核データニュース, No.117 (2017)



最終講義

中性子とガンマ線と

東京工業大学 グローバル原子力安全・セキュリティ・エージェント教育院 井頭 政之 <u>iga@nr.titech.ac.jp</u>

1. はじめに

「中性子とガンマ線と」は恩師である山室信弘先生(1922.7.2~2005.9.24)の最終講 義と同じ題目である。いろいろと考えたが、私の研究を振り返るとキーワードは中性子、 ガンマ線、核データ、ペレトロン、ANNRI、etc.なので、結局は同じになった次第であ る。

東京工業大学大学院理工学研究科原子核工学専攻博士課程を2年1ヶ月で中退し(退 学手続きを忘れていて3月末に退学できなかった。)、東京工業大学原子炉工学研究所の 助手になった1978年5月から定年退職した2017年3月までの38年11ヶ月、卒業研究 で山室研究室にお世話になってから44年間の中性子実験人生であった。最終講義の中か ら、主に(?)核データ研究に関連する箇所の要約を以下に述べる。

2. 私の研究教育方針

まず、定量性を常にこころがけた。後で述べるペレトロン加速器を用いた研究の成果 を日本原子力学会で「高精度で捕獲ガンマ線スペクトルが得られた。」と発表した際、京 都大学の木村逸郎先生から「精度は如何ほどか?」との質問を受けた。また、別の機会 に同じく原子力学会で捕獲ガンマ線スペクトルの測定結果を発表した際、東北大学の相 山一典先生が「断面積が欲しいんだよな。」とつぶやかれた。これ以降、可能な限り定量 的結果を引き出して発表することをこころがけた。

学生指導では、「常に予測せよ、観測・計算せよ、結果と予測を比較せよ。」、そして、 「結果と予測が一致していれば双方が正しい確率が高いので次に進め、不一致の場合は 片方あるいは両方が間違っているか、予測できなかった大発見である。」と常々言ってきた。また、「ケーブルは命である、踏んだりすることは論外である。」と注意を喚起した。 さらに、「我々の研究室での研究内容は卒業してからの実社会では役に立たないので、研 究を通して Logical Thinking と Critical Thinking を身につけるように。」と指導した。

3. ペレトロン加速器との格闘(最終講義よりも詳しく)

助手になってから 1980 年 1 月頃までの約 1 年半は、新規導入された 3UH-HC 型ペレ トロン加速器(シングルエンド型でターミナル最高電圧 3MV)と大いに格闘した。陽子 加速に対する仕様は直流ビームで 45µA、繰り返し 2MHz のパルスビームではパルス幅 2ns、ピーク電流 1mA である。高電圧ターミナルに搭載しているビームパルス化用の電 源類は当時珍しく全てトランジスター化されていた。中性子実験を行うためには是非と もパルス化に成功する必要があるが、このために格闘したのである。

東工大における重要な中性子実験装置の一つであるペレトロン加速器であるが、あま り興味の湧かない方には本章を読み飛ばすことをお勧めする。

3.1 イオン源

イオン源はデュオプラズマトロン・イオン源である。私が助手になる頃、水素ガスを イオン源に入れて直流で加速すると加速管出口から約4mの直線コースで100μAの電流 を得られるのに対して、それを分析マグネットで曲げてH⁺ビームを取り出すと10μA以 下となる。パルスビームの仕様を満たすためには直流で100μA相当以上の陽子電流が必 要で、全く陽子ビーム電流が足らない。プロトン比(H⁺/(H⁺+H₂⁺+H₃⁺))あるいはビーム・ オプティクスが悪すぎるのか、大問題であった。まず、この問題を解決する必要があっ た。

一方、当時、ペレトロンの圧力タンクを開けた状態(すなわち大気中)では加速管出 ロ付近の真空は約3×10⁻⁶Pa(当初からターボポンプとチタンゲッター・イオンポンプを 使用しており高真空を得ていた。)であったが、タンクを閉めて SF₆ 電気絶縁ガスを 0.3MPa 程度充填すると真空は約1×10⁻⁵Pa に悪化した。加速器のタンク内部分の真空漏 れであり、これもいずれ解決する必要があり、タンクを開ける度に真空漏れ箇所を探し ていたが見つかっていなかった。

加速管出口から 4m 付近(分析マグネット入り口付近)と分析マグネット出口付近に 設置してあるビームプロファイル・モニターで観測したビーム形状はさほど悪くはない。 このことから、加速されている粒子は陽子以外が殆どであると判断し、分析マグネット の電流を増加させて分析マグネット出口付近のビームプロファイル・モニターと左右一 対のスリットの電流値でビームを観測した。その結果、SF₆⁺, SF₅⁺, SF₄⁺, SF₃⁺, etc.のビー ムが大量に観測された。イオン源に SF₆ガスが漏れ込んでいるのである。この真空漏れ を止めなければ先に進まない。

ヘリウムリークディテクターでイオン源の真空ガスケット部分とフィードスルー部分 の漏れを丁寧に探しても見つからない。リークディテクターを設置できる箇所がイオン 源から遠く、また、漏れが小さすぎるためである。しかたなく、イオン源を分解して、 アルミニウム・ワイヤー製の真空ガスケットを取り付けているフランジ面の状態と フィードスルー部分を丁寧に観測した。すると、フィラメント用フィードスルーの真空 側1箇所の根本付近が微妙に紫色に着色していた。ほんの僅かな着色である。SF₆ガス の漏れが原因かもしれないので、大気側からバックシール(真空漏れ止め液)を塗り、 イオン源を組み立ててタンクを閉めて SF₆を充填した。真空漏れが無くなった。

