

研究室だより(II)

高度ガンマ線分光技術により新たな原子核研究を展開

日本原子力研究開発機構
核変換用核データ測定研究グループ

大島真澄¹⁾・原田秀郎²⁾

¹⁾ oshima.masumi@jaea.go.jp

²⁾ harada.hideo@jaea.go.jp

URL: http://www.jaea.go.jp/04/4_7.shtml

1. はじめに

昨年の原研とサイクル機構の統合により日本原子力研究開発機構の中に、新たに核変換用核データ測定研究グループが発足しました。新機構でのほとんどのグループは旧組織がそのまま移行したなかで、当グループは旧原研と旧サイクル機構のグループ（旧原研・原子核科学研究グループと旧サイクル機構・システム設計評価グループ）が融合した数少ないグループとなりました。本稿では 2 グループのこれまでの研究と新グループで我々が目指しているものを概説し、研究室紹介としたいと思います。なお、以下の記事についての詳細と参考文献は標記ホームページをご覧ください。

2. 旧原研・原子核科学研究グループ

当グループでは原子核の構造を調べること、またその知識や手法を使って、原子力開発に必要な基礎データを供給すると同時に、新たな応用研究を展開してきました。これにはタンデム加速器ブースター施設に設置されたコンプトン抑止ガンマ線検出器 16 台と低エネルギーガンマ線検出器 3 台からなる多重ガンマ線検出装置 GEMINI-II（図 1）を主に使用しています。

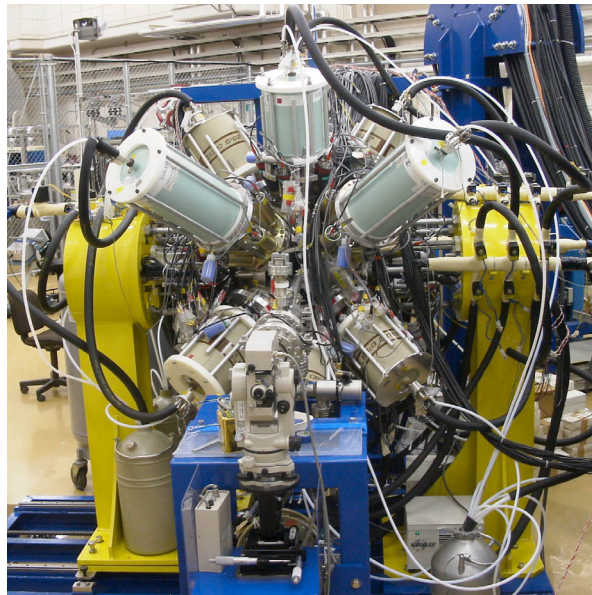


図 1 多重ガンマ線検出装置 GEMINI-II

2.1 核構造研究

FP 領域核種の高励起準位構造や崩壊核データなど核構造データはそれ自体断面積の導

出に有用な核データですが、未知領域の核データを核理論により補完するためにも、広い領域にわたり精度の高い実験データを提供して核理論の高精度化に寄与することは重要です。当グループでは重イオンクーロン励起や核融合反応等によって原子核を励起し、その状態から放出されるガンマ線を計測することで、励起準位や遷移強度、原子核の形状といった FP 領域原子核の構造を調べる研究を行ってきました。

クーロン励起実験では、原研タンデム-ブースター加速器で原子核を加速し、そのイオンビームを標的核（主に Pb）に入射します。イオンビームのエネルギーをクーロン障壁ぎりぎりの値に選ぶと、原子核は純粋に電磁氣的相互作用のみによって約 2MeV の励起エネルギーまで励起されます。その励起プロセスは励起状態の電磁氣的性質によってのみ記述されますので、励起プロセスを詳細に解析することにより、全ての励起状態間の ($E1, E2, E3, \dots, M1, M2, \dots$) 電磁転移確率を（核模型に依らずに）求めることができます。また、他の手段では困難な励起状態の電気 4 重極モーメント (Q) や原子核の変形度を知ることができます。最近ではこの手法により、偶偶核 $^{70,74,76}\text{Ge}$ を系統的に測定し、低励起状態で球形とラグビーボール型の変形状態が共存していて、中性子数 38~40 間では各々の変形を持つ 2 つの 0^+ 準位が逆転していることを明らかにしました（図 2 参照）。 ^{64}Zn , $^{74,78}\text{Se}$ などでも同様の変形共存が見られましたが、面白いことに ^{98}Mo においては変形度は同じで、ラグビーボール型と 3 軸非対称変形が共存していることを明らかにしました。殻模型計算などとの比較により、これらの変形共存を特徴とする内部構造には $g_{9/2}1$ 粒子軌道が深く関わっていることが分かりました。

