



放射性廃棄物核種の中性子断面積の研究

原田 秀郎 中村 韶司 加藤 敏郎*
和田 幸男

東海事業所核燃料技術開発部

資料番号: 97-15

Research on Neutron Capture Cross Section of Radioactive Fission Products

Hideo Harada Shoji Nakamura Toshio Katoh
Yukio Wada
(Nuclear Fuel Technology Development Division, Tokai Works)

長寿命核分裂生成核種の消滅処理評価を行うための基礎データ整備の一環として、放射性核分裂生成核種に対する中性子吸収断面積の精密測定を行った。カドミウム・シールドがある場合とない場合で原子炉中性子照射を行い、それぞれに対し、2種類の放射化検出器で中性子束をモニターした。ターゲットからの強いガンマ線場中で核反応生成核からの微弱なガンマ線を測定するための計測システムを開発し、放射能測定に利用した。この結果、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 、 ^{99}Tc および ^{129}I の熱中性子吸収断面積と共鳴積分値の誤差を5～10%という高い精度で測定できた。

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加速器等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研究を消滅処理研究と呼ぶ。消滅処理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 、 ^{137}Cs 等の核分裂生成核種と核燃料の中性子吸収反応で生成する ^{237}Np 、 ^{241}Am 等の超ウラン元素がある。先端技術開発室では、ガンマ線による長寿命核分裂生成核種の消滅処理評価の一環として熱中性子吸収断面積の測定を実施してきた。

本測定では、原子炉中の中性子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のみならず共鳴積分値も測定された。本稿では、これらの測定技術に関するR&Dの結果と、これまでに測定が終了した ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 ^{99}Tc 、 ^{129}I の実験結果について報告する。

2. 実験原理

2.1 放射化法

実験原理を ^{137}Cs を例に取り説明する。図1に

示すように ^{137}Cs は約30年の半減期で崩壊し、662 keVのエネルギーを持つガンマ線を放出する。この ^{137}Cs が中性子で放射化されると(すなわち、中性子を吸収すると) ^{138}Cs に変化するが、この原子核は約33分の半減期で、安定な核種である ^{138}Ba へと崩壊する。この時、1010、1436、2218 keVの

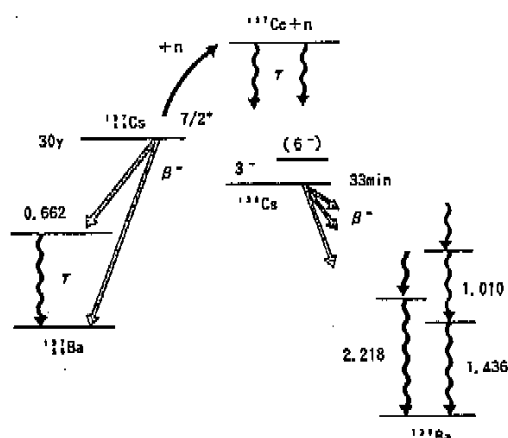


図1 ^{137}Cs および ^{138}Cs の崩壊図

* 名古屋大学名誉教授

エネルギーを持つガンマ線が放出される。 ^{138}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、すでにわかっているため、1010、1436、2218keV等のガンマ線の強度を測定することにより生成した ^{138}Cs の量を求めることができる。

我々の測定したい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 ^{138}Cs の量だけでなく、ターゲットである ^{137}Cs の量も知る必要がある。原子炉の短期間照射で生じる ^{138}Cs の放射能は、ターゲットである ^{137}Cs の放射能に比べ桁違いに小さいので、第3章で述べる注意深い測定が必要となる。

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、

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

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。 ^{138}Cs と ^{137}Cs の放射能の比は、簡単に①式中の A/N に換算できるので、放射能の比、すなわ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の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。¹⁾この場合、原子炉の中の中性子束は、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。

$$R/\sigma_0 = \phi_1 + \phi_2 \cdot s_0 \quad \text{.....②}$$

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、すなわち、熱中性子吸収反応断面積である。 s_0 は、

$$s_0 = \frac{2}{\pi^{1/2}} \cdot \left(\frac{I_0}{\sigma_0} - 0.45 \right) \quad \text{.....③}$$

