T2R2 東京科学大学 リサーチリポジトリ
Science Tokyo Research Repository

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	Pd同位体の中性子捕獲反応に関する系統的研究
Title(English)	
著者(和文)	寺田和司
Author(English)	Kazushi Terada
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第9472号, 授与年月日:2014年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:井頭　政之,小栗　慶之,千葉　敏,小原　徹,赤塚　洋
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第9472号, Conferred date:2014/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	要約
Type(English)	Outline

Powered by T2R2 (Science Tokyo Research Repository)

論文の要約

第 1 章「序論」では，本論文での研究背景について述べている．現在，日本のエネルギー政策において原子力の位置づけが検討されており，そのなかで，長寿命核廃棄物の処理・処分の問題が喫緊の課題となっている．再処理が行われる場合は，原子炉から取り出された現在の使用済み核燃料の再処理によってガラス固化体が約 2 万 5 千本発生する．ガラス固化体は 10^{16} Bq 以上の極めて強い放射能を持ち，かつ，半減期が 1 万年以上の長寿命核分裂生成物(LLFP: Long-Lived Fission Product)やマイナーアクチノイド(MA: Minor Actinide)を含む．そのため，数万年のタイムスケールにわたって人間の生活環境から隔離する必要があり，ガラス固化体の地層処分が検討されているが，地層処分に伴う環境負荷が懸念されている．

一方，使用済み核燃料から LLFP や MA を分離・抽出し，核反応を用いて短半減期化または安定化することにより，地層処分にともなう環境負荷の大幅な軽減が期待できる．特に，中性子捕獲反応を用いた核変換処理が実現可能であると有望視され，我が国でも研究されている．今後，核変換処理システムの研究開発に取り組むにあたって，その変換処理システムの性能評価には LLFP および MA の高精度な中性子捕獲反応断面積データが必要不可欠である．しかし，これらの中性子捕獲断面積データは質的・量的に不十分であり，断面積データの高精度化が極めて重要である．

本研究で取り上げた ^{107}Pd は，半減期 650 万年の核変換処理対象 LLFP の 1 つである．しかし，^{107}Pd の測定試料を得るために使用済み核燃料の化学処理を行なう必要があるが，^{107}Pd を同位体濃縮した測定用試料が用意できないため，その中性子捕獲断面積測定データは非常に乏しいのが現状である．そこで，本研究では，長寿命核分裂生成物である ^{107}Pd および核分裂炉で生成される Pd 安定同位体(^{104,105,106,108,110}Pd)について，核変換処理の研究開発において重要な中性子捕獲断面積を高精度で与えることを目的とした．

第 2 章「Pd 安定同位体の中性子捕獲実験」では，東京工業大学 原子炉工学研究所の広領域線質放射線照射実験室で，入射中性子エネルギー15-100 keV の領域において実施した安定同位体 ^{104,105,106,108,110}Pd の中性子捕獲実験について述べている．ペレトロン加速器で得たパルス幅 1.5 nsec，繰り返し周波数 4 MHz の陽子ビームを，銅板上に金属 Li を蒸着させた Li ターゲットに照射し，^{7}Li(p,n)^{7}Be 反応によりパルス中性子を得た．中性子は陽子ビーム軸に対して 0° 方向に設置した測定用試料に入射する．

試料に入射する中性子のエネルギー分布は，^{6}Li ガラス検出器を用いた飛行時間法(TOF)によって測定した．試料から発生する捕獲ガンマ線は，125° 方向に設置したコンプトン抑止型 NaI(Tl)検出器で計測した．NaI(Tl)検出器から得た信号は，TOF スペクトルおよび捕獲ガンマ線波高スペクトルとして 1 事象毎に記録した．測定に用いた各 Pd 試料の重量は 500~1000 mg であり，化学純度 99.97%，Pd 同位体濃縮度 94%以上である．

測定データを解析して得たPdおよび標準^{197}Auの正味の捕獲ガンマ線波高スペクトルに対して波高重み法を適用し，Pd試料と^{197}Au試料の捕獲イールドの比を得た．そして，中性子エネルギー分布とJENDL-4.0の^{197}Auの標準捕獲断面積を用いて，Pd安定同位体のkeV中性子捕獲断面積を得た．また，捕獲ガンマ線波高スペクトルのアンフォールディングによって，Pd安定同位体の捕獲ガンマ線スペクトルを得た．

実験で得られた^{104,105,106,108,110}PdのkeV中性子捕獲断面積について，過去の測定値およびJENDL-4.0とENDF/B-VII.1評価済み核データと比較すると，^{104,105,106,108,110}Pdの捕獲断面積は，過去の測定値および評価値との間に5%から60%の差異が存在することが分かった．また，測定で得られた捕獲ガンマ線スペクトルから，0.6 MeV以上のガンマ線のマルチプリシティを導出した．

