

話題・解説 (IV)

## 2018 年度核データ部会賞

### (2) 奨励賞

# 長寿命核分裂生成核種 $^{93}\text{Zr}$ の 陽子・重陽子入射核破碎同位体生成に関する研究

日本原子力研究開発機構  
原子力基礎工学研究センター  
核データ研究グループ  
川瀬 頌一郎

[kawase.shoichiro@jaea.go.jp](mailto:kawase.shoichiro@jaea.go.jp)

## 1. はじめに

原子炉の運転に伴って発生する使用済核燃料 (SNF) の処理は世界的な問題となっています。SNF の再処理によってウランやプルトニウムを回収した後に残る高レベル放射性廃棄物 (HLW) には、マイナーアクチノイド (MA) と核分裂生成物 (FP) が含まれます。FP のうち特に長い半減期をもつものを長寿命核分裂生成物 (LLFP) と呼び、その存在によって数万年以上の長期にわたる HLW の隔離が必要になると考えられています。ここで、MA や LLFP の核変換技術、すなわち核反応を用いて長寿命核種を安定核種や短寿命核種に変える技術を実現することができれば、HLW の長期保管に伴うリスクを大幅に減らすことができるでしょう。

$^{93}\text{Zr}$  (半減期 161 万年) は  $^{235}\text{U}$  の核分裂で大きな収率 (6.3% [1, 2]) を持つ主要な LLFP の一つです。LLFP の中では比較的小さな熱中性子捕獲断面積 (2.239 b [2]) を持つため、 $^{93}\text{Zr}$  の核変換に用いる反応としては中性子捕獲以外の反応が相対的に有効となることが期待されます。しかしながら、合理的な核変換プロセスを検討するための基礎的な測定データは中性子入射反応を除いてこれまで存在しませんでした。その理由の一つとして、放射性核種である  $^{93}\text{Zr}$  の高純度の標的の作成・取り扱いが困難であることが挙げられます。

このような状況を背景に、筆者らは ImPACT 「核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化」 [3] のテーマの一つである、LLFP ( $^{79}\text{Se}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{107}\text{Pd}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ ) に対する陽子・重陽子入射反応による残留核生成断面積の測定を逆運動学法を用いて行ってきました。逆運動学法では測定対象の核種を標的としてではなく高速ビームとして取り出すため、LLFP 標的を用意する必要がありません。本稿では、これらの測定のうち  $^{93}\text{Zr}$  に対する核子あたり 105 MeV の陽子・重陽子入射反応による残留核生成断面積の測定 [4] について紹介いたします。

## 2. $^{93}\text{Zr}$ への核子あたり 105 MeV の陽子・重陽子入射核破碎反応による残留核生成断面積の測定

実験は理化学研究所 RI ビームファクトリー (RIBF) で行いました。RIBF の持つ世界最高強度での RI ビーム生成能力は、LLFP 核種を高速ビームとして取り出して利用する今回の逆運動学法での測定には必要不可欠でした。図 1 に本実験で使用したビームラインの概略を示します。測定対象となる  $^{93}\text{Zr}$  を含む二次ビームは、超伝導リングサイクロトロン (SRC) で核子あたり 345 MeV まで加速した  $^{238}\text{U}$  のビームを Be 標的に照射し、飛行核分裂反応 (in-flight fission) を引き起こすことで生成しました。生成した二次ビームは超伝導 RI ビーム生成分離装置 BigRIPS[5] によって分離・識別されます。まず BigRIPS の第一ステージで電磁石によってビームの軌道を曲げることで二次ビームを大まかに分離します。さらに第二ステージで種々の検出器を用いて飛行時間 (TOF)、磁気剛性 ( $B\rho$ )、エネルギー損失 ( $\Delta E$ ) を測ることで質量電荷比  $A/Q$  と原子番号  $Z$  をビーム粒子ごとに決定し、粒子識別を行いました (TOF- $B\rho$ - $\Delta E$  法 [5])。図 2 に BigRIPS での二次ビームの粒子識別図の例を示します。横軸は  $A/Q$  (質量電荷比)、縦軸は  $Z$  (原子番号) を表しており、図中にある数多くの locus がそれぞれ異なる核種に対応しています。逆運動学法では図中の特定の locus のイベントをソフトウェア的に選択することで、不安定核種であってもほぼ 100% の純度を達成することができます。今回のデータ解析では、図 2 中に赤実線で示された矩形領域内のイベントを  $^{93}\text{Zr}$  ビームが入射したイベントとして選択しました。

