

解説 (I)

長寿命放射性廃棄物核種の中性子吸収断面積の測定

動力炉・核燃料開発事業団

加藤 敏郎*

e-mail: UE6T-KTU@asahi-net.or.jp

原田 秀郎

中村 詔司

* 動力炉・核燃料開発事業団嘱託 岐阜医療技術短期大学

1. はじめに

東芝の吉田正さん（現：武蔵工大）からこの題目で私達の仕事を紹介しないか、というお誘いを受けた。この機会にこの仕事が通常の断面積測定とは異なる面を持っていることをお知らせしたい。

長寿命の放射性廃棄物核種の処理処分の方法の一つとしてそれらの核種を加速器または原子炉を用いて核変換を起こさせて短寿命核あるいは安定核に変える消滅処理法の開発研究が進んでいる。そのための基本的な核データとしてそれらの核種の核反応断面積が重要であるが、その測定値は古いものが多く、また測定値相互の間に相違があったりして信頼できるものは少ない。そこで最近の測定技術を用いて新たに放射化法で中性子吸収断面積（原子炉による消滅処理法の基礎データ）の測定を行った。信頼できる測定値が少ない理由はターゲット核自身が放射性であるために取り扱いに特別の注意を払う必要があること（場合によっては法律上の問題をクリアしなければならないこと）、実験者の放射線障害を避けるためターゲットの量に制限があること、ターゲット内の目的の核種が放射性の場合は、その原子核数を正確に求めることが難しいことなどである。また、測定を放射化法で行う場合は放射性のターゲット核からの放射線が測定バックグラウンドとなり、検出器の不感時間が増加したり測定結果の不確定さが増加したりすることもある。試料照射後に出来る放射性不純物もバックグラウンドとなり、これを除去するための化学分離を行うことにすれば化学分離の効率を精度よく求める必要がある。

とくにターゲット内の目的核種の原子核数は断面積の測定値に直接関係する量である

ので、正確に求める必要がある。安定核をターゲットにする場合には自然存在比を持った純粋な試料（化合物であっても成分が正確に分かっておればよい）の質量を天秤で精度よく測定して自然存在比とアボガドロ数からターゲット内の原子核数を求めることができる。しかし、ターゲットが放射性核種の場合は生成の履歴によってその存在比は異なり（しかも不明のことが多い）、したがって上記の方法でターゲットの原子核数を求めることはできない。ここに放射性核種の断面積測定の大きな問題点がある。私達もこの問題で頭を抱えた。過去の少ない実験例によるとターゲット核の放射能強度から求めているようであるが、放射能強度から原子核数を導くためには測定器の立体角や測定器の感度（効率）に関する正確な情報が必要であり、それらの補正をしなければならぬ。また、その放射能強度としてどれくらいが適当かということは実験者の放射線障害防止の観点と生成核種の量（少ないと測定にかからない）との兼ね合いで難しい問題である。生成核の数が十分になるようにするためにターゲット核の量を増せば実験者の防護とあわせて、測定上でもバックグラウンドや不感時間が増したりする。このように多くの難問があったが、核反応による放射能生成の式を見ているうちに ^{137}Cs の場合には案外簡単にこれらの問題を解決する方法（後述）があることに気がつき、 ^{137}Cs の実験でターゲット核の数の問題点を克服することが出来た。このため、その他の核種についても測定を実施する意欲が出てきて、この方法が不適當な場合でも核種ごとにこの原子核数を求める方法を考案して測定を行うことができた。ターゲット核が放射性であることによる不可避のバックグラウンドによる計数率の増加は高速電子回路を利用して不感時間が少なくなるようにした。照射による不純物放射性核種は半減期の差を利用したり、可能な場合（後で説明する）には化学分離を行って除去した。ガンマ線検出器は大型のゲルマニウム検出器（効率： $3'' \times 3''$ NaI に対して 90%）を使用したので測定のス/N比（ピークカウント/バックグラウンド比）と分解能を上げることができた（過去の測定では NaI シンチレーション計数管を使用している）。

対象とした核種は核分裂生成核種(F.P.)のうち長寿命のもの (^{99}Tc , ^{129}I , ^{135}Cs) および核分裂生成率の大きいもの (^{90}Sr , ^{137}Cs) である。以下にその概要を報告する。

