

TRU廃棄物消滅処理の研究と核データの現状

原研 中原 康明 ・ 西田 雄彦

1. はじめに

高レベル廃棄物中の半減期の長い長寿命核種を短寿命の核種に核種変換してしまえば、隔離保存に要する期間を大幅に短縮できるため、いわゆる消滅処理と言われている方法が最近再び注目されるようになってきている。FPの消滅処理については、我が国においても原子力産業会議が1973年に報告書を出すなど〔1〕、早くから注目されていたが、FP核種は核断面積が小さいため、効率が良くなく、その後も散発的な検討が行われていたにすぎない。一方、TRUW (TRansUranic Waste) については、絶対量が少ないこともあって、FPほどの緊急性が無かったことから検討が遅れていたが、最近になってTRUWの処理処分法及び高速炉や加速器の技術の利用法としての消滅処理の研究が具体化しつつある。

消滅処理の方法としては、専焼原子炉と加速器利用方式の二つの構想が提案されているが、本報告では加速器利用方式の研究とそれに関連した核データの現状について述べる。

2. TRUW消滅処理の基本構想

加速器としては陽子リアックを用いる。その理由は、陽子リアックは大電流ビームを連続的に加速できることという工学的利用上の要求に応えられる利点を持っていることである。実用規模の加速器としては、陽子エネルギー1.5 GeV、陽子ビーム強度300 mAのものが想定されている。これは元来加速器増殖の構想の中で最適化された加速器条件であったが、我々の予備的な検討では消滅処理の場合も同じ条件で良いという結果が得られている。

ターゲットにTRUWを配置し、陽子の直接照射によるスポレーション反応を利用して超ウラン核種の核種変換処理を行うと同時に、その際大量に放出される中性子は核分裂性物質の生産に利用しようというのが我々の基本構想である。このスポレーション中性子を消滅処理に振り向けることも勿論可能である。

ブランケットをターゲット周辺に配置し、そこで核燃料増殖を行わせる複合方式の設計からターゲット・ブランケット一体型システムで消滅処理を行う専焼方式の設計に至るまで、単基当りの処理量への要求に応じて幅広い設計上の自由度があることも加速器利用方式の利点である。複合方式についての我々の予備検討の結果では、ターゲット中で1000 MWe LWR約4基分のTRUWを処理すると同時にブランケット中で同型LWR約4基の核分裂性核種消費分を生産することが可能である。一方、専焼方式では同型LWR10基分の消滅処理ができるというBNLの試算もある。〔2〕 勿論、これらの値は、あくまでも予備解析的なものであり、最適設計のターゲット・ブランケットに対するものではなく、解析手法やターゲット・ブランケットの設計についての今後の研究の進展によって変わり得るものであることを御承知置き頂きたい。

3. 消滅処理研究の課題と現状

消滅処理研究上の課題としては、先ず次の三つの問題を解決する必要がある。

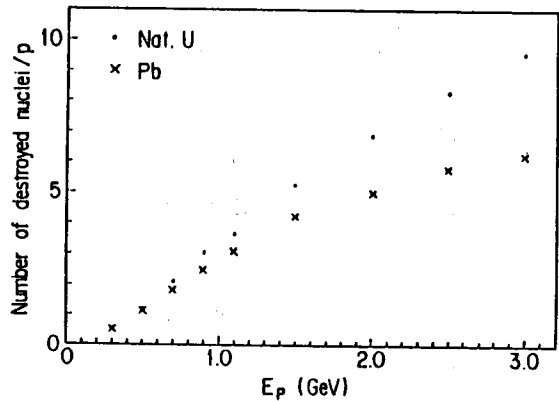
(1) 陽子によるスポレーションでどれだけの量の超ウラン核種を破壊できるか? スポレーション

で放出される高速二次粒子によるスポレーションも含めて考える。

(2) スポレーションの結果どんな核種がどれだけ生成されるか？

(3) 陽子で連続照射した時、種々の核種のbuild-up&decayによってactivityは時間的にどう変化するか？

課題(1)については、現在の研究レベルで十分な精度の計算が可能である。第1図には半径10 cm、長さ60 cmの天然ウラン及び鉛のターゲットに軸方向に半径5 cmの陽子ビームを打込んだ時に、入射陽子1個当り破壊される原子核の個数が示されている。1000 MWe LWR約4基分のTRUを消滅処理するためには、陽子1個で5個の原子核を破壊できれば十分である。従って、実効的にこの計算で用いたターゲットに等価なTRUターゲット(ターゲット・サイズ、核種密度分布)を設計すれば、陽子エネルギーとしては1.5 GeVあれば十分であると言える。



