



即発ガンマ線分光法を用いた 核データ測定技術開発

中村 詔司 古高 和禎 原田 秀郎

東海事業所 環境保全・研究開発センター 先進リサイクル研究開発部

Development of the Measurement Technique for Nuclear Data with Prompt Gamma Ray Spectroscopy

Shoji NAKAMURA Kazuyoshi FURUTAKA Hideo HARADA

Advanced Fuel Recycle Technology Division, Waste Management and Fuel Cycle Research Center, Tokai Works

核変換研究の基盤データとして重要な放射性廃棄物核種の中性子捕獲断面積を測定するために、即発ガンマ線分光法を開発した。

中性子照射をして生成した核種が安定である場合、従来の放射化法では、その中性子捕獲断面積を求めることができない。そこで、中性子断面積研究に使用できる新しい手法を開発した。本手法により、中性子照射の際に放出される即発ガンマ線の情報からレベルスキームを組立て、そして即発ガンマ線の放出率から断面積を求める。

本手法のために測定システムの開発を行い、その有効性を示すことができた。また、レベルスキーム構築のために必要となるカスケード線の情報を取得することが可能となった。更に、 ^{106}Pd の測定において、部分レベルスキームを構築し、1906 keVと2400 keVの2つの新しいレベルを見出すことに成功した。

本技術開発により、従来の放射化法では測定不可能であった核種の中性子捕獲断面積を測定することが可能となる。

To obtain the thermal neutron capture cross sections of radioactive fission product nuclides as the basic data on transmutation study, a measurement technique with prompt gamma ray spectroscopy was developed.

When daughter nuclides after neutron irradiations are stable, measuring the neutron capture cross sections is impossible. Therefore, a new technique was developed to investigate these. With this, the level schemes from the information of the prompt rays emitted during neutron irradiation are constructed, and the cross section is deduced with the emission probabilities of prompt rays. The measurement system for this technique was developed, and was effective. The system enables obtaining information on the cascade rays necessary for constructing the level scheme. By measuring ^{106}Pd , the partial level scheme was constructed, and two new levels at 1906 keV and 2400 keV were identified.

By using this technique, the neutron capture cross sections of nuclides that can't be measured by an activation method can be measured.

キーワード

即発ガンマ線分光法, ガンマ ガンマ同時計測, ガンマ線放出率, レベルスキーム, 長寿命FP核種, ジルコニウム, パラジウム, 核変換研究, 中性子捕獲断面積, 核データ

Prompt Ray Spectroscopy, Coincidence Measurement, Ray Emission Probability, Level Scheme, Long Lived Fission Product, Zirconium, Paradium, Nuclear Transmutation Study, Neutron Capture Cross Section, Nuclear Data



中村 詔司

システム設計評価グループ
核変換研究チーム所属
副主任研究員
核変換技術開発のための基礎
基盤データに関する研究
に従事
X線取扱主任者



古高 和禎

システム設計評価グループ
核変換研究チーム所属
副主任研究員
核変換技術開発のための基礎
基盤データ及びその測定
技術の高度化に関する研究
に従事
理学博士



原田 秀郎

システム設計評価グループ
核変換研究チーム所属
チームリーダ, 主任研究員
核変換技術開発のための基礎
基盤データに関する研究
に従事
理学博士, 第1種放射線取扱
主任者

1. はじめに

原子力発電で生じる使用済み核燃料から発生する放射性廃棄物核種を原子炉や加速器等を利用して核反応を起こさせることにより、安定核種あるいは短寿命の核種に変換させる技術を核変換と呼ぶ。処分すべき核廃棄物の量を減らし、環境への負荷を低減することを目的として核変換研究が進められている。核変換対象核種としては、核分裂反応で生成する¹²⁹I, ⁹⁹Tc, ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr等の核種と核燃料の中性子吸収反応で生成する²³⁷Np, ²⁴¹Am等の超ウラン元素がある。対象核種が、どのくらいの割合で核変換されるかを知るためには核反応断面積(熱中性子吸収断面積(σ_0)及び共鳴積分(I_0)等)の精度の良いデータが必要である。しかしながら、対象核種については、これらのデータが全く存在しないか、あっても測定精度が低いという問題がある。当該グループでは、核変換技術開発で必要となる基礎データを整備する研究の一環として、長寿命放射性核種の σ_0 及び I_0 の測定実験を実施してきている¹⁾²⁾。今までに実施して得られた成果を、表1に過去のデータと共にまとめた。表1に示したこれらの核種は、放射化法により測定している。放射化法の原理を図1に¹³⁵Csを例に取り上げて説明する。¹³⁵Csに中性子を照射して放射化させると、生成された¹³⁶Cs核が短い半減期(13日)で崩壊し、 γ 線を放出して安定な¹³⁶Ba核になる。¹³⁶Cs核1個が崩壊した時に、放出される γ 線の確率(放出率)は分かっているので、測定される γ 線の強度から生成された¹³⁶Csの量を求めることができる。更に、照射に用いた¹³⁵Csの量はあらかじめ分かっているので、照射した中性子の量をモニタすることにより、¹³⁵Csの反応断面積を求めることができるのである。

