

超ウラン元素を含む放射性廃棄物の光分解消滅 のための基礎研究

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1987年 3 月

東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター

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)

超ウラン元素を含む放射性廃棄物の 光分解消滅のための基礎研究

中村尚司[※], 山寺 亮[※], 加瀬 健[※], 柴田誠一^{※※}

要 旨

放射性廃棄物中の長寿命放射性核種である超ウラン元素や ^{90}Sr , ^{137}Cs などの核分裂生成物を短寿命または安定な核種に変換する消滅処理の基礎研究として、制動放射線を用いた光核反応による変換について研究した。電子ライナックからの20MeV, 30MeVの電子ビームを白金及び劣化ウランのコンバータにあてて制動放射線を発生させ、それを ^{238}U 及び ^{237}Np の試料に照射して光中性子反応 (γ, n) 及び光核分裂反応 (γ, f) により生成された核種の質量分布を求め、その結果から核変換量を算出した。この実験は光核分裂による核種変換量を求めた最初の実験であり、(γ, f) 反応の断面積から計算で推定した核種変換量とよい一致を示した。

光核反応による消滅処理は巨大共鳴を利用するので、電子エネルギーが数10MeVと低くてよく経済性に優れている点から有望な方法と期待されており、本研究がその開発のための基礎データを提供するものと思われる。

本報告書は、東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンターが動力炉・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：610D176

事業団担当者：天野 一朗（環境資源部環境計画課）

※：東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター

※※：東京大学原子核研究所

Basic Study on the Incineration of Nuclear Wastes Including Transuranium Elements by Using the Photodisintegration

Takashi Nakamura*

Akira Yamadera*

Takeshi Kase*

Seiichi Shibata**

Abstract

For a contribution to the feasibility study of incineration of nuclear waste materials which transmutes the long half-life transuranium and fission products such as ^{90}Sr and ^{137}Cs into the short half-life or stable radionuclides, we studied the transmutation using the photonuclear reactions from the bremsstrahlung radiation. The bremsstrahlung radiation was produced from the platinum and depleted uranium converters bombarded by 20 and 30 MeV electron beams from the electron linac, and was irradiated to ^{238}U and ^{237}Np samples. The cumulative mass yield distributions of radionuclides produced by (γ, n) and (γ, f) reactions in the irradiated samples were observed and the amounts of nuclear transmutation of the original nuclides were estimated from the distributions. This study gives the first experimental results on the amounts of nuclear transmutation due to photofission reaction in absolute values, and the experimental results show good agreement with the calculated results based on the photofission cross section data.

The incineration using photonuclear reactions has a great advantage that the electron energy is so low as several tenth MeV and the cost for construction and operation is relatively low, since it uses the giant resonance. This study will be a useful piece of the basic data for the development of the photonuclear transmutation.

Work performed by Cyclotron and Radioisotope Center, Tohoku University under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation

PNC Liaison: Ichiro Amano (Waste Management Planning Section)

* : Cyclotron and Radioisotope Center, Tohoku University

** : Institute for Nuclear Study, University of Tokyo

目 次

| | |
|---------------------|----|
| 1. 序 論 | 1 |
| 2. 実験方法, 装置 | 4 |
| 3. データ処理, 解析方法 | 7 |
| 3.1 生成核種の同定と定量 | 7 |
| 3.2 入射光子線束の決定 | 10 |
| 4. 実験の結果及び考察 | 13 |
| 4.1 生成核種の質量分布と放射能減衰 | 13 |
| 4.2 光核分裂による核変換量 | 15 |
| 5. 今後の研究計画 | 19 |
| 引 用 文 献 | 21 |
| 謝 辞 | 24 |
| 図 表 | 25 |

図 表 目 次

- Table 1 Physical Characteristics of flux monitor foils, catcher foils and target foils
- Table 2 Experimental conditions and the measured values of bremsstrahlung flux densities
- Table 3 Measured values of activation rates of photofission and photoneutron products
- Table 4 Comparison of experimental and calculated results of amounts of photonuclear transmutation
- Fig. 1 Time dependence of the toxicity of high level nuclear waste materials⁽³⁰⁾
- Fig. 2 Partial and total photonuclear cross sections $\sigma(\gamma, n)$, $\sigma(\gamma, 2n)$, $\sigma(\gamma, f)$ and σ_{total} of ^{238}U and ^{237}Np ⁽²⁰⁾
- Fig. 3 Plan view of the electron linac facility of University of Tokyo and experimental arrangement
- Fig. 4 Measured gamma-ray spectrum of fission products deposited on the aluminum catcher foil contacted on a ^{238}U foil bombarded by the 30 MeV bremsstrahlung
- Fig. 5 (a)(b) Example of the analysis of gamma-ray spectrum from the pure Ge detector with the KEI-11EF computer code
- Fig. 6 Measured peak efficiencies of the pure Ge detector at three source positions, $d=0, 10, 20$ cm
- Fig. 7 Photonuclear cross section of $^{197}\text{Au}(\gamma, n)^{197}\text{Au}$ ⁽²⁶⁾ and the bremsstrahlung spectrum of thin platinum target bombarded by 20 MeV electrons calculated from the Schiff's formula⁽²⁷⁾
- Fig. 8 Mass yield distribution of fission products in Experiment 1 (30 MeV bremsstrahlung from Pt on ^{238}U)
- Fig. 9 Mass yield distribution of fission products in Experiment 2 (30 MeV bremsstrahlung from U on ^{238}U)
- Fig. 10 Mass yield distribution of fission products in Experiment 3 (30 MeV bremsstrahlung from Pt on ^{237}Np)

- Fig. 11 Mass yield distribution of fission products in Experiment 4
(20 MeV bremsstrahlung from U on ^{238}U)
- Fig. 12 Mass yield distribution of fission products in Experiment 5
(20 MeV bremsstrahlung from Pt on ^{238}U)
- Fig. 13 Mass yield distribution of fission products in Experiment 6
(20 MeV bremsstrahlung from Pt on ^{237}Np)
- Fig. 14 Decay of induced radioactivity after irradiation in Experiment 1
(30 MeV bremsstrahlung from Pt on ^{238}U)
- Fig. 15 Decay of induced radioactivity after irradiation in Experiment 2
(30 MeV bremsstrahlung from U on ^{238}U)
- Fig. 16 Decay of induced radioactivity after irradiation in Experiment 3
(30 MeV bremsstrahlung from Pt on ^{237}Np)
- Fig. 17 Decay of induced radioactivity after irradiation in Experiment 4
(20 MeV bremsstrahlung from U on ^{238}U)
- Fig. 18 Decay of induced radioactivity after irradiation in Experiment 5
(20 MeV bremsstrahlung from Pt on ^{238}U)
- Fig. 19 Decay of induced radioactivity after irradiation in Experiment 6
(20 MeV bremsstrahlung from Pt on ^{237}Np)

1 序論

使用済燃料の再処理工場において発生する高レベル放射性廃棄物中には、 α 線を放出し、毒性も強い長半減期（半減期数十年以上）の放射性核種が多種類含まれている。現在考えているような廃棄物の地層処分では、これら長寿命放射性核種が多量に蓄積されることが予想される。これら放射性核種による毒性は、下式で表され、

$$P = \sum_i P_i = \sum_i Q_i / MPC_i \quad (1)$$

Q_i : i 核種の量 MPC_i : i 核種の最大許容濃度

その時間変化をFIG.1に示す。これによると、30年程度の冷却時間の後に残る長期的な毒性は、アクチニド（U、Np、Pu、Am、Cmなど）と、核分裂生成物（ ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 ^{129}I 、 ^{99}Tc など）によるものである。そこで、これらが地層処分に代る処理手段として考えられている消滅処理の対象となる。消滅処理とは、放射線による核反応を利用して、放射性廃棄物中の長寿命放射性核種を短寿命あるいは安定な核種に変換する方法のことである。

消滅処理には、従来、原子炉、核融合炉あるいは加速器により発生する中性子線や加速器により発生する陽子

線を利用したものが研究されている。(1)-(15)しかし、これらの粒子線ではなく、光子線を利用することで、次のような利点がある。

- ・光核反応を利用するため、生成核種は必ず元の核種より原子番号、質量数が小さくなる。アクチニドの場合、より短半減期の核種になる。
- ・光核反応には巨大共鳴を利用するので、光子線のエネルギーは10-20MeV程度でよく、断面積も数百mbと大きい。FIG.2参照。
- ・制動放射線を用いるので、陽子線や中性子線の場合と異なり、簡単に大強度のビームが得られる。
- ・光核反応に必要な光子線は20-30MeVの電子ライナックで十分に得られるので、建設費が陽子加速器に比べて安価で、経済性にすぐれている。

そこで、以上のように利点の多い光子線による消滅処理の有効性を明らかにするために必要な基礎データを得ることが、本研究の目的であり、そのためにまず、本研究では ^{238}U 、 ^{237}Np の光核分裂反応により生成された核分裂性核種の質量分布を実験により求める。

^{238}U 、 ^{237}Np の光核分裂反応により生成される核種の質量分布に関しては、既にいくつかの報告(16)-(23)があるが、これらはいずれも相対値として与えられており、生成量そのものを与えた報告はこれまでにない。本研究は、消滅処理の観点から重要な生成量、つまり核変換による核種変換量を求めた最初の実験であ

る。

以下、第2章では実験方法、装置について、第3章ではデータ処理、解析方法について、第4章では実験の結果と考察について、第5章では今後の研究計画を記している。

2 実験方法、装置

本実験では、電子ライナックからの電子ビームをコンバータにあてて制動放射線を発生させ、それを試料（ターゲット）にあてて光核反応を起こさせた。電子ライナックは、東京大学工学部附属原子力工学研究施設と東北大学理学部附属原子核理学研究施設のものを使用し、前者は電子エネルギー20及び30MeVに対して61年11月に実験を行い、後者は電子エネルギー30及び60MeVに対して62年3月に実験を行った。後者の実験は現在まだ生成放射能の測定を続行中なので、前者の実験結果についてのみ報告する。電子ライナックの全体図と実験配置図をFIG.3に示す。

電子のエネルギーとしては、20MeVと30MeVの2種類を用いた。使用した電子ビームは10ns幅、100ppsのものであった。電子ビームの大きさはビームの出口においたラドカラーで測定した。これより、電子ビームの直径は約1.2cmであることがわかった。これはターゲットとほぼ同じ大きさである。コンバータは、Pt（厚さ0.5mm）及びU（厚さ0.025mm）を使用した。電子はコンバータをつきぬけて、ターゲットもつきぬける。そこで、コンバータに入射した電子ビームの量を測定するため、ターゲットの後に鉛のビームダンプをおき、コンバータ、ターゲット、鉛のビームダンプをすべてコードでつないで、これらに入射した全電子をカレントインテグレータ

で測定した。

また、この施設には電子ビーム掃引装置がないので、コンバータからは生成された制動放射線と通過した電子の両方がターゲットに入射する。そこで、ターゲットに制動放射線をあてて、光核分裂反応を起こさせるのと、直接ターゲットに電子をあてて、ターゲット自身で制動放射線を発生させ、それで光核分裂反応を起こさせるのと、どちらがよいかを知るためにPtコンバータに加えて ^{238}U コンバータを使用した。

ターゲットには劣化ウラン (^{238}U を99.959%に濃縮した直径12.7mm、厚さ0.025mmの金属ウラン箔) 及びネプツニウム (直径19mmのNi板の上に99.3%濃縮 ^{237}Np を直径12.7mm、厚さ $50\mu\text{g}/\text{cm}^2$ で一様に (一様性10%以内) 蒸着したもので、その放射能は $0.0432 \pm 0.0009\mu\text{Ci}$) を使用した。いずれもReactor Experiments社製のものである。

フィッシュョンfoilから出た核分裂生成物 (F.P.) は、その前後に密着しておいたAlキャッチャfoil (直径12.7mm、厚さ0.05mm) で捕集する。その γ 線スペクトルをピュアGe検出器 (PGT社製の同軸型、48mm ϕ \times 40mm長、分解能1.8KeV、相対効率14%、PHAはNorthern社製のTN-1750を用いた。) で測定し、その γ 線スペクトルより生成核種の同定及び定量を行った。ここで、 ^{237}Np は蒸着部が薄く、F.P.は全て外に飛び出すが、 ^{238}U はU金属箔を用いたのでその中でとどまっている

ものもあるため、 ^{238}U 自身の放射能も測定し、生成核種の同定及び定量を行った。

コンバータで発生し、ターゲットに入射した制動放射線の量を求めるために、ターゲットと同じ大きさのモニターフォイルAu(0.01mm厚)を置いた。 ^{197}Au (γ , n)反応による生成核種 ^{196}Au の放射能より制動放射線の量を求めることができた。

なお、各々のフォイルの寸法などはまとめてTABLE 1に示した。照射条件についてはTABLE 2に示すように6回の実験を行なった。

3 データ処理、解析方法

3.1 生成核種の同定と定量

本実験の結果得られたキャッチャファイル、フィッショソファイル等の γ 線スペクトルは、まず高分解能 γ 線スペクトル自動解析プログラム (KEI-11EF) を用いて処理した。(24)、(25) 得られた γ 線スペクトルの例をFIG. 4 に示す。このプログラムにより、ピークの検出、面積の計算、エネルギー較正を行い、この結果をもとに核種の同定及び定量を行った。

γ 線スペクトルは、ピーク部分では、

Gaussian+exponential tail、即ち、

$$F(x) = A \cdot \exp(d(x-p) + d^2 \sigma^4 / 2), \quad x \leq p - d \sigma^2$$

$$= A \cdot \exp(-(x-p)^2 / 2 \sigma^2), \quad x \geq p - d \sigma^2$$

で、バックグラウンドには、逆正接関数、即ち、

$$B(x) = a + b \tan^{-1}(\alpha x), \quad \text{または、}$$

$$B(x) = a + bx + c \tan^{-1}(\alpha x)$$

を用いて、最小二乗フィットをする。ピーク面積の計算は、tail部分、tailからピークまでの部分、ピークから高エネルギー側のGaussian部分と3通りに分けて行う。このプログラムでの解析の例をFIG.5 に示す。例FIG.5-bのように、バックグラウンドのフィットのしかたが適切でないものには、ピーク面積を手計算で求めた。

エネルギー較正式は、 ^{152}Eu のスペクトルを使用し、2次多項式、即ち、 $y = a + bx + cx^2$ (x :チャンネル、 y

：エネルギー（KeV）の最小二乗法で求めた。使用した ^{152}Eu は日本アイソトープ協会から購入した標準線源で、強さは $11.6\ \mu\text{Ci}$ 、 $1.19\ \mu\text{Ci}$ 、 $0.116\ \mu\text{Ci}$ （1986.6.20付）の3種類である。

ピュアGe検出器のピーク検出効率、エネルギー較正に使用したものと同一 ^{152}Eu を検出器から0cm（密着）、10cm、20cmの位置において、 $\ln \epsilon = a + b \cdot \ln E$ の式で最小二乗法を行い求めた。得られた結果をFIG.6に示す。このようにして求めたピーク効率曲線を利用して、以下の式を用いて、測定によりえられたピーク面積から飽和放射能及び統計誤差を求めた。

$$\lambda \cdot C$$

$$A_s = \frac{\gamma \cdot \epsilon \cdot (1 - \exp(-\lambda t_0)) (\exp(-\lambda t_1) - \exp(-\lambda t_2))}{(2)}$$

λ : 崩壊定数 C : ピーク面積

ϵ : ピーク効率 t_0 : 照射時間

t_1 : 照射終了から測定開始までの時間

t_2 : 照射終了から測定終了までの時間

A_s : 飽和放射能 γ : 分岐比

$$A_x = \frac{A_s}{C^{1/2} \cdot (t_2 - t_1)} \quad (3)$$

A_x : 統計誤差

なお、定量にあたり $^{88}\text{Kr} - ^{88}\text{Rb}$ 、 $^{92}\text{Sr} - ^{92}\text{Y}$ 、 $^{95}\text{Zr} - ^{95}\text{Nb}$ 、 $^{105}\text{Ru} - ^{105}\text{Rh}$ 、 $^{132}\text{Te} - ^{132}\text{I}$ 、 $^{134}\text{Te} - ^{134}\text{I}$ 、 $^{135}\text{I} - ^{135}\text{Xe}$ 、 $^{140}\text{Ba} - ^{140}\text{La}$ などの核種については、親核種—娘核種の壊変が起こるので、その補正をした。補正には、以下の式を用いた。

$$N_{D0} = \left(\lambda_P / (\lambda_P - \lambda_D) \right) N_{P0} \{ \text{EXP}((\lambda_D - \lambda_P)t) - 1 \} + N_D \text{EXP}(\lambda_D t) \quad (4)$$

