

話 題 (Ⅲ)

IAEA 専門家会議 「超アクチニウム元素同位体の崩壊データの 現状と要求」に出席して

(原 研) 白 田 重 和

1. はじめに

1989年11月 7日から 9日の3日間、IAEA本部において、“超アクチニウム元素同位体の崩壊データの現状と要求”に関するIAEA専門家会議が開催された。本会議の目的は、1986年に出版された IAEA Technical Report No.261 “超アクチニウム元素同位体の崩壊データ”¹⁾の改訂版の原案をつくるため、1986年以降の崩壊データの現状と要求を調査し、見直しを行うことにあった。このIAEAレポートは、アクチノイド同位体の崩壊データの reference standard としての性格を持ち、核燃料サイクルに関連する各分野で利用されている。

本会議の出席者は、N.Coursol(Saclay)、A.J.Fudge(Harwell)、A.L.Nichols(Winfrith)、C.W.Reich(Idaho)、W.Bambynek(Geel)の各氏、それに私の6名であった。IAEAの Department of Research and Isotopes Division of Physical and Chemical Sciencesの担当者H.D.Lemmel氏及び同部長のJ.J.Schmidt氏も同席した。

ここでは、予備調査、会議での崩壊データの見直し及び会議の確認事項等を述べ、現時点での超アクチノイド同位体の崩壊データの状況、要求及び問題点を明らかにする。

2. 予備調査

会議に先立ち、実際に崩壊データを測定、評価あるいは利用している研究者を中心に超アクチニウム元素同位体の崩壊データの現状と要求に関する意見を伺った。文献調査による限りでは、ここ数年における日本での崩壊データの測定はあまり活発ではない。これらの意見及び調査を踏まえて、IAEAへレポートを提出した。

2. 1 現状と要求に対する調査

(1) 核燃焼・消滅処理計算に関連するアクチノイド核種の崩壊データ

中川らは、“核燃料サイクル用核データ、現状と問題点”のなかでウラン、プルトニウムとそれ以外のマイナーアクチノイドの核データの現状及び役割をレビューし問題点を述べている²⁾。その中でも触れられているが、中原らは PWR使用済燃料の核種分析による実測値とORIGEN 2及びSRAC-FPGS燃焼計算コードによる計算値を比較し、マイナーアクチノイド(例えば、²³²U、²³⁶Pu、

^{242}Pu 、 ^{243}Am 、 ^{244}Cm の生成量と燃焼率に対して、実測値と計算値は系統的な差(10~40%)を生じたと報告している³⁾。この主な原因は、中性子に関連する核データの不確かさ、欠如のためである。高野らは、具体的な例として $^{237}\text{Np}(n,2n)$ 反応により ^{236m}Np 及び ^{236}Np が、また $^{241}\text{Am}(n,\gamma)$ 反応により ^{242m}Am 及び ^{242}Am が生成する際のBranching ratioの不確かさがマイナーアクチノイドの生成・消滅の評価への影響を重大なものとしていると報告した⁴⁾。また、ウラン、プルトニウム以外の重い核種の核分裂収率、遅速中性子の発生個数・その分布などについての実測データが欠如しているものがある。これらの中性子に関連する(特に、スペクトルが硬い場合)核データがまだ整備されていないことが、核燃焼・消滅処理計算をする場合ネックになっている。この問題が解決されれば、関連する核種については、さらに高い精度の崩壊データが期待されることになる。例えば、 ^{244m}Am 及び ^{244}Am の半減期は短い、 σ_f が大きい重要な核種となり、その崩壊データの精度が要求されるであろう。

近年、回収ウランの燃料加工を行う場合、 ^{232}U の娘核種による被曝が問題になっている。河野らは、使用済燃料中の ^{232}U 及びその親核種の ^{236}Pu を定量⁵⁾しそれら核種の生成量を評価しているが、 ^{236}Pu の半減期の評価値・推奨値がもつ誤差(3.5%)がこの評価に対する不確かさの最大原因になっていると指摘している。

(2) 数10 gで臨界に達する可能性のある特殊なアクチノイド核種の崩壊データ

マイナーアクチノイドの臨界質量を評価する場合、その核データをはじめ各種物性値が問題になる。奇数中性子を有するある特殊なマイナーアクチノイドは、数10 g以下でも臨界に達する可能性がある。これら核種(例えば、 ^{242m}Am 、 ^{242}Am 、 ^{249}Cf 、 ^{251}Cf)の崩壊データの精度は必ずしもよくない。将来、消滅処理のためにアクチノイドの群分離処理を行う場合、また熱中性子の σ_f が最大といわれる ^{242m}Am を宇宙船の小型原子炉燃料として設計する場合、その崩壊データの精度が問われるであろう。

