



ジルコニウム-93の核変換 ～高レベル放射性廃棄物の低減化・資源化への挑戦～

九州大学大学院総合理工学研究院の川瀬頌一郎 学術研究員と渡辺幸信 教授、理化学研究所 (理研) ほか、東京大学、東京工業大学、宮崎大学、北海道大学、立教大学の49名からなる共同研究グループ※は、理研の重イオン加速器施設「RI ビームファクトリー (RIBF) 注1)」を用いて、長寿命放射性核種注2) のジルコニウム-93 (^{93}Zr 、原子番号40、質量数93、半減期153万年) を不安定核ビームとして取り出し、核破砕反応注3) の基礎データを取得することに成功しました。本研究は、内閣府 総合科学技術・イノベーション会議が主導する革新的研究開発推進プログラム (ImpACT) の藤田 玲子 プログラム・マネージャーの研究開発プログラム「核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化」の一環として行われました。

原子力発電所などで生じる高レベル放射性廃棄物の処理・処分問題は、日本のみならず世界的な問題です。後の世代への負担を軽減するために ImpACT 「核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化」では、廃棄物から有用元素を回収し資源として利用する方法や、長寿命核分裂生成物 (LLFP) 注2) を取り出して、短寿命核種もしくは安定核種に核変換することにより放射能を減らす方法を開発しています。共同研究グループは、有用な元素の一つとして、燃料電池や酸素センサなどの材料にも利用されるジルコニウム (Zr) に注目しました。廃棄物の Zr の中から、LLFP である ^{93}Zr を取り出すことができれば、残りの Zr 同位体を資源として利用できます。一方で、取り出された ^{93}Zr は、その放射能を減らすために核変換させる必要があります。

今回、 ^{93}Zr を核変換させるために、「陽子注4) または重陽子注4) を ^{93}Zr に衝突させて壊す反応 (核破砕反応)」に着目しました。RIBF で実用化された「逆運動学注5)」を用いることで、放射能を持った ^{93}Zr を標的にせず、高速ビームとして取り出し、それを陽子や重陽子標的に当てることで、 ^{93}Zr がどのような核種にどれだけ壊れるかを調べました。その結果、153万年という非常に長い寿命を持つ ^{93}Zr から生成された核種は、安定核種が約39%、半減期が1年以下の核種が約57%、1~30年が約0.1%、30年を超えるものが5%以下であることが明らかになりました。今後、これらの実験データは核反応理論モデルの検証や改良に使われ、シミュレーションによる核変換効率の計算や核変換のための装置設計などに反映されることとなります。

本研究成果は、国内のオンライン科学雑誌『Progress of Theoretical and Experimental Physics』9月7日 (木) 付に掲載されました。

※共同研究グループ

九州大学 大学院総合理工学研究院

エネルギー科学部門 学術研究員 川瀬頌一郎 (カワセ ショウイチロウ)

同部門 教授 渡辺幸信 (ワタナベ ユキノブ)

理化学研究所 仁科加速器研究センター

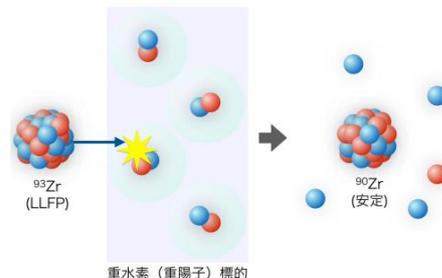
核変換データ研究グループ グループディレクター 櫻井博儀 (サクライ ヒロヨシ)

高速RI データチーム チームリーダー 大津秀暁 (オオツ ヒデアキ)

ほか、東京大学、東京工業大学、宮崎大学、北海道大学、立教大学 (全49名)

研究者からひとこと：

今後、さらに LLFP の多種多様な核変換データを取得し、より高効率な核変換法を探っていきます。



【お問い合わせ】九州大学大学院総合理工学研究院 教授 渡辺幸信

電話: 092-583-7601 / FAX: 092-583-7601 / Mail: watanabe@ees.kyushu-u.ac.jp

本成果は、以下のプログラム・研究開発課題によって得られました。
内閣府 革新的研究開発推進プログラム (ImPACT)
<http://www.jst.go.jp/impact/>

プログラム・マネージャー：藤田 玲子

研究開発プログラム：核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化

研究開発課題：高速中性子核破碎反応に関する研究

研究開発責任者：渡辺 幸信 (九州大学大学院総合理工学研究院 教授)

