

炉物理・核データ部会合同企画セッション

「分離変換技術の実現にむけて炉物理・核データは如何に寄与できるか」

(3) 核変換用核データの測定状況

東京工業大学
原子炉工学研究所
井頭 政之
iga@nr.titech.ac.jp

1. はじめに

近年盛んに行われている、マイナー・アクチニド (MA) 及び長寿命核分裂生成物 (LLFP) の核変換研究において、MA 及び LLFP の中性子核反応断面積データが不可欠である。このため、JENDL-3.3 に代表される評価済み核データ・ライブラリに格納されているデータが一般的に利用されている。ライブラリに格納されている核データは、実験データを基礎として、理論計算等の結果も考慮して評価されたものである。ここで MA 及び LLFP に関しては、中性子核反応断面積測定に必要な量の高純度試料を用意することが容易でなく、また、測定用試料自身の放射能に起因する強いバックグラウンドのために、実験を行うことは極めて容易でない。そのため、実験データが非常に少なく、また実験精度が悪いのが現状である。従って、核データ・ライブラリに格納されている MA 及び LLFP の評価済み核データも精度が悪いのが現状である。

本発表では、MA 及び LLFP の中性子核反応断面積データ精度の現状を幾つかの核種を例として示し、また、現在の国内外の中性子核反応断面積測定施設における MA 及び LLFP の測定状況について報告する。

2. 核変換研究に重要な中性子核データ

核変換を直接引き起こす MA と LLFP の捕獲反応及び MA の核分裂反応の断面積が最も重要である。(n,2n)反応も核変換を引き起こすが、反応が起こる閾エネルギーが数 MeV 以上なので、この反応を利用する場合には D-T 核融合 14MeV 中性子等を用いる必要がある。従って、核変換研究における現時点での重要性はさほど高くない。MA と LLFP の非弾性散乱反応は核変換を引き起こさないが、MA と LLFP を大量に装荷した核変換システムでは、システム内の中性子エネルギー・スペクトルに強く影響することがあり、その場合にはシステムの核変換性能にも影響を及ぼす。従って、MA と LLFP の非弾性散乱断

面積は捕獲及び核分裂反応断面積に次いで重要であると言える。

この他、同位体分離を行わない核変換システムでは、LLFP の安定同位体がシステム内に同伴して入り、この安定同位体の中性子捕獲反応及び非弾性散乱反応がシステムの核変換性能に影響を与える。従って、LLFP の安定同位体の捕獲断面積及び非弾性散乱断面積も重要である。

3. MA 及び LLFP の中性子核データ精度の現状

Np-237 は原子炉中でかなりの量が生成され、また、半減期 (214 万年) も長いので、上記の試料準備とバックグラウンドの問題があまり厳しくないため、MA の中では非常に実験データが多い核種である。Np-237 の熱中性子領域の捕獲断面積を図 1 に示す。ENDF/B-VI の 2,200 m/s 値は、JENDL-3.3 の値に比べて 12 %大きい。これは、ENDF/B-VI の評価では Weston 等の測定値¹⁾を採用したのに対して、JENDL-3.3 の評価では Kobayashi 等の測定値²⁾を採用したためである。Weston 等は、過去の全断面積測定から得られた共鳴パラメータを用いて計算した捕獲断面積の 2,200m/s 値に彼等の測定値を規格化している。一方、Kobayashi 等²⁾と Katoh 等³⁾は放射化法による測定で、Np-238 の 984keV ガンマ線の放出強度として 27.8%⁴⁾を用いてデータ解析を行った。しかし、このガンマ線の放出強度の最近の推奨値は 25.19%⁵⁾であり、この強度を用いてデータ解析を行うと、Kobayashi 等と Katoh 等の測定値は約 10%増加する。また、試料中の標的核 Np-237 の原子核数を求める際に、娘核 Pa-233 からのガンマ線放出強度を使用する場合があります、このガンマ線強度についても最近の値を用いると、捕獲断面積結果が約 10%増加することを原田等⁶⁾が指摘している。Nakagawa は過去の実験データを見直し、2,200m/s 値として 170.2 ± 2.4 ⁷⁾ の評価値を得た。この Nakagawa の新評価値は、図 1 から分かるように、JENDL-3.3 と ENDF/B-VI の評価値のちょうど中間の値となっている。即ち、MA と LLFP の中で非常に実験データの多い Np-237 でも、熱中性子捕獲断面積の精度は約 $\pm 5\%$ 程度であると言える。

Am-241 の熱中性子領域の捕獲断面積と全断面積を図 2 及び図 3 にそれぞれ示す。図 2 から分かるように、捕獲断面積の最近の実験値は大きいにもかかわらず、JENDL-3.3 と ENDF/B-VI の評価では古くて小さい実験値を採用している。一方、図 3 から分かるように、全断面積の評

