

令和 6 年 6 月 27 日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(A)（一般）

研究期間：2020～2023

課題番号：20H00365

研究課題名（和文）高精度レーザー分光法を用いた長寿命核分裂生成物の高精度寿命測定

研究課題名（英文）Precise life-time measurement of long-lived fission products using precision laser spectroscopy

研究代表者

高峰 愛子（Takamine, Aiko）

国立研究開発法人理化学研究所・開拓研究本部・研究員

研究者番号：10462699

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 36,000,000円

研究成果の概要（和文）：使用済み核燃料の最終的な処分となる長寿命核分裂生成物の中性子-核反応断面積が近年精力的に取得されている。一方、長寿命核分裂生成物の半減期については、極めて重要な核データであるにも拘らず、測定例は古くて少ない。Zr-93をはじめとする長寿命核分裂生成物の半減期を新たな手法で再測定することで、核データの信頼性を高めることを本研究の目的とした。測定対象の長寿命核分裂生成物に的を絞った核反応で試料を作製することにより、試料中に含まれる不純物核種を低減する方法でZr-93を生成した。また、半減期の決定に必要なパラメータである原子数の決定のために、Zr同位体コリニアレーザー分光の開発を進めた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で対象とする使用済み燃料・高レベル放射性廃棄物中の長寿命核分裂生成物は、その分離分析・核変換などにおいて重要な物質であり、その半減期の精査は長期間の核廃棄物リスクの見積もりにとって大きな意味を持つ。また、Zr同位体のレーザー分光はこれまで限られた範囲でのみ遂行されており、本研究で開発した方法により不安定核のオンラインビーム実験による希少Zr同位体の構造研究にアプローチすることで不安定核構造研究への適用も期待できるため、学術的にも意義深いものである。

研究成果の概要（英文）：Neutron reaction cross sections of long-lived fission products, which are an issue in the eventual disposal of spent nuclear fuel, have been obtained intensively in recent years. On the other hand, there are old and few examples of measurements of the half-life of long-lived fission products, despite the fact that this is extremely important nuclear data. The motivation of this study was to improve the reliability of nuclear data by re-measuring the half-lives of Zr-93 and other long-lived fission products using a new method. Zr-93 was produced in a way that reduced the amount of impurity nuclides in the sample by preparing the sample in a nuclear reaction targeted at the long-lived fission product to be measured. In addition, collinear laser spectroscopy for Zr isotopes was developed to determine the number of atoms that is a parameter necessary for the determination of the half-life.

研究分野：不安定核物理

キーワード：レーザー分光 LLFP 核データ

1. 研究開始当初の背景

使用済み核燃料の長寿命核分裂生成物(LLFP: Long Lived Fission Products)をいかに処分するかは世界的に重要な課題の一つである。この LLFP(^{79}Se , ^{93}Zr , ^{99}Tc , ^{107}Tc , ^{126}Sn , ^{129}I , ^{135}Cs など)がもたらす“核のゴミ問題”の解決法として、高速中性子を用いて短寿命核へ変換する加速器駆動核変換システム(ADS: Accelerator Driven nuclear transmutation System)やミュオン核変換などが構想されている。そのための基礎データとして、LLFP の中性子-核反応断面積が近年精力的に取得されている。しかし一方で、肝心の LLFP の半減期は実はそれほど確かなものではないという事実もある。長期にわたる核廃棄物の放射能リスクの見積もりは半減期によって変わり得ることが懸念される。例えば、 ^{126}Sn の半減期は、1999 年に 2.35×10^5 年[1]、2005 年に 2.33×10^5 年[2]と測定されていたものが、2009 年の測定では 1.98×10^5 年[3]と 15%も小さな値が報告されている。そもそも長寿命核分裂生成物の非常に長い半減期を測定することは易しいことではない。 10^3 年以上にもわたる長い半減期の減衰を直接測定することは不可能であるので、LLFP の半減期 $T_{1/2} = \ln 2 / \lambda$ は、原子数 N と放射能 $A = (-dN/dt)$ を測定し、壊変定数 $\lambda = A/N$ を求めることで決定される。その際、試料中に含まれる不純物が、原子数測定と放射能測定において予想されない誤差を引き起こしている。こうした誤差を減らし、信頼性のある半減期を得るには、これまでとは異なった手法で独立に測定し、得られた値をこれまでの値と比較することが重要である。

[1] F. Oberli *et al.*, *Int. J. Mass. Spec.* **184**, 145 (1999).