SF₆ガスの漏れがなくなるとイオン源の動作状態が全く変わり、水素ガスによるイオン源の安定な点火もままならない状態になった。次に進むには徹底的なイオン源動作試験が必須であるが、イオン源用のテストベンチは無い。ペレトロンに取り付けてイオン源の試験を行う必要がある。ペレトロンを使用するグループは我々の中性子グループと原子衝突グループであり、原子衝突グループはスパッターイオン源を用いていた。このスパッターイオン源は仕様を満たす性能は発揮していなかったが、原子衝突実験を何とか行うことができる状況であった。そこで、1週間は原子衝突実験、引き続く1週間は中性子グループによるデュオプラズマトロン・イオン源の試験であり、これを繰り返した。すなわち、月曜日にタンクを開けてイオン源を取り替え、テストを行い、土曜日にイオン源を元に戻してタンクを閉める、の繰り返しである。



図1 ペレトロンのデュオプラズマトロン・イオン源から加速管までの構成

デュオプラズマトロン・イオン源から加速管までの構成を図1に示す。まずはタンク を開けた状態で、アインツェル・レンズ部分に手製の電極を入れて、エクストラクター に7KVを印加し(加速器運転時は20KVであるが、大気中なので放電を避けるために電 圧を低くした。)、全ビーム電流を測定した。変化させる主なイオン源パラメータはアノー ドのプラズマエクスパンション・カップ部分の穴直径(これを変えるにはイオン源の真 空を破ってカップを交換する必要があり大変な作業になる。)、水素ガス圧、アノード (アーク)電流等である。その結果、穴直径0.3mmではアノード電流1.0Aで約70µA、 2.0Aで約130µAの全ビーム電流が得られ、穴直径0.5mmではアノード電流1.0Aで約70µA、 2.0Aで約130µAの全ビーム電流が得られ、穴直径0.5mmではアノード電流1.0Aで約 400µAの全ビーム電流が得られることが分かった。穴の面積が約2.8倍に対して全ビー ム電流は約5.7倍である。これは、イオン源内の中間電極とアノードの間のアーク・プ ラズマが中心軸から少しずれているためと理解した。エクストラクター電圧を正規の 20KVにするとビーム電流の増加が期待できるので、穴直径0.3mmでタンクを閉めて正 規の20KVを印加して測定を行った。すると、アノード電流2.0Aで200µAの全ビーム 電流が得られ、7KVの場合の約1.5倍になった。穴直径0.5mmにするとアノード電流1.0A で約600µAとなり、やはり約1.5倍となった。

つぎは、パルス化のために必要な 2mm¢アパーチャー通過後の電流とプロトン比の測 定である。上記の真空漏れを解決した後に、ベロシティ・セレクターを 2mm¢アパー チャーの上流側に設置した。ベロシティ・セレクターでは互いに直交する磁場(永久磁 石による固定磁場)と電場(制御室からの遠隔操作で可変)を掛けることによって、H⁺, H₂⁺, H₃⁺のいずれかのイオンビームを選択して 2mm¢アパーチャーを通過させることが できる。2mmфアパーチャーの直ぐ下流はバンチャーなので、バンチャー部分に手製の 電極を設置してベロシティ・セレクターでのイオン分離状況と各イオンの電流を観測し た。プラズマエクスパンション・カップ部分の穴直径 0.5mm とエクストラクター電圧 20KV は固定し、変化させる主なイオン源パラメータは水素ガス圧、アノード電流、ア インツェル・レンズ強度等である。テストを行ったアノード電流 0.5~2A の範囲では、 イオン源内の水素ガス圧が高いとH₃+ビームが主となり、ガス圧が低いとH⁺ビームとH₂+ ビームがほぼ同じ強度で H₃⁺ビームよりも強くなった。また、アノード電流が約 1.5A よ り少ないと各イオンビームの分離があまり良くないのに対して約 1.5A で急に分離が良 くなった。 すなわち、 アノード電流 1.5A でイオン源のエミッタンスが大きく変化するこ とが分かった。さらに、アノード電流 2.0A では H⁺ビーム電流が 130μA 程度得られ(パ ルス化に必要な電流は 100µA)、プロトン比も 35%程度得られることが分かった。そし て、このイオン源パラメータはペレトロン運転に支障がないことが明らかになった。

なお、通常のデュオプラズマトロン・イオン源はプロトン比が 90%程度で陽子電流も 数 mA~数 10mA 得られるが、この場合のアノード電流は 5A 以上である。我々のデュオ プラズマトロン・イオン源は陽子電流 10mA 級のソ連製デュオプラズマトロン・イオン 源をペレトロン・メーカーがデッド・コピーしたものである。メーカーは、10mA 級の イオン源で 100μA を得るのは容易と考えてデッド・コピーしたようである。しかし、高 電圧ターミナルでのイオン源用発電機の容量およびイオン源の冷却機構を考えると、 メーカーが考えたほど容易ではなかったのである。

3.2 ビームのパルス化

ペレトロンの放電によって高電圧ターミナルに搭載しているビームパルス化装置のア ンプ等の色んな箇所が壊れた。放電で壊れた箇所にはバリスタ(電子部品を高電圧から 保護するためのバイパスの働きをする。)を取り付けて壊れるのを防いだ。初期故障も当 然ながら色んな部品で起き、故障箇所を特定して全ての故障部品を取り替えた。また、 全ての電解コンデンサーが壊れた。ペレトロンのタンクを閉める際にはタンク内を真空 に引いた後に SF₆ガスを充填する。この過程で電解コンデンサーが壊れるのである。そ こで、全ての電解コンデンサーをアラルダイトで固めたものと交換した。