第3章「^{107}Pdの中性子捕獲実験」では，大強度陽子加器施設（J-PARC: Japan Proton Accelerator Research Complex）の物質・生命科学実験施設（MLF: Materials and Life Science Experimental Facility）に設けられたビームライン04“中性子核反応測定装置(ANNRI: Accurate Neutron-Nucleus Reaction Measurement Instrument)”を用いて行った^{107}Pdの中性子捕獲断面積の測定について述べている．

J-PARCのMLFでは核破砕中性子源を用いている．繰り返し周波数25 Hzのパルス化陽子ビームがMLFの水銀ターゲットに入射し，水銀ターゲットの核破砕反応により中性子が発生する．核破砕中性子は液体水素モデレータで減速され，ビームライン04のANNRIに導入される．

核破砕反応によって得られた大強度中性子ビームは，中性子源から27.9 mの距離に設置された測定用試料に入射する．測定試料の位置における中性子ビームの直径は13 mmである．試料から発生した捕獲ガンマ線は，中性子ビームに対して90°の角度に設置したNaI(Tl)検出器で測定した．NaI検出器のアノード信号は高速タイムデジタイザにより中性子飛行時間(TOF)データとパルス幅(PW)データとして1イベント毎に記録した．

^{107}Pd試料は金属粉末をペレット状に圧縮成形し，ペレットの重量は137 mg，直径4.52 mm，厚さ0.92 mmであり，アルミケースに密封されている．^{107}Pd試料の同位体組成は^{107}Pd: 15.3%であり，^{107}Pd正味の重量は21 mgである．バックグラウンド評価のために，同位体濃縮された^{105,106,108}Pdの各試料の測定，^{107}Pd試料のアルミケースだけの測定，試料なしの測定，^{208}Pb散乱体試料の測定を行なった．また，中性子スペクトルを得るためにホウ素試料を用いた^{10}B(n,αγ)^{7}Li反応からの478 keVガンマ線を測定した．入射中性子数の規格化のため，^{197}Au試料の測定を実施した．

パルス幅のデータは，実験的に得たパルス幅－エネルギー校正曲線を用いてパルス波高へ変換した．得られた波高スペクトルに波高重み法を適応し，重み付けした波高スペクトルの和を乗じた重み付きTOFスペクトルを導出した．各試料等の重み付きTOFスペクトルから，^{107}Pdの捕獲断面積を導出した．その結果，熱中性子から400 keVにわたる幅広い中性子エネルギー領域において^{107}Pdの捕獲断面積を導出した．得られた^{107}Pdの断面積

は，熱領域および keV 領域において過去の測定値との間に 30%程度の差異が存在することが分かった．

第 4 章「理論計算」では，核反応理論計算コード CCONE を用いた測定結果の理論解析について述べている．ここでは，広い中性子エネルギー領域で捕獲断面積を計算するため，Pd 安定同位体および長寿命核分裂生成物である ^{107}Pd について系統的な理論解析を行なった．理論計算には，核反応理論計算コードを用い，Pd 安定同位体(^{104,105,106,108,110}Pd)の中性子断面積計算および捕獲ガンマ線スペクトルの計算を行った．理論計算の入力パラメータを調整することによって，^{104,105,106,108}Pd の 15-100 keV 実験で得られた断面積を良く再現できた．また，理論計算で得られた keV 中性子捕獲ガンマ線スペクトルは，本研究での測定値をよく再現することができた．そして，^{107}Pd の中性子捕獲断面積を Pd 安定同位体の理論計算からから得られた入力パラメータを基に計算した．得られた ^{107}Pd 捕獲断面積は，過去の測定値や JENDL-4.0 および ENDF/B-VII.1 と比較して，10~400 keV の領域では約 5~25%の差異が見られ，Pd 安定同位体の入力パラメータを参考とした ^{107}Pd の計算入力パラメータの精度良い決定は困難であることが分かった．

第 5 章「結論」では本論文で得られた結果を総括し、結論としている．

本論文では，重要な LLFP である ^{107}Pd および核分裂炉内で生成される Pd 安定同位体について中性子捕獲断面積と捕獲ガンマ線スペクトルを精度よく測定した．また，信頼性の高い理論計算によって Pd 安定同位体の keV 中性子捕獲断面積を求めた．これによって，核変換研究に現在用いられている Pd 同位体の評価済み核データの問題点を明らかにし，核データライブラリの高精度化に資するデータを提供することができた．