

長寿命核廃棄物の核変換処理技術開発のための中性子捕獲反応断面積の系統的研究
Systematic Study on Neutron Capture Reaction Cross Sections for the Technological Development of Nuclear Transmutation of Long-Lived Nuclear Wastes

井頭 政之 (IGASHIRA MASAYUKI)
東京工業大学・原子炉工学研究所・教授



研究の概要

長寿命核廃棄物の核変換処理技術開発のための中性子捕獲反応断面積データベースの高精度化に資することを目的とし、長寿命核廃棄物等の中性子捕獲反応断面積等の高精度測定、測定結果の統一的理論解析、長寿命核廃棄物の中性子捕獲反応機構の解明、測定できない核種・中性子エネルギー領域の中性子捕獲反応断面積の理論計算による提供を行っている。

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：炉物理・核データ

1. 研究開始当初の背景

核分裂炉で生成される長寿命核廃棄物（長寿命核分裂生成物：LLFP、及びマイナー・アクチニド：MA から成る。）の処理・処分については、他の放射性核種と共にガラス固化・一時貯蔵・地中埋設が我が国の今日の国策となっている。

しかし、長寿命核廃棄物を分離・抽出して、安定核種に核変換処理すれば、地中埋設における環境負荷を大幅に軽減することができる。また、長寿命核廃棄物は遠い子孫にとっては負の遺産であるという倫理学的問題も解決することができる。

このように、長寿命核廃棄物の核変換処理・処分は非常に重要な技術開発課題である。中性子核反応を用いた核変換が現実的技術として期待されており、本研究対象の中性子捕獲反応は最も重要な核変換反応である。しかし現在、核変換処理技術開発を推進するために必須な中性子捕獲反応断面積データベースの精度は極めて不十分であり、データベースの高精度化が喫緊の課題である。

2. 研究の目的

本研究では、長寿命核廃棄物等の中性子捕獲反応断面積等の高精度測定、測定結果の統一的理論解析、長寿命核廃棄物の中性子捕獲反応機構の解明を行い、測定できない核種・中性子エネルギー領域の中性子捕獲反応断面積を理論計算により提供し、中性子捕獲反応断面積データベースの高精度化に資する

ことを目的とする。

3. 研究の方法

大強度核破砕パルス中性子源を用いた「大強度陽子加速器施設 物質・生命科学実験施設 中性子核反応測定装置 (J-PARC MLF ANNRI)」での熱領域から keV 領域までの広い領域での長寿命核廃棄物の中性子捕獲反応断面積の高精度測定を中心に据え、これまで実績を有している東京工業大学ペレトロン加速器施設での keV 領域の測定と京都大学電子線形加速器施設での熱領域から eV 領域の測定を合わせて行い、重複する核種・中性子エネルギーに対する結果を比較することにより、施設固有の認識不可能な系統誤差に関する情報を得、得られた情報を基にこの系統誤差を極力排除し、信頼性の極めて高い測定結果を導出する。導出された信頼性の高い断面積と捕獲ガンマ線スペクトルの測定結果を同時に理論解析することにより、長寿命核廃棄物の中性子捕獲反応機構を解明して捕獲反応断面積の理論予測精度を飛躍的に向上させ、測定できない核種・中性子エネルギー領域の捕獲反応断面積の精度良い計算値を与える。

4. これまでの成果

これまでの主な成果は以下の通り。

(1) ANNRI での測定

1) Ge 検出器を用いた測定

(a) LLFP 及びその安定同位体の測定

LLFP 試料は使用済み核燃料から製造され、通常は化学分離しか行われないため、多くの LLFP 試料中にはその安定同位体も含まれる。そのため、LLFP の中性子捕獲反応断面積を測定する場合、安定同位体の中性子捕獲反応断面積も必要になってくる。そこで、Se、Zr、Sn、Pd 等の安定同位体試料について測定を行った結果、多くの新共鳴や評価済み核データの誤りを発見した。

LLFP 核種としては、Zr-93、Tc-99、Pd-107、I-129 の測定を行った。その結果、Pd-107 を例にとると、過去に報告されている Pd-107 のいくつかの共鳴が、試料中の不純物に起因する共鳴を誤って同定したものであること等を明らかにした。

(b) MA の測定

Cm-244 及び Cm-246 の中性子捕獲反応断面積を 1~300 eV の中性子エネルギー範囲で測定した。Cm-244 の 7.7eV 及び 16.8 eV 付近、Cm-246 の 4.3eV 及び 15.3 eV 付近の共鳴は世界で初めて測定結果となった。