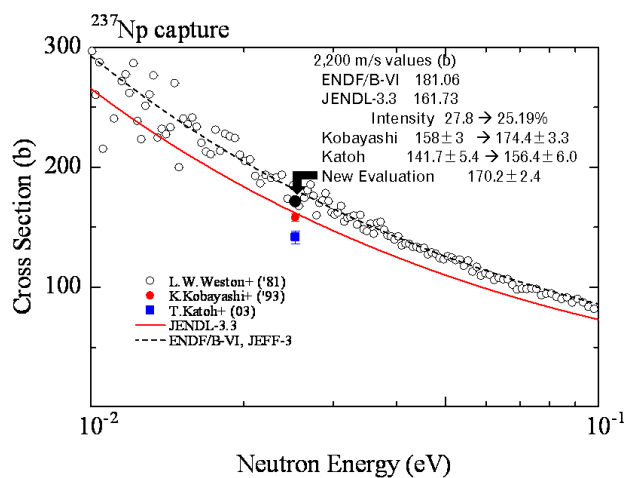


図 1 Np-237 の熱中性子領域の捕獲断面積

価では、測定値の上限を採用している。捕獲断面積を現在よりも大きく評価すると、全断面積が実験値を超えてしまうことになる。

放射化法を用いた MA の熱中性子捕獲断面積測定における問題点として、上で述べたガンマ線放出強度データの信頼性の他に、0.5eV 以下の共鳴の影響がある。放射化法においては通常、試料に 0.5mm 厚のカドミウム板を巻いた場合と巻かない場合の放射化量を比較して、0.5eV 以上の共鳴の影響を評価する。しかし MA の場合、0.5eV 以下に共鳴のある核種が多く、これらの共鳴の影響も正しく評価する必要がある。

LLFP (Se-79, Zr-93, Tc-99, Pd-107, I-129, Sn-126, Cs-135) についても、高純度試料が得やすくガンマ線放出率が小さい Tc-99 については、実験データが比較的多い。しかし、他の LLFP には安定同位体等が試

料中に含まれるため、実験データは極端に少なくなる。特に、Se-79 及び Sn-126 については、全中性子エネルギー領域にわたって実験データが存在しない（なお、Sn-126 については熱中性子捕獲断面積測定がごく最近報告⁸⁾された）。Se-79 にいたっては、その半減期すらよく分かっていない。Zr-93 及び Pd-107 については、Se-79 も同様であるが、放射化法が適用できないため、熱中性子捕獲断面積の実験データも皆無に近い現状である。

4. MA 及び LLFP の中性子断面積測定状況

4.1 国外における測定状況

スイス・ジュネーブにある欧州共同原子核研究所 (CERN) における n_TOF プロジェクトでの測定が際だっている。20GeV 陽子ビームと鉛ターゲットによる核破碎中性子源及び 185m の飛行距離を用いた高分解能 TOF 実験である。2002~2004 年の第 1 フェーズで測定した核種は、捕獲断面積については Mg-24,25,26、Zr-90, 91, 92, 93, 94, 96、La-139、