ポップ・アンプ(パルスビームの周波数を2,1,0.5MHz 等に変化させる役目をする。) の最終段のトランジスターはどうしても放電に耐えられなくて、最終的には真空管に取 り替えた。パルスビームの加速テストを行っていると、ポップ・アンプが正常に動作し なくなった。タンクを開けてポップ・アンプを調べても異常は観測できない。それまで、 前段のアンプの故障や最終段の真空管のソケットの絶縁不良が原因の故障が発生したこ とがあるが、今回は約1,000V が正常にプレート電圧として掛かり、2MHz 等の打ち抜き 波形も正常である。タンクを閉めてパルスビームの加速テストを再度行ったがやはり ポップ・アンプの出力が異常である。何回かタンクを開閉して原因を調べた結果、真空 管が原因であることが判明した。

何故、大気中で正常に動作する真空管が SF₆ガス中では異常な動作になるのか?それ までの点検結果を基に回路図を睨んでいると、カソードをフィラメントで暖めてからプ レート電圧を掛けるためのディレイ・リレー(バイメタル方式の真空管で、ポップ・ア ンプに電源を入れてから1分後に導通する。)しか原因が考えられない。しかし、大気中 では正常に動作している。SF₆ガス中で正常に動作しないためにはどのようなことを想 定すれば良いか?ディレイ・リレーに真空漏れがある場合は何が起こるか?リレーの真 空が保たれているとフィラメントからの輻射熱でバイメタルが動作するのに対して、SF₆ ガスが漏れ込んだ場合は SF₆ガスの熱伝導によってバイメタルの動作が変化し、リレー が導通とならない可能性が考えられる。大気の漏れ込みの場合は熱伝導の影響が小さく、 バイメタルは正常らしく動作しているのではないか。そう考えて、ディレイ・リレーを 新しいものと交換した。はたして、ポップ・アンプは見事に回復した。

ビームのパルス化テストを行うと、ビームプロファイル・モニターのオシロスコープ 画面に表示されるビームの X 断面と Y 断面に櫛形の鋭い落ち込みが観測された。何が起 きているのか?使用しているビームプロファイル・モニターの原理は、Z 方向へ進行す るビームに対して、タングステン・ワイヤーが X 方向と Y 方向に過ぎった際にワイヤー から放出される 2 次電子を集めて電圧増幅してオシロスコープに表示するものである。 そのため、オシロスコープに表示される断面は同時刻の X (あるいは Y) 軸の各点のビー ム電流を表しているのではなく、ワイヤーが過ぎる時刻におけるビーム電流を表してい る。したがって、櫛形の落ち込みはビーム強度の時間変動を表しているのである。落ち 込みの周波数はオシロスコープ画面から 800Hz であり、これがビーム強度の時間変動で ある。

それならば、ビーム電流を測定するファラデー・カップの出力をオシロスコープで観 測すればこの時間変動を直接観測できるはずである。実際にパルスビームを 10ns/Div.程 度の掃引速度で観測してみると、波高が一定では無く、色んな波高のパルスが混ざって いることが観測された。そして、1ms/Div.程度で観測すると 800Hz の落ち込みを持つグ ロスな構造が観測された。

何が原因であろうか?ビーム電流の変動はイオン源の出力変動が原因と考えるのが素 直である。800Hz がヒントである。高電圧ターミナルに搭載している発電機の出力は 400Hz 交流であり、イオン源の各直流電源は 400Hz を全波整流することによって直流出 力を得ている。800Hz が説明できる。アノード用電源の回路図を見ると平滑コンデンサー が無い!当初はアノード電流を制御するためにバラスト・チューブを用いた整流器が搭 載されていたようだが、筆者がペレトロンに係わるようになった時には既に取り外され ており、10Ωの抵抗に置き換わっていた。このことが原因と考えて、平滑コンデンサー を付けることとした。容量、耐電圧、大きさを考慮して適当なものを選び、アラルダイ トで固めて取り付けた。

これら以外の書き尽くせない課題が非常にたくさんあった。これらの殆どを解決し、 1979 年 12 月 7 日に、中性子実験室内のビームライン先端にファースト・ファラデイ・ カップを取り付けてサンプリング・オシロスコープで正常なパルスビームを初めて観測 できた。この時はイオン源のアノード電流が 0.5A と低かったので、繰り返し 2MHz、パ ルス幅(FWHM) 1.0ns、ピーク電圧 8mV (0.16mA 相当)であったが感激もひとしおで あった。その時にサンプリング・オシロスコープ画面を写したポラロイド写真が今も残っ ている。

アノード電流が 0.5A と低かった理由は、当時使用していた約 1mm 直径のタングステ ン・ワイヤーのフィラメントの寿命が短く(アノード電流 1A 程度だと数 10 時間)、ア ノード電流 0.5A 程度でないと長時間の系統的なパルスビームテストを行えなかったた めである。しかし、12 月末までにはアノード電流 1.3A までのテストを行うことができ、 ピーク電流は 1.8mA に達してほぼ仕様を満足することができた。

中性子実験では1週間の連続実験を想定しており、このためにはフィラメントの長寿 命化が必須である。そこで、先行して中性子実験を行っていた東北大学ダイナミトロン 加速器で用いているフィラメントについて馬場護先生に問い合わせたところ、ニッケル 製のメッシュにケミカル R500(旧日本電球工業、現ニラコ、現在は製造していない。) を塗布した酸化フィラメントの製作方法を快く教えてくださった。この情報を基に酸化 フィラメントを製作した結果、寿命は飛躍的に延びて 500 時間を超えるようになった。 現在では数 1,000 時間の寿命であり、フィラメントのトラブルは殆ど無い。

以上、長々と述べたが、このペレトロンとの格闘によって筆者の論理的思考能力と実 行力は飛躍的に高まったものと確信している。

4. ペレトロンを用いた研究

中性子実験室は予算の関係から約 12m×8m の広さに抑えられたので、中性子源からの飛行距離は最大で 5m 程度となる。この飛行距離では精度の良い中性子散乱実験は望めない。そこで、散乱実験は当初から諦め、中性子捕獲反応実験に特化することとした。