表1 放射性核分裂生成核種の熱中性子吸収断面積(σ_0^{*1})と共鳴積分(I_0^{*2})

核種	半減期 ^{*3}	過去のデータ (報告者及び報告年度)	サイクル機構 のデータ
¹³⁷ Cs	30年	$\sigma_{eff} = 0.11 \pm 0.03b^{*4}$ (Stupegia 1960)	$\sigma_0 = 0.25 \pm 0.02b$ $I_0 = 0.36 \pm 0.07b$ (1990, 1993)
⁹⁰ Sr	29年	$\sigma_{eff} = 0.8 \pm 0.5b$ (Zeisei 1966)	$\sigma_0 = 15.3 \pm 1.3mb$ $I_0 = 0.16b$ (1994) $\sigma_0 = 10.1 \pm 1.3mb$ $I_0 = 104 \pm 16mb$ (2001)
⁹⁹ Tc	21万年	$\sigma_0 = 20 \pm 2b$ $I_0 = 186 \pm 16b$ (Lucas 1977)	$\sigma_0 = 22.9 \pm 1.3b$ $I_0 = 398 \pm 38b$ (1995)
¹²⁹ I	1600万年	$\sigma_0 = 27 \pm 2b$ $I_0 = 36 \pm 4b$ (Eastwood 1958)	$\sigma_0 = 30.3 \pm 1.2b$ $I_0 = 33.8 \pm 1.4b$ (1996)
¹²⁷ I	(安定核)	$\sigma_0 = 4.7 \pm 0.2b$ $I_0 = 109 \pm 5b$ (Friedmann 1983)	$\sigma_0 = 6.40 \pm 0.29b$ $I_0 = 162 \pm 8b$ (1999)
¹³⁵ Cs	300万年	$\sigma_0 = 8.7 \pm 0.5b$ $I_0 = 61.7 \pm 2.3b$ (Baerg 1958)	$\sigma_0 = 8.3 \pm 0.3b$ $I_0 = 38.1 \pm 2.6b$ (1997)
¹³⁴ Cs	2年	$\sigma_{eff} = 134 \pm 12b$ (Bayly 1958)	$\sigma_{eff} = 141 \pm 9b$ (1999)
¹³³ Cs	(安定核)	$\sigma_0 = 30.4 \pm 0.8b$ $I_0 = 461 \pm 25b$ (Baerg 1960)	$\sigma_0 = 29.0 \pm 1.0b$ $I_0 = 298 \pm 16b$ (1999)
^{166m} Ho	1200年	$\sigma_0 = 9140 \pm 650b$ $I_0 = 1140 \pm 90b$ (Masyanov 1993)	$\sigma_{eff} = 3 \pm 1kb$ (2000)

- * 1 熱中性子吸収断面積。速さ2200m/秒の中性子が原子核に吸収されて、続いて γ 線が放出される核反応のおこる確率を表す。
- * 2 熱量域から炉内での最高中性子エネルギーの範囲で、断面積を積分した量を表す。
- * 3 半減期は、放射性核種の放射能が2分の1に減衰するのに要する時間である。
- * 4 1bは、断面積の単位で $1 \times 10^{-24}cm^2$ である。

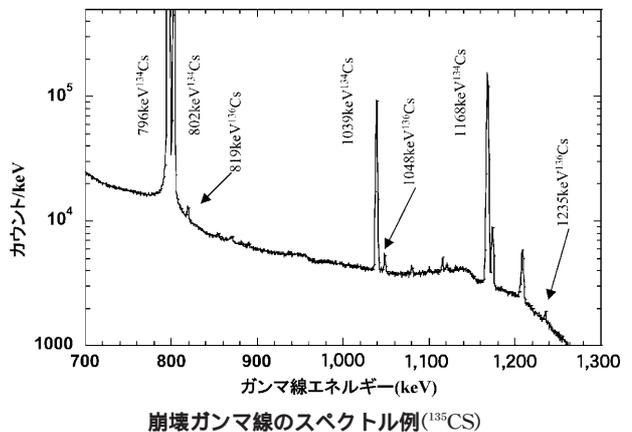
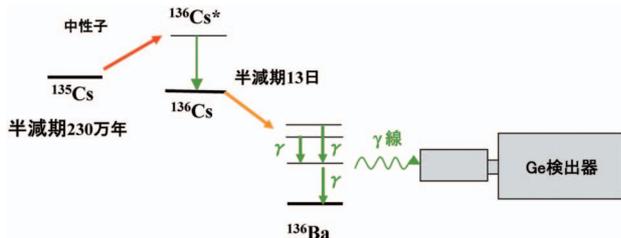


図1 放射化法による σ_0, I_0 の測定

しかしながら、放射化法を用いた断面積測定は、中性子吸収の後に生成される核種が崩壊し、放射線を出す場合には有効であるが、中性子照射して生成される核種が安定核種になる場合には断面積を求めることができないという問題がある。

