

# 光核反応による消滅処理の 基礎過程の研究 I

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1988年6月

理化学研究所・放射線研究室

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団  
技術協力部 技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to: Technical Evaluation and Patent Office, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 9-13, 1-chome, Akasaka, Minato-ku, Tokyo 107, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)

## 目 次

1. 序 論	1
2. 光核反応を用いた核消滅に関する考察	
2 A $^{137}\text{Cs}$ を一原子生成する時に利用出来る 核分裂エネルギー	2
2 B $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)$ 反応を起こす約15 MeVの $\gamma$ 線一本を生成するに要するエネルギー	2
2 C 100万キロワット軽水炉一基の $^{137}\text{Cs}$ 発生量	7
2 D 有効 $\gamma$ 線生成に必要な電子数	7
2 E エネルギーバランス	8
3. 光核反応以外の方法に対する考察	
3 A D, Be( $\gamma, n$ )反応中性子での( $n, \gamma$ )反応	9
3 B 高エネルギー陽子での $^{137}\text{Cs}$ 核破砕	11
3 C 高エネルギー陽子での核破砕で生じた中性子を使った ( $n, \gamma$ )反応	13
3 D 原子炉での( $n, \gamma$ )	15
3 E ( $n, 2n$ )反応	17
4. 競争過程に関する考察	24
5. 新しい型の核消滅用中性子発生装置	26
6. 結論と今後の計画	33
謝 辞	34

1988年 6月

## 光核反応による消滅処理の基礎過程の研究

郷農靖之・ 旭耕一郎・ 石原正泰

### 要 旨

光核反応を用いた核変換が、長寿命放射性廃棄物の消滅処理方法として成立するかどうかを、エネルギーバランスに重点をおいて検討した。例として、100 MeV 電子の制動輻射で $^{137}\text{Cs}$ を光核反応によって核変換する場合を考えると、 $^{235}\text{U}$ の核分裂で $^{137}\text{Cs}$ 一原子生成したときに利用できる電力の少なくとも1.8倍の電力を必要とするので、同時に発生する低エネルギーの $\gamma$ 線を有効に利用することが極めて重要であることが明らかになった。同時に、過去に検討された他の方法でのエネルギーバランスも評価し比較検討した。

光核反応の競争過程として重要な電子対生成については、結晶のチャネリング現象の中に僅かな効果が見られるようではあるが、実際上有効なものはいし出せない。

以上の、調査研究の結果として、我々は、新しい型の高速中性子発生装置を開発し、 $(n, 2n)$ 反応による核変換を使って核消滅を行う方法が最も良い方法であると考えに到り、その案を検討したので、それも書き添える。

本報告書は、理化学研究所放射線研究室が動力炉核燃料開発事業団の委託により実施した研究の成果である。

契約番号：620D196

\*： 理化学研究所 放射線研究室

PNC TJ4510 88-001  
JUNE, 1988

Basic Study on the Incineration of Nuclear Waste  
Using Photo Nuclear Reaction

Yasuyuki Gono\*  
Kohichiro Asahi\*  
Masayasu Ishihara\*

Abstract

Feasibility of the transmutation of the long-lived radioactive nuclear waste by the photo nuclear reaction was studied. Simple calculation,  $^{137}\text{Cs}$  as an example of nuclear wastes, shows that the transmutation of one atom of  $^{137}\text{Cs}$  costs at least 1.8 times more electricity than that obtained from fission events of  $^{235}\text{U}$  which produces one atom of  $^{137}\text{Cs}$ . In this calculation the 100 MeV electron beam was taken as a source of the bremsstrahlung for the  $(\gamma, n)$  reaction. Consequently, it became clear that it was quite essential to use effectively low energy  $\gamma$  rays which were produced at the same time as high energy  $\gamma$  rays of about 15 MeV.

Pair production process which competes with the nuclear photo reaction can hardly be affected by any artificial technique. Only small effect might be expected by using a channeling phenomenon of single crystals.

Finally we came to the conclusion that the best method for the incineration of fission products like  $^{137}\text{Cs}$  might be the utilization of a new type of neutron generator. The idea of this method is presented for the first time in this report.

Work performed under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Cooperation

\* : Radiation Laboratory, Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN)

## 1. 序 論

高レベル放射性廃棄物を、加速器或は原子炉を用いて消滅処理しようとする場合、(i) エネルギーバランスが成立する、(ii) 十分に短い半減期を得るにたる高線束が得られる、(iii) 目的核種の核変換率が、その核種の原子炉での生成率より大きくできる、(iv) 誘導放射能を考慮しても弱害化出来ている、(v) 必要な種々の操作を考慮して、危険性の低下になっている、(vi) 必要な装置の規模、開発コスト等が現実的である、等の条件をすべて満足しなければならない。

これらの条件の中で、(ii)～(vi)は技術面での工夫の余地が大きいが、(i)は工夫以前に原理的に満たしていなければならない。(i)が成立しない場合は、目的核種を消滅した以上に生成することになり、エネルギー源として原子力以外のものを採用し、且つ、エネルギーを投入してでも放射性廃棄物を消滅するという社会的要請が生じない限り意味をなさないことになる。

2. 光核反応を用いた核消滅に関する考察

2 A.  $^{137}\text{Cs}$  を一原子生成する時に利用できる核分裂エネルギー

核分裂エネルギー ……  $200 \text{ MeV} / f$

$^{235}\text{U} (n, f)$  の

$^{137}\text{Cs}$  生成率 ……  $6 \% / f$

従って、

$^{137}\text{Cs}$  1 原子を

生成する核分裂数 ……  $1 / 0.06 = 16.7$

その時発生する

熱エネルギー ……  $W_{th} = 200 \times 16.7$   
 $= 3340 \text{ MeV}$

利用できる

電気エネルギー ……  $W_e = W_{th} / 3$   
 $\sim 1000 \text{ MeV}$

つまり、 $^{137}\text{Cs}$  を 1 原子消滅するのに、 $1000 \text{ MeV}$  より充分小さい電気エネルギーでなければならない。

2 B.  $^{137}\text{Cs} (\gamma, n)$  反応を起こす約  $15 \text{ MeV}$  の  $\gamma$  線  
1 本を生成するに要するエネルギー

(a)  $^{137}\text{Cs} (\gamma, n)$  反応断面積

データのある  $^{133}\text{Cs}(\gamma, n)$   
の断面積を使う。

巨大共鳴に寄与する  $\gamma$  線のエネルギー  
は  $10 \sim 20 \text{ MeV}$  とする。

この時、 反応断面積の平均値は  
(図1参照)

$$\overline{\sigma_n} = 137 \text{ mb}$$

S. S. Dietrich  
& B. L. Berman  
UCRL 94820  
(1986)

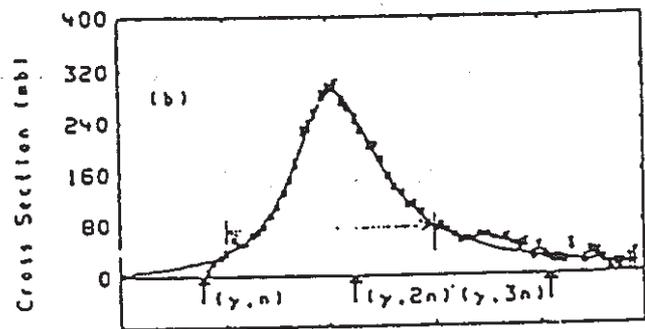


図1

(b) 競争過程

$\gamma$  線を物質に照射した時、 核反応以外に光電効果、コ  
ンプトン散乱、電子対生成等の過程で相互作用するが、 $15$   
 $\text{MeV}$  程度のエネルギーの  $\gamma$  線は主に電子対生成によって失  
なわれる。

