

プログラム名：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

PM名： 藤田 玲子

プロジェクト名：核反応データ取得及び新核反応制御法

委 託 研 究 開 発

実 施 状 況 報 告 書 (成 果)

平成 27 年度

研究開発課題名：

加速器ベースの高強度小型冷・熱中性子源による

LLFP 核種核変換処理法の研究

研究開発機関名：

国立大学法人大阪大学

研究開発責任者

福田光宏

# I 当該年度における計画と成果

## 1. 当該年度の担当研究開発課題の目標と計画

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)の4核種( $^{107}\text{Pd}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ ,  $^{79}\text{Se}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ )を短寿命核種もしくは安定核種へ核変換するための新しい核反応制御法の確立を目指す。そのため、熱中性子を吸収して生成された原子核がベータ崩壊し、その結果として長寿命核が大量に残存するという過程を逆手に取り、冷・熱中性子束を高強度化した上で照射条件を人為的に制御し、中性子捕獲反応によって核変換を行う。その際、生成核種の半減期に応じた化学的な元素分離・抽出法と上手く組み合わせることによって、LLFPを効率よく減容する新しい制御手法の開発を目的とする。熱中性子源においては、MW級のハイパワービームの供給を1台の加速器が担うのではなく、安価でハンドリングし易い高強度の小型加速器を多数並列化してビームパワーを分散させ、中性子源へハイパワービームを多重入射させることによって高強度の中性子束を発生させる新しい核変換用冷・熱中性子源システムの開発を目指す。H27年度の具体的な目標と計画は、以下の通りである。

### (1) 熱中性子源の設計最適化と核変換量の評価

これまでに得られている中性子捕獲反応断面積データ(実験データ、理論計算値など)を詳細に調査し、反応断面積の信頼性を検証する。PHITSコードを用いて加速粒子、エネルギー、標的物質などの組合せを変えたときの中性子発生量を見積もり、中性子フルエンスと全立体角に放出される中性子数を最大化するような条件を見いだす。中性子発生ターゲットの至近距離で熱中性子フルエンスが高まるような減速材及び反射材などの物質の種類や形状、サイズ、配置などを検討する。中性子エネルギー分布を求め、LLFPの配置と核変換量の関係を明らかにする。使用済核燃料におけるLLFPの含有数量、同位体比、分離効率などを調査する。中性子照射時間及び冷却時間を変えたときのLLFP核種の核変換量の変化などから核変換効率を向上させる条件を見いだす。

### (2) 高強度小型加速器の概念検討

ビームのハイパワー化と加速器・中性子源の多重化のバランスの中で最良のコスト・パフォーマンス条件を見だし、必要とされる高強度小型加速器・中性子源の基本仕様を明らかにする。安定性と信頼性に優れた高温超伝導電磁石を採用したサイクロトロンを想定し、核変換処理における省電力化を目指した検討も併せて行う。

## 2. 当該年度の担当研究開発課題の進捗状況と成果

### 2-1 進捗状況

#### (1) 熱中性子源の設計最適化と核変換量の評価

IAEAをはじめとして幾つかの研究機関が中性子捕獲反応断面積データベースを公開しているが、日本原子力研究開発機構が整備しているJENDL-4.0は、0.01meVから20MeVまでの広範囲の中性子エネルギーをカバーし、406核種の中性子入射反応断面積が網羅されているだけでなく、J-PARCのMLFにある高精度中性子原子核反応測定装置ANNRIで得られた実験データを逐次盛り込んでいて信頼性は高い。特に、 $^{93}\text{Zr}$ や $^{107}\text{Pd}$ の中性子捕獲断面積の実験データが取り込まれており、このJENDL-4.0のデータを用いて核変換量の見積もりを行うこととした。

## (2) 高強度小型加速器の概念検討

サイクロトロンは、元々コンパクトでエネルギー効率に優れた加速器であり、電磁石コイルを超伝導化することによってエネルギー効率をさらに向上させることが可能である。従って、陽子ビームを供給する加速器としてサイクロトロンを想定し、ビームのハイパワー化と建設・運転コストの最小化などを検討した。