放射性廃棄物核種の中の ^{107}Pd (半減期: 6.5×10^6 年), ^{93}Zr (1.53×10^6 年), ^{79}Se (6.5×10^4 年)などは、長寿命という点で重要な核種であるが、中性子吸収の後に生成される核種が安定であるために放射化法でそれらの断面積を測定することができない。そこで、放射化法では測定できない核種の断面積を測定することのできる方法の1つとして、即発ガンマ線核分光法の適用を考案した。

本研究では、即発ガンマ線核分光法を用いた核データ測定技術に関するR & Dの進捗状況を紹介する。

2. 即発ガンマ線核分光法

本章では、即発ガンマ線核分光法の原理と本研究のために構築した測定システムについて説明する。

2.1 測定原理

図2に断面積測定原理を示す。

原子核 ${}_Z^AX$ (X : 元素, Z : 原子番号, A : 質量数)が中性子による核反応で原子核が励起状態になった時、瞬時(10^{-14} 秒)に γ 線(即発 γ 線)を放出して基底状態 ${}_Z^{A+1}X$ になる。この即発 γ 線を測定することにより次のようにして断面積を測定することができる。図2に示した様に、中性子導管実験施設を用いて中性子を取り出し、測定するターゲット試料に照射する。2台のゲルマニウム(Ge)検出器(ゲルマニウム結晶を用いた半導体 γ 線検出器であり、エネルギー分解能が良いという特徴がある)を試料を両面より見込むように設置し、試料から放出される即発 γ 線の同時計測を行う。2台の検出器に同時に γ 線が測定される事象を測定することにより、即発 γ 線の相関関係を求めることができる。得られた相関関係からどの γ 線がどのようなレベルから放出されるかのレベルスキーム情報を得る。

レベルスキームと即発 γ 線の強度から、即発 γ 線が1核反応あたりに放出される割合(放出率 I)の情報を引き出す。また、高純度Al箔(99.0%)をモニタとして用い、照射場の中性子束を求める。更に、液体窒素ターゲット等を用いて $^{14}\text{N}(n, \gamma)$ 反

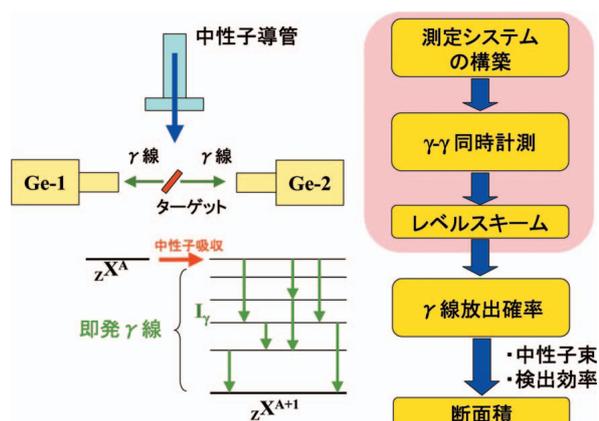


図2 即発ガンマ線核分光法による断面積測定原理

応による γ 線を測定し、検出器効率を求めておく。反応断面積(σ)は、ターゲット試料の量(N_0)、即発 γ 線放出率(I)、中性子束(ϕ)、検出効率(ϵ)、測定時間(T)、測定された γ 線収量(Y)の情報から

$$Y = N_0 \cdot I \cdot T \cdot \phi \cdot \epsilon$$

により求めることができる。

2.2 同時計測システムの構築

今回断面積測定の目的のために開発した同時計測システムについて説明する。

図3に計測システムの回路図を示す。図中のGe 1, 2と2台の大型(相対効率90%)の高純度Ge検出器を用いている。図の赤ブロックの系統は、 γ 線のエネルギー情報を収集する回路系であり、黄ブロックの系統は、タイミング情報を得るための回路系である。2台の検出器からの信号を同時計数ユニットに入れて、2台の検出器が同時に γ 線を計数したという同時事象のタイミングパルスを作る。また、一方の信号を遅延させて、同時事象との時間差を時間波高変換器(TAC)にて電圧パルスに変換する。2系統のエネルギー情報と1系統の時間情報、合わせて3つの情報をマルチパラメータインターフェースによって統合し、そのデータを逐次、大容量メモリモジュールに保存する。3台あるメモリの1つが一杯になると、次のメモリにデータを蓄積していき、その間、先一杯になったメモリは、コンピュータのメモリにデータを転送する。3台のメモリを図3に示したように、サイクリックに使用していくことで、データ収集に係るDead Timeを減らすようにしている。

