

話題・解説(III)

2020 年度核データ部会賞

奨励賞

^{93}Zr 及び ^{93}Nb に対する核破碎反応からの同位体生成

日本原子力研究開発機構

J-PARC センター

中野 敬太

nakano.keita@jaea.go.jp

1. はじめに

原子力分野における重要な課題の一つとして、高レベル放射性廃棄物 (HLW) 処理問題が挙げられる。原子力発電の結果生み出される使用済み燃料は再処理され、いわゆる核のゴミである HLW となる。HLW を地下深くに埋設し長期間管理する地層処分が有力な処理法であるが、処分候補地の選定は依然として難航している。一方で、この HLW の別の処理法として核変換があり、日本では 1980 年代より OMEGA 計画等の研究開発が行われてきた。核データニュースの読者ならご存知だと思うが、HLW 中の核種はマイナーアクチノイド (MA) と核分裂生成物 (FP) に大別される。MA の核変換研究としては高速炉や加速器駆動核変換システム[1]の研究開発が積極的に行われている。FP の中でも半減期が 10 万年以上のものを LLFP と呼ぶことがあるが、これらの核種は HLW の長期的な放射能の一因であるにも関わらず、依然としてその核変換シナリオは不透明な状態である。LLFP 核変換の検討には LLFP の核データ及びそれを高精度に記述できる核反応モデルが必要であるが、LLFP 核変換の検討どころか核データの測定例すらほとんどない状況にあった。そこで ImPACT プログラム「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」[2]が 2014 年から 5 年間実施され、プロジェクトの一つとして理化学研究所 RIBF を用いた LLFP の核データ測定が実施された。その中でも私は、LLFP の一つである ^{93}Zr 及び安定核種である ^{93}Nb に対する陽子・重陽子入射核破碎反応における同位体生成断面積の測定及び解析を行った。

^{93}Zr は代表的な LLFP であり、 ^{235}U からの累積核分裂収量が 6.36%[3]と大きいため HLW

中の量も比較的多い。その一方で中性子捕獲断面積は 2.24 barns[4]と他の LLFP と比べても小さく、原子炉による中性子捕獲を用いた核変換は比較的難しいと考えられる。従って、 ^{93}Zr 核変換のための新規核反応経路の探求が必要である。そこで着目したのが高速の陽子や重陽子による核破碎反応である。中性子捕獲反応と異なり、高速の荷電粒子照射では様々な核反応生成物が生み出される。粒子照射による核変換量や照射後の放射能を推定するにはどの核種がどれほど生成されたのか、つまり同位体生成断面積の情報が必要となる。これを踏まえ、 ^{93}Zr に対する核子当たり 105, 209 MeV (以下, MeV/nucleon と表記) の陽子、重陽子入射反応の同位体生成断面積測定が実施されている[5,6]。さらなる反応エネルギーの拡張として、新たに ^{93}Zr に対する 50 MeV/nucleon の陽子、重陽子入射反応の同位体生成断面積を理化学研究所 RIBF にて測定した。

また、最終的な核変換の検討は、実験値を高精度に再現する核反応モデルを用いたシミュレーションによって行われる。この核反応モデルの高精度化には、得られた ^{93}Zr の核データだけでなく、汎化性を担保するために LLFP 近傍の核種の系統的な核データも必要である。このことから ^{93}Zr ($Z = 40, N = 53$) のデータに加え、陽子数と中性子数が一つずつ異なる ^{93}Nb ($Z = 41, N = 52$) に対する 113 MeV/nucleon の陽子、重陽子入射反応の同位体生成断面積の測定も実施した。過去に測定された 105 MeV/nucleon の ^{93}Zr データ[5]と合わせることで、標的核種による再現性の違いを議論することが可能である。本稿ではこれらの実験及び結果について紹介する。

2. ^{93}Zr に対する 50 MeV/nucleon の陽子・重陽子入射反応における同位体生成

同位体生成断面積の測定には放射化学法が広く用いられている。しかし、放射化学法を用いて ^{93}Zr に対する陽子・重陽子入射反応データを測定するには、生成や取扱いが困難な ^{93}Zr の高純度標的が必要である。さらに、核変換で重要となる安定核種生成データの測定は非常に困難である。そこで本研究では、本来標的となる核種のビームを生成し標的に照射する逆運動学法を採用した。つまり、 ^{93}Zr ビームを生成し水素または重水素標的に照射することで、 ^{93}Zr に対する陽子・重陽子入射反応の核データを測定した。逆運動学法を適用することにより、安定かつ天然に存在する水素・重水素標的を使用することができる。さらに、生成核種は重心系に従い前方へ放出されるため、スペクトロメーターを用いて分析を行うことで、安定核種も含めた生成量の見積もりが可能である。

