

日本原子力学会「2019年春の年会」核データ部会セッション  
「核分裂生成物核種の核データ研究のフロンティア」

### (3) 測定研究の進展と今後の狙い

東京工業大学

科学技術創成研究院 先導原子力研究所

片渕 竜也

[buchi@lane.iir.titech.ac.jp](mailto:buchi@lane.iir.titech.ac.jp)

#### 1. はじめに

筆者は、「日本原子力学会 2019年春の年会」の企画セッション「核分裂生成物核種の核データ研究のフロンティア」の3番目の講演として測定研究の観点から講演した。この講演では、近年の測定技術の進展を概観し、測定がFP核データの信頼性向上のために重要であることを述べた。以下に講演の内容について報告する。筆者の専門から内容が中性子捕獲反応の測定に偏ってしまったことをお断りしておきたい。

#### 2. 測定の重要性「測ってみなければ分からない」

これまでの多年に渡る核データ研究者の努力の成果として核データライブラリの水準は大きく進展した。特に核分裂生成物 (FP) の中性子核反応データは原子力で極めて重要となることから整備に精力が注がれてきた。例えば、現在、評価済核データライブラリ JENDL-4.0 には約 200 の FP 核種の評価済核データが格納されている。このように多くの FP 核種を格納することで原子力分野の多くのニーズに応えることができるようになった。

ただし、これら格納された FP 核種の核データの質・精度はまだ議論の余地がある。格納された FP 核種の中には約 60 核種の不安定核種が含まれている。安定核種に関しては、実験も容易なことから、ほとんどの場合測定値が存在し、測定値をもとにした断面積データの評価が行われている。しかし、放射性 FP 核種については測定が容易でなく、全く測定値のない状態で評価が行われた FP 核種も多く存在する。筆者がざっと調べた限りでは、格納された放射性 FP 核種のうち、全く測定のないものが3分の1、熱中性子捕獲断面積だけ測定されたものが3分の1、測定データがある程度以上揃っているものは残り3分の1という状況であった。後述するように測定値のない核種の核データ評価には大きな不確定性が伴う。

一方で最近の測定技術の進展により、これまで難しかった放射性核種の測定が可能に

なってきた。例えば、核破砕中性子源の登場が挙げられる。核破砕反応は効率的に中性子を発生することから、高強度の中性子ビームを作り出すことに利用できる。このことから、現在、核破砕中性子源施設を建設することが世界的なトレンドとなっている。大強度陽子加速器施設（J-PARC）にも核破砕中性子源が建設され、従来の施設より2桁強い中性子ビーム強度での実験ができるようになった。これにより微量な放射性試料での測定が可能になった。また、ImPACTプログラムの一環として行われた理研のRIBFでの実験も最近の大きな進展である。これはRIBFからの不安定核ビームを用いて逆運動学的に核データを測定するものであり、試料として入手することが難しいFP核種でも不安定核ビームとして生成することで測定が可能となる。さらに測定技術の進展として加速器質量分析（AMS）にも触れておきたい。AMSは微量試料をイオン化し加速することで原子を1個ずつ質量分析する方法である。AMSは $^{14}\text{C}$ 年代決定法に使われる手法としてよく知られているが、近年、AMSを用いた核データ測定が報告されている。例えば、Pavetichらは $^{35}\text{Cl}$ を中性子照射し、中性子捕獲により生成した $^{36}\text{Cl}$ の数をAMSで測定し、 $^{35}\text{Cl}$ の中性子捕獲断面積を決定している[1]。従来の放射化法は中性子照射して生成したものの放射能から反応原子核数を求めるため、生成核種が放射性でなくてはならないが、AMSの場合、生成核種の数を直接数えるため放射性である必要はない。したがって、従来の放射化法の欠点を補うものとなろう。

表 1 LLFP の中性子捕獲反応に関する測定データ数

	熱中性子 捕獲断面積	共鳴パラメーター			keV 領域 捕獲測定
		透過率測定	捕獲測定	透過+捕獲	
Tc-99	9	3	5	0	5
I-129	5	1	2	2	3
Cs-135	3	2	0	0	2
Zr-93	2	1	2	0	0
Pd-107	1	0	1	1	0
Sn-126	1	0	0	0	0
Se-79	0	0	0	0	0

ここでFP核種の中性子核データの例として長寿命核分裂生成物（LLFP）の測定データの状況について概観してみよう。LLFPは半減期が10万年以上のFP核種であり、 $^{79}\text{Se}$ 、