$\gamma$  線のこれらの過程の断面積を Nucl. Data  
Table 7 (1970) 565

から採用して、  $10 \sim 20 \text{ MeV}$

に亘って平均すると ……  $\overline{\sigma_a} = 9 \text{ b.}$

(a), (b) から  $(\gamma, n)$  反応断面積の全断面積に対す  
る割合は、

$$\overline{\sigma_n} / (\overline{\sigma_n} + \overline{\sigma_a}) = 1 / 67$$

つまり、 $(\gamma, n)$  反応に寄与する  $\gamma$  線は 67 本中 1 本である。

(c) 電子線の制動輻射  $\gamma$  線生成率

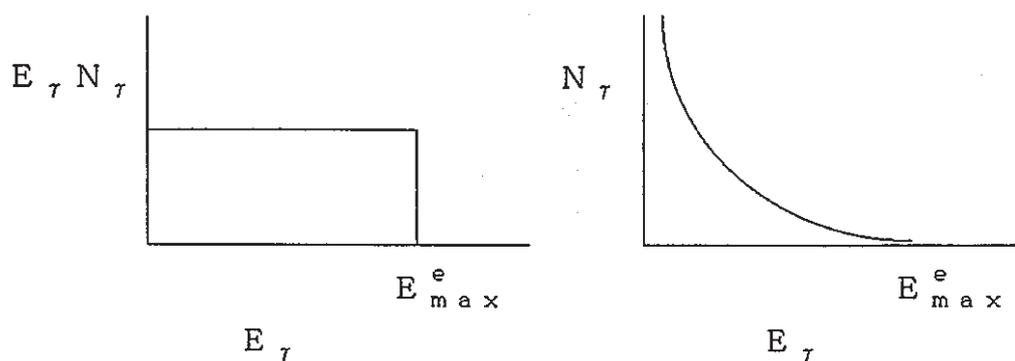
巨大共鳴を引き起こす  $\gamma$  線 ( $10 < E_\gamma < 20 \text{ MeV}$ ) 生成の最適電子線エネルギーを求める。簡単なモデル計算をするために以下の仮定をしてモンテカルロ法で計算した。

1) 光子エネルギーを  $E_\gamma$ , 光子数を  $N_\gamma$  とした時に

$$E_\gamma N_\gamma = \text{const.}$$

とする。

つまり、光子スペクトルが下図のようになるとする



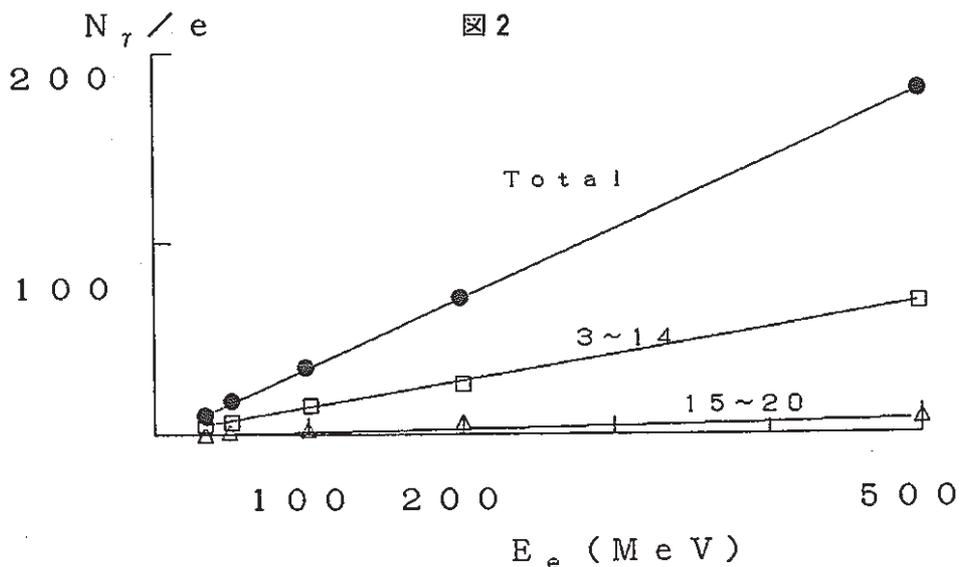
2) 20 MeV以上の $\gamma$ 線は、電子対生成、制動輻射を繰り返す(カスケード過程)、 $e^\pm$ のエネルギーが1 MeV以下になるまで追跡し、その間に $E_\gamma$ が $3 < E_\gamma < 14$  MeV,  $15 < E_\gamma < 20$  MeVの領域にあったものの数を数える。

3) 電子線を $\gamma$ 線に変えるコンバーターは無限の大きさのものとする。

これらの仮定の下に行なった計算の結果を、表1、図2に示した。

表1

$E_e$ (MeV)	Total	3~14	15~20 MeV
30	10	4	0.4
50	17	7	0.7
100	35	14	1.4
200	71	27	2.8
500	179	68	7



以上の評価の結果、必要なエネルギーの $\gamma$ 線発生数は入射電子のエネルギーにおおよそ比例することが分かった、つまり $^{137}\text{Cs}$ を1原子消滅するのに要する電子のビームエネルギーは、電子の加速エネルギーによらずほぼ一定であり、加速エネルギーは、他の要素（ $\gamma$ 線発生密度、加速器技術、等）の要請に基づいてきめればよい。

上記の条件の下では、仮に100 MeV電子線を使った場合、15～20 MeVの $\gamma$ 線は1電子当り1.4個発生する。（a）、（b）の議論にあわせて10～20 MeVの領域でとると1電子当り3.7個という値が得られる。（この数値に関しては、その後、EGS4プログラムを使った計算で1.7という値がでている。（小無）この3.7と1.7の差は使った制動輻射スペクトルの違いに因るものと思われる。）

以上（a）～（c）の評価の結果、 $^{137}\text{Cs}(\gamma, n)$ 反応を起こす1本の $\gamma$ 線を生成するに要する電子ビームのエネルギーとして、

$$W_e^{\gamma} = 100 \times 67 / 3.7 = 1811 \text{ MeV}$$

が得られる。

2 C 100万kW軽水炉1基の $^{137}\text{Cs}$ 発生量  
(1987年 原子力発電便覧 参照)

100万kW <sub>e</sub>	… …	1 GW <sub>e</sub>
許可出力	… …	0.77 GW <sub>e</sub>
稼働率	77%	0.59 GW <sub>e</sub>
熱・電気変換効率	33%	1.79 GW <sub>th</sub>

$$\begin{aligned}
 & 1.1 \times 10^{22} \text{ MeV/s} \\
 & = 5.6 \times 10^{19} \text{ fis/s} \\
 (\text{}^{137}\text{Cs生成率} = 6\%) \\
 & = 3.4 \times 10^{18} \text{ 個/s}
 \end{aligned}$$

つまり、生成率と $^{137}\text{Cs}$ の核変換率を等しくするには、100万kW軽水炉1基に対して核変換に有効な粒子線を $3.4 \times 10^{18} \text{ s}^{-1}$ 生成しなければならない。因みに、この数字は $^{137}\text{Cs}$ の年間生成量に直すと25kg、即ち $2.18 \times 10^6 \text{ Ci}$ となる。

2 D 有効 $\gamma$ 線生成に必要な電子数

今、( $\gamma, n$ )反応に有効な1本の $\gamma$ 線を100MeV電子を使って生成する場合を考えると、2-1B、(b)、(c)で評価したように、

$$100\text{MeV電子1個当り}\gamma\text{線生成率} \dots\dots 3.7\gamma/e$$

$$\overline{\sigma}_n / (\overline{\sigma}_n + \overline{\sigma}_a) = 67$$

から、無限大の標的で

$$67 / 3.7 = 18$$

から、無限大の標的で

$$67 / 3.7 = 18$$

となり、100 MeV電子が18個必要である。

従って、1 Aの電流が $6.25 \times 10^{18}$  e/sであることを考慮すると、

$$3.4 \times 10^{18} \times 18 / 6.25 \times 10^{18} \sim 10 \text{ A}$$

電力にして

$$100 \text{ MeV} \times 10 \text{ A} = 1000 \text{ MWe}$$

を必要とすることになる。(  $^{137}\text{Cs}$  の発生量は、590 MW発電時のものであることに注意)

