

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 9 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26420876

研究課題名(和文)ガンマ線共鳴反応による同位体識別のための核反応断面積の評価研究

研究課題名(英文)Evaluation of nuclear reaction cross sections for nuclide identification with gamma-ray resonance reactions

研究代表者

岩本 信之 (IWAMOTO, Nobuyuki)

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 原子力基礎工学研究センター・研究主幹

研究者番号：70391307

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,300,000円

研究成果の概要(和文)：核燃料物質等の非破壊検査手法の一つであるガンマ線と原子核との共鳴蛍光散乱現象を利用した核種の識別技術を検証するための核反応データベース開発を行った。選定したアクチノイド及び構造材核種に対して、共鳴領域及び高エネルギー連続領域における断面積を導出した。使用済軽水炉燃料組成を基に、アクチノイド核種の共鳴断面積ピークが判別可能かどうか検討し、構造材核種により遮へいされない、識別に有用な共鳴レベルを抽出した。

研究成果の概要(英文)：The photonuclear reaction database was developed in order to examine the nuclide identification technique by the nuclear resonance fluorescence, which is one of the non-destructive inspections for nuclear fuel materials. The photonuclear reaction cross sections of nuclides selected from actinides and structural materials were evaluated in the resonance and higher energy continuum regions. Resonance peaks having potential to identify the actinide nuclides regardless of structural materials were investigated, based on estimated composition of spent nuclear fuel in light water reactor. Their resonance levels useful for nuclide identification were extracted.

研究分野：原子核物理、核データ

キーワード：核データ評価 ガンマ線 共鳴反応 非破壊検査 原子核共鳴蛍光散乱 使用済核燃料

1. 研究開始当初の背景

核物質の保障措置において非破壊検査による使用済核燃料の組成を検査するための技術開発は最優先事項に挙げられており、元素レベルでの識別が可能な手法の研究開発が進められている。しかし、対象物の出所を特定する核鑑識等には、同位体レベルでの識別が必要不可欠である。この要請に対して近年、レーザー逆コンプトン散乱ガンマ線による原子核共鳴蛍光散乱を利用した技術を用いた非破壊検査へ応用することが提案されている。この識別法はガンマ線を原子核に照射したときに、原子核に固有の励起レベルに対応したエネルギーを持つガンマ線の吸収量が増大する、所謂、ガンマ線と原子核との共鳴反応を利用したものである。この原理を応用すれば、原子核の励起エネルギーに調整したガンマ線を照射し、励起した原子核の脱励起に伴って放出される照射エネルギーと等しいガンマ線を測定することで原子核の識別が可能になると期待される。

核共鳴蛍光散乱に関する実験では、ガンマ線と共鳴を起こす励起レベル（共鳴レベル）のエネルギーに加え、共鳴の強さを表す指標として積分断面積値が報告されている。共鳴レベルの判別はエネルギーが高くなるにつれてレベル同士が重なり分離できなくなるため困難になる。これによりアクチノイド等の重核の場合には核共鳴蛍光散乱が利用できる励起レベルは 5MeV 程度までが限度となる。また、積分断面積値はガンマ線エネルギーに依存する量（断面積）として与えられていないため、そのままこのデータを核共鳴蛍光散乱による非破壊検査のシミュレーション等へ応用することはできない。

現在、ガンマ線誘起核反応断面積を収納した評価済み核反応データファイルが国際原子力機関や日本原子力研究開発機構等で公開されている。そのファイルには検査対象であるウランやプルトニウム等のアクチノイド核種に関する断面積データが収納されている。しかし、それらのデータは粒子放出のしきいエネルギー（典型的には 8MeV）以上に限られていたり、断面積データは 1MeV から収納されているが共鳴反応による効果が考慮されていない等、核共鳴蛍光散乱による同位体識別の有効性を検証するのに必要となる基礎データがアクチノイド核種に対してさえ不足しているのが現状である。

2. 研究の目的

使用済核燃料の組成を非破壊で検査するためにレーザー逆コンプトン散乱ガンマ線による核共鳴蛍光散乱を応用することが提案されている。この技術により元素ではなく同位体レベルでの識別が可能になると期待される。本研究では、この技術による同位体識別の有効性についてシミュレーション等で検証するために必要な基礎データとなるガンマ線エネルギーに対する断面積データ