BigRIPS を通過した二次ビームは反応標的に照射されます。本測定では反応標的としてポリエチレン ( $\text{CH}_2$ )、重水素化ポリエチレン ( $\text{CD}_2$ )、炭素 (C) の薄膜を用いました。標的での反応生成核種を含んだビームは、反応標的の下流に位置するゼロ度スペクトロメータ (ZDS: ZeroDegree Spectrometer)[6] を用いて TOF- $B\rho$ - $\Delta E$  法により再び粒子識別を行いました。ZDS の一つの磁場設定で検出できる生成核種の  $A/Q$  アクセプタンスは約  $\pm 3\%$  と限定されています。そのため ZDS を構成する電磁石の磁場の強さを変えた測定を複数回行うことで、幅広い  $A/Q$  に分布する反応生成核種をカバーしています。図 3 に BigRIPS で  $^{93}\text{Zr}$  が識別されたイベントについて作成した ZDS での粒子識別図の例を示します。反応標的で  $^{93}\text{Zr}$  から生成

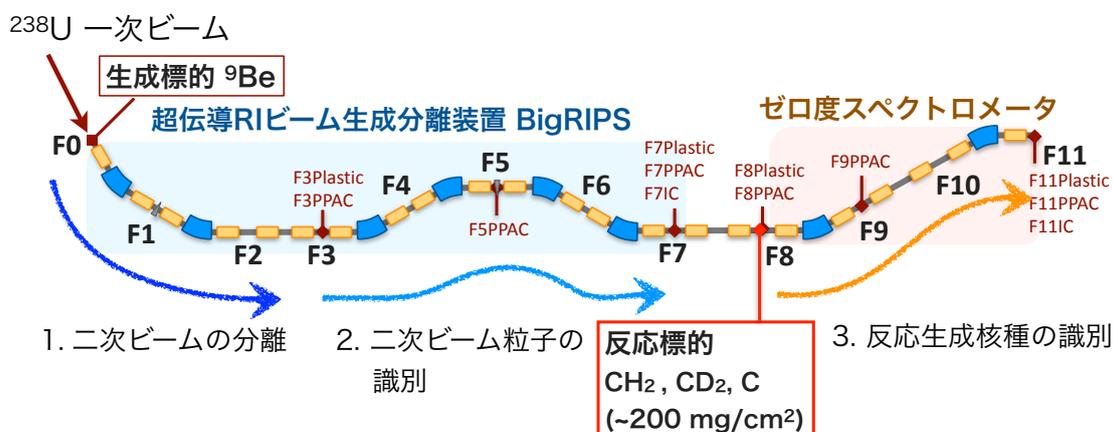


図 1 本研究で使用したビームラインの概略。青色の台形と橙色の長方形はそれぞれ常伝導双極電磁石 (D) と超伝導三連四重極電磁石 (STQ) を表している。

した核種を明瞭に分離できています。

以上の解析から、入射した  $^{93}\text{Zr}$  ビームの個数と生成した核種の個数を求め、それぞれの生成核種について生成断面積を導出しました。ポリエチレンに含まれる炭素およびビームライン上に存在する検出器等の物質による寄与は、炭素標的を用いた測定とブランク測定から評価して差し引いています。図4に原子番号毎の残留核生成断面積分布を示します[4]。黒丸が陽子入射反応の、赤ダイヤが重陽子入射反応の断面積の測定値を示しています。今回の測定では広範な核種について系統的に生成断面積を得ることができました。特に、放射化法では測定が困難である安定核種についても生成断面積が得られました。

こうして得られた生成断面積の系統的なふるまいを見てみると、 $^{90}\text{Zr}$  と  $^{91}\text{Zr}$  の間や  $^{89}\text{Y}$  と  $^{90}\text{Y}$  の間で生成断面積が断層のようにずれていることがわかります。この「断層」の直下には中性子数が魔法数 50 となり殻構造的に安定になる  $^{90}\text{Zr}$ ,  $^{89}\text{Y}$  が位置しています。本測定と同様の手法で取得した  $^{90}\text{Sr}$  [7] や  $^{107}\text{Pd}$  [8] のデータにはこのようなズレはみられていないため、この「断層」は原子核の殻構造の効果を反映している可能性が高いと考えられます。

### 3. PHITS 計算との比較

測定結果をモンテカルロ計算コード PHITS ver 2.88 [9] による計算と比較しました。モンテカルロ計算で陽子・重陽子入射反応を記述するモデルとしては、核内カスケード過程と蒸

