

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 22 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2010～2014

課題番号：22226016

研究課題名(和文)長寿命核廃棄物の核変換処理技術開発のための中性子捕獲反応断面積の系統的研究

研究課題名(英文)Systematic Study on Neutron Capture Reaction Cross Sections for the Technological Development of Nuclear Transmutation of Long-Lived Nuclear Wastes

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

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 166,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、長寿命核廃棄物の核変換処理技術開発のための中性子捕獲反応断面積データベースの高精度化に資することを目的とした。まず、長寿命核廃棄物のZr-93, Tc-99, Pd-107, I-129, Np-237, Am-241, Am-243, Cm-244, Cm-246、及び関連する安定同位体の中性子捕獲反応断面積の高精度測定を行った。そして、測定結果の系統的理論解析を行い、長寿命核廃棄物の中性子捕獲反応機構の解明を行った。そして、測定できない核種・中性子エネルギー領域の中性子捕獲反応断面積を理論計算によって提供した。

研究成果の概要(英文)：The objective of the present study was to contribute to the improvement of the accuracy of database for neutron capture reaction cross sections used for the technological development of nuclear transmutation of long-lived nuclear wastes. First, the precise measurements of capture cross sections of long-lived nuclear wastes, i.e. Zr-93, Tc-99, Pd-107, I-129, Np-237, Am-241, Am-243, Cm-244, Cm-246, and related stable isotopes were performed. Then, theoretical analysis of the measured results was systematically performed, and the capture reaction mechanism of long-lived nuclear wastes was elucidated. Finally, reliable calculated capture cross sections for all long-lived nuclear wastes and in the whole neutron energy region were supplied.

研究分野：核データ、原子核物理、中性子物理、原子力学

キーワード：原子力エネルギー 核変換処理 長寿命核廃棄物 中性子捕獲断面積 核データベース

### 1. 研究開始当初の背景

核分裂炉で生成される長寿命核廃棄物(長寿命核分裂生成物: LLFP、及びマイナー・アクチニド: MA から成る。)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・地中埋設が我が国の今日の国策となっている。

しかし、長寿命核廃棄物を分離・抽出して、安定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、長寿命核廃棄物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。

このように、長寿命核廃棄物の核変換処理・処分は非常に重要な技術開発課題である。中性子核反応を用いた核変換が現実的技術として期待されており、本研究対象の中性子捕獲反応は最も重要な核変換反応である。しかし現在、核変換処理技術開発を推進するために必須な中性子捕獲反応断面積データベースの精度は極めて不十分であり、データベースの高精度化が喫緊の課題である。

### 2. 研究の目的

本研究では、長寿命核廃棄物等の中性子捕獲反応断面積等の高精度測定、測定結果の統一的理論解析、長寿命核廃棄物の中性子捕獲反応機構の解明を行い、測定できない核種・中性子エネルギー領域の中性子捕獲反応断面積を理論計算により提供し、中性子捕獲反応断面積データベースの高精度化に資することを目的とする。

### 3. 研究の方法

大強度核破砕パルス中性子源を用いた「大強度陽子加速器施設 物質・生命科学実験施設 中性子核反応測定装置 (J-PARC MLF ANNRI)」での熱領域から keV 領域までの広い領域での長寿命核廃棄物の中性子捕獲反応断面積の高精度測定を中心に据え、これまで実績を有している東京工業大学ペルトロン加速器施設での keV 領域の測定と京都大学電子線形加速器施設での熱領域から eV 領域の測定を合わせて行い、重複する核種・中性子エネルギー領域に対する結果を比較することにより、施設固有の認識不可能な系統誤差に関する情報を得、得られた情報を基にこの系統誤差を極力排除し、信頼性の極めて高い測定結果を導出する。導出された信頼性の高い捕獲反応断面積と捕獲ガンマ線スペクトルの測定結果を同時に理論解析することにより、長寿命核廃棄物の中性子捕獲反応機構を解明して捕獲反応断面積の理論予測精度を飛躍的に向上させ、測定できない核種・中性子エネルギー領域の捕獲反応断面積の精度良い計算値を与える。