[2] S. A. Catlow *et al.*, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **263**, 599 (2005).

[3] Ph. Bienvenu *et al.*, *Radiochim. Acta* **97**, 687 (2009).

2. 研究の目的

本研究の目的は、高精度レーザー分光手法であるコリニアレーザー分光法を新たに導入することで LLFP の半減期を高精度に決定することである。LLFP として、まずは ^{93}Zr から着手する。 ^{93}Zr は、燃焼度 30 GWd/t の使用済み核燃料中に約 1 kg/t 含まれ、燃料取り出し後 1000 年が経過すると、核分裂生成物の中では ^{99}Tc に次いで二番目に強い放射能となる。また、 ^{93}Zr はジルカロイ製燃料被覆の中性子照射でも生成される。これらのことから、 ^{93}Zr の半減期は核燃料廃棄物の処分を検討する上で非常に重要な核データである。しかし、 ^{93}Zr の半減期はこれまで、 1.53×10^6 年[4]、 1.13×10^6 年[5]、 1.64×10^6 年[6]の 3 例しか測定されておらず、それらは 30%も異なっている。

長半減期の決定で必要となる原子数の測定は、これまで誘導結合プラズマ質量分析器(ICP-MS: Induced Coupled Plasma Mass Spectrometer)等の質量分析器を用いて行われてきた [7]。しかしこれらの質量分析器では同重体を分離できないため、試料中に含まれる ^{93}Nb や ^{93}Mo あるいは他の元素の分子が誤差の要因となっている。加速器質量分析では阻止能の違いで同重体をある程度分別することが出来るが、重い元素で原子番号が 1 つしか違わない場合は、完全な分離は出来ない。それに対して、コリニアレーザー分光では、Zr 原子に共鳴するレーザーに同重体や分子は共鳴しないため、Zr のみを観測することが可能となる。更に、コリニアレーザー分光は、共鳴イオン化法など他のレーザー分光手法に比べて分解能が良く、また同位体間での共鳴波長の違い(同位体シフト)を人工的に大きく出来るので、 ^{93}Zr のピークに他の Zr 同位体のテールが混入する割合が非常に小さい。これらのことから、コリニアレーザー分光法では ^{93}Zr の原子数 N を精度良く測定することができる。

また、これまでは ^{93}Zr の試料は、使用済み核燃料やジルカロイ製被覆から化学分離されてきたが、使用済み核燃料やジルカロイ製被覆には多くの核種が含まれるので、化学分離された試料に予期しない不純物が残っている恐れがある。これらが、長半減期の決定で必要となる放射能測定の誤差の大きな要因となる。それに対し、本研究では加速器を用いて ^{93}Zr の生成的に絞った核反応で試料を作成する。核反応で同時に生成される核種は数核種に限られるので、化学分離後に予期せぬ不純物が試料に残ることは無く、 ^{93}Zr の放射能 A を高精度に測定することができる。

本研究では、 ^{93}Zr でコリニアレーザー分光法による新しい半減期測定の手法を確立し、将来的には他の LLFP の半減期も同様の手法で測定することを目指す。これによって LLFP の半減期の信頼性が高まり、核燃料廃棄物の長期間にわたる放射線リスクを精度高く評価することが可能となる。更に、原子力分野以外にも、太陽系の物質分化の年代決定に関わる長寿命核種(例えば ^{146}Sm や ^{182}Hf)の半減期の再測定等への展開が期待できる。

[4] Priv. Comm. (1972) from K. F. Flynn to NNDC.

[5] J. Yang *et al.*, *Radiochim. Acta* **98**, 59 (2010).

[6] P. Cassette *et al.*, *Appl. Radiat. Isot.* **68**, 122 (2010).

[7] I. W. Croudace *et al.*, *J. Anal. At. Spectrom.* **32**, 494 (2017).

