

平成22年 5月31日現在

研究種目：基盤研究（B）
 研究期間：2007～2009
 課題番号：19360423
 研究課題名（和文） 長寿命核廃棄物セレン79の高速中性子捕獲断面積の研究
 研究課題名（英文） Study on the fast neutron capture cross sections of selenium 79 of long-lived nuclear waste
 研究代表者
 井頭 政之（IGASHIRA MASAYUKI）
 東京工業大学・原子炉工学研究所・教授
 研究者番号：10114852

研究成果の概要（和文）：

セレンの全安定同位体のセレン74, 76, 77, 78, 80, 82について、15～600keVの入射中性子エネルギー領域において、中性子捕獲断面積と捕獲ガンマ線スペクトルを精度良く測定した。測定結果を理論解析し、理論計算に必要な入力パラメータに関する情報を得た。この情報を基に、現在では測定が困難な長寿命核廃棄物セレン79に対する理論計算入力パラメータを決定し、セレン79について信頼性の高い中性子捕獲断面積の計算値を得ることができた。

研究成果の概要（英文）：

The neutron capture cross sections and capture gamma-ray spectra of all stable selenium isotopes, i. e. Se-74, 76, 77, 78, 80, 82, were precisely measured in an incident neutron energy region from 15 to 600 keV. The experimental results were theoretically analyzed, and information was obtained on the input parameters that were necessary in the theoretical calculation for selenium isotopes. Then, the input parameters for selenium 79, which is long-lived nuclear waste and for which the neutron capture cross section measurement is impossible at the moment, were determined based on the information, and reliable calculated results were obtained for its neutron capture cross sections.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	12,000,000	3,600,000	15,600,000
2008年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2009年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
総計	14,500,000	4,350,000	18,850,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：原子力エネルギー、実験核物理、中性子核データ、中性子捕獲反応、核分裂生成物、長寿命核廃棄物、セレン79、セレン安定同位体

1. 研究開始当初の背景

核分裂炉で生成され、現在は核廃棄物として扱われている長寿命核分裂生成物 (LLFP)：

重要核種は Tc-99, I-129, Cs-135, Zr-93, Sn-126, Se-79, Pd-107 の7核種（放射性毒性の大きい順。Tc-99, I-129, Zr-93, Sn-126

の4核種については、我々が既に研究を終了あるいは研究中の核種。下線を付した Se-79 が本研究の対象核種。) の処理・処分については、他の放射性核種と共にガラス固化・一時貯蔵・地中埋設が国策となっている。

しかし、LLFP を他の核分裂生成物から分離して、安定核種あるいは短寿命核種に核変換処理すれば、地中埋設における環境負荷を大幅に軽減することができる。また、LLFP は遠い子孫にとっては負の遺産であるという倫理学的問題も解決することができる。この様な背景から我が国では現在、LLFP の分離・核変換処理研究が盛んに行われている。

中性子捕獲反応を利用した核変換処理システムとして、熱中性子炉、高速中性子炉、あるいは加速器駆動炉等を用いたシステムが提案・研究されているが、各システムの核変換性能を評価・比較する上で、個々の LLFP の精度良い中性子捕獲反応断面積データが必要不可欠である。また、現在考えられている同位体分離を行わない核変換処理システムでは、LLFP の安定同位体も LLFP に同伴してシステムに入るため、これらの安定同位体の中性子捕獲反応がシステム特性に影響を与えるので、それらの断面積データも必要不可欠となる。高速中性子炉や加速器駆動炉を用いた核変換システムの研究においては、高速 (keV 領域) 中性子捕獲反応断面積データが必要不可欠である。

しかしながら、LLFP の高速中性子捕獲反応断面積の測定は非常に難しいため、測定データが極めて少なく (本研究対象核種の Se-79 については全く無い)、また理論計算による捕獲断面積予測精度も現時点では悪いため、現在の評価済み核データ・ライブラリに格納されている LLFP の高速中性子捕獲断面積データの精度は悪く、誤差 30%程度から 100%迄にも及ぶと考えられている。