### 4. 研究成果

本研究の主な成果は以下の通りである。

#### (1) ANNRI での測定

#### Ge 検出器を用いた測定

##### (a) LLFP 及びその安定同位体の測定

LLFP 試料は使用済み核燃料から製造され、通常は化学分離しか行われなため、多くの LLFP 試料中にはその安定同位体も含まれる。そのため、LLFP の中性子捕獲反応断面積を測定する場合、安定同位体の中性子捕獲反応断面積も必要になってくる。そこで、Se、Zr、Sn、Pd 等の安定同位体試料について測定を行った結果、中性子捕獲反応断面積を導出でき、多くの新共鳴や評価済み核データの誤りを発見することができた。

LLFP 核種に対しては、当初予定通り Zr-93、Tc-99、Pd-107、I-129 の測定を行い、中性子捕獲反応断面積を導出することができた。その結果、Pd-107 を例にとると、過去に報告されている Pd-107 のいくつかの共鳴が、試料中の不純物に起因する共鳴を誤って同定したものであること等を明らかにすることができた。図 1 では、6.8eV 共鳴は Pd-107 に因るが、これまで Pd-107 の共鳴であると考えられていた 3.9eV 及び 5.2eV の共鳴はそれぞれ Pd-105 及び Ag-109 の共鳴であることが示されている。

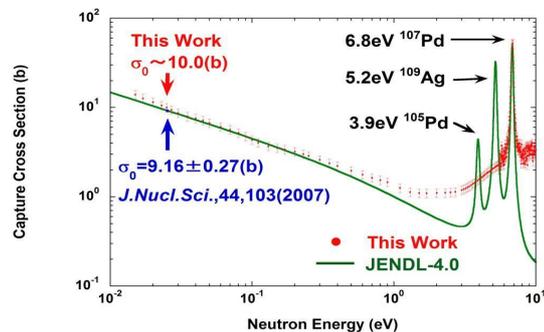


図 1 Pd-107 の測定結果の一部

##### (b) MA の測定

Cm-244 及び Cm-246 について測定を行い、中性子捕獲反応断面積を 1~300eV の中性子エネルギー範囲で導出することができた。図 2 に示すように、Cm-244 の 7.7eV 及び 16.8eV 付近の共鳴は世界で初めての測定結果となった。

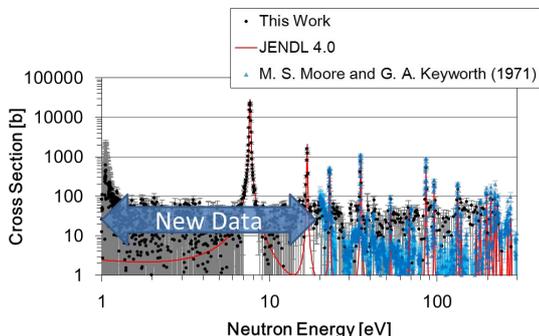


図 2 Cm-244 の測定結果の一部

また、Cm-246 の 4.3eV 及び 15.3eV 付近の共鳴も世界で初めての測定結果となった。こ

これらの結果を纏めた論文により、2012年度の「第45回日本原子力学会賞」論文賞を受賞した。

Am-241について測定を行い、中性子捕獲反応断面積を0.01~10eVの中性子エネルギー範囲で導出することができた。この結果から、放射化法による熱中性子捕獲反応断面積の決定に用いられるWestcott因子を $1.02 \pm 0.01$ と求めることができ、中性子捕獲反応断面積の再評価に重要なデータを得ることができた。また、0.31eV、0.57eV、及び1.27eVの3本の共鳴ピークの強度比を0.5%以下の高い統計精度で決定でき、従来データとの詳細比較を行うことができた。

NaI(Tl)検出器を用いた測定

(a) NaI(Tl)のデータ収集系高速化

中性子エネルギー100keV領域までの測定を可能にするため、NaI(Tl)検出器出力のパルス幅測定に基づく新しいデータ処理法を開発し、NaI(Tl)検出器のデータ収集系の高速化を行った。その結果、下記のように、Tc-99及びPd-107について100keVまでの測定を行うことができた。