ガンマ線検出器としては重遮蔽体付きのコンプトン抑止型 NaI(TI)スペクトロメータ と重遮蔽体付きのコンプトン抑止型 Ge(Li)スペクトロメータを博士課程の時に設計・製 作した。重遮蔽体とコンプトン抑止用の大型環状 NaI(TI)検出器は共通であり、主検出器 として NaI(TI)検出器あるいは Ge(Li)検出器を用いるのである。

重遮蔽体の設計においては、当時としては珍しく、一次元 S_N 輸送計算コード ANISN と中性子-ガンマ線結合断面積セット(中性子 42 群、ガンマ線 21 群)を用いた計算で 遮蔽効果を確かめながら、中性子遮蔽材の組み合わせと厚さ、ガンマ線遮蔽用の鉛の厚 さを決定した[1]。この ANISN を用いた計算では、山室研究室の先輩の前川洋氏(当時、 日本原子力研究所。以下、当時の所属を記す。)に大変お世話になった。

数度の重遮蔽体の改良、NaI(TI)検出器系の大型化、パルスビーム電流の増強等によっ て、コンプトン抑止型 NaI(TI)スペクトロメータを用いた捕獲実験の感度は 1980 年秋の 最初の実験と比較して約 50 倍に向上している。この感度向上は高価な同位体濃縮試料を 測定用サンプルとして用いる場合には本質的である。例えば核分裂生成物領域で天然同 位体比 20%程度の核種の同位体濃縮試料については、1g であれば 10~100 万円で調達で きて現実的であるが、50g だと 500~5,000 万円となり調達は非現実的となる。現在では、 核分裂生成物領域の核種に対する 30keV における中性子捕獲実験の感度としてσ・M = 0.0001b・mol (σは 30keV での捕獲断面積、M は用いるサンプルのモル数)を達成してい る。例えば質量数 100 のサンプル 1g を用いれば 10mb まで小さい捕獲断面積を測定する ことができる。

なお、コンプトン抑止型 Ge(Li)スペクトロメータについては、重遮蔽体も含めてコン プトン抑止型 HPGe スペクトロメータ(HPGe の相対検出効率は 100%) として 1991 年 度に更新した。

ペレトロンを用いてこれまで行ってきた主な keV 中性子領域の捕獲反応実験は、

(1) 軽核から鉄までの幅の広い共鳴に対する部分放射幅の測定

- (2) 非分離共鳴領域における重核の捕獲ガンマ線スペクトルの測定
- (3) 軽核の部分および全捕獲断面積の測定
- (4) 核分裂生成物領域の捕獲断面積および捕獲ガンマ線スペクトルの測定

である。(1)と(4)については最終講義では触れなかったが、本稿では以下に上記全ての測定について簡潔に述べる。なお、(2)と(3)については2016年核データ研究会プロシーディングスに少し詳しく述べているので興味のある方は参考にして頂ければ幸である。

(1) 軽核から鉄までの幅の広い共鳴に対する部分放射幅の測定

幅の広い中性子共鳴の捕獲反応機構を調べるため、⁹Be, ¹³C, ¹⁶O, ¹⁹F, ²³Na, ²⁷Al, ²⁴Mg, ²⁸Si, ³²S, ⁵⁶Fe 等について測定を行った。用いたガンマ線検出器は核種や共鳴に応じて重 遮蔽体付きコンプトン抑止型 NaI(Tl)スペクトロメータあるいは重遮蔽体付きコンプト ン抑止型 Ge スペクトロメータを選択した。測定結果の理論解析は主に北沢日出男先生 (東工大)が担当した。

¹³C については S. Raman 氏(米国オークリッジ国立研究所)と J. E. Lynn 氏(英国ハ ウエル研究所)等との共同研究であり、Raman 氏が同位体濃縮した¹³C サンプルを調達 し、我々が 152.9keV の p 波共鳴 (J^π=2⁺、 Γ_n=3.7keV) について測定を行い、Lynn 氏が理 論解析を行った。測定に先だって付近の共鳴を Mughabghab 等の共鳴編集本(第4版、 1981 年)で調べると 173.6keV に幅の広い d 波共鳴(J^π=3⁻、Γ_n=17.6keV)がある。21keV しか離れていないので、この共鳴の寄与を差し引くことが必須である。取りあえず、中 性子透過スペクトルにこれらの共鳴がどのように観測されるかを調べてみた。入射中性 子エネルギースペクトルを変化させて何回か測定してみたが 173.6keV 共鳴のデップが どうしても観測できない。理解できないことなので元の文献を図書館で調べると共鳴エ ネルギーは 1,736keV であり、Mughabghab 等の入力ミスであった。(このことを Raman 氏に後日話したところ、「Mughabghab 氏へ伝えておく。」と笑っていた。なお、第5版 (2006年)では修正されている。)これで、目的とする 152.9keV 共鳴の近くには測定の 邪魔となる共鳴は無いことが分かった。共鳴捕獲ガンマ線スペクトルの測定結果から部 分放射幅を導出したが、主な遷移である第1 励起状態以上への部分放射幅は Valence Capture Model で良く説明できることが分かった[2]。なお、共鳴状態から基底状態への弱 い遷移は E2 遷移であるが、これも明確に観測することができ部分放射幅を導出するこ とができた。共鳴からの E2 遷移が観測されたのは非常に珍しいことである。

他の核種の幅の広い共鳴の測定結果についても、Valence Capture Model あるいは Particle – Vibrator Coupling Model 等で良く説明できた。幅の広い共鳴は寿命が短いため 共鳴の Configuration は比較的単純であり、これらの捕獲反応模型で本質を記述できたも のと考えている。