N_{P0} : 照射終了直後の親核種数

N_P : 測定時の親核種数

λ_P : 親核種の崩壊定数

N_{D0} : 照射終了直後の娘核種数

N_D : 測定時の娘核種数

λ_D : 娘核種の崩壊定数

t : 冷却時間

^{238}U については、ターゲット前後においた Al キャッチャフイルでの F.P. の飽和放射能の値及び ^{238}U ターゲット自身の F.P. 飽和放射能の値を合計したものを得

られた F.P. の全飽和放射能とした。また、 ^{237}Np については、第 2 章に述べたように F.P. は全て外にとびだすので、 Np ターゲットの片方 (^{237}Np を密着した側) において Al キャッチャフオイルでの F.P. の飽和放射能の値を 2 倍したものを得られた全放射能とした。

3. 2 入射光子線束の決定

ターゲットに入射する光子線束は、ターゲットと同じ大きさの Au モニターフオイルを用いて測定した。ターゲット中での減衰効果をみるため、ターゲットの前と後ろに Au フォイルを置いてその違いを調べた。

$^{197}\text{Au}(\gamma, n)^{196}\text{Au}$ 反応により Au 箱中に生成された ^{196}Au の放射能を測定して、入射光子線束を求める。FIG. 7 にこの反応の断面積データを示す。これによると、 ^{197}Au の (γ, n) 反応のしきい値は 8.1 MeV である。(26) 制動放射線は、Schiff の式に示されているように連続スペクトル (FIG. 7 に示す。) を持っている。(27) 従って、 ^{196}Au の放射能は、

$$A = N_T \int_{E_{th}}^{E_0} \sigma(E) \phi(E) dE \quad (5)$$

N_T : ターゲット中の ^{197}Au の個数

$\sigma(E)$: (γ, n) 反応の断面積

$\phi(E)$: 制動放射線スペクトル

E_0 : 入射電子のエネルギー

E_{th} : 反応のしきいエネルギー

で与えられる。

$\sigma(E)$ として文献(26)に与えられた値を用い、 $\phi(E)$ として文献(27)のSchiffの式

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma}{dE} = & \frac{2Z^2 r_0^2}{137} \frac{1}{E} \left[\left\{ 1 + \left(\frac{E_0 - E}{E_0} \right)^2 - \frac{2}{3} \frac{E_0 - E}{E_0} \right\} \left\{ \ln M(0) + 1 - \frac{2}{b} \tan^{-1} b \right\} \right. \\ & \left. + \frac{E_0 - E}{E_0} \left\{ \frac{2}{b^2} \ln(1 + b^2) + \frac{4(2 - b^2)}{3b^2} \tan^{-1} b - \frac{8}{3b^2} + \frac{2}{9} \right\} \right] \quad (6) \end{aligned}$$

ここで $b = \left(\frac{2 E_0 (E_0 - E) Z^{1/3}}{111 E} \right)^2$

$$M(0) = \left(\frac{E}{2 E_0 (E_0 - E)} \right)^2 + \left(\frac{Z^{1/3}}{111} \right)^2$$

$$r_0 = 2.82 \times 10^{-13} \text{ cm}$$

であり、 E_0 、 E は $m_0 c^2$ ($= 0.511 \text{ MeV}$) 単位で与えられ、 Z はターゲットの原子番号である。

に従うスペクトルを持つとすると、

$$\phi(E) = C \cdot d\sigma / dE \quad (7)$$

とおくことができるので、(5)式から上式の C が求められ

る。このCをもとに、

$$\left. \begin{aligned} \phi_{\text{total}} &= \int_0^{E_0} \phi(E) dE = C \int_0^{E_0} \frac{d\sigma}{dE} dE \\ \phi(>8 \text{ MeV}) &= \int_{8 \text{ MeV}}^{E_0} \phi(E) dE = C \int_{8 \text{ MeV}}^{E_0} \frac{d\sigma}{dE} dE \end{aligned} \right\} (8)$$

を算出した。(8)式より求めた ϕ_{total} と $\phi(>8 \text{ MeV})$ の値がTable 2に示されている。なお、 $^{197}\text{Au}(\gamma, n)$ 、 ^{196}Au 反応のしきいエネルギーが約8MeVであり、FIG. 2からもわかるように、 ^{237}Np や ^{238}U の (γ, n) 、 (γ, f) 反応のしきいエネルギーも約8MeVであることから、8MeV以上の全光子線束も求めた。

4 実験の結果及び考察

4.1 生成核種の質量分布と放射能減衰

TABLE 3 に実験 1 - 6 における光核分裂生成核種及び $^{238}\text{U}(\gamma, n)$ 反応生成核種 ^{237}U の単位時間あたりにおける生成率を示す。この単位時間あたりの生成率は、各々の核種の飽和放射能から求めたものである。FIG. 8-13 には、このデータをもとに作成した ^{238}U と ^{237}Np の光核分裂生成核種の質量分布を示す。なお、FIG. 8-13 には比較のため、文献(17)、(19)のデータも併せて示してある。ただし文献値はすべて相対値でしか与えられていないので、我々の実験値に規格化している。

今回は、非破壊でのみ試料の γ 線スペクトルを測定して、化学分離等の処理をへた試料の γ 線スペクトルは測定していない。そのために、文献(17)、(19)によると ^{238}U や ^{237}Np の光核分裂生成核種として確認されている収率の少ない 106 - 125 の質量数をもつ核種、例えば、 ^{109}Pd 、 ^{111}Ag 、 ^{115}Cd などは 1 つも確認できなかった。しかし、これらの核種は収率も少ないうえ、短半減期(長いもので数日)のものがほとんどなので、消滅処理という観点からするとあまり重要ではないと言えよう。また、実験 6 のデータは特に数も少なく、ばらつきも大きいですが、これはこの条件での光核分裂生成核種が非常に少ないためである。

今回の実験で ^{238}U と ^{237}Np の光核分裂生成核種を比

べると、F.P.として確認されたものは、 ^{237}Np のほう
が明らかに少ない。これは、TABLE 1 に示されているよ
うにターゲットに用いた ^{238}U と ^{237}Np の量の大きなち
がいがよるものである。単位時間あたりの光核分裂生成
核種の生成率のちがいも同様の理由によるものである。

制動放射線の最大エネルギーが20MeV、30MeVにかかわ
らず、また、ターゲットが ^{238}U 、 ^{237}Np の場合にも関
係なく、質量数134の所が若干とびだしていることが
ある。これは質量数が近傍の、 $^{132}\text{Te} - ^{132}\text{I}$ 、 ^{135}I
 $- ^{135}\text{Xe}$ の親-娘の関係にある核種間の補正がうまく
いかなかったため、娘の核種にあたる、 ^{132}I 、 ^{135}Xe
の収率を加えていないためである。つまり、親-娘間の
補正により、光核分裂によって直接生成された ^{132}I 、
 ^{135}Xe の収率を求めようと試みたが、 ^{132}I の場合は
 ^{132}Te に比べて半減期が短いので、 ^{132}Te が測定にか
かり始めた段階でかなり崩壊していたらしく、補正が不
能になったためである。同じようなケースに、 $^{97}\text{Zr} -$
 ^{97}Nb 、 $^{88}\text{Kr} - ^{88}\text{Rb}$ の場合がある。なお、 ^{97}Nb と
 ^{132}I は、測定を始めた1番最初のデータ（照射終了し
て約1-2時間後）には親核からの崩壊は、まだ微量と
考えてこのデータから一応定量はした。しかし、FIG. 8-
13 からわかるように過大評価をおこなっているようだ。

^{135}Xe の場合は、補正を行ってもまだ ^{135}Xe の収率
が非常に大きかった。これは、 ^{135}Xe の同定、定量に
使える唯一のピーク(249.7KeV)のごく近傍に今回の解析

では確認できなかつた核種のピークがあるためではないかと考えられる。

親 - 娘間の補正が必要となる核種には他に、 $^{95}\text{Zr} - ^{95}\text{Nb}$ 、 $^{134}\text{Te} - ^{134}\text{I}$ 、 $^{140}\text{Ba} - ^{140}\text{La}$ 、 $^{105}\text{Ru} - ^{105}\text{Rh}$ 、 $^{92}\text{Sr} - ^{92}\text{Y}$ がある。 $^{92}\text{Sr} - ^{92}\text{Y}$ の場合は、照射により直接生成される娘核の収率が小さいため補正がうまくいかなかつた。また、 $^{105}\text{Ru} - ^{105}\text{Rh}$ の場合は、 ^{105}Rh の収率が小さく、半減期も ^{105}Ru に比べかなり長いので、 ^{105}Ru が崩壊して測定できなくなる位まで、 ^{105}Rh が測定にかからないことがあり、補正がうまくいかない場合もあつた。そのため、これら2種の娘核の収率も加えなかつた。 $(^{105}\text{Rh}$ は、補正がうまくいったものは加えた。)これら以外の親 - 娘核種については、補正を施した。

文献値(17)、(19)と比較すると、先に述べた実験解析データと同じに文献値もやはり質量数134付近が若干とびだしている。 ^{135}Xe 、 ^{132}I のことを考えあわせると、今回の実験解析より得られた質量分布は、文献値とほぼ一致していると言えよう。

今回の実験の解析結果で見ると、最大エネルギーが20MeV、30MeVの制動放射線による ^{238}U 、 ^{237}Np の光核分裂生成核種の種類や質量分布にちがいはほとんど見られなかつた。

4. 2 光核分裂による核変換量

このようにして得られた生成率から、照射後の各生成核種及び全核種の残留放射能の時間変化をその半減期にもとづいて計算で求めることができる。FIG.14-19に、FIG.8-13に対応する ^{238}U 及び ^{237}Np の光核変換生成核種の残留放射能の時間変化を示す。 ^{238}U の場合は、 $^{238}\text{U}(\gamma, n)$ 反応による ^{237}U が生成されている点及び ^{237}Np の場合、同定された核種数が少ないことを除くと、両ターゲット共減衰曲線はほとんど同じである。

今回の解析で確認された生成核種の中で、最も半減期の長い核種は ^{95}Zr の64.4日である。従って、減衰曲線も約 10^7 秒後(約100日後)には、ほぼ ^{95}Zr の半減期に従って減衰している。また、 ^{237}U の半減期は6.75日である。このことから (γ, n) 反応や (γ, f) 反応により、大幅な半減期の減少が予想される。

最後にこの実験によりどれ位の核種変換ができたのかを質量減少率として求めてみよう。FIG.8-13により我々の実験値が文献値とその傾向がよく一致していることから、データのばらつきの少ない文献値をもとに、そのデータを内外挿することにより、すべての質量数に対する核種の生成率 R (個/秒)及びその質量 Δm (g/s)を求めてそれを総計した。この方法で得られた変換量 Δm をもとのターゲット核種の質量 m (g)と比較して、核種変換率 $\Delta m/m$ を得た。得られた結果をTable 4に示す。

なお、 ^{237}Np と ^{238}U の (γ, n) 、 (γ, f) 反応が起こるしきいエネルギーがFIG.2より、ほぼ8MeVであ

ることから、8MeV以上の全光子線束 $\Phi(>8\text{MeV})$ もTable 4に示した。この表より以下のことが明らかである。

1) ターゲットに入射する8MeV以上の全光子線束1個当りの核変換量を見ると、 ^{238}U の場合電子エネルギーが20MeVの時はコンバータが白金(0.5mm厚)でもウラン(0.025mm厚)でもほぼ変わらないのに対し、ウランコンバータの場合は30MeVの方が30%ほど少ない。 ^{237}Np の場合も20MeVより30MeVの方が、核変換量が40%程減少している。しかし、Table 2に示されているように電子電流当りの、核変換に寄与する8MeV以上の全光子束は、白金コンバータに対し、

20MeVの時 1.9×10^{11} γ/s per μAe^-

30MeVの時 1.3×10^{12} γ/s per μAe^-

ウランコンバータに対し、

20MeVの時 9.3×10^{10} γ/s per μAe^-

30MeVの時 3.1×10^{11} γ/s per μAe^-

となって、20MeVに比べ、30MeVは3~7倍(平均5倍)大きく、30MeVの方がはるかに有効であるといえる。

2) 我々の実験値を計算と比較することによって精度を検証した。核変換量 Δm は、

$$\Delta m = m \left. \begin{aligned} & \int_0^{E_0} \sigma(\gamma, f) \phi(E) dE \\ & \int_0^{E_0} \sigma(\gamma, n) \phi(E) dE \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

と表すことができるので、FIG.2 に与えられた $\sigma(\gamma, f)$ 、 $\sigma(\gamma, n)$ の値を用い、(8)式でえられた $\phi(E)$ の値と掛け合せて積分することにより Δm が計算できる。えられた結果を Table 4 に示した。

^{237}Np に対しては実験値が計算値よりおよそ1.5倍程大きいが、 ^{238}U に対しては (γ, f) 、 (γ, n) とも20%程度以内の差で極めてよく一致している。

^{237}Np と ^{238}U の核変換量を比べると、光子束当りで ^{237}Np の方が約2.5倍大きくなっている。これは (γ, f) の反応断面積の差に帰せられる。

以上の結果から、我々の実験値は十分な精度を持つことがわかった。核変換量の絶対値が与えられているために、消滅処理の評価の基礎データとして役立つものと思われる。

5 今後の研究計画

61年度の研究により、 ^{238}U と ^{237}Np の光核分裂及び光中性子反応による核変換の収率に関する情報がえられた。しかし最初の実験では非破壊 γ 線測定しか行なわなかったもので、データ解析が大変で、しかもデータのばらつきが大きい。

このため62年度からは光核反応により生成される核種の同定と定量をより精度よく行なうため、次の二つの方法を用いる。

- 1) 化学分離を行ない、必要な核種を分離抽出してから、放射性核種の γ 線を測定する。これには迅速化学分離系を組み立てる必要がある。特に光核分裂生成物の質量分布の谷間にある symmetric fission に対応する Cd、Agなどの分離及び親-娘核種壊変が多くて分別の困難な I、Csなどの分離が必要である。
- 2) X線検出器 (Si(Li)検出器) と γ 線検出器 (ピュアGe検出器) による2次元マルチチャンネル波高分析器のリストモードを用いた同時測定を行なって、X線による原子番号別の γ 線測定から核種を同定・定量する。

また、電子エネルギー60MeVの実験では、使用したアルミニウムのキャッチャフォイル自身に $^{27}\text{Al}(\gamma, ^3\text{He})^{24}\text{Na}$ 反応が起こって、 ^{24}Na の γ 線ピークが

強く非破壊測定が非常に妨害された。このため、キャッチャフオイルとしてBeやCを使用することを検討している。

62年度からはアクチニド核種として、

^{239}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{243}Am 、 ^{235}U 、 ^{244}Cm

の各ターゲットについて61年度同様の実験を電子エネルギー20、30、60MeVについて行なう計画である。

また、核分裂生成物である ^{90}Sr 、 ^{137}Cs についても同様の実験を行なうが、これに必要な試料を入手しなければならぬ。今回の実験に用いた ^{237}Np の量は約60 μg 、 ^{238}U の量は約70mgであり、もし1Ciの ^{90}Sr を用いたとすると、その量は約7mgとなる。

ただし、最初に ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の消滅処理実験を行なうのは様々な困難を伴うので、まず安定核種のSr (^{88}Sr 82.74%、 ^{86}Sr 9.75%)、Cs (^{133}Cs 100%)を用いて実験を行なう。この実験ではかなり厚いスタック状の試料とし、試料中での入射光子スペクトルや光子束密度の変化を測定し、計算コードの精度評価をするとともに、核変換による生成核種の試料内での分布も測定して、現実の廃棄物試料に対する消滅処理評価の基礎データを提供したい。

引用文献

- (1) 日本原子力産業会議：
「核分裂生成物等総合対策懇談会報告書」
(1973年)。
- (2) H. Takahashi et al.: BNL-28779(1980)。
- (3) J. J. Duderstadt et al.:
Nucl. Technol. 42, 324(1984)。
- (4) T. A. Parish et al.:
Nucl. Technol. 47, 324(1980)。
- (5) M. J. Bell: ORNL-4628(1973)。
- (6) H. C. Claiborne: ORNL-TM-3964(1972)。
- (7) T. C. Gorrell: DP-1496(1978)。
- (8) McKay et al.: EUR-5801(1977)。
- (9) J. W. Wachter: ORNL/TM-6983(1980)。
- (10) IAEA: "Evaluation of Actinide Partitioning
and Transmutation"
Tech. Rep. 214(1982)。
- (11) W. C. Woikenhauer et al.: BNWL-1772(1973)。
- (12) R. R. Rose: EPRI-ER-451(1976)。
- (13) T. Matsumoto et al. :
北海道大学工学部研究報告111号(1982)。
- (14) E. M. Krenciglowa and A. A. Harms :
Nucl. Instr. Meth. 185 (1981), 393。