本システムのポイントを以下にまとめる。

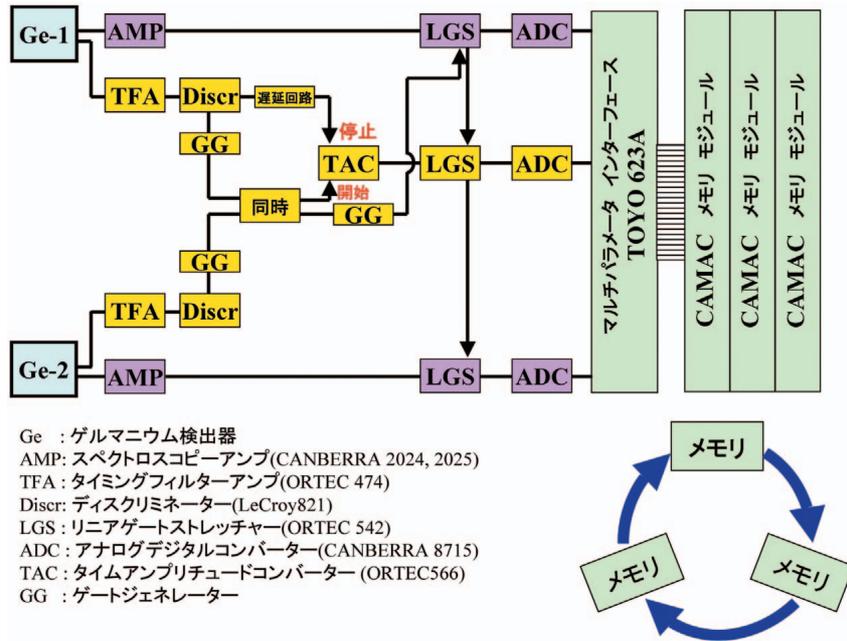


図3 同時計測システムの回路図

- ① 大型の高純度Ge検出器(相対効率90%)を使用している。
- ② 高速の回路を使用している。計数率10kcpsで、Dead Timeは約20%程度である。
- ③ エネルギー、タイミング情報を同時に収集することができる。
- ④ データ収集のDead Timeを減らすために、3台の大容量メモリを用いている。
- ⑤ タイミング情報を用いて、オフライン解析で真の同時事象を引き出すことができる。

3. 照射実験

3.1 実験配置

今回開発した測定システムの有効性を示すために、京都大学原子炉実験所B-4中性子導管実験施設において測定実験を実施した。

実験セットアップの様子を図4に示す。中性子導管の前に2台のGe検出器を、試料を両面より見込むように配置している。空気によって散乱された中性子が、検出器に照射するのを防ぐために、厚さ5mmの⁶LiF板を導管前及び、2台の検出器の前面に置いた。これは、⁶Liの中性子吸収断面積が900(b)と大きいことを利用して、中性子遮蔽体として用いている。また、散乱された中性子による線バックグラウンドを低減するために、検出器全体を鉛ブロックで遮蔽した。

3.2 効率測定試験

即発線のエネルギー領域は、数百keV～10MeVに及ぶ。しかし、このような高エネルギー領域の検出器効率を用意するにあたり、市販されている標準線源では、せいぜい2MeVまでしかカバーすることができない。そこで、窒素の¹⁴N(n,)反応によって放出される線は、表2に示すように326keV～10.8MeVのエネルギー領域に及び、かつそれらの線放出率も良く調べられているので、これを利用して検出器効率を求めることとした。窒素ターゲットとして、液体窒素を用いることを試みた。窒素ターゲット及び照射に

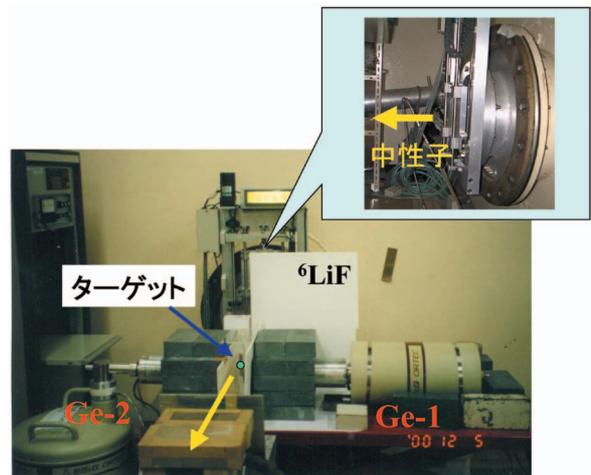
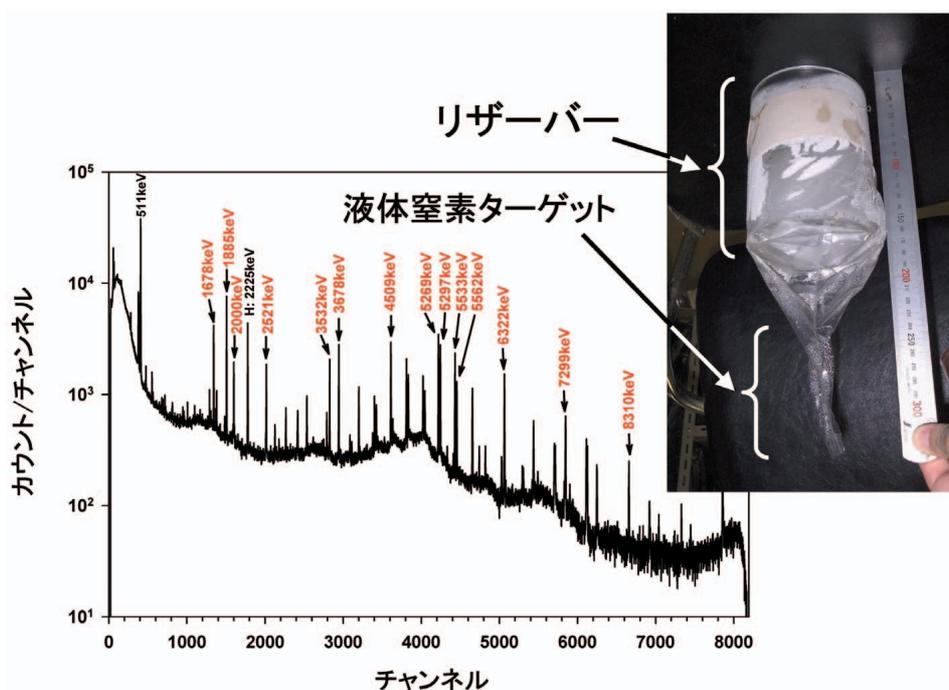


