

核データ・炉物理特別会合(1)

オクロ天然原子炉解析に関する
核データ・原子炉物理の役割

日本原子力研究所核データセンター

深堀 智生

e-mail: fukahori@ndc.tokai.jaeri.go.jp

1. はじめに

1938年 P. Dirac は重力及び電磁相互作用の結合定数は一定ではないとの議論を始めた。これは、Dirac 特有の物理の美学（巨大数仮説）から導き出された結論である。一方、現代量子重力理論においてもこれらの結合定数は時間依存であるとしている（統一理論、多次元時空理論）。相互作用の結合定数とは、例えば、電磁相互作用に対する素電荷 (e)、重力相互作用に対する Newton の万有引力定数 (G)、強い相互作用に対する中間子-核子結合定数 (α) のように、それぞれの相互作用の基本となる定数である。

この問題は未だ解決されていないが、上限値を実験的に求める種々の努力が報告されている。いくつかの例を挙げると、

火星探査宇宙船マリナー（1970年代）のスイングバイから求められた

$$(dG/dt)/G = (0.2 \pm 0.4) \times 10^{-11} \text{ y}^{-1}$$

遠方のクエーサーのスペクトル観測から求められた

$$(d(e^2)/dt)/e^2 = 4 \times 10^{-12} \text{ y}^{-1}$$

異なるタイプの原子時計の精密比較から求められた

$$(d(e^2)/dt)/e^2 = 3 \times 10^{-13} \text{ y}^{-1}$$

A.I. Shlyakhter、オクロ天然原子炉（1976年）から求められた

$$(d\alpha/dt)/\alpha = 5 \times 10^{-19} \text{ y}^{-1}$$

等が提唱されている。上にも挙げたように、強い相互作用の結合定数 α に関しては、A.I. Shlyakhter が、オクロ天然原子炉で得られたデータを元に、時間変化は $5 \times 10^{-19} \text{ y}^{-1}$ 以下 [1] であると報告している。この値は、他の方法で求められたものと比較して最も厳しい束縛条件値を与えている。これは、詳細は後で述べるが、オクロ天然原子炉での Sm 同位体存在比研究から、強い相互作用結合定数時間変化の束縛条件を求めたものである。

天然原子炉は ^{235}U と ^{238}U の半減期（それぞれ $7.038 \times 10^8 \text{ y}$ 、 $4.468 \times 10^9 \text{ y}$ ）の差より予測されていた。すなわち、現在の ^{235}U 存在比が 0.72% であるのに対し、20億年前の ^{235}U は 3.7% と現在の商用炉並の存在比であるため、ウラン鉱脈のあるところで条件さえそろえば、

天然の原子炉が存在しうると予測されていたわけである。そんな中、オクロ天然原子炉は、1972年ガボン共和国オクロ鉱山にて発見された。

1996,1997年度の研究黎明研究共同研究では、Shlyakhterの解析方法を基に、最新の実験データ及び知見を加味することによって、より精度の高いオクロ天然原子炉解析データ（以下、この研究のために用いるためにオクロ天然原子炉から採鉱した試料を「オクロ試料」と呼ぶ）から、上記束縛条件を決定しようという試みを行った。この共同研究者グループを「オクロルネッサンスグループ」と内部では呼んでいたが、参加した研究者は、

藤井 保憲（日本福祉大）、日高 洋（広島大）、大浦 泰嗣（東京都立大）、P. Moller（LANL）、岩本 昭（グループリーダー）、中川 正幸、大貫 敏彦、深堀 智生（原研）