ここでも、3.7の代わりに前述の1.7を用いると、夫々21 A、2100 MWeとなる。

## 2 E エネルギーバランス

2 A ~ 2 D の議論で明かになったことは、光核反応では、590 MW発電した時に生じた $^{137}\text{Cs}$ を消滅するのに1000 MWe (或は、2100 MWe) の電力を要するというので、換言すれば、 $^{137}\text{Cs}$ を一原子消滅した時に原子炉内には、新たな $^{137}\text{Cs}$ を1.8個 (或は、3.6個) 生成しているということである。従って、エネルギーバランスは成立しない。

## 3 光核反応以外の方法に対する考察

- A) 重水素 (D) 又はベリリウム (Be) の ( $\gamma$ , n) 反応で得られる中性子での (n,  $\gamma$ ) 反応を使う。
- B) 高エネルギー陽子による核破碎反応を使う。
- C) 高エネルギー陽子による核破碎反応で生じた中性子の (n,  $\gamma$ ) 反応を使う。
- D) 原子炉による方法。
- E) 高速中性子 (14 ~ 15 MeV) による (n, 2n) 反応を使う。

これらの方法について、以下に、過去の議論を踏まえて夫々の方法を概観する。

### 3 A D, Be ( $\gamma$ , n) 反応中性子での (n, $\gamma$ ) 反応

$\gamma$  線の生成には、電子の制動輻射が効率の良い方法であり、制動輻射では、低エネルギー  $\gamma$  線が多く発生する。一般に  $^{137}\text{Cs}$  等の原子核では反応の Q 値が 6 ~ 8 MeV と高く、低エネルギー  $\gamma$  線を ( $\gamma$ , n) 反応に使うのは有効でないが、D と Be では Q 値が夫々 2.23、1.67 MeV と非常に低く ( $\gamma$ , n) 反応による中性子発生源として適している。この場合 2. から明かなように ( $\gamma$ , n) 反応断面積と競争過程の反応断面積の比が大きいものが有利である。

図 3 ~ 4 と Nucl. Data Table 7 (1970) 565 から ( $\gamma$ , n) 反応に有効なエネルギー領域  $E_{\gamma} = 3 \sim$

14 MeV について平均をとると、

	D	Be
$\overline{\sigma}(\gamma, n)$	1.8 mb	1.2 mb
$\overline{\sigma}(\text{compton})$	120 b	480 b
$\overline{\sigma}(\gamma, n) / \overline{\sigma}_c$	0.015	0.0025

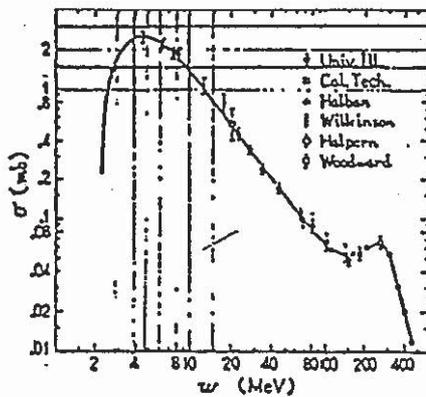


図3

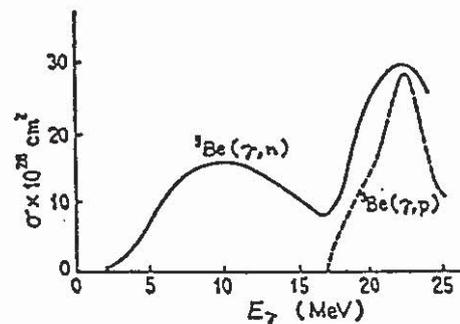


図4

となり、Dを使うのが有利である。（但し、標的として純粋なDを使うことは困難なので、重水にした場合には酸素の影響と密度の点から金属Beが有利になる可能性が高い。）

以下では、仮に、純粋なDが標的に出来たとして評価する、100 MeV電子1個当りの3~14 MeV  $\gamma$ 線生成数を2B-1(c)と同様にして求めると14となる（EGS4では8（小無））。しかし、コンプトン散乱では $\gamma$ 線は無くならず散乱後も有効なエネルギー領域に生き残る確率があり、それをモンテカルロ法で評価すると3.6回となった。

以上から、100 MeV電子の制動放射 $\gamma$ 線を使ってD( $\gamma, n$ )反応で中性子を生成するのに要するエネルギーは、

$$100 / 14 \times 0.015 \times 3.6 = 132 \text{ (MeV)}$$

(ここで、 $\gamma$ 線発生数として14の代わりに8をとると 231 MeVとなる。)

従って、

- 1) 純粋なDが標的として使える、
- 2) 発生した中性子が全て有効に核変換につかわれる、  
(体系から逃げるものが無く、且つ、他の核種が中性子を捕獲することも無い、)

と仮定すれば、 $^{137}\text{Cs}$ が1原子発生した時に生ずるエネルギーの13.2%(23%)のエネルギーで $^{137}\text{Cs}$ を1原子消滅できることになる。

この場合、必要なビーム電流は、

$$3.4 \times 10^{18} / 14 \times 0.015 \times 3.6 \times 6.25 \times 10^{18} \\ = 0.72 \quad (\text{A}) \quad (\text{or } 1.26 \quad \text{A})$$

従って、必要な電力は、

$$100 \times 0.72 = 72 \quad (\text{MW}) \\ (\text{or } 126 \quad \text{MW})$$

### 3B 高エネルギー陽子で $^{137}\text{Cs}$ 原子を核破砕する場合

この方法は1972年に一宮(放射線 Vol. 1 (1974) 8)により提案され、10 GeV陽子により $^{137}\text{Cs}$ を核変換する場合について評価している。

その評価によれば、

- |                 |     |      |
|-----------------|-----|------|
| 1) 反応の全断面積      | ... | 3 b. |
| 2) 一次反応で発生する陽子数 | ... | 6個/p |

同じく 中性子数	… …	9 個 / p
(これら陽子・中性子の平均エネルギー	…	0.6 GeV)
3) 0.6 GeV 核子 1 個当り二次反応による		
蒸発陽子数	… …	6 個 / 核子
同じく中性子数	… …	10 個 / 核子

