

サイクロトロンベース LLFP 核変換用中性子源の検討

INVESTIGATION OF NEUTRON SOURCE FOR LLFP TRANSMUTATION BASED CYCLOTRONS

武田佳次朗[#], 福田光宏, 依田哲彦, 神田浩樹, 関亮一, 中尾政夫, Koay Hui Wen,
森田泰之, 原隆文, 大本恭平, 荘浚謙, 久松万里子

Keijiro Takeda[#], Mitsuhiro Fukuda, Tetsuhiko Yorita, Hiroki Kanda, Ryoichi Seki, Masao Nakao,
Hui Wen Koay, Yasuyuki Morita, Takafumi Hara, Kyohei Omoto, Shunken Sou, Mariko Hisamatsu
Research Center for Nuclear Physics (RCNP), Osaka University

Abstract

Nuclear transmutation technology has been developed for burden reduction of deep disposal of high-level radioactive waste (HLW), remaining after reprocessing spent nuclear fuels at nuclear power plants. In this study, we have been studying the transmutation system in which multiple cyclotrons are operated in parallel for transmutation of long-lived fission products (LLFP). The LLFP target is on two rare metal nuclides of ^{107}Pd ($T_{1/2} = 6.5$ million years) and ^{135}Cs ($T_{1/2} = 2.3$ million years), so, it can be expected to be recycled if it is transmuted to stable isotopes. We have proposed transmutation method that use efficiently the spallation reaction with deuterons accelerated to 100 MeV/u, (n, 2n), (n, 3n) reaction of fast spallation neutrons, and the capture reaction of thermal or epithermal neutrons. Also, In order to quantitatively evaluate transmutation amount, we have created the iterative routine that combines the particle transport calculation code PHITS and the induced radioactivity evaluation code DCHAIN-PHITS. This routine can be used to estimate a time evolution of nuclides composition due to transmutation with high accuracy. In this report, we will discuss the status of structural study of neutron source for LLFP transmutation together with the transmutation amount.

1. はじめに

原子力発電所から発生する使用済核燃料を再処理した後に残る高レベル放射性廃棄物(HLW)はガラス固化体にして深層埋設処分される予定だが、長期保管の安全性や環境負荷リスク、広大な処理場の選定がされないなど社会問題になっている。HLWに含まれる長寿命核種はマイナーアクチノイド(M)と長寿命核分裂生成物(LLFP)であるが、MAは高速炉やADSによる核変換法が研究されてきた。MAとLLFPのうち代表的な核種をTable 1に示す。LLFPの核変換法に関しては未だ確立していないが、LLFPにはレアメタル元素が多く含まれるため、同位体核種に変換することによる有用金属の再資源化が期待されている。青森県六ヶ所村の再処理工場

では1年間あたりに約800 tonの使用済核燃料が再処理される見込みで、半減期が650万年の ^{107}Pd は安定同位体も含めて1090 kg含まれている。これらのLLFPを再処理により生成(分離)されるスピードを上回る速度で核変換するためには、中性子強度が 10^{19} neutron/secが必要になると試算されている。特にこれを加速器で達成するには重陽子を100 MeV/uまで加速させる場合、1 A以上のビーム強度が要求される[1]。我々は、30 mAのサイクロトロンを35台並列に運転することで1 Aの強度を供給することを想定している。本論文では、100 MeV/uの重陽子ビームを30 mAで供給できるサイクロトロンを仮定した場合におけるLLFP核変換用中性子源の最適化の結果について報告する。

Table 1: HLW Nuclide Composition in Spent Nuclear Fuel (PWR 33GWd/tHM, after Cooling for 5years)

Nuclide		Half lifetime (year)	Composition (kg/tHM)
MA	Np-237	2.41×10^6	0.6
	Am-241	4.33×10^2	0.4
	Am-243	7.32×10^3	0.2
	Cm-244	18.1	60
LLFP	I-129	1.57×10^7	0.2
	Pd-107	6.5×10^6	0.3
	Cs-135	2.3×10^6	0.5
	Zr-93	1.5×10^6	1.0