であった。

本報告では、Shlyakhterが元々発見した解析方法に、核データ及び炉物理的手法が果たした重要な役割を紹介する。

2. 解析方法

オクロ原子炉中では ^{149}Sm は大きな断面積を持つ中性子捕獲反応によって急速に ^{150}Sm に変化し、減少する。一方、 ^{148}Sm の変化の速度は桁違いに小さい。また、 ^{235}U の核分裂収率も、 $^{147,149}\text{Sm}$ と比べると ^{148}Sm は8桁も小さい（表1参照）。Smの存在比 $((^{147}\text{Sm}+^{148}\text{Sm})/^{149}\text{Sm})$ は $(15.1+11.3)/13.9 = 1.889$ （天然存在比）、 $(2.25 + 0.0)/1.07 = 2.103$ （ ^{235}U の核分裂収率）、 $(55.34+2.79)/0.5546 = 104.81$ （オクロ試料の解析結果）のようになる。この差を用いて、 ^{149}Sm 第1共鳴の位置（現在は97.3 meV）に強く依存する、20億年前の ^{149}Sm の中性子捕獲断面積を計算することが出来る。この共鳴単位エネルギーの現在の値と20億年前との差から、 α の時間変化を推定できる。すなわち、

- 1) オクロ試料中のSm同位体の存在比を測定する。
- 2) ^{147}Sm と ^{148}Sm は中性子捕獲断面積も小さく、半減期が長いので、天然原子炉中での変化率が小さい。 ^{235}U の核分裂収率は ^{148}Sm では、問題にならないほど小さいので、これと ^{147}Sm の和 $(^{147}\text{Sm}+^{148}\text{Sm})$ と ^{149}Sm の存在比の割合は、 ^{149}Sm の中性子捕獲反応断面積（正確にはマクロ断面積）に直接関係する。
- 3) 20億年前の ^{149}Sm の中性子捕獲断面積を求める。
- 4) 天然原子炉中の中性子スペクトル及びフルエンスを仮定することにより、20億年前の ^{149}Sm の中性子捕獲断面積に強く影響する ^{149}Sm の第1共鳴準位の位置を求める。
- 5) この第1共鳴準位の現在との差より、原子核の結合定数の時間変化（20億年分!）を求める。

という手順を踏むことによって、この結合定数の時間変化は、上限値であるので、結合定数に時間変化が有るか無いか、有ったとすれば束縛条件を提案することが出来る。

3. 核データ及び原子炉物理的手法の役割

上記解析のためには、共鳴パラメータ、中性子スペクトル、中性子フルエンスのデータが必要となる。このため、

核データ側から

- 1) 必要な共鳴パラメータ (Gd データの使用の提案)
- 2) 中性子フルエンスはオクロ試料の解析結果から別に求める ($^{143}\text{Nd}(n, \gamma)^{144}\text{Nd}$ 、 $^{147}\text{Sm}(n, \gamma)^{148}\text{Sm}$ の残留核の同位体存在比、 $^{235,238}\text{U}(n, \text{f})\text{X}$ による $^{235,238}\text{U}$ の減少)

炉物理側から

- 1) 中性子スペクトルは Maxwell-Boltzman 分布と仮定
- 2) 温度パラメータは 200~400°C とし、ドップラー効果を考慮する
- 3) 中性子束はオクロ原子炉が稼働中は一定と仮定する

その他

- 1) 原子炉停止後の外部からの Sm 同位体流入を考慮
- 2) Sm、U 同位体の流入が少ないと推定される地下数百 m のボーリング試料の入手等の新しい知見 (核データ、炉物理関係の専門家から見れば当然のことのようであるが、結合定数の時間依存を検討しているグループでは画期的なことである。) が導入された。これにより、新しく取得した汚染の少ないオクロ試料のデータ解析を生かした、精度の良い推定を行うことが出来た。以下、これらの新しく導入された知見に関して、概要を報告する。詳細は、紙面の都合上割愛するが、ご興味のある方は、参考文献[2]を参照していただきたい。

3.1 共鳴パラメータ

Shlyakhter の元々の解析方法では、Sm 同位体に限って解析・考察が行われたようであるが、解析を補強するために、他の同種反応による生成核による候補を次の選定条件で調査した。ここでは、通称 BNL-325 と呼ばれる参考文献[3]から、ある条件に基づき候補に選定したものを報告する。

