

私と核データ測定

— 放射化断面積と中性子過剰短寿命核 —

河出 清

kawade.kiyoshi@nifty.com

中性子放射化断面積の系統的測定及び測定者間の値のばらつき並びに短寿命核の崩壊特性測定を始めた経緯とその後の展開を述べます。

1. はじめに

1983年頃、原研FNSと阪大工学部OKTAVIANから、名大の私たちに「一緒にやりませんか」、「使いませんか」と声をかけて頂き、中性子放射化断面積測定の共同研究を始めました。

それまで短寿命核分裂生成物をオンライン同位体分離器 (ISOL) や迅速化学分離法を用いて、低エネルギー核構造を調べる崩壊核分光をやっていました。β-γ核分光の立場から、核融合炉候補材の中性子放射化断面積データを眺めると、物理定数であるはずの断面積の値が誤差を超えてときには数倍ばらついているのを奇異に感じました。調べた文献の中には、実験の詳細な記述がなくどのような補正をしたのかははっきりしない場合もありました。そして反応生成核種の半減期が30分以下の測定データが相当欠落している状況でした。

2つの強力中性子源を使用し誘導放射能を丁寧に計測すれば、ばらつきの原因が分かるかもしれない、測定可能な反応を網羅的に測定しすっきりしたデータが出せるのではと期待しました。実験は、FNSでは誘導放射能の半減期が概ね30分以上の反応を、OKTAVIANでは30分以下を対象としました。いくつかの同じ反応を測定して、両者の一致度も比較検討しました。

2. 中性子放射化断面積

2.1 データの信頼性

強力中性子源が利用できることにより補正について丁寧に調べることができ、しかも補正量そのものを少なくできました。種々の補正をきちんとすれば信頼できる結果が出る、当然といえば当然ですが、実際にやってみて実感できました。FNSやOKTAVIANに

比べ、これまでに発表されたデータの多くが弱い中性子源しか利用できず、数グラムという大量の試料を使用し中性子源に密着させて照射していたようです。ずれの大きい発表データのほとんどは中性子エネルギーが d-ビームに対し 0 度方向の 1 点しかありませんでした。

近い距離での照射では中性子スペクトルがはっきりしない。そして放射能測定では線源が弱いため検出器に密着させて測ることになります。測定位置のずれ、 γ 線の自己吸収や広がった試料に対する検出器の効率がはっきり決まらないなど大きく分けて、中性子スペクトルの乱れの曖昧さから来る誤差と γ 線検出効率の不確定さからの誤差とが結果に効いてきます。

3~4 年かけ、きちんと補正すれば大丈夫と思えるまでになりました。ビーム強度に重点をおいた OKTAVIAN の重照射室の中性子の散乱成分は FNS に比べ、一桁程度多いですが、励起関数を考慮して補正すれば誤差の範囲で良く一致しました。両者間の中性子スペクトルの違いが断面積に及ぼす補正量は最大で 10%程度でした。仮に他のグループが弱い中性子源しか使えず、大量試料を密着照射して何も補正しないとしても、30%以上のずれは考えにくいです。それ以上の大きなずれは放射能測定からきているのではないかと推測していますが、50%以上のずれは分かりません。

2.2 系統的測定

20 年ほどかけて、測定可能核種の反応を系統的にほぼ測定し終わりました。d-T 中性子源では、d-ビームの方向に対し試料の照射位置を変えることにより中性子エネルギーを 13.4~14.9 MeV と変化させることができます。(n,p), (n,np), (n,2n), (n, α)反応をそれぞれ 30~60 反応程度、(n,t), (n, $n\alpha$)反応も若干測定しました。d-D 中性子の 2.1~3.1 MeV に対しては、パルス中性子照射による生成核の半減期が秒以下の測定も行い、数は少ないですが(n,n'), (n,p), (n, α)反応を測りました。