これらの中、一次陽子と中性子は100%、二次陽子以下は10%が $^{137}\text{Cs}$ の変換に利用出来るとして

$$1 \times (9 + 10 \times 6 + 10) + (6 \times 6 + 6) \times 0.1 = 85$$

即ち、10 GeV陽子1個で85個の $^{137}\text{Cs}$ が消滅出来るとしている。

この時、 $^{137}\text{Cs}$  1原子消滅するのに費やしたエネルギーは、

$$10000 \text{ MeV} / 85 = 118 \text{ MeV}$$

つまり、 $^{137}\text{Cs}$  1原子生じた時のエネルギー1000 MeVの

12%になる。

この場合に必要な10 GeV陽子の電流は、

$$3.4 \times 10^{18} / 85 \times 6.25 \times 10^{18} = 0.0064 \quad (\text{A})$$

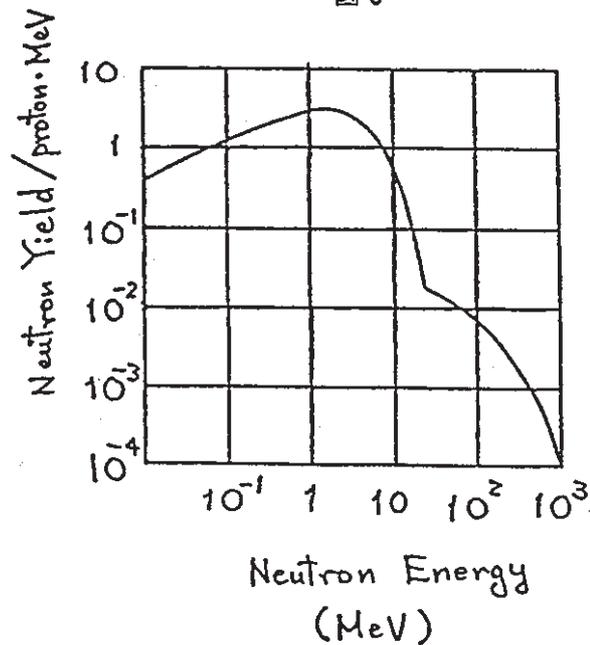
6.4 mA 電力は、128 MW となる。

但し、この評価については高橋等がBNL-28779 (1980)において再評価して上記85のかわりに61.2という値を得ており、それを使うと上記の数値は夫々163 MeV, 8.9 mAとなる。

3 C 高エネルギー陽子による核破砕で生じた中性子による  
 (n, γ) 反応を使う。

この方法で生成する中性子のエネルギースペクトルについては  
 計算があり図5の様になっている。 $^{137}\text{Cs}(n, 2n)$  反応の  
 Q値(7.9 MeV)より高いエネルギーの中性子はそれ以下のもの  
 に比べて2桁少なく、 $^{137}\text{Cs}(n, 2n)$  反応の断面積が  
 1.8 b (ピーク値)と $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)$  反応断面積0.11 b  
 に比べて2桁大きいことを相殺  
 してしまうので、結局は  
 (n, γ) 反応での核変換  
 を考えることになる。

図5



この方法に関する評価は高橋等のBNL 28779 (1980) に詳しいが、それによると中性子発生数は、

表 2

陽子エネルギー (GeV)	標的	陽子 1 個当り 中性子発生数
1	U	110
1	Pb	35
1.5	Pb	44.4

より实际的に重水 ( $D_2O$ ) と酸化セシウム ( $Cs_2O_2$ ) を 50 cm 幅のスラブとして  $D_2O$  と  $^{137}Cs_2O_2$  の混合比を変えて計算し、体系から逃げる中性子を考慮して、最も良い条件の時に 1.5 GeV 陽子 1 個当りの  $^{137}Cs$  変換の効率として 25.0 を得ている。

変換効率として 25 をとると  $^{137}Cs$  1 原子変換に要するエネルギーは、

$$1500 \text{ MeV} / 25 = 60 \text{ MeV}$$

1.5 GeV 陽子の必要な電流は、

$$\begin{aligned} & 3.4 \times 10^{18} / 25 \times 6.25 \times 10^{18} \\ & = 0.022 \text{ (A)} \end{aligned}$$

電力は、

$$1500 \times 0.022 = 33 \text{ (MW)}$$

### 3 D 原子炉での (n, γ)

原子核の反応の中で核分裂は極端に Q 値が高く発熱量が大きい。従って、原理的には、エネルギーバランスを成立させるのに最も容易な方法である。他の方法との比較のために数値的に見ると、

1 核分裂当りの発生エネルギー	… …	200 MeV
$^{235}\text{U}$ (n, f) の中性子		
発生数	… …	2.2 個
$^{137}\text{Cs}$ 1 原子生成する核分裂数	…	16.7
$^{137}\text{Cs}$ 1 原子生成する時の		
発生中性子数	… …	36.7 個
連鎖反応に使われる中性子数	… …	16.7 個
核変換に使える可能性のある		
中性子数	… …	20 個

従って、数値的には  $^{137}\text{Cs}$  1 原子生成した時に 1000 MeV のエネルギーを発生しながら、20 個の  $^{137}\text{Cs}$  を核変換出来る可能性を有している。

見方を変えると、100 万 kW · LWR から (590 MW 発電した時) 出てくる  $^{137}\text{Cs}$  を消滅する時、

$$\begin{aligned}
 W_t &= 3.4 \times 10^{18} \times 200 \\
 &= 6.8 \times 10^{20} \text{ MeV/s} \\
 &= 1.09 \times 10^8 \text{ J/s} \\
 &= 109 \text{ MW}_t
 \end{aligned}$$

$$W_e = W_t / 3 = 36 \text{ MW}_e$$

の電力を発生し、この時、新たに生成する $^{137}\text{Cs}$ は、

$$3.4 \times 10^{18} \times 0.06 = 2 \times 10^{17} \text{ atoms}$$

これは、消滅したものの6%を新たに生ずるということで、数値的には、36 MW 発電しながら $^{137}\text{Cs}$ を約1/20に減少させ得る可能性を有するということである。

勿論、実際の原子炉で中性子がこれほど有効に利用できるわけではなく、例えば、M. Taube (Nucl. Sci. Eng. 61 (1976) 212) の検討結果は、エネルギーバランスとして、23 GWの発電で生じた $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ を7 GW発電しながら消滅することになっている。

しかしながら、次のような問題点がある、

- 1)  $3.83 \times 10^{16}$  の flux の炉ができるか？
- 2) 1) の flux でも $^{137}\text{Cs}$ の半減期は約9年である。
- 3)  $^{137}\text{Cs}$ が特に(n,  $\gamma$ )反応断面積が小さいので、他の核種に中性子が消費されるので $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ の質量分離が必要になる。
- 4)  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ を消すのに核分裂を使うと、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ は6%程度に減らせるが、他にTRU等生成しているので、全体として弱害化になっているか十分に検討する必要がある。

結局、M. Taubeは変換速度が遅い点と、RI取扱によるリスク増加を考えて、悲観的な結論を下している。

### 3 E (n, 2n) 反応を使う方法、

この方法は、核融合炉を核消滅に使うという発想で過去に議論されている。この反応に使う中性子の運動エネルギーは、 $^{137}\text{Cs}$  (n, 2n) 反応のQ値 (7.9 MeV) 以上でなければならず、最も適した中性子発生反応として  $\text{T}(d, n)^4\text{He}$  反応が考えられる。この反応を使った核融合炉で得られる 14 MeV 中性子を核変換に使う方法は、例えば W. C. Wolfenbauer 等の検討結果 (BNWL-1772 (1973)) では有望なものとなっている。しかしながら核融合炉を使う方法は、核融合炉が実現していないのでその実現を待たねばならない。

唯、TD 反応に見られるように、これら軽い核の融合反応は発熱反応であり、核分裂に比して発生エネルギーが約 20 MeV と小さいが、他の加速器を用いた方法 (3A - 3C) で検討した吸熱反応に比べればエネルギーバランス上、はるかに工夫の余地が大きいと考えられる。更に、 $^{137}\text{Cs}$  の反応断面積が 1.8 b (ピーク値) と他の核種と同程度で (n,  $\gamma$ ) 反応に比べて要求される中性子線束が 1 桁少なくすむのも利点である。

ここでは、加速ビームを使った核融合について考えてみる。

#### 3 E - 1 高速中性子発生法

高速中性子発生法としては、TD 反応が良く知られており、この反応はQ値が 17.8 MeV と高く、反応後 14 MeV 中性子と 3.5 MeV  $\alpha$  粒子を生ずる。図6の励起関数から分かる通り低エネルギーの  $d^+$  で 5 b (ピーク値) という大きな断面積を持ち高速中性子発生には非常に適している。しかしながら標的の T (三重水素) が半減期 12.6 年の放射性核種なので、極めて高い効率で中性子