2. ^{137}Cs の中性子吸収断面積の測定

実験は ^{137}Cs の断面積測定から始めた。 ^{137}Cs は標準試料としてよく使用される核種であり、核物理的性質がよく分かっており、また、市販されているので試料を入手しやすい。放射性核種の断面積測定は初めてなので取り付きやすいところから始めることにした。

a) 過去の測定

^{137}Cs の中性子吸収断面積の測定値は私達の測定以前は 1960 年の *Stupegia* の測定値

があるのみである。その実験を私達の実験との比較のために簡単に紹介する。

Stupegia の実験ではターゲット核種の原子核数は ^{137}Cs の崩壊率から求めた。使用した ^{137}Cs は約 22.6 MBq (約 610 μCi) で、これはかなり強い放射能である。これを 4" x 3" の NaI シンチレーション検出器で計測した。検出器での計数率から崩壊率を求めるためには 1 崩壊に対するガンマ線の放出率の他に、検出器の検出効率 (立体角を含む検出効率) を知る必要がある (ターゲットの線源強度が強いので検出器と線源との距離はかなり離れており、この立体角は後の中性子照射後の試料測定の時とは異なっている)。換言すればこれらのデータの不確かさが誤差の原因になる。この試料をアルゴンヌの CP-5 炉の気送管 (中性子束: 10^{13} n/s) で照射し、生成核の放射能測定を行って、中性子吸収による生成核の量を決定した。中性子束は金でモニターした。照射後の試料の放射線測定は 4" x 4" の NaI 検出器で行った。この測定では ^{137}Cs の量が生成核 ^{138}Cs の 1 万倍 (実験条件により異なる) である。また、中性子照射後の試料には放射性不純物が混じっている。これによって不感時間が増加し、また多重サム効果によるバックグラウンドも増加する。それを避けるために Stupegia はガンマ線の低エネルギー部分 (^{137}Cs のガンマ線のエネルギーは 0.6616 MeV, ^{138}Cs のガンマ線のエネルギーは 1.010, 1.436 および 2.218 MeV) を鉛の吸収板を用いて減衰させ、さらにディスクリミネーターで 1.8 MeV 以下の低エネルギー部分をカットした (このため ^{137}Cs の強度測定は上に述べたように別に行っている)。このような測定を行ったため、 ^{138}Cs のガンマ線に対しても鉛による吸収の効果を考慮する必要が生じ、解析にはそれがあまり大きくないと思われる 2.218 MeV のガンマ線を使用した (この場合も吸収の補正は必要)。しかも、このガンマ線ピークにも不純物放射性核種の ^{38}Cl からの 2.17 MeV のガンマ線ピークが部分的に混じるのでその影響を補正する必要があった。また、ガンマ線ピークの下バックグラウンドも大きい。Stupegia は断面積の測定値として 0.110 ± 0.033 バーンを報告しているが、この値を出すまでにこのようにかなりの補正を行っており、その補正の確かさが問題であり、結果の信頼度はあまり高くない。そこで私達はこの断面積を再測定することにした。実験では幾つかの新しい方法を採用した。

b) 私達の実験

私達は次の原理による放射化法で測定した。放射性のターゲット核種の原子核数を N_1 とし、中性子照射による生成核種の原子核数と崩壊定数をそれぞれ N_2 および λ_2 とすると N_2 の生成率は

$$\frac{dN_2}{dt} = N_1 R - \lambda_2 N_2 \quad (1)$$

で表される。ここで R は反応率で $R = \bar{\sigma}\phi$ であり、 $\bar{\sigma}$ は実効断面積、 ϕ は中性

子束である。実効断面積はあまり大きくなく、 N_1 の半減期は照射時間に比べて充分長いとすると、 N_1 の変化量は小さいとして（すなはち N_1 は定数として）この方程式を解くことができ、

$$N_2 = \frac{1}{\lambda_2} N_1 R (1 - \exp(-\lambda_2 t_{ir})) \quad (2)$$

が得られる。ただし、 t_{ir} は中性子照射時間である。

この式を次のように変形できることに気がついた。このため、ターゲット核の原子核数の問題が解決した。

$$\frac{\lambda_2 N_2}{\lambda_1 N_1} = \frac{1}{\lambda_1} R (1 - \exp(-\lambda_2 t_{ir})) \quad (3)$$

