もり、照射終了時からの核壊変の補正を行うことで各照射エネルギーに対する $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ の反応断面積を求めた。すべての実験から得られた $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ の励起関数を図 2 に示す。銅板を用いた照射実験の結果を四角で、中空の銅球を用いた照射実験の結果を丸で示している。また実線、破線、および一点鎖線はそれぞれ JENDL-3.3、ENDF/B-VI、および FENDL/A-2.0 による計算結果を示している。それぞれのデータにおける横軸方向の誤差棒は、銅試料に照射された中性子エネルギーの範囲を示している。

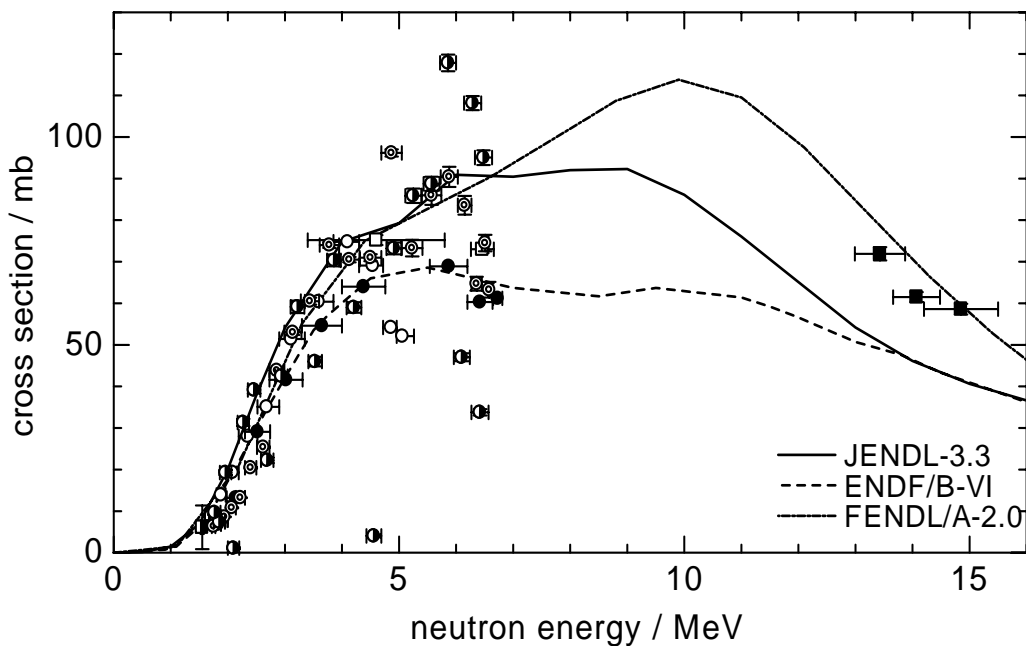


図 2 すべての実験により得られた $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ の励起関数。四角が銅板を用いた照射実験の、丸が中空の銅球を用いた照射実験の結果を示す。線は統計モデル計算による励起関数を示す。

[考察]

図 2 の励起関数測定の結果をみると、各照射実験において中性子エネルギーが比較的低い領域($E_n < 5$ MeV)では再現性の高い結果が得られた。しかしエネルギーの高い領域(5 – 7 MeV)ではデータ間の差異が大きく、すべての実験において中性子エネルギーが高くなるにつれて反応断面積の値が大きくなり、照射した中性子の最大エネルギーが近づく値が小さくなる傾向が見られることがわかった。この傾向は、照射の際に中性子源と銅試料の設置位置が本来の位置と異なる場合に、照射される中性子

エネルギーが計算値と実際の照射実験とで異なること、もしくは中性子の照射の際に銅試料により散乱された低エネルギーの中性子と銅試料との反応に起因するものではないかと推測し考察を行った。