発生を行なわない限り半減期30年の $^{137}\text{Cs}$ を消滅した時にそれ以上のTを残しては意味がない。又、必要なTの量も $^{137}\text{Cs}$ 生成量と見合う量としては $5.67 \times 10^{27}$  atoms/y (28kg,  $2.8 \times 10^8$  Ci)と核融合炉に匹敵し、あまり实际的とは言えない。

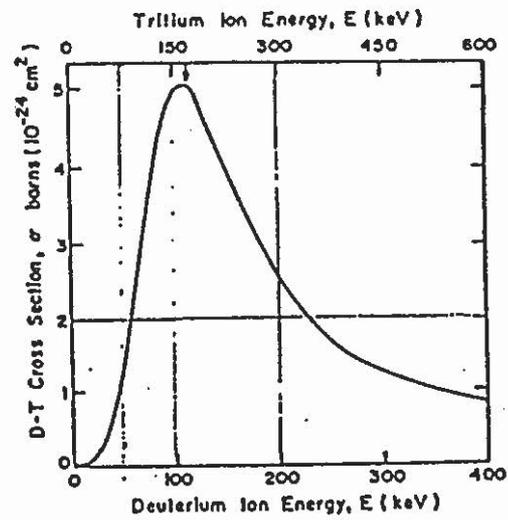


図6

それに代わる反応として、ここでは $^7\text{Li}(d, n)^8\text{Be}$ 反応を考えてみる。

この反応はQ値が15MeVと比較的大きな発熱反応で反応断面積は図7から分かる通り $E_d = 0.6 \sim 1.0$ MeV領域で平均すると約35mb/sr、角度分布はほぼ一様と考えて良いので全空間では約440mbとなる。この反応で得られる中性子のエネルギースペクトルは図8に示した通り12MeVと15MeV付近にピークを持つもので、いずれも(n, 2n)反応に利用出来るエネルギーである。

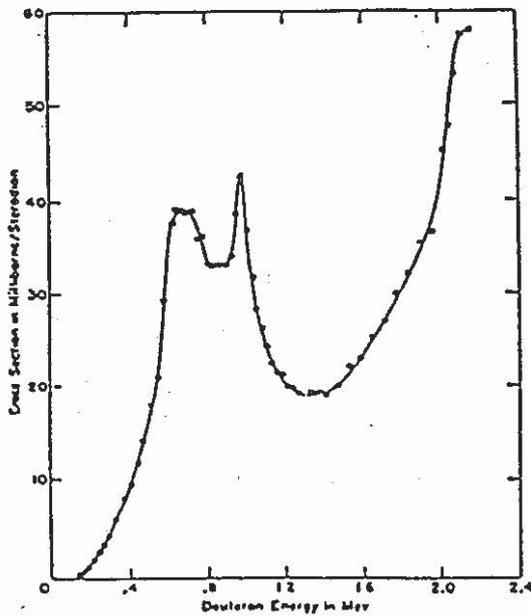


図7

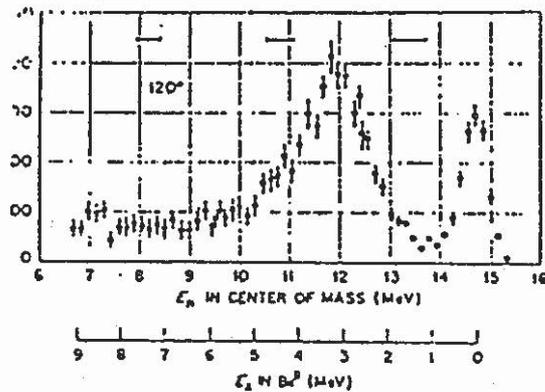
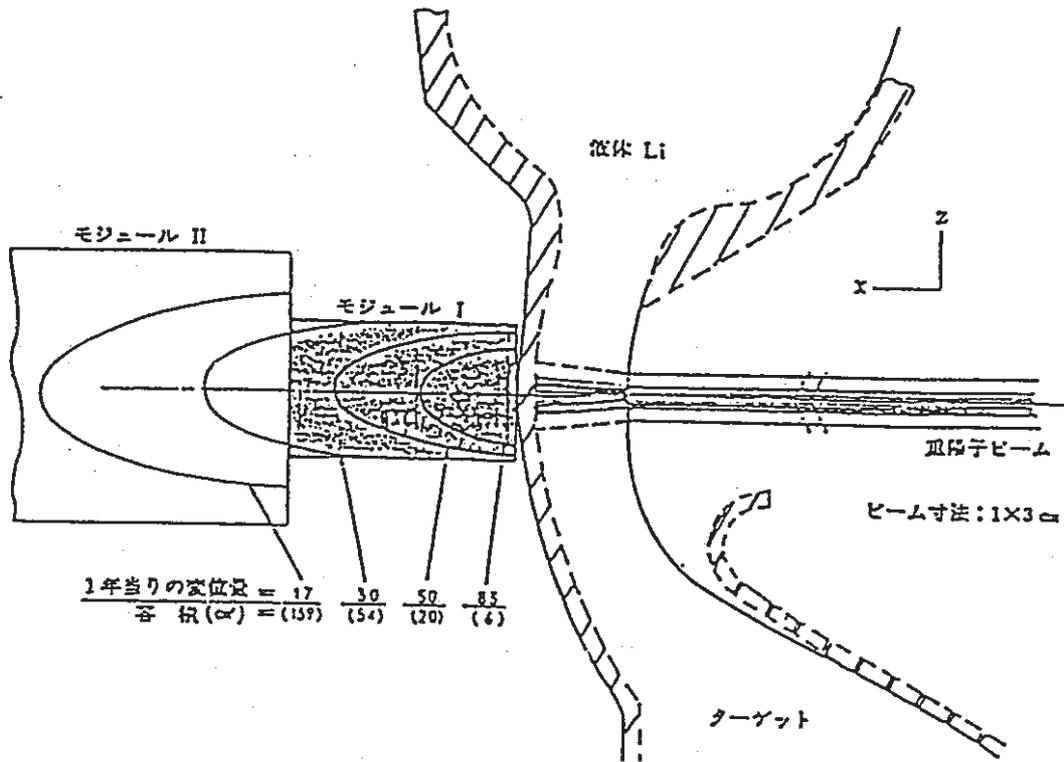


図8

3E-2 (n, 2n) 反応で<sup>137</sup>Csを核変換する場合の  
エネルギーバランス

ここでは、<sup>137</sup>Csの100万kW・LWRでの発生率  
 $3.4 \times 10^{18}$  atoms/sに見合う高速中性子を発生した時  
 に必要なエネルギーの評価をする。従来考えられてきた方法で参考  
 になるのは、米国ハンフオード研究所のFMIT (Fusion  
 Material Irradiation Test) 計画で、  
 20-35 MeVに加速したd<sup>+</sup> 100mAを液体<sup>7</sup>Liに照  
 射し  $\phi_n > 10^{14} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ を得ることを計画した(図9参照  
 原子力学会誌 23 (1981) 16、NIM 145 (1977)  
 49)



FMIT ターゲット・システム

図9

この方法は、エネルギー効率を最適化したものでなく前方に集中した中性子束を得ることを目的としたものであるが、仮に1個の中性子発生に要するエネルギーを求めてみると、

$$34 \text{ MeV } d^+ \text{ での中性子収率 } \dots\dots 1.5 \times 10^{11} \text{ n} / \mu\text{C} \cdot \text{s r}$$

有効立体角を1srとして

$$1 \text{ 個の } d^+ \text{ 当りの中性子発生個数 } \dots\dots 1.5 \times 10^{11} / 6.25 \times 10^{12} = 0.024$$

$$1 \text{ 個の中性子発生に要するエネルギー } \dots\dots 34 \text{ MeV} / 0.024 = 1417 \text{ MeV}$$