- a) 他の同位体への変換効率がよい
 - 熱中性子領域で 1000 barn 以上の中性子捕獲断面積を持つ
 - 共鳴の中性子幅 (Γ_n) が γ 幅 (Γ_γ) より狭い
- b) 共鳴ピークの位置の変動がよく現れる
 - 共鳴エネルギー 0~0.872 eV の間に 1 本だけ s 波共鳴がある
- c) 共鳴幅の測定精度の比較的良い、天然同位体である。

この結果、表2に示すような候補が見つかった。表中、同位体存在比、熱エネルギーにおける捕獲断面積、他の安定同位体、最初から2本の共鳴パラメータを併せて示す。 ^{149}Sm を含み、5核種が候補に選定された。 ^{168}Yb を除き、全てが偶-奇核であり、残留核は天然同位体となる。 ^{168}Yb は同位体存在比及び捕獲断面積も小さく、 Γ_{γ} の測定精度が余りよくないようであるので、候補からはずした。その他の条件、例えば化学的分離が難しいなどの条件により、オクロ試料解析によるデータがそろわない ^{113}Cd も候補からはずしたため、利用できたのはGd同位体だけであった。Gd同位体を解析対象にした結果得られた特徴は後述する。

3.2 温度パラメータ

オクロ天然原子炉が活動中の炉心温度は、温度に敏感 ^{176}Lu の熱外中性子捕獲断面積やオクロ原子炉領域の物質の融点から推定することが出来る。温度を考慮することは、天然原子炉が臨界を維持するために必要な液体の水が存在できるかどうかにも重要な影響を与える。オクロ試料中の $^{176}\text{Lu}/^{175}\text{Lu}$ 同位体存在比から推定される温度は $200\sim 380^{\circ}\text{C}$ [4]であり、融点からのそれは $200\sim 400^{\circ}\text{C}$ であるので、我々の解析では $200\sim 400^{\circ}\text{C}$ とし、ドップラー効果を考慮することとした。ドップラー効果を考慮したオクロ試料の解析は、我々が最初である。上で指摘した、液体の水の問題も、この程度の温度であれば、地中深くでの圧力維持も不可能ではないであろうことが推測でき、実際、オクロ天然原子炉の痕跡がある領域では可能であったと思われる。

3.3 原子炉停止後の外部からのSm同位体流入

原子炉停止後の外部からのSm同位体流入は、オクロ試料の信頼性に大きく影響する。事実、オクロウラン鉱山は露天掘りで採鉱されているため、地表面近傍で採取されたオクロ試料を用いたShlyakhterの解析には相応の誤差があったと推定される。我々の解析にはこのことを十分に考慮し、地下数百mのボーリング試料を入手・分析する事により、この影響が全体の3~4%程度しかないと推定された。原子炉停止後の外部からのSm同位体流入の影響の推定方法は、次の解析結果のところで解説する。

4. 解析結果

オクロ試料の分析結果を表3、4に示す。表3からわかるようにSm同位体の組成は試料によらず比較的安定している。一方、表4のGd同位体の場合は残存量も少なく、その値もばらついている。これは、 $^{155,157}\text{Gd}$ の捕獲断面積が ^{149}Sm に対して比較的大きいため、 $^{155,157}\text{Gd}$ が捕獲反応によって非常に減少してしまったことが原因であると考えられる。したがって、Gd分析結果から求められる20億年前の捕獲断面積の値は絶対値として利用することが困難となった。Shlyakhterはこのことに気づいていたかどうかはわからないが、Sm同位体のみ

で解析していたのは、あながち間違いではなかったということがわかった。

表5、6に $^{155,157}\text{Gd}$ 及び ^{149}Sm の捕獲断面積が、原子炉停止後の同じ同位体の流入によってだけ変化した場合、それぞれの捕獲断面積の変化をまとめたものを示す。表6の $^{155,157}\text{Gd}$ の捕獲断面積の変化は、そもそも流入しない場合の値がばらついているため、一定ではないが、この傾向と断面積から求めた第1共鳴準位の位置の変化量をプロットしてみると、図1に示すように $^{155,157}\text{Gd}$ 両方が、交わる領域が存在することがわかる。これから、原子炉停止後の同位体の流入による試料の汚染の度合いが、3~4%程度であることが推定でき、Sm の場合もこの値を使用することとした。ここで、Gd 同位体を使用したことによる傍証が得られたことになる。