まず、照射を行った銅試料の位置が銅試料の本来の位置と異なる場合に、実験結果にどの程度影響を与えるかを計算により見積もった。例として照射する中性子の最大エネルギーが 6.5 MeV であり、外径 80 mm の中空の銅球を用いた照射実験において、試料の位置がビーム軸方向に 2 mm 上流側もしくは下流側に移動していた場合に得られる反応断面積の値と、正しい反応断面積の値の比を図 3 に示す。この結果から、わずかな試料位置の差が、実験によって得られる反応断面積の値に大きな影響を与え、照射するエネルギー領域の最大値と最小値の付近で差異が最も大きくなることがわかった。このような傾向は試料の照射位置を、ビーム軸に垂直な方向へ移動させて計算した結果でも同様に現れるので、本実験のような試料配置では照射エネルギーの高い領域と低い領域で誤った断面積が観測される可能性もあることがわかった。また、銅試料による中性子の散乱の影響をモンテカルロ法によって計算したが、散乱中性子との反応の結果生じる ^{63}Ni は非常に微量であり、反応断面積の測定には影響しないことがわかった。

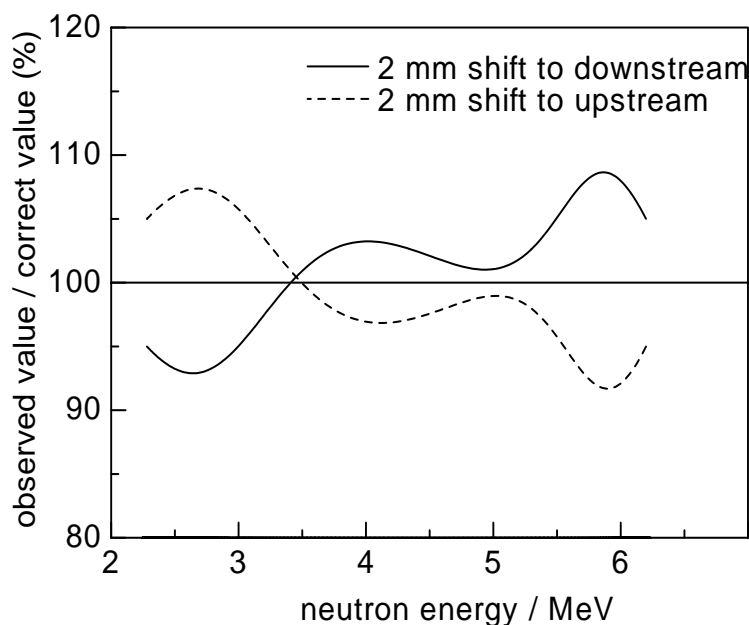


図 3 照射する銅試料の位置が本来の位置からビーム軸方向に 2 mm 移動した際に観測される反応断面積と本来得られる反応断面積の比。

そこでこれまでの実験で得られた反応断面積の値のうち、照射実験に用いた中性子エネルギーの高い領域と低い領域のデータ、および前述した低い化学収率でのデータなどを削除し、信頼性の高いデータのみを抽出した。この結果得られた励起関数を図 4 に示す。図中の は Tsabaris らの実験結果を、

は Qaim らの実験結果を示す。本実験の結果を統計モデル計算の結果と比較すると、中性子エネルギーが 4 MeV より大きい領域においては、ENDF/B-VI よりも JENDL-3.3 および FENDL/A-2.0 に近い傾向がみられた。4 MeV より小さいエネルギー領域においては、JENDL-3.3 の値が本実験の結果に最も近いことがわかった。しかし、原爆から放出される速中性子線量の見積もりに大きな影響を与える低エネルギー領域の中性子に対する反応断面積の値は、どの統計モデル計算の結果を用いても実験値との大きな差異はないことが明らかとなった。