の評価及び識別に有用な励起レベルの探索を行う。これにより複数核種が混在した検査対象物に対し、他の核種によって遮へいされず、対象とする同位体の識別が可能な共鳴レベルの抽出を行うことを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 評価核種の選定：軽水炉で燃焼した使用済核燃料の核種組成から存在量の大きなアクチノイド核種を選定する。また、検査時には構造物に収納されていることを考慮して、これらを構成する核種も選定する。

(2) 励起レベル情報の収集：核共鳴蛍光散乱実験により報告された共鳴レベルに関する性質（励起エネルギーやスピン等）、ガンマ線遷移強度等のデータを収集する。

(3) ガンマ線共鳴解析：収集したデータを基に、測定された共鳴レベルについて、ガンマ線に対するエネルギー依存性を持った断面積を算出する。

(4) 核反応理論モデルによる評価計算：ガンマ線共鳴解析により得られた断面積の上限エネルギー以上では、励起レベル同士が重なり連続状態となる。ほとんどの核種ではこの連続状態中に粒子放出のしきいエネルギーがあるため、断面積導出には統計理論等に基づく核反応理論モデル計算コード CCONE を使用する。本評価では入射エネルギー範囲を、共鳴領域の上限から巨大双極子共鳴（GDR）や準重陽子分解過程が重要となる 60MeV までとする。また、原子核のガンマ線吸収及び放出に大きな影響を与えるガンマ線強度関数について、既存のローレンツ型モデルを適用して、測定データの再現性を検証し採用する強度関数モデルを決定する。

(5) 同位体識別に利用可能な共鳴レベルの抽出：アクチノイド核種については (1) で使用した使用済核燃料の組成を採用し、収納容器については SUS や鉛等に材質を変えて検討する。本研究で構築したアクチノイド及び構造材核種のデータを使用して、対象核種が他の核種により遮へいされない、識別に有用な共鳴レベルを抽出し、核共鳴蛍光散乱技術による同位体識別の有効性を検証する。

4. 研究成果

(1) 対象核種の選定のために、使用済軽水炉燃料の核種組成の評価結果を採用し、この評価において存在量の多い U-238、Pu-239、U-235、U-236、Np-237 等をアクチノイド核種として選定した。また、アクチノイド核種から放出される放射線を遮へいするために SUS、コンクリートや鉛等の構造材に収納されていることを想定し、これらを構成する鉄 (Fe)、ニッケル (Ni)、クロム (Cr)、カルシウム (Ca)、鉛 (Pb) についても併せて選定した。

選定した核種に対して核共鳴蛍光散乱実験により報告されている共鳴レベルの情報（励起エネルギー、スピン等）、積分断面積値や基底状態へのガンマ線遷移強度等のデータを収集した。また、収集したレベルに複数の測定データがあった場合には、測定・解析手法を検討してデータを選別した。図 1 には、主なアクチノイド及び構造材核種について収集・評価した共鳴レベルに対する積分断面積値の比較結果が示してある。なお、構造材核種については元素の天然存在比を乗じてある。

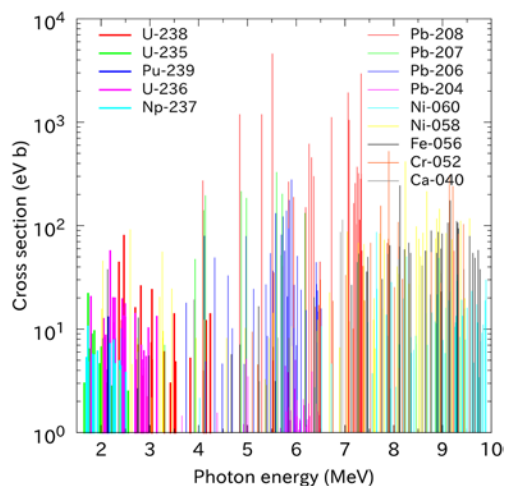


図 1 : アクチノイド及び構造材核種について評価した積分断面積値の比較

収集した個々の励起レベルに対する共鳴断面積をブライト・ウィグナー型の断面積で記述することにより、ガンマ線に対するエネルギー依存性を持った断面積を導出した。この共鳴解析における入射エネルギーの範囲は 0.1MeV から測定された共鳴レベルの上限エネルギーまでとした。

(2) 共鳴解析で得られた断面積の上限エネルギーよりも高いエネルギー領域の断面積を計算するために、Hauser-Feshbach 統計モデル及び前平衡二成分励起子モデル等が組み込まれた核反応モデル計算コード CCONE を使用した。