一般に LLFP の高速中性子捕獲反応断面積の測定が非常に難しい原因は、

- (1) 化学的・同位体的高純度測定用試料の準備の困難さ、
- (2) 試料からの放射線による強いバックグラウンドの存在、

である。特に本研究対象核種 Se-79 の場合は、我々の数年間の調査の結果、純度を問わず、実験に必要な数 100mg の試料を準備することは現時点では事実上不可能なことが判明した。従って、Se-79 の高速中性子捕獲反応断面積を直接測定することは現時点では不可能である。そのため、Se-79 の高速中性子捕獲反応断面積の理論予測精度を向上させることが喫緊の課題である。

我々は高速中性子捕獲反応機構の解明を目的として、高速中性子捕獲ガンマ線スペクトルの高精度測定を可能とする重遮蔽体付き大型コンプトン抑止型 NaI (Tl) 検出器を開発し、

以後20年間、改造・改良を重ねてガンマ線検出器の超高感度化を達成している。現在では、核分裂生成物領域核種に対しては、30keV 中性子の捕獲断面積で 0.2mb・mol の測定感度を有している。即ち、約 1g の試料を用いれば、約 20mb まで小さい 30keV 中性子捕獲断面積と捕獲ガンマ線スペクトルを同時に測定することができる。これは、高速中性子捕獲ガンマ線スペクトル測定において、世界で他に追従を許さない状況である。

本検出器を用いて測定した捕獲ガンマ線スペクトルと捕獲断面積を同時に理論解析すれば、捕獲断面積の理論計算で重要な物理量であるガンマ線強度関数等の情報を得ることができ、高速中性子捕獲反応機構を解明することができる。

直接測定が不可能な Se-79 の場合には、Se 安定同位体について捕獲ガンマ線スペクトルと捕獲断面積を系統的に測定し、これらを同時に理論解析することにより、Se 同位体の高速中性子捕獲反応機構についての知見を得ることができ、その結果、Se-79 の高速中性子捕獲反応断面積の理論予測精度を飛躍的に向上させることができる。なお、上述のように、測定した Se 安定同位体の捕獲反応断面積も核変換システムの研究において重要な核データとなる。

2. 研究の目的

本研究では、重要な LLFP の一つであり、現時点では試料準備が困難なため直接測定が不可能な Se-79 を取り上げ、

- (1) Se の全安定同位体 Se-74, 76, 77, 78, 80, 82 について高速中性子捕獲反応断面積及び捕獲ガンマ線スペクトルを精度良く系統的に測定して核データを供給し、
 - (2) 測定されたデータを統一的に理論解析することにより、Se 同位体の高速中性子捕獲反応機構を解明して断面積の理論予測精度を向上させ、
 - (3) Se-79 の高速中性子捕獲反応断面積の精度良い評価値を与える、
- ことを目的とした。

現時点では直接測定が不可能な LLFP である Se-79 に対して、Se-79 の安定同位体について捕獲ガンマ線スペクトルと捕獲断面積を系統的に測定し、これらを同時に統一的に理論解析することにより、Se-79 の高速中性子捕獲反応機構についての知見を得、その結果、Se-79 の高速中性子捕獲断面積の理論予測精度を飛躍的に向上させることが特色・独創的な点である。これは、我々のガンマ線検出器の超高感度化が達成されたことによって初めて可能となった。

本研究の最終的な成果となる Se-79 の高速中性子捕獲反応断面積の精度良い評価値は、Se-79 の核変換処理研究において非常に重要

な核データとなり、その意義は極めて大きい。
また、本研究で測定を行うSe安定同位体の内のSe-77, 78, 80, 82はSe-79と共に核分裂炉中で生成されるので、現在考えられている同位体分離を行わない核変換処理システムにSe-79に同伴して入ることになり、本研究で測定するこれらの同位体の捕獲反応断面積データはSe-79の核変換処理研究において重要な核データとなり、その意義は大きい。

この様に、本研究で得られるSe-79の評価値及び安定同位体の測定値はLLFPの核変換処理研究に必要な核データ・ベースの構築に資することになり、本研究で得られる成果の意義は極めて大きいといえる。

3. 研究の方法

実験は東京工業大学・原子炉工学研究所・広領域線質放射線照射実験室に設置されている3UH-HC型ペレトロン加速器、超高感度ガンマ線検出装置（重遮蔽体付き大型コンプトン抑止型NaI(Tl)検出器）、及びデータ収集・処理装置を用いて行った。