図4 京都大学原子炉実験所B-4中性子導管施設における実験セットアップ

表2 $^{14}\text{N}(n, \gamma)$ 反応からの 線の絶対放出率

E(keV)	I / I (max)	I (%)	E(keV)	I / I (max)	I (%)	E(keV)	I / I (max)	I (%)
326.00	9.96	2.99	2520.64	22.81	6.85	8568.98	0.54	0.16
336.90	3.20	0.96	2831.09	7.23	2.17	9048.73	0.81	0.24
369.10	3.83	1.15	3013.78	2.89	0.87	9149.39	5.52	1.66
473.30	7.43	2.23	3299.70	0.67	0.20	9754.15	0.67	0.20
479.70	6.90	2.07	3532.09	32.93	9.89	9920.53	0.47	0.14
596.80	14.63	4.39	3677.75	52.74	15.84	10829.19	47.49	14.26
695.60	9.12	2.74	3855.11	2.76	0.83			
865.80	7.67	2.30	3884.33	2.83	0.85			
1678.29	24.76	7.44	4508.85	53.08	15.94			
1681.44	5.45	1.64	5269.22	100.00	30.03			
1781.85	2.35	0.71	5297.96	70.70	21.23			
1853.57	2.25	0.68	5533.37	62.16	18.67			
1884.81	72.72	21.84	5562.06	33.64	10.10			
1988.91	3.46	1.04	5619.10	3.63	1.09			
1999.67	13.99	4.20	6322.39	59.80	17.96			
2001.85	4.04	1.21	6419.40	3.70	1.11			
2062.30	12.48	3.75	6505.40	2.86	0.86			
2157.40	12.18	3.66	6759.40	3.06	0.92			
2174.70	8.85	2.66	7299.08	30.27	9.09			
2356.70	14.83	4.45	7413.60	4.00	1.20			
2520.64	22.81	6.85	8310.37	12.82	3.85			

図5 液体窒素ターゲット $^{14}\text{N}(n, \gamma)$ 反応による 線スペクトル

より得られた 線スペクトルを図5に示す。図5から $^{14}\text{N}(n, \gamma)$ 反応による8 MeVまでの 線が 良い信号対雑音比で測定することができた。 線ピークの収量から、相対検出器効率を求めた。結果を図6に示す。この相対検出効率曲線を、放射能が良く分かっている 線線源、例えば ^{60}Co を用いて校正することにより、絶対検出器効率を求むることができる。

3.3 照射試験 (^{nat}Zr)

将来的には、即発 線核分光法によって ^{93}Zr の断面積を求めることが目標である。そのために、まず ^{nat}Zr 試料を用いて、本計測システムの有効性を確かめるとともに、 ^{93}Zr をターゲットとして測定した時に不純物として含まれているZr同位体のうちのどの同位体が影響するかを調べることにした³⁾。