(2) 非分離共鳴領域における重核の捕獲ガンマ線スペクトルの測定

重遮蔽体付きコンプトン抑止型 NaI(TI)スペクトロメータを用いて測定した捕獲ガン マ線スペクトルの例を図2に示す。Auのスペクトルの斜線部分が有名な5.5MeVバンプ (あるいはアノマラス・バンプ)であり、E1 ガンマ線強度関数中のピグミー(Pygmy) 共鳴に起因すると考えられている。しかし図から分かるように、我々の測定結果では図 中の殆ど全ての核種についてバンプが観測されており、そのエネルギー位置は5.5MeV 付近とは限らない。



図2 重核の keV 中性子捕獲ガンマ線スペクトル

これらのスペクトルを統計模型計算によって解析し、E1 ピグミー共鳴バラメーターに ついての情報を引き出した。複合核の中性子数(N)と共鳴エネルギーの関係を図 3 に 示す。なお、図中の我々の結果は黒点で示しており(他は文献の捕獲ガンマ線スペクト ルから読み取ったエネルギー位置)、黒点に付けてある縦棒の長さは共鳴幅を示している。 図から分かるように、N=82~126 では質量数とともに共鳴エネルギーは増加している。 また、N=82 で共鳴エネルギーの Shell 効果が観測されている。



図3 ピグミー共鳴エネルギーの中性子数に対する系統性

Mohan 等は El ピグミー共鳴を原子核の 3 流体模型で説明した[3]。すなわち、中性子 流体を陽子と同じ軌道までのBlocked 中性子流体とそれより上の軌道のExcess 中性子流 体に分けて、Excess 中性子流体に対する陽子流体と Blocked 中性子流体が一体となった 双極子振動としてピグミー共鳴を説明した。

我々の測定結果では共鳴エネルギーの Shell 効果が観測されているため、我々は中性 子流体を最も高い Major Shell までの軌道を占める Blocked 中性子流体とそれより上の軌 道を占める Excess 中性子流体に分けた。そして、Mohan 等と同じ各流体間の結合定数を 用いてピグミー共鳴エネルギーを計算した。その結果を図3中の実線で示す。破線と一 点鎖線は結合定数を変化させた計算結果である。これらの計算結果から、我々の3流体 模型はピグミー共鳴エネルギーを半定量的に説明することができた。

ピグミー共鳴の強度については、測定結果から求めたピグミー共鳴強度の E1 古典総 和則に対する比と上記の3流体模型で計算した比を比較したが、計算結果は測定結果の およそ10倍となってしまった。

1978 年に変形核に対して M1 シザーズ・モードによる 3MeV 付近への励起が理論的に 予言され[4]、1983 年から(γ,γ')反応や(e,e')反応等で M1 による 3MeV 付近への励起が観測 された。このため、我々は変形核の Nd, Dy, Er 同位体等に対して捕獲ガンマ線スペクト ルを測定し、スペクトル中の 3MeV 付近に観測されたバンプを M1 として解析し、解析 結果から M1 換算遷移強度 B(M1)を導出した。残留核¹⁴⁶Nd,¹⁶²Dy,¹⁶⁸Er に対して得られ た B(M1)を図 4 に示す。図の横軸は基底状態の変形パラメータ β_2 の自乗である。我々の 結果を赤丸で示してあり、縦棒は誤差である。青線の丸は(γ , γ)の結果[5]である。両結果 は誤差の範囲で一致し、また、M1 シザーズ・モードの理論的結果である B(M1)の β_2^2 依 存性を支持している。



図 4 測定された捕獲ガンマ線スペクトルから導出した M1 換算遷移強度のβ2²依存性

(3) 軽核の部分および全捕獲断面積の測定

1990年1月頃だったと記憶しているが、永井泰樹先生(東工大)から¹²Cの30keV付近の中性子捕獲断面積をペレトロンで測定できないかとの相談を受けた。¹²Cは星の中に大量に存在し、その30keV付近の中性子捕獲断面積の大小が星の中の中性子捕獲による元素合成に大きく影響するが、測定値は200±400µbであり、熱中性子捕獲断面積を1/v則(vは入射中性子の速さ)で外挿すると3µbとなり、2桁の不確かさの現状であることを説明された。簡易的なサンプルを用意して一晩測定すれば測定が可能か否かは判断でき、可能な場合は1週間で測定できるとお答えした。好都合なことに、筆者の所属する原子炉研にはリアクター・グレイド(高純度)のグラファイトが大量にあり、ノコギリで切れば簡易サンプルは簡単に用意できる。相談のあった翌週には一晩の予備測定を重遮蔽体付きコンプトン抑止型NaI(TI)スペクトロメータを用いて行い、測定が可能であることが分かった。

正規のサンプルを用意し、永井研究室との合同チームで本測定を数週間後に実施した。 重遮蔽体付きコンプトン抑止型 NaI(TI)スペクトロメータで測定した捕獲ガンマ線波高 スペクトルを図5に示す。図から分かるように、中性子捕獲状態(c.s.)から基底状態(g.s.) と第1励起状態(1st)へのプライマリ遷移とカスケード遷移が明確に観測されている。 この波高スペクトルを解析して得た中性子捕獲状態のガンマ線崩壊図を図6に示す。図 6には熱中性子捕獲状態のガンマ線崩壊図も示してある。熱中性子捕獲状態では基底状 態への遷移が主であるのに対して、40keV中性子捕獲状態では第1励起状態への遷移が 主となっている。このことから、捕獲状態からのE1遷移を仮定すると、40keVではp 波中性子捕獲が主であることが分かる。なお、図中のSはスペクトロスコピック・ファ クターを表している。最初の測定結果から、16.8±2.1µbを得た。



図 5 ¹²C(n, γ)¹³C 反応からの捕獲ガンマ線波高スペクトル (E_n=40keV)



図 6 中性子捕獲状態のガンマ線崩壊図(左:熱中性子捕獲、右:40keV 中性子捕獲)