GDR を記述するガンマ線強度関数が原子核のガンマ線吸収に与える影響は大きいので、ガンマ線強度関数に対して提案されている 6 種（標準型 (SLO, SLOD)、一般化型 (GLO)、ハイブリッド型 (HM)、修正型 (SML0, ML01)) のローレンツモデルを適用して測定データの再現性を調査した。この調査では、約 40MeV 以上においてガンマ線吸収過程を支配する、準重陽子分解過程も考慮して評価を行った。図 2 に Pb-208 に対して行ったガンマ線強度関数の検討結果を示す。調査に使ったデータは 1 中性子放出反応断面積である。SLO, GLO, HM, MLO (ML01 ケース) を採用したときの結果が比較してある。ML01 モデルでは近年の逆コンプトン散乱ガンマ線を用いた Kondo らの測定データを良く再現していることが分かる。

得られた比較結果から、ガンマ線強度関数モデルとして修正型 (ML01) モデルを採用することにした。この調査では、上限エネルギーを 60MeV とすることで、GDR と準重陽子分解過程が競合する領域における測定データの再現性も考慮し、断面積の信頼性を高めた。

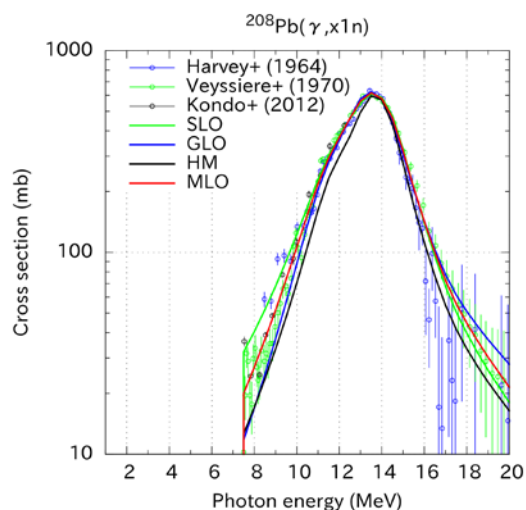


図 2 : Pb-208 の 1 中性子放出反応断面積に対して異なるガンマ線強度関数モデルを用いて行った計算結果の比較

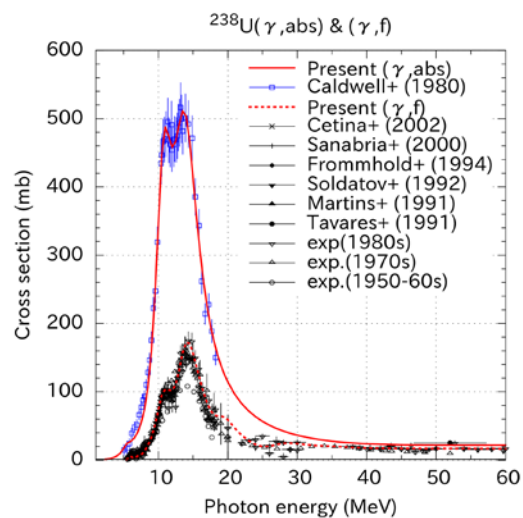


図 3 : U-238 に対する光吸収断面積（実線、測定データは各反応断面積の和）と核分裂断面積（破線）の評価結果と測定データの比較

理論モデルで計算した断面積は必ずしも測定データを再現してはいないため、測定データを再現するようにパラメータを調整する必要がある。この調整に必要な測定データを実験核反応データベース EXFOR や文献から取得した。また、同じ反応断面積でも不整合があった場合には、文献等を基に測定データを補正し、評価に採用した。これらの測定データを基に、核反応モデルで得られた計算結果と比較検討することにより、ガンマ線入射エネルギーに対して妥当な断面積を導出した。図 3 と図 4 には U-238 と Pu-239 の光