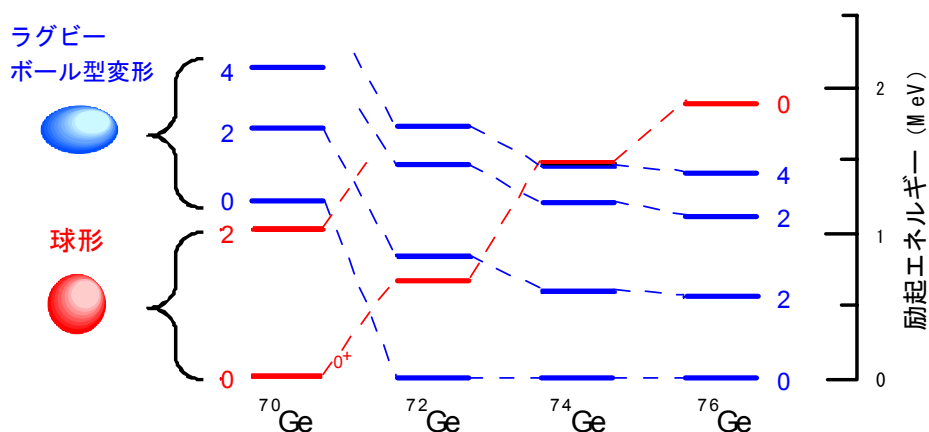


図 2 $^{70,72,74,76}\text{Ge}$ アイソトープの変形状態。両端の数字は核スピンを表す。パリティは全て+。似た内部構造を持つ状態を破線で結んだ。クーロン励起実験により、各アイソトープの基底状態、励起状態は球形とラグビーボール型変形という 2 つの変形状態に分類されることが分かった。

核融合反応を用いた高スピン状態の研究では、所外グループと協力して、GEMINI-II を使ったガンマ線同時計数実験により、様々な特徴を持つ回転バンド構造を明らかにし

ました。質量数 140 領域での強い M1 転移で結ばれる回転バンド (M1 バンド) の発見、質量数 150 と 180 領域で観測された、葉巻型変形の対象軸方向に大きな角運動量成分を持つ回転バンド (high-K バンド) の斜軸回転モデルによる分析、質量数 180 領域奇奇核での指標逆転現象の系統的な研究等がその代表例です。

中性子捕獲反応を用いた FP 核種の高励起準位構造は、中性子捕獲断面積測定のための基礎データとして重要です。熱中性子捕獲断面積はこれまで主に、熱中性子で放射化した後に崩壊ガンマ線を測定する放射化法で決定されてきましたが、中性子捕獲で安定核が生成される場合にはこの方法は適用できません。生成核の準位構造を高い励起エネルギーまで精度良く決定できれば、即発ガンマ線法により断面積測定の高精度化を果たすことが出来ます。このために、原子力機構研究炉 JRR-3M ガイドホールの c2-3-2 ビームライン (図 3 参照) に多重即発ガンマ線検出装置を設置して、系統的な準位構造研究を行うことを計画しています。

コリニアール・レーザー分光は高い精度で原子準位間のエネルギー差を測定することが出来、原子スペクトルの超微細構造や同位体シフトから、原子核の電磁気モーメント、核荷電半径の変化などの原子核構造の情報が得られます。我々はこの研究を FP 核種の核構造研究の一環として位置づけ、Pr、Ce、La など希土類元素の放射性同位体に対するコリニアール・レーザー分光を系統的に行っています。