中性子源としては、ペレトロン加速器から得られるパルス化陽子ビーム（パルス幅：1.5ns、繰り返し周波数：4MHz、平均ビーム電流：10 μ A）による⁷Li(p,n)⁷Be反応で発生するパルス化keV中性子を用いた。

実験には中性子飛行時間法を用い、発生中性子の測定には⁶Liガラス検出器を用いた。また、中性子捕獲反応によってSe試料から発生する捕獲ガンマ線は超高感度ガンマ線検出装置で測定した。ガンマ線検出装置からの信号を、波高と中性子飛行時間の2次元データとしてリスト・モードで、データ収集・処理装置によってパーソナル・コンピュータ中に取り込んだ。

Se同位体試料としては、99%以上に同位体濃縮した金属粉末をプレス成形したものを用いた。また、捕獲反応標準試料として¹⁹⁷Auを用いた。

⁶Liガラス中性子検出器のデータを処理して、試料へ入射した中性子のエネルギースペクトルを得た。また、ガンマ線検出器の2次元データを処理して、試料の捕獲ガンマ線波高スペクトルを求めた。捕獲ガンマ線波高スペクトルに波高重み法を適用し、また、¹⁹⁷Auの標準中性子捕獲反応断面積を用いて、試料の捕獲反応断面積を導出した。また、試料の捕獲ガンマ線波高スペクトルをアンフォールディングすることにより、捕獲ガンマ線スペクトルを導出した。

測定で得られたSe安定同位体の捕獲反応断面積及び捕獲ガンマ線スペクトルを統一的に理論解析し、理論計算に必要な各種パラメータの系統性を見出すことにより、Se同位体の高速中性子捕獲反応機構に関する知見を得た。各種パラメータの系統性及び反応機構の知見

を基に、LLFPであるSe-79の高速中性子捕獲反応断面積の理論計算を行い、その計算結果を基に評価値を与えた。

なお、測定データの処理、捕獲反応断面積並びに捕獲ガンマ線スペクトルの導出、及び理論解析には、我々のグループでこれまでに整備・開発してきたコンピュータ・プログラムを用いた。

4. 研究成果

当初計画通り、Seの全安定同位体であるSe-74, 76, 77, 78, 80, 82の6核種について、入射中性子エネルギー領域15~100keV及び550keV付近において捕獲反応実験を行うことができた。

その結果、Se-82を除く5核種については、誤差約5%で捕獲反応断面積を得ることができた。Se-82については、捕獲反応断面積が小さかったため、6~27%の誤差で断面積を得た。Se-77, 78, 82の3核種については、世界初の測定結果となった。例として、Se-77の測定結果を図1に示す。図には、日本の評価済み核データ・ライブラリJENDL-3.3及び米国の評価済み核データ・ライブラリENDF/B-VI.8の評価値も示されている。評価値を今回の測定値と比較すると、100keV以下では両評価値は10~20%小さいが、550keVでは、JENDL-3.3は約20%小さいがENDF/B-VI.8は逆に約20%大きい。このように、今回の測定結果を基に、評価済み核データ・ライブラリに格納されているSe同位体の評価値の問題点を明らかにすることができた。