強力中性子源・高効率放射能測定法によっても、半減期が 10 年以上と長いものや濃縮同位体試料の入手困難などの制約により、測定できたのは全反応の 1/4~1/6 程度でした。未測定反応の値を推定するために、20~30%の推定能力のある経験式（系統式）を自分たちの測定データだけを用いて提案しました。

放射化断面積データは中性子エネルギーが 20 MeV 程度まで必要とされています。13~15 MeV 及び 2~3 MeV 付近は充実してきていますが、利用可能な中性子源の制約により、6 MeV 付近に少しデータがあるだけで他のエネルギー領域は不十分であり、強力な擬似単色中性子源の開発及び画期的な反応生成核種の計測方法の開発が待たれています。数は少ないですが名大工学部バン・デ・グラーフ (VdG) 型加速器を用いて得た 3~6 MeV 範囲の結果を現在まとめています。

2.3 他人と自分のデータとの関係

データを発表するとき当然他人のデータを参考文献としてあげます。他人のデータに影響され、自分のデータを動かすことはないと思います。以前のデータと良く一致していればほっとする反面、がっかりもします。

評価の際、見逃されているかも知れない系統的なずれを考慮して、手法の異なる結果を平均化するのはある程度ありえるかもしれませんが、しかし、同じ手法のデータを平均化するのはどうもしっくりしません。データを発表する私は、どれか一つだけを選ぶ評価方法もあると考えています。

十分検討したとしても、やはり本当に大丈夫だろうかという“自信のなさ（謙虚さ）”からくる誤差の付け方については、研究者の考え方により異なります。評価者は、悩ましいとき、ときには自分で測って決着を付けたいと思われるのではないのでしょうか。そして、自分の結果を決定版として発表されるでしょう。

3. 中性子過剰短寿命核の崩壊様式

1983年頃から始めた放射化断面積の測定以前の1969年頃から、加藤敏郎先生のもとで当時院生の山本洋さんと一緒に短寿命核の崩壊核分光を始めていました。名大工学部には、原子核工学科創設時の特別設備として設置されたばかりの2MVのVdG加速器がありました。d-Li反応により約14 MeVの中性を発生させることから始めました。そして(n,p)反応で数十秒から数分程度の中性子過剰短寿命核をつくり崩壊核分光を始めました。これがその後の核分裂生成物に対する迅速化学分離法（高圧ろ紙電気泳動法と放射能イオンクロマトグラフィ）とオンライン同位体分離器（ISOL）を用いた中性子過剰核の崩壊核分光、核融合炉候補材の中性子放射化断面積測定の出発点になりました。

3.1 名大VdG加速器による(n,p)反応の利用

1960年代末頃の低エネルギー核構造を研究する崩壊核分光は、強い線源が作れる荷電粒子照射による中性子欠損長寿命核の研究が主流でした。また、当時はインビーム核分光が始まった頃であり、中性子欠損核領域では崩壊核分光は核構造理解の補助的手段になりつつありました。一方、インビーム核分光では届かない中性子過剰核領域は、原子炉中性子を用いた核分裂と(n,γ)反応にほぼ限られ中性子欠損核領域に比べ圧倒的に未解明でした。

このような時、断面積はmbと小さいが(n,p)反応により、核分裂反応でも届かない中性子の多い短寿命核を作ることができました。しかし、発生できる中性子束の強度が弱く、当時、フィンランド、インド、ドイツ、フランスのグループがコッククロフト・ワルトン型加速器を用いて測定していた程度でした。しかも、私達のVdG加速器ではビーム強度が取れなくて、外国グループに比べ中性子源強度が一桁ほど弱いというハンディがあり

ました。そこで、1週間程度の照射・測定を徹夜で繰り返し、統計精度を上げました。しかし、長時間測定、グラムオーダーの多量の試料による測定ではやはり γ 線や β 線に対する補正量が多く、どこまで誤差を押さえられるか、慎重さが必要でした。これが後になって放射化断面積測定での誤差源の見極めにつながりました。

