

長寿命重要FPの断面積測定

核燃料サイクル開発機構

東海事業所環境保全・研究開発センター

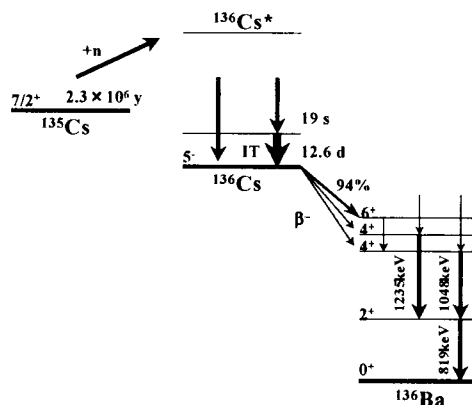
原田秀郎、中村詔司、古高和禎、加藤敏郎

harada@tokai.jnc.go.jp

1. はじめに

原子炉から発生する長寿命放射性廃棄物核種を原子核反応を利用して積極的に安定あるいは寿命の短い核種に変換させるための技術（核変換技術）を確立するためには、対象となる核種に対する核断面積データを整備することがとりわけ重要である。このため、核変換研究が 1988 年頃から活性化されるのに同期して核変換対象核種に対する核反応断面積測定が活発に行われるようになった。核変換研究対象核種としては、核燃料の核分裂反応で生成する ^{90}Sr , ^{99}Tc , ^{129}I , $^{135,137}\text{Cs}$ 等の核分裂生成核種(FP)と核燃料の中性子吸収反応で生成する ^{237}Np , ^{241}Am 等の超ウラン元素(TRU)がある。サイクル機構東海事業所では、核変換技術開発のために必要な基礎データ整備の一環として長寿命重要 FP に対して熱中性子吸収断面積および共鳴積分値の測定を実施してきた。

放射性 FP 核種の中性子吸収断面積測定は、原子炉内中性子の吸収効果を評価する目的で、1960 年頃に行われたが、その測定誤差は大きいものであった。核変換技術開発のためには、精度の高い熱中性子吸収断面積および共鳴積分値が必要である。そこで、原子炉中性子の吸収により生成した核種の放射能とターゲット放射能を同時に測定する方法を採用することによりデータの信頼性を高めた。また、Cd シールドとマルチフラックスモニタを用いることにより、熱中性子吸収断面積だけでなく共鳴積分値も測定した。特に核種毎に最適な実験計画を立案し、測定精度の向上に努めた。本稿では、最近の研究の中から実験手法に特徴のある ^{134}Cs および ^{135}Cs の測定を中心に報告する。



2. 実験原理

2.1 放射化法

実験原理を ^{135}Cs を例に取り説明する。図 1

図 1 ^{136}Cs の部分崩壊図

に示すように ^{135}Cs は中性子で放射化されると（即ち、中性子を吸収すると） ^{136}Cs に変化するが、この原子核は約 12.6 日の半減期で、安定な核である ^{136}Ba へと崩壊する。この時、819、1048、1235keV のエネルギーを持つガンマ線が放出される。 ^{136}Cs が 1 回崩壊した時に、これらのガンマ線が放出される割合は、既にわかっているので、これらのガンマ線の強度を測定することにより、生成した ^{136}Cs の量を求めることが出来る。

2.2 反応速度と断面積

中性子吸収反応の起こる速度 R は、

$$R = \frac{A}{N} \cdot \left[1 - \left(\frac{1}{2} \right)^{\frac{T_R}{T_{1/2}}} \right]^{-1} \quad (1)$$

で与えられる。ここで、 A と $T_{1/2}$ は、それぞれ中性子吸収反応で生成した原子核の放射能と半減期であり、 N は、ターゲット原子核の数、 T_{IR} は原子炉中での照射時間である。例えば、 ^{135}Cs と ^{136}Cs の放射能の比は、簡単に(1)式中の A/N に換算出来るので、放射能の比、即ち相対値を測定するだけで、 R を求めることが可能である。

よく熱化された原子炉中の中性子スペクトルは、マックスウェル分布をした熱中性子束とエネルギーに反比例した熱外中性子束を合成したものとして近似される。この場合、原子炉中の中性子束は、2つのパラメータの ϕ_1 と ϕ_2 で記述することが可能となり、反応速度 R と次式の関係で結ばれる。

$$\frac{R}{\sigma_0} = \phi_1 + \phi_2 \cdot s_0 \quad (2)$$

ここで出てくる量 σ_0 が、2200m/s の速度を持つ中性子に対する吸収断面積、即ち、熱中性子吸収反応断面積である。 s_0 は、

$$s_0 = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \left(\frac{I_0}{\sigma_0} - 0.45 \right) \quad (3)$$