- (15) T. Matsumoto et al. :
動燃事業団研究成果報告書 PNC-SJ-168-85-02
(1985).
- (16) T. Matsumoto et al. :
動燃事業団研究成果報告書 PNC-SJ-5600-86-02
(1986).
- (17) M. Ya. Kondat'ko, A. V. Mosesov, K. A. Petrzhak and
O. A. Teodorovich :
Atomnaya Energiya, 53, 164 (1982) ;
Sov. J. At. Energy, 629 (1983).
- (18) P. P. Ganich and D. I. Sikora :
Atomnaya Energiya, 50, 219 (1981) ;
Sov. J. At. Energy, 214 (1981).
- (19) E. Jacobs, H. Thierens, D. De Frenne, A. De Clercq,
P. D'hondt, P. De Gelder and A. J. Deruytter :
Phys. Rev. C19, 422 (1979).
- (20) A. Veyssiere, H. Beil, R. Bergere, P. Carlos,
A. Lepretre and K. Kernbath :
Nucl. Phys. A199, 45 (1973).
- (21) W. Gunther, K. Huber, U. Kneissl, H. Krieger and
H. J. Maier :
Z. fur Phys. A295, 333 (1980).
- (22) R. B. Duffield, R. A. Schmitt and R. A. Sharp :
Proc. 2nd U.N. Conf. on the Peaceful Uses of
Atomic Energy (Geneva), 15, 202 (1958)

- (23) H. Thierens et al : Phys. Rev. C14, 1058(1976)
- (24) K. Komura : INS-TCH-7(1972),
Institute for Nuclear Study, University of
Tokyo .
- (25) K. Komura : INS-TCH-9(1974), *ibid* .
- (26) B. L. Berman :
"Atlas of Photoneutron Cross Sections
Obtained with Monoenergetic Photons",
UCRL-74622, Lawrence Livermore Laboratory
(1973)
- (27) H. W. Koch and J. W. Motz :
Rev. Mod. Phys., 31(4), 420(1959) .
- (28) G. Erdtmann and W. Soyka :
"The Gamma Rays of the Radionuclides"
Verlag Chemie, Weinheim(1979) .
- (29) E. Browne and R. B. Firestone :
"Table of Radioactive Isotopes",
John Wiley & Sons, New York(1986) .
- (30) T. Matsumoto and K. Uematsu :
「長寿命放射性核種の消滅処理法」 私信

謝 辞

本研究の遂行にあたり全面的にご協力いただいた動力炉核燃料開発事業団に深く感謝いたします。

さらに、実験の遂行や解析にご協力いただいた東京大学原子核研究所の上蓑義朋氏、東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンターの堀口雅裕氏に深くお礼申し上げます、と共に東京大学工学部附属原子力工学研究施設の電子リニアックの共同利用実験に際し、お世話になった中沢正治氏及び電子リニアックの運転をさせていただいた運転グループの方々に深く感謝いたします。

TABLE 1 フォイルの寸法

| 実験番号 | 実験 1 | 実験 2 | 実験 3 | 実験 4 | 実験 5 | 実験 6 | 実験 7 | 実験 8 |
|-------------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| Au フォイル | 0021.5 | 0022.0 | 0022.4 | 0023.0 | 0022.0 | 0022.1 | | |
| C フォイル | 0104.3 | 0104.9 | 0102.6 | 0102.1 | 0103.8 | 0104.3 | | |
| Al フォイル (厚) | 0017.3 | 0016.4 | 0017.4 | 0016.8 | 0016.0 | 0015.9 | 0016.7 | 0016.1 |
| Al フォイル (薄) | 0001.6 | 0001.6 | ? | 0001.6 | 0003.1 | 0003.3 | 0001.6 | 0003.1 |
| Al フォイル (前) | ? | ? | | 0015.9 | 0016.9 | | 0016.5 | 0016.0 |
| U フォイル | 0071.7 | 0069.7 | | 0048.2 | 0080.7 | | 0049.4 | 0049.4 |

単位 mg

以上のフォイルは全て直径12.7mmである。

Np フォイルは直径17mmのNi板の上に直径約12.7mmで99.3%の ^{237}Np を厚さ $50\mu\text{g}/\text{cm}^2$ で一様に(一様性10%以内)蒸着したものである。 ^{237}Np の放射能は $0.0432 \pm 0.0009\mu\text{Ci}$ である。

U フォイルは99.959%に ^{238}U を濃縮した直径12.7mm、厚さ0.025mmの金属ウランである。

Pt フォイルは直径12.7mm、厚さ0.5mmである。

Uコンバータは照射試料からモニターフォイルを抜いたものと同じ構成をしており、その寸法は実験7、8として表わしている。

TABLE 2 照射条件と光子束の実測値

| | 電子エネルギー | 電流値 | コンバータ | ターゲット | 照射時間 | 光子束 ($\gamma \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) * | |
|------|---------|--------------------|------------------|-------------------|------|---|-----------------------|
| | | | | | | Φ_{total} | $\Phi(>8\text{MeV})$ |
| 実験 1 | 30MeV | 0.94 μA | P t | ^{238}U | 4h | 4.72×10^{12} | 8.66×10^{11} |
| 実験 2 | 30MeV | 0.94 μA | ^{238}U | ^{238}U | 2h | 1.24×10^{12} | 2.26×10^{11} |
| 実験 3 | 30MeV | 0.94 μA | P t | ^{237}Np | 2h | 5.76×10^{12} | 1.06×10^{12} |
| 実験 4 | 20MeV | 1.5 μA | ^{238}U | ^{238}U | 5h | 9.56×10^{11} | 1.10×10^{11} |
| 実験 5 | 20MeV | 1.5 μA | P t | ^{238}U | 2h | 2.34×10^{12} | 2.65×10^{11} |
| 実験 6 | 20MeV | 1.5 μA | P t | ^{237}Np | 4h | 1.61×10^{12} | 1.83×10^{11} |

* (8) 式より求めたもの。

TABLE 3 生成率

| 核種 | 生成率 [s ⁻¹] | | |
|--------------------|---|---|---|
| | 実験 1 | 実験 2 | 実験 3 |
| ^{85m} Kr | $1.45 \times 10^5 \pm 3.62 \times 10^3$ | $2.29 \times 10^4 \pm 3.86 \times 10^2$ | |
| ⁸⁷ Kr | $1.86 \times 10^5 \pm 1.50 \times 10^4$ | $4.49 \times 10^4 \pm 3.64 \times 10^3$ | $4.57 \times 10^2 \pm 2.74 \times 10^1$ |
| ⁸⁸ Kr | $2.74 \times 10^5 \pm 8.75 \times 10^4$ | $6.05 \times 10^4 \pm 1.37 \times 10^3$ | $5.35 \times 10^2 \pm 2.28 \times 10^1$ |
| ⁸⁸ Rb | | | |
| ⁹¹ Sr | $4.66 \times 10^5 \pm 1.22 \times 10^4$ | $8.83 \times 10^4 \pm 3.84 \times 10^3$ | $7.22 \times 10^2 \pm 1.66 \times 10^2$ |
| ⁹² Sr | $4.66 \times 10^5 \pm 3.83 \times 10^4$ | $7.73 \times 10^4 \pm 2.21 \times 10^3$ | $1.08 \times 10^3 \pm 4.58 \times 10^1$ |
| ⁹² Y | | | |
| ⁹³ Y | $6.17 \times 10^5 \pm 8.02 \times 10^3$ | $9.96 \times 10^4 \pm 1.11 \times 10^4$ | $1.78 \times 10^3 \pm 1.45 \times 10^2$ |
| ⁹⁵ Zr | $5.88 \times 10^5 \pm 9.29 \times 10^3$ | $1.23 \times 10^5 \pm 2.68 \times 10^3$ | |
| ⁹⁵ Nb | $1.07 \times 10^5 \pm 1.78 \times 10^3$ | $2.38 \times 10^4 \pm 7.35 \times 10^2$ | |
| ⁹⁷ Zr | $7.72 \times 10^5 \pm 9.68 \times 10^3$ | $1.44 \times 10^5 \pm 1.11 \times 10^4$ | $1.40 \times 10^3 \pm 8.76 \times 10^1$ |
| ⁹⁷ Nb | | $6.65 \times 10^4 \pm 1.60 \times 10^3$ | $2.32 \times 10^2 \pm 1.99 \times 10^1$ |
| ⁹⁹ Mo | $7.05 \times 10^5 \pm 8.31 \times 10^3$ | $1.42 \times 10^5 \pm 1.24 \times 10^4$ | $1.44 \times 10^3 \pm 1.64 \times 10^1$ |
| ¹⁰³ Ru | $5.04 \times 10^5 \pm 4.83 \times 10^3$ | $1.11 \times 10^5 \pm 1.41 \times 10^3$ | |
| ¹⁰⁵ Ru | $3.25 \times 10^5 \pm 6.37 \times 10^3$ | $7.47 \times 10^4 \pm 4.62 \times 10^3$ | $8.22 \times 10^2 \pm 5.88 \times 10^1$ |
| ¹⁰⁵ Rh | $7.97 \times 10^4 \pm 6.88 \times 10^3$ | | |
| ¹²³ I | | | $3.14 \times 10^1 \pm 4.18 \times 10^0$ |
| ¹²⁷ Sb | | $1.62 \times 10^4 \pm 2.75 \times 10^3$ | $5.98 \times 10^2 \pm 3.98 \times 10^1$ |
| ¹²⁸ Sn | $7.95 \times 10^4 \pm 7.84 \times 10^3$ | $1.13 \times 10^4 \pm 1.05 \times 10^3$ | $2.86 \times 10^2 \pm 2.94 \times 10^1$ |
| ¹²⁹ Sb | | $3.12 \times 10^4 \pm 1.11 \times 10^3$ | $6.16 \times 10^2 \pm 7.46 \times 10^1$ |
| ¹²⁹ Te | $7.07 \times 10^5 \pm 3.88 \times 10^4$ | | |
| ^{131m} Te | $2.58 \times 10^4 \pm 2.31 \times 10^3$ | $2.00 \times 10^4 \pm 1.83 \times 10^3$ | $5.23 \times 10^2 \pm 4.94 \times 10^1$ |
| ¹³¹ I | $2.88 \times 10^5 \pm 9.50 \times 10^3$ | $8.22 \times 10^4 \pm 1.21 \times 10^3$ | $1.43 \times 10^3 \pm 4.94 \times 10^1$ |
| ¹³² Te | $3.12 \times 10^5 \pm 6.94 \times 10^3$ | $1.29 \times 10^5 \pm 2.74 \times 10^3$ | $1.31 \times 10^3 \pm 2.99 \times 10^1$ |
| ¹³² I | $5.75 \times 10^4 \pm 2.80 \times 10^3$ | $7.36 \times 10^4 \pm 4.39 \times 10^2$ | $3.14 \times 10^2 \pm 2.39 \times 10^1$ |
| ^{133m} Te | | $4.07 \times 10^4 \pm 1.93 \times 10^3$ | $4.48 \times 10^2 \pm 3.95 \times 10^1$ |
| ¹³³ I | $6.31 \times 10^5 \pm 5.75 \times 10^3$ | $1.62 \times 10^5 \pm 7.51 \times 10^3$ | $2.12 \times 10^3 \pm 9.70 \times 10^1$ |
| ¹³⁴ Te | | $1.72 \times 10^5 \pm 5.49 \times 10^3$ | $1.02 \times 10^3 \pm 1.20 \times 10^2$ |
| ¹³⁴ I | $1.06 \times 10^6 \pm 5.21 \times 10^4$ | $1.35 \times 10^4 \pm 1.01 \times 10^3$ | $3.38 \times 10^2 \pm 2.25 \times 10^1$ |
| ¹³⁵ I | $5.73 \times 10^5 \pm 5.17 \times 10^4$ | $1.59 \times 10^5 \pm 2.05 \times 10^4$ | $1.36 \times 10^3 \pm 1.23 \times 10^2$ |
| ¹³⁵ Xe | | | |
| ¹³⁸ Cs | | $1.87 \times 10^5 \pm 2.23 \times 10^3$ | $1.82 \times 10^3 \pm 1.51 \times 10^2$ |
| ¹⁴⁰ Ba | $1.16 \times 10^5 \pm 3.38 \times 10^4$ | $1.27 \times 10^5 \pm 3.01 \times 10^3$ | $1.98 \times 10^3 \pm 1.71 \times 10^2$ |
| ¹⁴⁰ La | $1.62 \times 10^4 \pm 2.70 \times 10^3$ | $8.47 \times 10^3 \pm 7.39 \times 10^2$ | $2.05 \times 10^2 \pm 2.58 \times 10^1$ |
| ¹⁴¹ Ce | $1.45 \times 10^5 \pm 1.79 \times 10^3$ | $8.49 \times 10^4 \pm 8.52 \times 10^2$ | $1.49 \times 10^3 \pm 5.94 \times 10^1$ |
| ¹⁴² La | $1.22 \times 10^5 \pm 5.66 \times 10^3$ | $8.46 \times 10^4 \pm 4.10 \times 10^3$ | $7.19 \times 10^2 \pm 5.50 \times 10^1$ |
| ¹⁴³ Ce | $1.31 \times 10^5 \pm 1.08 \times 10^4$ | $1.14 \times 10^5 \pm 4.69 \times 10^3$ | $1.26 \times 10^3 \pm 3.08 \times 10^1$ |
| ¹⁴⁷ Nd | | $4.38 \times 10^4 \pm 7.86 \times 10^2$ | |
| ¹⁴⁹ Nd | $2.73 \times 10^4 \pm 2.22 \times 10^3$ | $3.54 \times 10^4 \pm 1.09 \times 10^3$ | $4.98 \times 10^2 \pm 2.94 \times 10^1$ |
| ¹⁵¹ Pm | $6.89 \times 10^4 \pm 3.58 \times 10^3$ | $1.57 \times 10^4 \pm 1.15 \times 10^3$ | $2.54 \times 10^2 \pm 4.98 \times 10^1$ |
| ²³⁷ U | $1.94 \times 10^6 \pm 1.05 \times 10^4$ | $2.73 \times 10^6 \pm 1.09 \times 10^4$ | |