図 3 多重即発ガンマ線分光ビームライン (JRR-3M ガイドホール)

2.2 核変換の基礎研究

放射性廃棄物の安全な処理・処分は今後の原子力利用における重要な課題であり、旧原研・原子核科学研究グループにおいては、篠原氏、初川氏を中心に、研究炉を用いた MA の核データ測定を行ってきました。すなわち、長寿命核分裂生成物 (^{134}Cs 、 ^{135}Cs)

や MA (^{241}Am 、 ^{243}Am) の中性子捕獲断面積、MA (^{237}Np 、 ^{241}Am 、 ^{243}Am など) の遅発中性子放出率、核分裂収率及び核分裂断面積を測定しました。また、タンデム加速器を用いて陽子並びに重イオン誘起核分裂反応による MA の生成消滅過程を明らかにして、将来の核変換処理に役立つ精度と正確さに優れる基礎データを取得することを目指しています。これまでの ^{241}Am の中性子捕獲断面積及び中性子による核分裂収率の測定では、照射中の中性子捕獲反応で生成する $^{242\text{m}}\text{Am}$ 、 $^{242\text{g}}\text{Am}$ 及び ^{242}Cm 、あるいは核分裂生成物に起因する核反応が測定誤差に大きく影響することがわかりました。測定値を用いてこの影響を補正することで、正確なデータを得ることができます。MA を原子炉で照射すると、様々な核反応が同時に起こります。 ^{241}Am の場合には、試料の同位体組成が時間とともに顕著に変化します。たとえば $10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ の熱中性子を 1 年間照射すると、93.3%の ^{241}Am は他の MA や核分裂生成物に核変換することがわかりました。

2.3 応用研究

核構造研究ではガンマ線同時計数法により高励起準位構造の研究を行いますが、この方法を核種定量に用いると、優れた定量感度が得られます。具体的には、ガンマ線同時計数から 2 次元マトリクスを得ることにより、一次元法の 1,000 倍の分解能が達成できます。また、同時にバックグラウンドも平均して約 1/1,000 になることがわかりました。実際、JRR-3M で気送管照射し、前述の GEMINI-II を用いて多重ガンマ線測定を行うと、最高 1 ppt オーダーの感度で、50 元素同時に、(化学分離不要のため) 迅速定量出来ます。また、多元素を含む定量済み標準試料を同時照射して、ガンマ線強度から定量する比較法によって、(統計誤差を除き) %オーダーの精度が得られることがわかりました。放射化分析での感度は中性子断面積以外に、崩壊半減期やガンマ線分岐比に依存するため、元素により大きく異なります。これに対し、中性子捕獲反応で生成される高励起状態からの (即発) ガンマ線を測定する即発ガンマ線分析はより多くの元素に適用出来ます。核構造、核データ研究で整備しつつある多重即発ガンマ線検出装置は微量元素分析の仕様にも合致しますので、上記核構造研究と並行して開発を進めています。この利用を図るために、11 の外部機関と連携重点研究 (代表：首都大学海老原教授) を始めました。

3. 旧サイクル機構・システム設計評価グループ

当グループでは先進的核燃料サイクル技術、とりわけ放射性廃棄物核種の核変換技術の基盤データとして重要な核データの測定研究を進めてきました。放射性核種である核分裂生成核種及びマイナーアクチニドの中性子捕獲断面積を測定するための技術や、光核反応の高精度測定を可能とする技術の開発が代表的なものです。

放射性核種の中性子捕獲断面積を測定する方法としては、原子炉を用いた放射化法を基本に、精密 γ 線分光技術を適用し、核分裂生成核種の熱中性子捕獲断面積を系統的に測定しました。 $^{134,135,137}\text{Cs}$ 、 ^{90}Sr 、 ^{99}Tc 、 ^{129}I 、 $^{166\text{m}}\text{Ho}$ が代表的な測定例です。従来の測定値と 100 倍近く異なる結果も得られ、正確な核データ測定の必要性が認識されました。また同

