

# F P の 消 滅 処 理 研 究

1992年4月

動力炉・核燃料開発事業団  
東海事業所

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。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 - 33

動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所

技術開発推進部 技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technology Management Section, Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel  
Development Corporation 4-33, Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki,  
319-11, Japan )

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development  
Corporation)1992

## F P の 消 滅 処 理 研 究

実施責任者：笹尾信之（昭和63年4月～平成3年3月）＊

岸本洋一郎（平成3年4月～平成4年3月）\*\*

担当者：小無健司\*\*、原田秀郎\*\*、高下浩文\*\*

加瀬 健\*\*、野村昌弘\*\*

### 要 旨

核燃料技術開発部 先端技術開発室では、長寿命核分裂生成物（F P）の消滅処理法の研究を行っている。具体的には、

- ・ 原子炉や加速器を利用した消滅処理法のエネルギー収支と消滅速度の評価
- ・ 新しい方式の消滅処理法（Moving target法を利用した消滅処理法等）の提案
- ・ 消滅処理の評価に必要な核反応断面積（ $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ の熱中性子吸収断面積等）の測定

等である。本資料は、昭和63年度から平成3年度までに上げたその研究成果をまとめたものである。

---

＊ 東海事業所 副所長

\*\* 核燃料技術開発部

## F P の消滅処理研究 目次

I . はじめに	2
II . 消滅処理の対象となる F P	2
III . 消滅処理への要件	3
III - 1 . 消滅処理速度	3
III - 2 . 消滅処理エネルギー	4
IV . 消滅処理の方法	5
IV - 1 . 陽子による消滅処理	5
IV - 2 . $\gamma$ 線による消滅処理	7
(a) 逆コンプトン $\gamma$ 線による消滅処理	8
IV - 3 . 中性子による消滅処理	12
IV - 3 - 1 . (n, $\gamma$ ) 反応による消滅処理	12
(a) Taube の消滅炉	13
(b) 米国 A N S 炉	14
(c) 原子炉による消滅処理	15
(d) Moving target 法による消滅処理	18
IV - 3 - 2 . (n, 2n) 反応による消滅処理	19
(a) ミュオン触媒核融合 ( $\mu$ C F) 炉を利用した消滅処理	19
(b) 慣性核融合 (ICF) 炉を利用した消滅処理	20
IV - 3 - 3 . 加速器による $^{137}\text{Cs}$ の消滅処理法の比較	21
V . 基礎データの整備	23
V - 1 . $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ の (n, $\gamma$ ) 断面積の測定	23
V - 2 . $^{137}\text{Cs}$ の ( $\gamma$ , n) 断面積の測定	24
V - 3 . 消滅処理の対象となる長寿命 F P の核反応断面積	24
VI . 今後の検討課題	28
謝辞	29
参考文献	30
付録 1 : 成果発表	31
付録 2 : 投稿論文、プロシーディング等	36

# F P の消滅処理研究

## I. はじめに

放射性廃棄物は、原子炉からの使用済燃料等から発生する。その中には、長寿命の放射性核種が含まれており長期にわたってこれらの安全性を確保する必要がある。現在のところこれら長寿命の放射性廃棄物の処理処分方法としては、これをガラス固化体として厳重に封じ込め深地層中に処分することにより、人間環境より隔離する方法の研究開発が進められている。ここでは、核変換によって長寿命放射性核種の短寿命化または安定化する方法、いわゆる消滅処理について述べる。

長寿命放射性廃棄物は、超ウラン元素、TRU(transuranic elements)と核分裂生成物、FP(fission products)に分類することができる。この内TRUについては、本来核分裂の可能性を持っている核種であり、燃料として核燃料サイクルの中に取り込むことが可能と考えられる。最近の消滅処理研究は、このTRUの消滅処理に集中している。一方、核分裂生成物核種の中で中性子の反応断面積の小さい核種については、通常の原子炉単独で消滅処理を行うことは難しく、何らかの新しい消滅処理手法を開発する必要がある。ここでは、核分裂生成物の消滅処理研究の現状について述べる。

## II. 消滅処理の対象となるFP

UまたはPuの核分裂によって発生する長寿命のFPの主なものを表1に示す。

この表1に示す生成率は、累積収率(cumulative yield)であり、核分裂によって直接発生する独立収率(independent yield)で生成した後、 $\beta$ 崩壊によりdecay chain上で累積したものである。消滅処理の対象となる核種はこの生成率が大きく、半減期が長く、かつ(n,  $\gamma$ )反応の断面積が小さいために原子炉では燃焼中に消滅せずに生き残ったものである。

また表1には、1tの燃料(3.3%濃縮ウラン)を軽水炉(出力密度30MW/tU、中性子束 $2.92 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 、燃焼度33000MWd/tU)で使用した後に蓄積される消滅処理対象核種の重量を示している。

表1 主な消滅処理対象核種

核種	半減期(年)	生成率(%)	(n, $\gamma$ )反応 断面積	使用済み燃料1ton 中に含まれる重量*
$^{85}\text{Kr}$	11	0.3	1.7b	24g
$^{90}\text{Sr}$	29	5.9	14mb	540g
$^{93}\text{Zr}$	$1.5 \times 10^6$	6.4	1.3-4b	720g
$^{99}\text{Tc}$	$2.1 \times 10^5$	6.1	20b	770g
$^{107}\text{Pd}$	$6.5 \times 10^6$	0.2	1.8b	210g
$^{129}\text{I}$	$1.6 \times 10^7$	0.9	27b	180g
$^{135}\text{Cs}$	$2.3 \times 10^6$	6.7	8.7b	350g
$^{137}\text{Cs}$	30	6.2	0.25b	1200g

\* : G.R.Choppin and J.Ryderg, "Nuclear Chemistry", Pergamon Press より引用

### Ⅲ. 消滅処理への要件

消滅処理は、①放射能のリスクを低減するという基本的な目的と②エネルギーシステムの中に組み入れられねばならないという要請があるために、少なくとも消滅処理速度と消滅処理エネルギーの2つの特性が要求を満たしている必要がある。この点が消滅処理研究と基礎研究の原子核実験が大きく異なる点である。

#### Ⅲ-1. 消滅処理速度

粒子線場での消滅処理速度は、

$$\lambda_{\text{irr}} = \int \sigma(E) \cdot \phi(E) dE$$

となる。ここで、 $\sigma(E)$ は断面積であり、 $\phi(E)$ はエネルギーEを持つ粒子のfluxを表す。また、実効半減期は、この核変換による消滅処理速度と自然崩壊速度 $\lambda_{\text{nat}}$ を用いて、

$$\tau_{eff} = \ln 2 / \lambda_{eff}$$

のように表される。ここで  $\lambda_{eff} = \lambda_{nat} + \lambda_{tr}$  である。これにより明かなように、速い消滅処理速度を得るためには、大きな断面積を用いるかまたは、高強度の粒子線束を用いる必要がある。消滅処理速度を大きくすれば処理期間を短縮することができるばかりではなく、以下に示すように原子炉と消滅処理装置からなるエネルギーシステム内での放射性核種の蓄積量を減少できる。

例えば、1台の原子炉から発生する放射性核種を1台の消滅処理装置で処理する場合を考えてみる。発電炉の出力、稼働率、熱-電気変換効率をそれぞれ、 $E_R(W)$ ,  $h$ ,  $\eta_R$  とすると、核分裂収率  $Y$  の核種の発生速度  $S(\text{sec}^{-1})$  は、

$$S = \frac{h}{\eta_R} \cdot \frac{Y \cdot E_R}{1.6019 \times 10^{-10}} \cdot \frac{1}{E_{fiss}} \quad (1)$$

となる。ここで、 $E_{fiss}(\text{MeV})$  は、一回の核分裂で放出されるエネルギーである。

長寿命の放射性核種の蓄積量  $W$  の時間変化が、

$$dW/dt = S - W \cdot \lambda_{eff} \quad (2)$$

で表されると仮定すると、平衡状態では  $W = S / \lambda_{eff} = S \cdot \tau_{eff} / \ln 2$  となる。例えば、 $h=0.75$ 、 $\eta_R=0.33$ 、 $Y=0.06$ 、 $E_R=10^3 \text{ MWe}$ 、 $E_{fiss}=200 \text{ MeV}$  として  $\tau_{eff}$  を2年とすると  $W = 643 \text{ mol}$  となる。この量は、 $^{137}\text{Cs}$  では、88kgとなる。これが、1GWeの発電炉一基と消滅処理装置（実効半減期2年）1台のシステムに対応する平衡時の蓄積量である。すなわち、消滅処理では文字どおり放射能をゼロにすることはできないが蓄積量を少なくしてゼロと見なせるまで減少させることが必要でありそのためには速い消滅処理速度を達成しなければならないことが分かる。

### III-2. 消滅処理エネルギー

次に、放射性廃棄物を発生するときに核分裂によりどれだけのエネルギーが得られているかを調べる。消滅対象核種の核分裂収率を  $Y$  とし、核分裂エネルギーを  $E_{fiss}$ 、熱から電気への発電効率を  $\eta_R$  とすると、1核種が原子炉で生成される



ときに得られるエネルギーは、 $E_{max} = \eta_R \cdot (E_{beam}/Y)$  となり、これが、消滅処理に使用できる最大電気エネルギーである。例えば、 $Y=0.06$ 、 $E_{beam}=200\text{MeV}$ 、 $\eta_R=0.33$ とすると $E_{max}=1100\text{MeV}$ となる。消滅処理のエネルギーバランスの評価を行うためには、この値と消滅処理エネルギーとを比較する必要がある。

消滅処理エネルギーを加速器による消滅処理を例にとって考えてみる。1個の核種を変換するために必要な粒子ビームパワー( $E_{irr}$ )は、加速粒子のエネルギー( $E_{part}$ )及び反応確率 $P$ を用いて次のように表される。

$$E_{irr} = \frac{E_{part}}{P} \quad (3)$$

反応確率 $P$ は、ターゲット内で核反応と同時に起こる競争過程によって決まる。

消滅処理エネルギーを評価するには、上式で決まる $E_{irr}$ に装置電源からビームエネルギーへの変換効率 $\eta_{beam}$ を考慮する必要がある。消滅処理過程を取り入れた核燃料サイクルが電力源となるためには、次のエネルギーバランスの条件を満たす必要がある。

$$E_{irr}/\eta_{beam} < E_{max} \quad (4)$$

#### IV. 消滅処理の方法

核分裂生成物の消滅処理は、1964年に米国BNLのSteinbergによって最初に提案された<sup>1)</sup>。Steinbergは、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{85}\text{Kr}$ を原子炉で消滅することを考えた。

その後、これに続いて陽子加速器による消滅処理<sup>2)</sup>、核融合炉による消滅処理<sup>3)</sup>等幾つかの方法が提案されている。これらの提案を以下に簡単に紹介する。

##### IV-1. 陽子による消滅処理

陽子による核反応は、入射粒子の運動エネルギーが、ターゲット核のクーロン障壁を越えると顕著になり、エネルギーが増加するにつれて $(p, n)$ 、 $(p, 2n)$ 等のチ

チャンネルが順次開いていく。特に高エネルギーで核が破砕される現象を核破砕(spallation)と呼んでいる。

陽子の場合は、競争過程としてターゲット物質中の電子との相互作用(イオン化)によるエネルギー損失が起こる。入射陽子が一次核反応を起こす確率は、次のように簡単に見積もることができる。

$$P = 1 - \exp(-\sigma N_0 R/A) \quad (5)$$

ここで、 $A$ はターゲット核種の質量数であり、 $N_0$ はアボガドロ数をあらわし、 $R$ は飛程をあらわす。 $\sigma$ に関しては、実験値を系統的に分類することで得られた計算式(systematics)より求められるnon-elastic cross section(全断面積から弾性散乱を除いたもの)の値を用いることができ<sup>5)</sup>、 $R$ についても各物質中での飛程が、式にまとめられている<sup>6)</sup>。図1は、(5)式を用いて計算した例である。

この例ではいろいろなエネルギーの陽子を $^{137}\text{Cs}$ ターゲットに打ち込んだ場合の反応確率が計算されている。また、図1には、核破砕反応によって生成した2次粒子による反応を加えた場合の反応確率の計算結果を比較のために示してある。

2次反応を含めると反応確率は増えるが、反応の分布が広く散らばっており消滅処理速度の点で有効に利用することが難しい。図1の例では、入射陽子ビームパワーが450MWの時に消滅処理の実効半減期が2年となるような円柱ターゲット体系を考えた場合の反応確率である。

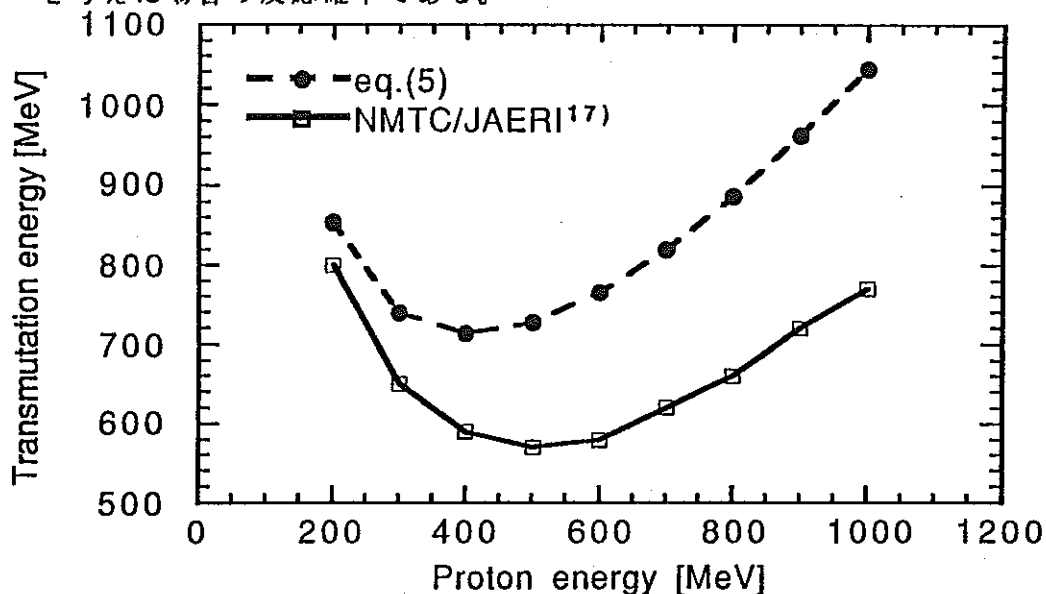


図1 入射陽子エネルギーと消滅エネルギー

#### IV-2. $\gamma$ 線による消滅処理

$\gamma$ 線による光核反応は、核種によってあまり大きな差がなく、一般に図2に示すようになる<sup>7)</sup>。 $\gamma$ 線エネルギーが粒子放出のthreshold( $\sim 8\text{MeV}$ )を越えると反応が始まり、10 $\sim$ 20MeVの間で巨大共鳴(Giant Dipole Resonance: GDR)と呼ばれるピークを示す。これを越えると $(\gamma, 2n)$ ,  $(\gamma, np)$ 等のチャンネルが順次開いてくるがtotal反応断面積としては小さくなる。約150MeVを越えるとpionを生成することが可能になり、300MeV近傍に $\Delta$ 共鳴と呼ばれる強い共鳴を示す。

$\gamma$ 線の場合も競争過程は物質との相互作用であり、電子対生成、コンプトン散乱、光電効果である。例えば、 $\gamma$ 線のエネルギーを15MeVとすると競争過程としては、主に電子対生成による粒子損失が主になる。 $^{197}\text{Au}$ を例にとって15MeVの $\gamma$ 線の反応確率を計算すると次のようになる。

$$P = \frac{\sigma(\gamma, n)}{\sigma_{\text{tot}}} \sim \frac{\sigma(\gamma, n)}{\sigma_{\text{pair}}} = \frac{300\text{mb}}{9\text{b}} = 0.033 \quad (6)$$

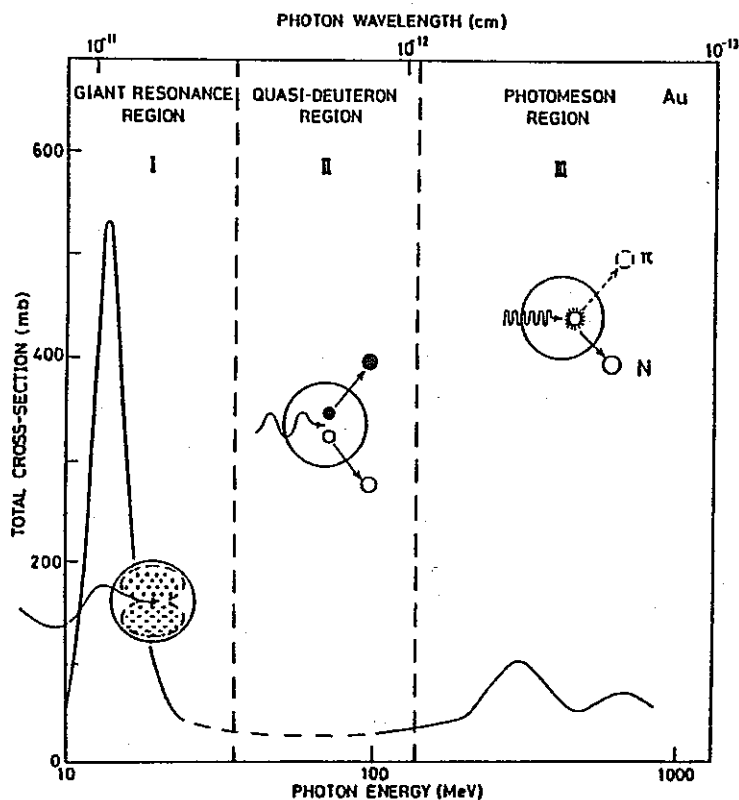
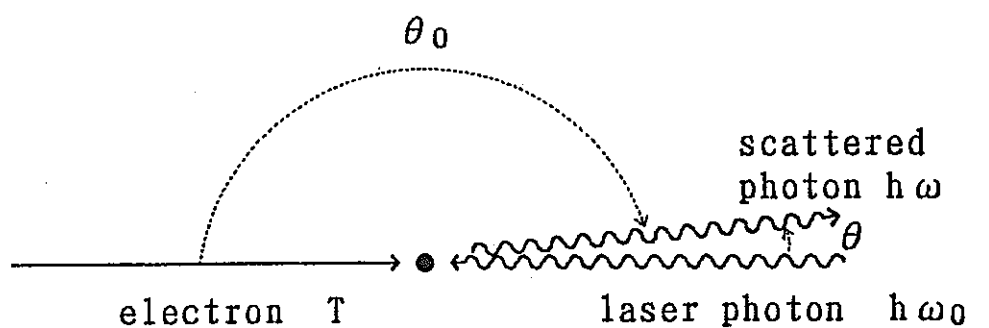


図2  $^{197}\text{Au}$ の光核反応断面積

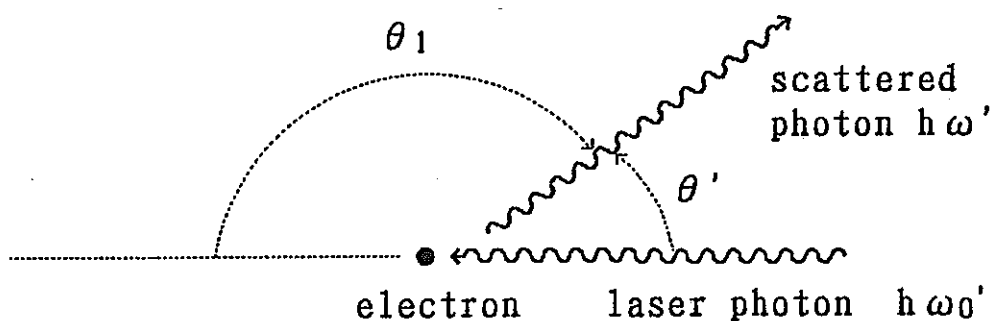
(a) 逆コンプトン  $\gamma$  線による消滅処理

逆コンプトン法とは、加速器からの高エネルギー電子と単色低エネルギーのレーザービームを正面衝突させレーザー光の後方散乱により高エネルギーの  $\gamma$  線を発生させる方法である。

ここでは、電子の進行方向と180度方向からレーザー光を正面衝突させた場合の散乱光のエネルギー分布、角度分布を計算した。この計算に用いたkinematicsを図3に示す。



LABORATORY FRAME



ELECTRON REST FRAME

図3 レーザー光と光エネルギー電子の散乱

まず、実験室系でのレーザー光のエネルギーを $\omega_0$ とすると運動エネルギー $T$ の電子の静止系ではレーザー光のエネルギーは

$$\hbar\omega'_0 = \frac{1 - \beta \cos \theta_0}{(1 - \beta^2)^{1/2}} \hbar\omega_0 = \frac{1 + \beta}{(1 - \beta^2)^{1/2}} \hbar\omega_0 \quad (7)$$

$$\beta = [1 - (m_0 c^2 / (T + m_0 c^2))^2]^{1/2} \quad (8)$$

となる。ここで、 $m_0$ は電子の静止質量である。

次に電子の静止系ではレーザー光のエネルギーはコンプトン散乱により次のように変化する。

$$\hbar\omega' = \frac{\hbar\omega'_0}{1 + \alpha(1 - \beta \cos \theta_1)} \quad (9)$$

$$\alpha = \hbar\omega'_0 / m_0 c^2 \quad (10)$$

これを再び実験室系に戻すと最終的に逆コンプトン法で得られる $\gamma$ 線のエネルギーは次のようになる。

$$\hbar\omega = \frac{1 - \beta \cos \theta_1}{(1 - \beta^2)^{1/2}} \hbar\omega' \quad (11)$$

次に角度分布を計算する。電子の静止系でのコンプトン散乱は、Klein-Nishinaの断面積の式より次のように表せる

$$\frac{d\sigma}{d\Omega_1} = \frac{1}{2} r_0^2 \frac{1}{[1 + \alpha(1 - \cos \theta_1)]^2} [1 + \cos^2 \theta_1 + \frac{\alpha^2 (1 - \cos \theta_1)^2}{1 + \alpha(1 - \cos \theta_1)}] \quad (12)$$

[cm<sup>2</sup>/sterad·electron]

$$\sigma_{tot} = 2\pi r_0^2 \left\{ \frac{1 + \alpha}{\alpha^2} \left[ \frac{2(1 + \alpha)}{1 + 2\alpha} - \frac{1}{\alpha} \ln(1 + 2\alpha) \right] + \frac{1}{2\alpha} \ln(1 + 2\alpha) - \frac{2(1 + 2\alpha)}{(1 + 2\alpha)^2} \right\}$$

[cm<sup>2</sup>/electron] (13)

ここで、 $r_0^2 = 7.9403 \times 10^{-26} \text{ cm}^2$ 、 $d\Omega_1 = 2\pi \sin \theta_1 d\theta_1$ である。

次にphotonの散乱角を入射電子の運動の方向となす角にとる、即ち電子の静止系では、 $\theta' = \pi - \theta$ とし実験室系では $\theta$ として以降の議論を行う。

電子の静止系で $d\Omega'$ に散乱される確率は(12)、(13)式より次のように表される、

$$P'(\theta')d\Omega' = \frac{d\sigma/d\Omega'}{\sigma_{tot}} \quad (14)$$

これに対応する実験室系における散乱確率 $P(\theta)d\Omega$ は、角度の変換、

$$\cos \theta' = (\cos \theta - \beta) / (1 - \beta \cos \theta) \quad (15)$$

及び立体角の変換、

$$\begin{aligned} d\Omega'/d\Omega &= \sin \theta' d\theta' / \sin \theta d\theta = d(\cos \theta') / d(\cos \theta) \\ &= (1 - \beta^2) / (1 - \beta \cos \theta)^2 \end{aligned} \quad (16)$$

を用いて、

$$\begin{aligned} P(\theta')d\Omega' &= P(\theta')(d\Omega'/d\Omega)d\Omega = P(\theta')(1 - \beta^2) / (1 - \beta \cos \theta)^2 d\Omega \\ &= P(\theta')(1 - \beta^2) / (1 - \beta \cos \theta)^2 2\pi \sin \theta d\theta \end{aligned} \quad (17)$$

の関係より、

$$P(\theta) = \frac{(1 - \beta^2)}{(1 - \beta \cos \theta)^2} P'(\theta') \quad (18)$$

と表される。(14)、(15)式を用いれば $P'(\theta')$ は $\theta$ の関数として表すことができる。

次に、 $^{137}\text{Cs}$ の無限体系に単色 $\gamma$ 線を打ち込んだ時の $(\gamma, n)$ 反応の起こる確率はEGS4コードによって計算した。図4にいろいろなエネルギーの単色 $\gamma$ 線を $^{137}\text{Cs}$ に打ち込んだ場合に、 $(\gamma, n)$ 反応を1回起こすのに必要な入射 $\gamma$ 線のエネルギーの合計(エネルギー効率)を示す。この計算に用いた $(\gamma, n)$ 反応断面積は $^{137}\text{Cs}$ の測定値がないた

め $^{133}\text{Cs}$ のデータを用いた。

入射 $\gamma$ 線として上述した逆コンプトン法による $\gamma$ 線を用いた場合のエネルギー効率は次の式で表される。

$$Q = \frac{\int [\hbar\omega(\theta)/Q_0(\hbar\omega(\theta))] \cdot [P(\theta)2\pi\sin\theta] d\theta}{\int \hbar\omega(\theta) \cdot P(\theta)2\pi\sin\theta d\theta} \quad (19)$$

ただし $Q_0(\hbar\omega(\theta))$ は単色 $\gamma$ 線のエネルギー効率(図4)である。 $Q$ は、入射電子のエネルギー、 $T$ と入射レーザー光のエネルギー $\hbar\omega_0$ の関数である。図5に $T$ と $\hbar\omega_0$ のいくつかの組合せに対する $Q$ の値を示した。この例から分かるように逆コンプトン法によって発生する $\gamma$ 線のエネルギー分布を、巨大共鳴(GDR)のエネルギー領域に一致させた場合にエネルギー効率は最もよくなる。また $Q$ の最小値は約850MeVであり。入射電子のエネルギーの値を変化させてもほとんど変化しないことが分かる。

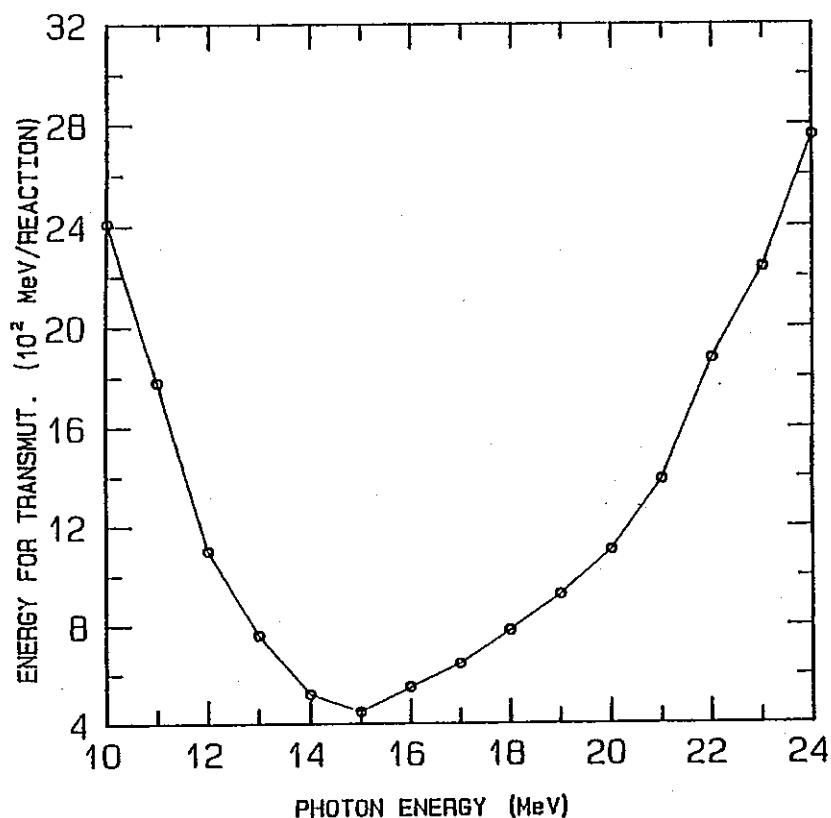


図4 単色 $\gamma$ 線による $^{137}\text{Cs}$ の消滅処理のエネルギー効率

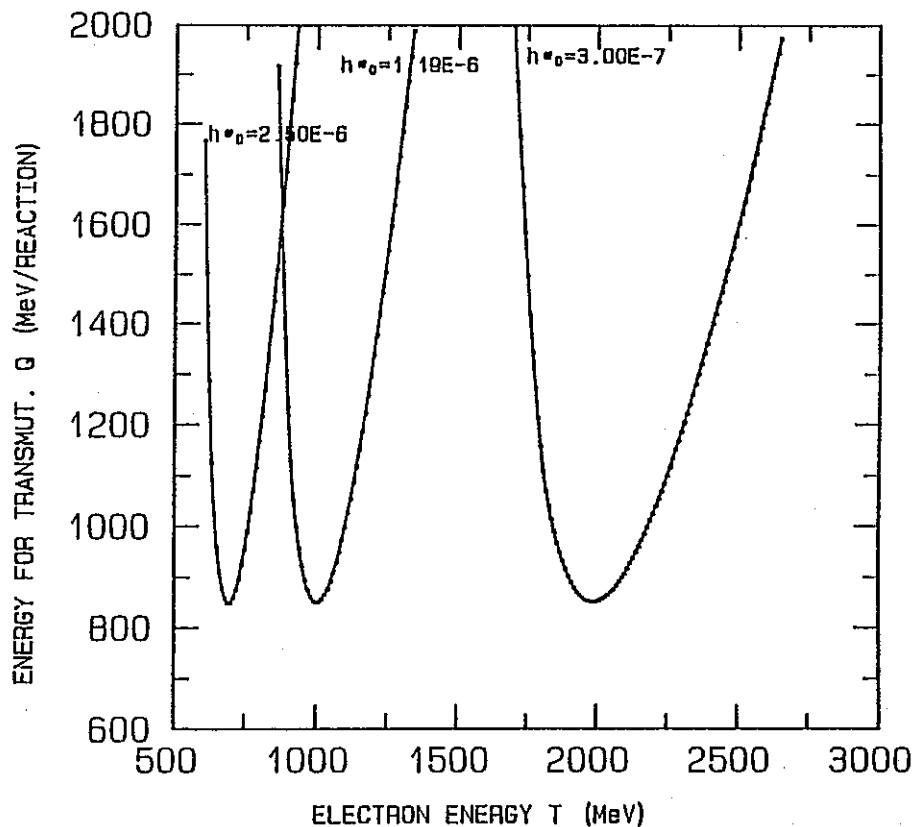


図5 逆コンプトン法による $^{137}\text{Cs}$ の消滅処理のエネルギー効率

#### IV-3. 中性子による消滅処理

##### IV-3-1. $(n, \gamma)$ 反応による消滅処理

中性子による核反応は、クーロン障壁以上のエネルギーでは、本質的に上述した陽子の核反応と同じである<sup>5)</sup>。中性子による核反応の特徴は、低エネルギーでの放射捕獲反応、即ち $(n, \gamma)$ 反応である。中性子を用いる消滅処理では反応確率 $P$ は大きくエネルギーバランスを満足させることは比較的容易であるが、これとは反対に速い消滅処理速度を得ることが難しい。すなわち、消滅処理の対象となる核種は、原子炉の熱中性子場中での核反応断面積が小さいために生き残ったものであり、表1に示すように、 $(n, \gamma)$ 断面積の小さい核種が多い。特に $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ は断面積が小さく、消滅処理速度を1年程度にしようとするれば、図6に示すように、 $10^{17} \sim 10^{18} (\text{cm}^{-2} \text{sec}^{-1})$ の極めて高いfluxが必要である。