研究機関：平成26年10月～平成30年3月

本研究開発課題では、長寿命核分裂生成物の合理的な核変換手法を検討するために必要となる、高速中性子及び陽子・重陽子入射核破碎反応の新規データの取得に取り組んでいます。

■藤田玲子 プログラム・マネージャーのPMコメント■



ImPACT プログラム「核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化」では、高レベル放射性廃棄物に含まれる長寿命核分裂生成物 (LLFP) を加速器による新しい核変換の経路を実現することにより、廃棄物をリサイクルして資源化する方法を提案することを目指しています。加速器により核変換を効率的に行うためには種々の入射エネルギーにおける放射性核種の核変換のデータを取得する必要があります。理研のRIBFを用いるとLLFPのビームを作製できることから放射性のターゲットを準備しなくても測定することができます。今回は前回の ^{107}Pd に引き続き、LLFPの1つである ^{93}Zr の核破碎反応のデータを世界で初めて取得することに成功しました。本成果は、高レベル放射性廃棄物の低減・資源化へ向けた大きな1歩になると考えています。

【研究の背景】

原子力発電所などで生じる放射性廃棄物の処理・処分問題は、日本のみならず世界的な問題です。内閣府 総合科学技術・イノベーション会議の革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) において、藤田 玲子 プログラム・マネージャーは、この問題を解決するために、廃棄物から有用元素を回収し資源として利用する方法や、長寿命核分裂生成物 (LLFP) ^{注2)}を取り出して、短寿命核種もしくは安定核種に核変換して放射能を低減する方法を開発しています。

原子力発電所から排出される放射性核種は、ウラン燃料の中性子捕獲によって生成される「マイナーアクチノイド^{注6)}」と、ウランの核分裂によって生成される「核分裂生成物」とに大きく分けることができます。マイナーアクチノイドについては、高速増殖炉や加速器駆動型原子炉などで得られる高速中性子を利用した核変換が長年にわたって研究されており、基礎的・系統的な反応データが蓄積されています。一方、核分裂生成物については核変換に関連する反応データはほとんど取得されておらず、放射能を効率よく低減するための基盤開発や技術開発はまだ進んでいません。

共同研究グループは有用な元素の一つとして、LLFPであるジルコニウム-93 (^{93}Zr 、原子番号 40、質量数 93、半減期 153 万年) に注目しました。ジルコニウム (Zr) は、合金にして原子燃料被覆管^{注7)}に用いられ、酸化物は燃料電池や酸素センサの材料などに利用されている有用な元素です。核燃料の燃焼度 (ウランやプルトニウムが核分裂した割合) が 33GWd (ギガワットデイ、3.3%) の場合、使用済み燃料 1 トン (1,000 kg) 当たり Zr は約 3.4 kg 含まれており、そのうちの約 30% (約 1 kg) が ^{93}Zr です。この ^{93}Zr を取り出すことによって、残りの Zr 同位体 (^{90}Zr 、 ^{91}Zr 、 ^{92}Zr 、 ^{94}Zr 、 ^{96}Zr) を資源として利用することができます。一方で、取り出された ^{93}Zr は、その放射能を低減するために核変換させる必要があります。

そこで、共同研究グループは ^{93}Zr の核変換反応として、「放射性核種 (^{93}Zr) と陽子または重陽子^{注4)}を衝突させて ^{93}Zr を壊す反応 (核破碎反応) ^{注3)}」に着目しました。核破碎反応は、高エネルギーの陽子や重陽子ビームを壊したい核種 (標的核) に衝突させ、標的核を壊し、他の軽い核種に変える反応です。これまで、 ^{93}Zr の核破碎反応の確率 (核反応断面積) やどのような核種にどれだけ変わるのかについての基礎データはありませんでした。

【研究手法と成果】

共同研究グループは、理研の重イオン加速器施設「RI ビームファクトリー (RIBF)」^{注1)}を用いて ^{93}Zr を不安定核ビームとして取り出し、陽子と重陽子を標的にして照射する「逆運動学法」^{注5)}を使って ^{93}Zr がどのような核種にどれだけ壊れるかを調べました。

まず、RIBF の超伝導リングサイクロトロン (SRC)^{注8)}において、光速の約 70% (エネルギーで核子当たり 345 MeV。1 MeV は 100 万電子ボルト) まで加速したウラン-238 (^{238}U 、原子番号 92、質量数 238) ビームをベリリウム (Be) 標的に照射しました。その後、照射による核分裂反応で生成した ^{93}Zr を超伝導 RI ビーム生成分離装置 (BigRIPS)^{注9)}を用いてビームとして取り出しました。取り出したビームのエネルギーとして、核子当たり 105 MeV で実験を行いました。この高速の不安定核ビームを陽子と重陽子の標的 (二次標的) と衝突させ、反応生成物を下流のゼロ度スペクトロメータ^{注10)}で捕らえました (図 1)。