時に、放射性核種の核データ測定の難しさも明らかになってきました。最近は、放射化法のマイナーアクチノイド核種への適用も開始し、半減期が約 2 日と短い高次マイナーアクチノイド核種である ^{238}Np の熱中性子捕獲断面積を世界で初めて測定することができました（2004 年日本原子力学会賞論文賞）。

さらに、放射化法では測定できない核種の熱中性子捕獲断面積を測定するために原子炉の中性子導管で得られる炉外中性子ビームを用いた即発 γ 線分光法の適用に取り組むとともに、中性子捕獲断面積の中性子エネルギー依存性を測定するために中性子飛行時間測定法の開発にも取り組んできました。

光核反応の高精度測定では、図 4 に示す高分解能高エネルギー光子線スペクトロメータ（HHS: High-resolution high-energy photon spectrometer）という高エネルギーガンマ線を高分解能で、かつ高いピーク対トータル比で測定できる技術を開発しました。これをレーザー逆コンプトン光という新世代のガンマ線光源と組み合わせることにより、光核反応の全吸収断面積を高分解能で調べることが可能となりました（1999 年度日本原子力学会賞論文賞）。図 5 は、 ^{28}Si 核種に対して行われた光核全吸収断面積の測定例を示しています。ドイツ・マインツ研究所の Ahrens 博士らの測定（1975 年）で 4 つ山構造が観測されていたのに対し、開発した高分解能測定技術により約 30 個の微細共鳴構造から構成されていることが観測できるようになりました。