ここでは、 $10^{18} (\text{cm}^{-2} \text{sec}^{-1})$ の熱中性子束を目指した例を紹介する。



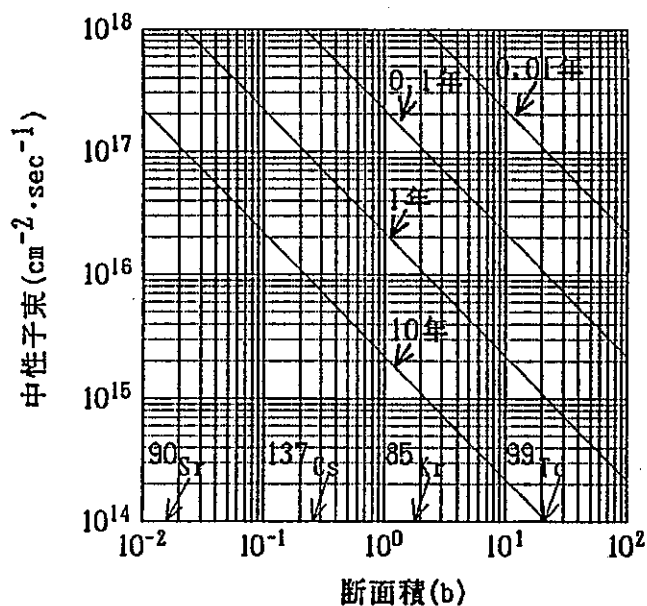


図6. 反応断面積に対する消滅処理速度と中性子束

## (a) Taubeの消滅炉

Taubeは $(n, \gamma)$ 反応による $^{137}\text{Cs}$ と $^{90}\text{Sr}$ の消滅処理を検討しており、炉のデザイン及び消滅処理のシナリオについて述べている。炉のデザインは同心球の中心に $^{137}\text{CsOD}$ と $^{90}\text{Sr(OD)}_2$ を循環させ、その外側に熔融燃料を循環させ、FP装荷領域を $2 \times 10^{16} (\text{cm}^{-2} \text{sec}^{-1})$ の熱中性子束を得るものである。(図7参照) 高フラックスを得るため出力密度を $10.5 \text{ kW/cc}$ と高くしており、除熱及び燃焼劣化の問題を回避するため熔融燃料を採用し、平均 $12 \text{ m/s}$ の速度で循環させる。熔融燃料はいまだ実用化されていないが、Taubeは加速器や核融合炉による消滅処理よりも熔融燃料の方が実現性が高いと主

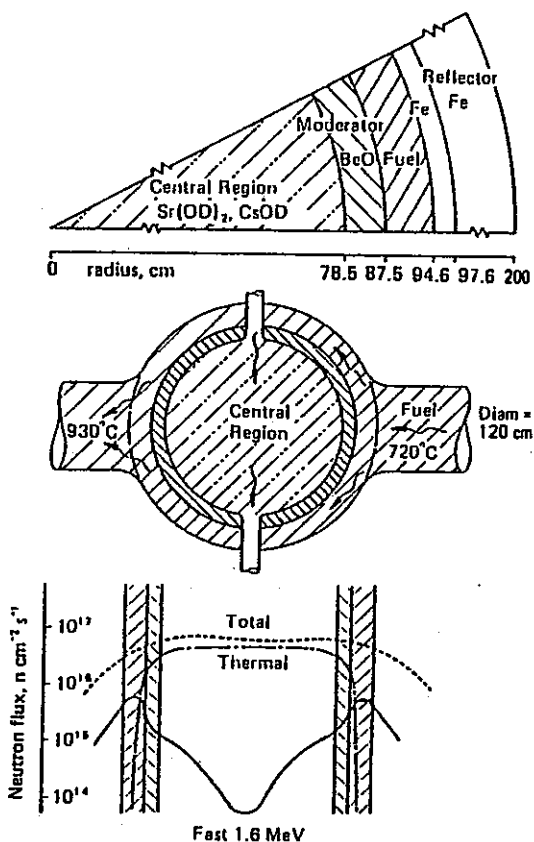


図7 Taubeの消滅炉

張している。消滅処理のシナリオは、将来は核分裂原子炉を廃止するときに原子炉28GW<sub>th</sub>に消滅炉1基をセットにして、100セットから始めて1セットになるまで1セットずつ段階的に原子炉を停止をするというものである。

Taubeは結論で、エネルギーバランスは正であり、自然崩壊よりも速く消滅処理が行える（実効半減期が8.95年）が、構造材の放射化による放射性廃棄物が多量に発生すること、炉のリスクが上がることを指摘している。

### (b)米国ANS炉

米国の現在稼働中の高フラックス研究炉（HFIR）は60年代半ばに運転を開始したが、近年、実験要求を満たさなくなっている。一方、70年代の初めよりフランスのInstitute Laue-Langevin（ILL）の研究炉が世界最高の $2 \times 10^{15}$  ( $\text{cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$ )の中性子束を提供している。ANSプロジェクトは、ILLを上回る $10^{16}$  ( $\text{cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$ )の熱中性子束の実現を目指すものである。

ANSプロジェクトは米国エネルギー省の監督のもとにオークリッジ国立研究所が主管し、1986年から炉の概念設計を開始した。現在、炉の建設には至っていない。参加機関は、アイダホ国立工学研究所、テネシー大学、バブコック・ウィルコックス社等である。陽子加速器を用いる等いくつかの設計案が出されたが、1988年2月に原子炉を用いる案が採用された（図8参照）。燃料は93%濃縮 $\text{U}_3\text{Si}-\text{A}$ 1板状燃料とし、重水で冷却する。板状燃料は構造強度がよい渦巻型の配置

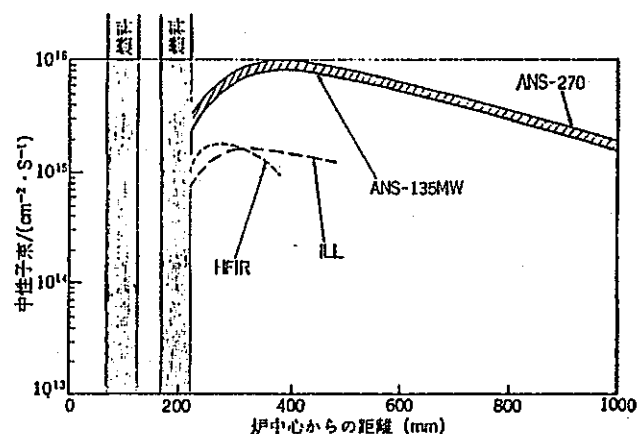
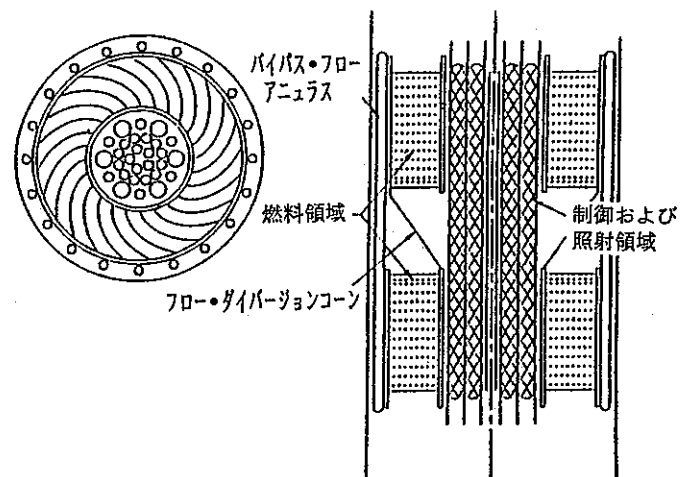


図8 米国ANS炉

とする。冷却をよくするため上下2分割した炉心としている。中性子の漏れが多いコンパクトな炉心を大型重水タンクに入れ、炉外の重水中で $10^{16}(\text{cm}^{-2}\text{sec}^{-1})$ の熱中性子束を実現する。

以上に示した例は、そのまま長期・大量のFPの消滅処理に適用できるものではないが $10^{16}(\text{cm}^{-2}\text{sec}^{-1})$ の熱中性子束炉の工学的な実現可能性があることを示している。

### (c)原子炉による消滅処理

事業団では、現状の技術またはその延長上において達成できる技術を用いた high flux のFP消滅処理用原子炉（FP消滅炉）の核特性について研究を行った<sup>11), 12)</sup>。この炉は炉心を熱中性子主体のFP装荷領域と高速中性子主体の燃料領域に分け、FP領域における熱中性子とFP核種の吸収反応により、FP核種を消滅させることが特徴である。昭和63年度、平成1年度は、消滅炉の核特性、燃焼特性、消滅特性などの各特性の全体の傾向を把握することに重点を置き、研究を進めてきた。その結果、FP消滅炉の長期運転達成には、金属燃料とダクトレス燃料集合体の適用が有利であることが分かった。また、FP消滅炉の消滅特性を評価するために定義した消滅率と出力密度やPu富化度などの炉心パラメータとの関係が分かった。さらに、FP装荷領域と燃料領域の境界でFP装荷領域からの熱中性子の影響により鋭い出力ピークが生ずること、高い消滅特性（高中性子束）を得るためには高出力密度が必要となり、反応度劣化の問題が生じること等の問題点を摘出した。平成2、3年度は、現状の高速炉における出力ピーキング係数や燃焼反応度の制限値を考慮し、出力ピーク

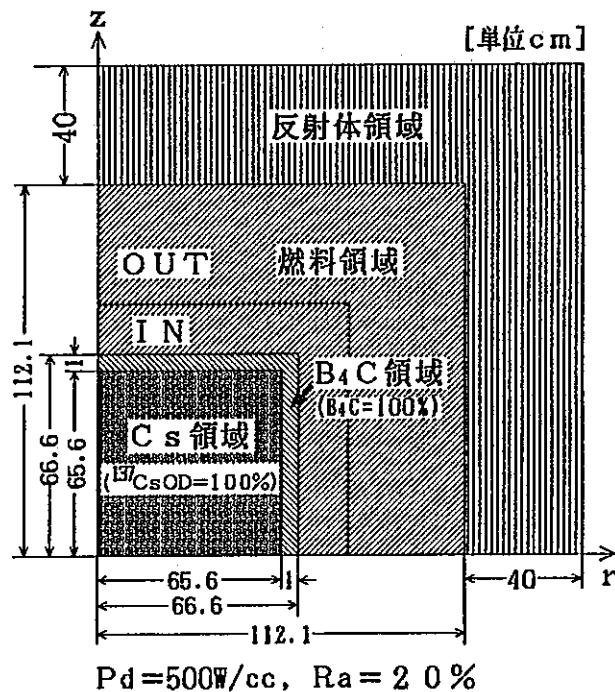


図9 F P 消滅炉の形状

の問題を解決した上で、数々のパラメータ解析を実施し、この制限内で最も消滅特性の良い炉心を示した。ここでは平成2、3年度の成果を示す。消滅の対象はFPとして原子炉から多量に発生し、しかも、消滅の困難とされる $^{137}\text{Cs}$ を選んだ。従来のFP消滅炉には、Cs領域と燃料領域の境界付近に鋭い出力ピークが生じていたが、それを抑えるためにCs領域と燃料領域の間に $\text{B}_4\text{C}$ 領域を設けた(図9参照)。さらに、Cs領域の中性子束を上げるためにCs領域の回り全てを燃料で囲んだ体系を考えた。中性子の体系外へのもれを少なくするために外径と高さを等しくした。燃料は昭和63年度、平成1年度の燃焼解析で有利であることが判明した体積比55%の金属燃料U-Pu-10Zrを使用した。そして、消滅率、燃焼反応度及び出力ピークキング係数に目標値を定め、種々のパラメータ解析を実施した。目標値は消滅率に関しては自然崩壊の1.5倍(3.5%/y)以上、燃焼反応度劣化と出力ピークキング係数は高速炉並の3%/y以下、1.7以下とした。

パラメータ解析として、まず $\text{B}_4\text{C}$ 領域の厚さを2cmと固定し、出力密度(Pd)及びCs領域の炉心に対する体積割合(Ra)依存性を調べた。技術的達成度を考慮した結果、Pd=500W/cc、Ra=20%の場合が燃焼反応度、出力ピークキング係数の目標値を達成し、消滅率の良い体系であることが分かった。しかし、この体系でも消滅率の目標値を達成することはできなかった。そこで、 $\text{B}_4\text{C}$ 領域の厚さを2cmから1cmに薄くしたところ3つの目標値を達成することができた。

次に、さらに消滅率の向上を目指し、燃料領域を2領域(内側燃料領域INと外側燃料領域OUT)とし、Cs領域に近い部分の燃料(内側燃料)のPu富化度を上げることによってCs領域における中性子束の向上を図った。その結果、Cs領域で平均熱中性子束 $3 \times 10^{15} \text{n/cm}^2 \cdot \text{s}$ 、消滅率3.84%/yの値が得られた。図9は最適化されたFP消滅炉の体系である。表2に最適化されたFP消滅炉の特性を示す。

表2 F P 消滅炉心の構成及び特性

出力	3.5 GW <sub>th</sub>
出力密度	500 W/cc
燃料	金属燃料 (U-Pu-Zr)
燃料体積比	55%
燃料スミア密度	75% T.D.
燃料領域	2 領域 (内側、外側)
Pu 富化度 (内側燃料領域)	15 w/o
Pu 富化度 (外側燃料領域)	9.76 w/o
内側燃料領域の厚さ	7.5 cm
外側燃料領域の厚さ	38.0 cm
炉心外径	224.2 cm
炉心高さ	224.2 cm
B <sub>4</sub> C 領域の厚さ	1 cm
反射体領域の厚さ	40 cm
Cs 領域の外径	131.1 cm
Cs 領域の高さ	131.1 cm
Cs 領域の炉心に対する体積割合	20%
<sup>137</sup> Cs 装荷量	5750 kg
<sup>137</sup> Cs 消滅量 (自然崩壊を含む)	220.5 kg/y
消滅率	3.84%/y
Cs 領域の平均熱中性子束	$3.05 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$
燃焼反応度	1.83%/y
出力ピーキング係数	1.7

## (d) Moving target法による消滅処理

中性子捕獲断面積には共鳴領域に鋭い大きなピークが存在する。この大きな値を利用できれば、速い消滅処理速度を達成することができる。しかし原子炉から得られる中性子のエネルギーは連続分布しており共鳴エネルギーに一致したエネルギーの中性子束を効率良く得ることは困難である。そこで中性子エネルギーを制御する代わりに原子核を一定のエネルギーに加速し、実質上共鳴ピークのエネルギーに相当する中性子束を利用する方法 (moving target 法) を提案した<sup>13)</sup>。

消滅処理核種としては加速しやすさを考慮し、比較的質量が軽く、共鳴ピークのエネルギーが低い、つまり加速に必要なエネルギーが小さい  $^{99}\text{Tc}$  を考えた。中性子源としては、中性子束  $10^{15} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$  の原子炉を考え、 $^{99}\text{Tc}$  を加速する際はできるだけ多量に処理できるように  $^{99}\text{Tc}$  を微粒子状 (半径  $0.01 \mu\text{m}$ 、 $^{99}\text{Tc}$  原子約  $3 \times 10^5$  個から成る。今後これを macron と呼ぶ) にし、それをイオン化し使用する。加速器では  $^{99}\text{Tc}$  を共鳴ピークに相当するエネルギーまで加速し貯蔵リングに入射する。貯蔵リングは真空度  $10^{-10} \text{ Torr}$ 、半径  $3.4 \text{ m}$  (磁場  $10 \text{ Tesla}$ ) のリングを考えた。消滅処理装置の概念図を図 10 に示す。

この装置を使用し、 $1 \text{ GWe}$  の原子炉から出てくる  $^{99}\text{Tc}$  と消滅処理装置で処理する  $^{99}\text{Tc}$  が平衡状態にある時の装置の蓄積量は  $50 \text{ g}$  ( $0.5 \text{ mol}$ ) となる (実効半減期  $14 \text{ 時間}$ )。そこで消滅処理装置に対して " 原子核の運動を維持する時間 (Life Time) =  $14 \text{ 時間}$  " と " 運動させる原子核の量 =  $0.5 \text{ mol}$  " という条件について検討した。Life Time に影響を及ぼすものとしては残留ガスとの相互作用が考えられる。残留ガスとの相互作用を macron と残留ガス ( $\text{H}_2$  を仮定) との弾性散乱で近似しその影響を計算した。その結果 macron は衝突を繰り返し約  $2 \text{ 時間}$  で共鳴のピークをはずれ中性子捕獲断面積が半分になる領域までエネルギーを失うことが分かった。次に原子核の量の影響つまり空間電荷効果について述べる。macron をリング内に閉じ込めるためには電荷により生じる反発力を押さえる必要がある。これを外部磁場だけで行なおうとすると現実には不可能な大きな磁場となる。当然電子による中性化が必要になってくる。しかしこの中性化を電流で行なうと非常に大きな電流値となるので、中性化用電子は閉じ込める必要がある。つまり  $^{99}\text{Tc}$  は一定エネルギーで円運動を行なわせ、中性化用電子はその近傍に閉じ込めるような磁場を作らなければならない。数種類の形状の磁場を検討したところ、

強力なミラー磁場はこの条件を満たす可能性があることが分かった。

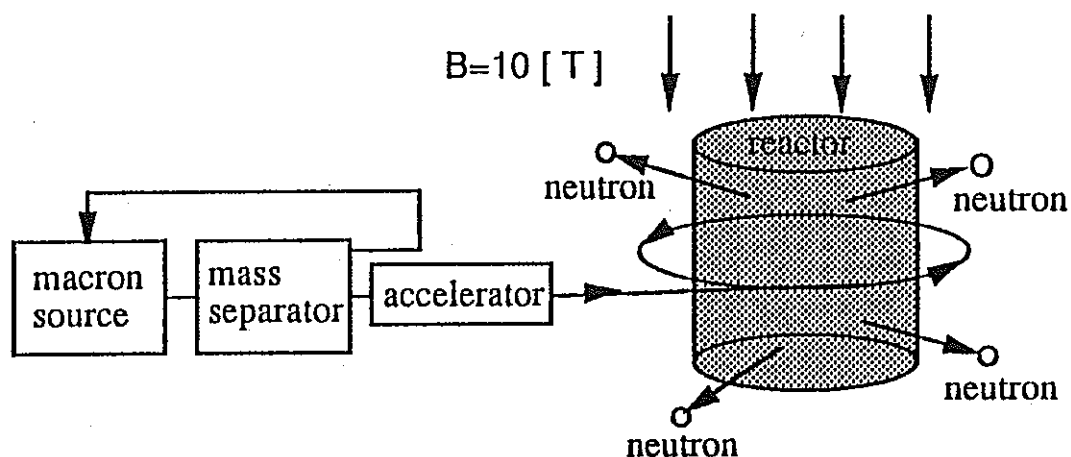


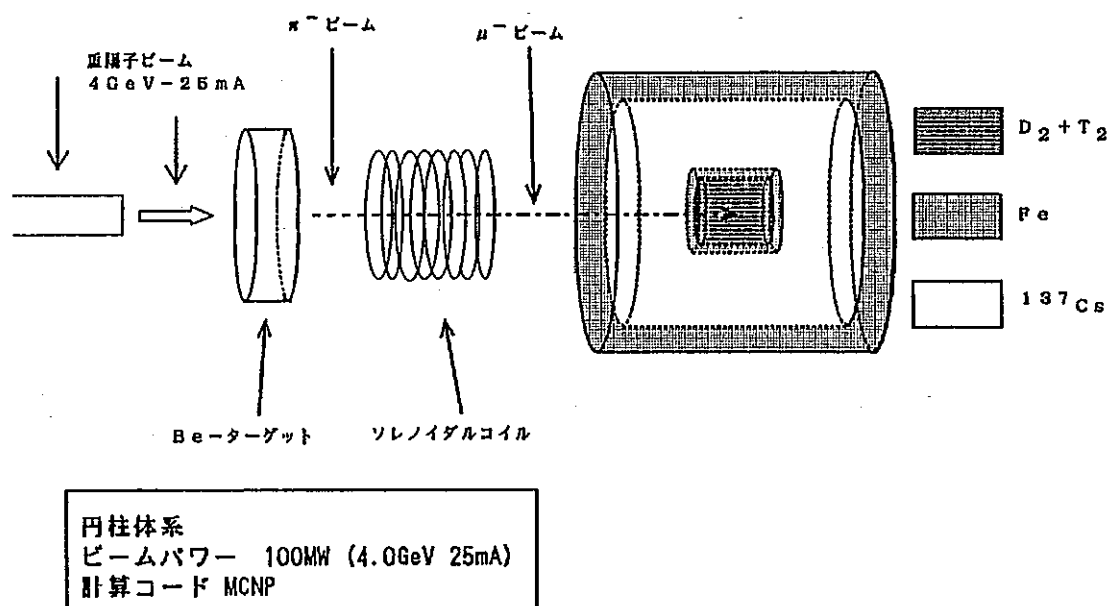
図 10 Moving target法による消滅処理装置の概念図

#### IV-3-2. (n, 2n)反応による消滅処理

(n, 2n) 反応断面積はほとんどの核種において数bの大きさなので、(n, γ) 反応断面積の小さい核種 ( $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$  等) に対しては有効な消滅処理方法と思われる。

##### (a) ミュオン触媒核融合 ( $\mu\text{CF}$ ) 炉を利用した消滅処理

$\mu\text{CF}$  炉は、エネルギーの発生装置としてこれまで多くの研究がなされているが、強力中性子源としても魅力のある装置である。この  $\mu\text{CF}$  炉からの 14MeV 中性子による (n, 2n) 反応を利用した  $^{137}\text{Cs}$  の消滅方法<sup>11)</sup> (その概念図を図 11 に示す) を検討した。その結果、実効半減期を 2 年に設定した場合、消滅エネルギーは 195MeV となった。<sup>14)</sup>



#### (b) 慣性核融合 (ICF) 炉を利用した消滅処理

ICF では、重水素 (D) 及び三重水素 (T) でできた燃料ペレットを強力なレーザーや粒子ビーム等を用いて超高密度に圧縮し、核融合反応を起こさせる。そこで、燃料ペレットとして DT 核の回りに FP を巻いたペレットを考え、DT 核と一緒に FP を圧縮し、圧縮した状態で  $(n, 2n)$  反応により FP を消滅することを考えた。<sup>13)</sup>

$^{90}\text{Sr}$  の  $(n, 2n)$  反応断面積及び  $(n, \gamma)$  反応断面積はそれぞれ  $1.7b$ 、 $0.015b$  である。したがって、 $^{90}\text{Sr}$  の消滅処理に  $(n, 2n)$  反応を用いると、熱中性子照射による方法より断面積に関して約 100 倍有利になる。さらに、 $^{90}\text{Sr}$  を圧縮することで核反応率が増えるので、通常の状態における消滅処理より効率的となる。圧縮率を 1000 とすると圧縮後は圧縮前より 100 倍近く核反応率が増加するので、圧縮した状態で  $(n, 2n)$  反応により  $^{90}\text{Sr}$  を消滅処理する本方法は、通常の状態では熱中性子を照射する方法より約 10000 倍効率的となる。

計算においては、圧縮率を 1000、DT 核の半径を  $500\mu\text{m}$  と固定し、Sr 領域の厚さをパラメータとして変化させ、消滅速度、消滅エネルギーを計算した。さらに、1 ペレット中の  $^{90}\text{Sr}$  を全て消滅させるためのペレットの精製、加工のサイクル数を計算した。



計算の結果、 $^{90}\text{Sr}$ の消滅速度は自然崩壊の100万～1000万倍になり、極めて速い消滅速度が得られた。その結果、 $^{90}\text{Sr}$ の半減期28.8年が実効半減期数分のオーダーになることが判った。

$^{90}\text{Sr}$ を1個消すのに必要な消滅エネルギーは、装置の効率やビームエネルギーから内部エネルギーへの変換効率を100%と仮定すると数100MeVであり、これまでの方法による消滅エネルギーよりも小さな値となった。

1ペレット中の $^{90}\text{Sr}$ を全て消すためのペレットの精製、加工のサイクル数は、DT核半径 $500\mu\text{m}$ 、Sr領域の厚さ $100\sim 1000\mu\text{m}$ のときは数100回となった。FPを含むペレットの製造が容易にできればよいが、現状から見て、サイクル数100回以上は現実的とは思われない。

サイクル数が数回から10数回となるペレットサイズを計算したところ、数 $1000\mu\text{m}$ のオーダーとなり、大きな値となった。大きなサイズのペレットをレーザー等で圧縮できるかどうか今後調べる必要がある。

#### IV-3-3. 加速器による $^{137}\text{Cs}$ の消滅処理法の比較

先に述べてきたように今までにいくつかの加速器を用いた消滅処理法が提案されている。<sup>12-14)</sup>そこで、それらの各方法に対して計算条件を統一し、ターゲット体積をパラメータとして消滅速度（実効半減期）と目的核種を1核種消滅させるときに必要なエネルギー（消滅エネルギー）を求め、各々の消滅処理法の比較を行った<sup>12)、14)</sup>。

比較の対象とした消滅処理法とその計算条件をまとめて表3に示す。電子法は電子を直接ターゲットに入射させ、発生させた制動放射線で消滅させる方法で、主に $(\gamma, n)$ 反応を利用する。 $\mu\text{CF}$ 法はミュオン触媒核融合( $\mu\text{CF}$ )中性子を利用して、主に $(n, 2n)$ 反応で消滅させる法である。陽子を利用する方法としては、直接陽子をターゲットに入射させ、主にスボレーション反応で消滅する方法（陽子法）と陽子を鉛に入射させ発生させた2次中性子を利用する方法（スボレーション中性子法）の2種類の方法について計算を行った。どのケースもできるだけ計算条件を等しくするため、3次元モンテカルロ計算コードを使用して計算することにし、対象核種としてここでは $^{137}\text{Cs}$ を取り上げた。

表3 計算条件

消滅処理方法	加速粒子	エネルギー [MeV]	電流値 [mA]	計算コード
電子法	e <sup>-</sup>	100	2000	EGS4 <sup>16)</sup>
陽子法	p	500	900	NMTC <sup>17)</sup>
スポレーション中性子法	p	1500	300	NMTC+MCNP <sup>18)</sup>
μCF法	d	4000	25	MCNP

計算結果として、実効半減期を2年に設定したときの消滅エネルギーを比較したものを表4に示す。原子炉で<sup>137</sup>Csが1核種生じるとき得られる電気エネルギーは、核分裂で得られるエネルギーを200MeV、核分裂収率6%、発電効率33%を仮定すると、

$$200 \div 0.06 \times 0.33 = 1100$$

より、1100MeVとなる。加速器効率を50%と仮定すると、<sup>137</sup>Csだけを消滅処理の対象と考えると、1核変換あたりに使用できるエネルギーは550MeV以下でないとエネルギー収支は成り立たない。表4より、μCF法とスポレーション中性子法の2者が消滅エネルギーが550MeV以下である。しかしながら、この場合先に述べたように消滅処理の対象核種として<sup>137</sup>Cs 1核種しか考慮にいてないが、実際は他にも消滅処理の対象として考えられている核種、<sup>90</sup>Sr、<sup>99</sup>Tc、<sup>129</sup>I等が存在する。そのため、事実上エネルギー収支を成立させるには消滅エネルギーは少なくとも100MeV以下である必要がある。

表4 計算結果

消滅処理方法	消滅エネルギー [MeV]	実効半減期 [年]
電子法	4700	2.0
陽子法	570	2.0
スポレーション中性子法	510	2.0
$\mu$ CF法	195	2.0

## V. 基礎データの整備

効率的な消滅処理法を確立するためには、消滅処理の対象となる原子核の性質をよく知っている必要がある。ここでは、消滅処理研究に利用される頻度の多い核反応断面積測定について述べる。

放射性廃棄物核種の核反応断面積の測定は、放射性のターゲットを用いるために実験が難しく、データは極めて少ない。また、存在してもその誤差は大きい。消滅処理の定量評価を行うためには、断面積を精度よく知ることが不可欠である。

V-1.  $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ の $(n, \gamma)$ 断面積の測定

原研の研究炉JRR4を利用して、熱中性子に対する $^{90}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ の $(n, \gamma)$ 断面積の測定を放射化法を利用して行った<sup>12)、19)</sup>。実験では、照射済みターゲットを化学処理した後、相対効率90%の高純度ゲルマニウム検出器により $\gamma$ 線スペクトルを測定した。測定に用いた回路系は高速データ収集の可能なNIMモジュールと自動計測・オンラインデータ解析が行えるCAMAC系を組み合わせたものである。

この測定の結果、 $^{90}\text{Sr}$ の $(n, \gamma)$ 断面積として、 $15.3 \pm 1.3\text{mb}$ という値を得た。この値はこれまで2種類ある実験値 $800 \pm 500\text{mb}^{20)}$ 、 $14 \pm 2.4\text{mb}^{21)}$ のうち後者

の値に近い。 $^{137}\text{Cs}$ の $(n, \gamma)$ 断面積は $250 \pm 13\text{mb}$ の値を得た。これは過去の実験値 $110 \pm 30\text{mb}^{22)}$ の約2.3倍の大きな値である。

#### V-2. $^{137}\text{Cs}$ の $(\gamma, n)$ 断面積の測定

東北大学核理研の電子ライナックを利用して、 $^{137}\text{Cs}$ の $(\gamma, n)$ 反応の平均断面積の測定をキャッチャーフォイル法を用いて行った<sup>23)</sup>。入射電子エネルギーは45、50、60MeVである。キャッチャーフォイルは化学処理した後、相対効率30%の高純度ゲルマニウム検出器により $\gamma$ 線スペクトルを測定する。

測定の結果を表5に示す。 $^{137}\text{Cs}$ の $(\gamma, n)$ 反応の平均断面積は $^{133}\text{Cs}$ の $(\gamma, n)$ 反応の平均断面積より1.06~1.22倍大きいことがわかった。

表5  $^{137}\text{Cs}$ の $(\gamma, n)$ 反応の平均断面積

電子エネルギー [MeV]	平均断面積 [mb]	$^{133}\text{Cs}$ の平均断面積との比
45	$114.0 \pm 7.2$	$1.10 \pm 0.05$
50	$108.7 \pm 4.7$	$1.06 \pm 0.03$
60	$124.1 \pm 1.8$	$1.22 \pm 0.11$

#### V-3. 消滅処理の対象となる長寿命FPの核反応断面積

8核種の長寿命FP、 $^{85}\text{Kr}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{93}\text{Zr}$ 、 $^{99}\text{Tc}$ 、 $^{107}\text{Pd}$ 、 $^{129}\text{I}$ 、 $^{135}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ に対する $(n, \gamma)$ 反応断面積と光核反応断面積の測定値の調査を行ったので、その結果を表6と7に示しておく。光核反応の測定値がないものについては、参考のためその同位体についての調査結果を示した。また、核反応断面積計算コードの調査も行ったので、その結果を表8に示す。

表6 (n,  $\gamma$ ) 反応断面積の調査結果

核 種	核分裂収率*	半減期	Data No.	捕獲断面積	測 定 方 法	測定者等 (文献)
$^{86}\text{Kr}$	0.27 %	11 年	1	$1.66 \pm 0.20$ b	$^{86}\text{Kr}$ を埋め込んだ Al 箔を ORNL の原子炉で照射, 質量分析で $^{86}\text{Kr}/^{84}\text{Kr}$ を得た. 評価値	C. E. Bemis, et al., N. S. E., 47, 371('72)
			2	1.66 b		JNDC, JAERI 1320('90)
$^{90}\text{Sr}$	5.9	29	3	$0.8 \pm 0.5$ b	ガンマ線スペクトル測定	G. Zeisel, Acta Phys Austr 23, 223('66)
			4	$14.0 \pm 2.4$ mb	放射化法, ガンマ線測定	L. A. McVey, J. Radioanal Chem 76, 131('83)
			5	$15.3 \pm 1.3$ mb	放射化法, $^{90}\text{Sr}$ を指標として $^{90}\text{Sr}$ と $^{91}\text{Sr}$ のガンマ線を比較測定	原田, 関根, 加藤その他核データ研究会で発表('91)
			6	0.9 b	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)
$^{93}\text{Zr}$	6.39	$1.5 \times 10^6$	7	2.25 b	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)
			8	(共鳴パラメータの測定)		R. L. Macklin, N. S. E., 92, 525('86)
$^{239}\text{Pu}$	6.1	$2.1 \times 10^5$	9	$24 \pm 4$ b	$^{239}\text{Pu}-\text{Be}$ 線源を用いた放射化法	B. B. Ovechkin et al INIS-mf-1543,
			10	$30 \pm 2$ b	原子炉に設置した結晶スペクトロメーターで測定	N. J. Pattenden, P/11 UK
			11	19.9	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)
			12	$20 \pm 18$ b	原子炉での放射化法	M. Lucas, IAEA-TC-119/14
			13	(共鳴パラメータの測定)		R. L. Macklin, N. S. E. 81 520('82)
$^{107}\text{Pd}$	0.14	$6.5 \times 10^6$	14	(共鳴パラメータの測定)		U. N. Singh, N. S. E. 67 54('78)
			15	(共鳴パラメータの測定)		R. L. Macklin, N. S. E. 89 79('85)
			16	2.0 b	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)
$^{129}\text{I}$	0.71	$1.6 \times 10^7$	17	$35 \pm 4$ b	ORNL fast chopper TOF	R. C. Block et al., N. S. E. 8, 112('60)
			18	(共鳴パラメータの測定)		R. L. Macklin, N. S. E. 85 85, 350('83)
			19	27 b	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)
$^{135}\text{Cs}$	6.5	$2.3 \times 10^6$	20	$14.5 \pm 4$ b	放射化法, 吸収, 崩壊曲線	N. Sugarman, Phys Rev 75 1473('49)
			21	$8.7 \pm 0.5$ b	放射化法, $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の質量分析と $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の放射能比から	A. P. Baerg, Can J Phys 36, 863('58)
			22	$\alpha \cdot \sigma = 16$ b	放射化法, $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の放射能比を求めた. $\alpha$ は $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の原子核数比	原田, 関根, 加藤その他未発表
			23	6.5 b	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)
$^{137}\text{Cs}$	6.27	30.	24	$0.11 \pm 0.03$ b	放射化法, 試料核と生成核は別々に測定	D. C. Stupegia, J. Nucl. Energy, 12, 16('60)
			25	$0.250 \pm 0.013$ b	放射化法, 試料核と生成核の放射能の同時測定	H. Harada, T. Sekine, T. Katoh et al., J. Nucl. Sci. Tech. 27, 577('90)
			26	0.11 b	評価値	JNDC, JAERI 1320('90)

\*核分裂収率は " JNDC: JAERI 1320('90)" から引用

表 7 光核反応断面積の調査結果

核種	核分裂収率	半減期	測定者 (文献)
$^{137}\text{Cs}$	6.27	30.0年	中村他, PNC PJ1601 91-003.