なる式で表される量である。 I_0 は、

$$I_0 = \int_{E_c}^{\infty} \sigma(E) \frac{dE}{E} \quad (4)$$

で定義され、共鳴積分値と呼ばれる量である。ここで、 E は中性子のエネルギー、 $\sigma(E)$ は、エネルギー E の中性子に対する中性子吸収断面積、 E_c は、Cd カットオフエネルギーである。 σ_0 と s_0 のわかっている2つの独立な核種（これを放射化検出器と呼ぶ）をターゲットと同じ中性子束場で照射することにより、(2)式の ϕ_1 及び ϕ_2 を求めることが

出来る。更に、照射を熱中性子吸収力の大きな Cd シールド中で行うと中性子束は ϕ_1 、 ϕ_2 から大きく変化し、(2)式は、

$$\frac{R'}{\sigma_0} = \phi_1' + \phi_2' s_0 \quad (2)'$$

となる。(2)と同様に、2つの独立な放射化検出器を用いることにより、 ϕ_1' と ϕ_2' も求めることが出来る。ターゲット核種に対する R 及び R' を測定すれば、(2)及び(2)' の連立方程式を解くことにより、 σ_0 と s_0 を独立に求めることが出来る。更に(3)式より I_0 も求まる。このように、反応速度 R を Cd シールドがある場合とない場合で、それぞれ測定することにより、熱中性子吸収断面積 σ_0 と共鳴積分値 I_0 を求めることが可能となる。

2.3 測定原理の各論

(a) ^{135}Cs の場合

測定したい $^{135}\text{Cs}(n, \gamma)^{136}\text{Cs}$ 反応の中性子吸収断面積という物理量を求めるためには、生成した ^{136}Cs の量だけでなく、ターゲットである ^{135}Cs の量も知る必要がある。 ^{135}Cs は、 ^{135}Ba へのベータ崩壊の際、ガンマ線を放出しない上、ターゲットには強い放射線源である ^{137}Cs が混在するため、放射能測定による定量が困難である。このため、3章で述べる微量質量分析装置を用いる。 ^{135}Cs と ^{137}Cs の同位対比が質量分析により求まると、 ^{137}Cs から放出されるガンマ線を測定することにより、 ^{135}Cs を定量することができる。この結果、(1)式中の A/N は、 ^{136}Cs と ^{137}Cs の放射能比から求めることが可能となる。

(b) ^{134}Cs の場合

^{134}Cs は、半減期が約2年と短いため中性子吸収断面積測定が難しい核種である。特に、中性子吸収反応の生成核種である ^{135}Cs は、ベータ線しか放出しないので生成量の放射能測定による定量が困難である。また、 ^{134}Cs に不純物として混ざっている ^{133}Cs から2重中性子吸収反応で ^{135}Cs が生成される寄与も無視できないことが、さらに測定を困難にしている理由である。我々は、このような多重中性子吸収反応を逆利用した測定手法を考

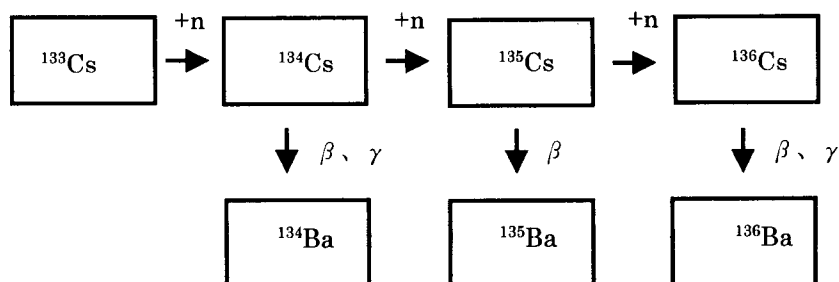


図2 3重中性子吸収反応による ^{134}Cs の熱中性子吸収断面積測定

案した。ターゲットには、天然同位体存在比 100%である純粋な ^{133}Cs を用い、図 2 の 3 重中性子吸収反応を利用する。

$^{133}\text{Cs}(n, \gamma)^{134}\text{Cs}$ 反応で生成した ^{134}Cs ターゲット量は、 ^{134}Cs からの崩壊ガンマ線測定により定量できる。生成核種 ^{135}Cs の量は、 ^{136}Cs からの崩壊ガンマ線測定により定量できる。この際、 $^{135}\text{Cs}(n, \gamma)^{136}\text{Cs}$ 反応の熱中性子吸収断面積は、前述で測定した値を用いる。この結果、(1)式中の A/N は、 ^{136}Cs と ^{134}Cs の放射能比から求めることが可能となる。