3. 研究の方法

理研のサイクロトロンで 15 MeV/u に加速した d ビーム $10 \mu\text{A}$ を 1.85 g/cm^2 Be ターゲットに一日間照射し ${}^9\text{Be}(d, n)$ 反応で約 10 MeV の中性子を発生させた。Be ターゲットの直後に $\phi 15 \text{ mm} \times$ 厚さ $1 \text{ mm} \times 120$ 枚の ${}^{93}\text{Nb}$ ターゲットを設置することで、 (n, p) 反応で ${}^{93}\text{Zr}$ を生成した。照射したターゲットを後日、Ge 検出器を使い、生成核種およびその量を測定した。

並行して、図 1 に示すコリニアレーザー分光装置の開発を、安定同位体イオンを使って進めた。イオン源から 10 keV 程度に加速したイオンビームを双極電磁石を通して A/q で選別する。選別後のイオンビームと同軸にレーザーを照射し、イオンがレーザーにより励起した後、脱励起で放出する蛍光をレンズで集光し光電子増倍管で検出する。イオンが観測領域に到達する前に励起することを避けるために、イオンのエネルギーを精密にチューニングするための電極を観測領域に設置しており、その電極の電圧を掃印することでレーザー分光スペクトルを得た。

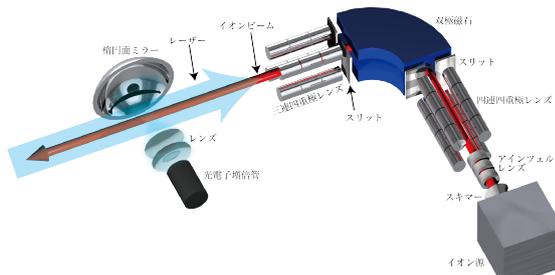


図 1: コリニアレーザー分光装置概略図

4. 研究成果

ビーム照射 5 日後の ${}^{93}\text{Nb}$ ターゲットの γ 線測定結果例を図 2 に示す。 ${}^{93}\text{Nb}(n, 2n)$ 反応で生成された ${}^{92\text{m}}\text{Nb}$ からの強い 934 keV, 912 keV γ 線を確認し、生成直後の ${}^{92\text{m}}\text{Nb}$ の総放射能が $27.39(9) \text{ MBq}$ 、すなわち $3.465 \times 10^{13}(13)$ 個の ${}^{92\text{m}}\text{Nb}$ が生成されたことを確認した。

ビーム照射 10 ヶ月後、 ${}^{92\text{m}}\text{Nb}$ の放射能が十分冷めた後に再度 γ 線測定結果例を図 3 に示す。 ${}^{93}\text{Nb}(n, \gamma)$ で生成された ${}^{94}\text{Nb}$ からの 703 keV, 871 keV などの γ 線を確認した。Be ターゲットに最も近い再上流の 1 mm 厚ターゲット内で生成された ${}^{94}\text{Nb}$ の量は $6.1(6) \times 10^{11}$ 個であることが分かった。他にも、 ${}^{93}\text{Nb}$ ターゲット内に微量に含まれる Mo や Ta を起因とする生成物も確認された。

MCNP コード[8]および JEDNL-5[9]の反応断面積を用いて推定される生成量とこれらの結果を比べると、実際の生成量は 1 桁以上少ないことを見出した。この原因はまだ解明されていない。今後 ${}^{93}\text{Nb}$ ターゲットを化学分離し、 ${}^{93}\text{Zr}$ の生成量を液体シンチレータで測定する予定ではあるが、 ${}^{93}\text{Zr}$ の生成量も同様に少ないことが懸念されるため、並行して JRR-3 における中性子照射における ${}^{93}\text{Zr}$ 生成ビームタイムを 2024 年度に実施する手筈を整えた。

コリニアレーザー分光装置開発においては、レーザーアブレーションを用いた RF イオンガイド型のイオン源を開発し、従来の ISOL 施設では比較的生成の難しい Ni, Zr, Ag, Ta, W の 1 価イオンの引き出しに成功した[10]。また、表面電離イオン源を用いた安定 Ba 同位体のコリニアレーザー分光から始め、次に安定 Zr 同位体イオンのコリニアレーザー分光に着手した。真空中でのレーザーアブレーションによるパルス化された Zr イオンビームを生成すること、更に球面鏡を使うことで集光効率を改善することで、図 4 に示すように安定 Zr 同位体イオンのコリニアレーザー分光に成功し[11]、 $4d^2 5s^2 4f_{3/2} - 4d^2 5p^4 G_{5/2}$ 遷移(357 nm)の電子因子を決定した。現在、限られた ${}^{93}\text{Zr}$ リソースを極力高い効率で有効に活用するために、放電イオン源や表面電離イオン源を利用した Zr イオン生成を進めている。

