

## 放射性廃棄物処理処分問題解決に向けて —RIビームを利用した世界初の破砕反応データ取得—



櫻井 博儀

Sakurai Hiroyoshi

(理化学研究所仁科加速器研究センター・東京大学大学院理学系研究科)

### 1 はじめに

広島・長崎・福島の歴史を背負う我が国では、原子力の平和利用と世界人類の福祉に特化した「発明」と「発見」を生み出すことによって世界的信用と信頼を得ることができる。この大きな歴史的背景の中で様々な課題があるが、とりわけ原子力発電などによって生じる高レベル放射性廃棄物の処理処分問題は我が国が取り組むべき最重要課題の1つである。

既に我が国には約2万tにも及ぶ使用済み核燃料がある。その問題の本質は使用済み燃料の中に含まれる長寿命の放射性同位元素である。現在、放射性廃棄物の地層処分に関する議論が進んでいるが、寿命が長いが故に放射能の無害化には1万年程度の長い時間を要してしまう。原子力推進の賛否に関わらず、廃棄物を次世代に残さないためにも長寿命放射性核種を安定化・短寿命化するための技術開発を粛々と行うことが重要であると考えている。

核変換技術の基盤となるのが核反応データである。理化学研究所では、水素からウランに至るすべての核種をビームとして取り出し、利用することができるユニークな施設「RIビームファクトリー」がある<sup>1)</sup>。この施設では3年前から長寿命核種をビームとして取り出し、逆運動学の方法で核反応データを蓄積しており、理学的な立場から効率のよい核反応過程を探求している。本稿では理研で進められている長寿命核種の核反応データ取得に関する研究

開発を紹介する<sup>2)</sup>。

### 2 核反応データの重要性

原子炉の原型は、1942年にエンリコ・フェルミらが実証試験を行った「シカゴパイル」である。彼らは中性子を熱化することで捕獲断面積を量子効果により増大させ、かつ核分裂により中性子が連鎖的に生成されることでミクロの反応を制御することに成功した。核燃料に蓄積される長寿命核種は、いわば熱中性子で反応しなかった「燃えカス」である。したがって、使用済み燃料に含まれる長寿命核種の核変換を引き起こす反応としては熱中性子捕獲反応以外の反応を考慮する必要がある。

使用済み燃料に含まれる長寿命放射性核種は、マイナーアクチノイド(MA)と核分裂生成物(FP)の二種に分類される。MAについては高速中性子が得られる高速炉や加速器駆動炉での核変換が検討され、多くの研究開発が進められている。一方で、FPについては複数の核種を除いて核変換に関連する基盤開発・技術開発はほとんど進んでいないのが現状である。

寿命の長いFPを短寿命化する方法として、中性子や $\gamma$ 線の照射などが過去に議論された経緯があるが、熱中性子捕獲以外の、中性子ノックアウト、高速中性子捕獲、 $\gamma$ 線吸収反応などの素反応過程に関する基礎データが十分でない。これらの基礎データ

は、新しい量子効果を取り入れた核変換法を發明する契機になるとともに、核変換効率だけでなく経済的な費用算出においても重要である。地層処分費用と核変換費用の算出と其の比較には、具体的な数値計算を必要とするからである。

### 3 逆運動学での核反応データの取得

長寿命 FP のデータが決定的に不足している技術的背景として、放射性同位体の標的を準備すること、及び放射性同位体標的を利用する測定は難しいことがあげられる。従来の反応データ取得法は、陽子、中性子、 $\gamma$ 線などをビームとして標的に照射し、標的核種の変換を観測する方法である。放射性同位体を標的として用いる場合、放射性同位体から放出される放射線がバックグラウンドとなって測定妨げとならないように工夫をする必要がある。また核種の純度も 100% でないため、同位体存在比の異なる標的も複数用意しなければならない。特に反応率をあげるために厚い標的を用意することは、バックグラウンドや放射線防護の観点からも制限されてしまう。更に反応生成物は標的内に留まるため、生成物が放射性核種の場合放射化法により生成物の同定を行うことが多いが、生成核種すべてを同定することはできない。

今回紹介する方法は、逆運動学的手法である。物理学的にはビーム核と標的核を入れ替えても起こる反応は同じであることを利用する。すなわち、**図 1**のように研究対象の核種をビームにして、陽子などの標的に照射し、反応過程を観測する。後述するようにビーム核種を実験的に決定することができるため、実質的な純度は 100% だと考えてよい。2 次標的の厚さは、主にビームのエネルギーによって最適値が決まり、ビームが放射性であることによる制限は全くない。更に反応生成物についても核種識別を行うことができるため、生成物すべての核種同定ができ、データの質も極めて高い。放射性同位体をビームとして取り出してから 2 次標的に照射するまでの時間は、わずか数百ナノ秒である。したがって、放射性同位体はビームとして飛行している間、ほとんど崩壊することはない。