3. 実験

3.1 ターゲット分析

^{135}Cs と ^{137}Cs の同位体比測定用に、微量放射性元素の分析が可能な四重極質量分析器を開発した。 ^{135}Cs を含む ^{137}Cs 塩化物ターゲットを質量分解能 360 の本装置で分析した。図 3 に得られた質量スペクトルの例を示す。本 ^{137}Cs ターゲットには、約 1 対 1 の割合で ^{135}Cs の含まれていることが図よりわかる。質量スペクトルは、30 秒毎に Cs 蒸発源の温度情報とともに保存した。温度をモニターするのは、 ^{137}Cs の崩壊で生成する ^{137}Ba の寄与がないことを確認するためである。

3.2 照射

実験は、 ^{134}Cs および ^{135}Cs について、それぞれ独立に、日本原子力研究所研究炉 JRR-3 で行われた。 ^{135}Cs の照射は、Cd カプセルがある場合とない場合で 24 時間と 1 時間それぞれ行われた。Co と Au のマルチフラックスモニターも同時に照射した。 ^{135}Cs の場合は、3 重中性子吸収反応を利用するため約 24 日間の長期照射を行った。

3.3 放射能測定

照射済みターゲット中には、ターゲット自身からの強い放射能ばかりでなく、核反応で生成する微弱な放射能が混在する。これら強度の大きく異なる放射能をゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線測定により求めた。ターゲットからの強いガンマ線場中で核反応生成核種からの微弱なガンマ線を測定するため、ガンマ線計測装置の処理速度を高める必要がある。このため、トランジスタ・リセット型の前置増幅器 (preamp) 及び、450MHz アナログデジタル変換器 (ADC) を用いた。この計測システムは、14 キロカウント/秒の高いガンマ線入力速度でも、不感割合は約 8%であった。用いたゲルマニウム半導体検出器のエネルギー分解能は、1.33MeV のガンマ線に対し、半値幅で 2.1keV であった。検出効率は、3 インチφ×3 インチの NaI (Tl) 検出器に対し 90%という大型のものである。検出効率が大きいことは、全カウント数におけるフルピークカウント数の割合を高める上で有効であった。図 4 に照射済み $^{135,137}\text{Cs}$ 混合ターゲットを測定したときのガンマ線スペクトルを示す。 ^{137}Cs からの強大な 662 keV ガンマ線と同時に ^{136}Cs からの 819, 1048,