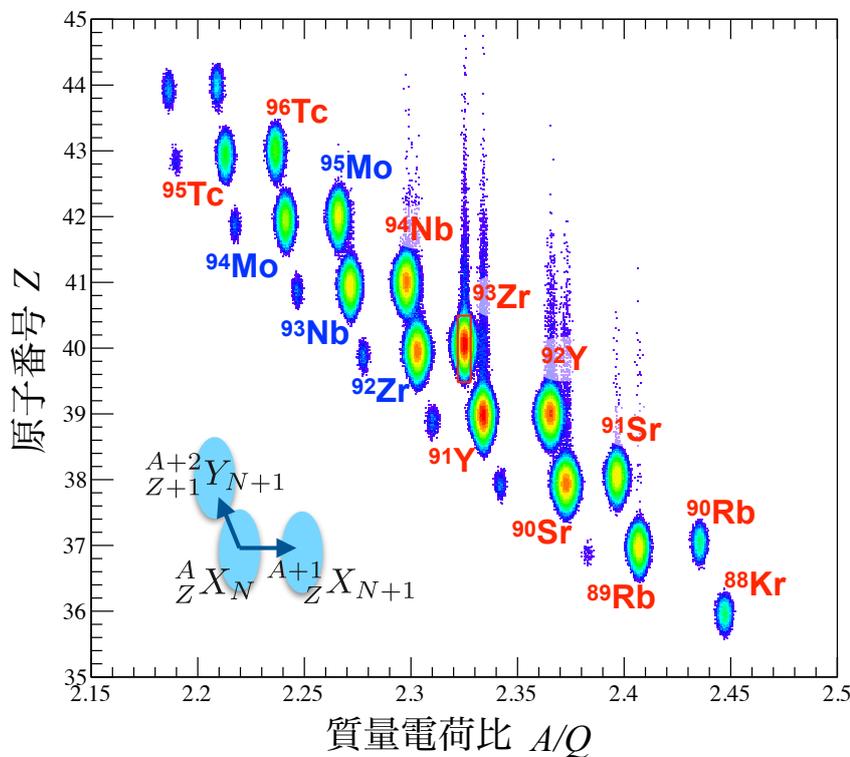


図2 BigRIPSでの粒子識別図。青字、赤字で示された核種はそれぞれ安定核、不安定核を示している。今回のデータ解析では赤実線の矩形領域内のイベントを  $^{93}\text{Zr}$  が入射したイベントとして選択した。

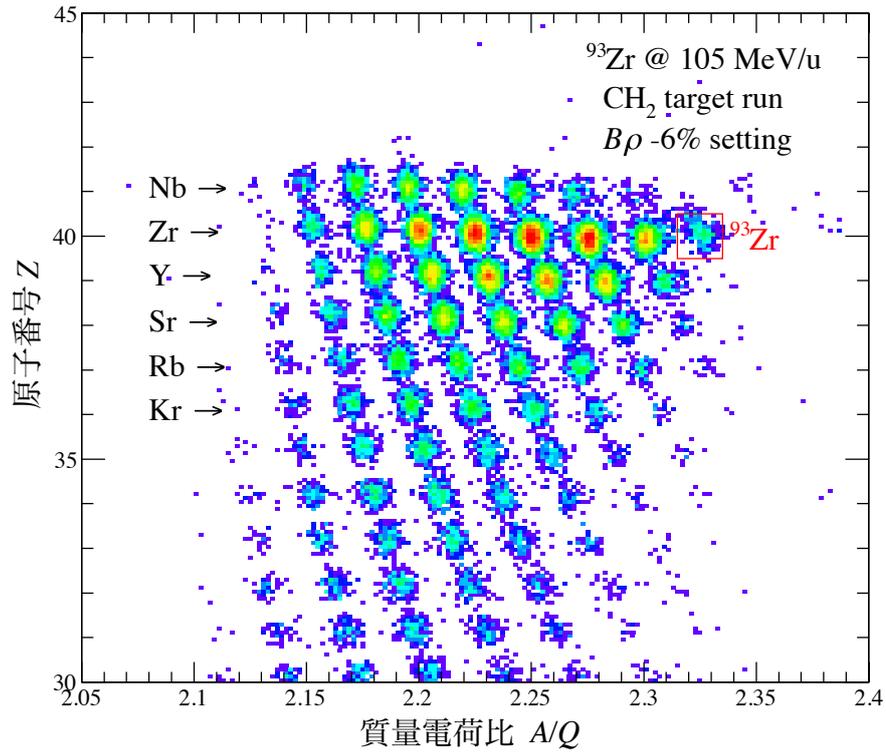


図 3 ZDS での粒子識別図。BigRIPS で  $^{93}\text{Zr}$  が識別されたイベントのみ抽出してプロットしている。この設定では  $A/Q$  が 2.15 から 2.3 あたりまでが ZDS のアクセプタンスに入っている。

