

核物理屋から見た核消滅

(理化学研究所) 郷農 靖之*

1. まえがき

数年前に動燃の核消滅ワーキンググループに顔を出すようになって、筆者はこの問題に関与する事になった。当時私が参加したワーキンググループでは核分裂片 (FP) の核変換に使う核反応として (γ, n) 反応を検討していたが、核消滅のための核変換法に必要なエネルギー収支に困難があった。エネルギー収支成立の困難はFP核変換に関する他の多くの方法にも共通しており、現在の技術でそれを解決出来る方法は未だ見いだされていないと言うべきであろう。他方核変換をするための核反応で最低限要求されるエネルギーは、反応のQ値でありそのエネルギーはエネルギー収支が成立するのに十分に小さい。従って、多くの場合核反応に用いる入射粒子のエネルギーが大部分核反応以外に消費されていることになっている。このことは核変換のエネルギー収支を成立させる方法を考える場合の1つの指針と

して、入射粒子エネルギーの核反応以外に消費されたエネルギーを出来るだけ回収し易い形で系内に残す方法を見つけることを挙げて良いように思われる。本報告では、この点に留意しながら幾つかの方法について検討を試みる。

2. 核変換対象核種

表1に原子炉の使用済み燃料の再処理で生ずる高レベル廃液中に存在する核変換の対象になる核種の半減期と生成量を示した。これを重量比・放射能比で円グラフに示したものが図1である (中の円が重量比、外の円が放射能比)。これらの中でどの核種を消滅

表1 主な消滅対象核種

核種	半減期 (年)	生成量	
		(Ci/y)	(kg/y)
FP			
85Kr	11	3.0×10^6	0.79
90Sr	29	2.5×10^6	17.8
93Zr	1.5×10^6	81	24.0
99Tc	2.1×10^5	433	25.5
107Pd	6.5×10^6	3.8	7.0
129I	1.8×10^7	1.0	5.8
135Cs	2.3×10^6	13.5	11.7
137Cs	30	3.5×10^6	39.5
151Sm	90	1.1×10^4	0.4
TRU			
237Np	2.1×10^6	11	14.4
241Am	432	5.0×10^5	1.48
243Am	7380	801	3.03
243Cm	28.5	55	0.01
244Cm	18	5.8×10^4	0.72
245Cm	8500	4.1×10^5	0.03

* 現在の所属：九州大学理学部物理学科

すべきかは色々な考え方が出来ると思われるが、以下では主として放射能の大部分を占めている ^{90}Sr 、 ^{137}Cs を対象に考える。

3. 核変換に課せられる条件

ここで考える核変換は原子炉で発電した時に発生した廃棄物核種を対象としているので当然その核種が生成した時に得たエネルギーよりも充分に小さなエネルギー消費で核変換が出来なければならない。また対象核種は放っておいても自然に崩壊するものなのでその自然崩壊の寿命よりも早い速度で核変換出来なければ意味が無い。更に、変換過程では新たな放射性核種を生成する場合も多く取扱も含めた全過程で弱害化出来なければならない。

廃棄物核種の核変換ではこれらの条件を満たす現実的な解を見いだすことが要求される。

100万kW LWRで1年間に生成する

総原子数 : $\sim 9.5 \times 10^{20}$

総重量 : $\sim 189 \text{ kg}$

放射能総量 : $\sim 7.2 \text{ MCi}$

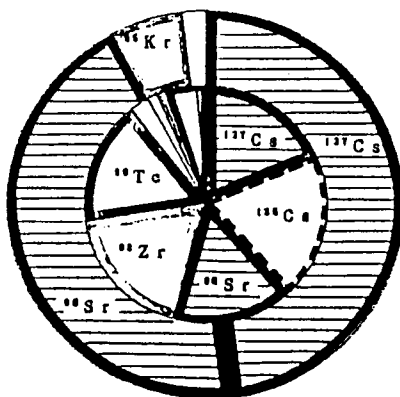


図1 高レベル廃棄物中の長寿命核種の核分裂収率と放射能

4. 核反応を使わない方法

4-1 外場の影響

原子核の崩壊が強力な外場（電場・磁場・重力・圧力・高温・極低温等）の影響下で変化しないかという問題は放射能の発見以来ラザフォードやキュリーを含む多くの研究者によって実験がなされたが結果は変化しなかった。その後 γ 崩壊では内部転換電子の過程に化合物による変化や外場による変化が観測されているが β 崩壊についてはその例が無い。