これは、 $^{137}\text{Cs}$  1原子生成する時に発生するエネルギー

1 GeVよりも大きくエネルギーバランスは成立しない。

因みに、この方法で核変換するとすれば必要なビーム電流は、

$$3.4 \times 10^{18} / 1.5 \times 10^6 = 23 \text{ (A)}$$

### 3E-3 エネルギーバランス改善の手法

FMITの例で見たように、一般に荷電粒子で物質を照射すると、荷電粒子は物質中の電子と多重散乱し多くの原子を電離することによってエネルギーを失い、そのエネルギーは熱エネルギーとして物質の温度上昇に消費される。この機構が、加速器を使った核変換法でエネルギーバランスの成立しない大きな要因になっている。それを避けるには、標的を完全電離したイオンにすれば良い。イオン同志の衝突ではイオンのエネルギー損失はクーロン散乱による標

的核の反跳エネルギーのみになる。そして反跳イオンはイオン減速法により電気エネルギーとして回収出来る可能性がある。

今、一例として ${}^7\text{Li}^{3+}$ イオンを磁場で閉じ込めた標的を1 MeV程度の $\text{d}^+$ イオンで照射する場合を考えてみる。

${}^7\text{Li}^{3+}$ イオンの数	----- n 個
$\text{d}^+$ ビーム粒子数	----- $\phi \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$
反応断面積	----- $\sigma \sim 0.44 \text{ b}$
中性子収量	----- $Y_n \text{ s}^{-1}$

とすると、

$$Y_n \sim \sigma n \phi$$

ここで、 $Y_n$  として  $3.4 \times 10^{18}$  以上を得るには、

$$n \sim \phi \text{ として}$$

$$\begin{aligned} n \phi &> 3.4 \times 10^{18} / 0.44 \times 10^{-24} \\ &= 7.7 \times 10^{42} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} n \sim \phi &> 2.8 \times 10^{21} \\ & (= 445 \text{ A}) \end{aligned}$$

となり、ビームエネルギーとして445 MW以上になる。これは、空間電荷制限等から現実的でない。しかしクーロン散乱では反応を起こした $3.4 \times 10^{18}$ 個のイオン以外は、ほとんど全てのイオンがその初期エネルギーの $10^{-3}$ 以下のエネルギー損失であるので再利用が可能である。或は、電気エネルギーとして回収すれば加速器で消費するエネルギーをビームエネルギーの $10^{-3}$ 程度にすることも可能であろう。

d+ビームを再利用する方法では、一回の衝突で  $3.4 \times 10^{18}$  の反応を起こしているとして、

$$2. \quad 8 \times 10^{21} / 3.4 \times 10^{18} \sim 10^3$$

つまり  $10^3$  回衝突させれば全てのイオンを使いきることになる。  
その時電流は、

$$445 \text{ A} / 10^3 = 445 \text{ mA}$$

$$\text{ビームエネルギー} = 445 \text{ kW}$$

となる。

但し、この時  $1 \text{ MeV } d^+$  の速度が約  $10^9 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$  であることを考慮すると、通常のスレージリングでは周回路を  $10 \text{ m}$  として  $1 \mu\text{s}$  程度のパルスにする必要がある。連続ビームにするには例えば図10に示したような軌道 (MIGMA軌道; NIM 111 (1973) 213) が考えられる。

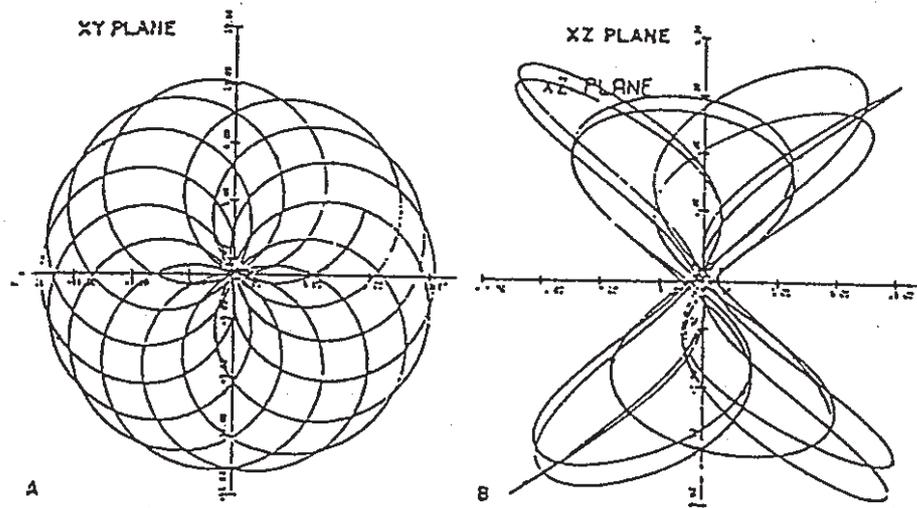


図10

他方、 標的イオン数を上記の  $2.8 \times 10^{21}$  にとるには空間電荷制限によって非常に大きな空間を占めることが予想される。より現実的には、イオン密度を  $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  (300 mA 相当)、標的領域を 5 cm 程度にとり有効イオン数を  $10^{19}$  程度にとることが考えられる。

又、衝突回数はクーロン散乱でのエネルギー損失の評価から  $10^4$  回程度が限度と思われるので、この時必要な  $d^+$  ビーム電流は、

$$3.4 \times 10^{18} = 0.44 \times 10^{-24} \times 10^{19} \times \phi \times 10^4$$

から

$$\phi = 7.7 \times 10^{19} \quad (\sim 13 \text{ A})$$

従って、中性子一個の生成に要したエネルギーは、

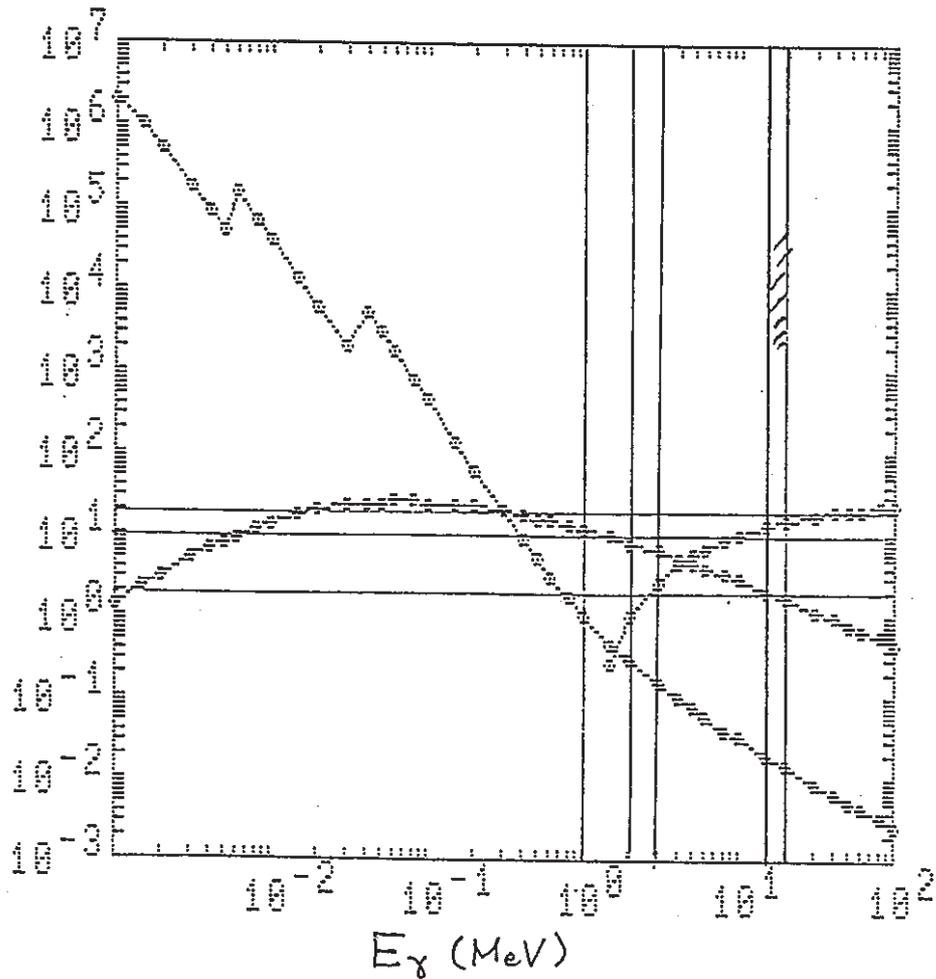
$$\begin{aligned} 1 \text{ MeV} \times 7.7 \times 10^{19} / 3.4 \times 10^{18} \\ = 22.6 \text{ MeV} \end{aligned}$$