核種	測定者 (文献)
$^{33}\text{S r}$	A.Lepretre et al., Nucl. Phys. A175, 609(1971).
$^{33}\text{Z r}$	B.L.Berman et al., Bull. Am. Phys. Soc. 31,855(1986).
$^{90}\text{Z r}$	B.L.Berman et al., Phys. Rev. 162, 1098(1967). A.Lepretre et al., Nucl. Phys. A175, 609(1971).
$^{91}\text{Z r}$	B.L.Berman et al., Phys. Rev. 162, 1098(1967).
$^{92}\text{Z r}$	B.L.Berman et al., Phys. Rev. 162, 1098(1967).
$^{33}\text{P d}$	A.Lepretre et al., Nucl. Phys. A219, 39(1974).
$^{127}\text{I}$	R.L.Bramblett et al., Phys. Rev. 143, 790(1966). R.Bergere et al., Nucl. Phys. A133, 417(1969). B.L.Berman et al., Bull. Am. Phys. Soc. 31,855(1986).
$^{133}\text{C s}$	B.L.Berman et al., Phys. Rev. 177, 1745(1969). A.Lepretre et al., Nucl. Phys. A219, 39(1974).

表8 核反応断面積計算コードの調査結果

## ・光核反応断面積計算コード

名称	使用モデル	適用範囲	出力
MCPHOTO (CRC、原研)	エキシトンモデル（前平衡過程） 統計的蒸発モデル（平衡過程） 統計理論による核分裂モデル（光核分裂過程） ローレンツ型共鳴曲線（巨大共鳴吸収）	しきいエネルギー～140MeV バナジウムより重い核	吸収断面積、粒子放出断面積 放出粒子のエネルギー及び角度分布 二重微分断面積
PICA (ORNL)	Fermi自由ガスモデル（核内カスケード） 統計的蒸発モデル（蒸発過程）	100MeV～1GeV アルミニウムより重い核が 望ましいが、炭素以上なら 計算可能	吸収断面積、粒子放出断面積

## ・核子（中性子、陽子）核反応断面積計算コード

名称	使用モデル	適用範囲	出力
GNASH (LANL)	多段階Hauser-Feshbackモデル（複合核過程） エキシトンモデル（前平衡過程）	～200MeV アルミニウムより重い核	吸収断面積、粒子放出断面積 放出粒子のエネルギー
ALICE (LLNL)	Weisskopfの蒸発モデル（複合核過程） Geometry Dependent Hybridモデル（前平衡過程）	～200MeV アルミニウムより重い核	吸収断面積、粒子放出断面積
SINCROS (データ工学研)	多段階Hauser-Feshbackモデル（複合核過程） エキシトンモデル（前平衡過程）	～200MeV 質量数20以上	吸収断面積、粒子放出断面積

## V. 今後の検討課題

消滅処理方法の開発の特徴の一つは、多量の核反応処理を取り扱うことである。つまり、前述した消滅処理方法（核変換方法）が核反応断面積の測定のような少量の処理の場合には可能であっても、多量の処理が必要となる消滅処理に工学的に応用できるとは限らない。したがって、消滅処理の装置化のためには、マクロな量の核反応を制御できる方法を開発することが必要である。

例えばこれまでの加速器は、基礎研究のために用いられることが多く、主に高エネルギーで質の良いビームの開発がおこなわれてきた。これに対して消滅処理では、多量処理を行うために大電流ビームの開発が必要である。消滅処理装置としての加速器のビーム出力 $D(W)$ は、1核種を消滅するための消滅処理エネルギーを $E_{tr}(MeV)$ とすると、

$$D = 1.6019 \times 10^{-10} \cdot E_{tr} \cdot S = \frac{h \cdot Y \cdot E_R \cdot E_{tr}}{\eta_R \cdot E_{fiss}} \quad (7)$$

で表される。例えば、 $h=0.75$ 、 $\eta_R=0.33$ 、 $Y=0.06$ 、 $E_R=10^3 MWe$ 、 $E_{tr}=100 MeV$ 、 $E_{fiss}=200 MeV$ とすると、 $D = 68 MW$ となる。ビーム電流は加速エネルギーによって変わるが少なくとも100mA程度の加速器が容易に利用できる技術が達成されなければ、加速器による消滅処理は、現実のものとはならないであろう。

上記のビーム技術の研究以外にも高放射線場で使用できるような構造材の研究や2次廃棄物の評価等の研究が必要である。さらには、ターゲット系に関しても、ビームの挙動解析、照射中の熱的な解析（発熱や除熱）あるいは照射前後のターゲットの処理等の研究が必要である。

また、消滅処理方法の成立性を議論するためには、前述した消滅処理速度、消滅処理エネルギーの評価の他に、経済性の評価、リスク評価等を加味した総合評価を行う必要がある。また、本報告書では主に $^{137}Cs$ について述べたが、表1に示したような消滅処理の対象と考えられる他の長寿命FP（ $^{129}I$ 、 $^{99}Tc$ 等）、あるいはTRUの $^{237}Np$ 、 $^{241}Am$ 等に対しても同様の評価検討が必要である。



## 謝 辞

本研究をすすめるにあたって、貴重なご助言、ご指導をいただいた高エネ研の佐藤勇先生、理研の郷農靖之先生、放医研の平尾泰男先生に深く感謝いたします。消滅処理用原子炉の研究に関してご協力いただいた日立製作所の早瀬保、川島克之の両氏、及び、Moving Target法の研究に関してご協力いただいたCENSのP.Louvet氏に深く感謝の意を表します。また、共同の研究者として実験にご協力いただいた東北大の中村尚司先生、名大の加藤敏郎先生、原研の関根俊明氏に深く感謝いたします。計算コードのインストールや資料の作成等にご協力いただいた銚CSKの方々にも深くお礼申し上げます。

最後に、本研究に関してご協力いただいた核燃料サイクル技術開発部フロンティア研究推進室の方々に深く感謝いたします。

- 参考文献 -

- (1) M. Steinberg, G. Wotzak and B. Manowitz, BNL 8558 (1964).
- (2) H. Takahashi, N. Mizoo and M. Steinberg, BNL-28779 (1980).
- (3) W. C. Wolkenhauer, B. R. Leonard, Jr and B. F. Gore, BNWL-1772 (1973).
- (4) K. J. Schneider, BNWL-1900 (1974).
- (5) B. Bulow et al., "Handbook on Nuclear Activation Cross-Sections", IAEA TECHNICAL REPORTS SERIES No. 156, IAEA, VIENNA (1974).
- (6) S. Pearlstein, Astrophys. J., 346 (1989) 1049.
- (7) J. F. Janni, Atomic Data and Nuclear Data Tables 27 (1982) 147.
- (8) M. Taube, Nucl. Sci. Eng. 61, 212 (1976).
- (9) 土橋他, 日本原子力学会誌, No. 11, Vol. 30 (1988).
- (10) 大竹他, 原子力工業, No. 4, Vol. 35 (1989).
- (11) 早瀬他, "F P 消滅炉の研究", PNC N8410 90-057 (1990).
- (12) 核変換技術開発ワーキンググループ平成元年度報告書,  
PNC ZN8410 91-017 (1991).
- (13) K. Konashi et al., Proc. Int. Conf. on Emerging Nucl. Energy Systems, ICENES'91, Monterey, California (USA) June 16-21, 1991.
- (14) T. Kase et al., Proc. Int. Conf. on Muon Catalyzed Fusion  $\mu$ CF-90,  
Vienna, May 27-Jun 1, 1990.
- (15) 高下他, "慣性核融合を利用したF P 消滅処理研究", 核変換G r. メモ.
- (16) W. R. Nelson, H. Hirayama and D. W. O. Rogers, SLAC-265 (1985).
- (17) 中原他, JAERI-M 82-198 (1982).
- (18) J. F. Briesmeister, LA-7396-M (1986).
- (19) H. Harada et al., J. Nucl. Sci. Tech. 27, 577 (1990).
- (20) G. Zeisel, Acta Phys. Austr. 23, 233 (1966).
- (21) L. A. McVey, J. Radioanal. Chem. 76, 131 (1983).
- (22) D. C. Stupaglia, J. Nucl. Energy, 12, 16 (1960).
- (23) 中村他, "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 (V)", PNC PJ1601 91-003.

## 付録 1 : 成果発表

成果発表

特許

- 1) 小無、笹尾 01-050815 「放射性廃棄物の消滅処理装置及び消滅処理方法」
- 2) 小無、笹尾 特願平2-186390「放射性廃棄物の消滅処理方法」

国際会議、雑誌投稿

- 1) S. Toyama et al., Proc. Int. Symp. on Advanced Nuclear Energy Research 'Evolution by Accelerators', p387, Mito, Japan, Jan. 24-26(1990).
- 2) S. Toyama et al., proc. 1st Information Exchange Meeting on Actinides and Fission Product Partitioning, Mito, Japan, Nov. 6-8(1990).
- 3) T. Kase et al., Proc. Int. Conf. on Muon Catalyzed Fusion  $\mu$  CF-90, Vienna, May 27-Jun 1, 1990.
- 4) H. Harada et al., 'Measurement of the Neutron Capture Cross Section of the Fission Product  $^{137}\text{Cs}$ ', J. Nucl. Sci. Tech. 27, 6(1990)577.
- 5) K. Konashi et al., 'New Transmutation Method by Using Moving Target', Proc. Int. Conf. on Emerging Nuclear Energy Systems, Monray, USA, June 16-21, 1991.
- 6) T. Kase et al., 'Transmutation of  $^{137}\text{Cs}$  by Accelerator', Stockholm, SPECIALIST MEETING ON ACCELERATOR-DRIVEN TRANSMUTATION TECHNOLOGY FOR RADWASTE AND OTHER APPLICATIONS, Sweden, June 23-28, 1991.

7)小無他, '高まる新ビーム技術への期待', 日本原子力学会誌, 33, 1030(1991).

8)H. Takashita et al., 'Specialists' Meeting on Accelerator-Based Transmutation', Villigen, Switzerland, March 24-26, 1992.

#### 学会発表

##### 1)昭和62年日本原子力学会秋の大会予稿集

M58 小無、天野、笹尾、 $\gamma$ 線による放射性廃棄物の消滅処理(I) 概要

M59 千田 他  $\gamma$ 線による放射性廃棄物の消滅処理(II) コード開発

##### 2)昭和63年日本原子力学会秋の大会予稿集

J48 小無、天野、笹尾、 $\gamma$ 線による放射性廃棄物の消滅処理(I) システム設計

J49 小無、笹尾、中丸、長谷川、 $\gamma$ 線による放射性廃棄物の消滅処理(II) 解析例

##### 3)1989年日本原子力学会年会要旨集

L57 高下、小無、笹尾、中丸、早瀬、F.P.の消滅処理研究(I)

- ハイブリッドシステムによる消滅 -

L58 原田、小無、笹尾、F.P.の消滅処理研究(II)

- クーロン励起による核消滅 -

##### 4)1990年日本原子力学会年会要旨集

K63 原田、渡辺、関根、初川、加藤、F.P.の消滅処理研究(I)

- 熱中性子による $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$  反応断面積の測定 -

K64 高下、早瀬、小無、笹尾、F.P.の消滅処理研究(II)

- 原子炉による消滅 -

K65 佐藤、遠山、小無、笹尾、F.P.の消滅処理研究(III)

- 電子線形加速器による $^{137}\text{Cs}$ の消滅処理法 -

K66 加瀬、小無、笹尾、中丸、金子、F.P.の消滅処理研究 (Ⅳ)

-  $\mu$  C F を利用した  $^{137}\text{Cs}$  の消滅処理 -

5) 1990年日本原子力学会秋の大会予稿集

M72 小無、笹尾、複合核共鳴準位を利用した放射性廃棄物の消滅処理

6) 1991年日本原子力学会年会予稿集

K59 加瀬、原田、小無、笹尾、古賀、今西、陽子による  $^{137}\text{Cs}$  の消滅処理

G19 遠山、尾下、平野、小無、笹尾、Labrie、王、佐藤

大強度CW電子線形加速器の構成

7) 1991年日本原子力学会秋の大会予稿集

J67 高下、小無、笹尾、岸本、川島、原子炉によるFP消滅処理

8) 1992年日本原子力学会年会発表予定

C41 野村、小無、岸本、

複合核共鳴準位を利用した放射性廃棄物の消滅処理 (Ⅱ)

#### 研究会発表

1) S.Toyama et al., Proc. 14th Linear Accelerator Meeting in Japan, Nara, (1989), 'Development Proposal of an Accelerator for Nuclear Incineration'.

2) S.Toyama et al., Proc. 15th Linear Accelerator Meeting in Japan, Hokkaido(1990), 'Study of Accelerating Structure for High Intensity Electron Linear Accelerator'.

3) H.Harada et al., 'Measurement of the Neutron Capture Cross Section of the Fission Product  $^{137}\text{Cs}$ ', 1990年 核データ研究会、原研.

4)加瀬他、'EGS4による( $\gamma$ , n)反応の取扱いとMCNPとの接続'、  
1991年7月、EGS4研究会、高エネ研。

5)原田他、'熱中性子による $^{90}\text{Sr}$ (n,  $\gamma$ ) $^{91}\text{Sr}$ 反応断面積の研究、  
1991年11月、放射化学討論会、大阪大学。

#### 事業団資料

- 1)核変換技術開発ワーキンググループ報告書(PNC SN 4110 87-001)
- 2)核変換技術開発ワーキンググループ昭和62年度報告書(PNC N4410 88-002)
- 3)核変換技術開発ワーキンググループ昭和63年度報告書(PNC N4410 89-002)
- 4)核変換技術開発ワーキンググループ平成元年度報告書(PNC ZN8410 91-017)
- 5)海外加速器調査報告書－本文編－(PNC N4600 88-005(1))
- 6)海外加速器調査報告書－資料編－(PNC N4600 88-005(2))
- 7)消滅処理に関する国際会議参加報告書(PNC TN8600 91-004)
- 8)FP消滅炉の研究(PNC N8410 90-057)
- 9)FP消滅処理用原子炉の研究(PNC TN8410 91-239)

## 付録 2：投稿論文、プロシーディング等



Proc. Int. Symp. on Advanced Nuclear Energy Research, Mito, Jan.24-26 (1990)

# TRANSMUTATION OF LONG-LIVED FISSION PRODUCT( $^{137}\text{Cs}$ , $^{90}\text{Sr}$ ) BY A REACTOR-ACCELERATOR SYSTEM

Shin'ichi Toyama, Hirofumi Takashita, Kenji Konashi  
and Nobuyuki Sasao  
Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation  
Nuramatsu, Tokai-mura, Ibaraki-ken, 319-11, Japan  
0292/82-1111

Isamu Sato  
National Laboratory for High Energy Physics  
Oho, Tsukuba-shi, Ibaraki-ken, 305, Japan  
0298/64-1171

## 1. INTRODUCTION

Spent fuels from fission reactors contain long-lived nuclides. Small neutron capture cross section of such fission products as  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  largely contained in nuclear waste makes it difficult to incinerate by reactors only. A system combining reactor and accelerator has recently been developed to transmute these nuclides to short-lived or stable nuclides.

We report here the incineration method using the system of reactors and accelerators for transmutation.

## 2. CRITERIA FOR TRANSMUTATION DISPOSAL METHOD

A number of devices have been proposed for the transmutation of nuclear wastes; fission reactors(1-3), fusion reactors(4,5), accelerators(6-8) and so on. The important question is whether the transmutation concepts meet the following criteria:

(1) Risk reduction criterion : The overall risk of disposal method by transmutation should be reduced by comparison with the reference management scheme.

(2) Transmutation rate criterion : The transmutation rate of the nuclear wastes should be several times faster than the natural decay rate.

(3) Energy balance criterion : The transmutation method should not consume more energy than that is originally obtained when the wastes are

produced.

The criteria (1) and (2) are fundamental requirements for the waste management strategy based on nuclear transmutation. The estimate for criterion (1) is not easy because of the lack of analysis method. The criterion (3) is valid so long as fission power reactors contribute significantly to the energy economy. If fission power reactors were no longer necessary, this criterion would be the one for practical management rather than for feasibility study.

There are two available devices in the present technology, i.e. fission reactors and accelerators. The transmutations by these two devices are characterized as follows; large quantities of radioactive nuclides can be transmuted in one fission reactor. The transmutation process also can generate energies and can easily meet the criterion (3). However, its transmutation rate is slow because of low neutron flux. As for the transmutation by accelerator, its advantage is that high transmutation rate can be obtained by focusing of accelerator beam. However, the operation of accelerator needs much energy in transmuting the large quantities of the nuclear wastes, which leads to the difficulty in satisfying the criterion (3).

## 3. CONCEPT OF COMBINED TRANSMUTATION SYSTEM

As a practical way, we propose a combined system of reactors and accelerators. As seen in Fig.1, the combined system has two steps of

transmutation process in order to meet both criteria (2) and (3). In the first step, large quantities of nuclear wastes are transmuted with slow transmutation rate in fission reactors. When the transmutation by fission reactors is finished, small quantities of nuclear wastes are remained. In the second step, the remained nuclear wastes are transmuted by accelerators with fast transmutation rate. In this combined system, the overall transmutation rate is between these of two steps.

Fig. 2 shows an example of the transmutation of  $^{137}\text{Cs}$  by the combined system. In the first stage, nuclear wastes are accumulated by the operation of power reactors. No transmutation device is operated in this stage. In the second stage, the fission reactors which we call transmutation reactors are operated to transmute the nuclear wastes from the power reactors. In this stage, quantities of nuclear wastes reach the constant value, which is determined by the equilibrium between the transmutation and the generation of radionuclides. In the third stage, the power reactors are stopped and total quantities of the nuclear wastes decrease by the transmutation. The transmutation reactors are stopped one by one as the nuclear wastes decrease. At the end of the third stage, all transmutation reactors are stopped and the quantities of nuclear wastes reach the minimum value which can be transmuted by the fission reactor. In the last stage, the remained nuclear wastes are transmuted by accelerators with fast transmutation rate. In this example, the overall transmutation rate corresponds to that of single step transmutation with the half-life of 5 years. The energy balance of total step is positive.

Hereafter, we describe outlines of the reactor and the accelerator for transmutation successively.

#### 4. TRANSMUTATION REACTOR

We have studied the transmutation of  $^{137}\text{Cs}$  into stable nuclide in fission reactors. The transmutation reactor we consider is a high-flux fast reactor which is composed of cesium region inside and fuel and reflector region outside as schematically shown in Fig. 3. In the cesium region  $^{137}\text{Cs}$  is loaded in the chemical form of the deuterioxide  $^{137}\text{CsOD}$ , since the density of  $^{137}\text{CsOD}$  is higher than that of metallic form. The

deuterium D is considered as moderator.

In the fuel region solid fuel is loaded. Taube studied a transmutation reactor for the transmutation of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  before(2). In his study he proposed a liquid fuel to obtain a high power density which leads to a high neutron flux. However, we use the solid fuel which is more realistic than the liquid fuel.

Fast neutrons generated in the fuel region are thermalized due to mainly deuterium in the cesium region. The thermalized neutrons are used to transmute  $^{137}\text{Cs}$ , since the capture cross section of  $^{137}\text{Cs}$  is approximately one order of magnitude larger for thermal neutron than for fast neutron. Nevertheless, the thermal neutron capture cross section of  $^{137}\text{Cs}$  is very small ( $\sim 0.11\text{b}$ ) and therefore high neutron flux is necessary to transmute  $^{137}\text{Cs}$  effectively. We aim at the thermal neutron flux level of  $10^{16}\text{n/cm}^2\cdot\text{s}$  in the cesium region of the transmutation reactor. The distributions of the fast and the thermal neutron fluxes are also depicted in Fig. 3.

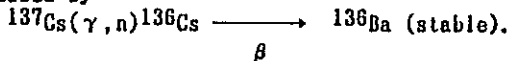
#### 5. TRANSMUTATION ACCELERATOR

##### 5.1 Method of Transmutation by an Accelerator

Instead of  $(n, \gamma)$  reaction in transmutation reactors, other nuclear reactions have been proposed ;

1. spallation reaction by using proton accelerator(8,7),
2.  $(n, 2n)$  reaction by using fusion reactor(4,5),
3. photonuclear reaction,  $(\gamma, n)$  by using electron accelerator(8).

In this section, the transmutation by photonuclear reaction is discussed. It is well known that so called giant resonance is observed in the range of nuclear excitation energy from 10 to 20 MeV. The transmutation of  $^{137}\text{Cs}$  is expressed by



Two kinds of photon source are discussed, i.e. the bremsstrahlung method and the inverse compton method. Since continuous energy spectrum is obtained by bremsstrahlung, the portion of the generated photons can be used for transmutation. On the other hand, the inverse compton method produces tunable quasi-monoenergetic photon(9). The probabilities of  $(\gamma, n)$  reaction were calculated by EGS4 code for both photon sources.

The photonuclear cross section of  $^{133}\text{Cs}$  was used in the calculations, since there is no experimental data for  $^{137}\text{Cs}$ . In the case of bremsstrahlung method the probability is 0.025 under the condition when an electron with the energy of 100MeV bombards in Cs target. In other words, the incident electron energy of 4GeV is necessary for the transmutation of one  $^{137}\text{Cs}$ . The probability is also calculated for the quasi-monoenergetic photons which are generated by the collision of 1GeV electrons with 1.19eV laser photons. The incident photon energy of 850MeV is required for the transmutation of one  $^{137}\text{Cs}$ .

## 5.2 Development of a CW Accelerator

It is important to get stable high intensity beam and sufficient energy-saving. In this proposal, new development is needed because there is no accelerator having such a specification in the world. It is necessary to construct a test linac which accelerates high intensity beam for this purpose. The beam energy and the beam power which are requested to a industrial test facility pilot-plant are near 100MeV-100MW and 1GeV-1GW. So we have a plan of constructing a CW(continuous Wave) linac to accelerate 10MeV-100mA electrons with duty factor 20% for preparatory research and development. In this case, an electron is suitable to beam particle as the cost is low.

Fig. 4 presents the mapping of electron power of accelerators in the world, where the mark for this proposed linac is also addressed. The basic specification of our accelerator is summarized in Table 1. Results from this development will be fruitful for design of not only the advanced accelerator but also new type of light source and positron generator.

The block diagram of the test linac is shown in Fig. 5. The bird eyes view of the test linac is depicted in Fig. 6. It is supposed that the conceptual figure of the test linac is like one shown in Fig. 6, where two klystrons and eight accelerating tubes are seen. This accelerator facility will be settled in the site of PNC Tokai works.

In the case of the test linac, there are many subjects for the development. In this paper, we will mention about the design of CW accelerating tube and high power klystron which are developed in this year.

### 1. CW accelerating tube

Good energy transformation of RF to beam is of vital importance for our test linac. For this purpose, RF power supply system by not only standing wave but also traveling wave with resonant ring is investigated for good energy-saving(10). The result of the difference of above two methods is compared. And beam break-up(BBU) associated with the periodic structure of accelerating cavity is also important in the case of high current beam acceleration. So it is necessary to study the problem of induced higher electric modes caused by beam-RF interaction. The beam test of BBU is important because the prediction of a simulation is difficult. RF test is in progress using test cavity designed for the buncher.

### 2. High Power CW Klystron

There is no CW klystron that output is over 1MW in L band width. So new development for electron gun, collector and RF out-put window is needed for stable drive of the klystron. High conversion efficiency into RF is also important. At present, our goal is to get 65% efficiency.

### 3. Analysis of Thermal Stress of Accelerating Tube

The thermal stress by micro-wave that power amounts to 300kW per tube is serious for deformation of cavity structure. For this problem, some simulation calculation and model experiment must be carried out in order to search and examine enough cooling structure.

## 6. SUMMARY AND FUTURE PROSPECT

We have discussed about the transmutation of long-lived fission products by reactor and accelerator. It is important to take some criteria mentioned in section 2 into consideration in transmutation disposal. To satisfy the criteria, a combined system of the reactor and the accelerator was proposed for the transmutation.

Outlines of the transmutation reactor and the accelerator were described. The transmutation reactor has ability to transmute a large quantity of the fission products. However, it is desirable to have a high transmutation rate as well as the large quantity of disposal. Besides the transmutation property, it is necessary to

Investigate the physics of the transmutation reactor such as nuclear characteristic and burnup property in order to obtain the most suitable high performance core concept. We have investigated those properties and would like to improve the transmutation reactor so as to optimize core parameters.

A high power accelerator is required for the transmutation. So test linac is developed to accelerate high intensity beam. Electron linac is suitable to such a test linac because of the cheap cost and the lots of knowledge by many experience. We are going to check the calculation for the accelerator design by cavity test for next step. This accelerator study is available also to accelerate heavier particles by high  $\beta$  linac.

#### 7 REMARKS

Considering the secondary process after irradiation, only one element, Ba is generated through the transmutation process. The chemical processing of target during and after irradiation would be easy compared with that of spallation target. In the case of photonuclear reaction, electron accelerators are used to generate photons. The electron accelerators have large experiences of industrial use compared with other devices. However, the compete processes, which are pair production and compton scattering, have large cross sections. In the point of view of energy economy, the transmutation of photonuclear reaction has a disadvantage compared with other methods. It is important to search for more sophisticated nuclear reaction.

#### REFERENCES

- (1) M. Steinberg, G. Motzak and B. Manowitz, BNL 8558(1964).
- (2) H. C. Claiborne, ORNL-TM-3964(1972).
- (3) M. Taube, Nuclear Science and Engineering, 61, 212(1976).
- (4) W. C. Wolkenhauer, B. R. Leonard, Jr and B. F. Gore, BNWL-1772(1973).
- (5) Y. Gono, K. Asahi and M. Ishihara, PNC SJ4510 88-001(1988).
- (6) M. V. Gregory and M. Steinberg, BNL-11915(1967).
- (7) H. Takahashi, N. Mizoo and M. Steinberg, BNL-28778(1980).
- (8) K. J. Schneider, BNWL-1900(1974).
- (9) T. Tomimasu, Nuclear Science Applications, 3, 29(1987).
- (10) I. Sato, to be published in PARTICLE ACCELERATORS.

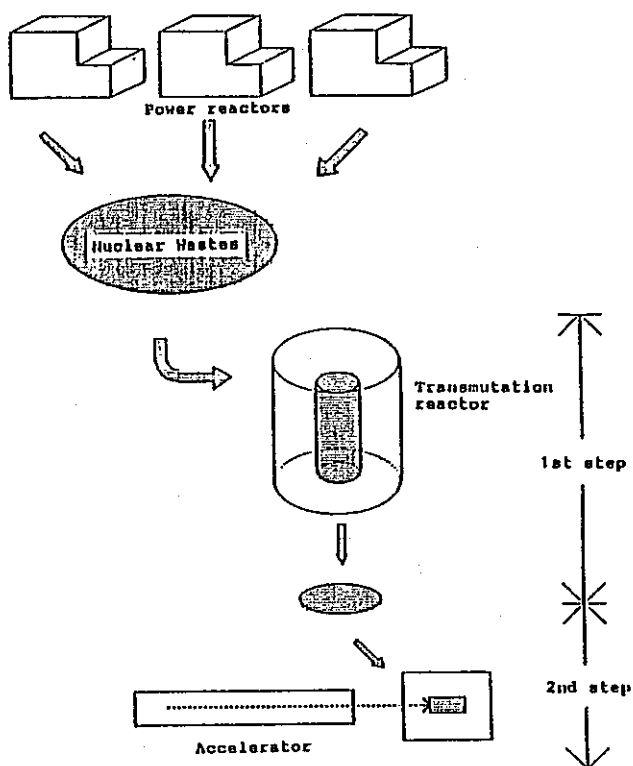


Figure 1 Combined transmutation system

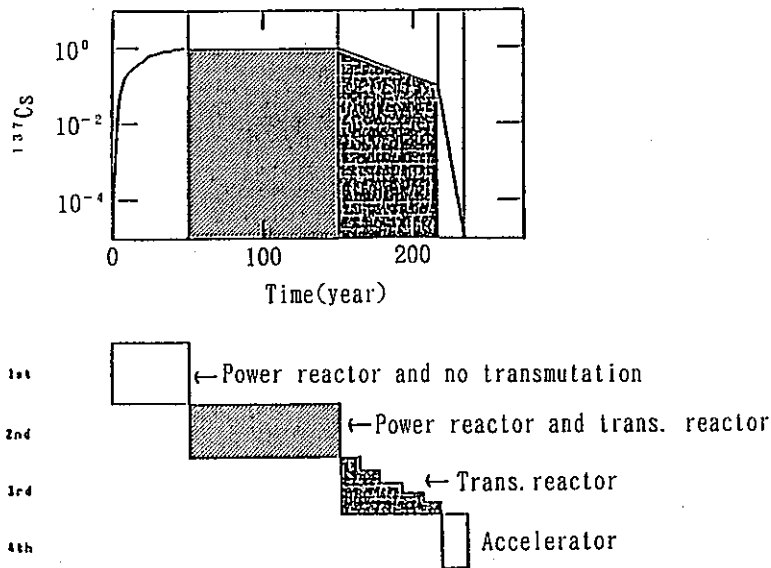
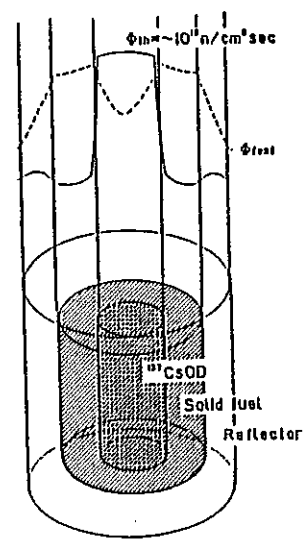

Fig. 2. Example of transmutation of  $^{137}\text{Cs}$ .