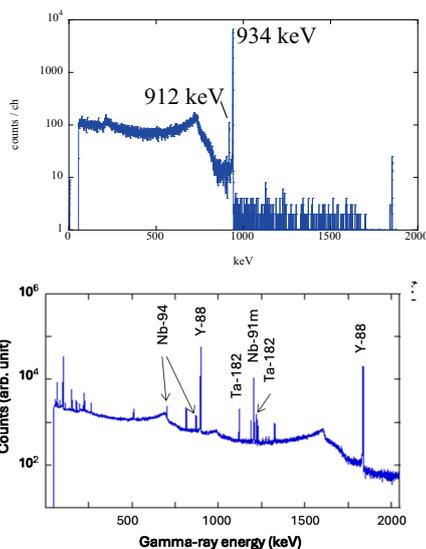


図 3: ${}^{93}\text{Nb}$ ターゲットの γ 線測定結果の一例(ビーム照射 10 ヶ月後)

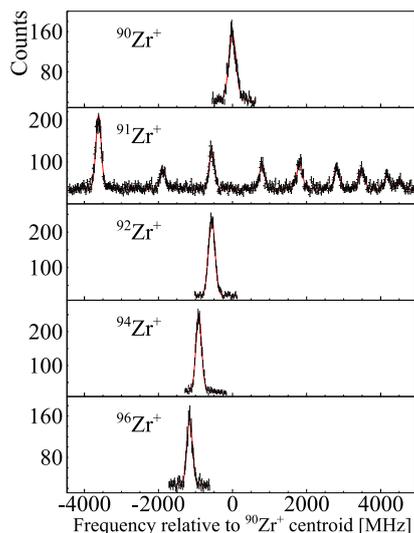


図 4: 安定 Zr 同位体イオンのコリニアレーザー分光スペクトル

[8] J.T. Goorley *et al.*, Initial MCNP6 Release Overview - MCNP6 version 1.0, LA-UR-13- 22934, 2013.

[9] O. Iwamoto *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. **60**, 1 (2023).

[10] M. Tajima *et al.*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **486**, 48 (2021).

[11] M. Tajima *et al.*, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **541**, 272 (2023).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Tajima M., Takamine A., Wada M., Ueno H.	4. 巻 486
2. 論文標題 Offline ion source for laser spectroscopy of RI at the SLOWRI	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms	6. 最初と最後の頁 48 ~ 54
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nimb.2020.10.013	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tajima M., Takamine A., Iimura H., Wada M., Kimura S., Niwase T., Schury P., Schuessler H.A., Lassen J., Ueno H.	4. 巻 541
2. 論文標題 Offline development for collinear laser spectroscopy at the SLOWRI facility	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms	6. 最初と最後の頁 272 ~ 274
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nimb.2023.05.031	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 3件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 M. Tajima, A. Takamine, H. Iimura, M. Wada, K. Sota, T. Niwase, P. Schury, H. A. Schuessler, J. Lassen, and H. Ueno
2. 発表標題 Offline development for collinear laser spectroscopy at the SLOWRI facility
3. 学会等名 The 19th International Conference on Electromagnetic Isotope Separators and Related Topics (EMIS) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 田島美典、高峰愛子、飯村秀紀
2. 発表標題 不安定原子核の同位体シフト測定に向けた開発
3. 学会等名 第17回AMO討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高峰愛子
2. 発表標題 Isotope shift measurement project at the SLOWRI facility
3. 学会等名 東北大学 ELPH 研究会「電子散乱による原子核研究 ー陽子半径、不安定核の電荷密度分布を中心にー」（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田島美典
2. 発表標題 コリニアレーザー分光による四重極変形度測定を通じた原子核構造研究に向けた開発II
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高峰愛子
2. 発表標題 原子分光技術で除く原子核の世界
3. 学会等名 第30回原子衝突セミナー（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 A. Takamine
2. 発表標題 Recent Progress of the Laser Spectroscopy Activities for the Study of Exotic Nuclei
3. 学会等名 International Conference on Hyperfine Interactions and their Applications (HYPERFINE2023)（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	田島 美典 (Tajima Minori) (20821838)	国立研究開発法人理化学研究所・仁科加速器科学研究センター・特別研究員 (82401)	
研究 分担者	飯村 秀紀 (Iimura Hideki) (10343906)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 原子力基礎工学研究センター・再雇用職員 (82110)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------