4-2 裸の原子核では β 崩壊半減期が短くなる

中性原子の β 崩壊と電子を全てはぎ取った原子核の β 崩壊では出て行く電子の終状態が増える分だけ遷移確率が増加し寿命が短くなる。一般にはこの効果は非常に小さいものであるが、核変換対象核種の1つである ^{151}Sm では中性原子の自然崩壊半減期が90年であるのに対して裸の原子核の β 崩壊半減期は8.2年になるという計算結果があ

る。但しこれを ^{151}Sm の核変換に使うことを考えると効率の良い裸イオンの生成法と長期間に亘るイオンの完全電離状態の維持が必要であり現在のところそのような方法があるとは言えない。

4-3 励起状態からの β 崩壊

β 崩壊の確率はその始状態と終状態の角運動量変化及びエネルギー差に強く依存する。従って、核変換対象核種を適当な状態に励起してやれば短い半減期で β 崩壊させられる可能性がある。しかしながら一般には β 崩壊の寿命は γ 崩壊の寿命に比して非常に長く、なんらかの選択則により γ 崩壊が非常に遅い状態になっている単位で且つ β 崩壊の寿命が短い状態が存在する場合にのみ励起状態からの β 崩壊が有意な量として期待出来る。 ^{137}Cs の場合は図2に示すように455 keVの励起状態から ^{137}Ba の基底状態への β 崩壊の寿命としては約1時間と評価でき基底状態に比べて寿命は非常に短いとその状態からの γ 崩壊寿命が 10^{-10} 秒程度と考えられるので 10^{18} 個の ^{137}Cs をこの状態に励起した時に1個が β 崩壊することになり極めて効率が悪い。この状況は ^{90}Sr の場合にも同じである。

