

会議のトピックス(III)

## パンデモニウム問題再訪

### —全吸収ガンマ線分光の応用に関する IAEA 諮問者会合—

東京工業大学

吉田 正

[tyoshida@nr.titech.ac.jp](mailto:tyoshida@nr.titech.ac.jp)

#### 1. はじめに

今から 40 年前、Physics Letters 誌に Hardy らによる一報のレターが掲載された[1]。彼らの主張は、原子核に関わる科学技術分野であまねく利用されている  $\beta$  不安定核の崩壊図表は深刻な「誤り」を内包しており、それは短寿命高  $Q_\beta$  値核で特に著しい、というものである。数十年にわたり蓄積されてきた大量の崩壊図表 (Beta Decay Scheme; 以下 BDS) に基本的欠陥があるとなるとただ事ではない。しかし、このパンデモニウム問題 (上記レターでこう命名された) がすぐに大きく注目された形跡はない。あくまでもシミュレーションの結果であって、実験による裏打ちがまだ無かった。

その 2 年後、スリーマイル島の原子力プラントで事故が発生し、炉心溶融の原因として崩壊熱が広く注目を集め、各国で多くのサンプル照射実験が立案・実施された。同時に、原子炉崩壊熱予測能力向上への大きな期待のもと、当時としては最新の BDS を全面的に採用した核分裂生成物 (FP) 崩壊データライブラリーが日米欧それぞれで完成した。しかし、新ライブラリーによる計算結果はすべての期待を完全に裏切るもので、サンプル照射実験結果との一致は、改善どころか著しく悪化してしまった。やがてこの二つの問題は互いに深く結びついて行く。だがそれにはしばらく時間を要し、その本質的な克服には更にずっと長い時間が必要であり今へと繋がってくる。

#### 2. IAEA 諮問者会合

2014 年 12 月のウィーン[2]に引き続き、今年 2018 年 2 月 19~21 日の三日間、同じウィーンで標記会合が開催された。会議名にある「全吸収ガンマ線分光」法とは、パンデモニウム問題を克服するための最も有効な実験手法であり[3]、Total Absorption Gamma-ray Spectroscopy の邦訳である。TAGS ないし TAS と略記される。日本には TAGS 測定の実績はない。しかし、欧米ではこの分野の活動は持続的かつ拡大傾向にある。近年はインド

も興味を示しはじめています。この状況を、核データ誌上をお借りしてぜひご紹介しておきたいと執筆をお引き受けした。

内容に入る前に少し脱線させていただくが、今回の出張、なかなか波乱含みであった。娘を同伴したのだが、ここで珍事が起きる。羽田の全日空チェックインカウンター。「あのお～、お二人さま、お乗りになる飛行機が違うんですが。」「?!?!?!・・・」よく聞いてみると、私は 12:45 発の全日空ミュンヘン行きで Lufthansa とのコードシェア便。娘の方は同じ 12:45 発の、こちらは Lufthansa ミュンヘン行きで全日空とのコードシェア便（ややこしい）。たしかに二人別個に手配したが、まさか同じ時間に、ともに ANA のコード名を持つ二機が列を成してミュンヘンに向け飛び立つとは想定外。が本当に、娘の乗る Lufthansa エアバス A350 は誘導路で待機する ANA ボーイング 787 の眼前を離陸し、787 も間髪を置かずその後を追った。半日後、2 機ともほぼ同時に無事ミュンヘン空港に着陸はしたものの、現地は雪で大混乱。待たされた末に接続便がキャンセルになる。空港職員は「こんな夜、ここから 2～30 キロ周辺に部屋なんか一室たりともありませんよ」と他人ごとのように断言する（確かに他人ごとだけど・・・）。でも年寄りには、ホームのベンチ、じゃなかった、空港ロビーでごろ寝はつらい。booking.com と電話攻勢でなんとか深夜のホテルを確保し、翌日、またふたり別々の飛行機でウィーンにたどり着いた。通信費はかさむし、いまだにオーストリア航空との refund 交渉に手間取っている。実はこれは終わりではなく、混乱の始まりなのだが、まずは会議の報告から始めなければならない。