(b) LLFP及びその安定同位体の測定

上記の高速化したデータ収集系を用いて、Tc-99及びPd-107について測定を行い、熱領域から100keVまでの中性子捕獲反応断面積を導出することができた。例として、Tc-99の測定結果を図3に示す。I-129についての測定では、測定用試料中に多量に存在する不純物によるバックグラウンドが非常に強かったにもかかわらず、熱領域から100eVまでの中性子捕獲反応断面積を導出することができた。

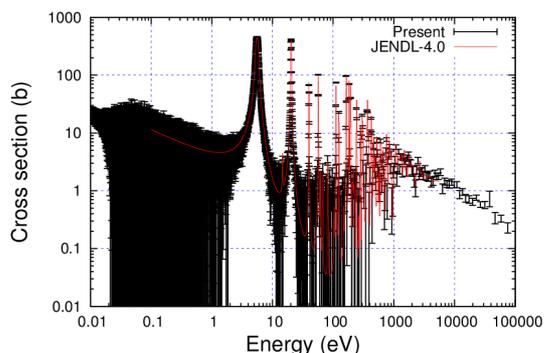


図3 Tc-99の測定結果の一部

(c) MAの測定

Np-237について測定を行い、中性子捕獲反応断面積を0.01~1000eVのエネルギー範囲で導出することができた。測定結果の一部を図4に示す。この結果より、Westcott因子を $0.99 \pm 0.01$ と導出し、また、熱中性子捕獲反応断面積を $177 \pm 5$ [b]と導出できた。また、Am-241について測定を行い、熱領域から10keVまでの中性子捕獲反応断面積を導

出することができた。

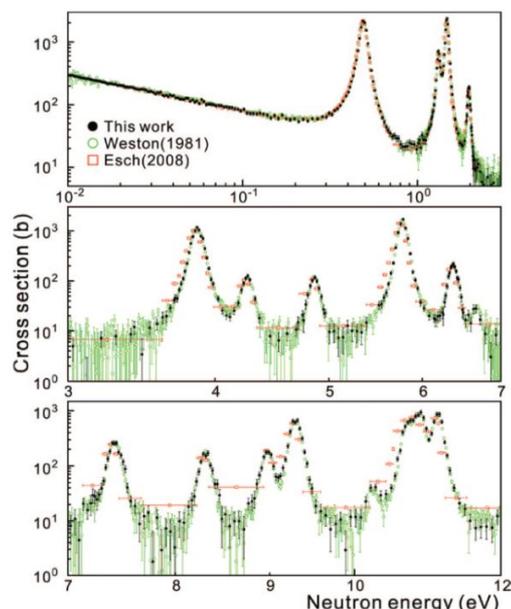


図4 Np-237の測定結果の一部

中性子ビーム高度化等

ANNRIの中性子ビーム特性をモンテカルロ・シミュレーション計算で明らかにすることによって、中性子ビーム・コリメータの材質と形状の最適化を行うことができた。また、透過法による中性子全断面積測定システムの整備・改良を行い、Tc-99及びAu-197に対して測定を行い、全断面積を導出することができた。全断面積測定結果は、捕獲断面積測定結果を詳細検討するために用いた。

(2) 東工大での測定

中性子の高エネルギー領域の測定値及び施設固有の認識不可能な系統誤差についての情報を得るために、 ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ パルス中性子源と大型コンプトン抑止型NaI(Tl)検出器を用いて、Pd-104,105,106,108,110等について、15~100keV及び550keV付近の中性子エネルギー領域で測定を行い、捕獲反応断面積及び捕獲ガンマ線スペクトルを導出した。捕獲ガンマ線スペクトルについては世界初の測定結果である。東工大での15~100keVの捕獲反応断面積結果とANNRIでのNaI(Tl)検出器を用いた100keVまでの捕獲反応断面積測定結果とを比較することによって、施設固有の認識不可能な系統誤差についての情報を得ることができた。

(3) 京大での測定

施設固有の認識不可能な系統誤差についての情報を得るために、京都大学電子線形加速器中性子源を用いて、熱~eV領域の中性子捕獲反応断面積測定を行った。MA核種については一対の $\text{C}_6\text{D}_6$ 検出器を用いて、Am-243に対する中性子捕獲反応断面積の相対値及び共鳴積分値を導出した。LLFP核種