入射中性子エネルギーを変化させて、捕獲状態から基底状態への遷移の部分捕獲断面 積と第1励起状態への遷移の部分捕獲断面積を測定した結果を図7に示す。図中の赤い 直線は第1励起状態への部分捕獲断面積の測定結果をv則でフィットさせた結果である。 黒い直線は熱中性子に対する基底状態への部分捕獲断面積を 1/v 則で高エネルギー側へ 外挿した結果である。図から分かるように、第1励起状態への部分捕獲断面積はv則で 良く説明でき、p 波中性子捕獲であることが明確に確認できた。基底状態に対する部分 捕獲断面積については、100keV 付近までは 1/v 則で良く説明できているが、200keV 付 近と 550keV 付近の測定結果は 1/v 則から離れてきている。これは、d 波中性子捕獲によ る v³則の影響であると考えている。



図7¹³Cの捕獲状態から基底状態あるいは第1励起状態への遷移の部分捕獲断面積

⁷Li₂O サンプルを用いて ¹⁶O について同様な測定を行った結果、やはり keV 中性子領 域では p 波中性子捕獲が主であることが分かった。なお、過去の測定値は 30keV で 0.2 ±0.1µb であったのに対して我々の測定結果は 100 倍以上大きい 24±4µb となった。¹⁶O の評価値と測定値を比較して図 8 に示す。ENDF/B-VII.0 の評価は過去の測定値を採用し て全中性子エネルギー領域で 1/v 則を適用しているが、ENDF/B-VII.1 を含めてその他の 評価は我々の測定値を参照している。(ENDF/B-VII.0 以外は JENDL-3.3 と同一である。) 軽核の第1共鳴以下の keV 領域では p 波中性子非共鳴捕獲が本質的であるが、上述の ${}^{7}Li_{2}O$ サンプルを用いて測定した ${}^{7}Li$ は例外であった。残留核 ${}^{8}Li$ には基底状態と第1励 起状態の2つの束縛状態しかなく、これらの束縛状態はp 中性子状態であるため、p 波 中性子捕獲状態から E1 遷移することができない。このため、p 波中性子捕獲は抑えられ てs 波中性子非共鳴捕獲が第1共鳴までつづく。



図8¹⁶OのkeV中性子捕獲断面積の測定値と評価値

(4) 核分裂生成物領域の捕獲断面積および捕獲ガンマ線スペクトルの測定

^{74.76-78,80,82}Se, ⁸⁸Sr, ⁸⁹Y, ^{90-92,94}Zr, ⁹³Nb, ⁹⁹Tc, ¹⁰³Rh, ^{104-106,108,110}Pd, ¹¹⁵In, ^{116-120,122,124}Sn, ¹²⁸Te, ^{127,129}I, ¹³³Cs, ¹³⁸Ba, ¹³⁹La, ¹⁴⁰Ce, ¹⁴¹Pr, ^{142,143,145,146}Nd, ^{147-150,152,154}Sm, ^{151,153}Eu, ¹⁶¹⁻¹⁶³Dy, ¹⁶⁵Ho, ¹⁶⁶⁻¹⁶⁸Er 等の捕獲断面積と捕獲ガンマ線スペクトルを重遮蔽体付きコンプトン抑止型 NaI(TI)スペクトロメータを用いて測定した。

これらは原子力の高燃焼度炉心や核変換の研究で重要な核種、星の中での s 過程元素 合成で重要な核種、核反応機構やガンマ線強度関数で重要な核種である。例えば、¹⁴⁵Nd, ¹⁶¹Dy, ¹⁶⁷Er 等の捕獲ガンマ線の測定結果は前述の M1 シザーズ・モード解析に用い、N=82

(魔法数) 核種である ¹³⁸Ba, ¹³⁹La, ¹⁴⁰Ce, ¹⁴¹Pr, ¹⁴²Nd は捕獲断面積が小さく s 過程元素合成でボトルネックとなる重要な核種であり、⁹⁹Tc と ¹²⁹I は重要な長寿命核分裂生成物であり、Se, Zr, Pd, Sn の同位体は長寿命核分裂生成物の ⁷⁹Se, ⁹³Zr, ¹⁰⁷Pd, ¹²⁶Sn をそれぞれ意識したものであり、 167 Er はバーナブル・ポイズンとしての利用を意識したものである。

これらの核種についての研究成果は原子力学会や国際会議では殆ど発表しているが、学術誌での発表を行っていない核種もかなりある。

5. ANNRI の建設

2001 年頃、J-PARC の物質生命科学実験施設(MLF)に核データ測定用ビームライン を提案する機運が高まってきた。そこで、J-PARC 関係者の池田裕二郎氏(日本原子力研 究所)にビームラインを現実化することについて意見を伺ったところ、100 名規模の利 用者グループが必要であるとのコメントを頂いた。永井先生と相談し、ビームライン建 設の雰囲気醸成と利用者グループの拡大を目的として、原子核研究に「物質生命科学実 験施設中性子ビームラインを用いた宇宙核物理・加速器駆動型システム開発研究と基礎 実験装置の提案」と題した記事[6]を載せた。その後、大島真澄氏(日本原子力研究所) から核種分析グループも参加したいとの申し出を受けたので加わって頂いた。

2002 年 12 月 5 日に研究タイトル「宇宙核物理・加速器駆動型システム開発基礎・核 種分析研究」、装置名称「中性子核反応測定装置」の提案書を 84 名で構成されるグルー プで提出することができた。この提案書は A4 で 10 頁以内の制限があったため、3 つの 分野の研究内容を含めて 10 頁に抑えるのに苦労したことを記憶している。なお、筆者の 所用のため締め切り日の1 日前に提出したので、以降、提案されたビームラインの一覧 表には常に最初に記載されている。

2003年の6月頃に審査結果が届き、9月までに詳細計画書を提出することになった。 今度は頁数制限が無いので、研究内容と10年以上に渡る研究計画を詳しく書くとともに ビームラインの遮蔽計算をかなりしっかりと行って概念設計を示す必要がある。この遮 蔽計算では山野直樹氏(住友原子力)に大変お世話になった。