(3) プルトニウム同位体のX線の放出確率

エアロゾルで吸入され人体の肺に沈着したアクチノイド(特にプルトニウム同位体)の量を評価するには、L X線をはじめとするソフトなX線を測定して α 核種の絶対量を推定することができる⁶⁾。また、エネルギーの異なるX線の吸収の程度が分れば沈着しているアクチノイドの傷口の深さが推定できる。IAEA Reportでは、L X線の放出確率については評価の対象となっていないものが多い。プルトニウム同位体のX線の放出確率については、保証措置に関連する分析技術の確立の観点からも重要と思われるので、これらの評価値が要求される。

(4) 幾つかの核種の自発核分裂部分半減期

筆者ら(1989)は、 ^{242}Cm を例にアクチノイド核種の自発核分裂部分半減期の測定法について考察した⁷⁾。一般にアクチノイド核種の自発核分裂部分半減期の精度は低く、また α 半減期のような良好なシステムチェックは見出されていないことを指摘した。特に、 ^{232}Th 、 ^{232}U 、 ^{233}U 、 ^{237}Np 、 ^{236}Pu 、 ^{239}Pu 、 ^{244}Pu 、 ^{242m}Am 等については、精度の低い1、2件の測定値しかなく、しかも20~30年前のかなり古いデータが多い。

2.2 日本での崩壊データ測定

(1) ^{236}Pu の半減期

Nakanishi et al. (1984) は、Yield tracerとして ^{236}Pu を用いて海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ の濃度を定量する際、 α 線スペクトロメトリを用いて $^{236}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比及び $^{236}\text{Pu}/^{242}\text{Pu}$ 放射能比から ^{236}Pu の半減期 1046.9 ± 3.1 dを求めた⁹⁾。IAEAレポートの推奨値は 2.9 ± 0.1 yであり、その精度はよくないが、最新のHoldenの評価ではこの測定値 2.87 ± 0.01 yが採用されている⁹⁾。

(2) ^{242}Cm の全半減期及び自発核分裂部分半減期

著者ら(1981)は、 ^{242}Cm の半減期を測定し、 161.35 ± 0.30 dなる値を報告した¹⁰⁾。しかし、この値は他の測定値より1%程度低いものであった。その後、独立した3法を用いて再測定を行った¹¹⁾。第1の方法は前回と同様なグロスの α 放射能測定法、第2の方法は比較的lowジオメトリで測定された α 線スペクトロメトリ、第3の方法は今まで実施されたことのない γ 線スペクトロメトリである。その平均値は、 161.41 ± 0.28 dであり、前回の値と一致した。

さらに、マイカ検出器を用いて自発核分裂数を絶対的に計数する方法または比較的信頼性の高いデータが得られている ^{242}Pu をレファレンスに用いる方法で測定し、 ^{242}Cm の自発核分裂部分半減期 $(6.96 \pm 0.18) \times 10^6$ yなる値を報告した¹²⁾。

(3) ^{246}Cf の半減期、 α 線の放出確率及び α/EC 崩壊の分岐比の測定

M. Magara et al. (1989)は、 $^{238}\text{U} + ^{12}\text{C}$ 反応により ^{246}Cf を合成し、その半減期 46.4 ± 0.3 min、 α 線の相対的な放出強度及び α/EC 崩壊の分岐比 0.56 ± 0.04 を測定した¹³⁾。 α 線の相対的な放出強度についてのデータは、初めての報告である。

(4) ^{221}Pa 及び $^{218,219}\text{Ac}$ の α 崩壊

H. Miyatake et al. (1989)は、 ^{221}Pa の α 線エネルギーが 9.08 ± 0.03 MeVであることを初めて報告するとともに ^{221}Pa 、 ^{218}Ac 及び ^{219}Ac の半減期がそれぞれ 5.9 ± 1.7 、 1.06 ± 0.09 、 11.8 ± 1.5 μs であると報告した¹⁴⁾。

3. 崩壊データの見直し及び確認事項

会議では、各出席者の研究及び調査結果が報告された。会議で入手した資料は、参考文献9)及び15)~20)に示す。トリウム同位体から ^{252}Cf までの核種について、全半減期、部分半減期、崩壊の際放出する放射線の放出確率等崩壊データに関する現状と要求を討論し、推奨値を見直した。対象となった核種は、 ^{236}Pu 及び ^{238}U の娘核種を除いて、原則としてIAEAレポートで取上げたものに限られた。核種毎の崩壊データの見直しが終了した後、まず報告及び討論内容のまとめを分担し、次に全体でその草案内容を討論した。以下に、その結果確認された概要を述べる。