2. 核変換用中性子源の最適化

本研究で対象とするLLFPは ^{107}Pd と ^{135}Cs の2核種に限定し、Table 2に示したHLW中の組成、つまり同位体分離せずに核変換を行うことを想定した。中性子源の基本構造は、核破砕標的に液体Csを使用し、その外側に減速材としてPdと重水を配置し、重水の外側にPdを配置、中性子反射材としてPbで囲った[2]。高速中性子の減速材にはPdが有効で、熱/熱外化させるために重水を用いたが、重水素が軽水素よりも中性子吸収断面積が2桁程度小さく中性子損失を減らすためである。昨年までは円筒形の中性子源の最適化を図ってきたが、さ

[#] kjtakeda@rcnp.osaka-u.ac.jp

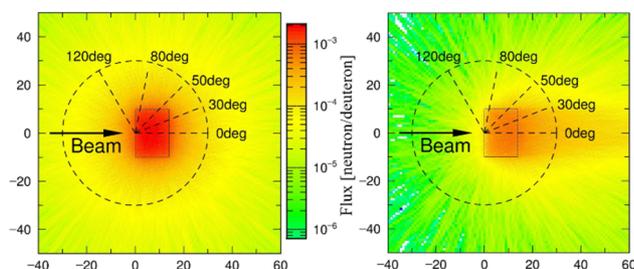
らに中性子の散乱角度分布をもとに各物質の配置・構造の検討・変更を行い、よりコンパクトな構造を目指した。中性子源の核設計には粒子輸送計算コード PHITS[3]を使用した。

Table 2: LLFP Isotope Composition in HLW (red : LLFP)

Element	mass number	Half lifetime (year)	Isotope composition (%)
Pd	104	stable	15.49
	105	stable	27.60
	106	stable	26.68
	107	6.5×10^6	16.25
	108	stable	10.79
	110	stable	3.19
Cs	133	stable	43.82
	134	2.1	0.89
	135	2.3×10^6	12.87
	137	30	42.42

2.1 Cs 標的における核破砕中性子の生成角度分布

核破砕標的である Cs は 6 MW(100 MeV/u, 30 mA)の重陽子ビームが照射されるため、ビーム発熱を分散させることを考えると、ビーム半径および標的半径は十分に大きくしなければならない。そこで、単純に液体 Cs 標的における熱損失が 1 kW/cc を下回る場合(発熱量を体積で割る)における半径は 10 cm 以上必要となるため、ビーム半径と標的半径を 10 cm とし、長さは飛程と同程度とした。この時の核破砕中性子のトラッキングを Fig. 1 に、生成角度分布を Fig. 2 に示す。Cs の外側に配置する Pd 領域は(n,2n), (n,3n)反応による核反応が主反応でありその閾値が 6~7 MeV であるため、6 MeV を基準とした高エネルギー側の中性子生成角度分布を計算した。Fig. 1(b) からは、高エネルギー成分がビーム前方に生成されているが、Fig. 2 の角度分布より高エネルギー成分はビーム方向に対し 30 度方向で最大値となることが判明した。これは、0 度方向に生成した中性子は Cs と反応を起こし、別の粒子に変換もしくは減速されたためであると考えられる。



(a) 1eV ~ 6MeV neutrons (b) 6 ~ 200MeV neutrons

Figure 1: Tracking of spallation neutrons produced in Cs target. 6 MeV neutron is threshold of paradium (n,2n), (n,3n) reaction.

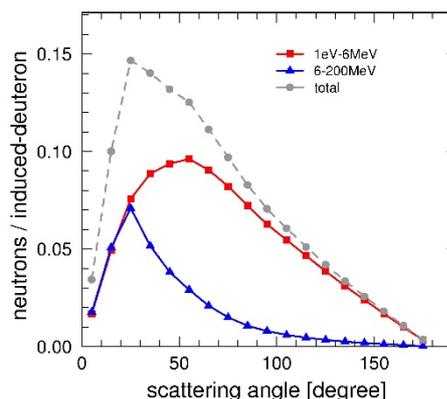


Figure 2: Angular distribution of spallation neutrons produced from cylindrical Cs target surface. Y-axis is integrated value of angular distribution of ± 5 degree (e.g. 30 deg = 30 ± 5 deg).