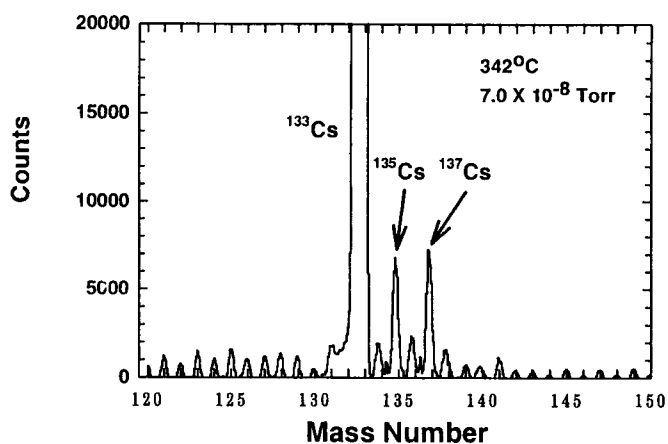


図3
質量分析器による $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 同位体比測定

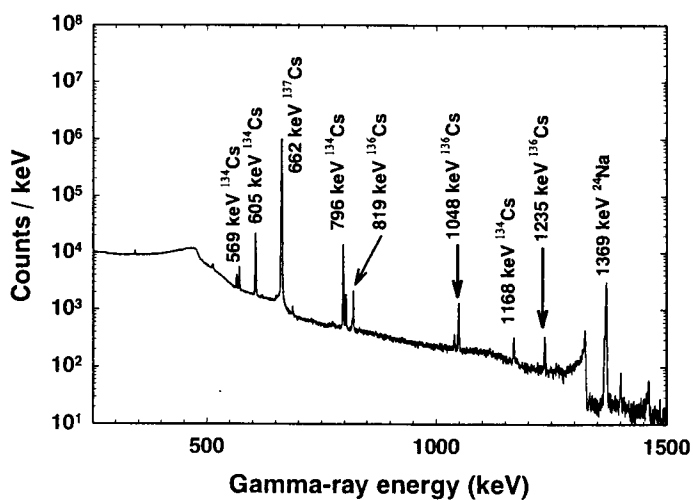


図4
照射済 ^{135}Cs - ^{137}Cs 混合ターゲットから放出されるガンマ線のエネルギースペクトル

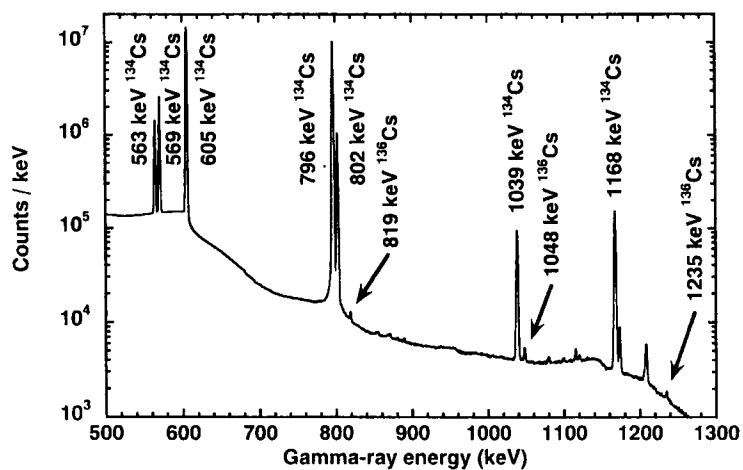


図5
照射済 ^{133}Cs ターゲットから放出されるガンマ線のエネルギースペクトル

1235 keV ガンマ線がきれいに観測されている。図 5 は、長期照射済み ^{133}Cs ターゲットを測定したガンマ線スペクトルを示す。3 重中性子吸収反応で生成した ^{136}Cs のガンマ線が ^{134}Cs のガンマ線と同時に観測されている。

4. 結果及び議論

表 1 は、これまで測定が終了した FP 核種の熱中性子吸収断面積および共鳴積分値を、以前の報告値と併せて示したものである。

表 1 FP 核種の熱中性子吸収断面積および共鳴積分値

Nuclide	Half-Life	Previous Data (Author and reported year)	Data of JNC
^{137}Cs	30 years	$\sigma_{\text{eff}}=0.11\pm0.03\text{ b}$ (Stupegia '60)	$\sigma_0=0.25\pm0.02\text{ b}$ $I_0=0.36\pm0.07\text{ b}$ (^{90,93})
^{90}Sr	29 years	$\sigma_{\text{eff}}=0.8\pm0.5\text{ b}$ (Zeisel '66)	$\sigma_0=15.3\pm^{1.3}_{4.2}\text{ mb}$ $I_0\leq0.16\text{ b}$ (⁹⁴)
^{99}Tc	$2.1\times10^5\text{ years}$	$\sigma_0=20\pm2\text{ b}$ $I_0'=186\pm16\text{ b}$ (Lucas '77)	$\sigma_0=22.9\pm1.3\text{ b}$ $I_0=398\pm38\text{ b}$ (⁹⁵)
^{129}I	$1.5\times10^7\text{ years}$	$\sigma_0=27\pm2\text{ b}$ $I_0=36\pm4\text{ b}$ (Eastwood '58)	$\sigma_0=30.3\pm1.2\text{ b}$ $I_0=33.8\pm1.4\text{ b}$ (⁹⁶)
^{127}I	(stable)	$\sigma_0=4.7\pm0.2\text{ b}$ $I_0=109\pm5\text{ b}$ (Friedmann '83)	$\sigma_0=6.40\pm0.29\text{ b}$ $I_0=162\pm8\text{ b}$ (⁹⁹)
^{135}Cs	$2.3\times10^6\text{ years}$	$\sigma_0=8.7\pm0.5\text{ b}$ $I_0=61.7\pm2.3\text{ b}$ (Baerg '58)	$\sigma_0=8.3\pm0.3\text{ b}$ $I_0=38.1\pm2.6\text{ b}$ (⁹⁷)
^{134}Cs	2 years	$\sigma_{\text{eff}}=134\pm12\text{ b}$ (Bayly '58)	$\sigma_{\text{eff}}=141\pm9\text{ b}$ (⁹⁹)
^{133}Cs	(stable)	$\sigma_0=30.4\pm0.8\text{ b}$ $I_0=461\pm25\text{ b}$ (Baerg '60)	$\sigma_0=29.0\pm1.0\text{ b}$ $I_0=298\pm16\text{ b}$ (⁹⁹)

σ_0 : the thermal neutron capture cross section at $v_n=2,200\text{ m/s}$.