5～6年間でほぼできることは終え、この(n,p)反応のアイデアの延長として京大炉の電子線ライナックによる(γ ,p)反応も利用し、希土類核の $^{168,170}\text{Ho}$ 、 $^{152,154}\text{Eu}$ 、 ^{162}Tb 、 ^{178}Lu の崩壊図式を公表しました。

ここで得た教訓は、10倍ぐらいのハンディは3倍の忍耐と3倍の工夫で何とかなる、しかし10倍以上異なると根本的にやり方・システムを変える必要があること、逆に10倍以上のビーム強度あるいは検出器の分解能を改善できればこれまでとは異なる世界が見えること、でした。

3.2 立教炉及び京大炉での核分裂生成物の核分光

(n,p)反応では、決定的に線源強度が不足していたので、核分裂反応に着目しました。当時の化学分離法では希土類の相互分離に時間がかかり、長寿命核しか測られていませんでした。丁度このとき、京大炉の玉井忠治先生が十数秒以内で希土類の相互分離ができる、高圧ろ紙電気泳動法を開発されたばかりでした。早速教えて頂き、立教大学原子炉で永原照明・阮建治両先生と共同研究として1974年から、La, Pr, Ce付近の測定を開始しました。京大炉に比べ中性子束が一桁少ないので、別な工夫が必要でしたが、マシンタイムを多く頂けたのがありがたかったです。

丁度この頃、原子炉中性子による核分裂あるいは高エネルギー陽子の核破碎反応を用いた中性子過剰短寿命核の崩壊核分光が、オンライン同位体分離器 (ISOL) を用いてスウェーデン、ドイツ、フランス、米国、スイスで進められ世界の主流になりつつありました。迅速化学分離を始めた1974年、京大炉の岡野事行先生がエアロゾルを混ぜるヘリウムジェット型 ISOL (KUR-ISOL) の建設を全部自作で始められ、声をかけて下さいました。このとき、短い期間でしたが東京理科大学工学部いたとき大気中のエアロゾルに放射能が付着する現象の勉強をしていたことが He ジェットの開発に役立ちました。始めて約2年後の外国で開催されたシンポジウムで米国のグループがエアロゾル方式の ISOL はダメだと自分達のデータを発表しました。私達はこのことを後で知りましたが、うまく行っていましたのでそのまま続けていました。

建設途中の1978～1980の2年間、ドイツのユーリッヒ (Jülich) 研究所に客員研究員として滞在しました。1979年に開催されたフランスグルノーブルのワークショップでスウェーデンの B. Fogelberg が、エアロゾル方式の KUR-ISOL がうまく行っていると紹介しました。ダメだといわれたことを日本ではやっていたのかという驚きからか「本当か、日本人はいるか」と会場から質問がありました。出席していたのは私だけでした。私は小

さい声で「イエス」とだけ答えました。このとき臆せず説明できる英語力の必要性和、大切なことはまずやってから自分で結論を出すことの重要性を再確認しました。ユーリッヒでは気体充填型反跳分離器 JOSEF と豊富なマシンタイムを使って、二重閉核 ^{132}Sn 近傍の核分光を行いました。遅延同時計数法による寿命測定には信頼できる即時曲線を得るのが問題でしたが、特性 X 線を用いる方法を思いつきました。

グルノーブルの LOHENGRIN とスイス CERN の ISOLDE を用いる短寿命核の共同実験にも参加しました。論文で名前を知っていた人がいて、徹夜実験のおり、お互いあなただったのですかと打ち解けました。(n,p)反応による短寿命核の測定をスタートとして、ISOL のこの実験に至ったいきさつなど、お互いに理解できる場所がありました。また、教科書を書いておられた偉い先生が、講義のためカナダと CERN の間を行ったり来たりされていました。ジーパンをはいて回路の調整をされている姿に接し、感激しました。