Fig. 3. Fission reactor for transmutation.

Beam Energy	10 MeV
Energy Resolution	$10^{-4}$
Max. beam Current	100 mA
Average Beam Current	20 mA
Beam power	200 kW
Beam Duration	4 ms
Beam repetition	60 Hz
Duty Factor	20 %
RF Frequency	1249 MHz
Klystron PF power	1.2 MW
Wave Length	24 cm
Mode of Acceleration	$2\pi/3$
Length of a Acc. Tube	1.2 m
Total length	16 m

Table 1 Basic Specification of PNC test Linac.

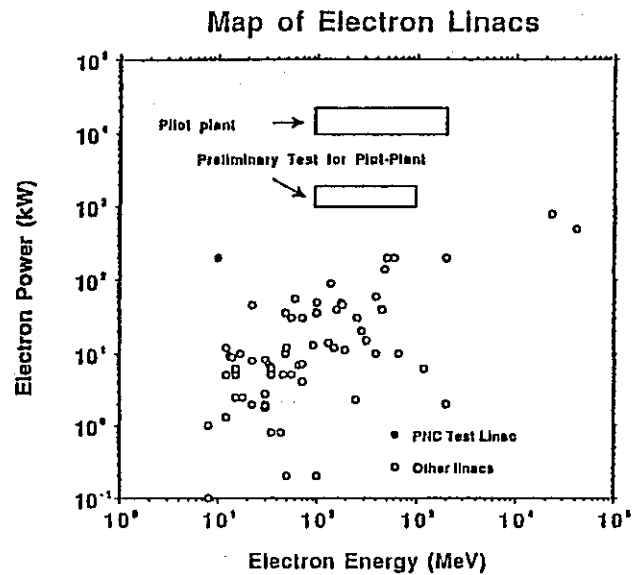


Fig. 4. Map of Electron linacs.

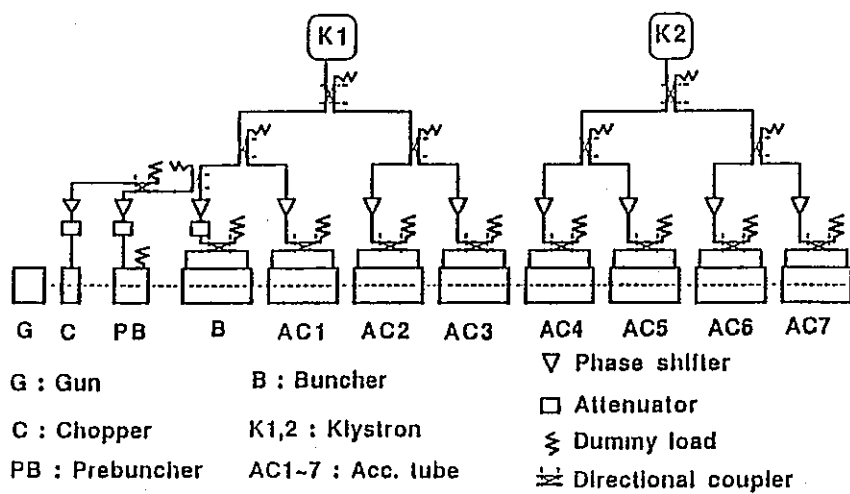


Fig. 5. Block Diagram of PHC Test Linac.  
In this example, the resonant ring structure is assumed.

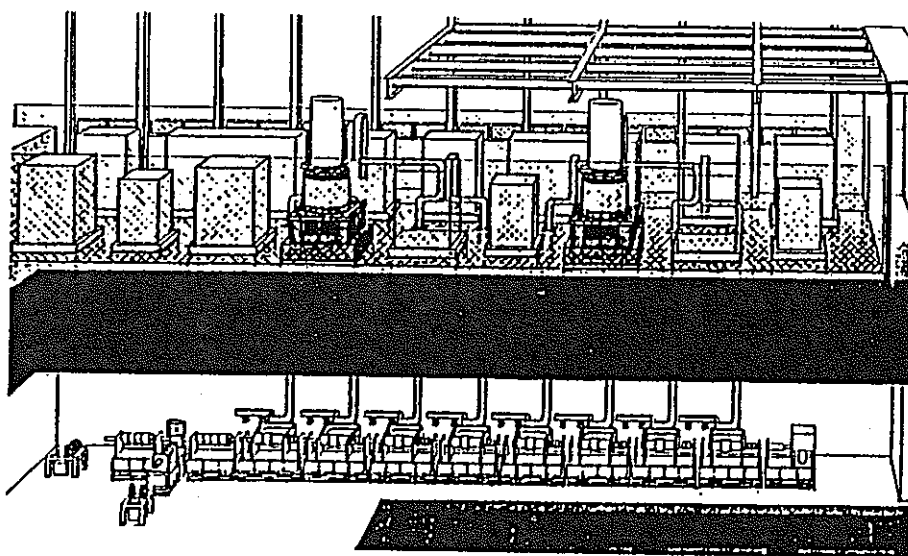


Fig. 6. Bird eyes vlew of PNC Test Linac.

The First OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinides  
and Fission Product Partitioning and Transmutation

## Development Proposal of an Accelerator for Nuclear Transmutation

Shin'ichi TOYAMA, Hironori OSHITA, Koichiro HIRANO, Hisashi WATANABE,  
Kenji KONASHI, Nobuyuki SASAO, <sup>§</sup>Takao URANO, <sup>§</sup>Satoshi OHSAWA,  
<sup>§</sup>Atsushi ENOMOTO, <sup>§</sup>Hitoshi KOBAYASHI, <sup>§</sup>Shozo ANAMI,  
<sup>§</sup>Kazuo NAKAHARA, <sup>§</sup>Y.L. WANG, <sup>§</sup>Isamu SATO

Power Reactor and Nuclear Fuel Corporation, Tokai Works (PNC Tokai)  
<sup>§</sup> National Laboratory for High Energy Physics (KEK)

### Abstract

There are long-lived radioactive nuclides in the spent fuels from nuclear reactors. Recently the incineration disposal has proposed in order to transmute these nuclides into short-lived or stable ones by means of a reactor or an accelerator. F.P.'s, especially <sup>90</sup>Sr and <sup>137</sup>Cs, which are difficult to transmute only by reactor because of their smallness of cross section for thermal neutrons. There are some methods to transmute those radioactivities by using accelerators, i.e. the use of photo-nuclear reaction, high energetic proton spallation, neutron knockout reaction and so on. It is important for the characteristics of an accelerator for nuclear transmutation to get stable high intensity beam and good efficiency for energy-saving. The beam current is two order higher than that of existing machines. It is necessary to construct a test linac which accelerates high current beams. An electron linac is better than others because of its cheap cost. So we are now having a plan of constructing a CW linac which accelerating 10MeV-100mA electrons with duty factor 20 % for basic technical research and development.

Major R&D items for the accelerator are listed as follow:

CW accelerating tube. Good energy transformation of from RF to beam is of vital importance for our linac. RF power supply system by not only standing wave but also traveling wave with resonant ring is investigated for good energy-saving. The thermal stress of an accelerating tube by RF up to 250 kW is serious because of deformation of cavity structure. For this problem, some simulation calculation and model experiments is carried out to study cooling system with enough power.

High power CW klystron. In order to obtain the output power of 1 MW, developments for electron gun, collector and output window are needed for stable operation of the accelerator. High conversion efficiency from electricity to RF is also important.

Analysis of beam dynamics. Beam break up (BBU) problem is expected in the operation of the accelerator. It is necessary to study the problem of induced higher electric field modes caused by beam-RF interaction in periodic structure of the cavities and study injector section which has good emittance.

Muon Catalyzed Fusion 5/6(1990/91)521-524

## TRANSMUTATION OF $^{137}\text{Cs}$ USING MUON CATALYZED FUSION REACTION

T. KASE, K. KONASHI and N. SASAO

*Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation, Tokai-mura,  
Ibaraki-ken 319-11, Japan*

H. TAKAHASHI

*Brookhaven National Laboratory, Upton, New York 11973, USA*

Y. HIRAO

*National Institute of Radiological Sciences, Anagawa, Chiba-shi, Chiba-ken 260,  
Japan*

The feasibility of the transmutation of long-lived nuclides in high-level radioactive waste, which was generated in nuclear power reactors, is discussed. In the case of using the high intensity DT  $\mu\text{CF}$  neutron source, calculations of the transmutation of  $^{137}\text{Cs}$  were performed. The energy for the transmutation of one  $^{137}\text{Cs}$  was calculated to be about 200-140 MeV, when the effective half-life of  $^{137}\text{Cs}$  was 2.0-4.0 years.

### 1. Introduction

The management of the high-level radioactive wastes (HLW) which are generated in spent nuclear fuel reprocessing plants is one of the important problems in nuclear industry. The prominent method for HLW disposal is emplacement in geologic formations. The transmutation of long-lived nuclides in HLW to stable or short-lived nuclides is a desirable approach. Several transmutation methods have been studied; however, none is established at the present time [1].

In this paper, use of the  $(n, 2n)$  reaction is considered as the transmutation process, since the cross section of the reaction is of the order of a barn. Previously, the DT  $\mu\text{CF}$  reactor was proposed as a high intensity neutron source with an energy of 14 MeV [1-3]. This 14 MeV neutron source has a high energy efficiency in neutron production. The possibility of the application of the 14 MeV neutron source for the transmutation is discussed.

Two important factors for the transmutation are the transmutation rate (effective half-life) and the transmutation energy. The effective half-life is written as

$$T_{\text{eff}} = \frac{\log 2}{\lambda_{\text{nat}} + \lambda_{\text{tr}}}, \quad (1)$$

where  $\lambda_{\text{nat}}$  is the decay constant and  $\lambda_{\text{tr}}$  is the transmutation rate. The transmutation energy  $E_t$  is defined as the primary beam energy used for transmutation per one



T. Kase et al., Transmutation of  $^{137}\text{Cs}$  using  $\mu\text{CF}$ 

nuclide. These two factors are calculated for the present transmutation system in the case of  $^{137}\text{Cs}$ . The results of the calculation are compared with those for the transmutation by proton spallation.

## 2. Calculation

The MCNP code was used in the calculation of neutron transport and nuclear reaction [4]. The cross section data of  $^{137}\text{Cs}$  were prepared from ENDF/B-IV, using the NJOY87 code [5]. The (n, 2n) cross section of  $^{137}\text{Cs}$ , which was calculated using a Wilmore and Hodgson potential [6], was added to the above data.

The system configuration of the transmutation target is shown in fig. 1. Calculations of reaction probabilities for an incident 14 MeV neutron have been conducted with variations of the  $^{137}\text{Cs}$  target volume.

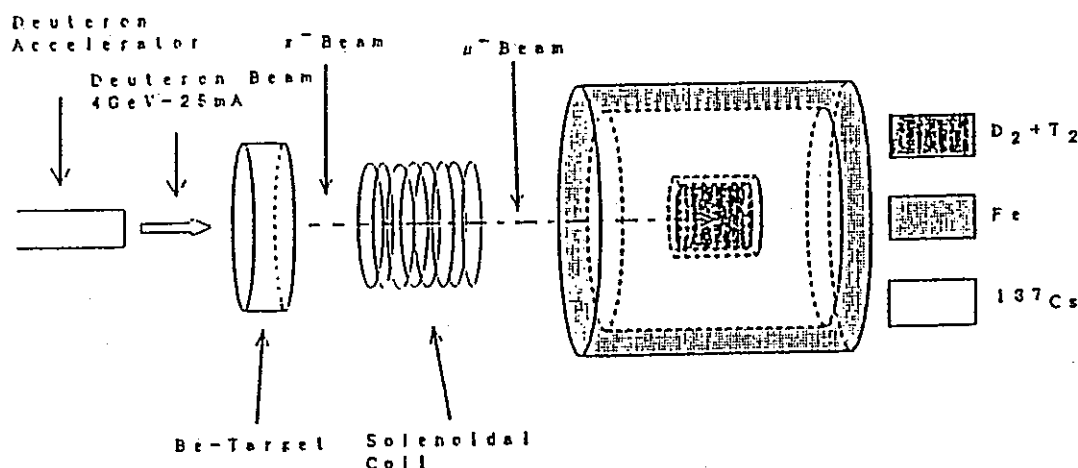


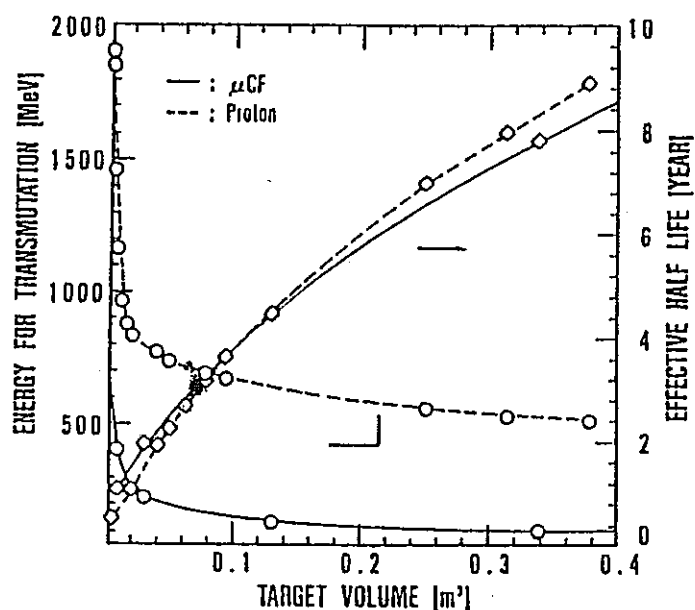
Fig. 1. System configuration.

The calculated ratio was converted to the transmutation rate for the initial 4 GeV-25 mA deuteron beam. It is assumed that the energy input to produce one  $\mu^-$  is 4.5 GeV, the number of fusions per one  $\mu^-$  is 175 and loss of the  $\mu^-$  beam at the window is 20% [2].

Transmutation using 1.0 GeV protons was also calculated in a cylinder geometry. A hadron Monte Carlo code, NMTC/JAERI [7], was used to calculate the spallation and evaporation reactions above 15 MeV.

## 3. Results

The calculation results are shown in fig. 2. The  $E_f$  decrease in both transmutations with increasing target volume. The  $E_f$  for the  $\mu\text{CF}$  method is about 500 MeV smaller

T. Kase et al., Transmutation of  $^{137}\text{Cs}$  using  $\mu\text{CF}$ Fig. 2. Comparison of  $\mu\text{CF}$  and proton.

than that for the proton spallation method. The energy released per one fission event is 200 MeV and the fission yield of  $^{137}\text{Cs}$  is 6%. An energy of 3300 MeV is obtained by fissions of uranium or plutonium, when one  $^{137}\text{Cs}$  is generated. It is assumed that the efficiency for thermal to electrical conversion is 33% and that the efficiency for deuteron beam acceleration is 50%. The upper limit of the deuteron beam energy, which can be used for the transmutation, is calculated to be 550 MeV.  $E_t$  should be below 550 MeV to realize energy balance. The calculated values of  $E_t$  are summarized in table 1 for a  $T_{\text{eff}}$  of 2 years. In the case of the  $\mu\text{CF}$  method,  $E_t$  is 195 MeV and the balance is positive.

Table 1  
Energy for transmutation of  $^{137}\text{Cs}$

Incident particle	$T_{\text{eff}}$ [y]	$E_t$ [MeV]	Target volume [cm <sup>3</sup> ]
Neutron by $\mu\text{CF}$	2.00	195	43700
Proton	2.00	790	42900

$T_{\text{eff}}$ : effective half-life;  $E_t$ : energy for transmutation of  $^{137}\text{Cs}$ .

As shown in fig. 2,  $T_{\text{eff}}$  increases with increasing target volume in both transmutation methods. In the case of the  $\mu\text{CF}$  method, this is caused by neutrons slowing down with an increase of target volume. The reason for the increase of  $T_{\text{eff}}$  in the proton spallation method is explained as follows. Nuclear reactions of the primary proton beam are located along the path of the proton beam. However,

*T. Kase et al., Transmutation of  $^{137}\text{Cs}$  using  $\mu\text{CF}$*

nuclear reactions by secondary particles, mainly by neutrons, are scattered from the path of the proton beam. In order to obtain a high transmutation rate, the contribution of secondary particles to the transmutation is small.

The transmutation system is divided into two devices (see fig. 1). One device is the accelerator and the other is the target system. The accelerator can be developed using current technology. The experience in the development of FMIT can be applied to this case [8].

In order to establish the transmutation method using the DT  $\mu\text{CF}$  neutron source, the following R&D are also necessary:

- study of reduction of phase space of the  $\mu^-$  beam to inject into a small synthesizer region;
- study of application of spallation neutrons from a Be target and fusion neutrons through the  $^{137}\text{Cs}$  region;
- development of synthesizer wall material in an intense neutron field;
- study of tritium handling in synthesizer and cooling system;
- study of heat removal from the Be target bombarded by an intense deuteron beam.

#### 4. Conclusions

We proposed a method of transmutation of  $^{137}\text{Cs}$  using a high intensity DT  $\mu\text{CF}$  neutron source. It was shown that this transmutation method has the possibility to meet both requirements of the transmutation, that is, the transmutation rate and the energy balance.

#### References

- [1] H. Takahashi, *Proc. 2nd Int. Symp. on Advanced Nuclear Energy Research*, Mito (1990), p. 77.
- [2] H. Takahashi, *Proc. Emerging Nuclear Energy Systems 1989* (1989), p. 261.
- [3] Yu. Petrov, *Muon Cat. Fusion* 1(1987)351.
- [4] J.F. Briesmeister, MCNP: A general purpose Monte Carlo code for neutron and photon transport, Version 3A, LA-7396-M, Los Alamos National Laboratory (1986).
- [5] R.E. MacFarlane et al., The NJOY nuclear data processing system, LA-9303-M, Los Alamos National Laboratory (1987).
- [6] J. Kasagi, private communication.
- [7] Y. Nakahara and T. Tsutsui, NMTC/JAERI: A simulation code system for high energy nuclear reactions and nucleon-meson transport processes, JAERI-M 82-198 (1982).
- [8] W.D. Cornelius, CW operation of the FMIT RFQ accelerator, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* NS-32(1985)3139.

Journal of Nuclear Science and Technology, 27[6], pp.577~580(June1990).

## SHORT NOTE

### Measurement of Thermal Neutron Cross Section of $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ Reaction

Hideo HARADA, Hisashi WATANABE,

*Nuclear Fuel Technology Development Division,  
Power Reactor and Nuclear Fuel  
Development Corp.\**

Toshiaki SEKINE, Yuichi HATSUKAWA,  
Katsutoshi KOBAYASHI,

*Department of Radioisotopes,  
Japan Atomic Energy Research Institute\*\**

Toshio KATOH

*Department of Nuclear Engineering,  
Nagoya University\*\**

Received March 13, 1990

**KEYWORDS:** nuclear transmutation, cesium 137, cesium 138, half-life, Ge-detectors, neutron capture, radioactive wastes, chemical separation, gamma spectra, cross sections, thermal energy

The nuclide  $^{137}\text{Cs}$  is one of the most important fission products in the field of radioactive waste management. Because of its large fission yield (6% per fission) and relatively long half-life ( $T_{1/2}=30$  yr), a huge amount of its radioactivity remains for a long period. To reduce such radioactivity, a nuclear transmutation method has been actively investigated<sup>(1)~(3)</sup>, by which a  $^{137}\text{Cs}$  nucleus can be transmuted to a short-lived one. As a matter of course, this method requires that the transmutation rate is much higher than the intrinsic decay rate.

The transmutation rate of a nuclide is determined by  $\sigma \cdot \phi$ , where  $\sigma$  is the reaction cross section for transmutation and  $\phi$  the flux of beam to induce the reaction. The value of  $\phi$  is dependent on the performance of the device to be used. In the designing of the device to achieve a necessary transmutation rate, one needs to know the value of  $\sigma$ .

There has been no measurement of the thermal neutron cross section of the  $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$  reaction since Stuepgia<sup>(4)</sup> measured it first in 1960; he obtained the value of  $0.110 \pm 0.033$  barn with a NaI(Tl) spectrometer by an activation method. The present note describes the experimental results of this cross section measured by taking advantage of a Ge detector having much better resolving power. Further, a chemical separation process is introduced to enhance the sensitivity of activity measurement.

#### 1. Experiments

About 0.1 MBq of  $^{137}\text{Cs}$  was used as a target, and 3  $\mu\text{l}$  of the CsCl solution containing the radioactivity was put into a small polyethylene bottle and evaporated to dryness. The polyethylene bottle was heat-sealed and housed in a polyethylene capsule together with a flux-monitor wire of 0.475 % Co/Al-alloy (0.76 mm in diameter). The target was irradiated during a 10 min period in the T-pipe of the swimming-pool-type JRR-4 reactor at Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI). The irradiation position is characterized with a thermal neutron flux of  $4 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>·s and an epithermal index in the Westcott convention<sup>(5)</sup>,  $r\sqrt{T/T_0}$ , of 0.02<sup>(6)</sup>.

About 15 min after irradiation, 2 ml of water containing 2 mg of zeolite (natural mordenite<sup>(7)</sup>) was poured into a polyethylene bottle. The zeolite absorbing Cs was separated from the solution by filtration and washed with water and then with a small amount of acetone; most of the  $^{24}\text{Na}$  and  $^{36}\text{Cl}$  activity was eliminated. After being dried, the  $^{137}\text{Cs}$  sample was measured with a HPGe (high purity Ge) detector of 90% efficiency relative to a 3"×3" NaI(Tl) detector and 2.3 keV energy resolution at 1.3 MeV.

#### 2. Analysis and Results

Figure 1 shows a  $\gamma$ -ray spectrum obtained from the irradiated and purified  $^{137}\text{Cs}$  sample. In the spectrum, the  $\gamma$ -rays of  $^{138}\text{Cs}$  can be seen at 1,010, 1,436 and 2,218 keV besides the 662 keV  $\gamma$ -ray of  $^{137}\text{Cs}$ .

\*,\*\* Tokai-mura, Ibaraki-ken 319-11.

\*\* Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya 464-01.

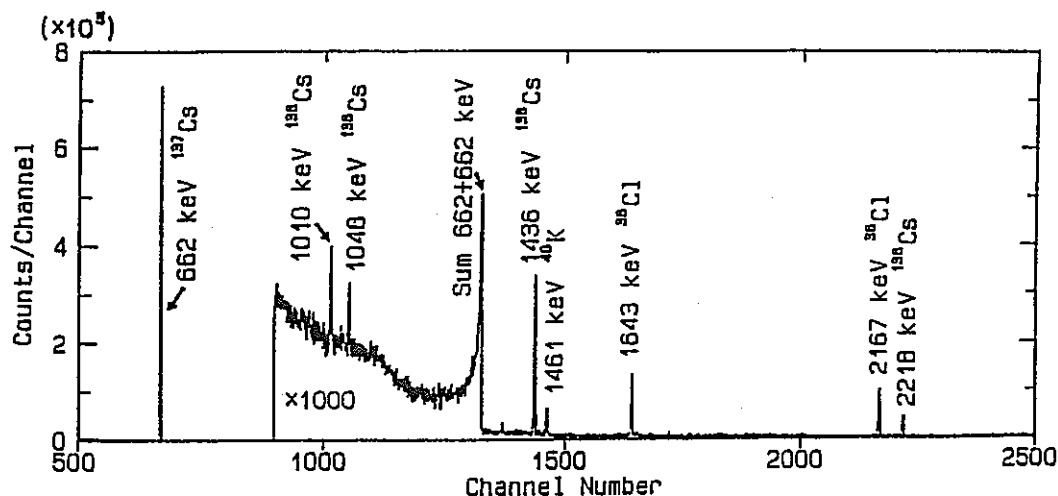


Fig. 1 Gamma-ray spectrum obtained from neutron-irradiated and chemically purified  $^{137}\text{Cs}$  sample in 10-min measurement

Figure 2 shows the decay curves of the  $^{138}\text{Cs}$   $\gamma$  lines. Table 1 shows half-life values of  $^{138}\text{Cs}$  determined from those  $\gamma$  lines in each of four runs. The weighted mean is  $33.1 \pm 0.6$  min. This value is in good agree-

ment with the experimental one reported by Ehrenberg & Amiel<sup>(8)</sup>. This result indicates that the  $^{138}\text{Cs}$   $\gamma$  lines are free from contamination of other radioactivities.

Table 1 Experimental half-life of  $^{138}\text{Cs}$

Run No.	Half-life (min)		
	1,010 keV	1,436 keV	2,218 keV
1	$34.4 \pm 5.2$	$32.9 \pm 1.3$	$34.2 \pm 3.4$
2	$33.1 \pm 5.3$	$33.4 \pm 2.1$	$30.1 \pm 9.3$
3	$37.1 \pm 4.9$	$33.7 \pm 1.1$	$26.5 \pm 2.5$
4	$32.5 \pm 3.9$	$33.8 \pm 1.1$	$32.1 \pm 3.4$
	$34.1 \pm 2.4$	$33.5 \pm 0.6$	$30.0 \pm 1.7$

Weighted mean =  $33.1 \pm 0.6$  (min)

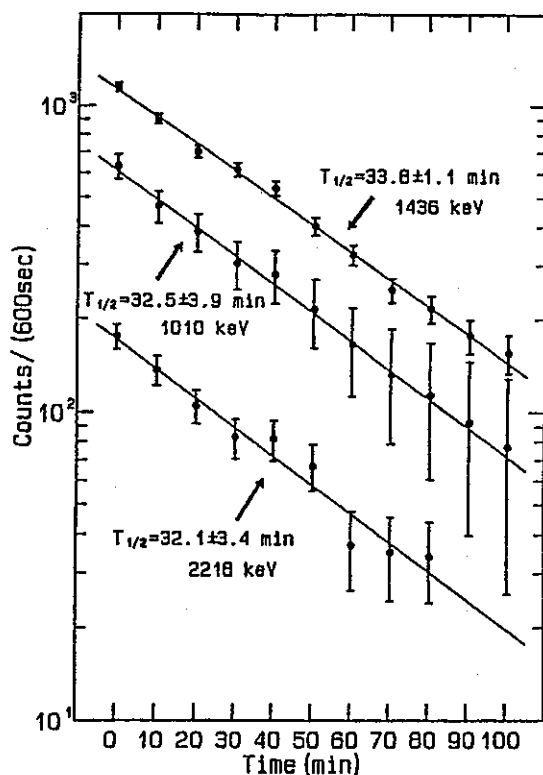


Fig. 2 Decay curves of  $^{138}\text{Cs}$   $\gamma$ -rays obtained in Run 4

The cross section was deduced from the intensity ratio between each of the  $^{138}\text{Cs}$   $\gamma$ -rays mentioned above and the 662 keV  $\gamma$ -ray of  $^{137}\text{Cs}$ . The relation between the intensity ratio and the capture cross section can be expressed by

$$\sigma = \frac{\lambda_1 f N_2 b_1 \epsilon_1}{\phi N_1 b_2 \epsilon_2} F,$$

$$\text{where } F = \frac{\lambda_2(t_e - t_s)}{e^{-\lambda_2 t_s} - e^{-\lambda_2 t_e}} \cdot \frac{1}{1 - e^{-\lambda_2 T_{IR}}}.$$

Symbols are defined as follows:

$\phi$ : Thermal neutron flux

$N$ : Peak counts of  $\gamma$ -ray in period between  $t_s$  and  $t_e$

$b$ :  $\gamma$ -ray emission probability per decay

- $\epsilon$ : Detection efficiency of  $\gamma$ -ray  
 $f$ : Correction factor of sum coincidence loss for  $^{138}\text{Cs}$   $\gamma$ -rays  
 $\lambda$ : Decay constant  
 $t$ : Time from end of neutron irradiation.

The subscripts 1 and 2 refer to  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{138}\text{Cs}$ , respectively;  $T_{IR}$  is the period of neutron irradiation, and  $t_s$  and  $t_e$  are times at the start and the end of measurement, respectively. It is not necessary to make a correction for dead time because this effect cancels out by taking the ratio of  $N_2$  to  $N_1$ .

The nuclear data<sup>(8)-(10)</sup> used for obtaining  $b$  and  $\lambda$  are summarized in Table 2. The second column in Table 3 shows the thermal neutron flux  $\phi$  determined from  $^{60}\text{Co}$  radioactivities produced in the flux monitors; a value of 37.18 barn<sup>(11)</sup> was taken for the  $^{60}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$  reaction. The counting efficiencies  $\epsilon$  of the Ge detector were measured with

a calibrated multi- $\gamma$  source containing ten radioisotopes, supplied by Laboratoire de Metrologie des Rayonnements Ionisants (Saclay), and with a  $^{60}\text{Co}$  source. The correction factors  $f$  of sum coincidence loss were obtained in the manner described in Ref. (2) for  $\gamma$ -rays of the standard source as well as for those of  $^{138}\text{Cs}$ . The uncertainties in the counting efficiencies were estimated as 5% with 95% confidence level in addition to the statistical uncertainties.

Table 2 Nuclear data<sup>(10)</sup> used in present work

Nuclide	$T_{1/2}$	$E_\gamma$ (MeV)	$\gamma$ -intensity
$^{60}\text{Co}$	5.271 yr	1.173	1.00
		1.332	1.00
$^{137}\text{Cs}$	30.17 yr	0.662	0.85
$^{138}\text{Cs}$	33.4 min <sup>(8)</sup>	1.010	0.284
		1.436	0.750
		2.218	0.161

Table 3 Experimental results of thermal neutron flux and cross section

Run No.	Neutron flux ( $10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ )	Cross section (barn)		
		1,010 keV	1,436 keV	2,218 keV
1	$3.7 \pm 0.2$	$0.286 \pm 0.023$	$0.251 \pm 0.014$	$0.271 \pm 0.019$
2	$3.8 \pm 0.2$	$0.282 \pm 0.026$	$0.258 \pm 0.016$	$0.235 \pm 0.033$
3	$3.9 \pm 0.1$	$0.264 \pm 0.020$	$0.248 \pm 0.014$	$0.205 \pm 0.015$
4	$3.8 \pm 0.1$	$0.277 \pm 0.021$	$0.250 \pm 0.014$	$0.223 \pm 0.016$
		$0.276 \pm 0.017$	$0.250 \pm 0.013$	$0.230 \pm 0.014$

Weighted mean =  $0.250 \pm 0.013$  (barn)

Table 3 shows the measured cross section for each  $^{138}\text{Cs}$   $\gamma$ -ray obtained from four runs. The error of the cross section does not include the errors in  $b_1$ ,  $b_2$ ,  $\lambda_1$  and  $\lambda_2$ . A weighted mean of  $0.250 \pm 0.013$  barn has been obtained as the thermal neutron cross section of the  $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$  reaction.