この逆運動学的手法は、安定核種に比べて陽子・中性子が過剰な短寿命原子核の構造及びダイナミク

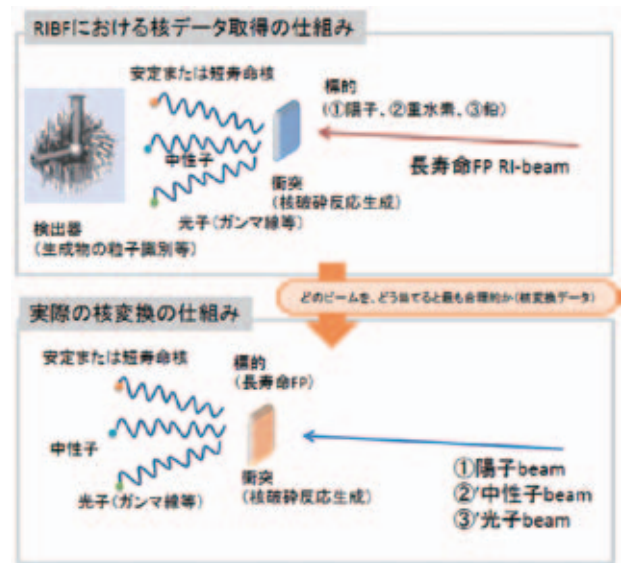


図 1 逆運動学による核変換データ取得の仕組み

スを調べる手法として、原子核物理学の分野で発展してきた手法である。理化学研究所ではこの研究分野の将来性を見込み、1990年初頭から放射性核種ビーム (RI ビーム) の生成法と利用法の開発を進め、逆運動学に基づいた様々な手法を開発してきた。2006年にはこれまでの経験・技術を生かした、RI ビームファクトリー (RIBF) が完成した。翌年には世界最高強度の RI ビームを供給し、原子核物理学の分野では世界に冠絶した施設として世界的に有名であり、新しい研究成果を多数生み出している。

RIBF が完成するまでは RI ビームとして供給できる核種は質量数 40 程度の軽い核の領域に限られていたが、RIBF では水素からウランまでのすべての元素について放射性核種を生成することができるようになった。

### 4 理化学研究所 RIBF 施設での世界初の試み

平成 26 年 4 月に理研の RIBF 施設で、世界で初めて  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  をビームとして取り出し、逆運動学による核破砕反応データの取得を行った。筆者らが選択した核種  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  は、長寿命 FP の中でも比較的寿命の短い核種 (半減期約 30 年) で発熱核種と呼ばれている。これらの核の放射能は、廃棄物の最初の 300 年間の主要成分である。核変換を引き起こす反応としては核破砕反応を想定した。すなわち、加速器で得られた陽子や重陽子のビームを  $^{90}\text{Sr}$

や  $^{137}\text{Cs}$  の標的に直接照射して、核を壊し違う核に変換する方法を念頭に置いた。

図2のようにウランビームを核子当たり 345 MeV まで加速し、ベリリウム標的に照射する。核分裂反応で生成された核分裂片を超伝導 RI ビーム成分離装置 (BigRIPS) <sup>3)</sup> で分離し、 $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  をビームとして取り出した。これら RI ビームの純度が最大になるようにベリリウム標的の厚さをなるべく薄くするなどの工夫を施している。ビームのエネルギーは核子当たり約 190 MeV であり、 $^{137}\text{Cs}$  ビームの純度と強度はそれぞれ 14%、1.2 k/s、 $^{90}\text{Sr}$  では、28%、7.1 k/s であった。純度は 100% ではないが、ビーム核種を一つひとつ粒子識別し、核種の陽子数、質量数を決定することができる (図2 参照)。

$^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  ビームを BigRIPS の下流に置かれた 2 次標的に照射し、BigRIPS で RI ビームの 2 次標的で生成された反応生成物は下流のゼロ度スペクトロメータで検出し、粒子識別を行った (図2 参照)。

2 次標的としては、厚さ約 200 mg/cm<sup>2</sup> の C、CH<sub>2</sub>、CD<sub>2</sub> の三種の標的を用意し、これら標的の組合せから、炭素核、陽子、重陽子による核破碎、荷電交換反応データを抽出することに世界で初めて成功した。なお、この実験は、理研-九大-宮崎大-東大-北大との共同研究として行った。