なる式で表される量である。 I_0 は、

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

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 および ϕ_2 を求めることができる。さらに、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、

$$R'/\sigma_0 = \phi_1' + \phi_2' \cdot s_0 \quad \text{.....②'}$$

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' も求めることができる。ターゲット核種に対する R および R' を測定すれば、②および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できる。さらに③式より I_0 も求まる。このように、反応速度を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。

3. 実験方法

実験は、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 ^{99}Tc 、および ^{129}I について、それぞれ独立に行った。 ^{90}Sr と ^{137}Cs の実験は、日本原子力研究所研究炉JRR4で行った。 ^{99}Tc と ^{129}I の実験は、立教大学原子力研究所の研究炉で行った。これら4核種に対する実験では、一貫して、原子炉中性子による放射化法を採用した。照射場における中性子束をモニターするため、Co/Al合金ワイヤーとAu/Al合金ワイヤーを、放射化検出器として使用した。照射ターゲットおよびこれら2種類の放射化検出器を、いずれも、熱中性子をよく遮蔽する能力を有するCdシールドがある場合とない場合とで照射した。生成する放射能の量を、ゲルマニウム半導体検出器により測定した。

3.1 ターゲットおよび照射

^{137}Cs ターゲット量は、1つ当たり、約0.4MBqであり、その化学形態は塩化セシウムであった。ポリエチレンカプセル中で赤外ランプで暖めることにより水分を蒸発させ乾燥させた。照射はJRR4の気送管で行った。Cdシールドがある場合は、10分、ない場合は、2分間照射した。照射で生じる ^{24}Na と ^{38}Cl を除去するため、照射済みターゲットにNaCl溶液を混ぜ、ついで、ゼオライト

を混ぜてCsを吸着させて、フィルターで分離した。

^{90}Sr ターゲットはガンマ線を放出しないため、 ^{85}Sr 同位体をトレーサーとして混入した。照射前に、 ^{85}Sr と ^{90}Sr 放射能の比は、ベータ線測定とガンマ線測定により 131 ± 7 と測定された。 ^{90}Sr ターゲット量は、1つ当たり、約2 MBqであり、その化学形態は塩化ストロンチウムであった。照射済みターゲットをイオン交換法により、放射能を有する Na^+ 、 Cl^- 、 Y^{3+} イオンから分離した。照射は ^{137}Cs と同様、JRR4の気送管で行い、Cdシールドがある場合10分、ない場合は、5分間照射した。

^{99}Tc は、観測し易いガンマ線を放出しないが、半減期が長いので、比放射能を液体シンチレーションカウンターを用い前もって測ることにより、重量測定でターゲット量を知ることができる。ターゲット量は、約370 kBqである。生成する ^{100}Tc の半減期は、15秒と短いため、照射後、測定を迅速に開始することのできる立教大学原子炉を用いて照射した。照射位置は、Cdシールドを利用できる回転試料棚中とし、2分間照射した。

^{129}I も ^{99}Tc の場合と同様に、前もってターゲット溶液の比放射能を測定し、重量測定により、ターゲット量を求めた。Cdシールド中照射用のターゲットは約2600 Bq、Cdシールドなし照射用のターゲットは約260 Bqとし、それぞれ10分間回転試料棚中で照射した。

3.2 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、図2に示すように、トランジスタ・リセット型の前置増幅器(preamp)および、450 MHzアナログデジタル変換器(ADC)を用いた。デジタル化されたガンマ線のエネルギー情報は、高速でCAMACモジュールのヒストグラムメモリーに蓄えられた。このヒストグラムすなわちガンマ線エネルギースペクトル情報は、一定時間間隔でコンピュータに転送され、オンラインでモニターされた。この計測システムは、14キロカウント/秒の高いデータ取り込み速度でも、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、1.33 MeVのガンマ線に対し、半値幅で2.1 keV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%という高効率のものであった。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。

4. 結果および議論

図3は、測定されたガンマ線エネルギースペクトルの一例を示す。 ^{137}Cs からの強い662 keVガンマ線と同時に、 ^{138}Cs からのガンマ線が1010 keV、1436 keV、2218 keVに観測された。上図がCd