この時、ビームエネルギーは 13 MW になる。又、供給すべきエネルギーは加速器の効率を 50% とすると 26 MW になる。

#### 4. 競争過程に関する考察

$\gamma$ 線を物質に照射した時に核反応と競合し、核反応の観点からは、 $\gamma$ 線を無駄に消費する過程として、光電効果、コンプトン効果、電子対生成が考えられる。例えば、Csを標的にした場合、図11に示したように $\gamma$ 線のエネルギーによって、その反応断面積が変化する。

図11



光核反応で核変換する場合に利用する巨大共鳴の( $\gamma$ , n)反応では、Cs標的に対して15 MeV程度の $\gamma$ 線エネルギーを必要とするが、このエネルギーの $\gamma$ 線では前記の過程の中、電子対生成が主に効いている。この過程は、光電効果とコンプトン効果が核外電子と $\gamma$ 線の相互作用であり、原子核を裸の多価イオンにすれば除けるのにたいして、主に原子核のクーロン場との相互作用が原因であるため、制御は極めて困難である。

我々の調査では、単結晶のチャネリング現象で、電子対生成確率の結晶軸に対する角度依存性に僅かに数%の変化を見いだした報告がある（図12参照 G. D. Palazzi RMP 40 (1968) 611）程度である。唯、変化が小さいことと、標的が単結晶であること、更には極めて平行度の良い $\gamma$ 線が必要なこと等を考えると、現段階では全く実用的でない。

図 1 2

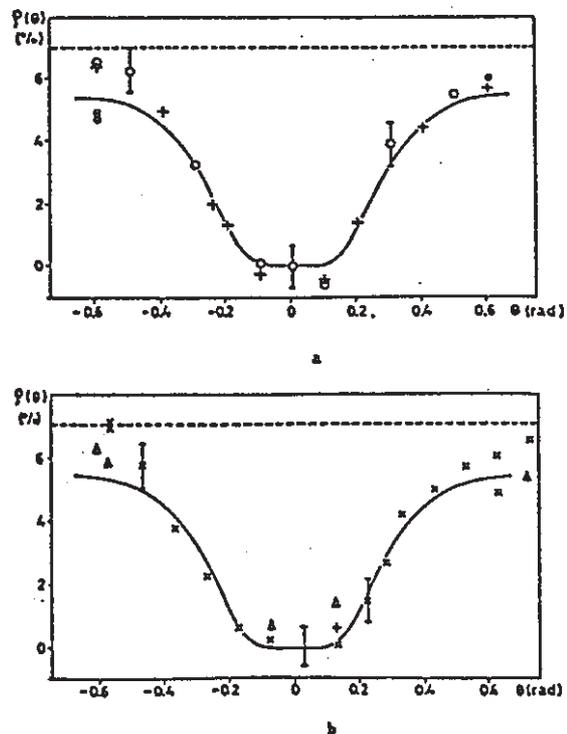


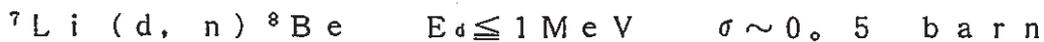
FIG. 16. Relative variation of the electron pair production cross section in a silicon single crystal versus  $\theta$  (angle between  $\gamma$ -ray direction and the crystal axis [100]). The solid line represents the function  $\eta(\theta)$  given in the text. The central energy of the incident photon is  $K=910$  MeV. The experimental points represent  $\rho(\theta)$  given in the text. Different runs of measurements are related to different shape of the dots. Parts (a) and (b) refer to rotations of the crystal about the horizontal and vertical axis, respectively (see the text or Ref. 10). The  $\alpha$  value is unknown.

## 5. 新しい型の核消滅用中性子発生装置

ここまでの検討の結果、我々は放射性廃棄物（特に、 $^{137}\text{Cs}$ 等核分裂生成物）の核変換による消滅処理には、 $(n, 2n)$ 反応を利用するのが最善であろうと考えるに到り、そのためには核融合炉が実現していない現在の時点では、新しい型の中性子発生装置を考案することが必要だとおもわれる。そこで我々の案を以下に示すことにする。

先ず、装置の概念図を図13に、そこで考えている重陽子イオンの軌道を図14に示した。

### A) 高速中性子発生反応



注)  $\text{T} (d, n) {}^3\text{He}$  反応のほうが  $E_d \sim 0.1 \text{ MeV}$

$\sigma \sim 5 \text{ barn}$  と全体として100倍有利だが、トリチウムの毒性と供給量に問題があり、現段階では  $\text{Li} + d$  反応で考えるものとする。

### B) この方法の長所

1)  $^{137}\text{Cs}$  に対する反応断面積が大きい。

$$\sigma (n, 2n) = 6 \sigma (\gamma, n) = 18 \sigma (n, \gamma) \quad \text{for } {}^{137}\text{Cs}$$