吸収断面積と核分裂断面積に対する評価結果と測定データとの比較が示してある。ここに示した反応以外の測定データも考慮した評価となっている。

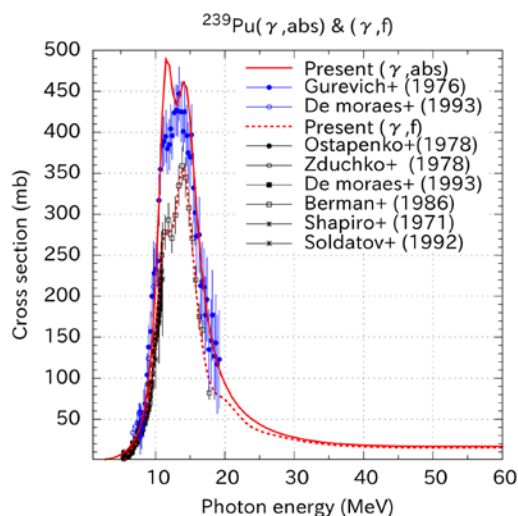


図 4 : Pu-239 に対する光吸収断面積 (実線) と核分裂断面積 (破線) の評価結果と測定データの比較

(3) 検査対象核種が構造材に収納されていた場合に、対象核種が識別可能かどうか調べた。使用済燃料の組成として、UO₂ 燃料及び MOX 燃料を用いた PWR 及び BWR において取出燃焼度が 33, 45, 60GWd/tHM のケース [①] を採用した。

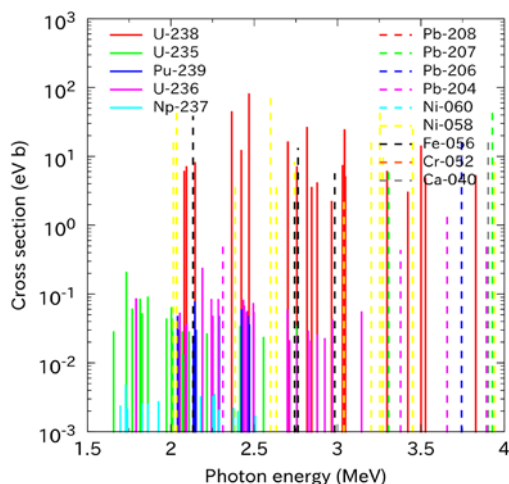


図 5 : UO₂ 燃料を用いた PWR 型軽水炉 (取出燃焼度 33GWd/tHM) の使用済核燃料におけるアクチノイド核種と構造材核種に対する共鳴の比較

得られたアクチノイド及び構造材核種の断面積データを使用して、上述した燃料・炉型・取出燃焼度の組成を持った対象物に対し、検査対象核種の共鳴断面積ピークが判別可能かどうか検討した。なお、この検討では、U-238 の存在量で組成を規格化し、断面積に乗じた。収納容器は鉄やニッケル、鉛等で構成されていると仮定し、この条件下で、アク

チノイド等の検査対象核種に対して、他の核種の断面積により遮へいされない、識別に有用な共鳴レベルをすべて抽出した。図 5 には、冷却期間を 5 年とした場合の UO₂ 燃料を用いた PWR 型軽水炉 (取出燃焼度 33GWd/tHM) における使用済核燃料中のアクチノイド核種と構造材核種に対する共鳴の比較が示してある。低エネルギーガンマ線を用いることで、アクチノイド核種を選択的に識別できることが分かった。

今後、本研究で得たデータを建造物のコンクリート等の組成分析へ適用し、放射化量予測への応用を検討する。

<引用文献>

① 安藤良平、高野秀機、使用済軽水炉燃料の核種組成評価、JAERI-Research 99-004 (Japan Atomic Energy Research Institute)、1999

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 N. Iwamoto, Consistency check of experimental data using evaluated photonuclear data, JAEA-Conf (Japan Atomic Energy Agency), 査読無, 2017, 印刷中

② N. Iwamoto, K. Kosako, T. Murata, Photonuclear data file, JAEA-Conf 2016-004 (Japan Atomic Energy Agency), 査読無, 2016, 53-58
DOI:10.11484/jaea-conf-2016-004

③ O. Iwamoto, N. Iwamoto, S. Kunieda, F. Minato, K. Shibata, The CCONE Code System and its Application to Nuclear Data Evaluation for Fission and Other Reactions, Nuclear Data Sheets, 査読有, 131, 2016, 259-288
DOI:10.1016/j.nds.2015.12.004

[学会発表] (計 3 件)

① 岩本信之、Consistency check of experimental data using evaluated photonuclear data、2016 年度核データ研究会、2016 年 11 月 17 日、高エネルギー加速器研究機構 (茨城県・つくば市)

② 岩本信之、小迫和明、村田徹、Photonuclear data file、2015 年度核データ研究会、2015 年 11 月 20 日、いばらき量子ビーム研究センター (茨城県・東海村)

③ 岩本信之、 γ 線誘起核データの評価、日本原子力学会、2015 年 9 月 10 日、静岡大学静岡キャンパス (静岡県・静岡市)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岩本 信之 (IWAMOTO, Nobuyuki)
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 原子力基礎工学
研究センター・研究主幹
研究者番号：70391307