### 3. Conclusion

The thermal neutron cross section of the  $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$  reaction was measured in order to supply a basic data for the nuclear transmutation research of radioactive waste. Irradiated  $^{137}\text{Cs}$  samples were chemically purified and their  $\gamma$ -ray spectra were measured with a HPGe detector. From the intensity ratio between the  $^{138}\text{Cs}$   $\gamma$ -rays and the  $^{137}\text{Cs}$   $\gamma$ -ray,

the capture cross section was deduced to be  $0.250 \pm 0.013$  barn, which is 2.3 times larger than the one measured by Stuepegia<sup>(4)</sup>.

The transmutation of  $^{137}\text{Cs}$  by thermal neutrons has been considered to be difficult because of its small capture cross section. It is necessary to reinvestigate the possibility of transmuting  $^{137}\text{Cs}$  on the basis of this data.

The authors would like to express their sincere thanks to Mr. N. Sasao and Dr. K. Konashi of Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corp. and Dr. H. Umezawa of Japan Atomic Energy Research Institute for their interest and continuous encouragement in this work. The cooperation of the JRR-4

reactor crew is appreciated. The  $\gamma$ -ray measurement by Mr. K. Kotani of Nagoya University was also helpful.

—REFERENCES—

- (1) De FELICE, P., OCONE, R., RANDI, A., TUYN, J., DELTENRE, R., ROUBAUD, G.: *Nucl. Instrum. Methods*, 212, 359 (1983).
- (2) KRENCIGLOWA, E.M., HARMS, A.A.: *ibid.*, 185, 393 (1981).
- (3) TAUBE, M.: *Nucl. Sci. Eng.*, 61, 212 (1976).
- (4) STUPEGIA, D.C.: *J. Nucl. Energy*, A12, 16 (1960).
- (5) WESTCOTT, C.H., WALKER, W.H., ALEXANDER, T.K.: *Proc. 2nd Geneva Conf.*, Vol. 16, 70 (1958).
- (6) MATSUOKA, M., SEKINE, T.: *JAERI-M* 9552, (in Japanese), (1981).
- (7) MIMURA, H., YAMAGISHI, I., AKIHA, K.: *Nihon Kagaku Kaishi*, (in Japanese), 3, 621 (1989).
- (8) EHRENBERG, B., AMIEL, S.: *Phys. Rev.*, C6, 618 (1972).
- (9) CARLSON, G.H., TALBERT, W.L., MCCONNELL, J.R.: *ibid.*, C9, 283 (1974).
- (10) LEDERER, C.M., SHIRLEY, V.S.: *Table of Isotopes*, (7th ed.), (1978), John Wiley & Son.
- (11) MUGHABGHAB, S.F., DIVADEENAM, M., HOLDEN, N.E.: *Neutron Cross Sections*, Vol. I, Part A, (1981), Academic Press.
- (12) DEBERTIN, K., SCHOTZIG, U.: *Nucl. Instrum. Methods*, 158, 471 (1979).

ICENES'91 Montray, June23-28 (1991)

## NEW TRANSMUTATION METHOD BY USING MOVING TARGET

K. Konashi and N. Sasao

Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation  
Tokai, Ibaraki 319-11, Japan

P. Louvet \*

Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay  
91191-Gif-Sur-Yvette Cedex, France

I. Sato

National Laboratory for High Energy Physics  
Oho, Tsukuba 305, Japan

Y. Hirao

National Institute of Radiological Science  
Anakawa, Chiba 260, Japan

\*Work performed during one year stay at PNC, Tokai.

### ABSTRACT

The transmutation of fission products by resonance capture is shown to be possible by using a moving concept target. Instead of controlling the neutron energy to irradiate the nuclei, the nuclei to be transmuted are accelerated toward a neutron thermal field. The transmutation rate of  $^{99}\text{Tc}$  is then reduced from  $2.1 \cdot 10^5$  years to 14 hours. Possible experimental devices to realize this moving target and the required confinement time are described and studied briefly. They include a device using microparticles of fission products, as well as a concept derived from magnetic fusion. Both are compared with a different concept issued from inertial fusion.

### I. INTRODUCTION

Contents in high-level radioactive wastes generated after reprocessing spent nuclear fuels from nuclear reactors are various kinds of long-lived nuclides, which include fission products (FP) and transuranic actinides (TRU). The currently available method for final disposal of such high-level radioactive wastes is vitrified them under rigid control, to store them in monitored spots, until the radiation level decays to allowable levels and to dispose them underground. The safety of high radioactive wastes containing long-lived radionuclides, however, must be ensured for a long period, and it entails difficult problems of selection

and maintenance of storage sites as the volume of wastes increases.

If it is possible to transmute the long-lived radioactive nuclides into those with shorter life or stable ones, the period over which the radioactive wastes are stored can be reduced and so also the need for finding storage site, offering significant advantages in terms of safety and economy involved in the waste disposal process. Since TRU has a potential of fission, TRU can be used in nuclear reactor as a fuel.<sup>1,2</sup> In this paper, the transmutation of long-lived fission products is discussed.

### II. TRANSMUTATION BY RESONANCE NEUTRON CAPTURE

Among the transmutation processes utilizing nuclear reactions, the most common one is to consider the irradiation of radioactive nuclides with neutrons.<sup>3-6</sup> The irradiated neutrons are absorbed in nuclei, transmuting the nuclei into those with shorter lifetime and more stable ones. Possible candidate neutrons that can be utilized for the transmutation include low-energy neutrons such as thermal neutrons obtained from nuclear reactors. The absorption of low-energy neutrons into nuclei occurs mainly through a radiative capture reaction  $[(n, \gamma) \text{ reaction}]$ .

This reaction presents an acute resonance, as it can be seen from a Fig. 1 that shows the neutron



capture cross section for  $^{99}\text{Tc}$ <sup>7</sup>. Such a resonance phenomenon can be explained by the formation of compound nuclei. Previously the use of a resonance phenomenon has been pointed out in the case of the transmutation by a photonuclear reaction, i.e.  $(\gamma, n)$  reaction<sup>8</sup>, which is the inverse reaction of the  $(n, \gamma)$  reaction.

Some of the capture cross section at the resonance level present large values, and the greatest is the capture cross section, the more likely the capture reaction will occur for the neutron owing the resonance energy. However, the energy of neutrons produced in nuclear reactors is continuously distributed and hence it is difficult to efficiently obtain a neutron flux with the specific energy that agrees with the resonance level of the nuclei.

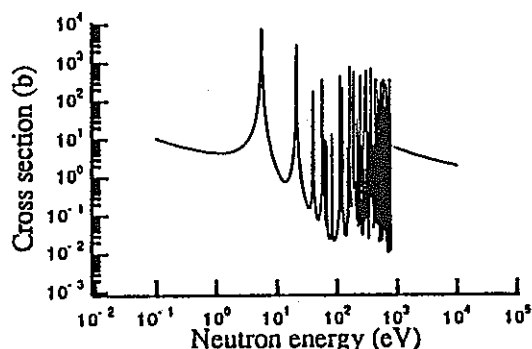


Fig. 1 Neutron Capture Cross Section of  $^{99}\text{Tc}$ (12).

The one of the object of the present paper is therefore to provide a method which can trigger a resonance reaction even with thermal neutrons that do not have an energy equal to a particular resonance level, and thereby carry out the nuclear transmutation of fission products. It is proposed that instead of controlling the energy of neutrons to irradiate the nuclei, the nuclei are accelerated and are introduced into a neutron field to occur the resonance reaction.

The concept is illustrated in Fig. 2. The ordinary neutron capture cross section (e.g. Fig. 1) is measured with a target in the rest frame as shown in the upper part of Fig. 2. This neutron capture is also expressed in the neutron rest frame in the lower part of Fig. 2. The resonance energy of the neutron capture in the target rest frame,  $E_{\text{res}}$ , is converted to that in the neutron rest frame,  $E'_{\text{res}}$ , by

$$E'_{\text{res}} = \frac{M}{m} E_{\text{res}}, \quad (1)$$

where  $m$  is neutron mass and  $M$  is the mass of the target nuclide. In the present moving target method, the radioactive nuclides are accelerated to the resonance energy determined by the Eq. (1) and are collided with neutrons.

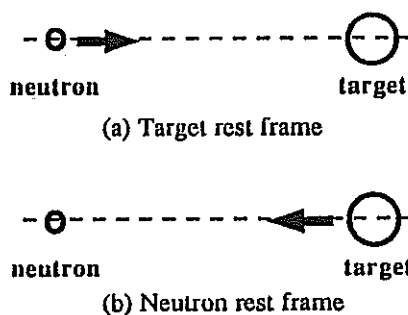


Fig. 2 Concept of Transmutation Method.

### III. CALCULATION OF TRANSMUTATION RATE

The cross section of a neutron resonance capture,  $\sigma(v_r)$ , is written by the Breit-Wigner formula for slow neutron (s-wave),

$$\sigma(v_r) = \frac{\pi g \lambda^2 \Gamma_n \Gamma_\gamma}{[(E_c - E_{\text{res}})^2 + (\Gamma/2)^2]}, \quad (2)$$

$$E_c = \frac{1}{2} \mu v_r^2, \quad (3)$$

where  $\lambda$  is the de Broglie wavelength and  $\mu$  is the reduced mass. The  $E_c$  and  $E_{\text{res}}$  are respectively the neutron energy and the resonance energy in the center of mass frame. The  $\Gamma_n$ ,  $\Gamma_\gamma$  and  $\Gamma$  denote the neutron, radiative and total widths, respectively. The  $g$  is the statistical weight factor for angular momentum ;

$$g = \frac{2I+1}{2(2J+1)}, \quad (4)$$

where  $J$  is total spin of the final state and  $I$  is that of the target nucleus. Major long-lived fission products are summarized in Table 1 with the fission yields and the cross sections of the thermal neutron capture reaction. The cross section of neutron resonance capture are available for only three nuclides, i.e.  $^{99}\text{Tc}$ <sup>7</sup>,  $^{129}\text{I}$ <sup>7</sup>, and  $^{107}\text{Pd}$ <sup>9</sup>. Table 2 shows the resonance parameters of these nuclides.

Table 1 Major Fission Products

nuclide	life (year)	fission yield of $^{235}\text{U}$ (%)	capture cross section of thermal neutron
$^{85}\text{Kr}$	11	0.3	1.7b
$^{90}\text{Sr}$	29	5.9	14mb
$^{93}\text{Zr}$	$1.5 \times 10^6$	6.4	1.3-4b
$^{99}\text{Tc}$	$2.1 \times 10^5$	6.1	20b
$^{107}\text{Pd}$	$6.5 \times 10^6$	0.2	1.8b
$^{129}\text{I}$	$1.6 \times 10^7$	0.9	27b
$^{135}\text{Cs}$	$2.3 \times 10^6$	6.7	8.7b
$^{137}\text{Cs}$	30	6.2	0.25b

Table 2 Resonance Parameters of Radioactive Fission Products

	$E_{res}$ (eV)	$\Gamma_n$ (meV)	$\Gamma_\gamma$ (meV)	$\Gamma$ (meV)	spin I	spin J
$^{99}\text{Tc}$	5.6	5.00	134.0	139.0	4.5	4.0
$^{129}\text{I}$	148.	67.0	100.0	167.0	3.5	3.5
$^{107}\text{Pd}$	44.56	35.3*	125.0	160.3	-	-

\*  $2g\Gamma_n$ 

In this case, the transmutation rate is expressed by

$$\lambda_{tr} = \int v_r \sigma(v_r) p(E_n) dE_n, \quad (5)$$

where  $E_n$  is the neutron energy. The  $\sigma(v_r)$  is the cross section at the relative velocity  $v_r$ . The  $p(E_n)$  is the neutron density with an energy of  $E_n$ .

A thermal neutron field is considered in present calculations of the transmutation rate by the Eq. (5). When neutrons have a Maxwell-Boltzmann distribution, the  $p(E_n)$  is expressed by,

$$p(E_n) = \frac{\phi_n}{\int \frac{2}{\pi^{1/2}} E_n^{1/2} \exp(-E_n/kT) dE_n}, \quad (6)$$

where  $\phi_n$  denotes the thermal neutron flux. The thermal neutron flux in commercial light water reactors is  $10^{13}$  to  $10^{14} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ . Neutron fluxes around  $10^{15} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$  are available in high flux reactors, e.g. the high flux reactor at Institute Laue Langevin (ILL) <sup>10</sup> and the high flux isotope reactor (HFIR) <sup>11</sup>. The possibility of constructing high flux reactor has previously been considered. <sup>6,12,13</sup> There are several designs for high flux reactors with fluxes of  $10^{16} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ . <sup>6,12</sup> Some neutron source with the flux of  $10^{17} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$  is proposed by using  $\mu\text{CF}$  (muon catalyzed fusion) reaction <sup>13</sup>.

Figure 3 shows calculated transmutation rates as a function of neutron flux. Calculated transmutation rates for moving targets are compared with that for rest targets in Table 3. In the calculations, a neutron temperature of 300 K was assumed. The  $1/v$  dependency of capture cross section of the thermal neutrons was also assumed in the calculations for rest targets. For example, the transmutation rate of  $^{99}\text{Tc}$  with a kinetic energy of 556 eV is  $1.4 \times 10^{-5} \text{ sec}^{-1}$ , which is 800 times faster than that of targets at rest.

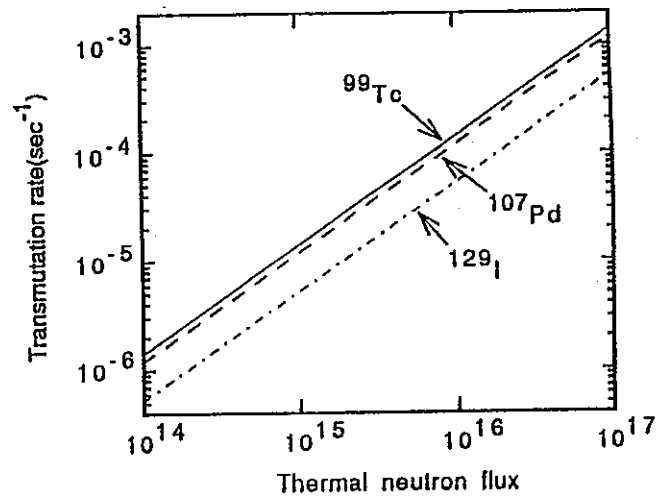


Fig. 3 Calculated Transmutation Rates

Table 3 Results of Calculations of Transmutation Rates

	Moving Target		Rest Target	
	$\lambda_{eff}$ ( $\text{sec}^{-1}$ )	$\tau_{eff}$ (hr)	$\lambda_{eff}$ ( $\text{sec}^{-1}$ )	$\tau_{eff}$ (year)
$^{99}\text{Tc}$	$1.4 \times 10^{-5}$	14	$1.8 \times 10^{-8}$	1.3
$^{129}\text{I}$	$5.3 \times 10^{-6}$	37	$2.4 \times 10^{-8}$	0.93
$^{107}\text{Pd}$	$1.2 \times 10^{-5}$	16	$1.6 \times 10^{-9}$	14

The transmutation rates were also calculated for varying target energies. An example of calculation results is shown in Fig. 4. The main reason for the broadening of the transmutation rate peak in Fig. 4 lies in the fact that the collision energy is shifted from the resonance energy by the neutron thermal motion.

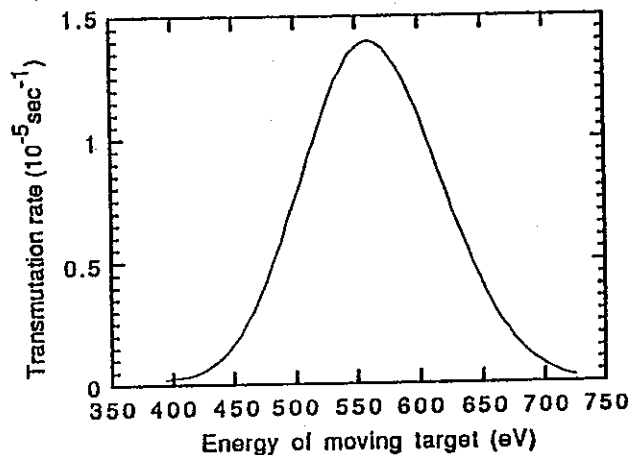


Fig. 4 Transmutation Rates for Varying Target Energy

According to the calculation results, it appears that very high transmutation rates are possible by the combination of the thermal neutron field and the moving target. The high transmutation rate gives the following advantages:

- (1) The high transmutation rate is important not only for shortening the management period of radioactive wastes, but also for reducing the target amount. A small amount of target gives rise to risk reduction eluding the operation of the transmutation.
- (2) The high transmutation rate also gives an advantage in selecting the structure material of the transmutation device, that is, if the transmutation rate is high enough, as compared with the accumulation of irradiation which damage the structure material.
- (3) Another important feature of this proposed transmutation method is that the energy of the moving target is small so that the moving target does not produce any activity. This is the advantage of the present method in comparison with the other methods which use high energy particles (protons or electrons).

#### IV. PROPOSED TRANSMUTATION DEVICES

In this section, the technical feasibility of the present method is discussed from a practical point of view. According to the calculation results, it appears that the very high transmutation rate is possible in combination with the thermal neutron field and with the moving target. The most exotic part of the present method is the moving target. In this section, some possibilities of generating moving targets are discussed. As an example, we will deal here with  $^{99}\text{Tc}$ .

##### Main requirements

Considering a system of a nuclear power reactor and a transmutation device, the target amount is determined by the equilibrium between a generation rate of the radioactive nuclide and a transmutation rate. The mass balance equation of the radioactive nuclide is expressed by

$$\frac{dN}{dt} = S - \lambda_{\text{eff}} N, \quad (7)$$

where  $N$  is the number of target nucleus and  $S$  is a source term of the target fission product. The  $S$  is calculated by

$$S = \frac{h \cdot Y \cdot R}{\eta \cdot 1.6 \times 10^{-19} \cdot E_{\text{fiss}}}, \quad (8)$$

where  $h$  is the duty factor of nuclear power reactors. The  $Y$  is fission yield of a radioactive nuclide,  $R$  the reactor power,  $\eta$  the efficiency of the energy conversion from thermal to electric, and  $E_{\text{fiss}}$  the energy released by a fission. When the system reaches an equilibrium state ( $dN/dt = 0$ ),  $N$  is calculated by Eqs. (7) and (8). If we set  $h = 0.75$ ,  $Y =$

$0.06$ ,  $R = 1 \text{ GWe}$ ,  $\eta = 0.33$  and  $E_{\text{fiss}} = 200 \text{ MeV}$ , the value of  $N$  is calculated to be  $3.0 \times 10^{23}$  (50g or 0.5mol) for  $^{99}\text{Tc}$  with  $\lambda_{\text{eff}}$  of  $1.4 \times 10^{-5} \text{ sec}^{-1}$ . The main question is whether such an amount of target can be kept moving under the above conditions, i. e. with the constant kinetic energy of 556 eV during a period of 14 hours for  $^{99}\text{Tc}$ .

Applications of several current technologies are tried to be discussed as follows. Rotation of a solid target with the above kinetic energy is difficult because the centrifugal force in the rotating rigid body is in excess of the tensile of known materials. Use of a plasma makes possible to accelerate the target to above the needed kinetic energy.<sup>14</sup> However, both life time and density are limited in the case of the plasma. Considering an accumulated ion ring, the requirements between the kinetic energy and the life time could be met. The main problem in the case of ion rings is in the fact that the current of the ion ring is limited by the space charge effect.<sup>15</sup> Each current technology has deficiencies that counterbalance its potential advantages. Above preliminary analyses, it appears that the development of new techniques for the moving target is necessary.

##### Microparticle device

As the space-charge limit for the storage a non neutralized 556 eV beam energy is very small (less than 1 A/cm<sup>2</sup> with usual devices) and as the instantaneous current storage is very large (some megaamperes), then some other tries must be performed to overcome this difficulty. Here, the use of ionized particles beams or cluster beams is proposed. The idea is to reduce the charge to mass ratio, so that the current to be stored is smaller, but as a consequence the inertial confinement forces increase with the mass of the particles.

##### 1. Required characteristics

The charge  $q$  to mass ratio is  $0.97 \times 10^6$  for monocharged technetium 99 ions. The aim is now to use particles with  $q/M$  around  $10^2$  to  $10^3 \text{ J/C}$ , achievable with particle sizes around 0.01 to 0.03  $\mu\text{m}$ , as for a spherical microparticle the charge to mass ratio is given by

$$q(r) = 4 \pi \epsilon_0 \eta_{\text{sph}} G E_s r^2 \quad (9)$$

where  $E_s$  denotes the charging electrostatic field,  $G$  the experimental efficiency,  $r$  the radius of the particle to be charged and  $\eta_{\text{sph}}$  depends on the charging geometry.

The maximum electric field  $E_s$  on the surface which can be achieved is obtained by equalling the electrostatic pressure and the tensile strength  $\sigma_m$  of the material<sup>16</sup>, so that

$$E_s = \left( \frac{2\sigma_m}{\epsilon_0} \right)^{1/2} \quad (10)$$

and the maximum possible value for  $E_s$  is around  $10^{10}$  V/m. The main parameters of the particle beam are recalled in Table 4. Then, the radius of gyration  $p_L$  of such particles in a magnetic field  $B$ , perpendicular to their velocity  $v$  is given by the following expression

$$p_L = \frac{Mv}{qB} \quad (11)$$

$p_L$  is of the order of 3.4 m for  $B = 10$  teslas. For  $0.14$  m<sup>2</sup> cross section, the volume and the particle density are respectively 3 m<sup>3</sup> and  $2 \cdot 10^{16}$  m<sup>-3</sup>. The magnetic stored energy will be around 120 MJ, this value being quite under the upper limit of nowadays possibilities in the building of superconducting magnets. The corresponding needed potential for the acceleration is at least 550 keV, and the particle energy will be 4.39 GeV.

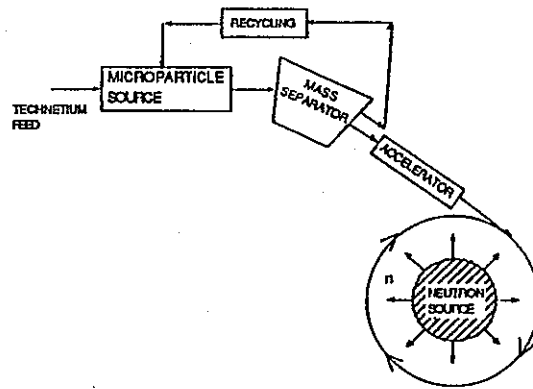
Table 4 Parameters of microparticle device

<u>MICROPARTICLE SOURCE</u>		
CONTACT ELECTROSTATIC CHARGING ELECTROSTATIC ACCELERATOR		
•Particle Radius	0.01µm	0.03µm
•Number of Atoms in Particle	$2.39 \times 10^5$	$7.91 \times 10^6$
•Charge number	293	7911
•Electric Field on Surface	$4.2 \times 10^9$ V/m	$1.265 \times 10^{10}$ V/m
•Acceleration Voltage	550kV	550kV
•Total Current	0.682A	0.682A
<u>STORAGE</u>		
•Total Amount of Target	0.51 mole	
•Confinement Time	14hr	
•Thickness of Target	20cm	
•Macron Density	$3.4 \times 10^{11}$ cm <sup>-3</sup> (0.01µm)	$1.3 \times 10^{16}$ cm <sup>-3</sup> (0.03µm)
•Radius of Gyration	5.6m(for 6T) 3.4m(for 10T)	
•Length of Target Region	42.3cm(for 6T) 70.5cm(for 10T)	
<u>NEUTRON FIELD</u>		
REACTOR or ACCELERATOR		
•Flux	$10^{15}$ cm <sup>-2</sup> sec <sup>-1</sup>	
•Energy	thermal	

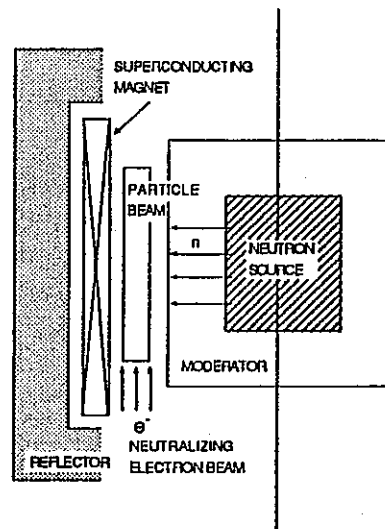
## 2. Feasibility

The proposed device (Fig. 5) must be fed with very thin powder, around 0.03 µm, which can be prepared by plasma or laser methods<sup>17</sup>. Due to the size distribution some selection of correct  $q/m$  ratio is needed as well as recycling. Charging the particles can be achieved in two different ways : the first one the macron source<sup>18</sup> involves contact electrostatic charging (Fig. 6). The second one<sup>19</sup> uses levitation

methods in an RF field. Such sources operate typically at small current density as the charge is usually very high. Use of a source voltage around 10 to 15 kV leads to a current density around 1 mA/cm<sup>2</sup>, following the geometry and a total section around 0.1 m<sup>2</sup>, fitted with the section of the device. The acceleration of the particles can be achieved by Van der Graaf accelerator or RF liner.



(a) total system



(b) reaction vessel

Fig. 5 Microparticle Device

The last but the most critical problem is the storage: the magnetic confinement as well as the neutralization by an electron beam is needed, as it can be deduced from preliminary simple calculations<sup>15</sup>. Confinement will be difficult as the component of the magnetic field which allows the storage is not a confinement one (usually this solution like a spheromak one for plasma is unstable), so that some poloidal component of the field, coaxial with the beam may be necessary, like in stellarators and in tokamaks. Neutralization appears to be a difficult task in itself as the

electrons will acquire transverse velocities due to the imperfection of any real system. As in our configuration of magnetic field the electrons have a very small radius of gyration as compared to the ions ones, it is only possible to use transverse neutralization. The other possibilities are to generate a plasma of particles or to neutralize by an equal number of injected beams of same masses and equal charges of opposite values (this is easy as the bias has just to be reversed in the source).

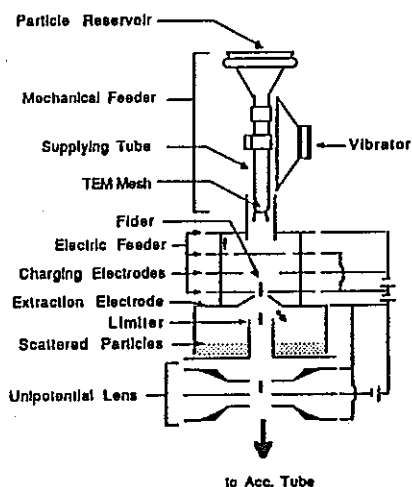


Fig. 6 Microparticle Source<sup>18</sup>

The residual vacuum in the storage ring has to be very good, as the life time of the particles relative to the background gas is about 30 minutes at a pressure of  $10^{-10}$  Torr. This value was calculated for elastic collision between the microparticle and the background gas. The pressure may be difficult to reach in the case that outgassing from the microparticle surface becomes significant. Also, the charge transfer process and microparticle-microparticle collision seem to be important, but were not discussed here.

There are a lot of reasons to increase the densities to get better confinement parameters. The values of the density and size of particles are the result of a compromise between the neutron absorption and the densities. The main other losses will be Bremsstrahlung losses as cyclotron radiation losses and light emission seem to be negligible. As a consequence, a power of some tens of megawatts seems necessary to maintain the rotation. This can be done by using some cyclotron acceleration effect.

As this kind of device has not been studied intensively, neither in its parts, nor in its totality, large uncertainties remain. Thus, some further studies are necessary to fully evaluate this device.

#### Magnetized plasma solutions

As to match the time scales between transmutation and life-time of the plasma, it is better to confine magnetically the plasma. Two kinds of solutions can be achieved:

- "closed" machines like torus
- "open" machines like mirror devices or straight columns.

Usually, in such devices, only heating is easily achievable, i.e., it is very difficult to give directed mean velocities to a plasma. So, for our purpose it means that we will try to heat the plasma at a temperature of 556 eV.

#### 1. Torus device

It appears to be the best known and the most efficient configuration at the moment, especially the tokamak one. The current created in the plasma tends to generate an induced drift charge separation. So it is needed to twist the configuration but without closing the current lines.

Some performances recalled in the table 1 shows that the temperature can be achieved easily, as well as a quite high density. Presently, the best confinement times has been obtained with these devices. Our device has to be designed using scaling laws: this problem is not yet fully solved and an extensive review<sup>20</sup> is given for the L mode regime. The confinement time of energy  $T_E$  is roughly proportional to the electronic density and to some exponent of the "small" radius of the torus  $a$  and of the main radius  $R$ :

$$T_E \propto n_e a^\alpha R^\beta \quad (12)$$

where  $\alpha \sim 1$ ,  $\beta \sim 2$ . The influence of the temperature, the magnetic field and the aspect ratio of the torus are less clear and still subjected to controversies. As an example, the aspect ratio of the torus is only varied from 2.5 to 4 leading to a large uncertainty in the dependence on this parameter. The dependence in  $M_{eff}^{1/2}$ , where  $M_{eff}$  is the effective molar mass of the plasma, defined as the mean molar mass of its main components and of its impurities, has been incorporated *a posteriori*, using the isotopic effect between  $H^+$  and  $D^+$ . But, the dependence is not clear as no effects are found in some experiments<sup>20</sup>. Furthermore, the mass domain which is considered there is far from ours, as  $M_{eff} = 0.099$  kg. It must be also noticed that the form of equation depends on the parameters, their number and the heating procedures used.

Anyway, it seems that the biggest is the device, the longest is the confinement time. Typical order of magnitude of recent performances, obtained with large-sized tokamaks JT60, JET, and TFTR is around some seconds. Then, upgraded tokamaks could reach confinement times of some hours with an energy of 556 eV, especially if the scaling law in the mean molar mass is valid.

A difficulty for these "closed" geometries is to achieve high efficiency sources of metallic elements, as to our knowledge this kind of devices is only operating with sources using gaseous elements such as  $H_2$ , He,  $D_2$ , Ar. Some ideas like sending technetium pellets or using neutral beam injection might be used. This kind of metallic plasma is radiating a huge power as the effective charge number of technetium is around 20. Thus some important heating will be necessary to sustain the plasma. Some common possible heating solutions are:

- Ohmic heating
- Ion cyclotron resonance
- Electron cyclotron resonance
- Neutral beam heating injection at high energy.

Poor accessibility of such devices are well-known and this may become a major problem for technetium 99 as the radioactive safety has to be ensured and the cleaning of the wall may be a problem.

## 2. Mirror devices

The "open" configurations have losses at both ends of the device and are usually unstable as the gradient of density is in each point opposite to the centrifugal force. So, the magnetic field has to be modified in order to obtain a minimum value of the magnetic field on the axis by using magnets called anchors. Presently, only few mirrors devices are operating in the world as the large demonstration facility program MFTF has been cancelled some years ago. The performances are one order of magnitude smaller at least than the tokamak solution, due partly to a much lesser effort for this solution.

## V. DISCUSSION

From the previous chapter, it can be deduced that doing a moving target for transmutation is a tough task as the proposed solutions, although they seem possible, can only be achieved in a long term: the tokamak solution requires performances comparable to magnetic fusion and micro-particle solution development studies. At the present time, plasma solution allows a high enough density around  $10^{14} \text{ cm}^{-3}$  but a too small confinement time, while the second one allows a much longer confinement time but a smaller density as it uses storage rings. Another possibility would be to use higher reactors neutrons fluxes and transmutation rates as to relax the constraints on the moving target, in particular the long confinement time needed (14 hours).