σ_{eff} : the effective cross section.

I_0 : the resonance integral.

I_0' : the reduced resonance integral with the $1/v$ part subtracted.

^{137}Cs の σ_0 は以前の測定値より 2 倍以上大きな結果であった。また、 I_0 の値は初めて測定された。測定誤差は、27% から 8% と小さくなったが、これはガンマ線スペクトルの質が以前の NaI ガンマ線検出器を用いた測定に比べ向上したためである。また、以前の測定は、 ^{137}Cs からのガンマ線と ^{138}Cs からのガンマ線を同時に測定出来なかったため、ガンマ線強度の絶対値測定が要求された。我々の測定手法では、相対値測定でよく、誤差の要素も減っている。 ^{137}Cs の実験では、生成核種である ^{138}Cs のアイソマー準位の寄与は小さいとして無視されているが、この効果を実験的に調べることで精度向上のためには求められよう。

^{90}Sr の σ_0 は、以前の測定値より 50 倍以上小さい結果であった。この差は、以前の測定値の誤差が非常に大きく、以前のデータは σ_0 の上限値しか与えていないと考えると理解できる。 ^{90}Sr の I_0 値は小さく、我々の測定においても、その上限値しか求めることが出来ていない。今後の課題である。

^{99}Tc の σ_0 は、以前の放射化法による測定値と誤差の範囲で一致し、15% 大きいという結果であった。但し、 I_0 の値は約 2 倍大きな結果である。我々の実験で用いたターゲット量は、以前の量の約 40 分の 1 である。この差は、熱外中性子のターゲット中における自己遮蔽効果に影響を与える。我々の測定値はむしろ中性子減速時間スペクトロメータを用いた別の実験手法で得られた結果に近い。 ^{99}Tc については、解析に用いたガンマ線放出強度の誤差が 10% 程度と大きいため熱中性子吸収断面積および共鳴積分値の精度を高めるために、 $\beta\gamma$ 同時計測法によるガンマ線放出強度の再測定が望まれる。

^{129}I の σ_0 と I_0 は誤差の範囲で以前の値と一致しているが、測定誤差を 2 分の 1 以下とすることに成功している。

^{135}Cs の σ_0 は、以前の放射化法による測定値と誤差の範囲で一致した。但し、 I_0 の値は約 4 割小さな結果である。

^{134}Cs は、実行熱中性子吸収断面積 σ_{eff} だけが観測された。以前の放射化法による測定値と誤差の範囲で一致した。但し、 I_0 の測定は今後の課題であるが、非常にチャレンジングな課題であろう。

5. まとめ

放射性廃棄物の核変換研究に必要な核データ整備の一環として、長寿命放射性 FP 核種の熱中性子吸収断面積及び共鳴積分値を放射化法により測定した。最新の放射線測定技術と核種毎に最適の実験を行うことにより、これまでの実験データの精度を飛躍的に向上できることがわかった。今後、解析に用いたガンマ線放出率やアイソマー準位の寄与を検討するとともに測定誤差の減少に努めることが信頼性向上のために必要であろう。

また、核変換研究上の重要核種である ^{93}Zr , ^{107}Pd , ^{79}Se などは、中性子を吸収した生成核種が安定元素となるため放射化法では測定が困難である。これらの FP 核種について、

現在熱中性子吸収断面積や共鳴積分値に関する実験データはほとんど無い状況であり、今後、精力的な実験の行われることが望まれる。

謝辞

本研究を推進するに当たり、日本原子力研究所の放射化学の研究グループ、名古屋大学工学部の研究グループ、及び立教大学原子力研究所の皆様に大変お世話になった。また、研究成果の多くは、共同研究により得られたものである。ここに深く感謝いたします。

参考文献

参考文献は、我々の発表論文を挙げるに留める。その他の文献は、これらの文献中に記載してある。

- 1) H. Harada, et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, **27**, 577 (1990).
- 2) T. Sekine, et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, **30**, 1099 (1993).
- 3) H. Harada, et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, **31**, 173 (1994).
- 4) H. Harada, et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, **32**, 395 (1995).
- 5) S. Nakamura, et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, **33**, 283 (1996).
- 6) T. Katoh, et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, **34**, 431 (1997).
- 7) H. Harada, et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, **34**, 498 (1997).
- 8) T. Katoh, et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, **36**, 223 (1999).
- 9) T. Katoh, et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, **36**, 635 (1999).
- 10) S. Nakamura, et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, **36**, 847 (1999).