第1図 入射陽子1個当り破壊される原子核の個数

課題(2)については、スポレーション生成物(Spallation Product、以後SPと略記する)についての実測データの決定的な不足により、定量的な説明は未だほとんど行われていない。SPそのものについては、いん石中の核種の分析の必要からSilberbergらによりデータの収集や解析が宇宙物理の分野で行われていたが[3]、超ウラン核種については、特に工学的な大きなターゲットについては、ほとんど何も分っていないと言ってよい。薄いフォイルを用いた核物理的実験によるSPデータは若干発表されているので、我々はこれらのデータと直接比較するために、1個の原子核のスポレーション反応のみをモンテカルロ法で計算するコードNUCLEUSを開発し、実験値との比較検討を進めている。[4] 大きなターゲット中のSP分布については、理論的にも実験的にも全て今後の研究課題である。

課題(3)については、課題(2)が十分解明されないと精度の高い計算の実行は困難であるが、ORIGENコードなどを改良して行った計算が数例報告されている。[5][6] ターゲット中には陽子、中性子とパイ中間子が混在し、粒子の空間、エネルギー分布は原子炉の場合とかなり異なるので、ORIGENをベースとした計算の適用性の検討も必要であり、新しいコードの開発やデータ・ファイルの作成等も含めて、現状は全てこれから本格的な研究をスタートさせる状況にあると言ってよい。

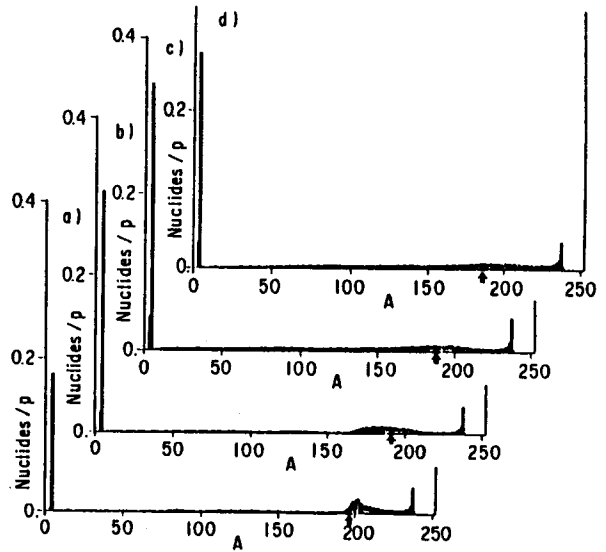
4. スポレーション生成物

スポレーションによって放出される二次粒子による核反応を全く除外し、入射陽子とターゲット原子核1個との核反応のみを計算するコードNUCLEUSを用いて行った計算結果の一部を示す。

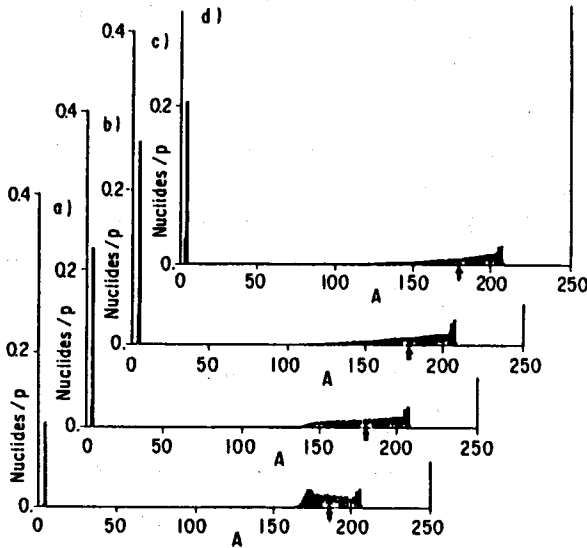
[4] ターゲットの巨視的構造が影響する大きなターゲットの場合、1 GeV で入射しても、電離損