3.1 前書き

1986年に出版された、CRPにより作成されたIAEA Technical Report No.261は超アクチニウム元素同位体の崩壊データのreference standardとして国際的承認を得ている。その後、幾つかの新たな測定データ及び評価データが公表されたので、本IAEAレポートの更新が必要となった。

本専門家会議は、IAEAが以下に述べる変更と追加を含む改訂版を1990年の終りまでに出版するよう求める。即ち、A.L.Nicholsによる ^{236}Np とその娘核種に関する新評価（すでに終了）及び、N.Coursolによる ^{230}U とその娘核種及び ^{237}Np の新評価（まもなく終了）を、もとの範囲に補足する。また、 ^{237}Np に関してはC.W.Reichが、 ^{241}Pu の半減期に関してはA.L.Nicholsが、新評価を執筆する。

3.2 勧告

改訂版は、Part I（要求の査定と現状）の Table 1（超アクチニウム元素同位体の崩壊データの現状と要求）で確認された崩壊データ及び Part II（測定及び評価されたデータ）で評価された崩壊データを調査することに重点を置く。

(1) 改訂版の記載について

① IAEA担当者により調査され、且つ本会議の討論により更新された崩壊データについて、本レポート Part I、Table 1 の "Achieved accuracies" のカテゴリーに記載すること。現時点では、本Table中の "CRP activities" 及び "Comments" の覧、同様にPart I の関連した記述文においても、適切な修正を記入すべきである。

② Part II 中の核種に関連するデータの改訂は、Part III (CRPで推奨されたデータ)で扱われているデータのリストと一体化すること。更に、残ったデータについては、例えばNuclear Data Sheetsと同程度に、新しい情報と更新されることが望ましい。後者の更新は、熟練した専門家に依頼すべきであり、且つその結果は発表する前に本専門家会議のメンバーによりレビューされるべきである。

(2) ^{230}U 娘核種の崩壊データに関する評価

^{234}Th 及び $^{234\text{m}}\text{Pa}$ の崩壊データ、及び環境中の ^{222}Rn による Health hazardに関連して ^{230}U を先頭とする崩壊チェーンの核種の崩壊データを評価すること。

(3) LX線放出確率に関する評価

プルトニウム同位体のLX線放出確率に関する評価データがないことは注目に値する。このデータは、実用上重要であるが、本IAEAレポートでX線の放出確率を取上げていないことは不適當である。IAEAは、重要なプルトニウム及び他の超アクチニウム元素同位体のLX線データの評価を着手すべきである。

(4) プルトニウム及びアメリシウム核種の α 及び β 崩壊に伴う γ 線の放出確率

プルトニウム及びアメリシウム核種の α 及び β 崩壊に伴う γ 線は、最近のプルトニウム同位体組成の非破壊測定（特に、保証措置分析）に利用されている。同位体標準物質の測定の結果、プルトニウム同位体の $P\gamma$ 値が得られ、低い不確実さを持つ絶対値が 広く使われている。これらのデータは、確かに実用上便利であるが、直接 $P\gamma$ 測定から得られたデータと比較できるものとしてみなすことはできない。

3.3 特記すべき崩壊データの問題点

現時点では、以下の6項目が未解決の特記すべき問題点として取上げられる。

(1) ^{241}Am 59.5 keV γ 線の放出確率測定値の不一致

59.5 keV ^{241}Am の γ 線放出確率について、Deneche (1987)が極めて精度の高い測定値 0.3636 ± 0.0017 を報告しているが、この値は Hutchinson 及び Mullen (1983)の測定値 0.3582 ± 0.0012 とは有為な差 (約1.5%) がある。この問題は絶対測定法を用いて解決する必要がある。Bambynek は、現在までの測定値を再評価し、 0.360 ± 0.004 なる値を推奨している。

(2) ^{242}Cm の半減期測定値の不一致

著者が本会議で報告した独立の3法による ^{242}Cm の半減期の測定値 161.38 ± 0.32 d は、以前に報告した値 161.35 ± 0.30 d を支持している。しかし、これらの値は、IAEA CRPが前に採用した値 162.94 ± 0.06 d より有為な差 (約1%) で小さい。この不一致を解決する必要がある。

(3) ^{252}Cf の半減期測定値の不一致

IAEA CRPの最終レポートで指摘されている ^{252}Cf の半減期の測定値の不一致は、未だ解決されていない。即ち、Smith(1983)は、 ^{252}Cf の半減期には 2.638 y 及び 2.651 y で代表される二つのグループの測定値があると指摘している²¹⁾ (IAEA推奨値: 2.645 ± 0.008 y)。