廃棄物核種の中では ^{86}Kr に上記の条件に合う状態が存在するので、以下でその励起状態をクーロン励起で励起する場合についてエネルギー収支を

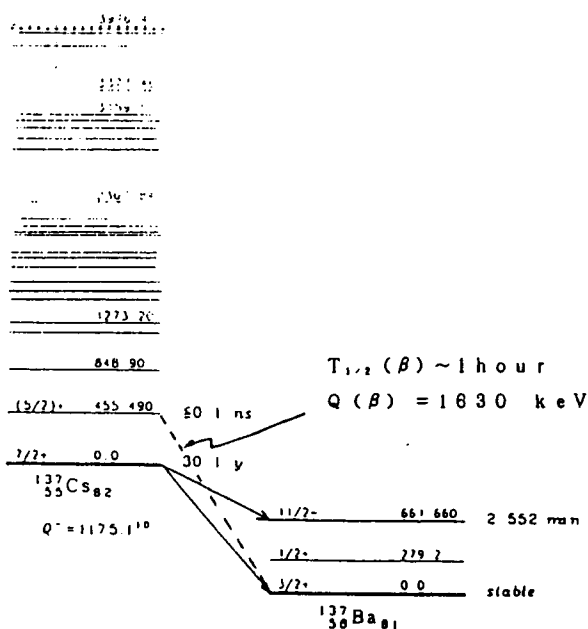


図2

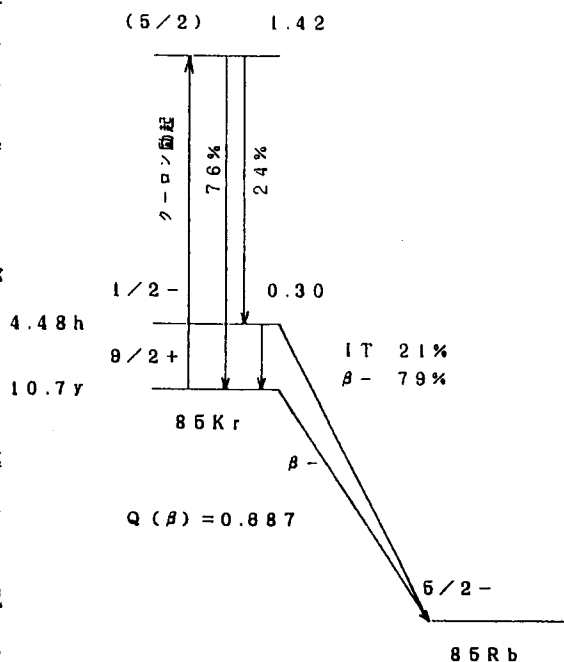


図3

検討する。 ^{85}Kr の励起状態と崩壊様式の中ここでの議論に必要な部分を図3に示した。

^{85}Kr の励起エネルギー300 keVにある核異性体は半減期4.48時間で基底状態の半減期10.7年に比して十分に短く、その状態の79%が β 崩壊する。従って、この状態を効率よく生成出来れば核変換の手法として考えられる。しかしながら、核異性体は γ 崩壊の遷移強度が小さいために生じている状態なので一般には直接励起することは困難である。そこで他の励起状態、 ^{85}Kr の場合は1.42 MeVの励起状態を中間状態としてそれを通して核異性体を生成する方法が考えられる。その例として、ここでは新たな放射性核種を生成しないクーロン励起での核異性体生成を考える。この時、以下のような評価ができる。

標的： ^{208}Pb （原子番号が大きい方が有利）

^{85}Kr 入射エネルギー：564 MeV (= 6.6 MeV/核子)

（このエネルギーは $^{85}\text{Kr} + ^{208}\text{Pb}$ 反応のクーロン障壁に相当し新たな放射性核種を生成しない）

標的の厚さ：5.34 mg/cm²（標的中のエネルギー損失を考慮して有効なエネルギー範囲を6.6 MeV/核子→5.6 MeV/核子とした）

反応断面積： ~ 0.3 barn

この条件での入射 ^{85}Kr イオン1個当りの反応確率は、

$$P = 0.3 \times 10^{-24} \times (5.34 \times 10^{-3} \times 6.02 \times 10^{23}) / 208 \\ = 5 \times 10^{-6}$$

これに、今対象としている ^{85}Kr の核異性体の β 崩壊及び γ 崩壊の分岐比を考慮すると、核変換の割合は、

$$P' = 5 \times 10^{-6} \times 0.24 \times 0.79 \\ = 1 \times 10^{-6}$$

になり、1個の ^{85}Kr 原子核を ^{85}Rb に核変換するのに要するエネルギーは、

$$E_0 = 564 / (1 \times 10^{-6}) = 564 \times 10^6 \text{ MeV}$$

と言う非常に大きなものになっている。このように大きなエネルギーを要した理由の最大のものは荷電粒子 ^{85}Kr の標的中のエネルギー損失で、その運動エネルギーを熱エネルギーつまり標的中の電子の運動エネルギーに転化したためである。そこでもしも完全電離した ^{208}Pb が標的に出来たとすると ^{85}Kr のエネルギー損失は10⁴倍程度小さく出来、上記の E_0 は 5.64×10^4 MeVまで小さくなる。これでもなお且つエネルギー収支は成立せず残るエネルギーは ^{208}Pb の反跳エネルギーに転化しておりこれをなんらかの方法で有効に回収出来なければこの方法のエネルギー収支は成立しない。