これらのことから、本研究は ^{93}Zr ビームの生成が可能な理化学研究所 RIBF にて RI ビーム生成分離装置 BigRIPS[7]と後段の ZeroDegree Spectrometer[7]を用いて実施した。ビームラインの概観図を図 1 に示す。BigRIPS では ^{93}Zr を含む 2 次ビームの生成及び粒子識別、ZeroDegree Spectrometer では核反応生成物の粒子識別を行った。まず、345 MeV/nucleon に加速した ^{238}U を BigRIPS 入り口に設置している生成標的である ^9Be に照射することで飛行核分裂を起こし、多様な核種を含む 2 次ビームを生成した。2 次ビームは BigRIPS の

第1ステージで分離、第2ステージで粒子識別が行われた。粒子識別はビームライン上の検出器を用いてイベント毎にビーム粒子の飛行時間、磁気剛性率、エネルギー損失を導出し、原子番号 Z と質量電荷比 A/Q を計算することで行う。図2左に2次ビームの粒子識別結果を示す。それぞれの島が一つの核種に対応しており、 ^{93}Zr ビームが得られていることがわかる。2次ビームはその後、ZeroDegree Spectrometer の入り口で反応標的である冷却気体水素・重水素標的に照射された。この核反応で生じた生成核種は2次ビームと同様に ZeroDegree Spectrometer 上の検出器を用いて粒子識別を行った。図2右に核反応生成物の粒子識別結果を示す。本実験では 50 MeV/nucleon と比較的低いエネルギーの2次ビームを用いたため、複数の荷電状態を持った生成核種が見られる。同じ核種でもビームライン上の検出器等を通過する際に電子の剥ぎ取りやピックアップが起こり、異なる電荷を持つため複数の A/Q を取りうる。図2両図から入射粒子数と生成核種数をそれぞれ求め、同位体生成断面積を導出した。