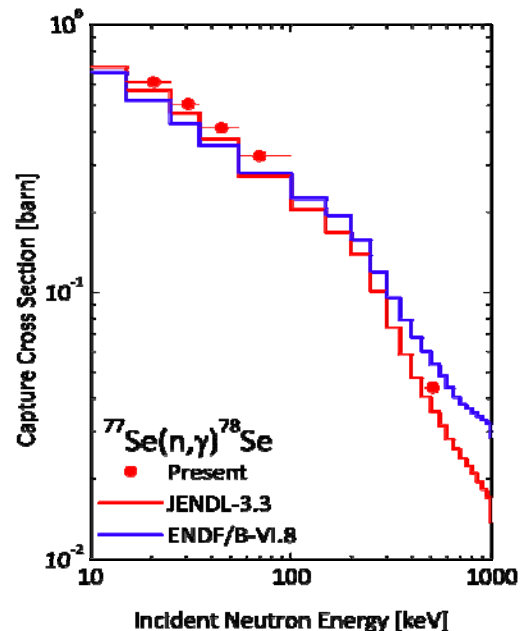


図1 Se-77のkeV中性子捕獲反応断面積の測定結果

中性子捕獲ガンマ線スペクトルも、全ての核種について得ることができた。今回得られ

た Se 同位体の keV 中性子捕獲ガンマ線スペクトルは、世界で初めての測定結果である。例として、Se-77 の測定結果を図 2 に示す。図には、捕獲反応の残留核である Se-78 の低励起状態のエネルギー位置を、入射中性子エネルギー15~100keV のスペクトルに対応させて縦棒で示している。図から分かるように、中性子捕獲状態から Se-78 の基底状態及び第 1 励起状態への遷移によるガンマ線のピークが 10.6MeV 及び 10.0MeV 付近にそれぞれ観測されている。また、0.6MeV 付近には、第 1 励起状態から基底状態へのカスケード遷移によるガンマ線のピークが非常に強く観測されている。

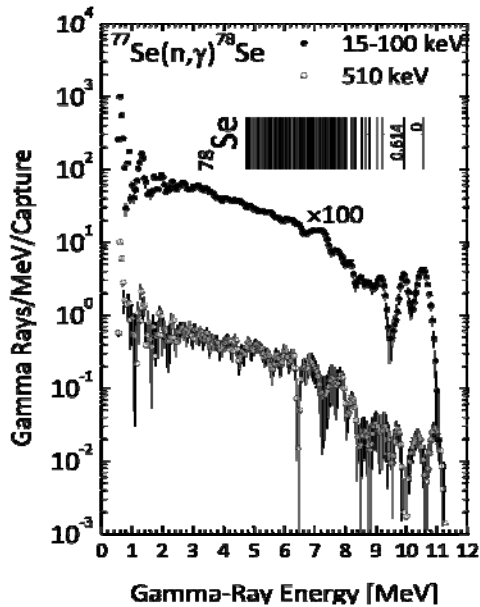


図 2 Se-77 の keV 中性子捕獲ガンマ線スペクトル

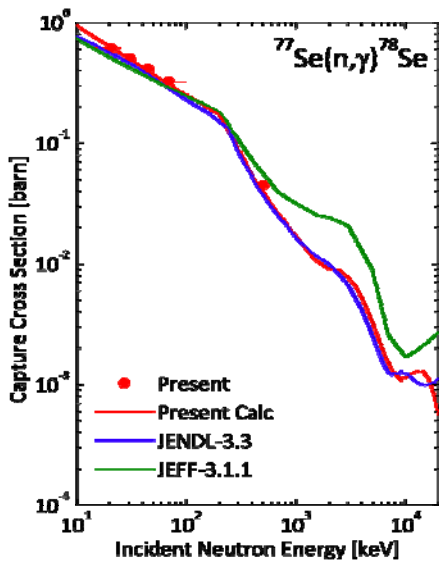


図 3 Se-77 の keV 中性子捕獲反応断面積の計算結果

原子核反応理論における統計モデルを用い

て、測定結果の捕獲反応断面積及び捕獲ガンマ線スペクトルを解析した。例として、Se-77 の捕獲反応断面積の計算結果を赤の実線で図 3 に示す。計算では、15~100keV の測定結果の平均値を再現するように、s 波中性子共鳴平均ガンマ線強度関数の強度を調整した。計算結果は、15~100keV の測定値の入射中性子エネルギー依存性のみならず、500keV 付近の測定結果も良く再現している。他の核種についても同様な結果となった。

Se の全安定同位体の測定結果を解析した結果、計算に入力するパラメータの系統性を得ることができた。この系統性から、LLFP である Se-79 の計算入力パラメータを決定し、Se-79 の捕獲反応断面積を計算した。計算結果を太い赤の実線で図 4 に示す。図には、捕獲反応と競争過程である非弾性散乱反応の影響を受けにくい 100keV 以下の計算値が示されており、安定同位体についての測定結果及び計算結果も比較のために示している。図には各同位体の中性子結合エネルギーも示しているが、図から分かるように、中性子結合エネルギーが増加するとともに捕獲反応断面積も大きくなっている。