ここで λ_1 はターゲット核の崩壊定数である。この式から反応率 R は

$$R = \frac{\lambda_2 N_2}{\lambda_1 N_1} \frac{\lambda_1}{1 - \exp(-\lambda_2 t_{ir})} \quad (4)$$

と書ける。この式の $(\lambda_2 N_2) / (\lambda_1 N_1)$ は生成核種とターゲット核種の照射終了直後の崩壊率の比である。この比を求めることが出来ればターゲット核種および生成核種の原子核数を知らなくても(4)式から反応率を得ることが出来、実効断面積は中性子束を測定すれば反応率から求めることができる。この比は照射後の試料からの放射線（実際はガンマ線）を測定し、そのスペクトル上の両核種からのガンマ線の強度比から求めることが出来る。(4)式は実際のデータ解析の場合は次の形にして使用される（簡単な計算で導き出せる）。原子炉内で時間 t_{ir} だけ照射した試料のガンマ線スペクトルを照射直後からの時間 t_1 から t_2 まで測定すると、そのスペクトル上の ^{137}Cs と ^{138}Cs ガンマ線ピークの数値（それぞれ n_1 および n_2 とする）を用いて反応率 R は次のように書ける。

$$R = \frac{n_2 b_1 \varepsilon_1}{n_1 b_2 \varepsilon_2} \frac{\lambda_1 \lambda_2 (t_2 - t_1)}{[\exp(-\lambda_2 t_1) - \exp(-\lambda_2 t_2)] [1 - \exp(-\lambda_2 t_{ir})]} \quad (5)$$

ここで b_1 と b_2 はそれぞれ ^{137}Cs と ^{138}Cs からのガンマ線の放出分岐比である。 ε_1 と ε_2 はそれぞれ ^{137}Cs と ^{138}Cs からのガンマ線に対するゲルマニウム検出器の検出効率である。この式から次のことが分かる。

- 1) R を求めるためにターゲット核種と生成核種の原子核数を正確に求める必要はない。ガンマ線の計数値の比を正確に求めればよい。
- 2) R は同一スペクトル上の ^{137}Cs と ^{138}Cs からのガンマ線の計数値の比から求められるので、両計数値に対する共通の補正すなはち立体角の補正および不感時間の補正は打ち消しあって(5)式からは消える。すなわち、(5)式を用いた場合には考えなくてもよい。

- 3) ガンマ線の検出効率もガンマ線相互の相対的な効率が分かればよい。 検出器への入射ガンマ線数に対する検出数の割合の絶対値（絶対検出効率）は必ずしも必要ではない。 測定技術上は前者は比較的簡単に求められるが絶対検出効率を求めるためにはかなり面倒な補正を必要とする。
- 4) 中性子照射の場合にはターゲット核と生成核は同じ元素なので化学分離の効率は同じと考えられる。 前述のように同じ効果は (5) 式では打ち消しあうので照射後試料の化学分離を行っても R に対する影響はない。