Am-241 の中性子捕獲反応断面積を 0.01~10 eV の中性子エネルギー範囲で測定した。この結果より、放射化法による熱中性子捕獲反応断面積の決定に用いられる Westcott 因子を 1.02 ± 0.01 と求めることができ、中性子捕獲反応断面積の再評価に重要なデータを得ることができた。

2) NaI(Tl)検出器を用いた測定

(a) NaI(Tl)のデータ収集系高速化

100keV 領域までの測定を可能にするため、NaI(Tl)検出器出力のパルス幅測定に基づく新しいデータ処理法を開発し、NaI(Tl)検出器のデータ収集系の高速化を行った。

(b) LLFP 及びその安定同位体の測定

上記の高速化したデータ収集系を用いて、Tc-99 の中性子捕獲反応断面積測定を行った。その結果、熱領域から 100 keV までの中性子捕獲断面積を測定できた。

(c) MA の測定

Np-237 の中性子捕獲反応断面積を 0.01~1000 eV のエネルギー範囲で導出した。この結果より、Westcott 因子を 0.99 ± 0.01 と導出し、また、熱中性子捕獲反応断面積を $177 \pm 5[b]$ と導出できた。

(2) 東工大での測定

高中性子エネルギー領域の測定値及び施設固有の認識不可能な系統誤差についての情報を得るために、 ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ パルス中性子源と大型コンプトン抑止型 NaI(Tl)検出器を用いて、Pd-104,105,106,108,110 等について、15~100keV 及び 550keV 付近の中性子エネルギー領域で測定を行い、捕獲反応断面積及び捕獲ガンマ線スペクトルを導出した。捕獲ガンマ線スペクトルについては世界初の測定結果である。

(3) 京大での測定

施設固有の認識不可能な系統誤差につい

ての情報を得るために、電子線形加速器中性子源を用いて、熱~eV 領域の中性子捕獲反応断面積測定を行った。MA 核種については一対の C_6D_6 検出器を用いて、Am-243 に対する中性子捕獲反応断面積の相対値及び共鳴積分値を導出した。LLFP 核種及び同位体核種については全吸収型 BGO 検出器を用いて、Pd-107 及び Se-74,76,77 の中性子捕獲断面積を導出した。

(4) 理論解析

Pd 安定同位体に対して、東工大での捕獲反応断面積及び捕獲ガンマ線スペクトルの測定結果に光吸収断面積の情報を加えて Pd 同位体の双極子放射に関するガンマ線強度関数を系統的に評価し、高速中性子捕獲反応の理論解析を実施した。結果として、双極子ガンマ線強度関数の 5-6MeV 付近にピグミー共鳴を発見した。また、Pd 同位体の keV 領域の捕獲反応断面積が、評価済み核データライブラリ JENDL-4.0 の断面積と比較して 8-24% 小さくなることを示した。

5. 今後の計画

ANNRI での測定では、当初計画した核種で未測定核種の測定を実施し、測定データ解析を行い、最終結果を導出する予定である。なお、時間的余裕が有る場合は、当初計画に無い核種についても積極的に測定を実施する予定である。

東工大と京大での測定については、ANNRI での測定状況を考慮して、適切な核種についての測定を行う予定である。

理論解析においては、測定結果を基に解析を進め、測定できない核種・中性子エネルギー領域の捕獲反応断面積の精度良い計算値を与える予定である。

6. これまでの発表論文等 (受賞等も含む)

- Cross-section measurement of ${}^{237}\text{Np}(n, \gamma)$ from 10 meV to 1 keV at Japan Proton Accelerator Research Complex, K. Hirose et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, **50**, 188-200 (2013).
- Neutron-capture cross-sections of ${}^{244}\text{Cm}$ and ${}^{246}\text{Cm}$ measured with an array of large germanium detectors in the ANNRI at J-PARC/MLF, A. Kimura et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, **49**, 708-724 (2012).
- 国際会議発表：21 報
- 国内学会発表：16 報
- 受賞：日本原子力学会賞論文賞を受賞（平成 25 年 3 月）上記 2 番目の論文

ホームページ等

http://www.nr.titech.ac.jp/~iga/kaken_s.html

<http://www.nr.titech.ac.jp/~iga/iga@nr.titech.ac.jp>