$^{93}\text{Zr}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{107}\text{Pd}$ ,  $^{126}\text{Sn}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{135}\text{Cs}$  の 7 核種が含まれる。表 1 に LLFP の主に中性子捕獲断面積に関する測定データ数をまとめる。LLFP は長寿命のため崩壊ガンマ線バックグラウンドは低く、短寿命の核種に比べると比較的測定は容易のはずである。しかし、それでも  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$  を除くと測定数は極めて少ない。 $^{126}\text{Sn}$  は熱中性子の測定が 1 点あるだけ、 $^{79}\text{Se}$  に至っては測定データなしという状況である。このように長寿命の LLFP ですら十分な数の測定がなされているとは言えず、短寿命 FP になるとさらに実験データは乏しい。

ここで測定値が全くない場合と僅かでもある場合は核データの信頼性の観点から全く異なることを強調しておきたい。特に共鳴領域に関しては測定値が極めて重要である。なぜなら、現在の原子核理論では個々の共鳴の特性（共鳴エネルギー、幅、スピン等）を純粹に理論予測することは全く不可能だからである。なぜ、理論予測が困難なのか、それを模式的に示したのが図 1 である。図 1 は、標的原子核 A が中性子を捕獲し、複合核を形成した場合を示している。中性子捕獲により形成される状態は複合核の励起状態である。複合核の中性子束縛エネルギーに入射中性子エネルギーを足した分だけ励起される。中重核だと中性子束縛エネルギーは、6~8 MeV 程度である。共鳴は入射中性子エネルギーがこの複合核の中性子束縛エネルギーより上に存在する励起準位と合致した時に起こる。つまり、理論的に個々の共鳴を予測するには、複合核の高エネルギー励起準位を極めて正確に予測しなければならない。入射中性子エネルギーは meV から対象となるのに対し、中性子束縛エネルギーは MeV オーダーである。つまり、9 桁以上の予測精度が求められる。これは現在の原子核理論では不可能である（そもそも 9 桁以上の予測精度を持つ理論物理計算は極めて稀な例を除いて存在しない）。したがって、個々の共鳴がどこにどのような強度で存在するかは測定をしない限り全く分からない。

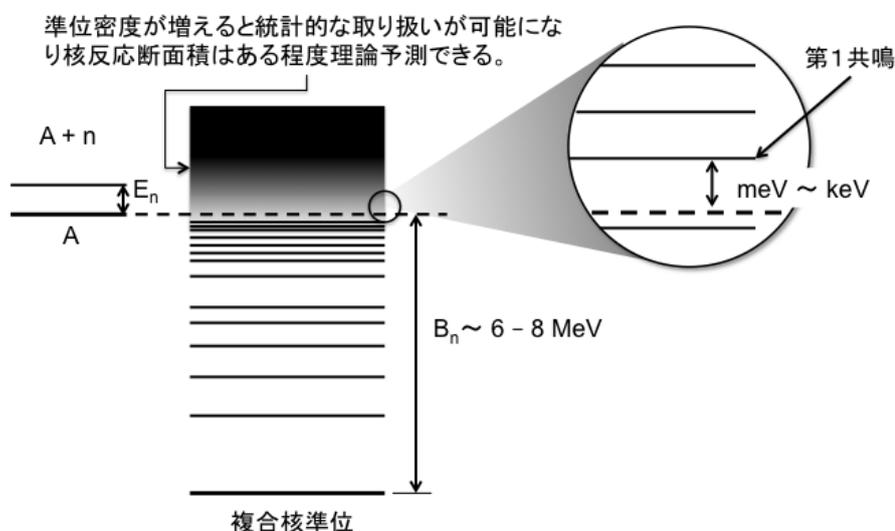


図 1 複合核準位と共鳴の関係

さらに加えて熱中性子断面積は、第 1 共鳴の影響を強く受けるため、第 1 共鳴がどこに存在するかによって大きく変わる。つまり、熱中性子捕獲断面積もまた測定値なしで理論的に厳密に求めることは不可能である。図 2 に例として  $^{112}\text{Cd}$  と  $^{113}\text{Cd}$  の中性子捕獲断面積を示す。データは JENDL-4.0 の評価値である。図から分かるように  $^{113}\text{Cd}$  の熱中性子捕獲断面積は  $^{112}\text{Cd}$  のおよそ一万倍大きいことが分かる。この違いは、 $^{112}\text{Cd}$  の第 1 共鳴が、66.8 eV と熱領域からだいぶ離れているのに対し、 $^{113}\text{Cd}$  の場合は、179 meV と熱領域に近いことに起因する。