3.3 β 崩壊エネルギーの測定と新核種の探索

帰国した 1980 年から KUR-ISOL で核分裂生成物の β 線測定を、Ge 検出器を用いて新たに始めました。1985 年から迅速化学分離のため、放射能イオンクロマトグラフィを開発された玉井先生から今回も教えて頂き、核分裂生成物 Nd, Pr の崩壊を測りました。1987 年から原研の協力研究として市川進一・関根俊明両氏らと東海タンデム加速器付置 ISOL を用いて La 領域中性子欠損核を、1991 年から大学原研プロジェクト共同研究として高崎研の TIARA-ISOL を用いて中性子欠損 Pr の新核種などの測定をしました。その後協力研究は、陽子による荷電粒子誘起核分裂反応を用いた質量数 160~170 領域の中性子過剰核並びに重イオン粒子の融合反応によるアクチノイドの新核種の同定などに展開しました。線源づくりに工夫が要りますが、インビーム核分光では届かない、中性子過剰核の崩壊核分光は、今後さらに魅力を増すものと思います。

既知核種約 2300 に比べ未知原子核は 4000~6000 個存在すると言われ、今のところ製造方法が限られているため中性子過剰核がほとんど未解明です。年間 20 個程度の速度で新核種が同定されています。核子の結合エネルギーがゼロになる原子核の存在限界は、種々提案されている原子質量公式に依存しています。中性子欠損核側ではデータが相当蓄積されているので、質量公式により、あまり異なってはいませんが、中性子過剰核側では大きくばらついています。

1998 年から、ほぼ 100%の効率で β 崩壊エネルギーを測定できる β - γ 全吸収型 BGO 検出器を作製し使用しています。従来の単一 Ge 検出器による異なる励起準位に遷移する β 成分ごとの測定に比べ、一気に 2~3 桁効率が改善できたうえに、崩壊様式の情報を必要としない特長があります。2001 年に BGO に比べエネルギー分解能のよい大型貫通型 Ge 検出器を試作しました。BGO に比べまだ効率が低いですが、BGO に匹敵するさらに大型の Ge 検出器の作製が技術的に可能なので、貫通型 β - γ 全吸収 Ge 検出器は、近い将来有力な

検出器になるものと期待しています。

4. おわりに

研究の大部分は、原子炉や加速器を用いた学外の方との共同研究として行ってきました。研究を進めるにあたって、とにかく結果が出るまでは研究を続ける、結果が出ないときには結論が出るまでは続けよう、と決めてやってきました。研究論文を発表するだけでなく、学位論文としてまとめたものにするようにしました。学位取得を通じて、若いときに多くの人に世話になる経験をすることはその後のプラスになるものと思います。

これらの大型施設が使えるのは、相当以前に先輩の先生方がなされた決断によるものと思います。若いときにうんといい思いをして、先輩にではなく、後で若い人にプラスアルファを付けて返せばよいと思います。

また、能力に個人差のある社会の中で、どうすれば過ごしやすいかを長年考えてきました。結局、学内外の装置・経費及び院生・研究者という人材並びに自分も公共財と考えるようになりました。

謝辞

個々にお名前は挙げませんが、多くの研究者、事務の方々、研究室の院生・職員の皆様のご協力及びご支援並びに長年お付き合い頂いたことに感謝申し上げます。皆様の益々のご活躍とご健勝をお祈り申し上げます。

あとがき

大学1年の学生さん向けに名大と私大で、セミナー、物理、実験を担当しています。びっくりするほど多くの方が、頑張れば何とかできると思い込んでいます。「どうして現在のような状況になっているのですか」と尋ねると、「頑張り方が足りなかった」と、「じゃどうして頑張れなかったの」と再度聞くと、「もっと頑張る、その頑張りが足りなかった」と。

やりたいことが一杯あっても全部はできないから、将来自分はどうなっていたいか将来から現在を考え、今やることと優先順位を知る、そして自分に都合の悪いときにこそ少し勇気を出して早めに報告できる人になりたい、と講義の合間に話しています。