重量5 gの高純度(99.99%)の ^{nat}Zr 箔を、中性

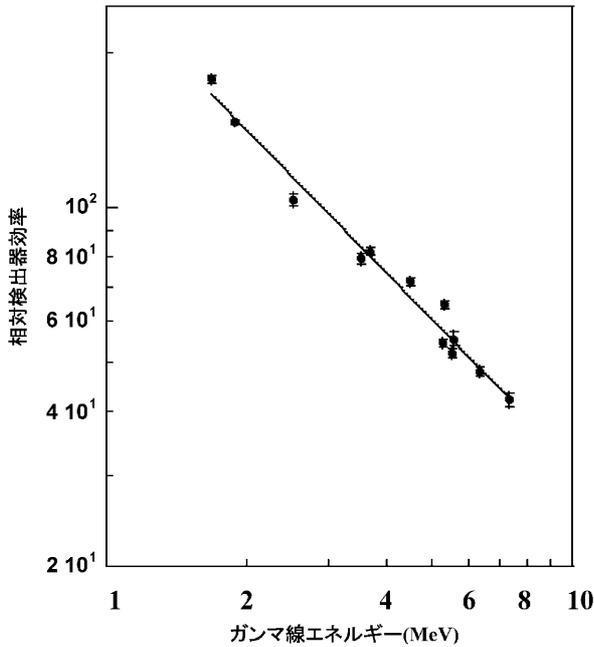


図6 液体窒素ターゲットを用いて得られた相対検出効率

子ビーム孔の大きさに合わせて、20mm × 80mm × 0.5mm厚のものを用いた。試料は、図4に示すターゲット位置に中性子ビームに対して45°の角度を持たせて配置した。照射は、24時間行った。

3.4 照射試験 (^{nat}Pd)

¹⁰⁷Pdターゲットの測定を行う場合、ターゲットに不純物として含まれるPd同位体の影響を調べておくことは重要である。そこで、高純度(99.99%)の^{nat}Pd箔を用いて、Pd同位体のどの同位体の影響を及ぼすかを調べるとともに、レベルスキームの構築を行うために照射試験を実施した¹⁰⁾。

^{nat}Pd箔の重量43.2913mg、寸法6.0mm × 0.125mm厚のものを、図4のターゲット位置に置いて照射した。

4. 試験結果

4.1 ^{nat}Zr

測定中の計数率は、Ge 1で12kcps、同時計数率は、900cps程度であった。測定で得られた線スペクトルの例を図7に示す。図7から⁹¹Zr (n,)反応による⁹²Zrからの即発線が主に現れており、良い信号対雑音比で測定することができた。このことから、Zr同位体の中で⁹¹Zrの反応断面積が大きいことが分かった。

タイミング情報として、TAC (時間波高変換)

スペクトルを図8に示す。TACスペクトルから時間分解能(ピークの半値幅)は約500nsであった。

オフライン解析により、TACスペクトルのピーク領域と片方のGeでの任意の線ピーク領域とでゲートをかけることにより、そのゲートをかいた線と関連のある線のスペクトルを得ることができる。図9に⁹²Zrからの934keV線にゲートを掛ける前と掛けた後のスペクトルを示す。図9に示すように、934keVと関連のある線ピークが

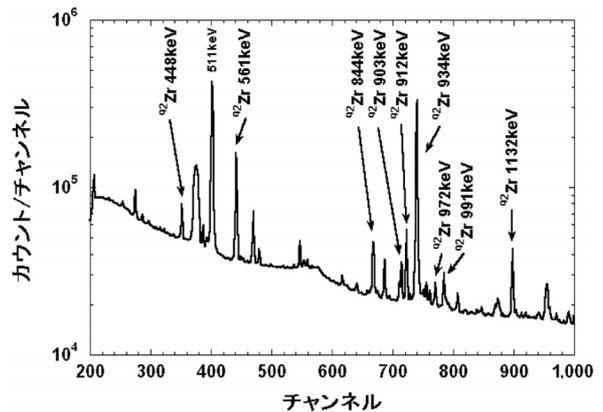


図7 (n,)反応による^{nat}Zrからの線スペクトル

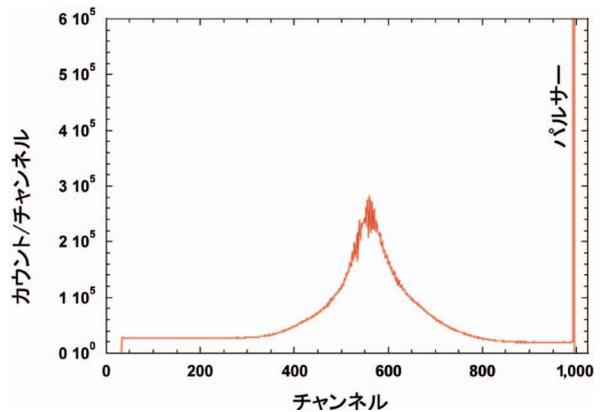


図8 TAC (時間波高交換) スペクトル

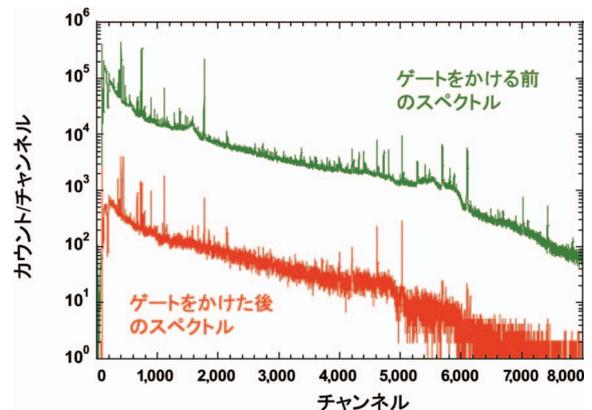


図9 ゲートをかける前と後のスペクトル

現れている。このようなオフライン解析を、他の線ピークに対して施すことにより、カスケード線のどれとどれが関連するかを知ることができる。測定された⁹²Zrの線を用いて得られた部分的なレベルスキームを図10に示す。