5. 加速器のビームによる核反応を用いた核変換

先に3項で述べたように、核変換が意味を持つためには核変換速度が速く、且つエネルギー収支が成立する必要がある。加速器からのビームで核変換を行う場合、その半減期 $T_{1/2}$ は、反応断面積 σ 、粒子線束 ϕ 、自然崩壊定数 λ_n を使って、

$$T_{1/2} = \ln 2 / (\lambda_n + \sigma \cdot \phi)$$

と表せる、従って速い変換速度を得るには反応断面積の大きな反応と大きな粒子線束を使うのが有利である。又、エネルギー収支に関しては、ビームのエネルギー損失を出来るだけ小さくすると共に、反応に使われなかったエネルギーの効率の良い回収も必要になる。更に、発熱反応を取り込むこともエネルギー収支を良くする1つの考え方である。

表2 高レベル廃棄物中の長寿命核種の
核反応断面積

5-1 反応断面積

表2に熱中性子捕獲 (n, γ) 、光核反応 (γ, n) 、高速中性子による $(n, 2n)$ 反応断面積の比較を示した。 (n, γ) 反応は共鳴状態の存在状態に強く依存し核種依存性が大きい。 (γ, n) 反応は巨大共鳴を利用するもので核種依存性は小さいが大きい反応断面積は望めない。それらに比して $(n, 2n)$ 反応では断面積も比較的大きく核種依存性も小さくこの観点からはこの3種類の反応中、核変換に最も適した反応と言える。因みに、 ^{137}Cs と ^{90}Sr について、これら

核種	σ (n, γ) barn	σ_{phot} (γ, n) barn	σ_{fast} $(n, 2n)$ barn
^{86}Kr	● 1.66	● 0.2	● $\approx \sigma(p, 2n)$ 1.3
^{90}Sr	● 0.014	● 0.21	● 1.6
^{92}Zr	● 2.24	● 0.21	● 1.4
^{98}Tc	● 1.0	● 0.24	● 1.23
^{126}Sn	● 0.09	● 0.36	● 0.9
^{129}I	● 0.98	● 0.32	● 1.66
^{136}Cs	● 0.7	● 0.32	● 1.6
^{137}Cs	● 0.25	● 0.32	● 2.3
^{151}Sm	● 2.48	● 0.32	● 1.8

の核反応で生成する核種を半減期と共に図4に示した。

5-2. エネルギー収支

加速器を使った核変換のエネルギー収支では、核分裂で得たエネルギーに対して核変換対象核種の生成率だけでなく電気エネルギーからビームエネルギーへの変換効率も考慮しなければならない。これらを考慮した時に図5のような評価で得られる変換対象核種1個を変換する時のビームエネルギーの上限値として $\sim 100 \text{ MeV}$ という値が得られる。