## 5 実験データの意味すること

取得されたデータから陽子、重陽子標的を利用した場合の核反応生成物の生成断面積を求めた。図3に  $^{90}\text{Sr}$  及び  $^{137}\text{Cs}$  ビームのそれぞれの場合について、生成断面積の分布を示している。

まずデータを見てすぐに分かることは、生成核の質量数分布が陽子と重陽子で大きく異なる点である。データを取得する前は、陽子と重陽子標的の生成断面積の比は、生成核種に依らないと予想していた。重陽子は陽子と中性子が弱く束縛された原子核なため、陽子、中性子がそれぞれ個別に反応に寄与すると考えたからである。しかし、データから言えることは、陽子と中性子が同時に反応に寄与していて、重陽子の場合には陽子に比べて原子核を破碎するエネルギーが大きいことが分かった。これは量子効果の一種である。重陽子が反応する際に、陽子と中性子が量子力学的にもつれあっているためである。

ミクロな反応理論で生成核の断面積分布を予想することができる。図3に示されている実線、破線は理論予想の値であり、粒子反応シミュレーションコード「PHITS」<sup>4)</sup> 内に組み込まれた微視的な核内カスケード<sup>5)</sup> や蒸発過程<sup>6)</sup> の計算値を示した。PHITS による予想は、比較的良好に実験データを再現してい