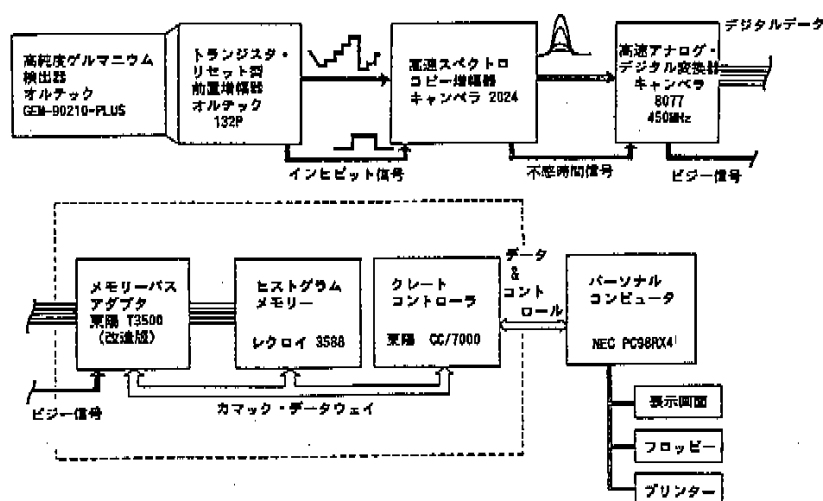


図2 高速度放射線計測システム

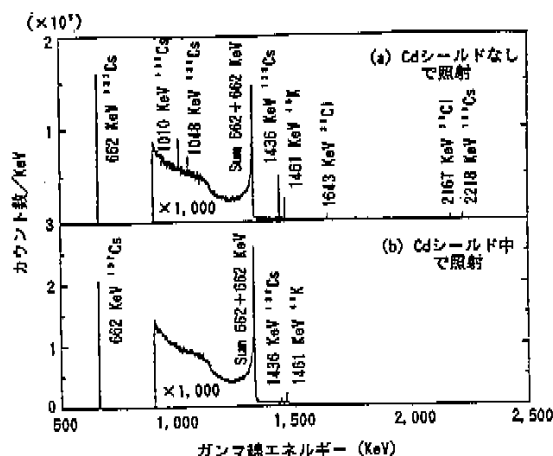


図3 ガンマ線スペクトルの測定例。上図が、Cdシールド無しで照射したターゲットを測定したものであり、下図が、Cdシールド中で照射したターゲットを測定したものである。

シールドがない場合のスペクトルで、下図がシールドがある場合のスペクトルである。

これらのガンマ線のカウント数から崩壊による減衰の補正を行うことにより①式の反応速度 R を求めた。この値を②および②'式に代入し、 σ_0 および I_0 を求めた。測定の誤差としては、統計的誤差の他に、検出効率校正の誤差、中性子束測定の誤差等の系統的誤差も考慮された。表1に得られた結果⁽³⁾⁻⁽⁵⁾のまとめを以前の測定データ⁽⁶⁾⁻⁽⁹⁾と共に示す。

^{137}Cs の σ_0 は以前の測定値より2.3倍大きな結果であった。また、 I_0 の値が初めて測定された。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。

表1 放射性核分裂生成核種の熱中性子吸収断面積と共鳴積分値

核種	過去のデータ	PNCのデータ
^{137}Cs	$\sigma_0 = 0.11 \pm 0.03\text{b}$ (ステュベジア'60)	$\sigma_0 = 0.25 \pm 0.02\text{b}$ $I_0 = 0.36 \pm 0.07\text{b}$
^{90}Sr	$\sigma_0 = 0.8 \pm 0.5\text{b}$ (ザイゼル'66)	$\sigma_0 = 15.3 \pm 1.3\text{mb}$ $I_0 \leq 0.16\text{b}$
^{99}Tc	$\sigma_0 = 20 \pm 2\text{b}$ $I_0 = 186 \pm 16\text{b}$ (ルーキャス'77)	$\sigma_0 = 22.9 \pm 1.3\text{b}$ $I_0 = 398 \pm 38\text{b}$
^{129}I	$\sigma_0 = 27 \pm 2\text{b}$ $I_0 = 36 \pm 4\text{b}$ (イーストウッド'58)	$\sigma_0 = 30.3 \pm 1.2\text{b}$ $I_0 = 33.8 \pm 1.4\text{b}$