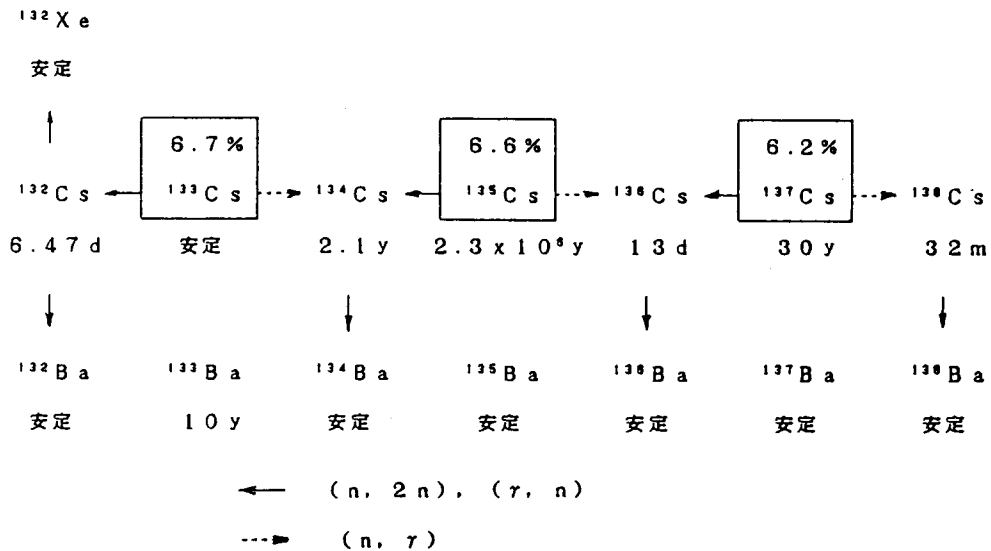


図 4

勿論、これは上限値で、この値よりも充分に小さいエネルギーで核変換出来なければ实际的でない。ここで、小無氏等動燃グループの種々の方法についての試算を表3に示す。いずれの方法でもエネルギー回収を上手にしなければエネルギー収支が成立しないことが分かる。

5-3 高速中性子による核変換

5-1 で見た通り、中性粒子を使う核反応では核反応断面積の観点から核変換には (n, 2n) が適している。又、高速中性子の発生反応には発熱反応も幾つかありエネルギー収支の点からも有利である。過去にもトカマック型核融合炉のブランケット領域に ^{137}Cs 等を装荷して核変換を行うことが検討されている。ここでは、廃棄物の核変換を主眼とするので中性子発生にD + t反応を用いるのはt自体が取扱が容易でない放射性核種で

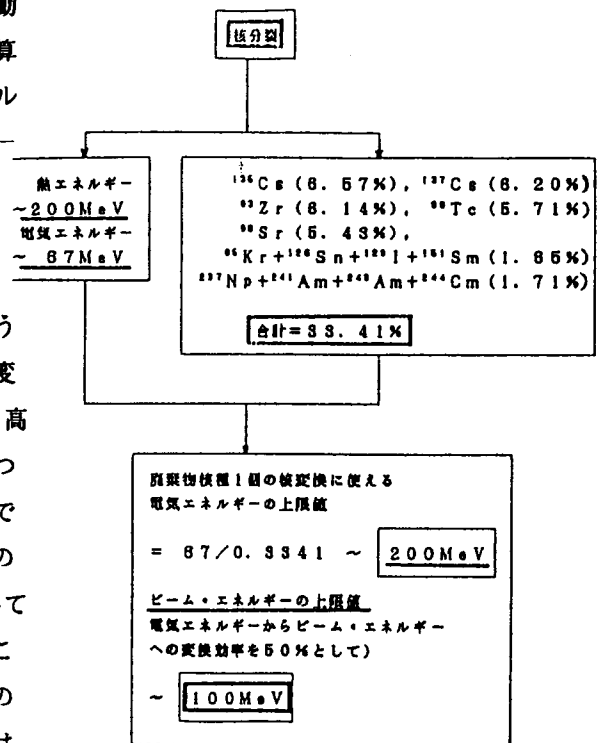


図 5

表3 Transmutation energy* of ^{137}Cs Effective half life : 2 years
Target : cylinder

Transmutation method	Accelerated particle	Energy [MeV]	Current [mA]	Calculation code	Transmutation energy [MeV]
Electron method	e^-	100	2000	EGS4	4700
Proton method	p	500	900	NMTC	570
Spallation neutron method	p	1500	300	NMTC+MCNP	510
μCF method	d	4000	25	MCNP	200

* Transmutation energy is the energy required for transmutation of one object nuclide.