^{nat}Zrを用いて、本測定システムがレベルスキーム構築のために必要となるカスケード線の相関情報を取得することが可能となった。

4.2 ^{nat}Pd

図11に^{nat}Pdの照射で得られた線スペクトルを示す。¹⁰⁶Pd(n,)反応による¹⁰⁶Pdからの線が観測された。

今回の測定では42個の線が同定された。これらの線について相関を調べることによりレベルスキームを組み立てた。今回求められた¹⁰⁶Pdの部分的なレベルスキームを図12に示す。予備的な解析の結果、1906keVと2400keVの2つの新しいレベルが見出された。今後、詳細な解析により新しいレベルを確定していく予定である。

5. おわりに

放射化法で測定できない核種の断面積を測定することができる方法の1つとして、即発ガンマ線

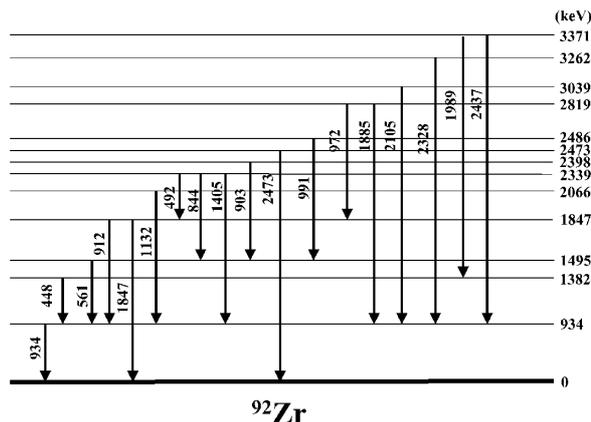


図10 ⁹²Zrの部分的なレベルスキーム

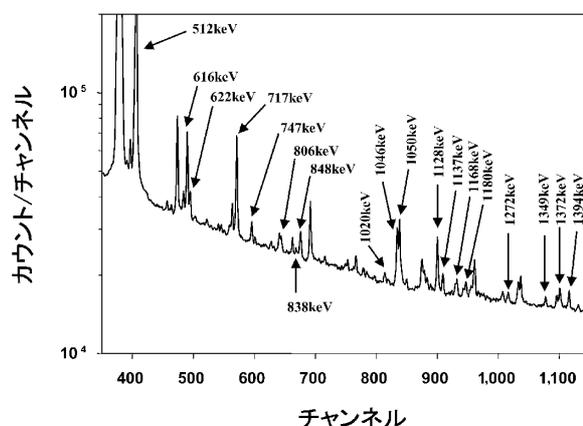


図11 (n,)反応による^{nat}Pdからの線スペクトル

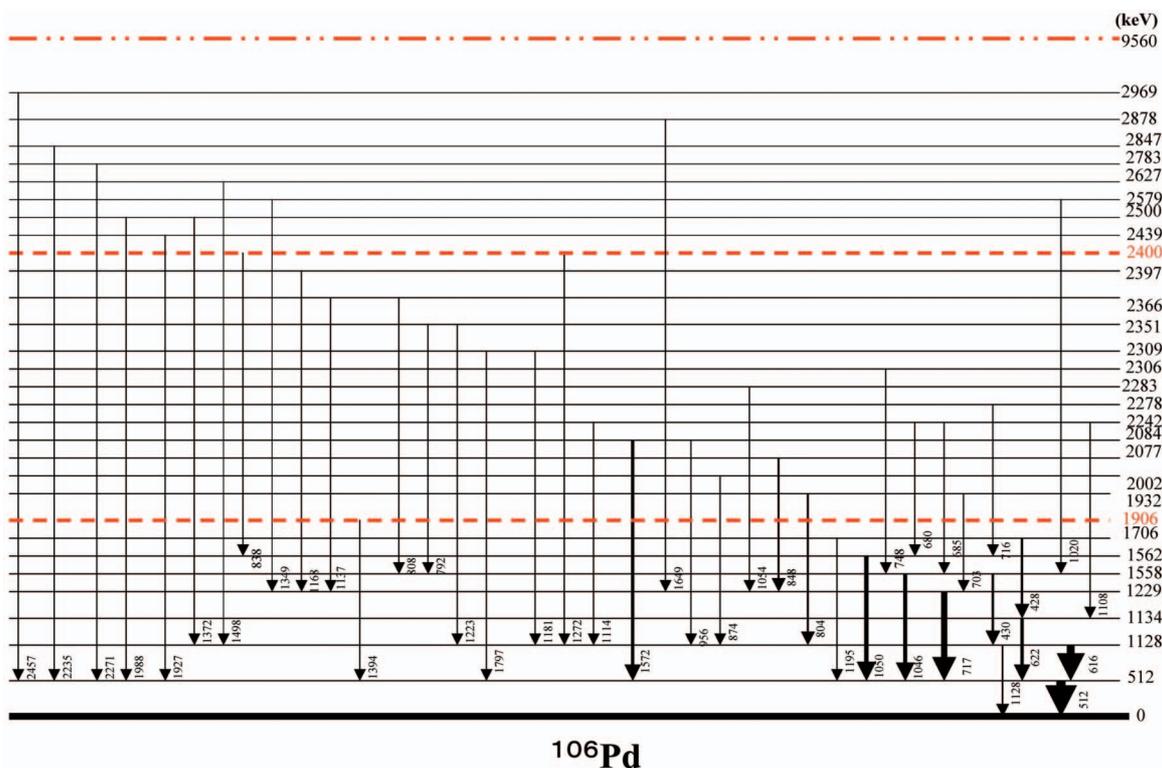


図12 ¹⁰⁶Pdの部分的なレベルスキーム

核分光法の適用を考案し、その測定技術に関する R & D の状況を紹介した。

本研究において開発された測定システムを用いて、レベルスキーム構築のために必要となるカスケード線の相関情報を取得することが可能となった。また、 ^{nat}Pd の測定において、予備的な解析の段階であるが、新たに2つのレベルを見出すことができた。今後、より詳細な解析を進めていき、新しいレベルを確定するとともに $^{105}\text{Pd}(n, \gamma)^{106}\text{Pd}$ 反応断面積を求めていく予定である。将来的には、本研究で得られた知見、解析手法、測定技術を ^{93}Zr 、 ^{107}Pd の本実験に反映させていく。

本測定では、検出器効率を求めめるための窒素ターゲットとして液体窒素を用いたが、液体であるために取扱の困難さがあった。今後は、窒素を組成にもつ固体試料をターゲットに用いることを予定している。候補としては、メラミン($\text{C}_3\text{H}_6\text{N}_6$) や5酸化2窒素(N_2O_5) が考えられる。また、図5から分かるように、液体窒素ターゲットを薄いビニール袋に入れたために袋に含まれる水素(H)の中性子反応による2.225 MeV 線ピークが強く現れてしまっている。この線ピークは、低エネルギー領域にコンプトンバックグラウンドを生じさせてしまうために好ましくない。Hの影響を排除するために、メラミンの組成のHを重水素(D)で置換した、重水素置換メラミン($\text{C}_3\text{D}_6\text{N}_6$)をターゲットとして用いることも今後の課題として取り組んでいく予定である。

謝辞

本研究は、京都大学原子炉実験所共同利用研究として行ったものである。

実験を行うにあたり、実験内容や中性子照射についての有益な助言を頂いた京都大学原子炉実験

所 山名助教授、藤井助手をはじめとする原子炉実験所のスタッフに深く感謝の意を表したい。

参考文献

- 1) T. Sekine, Y. Hastukawa 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., Vol. 30, No. 11, p. 1099-1106 (1993).
- 2) H. Harada, T. Sekine et al. "Measurement of the Thermal Neutron Capture Cross Section of the $^{90}\text{Sr}(n, \gamma)^{91}\text{Sr}$ Reaction", J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 31, No. 3, p. 173-179 (1994).