Table 3 生成率

| 核種 | 生成率 [s ⁻¹] | | 実験6 |
|--------------------|---|---|---|
| | 実験4 | 実験5 | |
| ^{85m} Kr | $1.28 \times 10^4 \pm 1.97 \times 10^2$ | $7.77 \times 10^4 \pm 2.29 \times 10^3$ | $1.04 \times 10^2 \pm 1.63 \times 10^0$ |
| ⁸⁷ Kr | $2.64 \times 10^4 \pm 9.28 \times 10^2$ | $9.58 \times 10^4 \pm 1.04 \times 10^4$ | $1.37 \times 10^2 \pm 6.61 \times 10^0$ |
| ⁸⁸ Kr | $2.52 \times 10^4 \pm 5.42 \times 10^2$ | $8.84 \times 10^4 \pm 1.91 \times 10^3$ | $1.60 \times 10^2 \pm 3.98 \times 10^0$ |
| ⁸⁸ Rb | | | |
| ⁹¹ Sr | $5.08 \times 10^4 \pm 3.92 \times 10^3$ | $1.28 \times 10^5 \pm 6.73 \times 10^3$ | |
| ⁹² Sr | $4.16 \times 10^4 \pm 8.86 \times 10^2$ | $1.26 \times 10^5 \pm 7.49 \times 10^3$ | |
| ⁹² Y | | | |
| ⁹³ Y | $5.67 \times 10^4 \pm 3.50 \times 10^3$ | $2.32 \times 10^5 \pm 8.83 \times 10^3$ | |
| ⁹⁵ Zr | $6.08 \times 10^4 \pm 1.15 \times 10^3$ | $2.32 \times 10^5 \pm 3.71 \times 10^3$ | |
| ⁹⁵ Nb | $1.00 \times 10^4 \pm 3.05 \times 10^2$ | $4.53 \times 10^3 \pm 1.02 \times 10^2$ | |
| ⁹⁷ Zr | $6.71 \times 10^4 \pm 2.73 \times 10^3$ | $2.66 \times 10^5 \pm 5.80 \times 10^3$ | $4.62 \times 10^2 \pm 1.11 \times 10^1$ |
| ⁹⁷ Nb | $2.16 \times 10^4 \pm 1.05 \times 10^3$ | $6.96 \times 10^4 \pm 1.52 \times 10^3$ | $1.20 \times 10^2 \pm 5.89 \times 10^0$ |
| ⁹⁹ Mo | $5.99 \times 10^4 \pm 3.29 \times 10^3$ | $2.58 \times 10^5 \pm 1.05 \times 10^4$ | |
| ¹⁰³ Ru | $5.43 \times 10^4 \pm 6.02 \times 10^2$ | $2.17 \times 10^5 \pm 1.99 \times 10^3$ | |
| ¹⁰⁵ Ru | $2.78 \times 10^4 \pm 3.45 \times 10^2$ | $1.01 \times 10^5 \pm 2.03 \times 10^3$ | |
| ¹⁰⁵ Rh | $1.11 \times 10^4 \pm 1.02 \times 10^3$ | | |
| ¹²⁷ Sn | | $1.54 \times 10^4 \pm 1.53 \times 10^3$ | |
| ¹²⁷ Sb | $3.33 \times 10^3 \pm 4.57 \times 10^2$ | $2.39 \times 10^4 \pm 2.76 \times 10^3$ | |
| ¹²⁸ Sn | | $2.99 \times 10^4 \pm 1.86 \times 10^3$ | $1.04 \times 10^2 \pm 1.05 \times 10^1$ |
| ¹²⁹ Sb | $8.91 \times 10^3 \pm 1.23 \times 10^3$ | $5.11 \times 10^4 \pm 4.97 \times 10^3$ | |
| ¹²⁹ Te | $2.83 \times 10^3 \pm 3.35 \times 10^2$ | | |
| ^{131m} Te | $9.01 \times 10^3 \pm 1.78 \times 10^3$ | $2.25 \times 10^4 \pm 3.57 \times 10^3$ | |
| ¹³¹ I | $6.31 \times 10^4 \pm 7.74 \times 10^3$ | $1.48 \times 10^5 \pm 1.63 \times 10^3$ | |
| ¹³² Te | $5.20 \times 10^4 \pm 8.92 \times 10^2$ | $2.49 \times 10^5 \pm 2.43 \times 10^3$ | |
| ¹³² I | $3.50 \times 10^3 \pm 1.84 \times 10^2$ | $8.66 \times 10^3 \pm 4.92 \times 10^2$ | |
| ^{133m} Te | $1.86 \times 10^4 \pm 9.73 \times 10^2$ | $9.06 \times 10^4 \pm 3.82 \times 10^3$ | $9.28 \times 10^1 \pm 1.56 \times 10^1$ |
| ¹³³ I | $6.71 \times 10^4 \pm 1.89 \times 10^3$ | $2.71 \times 10^5 \pm 4.38 \times 10^3$ | |
| ¹³⁴ Te | $7.97 \times 10^4 \pm 4.49 \times 10^3$ | $3.56 \times 10^5 \pm 1.88 \times 10^4$ | $3.37 \times 10^2 \pm 3.83 \times 10^1$ |
| ¹³⁴ I | $1.09 \times 10^3 \pm 4.46 \times 10^2$ | $3.59 \times 10^4 \pm 2.80 \times 10^3$ | $1.71 \times 10^2 \pm 2.34 \times 10^1$ |
| ¹³⁵ I | $5.81 \times 10^4 \pm 4.27 \times 10^3$ | $2.88 \times 10^5 \pm 3.59 \times 10^4$ | $3.80 \times 10^2 \pm 5.43 \times 10^1$ |
| ¹³⁵ Xe | | | |
| ¹³⁸ Cs | $9.57 \times 10^4 \pm 6.58 \times 10^3$ | $3.12 \times 10^5 \pm 2.79 \times 10^4$ | $7.34 \times 10^2 \pm 1.46 \times 10^2$ |
| ¹⁴⁰ Ba | $7.31 \times 10^4 \pm 5.54 \times 10^3$ | $2.73 \times 10^5 \pm 1.69 \times 10^4$ | |
| ¹⁴⁰ La | $1.86 \times 10^3 \pm 4.42 \times 10^2$ | $5.16 \times 10^3 \pm 7.02 \times 10^2$ | |
| ¹⁴¹ Ce | $4.19 \times 10^4 \pm 3.68 \times 10^2$ | $1.70 \times 10^5 \pm 1.21 \times 10^3$ | $4.39 \times 10^2 \pm 3.30 \times 10^1$ |
| ¹⁴² La | $3.77 \times 10^4 \pm 1.19 \times 10^3$ | $1.40 \times 10^5 \pm 7.00 \times 10^5$ | |
| ¹⁴³ Ce | $4.08 \times 10^4 \pm 2.56 \times 10^3$ | $3.60 \times 10^5 \pm 3.71 \times 10^3$ | |
| ¹⁴⁷ Nd | $2.26 \times 10^4 \pm 3.60 \times 10^2$ | $8.72 \times 10^4 \pm 1.11 \times 10^4$ | |
| ¹⁴⁹ Nd | $7.39 \times 10^3 \pm 2.05 \times 10^2$ | $3.46 \times 10^4 \pm 9.65 \times 10^2$ | |
| ¹⁵¹ Pm | $7.13 \times 10^3 \pm 5.83 \times 10^2$ | $2.90 \times 10^4 \pm 2.20 \times 10^3$ | $6.42 \times 10^1 \pm 7.52 \times 10^0$ |
| ²³⁷ U | $1.99 \times 10^6 \pm 1.46 \times 10^4$ | $6.07 \times 10^6 \pm 4.43 \times 10^4$ | |

TABLE 4 核変換量の実験値と計算値の比較

| ターゲット | コンバータ | 電子エネルギー E ₀ (MeV) | ターゲット質量 m (g) ×10 ⁻⁵ | 核反応 | 核変換量 Δm (g·s ⁻¹) | | | 変換比 (実験値) Δm/m(s ⁻¹) ×10 ⁻¹⁵ | 光子束 (s ⁻¹) Φ·S(>8MeV)** ×10 ¹¹ | Δm/(mΦS) (γ ⁻¹) ×10 ⁻²⁶ |
|-------------------|-------|---------------------------------|---------------------------------------|--------|------------------------------|----------------------------|---------|---|---|--|
| | | | | | 実験値 ×10 ⁻¹⁸ | 計算値* ×10 ⁻¹⁸ | 実験値/計算値 | | | |
| ²³⁷ Np | Pt | 20 | 6.13 | (γ, f) | 3.29 | 2.00 | 1.65 | 53.7 | 2.32 | 23.1 |
| | | 30 | 6.13 | (γ, f) | 11.8 | 7.87 | 1.50 | 192 | 13.5 | 14.2 |
| ²³⁸ U | Pt | 20 | 8070 | (γ, f) | 1720 | 1870 | 0.92 | 21.3 | 3.37 | 6.32 |
| | | | | (γ, n) | 2390 | 3140 | 0.76 | 29.6 | | |
| | | 30 | 7170 | (γ, f) | 5060 | 4110 | 1.23 | 70.6 | 11.0 | 6.42 |
| | | | | (γ, n) | (706)***6090 | — | — | — | | |
| | U | 20 | 4820 | (γ, f) | 438 | 463 | 0.95 | 9.09 | 1.40 | 6.49 |
| | | | | (γ, n) | 783 | 779 | 1.01 | 16.2 | | |
| 30 | 6970 | (γ, f) | 945 | 1060 | 0.89 | 13.6 | 2.87 | 4.74 | | |
| (γ, n) | 1080 | 1550 | 0.70 | 15.5 | 5.40 | | | | | |

* (9)式より求めた。

** S=(1.27/2)²π=1.27 (cm²) : ターゲットの面積

*** ターゲットの放射化が強く他のピークに埋れて、²³⁷Uのピークが過小評価された。

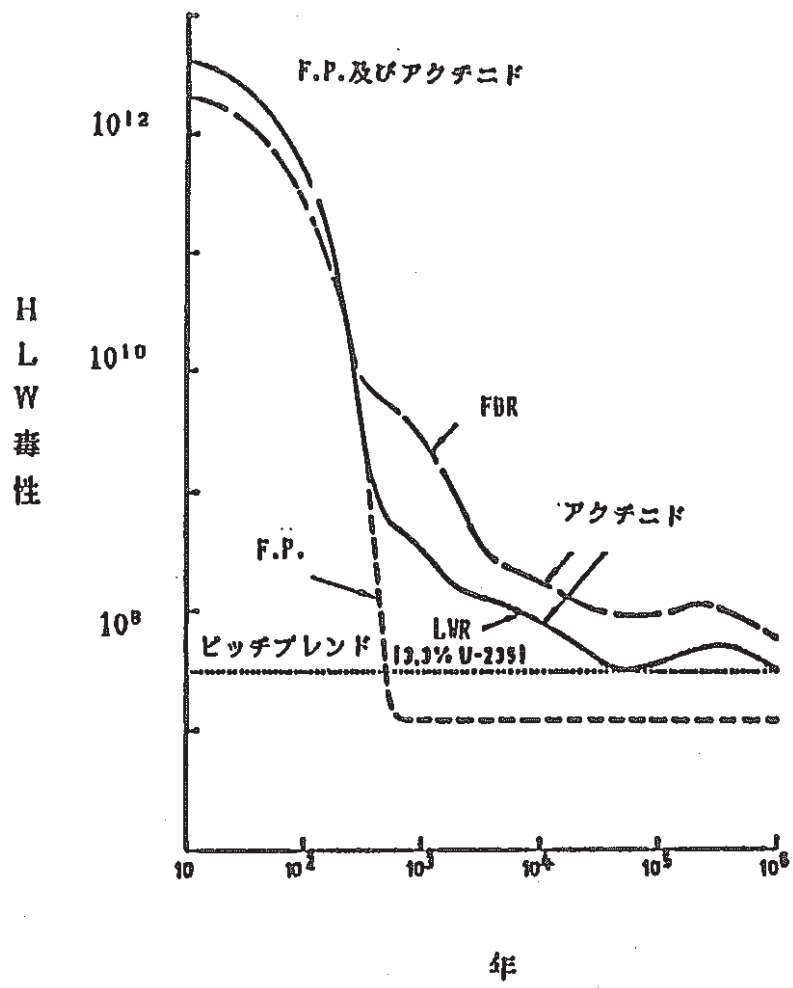
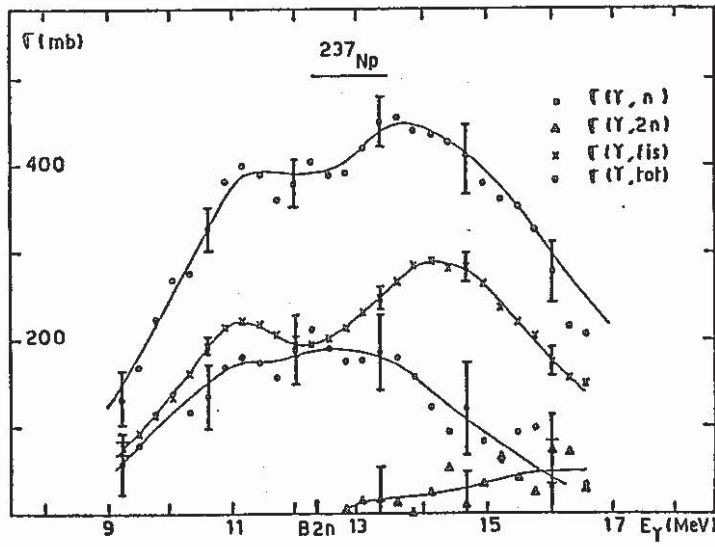
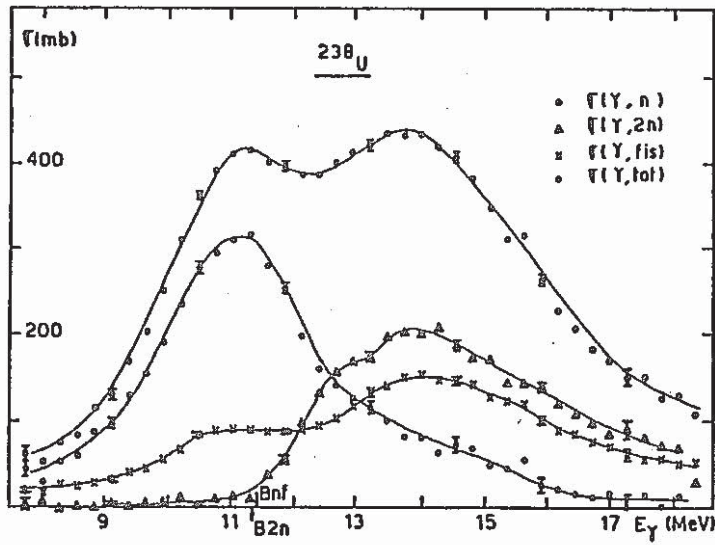


Fig. 1 Time dependence of the toxicity of high level nuclear waste materials⁽³⁰⁾



Partial and total photonuclear cross sections $\sigma(\gamma, n)$, $\sigma(\gamma, 2n)$, $\sigma(\gamma, F)$ and $\sigma_{tot} = \sigma(\gamma, n) + \sigma(\gamma, 2n) + \sigma(\gamma, F)$ of $^{237}_{93}\text{Np}$.



Partial and total photonuclear cross sections $\sigma(\gamma, n)$, $\sigma(\gamma, 2n)$, $\sigma(\gamma, F)$ and $\sigma_{tot} = \sigma(\gamma, n) + \sigma(\gamma, 2n) + \sigma(\gamma, F)$ of $^{238}_{92}\text{U}$.

Fig. 2 Partial and total photonuclear cross sections $\sigma(\gamma, n)$, $\sigma(\gamma, 2n)$, $\sigma(\gamma, f)$ and σ_{total} of ^{238}U and $^{237}\text{Np}^{(20)}$

