利用技術

長寿命核分裂生成物核種⁹³Zrの 核破砕反応データの取得



渡辺 幸信 Watanabe Yukinobu (九州大学 大学院総合理工学研究院)

1 はじめに

原子力発電所で生じる高レベル放射性廃棄物の処 理・処分問題は、原発賛成・反対にかかわらず、後 世代への負担軽減のために避けて通れない最重要課 題の1つである。高レベル放射性廃棄物には、非常 に長い半減期を持つ放射性核種であるマイナーアク チノイド(MA)と長寿命核分裂生成物(LLFP)が 含まれている。このため、放射能が問題無いレベル に下がるまで、約10万年にわたり隔離して保管す る必要がある。これら MA や LLFP を短半減期核種 や安定核種に核変換する技術が確立できれば、この 期間を大幅に短縮化することが期待できる。このた め、放射性廃棄物の低減化や資源化を目指し、原子 炉や加速器を用いた核変換の研究が国内外で行われ てきた¹⁾。

内閣府総合科学技術・イノベーション会議が主 導する革新的研究開発推進プログラム(ImPACT) の1つとして、「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」(藤田玲子プログラム・ マネージャー)²⁾が2014年度からスタートした。本 プログラムでは、5核種のLLFP(⁷⁹Se, ⁹³Zr, ¹⁰⁷Pd, ¹²⁶Sn, ¹³⁵Cs)に着目し、使用済燃料やガラス固化体 からLLFPを分離・回収し、加速器を用いた核変換 による放射能低減化や資源化に向けた研究開発を理 工連携で進め、新規イノベーションの創出に挑戦し ている。

筆者らは ImPACT プログラムに参画し, LLFP の

 1つである⁹³Zr(半減期153万年)の核変換データの新規取得を行った。Zrは、合金にして原子燃料 被覆管に用いられ、酸化物は耐火煉瓦や燃料電池や 酸素センサの材料等に利用されている元素である。 核燃料の燃焼度(UやPuが核分裂した割合)が 33 GWd/t^{*1}の場合,使用済み燃料1t当たりZrは約 3.4 kg含まれており、そのうちの約30%(約1 kg)が⁹³Zrである。この⁹³Zrを取り出すことによって、 残りのZr同位体(^{90,91,92,94,96}Zr)を資源として利用す ることができる。一方で、取り出された⁹³Zrは、そ の放射能を低減するために核変換させる必要があ る。

本研究では、⁹³Zrの核変換反応として、陽子又は 重陽子を衝突させて ⁹³Zrを壊す核破砕反応に着目し た。核破砕反応は、高エネルギーの陽子や重陽子ビー ムを壊したい標的に衝突させ、その標的核種を破壊 し、他の軽い核種に変える反応である。これまで、 ⁹³Zrの核破砕による同位体生成断面積等の基礎デー タは皆無の状況だった。九州大学、理化学研究所(理 研)、東京大学、東京工業大学、宮崎大学、北海道 大学、立教大学からなる共同研究グループは、理研 の重イオン加速器施設「RIビームファクトリー (RIBF)」を用いて、⁹³Zrを不安定核ビームとして取 り出し、陽子と重陽子を標的にして照射する逆運動

^{*1} 装荷した核燃料がどこまで燃焼したかを表すのに燃焼度 という用語を用い、核燃料の量1t当たり発生したエネ ルギーGWd(1日間に発生した熱出力の総量で表したも の)、すなわち GWd/t という単位で表現する。



図1 核破砕反応実験の概要

学法を用いて,核破砕反応の基礎データを取得する ことに成功した³³。以下,実験の概要と結果につい て解説する。

2 測定方法

核破砕実験の概要を図1に示す。実験手法は先行 して実施された⁹⁰Srと¹³⁷Csに対する核破砕実験⁴⁾ と基本的に同じであり、櫻井氏による本誌の解説記 事⁵⁾も参照のこと。

RIBFの超伝導リングサイクロトロン(SRC)に おいて,核子当たり345 MeVまで加速した²³⁸UビームをBe標的に照射し,核分裂反応で生成した核分 裂片を超伝導 RIビーム生成分離装置(BigRIPS)で 分離し,TOF-B ρ - Δ E法⁶による粒子識別を行った。 その結果を図1(左図)に示す。二次生成ビーム中 で⁹³Zrが良好に分離されていることが分かる。なお、 ⁹³Zrビームのエネルギーは核子当たり105 MeVで、 その純度と強度はそれぞれ13.6%、7,100個/秒で あった。

⁹³Zr ビームを BigRIPS の下流に設置された二次標

的に照射し,核破砕反応により生成された核種を下 流のゼロ度スペクトロメータで検出し,前述と同様 な手法で粒子識別を行った。二次標的として,厚さ 約200 mg/cm²のC, CH₂, CD₂を用いた。CH₂標的の 場合の反応生成核種の粒子識別結果を図1(右図) に示す。十分良い分離が得られ,広い原子番号に亘 る同位体が生成されていることが分かる。生成確率 を表す同位体生成断面積は,入射⁹⁹Zrの個数,各生 成同位体の個数,二次標的の単位面積当たりの原子 数から導出できる。最終的に,陽子及び重陽子入射 核破砕反応による同位体生成断面積をCH₂及びCD₂ 標的の結果よりC標的の寄与を差し引くことで求 めた。

3 結果

図2に同位体生成断面積の測定結果を示す。黒△ が陽子標的,赤▽が重陽子標的の結果である。まず 実験データを見ると,Nb同位体生成は陽子標的の 方が,重陽子標的より約2倍大きい。Zr同位体生 成は両者でほぼ等しい断面積を示しており,それよ