図 4 高分解能高エネルギー光子線スペクトロメータ（HHS）

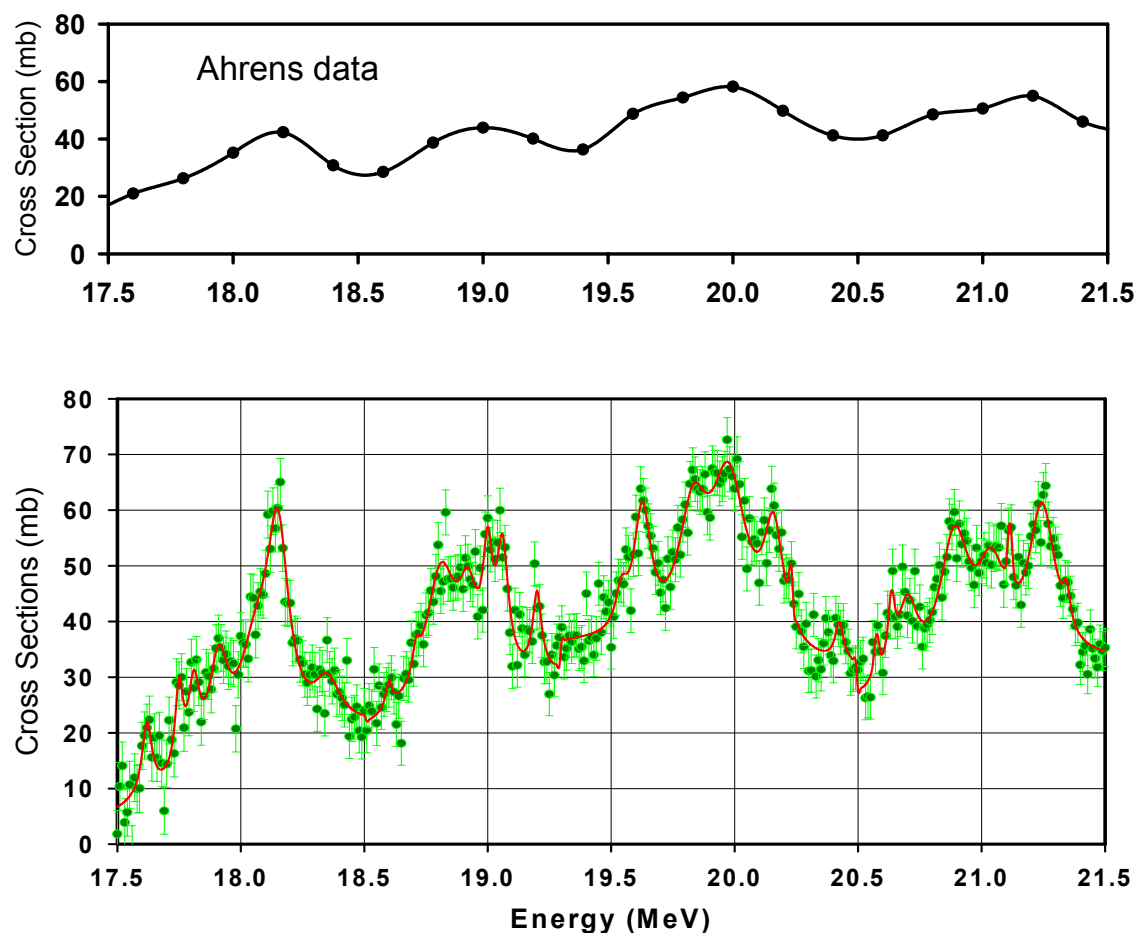


図5 ^{28}Si の光核全吸収断面積の測定例。赤線は、ピークフィットの結果を示す。

4. 高度放射線測定技術を用いた原子核データ研究

中性子捕獲断面積研究にはこれまで C_6D_6 検出器、 BaF_2 検出器など時間特性、検出効率に優れた検出器が主に用いられてきました。しかし、中性子は透過性、散乱性が強く、サンプル以外からのガンマ線バックグラウンド、及びサンプル中の不純物に起因するバックグラウンドが高いので、革新炉に要求される高精度核データを取得するためには、これらを取り除く工夫が必要になります。このために我々は、従来中性子捕獲反応実験にほとんど使われてこなかった高分解能 Ge 検出器を複数組み合わせた全立体角 Ge スペクトロメータを開発することを提案し、文科省（MEXT）公募事業「高度放射線測定技術を用いた革新炉用原子核データ研究」（代表東工大井頭助教授、H14～18 年）を始めました。核データ研究分野における主要 6 機関（東工大、原子力機構、北大、東北大、京大）が参加し、京大ライナック施設において熱～10keV 領域での中性子断面積測定を計画しています。これまでに全立体角 Ge スペクトロメータ本体（クラスター検出器、クローバー検出器と BGO コンプトンサプレッサーからなる多重ガンマ線検出装置）と高速データ収集装置（40 台以上の多チャンネル検出器からの高分解能同時計数事象データを従来の 10

倍以上の高速で収集するコンパクトな装置)の開発を当グループが分担しました。また京大、東工大グループと共同して飛行時間法測定のための中性子コリメータ、中性子遮蔽体からなるビームラインの整備をほぼ完了し、今年度 ^{237}Np , $^{241,243}\text{Am}$ の中性子捕獲断面積の本格測定を計画しています。Ge 検出器の高分解能を生かして核データの高精度化につなげる解析法の開発がまさにこれからの開発課題となります。当事業の全立体角 Ge スペクトロメータ開発に大島、核データ測定に原田が分担責任者を務めています。

5. J-PARC 強力中性子源を用いた原子核研究

2001 年に旧原研は高エネルギー機構と共同して J-PARC 計画をスタートさせました。これには第 1 期計画として高強度パルス中性子源を利用した物質・生命科学実験施設 (MLF) と高エネルギービームを用いた原子核素粒子実験施設が含まれます。高強度パルス中性子源はまさに速中性子断面積研究にうってつけのツールであり、核データ測定研究を大きく進展させることが期待されるため、我々は原研、サイクル機構のときから実験提案を積極的に行ってきました。中性子ビームラインは 23 本という制約があるため、「中性子実験装置計画検討委員会」に実験装置提案を行い、採択されて始めてビームライン建設の権利が生じます。当グループの前身では核変換用核データの測定は勿論、2 項で紹介した核種分析テーマを実施していましたが、さらに宇宙核物理テーマを加え、以下の 3 テーマでの共同提案を行いました。これらは速中性子核反応を積極的に利用し、ガンマ線測定を行う点で共通しています。