(4) 高精度の ^{237}Np の半減期測定

^{237}Np の半減期は、Brauer et al.(1960)の高精度の測定値 $(2.14 \pm 0.01) \times 10^6$ y の1件のみである²²⁾。この重要なデータについては信頼性を高めるためもう1件の高精度の測定が望まれる。

(5) ^{241}Pu の半減期評価

^{241}Pu の半減期については、 14.4 ± 0.1 y の評価値を採用していたが、Likes et al.(1988)²³⁾ の値 14.355 ± 0.040 y をはじめ数件の高精度の測定値が報告されている。この半減期についてはより精度の高い評価が行われるべきである。

(6) ウラン、プルトニウム、アメリシウム及びキュリウム核種の自発核分裂半減期

Holden (1989) は、ウラン、プルトニウム、アメリシウム及びキュリウム核種の自発核分裂半減期のデータを評価し、以下のコメントを述べている。すなわち、U: すべて適当なデータが望まれる、Pu: 偶-偶核のデータは妥当、偶-奇核は測定が必要、Am: 241, 242m, 243のデータは満足できない、Cm: 242及び244は再評価が必要、他は満足。

4. あとがき

予備調査では、現時点では精度の高い崩壊データを求める厳しい要求はないが、中性子に関連する核データの不確かさ及び欠如に起因する問題点が解決されれば、将来崩壊データについても見直しがきつと必要になるであろうとの感触であった。しかし、私以外の会議出席者は、必要な崩壊データについてはより高い信頼性を求めて精力的に測定を継続するとともに、報告された崩壊データに対し評価も行っており、その並々ならぬ熱意と積極的姿勢には深い感銘を受けた。

超アクチニウム元素同位体の崩壊データ間の不一致について、”独特の不一致が存在し続けるであろうから、その解決も要求され続けるであろう”、と単純未来形で表現されていたことが印象的であった。10年程前、突然 ^{242m}Am の半減期が152 yから約10%短い141 yに再評価されたこと

が記憶に新しい。統計的な物理定数を測定する場合の宿命的なものを感じた。本IAEAレポートが再版された後、数年経てば再びレビューする必要性が生じると思われる。

最後に本会議に出席するにあたり大勢の方々の御指導・御協力を戴いた。特に、前回までの出席者梅沢弘一及び岡下宏の両氏には、大変お世話になった。これらの方々に感謝の意を表する。

参考文献

- 1) Technical Reports Series No.261, "Decay Data of the Transactinium Nuclides", IAEA, Vienna, STI/DOC/10/261, ISBN 92-0-135086-4, printed by the IAEA in Austria, 1986.
- 2) 中川庸雄 他, 日本原子力学会誌, 31, 1083-1092 (1989).
- 3) Y.Nakahara et al., Radiochim. Acta (in press).
- 4) 高野秀機 他, JAERI-M 89-072 (1989).
- 5) 河野信昭 他, 私信 (1989).
- 6) 城谷孝, JAERI-M 9133 (1980); T.Shirotani, Health Physics, 50, 860 (1986).
- 7) 白田重和, 梅沢弘一, 放射線, 16, 73-81 (1989).
- 8) T.Nakanishi et al., Nucl.Instr.Methods in Physics Research, 223, 239-242 (1984).
- 9) N.E.Holden, Pure & Appl.Chem., 61, 1483-1504 (1989).
- 10) S.Usuda, H.Umezawa, J.Inorg.Nucl.Chem., 43, 3081 (1981).
- 11) 白田重和 他, JAERI-M 90-030 (1990).
- 12) S.Usuda, H.Umezawa, Nucl.Tracks Radiat.Meas., 16, 247-251 (1989).
- 13) M.Magara et al., submitted to Phys.Rev.C.
- 14) H.Miyatake et al., Nucl.Phys., A501, 557-567 (1989).
- 15) W.Bambynek, GE/R/RN/12/89, 1989.
- 16) A.L.Nichols, IAEA専門家会議へのレポート(Transactinium Decay Data: 4n Decay Chain and Other Relevant Work), 1989.
- 17) E.Browne et al., LBL-26801 (1989), submitted to Nuclear Physics A.
- 18) R.G.Helmer et al., Nucl. Phys., A474, 77-113 (1987).
- 19) C.E.Bemis, Jr., et al., Physica Scripta, 38, 657-663 (1988).
- 20) C.E.Reich, EGG-2497, 1987.
- 21) J.R.Smith, Rep.EGG-PBS-6406 (1983).
- 22) F.P.Brauer et al., J.Inorg.Nucl.Chem., 12, 234-235 (1960).
- 23) J.L.Parker et al., Appl.Radiat.Isot., 40, 793-799 (1989).