For example, use of cold neutron gives high transmutation rate as follows. The neutron density in Eq. (6) is inversely proportional to its velocity for a constant neutron flux. The broadening width of the transmutation rate peak in Fig. 4 is also proportional to the neutron velocity. Consequently, the peak transmutation rate is linearly related to  $1/T$  and so the change in the neutron temperature from 300 K to 3 K increases the peak transmutation rate by a factor of 100. The use of cold neutron is a possibility for

relaxing the constraints for the confinement time and the number of targets nuclides for storage in the moving target concept.

Apart from the moving target study, it is worthwhile to note that another interesting method, but quite different approach can be derived: increase the neutron flux drastically, even if the collision cross section is decreasing.

The proposed device (Fig. 7) looks like a laser inertial fusion device<sup>21</sup>: the solution is to make a shell composed of an outer ablating shield, a pusher of radioactive nuclides both to induce compression and to be transmuted, and a D-D or D-T core, which produces neutrons (14.1 MeV for the D-T fusion reaction). The geometry is such as the number of neutrons produced by shots must be equal at least to the number of radioactive nuclides to transmute. Eventually some other intermediate layers, not represented on the figure, to reflect and/or slow down neutrons may be required to increase efficiency.

Thus, high densities for radioactive nuclide shell, as well as high neutron fluxes can be achieved. As the pellet must not be too large (around 0.5 to 1 mm) to avoid Rayleigh-Taylor instabilities, the interaction region may be now too small. So, both Deuterium-Tritium core and the radioactive nuclide shell have to be compressed: the first one to produce neutrons and the second one to absorb them.

A simple calculation shows that if the D-T and the the pusher of radioactive nuclides are equally compressed with a ratio  $K$  around 1000, then, the size of the pellet is decreased by  $K^{1/3}$  and the absorption is increased by a factor  $K^{2/3}$ , as it is proportional in a crude 1-D approximation to the product of the density by the thickness of the radioactive nuclides.

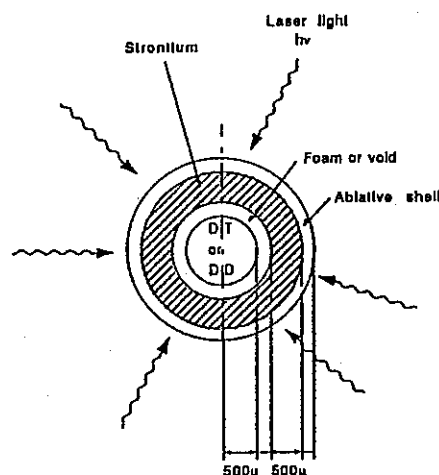


Fig. 7 Inertial Transmutation Target

Some other difficulty arises: the transient nature of the phenomena will also reduce the efficiency as the expansion of the plasma is quite fast (some nanoseconds) as the temperature of such plasmas has a value around 1 keV. Furthermore, the slowed neutrons must be captured before escaping the interaction zone during the confinement time. Another mechanism involving the (n,2n) reaction and fast neutrons, seems less sensitive to this transient effect.

In order to check the effectiveness of the inertial transmutation target, the transmutation of  $^{90}\text{Sr}$  has been examined. Since the  $^{90}\text{Sr}$  has very small cross section of thermal neutron capture of 14mb, the (n,2n) reaction with the cross section of 1.6b was considered for the transmutation of  $^{90}\text{Sr}$ . In the case of the inertial transmutation target in Fig.7, it seems that a transmutation efficiency of about 14% for 14MeV neutron can be achieved quite easily by compressing  $^{90}\text{Sr}$  to high densities. This value, as well as the high compression factor must be reached for the case of inertial fusion.

The production rate of  $^{90}\text{Sr}$  from 1GWe nuclear reactor is calculated to be  $4.6 \cdot 10^{18} \text{ sec}^{-1}$  by Eq. (8) in the section IV. The same transmutation rate of  $4.6 \cdot 10^{18} \text{ sec}^{-1}$  at the same rate as previously described requires the operation at 33 Hz by using about  $10^{18}$  neutrons per shot. This repetition rate is quite high as compared with the present performances of inertial fusion lasers.

Thus, it seems possible to use inertial fusion techniques (laser, heavy ions...), as the orders of magnitude that must be reached are not very different than those which are needed for fusion.

## VI. CONCLUSIONS

The best concept in view of technetium transmutation remains probably the irradiation by thermal neutrons of a plasma target or a neutralized ion beam, composed of ions of technetium in a toroidal geometry; the ions may be single atoms, clusters or particles.

Although this concept for technetium transmutation by neutrons is promising, the device to be retained is not easy to choose as every solution has its own advantages and inconvenients.

An interesting alternative at high neutron flux is to deal with laser inertial effects.

## ACKNOWLEDGMENTS

The authors wish to express their indebtedness to Dr. H. Takahashi in Brookhaven National Laboratory for his valuable discussions. They are also grateful to Dr. H. Takashita, Dr. M. Nomura and Mr. K. Imanishi in PNC for their helps in the transmutation calculations. Mr. Y. Nakamura is thanked for his help in the preparation of the manuscript.

## REFERENCES

1. L. KOCH, "Formation and Recycling of Minor Actinides in Nuclear Power Stations," in *Handbook on the Physics and Chemistry of the Actinides*, North Holland Physics Publishing, 457 (1986).
2. T. MUKAIYAMA, et al., "Conceptual Study of Actinide burner Reactors," *Proc. Int. Reactor Physics Conf. Jackson Hole*, Vol.4, 369 (1988).
3. M. STEINBERG, G. WOTZAK, and B. MANOWITZ, "Neutron Burning of Long-Lived Fission Products for Waste Disposal", BNL 8558, (1964).
4. H. TAKAHASHI, N. MIZOO, and M. STEINBERG, "Use of the Linear Accelerator for Incinerating the Fission Products of Cs-137 and Sr-90", BNL-28779, (1980).
5. W. C. WOLKENHAUER, B. R. LEONARD, Jr, and B. F. GORE, "Transmutation of High-Level Radioactive Waste with a Controlled Thermonuclear Reactor", BNWL-1772, (1973).
6. M. TAUBE, *Nuclear Science and Engineering*, 61, 212 (1976).
7. R. KINSEY, "ENDF-201:ENDF/B Summary Documentation", BNL-NCS 17541, Brookhaven National Lab. (1979).
8. H. TAKAHASHI, "The Role of Accelerators in the Nuclear Fuel Cycle", *Proc. on the 2nd Int. Symp. on Advanced Nuclear Energy Research*, Mito Japan, (24-26 Jan. 1990).
9. S. F. MUGHABGHAB, M. DIVADEENAM, and N. E. HOLDEN, "Neutron Cross Sections", Academic Press, New York, 1, (1981).
10. P. AGERON, *Endeavour*, 31, 113 (1972) 67.
11. "Directory of Nuclear Reactors", vol.5, IAEA, Vienna, (1964).
12. F. J. PERETZ, *Proc. Int. Symp. on Research Reactor Safety, Operations and Modifications*, Chalk River, Canada, (23-27 Oct 1989).
13. H. TAKAHASHI, *Proc. on Emerging Nuclear Energy Systems*, 261, Karlsruhe, (3-6 July 1989).
14. T. IKEHATA, M. SUZUKI, T. TANABE, and H. MASE, *Appl. Phys. Lett.*, 55, 13, 1289 (1989).
15. R. B. MILLER, "An Introduction to the Physics of Intense Charged Particle Beams", Plenum Press, New York, (1982).

16. A. POZWOLSKI, "Production of High Energy Densities using a microparticle beam," *Rev. Phys. Appl.*, 23, 1531-1534, (1988).
17. T. MAJIMA, T. MIYARA, and M. TAKAMI, "CO<sub>2</sub> Laser Synthesis of Ultrafine Iron Particles," *Rikken Laser Engineering Report*, 12, 10-12 (1990).
18. N. KAMIYA, et al., "Charging and accelerating of microparticles," *Proceedings of the 7<sup>th</sup> Symposium on Accelerator Science and Technology*, Osaka, Japan, (12-14 Dec. 1989).
19. J. F. VEDDER, "Microparticle Accelerator of Unique Design," *Rev. Sci. Instrum.*, 49, 1, 1-7 (1978).
20. S. M. KAYE, "Status of Global Confinement Studies," *Phys. of Fluids B*, 2, 12, 2926-2940, (1990)
21. R. GILL, *Plasma Physics and Nuclear Fusion Research*, Academic Press, (1981).



日本原子力学会誌, 33, 1030 (1991)

## Ⅳ. 長寿命放射性核種の消滅処理

### Ⅳ-1 核分裂生成物の消滅処理

動力炉・核燃料開発事業団 小 無 健 司

#### 1. はじめに

放射性廃棄物は原子炉からの使用済み燃料等から発生する。その中には長寿命の放射性核種が含まれており、長年にわたってこれらの安全性を確保する必要がある。現在のところ、これら長寿命の放射性廃棄物の処理処分方法としては、これをガラス固化体として厳重に封じ込め深地層中に処分することにより、人間環境より隔離する方法の研究開発が進められている。

本節では、将来これに代わる可能性が考えられる処

理処分方法として、核変換によって長寿命放射性核種の短寿命化または安定化する方法、いわゆる消滅処理について述べる。

長寿命放射性廃棄物は、核種に関して超ウラン元素 (TRU; transuranic actinides) と核分裂生成物 (FP; fission product) に分類することができる。このうち TRU については本来、核分裂の可能性を持っている核種であり、燃料として核燃料サイクルの中に取り込むことが可能と考えられる。

最近の消滅処理研究は、この TRU の消滅処理に集中している。一方、核分裂生成物核種の中で中性子の断面積の小さい核種 ( $^{85}\text{Kr}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{98}\text{Tc}$ ,  $^{107}\text{Pd}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ) については、通常の原子炉単独で消滅処理を行うことは難しく、なんらか新しい消滅処理手法を開発する必要がある。ここでは、核分裂生成物の消滅処理研究の現状について述べる。

## 2. 消滅処理への要件

消滅処理は、①放射能のリスクを低減するという基本的な目的と②エネルギーシステムの中に組み入れられなければならないという要請があるために、消滅処理速度と消滅処理エネルギーの2つの特性が要求を越えている必要がある。この点が消滅処理研究と基礎研究の原子核実験が大きく異なる点である。

### (1) 消滅処理速度

ある粒子線場での消滅処理速度は

$$\lambda_{tr} = \int \sigma(E) \phi(E) dE$$

ここで、 $\sigma(E)$ : 核変換を起す断面積

$\phi(E)$ : エネルギー  $E$  を持つ粒子の flux を表わす

となる。また、有効半減期は、この核変換による消滅処理速度と自然崩壊速度  $\lambda_{nat}$  を用いて

$$\tau_{eff} = \ln 2 / \lambda_{eff}$$

ここで、 $\lambda_{eff} = \lambda_{nat} + \lambda_{tr}$

のように表わされる。これより明らかなように、速い消滅処理速度を得るためには、大きな断面積の反応を用いるか、または高強度の粒子線束を用いる必要がある。消滅処理速度を速くすれば、処理期間を短縮することができるばかりでなく、以下に示すように、原子炉と消滅処理装置からなるエネルギーシステム内での放射性核種の蓄積量を減少できる。

例えば、1 台の原子炉から発生する放射性核種を 1 台の消滅処理装置で処理する場合を考えてみる。発電炉の出力  $E_R$  (MW)、稼働率  $h$ 、熱-電気変換効率  $\eta_R$ 、とすると、核分裂収率  $Y$  の核種の発生速度  $S$  ( $s^{-1}$ ) は、

$$S = \frac{h}{\eta_R} \cdot \frac{Y E_R}{1.6019 \times 10^{-13}} \cdot \frac{1}{E_{fiss}} \quad (1)$$

ここで、 $E_{fiss}$  (MeV): 1 回の核分裂で放出されるエネルギー

となる。長寿命の放射性核種の蓄積量  $W$  の時間変化が、

$$dW/dt = S - W\lambda_{eff} \quad (2)$$

で表わされると仮定すると、平衡状態では

$$W = S / \lambda_{eff} = S \cdot \tau_{eff} / \ln 2$$

となる。例えば、 $h=0.75$ 、 $\eta_R=0.33$ 、 $Y=0.06$ 、 $E_R=10^3$  MWe、 $E_{fiss}=200$  MeV として  $\tau_{eff}$  を 2 年とすると、 $W=643$  mol となる。この量は、 $^{137}\text{Cs}$  では 88 kg となる。これが 1 GWe の発電炉 1 基と消滅処理装置 (有効半減期 2 年) 1 台のシステムに対応する平衡時の蓄積量である。すなわち、消滅処理では文字通り放射能をゼロにすることはできないが、蓄積量を少なくしてゼ

ロと見なせるまで減少させることが必要であり、そのためには速い消滅処理速度を達成しなければならないことがわかる。

### (2) 消滅処理エネルギー

次に、放射性廃棄物を発生する時に核分裂によりどれだけのエネルギーが得られているかを調べる。消滅対象核種の核分裂収率を  $Y$  とし、核分裂エネルギーを  $E_{fiss}$ 、熱から電気への発電効率を  $\eta_R$  とすると、1 核種が原子炉で生成されるときに得られるエネルギーは、

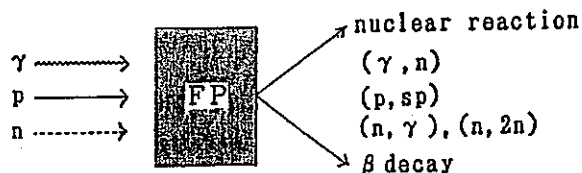
$$E_{max} = \eta_R (E_{fiss} / Y)$$

となり、これが消滅処理に使用できる最大電気エネルギーである。例えば、 $Y=0.06$ 、 $E_{fiss}=200$  MeV、 $\eta_R=0.33$  とすると、 $E_{max}=1,100$  MeV となる。消滅処理のエネルギーバランスの評価を行うためには、この値と消滅処理エネルギーとを比較する必要がある。

## 3. 消滅処理の方法

核分裂生成物の消滅処理は、1964 年に米国 BNL の Steinberg によって最初に提案された<sup>(1)</sup>。Steinberg は、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{85}\text{Kr}$  を原子炉で消滅することを考えた。

その後、これに続いて陽子加速器による消滅処理<sup>(2)</sup>、核融合炉による消滅処理<sup>(3)</sup> 等幾つかの方法が提案されている。これらの提案では、第 IV-1(1) 図に示すように、核分裂生成物をターゲットとし、これに加速した粒子 ( $\gamma$  線、陽子、中性子等) を入射し、これらの粒子と原子核との相互作用により原子核の変換を起こすことを考えた。



第 IV-1(1) 図 核分裂生成物消滅処理の概念図

原子核変換を起こすためには、まず粒子との核反応を利用することが考えられた。核反応以外の方法の例としては、 $^{85}\text{Kr}$  の励起状態からの  $\beta$  decay を利用した消滅処理がある<sup>(4)</sup>。

その中で、 $\gamma$  線や陽子の発生装置として加速器が考えられている。加速器からの粒子ビームによる消滅処理の場合は、消滅処理のエネルギーバランスが最も大きな問題である。1 核種変換に必要な粒子ビームパワー ( $E_{tr}$ ) は、粒子エネルギー ( $E_{part}$ ) および反応確率  $P$  を用いて次のように表わされる。

$$E_{tr} = E_{part} / P \quad (3)$$

$P$  は核反応と同時に起こる競争過程によって決まる。

例えば、陽子の場合にはターゲット中でのイオン化によるエネルギー損失が起こる。また、 $\gamma$ 線の場合には電子対生成、コンプトン散乱等によるエネルギー損失が起こり反応確率を低くしている。消滅処理エネルギーを評価するには、上式で決まる  $E_{ir}$  に装置電源からビームエネルギーへの変換効率  $\eta_{beam}$  を考慮する必要がある。消滅処理過程を取り入れた核燃料サイクルが電力源となるためには、次のエネルギーバランスの条件を満たす必要がある。

$$E_{ir}/\eta_{beam} < E_{max} \quad (4)$$

陽子や $\gamma$ 線を用いる場合は、 $P$ が小さいためにこのエネルギーバランスの条件を満たすことは難しくなっている。

これに対して中性子を用いる消滅処理では、 $P$ は大きくエネルギーバランスを満足させることは比較的容易であるが、これとは反対に速い消滅処理速度を得ることが難しい。中性子による消滅処理の新しい試みとしては、複合核共鳴反応の大きな断面積の利用のために、Moving ターゲットを用いて速い消滅処理速度を達成しようとする方法<sup>(5)</sup>やInertial Fusionのターゲットの周りに廃棄物核種を配置し、核融合反応による14 MeVの非常に大きな中性子束を利用しようとするアイデア<sup>(6)</sup>がある。また同じくミュオン触媒核融合炉からの14 MeV中性子による $(n, 2n)$ 反応を利用した消滅方法<sup>(6)</sup>や、 ${}^7\text{Li}$ のfree ion targetにmigma軌道を描かせた重陽子を衝突させることによる高速中性子の発生装置の研究がなされている<sup>(7)</sup>。

#### 4. 消滅処理と加速器

現状では、核分裂生成物の消滅処理研究はまだ基礎研究の段階であって、どれかの消滅処理方法を選定するまでには至っていない。しかし、現時点で原子核を変換するための装置として利用できるものは、原子炉と加速器に限られることを考えると、これらの装置の消滅処理への技術的な適用性を評価しておくことは意義があると考えられる。本項では、それらの研究の一つとして動力炉・核燃料開発事業団(動燃)で行われている大電流加速方式の開発研究について紹介する。

これまでの加速器は、基礎研究のために用いられることが多く、主に高エネルギーで質の良いビームの開発が行われてきた。これに対して消滅処理では、多量処理を行うために大電流ビームの開発が必要である。

消滅処理装置としての加速器のビーム出力  $D(\text{MW})$  は、1核種を消滅するための消滅処理エネルギーを  $E_{ir}(\text{MeV})$  とすると、

$$D = 1.6019 \times 10^{-18} E_{ir} S = \frac{h Y E_R E_{ir}}{\eta_R E_{max}} \quad (5)$$

で表わされる。例えば、 $h=0.75$ ,  $\eta_R=0.33$ ,  $Y=0.06$ ,  $E_R=10^3 \text{ MWe}$ ,  $E_{ir}=100 \text{ MeV}$ ,  $E_{max}=200 \text{ MeV}$  とすると、 $D=68 \text{ MW}$  となる。ビーム電流は加速エネルギーによって変わるが、少なくとも100 mA程度の加速器が容易に利用できる技術が達成されなければ、加速器による消滅処理は現実のものとはならないであろう。

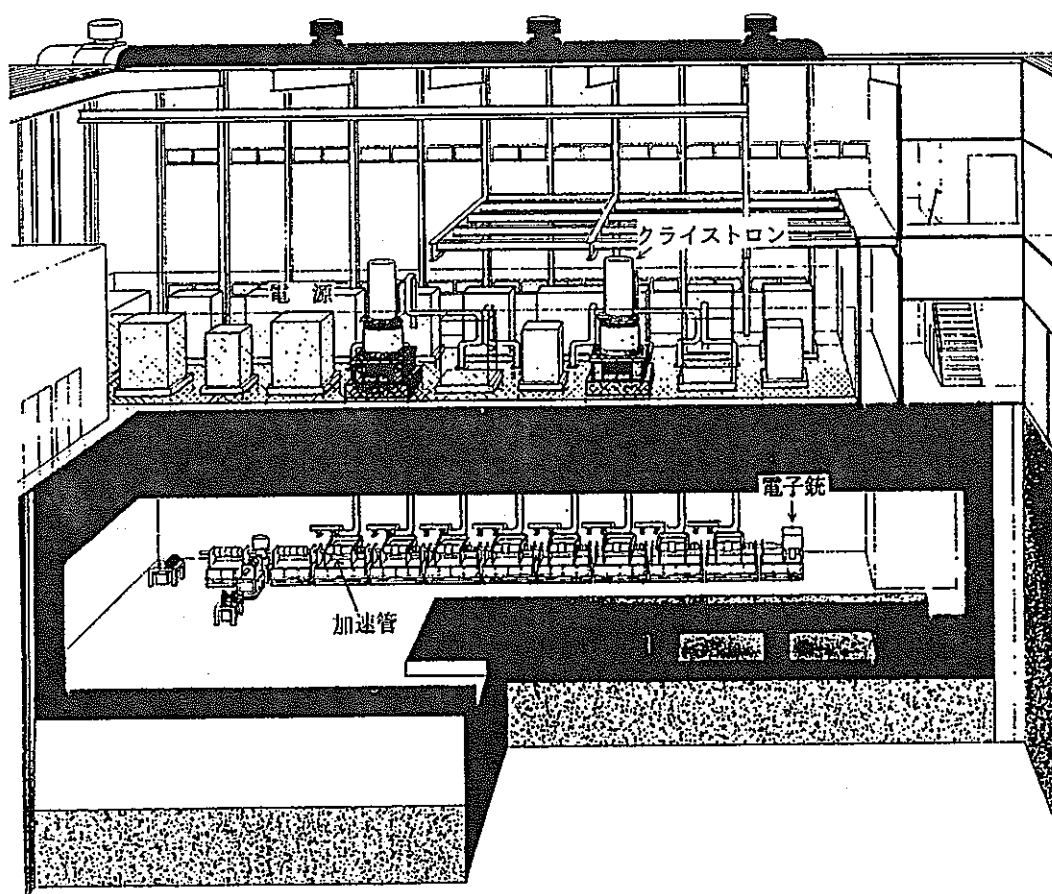
#### 5. 大強度加速器の開発課題

上述したように、消滅処理には既存の加速器のレベルを越えたエネルギー効率の高い大電流ビームの加速方式の開発が必要になる。そこで、動燃では初期の要素技術開発段階として、比較的低コストで試験が行える電子線加速器を取り上げ、加速管およびクライストロン等の開発を進めている。なお、これらの加速器要素については、電子加速器と陽子加速器には共通する部分が多く、ここで得られた結果の多くは陽子加速器の開発にも有用なデータとなると思われる。

大電流電子加速器の開発課題の最も大きな課題としては、ビーム不安定現象対策がある。大電流の電子加速器としては、電子ライナックが最も適していると考えられる。しかし、電子ライナックで加速電流を増やしていくと、ある値を越えたところでビームが横方向に不安定になり、加速管中心軸からそれて加速管壁に当たってしまう現象がある。この現象をビームブローアップ(Beam Blowup; BBU)と呼ぶ。この現象は加速管内部にビームによってそれを横方向にそらすようなモードの電波が発生するために起こるものであり、大電流の加速器を開発する場合の最も大きな問題点となる。このほかにも、大電流加速による影響として加速管の熱変形対策が必要となる。

エネルギー効率を向上させるためには、マイクロ波からビームへの変換効率の高い加速管を開発する必要がある。また、エネルギー効率を向上させるためのもう一つの重要な開発要素はマイクロ波発生源であるクライストロンである。特にCW(continuous wave)の高出力クライストロンはこれまで製作された経験がなく、①高効率、高安定動作の可能な高周波部、②高電圧で安定動作する電子銃、③大電力に耐え得るコレクタ、④大電力に耐え得る出力窓等を開発する必要がある。

動燃における加速器研究は平成元年度から開始され、平成7年には10 MeVのビームを加速する予定で



第 IV-1(2) 図 加速器要素開発施設

ある(第 IV-1(2) 図)。現在は、設計、試作、試験および加速器建屋の建設が行われている段階である。

## 6. あとがき

廃棄物処理・処分の安全性および経済性は、技術の進歩とともに向上していくものであり、基礎研究を通して最先端の技術を取入れ、常により優れた方法を開拓していく努力が大切である。それと同時に、実際に放射性廃棄物が発生してきている現状を考えれば、現在の技術レベルもしくは近い将来達成される技術を取り入れて、それぞれの段階で最良のシステムを実現していくことも重要である。これらの目的を達成するためには、新しい消滅処理方式の研究と同時に、消滅処理へ応用できる工学技術の検討が必要である。

## — 参考文献 —

- (1) STEINBERG, M., WOTZAK, G., MANOWITZ, B.: BNL-8558, (1964).
- (2) TAKAHASHI, H., MIZOO, N., STEINBERG, M.: BNL-28779, (1980).
- (3) WOLKENHAUER, W.C., LEONARD, Jr., B.R., GORE, B.F.: BNWL-1772, (1973).
- (4) SCHNEIDER, K.J.: BNWL-1900, (1974).
- (5) KONASHI, K., *et al.*: To be published in *Fusion Technol.*, (Proc. Int. Conf. on Emerging Nucl. Energy Systems, ICENES '91, Monterey, Calif., USA, June 16~21, 1991).
- (6) KASE, T., *et al.*: To be published in *Muon Catalyzed Fusion.*, (Proc. Int. Conf. on Muon Catalyzed Fusion,  $\mu$ CF-90, Vienna, May 27~ June 1, 1990).
- (7) 郷 殷, 他: 原子力学会「1990年会」要旨集, K67.

Proceedings of the 14th Linear Accelerator Meeting in Japan (1989)

## DEVELOPMENT PROPOSAL OF AN ACCELERATOR FOR NUCLEAR INCINERATION

Shin'ichi TÖYAMA, Kenji KONASHI, Nobuyuki SASAO, \*Hisashi WATANABE,  
\*Takao URANO, \*Satoshi OHSAWA, \*Atsushi ENOMOTO, \*Hitoshi KOBAYASHI,  
\*Shözö ANAMI, \*Kazuo NAKAHARA, \*Isamu SATO

Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation(PNC)

\* Zuihou Sangyou Co. Ltd

\$ National Laboratory for High Energy Physics(KEK)

### ABSTRACT

Development proposal of an accelerator for nuclear incineration is described. As the first stage, a test linac which accelerates electrons up to 10 MeV with duty factor 20% is designed for preparatory study of next phase machine(100MeV-100mA). The major items of this year are the study of CW(Continuous Wave) accelerating tube, the development of high power CW krystron and the analysis of thermal stress induced by high power RF.

### 消滅処理用加速器の開発計画

#### 1. はじめに

原子炉からの使用済み燃料中には、長寿命の放射性核種が含まれている。これらの核種の処分方法として核反応により短寿命核種または安定核種へ変換するいわゆる消滅処理方法が考えられている。放射性核種の中で、特に中性子反応断面積の小さい核種 ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  等) は、原子炉単独での消滅処理は難しく加速器を用いた消滅処理が研究されている。動力炉・核燃料開発事業団(動燃事業団)では、光核反応を用いた消滅処理技術開発を行っており、その為の $\gamma$ 線源として大強度CW電子加速器の開発研究を行っているので発表する。

#### 2. 大強度CW電子加速器の開発計画

消滅処理用加速器の特徴としては、粒子ビーム強度が大きいこと、エネルギー効率が良い事が挙げられる。図1に、パイロット規模を想定した際の電子による消滅用加速器の位置づけが世界の既存の電子加速器と比較して示されており、既存の加速器の水準を大きく越えており、われわれの検討の結果ではCW(連続波)のRF線形加速器の開発が必要と考えられる。

そこで大電流のビーム加速の要素技術開発を目的として、10MeV-100mA、デューティファクター20%(ビーム出力200kW)のCW電子線形加速器開発を計画し、現在高エネルギー物理学研究所(KEK)と共同して設計を進めている。この加速器の基本的な性能は表1の如くになっており有数のビーム出力を有し、大電流ビーム加速技術を確立する事を目的としている。この加速器からのデータは工学試験規模(100MeV-100mA)の加速器開発に貴重である。尚ここで得られる成果は将来の新型光源や電子加速器のみでなく、大強度陽子加速器(高 $\beta$ ライナック)開発に

とっても有用であると考えられる。

要素技術開発用加速器の概略は図2に示されるように、2本のクライストロンからのマイクロ波を4分岐し計8本の加速管に注入するものであり、前段の2本はプレバンチャー、バンチャーである。加速能率の向上のためマイクロ波はLバンド帯を用いる。加速器仕様は表2に纏められている。この加速器は動燃事業団東海事業所内に建設される予定である。

### 3. 開発項目

要素技術開発用加速器の場合、開発項目はビーム不安定性対策、CW加速管、大電力給電システム、大電力クライストロン、電子銃、熱対策、真空技術、加速器制御等多岐に渡るが、ここでは、特に重要で今年度開発が予定されているCW加速管及び大電力クライストロンに関する開発について述べる。

#### ①CW加速管

消滅処理用加速器としては高いエネルギー効率が必要である。この為の加速管の特長として進行波型加速管にマイクロ波を還流させる省エネルギー型マイクロ波給電システムを用いる。また、加速管周期構造に伴うビーム発散現象は大電流加速器開発に於て最も重要な問題点であり、この様なビーム加速に起因する誘発電場モード対策を研究する必要がある。

#### ②大電力クライストロン

現在のところ、1 GW出力のCWクライストロン管は製造された経験がなく、高能率、高安定動作の可能な高周波部、高電力に耐える電子銃・コレクタ・出力窓を開発する必要がある。

#### ③加速管の熱変形解析

デューティーファクターの増大にともなって一本当り200 kW以上に達するマイクロ波に依る加速管の熱変形により、加速空洞内の周波数のずれが生じる。この対策として熱計算、モデル試験により加速管の冷却構造の検討を行う。

エネルギー (MeV)	10
エネルギー分散 (%)	$1 \times 10^{-4}$
最大ビーム電流 (mA)	100
平均ビーム電流 (mA)	20
パルス幅 (ms)	4
繰り返し数 (Hz)	50
デューティー (%)	20

表1 加速器基本性能

加速周波数 (MHz)	1248
マイクロ波波長 (cm)	24.0
加速モード	$2\pi/3$
加速管の本数	8
加速管の長さ (m)	1.2
加速器の全長 (m)	16.0
クライストロン数	2
クライストロン出力 (MW)	1.0

表2 加速器仕様

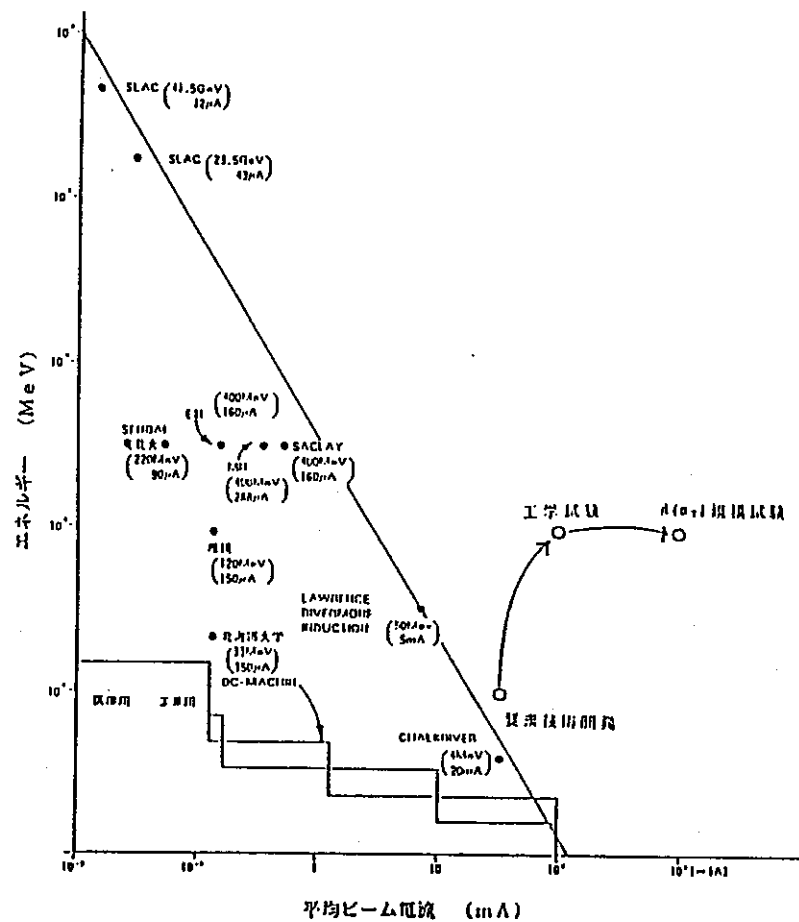


図1 代表的電子加速器のビーム出力図

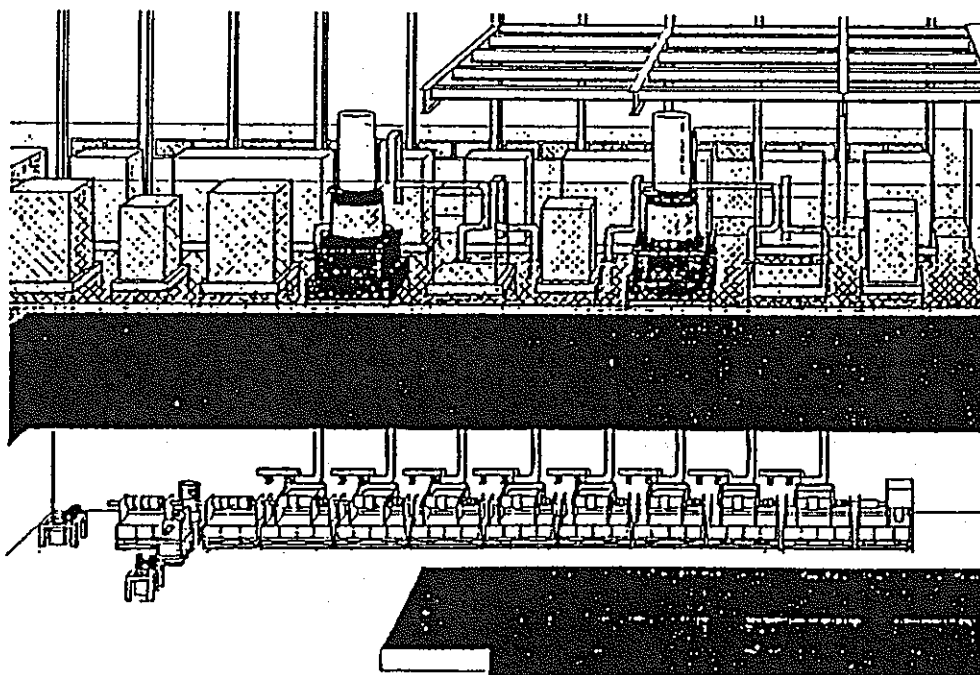


図2 要素技術開発用加速器の概観

## Study of Accelerating Structure for High Intensity Electron Linear Accelerator

Shin'ichi TÖYAMA, Hironori OSHITA, Koichiro HIRANO, Hisashi WATANABE,  
Kenji KONASHI, Nobuyuki SASAO, <sup>§</sup>Takao URANO, <sup>§</sup>Satoshi OHSAWA,  
<sup>§</sup>Atsushi ENOMOTO, <sup>§</sup>Hitoshi KOBAYASHI, <sup>§</sup>Shōzō ANAMI,  
<sup>§</sup>Kazuo NAKAHARA, <sup>§</sup>Y.L. WANG, <sup>§</sup>Isamu SATO

Power Reactor and Nuclear Fuel Corporation, Tokai Works (PNC Tokai)

<sup>§</sup> National Laboratory for High Energy Physics (KEK)

### ABSTRACT

We are recently designing the accelerating structure for high intensity CW electron accelerator (10 MeV-100mA, duty 20%). This linac is a test machine to research problems about high current acceleration which is needed for transmutation for nuclear wastes. The injector characteristics is studied using design parameters. We report some results of the calculation about beam dynamics of the injector section.