失で陽子が減速されるので、実際に核反応を起こす陽子のエネルギーは 1GeV よりかなり低いが、ここでの計算は入射エネルギーでの核反応に対するものである。

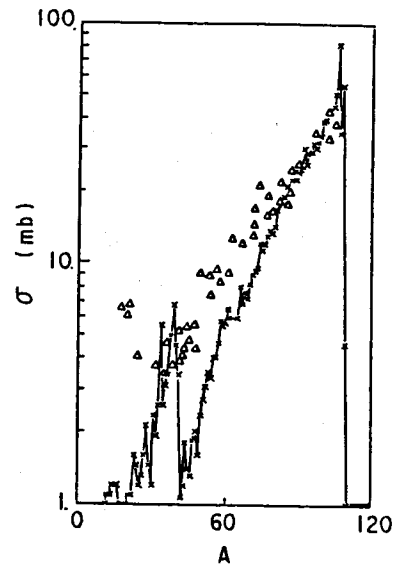
SP分布の特徴を示すために、先ず、天然ウランに対するSP質量分布を陽子エネルギー0.5-3.0 GeV の範囲で求めた結果を第2図に示す。この図から分るSP質量分布の顕著な特徴はA=200 付近におけるピークの存在である。このピークは陽子エネルギーが上がるとともに、崩れて平坦化して行くが、2 GeV 以上では大きな変化は見られなくなる。A=100 周辺に広がる台地状分布は高エネルギー核分裂による生成核種である。左端における鋭いピークは蒸発で生成されるHe-4である。SP分布の特徴は核分裂の割合が小さい鉛の場合には第3図に示してあるように、顕著にその特徴が見られる。この中間的ピークの存在は



第2図 ウラン原子核に対するSP質量分布
(a) 0.5, (b) 1, (c) 2, (d) 3 GeV
図中の矢印はSPの平均質量を示す。



第3図 鉛原子核に対するSP質量分布
陽子エネルギーは第2図と同じ。



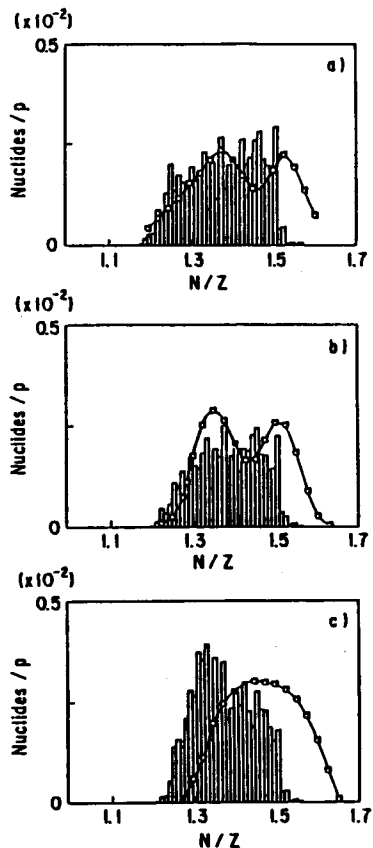
第4図 銀原子核に対するSP質量分布
陽子エネルギー= 3 GeV.
x : 計算値 ; Δ : 実験値 (Katcoff ら)

未だ実験的には確認されていないので、どこかで測定が行われることを期待している。

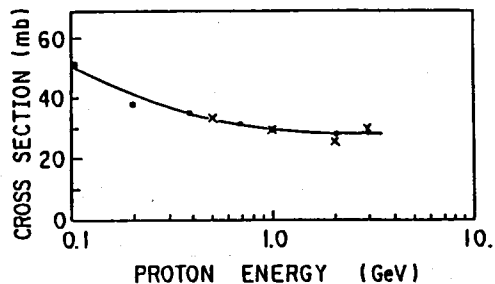
第4図には3 GeV の陽子による銀のスプレージョンの場合のSP質量分布を示してある。実験値はKatcoff らのもので、文献[3]から引用した。我々の計算で極端に値が小さい成分は計算では未だ考慮されていないfragmentation と呼ばれる核反応に対応する部分と考えられる。Fragmentation は非平衡状態にある高励起核からNaやHgのような大きな粒子が放出される反応で、そのメカニズムは未だ解明されていない。

一方、SPの電荷分布を見るために、Friedlander らのデータ[7]と我々の計算結果を示したのが第5図である。これは天然ウランの反応生成物のうち $A = 125-140$ の核種だけを集めて、中性子数と陽子数の比 N/Z に対してプロットしたものである。この質量の範囲では高エネルギー核分裂による成分が主体であり、主な安定核の N/Z は約1.4で、図中で黒い四角でしめされている。多少のずれはあるものの、測定値は陽子エネルギーに関係なくおよそ対称的な分布になっているが、計算値は中性子欠損核側(左側)に偏っている。この原因は二つ考えられる。一つは質量公式である。我々は主としてCameronの質量公式を用いているが、これは古いデータに基づいているので、特に安定ラインから離れた核種への適用性に問題があると考えられる。事実、最新のデータを取入れた宇野・山田の質量公式[8]を用いた我々の試算では、中性子過剰側(右側)の不一致はかなり改善されている。もう一つの原因は核分裂片の質量数と電荷数をサンプリングする方法間の不整合である。質量数の決定には半実験的な確率分布、電荷数にはPick-PichakらのCameronの質量公式に対応する確率分布が用いられており[9]、両者間の不整合性を吟味し、改良する必要があると考えられる。