ライナック機器構成図

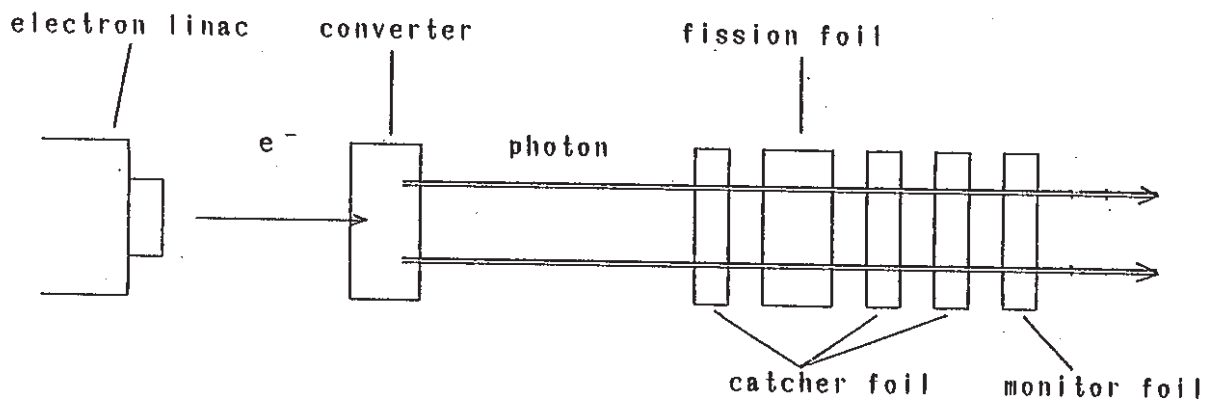
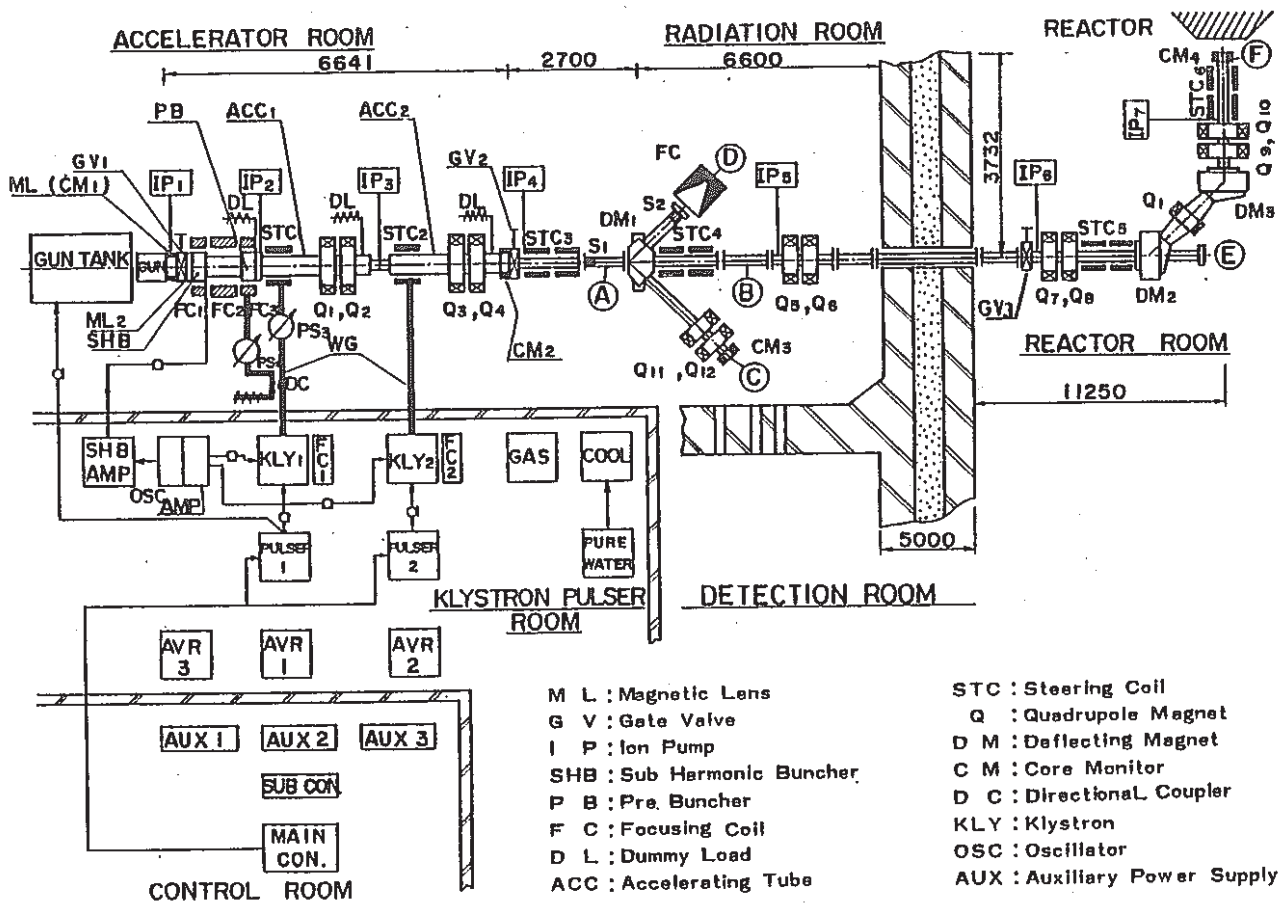
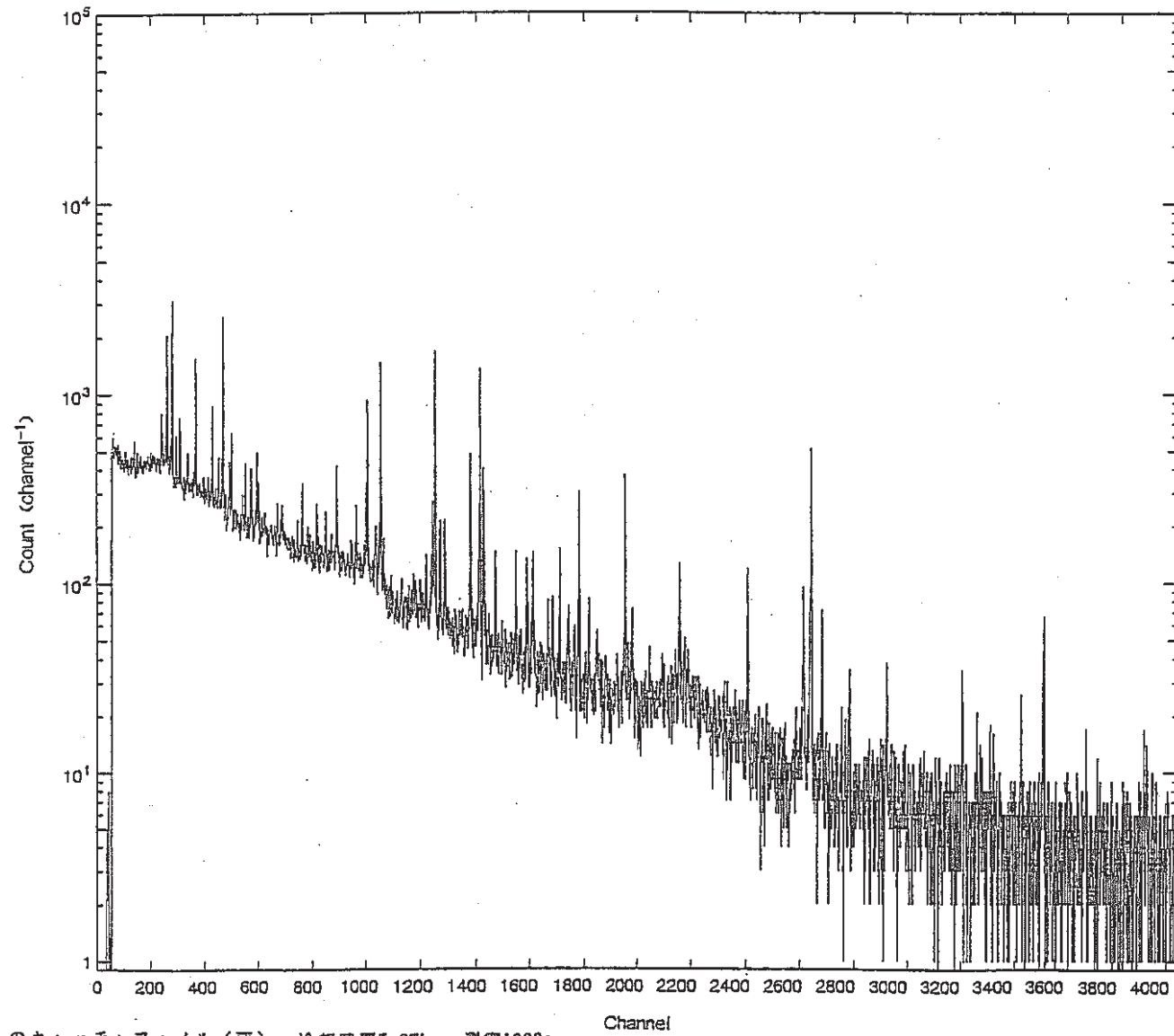


Fig. 3 Plan view of the electron linac facility of University of Tokyo and experimental arrangement



実験1のキャッチャフォイル（薄）、冷却時間5.87hr、測定1000s

Fig. 4 Measured gamma-ray spectrum of fission products deposited on the aluminum catcher foil contacted on a ^{238}U foil bombarded by the 30 MeV bremsstrahlung

PEAK WAS FOUND (ININ =1069 INAX =1094 COMPONENT 1)

1 PCH = 1080.650 CHANNEL

=== DISTORTED GAUSSIAN FITTING IS FAILED, SO THE NORMAL GAUSSIAN FUNCTION IS APPLIED ===

| NO | PCH | +- | AREA | +- | FWHM | +- | ICH | FCH | NP | ITR | ALPHA | P(1) | P(2) | P(3) |
|----|----------|-------|-------|-----|-------|-------|------|------|----|-----|-------|-----------|------------|------|
| 37 | 1080.681 | 0.036 | 1316. | 53. | 2.700 | 0.145 | 1069 | 1094 | 1 | 6 | 2.42 | 4.879E+01 | -7.716E-03 | |

| CH | MEAS | CALCD | DIFRNC | BKG | -2 | -1 | 0 | +1 | +2 | (SIGMA) |
|------|------|-------|--------|-----|----|----|-----|----|----|---------|
| 1069 | 50. | 54. | -4. | 54. | . | | X I | | | +x |
| 1070 | 56. | 54. | 2. | 54. | . | | IX | | | x+ |
| 1071 | 56. | 54. | 2. | 54. | . | | IX | | | x+ |
| 1072 | 65. | 54. | 11. | 54. | . | | I | X | | x + |
| 1073 | 50. | 54. | -4. | 54. | . | | X I | | | +x |
| 1074 | 51. | 54. | -3. | 54. | . | | X I | | | +x |
| 1075 | 58. | 54. | 4. | 54. | . | | I X | | | x + |
| 1076 | 72. | 54. | 18. | 54. | . | | I | X | | x + |
| 1077 | 46. | 56. | -10. | 53. | . | X | I | | | + Ix |
| 1078 | 74. | 83. | -9. | 53. | . | X | I | | | I + x |
| 1079 | 215. | 209. | 6. | 52. | . | | I X | | | I |
| 1080 | 444. | 435. | 9. | 51. | . | | I X | | | I |
| 1081 | 477. | 488. | -11. | 48. | . | | X I | | | I |
| 1082 | 281. | 282. | -1. | 46. | . | | X | | | I |
| 1083 | 108. | 104. | 4. | 45. | . | | I X | | | I |
| 1084 | 55. | 51. | 4. | 44. | . | | I X | | | I x + |
| 1085 | 50. | 44. | 6. | 44. | . | | I X | | | x + |
| 1086 | 38. | 44. | -6. | 44. | . | X | I | | | + x |
| 1087 | 43. | 44. | -1. | 44. | . | | XI | | | x |
| 1088 | 45. | 44. | 1. | 44. | . | | IX | | | x |
| 1089 | 45. | 44. | 1. | 44. | . | | IX | | | x |
| 1090 | 45. | 44. | 1. | 44. | . | | IX | | | x |
| 1091 | 51. | 44. | 7. | 44. | . | | I X | | | x + |
| 1092 | 36. | 44. | -8. | 44. | . | X | I | | | + x |
| 1093 | 48. | 44. | 4. | 44. | . | | I X | | | x + |
| 1094 | 41. | 44. | -3. | 44. | . | | X I | | | +x |

=== CHI SQUARE 6.5252E-01 ===

(a)

Fig. 5 Example of the analysis of gamma-ray spectrum from the pure Ge detector with the KEI-11EF computer code

PEAK WAS FOUND (IMIN =1004 INAX =1027 COMPONENT 1)

1 PCH = 1015.880 CHANNEL

*** DISTORTED GAUSSIAN FITTING IS FAILED, SO THE NORMAL GAUSSIAN FUNCTION IS APPLIED ***

| NO | PCH | +- | AREA | +- | FWHM | +- | ICH | FCH | NP | ITR | ALPHA | P(1) | P(2) | P(3) |
|----|----------|-------|------|-----|-------|-------|------|------|----|-----|-------|-----------|-----------|------|
| 33 | 1016.163 | 0.117 | 239. | 38. | 2.034 | 0.527 | 1004 | 1027 | 1 | 9 | 0.10 | 7.502E+01 | 2.134E-01 | |

| CH | NEAS | CALCD | DIFRNC | BKG | -2 | -1 | 0 | +1 | +2 | (SIGMA) |
|------|------|-------|--------|-----|----|----|----|----|----|---------|
| 1004 | 59. | 59. | 0. | 59. | . | . | X | . | . | . |
| 1005 | 61. | 60. | 1. | 60. | . | . | IX | . | . | . |
| 1006 | 57. | 61. | -4. | 61. | . | X | I | . | . | . |
| 1007 | 78. | 62. | 16. | 62. | . | . | I | X | . | . |
| 1008 | 56. | 63. | -7. | 63. | . | X | I | . | . | . |
| 1009 | 68. | 64. | 4. | 64. | . | . | I | X | . | . |
| 1010 | 65. | 66. | -1. | 66. | . | . | XI | . | . | . |
| 1011 | 69. | 67. | 2. | 67. | . | . | IX | . | . | . |
| 1012 | 75. | 69. | 6. | 69. | . | . | I | X | . | . |
| 1013 | 74. | 70. | 4. | 70. | . | . | I | X | . | . |
| 1014 | 83. | 76. | 7. | 72. | . | . | I | X | . | . |
| 1015 | 114. | 118. | -4. | 73. | . | X | I | . | . | . |
| 1016 | 186. | 183. | 3. | 75. | . | . | IX | . | . | . |
| 1017 | 144. | 145. | -1. | 78. | . | . | XI | . | . | . |
| 1018 | 91. | 89. | 2. | 78. | . | . | IX | . | . | . |
| 1019 | 57. | 80. | -23. | 79. | X | . | I | . | . | . |
| 1020 | 71. | 81. | -10. | 81. | . | X | I | . | . | . |
| 1021 | 80. | 82. | -2. | 82. | . | . | XI | . | . | . |
| 1022 | 73. | 84. | -11. | 84. | . | X | I | . | . | . |
| 1023 | 84. | 85. | -1. | 85. | . | . | XI | . | . | . |
| 1024 | 87. | 86. | 1. | 86. | . | . | X | . | . | . |
| 1025 | 90. | 88. | 2. | 88. | . | . | IX | . | . | . |
| 1026 | 95. | 89. | 6. | 89. | . | . | I | X | . | . |
| 1027 | 108. | 90. | 18. | 90. | . | . | I | X | . | . |

*** CHI SQUARE 9.1856E-01 ***

(b)

Fig. 5 Example of the analysis of gamma-ray spectrum from the pure Ge detector with the KEI-11EF computer code

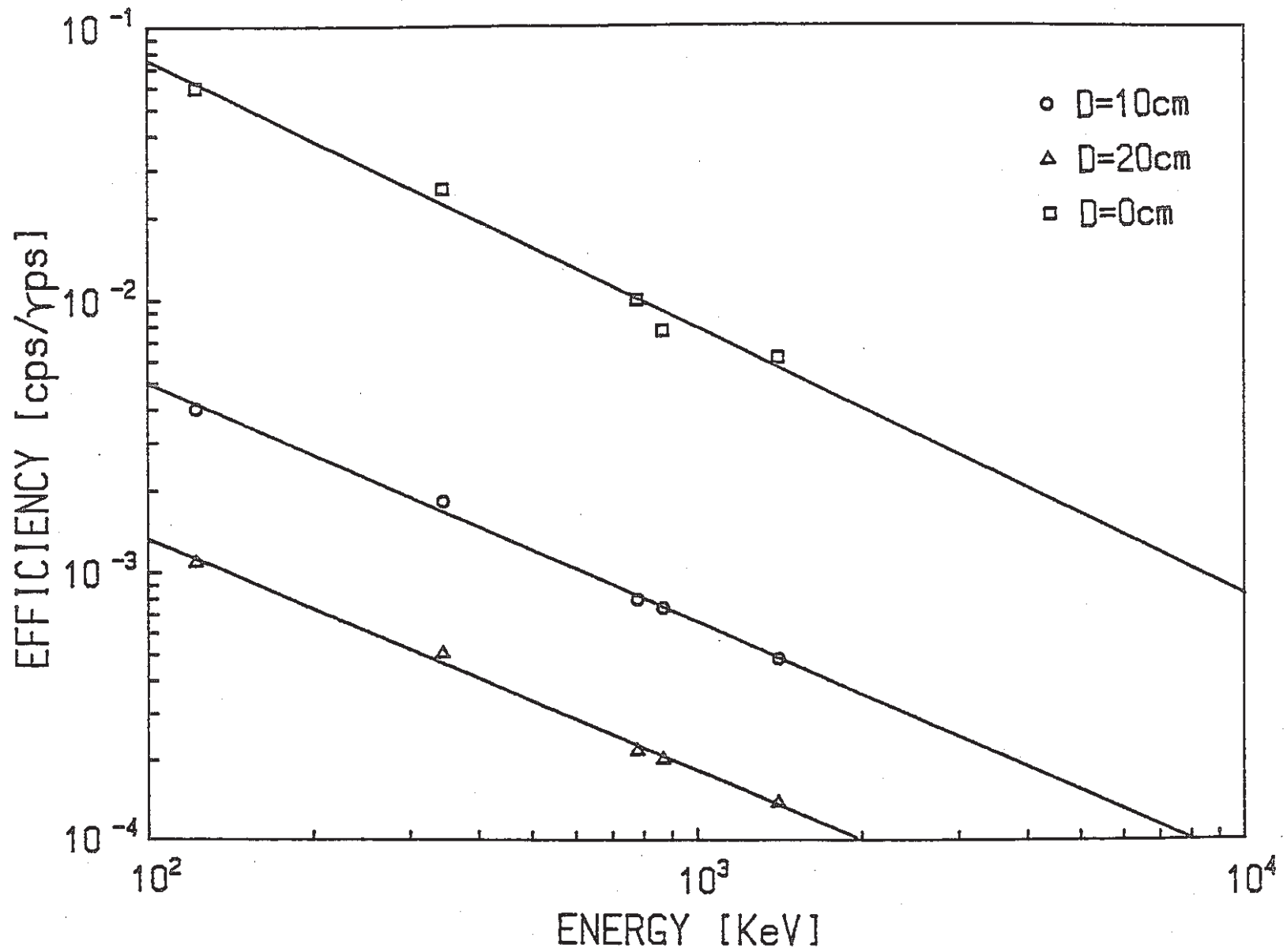


Fig. 6 Measured peak efficiencies of the pure Ge detector at three source positions, $d=0, 10, 20$ cm