① 速中性子反応と宇宙核物理 (代表：大阪大 永井泰樹、メンバー：27 名)

元素の起源と恒星の進化について理解を深めるために、恒星内での重元素合成過程である s 過程、p 過程、r 過程に関連する中性子反応を測定。

② MA 及び LLFP の中性子核データ (代表：東工大 井頭政之、メンバー：39 名)

核分裂炉内で生成される MA 及び LLFP の処理・処分の一方策として MA 及び LLFP の分離・核変換処理研究が重要である。核変換基礎研究のため MA と LLFP 核種の精度良い中性子断面積データを測定。

③ 全元素同時・非破壊・高感度核種定量 (代表：都立大 海老原充、メンバー：30 名)

多重ガンマ線検出法と中性子即発ガンマ線分析法を組み合わせた高感度・高確度・多元素同時の核種定量分析法を開発し、材料科学、環境科学、宇宙科学、地球科学の課題に取り組む。

幸い、この実験装置提案は 2004 年 8 月に採択され、3 年以内のビームライン建設の権利を得ました。これを受け、数億円を要するビームライン建設予算獲得に向け、大型ファンド提案を始めました。その一つとして、2005 年に始まった科学技術振興機構 (JST) 公募事業「革新的原子炉技術開発」に、上記②のテーマで「高強度パルス中性子源を用いた革新炉用核データ研究」(代表：北大鬼柳教授)の提案を行い、幸いにも平成 17 年

度～21年度の5年計画で総予算12.6億円の事業としてスタートさせることが出来ました。この事業の主な分担としては、J-PARC ビームライン開発を東工大井頭助教授が分担し、捕獲実験装置開発を大島、核データ測定に原田が分担責任者として参加しています。大島は本提案の幹事として、提案書を取りまとめ、副代表を務めています。また、全体を北大鬼柳教授がとりまとめます。図6にMLF ビームラインの配置図を示します。#4のビームラインが中性子核反応測定装置に割り当てられている。