補正後の値として、オクロ試料分析による ^{149}Sm の実効中性子捕獲断面積に対して 91 ± 6 kb を得ることが出来た。この値を、図2に示す ^{149}Sm の実効中性子捕獲断面積と第1共鳴準位の位置の変化量との関係に当てはめる(図中の矢印で示した方向)と、 $\Delta E_r \sim -100$ meV と 10 meV の2つの解が得られる。ここでは、先に求めた原子炉稼働中の温度 200~400°C を考慮して、ドップラー効果を考慮した温度曲線の代表値として 300°C を使用している。同様に図3、4の $^{155,157}\text{Gd}$ のものに当てはめると解の幅はオクロ試料分析値のばらつきを反映して大きいが大まかに言って、0より少し大きいところに解が存在する推定できる。ここでも、Gd 同位体を使ったメリットが発揮された。したがって、 ^{149}Sm からの解 (^{149}Sm の第1共鳴位置変化)は、 $\Delta E_r \sim -100$ meVの方が無くなり、 $\Delta E_r = 9 \pm 11$ meVと求めることが出来た。これを、参考文献[2]の解析方法で α の時間変化に換算する(詳細な式の導出は省略する)と、

$$\begin{aligned} (d\alpha/dt)/\alpha &\sim \Delta M/M/\Delta t \sim \Delta E_r/V_0/\Delta t \\ &= 20 [\text{meV}] / 50 [\text{MeV}] / 2 \times 10^9 [\text{y}] \\ &= 2 \times 10^{-19} \text{ y}^{-1} \end{aligned}$$

ここで、 V_0 は1粒子ポテンシャルの深さ(約 50 MeV)、 Δt はオクロ原子炉が稼働していた20億年前 (2×10^9 y)、 ΔE_r として誤差の範囲の最大値 (20 meV) を採用している。これから、我々のオクロ試料解析結果からもたらされる結合定数 α の時間変化は、 $2 \times 10^{-19} \text{ y}^{-1}$ 以下と推定される。

5. 結論

詳細な解析[2]から、 ^{149}Sm の第1共鳴位置変化は $\Delta E = 9 \pm 11$ meV となり、 α の時間変化が $2 \times 10^{-19} \text{ y}^{-1}$ 以下であると推定される。これは、Shlyakhter の値 ($5 \times 10^{-19} \text{ y}^{-1}$) を支持している。ただし、これは地表に近い精度の悪いオクロ試料を使用し、常温を仮定しているため、問題が多い。共鳴データ、中性子束の再計算、温度パラメータ及びドップラー効果の考慮、原子炉停止後の外部からの Sm 同位体流入の考慮等、最新の信頼性の高い核データと

炉物理の知見を導入することにより、他の方法によるものに比較して精度の良い結果を得ることができた。この結果は、Dirac の仮説を否定し、現代の素粒子物理学に「相互作用定数には時間依存が（殆ど）ない」という厳しい束縛条件を課すこととなる。

参考文献

- [1] A.I. Shlyakhter; Nature **264** (1976) 340.
- [2] Y. Fujii A. Iwamoto, T. Fukahori, T. Ohnuki, M. Nakagawa, H. Hidaka, Y. Oura and P. Moeller; Nucl.Phys. **B573** (2000) 377 または 藤井保憲、岩本昭、日高洋; 日本物理学会誌, 55 (2000) 679.
- [3] S.F. Mughabghab; “Neutron Cross Section”, National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory (Academic Press Inc., 1984).
- [4] P. Holliger, C. Deviller; Earth Planet. Sci. Lett. **52** (1981) 76