## 2-2 成果

### (1) 熱中性子源の設計最適化と核変換量の評価

107Pd (半減期 650 万年) の場合、熱中性子 25meV に対する反応断面積は 9.3 バーンであるが、安定同位体の 105Pd の反応断面積 (21 バーン) が 2 倍以上あるため、初期段階では 105Pd から 106Pd への変換に中性子が消費されてしまい、107Pd の減少量は少ない。しかしながら、幸いにして 107Pd を増加させる要因となる 106Pd の反応断面積が 0.32 バーンと小さく、105Pd の変換が進んだ後には 107Pd 及び 108Pd の捕獲反応が支配的になるため、107Pd の数量を次第に減らすことが可能になる。同様に 93Zr (半減期 150 万年、2.2 バーン) の場合も、反応断面積が同程度の 91Zr (1.3 バーン) との競合になり、核変換速度はさほど速くはならないが、92Zr の反応断面積が 0.23 バーンと小さいこともあって、93Zr の核変換は進んでいく。79Se (半減期 30 万年) の場合には、元々、使用済燃料 800 トンから抽出される重量が 5kg 程度しかなく、反応断面積も十分に大きいため、核変換処理は比較的速く済ませることが可能である。一方で、135Cs (半減期 230 万年) は、反応断面積が 8.3 バーンと比較的大きいものの、安定核 133Cs が 29 バーン、不安定核 134Cs (半減期 2.1 年) が 141 バーンと桁違いに大きいため、135Cs の核変換が進むのは 133Cs と 134Cs の処理が進んでからになってしまい、かなりの年数を必要とする。これらの特徴を定量的に示すため、中性子捕獲反応による核種の増減と崩壊による現象を考慮したマスター方程式を立て、発生した熱中性子が全て中性子捕獲反応に消費されるという仮定の下で核種毎の経時変化を求めた。100 万 KWe の原子炉から毎年発生する核燃料廃棄物から抽出した Pd 40kg (6.3kg の 107Pd を含む) を偶奇分離せずに初期重量とした場合と、最初のみ偶奇分離を行って 105Pd と 107Pd だけにした場合の Pd 同位体の経時変化を図 1 に示す。但し、中性子生成条件として、陽子ビームパワーは 66 MW (600 MeV×5 mA×22 台)、中性子生成率は 15 n/p、中性子強度は  $1.0 \times 10^{19}$  n/s を仮定し、中性子源で生成された中性子は全て捕獲反応に消費されるものとする。また、中性子捕獲反応断面積は JENDL4.0 の熱中性子 25meV でのデータを使用し、ターゲット密度として天然元素の密度を採用した。この結果、6.3kg の 107Pd は約 110 日で半分に減量すると予想される。この核変換条件での核変換速度は 11 kg/年であり、初装 17.8 トンの 107Pd (2.8 トン) を半減させるのに 134 年必要であることがわかる。

一方、Cs の場合には偶奇分離はできないため、100 万 KWe の原子炉から毎年発生する 71.1 kg の Cs (Cs-135 は 10.5 kg) を初期重量として、Pd と同様中性子生成条件で見積もると、135Cs が半分に減量するのは約 620 日、核変換速度は 3.1 kg/年となる。これは、計算上、初装 3.0 トン中に含まれる 135Cs 440kg を 71 年で半減させることに相当する。

中性子発生ターゲットには Pb-Bi やタングステンなどの重元素を用い、高エネルギーの陽子ビームを照射して発生する核破砕反応中性子を減速させて核変換に利用する。陽子 1 個当たりの中性子発生数は陽子エネルギーと共に増加するが、300MeV を超えると原子核内でパイ中間子が生成されて

核内カスケード反応を引き起こし、原子核の破壊によって多量の中中性子を放出することから、急激に中性子発生量は増えてくる。一方で、陽子ビームエネルギーが大きくなると加速器自体が大がかりになり、建設コストや運転コストも次第に増えてくることから、コスト・パフォーマンスを考慮した上でバランスの取れた加速器と中性子源を選択する必要がある。

核破砕反応で発生した中性子はほぼ等方的に放出されると考えて良いことから、中性子源の基本形状は、軸上にターゲットを設置し、半径方向に中性子を減速させるモデレータや LLFP ターゲットを軸対称に配置する円筒状のものが最適解の一つと考えられる。中性子ターゲットに LLFP の Cs を用いて陽子ビームを直接照射して核変換を行いながら中性子も発生させて、周囲に配置した他の LLFP ターゲットを核変換するやり方も考えられる。この場合は、陽子エネルギーを 600MeV 程度まで増加させるのがコスト・パフォーマンスの点で有利と考えられる。エネルギーを下げた場合でも、中性子発生効率が下がった分、小型加速器の台数を増やすことによって、同程度の中性子フルエンスを供給することも発生可能である。