逆運動学法の利点は三つあります。一つ目は、 ^{93}Zr の厚い標的を用意する必要がない点です。この核種で純度が高く厚い標的を作ると非常に高価になり、かつ放射能が高くなります。二つ目は、ビーム種と反応生成物を一つ一つ粒子として識別できる点です。これにより、 ^{93}Zr がどのような核種にどれだけ壊れるのかを正確に調べることができます。三つ目は、陽子標的と重陽子標的の違いを調べる際に、ビームのエネルギーを揃えてデータを取得することが容易な点です。ビームのエネルギーは BigRIPS の設定で決まり、いったん設定を固定した後は、標的を変えるだけで系統的なデータを取得できます。

実験の結果、陽子または重陽子と ^{93}Zr を衝突させることで起こる核破砕反応の確率は、陽子に比べて重陽子の方が約 10~20 % 高く、ビーム核種を軽い核にする能力が高いことが分かりました。これは、陽子と中性子で構成される重陽子が ^{93}Zr と反応する際に、陽子と中性子がバラバラに反応に関与せず同時に反応するためと考えられます。

また、核破砕反応では ^{93}Zr よりも軽い原子核が生成されますが、そのうち、ニオブ-92 (^{92}Nb 、半減期 3470 万年)、クリプトン-81 (^{81}Kr 、半減期 22.9 万年) は半減期が長い放射性同位体です。また、ルビジウム-81 (^{81}Rb) は半減期 5 時間弱で ^{81}Kr に崩壊します。今回の実験で、これらの核種が生成される割合の測定にも成功しました。すなわち、 ^{93}Zr から生成された核種は安定核種が約 39%、半減期が 1 年以下の核種が約 57%、1~30 年が約 0.1% であり、30 年を超えるものが 5% 以下であることが分かりました (図 2)。また、今回の入射エネルギーでは、陽子と重陽子による核変換で生成される核種の割合は、大きく変わらないことも分かりました。

核破砕反応で利用する陽子や重陽子のビームでは、ビームを衝突させる領域を制御できるため、核破砕反応も核変換反応の候補になりうると考えています。核破砕反応が起こる確率は、熱中性子捕獲反応^{注11)}の 1/2 程度であり、加速器から得られるビーム強度を大きくできれば、有用な核変換反応の候補になることが期待されます。

【今後の期待】

効率のよい先進的な核変換法を模索するために、さらに入射エネルギーを変えて、 ^{93}Zr の核変換データを系統的に取得していきます。取得した実験データに基づいて核反応理論モデルの検証や改良を行い、シミュレーションによる核変換効率の計算や核変換のための装置の設計などに反映していきます。

【参考図】

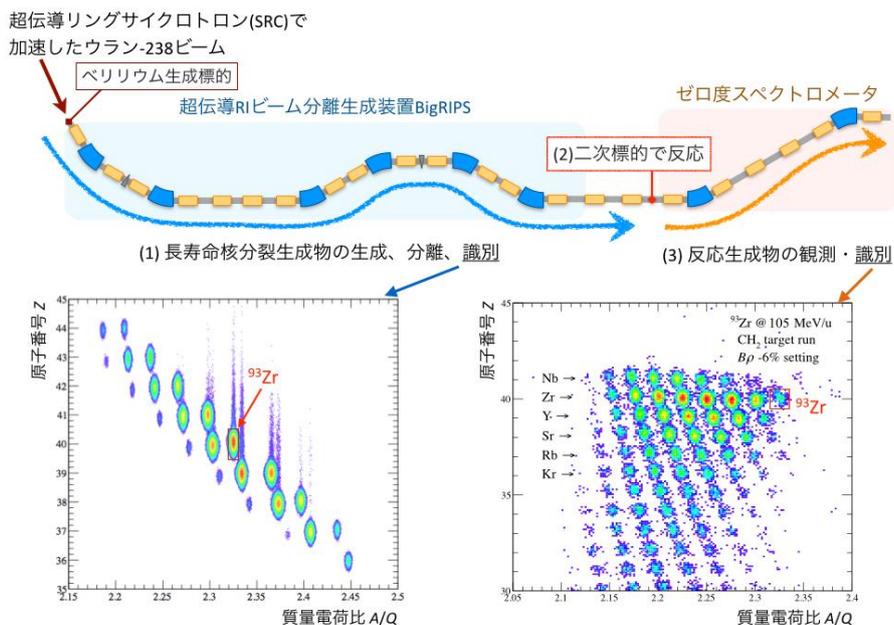


図 1 核破碎反応実験の概要

超伝導リングサイクロトロン (SRC) で加速した ^{238}U ビームをベリリウム (Be) 生成標的に照射し、超伝導 RI ビーム生成分離装置 (BigRIPS) で識別・分離し、 ^{93}Zr をビームとして取り出す (1)。続いて二次標的 (陽子と重陽子) と衝突させ (2)、二次標的での反応生成物をゼロ度スペクトロメータで分析する (3)。