表1 Sm 同位体の共鳴準位、半減期、天然存在比、²³⁵U 核分裂収率の情報

	¹⁴⁷ Sm	¹⁴⁸ Sm	¹⁴⁹ Sm	¹⁵⁰ Sm
第1共鳴準位[eV]	3.397	140.4	0.0973	20.7
第2共鳴準位[eV]	18.30	288.8	0.872	48.1
半減期[y]	1.06×10^{11}	7×10^{15}	安定	安定
天然存在比[%]	15.1	11.3	13.9	7.4
²³⁵ U 核分裂収率[%]	2.25	1.13×10^{-8}	1.07	2.57×10^{-5}

表2 Sm 同位体以外のオクロ天然原子炉解析核種候補の諸パラメータ

候補核種 (Z)	存在比 [%]	熱中性子捕獲 断面積 [barn]	他の同位体 (存在比[%])	共鳴パラメータ		
				E_r [eV]	Γ_n [eV]	Γ_γ [eV]
¹¹³ Cd (48)	12.22	2.06e+4	106(1.25), 108(0.89), 110(12.49), 111(12.8), 112(24.13), 114(28.73), 116(7.49)	0.178 18.4	6.5e-4 1.8e-4	0.113 0.095
¹⁴⁹ Sm (62)	13.8	4.02e+4	144(3.1), 147(15.0), 148(11.3), 150(7.4), 152(26.7), 154(22.7)	0.097 3 0.872	5.33e-4 7.42e-4	0.060 5 0.059 8
¹⁵⁵ Gd (64)	14.80	6.09e+4	152(0.2), 154(2.18), 156(20.47), 158(24.84), 160(21.86)	0.026 8 2.008	1.04e-4 3.71e-4	0.108 0.11
¹⁵⁷ Gd (64)	15.65	2.54e+5	同 上	0.031 4 2.825	4.70e-4 3.45e-4	0.106 0.097
¹⁶⁸ Yb (70)	0.13	2.30e+3	170(3.05), 171(14.3), 172(21.96), 173(16.12), 174(31.8), 176(12.7)	0.597 9.71	2.2e-3 8.0e-5	0.064 0.064

表3 Sm 同位体存在比の分析結果及び ¹⁴⁹Sm の平均中性子捕獲反応断面積

	オクロ試料				
	SF84-1469	SF84-1480	SF84-1485	SF84-1492	SD37
¹⁴⁷ Sm の割合[%]	55.34	53.23	54.03	54.81	52.74
¹⁴⁸ Sm の割合[%]	2.796	3.468	3.079	2.890	4.694
¹⁴⁹ Sm の割合[%]	0.5544	0.2821	0.4466	0.4296	0.3088
断面積 [kb]	85.6	96.5	83.8	99.0	89.5

表4 Gd 同位体存在比の分析結果及び ^{155}Gd , ^{157}Gd の平均中性子捕獲反応断面積

	オクロ試料				
	SF84-1469	SF84-1480	SF84-1485	SF84-1492	SD37
^{155}Gd の割合[%]	0.5006	0.4608	0.6065	0.3899	0.5915
^{157}Gd の割合[%]	0.0418	0.2641	0.1921	0.0505	0.1881
^{155}Gd 断面積[kb]	30.9	16.8	17.8	36.7	26.3
^{157}Gd 断面積[kb]	83.3	8.0	14.3	73.7	23.3

表5 原子炉停止後の外部からの Sm 同位体流入割合(ζ)とこれに依存する ^{149}Sm の平均中性子捕獲反応断面積[kb]の変化

ζ	オクロ試料				
	SF84-1469	SF84-1480	SF84-1485	SF84-1492	SD37
0.00	85.6	96.5	83.8	99.0	89.5
0.01	86.4	100.2	85.6	100.7	90.4
0.02	87.1	104.3	87.4	102.4	91.3
0.03	87.8	108.6	89.3	104.2	92.2
0.04	88.6	113.4	91.2	106.0	93.2

