

読者の広場 (I)

研究室だより

京都大学原子炉実験所
量子リサイクル工学研究室

京都大学原子炉実験所

山名 元

yamana@HL.rri.kyoto-u.ac.jp

1. はじめに

京都大学原子炉実験所は 40 年近い歴史を持つ全国共同利用研究施設ですので、何度もお出でになり利用された方も多いと思います。量子リサイクル工学研究室（山名研究室）は、この京大原子炉の原子力基礎科学研究本部に属する研究室ですが、原子力基礎工学のうちの燃料サイクルを担当している研究室です。当研究室で行われている研究は、「重元素と同位体の化学を探り、先進的リサイクル化学を目指す研究」と総括できますが、原子力利用に伴って発生する多量のアクチニドや核分裂生成物の分離・回収・核変換などの高度な処理（リサイクル化学）に関わる基礎的な化学研究を進めている研究室であると言えます。いかにも「核データのでない」化学屋の研究室なのですが、この便りを読んでいただくと、意外に「核データ研究」に近いグループであることを感じていただけるかもしれません。

2. 核データ測定と放射化学

信頼できる核データの整備は、原子力バックエンドの課題に直結する非常に重要な活動の一つですが、当研究室が核データに関わる研究に対して取ってきた一貫した基本姿勢は、「核データ測定研究への放射化学的な研究手法を用いた支援」と言えます。核データを高精度に測定する研究では、原子炉や加速器の利用、放射線の検出、測定データの処理と解析、原子核特性の解析や理論など、高度な物理的な作業が組み合わさって行われますが、これらを縁の下で支えている「化学操作」の存在についてはとく



春の研究炉（KUR）とホットラボラトリ

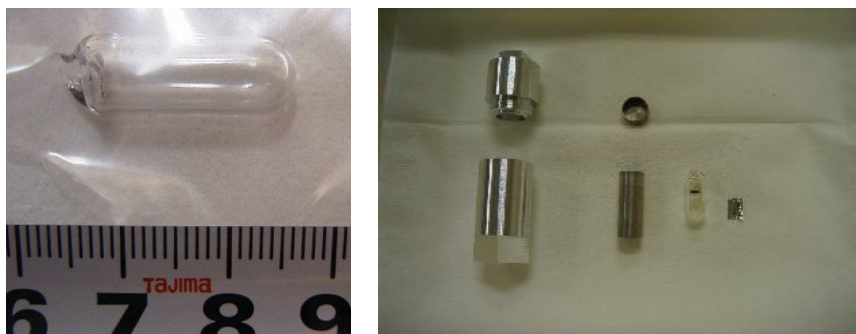
く忘れられがちなところがあります。測定に供給される試料（同位体）の分離回収、その精製、標的試料の調製、試料の不純物や同位体組成の分析、照射後試料の化学分離、などがこれですが、信頼できる化学操作や分析は物理的な核データ測定を支える重要なプロセスであります。このような観点から、当研究室では、放射化学的な手法を用いる次のような課題に取り組んできました。

- ① KUR を用いた放射化法による中性子吸収断面積測定用ターゲットの調製 (^{90}Sr , ^{99}Tc , ^{137}Cs , ^{237}Np , ^{165}Ho など)
- ② 中性子ビーム実験用電着ターゲットの調製 (^{239}Pu , ^{229}Th , ^{231}Pa など)
- ③ 照射後試料の化学分離精製
- ④ 放射性廃液からの長半減期核分裂生成物核種の回収法の検討

京都大学原子炉実験所は、5 MWth の研究炉（KUR）に付属した放射化学研究施設（ホットラボラトリ）を有しており、照射やビーム実験に付随する放射化学操作を行える大変有用で希な施設です。この施設を拠点に研究活動を進めています。

3. ターゲット試料の調製と照射

核燃料サイクル開発機構（JNC）東海事業所の核データ研究グループ（原田、中村、古高）は、KUR を用いた放射化法によって、いくつかの放射性同位元素の中性子吸収反応断面積を測定する試みを続けてきましたが、当研究室は、この研究を照射試料の調製や照射後の測定、照射などの面において支援してきました。下の写真は、 $^{90}\text{Sr}(n,\gamma)$ の反応断面積の測定のために製作された ^{90}Sr の密封試料です。長さ 2 cm の石英管に封入した ^{90}Sr 試料を、カドミウムの容器やアルミ容器によって多重に封入したもので、JNC による設計と当研究室での放射化学操作の連携により製作されたものです。この試料を用いて、 $^{90}\text{Sr}(n,\gamma)^{91}\text{Sr}$ の熱中性子吸収断面積及び共鳴積分が正確に測定されました。この研究では、照射後の Sr 試料を化学的に処理することで不純物によるガンマ線バックグラウンドを低減させ、測定の精度を高める試みが行われました。化学屋の仕事が、核データの測定精度向上に多少なりとも役立った仕事の例として紹介することができます。