### 3. パンデモニウム問題

パンデモニウム問題について、ここで簡単におさらいしておきたい。 $\beta$  崩壊不安定核の BDS の例を、 $Q_\beta$  値が 6 MeV で、娘核の励起レベルが 2MeV おきに二つしかないなど、極端に単純化して図 1 に示す。Hardy らのレターは、高  $Q_\beta$  値核（筆者の目安では 3～4MeV 以上）では、高励起状態に行くベータ遷移が（実際には脱励起ガンマ線の）測定時、あるいは BDS 構築時に見落とされる可能性が高

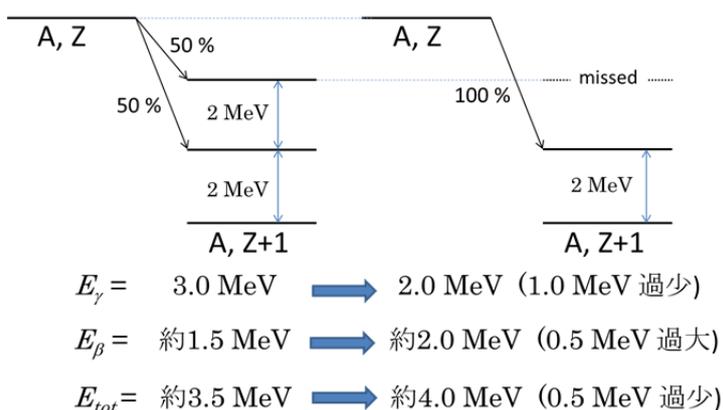


図 1 単純化されたベータ崩壊核の崩壊図式とパンデモニウム問題

( $E_\beta$ ,  $E_\gamma$  は 1 崩壊あたり  $\beta$  線、 $\gamma$  線のかたちで放出されるエネルギーで、 $E_{tot}$  は両者の和)

いという警告であった。本当は、娘核 ( $A, Z+1$ ) の 2 MeV レベルに 50%、4 MeV レベルに 50% のベータ遷移があるのに、後者が見落とされると (図 1 で左→右) 一崩壊に際して放出される recoverable energy  $E_{tot}$  ( $\beta$  線、 $\gamma$  線のエネルギー和で、ほぼ全く熱化しない反ニュートリノ分を除く) が 15% ほど過少評価される。これが FP 崩壊熱計算に現れるパンデモニウム問題の本質である。冒頭に記した 40 年前の FP 崩壊データライブラリーの失敗の原因はこれであったのだ。その事実が明らかになるまでには数年を要した。実際の崩壊熱で問題になる BDS が図 1 のようにシンプルではないのは、言うまでもない。更に  $Q_\beta$  値が 4~5MeV 以上の FP だけをとっても崩壊熱計算時に考慮すべき核種は優に 500 を超える。ちなみに、各核種の時間あたりの崩壊数に  $E_{tot}$  を乗じ、全 FP 核種について和をとればその時点での崩壊熱が得られる。崩壊熱総和計算と呼ばれる所以である。

図 2 がパンデモニウム問題の根深さを如実に物語る。これは  $^{239}\text{Pu}$  の FP 崩壊熱ガンマ線成分を冷却時間の関数として示したものであり (縦軸は作図の便宜上崩壊熱に冷却時間を乗じてある)、1994 年時点より、十年後の 2005 年の方がパンデモニウム問題はより深刻化している。十年間で高  $Q_\beta$  値核の BDS が量的に増加し、パンデモニウム問題が却って顕在化したのである。付言すれば、BDS が無い核種では  $E_\beta = E_\gamma = E_\nu = Q_\beta/3$  という単純化が行われ