表6 原子炉停止後の外部からの Gd 同位体流入割合(ζ)とこれに依存する ^{155}Gd , ^{157}Gd の平均中性子捕獲反応断面積[kb]の変化

ζ	オクロ試料									
	SF84-1469		SF84-1480		SF84-1485		SF84-1492		SD37	
	^{155}Gd	^{157}Gd	^{155}Gd	^{157}Gd	^{155}Gd	^{157}Gd	^{155}Gd	^{157}Gd	^{155}Gd	^{157}Gd
0.00	30.9	83.3	16.8	8.0	17.8	14.3	36.7	73.7	26.3	23.3
0.01	31.4	102.9	20.2	11.1	20.6	26.4	37.4	87.2	28.1	29.9
0.02	31.9	134.7	25.4	20.6	24.4	236.9	38.1	106.6	30.2	42.0
0.03	32.3	195.0	34.4	227.1	30.1	—	38.8	137.1	32.7	70.9
0.04	—	—	53.5	—	39.2	—	—	—	35.6	235.3

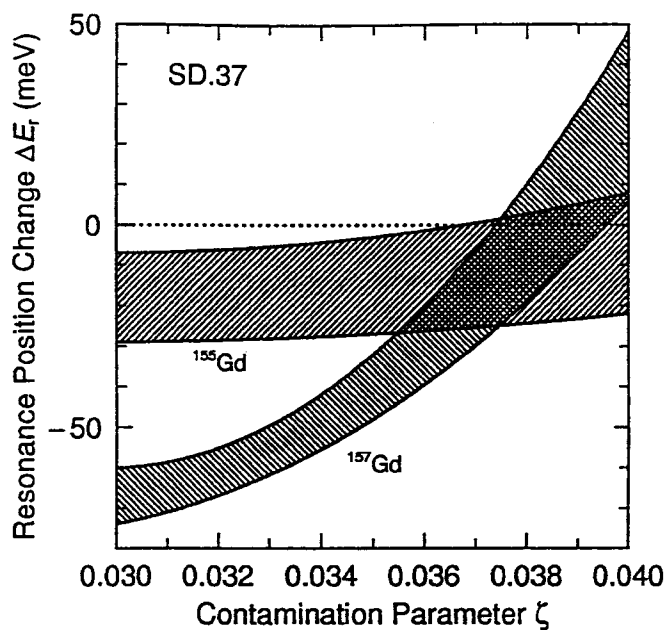


図1 ^{155}Gd , ^{157}Gd の同位体流入割合(ζ)に対する平均中性子捕獲反応断面積の変化量 (第1共鳴準位の移動量)