研究炉での照射に使用した封入試料

原子炉棟ホットラボは放射性同位元素の利用施設であるだけでなく、実験用核燃料物質の使用施設でもあります。プルトニウムの中性子断面積については比較的調べられていますが、核分裂モードなど核分裂反応のメカニズムに関わる研究も重要な研究課題となっています。右の写真は、 $90 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ のニッケル箔上に ^{239}Pu を $45 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の厚さに均一に電着した試料です（中央の丸い部分）。これは、同位体純度の高い ^{239}Pu を溶解した後にイオン交換



^{239}Pu の電着薄膜試料

による精製を繰り返して不純物元素を除いた上で、有機溶媒を用いた電着法によって作ったもので、この試料を用いて中性子誘起核分裂に際してのフィッションフラグメントと即発中性子の同時測定が行われました。この試料の製作を依頼された木村逸郎先生に、化学屋の腕を信用していただいたことは、とても嬉しいことでした。

右の写真は、ホットラボ棟のジュニアケブ室という化学実験室の写真です。この部屋は核燃料物質を扱うための実験室であり、ここには Pu などを扱うためのグローブボックスや、一般的な化学処理を行うためのドラフトが完備されています。この実験室は、もともとは軽遮蔽セルのための部屋でしたが、核燃料物質の取り扱いを安全に行えるように改装したもので、昔の「お化け屋敷」のようなホットラボを知っている人にとっては、見違えるような新しい実験室に見えるはずです。



原子炉棟ホットラボ・ジュニアケブ室

4. 長半減期核分裂生成物核種の回収

LLFP (Long-Lived Fission Product) と呼ばれる長半減期核分裂生成物核種 (^{126}Sn , ^{107}Pd , ^{99}Tc , ^{93}Zr , ^{79}Se , ^{135}Cs , ^{129}I 等) の核データは、これらの核種の分離変換を研究する上で不可欠な基本データです。しかしながら、これらのうちの多くの核種は市販では入手しにくいいため、実験ができないという状況があります。当研究室は、東京工大・原子炉工学研究所の井頭先生がサイクル機構との連携により進めている、米国オークリッジ国立研究所 (ORNL) から長半減期核分裂生成物核種の試料を入手しそれらの核データ測定を行う研究プロジェクトに参加しています。これは、ORNL の高中性子束炉で照射された Pu 燃

料中に生成した LLFP を、この燃料を処理した放射化学施設の廃液から回収して核データ測定用のターゲットに加工し、電子 LINAC を用いた TOF 実験によりそれらの中性子反応断面積を測定しようというプロジェクトです。

ORNL の照射後燃料処理施設の化学処理プロセスは複雑で、 ^{126}Sn , ^{107}Pd , ^{99}Tc , ^{93}Zr , ^{79}Se などの核種がどのプロセス流に移行しているかが良く分からないというのが実情であるため、FP の化学挙動に詳しい当研究室の藤井俊行助手が、ORNL に何度か出張し、先方の放射化学屋と詳細な議論を行い、それらの回収方法についての検討を進めてきました。多岐にわたる廃液から量の少ない長半減期核分裂生成物核種を回収する作業はきわめて難しい化学操作である上、回収された対象核種から不純物を除去したうえで安定な化合物に転換して密封線源に加工するという作業が非常に困難なものであることが大変良く分かります。これらの核種のうち、特に ^{126}Sn , ^{107}Pd , ^{93}Zr , ^{79}Se などをもうまく回収できれば、大変貴重な試料になるはずで

す。放射性同位体試料については、お金を出せば純度の保証のついたものを購入できるものと考えておられる研究者が多いかと思いますが、原子炉照射や加速器照射によってそれらを生成させた高放射性の原料（ソース）からの、放射化学的な回収・精製、そしてその組成や純度の分析と保証、線源への加工などがいかに難しいものであるかを知る機会となっています。核現象の研究と化学研究が一体となって行われてきた「放射化学」や「核化学」の意義や必要性を、今更ながら実感しているわけです。

5. 電子 LINAC を用いた核データ実験

平成 14 年度の文部科学省「革新的原子力システム技術開発公募」事業として「高度放射線測定技術による革新炉用核データに関する研究開発」が採択されました。東工大の井頭先生をリーダーとするこの研究開発では、原研とサイクル機構が中心となって新しい全立体角ガンマ線スペクトロメータを開発します。京大炉もこの研究に参加していますが、その役割は、京大原子炉の電子 LINAC（中性子発生装置）のパルス中性子飛行時間計測法コースにおいてこの検出器を用いた TOF 実験を行

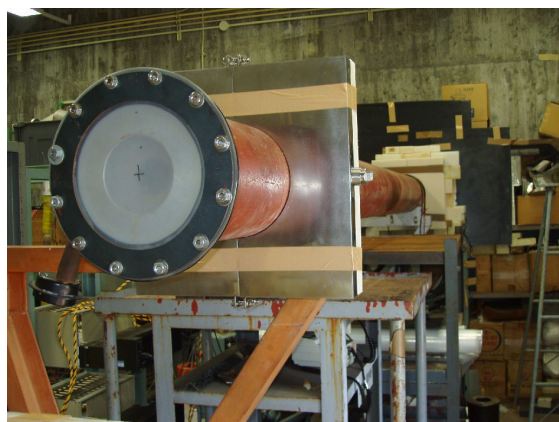
表 1 京大炉・電子 LINAC の主な仕様

い、TRU 核種の中性子捕獲断面積のデータの測定を行う実験を支援することです。現在、測定系の整備などの実験の準備を進めています。京大炉の電子 LINAC は 1964 年に設置された長い歴史のある装置ですが、30 MeV 程度の加速エネルギーにおいて大きな電流を