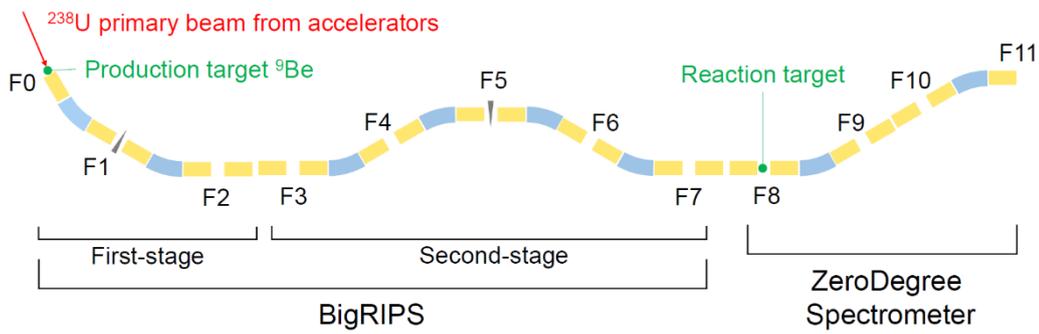


図1 ビームラインの概観図

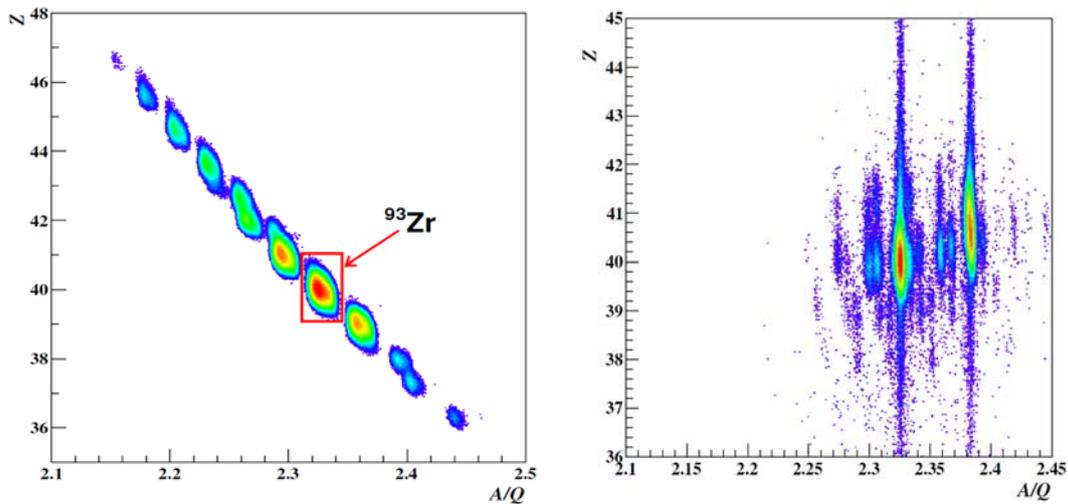


図2 2次ビームの粒子識別図 (左)と H_2 標的における核反応生成物の粒子識別図 (右)

図 3 に得られた同位体生成断面積を示す。上段及び中段は過去に測定された 209 及び 105 MeV/nucleon の陽子、重陽子入射反応における同位体生成断面積[5,6]であり、下段は本研究で得られた約 50 MeV/nucleon のデータである。51 MeV 陽子入射反応の実験結果に着目すると、105 MeV では見られなかった Y 同位体における ^{87}Y 生成断面積の急激な増加が確認できる (図中青矢印)。TENDL-2018[8]によると、陽子の入射エネルギーが 50 MeV 付近で $^{93}\text{Zr}(p, x)^{87}\text{Y}$ の励起関数はピークを持つことがわかっており、そのピークに相当する大きな断面積が得られたと考えられる。核内カスケードモデル INCL4.6 と蒸発モデル GEM の組み合わせによる計算結果を実線及び破線で示した。計算値は 50 から 200 MeV/nucleon の範囲で絶対値と形状共に実験値を良く再現していることがわかる。先述の ^{87}Y 生成断面積は値が少し小さいものの、形状自体は十分に再現できている。しかしながら Nb 同位体生成に着目すると、質量数 1 つ分のずれが計算値と実験値に見られることがわかる。また、質量数のずれにも関係するが、Nb と Y 同位体の中性子欠乏領域で計算値が過小評価している。さらに、 ^{92}Zr と ^{92}Y といった ^{93}Zr 近傍核種の生成断面積は過大評価されることが判明した。