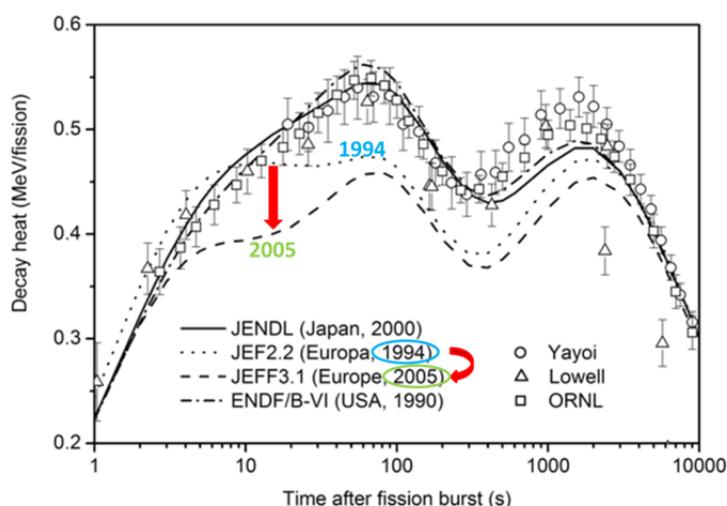


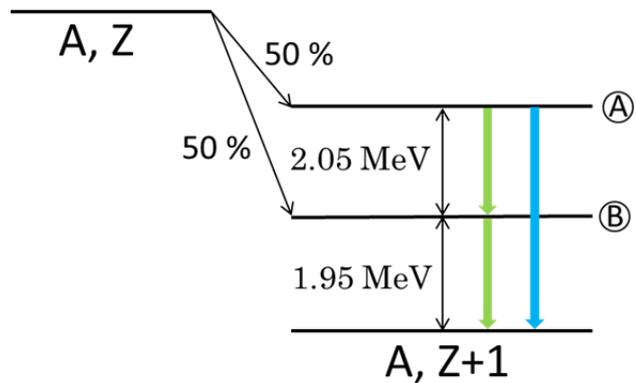
図 2 JEF/JEFF 崩壊データに見られるパンデモニウム効果： $^{239}\text{Pu}$  崩壊熱の  $\gamma$  線成分 (参考文献[4]より)

ているため問題が表面化しない。実験に基づく最新の知見より、昔からある単純な経験式のほうが頼りになるという逆説は克服されなければならない。

JENDL と ENDF/B-VI が実験と合っているのはベータ崩壊の大局的理論を全面的に導入 [5] しているためであるが、JEF/JEFF は  $E_\beta$  と  $E_\nu$  に理論値を持ち込まないという姿勢で一貫している。筆者自身、崩壊熱計算に理論計算を全面的に持ち込むに当たっては躊躇があったし、将来、しっかりした実験値で置き換わるべきであると確信していた。いま、それが案外早く実現しつつあるというのがむしろ実感である (それでももう 40 年!)。ともかく崩壊データの整備は息の長い仕事である。この窮状を救う最適な実験手法が、すでに言及した TAGS なのである。ここでもう少し紙面をお借りし、パンデモニウム問題解決の決め手である TAGS を簡単にご紹介したい。

#### 4. 全吸収ガンマ線分光法とその進展

図1の単純化された核の崩壊を思い出して頂きたい(図3)。ここでは少しだけ現実的にレベル間隔は2.05MeV、1.95MeVと互いに異なるとする。この仮想的な核の $\beta$ 崩壊に伴って放出される $\gamma$ 線をGe検出器で検出すれば4.000MeV、2.050MeV、1.950MeVにピークが見えるだろう。そしてそのピーク値の比が10:



40:90であることが判れば、図3のBDSが描ける。さらに励起状態

図3 単純化された $\beta$ 不安定核(図2)の崩壊

①の $\gamma$ 脱励起の2割が基底状態に直接(青)、8割が励起状態②を経由しておこなわれる(緑)ことも判る。この $\gamma$ 崩壊の分岐比もBDSの重要な一部となる。緑のパスで二つの $\gamma$ 線が同時に放出されたことは、 $\gamma\gamma$ コインシデンス測定を行えばさらにはっきりする。

以上が従来のBDS構築の基本シナリオである。しかし、原子炉の冷却材喪失事故などで問題になる炉停止直後のFP崩壊熱計算に際して考慮しなければならない多数の短寿命高 $Q_\beta$ 値核のBDS構築は単純化された上記説明とは程遠い極めて困難なジグソーパズルとなる。実際、短寿命高 $Q_\beta$ 値核の $\beta$ 崩壊の娘核の励起状態数は数十から百に及び(ここでは深入りせず単なる目安)、ジグソーパズルを解くことは極めて困難なものとなる。 $\beta$ 遷移先レベルの見落とし(missing)が避けられない。Missingは主に高い励起状態に集中する。これこそがパンデモニウム問題であって、 $\gamma$ 崩壊データからBDSを構築する手法の宿命であるともいえる。他に手はないのか。そのもっとも有力で、おそらく唯一の方法こそ全吸収ガンマ線分光法、つまりTAGS測定なのである。

TAGSの原理は、実際の難しさと裏腹に単純明快である(難しさは検出効率ひとつ考えても想像できる)。再び図3に戻ろう。図3の励起状態①の二つの脱励起(青と緑)の違いは放出される光子の数だけであり、放出される総エネルギーは同一である。それなら、一回の $\beta$ 遷移に伴って放出されるガンマ線の総エネルギーを直接測ればいい。そうすれば、①と②への $\beta$ 遷移の割合が直接測定される。そのためには大きなシンチレータを用意し、発生するガンマ線をその中で全て吸収させて、発生するシンチレーション光を全て捕えれば、結果は放出ガンマ線総エネルギーに比例するはずである。これがTAGS(全吸収ガンマ線分光法!)の原理である。

図4はValencia大学のグループのシンチレーション検出器VTASの断面図である。サンプル( $^{235}\text{U}$ とか $^{239}\text{Pu}$ とか)に中性子を照射し、生成されたイオン化FPビームをオンライン質量分析装置に通して測定したいFP核種のビームを作り、これを数センチメートル

ル幅のテープにスポット状に当てる。テープ上のスポットは当該 FP を載せたまま赤で示された固体シンチレータの中心部に送り込まれる。そこで着目 FP は  $\beta$  崩壊して脱励起  $\gamma$  線が周りの固体シンチレータで吸収される。発生したシンチレーション光を図で灰色の二重円筒で示される 12 本 ( $3 \times 2 \times 2$ ) の光電子増倍管で捕える。

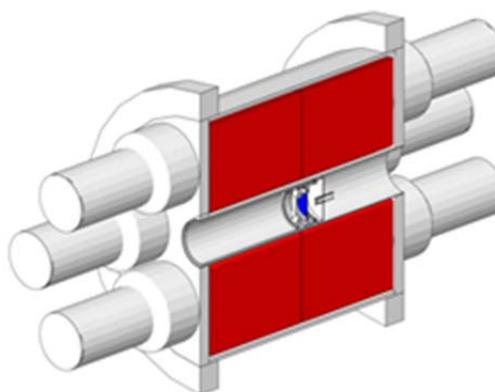


図4 Valencia の TAGS 検出器の断面図  
(同大 A.Algora 氏の厚意による)

A.Algora, J.L.Tain ら Valencia 大学のグループはこの VTAS のほか、DTAS、Roccinante などと名付けられた検出器を、目的に応じてフィンランド Jyväskylä 大学の