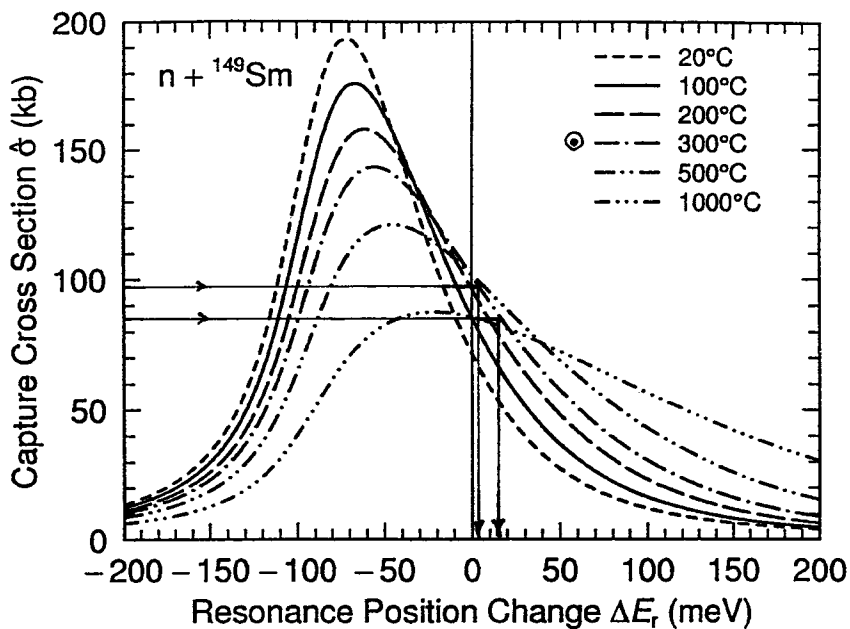


図2 ^{149}Sm の第1共鳴準位の移動量に対する平均中性子捕獲反応断面積の変化

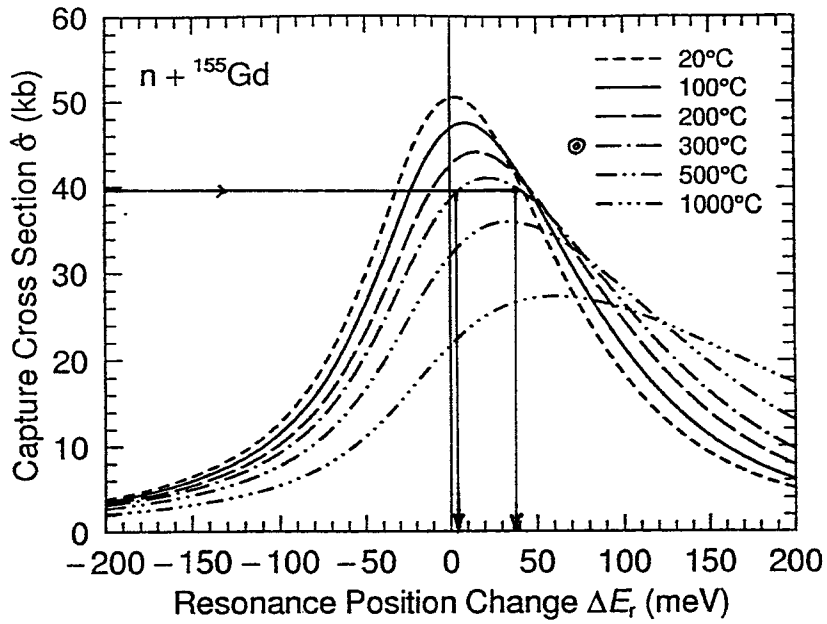


図3 ${}^{155}\text{Gd}$ の第1共鳴準位の移動量に対する平均中性子捕獲反応断面積の変化

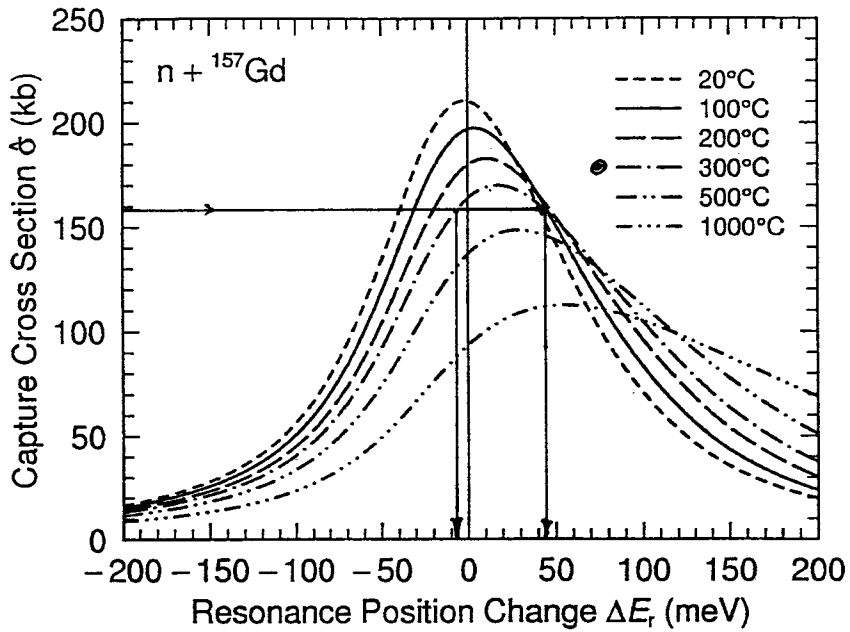


図4 ${}^{157}\text{Gd}$ の第1共鳴準位の移動量に対する平均中性子捕獲反応断面積の変化