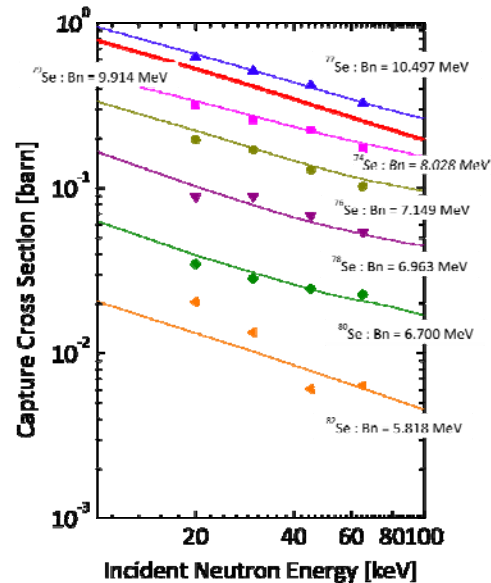


図 4 本研究で得られた Se-79 の keV 中性子捕獲反応断面積 (太い赤の実線)。本研究で得られた安定同位体の測定結果及び計算結果も示されている。

本研究で計算された LLFP の Se-79 の keV 中性子捕獲反応断面積は、Se の全安定同位体の測定結果を理論解析して得られた計算入力パラメータの系統性から決定されたパラメータを用いて得られたものであり、その信頼性は高いと考えられる。また、安定同位体である Se-74, 76, 77, 78, 80, 82 の今回の測定結果は、核変換研究に必要な不可欠な核データ・ベースの高度化に資するものである。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

① S. Kamada, M. Igashira, T. Katabuchi, M. Mizumoto, Measurement of keV-Neutron Capture Cross Sections and Capture Gamma-Ray Spectra of ^{77}Se , Journal of Nuclear Science and Technology, 47, 634-641, (2010), 査読有り

② M. Igashira, S. Kamada, T. Katabuchi, M. Mizumoto, Measurement of keV-Neutron Capture Gamma Rays for Se Isotopes, Proceedings of the 13th International Symposium on Capture Gamma-Ray Spectroscopy and Related Topics, 376-380, (2009), 査読有り

③ M. Igashira, J. Nishiyama, S. Kamada, T. Katabuchi, Systematic Study on keV-Neutron Capture Cross Sections of Long-Lived Fission Products, Proceedings of The 16th Pacific Basin Nuclear Conference, CD-ROM, (2008), 査読有り

[学会発表] (計 5 件)

① 鎌田創、井頭政之、片渕竜也、水本元治、Se-78, 80, 82の550keV中性子捕獲断面積と捕獲ガンマ線スペクトルの測定、日本原子力学会2010年春の年会、2010. 3. 28、茨城大学水戸キャンパス

② 鎌田創、井頭政之、片渕竜也、水本元治、Se-74, 76の550keV中性子捕獲断面積と捕獲ガンマ線スペクトルの測定、日本原子力学会2009年秋の大会、2009. 9. 16、東北大学青葉山キャンパス

③ 鎌田創、井頭政之、片渕竜也、水本元治、田近道英、 ^{77}Se の510keV中性子捕獲断面積と捕獲 γ 線スペクトルの研究、日本原子力学会2009年春の年会、2009. 3. 23、東京工業大学大岡山キャンパス

④ 鎌田創、井頭政之、片渕竜也、田近道英、Se-74, 76, 78のkeV中性子捕獲断面積と捕獲 γ 線スペクトルの測定、日本原子力学会2008年秋の大会、2008. 9. 5、高知工科大学

⑤ 鎌田創、井頭政之、片渕竜也、Se 同位体の keV 中性子捕獲断面積と捕獲ガンマ線スペクトルに関する系統的研究、日本原子力学会2008年春の年会、2008. 3. 26、大阪大学吹田キャンパス

6. 研究組織

(1) 研究代表者

井頭 政之 (IGASHIRA MASAYUKI)
東京工業大学・原子炉工学研究所・教授
研究者番号：10114852

(2) 研究分担者

片渕 竜也 (KATABUCHI TATSUYA)
東京工業大学・原子炉工学研究所・助教
研究者番号：40312798