IGISOL[6]や CERN の ISOLDE など質量分析装置に運び込み、TAGS 測定を精力的に行っている。ここでは、代表的な測定結果としてプルトニウム崩壊熱で重要な Tc と Mo 同位体の測定[7]、Nantes 大学と協力しての原子炉ニュートリノ（正確には反ニュートリノ）スペクトル高エネルギー成分形成の主役  $^{92}\text{Rb}$  の測定[8]を挙げるにとどめる。Valencia/Nantes の測定は範囲を広げながら現在も精力的に行われているが、これについては次節に譲りたい。

## 5. 今回会議の経緯

現在、TAGS 測定はゆるやかな国際協力体制のもと、原子力への応用から天体における元素合成やニュートリノ物理にまで分野を拡大しつつ活況を呈している。国際協力の第一歩は、経済開発協力機構原子力機関（OECD/NEA）の原子力科学委員会が主催する Working Party on International Nuclear Data Evaluation Co-operation（WPEC）の活動として 2005 年にスタートし[4]、その後 IAEA の核データ課の主催する諮問者会合に引き継がれた。今回がその 4 回目の会合である。

出席者は、発足時の核データ課長で以来この活動を牽引してきた A.L.Nichols、前節で既に名前が出た J.L.Tain と A.Algora、仏 Nantes 大学の M.Fallot、現在 Valencia と測定活動で双璧を成す Oak Ridge の K.Rykazcewski、Argonne の F.Kondev、米国 NNDC 長の A.Songzoni、新たな TAGS 測定に意欲を示すインド Variable Energy Cyclotron Centre (Kolkata) の G.Mukherjee、今回の会議を仕切った核データ課の P.Dimitriou、それに筆者の 10 人。大半は前回、前々回と同じ顔ぶれである。

第一日目は前回以来の進捗報告に当てられたが、紙数の限りもあるので、ここでは実験の進展を軸に報告したい。冒頭、今回のハイライトともいえる Oak Ridge (ORNL)の成果を、グループリーダーである Rykazcewski さんが報告した。前回、Warsaw 大学の M.Karny

さんが紹介したこのプロジェクト、当時すでにかなりデータは蓄積されていたものの解析が追い付かず、今回どっと成果が出てきた感がある。ORNLのTAGS検出器は大きな一体型の固体シンチレータのかわりに、六角柱形状のNaIシンチレータ（モジュールと呼ばれる：図5左）を19本束ねてMTAS（Modular Total

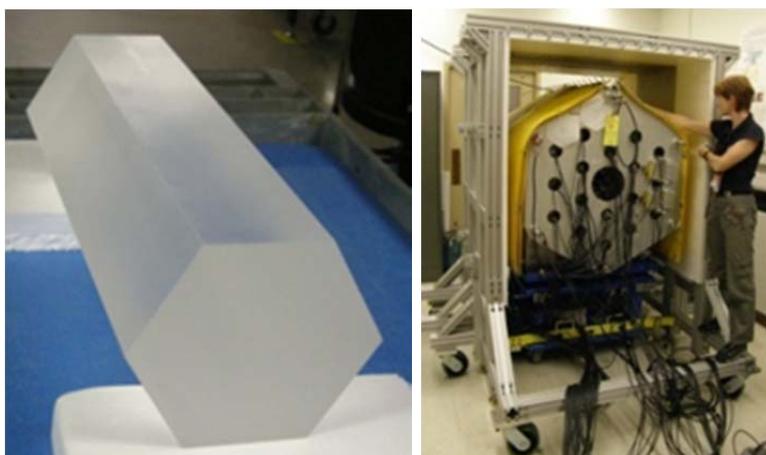


図5 Oak Ridge National LaboratoryのTAGS検出器MTAS  
固体シンチレータ(左)とそれを束ねた検出器全貌(右)  
(K.Rykazcewski氏の厚意による)