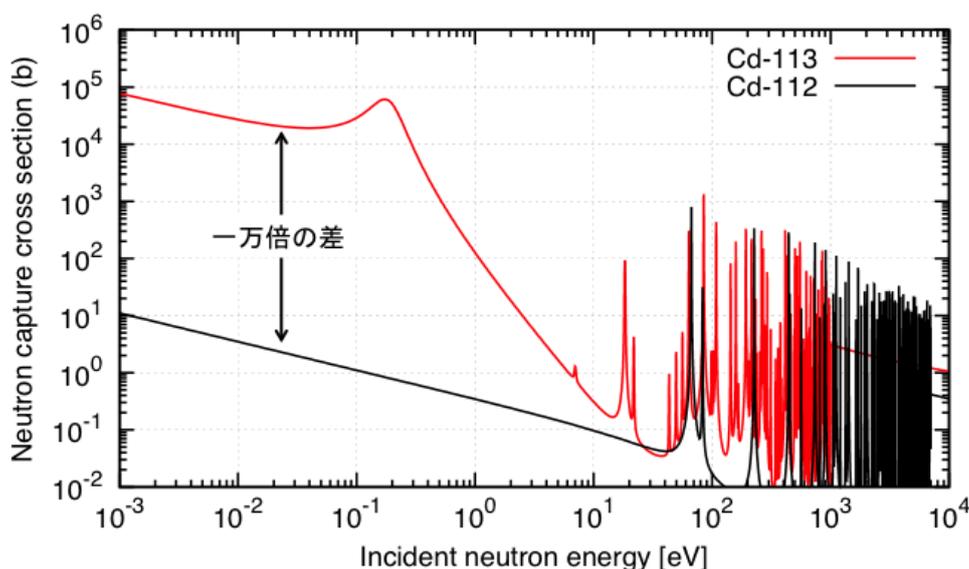


図 2  $^{112}\text{Cd}$  と  $^{113}\text{Cd}$  の中性子捕獲断面積。データは JENDL-4.0 の評価値。

一方で複合核の励起エネルギーが十分に高くなると準位同士が重なり合い、個々の共鳴の個性が打ち消され統計的な扱いが可能になる。この場合、統計模型と呼ばれる原子核反応モデルが威力を発揮し、測定値のない核種でもモデルパラメータの系統性から断面積を計算することができる。もちろん、計算にはある程度の不確定性は伴うが、共鳴領域のように全く予測が困難という状況とは異なる。

上述したように共鳴領域及びそれより低いエネルギーでは断面積を実験値なしで理論予測することは困難である。この「測ってみなければ分からない」という好例がつい最近報告された。米国のグループが不安定核種  $^{88}\text{Zr}$  (半減期 83.4 日) の熱中性子捕獲断面積を放射化法で測定したところ、なんと 861,000 b ( $\pm 69,000$ ) という巨大な値を得たのである [2]。熱中性子捕獲断面積が知られている核種の中で、これよりも大きな値を持つものは、 $^{135}\text{Xe}$  の  $2.6 \times 10^6$  b のみである。つまり、史上 2 番目に大きい熱中性子捕獲断面積を持つ核種ということになる。ちなみに JEFF-3.3 に  $^{88}\text{Zr}$  の断面積評価値が存在するが、その値は僅か 10b である (JENDL-4.0 には  $^{88}\text{Zr}$  は格納されていない)。このことから熱中性子断面積の理論予測がいかに難しいかがよく分かる。

### 3. 過去の測定と今後

ここまで核データ研究における測定の重要性を見てきた。今後、FP核種を含む放射性核種の測定を推進する鍵は試料の入手である。本稿の最初の方に述べたように近年の測定技術の進展は目覚ましく、微量試料でも測定が可能になってきている。試料さえあれば測れる核種も多く存在する。この例としてLLFPのひとつである $^{79}\text{Se}$ が挙げられる。 $^{79}\text{Se}$ はベータ線のみ放出して崩壊する核種であり崩壊ガンマ線が出ない。したがって、バックグラウンドとなる崩壊ガンマ線が存在しないため、十分な量の試料さえあれば容易に測定できるはずである。しかし、これまで $^{79}\text{Se}$ の核データ測定は一つも存在しない。これはひとえに試料の入手の難しさに起因する。

ここで試料入手のポイントをまとめておこう。まず、お金さえ出せばいつでも手に入るというものではない（もちろん高価なので予算は必要である）。入手先を見つけなくてはならない。どこの施設がFP試料を供給できるか探さなくてはならない。FPの場合、使用済み核廃液中に存在するはずであるが、試料として再利用可能な形で保有している施設を探さなければならない。もしくは原子炉や加速を用いて核反応で製造するという方法もあり得る。もちろん製造可能な量には限界がある。