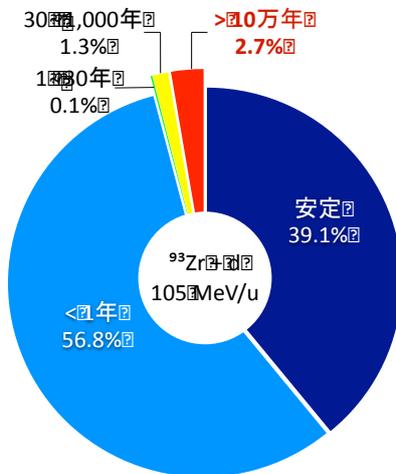


図 2 ^{93}Zr 核破碎反応実験で生成された核種の寿命の割合

重陽子ビーム、核子当たり 105 MeV (105 万電子ボルト) の場合の結果を円グラフで示す。生成された核種は、安定核が 39.1%、半減期 1 年以下が 56.8%、半減期 1~30 年が 0.1%、半減期 30~1,000 年が 1.3%、半減期 10 万年を超えるものが 2.7%の割合であった。

【用語解説】

注1) RI ビームファクトリー (RIBF)

RI (Radio Isotope) とは放射性同位元素のことで、放射線を出して他の種類の原子核に変化する。RIBF は、理研が所有する RI ビーム発生施設と独創的な基幹実験設備群で構成される重イオン加速器施設。RI ビーム発生施設は、2 基の線形加速器、5 基のサイクロトロンと超伝導 RI ビーム分離生成装置 (BigRIPS) で構成される。RIBF ではこれまで生成不可能だった RI も生成でき、これまで世界最多となる約 4,000 個の RI を生成できる。

注2) 放射性核種、長寿命核分裂生成物 (LLFP)

アルファ線 (α 線) やベータ線 (β 線) などの放射線を出して崩壊する原子核を放射性核種という。天然に存在する放射性核種として、カリウム-40 (^{40}K 、原子番号 19、質量数 40、半減期 12 億年) やウラン-238 (^{238}U 、原子番号 92、質量数 238、半減期 45 億年) などが知られている。天然放射性核種は、半減期が地球年齢 (約 46 億年) 程度あるので崩壊せずに残っている。放射性廃棄物に含まれる放射性核種は、原子炉内で人工的に作られたもので、天然に存在する放射性核種に比べて半減期が短く、放射能が高い。この核種を長寿命核分裂生成物と呼び、 ^{79}Se (半減期: 29.5 万年)、 ^{93}Zr (153 万年)、 ^{99}Tc (21.1 万年)、 ^{107}Pd (650 万年)、 ^{126}Sn (10 万年)、 ^{129}I (1,570 万年)、 ^{135}Cs (230 万年) などがある。LLFP は Long Lived Fission Product の略。

注3) 核破砕反応

核子 (陽子と中性子) 当たり 50 MeV 程度以上の高エネルギー原子核を標的核に照射した際に起こる反応で、衝突時に陽子、中性子がはぎ取られる。照射核として陽子、中性子、重陽子などの軽い核を利用する場合は、スポレーション (Spallation) 反応といい、炭素やウランなどの重い核を照射する場合は、フラグメンテーション (Fragmentation) 反応という。

注4) 陽子、重陽子

陽子は原子核の構成要素の一つ。原子核のもう一つの構成要素は中性子で、陽子と違い崩壊するため、寿命は有限である。重陽子は、陽子 1 個と中性子 1 個で構成されている。陽子と中性子の間に束縛エネルギーがあるため、重陽子は安定で崩壊しない。

注5) 逆運動学法

研究対象の原子核が安定な核の場合、これを標的にし、陽子や重陽子などのビームを照射して研究を行う。一方、研究対象の原子核が不安定で寿命が有限の場合、ビームと標的を逆転させて測定を行う、いわゆる逆運動学を利用する。この場合、陽子、重陽子などを標的にし、調べたい原子核をビームとする。この方法を利用すると、研究対象核の壊れ方を正確に調べることができる。RIBF では、この方法を利用した基礎研究が推進されている。