Absorption Spectrometer)を構成する(図5右)。装置の構成・機能については文献[9]に詳しい。この1~2年、解析を終えたデータが次々と論文化されており[10,11]、大量の測定データが解析&出版を待っている。この2報は主に原子炉ニュートリノと崩壊熱で問題となるFPをカバーしている。MTASは2012~2016の5年間ORNL(HRIBF)で稼動し、今年度からArgonneのCARIBUに移設される。更にその後ミシガン州立大学のFRIBでの稼動が計画されているとのことである。

これに引き続き、Valencia/Nantes共同研究の進展がTain、Algora、Fallotの各氏から報告された。核データユーザーの観点から、Tainさんの遅発中性子放出と $\gamma$ 脱励起のcompetitionのデータが大変興味深い。ベータ遷移の結果、娘核の中性子分離エネルギーより上のレベルが励起されると $\beta$ -delayed neutronが放出される。一昔前は、中性子のほうが $\gamma$ 線より出やすいとして、中性子分離エネルギーより上のレベルの脱励起はすべて中性子放出によるといった乱暴な近似も行われていた。Valenciaの結果[12,13]を一言で言えば、 $\gamma$ 線放出による脱励起は中性子相手でもかなりcompetitiveで、その程度と様相は核種の違いに大きく依存するというものである。ご周知のとおり、この種のcompetitionは核データ評価のあらゆる局面に現れ、それを扱うHauser-Feshbach理論は核データ評価の大黒柱である。実際、上記の $\beta$ -delayed neutronにかかわる $\gamma$ -n competitionに関してQRPAとHauser-Feshbach理論をベースに精緻な理論分析がなされている[14]。原子炉動特性では $\beta$ -delayed neutron放出は1ステップだけ考えれば十分であるが、天体核のr-processではそうは行かない。となると理論予測は必須であり、同理論のベンチマークとしてのTAGS測定への期待も膨らむ。さらにHauser-Feshbach理論のFP Isomeric Yield評価への応用[15]を同理論の進展と核データ評価への浸透の最前線の一例として挙げておきたい。

アルゴンヌの Kondev さんは、今年から上述の MTAS 検出器を受け入れ TAGS 測定を開始する立場から CARIBU および ATLAS facilities と測定計画を紹介した。Pm ~ Hf あたりの希土類を狙い、核構造も天体核を視野に、長期的には “Decay Data Factory” という名称も出てきて心強い。今回の会議では、崩壊熱と並んで原子炉ニュートリノのスペクトル計算のための TAGS の議論も活発であったが、本稿では割愛する。

残る 1 日半は、諮問者会合の具体的作業に当てられ、崩壊熱および原子炉ニュートリノへの応用のために測定すべき候補核種の優先度リストの作成がなされた。これはその場で終わるものではなく、出席者全員が宿題を持ち帰り、作業は現在も継続中である。

## 6. 会議を終えて

帰路のウィーン空港。ボード上のオーストリア航空 OS155 便に Delay の文字が現れ、時間もどんどん後ずさり始める。マズい、一本しかない全日空便が我々を置いて飛んで行ってしまう。だが意外や意外、オーストリア航空サービスデスクの対応はすばらしかった。行きのトラブル時とは雲泥の差。何本も電話をし、「最善を尽くしました。ともかくデュッセルドルフまで飛んで、ルフトハンザのデスクに行ってください」。

デュッセルドルフの到着ゲートでは女性地上職員が我々の名を連呼している。全員が降りると更にもう一人現れ、「今日のホテルと明日の ANA 便を確保しました。これから空港ホテルにご案内します」とおっしゃる。「ルフトハンザのデスクに行かなくてもいいのですか？」と聞くと、「かわりにデスクのほうがあなた方の所にこうしてやって来ているんです。」と、にくいご返事。実はその晩、オーストリア航空から ANA への乗継乗客は我々二人しかいなかったらしい。教訓：乗り継ぎトラブルには地上職員が暇なときに遭遇すべし。