2004年1月の公開ヒアリングを経て、2004年8月付けの採択通知を9月に受け取った。 有効期間は3年間で、この期間内にビームライン建設予算を獲得しないと審査差し戻し となる。2002年度から5年間計画で筆者が代表となって文部科学省の核データに関する 委託事業を行っていたが、ビームライン建設は当初計画に入っていないし、計画変更を 行っても予算も時間も全く足りない。新規に大型予算を獲得する必要がある。

2005年度に文部科学省の新たな公募事業が始まることになった。年間最高3億円(直接経費)で最長5年間の委託事業である。2002年度から進めている委託事業が4年度目の佳境で忙しい状況であり、この事業に応募すると殆ど同じメンバーで実施する必要があるため、応募はかなり無謀と内心は考えていた。そうした状況にもかかわらず、永井先生の「このチャンスを逃さず応募すべし。」との大号令である。確かにこの大型予算の公募は今回が最後かもしれないと気を取り戻し、応募シナリオと予算案の作成に入った。 J-PARCのMLFの建設が全て計画通りに進むと仮定して、筆者は研究目的・内容・方法・計画等について魅力あるシナリオの作成に専念した。予算については主に大島氏と原田 秀郎氏(サイクル機構)のグループにお願いした。

応募事業の代表者の問題があった。実施中の委託事業の主要メンバーを代表者にする のは、採否の審査において大変な不利となるであろう。そのような状況下で、永井先生 から「適切な人物がいるので頼んでみる。」との提案があった。MLF の核破砕反応中性 子源の専門家でもある鬼柳善明先生(北大)であった。鬼柳先生は我々が実施していた 委託事業にも興味を持たれていたようで、代表者の申し入れを快諾して頂いた。

幸にも我々の提案は審査において採択された。しかし、委託契約に至るまでには文部 科学省との厳しい折衝が必要であった。文部科学省が 2 点を指摘した。1 点は J-PARC と MLF の建設が遅れると委託事業が期間内に実施できない問題である。しかし、建設 の遅れについては心配してもしょうがないので不問にして頂いた。もう1点は、委託事 業費は施設の整備には使用できないので、委託事業で(施設と考えられる)核データ測 定用ビームラインを作ることはできないとのことである。装置を作ることはできる。ビー ムラインは施設か装置か?やりとりをしていると、文部科学省は汎用的なビームライン は施設と考え、特別な研究目的にしか使用できないビームラインは装置と考えているよ うだ。そこで、我々のビームラインは中性子 TOF を用いて核データを測定する特別な装 置であると主張した。この「TOF」のキーワードが効いて、担当官である課長補佐は装 置として認めてくれた。

もう一つ大きな問題があった。実施中の委託事業も新たに実施する委託事業も原子力 特別会計(後には、エネルギー特別会計)で実施される原子力核データに関するもので あったので、これらの事業で作った検出器やビームラインは原子力以外の宇宙核物理や 核種分析の研究には使用できないという制限である。委託事業期間中は原子力核データ 研究に特化するのは当然としても、事業終了後は宇宙核物理や核種分析の研究にも用い るためにビームラインを提案したのである。

窓口の担当官にもそのことについて口頭で念を押された。時代が変われば状況も変わ るだろうと気を取り直して文部科学省から大学に帰ったら、窓口担当官からのメールを 受信していた。課長にその件について報告したら、「高額の実験装置を事業終了後に有効 利用させないとは何事だ!」とどやされたそうである。そして、そのメールを保存して おいて、事業終了後に別の担当官から変なことを言われたら証拠として保存したメール を見せるようにとのサジェスチョンであった。粋な課長である。

我々が設計・製作・設置する中性子核反応測定装置(Neutron-Nucleus Reaction Measurement Instrument)を当初 NNRI と呼んでいたが、途中から Accurate を付けて現在 では ANNRI と呼んでいる。本稿では統一して ANNRI と呼ぶことにする。

ANNRIの設計コンセプトは「世界最強中性子束を用いた中性子断面積の測定」である。 MLFの核破砕反応中性子源では水銀ターゲットと最終的には1MW(3GeV,333µA)の陽 子ビームを用いる。これは米国オークリッジにある世界最強 SNS の最終的なビームパ ワーの半分である。しかし、米国 SNS には中性子断面積測定用ビームラインは無い。(筆者もメンバーの一人としてビームラインを提案したが採択されなかった。)すなわち、 MLF に作る核データ測定用ビームラインは適切な設計によって世界最強の中性子束を 得ることができる。一方、MLF の陽子パルスは 100ns バンチを用いるので、発生する中 性子の時間分解能の下限は 100ns であり、スイス CERN の n_TOF や米国 LANSCE の時 間分解能(10ns 以下)と比較すると悪い。すなわち、中性子 TOF におけるエネルギー 分解能は劣る。そこで、エネルギー分解能は適当に諦めて、中性子束強度を重視するこ ととした。

ANNRI の断面図を図 9 に示す。中性子源から約 22m の場所に 4π Ge スペクトロメー タを、約 27m の場所に一対の NaI(Tl)スペクトロメータを設置してある。図 10 には ANNRI の中性子束強度を n_TOF や LANSCE の強度と比較している。図からわかるように、 ANNRI の中性子束強度は他と比べて 1 桁以上強い。

ANNRI は MLF の Day 1 装置として設置され、MLF は 2008 年 5 月 30 日に初陽子ビー ムを受け入れることができた。ペレトロンとは異なり、ANNRI は北大、原子力機構、東 工大の 3 グループで共同開発したものであり、感激もひと味違ったものであった。