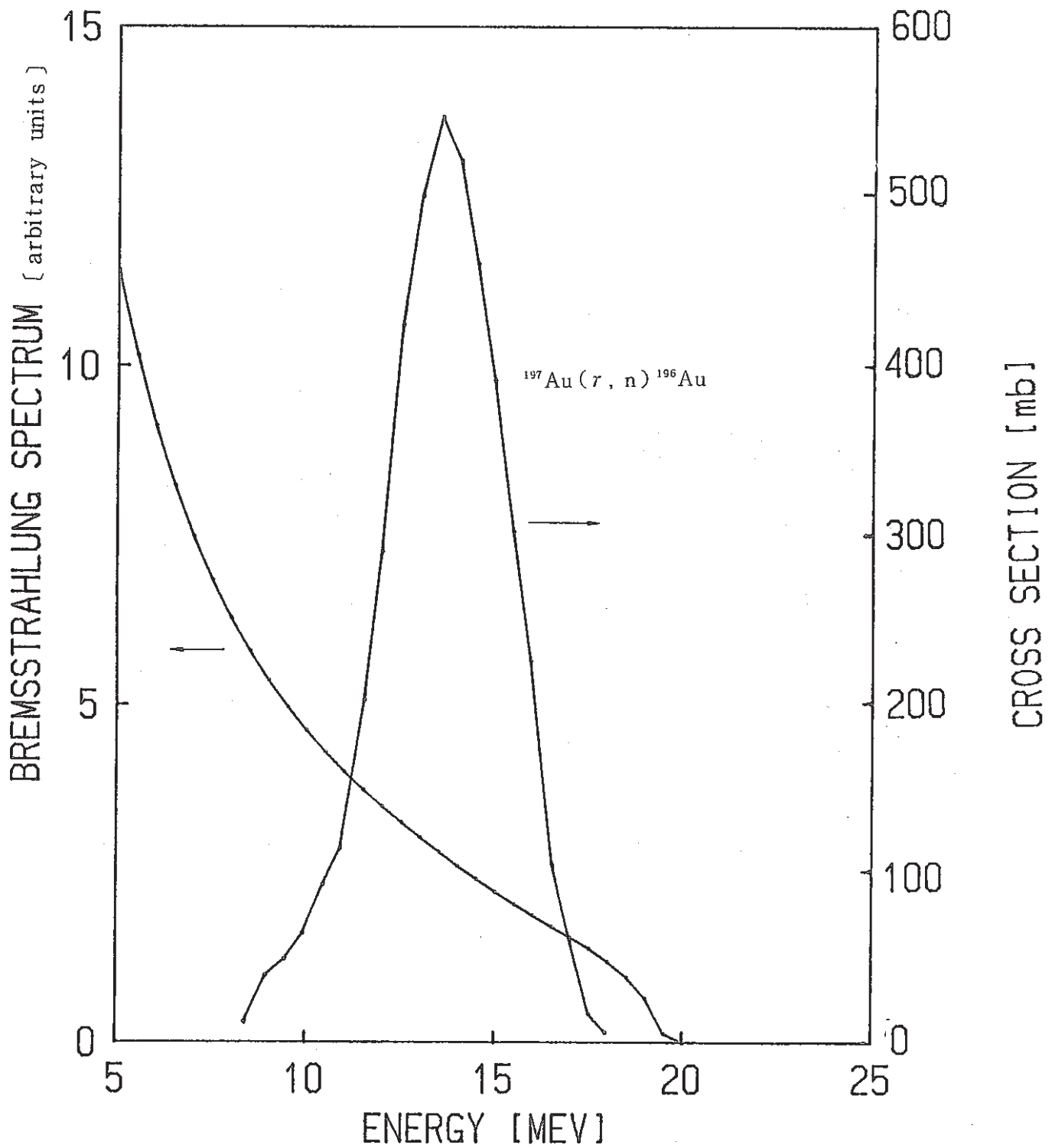


Fig. 7 Photonuclear cross section of $^{197}\text{Au}(\gamma, n)^{196}\text{Au}^{(26)}$ and the bremsstrahlung spectrum of thin platinum target bombarded by 20 MeV electrons calculated from the Schiff's formula $^{(27)}$

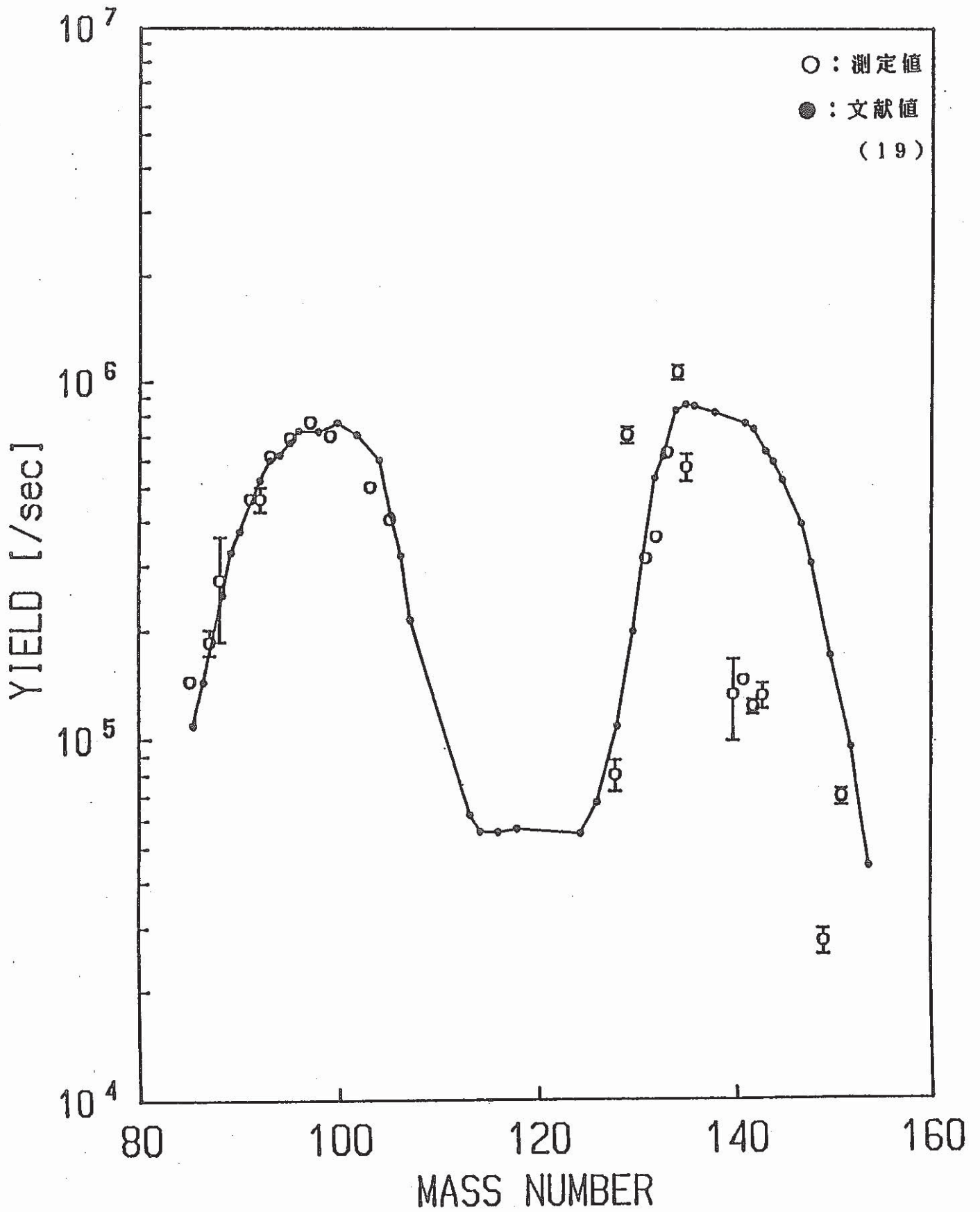


Fig. 8 Mass yield distribution of fission products in Experiment 1
(30 MeV bremsstrahlung from Pt on ²³⁸U)

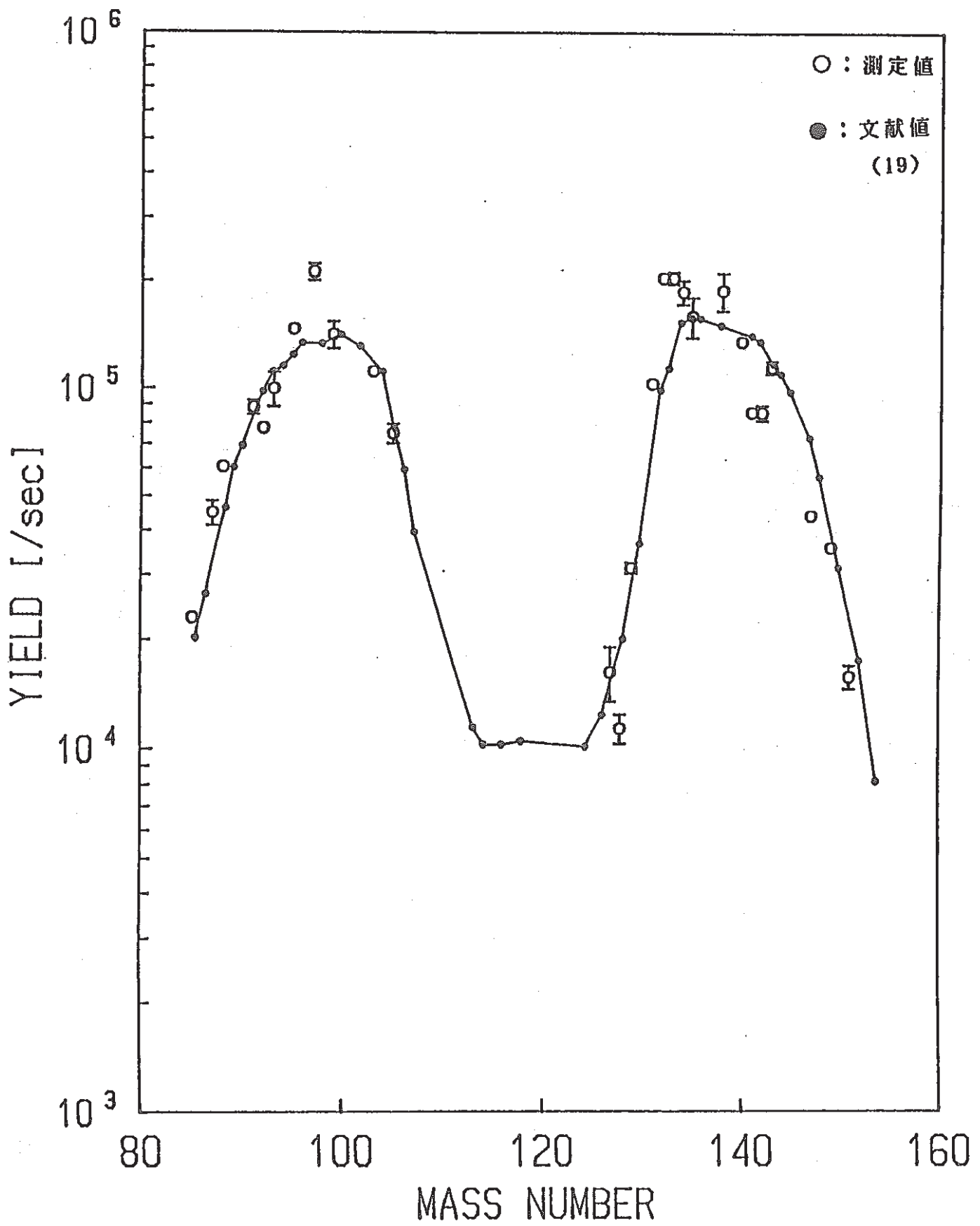


Fig. 9 Mass yield distribution of fission products in Experiment 2
 (30 MeV bremsstrahlung from U on ²³⁸U)

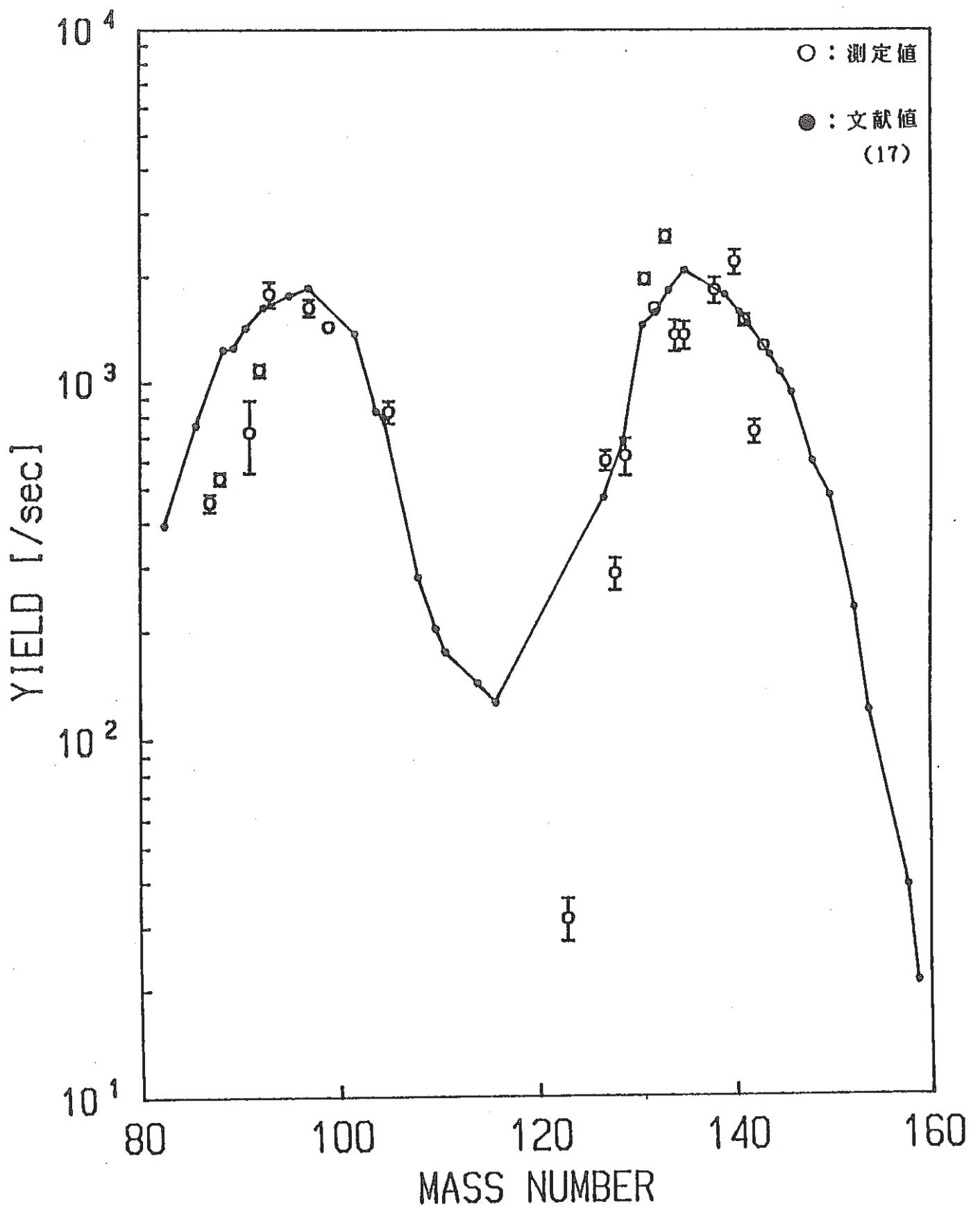


Fig. 10 Mass yield distribution of fission products in Experiment 3
(30 MeV bremsstrahlung from Pt on ^{237}Np)