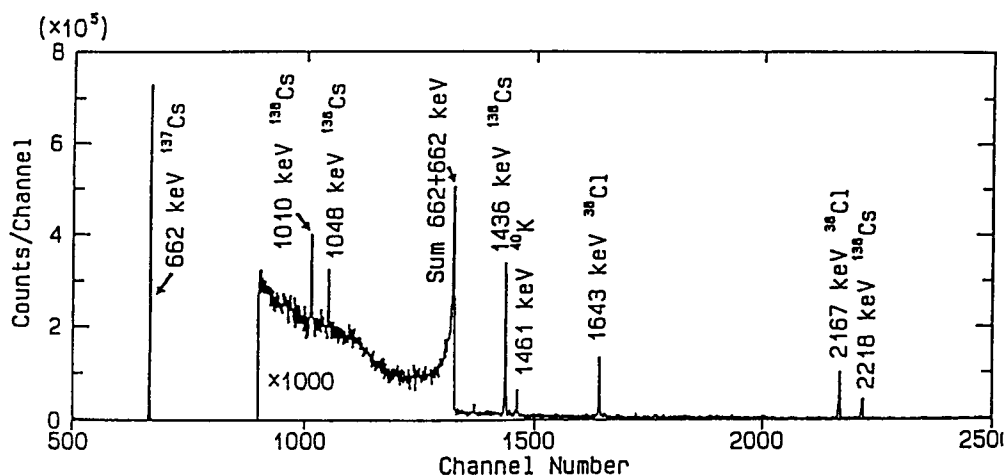


図 1. 中性子照射した ^{137}Cs - ^{135}Cs 試料からのガンマ線スペクトル

このようにスペクトル上のガンマ線計数値の比から R を求める方法はもし両ガンマ線の全エネルギーピークを同一スペクトル上で測定できれば、単にターゲット核と生成核の原子核数を正確に求める必要がないだけでなくいろいろの利点があることが分かる。 Stuepegia の実験では鉛の吸収板を入れたり、ディスクリミネーターを使用したりして低エネルギー部分の大きなバックグラウンドを落とし、このため低エネルギー部分のスペクトルが変形したのでこの方法を採用することが出来なかった(仮に行ったとしても補正量が大きく、したがって不確定さが増加する)。しかし、私達は上にあげた利点の 4) に着目して照射後試料の化学分離を行った。その結果、代表的な不純物元素の ^{38}Cl と ^{24}Na をほとんど除去することができた。また、前述のように高速電子回路を用いたので不感時間を減らすことが出来た。この効果によって ^{137}Cs と ^{138}Cs からのガンマ線を同一スペクトル上で測定することが出来た。得られたスペクトルの例を図 1 に示す。照射試料としては約 0.1~0.4 MBq の ^{137}Cs を用いた。この図には ^{137}Cs の 0.662 MeV のガンマ線と ^{138}Cs の 2.218 MeV のガンマ線のほかに ^{138}Cs の 1.010

MeV および 1.436 MeV のガンマ線が観測される。 ^{38}Cl のガンマ線も残っているが強度は弱い。また、高分解能ゲルマニウム検出器を用いたので ^{138}Cs と ^{38}Cl のガンマ線ピークを分離することができた。さらに ^{135}Cs の中性子吸収による ^{136}Cs からのガンマ線 ($E_\gamma = 1.048 \text{ MeV}$) も観測され、この事実が ^{135}Cs の中性子吸収断面積測定の手がかりを与えてくれた。3本の ^{138}Cs のガンマ線を測定出来たので解析に使用出来るデータも豊富になった。このスペクトルを用い、(5) 式に基づいて R を求め、金およびコバルトをモニターとして中性子束を求めて ^{137}Cs の中性子吸収断面積の実効断面積を求めた。結果は 0.250 ± 0.013 バーンで、Stupegia の値の2倍以上となった。

続いて熱中性子吸収断面積と共鳴積分の測定を行った。この測定にはいわゆるカドミウム法を用いた。照射試料をカドミウムの遮蔽体の中に入れて照射した場合（熱中性子部分をカットした場合）と入れないで照射した場合の反応率（それぞれ R' , R とする）を求め、Westcott の方法を用いて解析する。中性子束のモニターは中性子スペクトルに対するレスポンスの異なる金とコバルトを用い、いずれの場合も試料と共に照射した。Westcott の関係式を簡略化した R および R' と中性子束との関係式は次のように書ける。

$$\text{Cd なしの場合} : R / \sigma_0 = \phi_1 + \phi_2 s_0 G_{\text{epi}} \quad (6)$$

$$\text{Cd ありの場合} : R' / \sigma_0 = \phi'_1 + \phi'_2 s_0 G_{\text{epi}} \quad (6')$$

ここで σ_0 は熱中性子吸収断面積で、 ϕ_1 , ϕ_2 , ϕ'_1 および ϕ'_2 はそれぞれの場合の中性子束で、 ϕ_1 と ϕ'_1 は主として熱中性子に相当する部分、 ϕ_2 と ϕ'_2 は主として熱外中性子に相当する部分である。Westcott の関係式とこれらの (6) 式および (6)' 式との関係は参考文献(2) に詳しく述べてある。 s_0 は共鳴積分 I_0 に関するもので