では、どれくらいの量の試料が必要だろうか。これは測定法に大きく依存する。中性子捕獲断面積測定であれば、放射化法の場合、数百 ng から $\mu\text{g}$  オーダー、飛行時間測定法であれば、mg から g オーダーの試料が必要である。

また、試料の入手と共に試料の諸元が重要である。試料の質量、同位体組成、不純物といった情報である。検査成績書に書いてある情報が常に正確とは限らず、誤差が書かれていない場合もしばしばである。したがって自分たちで分析する必要性が生じる場合もある。

今後のFP核データ測定の参考のために特筆すべき試料準備を行なっている過去の実験を2つ紹介しておこう。

一つは旧ソ連で行われた $^{134}\text{Cs}$ と $^{135}\text{Cs}$ の透過測定である[3]。この実験により $^{134}\text{Cs}$ と $^{135}\text{Cs}$ の共鳴パラメーターが決定された。この実験では試料となる $^{134}\text{Cs}$ と $^{135}\text{Cs}$ を安定なCs（化学形CsClを5g）を原子炉で中性子照射することで製造している。124日間の照射を行い、中性子捕獲により56%の $^{133}\text{Cs}$ が $^{134}\text{Cs}$ と $^{135}\text{Cs}$ に転換された。この製造した試料を中性子飛行時間ビームラインに設置し、 $^3\text{He}$ 比例計数管で透過率を測定し共鳴パラメーターを決定した。300日の間隔を空けて2回測定することで $^{134}\text{Cs}$ と $^{135}\text{Cs}$ の共鳴の識別を行なっている。 $^{135}\text{Cs}$ の半減期が230万年であるのに対し、 $^{134}\text{Cs}$ の半減期は2年程度であるため減衰が異なり両者の共鳴の識別が可能である。

もう一つはドイツのカールスルーエで行われた $^{135}\text{Cs}$ のkeV領域の中性子捕獲断面積測定である[4]。この実験では放射性の $^{135}\text{Cs}$ をロスアラモスの質量分析器で同位体濃縮している。Csのイオンビームの中から $^{135}\text{Cs}$ だけを選び出しグラフナイト中にイオン注入

して試料を作製している。他の放射性 Cs ( $^{134}\text{Cs}$  や  $^{137}\text{Cs}$ ) が測定の邪魔になるので、それらを除去するのが質量分析の目的である。分離された  $^{135}\text{Cs}$  の量は約 400 ng である。

$^{79}\text{Se}$  の測定がない理由の一つに試料入手の難しさを挙げた。ならば、過去の  $^{134}\text{Cs}$  と  $^{135}\text{Cs}$  のように原子炉照射で安定な  $^{78}\text{Se}$  から製造するのも一つの可能性のあるやり方である。その際に  $^{78}\text{Se}$  を同位体濃縮した試料を用いることになるが、試料中の同位体不純物が放射化し強い放射能を持つ恐れがある。この場合にはカールスルーエの実験のように照射後に  $^{79}\text{Se}$  を同位体分離することが考えられる。色々な制約があり容易なことではないが手法としては過去に行われたものであり技術的に不可能なことではない。

#### 4. まとめ

以上、FP 核種の核データに関連して、近年の測定技術の進展、測定の重要性について解説した。そして、測定を実施するには試料の入手が鍵となることを強調した。FP 核種の核データの信頼性を向上させるにはさらなる核データ測定が必要である。

核データは言ってみれば原子力工学全般を支えるインフラである。人は道が舗装されるとその利便性に最初は感激する。しかし、慣れてくるとそのありがたみを忘れ、不具合が生じるまではその存在を忘れてしまう。古代ローマの技術者は「メンテナンスなしでも百年もつ道路」を作ろうと堅牢なローマ街道を作ることに余念がなかったという。核データライブラリをより信頼性のあるものとするために、これからも核データ研究者の不断の努力が必要である。

#### 参考文献

- [1] S. Pavetich et al., “Accelerator mass spectrometry measurement of the reaction  $^{35}\text{Cl}(n, \gamma)^{36}\text{Cl}$  at keV energies”, *Physical Review C* 90, 015801 (2019).
- [2] J. A. Shusterman et al., “The surprisingly large neutron capture cross-section of  $^{88}\text{Zr}$ ”, *Nature* 565, 328 (2019).
- [3] V. A. Anufriev et al., “Measurement of total neutron cross sections of  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{135}\text{Cs}$  radionuclides”, *Soviet Atomic Energy* 63, 851 (1987).
- [4] N. Patronis et al., “Neutron capture studies on unstable  $^{135}\text{Cs}$  for nucleosynthesis and transmutation”, *Physical Review C* 69, 025803 (2004).