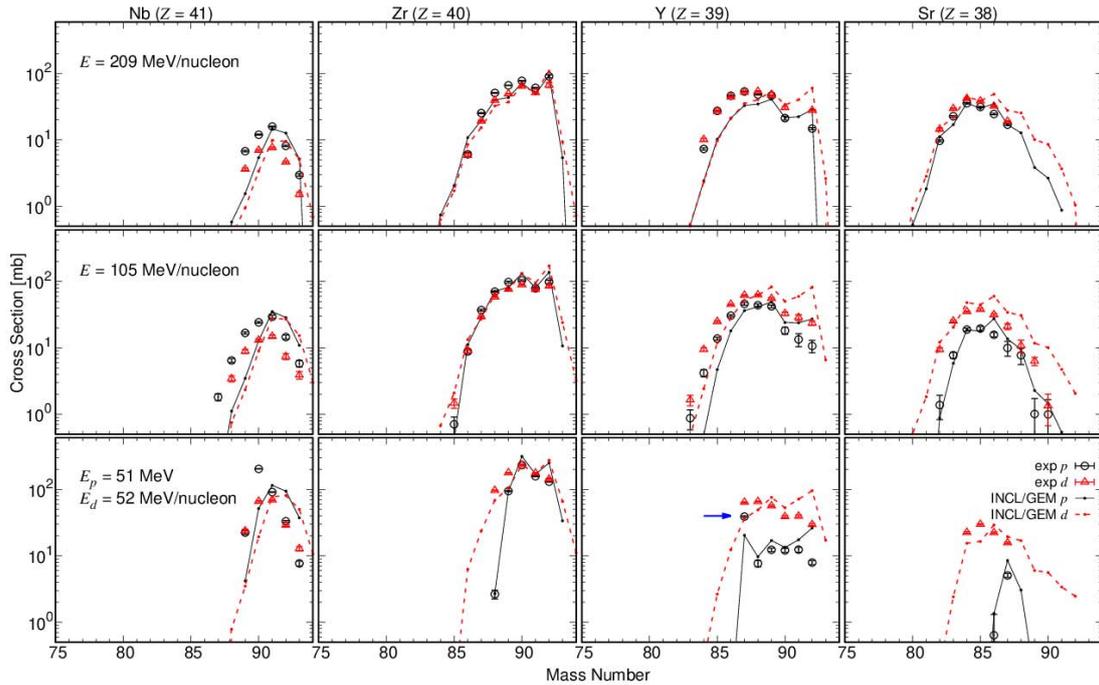


図 3 ^{93}Zr に対する陽子 (黒) 及び重陽子 (赤) 入射反応による同位体生成断面積

図 4 は得られた同位体生成断面積の実験値を生成核種の半減期ごとに分類し積み上げ棒グラフに示したものである。グラフ中の数字は各半減期核種の生成量が測定された断面積のうちで占める割合を示したものである。緑色で図示した安定核種の生成割合に着目すると、いずれもエネルギーが高いほど小さくなることがわかる。この内訳は安定 Zr

同位体が多くを占めており、エネルギーが低いほどこれらの核種が生成されやすいため割合が多くなる。一方で、エネルギーが低いほど半減期 3 万年以上の長半減期核種の割合、量ともに大きい。 ^{93}Zr から生成される主な長半減期核種の ^{92}Nb は、エネルギーが低いほど生成されやすいため、このような傾向が得られたと言える。