及び安定同位体核種については全吸収型 BGO 検出器を用いて、Pd-107 及び Se-74,76,77 の中性子捕獲反応断面積を導出した。また、中性子透過法を用いて、LLFP である Zr-93 について全断面積測定を行った。京大での中性子捕獲反応断面積測定結果と ANNRI での熱 ~ eV 領域の測定結果とを比較することによって、施設固有の認識不可能な系統誤差についての情報を得ることができた。

#### (4) 理論解析

Pd 安定同位体に対して、東工大での捕獲反応断面積及び捕獲ガンマ線スペクトルの測定結果に光吸収断面積の情報を加えて Pd 同位体の双極子放射に関するガンマ線強度関数を系統的に評価し、高速中性子捕獲反応の理論解析を実施した。結果として、双極子ガンマ線強度関数の 5-6 MeV 付近にピグミー共鳴を発見した。また、Pd 同位体の keV 領域の捕獲反応断面積が、評価済み核データライブラリ JENDL-4.0 の断面積と比較して 8-24% 小さくなることを示した。また、Fe から Au までの 40 核種について中性子捕獲反応断面積及び捕獲ガンマ線スペクトルの計算を系統的に実施し、その結果、Mengoni-Nakajima の原子核準位密度モデルと SMLO 型ガンマ線強度関数を組み合わせた計算が測定値を良く再現することを明らかにした。これらの成果を基に、MA 及び LLFP の理論計算を行い、中性子捕獲反応断面積の計算結果を得た。

#### 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 17 件)

T. Katabuchi, T. Matsushashi, K. Terada, T. Arai, K. Furutaka, K.Y. Hara, H. Harada, K. Hirose, J. Hori, M. Igashira, T. Kamiyama, A. Kimura, K. Kino, F. Kitatani, Y. Kiyanagi, M. Koizumi, M. Mizumoto, S. Nakamura, M. Oshima, Y. Toh, Pulse-width analysis for neutron capture cross-section measurement using an NaI(Tl) detector, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 764, 2014, 369-377, 査読有。

DOI: 10.1016/j.nima.2014.07.062

S. Nakamura, A. Kimura, F. Kitatani, M. Ohta, K. Furutaka, S. Goko, K.Y. Hara, H. Harada, T. Kin, M. Koizumi, M. Oshima, Y. Toh, K. Kino, F. Hiraga, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, T. Katabuchi, M. Mizumoto, M. Igashira, J. Hori, T. Fujii, S. Fukutani, and K. Takamiya, Cross Section Measurements of the Radioactive  $^{107}\text{Pd}$

and Stable  $^{105,108}\text{Pd}$  Nuclei at J-PARC/MLF/ANNRI, Nuclear Data Sheets, 119, 2014, 143-146, 査読有。  
DOI: 10.1016/j.nds.2014.08.040

N. Iwamoto, K. Terada, Theoretical Analysis of Gamma-ray Strength Function for Pd Isotopes, Nuclear Data Sheets, 118, 2014, 246-249, 査読有。  
DOI: 10.1016/j.nds.2014.04.049

K. Kino, M. Furusaka, F. Hiraga, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, K. Furutaka, S. Goko, K.Y. Hara, H. Harada, M. Harada, K. Hirose, T. Kai, A. Kimura, T. Kin, F. Kitatani, M. Koizumi, F. Maekawa, S. Meigo, S. Nakamura, M. Ooi, M. Ohta, M. Oshima, Y. Toh, M. Igashira, T. Katabuchi, M. Mizumoto, J. Hori, Energy resolution of pulsed neutron beam provided by the ANNRI beamline at the J-PARC/MLF, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 736, 2014, 66-74, 査読有。  
DOI: 10.1016/j.nima.2013.09.060

K. Hirose, K. Furutaka, K.Y. Hara, H. Harada, A. Kimura, T. Kin, F. Kitatani, M. Koizumi, S. Nakamura, M. Oshima, Y. Toh, M. Igashira, T. Katabuchi, M. Mizumoto, T. Kamiyama, K. Kino, Y. Kiyanagi, and J. Hori, Cross-section measurement of  $^{237}\text{Np}(n,\gamma)$  from 10 meV to 1 keV at Japan Proton Accelerator Research Complex, Journal of Nuclear Science and Technology, 50, 2013, 188-200, 査読有。  
DOI: 10.1080/00223131.2013.757470