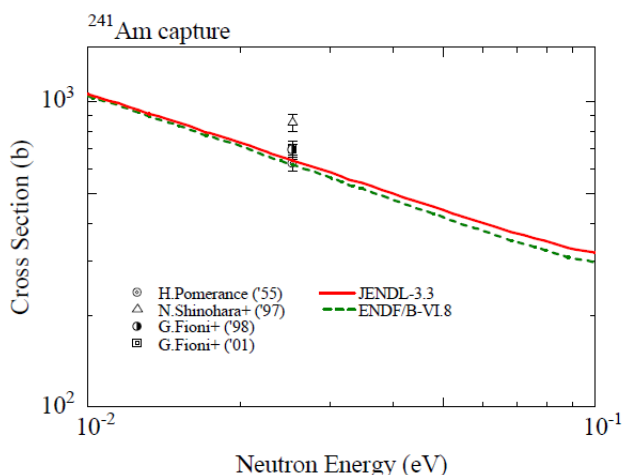


図 2 Am-241 の熱中性子領域の捕獲断面積

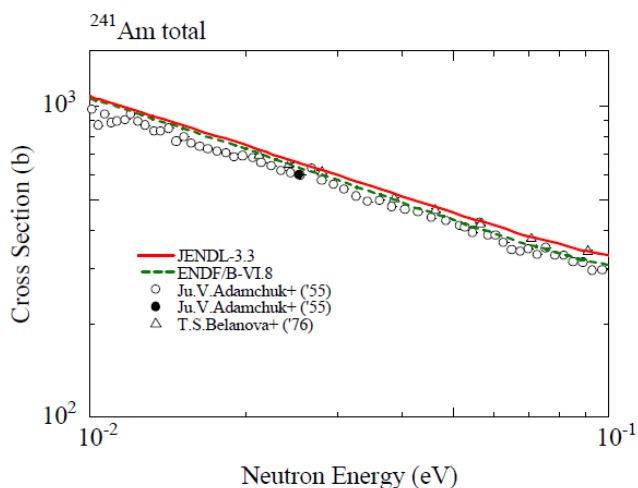


図 3 Am-241 の熱中性子領域の全断面積

Sm-151、Os-186, 187, 188、Pb-204, 206, 207, 208、Bi-209、Th-232、U-232, 234、Np-237、Pu-240、Am-243 の 25 核種、核分裂断面積については Pb-nat、Bi-209、U-233, 234, 236、Np-237、Am-241, 243、Cm-245 の 1 元素、8 核種である。下線を付した核種は放射性核種であり、中寿命核の Sm-151 (半減期 90 年)、LLFP の Zr-93、MA の Np-237、Am-241, 243、Cm-245 が含まれている。用いたデータ収集装置の制限から、第 1 フェーズの測定における中性子エネルギーの下限は 0.7eV である。前に述べた熱中性子領域の課題、即ち、Np-237 の捕獲断面積精度の更なる向上及び Am-241 の捕獲断面積と全断面積の矛盾の解決を目指すためには、熱領域までの測定拡張が望まれる。現在は、測定で得た膨大なデータの解析が引き続いて行われており、また、2007 年から始まる第 2 フェーズの内容が検討されている。

その他では、ベルギーGeelにある欧州共同研究所 IRMM での電子線形加速器 GELINA を用いた測定、米国 LANL 国立研究所の WNR・LANCE での核破砕中性子源を用いた測定がある。なお、米国 ORNL 国立研究所では、電子線形加速器 ORELA が故障等によりこの数年間停止していたが、ごく最近運転が再開され、LLFP 等に対する測定が期待されている。

4.2 国内における測定状況

施設別に最近の MA と LLFP の中性子断面積測定を見ると、東北大サイクロトロンでの数 10MeV 領域の核分裂断面積測定、東工大ペレトロンでの keV 領域の捕獲断面積測定、京大炉での熱領域の捕獲断面積測定、京大炉ライナック TOF 施設での熱～数 10keV 領域の捕獲断面積測定、及び京大炉ライナック鉛スペクトロメータでの eV～数 100keV 領域の核分裂断面積測定がある。測定核種は、Tc-99、I-129、Np-237、Am-241, 243 等である。

中性子核データ測定に関する 2 件のプロジェクトが現在進行している。一つは、革新的な検出器を開発し、開発した検出器と京大炉ライナック等の既存中性子源を用いて Np-237、Am-241, 243 の捕獲断面積と核分裂断面積を測定するものである。他方は、原子力機構と高工研が共同で進めている大強度陽子加速器計画 (J-PARC) の物質・生命科学実験施設 (MLF) に核データ測定用ビームラインを開発・設置し、ここに前述の革新的検出器を改造して持ち込み、Cm 同位体の捕獲断面積と核分裂断面積、Tc-99、I-129、Zr-93、Pd-107 の捕獲断面積を測定するものである。J-PARC MLF での本格的測定は 2009 年度から行われる予定である。

5. おわりに

加速器駆動型システム (ADS) は核変換処理システムの一つとして期待されている。J-PARC の第 2 期計画でも、ADS の R&D に必要な実験施設の建設が予定されている。核データ・コミュニティが、ADS を含めた核変換システムの R&D に最大限貢献するために

は、核変換用核データの時期を得た整備が必要であり、そのためには MA や LLFP 等の重要核種の断面積の早急な測定が肝要である。

謝辞

原子力機構の中川庸雄氏には MA の核データの現状について貴重なコメントを頂くと共に、図の作成の協力を頂いた。紙面を借りて感謝の意を表したい。

参考文献

- 1) L.W. Weston and J.H. Todd, *Nucl. Sci. Eng.*, **79**, 184 (1981).
- 2) K. Kobayashi et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, **40**, 559 (2003).
- 3) T. Katoh et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, **31**, 1239 (1994).
- 4) R.B. Firestone and V.S. Shirley, *Table of Isotopes*, (8th ed.), John Wiley & Sons, New York, (1996).
- 5) F.E. Chukreev et al., *Nucl. Data Sheets*, **97**, 129 (2002).
- 6) 原田秀郎 他、日本原子力学会「2006 年秋の大会」、E15 (2006).
- 7) T. Nakagawa, private communication, (2006).
- 8) S. Zhang et al., *Radiochim. Acta.***94**, 385 (2006).