- 3) S. Nakamura, K. Furutaka et al. "Measurement of the Thermal Neutron Capture Cross Section and the Resonance Integral of the $^{90}\text{Sr}(n, \gamma)^{91}\text{Sr}$ Reaction", J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 38, No. 12, p. 1029-1034 (2001).
- 4) H. Harada, S. Nakamura et al. "Measurement of Thermal Neutron Cross Section and Resonance Integral of the Reaction $^{99}\text{Tc}(n, \gamma)^{100}\text{Tc}$ ", J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 32, No. 5, p. 395-403 (1995).
- 5) S. Nakamura, H. Harada et al. "Measurement of Thermal Neutron Capture Cross Section and Resonance Integral of the $^{129}\text{I}(n, \gamma)^{130}\text{I}$ Reaction", J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 33, No. 4, p. 283-289 (1996).
- 6) T. Katoh, S. Nakamura et al. "Measurement of Thermal Neutron Cross Section and Resonance Integral of the Reaction $^{135}\text{Cs}(n, \gamma)^{136}\text{Cs}$ ", J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 34, No. 5, p. 431-438 (1997).
- 7) T. Katoh, S. Nakamura et al. "Measurement of the Effective Neutron Capture Cross Section of Cesium 134 by Triple Neutron Capture Reaction Method", J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 36, No. 8, p. 635-640 (1999).
- 8) H. Harada, H. Wada et al. "Measurement of Effective Neutron Capture Cross Section of ^{166m}Ho using Two Step Irradiation Technique", J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 37, No. 9, p. 821-823 (2000).
- 9) 中村詔司他: "(n, γ)反応による ^{nat}Zr の同時計測", 日本原子力学会2002年春の年会, E35
- 10) M. H. Miah et al. "The Level Scheme of ^{106}Pd with (n, γ) Reaction", 日本原子力学会2002年春の年会, E36