2.2 中性子源の最適化

核破砕中性子の生成角度分布をもとに、ビーム前方に十分な厚さを設けていた Pd 領域[2]を 30 度方向に集約させることでよりコンパクトな中性子源のデザインになった。現状では、熱 / 熱流体解析によるビームパワー除去を考慮したジオメトリにはなっていないが、PHITS による核変換用中性子源の核設計の検討結果を Fig. 3 に、Table 3 にその詳細を示した。ジオメトリの最適化条件には、「中性子損失率が 10%未満かつ LLFP の装荷量を最小限に抑える」ことを念頭にした[2]。ここでいう中性子損失率とは、Cs 標的で生成される核破砕中性子収量に対する損失(Pb の外側に漏れる、重水(減速材)や Pb(反射材)中で捕獲される、etc.)に対する比率である。

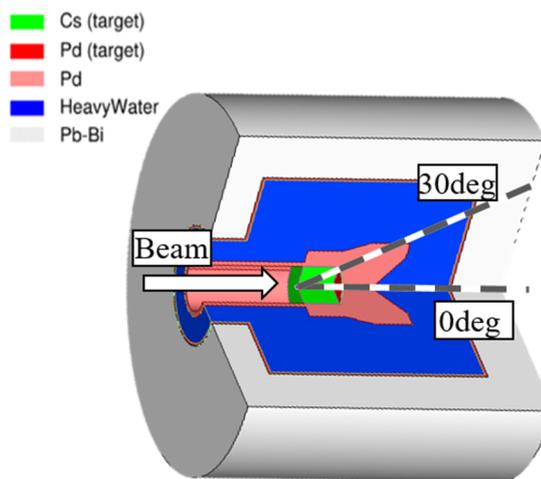


Figure 3: The neutron source design for LLFP transmutation by neutronics search using PHITS.

本検討により、Pd の装荷量を 3 分の 1 程度の 1116 kg まで抑えることができ、これは使用済み核燃料 800 ton 中の Pd : 1090 kg と同程度である。

Table 3: The Property of Neutron Source

Beam power	6MW (100 MeV/u 30 m,
Beam type	Deuteron ϕ 20cm
Target 1 (length/radius)	Liquid Cs (14cm / 10cm)
Target 2 (length/radius)	Pd (0.25cm / 10cm)
Moderator 1 : Pd (length/radial thickness)	Forward (30cm / 17cm) Medium (14cm / 7.6cm) Backward1 (10cm / 7.6-21.8cm) Backward2 (10-15cm / 21.8cm)
Moderator 2 : heavy water (length/radial thickness)	Forward (15cm / 10cm) Radial (84cm / 52cm)
FP region (Thickness)	Pd (4cm)
Reflector (Thickness)	Pb (20cm)
FP mass (last year[2])	Pd : 1116 kg (^{107}Pd : 181 kg) (Pd : 3380 kg (^{107}Pd : 549 kg))

3. 核変換量の時間依存解析

日本中に存在するHLWに含まれるLLFPをすべて核変換するためには数十年間のビーム照射が必要とされており、核変換量の長期的な推移を評価することは重要である[1]。時間変化に伴う組成変化を追跡する計算を時間依存解析(time-evolution analysis)と呼び、原子炉物理の領域では原子炉中のウラン燃料および核分裂生成物の組成変化を追跡するために使用されてきた。原子炉における時間依存解析は輸送計算と燃焼計算の反復計算によって計算される。しかし、原子炉(高速炉も含む)中性子の最大エネルギー14 MeVであるため、主な原子

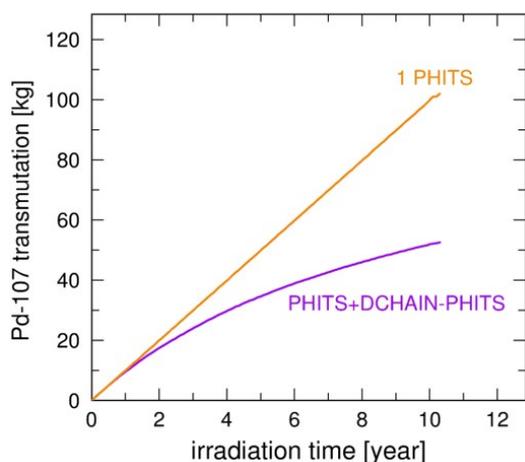
炉コード(MVP[4]やMCNP[5])では20 MeV以下の中性子のみの時間依存解析しか扱えない。20 MeV以上の核反応を使用する加速器駆動システム(ADS)の核設計に使用される計算コード(ADS3D[6])についても燃焼計算に20 MeV以上の中性子取量が反映されないなど、LLFPの核変換量計算において重要な高エネルギー中性子の扱いが不十分という課題がある。また、中性子源の最適化に使用したPHITSには燃焼計算コードとしてDCHAIN-PHITS[7]が存在するが、反復ルーチンはなく詳細な時間依存解析ができない。