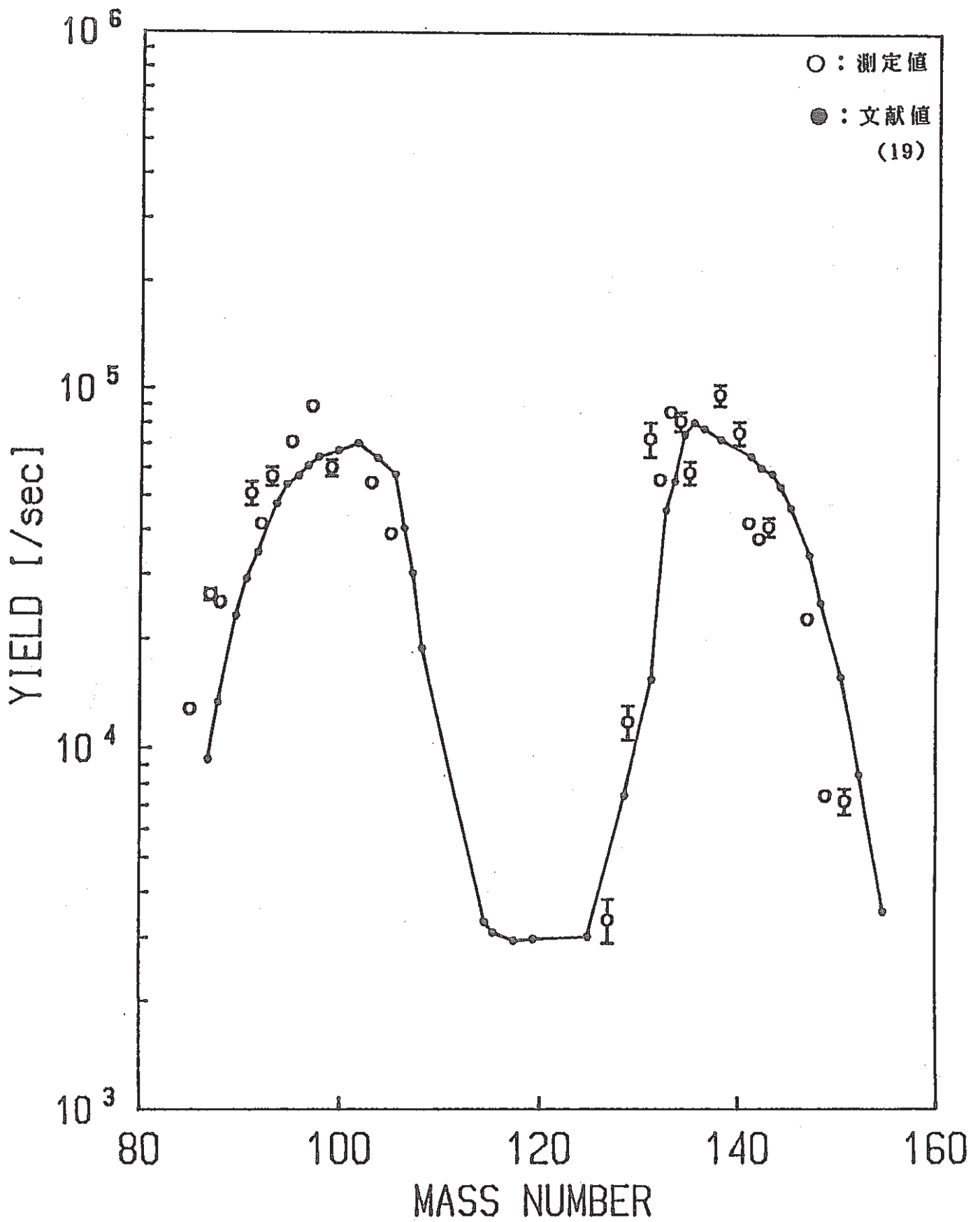


Fig. 11 Mass yield distribution of fission products in Experiment 4
 (20 MeV bremsstrahlung from U on ²³⁸U)

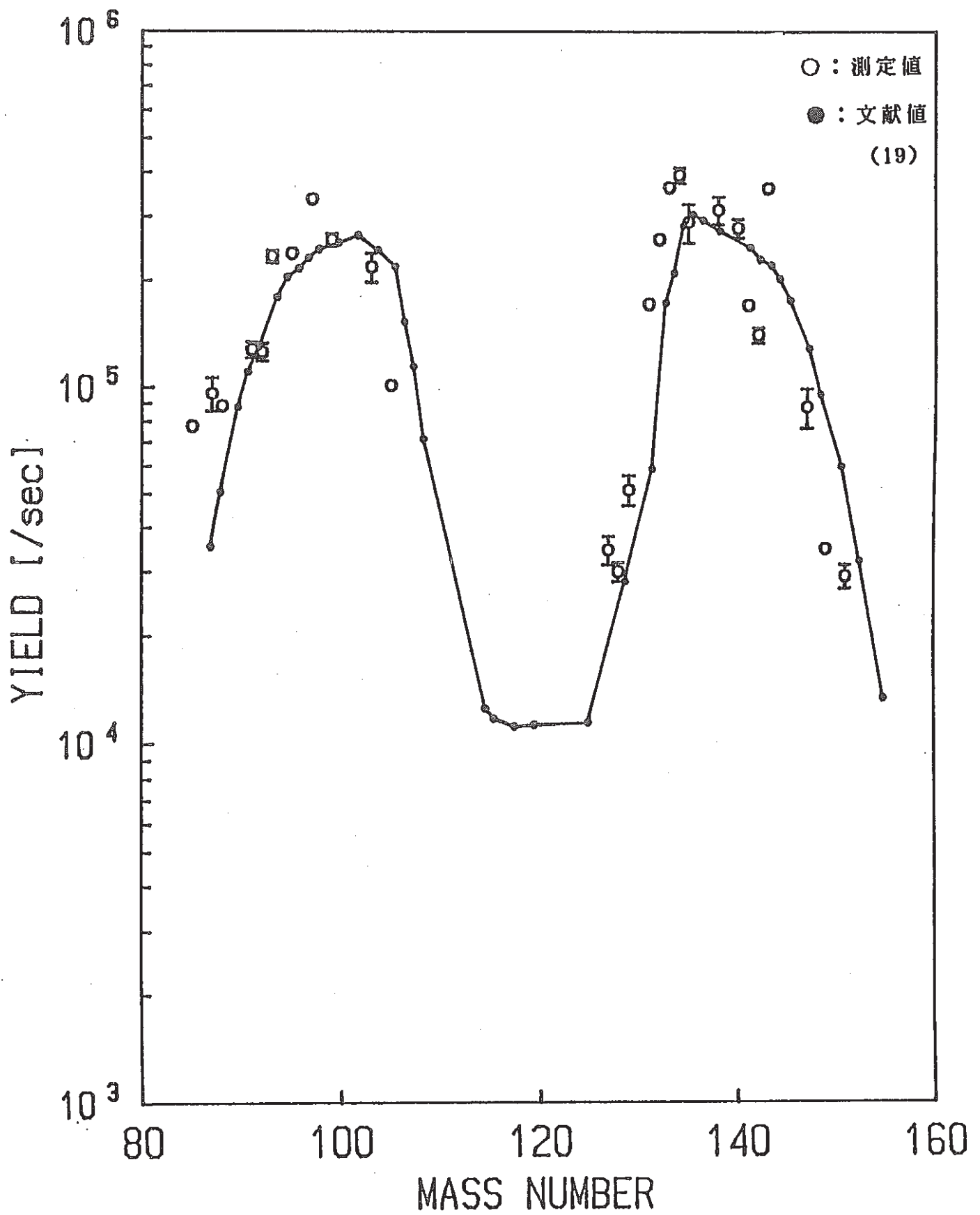


Fig. 12 Mass yield distribution of fission products in Experiment 5
(20 MeV bremsstrahlung from Pt on ²³⁸U)

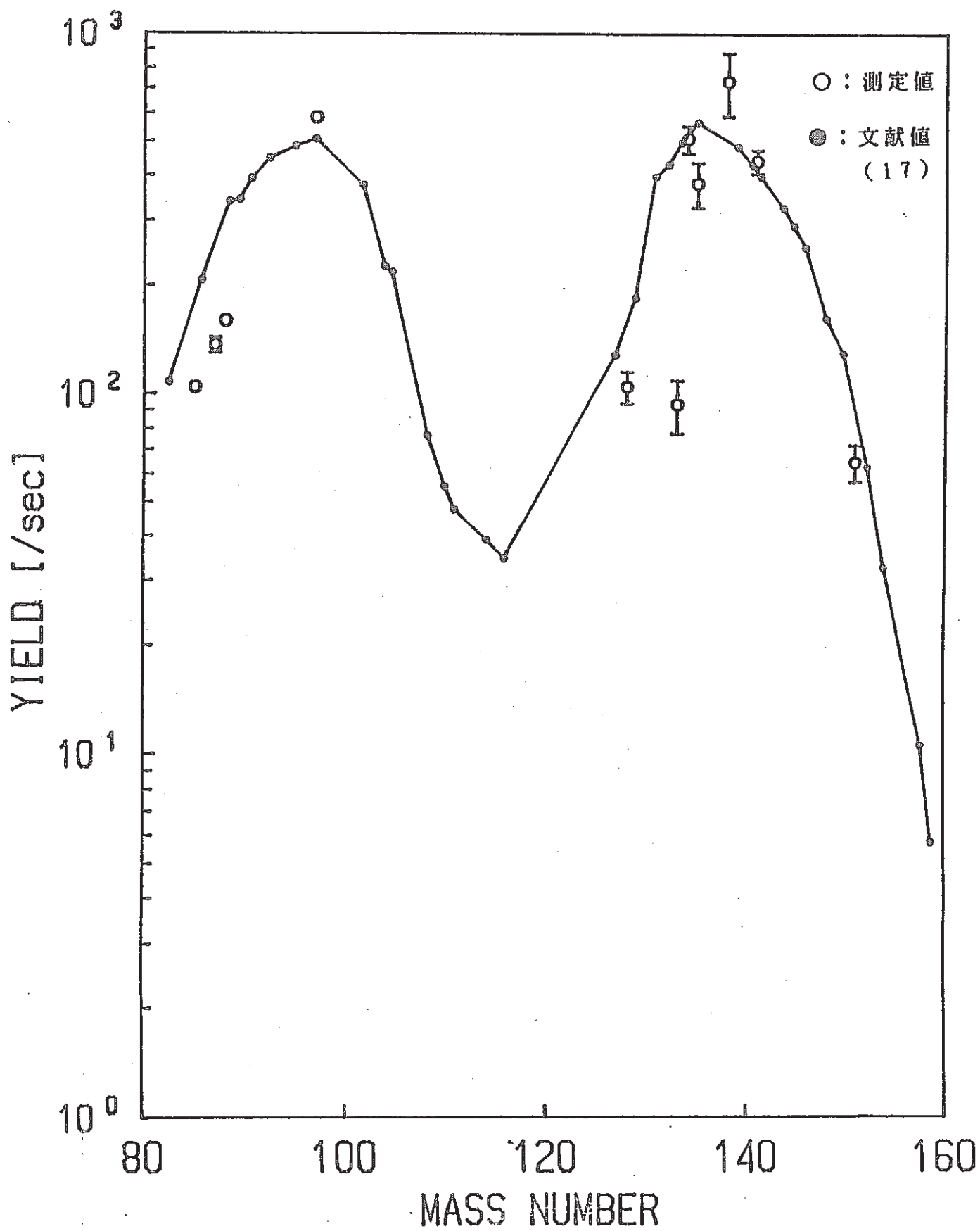


Fig. 13 Mass yield distribution of fission products in Experiment 6
 (20 MeV bremsstrahlung from Pt on ^{237}Np)

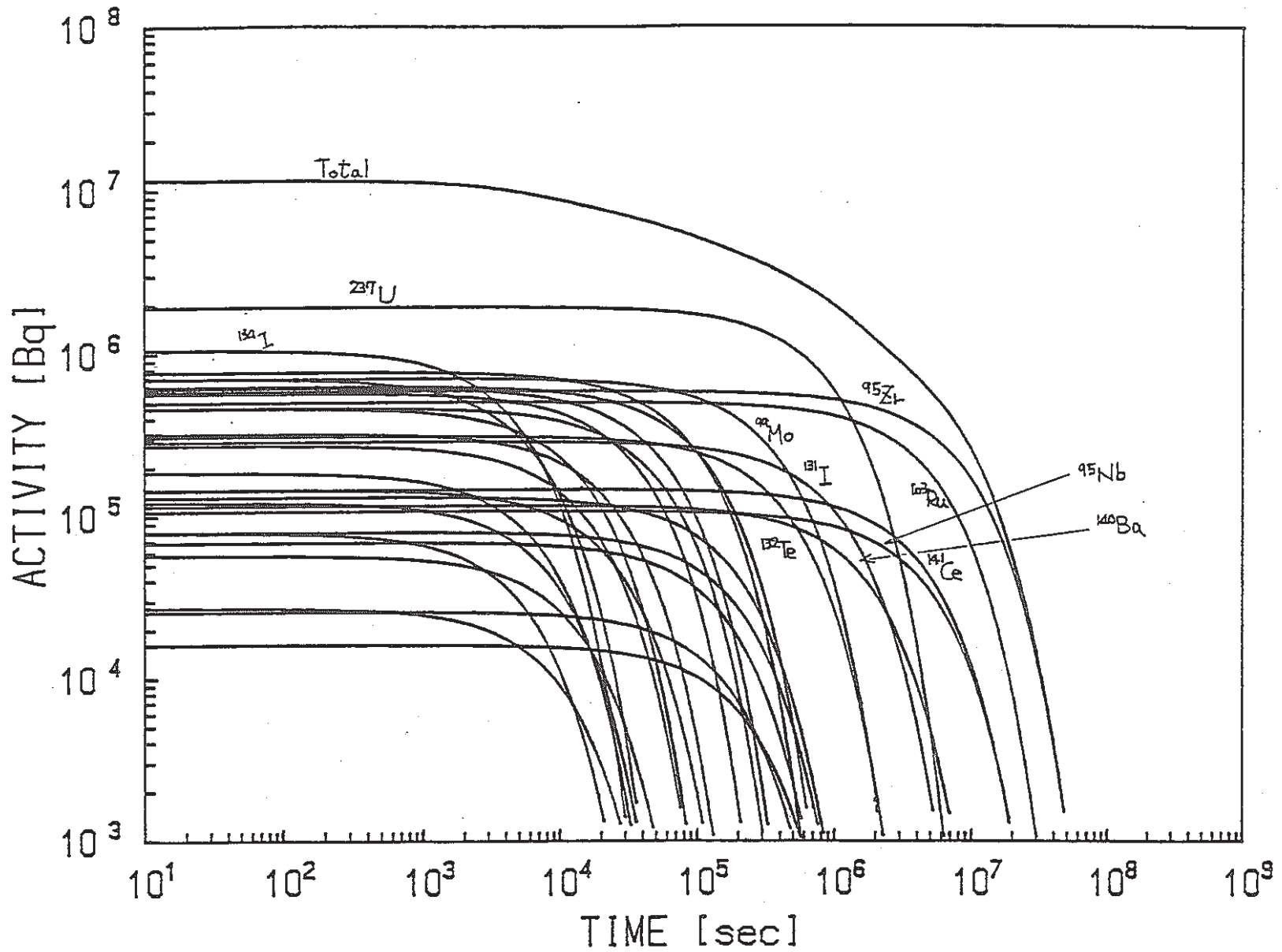


Fig. 14 Decay of induced radioactivity after irradiation in Experiment 1
(30 MeV bremsstrahlung from Pt on ^{238}U)

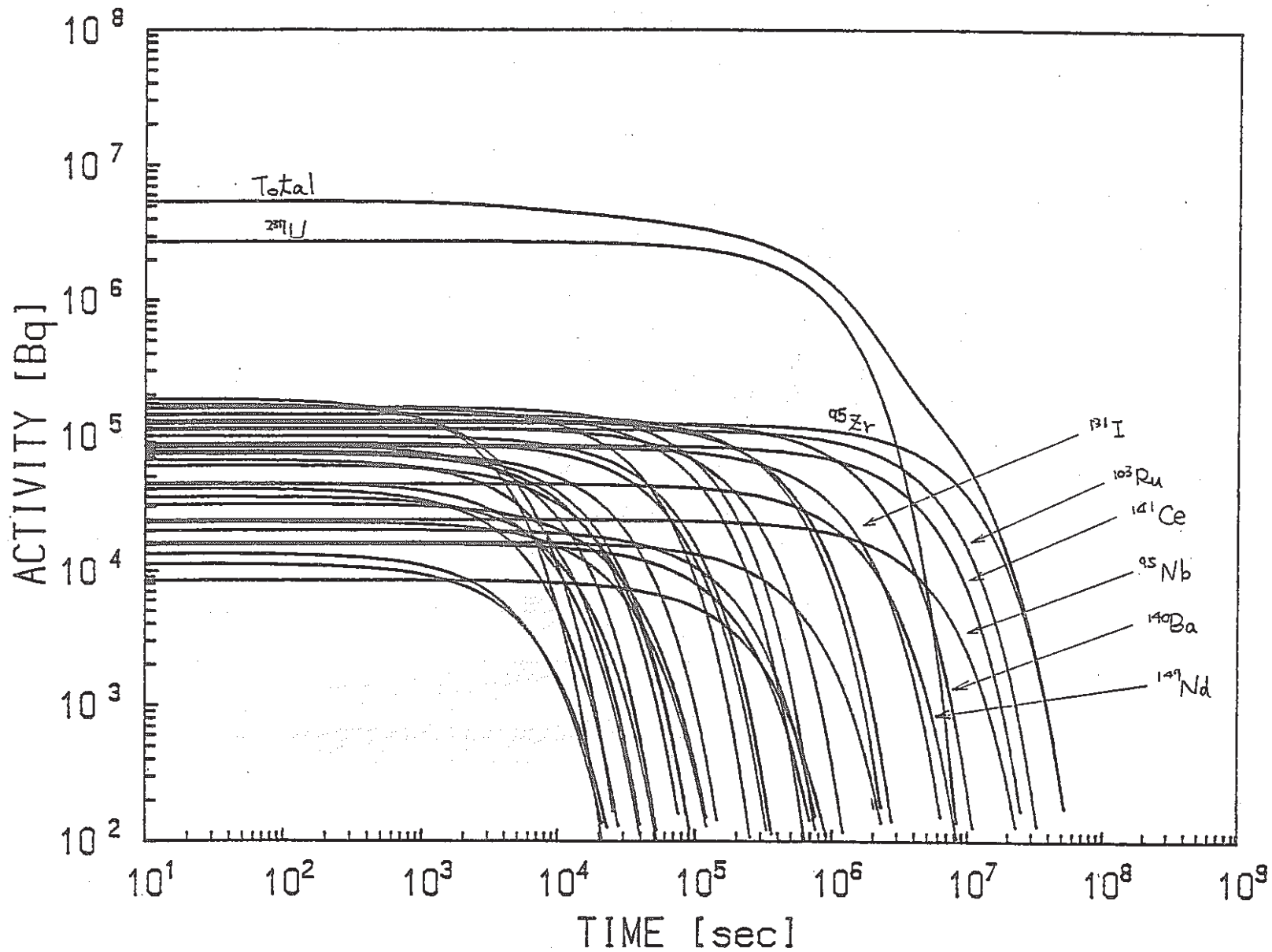


Fig. 15 Decay of induced radioactivity after irradiation in Experiment 2

(30 MeV bremsstrahlung from U on ^{238}U)