加速エネルギー	46MeV (無負荷時) 30 MeV (ピーク電流 500 mA 時)
ビーム出力 中性子束	最大 6 kW (公称値 最大 10 kW) 3×10^{11} n/cm ² /sec ターゲット表面 (ビーム出力 6 kW 時)
ビーム電流 (尖頭電流)	500 mA 2.6~6 A
パルス幅	定常モード 0.1~4 μ sec (連続可変) 過渡モード 6.8~220 nsec
パルス繰り返し	定常モード single~100 Hz 過渡モード single~300 Hz
クライストロン	20kW/30kW (平均出力) の 2 段

得られる使い勝手のよい電子線加速器です（表 1）。

右の写真は、この測定に使われる中性子導管ですが、この終端の手前側に全方位スペクトロメータやサンプルを設置して測定を行います。写真奥の壁の向こう側が電子線の制動放射線によって中性子を発生するターゲット室ですが、そちらからの中性子やガンマ線のBGを低減しつつ質のよい中性子ビームを得られるように、種々の改造・整備を行いつつあります。



全方位ガンマ線スペクトロメータ測定に使用される TOF 用中性子導管（整備中）

この研究プロジェクトでは、平成 17 年度から 18 年度にかけて、東工大、原研、JNC 等の研究者が参画して TRU 核種のデータ測定が行われる予定です。当研究室では、LINAC の実験環境の整備を進めると並行して、ターゲットとして使われる TRU 核種の密閉試料の入手の準備を進めています。試料の準備に関して特筆すべき点は、海外から入手する TRU 核種試料の放射化学的な分析と同位体組成の分析を自前で行おうと計画していることです。これは、放射化学的な分析を用いることによって、核データの測定精度と信頼性をできるだけ高めることを考えているからです。

6. トピックス・加速器駆動未臨界炉研究

同じく、平成 14 年度の文部科学省「革新的原子力システム技術開発公募」事業の一つとして、当実験所が提案した「FFAG 加速器を用いた加速器駆動未臨界炉に関する技術開発（代表：三島教授）」が採択されました。FFAG とは、Fixed-Field Alternating Gradient（固定磁場・強集束）加速器（シンクロトロン）のことで



FFAG 加速器が設置される新実験棟（左側）

ですが、この研究開発では、この加速器による陽子ビームを当実験所の臨界集合体実験設備（KUCA）の炉心に入射し、加速器駆動未臨界炉に関わる炉物理的な基礎実験を行う計画です。この加速器を設置するために建設していた新しい研究施設・総合実験棟（通称イノベーションリサーチラボ）が

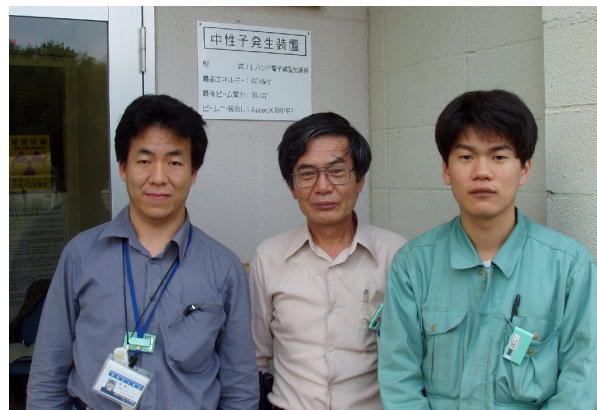
この3月に竣工しました。写真左側の建物がイノベーションリサーチラボであり、右側が臨界集合体実験設備 (KUCA) ですが、この両者は、ビームを輸送するダクトによって結合されます。開発中の FFAG 加速器の主な仕様を表2に示しました。京都大学原子炉実験所が、新しい展開を進めていることをお分かりいただけたと思います。

表2 FFAG 加速器のシステムパラメータ

集束方式	径方向 DFD
加速方式	高周波
セル数	12
k値	7.6
入射エネルギー	20MeV
取出しエネルギー	150MeV
Pext/Pinj	2.83
入射軌道半径	4.54m
取出し軌道半径	5.12m

京大炉のスタッフ一同より

量子リサイクル工学研究室、及び電子 LINAC の核データへの研究利用を進めているスタッフ一同は、放射化学研究や電子 LINAC の研究利用を通じて、わが国の核データ研究を支援します。来所の際は、お気軽に声をかけてください。



量子リサイクル工学研究室メンバー（左写真：上段左より白井助教授、中野敬子、上原研究員、下段左より山名教授、藤井助手）と、電子 LINAC 関係者（右写真：左より堀助手、高見技官、阿部技官）