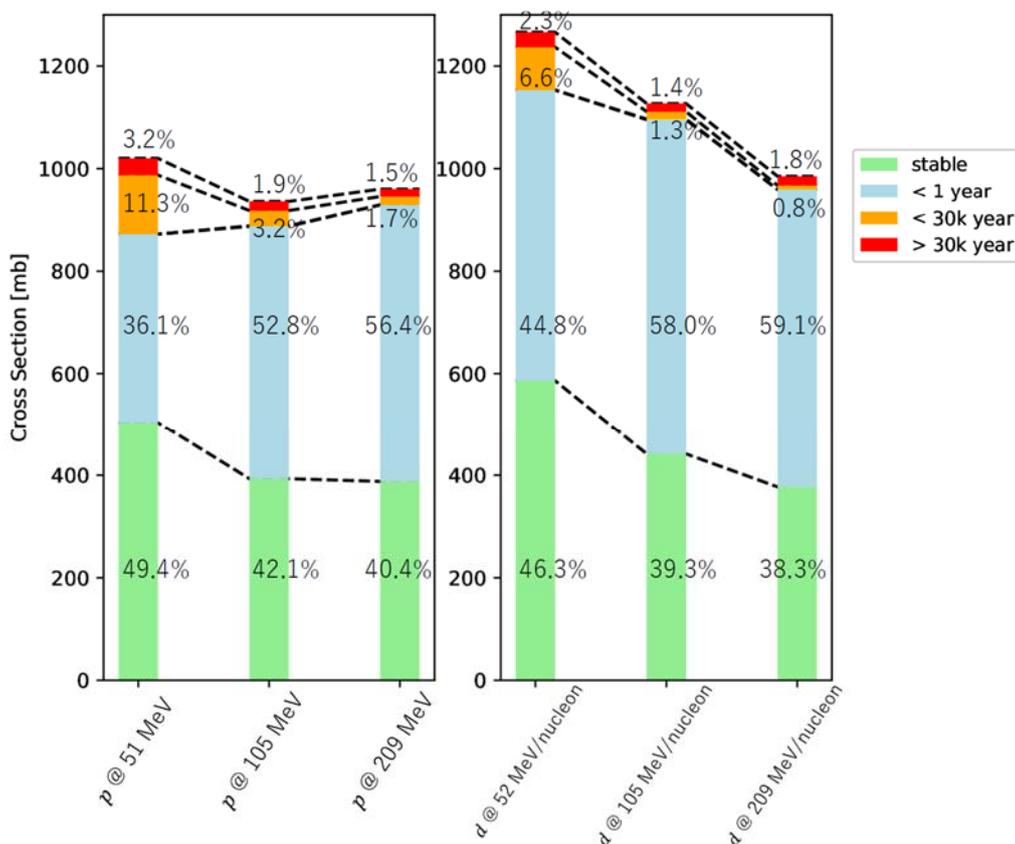


図 4 同位体生成断面積の半減期による分類

3. ^{93}Nb に対する 113 MeV/nucleon の陽子・重陽子入射反応における同位体生成

^{93}Nb の実験も 2 章で述べたように理化学研究所 RIBF の BigRIPS と ZeroDegree Spectrometer を用いて実施した。実験と解析の大筋は同じであるため、詳細は割愛する。この実験は ^{93}Zr に対する 105 MeV/nucleon の陽子・重陽子入射反応における同位体生成データ[5]の測定を主目的とした実験であり、図 5 左の 2 次ビーム粒子識別図に示すように、 ^{93}Nb の他に ^{93}Zr の 2 次ビームが含まれている。また、この実験では本研究で示す ^{93}Nb や ^{93}Zr [5]だけでなく、2 次ビームの粒子識別図中に見られる ^{92}Zr や ^{91}Y に対する陽子・重陽子入射反応の同位体生成断面積も測定することができた[9]。図 5 右に ^{93}Nb ビームを選択した際の生成核種の粒子識別図を示す。50 MeV/nucleon の ^{93}Zr 実験と同様に、図 5 両図から入射粒子数と生成粒子数を得ることで同位体生成断面積を求めた。

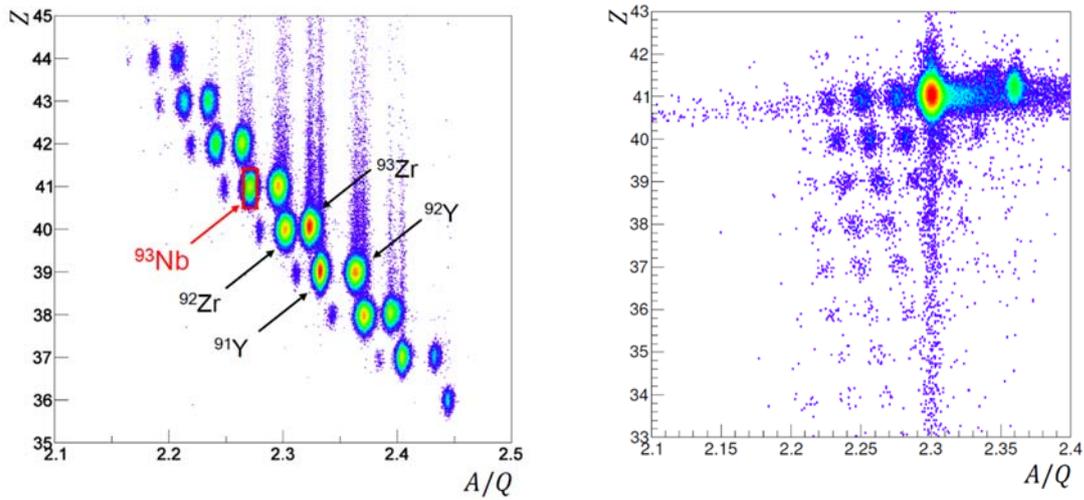


図5 2次ビームの粒子識別図 (左) と CH₂ 標的における核反応生成物の粒子識別図 (右)