$$s_0 = 2(\pi^{-1/2})(I_0 - 0.45 \sigma_0) / \sigma_0 \quad (7)$$

で与えられる。 G_{epi} は熱外中性子に対する試料の自己遮蔽の補正係数であるが、試料も少なく断面積も大きくないので1としてよい。コバルトと金のモニターを用いて ϕ_1 等を求め、それを用いて試料の R と R' から (6) 式と (6)' 式を用いて、 s_0 を求め、その s_0 と (6) 式から σ_0 を得ることが出来る。また、この σ_0 と s_0 から (7) 式により共鳴積分 I_0 を得ることが出来る。得られた熱中性子断面積と共鳴積分はそれぞれ $\sigma_0 = 0.25 \pm 0.02$ バーン、 $I_0 = 0.36 \pm 0.07$ バーンとなり、実効断面積測定の結果と矛盾なく、Stupegia の結果とは異なる結果となった。上で述べたように私達の実験の方が手続きが簡単であり、不確定要素の入る余地が少なく、検出器の分解能も格段とよいので、信頼度は高いと信じている。

この原理を応用して ^{90}Sr と ^{135}Cs の断面積測定を行ったが、これらの核種にはそれぞれの特長もある条件があるのでそれを簡単に説明する。

3. ^{90}Sr の中性子吸収断面積の測定

^{90}Sr の中性子断面積は私達の測定以前は Zeisel の測定値と McVey の測定値があったが両者の値は大きく違っていた。そこでこれも測定することにした。この場合にも原理的には同じ方法で測定を行ったが、ターゲット核種の ^{90}Sr はベータ崩壊で ^{90}Y の基底状態へ崩壊し、ガンマ線を出さないので指標核種として ^{85}Sr (崩壊形式は軌道電子捕獲) をターゲット試料に混ぜておき、この ^{85}Sr からの 0.514 MeV のガンマ線を指標ガンマ線として使用した。指標核種(^{85}Sr) とターゲット核種(^{90}Sr) の放射能比を Q_1 とすると $Q_1 = \lambda_1 N_1 / \lambda_0 N_0$ である。ただし、 λ_1 と N_1 はターゲット核種の崩壊定数と原子核数、 λ_0 と N_0 は指標核種の崩壊定数と原子核数である。この Q_1 を用いると (5) 式は

$$R = \frac{n_2 b_0 \varepsilon_0}{n_0 b_2 \varepsilon_2 Q_1} \frac{\lambda_1 \lambda_2 (t_2 - t_1)}{[\exp(-\lambda_2 t_1) - \exp(-\lambda_2 t_2)] [1 - \exp(-\lambda_2 t_{ir})]} \quad (8)$$

となる。ただし、 n_0, b_0 および ε_0 はそれぞれ指標核種のガンマ線の計数値、分岐比およびそのガンマ線の検出効率である。放射能比(Q_1) は 2π ガスフロー計数法とガンマ線分光法で求めた。このようにして前述の R と R' を求めて熱中性子吸収断面積 σ_0 と共鳴積分 I_0 を求めた。結果は $\sigma_0 = 0.0153^{+0.0013}_{-0.0042}$ バーン、 $I_0 \leq 0.16$ バーンであった。熱中性子断面積は McVey の結果を支持することとなった。

4. ^{135}Cs の中性子吸収断面積の測定

^{135}Cs は核分裂生成率は約 6% と大きく、半減期は 3 百万年で、長期間にわたってベータ線を放出する。しかし、この核種は市販されていないので単独では入手できない。オークリッジのグループは持っているようであるが、私達が借りることは難しそうであった。このためターゲットの入手方法で悩んだが、 ^{137}Cs の実験をしたときにスペクトル中に ^{136}Cs (^{135}Cs の中性子吸収で生成) のガンマ線を見たことを思い出した。 ^{137}Cs と ^{135}Cs の崩壊定数を用いて試算すると、 ^{137}Cs の試料中にほぼ同量の ^{135}Cs が含まれている可能性があった(半減期が長いので放射能としては十万分の一)。核分裂生成率もほぼ同じで約 6% である。もし、前の実験と同じように ^{137}Cs の試料(^{135}Cs を含む) を中性子照射して ^{136}Cs を観測出来ればこれまでと同じ方法で ^{135}Cs の中性子断面積を測定出来る。 ^{135}Cs もガンマ線は出さないので ^{137}Cs を指標とした。試料中の ^{135}Cs と ^{137}Cs の存在比は 4 重極質量分析器(Q-mass)による質量分析で決定することにした。しかし、この分析器のアウトプットはアナログであり、私達の場合は前にも述べたように少量の試料しか取り扱えないので、これでは困る。アウトプットをデジタルで測定出来るように改造しなければならなかった。この改造とその後のテストに時間がかかり、 ^{135}Cs の中性子吸収断面積測定には測定完了まで 1 年かかった。