注6) マイナーアクチノイド

アクチノイドとは、アクチニウム (Ac、原子番号 89) からローレンシウム (Lr、原子番号 103) までの元素の総称。マイナーアクチノイドとは、アクチノイドに属するウラン (U、原子番号 92) よりも原子番号の大きい元素のうちプルトニウム (Pu、原子番号 94) を除いたものを指す。

注7) 原子燃料被覆管

原子力発電で使うウラン燃料を覆っている金属製の管のこと。燃料や核分裂生成物を密封し、漏出を防ぐ役割を持つ。現在の商用原子力発電では、中性子吸収割合が小さいジルコニウムにスズ・鉄・クロム・ニオブなどを含ませた合金 (ジルカロイと呼ばれる) が使用されている。

注8) 超伝導リングサイクロトロン (SRC)

サイクロトロン (加速器) の心臓部に当たる電磁石に超伝導を導入し、高い磁場を発生できる世界初のリングサイクロトロン。全体を純鉄のシールドで覆い、磁場の漏洩 (ろうえい) を防ぐ自己漏洩磁気遮断の機能を持つ。総重量は 8,300 トン。SRC を使うと非常に重い元素であるウランを光速の 70% まで加速できる。また、超伝導方式により、従来の方法に比べて 1/100 の電力で動かせるため、大幅な省エネも実現している。

注9) 超伝導 RI ビーム生成分離装置 (BigRIPS)

ウランなどの 1 次ビームを生成標的に照射することによって生じる大量の不安定核を集め、必要とする RI を分離し、実験グループに RI ビームを供給する装置。RI の収集能力を高めるために、超伝導四重極電磁石が採用されており、ドイツの重イオン研究所 (GSI) など他の施設に比べて約 10 倍の収

集効率を持つ。

注10) ゼロ度スペクトロメータ

RIBFの基幹実験装置の一つで、逆運動学法で生成された生成核種の粒子識別や運動量分析などが行える磁気分析装置。この装置は、逆運動学法で生成された核が照射したビームと同じ方向に放出されることを考慮して設計されている。反応生成物の収集効率を上げるため、BigRIPSと同じ超伝導四重極電磁石が採用されている。分析装置内での飛行時間が長いため、質量数200程度の核種まで粒子を識別できる。

注11) 熱中性子捕獲反応

原子核が熱中性子1個を捕獲して、中性子数が1個多い同位体になる核反応。熱中性子とは、原子の熱運動と平衡状態にある中性子で、中性子のエネルギー分布は室温で決まる。平均エネルギーは約0.025 eV、平均の速さは約2.2 km/s。

【論文情報】

タイトル : Study of proton and deuteron induced spallation reactions on the long-lived fission product ^{93}Zr at 105 MeV/nucleon in inverse kinematics

著者名 : Shoichiro Kawase, Keita Nakano, Yukinobu Watanabe, et al.

掲載誌 : Progress of Theoretical and Experimental Physics

DOI : 10.1093/ptep/ptx110

【お問い合わせ先】

<研究に関すること>

九州大学 大学院総合理工学研究院

エネルギー科学部門 学術研究員 川瀬頌一郎 (カワセ ショウイチロウ)

同部門 教授 渡辺幸信 (ワタナベ ユキノブ)

Tel : 092-583-7601 (渡辺) Fax : 092-583-7601

E-mail : watanabe@aes.kyushu-u.ac.jp (渡辺)

理化学研究所 仁科加速器研究センター

核変換データ研究グループ グループディレクター 櫻井博儀 (サクライ ヒロヨシ)

高速RI データチーム チームリーダー 大津秀暁 (オオツ ヒデアキ)

Tel : 048-462-5362 (櫻井) Fax : 048-462-4464

E-mail : sakurai@ribf.riken.jp (櫻井)

<ImPACTの事業に関すること>

内閣府 革新的研究開発推進プログラム担当室

〒100-8914 東京都千代田区永田町1-6-1

Tel : 03-6257-1339

<ImPACTプログラムに関すること>

科学技術振興機構 革新的研究開発推進室

Tel : 03-6380-9012 Fax : 03-6380-8263

E-mail : impact@jst.go.jp

<報道に関すること>

九州大学 広報室

Tel : 092-802-2130 Fax : 092-802-2139

E-mail : koho@jimu.kyushu-u.ac.jp

科学技術振興機構 広報課

Tel : 03-5214-8404 Fax : 03-5214-8432

E-mail : jstkoho@jst.go.jp