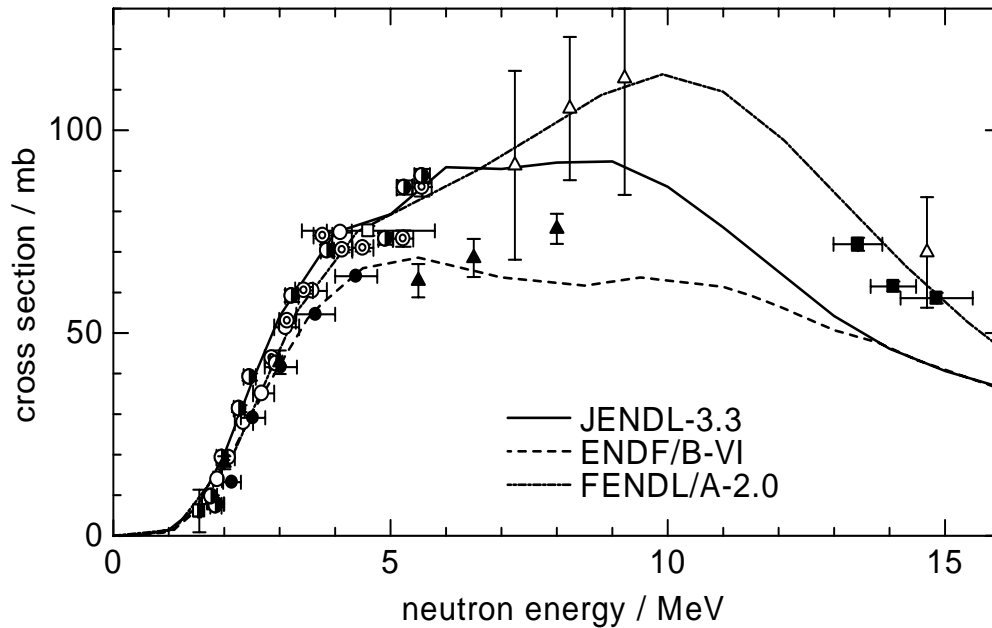


図4 不確実と考えられるデータを削除した $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ の励起関数 .
 は Tsabaris らの実験結果を、 は Qaim らの実験結果を示す .

[まとめ]

二種類の照射方法による計 7 回の銅試料の中性子照射実験を行い、 $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ の反応断面積について多くの実験データを得た。これらのデータをもとに実験値の妥当性の検討を行い、 $E_n < 6$ MeV および $E_n \sim 14$ MeV のエネルギー領域において $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ 反応の詳細な励起関数を得た。得られた実験結果は、原爆から放出される速中性子線量の見積もりに大きく影響するエネルギー領域において、JENDL-3.3 や ENDF/B-VI などの統計モデル計算による励起関数と大きな差異はなく、ENDF/B-VI を用いた DS02 における $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ 反応による速中性子線量の検証が妥当であることがわかった。

[参考文献]

1. Tsabaris, C., Wattecamps, E., Rollin, G., and Papadopoulos, C., Nucl. Sci. Eng., 128, 47-60 (1998).
2. Qaim, S. M., Spellerberg, St., Cserpák, F., and Csikai, J., Radiochim. Acta, 73, 111-117 (1996).
3. Shibata, K., Kawano, T., Nakagawa, T., Iwamoto, O., Katakura, J., Fukahori, T., Chiba, S., Hasegawa, A., Murata, T., Matsunobu, H., Ohsawa, T., Nakajima, Y., Yoshida, T., Zukeran, A., Kawai, M., Baba, M., Ishikawa, M., Asami, T., Watanabe, T., Watanabe, Y., Igashira, M., Yamamuro, N., Kitazawa, H., Yamano, N., and Takano, H., J. Nucl. Sci. Technol., 39(11), 1125-1136 (2002).
4. Cross Section Evaluation Working Group, ENDF/B-VI Summary Document, Report BNL-NCS-17541 (ENDF-201) (1991).
5. Pashchenko, A. B., Wienke, H., Kopecky, J., Sublet, J.-Ch., and Forrest, R. A., "FENDL/A-2.0, Neutron Activation Cross Section Data Library for Fusion Applications," IAEA-NDS-173, Rev. 1 (October 1998).