A. Kimura, T. Fujii, S. Fukutani, K. Furutaka, S. Goko, K.Y. Hara, H. Harada, K. Hirose, J. Hori, M. Igashira, T. Kamiyama, T. Katabuchi, T. Kin, K. Kino, F. Kitatani, Y. Kiyanagi, M. Koizumi, M. Mizumoto, S. Nakamura, M. Ohta, M. Oshima, K. Takamiya, and Y. Toh, Neutron-capture cross-sections of  $^{244}\text{Cm}$  and  $^{246}\text{Cm}$  measured with an array of large germanium detectors in the ANNRI at J-PARC/MLF, Journal of Nuclear Science and Technology, 49, 2012, 708-724, 査読有。  
DOI: 10.1080/00223131.2012.693887

[学会発表](計 50 件)

J. Hori, Neutron Capture Cross Section Measurement on  $^{91}\text{Zr}$  at J-PARC/MLF/ANNRI, Fifteenth International Symposium on Capture Gamma-Ray Spectroscopy and Related Topics, 2014 年 8 月 25 日, ドレスデン(ドイツ)

M. Igashira, Nuclear data study for nuclear transmutation, International Symposium on Nuclear Back-end Issues and the Role of Nuclear Transmutation Technology after the accident of TEPCO's Fukushima Daiichi Nuclear Power Stations, 2013年11月28日, 芝蘭会館(京都府・京都市)

M. Igashira, A Nuclear Data Project on Neutron Capture Cross Sections of Long-Lived Fission Products and Minor Actinides, International Conference on Nuclear Data For Science and Technology, 2013年3月8日, ニューヨーク(アメリカ)

T. Katabuchi, Nuclear Data Measurement Using the Accurate Neutron-Nucleus Reaction Measurement Instrument (ANNRI) in the Japan Proton Accelerator Research Complex (J-PARC), IAEA Technical Meeting on Use of Neutron Beams for High Precision Nuclear Data Measurements, 2012年12月12日, ブタペスト(ハンガリー)

[図書](計1件)

S. Nakamura, A. Kimura, M. Ohta, T. Fujii, S. Fukutani, K. Furutaka, S. Goko, H. Harada, K. Hirose, J. Hori, M. Igashira, T. Kamiyama, T. Katabuchi, T. Kin, K. Kino, F. Kitatani, Y. Kiyonagi, M. Koizumi, M. Mizumoto, M. Oshima, K. Takamiya, Y. Toh, and H. Yamana, Springer, Nuclear Back-end and Transmutation Technology for Waste Disposal beyond the Fukushima Accident, 2014, 39-46

[その他]

ホームページ等

[http://www.nr.titech.ac.jp/~iga/kaken\\_s.html](http://www.nr.titech.ac.jp/~iga/kaken_s.html)

<http://www.nr.titech.ac.jp/~iga/>

受賞

上記の雑誌論文が日本原子力学会賞論文賞を受賞した。(平成25年3月)

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

片淵 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

原田 秀郎 (HARADA, Hideo)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学研究センター・ユニット長  
研究者番号: 80421460

中村 詔司 (NAKAMURA, Shoji)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学研究センター・研究副主幹  
研究者番号: 90421461

岩本 信之 (IWAMOTO, Nobuyuki)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学研究センター・研究副主幹  
研究者番号: 70391307

木村 敦 (KIMURA, Atsushi)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学研究センター・研究副主幹  
研究者番号: 30360423

堀 順一 (HORI, Jun-ichi)  
京都大学・原子炉実験所・助教  
研究者番号: 30362411

鬼柳 善明 (KIYANAGI, Yoshiaki)  
名古屋大学・工学研究科・教授  
研究者番号: 80002202

(3)連携研究者

加美山 隆 (KAMIYAMA, Takashi)  
北海道大学・工学研究院・准教授  
研究者番号: 50233961

木野 幸一 (KINO, Koichi)  
北海道大学・工学研究院・准教授  
研究者番号: 00594285

平賀 富士夫 (HIRAGA, Fujio)  
北海道大学・工学研究院・助教  
研究者番号: 00228777

八島 浩 (YASHIMA, Hiroshi)  
京都大学・原子炉実験所・助教  
研究者番号: 40378972