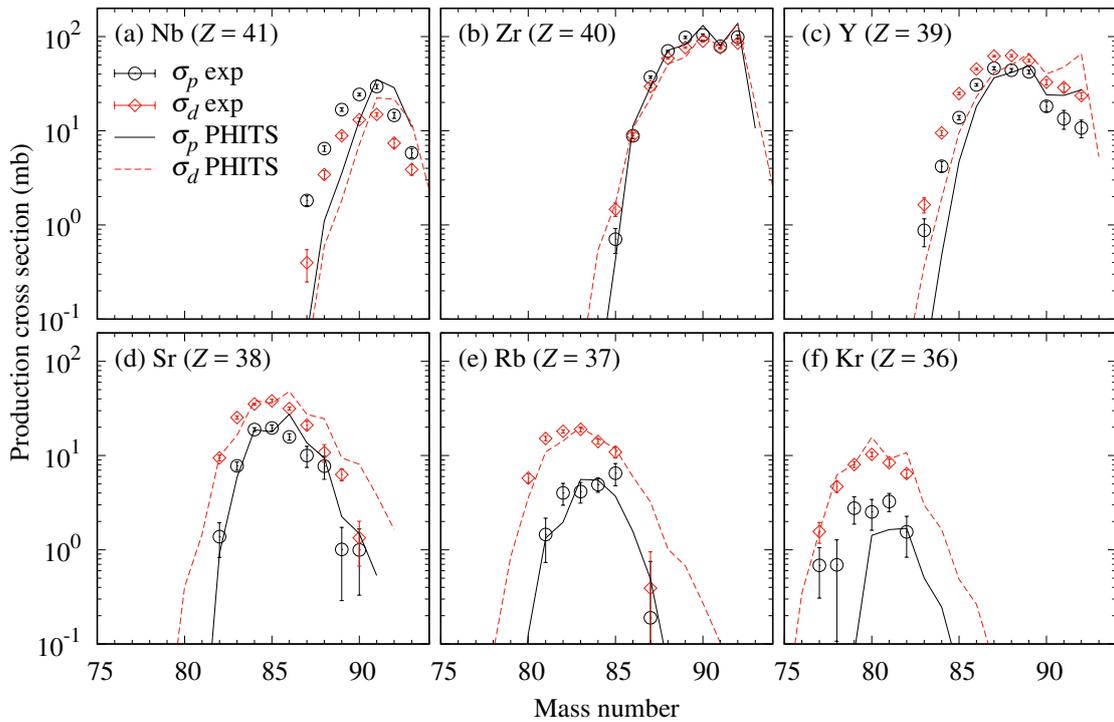


図 4 実験で得られた残留核生成断面積分布と PHITS 計算 [4]。

発過程を組み合わせたモデルが実験結果を比較的良く再現することが知られています。今回は核内カスケード過程として INCL [10]、蒸発過程として一般化蒸発模型 (GEM) [11] を用いました。図 4 に PHITS による計算結果を示します。黒実線が陽子入射による、赤破線が重陽子入射による核種生成断面積を表しています。

PHITS 計算は前節で指摘した「断層」も含めて実験値の傾向を概ね良く再現していますが、詳細に見ていくと主に二つの点で課題が残ります。一つ目は、実験値では明確でない偶寄効果が PHITS 計算では特に Sr 同位体で顕著に表れてしまっている点です。この点については、GEM で考慮されていない、粒子放出と  $\gamma$  線放出の競合や、粒子放出率の計算で重要となる逆反応断面積・準位数密度等の因子を吟味することで改善が期待されます。

二つ目は  $^{93}\text{Zr}$  近傍の高質量核種の生成量を過大評価している点です。これらの核種は主に原子核表面で起こる準弾性散乱を経て少数の核子が除去されることで生成されます。核内カスケードモデルでは核内核子の半古典的な記述により原子核表面での量子力学的な効果が捨象され、結果としてこの過大評価につながっていると考えられます [12]。この問題について、例えば文献 [12, 13] では原子核表面の記述に fuzziness を導入することで 1 GeV 領域での同位体生成断面積の実験値の再現性に改善が見られており、今後実験値の充実によってさらなるモデルの改良が進むことと思われれます。