ANNRI に設置したガンマ線スペクトロメータの当初の遮蔽は十分でなかったので バックグランドが高く、その低減が大きな課題であった。中性子捕獲実験を行いながら バックグランドの主な発生場所等を探し、追加遮蔽等を施すことで、大幅な低減が実現 された。現在、NaI(TI)スペクトロメータについては当初の約 1/100 にバックグランドを 低減させることに成功している。





図 10 中性子束強度の比較(L は中性子源とガンマ線検出器の距離)

6. ANNRI を用いた研究

前述のように当初の ANNRI は革新的原子力システム用核データに関する研究に特化 して用いられていたが、現在は宇宙核物理用の核データの研究および核種分析研究等の 種々な研究に用いられている。本稿では革新的原子力システム用核データに関する研究、 具体的にはマイナーアクチニドと長寿命核分裂生成物の中性子捕獲断面積の研究につい て簡潔に述べる。

ANNRI で測定を行った核種は、マイナーアクチニドでは²³⁷Np,²⁴¹Am,²⁴³Am,²⁴⁴Cm, ²⁴⁶Cm、長寿命核分裂生成物では⁹³Zr,⁹⁹Tc,¹⁰⁷Pd,¹²⁹I である。この他に、これらの核種の 測定用サンプル中の不純物核種等の測定も行った。不純物核種は同位体不純物や微量で あるが大きな共鳴を持って測定に影響を与える化学的不純物である。

マイナーアクチニドや長寿命核分裂生成物のサンプルは非常に高価であるとともに高 バックグランドの原因となる放射能があるので、測定可能な最小量を用いて測定を行う 必要がある。例えば²⁴⁴Cm(半減期 18.1y)サンプルにつては正味 0.6mg を用いたが、そ の放射能は 1.8GBq と高い。²⁴⁶Cm(半減期 4,753y)については正味 2.1mg を用いたが、 ²⁴⁶Cm 自身の放射能は 12.1MBq と低いのに対して約 28%の不純物同位体として含まれて いる²⁴⁴Cm の放射能が 1.7GBq のため全体としては放射能が高い。

MLF では密封 RI 線源しか使用できなかったため、これらのサンプルはアルミニウム 製容器等に密封した。このため、アルミニウム容器からのバックグランドを差し引くた め空のアルミニウム容器の測定も行う必要がある。MLF では非密封 RI 線源の使用も検 討されており、これが実現すれば更に精度の良い測定が期待できる。

4π Ge スペクトロメータを用いた²⁴⁴Cm の測定結果の一部を図 11 に示す[7]。過去の測 定としては原爆中性子源を用いた測定が1件のみある。我々の測定は加速器中性子源を 用いた測定としては世界初であり、また、図中の矢印で示した 20eV 以下の領域では世 界初の結果を得ることができた。



図 11 ANNRI での測定で得られた²⁴⁴Cmの中性子捕獲断面積の一部

NaI(TI)スペクトロメータを用いた測定では、種々の核種についての実施とともに、測 定できる中性子エネルギー領域の上限の拡張を行っている。主に片渕竜也氏(東工大) が担当しており、現在では数 100keV 程度まで拡張することができている。

MLFでは現在、核燃料物質を使用することはできない。そのため、革新的原子力シス テム研究開発に必要な核分裂断面積の測定は実施できない。MLFの施設能力としては核 燃料物質使用も可能である。しかし、核燃料物質を使用するためには J-PARC 周辺の管 理・防護体制を非常に厳しくする必要がある。核分裂断面積測定が真に重要であると J-PARC コミュニティおよび JAEA 等の関係者が認めれば核燃料物質使用も可能である が現状ではその雰囲気の醸成はできていない。

7. おわりに

ペレトロンを用いた研究については、新たな展開も含めて、片渕氏が引き継いでくれ るようである。ANNRI については、木村敦氏(JAEA)、堀順一氏(京大炉)、片渕氏等 を中心として核データ研究が継続されるはずである。ペレトロンは導入してから約 40 年、ANNRI は初ビームを受け入れてから約9年であるが、それぞれ人生の円熟期と青年 期と捉えればまだまだ研究の展開が期待できると楽観している。

研究室を開いて約27年間であったが、その間に40名の修士修了生と16名の博士修了 生が育った。ペレトロンで一緒に実験を行った山室研究室、北沢研究室、永井研究室の 学生を含めると約100名となる。学生の平均年齢は常に同じなので、我々教員は若い学 生から常にパワーを貰い、若々しさを保つことができたと感謝している。最終講義の時 に研究室初期の学生から「私たちが研究室にいた時の先生の年齢を超えています。」と言 われ、27年間の長さを実感した次第である。

約15年前から原子力人材育成プログラムに携わってきた。特に2011年度からは文部 科学省・博士課程教育リーディングプログラム「グローバル原子力安全・セキュリティ・ エージェント養成」を実施している。お台場に全寮制の「世界原子力安全・セキュリティ 道場」を設置して学生を住まわせ、学生主体で企画・運営する自主ゼミを夜に開催して 切磋琢磨させている。筆者も道場に部屋を持っており、この自主ゼミに参加している。 この縁で4月からは、このプログラムを推進するための教育院の特任教授として勤務し ている。今年1年間は原子核工学学生の人材育成に専念する所存である。

参考文献

- [1] M. Igashira et al., Nucl. Instr. Meth., A245 (1986) 432.
- [2] S. Raman et al., Phys. Rev. C, 41 (1990) 458.
- [3] R. Mohan et al., Phys. Rev. C, 3 (1970) 1740.
- [4] N. Lo Iudice and F. Palumbo, Phys. Rev. Lett., 41 (1978) 1532.
- [5] N. Pietralla et al., Phys. Rev. C, 52 (1995) 2317.
- [6] 井頭、永井、原子核研究、47 [1] (2002) 17.
- [7] A. Kimura et al., J. Nucl. Sci. Technol., 49 (2012) 708.