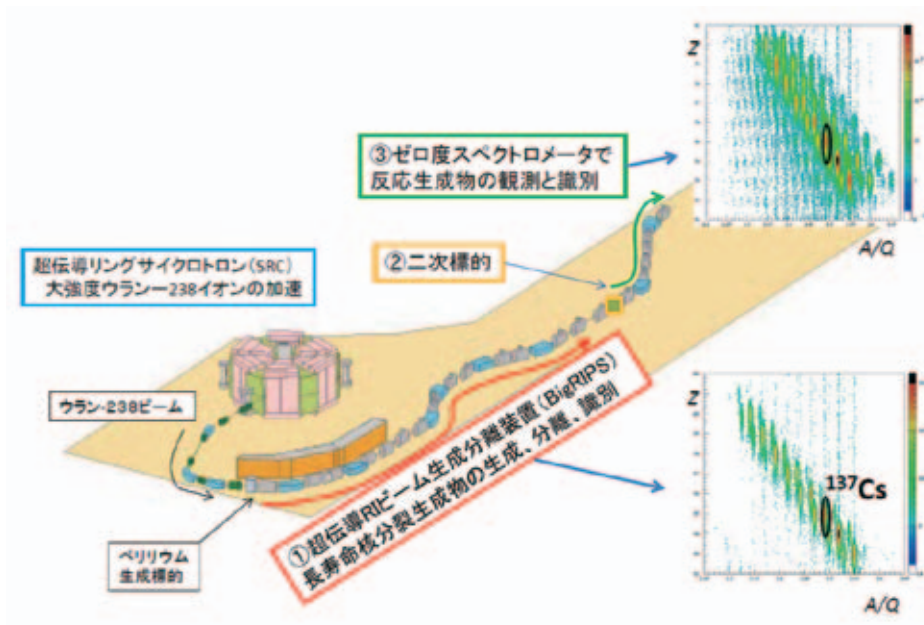


図2 RI ビームを利用した核破碎反応実験の概要

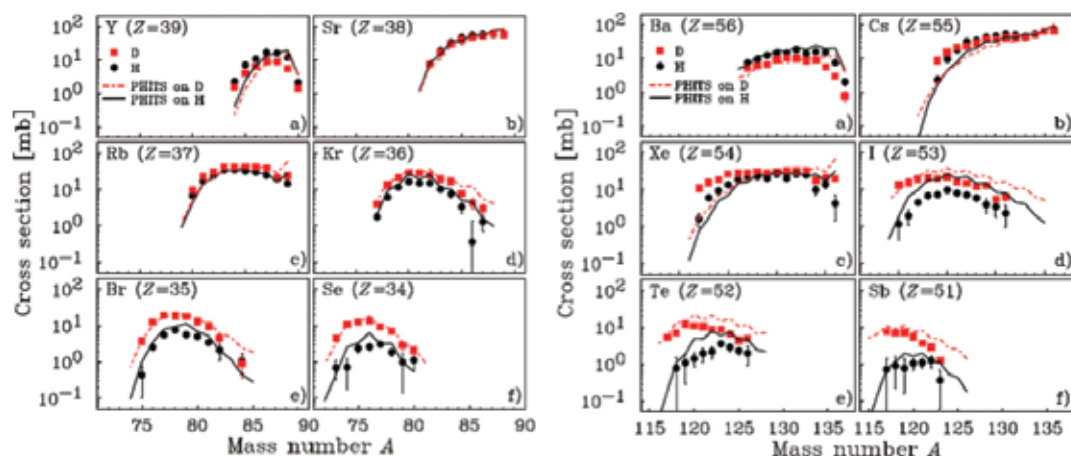


図3  $^{90}\text{Sr}$  (左),  $^{137}\text{Cs}$  (右) を破碎して生成された破砕片の生成断面積

HとD標的での断面積(黒点(H標的), 赤点(D標的))と理論予想値(黒い実線(H標的), 赤い破線(D標的))が示されている。参考文献2)より転載

ると言える。

生成断面積をすべての核種にわたって積分すると全破砕断面積を得ることができる。 $^{90}\text{Sr}$ の全断面積は、陽子標的で0.79 b, 重陽子標的で、1.0 b,  $^{137}\text{Cs}$ では、陽子, 重陽子標的それぞれ1.1 b, 1.3 bであった。この断面積の大きさは、熱中性子捕獲断面積( $^{90}\text{Sr}$ で0.01 b,  $^{137}\text{Cs}$ で0.27 b)よりも約5倍から10倍程度大きいことが分かる。

さて、長寿命核種標的に陽子や重陽子を照射すると長寿命のものが多くできてしまうのではないかと質問されることが多い。筆者らの得たデータからその答えを出すことができる。 $^{90}\text{Sr}$ や $^{137}\text{Cs}$ からつくられる長寿命核種は、 $^{135}\text{Cs}$ (半減期230万年)や $^{79}\text{Se}$ (同, 6.5万年)であるが、これらの原子核が例えば、陽子ビームで生成される断面積は $^{90}\text{Sr}$ の場合1mb,  $^{137}\text{Cs}$ で64 mbである。これは全断面積に比べ高々6%程度である。更に $^{135}\text{Cs}$ や $^{79}\text{Se}$ の半減期は $^{90}\text{Sr}$ や $^{137}\text{Cs}$ の半減期30年に比べ長寿命のため放射能レベルも低い。

## 6 最後に

理研での基礎反応データの取得は始まったばかりである。 $^{90}\text{Sr}$ や $^{137}\text{Cs}$ のデータを取得した後で、内閣府主導のImPACT(プログラムマネージャー藤田玲子氏)「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」<sup>7)</sup>が平成26年10月に立ち上がり、 $^{107}\text{Pd}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ などの長寿命核種のデータ取得が本格化

した。 $^{107}\text{Pd}$ のデータは、日本の英文誌で既に出版されている<sup>8)</sup>。今後も続々と新データが出版される予定である。平成29年度には、RIビームを核子当たり20 MeV程度まで減速してデータを取得する。このようなデータの蓄積によって核変換システムの設計に必要な反応理論の予想精度を向上させていく予定である。

今回紹介した実験データから、陽子と重陽子の違いは量子効果によることが分かった。この意義は大きく、核変換を引き起こすビーム種として重陽子の有効性を無視することができなくなってきた。今後も新たな量子現象を求めて、核変換の基礎科学研究を推進していく。

## 参考文献

- 1) Y. Yano, *Nucl. Instrum. Methods B.*, **261**, 1009-1013 (2007)
- 2) H. Wang, *et al.*, *Phys. Lett. B.*, **754**, 104-108 (2016); 理研の記者発表記事 [http://www.riken.jp/pr/press/2016/20160219\\_1/](http://www.riken.jp/pr/press/2016/20160219_1/)
- 3) T. Kubo, *Nucl. Instrum. Methods B.*, **204**, 97 (2003); T. Kubo, *et al.*, *Prog. Theor. Exp. Phys.* 2012, 03C003 (2012)
- 4) T. Sato, *et al.*, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **50**, 913 (2013)
- 5) A. Boudard, *et al.*, *Phys. Rev. C.*, **66**, 044615 (2002)
- 6) S. Furihata, *et al.*, *Nucl. Instrum. Methods., B.*, **171**, 251 (2000)
- 7) <http://www.jst.go.jp/impact/program/08.html>
- 8) H. Wang, *et al.*, *Prog. Theor. Exp. Phys.*, 2017, 021D01; 理研の記者発表記事 [http://www.riken.jp/pr/press/2017/20170213\\_1/](http://www.riken.jp/pr/press/2017/20170213_1/)