

プログラム名：核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化

PM名：藤田玲子

プロジェクト名：核反応データ取得及び新核種制御法

発
成果)

核反応による新たな核変換

研究開発機関名：

東北大学電子光物理学研究センター

研究開発責任者

笠木 治郎太

I 当該年度における計画と成果

1. 当該年度の担当研究開発課題の目標と計画

H27年度の課題は、不安定核¹⁰⁷Pd,¹³⁵Cs,⁷⁸Se,⁹³Zrの核変換実験に先立ち、安定元素による凝縮系核反応（物質を高温のプラズマ状態や高エネルギー照射しなくとも特定の条件下では、通常の状態でも核反応が生じる場合の呼称であり、現象は十分解明されていない）の可能性を探ることにある。

具体的な目標は、①Csの核変換に関しては、これまでのMHI（三菱重工（株））で実験が報告され、豊田中研により追実験された¹³⁷Cs→¹⁴¹Pr反応の確認すること、及び、②初めて凝縮系核反応を適用するCs以外の元素（Se, Zr, Pd）については、核変換生起の可能性を探索することである。①については、既にMHIグループにより¹³³Cs→¹⁴¹Prの核変換が詳細に研究されているので、MHIグループにより¹⁴¹Prの見出されている試料について、ラザフォード後方散乱（RBS）法を適用し、直接的な核種同定による¹⁴¹Pr生成の確認をめざす。また、②のSe, Zr, Pdの核変換については、従来MHIグループが開発してきた方法を踏襲し、新たに作成するPd/CaO多層薄膜試料に関して、従来から行われているXPSによる元素分析とSIMS質量分析により凝縮系核変換生成物の探索を行う。

2. 当該年度の担当研究開発課題の進捗状況と成果

2-1 進捗状況

- ① RBS測定では、重水素ガス透過後にMHIグループにより¹⁴¹Prの存在が確認された試料、及び、重水素ガス透過前の試料を標的に、微量の核種を同定する目的で核子当たり数MeVの重イオンビームを照射した。H27年度は、東京大学MALTにて20MeV、160ビームを用いた実験と、東北大学CYRICにて、120 MeV、40Arビームを用いて実験を実施した。MALTでの実験では、RBS法を適用するに当たっての基本的な問題点を洗い出し、10 ng/cm²程度の¹⁴¹Prを精度良く同定するためには、膨大な数のPdによる散乱事象を効率的に排除することが不可欠であることが判明した。その経験に基づき、CYRICでは、新たに作成したFPGAを用いたパイルアップ除去回路モジュールと6台のSi検出器を用いてRBS計測を数枚の試料について実施した。
- ② 新たな核変換探索のため、基盤となるPd/CaO多層膜をMHIより移設したイオンビームスパッタ装置を用いて製作した。多層膜表面へのZrの添加については、外注によりイオン注入法を試みたが、添加できなかったため、多層膜生成と同様にイオンビームスパッタ装置により添加した。Seについては、東北大学未来科学技術センターのイオン注入装置（日新電機EXCEED 230H）を用いて、イオン注入した。重水素ガス透過を、重水素透過装置I（ガス排気型）及び重水素透過装置II（ガス循環型）の2台を用いて実施し、XPS分析とSIMS質量分析を実施した。

2-2 成果

- ① MHIにより報告されている¹³³Cs→¹⁴¹Pr反応について、重イオンを用いたRBSによる質量分析法を開発した。パイルアップ除去を効果的に行う回路を製作し、40Arビームを用いたRBSにより10 ng/cm²程度の¹⁴¹Prを同定できることが判った。
- ② ¹³³Cs→¹⁴¹Pr反応についてのRBS法での質量分析結果は、MHIでICP-MS測定が行われている2枚の試料において¹³³Cs→¹⁴¹Pr変換に対応する質量数141に、微小ピークの存在が認められた。しか

しながら現状では、取得データの統計精度は十分とはいえない。また、Prの収量はいずれもICP-MS測定の結果を下回っている。今後、データの統計精度を高めるとともに、重水素ガス透過法の放射核種¹³⁷Csへの適用を検討する必要がある。

- ③ 本研究により初めて試験されたSe, Zr, Pdの核変換については、Se添加(10枚)及びZr添加(8枚)のPd/CaO多層膜に長時間の重水素ガス透過を行い、XPSによる元素分析、及び、SIMSによる質量分析が実施された。
- ④ Zr添加試料のガス透過特性は、これまでの経験とは異なった振舞を示し、透過量が非常に大きいことが判った。しかしながら、透過後のXPSスペクトルは、本質的には透過無試料と変わらず、重水素ガス透過法の適用は困難であると判断した。
- ⑤ Pdからの核変換の可能性については、Pd/CaO多層膜に長時間の重水素ガス透過後の試料には、質量数114の収量が異常に増大し、分子イオンに起因するとは考えにくい現象が見出された。XPSスペクトルからは表面元素の性状に変化が認められ、Cdのケミカルシフトの可能性は排除されないことが判明した。
- ⑥ Seからの核変換の可能性については、Se添加試料のXPS分析の結果、ガス透過後のスペクトルにおいてSr, Zrのケミカルシフトの領域にピークを観測されたものの、このデータのみでは結論できない。今後、コンタミ等の外乱のチェック、さらに、別の計測法でのクロスチェックが必要とされる。

2-3 新たな課題など

なし

3. アウトリーチ活動報告

なし