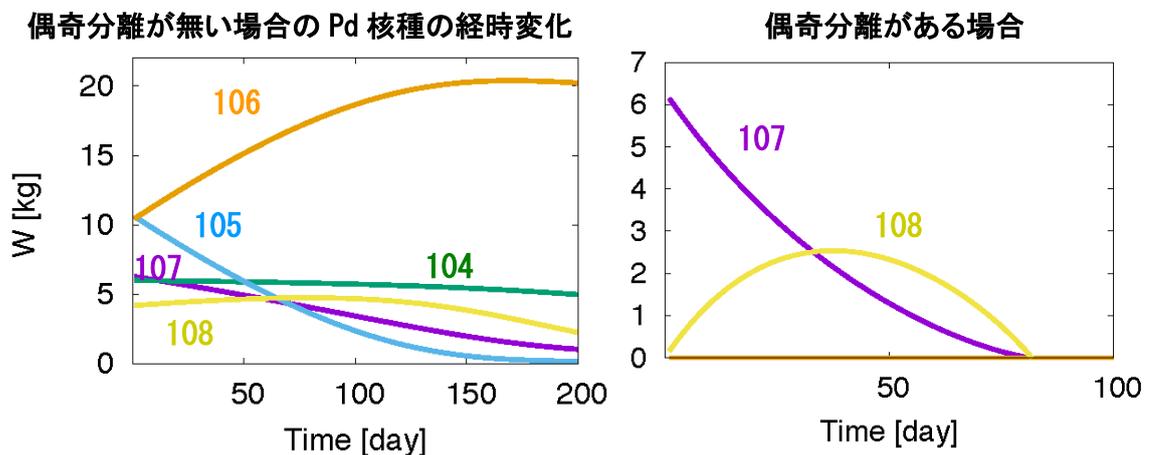


図1 核燃料廃棄物 40kg 中の Pd 元素に熱中性子(25meV)を照射したときの  
中性子捕獲反応による Pd 核種の経時変化

## (2) 高強度小型加速器の概念検討

電磁石コイルには、臨界温度が 100K を超えてクエンチに対するマージンが大きく、信頼性や安定性、制御性の点において優れている高温超伝導線材を用いるものとする。例えば、200MeV の陽子加速を想定した場合、mA 級の大強度ビームを高効率で入射・加速・引き出すためには、引出半径が 2m 程度のリングサイクロトロンを用いるのが良い。この時、周回方向の平均磁場は 1 テスラ程度であるため、高強度の H-イオン加速が可能であり、引出部にストリッパフォイルなどを設置することによって、ビームの取り出しも容易になる。この場合、ビームをハイパワー化したときのストリッパフォイルの耐久性が問題となり、ビーム取り出しについては今後の課題である。仮に、合計で毎秒  $1 \times 10^{19}$  個の中性子束を得るためには、5mA、200MeV のリングサイクロトロンが 200 台強必要となる。一方、エネルギーを 600MeV まで増加させた場合には、核破砕反応やパイ中間子による核

内カスケード反応などによって中性子発生量が増大するため、約 22 台のリングサイクロトロンでまかなうことが可能となる。この時、想定されるビームパワーは 3MW/台であり、近年、発電性能が向上している風力発電システムやメガソーラーシステムなどで十分に供給可能な電力と考えられる。

### 2-3 新たな課題など

- ・マスター方程式を用いた核変換量の見積もりは、経時的に変化する LLFP ターゲット中の核種分布が、場所に依らず一様であることを前提にしているため、実際にその一様性を確保するような機械的な工夫（かき混ぜる、定期的に場所を変える等）が必要である。
- ・中性子発生ターゲットから LLFP ターゲットまでの距離が長くなればなるほど LLFP の体積が増えるため、初装荷ターゲットを核変換するのに時間がかかる。
- ・中性子を中性子源内に完全に閉じ込めて全て核変換に利用するのは現実的ではないため、中性子の損失量を極力減らすような中性子源を設計する、或いは失われる中性子も考慮した核変換量を見積もるなどの対応が必要である。
- ・核変換量の経時変化を厳密に追いかけるシミュレーション計算コードの開発が必要である。
- ・300MeV 位までの小型加速器を多数組み合わせたシステムでの核変換量、コスト、エネルギー効率などを検討することが必要である。
- ・サイクロトロンエネルギー効率を改善するためには、電磁石の高温超伝導化や超電導加速空洞の開発などが必要とされる。

## 3. アウトリーチ活動報告

特になし