一日遅着となり、翌々日に自宅の引越しを予定していた私の帰国後は大混乱。でもこれはパンデモニウム問題とは関係ない。が、待てよ、pandemonium を英和で引くと、そこには、大混乱、大騒ぎ、無秩序等々とある。応急引越しの傷の残る我が家では、いまだに、あっフォークのセットがない、大きいガラス容器はどうした……、missing、missing、missing。これってパンデモニウム？

## 7. おわりに

TAGS は他の測定同様、万能ではない。ある励起レベルから複数の  $\gamma$  崩壊モードがあっても、その分岐比はわからないし、エネルギー分解能は Ge 検出器に比べて格段に悪い。しかし、FP 崩壊熱や遅発中性子、更には原子炉ニュートリノの総和計算データベース構築には最適の実験データを提供してくれる。別の言い方をすれば “Nuclear Data Sheets” や “Tables of Isotopes” タイプの核図表構築には向かないが、ENDF/B タイプの評価済み核データファイル作成には最適のデータソースである。今回の会議で明らかなのは、今後

TAGS 測定が重要核種をどんどんカバーしてゆく方向性である。JEFF も ENDF/B-VII 以降もその成果をフルに活用してゆくだろう。これまで数十年間にわたって独自の存在価値を有していた JENDL (古くは JNDC) FP 崩壊データファイルも TAGS データの充実とともにその価値を失いかねない。そうならないためにも TAGS ではカバーしきれない知見を理論で補い予測精度の向上に資するなど、時代遅れにならないための努力が今ほど求められている時はない。少なくとも最新の TAGS データを吟味しつつ導入し、JENDL をアップデートして行くことの必要性を強調させていただき、纏めとしたい。

## 参考文献

- [1] Hardy J.C., Carraz L.C., Jonson B., Hansen P.G., *Phys. Lett. B*, **71** (1977) 307
- [2] Dimitriou P., Nichols A.L., *Total Absorption Gamma-ray Spectroscopy for Decay Heat Calculations and Other Applications*, December 2014, Vienna, INDC(BDS)-0676 (2015)
- [3] Greenwood R. C., Helmer R. G., Putnam M. H., Watts K. D., *Nucl. Instr. Meth. A*, **390** (1997) 95
- [4] Yoshida T., Nichols A.L., *Assessment of Fission Product Decay Data for Decay Heat Calculations*, OECD/Nuclear Data Agency, Nuclear Science, NEA/WPEC-25, ISBN 978-92-99034-0 (2007)
- [5] Yoshida T., R. Nakashima, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **18**[6], 393-407 (1981)
- [6] <https://www.jyu.fi/science/en/physics/research/nuclear-and-accelerator-based-physics/exotic-nuclei-and-beams>
- [7] Algora A., Jordan D., Tain J. L., Rubio B. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **105**, 202501 (2010)
- [8] Zakari-Issoufou A.-A., Fallot M., Porta A., Algora A., Tain J.L. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **115**, 102503 (2015)
- [9] Wolinska-Cichocka M., Rykaczewski K.P., Fijalkowska A., Karny, M., Grzywacz R.K. *et al.* *Nuclear Data Sheets* 120 (2014) 22–25
- [10] Fijalkowska A., Karny M., Rykaczewski K.P., Rasco B.C., Grzywacz R. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **119**, 052503 (2017)
- [11] Rasco B.C., Wolińska-Cichocka M., Fijalkowska A., Rykaczewski K.P. Karny *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **117**, 092501 (2015)
- [12] Tain J.L., Valencia E., Algora A., Agramunt J., Rubio B. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **115**, 062502 (2015)
- [13] Valencia E., Tain J.L., Algora A., Agramunt J., Estevez E. *et al.*, *Phys. Rev., C* **95**, 024320 (2017)
- [14] Mumpow M.R., Kawano T., Möller P., *Phys. Rev., C* **94**, 064317 (2016)
- [15] Okumura S., Kawano T., Jaffke P., Talou P., Chiba S., *J. Nucl. Sci. Technol.*, In Press (2018)