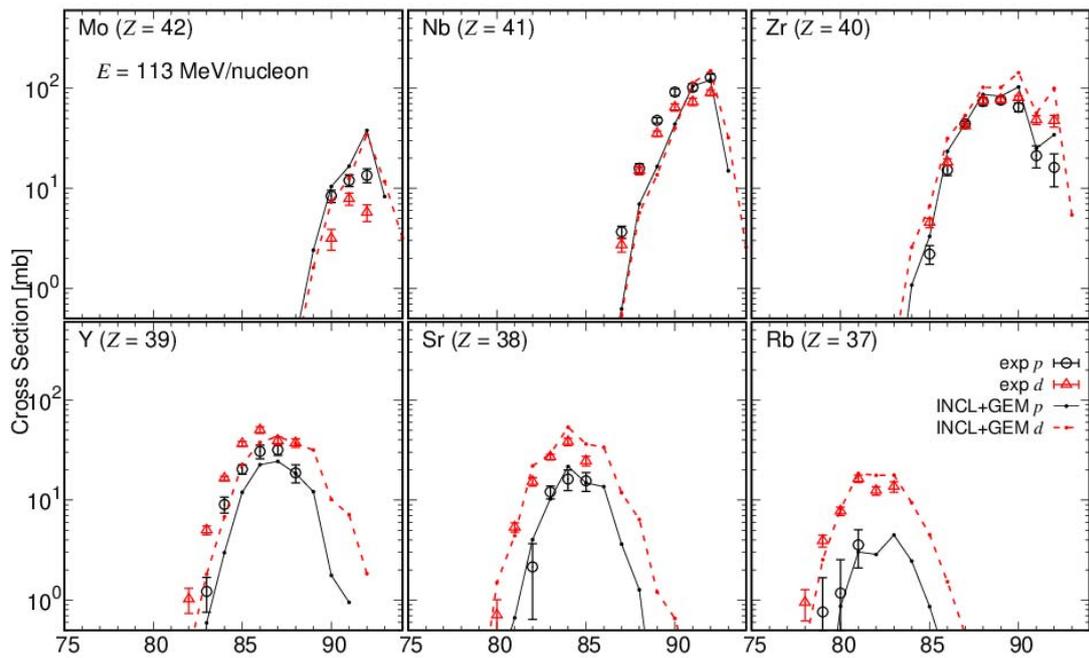


図6 ⁹³Nb に対する陽子及び重陽子入射反応による同位体生成断面積

図6に得られた同位体生成断面積及び INCL4.6 と GEM による計算値を示す。2章で述べたように、PHITS による計算値は概ね実験値を再現していることがわかる。しかしながら、⁹³Zr の結果と同様に再現性の悪い点も見られた。特に Nb と Y 同位体の中性子欠乏領域では、2章に示した ⁹³Zr データと同様に実験値を過小評価している。つまり、この反

応エネルギー帯では、 ^{93}Nb , ^{93}Zr 標的に共通してこの過小評価が見られた。 Nb 同位体の過小評価に着目すると、 ^{93}Zr データのみでは (p,pxn) 反応を過小評価するのか、あるいは Nb 同位体生成を過小評価するのか断定することはできない。しかし、 ^{93}Nb データでも同様に Nb 同位体の生成に過小評価が見られたため、(p,pxn) 反応ではなく、 Nb 同位体生成を過小評価することが両実験データから推測できた。

3. おわりに

高レベル放射性廃棄物処理問題の解決に向け、LLFP に対する核変換研究が ImPACT プログラムの枠組みで実施された。核変換の検討に不可欠な同位体生成断面積の測定を LLFP である ^{93}Zr 及び隣接する安定核種である ^{93}Nb に対して行った。 ^{93}Zr 及び ^{93}Nb のデータでは共にいくつかの過大評価、過小評価が見られ今後の核反応モデルの改良や LLFP の核変換検討に有用な知見が得られた。

4. 謝辞

本研究は九州大学在学中に博士課程の研究テーマとして実施したものです。ご指導いただいた渡辺幸信教授にはこの場を借りて改めて感謝申し上げます。両実験へのご協力とデータ解析の指導、結果の議論をしていただいた九州大学の川瀬頌一郎助教授、理化学研究所の大津秀暁博士、Wang He 博士、当時東京工業大学の武内聡博士をはじめとする ImPACT-RIBF collaborator の皆様に感謝申し上げます。また、渡辺幸信研究室の皆様のおかげで充実した研究室生活を送ることができました。感謝申し上げます。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] K. Tsujimoto et al., J. Nucl. Sci. Technol. 44, 483-490 (2007).
- [2] ImPACT Program. <https://www.jst.go.jp/impact/program/08.html>.
- [3] J. Katakura, JAEA-Data/Code 2011-025 (2012).
- [4] K. Shibata et al., J. Nucl. Sci. Technol. 48, 1-30 (2011).
- [5] S. Kawase et al., Prog. Theor. Exp. Phys. 2017, 093D03 (2017).
- [6] S. Kawase et al., JAEA-Conf 2018-001 (2018).
- [7] T. Kubo et al., Prog. Theor. Exp. Phys. 2012, 03C003 (2012).
- [8] A.J Koning et al., Nuclear Data Sheets 113, 2841 (2019).
- [9] Y. Watanabe et al., Proc. Of the 15th International Conference on Nuclear Reaction Mechanisms 139-143 (2019).