このように分布量においては計算値と測定値の間に未だ大きな不一致がみられるが、全断面積といった積分的データについては、現在の計算法でもかなり良い結果が得られている。第6図は、ウランの核反応で生成される $A = 131$ の生成物に対する全同重核断面積(total isobaric cross section)を陽子エネルギーに対して示したもので、測定値[7]と計算値は良い一致をしめしている。



第5図 ウラン原子核に対するSP分布 ($A = 125-140$)、ヒストグラム：計算値； 曲線：実験値 (a) 2.9, (b) 1, (c) 0.38 GeV



第6図 ウランの $A = 131$ に対する全同重核断面積 x：計算値； ・及び曲線：測定値[7]

5. スポレーションのシミュレーション計算に必要な核データ

スポレーションのシミュレーションは核反応の素過程をモンテカルロ法で追跡する方法によって行われる。スポレーションは二段階モデルで模擬される。第一段階は、核内に飛込んだ陽子によって起こされる核内の核子・核子散乱であり、核子としては陽子、中性子の他に非弾性散乱で放出されるパイ中間子も含めて計算される。

核子のカスケード計算に必要な核データ：

核半径

核子（陽子、中性子）の核内密度分布

フェルミ・エネルギー分布

質量公式（結合エネルギーの計算に用いる。）

核子・核子（N, N）散乱データ：

(p, p), (p, n) 弾性散乱断面積、微分断面積（角度分布）、
非弾性散乱断面積（1π生成、2π生成）

(π⁺, p), (π⁰, p), (π⁺, n), (π⁰, n)

弾性散乱断面積、微分断面積、電荷交換断面積、
吸収断面積、非弾性散乱断面積（1π生成）

第1表 核子・核子散乱データの現状

Channel	Lab energy (MeV)	Source	Date	Completeness*
pp → pp	25, 50	Rutherford PLA	1960-1965	8
	140	Harvard, Harwell, Orsay	1954-1968	8
	210	Rochester	1957-1966	8
	325	Berkeley	1954-1957	6
	425	Chicago, Carnegie	1954-1968	7
	445-580	SIN	1976-1984	9
	650-800	LAMPF	1976-1984	8
	970	Gatchina	1980-1982	7
np → np	50	UC Davis	1975-1978	4
	140	Harvard, Harwell, Orsay	1952-1967	7
	210	Rochester	1952-1968	6
	220-500	TRIUMF	1976-1980	8
	630	Dubna	1967-1976	3
pp → dπ ⁺	800	LAMPF	1976-1984	5
	300-500	TRIUMF	1976-1984	5
	445-580	SIN	1979-1984	9
pp → pπ ⁺	500-800	LAMPF, SIN	1979-1984	9
	420-510	TRIUMF	1980-1983	6
	650, 800	LAMPF	1978-1984	3

* The column labelled completeness gives a subjective impression on a scale of 10, with a passmark of 5.

D. V. Bugg: Ann. Rev. Nucl. Part. Sci.,
35, 295 (1985).

核反応の第二段階は核内カスケード終了時の高励起残留核の崩壊で、これは高エネルギー核分裂と粒子蒸発の競争過程として取扱われる。[9]

核分裂と蒸発計算のために新たに必要となる核データ：

エネルギー単位密度パラメータ

逆反応断面積

クーロン障壁パラメータ

これらの基本データの中で(N, N)散乱データ以外のものは、データ量も少なく、評価・改良も比較的に行なえるが、(N, N)データ・ファイルの整備・改良は、データ量が多いので、一研究グループで行うには負担が大きく、国際協力による作業が望まれる。現在用いられている(N, N)散乱データ・ファイルは主として1960年以前の測定値に基とずいているので、その後の精度の良い測定データを取入れて、再評価する必要がある。特に、第1表に示されているように、SIN TRIUMFやLAMPFで精力的な測定が行われており、これらの最近の成果を取入れる必要があろう。実験データを評価し、更に実験データでカバーし切れないデータを補強するためにも、クォーク・モデル等による理論計算の研究を進めることも重要である。