図 2 ³³Zr+p 及び d 反応による同位体生成断面積の測定結果と理論計算との比較

り小さな原子番号(Y, Sr, Rb, Kr)になると,重陽 子標的の方が陽子標的に比べて大きな生成断面積を 与えることが分かる。同様な傾向は、⁹³Zr以外に先 行研究⁴⁷⁾で測定された⁹⁰Sr,¹³⁷Cs及び¹⁰⁷Pdに対し ても観測されている。一般に、核破砕反応機構は二 段階過程,即ち核内カスケード過程とその後に形成 された高励起核の蒸発過程で説明される。核子当た りの入射エネルギーが 105 MeV なので、反応に関 与する全運動エネルギーは、陽子標的の場合は 105 MeV で重陽子標的の場合は 2 倍の 210 MeV に なる。このため、陽子に比べより高い励起状態の残 留核ができ、蒸発過程でより多くの核子を放出可能 になるため、低い原子番号の同位体生成に対して重 陽子標的の方が大きな断面積を与える一因だと考え られる。

また, Zr 同位体とY 同位体を見ると, ⁹⁰Zr と ⁹¹Zr, ⁸⁹Y と ⁹⁰Y の間で断面積が顕著に上昇する傾向 が観測されている。これは,中性子数 N=50 の魔法 数のところでの変化であり, N=50 で中性子分離エ ネルギーが大きくなることを反映した殻効果と考え ている。図1(左図)に示すように,二次ビーム中 には⁹³Zr 近傍の核種(^{91,92}Y, ⁹²Zr, ^{93,94}Nb)も含まれて いるので, 今後,これらのデータ解析を行って,



図3 105 MeV/u³³Zr+d 核破砕反応で生成された核種の寿 命に応じた生成量割合

³⁹Zr 近傍核でも N=50 の殻効果が観測されるかどう かを調査し,断面積が不連続な変化する反応機構を 明らかにしたい。

図2には、粒子・イオン輸送計算コード PHITS⁸ に組み込まれた核内カスケードモデル INCL⁹ + 蒸 発モデル GEM¹⁰ による計算結果(破線)を示して いる。概ね実験値を再現しているが、いくつか不一 致も見られる。例えば、NbとY同位体の低質量数 領域では、理論計算は過小評価を示している。Yや Zr同位体の場合には、数個の核子が放出されて生

成される質量数領域で計算が実験値を大きく過大評価している。また、SrやKr同位体では、PHITS計算には中性子数の偶奇に応じて断面積が上下する even-odd staggering効果が顕著に見られるが、実験 値は比較的スムーズに変化している。現在、これら の不一致の原因を究明中で、その結果に基づいて INCL や GEM モデルの改良を行う予定である。

図2の実験結果が示すように、核破砕反応では ⁹⁹Zrよりも軽い原子核が生成される。そのうち、 ⁹²Nb(半減期3,470万年),⁸¹Kr(半減期22.9万年) は半減期が長い放射性同位体である。また、⁸¹Rbは 半減期5時間弱で⁸¹Krに崩壊する。今回の実験で、 これらの核種が生成される割合の測定にも成功し た。すなわち、⁹⁹Zrから生成された核種は安定核種 が約39%、半減期が1年以下の核種が約57%、1~ 30年が約0.1%であり、30年を超えるものが5%以 下であることが明らかになった(図3参照)。なお、 入射エネルギーが核子当たり105 MeV では、陽子 と重陽子による核変換で生成される核種の割合は大 きく違わないことも分かった。

4 おわりに

本実験後に、核破砕反応の入射エネルギー依存性 を更に調査する目的で、入射エネルギーを核子当た り 50 MeV、200 MeV に変えた実験を実施し、⁹³Zr の核変換データを系統的に取得した。現在、そのデー タ解析が進行中である。ImPACT プログラムの一環 として、⁹³Zr 以外のLLFP 核種(⁷⁹Se、¹⁰⁷Pd、¹³⁵Cs、 ¹²⁶Sn)についても理研 RIBF で同様な実験が行われ た。理研グループが解析を担当し、¹⁰⁷Pd のデータ は既に公表しており[¬],他の核種の解析も進行中で 順次公表していく予定である。更に,ImPACT プロ グラムでは,これらの新規取得した実験データは核 反応理論モデルの検証や改良に利用され,実験デー タと理論計算に基づいた LLFP 核種に対する標準核 データライブラリの開発が行われている。これら一 連の研究で生産された高精度な核反応基礎データ は,効率的で社会実装可能な核変換プロセスの検討 やシミュレーションによるバルク体系での核変換効 率の計算,各種装置の設計等に反映されている。

付記

本研究は、総合科学技術・イノベーション会議が 主導する革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) の一環として実施したものです。

参考文献

- 分離変換技術総論,「放射性廃棄物の分離変換」研究専門委員会編,日本原子力学会(2016)
- 藤田玲子, "ImPACT プログラム「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」を起 点として",日本原子力学会誌,Vol.58(2),28-30 (2016)
- S. Kawase, et al., Prog. Theor. Exp. Phys., 021D01, (2017)
- 4) H. Wang, et al., Phy. Lett. B, 754, 104 (2016)
- 5) 櫻井博義, Isotope News, No. 751, 7 (2017)
- N. Fukuda, et al., Nucl. Instrum. Meth. B, 317, 323 (2013)
- 7) H. Wang, et al., Prog. Theor. Exp. Phys., 2017, 021D01 (2017)
- 8) T. Sato, et al., J. Nucl. Sci. Technol. 55, 684-690 (2018)
- 9) A. Boudard, et al., Phys. Rev. C, 87, 014606 (2013)
- 10) S. Furihata, Nucl. Instrum. Meth. B, 171, 251 (2000)