また、以前の測定では、ターゲットの放射能が強いため、 ^{137}Cs からのガンマ線と ^{138}Cs からのガンマ線を同じ幾何条件で測定できなかった。このため、ガンマ線強度の絶対値測定が要求された。この方法では、計測システムの不感時間の補正等が必要である。我々の測定手法では、これらの問題を考慮する必要がない分、誤差の要素も減っている。

^{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、このデータは σ_0 の上限値しか与えていないと考ええると理解できる。 ^{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できなかった。今後、より精度の高い実験手法の開発が、0.16バーン以下という小さな I_0 を持つ核種に対して望まれる。

^{99}Tc の σ_0 は、以前の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。ただし、 I_0 の値は約2倍大きな結果である。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によるエネルギー微分断面積測定で得られた結果⁽¹⁰⁾に近い。以前の測定⁽⁹⁾は、中性子スペクトルの硬い場が用いられていたが、この場合②式のよく熱化された中性子場という仮定の有効性に問題が生じ、これが差異の一因として考えられる。

^{129}I の σ_0 と I_0 は誤差の範囲で以前の値⁽⁹⁾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。

5. おわりに

核分裂生成核種の消滅処理評価に必要な核データ整備の一環として、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 、 ^{99}Tc および ^{129}I の熱中性子吸収断面積および共鳴積分値が測定された。放射化法による実験を高精度で行うことにより、これまでの実験データの誤差を飛躍的に減少させることができた。また、 ^{137}Cs と ^{90}Sr の共鳴積分値は、この研究で初めて測定された。精度の高い核データは、消滅処理システムを研究する上で重要であり、今後とも必要となる核反応断面積の精密測定が盛んに行われることが望まれる。

6. 謝辞

本研究を推進するに当たり、日本原子力研究所の関根俊明氏をはじめとする研究グループ、名古屋大学工学部の研究グループ、および戸村教授をはじめとする立教大学原子力研究所の皆様に変にお世話になった。ここに深く感謝したい。

参考文献

- 1) C.H. Westcott, W.H. Walker et al., "Effective Cross Section and Cadmium Ratios for the neutron spectra of Thermal Reactors", Proc. 2nd Geneva Conf. 16, p70 (1958).
- 2) T. Sekine, Y. Hatsukawa et al., "Measurement of Thermal Neutron Cross Section and Resonance Integral of the Reaction $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ ", J. Nucl. Sci. Technol. 30, 11, p1099 (1993).
- 3) H. Harada, T. Sekine et al., "Measurement of the Thermal Neutron Cross Section of the $^{90}\text{Sr}(n, \gamma)^{91}\text{Sr}$ reaction", ibid., 31, 3, p173 (1994).
- 4) H. Harada, S. Nakamura et al., "Measurement of Thermal Neutron Cross Section and Resonance Integral of the Reaction $^{98}\text{Tc}(n, \gamma)^{99}\text{Tc}$ ", ibid., 32, 5, p395 (1995).
- 5) S. Nakamura, H. Harada et al., "Measurement of Thermal Neutron Capture Cross Section and Resonance Integral of the Reaction $^{129}\text{I}(n, \gamma)^{130}\text{I}$ ", to be published in J. Nucl. Sci. Technol.
- 6) D.C. Stupegia, "The Thermal Neutron Capture Cross Section of the Reaction $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ ", J. Nucl. Energy, A12, p16 (1960).
- 7) G. Zeisel, "Reaktionsquerschnitte an Sr^{90} für Reaktor-neutronen", Acta. Phys. Austr., 23, p5223 (1966).
- 8) M. Lucas, R. Hagemann et al., "Determinations Des Sections Des Capture Neutronique D'isotopes Intervenant Dans Le Phenomene D'oklo Par Irradiation Dans Le Reacteur Triton", IAEA-TC-119/14, p407 (1977).
- 9) J.C. Roy and D. Wuschke, "Neutron Capture Cross Section of I^{129} and I^{130} ", Canadian J. Chemistry, 36, p1424 (1958).
- 10) J.C. Chou and H. Werle, "(n, γ)-Cross-Section Measurements of ^{99}Tc , Eu, Sm, and Fe in the energy range 1eV to 50keV with a slowing-down time spectrometer", J. Nucl. Energy, 27, p811 (1973).