6. 消滅処理計算に必要な核データ

陽子によって連続的に照射されるターゲット内での核種のbuild-upとdecayを計算するためには、通常の核分裂炉の中のburn-upの計算に用いられる核データを必要とするほか、新たに次の核データも必要となる。

新たに必要となる核データ：

(1) 陽子、中性子に対するスポレーション断面積： $\sigma_i(E_p)$, $\sigma_i(E_n)$

i：超ウラン核種及びSP核種

$20 \text{ MeV} \leq E_p, E_n \leq 1.5 \text{ GeV}$

(2) SP核種の生成率： α_{ij}

j核種のスポレーションによって生成されるi核種の割合

(3) 原子炉ではできない様な新しい核種(主に中性子欠損核)の核データ

これらの核データについては、測定例も未だ少なく、従ってデータ・ファイルの作製作業も未だ着手されておらず、わずかに断片的なデータ集[10]や文献調査報告[11](これには関連文献がほとんど洩れなく収録されている)などが入手できるに過ぎない。この分野の核データに関しては、全てが今後の研究課題である。

スポレーション関連の核データを巡る最近の国際的な動きとしては、今年の5月にBNL・NNDCの呼掛けで1000 MeVまでをカバーする陽子、中性子に対する核データに関するワーキング・グループ(MENDWG=Medium Energy Nuclear Data Working Group)の第1回会合が開催されたことは特記すべきことである。[12] その会合では今後の活動方針として、NNDCと協力して次の7項目の活動を組織し、支援することが確認されている。(原文のまま)

1. Index the bibliography.
2. Compile and exchange relevant experimental data.
3. Intercompare nuclear model codes.

4. Validate nuclear model codes in the calculation of differential and integral benchmark experiments.
5. Compile list of discrepancies between calculation and experiment.
6. Recommend future work.
7. Periodically return to Step 5 and iterate until convergence is achieved.

なお、1987年秋にBNLで中高エネルギー核データに関する国際シンポジウムの開催が予定されている。

7. おわりに

スポレーション反応モデルの改良や拡張、(N, N)散乱データ・ファイルの更新、スポレーションに関する核物理的実験研究、核データの生産、収集、評価及びファイル化、SP核種のbuild-up & decay計算コードの開発、大きなターゲットによる炉物理的実験と理論解析等、今後の研究課題は山積している。スポレーション反応モデルについては、現在の計算モデルでは考慮されていない前平衡状態からの粒子蒸発過程とフラグメンテーション過程を組込む必要がある。SP核種分布を精度良く求めるためには、フラグメンテーションの考慮が重要であるが、未だ計算に使えるようなモデルは提案されていないため、先ず、使いものになるモデル、それもモンテカルロ法に適した出来るかぎり簡単なものを考案する必要がある。

研究活動にもcritical massが存在すると考えられ、一つの研究分野での活動が順調に発展するためには、研究者数が一定数以上になることが必要であり、スポレーションの分野においても一人でも多くの人に参加されることが今後の発展のために必要である。大出力陽子リニアックの開発も消滅処理技術の実用化のためには不可欠であり、加速器工学における今後の研究の進展に期待する。

参考文献：

- [1] 日本原子力産業会議：核分裂生成物等総合対策懇談会報告書 -放射能クローズドシステムの構想一、1973、日本原子力産業会議。
- [2] Takahashi, H. : 私信、1986。
- [3] Silberberg, R., Tsao, C.H., : Astrophys. J. Suppl. Series, No. 220(1973).
- [4] 西田雄彦、中原康明、筒井恒夫：JAERI-M 86-116(1986)。
- [5] Atchison, F. : RL- 81-006(1981)。
- [6] 松本高明：日本原子力学会61年分科会、F32(1986)。
- [7] Friedlander, G., et al.: Phys. Rev., 129, 1809(1963)。
- [8] Uno, M., Yamada, M. : INS-NUMA-40(1982)。
- [9] 中原康明、筒井恒夫： JAERI-M 82-198(1982)。
- [10] 中原康明、西田雄彦： JAERI-memo 59-270(1984)。
- [11] Arthur, E.D., Madland, D.G., McCallen, D.M. : LA-10699-MS(1986)。
- [12] Pearlstein, P. : BNL-NCS-38404(Informal Report, Limited Distribution)(1986)。