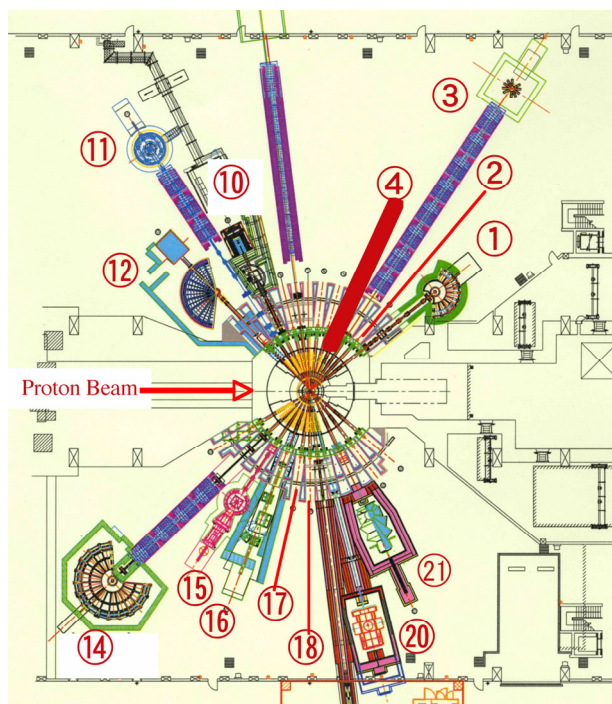


図6 J-PARC MLF ビームライン配置図

6. 今後の展望

当グループが得意とする先端技術をまとめると以下ようになります。

- ・ 多重ガンマ線検出装置 GEMINI-II はコンパクトながら、多重ガンマ線に対する検出効率、S/N 比の点で国内最高レベルの優れた性能を有します。
- ・ 高分解能高エネルギー光子線スペクトロメータ（HHS）は、光核反応全吸収断面積測定においてこれまでにない高エネルギー分解能を達成しました（1999年度日本原子力学会賞論文賞受賞）。
- ・ 放射性核種を対象とする放射化法による熱中性子捕獲断面積の高精度測定技術（2004年度日本原子力学会賞論文賞受賞）を有し、今後マイナーアクチニド核種への本格的適用が期待されます。
- ・ 全立体角 Ge スペクトロメータは中性子捕獲反応からの多重ガンマ線を高エネルギー分解能かつ高検出効率で検出する性能を有し、核種弁別による核データの高精度化が期待されます。
- ・ 高速・高分解能多重ガンマ線データ収集技術、液体窒素安定供給システムなど当グループが開発したガンマ線測定の周辺技術は一部すでに理研、東北大等においても利用されるなど、その実用性が評価されています。
- ・ 多重ガンマ線の解析技術、特に2次元マトリクスを用いた核種分析技術（2002年原子力学会賞、2004年文部科学大臣賞研究功績者表彰受賞）は、核構造研究、微量元素分析ばかりでなく、核データ測定研究に威力を発揮することが期待されています。

以上の先端技術を駆使して、原子力研究における以下の課題に取り組めます。

- 革新炉のための核データ測定研究

ウラン・プルトニウムを有効利用する革新的原子炉開発のために、現在急務とされている核データ、特に ^{237}Np , $^{241,243}\text{Am}$, $^{243,244,246,248}\text{Cm}$ などの MA や ^{99}Tc , ^{129}I , ^{93}Zr , ^{107}Pd などの LLFP 核種の速中性子捕獲断面積を測定します。これには上述した MEXT、JST 公募事業をベースに、京都大学ライナック、JRR-3M、産総研電子蓄積リング、また将来には J-PARC 施設を利用します。また、当機構の次世代部門のニーズも踏まえ、高速中性子に対する捕獲断面積測定技術を、東大弥生炉の高速中性子を利用し開発するとともに、JRR-3M、京大炉等で重要 MA 核種の熱中性子捕獲断面積を高精度化します。

- FP 核種の核構造研究

中性子捕獲反応を用いた FP 核種の高励起準位構造は、即発ガンマ線分光法による中性子捕獲断面積測定のための基礎データとして重要です。また、崩壊核データは崩壊熱の基礎データであると同時に、放射化法による断面積導出のための基礎データとして重要です。LLFP 核種に限らず広い領域で核構造特性を調べることは核理論の精密化に貢献し、現在直接測定が不可能な領域の核データの予測性を高める上で有効です。このために千葉工大、東大、高エネルギー機構等との共同研究において、FP 核種の核構造研究をタンデムブースター、JRR-3M、J-PARC において展開します。

- 原子力技術による他分野への貢献

高度放射線測定技術、高強度パルス中性子源などの原子力技術は、原子力分野に限らず、広い産業分野、学術分野においても有用です。事実、我々は JRR-3M 気相管照射による中性子放射化分析と多重ガンマ線検出法を組み合わせた多重ガンマ線放射化分析を実用化しているほか、JRR-3M や J-PARC において開発中の多重即発ガンマ線分析法は、これまでにない非破壊、迅速、高感度という特徴を発揮することが期待されています。核データ、核構造研究用に整備した原子力技術を外部に開放し、多様な利用を図るために、機構内においては量子ビーム応用研究部門と連携し、外部とは連携重点研究を実施しています。

7. おわりに

核データ、核物理研究は原子力開発とともに発展してきて、現在も依然として原子力システムの技術開発に重要な基礎分野ですが、同時に放射線利用が医療などの分野で大きく利用されているように、その知識や技術により社会に直接貢献することができます。エネルギーや地球資源、環境についての考え方、価値観が大きく変動する現在、我々は短期的ばかりでなく、中長期的なビジョンを要求されており、このことが以上の研究テーマを選択した所以であります。