### 大強度電子線形加速器の加速構造の研究

#### 1. はじめに

原子力分野において、重要な課題の一つに、高レベル廃棄物の処理方の確立がある。その一つの方法として、加速器による核変換が考えられている。現在我々は、核変換技術の要素開発として、Lバンドの大強度CW電子線形加速器の設計を行なっている。要素開発器の基本的な仕様は表1.の如くであり、核変換用加速器に必要な性能の基礎的研究をすることを目的としている<sup>1)</sup>。

この設計研究の目的は省エネルギーで、安定にビームを加速することである。また、平均20mAという極めて強い電流を加速するため、効率良い加速のみならず、漏れビームから発生する放射線あるいはオゾン、酸化窒素(NOX)の量を少なくする必要がある。特に、線形加速器においては入射部の特性が加速器からのビームの性質を大きく左右する。よって、それらの加速構造およびビームトランスポートの研究が極めて重要である。我々は、入射部のビームバンチング特性の研究を行なっているので報告する。

#### 2. 加速器及びバンチャーの構造

加速器の概念的なブロックダイヤグラムを図1.に示す。加速管の構造については現在のところ、進行波型、定在波型の両者について検討されている。電子銃から放出される電子群はRFチョッパーを通過した後バンチャーに入射される。その際電子ビームはバンチング作用を受ける。バンチャーの構造パラメーターを図2.及び表3.に掲げる<sup>2)</sup>。



また、電子銃から200 kV入射では、マイクロ波の位相速度は前半部で0.695 cから0.9 c、後半部で0.9 cから0.985 cに変化する。バンチャーからの電子ビームはAC1からAC3までのレギュラー部1更にAC4からAC7までのレギュラー部2ではほぼ光速で加速される。加速管の基本仕様を表2.に示す。このバンチャーについてはテストキャビティーが制作されほぼ設計通りの高周波特性が確認されている。

### 3. ビームバンチング特性計算

計算は、表3.のデータをもとに、バンチャー内のビームの運動方程式を解くことにより求めた<sup>3)</sup>。即ち、

$$\frac{dy}{dz} = -\alpha \sin \theta_p$$

$$\frac{d\theta}{dz} = -\frac{k}{\beta^3 \gamma mc^2} \Delta W$$

ここで $m, \gamma, \beta, \Delta W$ は夫々電子の質量、エネルギー、速度、平均エネルギーからの変位、 $k = \omega/c = 2\pi/\lambda$ であり、 $\theta_p, \alpha$ は夫々、マイクロ波位相、減衰を示す。

計算の例を図3.に示す。この電子銃の高圧は200 KVとした。この図では、電子銃からの電子ビームの位相角が変調されて集群化する様子が示されている。この結果によると、バンチャー通過後電子ビームは位相角ではほぼ10度以内にバンチされている。よって、ほぼ十分なバンチング作用があると考えられ、レギュラー部へビームを導くことができる。ただし今回の計算には電子集群の空間電荷効果は含まれていない。

### 3. おわりに

大電流電子線形加速器の入射部の特性計算を行ない、解析を行なった。今後は、さらに空間電化効果などを考慮し最適化計算を行なうと共に、レギュラー部の計算を実施していく予定である。更に、電磁石を用いて加速器やターゲット周りのビームトランスポートやビームロスの解析を行なう予定である。

### 参考文献

- 1) S. Tōyama et al. ; Proceedings of 14th Linear Accelerator Meeting in Japan, 1989.
- 2) Y.L. Wang et al. ; Proceedings of 14th Linear Accelerator Meeting in Japan, 1989.
- 3) G. A. Loew and R. B. Neal ; "Linear Accelerators" (P. M. Lapostolle and A. L. Septier Ed.) North-Holland (1970)

エネルギー	10 (MeV)
最大ビーム電流	100 (mA)
パルス幅	4 (ms)
繰り返し	50 (Hz)
デューティー	20 (%)

表1. 要素開発器の基本仕様

加速周波数	1249 (MHz)
マイクロ波波長	24.0 (cm)
加速モード	$2\pi/3$
加速管の長さ	1.2 (m)
加速器の全長	18 (m)

表2. 加速管の基本仕様

○ 加速管の長さ  
(何か新しいもの)

全長	1.16	(m)
空洞数	17	
ディスク厚	12	(mm)
2a	65-67	(mm)
シャント	15.2-29.3	(MΩ/m)
群速度	0.025-0.032	(/c)
減衰	0.036-0.021	(Nepers/m)
Q	14520-18910	

表3. パンチャーパラメータ

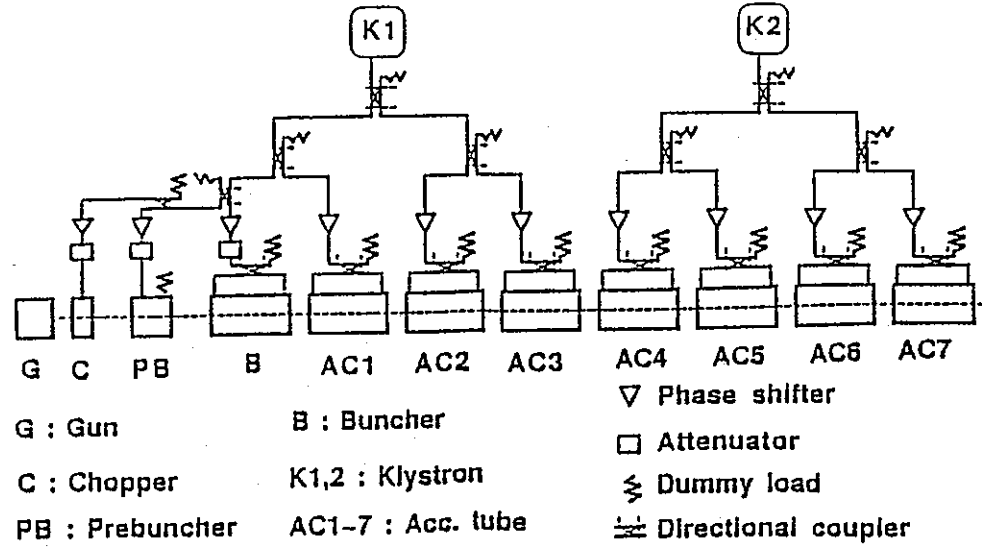


図1. 要素開発器の概念的ブロックダイアグラム。

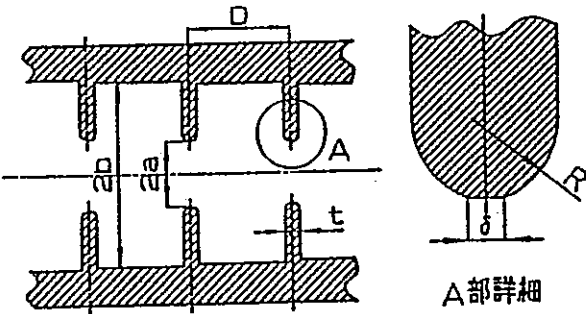


図2. パンチャー概念図。

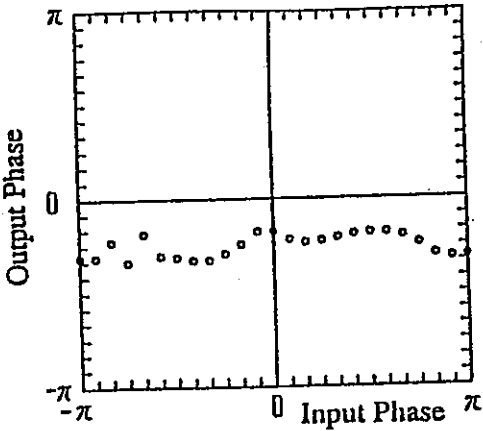


図3. 電子ビームの位相角の変化。  
横軸-縦軸は夫々、電子銃、  
パンチャー通過後の位相角を示す。

核データ研究会 (1990)

## Measurements of the Neutron Capture Cross Section of the Fission Product $^{137}\text{Cs}$

Hideo HARADA, Hisashi WATANABE,

Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corp.

Tokai-mura, Ibaraki-ken, 319-11

Toshiaki SEKINE, Yuichi HATSUKAWA, Katsutoshi KOBAYASHI,

Department of Radioisotopes, Japan Atomic Energy Research Institute

Tokai-mura, Ibaraki-ken, 319-11

Toshio KATO,

Department of Nuclear Engineering, Nagoya University

Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya, 464-01

### Abstract

To obtain fundamental data for the research of the transmutation of long-lived radioactive waste, the cross section of the reaction  $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$  has been measured by means of an activation method at JRR-4 in JAERI. First, the thermal neutron capture cross section, including a contribution of epithermal neutrons, was obtained relative to that of the  $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$  reaction. A target of about 0.4 MBq of  $^{137}\text{Cs}$  was irradiated together with a Co flux monitor. The samples were purified chemically and their  $\gamma$ -ray spectra were measured with a HPGe detector of 90 % relative efficiency. The resulting activity ratios between  $^{138}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  and neutron flux data gave the cross-section value of  $0.250 \pm 0.013$  b. This value is twice as large as that of the previous work by D. C. Stupegia (J. Nucl. Energy, A12, 16 (1960)). Second, another set of irradiations were carried out to measure the neutron capture cross section for 2,200 m/s neutrons and the resonance integral. The neutron capture cross section for 2,200 m/s neutrons,  $\sigma_0$ , was  $0.25 \pm 0.02$  b and the resonance integral,  $I_0$ , was  $0.36 \pm 0.07$  b. This result is consistent with the cross section obtained in our first experiment. It is found that the resonance integral of the reaction has been overestimated in evaluations:  $I_0 = 0.499$  b in ENDF/B-V and  $I_0 = 0.680$  b in JENDL-3.

## [1] Introduction

The nuclide  $^{137}\text{Cs}$  is one of the most important fission products in the field of radioactive waste management. The accurate cross section of the  $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$  reaction is necessary for the research of the neutron utilized transmutation.<sup>(1)</sup> There has been no measurement of the cross section of the  $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$  reaction since Stuepgia measured the thermal neutron capture cross section first in 1960; he obtained the value of  $0.110 \pm 0.033$  b with a NaI(Tl) spectrometer by an activation method.<sup>(2)</sup> In this seminar, details of the measurements of the thermal neutron cross section and resonance integral of  $^{137}\text{Cs}$  are given; the cross section were measured by taking advantage of a Ge detector and fast electronics; further, a chemical separation process is introduced to enhance the sensitivity of activation measurement.

## [2] Measurement of the thermal neutron cross section of the $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ reaction

First, the thermal neutron capture cross section was measured relative to that of the  $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$  reaction. About 0.4 MBq of  $^{137}\text{Cs}$  was used as a target. 3  $\mu\text{l}$  of CsCl solution containing radioactivity was put into a small polyethylene bottle and evaporated to dryness. The target was irradiated together with a flux-monitor wire of 0.475 w% Co/Al-alloy (0.76 mm in diameter) during a 10 min period in the T-pipe of the JRR-4 reactor at JAERI. The irradiation position is characterized with a thermal neutron flux of  $4 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>/s and an epithermal index in the Westcott convention<sup>(3)</sup>,  $r T/\Gamma_0$ , of 0.02.

About 15 min after irradiation, a chemical procedure for purification of the irradiated  $^{137}\text{Cs}$  target was started. 2 ml of water containing 2 mg of zeolite (natural mordenite) was poured into a polyethylene bottle. The zeolite absorbing Cs was separated from the solution by filtration and washed with water and then with a small amount of acetone. Most of the  $^{24}\text{Na}$  and  $^{38}\text{Cl}$  activity was eliminated.

About 30 min after irradiation, the measurement of the  $^{137}\text{Cs}$  sample was started. For observation of weak transitions of  $^{138}\text{Cs}$  in the strong  $\gamma$ -ray field of  $^{137}\text{Cs}$ , a HPGe detector of 90% efficiency and a fast ADC (450 MHz) were used. Fig.1 shows the block diagram of the high-rate gamma spectroscopy system. The digital pulse height signals were accumulated through a CAMAC interface in a histogram memory; the pulse height data with 4K channels were dumped at intervals of 600 s into a floppy disk.

Figure 2 shows a  $\gamma$ -ray spectrum of the irradiated and purified  $^{137}\text{Cs}$  sample. In the spectrum, the  $\gamma$ -rays of  $^{138}\text{Cs}$  can be seen at 1010, 1436 and 2218 keV besides the 662 keV  $\gamma$ -ray of  $^{137}\text{Cs}$ . Figure 3 shows the decay curves of the  $^{138}\text{Cs}$   $\gamma$ -lines. The data are well fitted with a single exponential curve. Table 1 shows half-life values of  $^{138}\text{Cs}$  determined from those  $\gamma$ -lines in each of four runs. The weighted mean is  $33.1 \pm 0.6$  min. This value is in good agreement with the experimental one reported by Ehrenberg & Amiel.<sup>(4)</sup> These facts indicate that the  $^{138}\text{Cs}$   $\gamma$  lines are free from contamination of other radioactivities.

The reaction rate of  $^{137}\text{Cs}$  was deduced from the activity ratio of  $^{138}\text{Cs}$  to  $^{137}\text{Cs}$ . The thermal neutron capture cross section was deduced by dividing the reaction rate by the thermal neutron flux measured with a flux monitor Co. The relation between the activity ratio and the capture cross section can be expressed by

$$\sigma = \frac{A_2}{A_1} \cdot \frac{\lambda_1}{\phi(1 - e^{-\lambda_2 T_{IR}})} \dots (1)$$

Symbols are defined as follows:

A : Activity at the end of neutron irradiation

$\lambda$  : Decay constant

$\phi$  : Thermal neutron flux

$T_{IR}$  : Period of neutron irradiation.

The subscripts 1 and 2 refer to  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{138}\text{Cs}$ , respectively. The nuclear data used for obtaining A and  $\lambda$  are summarized in Table 2.<sup>(4),(5),(6)</sup>

The second column in Table 3 shows the thermal neutron fluxes determined from  $^{60}\text{Co}$  radioactivities produced in the flux monitors; a value of 37.18 b<sup>(7)</sup> was taken for the  $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$  reaction. Table 3 also shows the measured cross section for each  $^{138}\text{Cs}$   $\gamma$ -ray obtained from four runs. The error of the cross section does not include the errors of the nuclear data in Table 2. A weighted mean of  $0.250 \pm 0.013$  b has been obtained as the thermal neutron cross section relative to Co. This is 2.3 times larger than that of the previous work by D. C. Stuepgia.<sup>(2)</sup>

### [3] Measurements of neutron capture cross section at 2,200 m/s and resonance integral

Second, the resonance integral of the  $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$  reaction was measured together with its 2,200-m/s neutron cross section. One possibility for the cause of the discrepancy between our result in sect. [2] and Stuepgia's is a difference in neutron spectrum, if the resonance integral is very large. An experimental data of the resonance integral is also needed for the feasibility study of nuclear transmutation, when the epithermal range of neutrons is used.

About 0.4 MBq of  $^{137}\text{Cs}$  was irradiated together with Co, Au and Mo flux monitors by using the pneumatic tube equipped with a movable Cd shield at JRR-4. Fig.4 shows the schematic diagram of the pneumatic tube. Irradiations were carried out with and without the Cd shield during a period of 10 or 2 min.

Chemical procedures and  $\gamma$ -ray measurements were the same as the previous ones mentioned in sect. [2]. Fig. 5 shows  $\gamma$ -ray spectra obtained at Run 2 for the  $^{137}\text{Cs}$  samples irradiated with and without a Cd shield. In both the spectra,  $\gamma$ -rays from the  $^{138}\text{Cs}$  were observed. The  $\gamma$ -ray intensities observed for the  $^{137}\text{Cs}$  samples and the flux monitors were reduced to the radioactivities at the end of the irradiation, referring to the nuclear data listed in Tables 2 and 4. The radioactivity of  $^{138}\text{Cs}$  was determined relative to that of  $^{137}\text{Cs}$ , as described previously. Since the production of the  $^{138}\text{Cs}$  was

much reduced in irradiation with a Cd shield, the 1436-keV  $\gamma$ -ray, which is the strongest in the  $\gamma$ -rays of  $^{138}\text{Cs}$ , was used for the radioactivity determination.

The reaction rate,  $R$ , over  $\sigma_0$  (neutron capture cross section for 2,200 m/s neutrons) is expressed by the following equations.

$$R/\sigma_0 = \phi_1 + \phi_2 \times s_0 G_{\text{epi}} \quad \text{for irradiation without a Cd shield} \quad \text{--- (2)}$$

$$R'/\sigma_0 = \phi_1' + \phi_2' \times s_0 G_{\text{epi}} \quad \text{for irradiation with a Cd shield} \quad \text{--- (3)}$$

where  $\phi_1^{( )}$ ,  $\phi_2^{( )}$  are free parameters determined by the flux monitors;  $\phi_1^{( )}$  and  $\phi_2^{( )}$  are approximately the thermal and epithermal neutron fluxes, respectively.  $s_0$  is defined by

$$s_0 = \sqrt{\frac{4}{\pi}} \cdot \frac{I_0'}{\sigma_0}, \dots (4)$$

where  $I_0'$  is the reduced resonance integral. Parameters for eq. (2)~(4) are listed in Table 5. Fig. 6 shows the relation between  $R^{( )}/\sigma_0$  and  $s_0 G_{\text{epi}}$  measured for Co, Au and Mo flux monitors. As indicated by eq. (2) and (3), good linear relationships are shown in fig. 6 for both irradiations with and without a Cd shield.

The thermal neutron fluxes  $\phi_1^{( )}$  and epithermal neutron fluxes  $\phi_2^{( )}$  in each of irradiation conditions were deduced from the fitted curves. Table 6 shows the results of neutron flux determinations and the cross sections of the reaction  $^{137}\text{Cs}(n, \gamma) ^{138}\text{Cs}$ . The weighted means of the thermal cross section  $\sigma_0$  (for 2200 m/s neutrons) and the resonance integral  $I_0$  (including the  $1/v$  part) are  $\sigma_0 = 0.25 \pm 0.02$  b and  $I_0 = 0.36 \pm 0.07$  b, respectively.

This result is consistent with the cross section obtained in our first experiment. In Table 7, the measured value  $I_0$  is shown together with recent evaluations.<sup>(9)</sup> It is found that the resonance integral of the reaction has been overestimated in evaluations.

#### [4] Conclusion

Neutron capture of  $^{137}\text{Cs}$ , which is one of the most important nuclide for the management of radioactive waste, has been studied for the research of the neutron utilized transmutation. First, the thermal neutron capture cross section was measured relative to that of the  $^{59}\text{Co}(n, \gamma) ^{60}\text{Co}$  reaction. The obtained value,  $0.250 \pm 0.013$  b, is twice as large as that of the previous work by D. C. Stupegia (J. Nucl. Energy, A12, 16 (1960)). Next, the neutron capture cross section for 2,200 m/s neutrons,  $\sigma_0$ , and the resonance integral,  $I_0$ , were measured. The results were  $\sigma_0 = 0.25 \pm 0.02$  b and  $I_0 = 0.36 \pm 0.07$  b. This result is consistent with the cross section obtained in our first experiment. It is found that the resonance integral of the reaction has been overestimated in evaluations.

## References

- (1) Harada, H., Watanabe, H., Sekine, T., Iizuka, Y., Kobayashi, K., Katoh, T.: J. Nucl. Sci. Tech., 27, 577 (1990).
- (2) Stueger, D. C.: J. Nucl. Energy, A12, 16 (1960).
- (3) Westcott, C. H., Walker, W. H., Alexander, T. K.: Proc. 2nd Geneva Conf., Vol. 16, 70 (1958).
- (4) Ehrenberg, B., Amiel, S.: Phys. Rev. C16, 618 (1972).
- (5) Carlson, G. H., Talbert, W. L., McConnell, J. R.: ibid., C9, 283 (1974).
- (6) Lederer, C. M., Shirley, V. S.: Table of Isotopes, (7th ed.), (1978), John Wiley & Son.
- (7) Mughabghab, S. F., Divadeenam, M., Holden, N. E.: Neutron Cross Sections, Vol. I, Part A, (1981), Academic Press.
- (8) Matsuoka, H., Sekine, T.: JAERI-M 9552 (1981) (in Japanese).
- (9) Nakagawa, T.: private communication.

Table 1 Experimental half-life of  $^{138}\text{Cs}$ 

Run No.	Half-life (min)		
	1,010 keV	1,436 keV	2,218 keV
1	$34.4 \pm 5.2$	$32.9 \pm 1.3$	$34.2 \pm 3.4$
2	$33.1 \pm 5.3$	$33.4 \pm 2.1$	$30.1 \pm 9.3$
3	$37.1 \pm 4.9$	$33.7 \pm 1.1$	$26.5 \pm 2.5$
4	$32.5 \pm 3.9$	$33.8 \pm 1.1$	$32.1 \pm 3.4$
	$34.1 \pm 2.4$	$33.5 \pm 0.6$	$30.0 \pm 1.7$

Weighted mean =  $33.1 \pm 0.6$  (min)

Table 2 Nuclear data used in present work

Nuclide	$T_{1/2}$	$E_\gamma$ (MeV)	$\gamma$ -intensity
$^{60}\text{Co}$	5.271 yr	1.173	1.00
		1.332	1.00
$^{137}\text{Cs}$	30.17 yr	0.662	0.85
$^{138}\text{Cs}$	33.4 min	1.010	0.284
		1.436	0.750
		2.218	0.161

Table 3 Experimental results of thermal neutron flux and cross section

Run No.	Neutron flux ( $10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ )	Cross section (barn)		
		1,010 keV	1,436 keV	2,218 keV
1	$3.7 \pm 0.2$	$0.286 \pm 0.023$	$0.251 \pm 0.014$	$0.271 \pm 0.019$
2	$3.8 \pm 0.2$	$0.282 \pm 0.026$	$0.258 \pm 0.016$	$0.235 \pm 0.033$
3	$3.9 \pm 0.1$	$0.264 \pm 0.020$	$0.248 \pm 0.014$	$0.205 \pm 0.015$
4	$3.8 \pm 0.1$	$0.277 \pm 0.021$	$0.250 \pm 0.014$	$0.223 \pm 0.016$
		$0.276 \pm 0.017$	$0.250 \pm 0.013$	$0.230 \pm 0.014$

Weighted mean =  $0.250 \pm 0.013$  (barn)



Table 4 Neutron flux monitors and nuclear data used for the determination of radioactivities

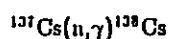
Material of wire	Diameter of wire (mm)	Radionuclide of interest	Half-life	Detected $\gamma$ -ray		
				Energy (keV)	Intensity (%)	$G_{\gamma}^I$
0.475% Co/Al	0.76 mm	$^{60}\text{Co}$	5.271 y	1173	100	0.995
				1332	100	0.996
0.061% Au/Al	0.51 mm	$^{198}\text{Au}$	2.696 d	412	95.5	0.995
Mo	0.51 mm	$^{99}\text{Mo}$	66.02 h	141 <sup>§</sup>	89.0	0.908

<sup>†</sup>Ref.[8].  $G_{\gamma}$  : Self-absorption coefficient<sup>§</sup>  $\gamma$ -ray from the daughter  $^{99}\text{Tc}$ .Table 5 Data used for the determination of  $\phi_1^{(r)}$  and  $\phi_2^{(r)}$  from radioactivities in flux monitors<sup>[8]</sup>

Nuclear reaction	$\sigma_0$ (b)	$s_0$	$G_{\text{epi}}^I$
$^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$	37.2	1.83	1.00
$^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$	98.8	17.02	1.00
$^{99}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$	0.130	53	0.85

<sup>†</sup>Values for the wires listed in Table 4.

Table 6 Results of neutron flux determinations and the cross sections of the reaction



Run	Irradiation		$\phi_1$ or $\phi_1'$ ( $10^{13} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ )	$\phi_2$ or $\phi_2'$ ( $10^{13} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ )	$^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ reaction		
	Type	Period			$R/R'$	$s_0$	$\sigma_0$ (b)
1	no Cd shield	2 m	$3.15 \pm 0.12$	$0.124 \pm 0.012$	$9.8 \pm 0.8$	$0.89 \pm 0.35$	$0.279 \pm 0.021$
	with Cd shield	10 m	$0.234 \pm 0.017$	$0.111 \pm 0.004$			
2	no Cd shield	10 m	$2.96 \pm 0.18$	$0.093 \pm 0.014$	$8.2 \pm 0.9$	$1.69 \pm 0.60$	$0.234 \pm 0.018$
	with Cd shield	10 m	$0.220 \pm 0.015$	$0.095 \pm 0.004$			
Averaged					$1.09 \pm 0.30$	$0.253 \pm 0.022$	

Table 7 Comparison of resonance integrals for the  $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$  reaction

	Resonance integral <sup>†</sup> (b)	Reference
Present work	$0.36 \pm 0.07$	
ENDF/B-V	0.499	[13]
JENDL-3	0.680	[14]

<sup>†</sup> The Cd cutoff energy is 0.5 eV.