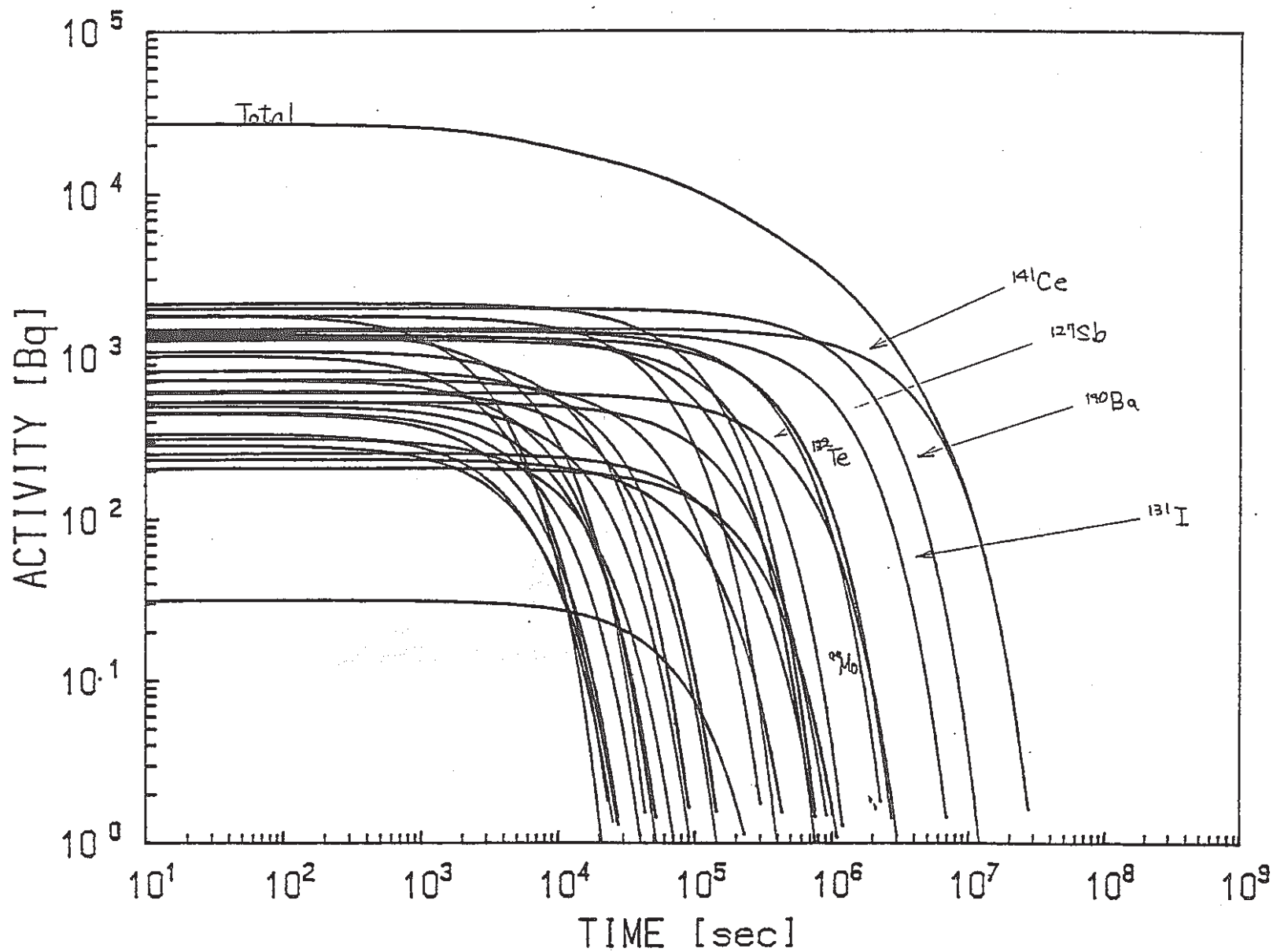


Fig. 16 Decay of induced radioactivity after irradiation in Experiment 3
(30 MeV bremsstrahlung from Pt on ^{237}Np)

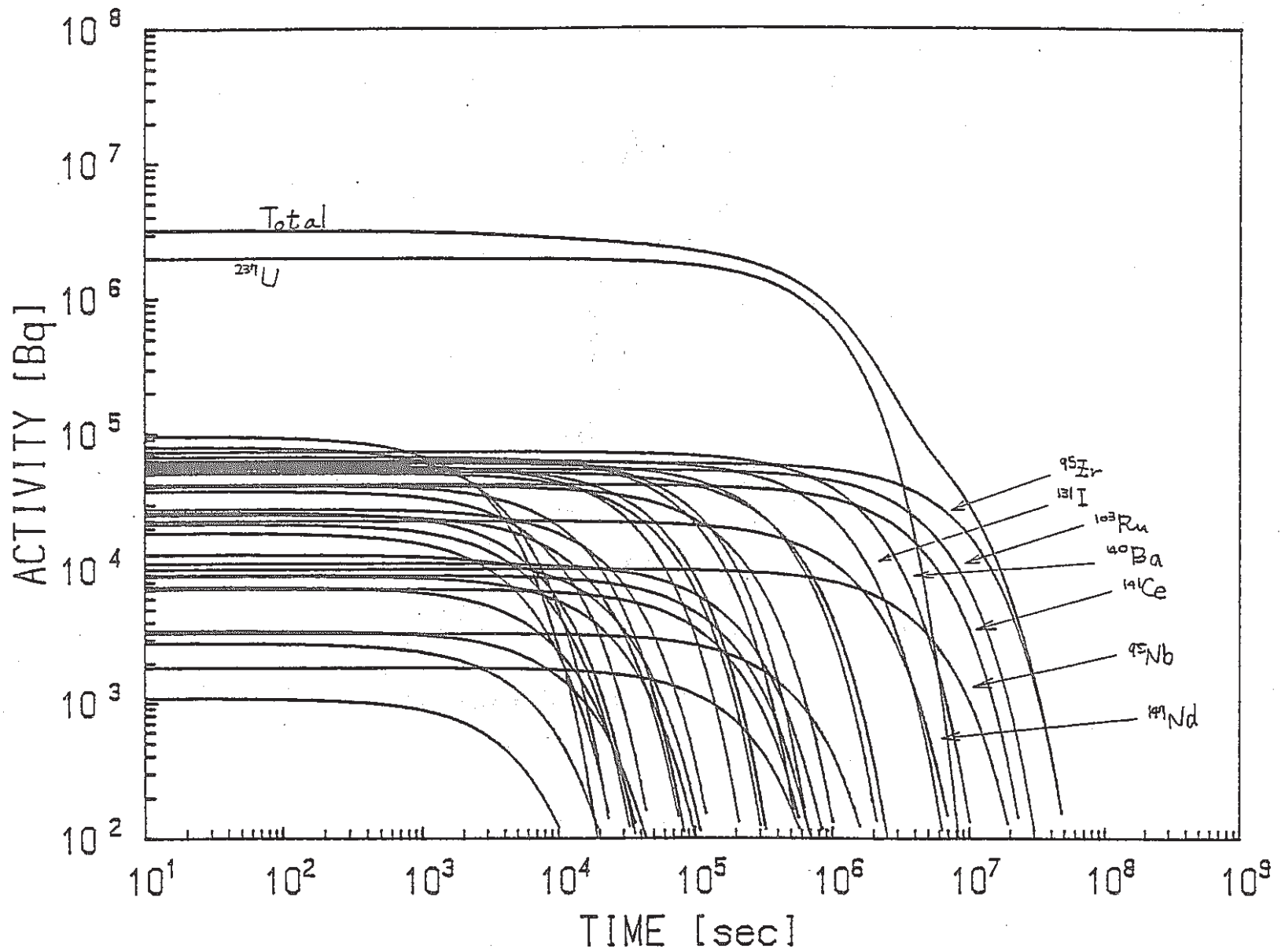


Fig. 17 Decay of induced radioactivity after irradiation in Experiment 4
(20 MeV bremsstrahlung from U on ²³⁸U)

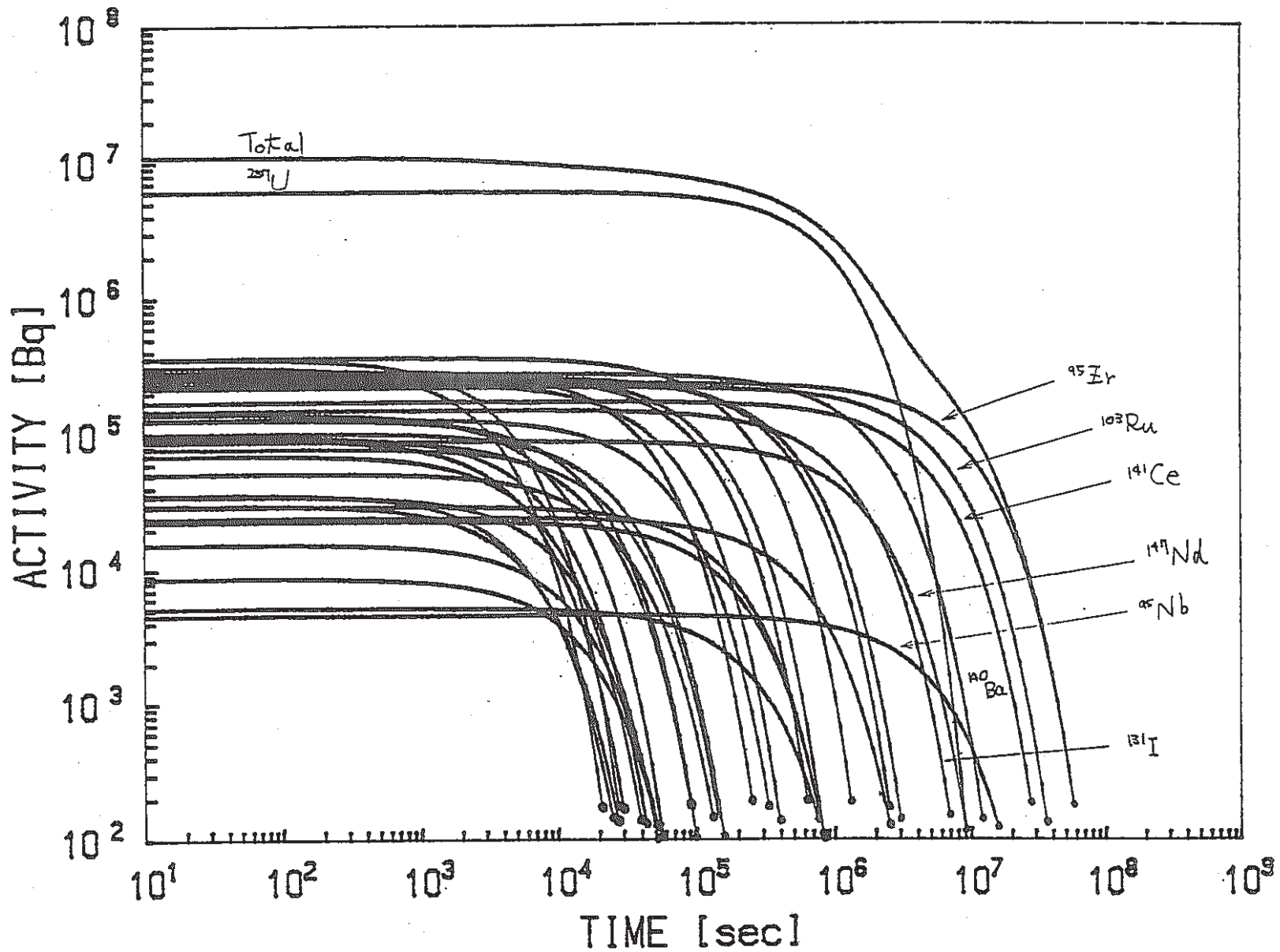


Fig. 18 Decay of induced radioactivity after irradiation in Experiment 5
(20 MeV bremsstrahlung from Pt on ^{238}U)

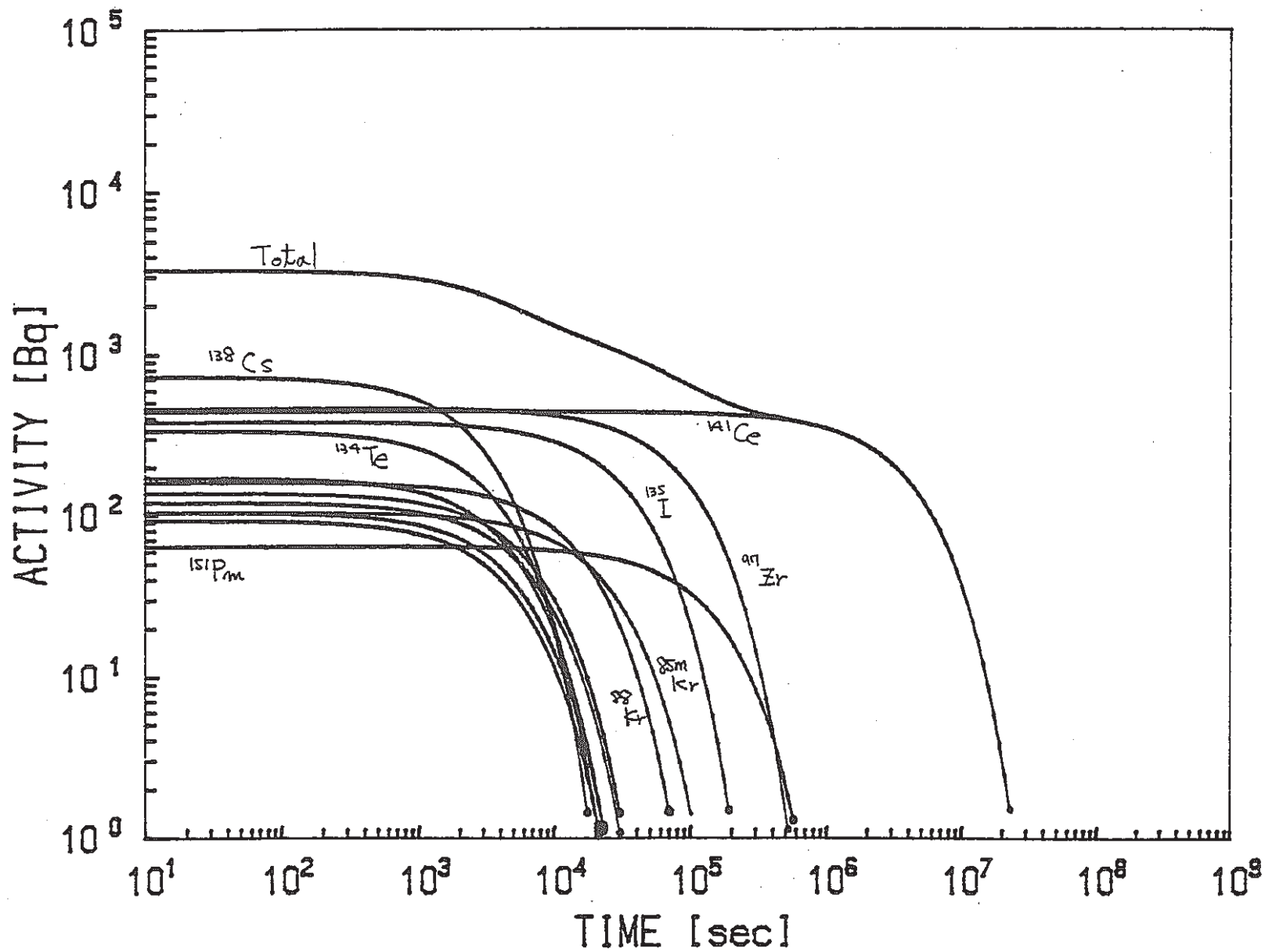


Fig. 19 Decay of induced radioactivity after irradiation in Experiment 6
(20 MeV bremsstrahlung from Pt on ^{237}Np)