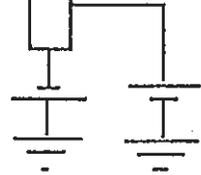
${}^7\text{Li}^{3+}$  | 電子銃

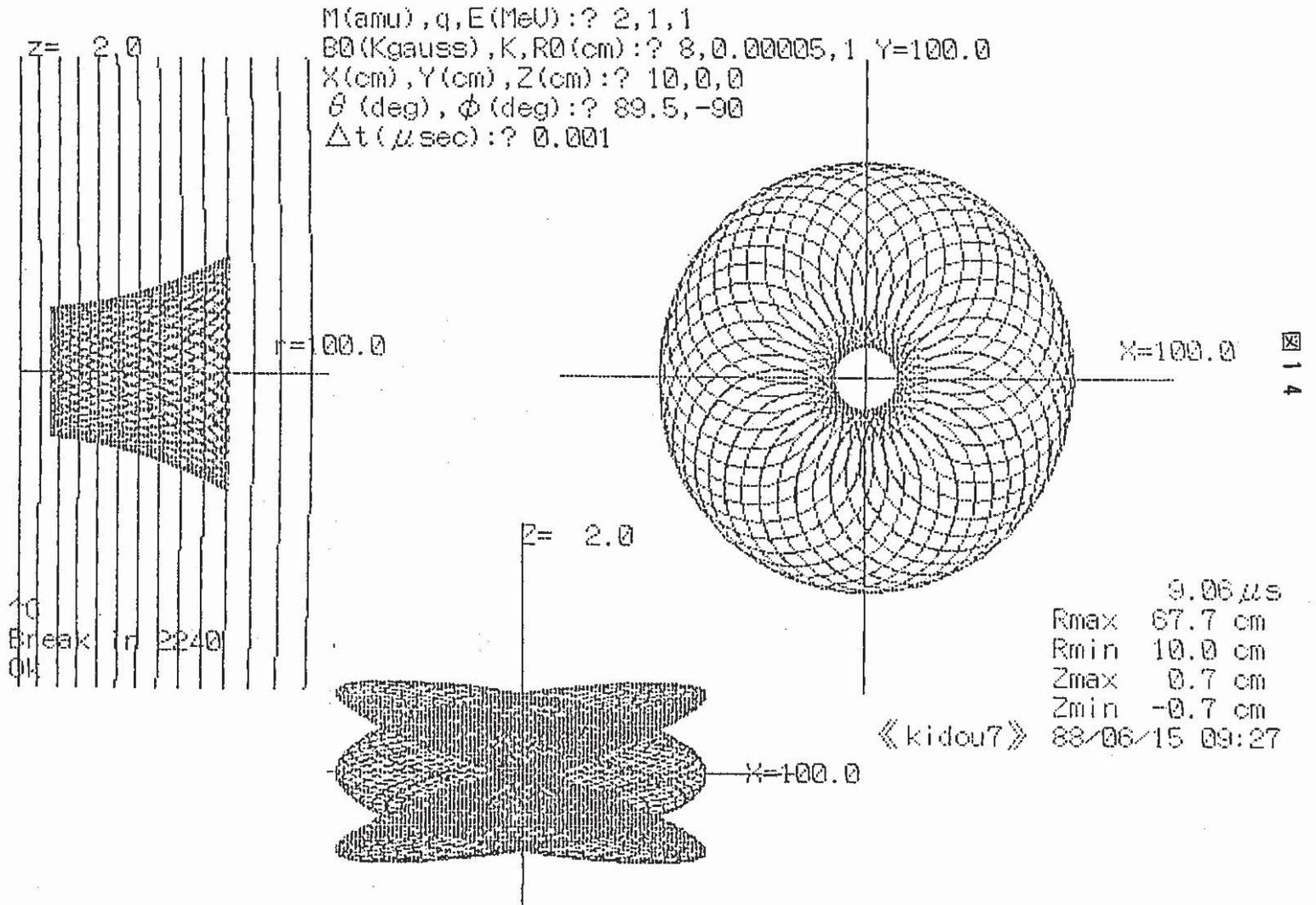
真空ポンプ ←

$\text{D}_2^+$  静電加速器 ←

Li-ブランケット

コイル





ロ) 必要なビーム電力が小さい。

$$\text{Minimum: } 2 \text{ MeV} \times 0.27 \text{ Amp} = 0.54 \text{ MW.}$$

ハ) 発熱反応でありエネルギー・バランスがとりやすい。

$$\text{発生エネルギー} / \text{入力エネルギー} \sim 20$$

ニ) 発熱・ビーム取り出し窓・壁負荷の問題が無いが、有っても極少ない。

### C) 諸評価

イ) 必要なビーム量

$$3.4 \times 10^{18} \text{ particle/sec}$$

$$\rightarrow 3.4 \times 10^{18} \text{ neutron/sec}$$

$$\rightarrow 3.4 \times 10^{18} / 2 \times 6.25 \times 10^{18} = 0.272 \text{ mA}$$

$$2 \text{ MeV} \times 0.272 \text{ Amp} = 0.544 \text{ MWe}$$

ロ) 必要な中性子線束を得るためのビーム密度

円周上で発生する線束と中心で得られる線束の関係は、

$$n = 2\pi r \cdot n_0$$

$$r = 2.5 \text{ cm}$$

$$n_0 = 10^{16} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$$

(この時半減期は、 $\sim 1$ 年)

$$n = 1.5 \times 10^{17}$$

全ての重水素が中性子発生に使われたと仮定すると、

$$I = 1.5 \times 10^{17} / 2 \times 6.25 \times 10^{18}$$

$$= 12 \text{ mA/cm}^2 \text{ (Minimum)}$$

ハ) 必要な ${}^7\text{Li}^{3+}$  イオンの密度と全量

衝突回数:

$$\text{軌道半径} \sim 25 \text{ cm}$$

$$\text{軌道周長} \sim 150 \text{ cm}$$

$$\text{イオン速度} \sim 9.6 \times 10^8 \text{ cm/sec}$$

従って、最大衝突回数は、

$$9.6 \times 10^8 / 150 = 6.4 \times 10^6 \text{ sec}^{-1}$$

中性子収量は、

$$Y = 6.4 \times 10^6 \times \sigma n N$$

1個の重水素イオンから1個の中性子を発生する、つまり、全ての重水素が中性子発生反応に有効に使われたとすると、

$$n = 1 \quad \text{で} \quad Y = 1$$

この時、

$$N = 1 / 6.4 \times 10^6 \times 5 \times 10^{-25}$$

$$= 3 \times 10^{17} \text{ イオン} / \text{cm}^3$$

これは、 $\sim 140 \text{ mA} / \text{cm}^3$  に対応する。

標的の円周長が $\sim 15 \text{ cm}$  とすると、

$$\sim 2.2 \text{ Amp} / \text{cm}^2 \text{ に対応する。}$$

以上の数値では、Liイオン密度が厳しいものと思われるが、中性子収量はビーム・イオン密度と標的イオン密度の積に比例するので、両方でオプティマイズすればよい。

ニ) 最後に、発電の可能性について簡単な評価をしてみると、

発生中性子の $1 / 100$  が核変換に有効に使われたとすると、その時の、発生熱量は、 $\sim 20 \text{ MeV} / n$ 、効率を $1 / 2$ として、

$$3.4 \times 10^{18} \times 100 \times 20 / 2$$

$$= 3.4 \times 10^{21} \text{ MeV} / \text{sec}$$

$$= 567 \text{ MW}_{th}$$

従って、発電量は、

$$567 \text{ MW}_{th} / 3 = 189 \text{ MWe}$$

この時、加速器に要したエネルギーは、

$$0.544 \text{ MWe} \times 100 = 54.4 \text{ MWe}$$

つまり、差引  $135 \text{ MWe}$  の発電が出来ることになる。

もう少し実際的には、重水素イオンの中性子発生効率が  $1/3$  程度の時に必要なエネルギーが全て賄えていると云うことでもある。

#### D) 技術開発の必要な点 と 検討課題

イ)  $D_2^+ \rightarrow 2d^+$  100% dissociation

ロ)  ${}^7Li^{3+}$   $3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  イオン密度の達成

ハ) Li, 電子線 の打ち込み

ニ) Cs 標的の最適条件を求める

ホ) エネルギー回収法

ヘ) 磁場の強度と形状の最適化

## 6. 結論と今後の計画

今回の調査研究では、放射性廃棄物、特に $^{137}\text{Cs}$ 等の核分裂生成物の核変換法に関して光核反応による方法の位置付けを知るために、過去に検討された他の方法との比較検討を行い。光核反応による方法も含めて、これまでに検討された方法については、いずれも原理的な困難、ないしは、実現化までには未だ多くの開発要素を残しており、いま一度原点にたち帰って検討しても遅過ぎることはないと考えるに到った。そこで我々は、原理的には最善と考えられる方法について検討し、今後は、この原理的に優れていると思われる方法についての実現性を検討してゆきたいと考えている。

## 謝 辞

本研究の遂行にあたり全面的にご協力頂きました動力炉核燃料開発事業団に深く感謝致します。

また、研究のそれぞれの段階では、動力炉核燃料開発事業団の光核反応による核変換ワーキンググループの平尾主査、笹尾副主査、天野氏を初めとするグループの皆様、動燃事業団フロンティアグループの小無氏を初めとする皆様にご協力・ご支援頂きましたことをここに感謝致します。理研の河本氏には、新しい型の中性子発生装置に関する検討・計算に関して大変お世話になりました。最後になりましたが理研・放射線研究室の皆様と事務当局のご支援・ご協力に感謝致します。