#### 4. おわりに

本稿では、逆運動学法を用いた  $^{93}\text{Zr}$  に対する核子あたり 105 MeV の陽子・重陽子入射核破碎反応による残留核生成断面積の測定について紹介しました。本研究以外にも、多種粒子測定装置 SAMURAI [14] を用いて取得した陽子・重陽子入射核破碎反応に伴い放出される中性子との相関データや、RI ビーム減速・収束装置 OEDO を用いて取得した逆運動学での低エネルギー陽子・重陽子入射反応データ等、理研 RIBF で取得された様々なエネルギー・核種に対する陽子・重陽子入射反応の測定データの解析が進められています。これら一連の実験データが、陽子・重陽子入射反応の反応モデルの検証・改良、LLFP に対する合理的な核変換プロセスの検討・開発に資することを期待します。

#### 謝辞

本研究は筆者が前職で学術研究員として所属していた九州大学大学院総合理工学研究院で行ったものです。渡辺幸信教授には研究遂行にあたり有益な議論にお付き合いいただき、また常日頃より激励をいただきましたことに心から感謝いたします。理化学研究所仁科加速器科学研究センターの天津秀暁チームリーダー、王赫博士、東京工業大学の武内聡博士をはじめとする ImPACT-RIBF コラボレーションの皆様には研究を進める上で多大なご協力やご助言を頂きました。深く感謝いたします。また、九州大学渡辺研究室の皆様のおかげで日々楽しく研究に励むことができました。本研究は、総合科学技術・イノベーション会議が主導する革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) の一環として実施したものです。

## 参考文献

- [1] 西原健司, “使用済核燃料の潜在的放射性毒性評価のためのデータベース”, JAEA-Data/Code 2010-012 (2010).
- [2] K. Shibata et al., “JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering”, *J. Nucl. Sci. Technol.* **48**, 1–30 (2011).
- [3] 革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) 「核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化」 <http://www.jst.go.jp/impact/program/08.html>
- [4] S. Kawase et al., “Study of proton and deuteron induced spallation reactions on the long-lived fission product  $^{93}\text{Zr}$  at 105 MeV/nucleon in inverse kinematics”, *Prog. Theor. Exp. Phys.* **2017**, 093D03 (2017).
- [5] N. Fukuda et al., “Identification and separation of radioactive isotope beams by the BigRIPS separator at the RIKEN RI Beam Factory”, *Nucl. Instrum. Meth. B* **317**, 323–332 (2013).
- [6] T. Kubo et al., “BigRIPS separator and ZeroDegree spectrometer at RIKEN RI Beam Factory”, *Prog. Theor. Exp. Phys.* **2012**, 03C003 (2012).
- [7] H. Wang et al., “Spallation reaction study for fission products in nuclear waste: Cross section measurements for  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  on proton and deuteron”, *Phys. Lett. B* **754**, 104–108 (2016).
- [8] H. Wang et al., “Spallation reaction study for the long-lived fission product  $^{107}\text{Pd}$ ”, *Prog. Theor. Exp. Phys.* **2017**, 021D01 (2017).
- [9] T. Sato et al., “Features of Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) version 3.02”, *J. Nucl. Sci. Technol.* **55**, 684–690 (2018).
- [10] A. Boudard, J. Cugnon, J.-C. David, S. Leray, and D. Mancusi, “New potentialities of the Liège intranuclear cascade mode for reactions induced by nucleons and light charged particles”, *Phys. Rev. C* **87**, 014606 (2013).
- [11] S. Furihata, “Statistical analysis of light fragment production from medium energy proton-induced reactions”, *Nucl. Instr. and Meth. B* **171**, 251–258 (2000).
- [12] D. Mancusi, A. Boudard, J. Carbonell, J. Cugnon, J.-C. David, and S. Leray, “Improving the description of proton-induced one-nucleon removal in intranuclear-cascade models”, *Phys. Rev. C* **91**, 034602 (2015).
- [13] J. L. Rodríguez-Sánchez, J.-C. David, D. Mancusi, A. Boudard, J. Cugnon, and S. Leray, “Improvement of one-nucleon removal and total reaction cross sections in the Liège intranuclear-cascade model using Hartree-Fock-Bogoliubov calculations”, *Phys. Rev. C* **96**, 054602 (2017).
- [14] T. Kobayashi et al., “SAMURAI spectrometer for RI beam experiments”, *Nucl. Instrum. Meth. B* **317** 294–304 (2013).