Q-mass で測定した ^{135}Cs と ^{137}Cs の原子核数の比を $P_1 (= N_1/N_0)$ とすると (5) 式は次のようになる。

$$R = \frac{n_2 b_0 \varepsilon_0}{n_0 b_2 \varepsilon_2 P_1} \frac{\lambda_0 \lambda_2 (t_2 - t_1)}{[\exp(-\lambda_2 t_1) - \exp(-\lambda_2 t_2)] [1 - \exp(-\lambda_2 t_{ir})]} \quad (9)$$

この式の記号の意味は P_1 以外は (8) 式と同じである。実験の要領は ^{137}Cs および ^{90}Sr の場合と同じである。この実験は3月末に終了し、現在データ解析中である。近いうちに論文として日本原子力学会誌に投稿する予定である。

5. ^{99}Tc および ^{129}I の中性子吸収断面積の測定

これらの核種も廃棄物処理の点では重要核種である。しかし、いずれもベータ線のみを放出し、ガンマ線は放出しない。また、これらの核種の場合には ^{90}Sr や ^{135}Cs の場合のような適当な指標核種も見つからなかった。そこでこの2核種の原子核数は液体シンチレーション計数法で試料の比放射能を測定し、その値と各試料の質量の測定値からターゲット内の試料の原子核数を求めた。また、試料購入時に添付されてきた仕様書に記載の比放射能の値も参考（測定値とほぼ一致した）とした。生成核の原子核数は放射能強度から求めた。結果は次の通りであった。

^{99}Tc :

$$\sigma_0 = 22.9 \pm 1.3 \text{ b.}, \quad I_0 = 398 \pm 38 \text{ b.}, \quad (\text{b.} = \text{バーン})$$

^{129}I :

$$\sigma_0(2^+) = 17.8 \pm 0.7 \text{ b.}, \quad I_0(2^+) = 18.2 \pm 0.8 \text{ b.},$$

$$\sigma_0(5^+) = 12.5 \pm 0.5 \text{ b.}, \quad I_0(5^+) = 15.6 \pm 0.7 \text{ b.},$$

$$\sigma_0 = 30.3 \pm 1.2 \text{ b.}, \quad I_0 = 33.8 \pm 1.4 \text{ b.}$$

^{129}I の場合に ^{130}I の 2^+ 状態の生成と 5^+ 状態の生成の断面積を別々に測定したのはこの測定が初めてである。

6. まとめ

放射性廃棄物核種の中性子吸収断面積を測定した。ターゲット試料が放射性の場合には通常の断面積測定とは異なる問題点があった。とくにターゲット内の原子核数を決定することが重要な問題点であるが、その方法を新しく考案した。その結果、他の問題点も一部解決することが出来、信頼度の高い結果を得ることが出来た。

7. 謝辞

この研究は多くの方々のご協力とご援助のもとに行われた。とくに日本原子力研究所のアイソトープ部の方々、研究炉部の方々にはいろいろとお世話になった。また、

立教大学原子力研究所の方々にも試料照射でお世話になった。 これらの方々に深く感謝する。 実験は大学の原研炉共同利用，立教炉共同利用として実施した。

参考文献

参考文献としては私達の発表論文を挙げておく。 その他の文献はこれらの論文に記載してある。

- 1) H. Harada, H. Watanabe, T. Sekine, Y. Hatsukawa, K. Kobayashi, T. Katoh: J. Nucl. Sci. Technol., vol. 27. pp. 577 ~ 580(1990).
- 2) T. Sekine, Y. Hatsukawa, K. Kobayashi, H. Harada, H. Watanabe, T. Katoh: Ibid., vol. 30, pp. 1099 ~1106(1993).
- 3) H. Harada, T. Sekine, Y. Hatsukawa, N. Shigeta, K. Kobayashi, T. Ohtsuki, T. Katoh: ibid., vol. 31, pp 173 ~179(1994).
- 4) H. Harada, S. Nakamura, T. Katoh, Y. Ogata: ibid., vol. 32, pp395 ~403(1995).
- 5) S. Nakamura, H. Harada, T. Katoh, Y. Ogata: ibid., vol. 33, pp 283 ~ 289 (1996).