あることから、 $D + {}^7\text{Li}$ 反応を用いることを考える。又、照射領域を中心軸に置き高束中性子の照射の効率を上げ、更にエネルギー収支を良くするために磁場で閉じ込めた完全電離 ${}^7\text{Li}$ イオン（自由イオン標的）を5 MeV程度の重水素ビームで照射して高速中性子を発生する方法を検討する。この場合、入射ビームは重水素の分子ビームとし中心部に10 keV程度の電子を流して置いて重水素イオンを解離させミラー磁場中の花形軌道に閉じ込める。自由イオン標的はビームのエネルギー損失が極端に小さいと考えられるので、このような方法で重水素ビームの標的との相互作用領域を長くする。

以上の考えに基いた核変換用高速中性

子発生装置の概念図を図6に示した。この装置でFP廃棄物核種の核変換を考えた時に、この系に必要な条件をまとめたのが表4であり、その時のエネルギー収支を図7にまとめた。この方法は図7で分かるように実現出来ればエネルギー収支が成立する可能性を持っているが自由イオン標的等更に検討すべき多くの点を含んでいる。

6. まとめ

以上、私なりに核分裂片の短寿命化（核消滅）を考えてみたが、核反応を用いないうまい方法は見あたらず、核反応を用いても現在即適応出来るものはないとの結論に達してしまい、現段階では少しでも可能性のある方法のための開発研究を進める以外に方法が無いように思われる。

表4

必要条件

核変換速度: $\lambda_{1,2} = \sigma \phi$, $T_{1,2} = \ln 2 / \lambda$ $\sigma = 1.6 \text{ b}$, $T_{1,2} = 1.4 \text{ y}$ $\phi = 10^{19} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$

↓

○ 系中のイオン密度: $2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ (d, ${}^7\text{Li}^{3+}$ 共)100万kW・LWRの ^{137}Cs 生成量 $\sim 40 \text{ kg/y}$ (= $5 \times 10^{18} \text{ atoms/s}$)

↓ 1.4年で半分

核変換速度: $2 \times 10^{18} \text{ s}^{-1}$ ↓ 中性子利用効率 $= 0.08$ $3 \times 10^{18} \text{ (d, n) s}^{-1}$

↓

○ ビーム補給電: 5 A (d $^+$)2.5 A (D $_2^+$)

○ ビームエネルギー: 10 MeV

○ 磁場強度 $\sim 5 \text{ T}$

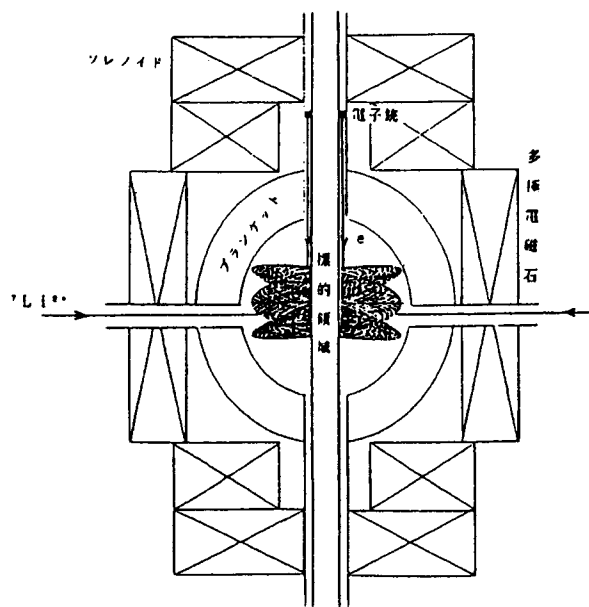


図6 核変換用高速中性子発生装置

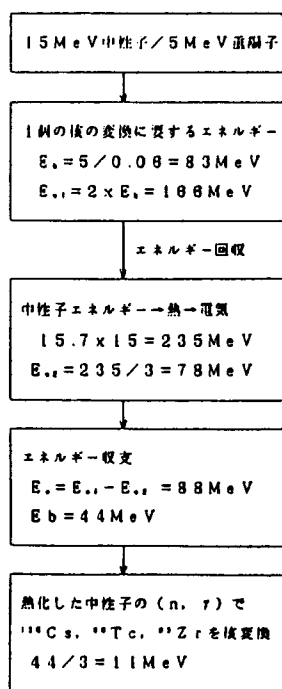


図7 (n, 2n) 反応による核変換のエネルギー収支