

マスペクトロメトリーによる鉛 204 の中性子捕獲断面積測定

Neutron capture cross-section measurement of lead-204 by mass spectrometry

*中村詔司¹, 木村 敦¹, 遠藤駿典¹, 芝原雄司², 静間俊行³

¹原子力機構, ²京大複合研, ³量研

加速器駆動システムにおける未臨界炉には鉛冷却高速炉が考えられており、その設計には Pb 同位体の中性子捕獲断面積データが必要である。²⁰⁴Pb は、天然存在比は小さいが中性子捕獲反応により長寿命放射性核種 ²⁰⁵Pb を生成するため、その重要性は高いと考えられる。しかし、通常の中性子放射化法では、生成する ²⁰⁵Pb からの放射線を測定することが困難である。そこで、マスペクトロメトリーを適用した断面積測定を行ったので報告する。

キーワード: Pb-204, Pb-205, マスペクトロメトリー, 放射化法, JRR-3

1. 緒言 高レベル放射性廃棄物を低減するために、加速器と未臨界炉を組み合わせた加速器駆動システム(ADS)を用いた核変換研究が行われている[1]。ADS における未臨界炉には、液体 Pb 冷却材、あるいは Pb-Bi 冷却材を用いた高速炉が考えられている[2]。Pb 同位体の内 ²⁰⁴Pb は、天然存在比は 1.4%と小さいが、中性子捕獲反応により長寿命放射性核種 ²⁰⁵Pb(1730 万年)となるため、その断面積の重要性は高いと考えられる。しかし、通常の放射化法では、生成される ²⁰⁵Pb からの放射線を測定することが困難である。そこで、マスペクトロメトリーを適用した断面積測定を行った。

2. 実験 未照射試料の分析用に13.2 mgと照射用に15.1 mgの濃縮度99.4%の²⁰⁴Pb試料を用意した。Pb試料を、原子力機構のJRR-3研究炉の水力照射設備HR-2を用いて、20 MW出力運転で24日間の長期照射を行った。中性子束を評価するために、長期照射の前後にAu/Al合金線とMo箔のモニタセットを30分間照射した。照射期間中、熱出力データが一定であったことから、中性子束は一定であったと判断した。照射後、Pb試料とモニタを回収し、モニタの生成放射能をGe検出器によるガンマ線測定により求め、中性子成分を導出した。2回のモニタ測定から照射位置における熱中子成分は1%未満と良く熱化されていることを確認し、熱中子束成分を $(7.56 \pm 0.19) \times 10^{13}$ n/cm²/secと求めた。照射済みと未照射のPb試料を、京大複合研に輸送して質量分析を行った。京大複合研に整備されている質量分析装置 TRITON-T1 (Thermo Fisher Scientific社製)を用いて分析を行った[3]。Pb試料の分析には、添加剤としてシリカゲルとリン酸(H₃PO₄)を用い、Reフィラメントによるシングルフィラメント法[4]で分析を行った。まず、未照射Pb試料を分析して、昇温条件などを調べ、試料の成績書の分析データと良く一致した結果を得た。次に、同じ条件で照射済みPb試料の質量分析を行った。未照射と照射済みPb試料について得られた質量スペクトルを、図1に示す。質量数205のピークに、²⁰⁴Pbの中性子捕獲による増加が生じていることが分かる。未照射Pb試料の分析から不純物 ²⁰⁵Tlが混在していることが分かったので、それによる同重体効果を補正して、²⁰⁵Pb/²⁰⁴Pb比を $(8.42 \pm 0.37) \times 10^{-5}$ と導出した。

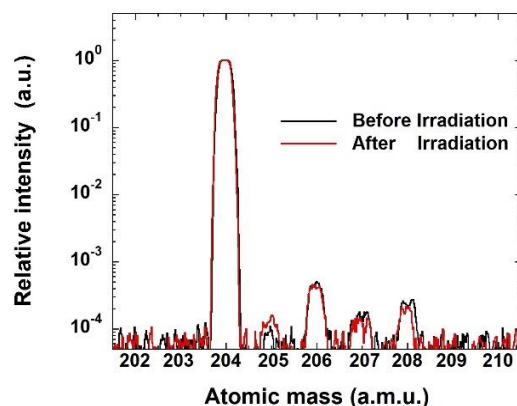


図1 未照射/照射済みPb試料の質量スペクトル

3. 結果及び決言 照射済み²⁰⁴Pb試料の同位体比²⁰⁵Pb/²⁰⁴Pbと照射時間24日(576時間)から反応率を $(4.06 \pm 0.18) \times 10^{-11}$ /secと求め、それを熱中子束で割り込むことで、熱中子捕獲断面積を、 0.537 ± 0.027 barnと導出することができた。今回得られた結果は、評価済み核データライブラリーJENDL-5やJEFF-3.3に採用されている0.703 barnより24%小さいことが分かった。本発表では、実験・解析について詳細に報告するとともに、得られた結果について議論する。

参考文献

- [1] Tsujimoto K, *et al.* Nuclear Technology. 2008; 161: 315-328. [2] Generation IV International Forum. GIF-002-00, 2002.
[3] Shibahara Y, *et al.* J. Nucl. Sci. Technol. 2017; 54(2): 158-166. [4] Platzner IT, Modern isotope ratio mass spectrometry. Wiley, Chichester, 1997.

* Shoji Nakamura¹, Atsushi Kimura¹, Shunsuke Endo¹, Yuji Shibahara² and Toshiyuki Shizuma³

¹Japan Atomic Energy Agency, ² Kyoto University Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science, ³National Institutes for Quantum Science and Technology