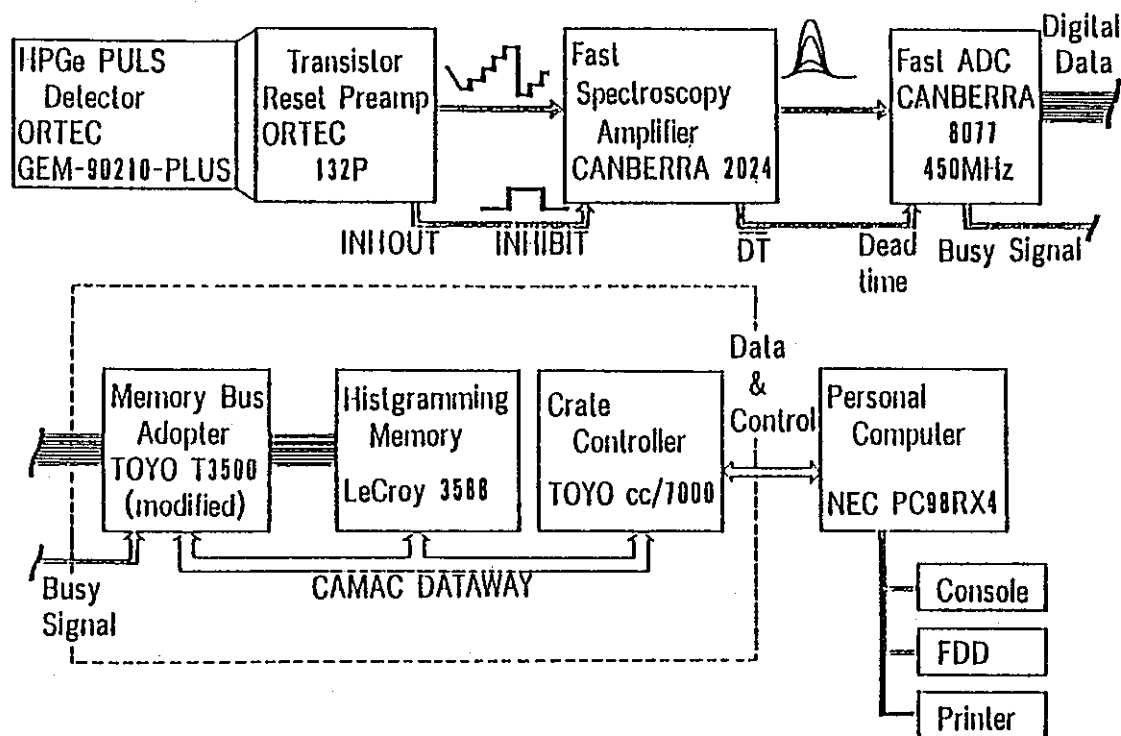


Fig. 1 High Count Rate Spectroscopy Systems

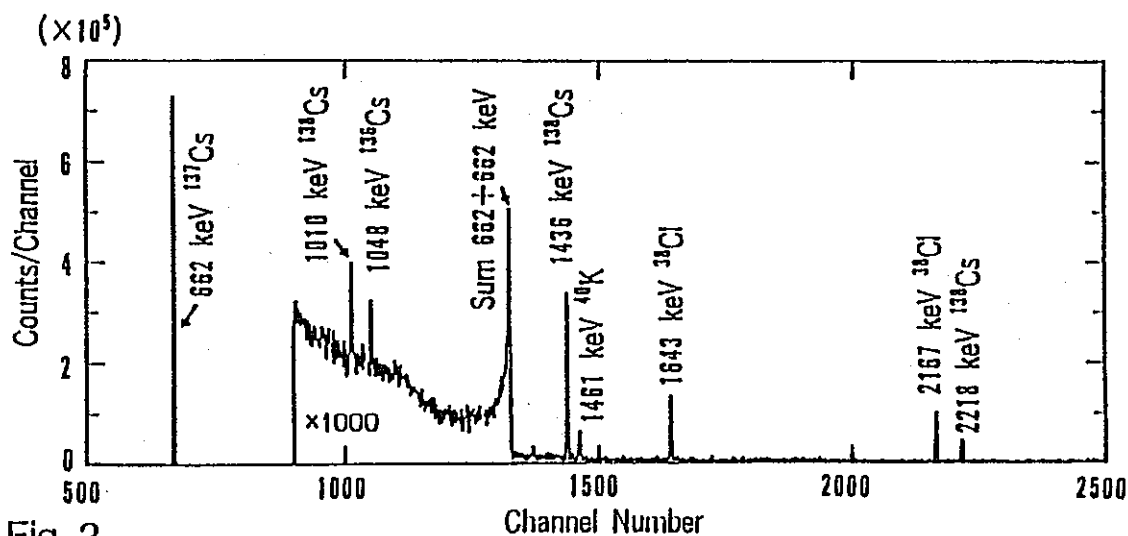


Fig. 2

Gamma-ray spectrum obtained from neutron-irradiated and chemically purified  $^{137}\text{Cs}$  sample in 10-min measurement

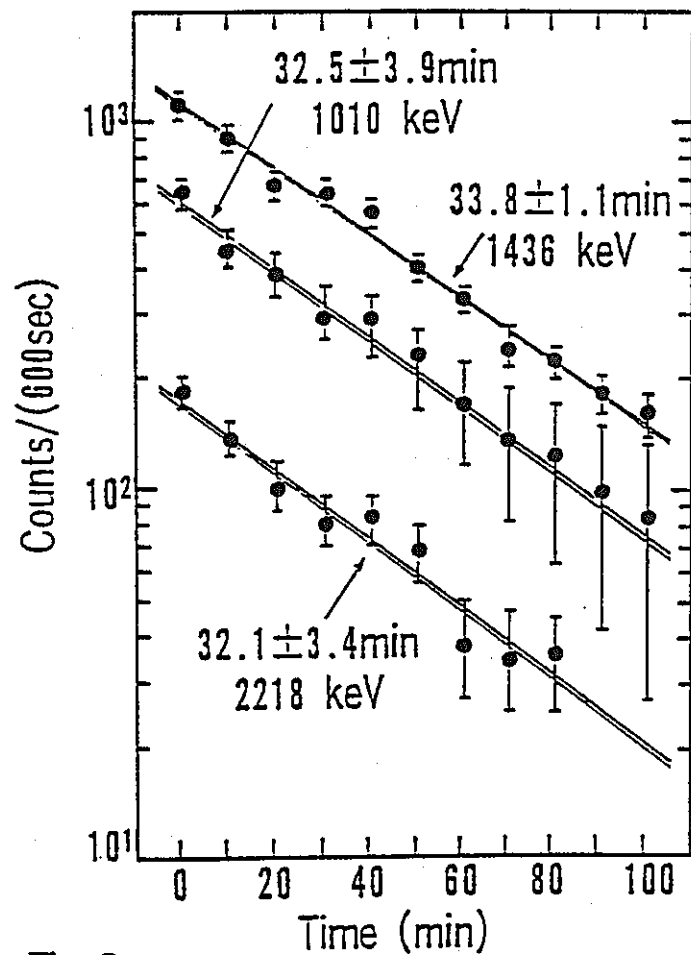


Fig. 3 Decay curves of  $^{138}\text{Cs}$   $\gamma$ -rays obtained in Run 4

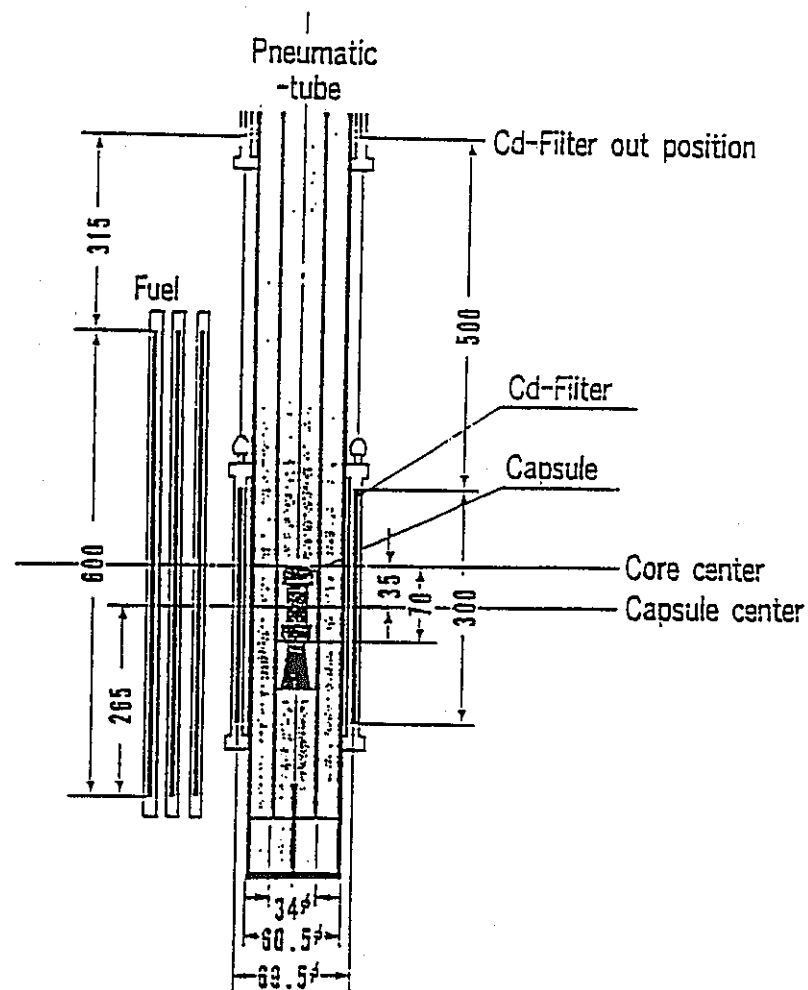


Fig. 4 Schematic diagram of the pneumatic tube at JRR-4.

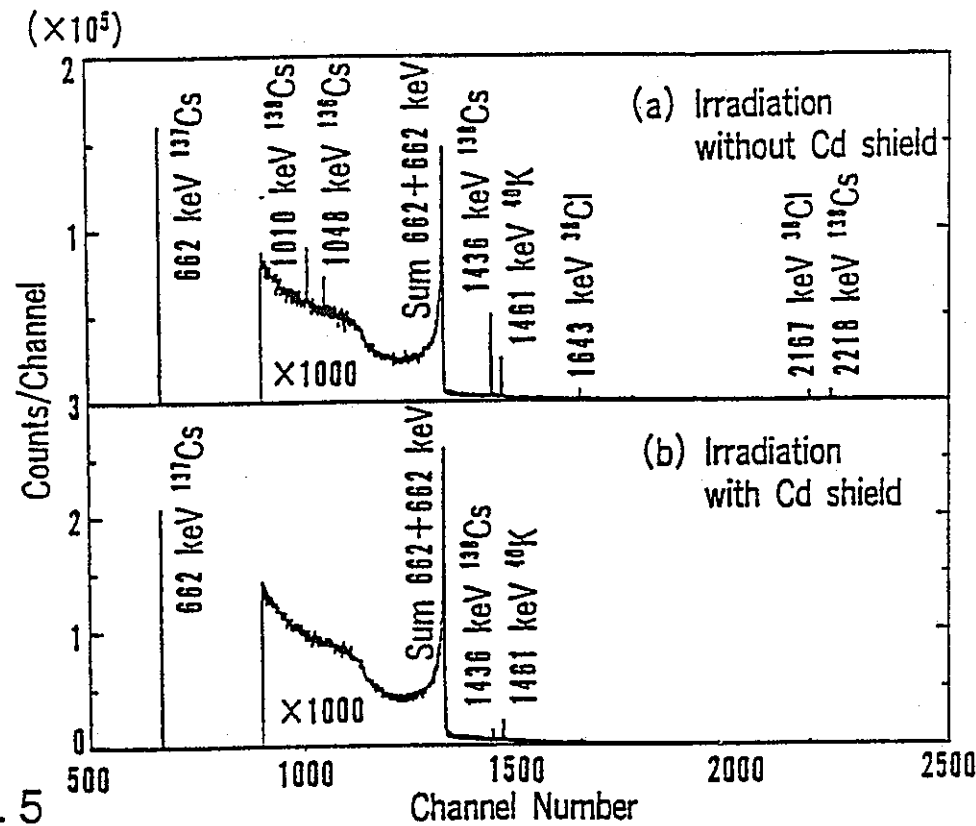


Fig. 5  $\gamma$ -ray spectra of  $^{137}\text{Cs}$  samples irradiated with and without Cd shield, and purified chemically. Measurements were started 30 min after irradiation, and their counting periods were 30 min.

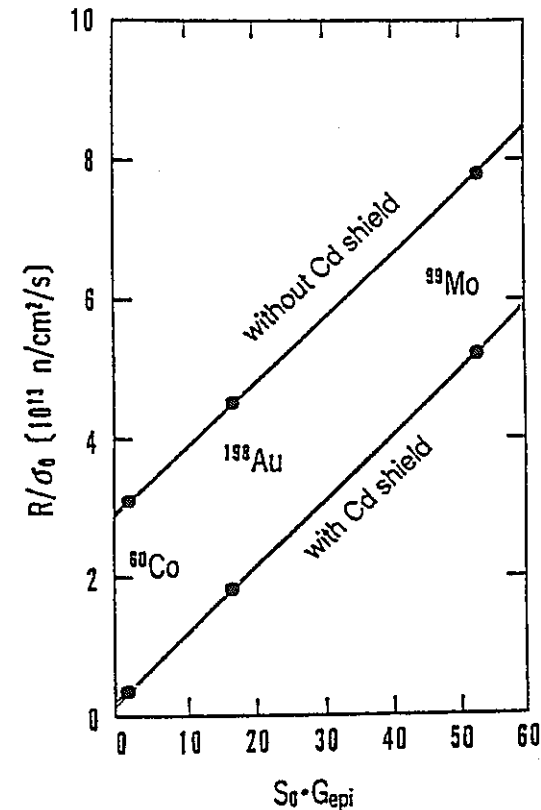


Fig. 6 Plot of  $R/\sigma_0$  against  $s_0 G_{\text{epi}}$  for neutron-flux monitors irradiated with and without a Cd shield.

EGS4 研究会, KEK, July 22-23 (1991)

E G S 4 による  $(\gamma, n)$  反応の取扱いと MCNP との接続

動燃・東海 加瀬 健、小無 健司、岸本 洋一郎

Treatment of  $(\gamma, n)$  reaction by EGS4 code and connection to MCNP code

T. Kase, K. Konashi and Y. Kishimoto  
 Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation  
 Tokai, Ibaraki 319-11, Japan

The EGS4, a simulation code for electron-photon transport, has been improved to calculate the photonuclear reaction. Neutron yields in the Pb target bombarded by 34MeV electron have been calculated by the improved code. The calculation results are well agreed with experimental data within 10%. We have used this code in order to estimate the transmutation of  $^{137}\text{Cs}$  using bremsstrahlung.

## 1. はじめに

E G S 4<sup>(1)</sup>は、電子-光子の輸送計算を行うが、その際、オリジナルのままでは、 $(\gamma, n)$ 、 $(\gamma, 2n)$ 、 $(\gamma, f)$  反応等の光核反応は考慮されていない。そこで、E G S 4 に光核反応断面積を組み込み、光核反応を取り扱えるようにした。34MeVの電子で鉛を照射した場合の中性子の収率を改良を加えたE G S 4 で計算し、実験値と比較したところ両者の差は約10%以内で一致した。また、この改良を加えたE G S 4 を用いて電子線を利用した $^{137}\text{Cs}$ の消滅処理の評価計算を行い、他の加速器を利用した消滅処理方法との比較を行った。

## 2. 改良点

E G S 4 では、光子の輸送過程はSubroutine photonで扱われる。ここでは、光子発生→飛距離決定→反応の種類決定のステップで計算が行われており、反応の種類としては電子対生成、コンプトン効果、光電効果が考慮されている。そして、これらの反応断面積を用いて、飛距離、反応の分岐比が計算される。E G S 4 に光核反応を組み込むには、上記のステップに光核反応断面積を考慮した修正をする必要がある。

現在の分岐比を $r_1$ 、 $r_2$ とすると、乱数 $\xi$  ( $0 \leq \xi \leq 1$ ) が与えられた時、

$0 \leq \xi < r_1$	電子対生成
$r_1 \leq \xi < r_2$	コンプトン散乱
$r_2 \leq \xi \leq 1$	光電効果

である。これを以下のように修正することにより、光核反応を考慮するように改良できる。

$0 \leq \xi < r_1'$	電子対生成
$r_1' \leq \xi < r_2'$	コンプトン散乱
$r_2' \leq \xi < r_3'$	光電効果
$r_3' \leq \xi \leq 1$	光核反応

さらに、生じた光核反応点  $(x, y, z)$  をファイル化し、これを MCNP<sup>(2)</sup> の線源データとして使用することで、EGS4とMCNPの連結計算が可能となる。なお、光核反応断面積は、参考文献(3)の実験データを、SALSを用いてローレンツフォームに最小二乗フィットしたものを組み込んだ。

### 3. 計算と結果

改良を行ったEGS4の動作チェックのため、34MeVの電子で鉛ターゲットを照射した場合の発生中性子数を光中性子生成断面積を組み込んだEGS4で求め、実験値との比較を行った。Fig.1 にその体系を示す。その結果をTable 1 に示す。両者の差は約10%以内で、一致している。

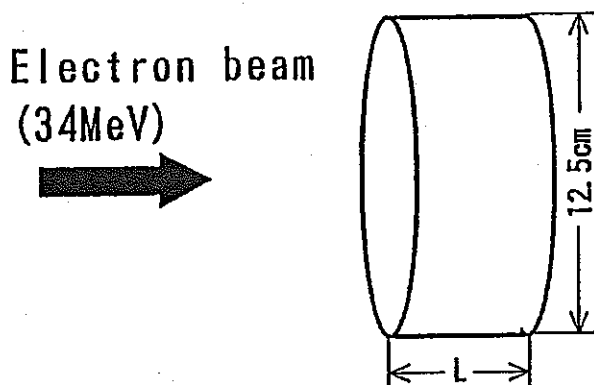


Fig.1 計算体系（入射電子数  $1 \times 10^5$ 、ターゲット：鉛）

Table 1 計算結果比較

ターゲット厚 L	Neutron Yield $\times 10^{12} [\text{s}^{-1} \text{kW}^{-1}]$			
	2.98X <sub>0</sub>	3.94X <sub>0</sub>	5.93X <sub>0</sub>	10X <sub>0</sub>
EGS4	1.09	1.31	1.64	1.74
Barber et al. <sup>(4)</sup>	1.18	1.41	1.64	
評価値 <sup>(5)</sup>				1.60

X<sub>0</sub>: Radiation length (0.56cm)

#### 4. EGS4を利用した計算例 - 加速器による $^{137}\text{Cs}$ の消滅処理法の比較 -

今までにいくつかの加速器を用いた消滅処理法が提案されている。本研究では各方法に対して計算条件を統一し、ターゲット体積をパラメータとして消滅速度（実効半減期）と目的核種を1核種消滅させるときに必要なエネルギー（消滅エネルギー）を求め、各々の消滅処理法の比較を行った。

##### 4. 1. 計算

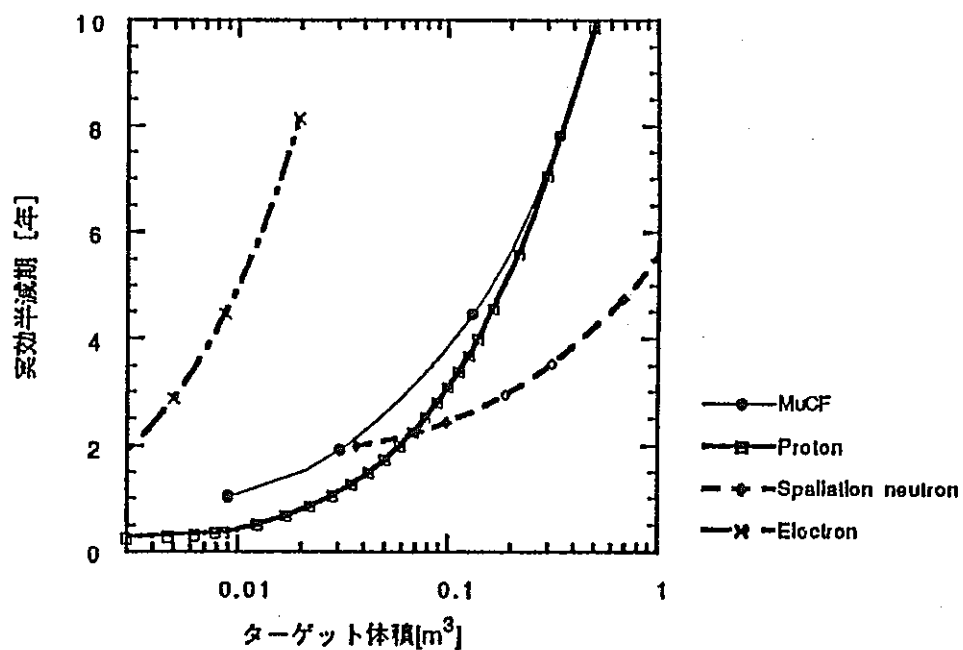
比較の対象とした消滅処理法とその計算条件をまとめてTable 2に示す。電子法は電子を直接ターゲットに入射させ、発生させた制動放射線で消滅させる方法で、主に $(\gamma, n)$ 反応を利用する。 $\mu\text{CF}$ 法はミュオン触媒核融合( $\mu\text{CF}$ )中性子を利用して、主に $(n, 2n)$ 反応で消滅させる法である。陽子を利用する方法としては、直接陽子をターゲットに入射させ、主にスボレーション反応で消滅する方法（陽子法）と陽子を鉛に入射させ発生させた2次中性子を利用する方法（スボレーション中性子法）の2種類の方法について計算を行った。どのケースもできるだけ計算条件を等しくするためモンテカルロ計算コードを使用して計算することにし、対象核種としてここでは $^{137}\text{Cs}$ を取り上げた。

Table 2 計算条件

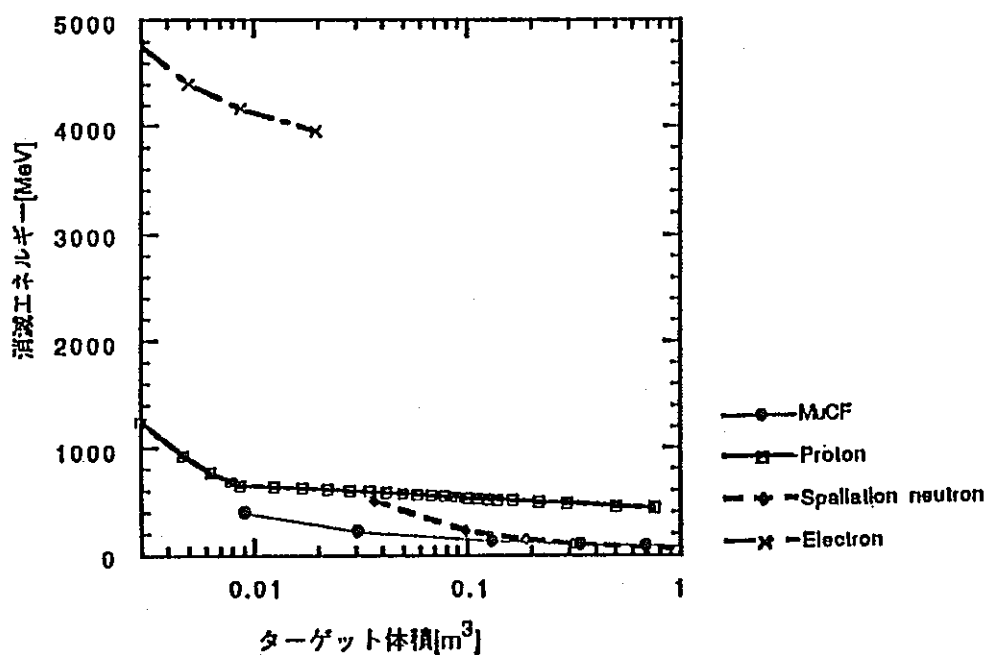
消滅処理方法	加速粒子	エネルギー [MeV]	電流値 [mA]	計算コード
電子法	$e^-$	100	2000	EGS4
陽子法	$p$	500	900	NMTC
スボレーション中性子法	$p$	1500	300	NMTC+MCNP
$\mu\text{CF}$ 法	$d$	4000	25	MCNP

##### 4. 2. 結果と考察

計算結果をFig.2に示す。Fig.2から、どの場合も $^{137}\text{Cs}$ ターゲット体積が増加するに従い、消滅エネルギーは小さくなるが、実効半減期は長くなっていくことがわかる。これは、 $^{137}\text{Cs}$ ターゲットを大きくすることによって体系外にもれ出る粒子は少なくなり、核反応数は増加するため消滅エネルギーは減少するが、核反応増加よりターゲット体積増加が大きいいため実効半減期は長くなるためである。



(a) 消滅エネルギー



(b) 実効半減期

Fig.2 ターゲット面積に対する消滅エネルギーと実効半減期の変化



次に、実効半減期を2年に設定したときの消滅エネルギーを比較したものをTable 3に示す。原子炉で $^{137}\text{Cs}$ が1核種生じるとき得られる電気エネルギーは、核分裂で得られるエネルギーを200MeV、核分裂収率6%、発電効率33%を仮定すると、 $200 \div 0.06 \times 0.33 = 1100$

より、1100MeVとなる。加速器効率を50%と仮定すると、 $^{137}\text{Cs}$ だけを消滅処理の対象と考えると、1核変換あたりに使用できるエネルギーは550MeV以下でないとエネルギー収支は成り立たない。Table 3より、 $\mu\text{CF}$ 法を除く3者は消滅処理速度、消滅処理エネルギーともに要求を満たすことが難しいことがわかる。

Table 3 計算結果

消滅処理方法	消滅エネルギー [MeV]	実効半減期 [年]
電子法	4700	2.0
陽子法	570	2.0
スプレッション中性子法	500	2.0
$\mu\text{CF}$ 法	195	2.0

#### 5. まとめ

E G S 4に $^{208}\text{Pb}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ の光核反応断面積を組み込み、これまでの電子-光子の輸送に加え、光核反応のシミュレートが行えるように改良を加えた。改良を加えたE G S 4で計算した34MeVの電子で鉛を照射した場合の中性子の収率を、実験値と比較すると約10%以内で一致した。光核反応点をファイルとして出力することより、光核反応で発生した中性子をMCNPで評価することも可能となった。また、改良を加えたE G S 4の応用として電子を利用した消滅処理の評価計算を行った。

#### 参考文献

- (1) W. R. Nelson, H. Hirayama and D. W. O. Rogers, SLAC-265 (1985)
- (2) J. F. Briesmeister, LA-7396-M (1986)
- (3) S. S. Dietrich and B. L. Berman, "Atlas of Photoneutron Cross Section Obtained with Monoenergetic Photons", UCRL-94820 (1986)
- (4) Barber et al., Phys. Rev. 116 (1959) 1551.
- (5) W. P. Swanson, "Radiological Safety Aspects of the Operation of Electron Accelerators", IAEA TECHNICAL REPORT SERIES No. 188, VIENNA, 1979.
- (6) T. Kase et al., Proc. Int. Conf. on Muon Catalyzed Fusion  $\mu\text{CF}$ -90, Vinna, May 27-June 1, 1990. (to be published in Muon Catalyzed Fusion)

放射化学討論会, 大阪大, Nov. 1 (1991)

熱中性子による  $^{90}\text{Sr}(n, \gamma)^{91}\text{Sr}$  反応断面積の測定

(原研、 勳燃 \*、東北大核理研 \*\*、名大工 \*\*\*)

原田 秀郎 \*、関根 俊明、○小林 勝利、初川 雄一

重田 典子、 大槻 勲 \*\*、加藤 敏郎\*\*\*

1. はじめに

昨年の本討論会において演者らは、 $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$ 反応の  $2200 \text{ m s}^{-1}$  中性子断面積と共鳴積分の測定について発表した<sup>1)</sup>。今回は  $^{137}\text{Cs}$ と同じく、放射性廃棄物の中でも長半減期核種として問題になる、 $^{90}\text{Sr}$ の消滅処理の可能性評価に必要な熱中性子反応断面積を測定したので報告する。なお、 $^{90}\text{Sr}(n, \gamma)^{91}\text{Sr}$  反応による熱中性子反応断面積については、これまで二つの報告があるが、約60倍も違っている( $0.8 \text{ b}^{2)}$  および  $0.014 \text{ b}^{3)}$ 。

$^{91}\text{Sr}$  は  $\gamma$  線を放出するが、 $^{90}\text{Sr}$  は純  $\beta$  線放出核種なので、 $^{137}\text{Cs}(n, \gamma)^{138}\text{Cs}$  反応の場合のように、同じ  $\gamma$  線スペクトルで生成核種とターゲット核種の  $\gamma$  線の比較が出来ない。そこで、 $\gamma$  線 (514 keV) を放出する  $^{90}\text{Sr}$  を一定量加えて  $^{90}\text{Sr}$  のトレーサとして実験を行った。

2. 実験

$^{90}\text{Sr}$  放射能はガスフロー比例計数管を用い、 $^{90}\text{Sr}$  の放射能は大型の高純度 Ge 検出器 (相対効率: 90%) により測定した。2 MBq の  $^{90}\text{Sr}$  溶液と 0.016 MBq の  $^{91}\text{Sr}$  溶液の混合溶液 ( $\text{SrCl}_2$ ) をポリエチレン製小瓶に入れ、蒸発乾固したものをターゲットとして、フラックス・モニター (Co/Al、Au/Al 合金、モリブデン線) とともにカプセルに封入し、原研の JRR-4 原子炉の T パイプで 10 分間照射した。

照射後、放射能測定上妨害となる  $^{90}\text{Y}$  を陽イオン交換法により除去した。溶離液として 2 M  $\text{HNO}_3$  を用い、 $\text{Sr}^{2+}$  イオンは  $\text{Y}^{3+}$  イオンの前に溶離した。得られた  $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$  溶液に Sr キャリアーを加え、 $\text{SrCO}_3$  の沈澱を生成させた。この沈澱を吸引ろ過し、赤外線ランプで乾燥した後、マイラー箔で包みさらにポリエチレン袋に封入して測定試料とした。

カスケード  $\gamma$  線によるコインシデンスロス を 3% 以下にするため、検出器と測定試料の距離は 7 cm とし、その間にアクリル板と鉛板を置いた。また、検出器と測定試料は、厚さ 5 cm の鉛遮蔽箱の中に格納した。 $\gamma$  線スペクトルデータは、1 時間毎にフロッピーディスクに自動的に収集した。検出器計数効率は、混合標準線源を用いて校正した。

はらだひでお、せきねとしあき、こばやしかつとし、はつかわゆういち  
しげたのりこ、おおつきつとむ、かとうとしお

### 3. 結果と考察

Fig. 1 に得られた  $\gamma$  線スペクトルを示す。750 keV および 1024 keV  $\gamma$  線ピークの崩壊曲線から半減期を求め、2 回の実験値の荷重平均値より  $8.7 \pm 0.9$  h を得た。この値は、 $^{91}\text{Sr}$  の半減期  $9.52 \pm 0.06$  h に誤差の範囲内で一致した。フラックス・モニターから求めた Westcott Convention による中性子束  $n v_0$  ( $4 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ) と熱外中性子の割合  $r$  ( $T/T_0$ ) $^{1/2}$  ( $= 0.03$ ) および  $^{91}\text{Sr}$  と  $^{90}\text{Sr}$  の放射能比から反応断面積  $\sigma = 15.3 \pm 1.3$  mb を得た。この値は、L. A. Mcvey, ら<sup>3)</sup> の報告値と一致した。

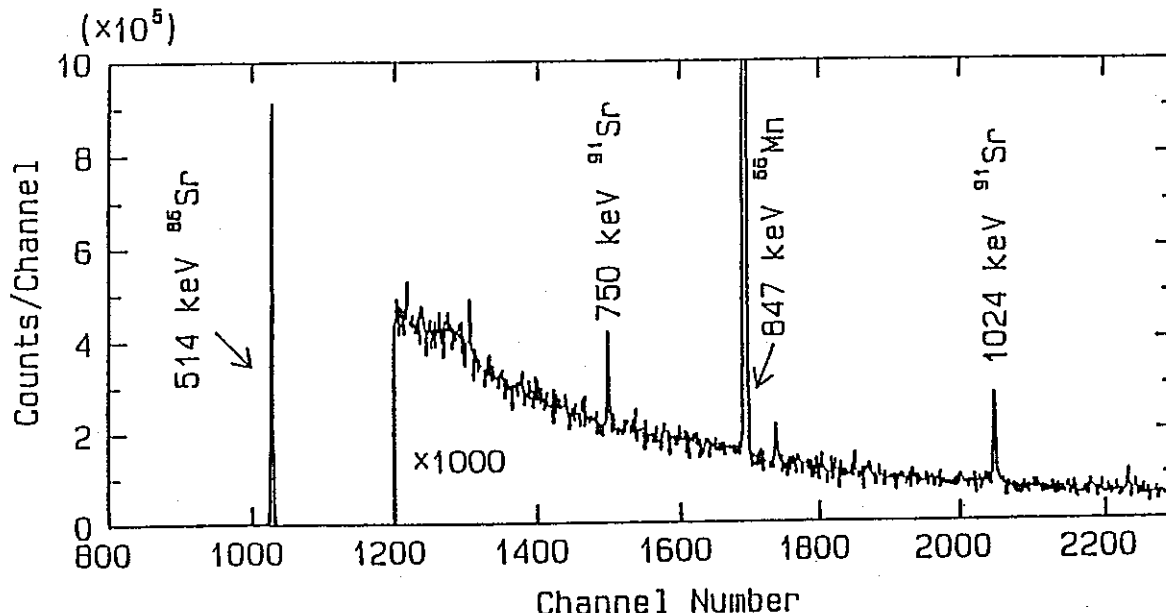


Fig. 1 Gamma-ray spectrum of a neutron-irradiated  $^{90}\text{Sr}$ – $^{91}\text{Sr}$  sample.

- 1) 関根俊明、初川雄一、小林勝利、原田秀郎、渡邉尚、加藤敏郎：第34回放射化学討論会 2A01(1990)； H. Harada, H. Watanabe, T. Sekine, Y. Hatsukawa, K. Kobayashi, T. Katoh : J. Nucl. Sci. Tech. 27, 577 (1990)
- 2) G. Zeisel : Acta. Phys. Austr. 23, 223 (1966)
- 3) L. A. Mcvey, R. L. Brodzinski, T. M. Tanner : J. Radioanal. Chem. 76, 131 (1983)

#### MEASUREMENT OF THE THERMAL NEUTRON CROSS SECTION OF THE $^{90}\text{Sr}(n, \gamma)^{91}\text{Sr}$ REACTION

Hideo HARADA, Power Reactor & Nuclear Fuel Development Corp.

Toshiaki SEKINE, Katsutoshi KOBAYASHI, Yuichi HATSUKAWA, Noriko SHIGETA, Japan Atomic Energy Research Institute.

Tsutomu Ohtsuki, Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University.

Toshio KATOH, Faculty of Nuclear Engineering, Nagoya University.