今回、デザインした中性子源について時間依存解析を行うためには、以下の3点を満たす計算コードが必要である。

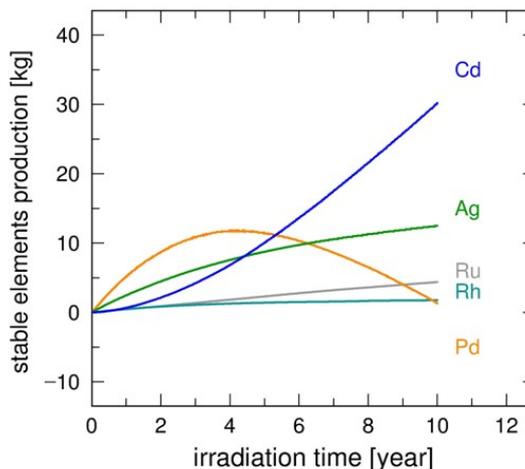
- 輸送計算は20 MeV以上の中性子や荷電粒子(主に重陽子と陽子)を扱えること
- 燃焼計算は輸送計算と同等のエネルギー領域を扱うことができ、なおかつLLFPを含めた大量の核種組成を追跡できること。
- 時間依存解析を担う輸送計算と燃焼計算の反復ルーチン制御が可能であること。

そこで、AにPHITS、BにDCHAIN-PHITS、Cに自作の反復ルーチンを適用することで、LLFP核変換用中性子源の時間依存解析を可能にした。PHITSとDCHAIN-PHITSによる反復計算法は参考文献[2]で紹介しているが、Pdの同位体組成以外は精度良く組成追跡できない問題があった。本研究では、さらにPHITSとDCHAIN-PHITSのソースコードに改良を加え、放射性核種が核反応の親核である場合の計算や最大250核種の組成追跡ができるようになり、Pd以外の元素組成(同位体組成を含む)の追跡が可能にした。

この反復計算法によるLLFP核変換用中性子源における時間依存解析結果をFig. 4に示した。計算条件は以下の3つを仮定した。



(a) Comparison Pd-107 transmutation amount with 1 time PHITS and iterative routine.



(b) Stable elements production / depletion amount.

Figure 4: (a) The iterative routine made it possible to calculate LLFP transmutation considered with the composition time-change (without an iterative calculation, 1 time PHITS is calculated). (b) Pd-107 transmutation amount increases (a : purple), but, stable Pd nuclides are converted to other stable nuclides (b : orange), especially Cd that is not a rare metal. Calculation conditions are beam intensity : 1A and supplying liquid-Cs & Heavy water always new.

(計算条件)

- 標的である Cs と減速材の重水は熱除去のために循環され、中性子源では常に初期状態を維持する
- 中性子源あたりのビーム強度は 30mA だが、供給目標値の 1A で計算かつ 10 年間連続照射できるとする
- 熱、放射線損傷等の劣化は無視

Figure 4 は減速材 Pd と重水の外側の Pd 領域における合算値である。 ^{107}Pd の核変換量は時間とともに緩やかになり、安定な Pd 同位体の総量は初期には増加するが 4 年程度で減少に転じる。本計算では Cs 標的における中性子収量は一定であるため、核変換率はその核種の組成に大きく依存しており、核変換が進むと組成比は減少し核変換率は徐々に減少すると考えられる。また、初期状態では Pd しか装荷されていないが、時間とともに安定な Pd 同位体も核変換され(β^\pm 崩壊を経て)他元素に遷移するため、総量も減少に転じると考えられる。また、 ^{107}Pd の核変換率の時間変化を領域毎に評価したものを Fig. 5 に示す。1 A ビームの 10 年照射で減速材 Pd 領域では 46% (42kg/92kg), 重水の外側の Pd 領域では 8.8% (7.8kg/89kg), 全領域で 28% (50kg) となり、減速材領域の核変換速度は外側の約 5 倍の値を示した。従って、核変換サイクル(燃料交換・装荷・元素分離等の周期)の最適化には領域毎の調整が必要であることが分かった。

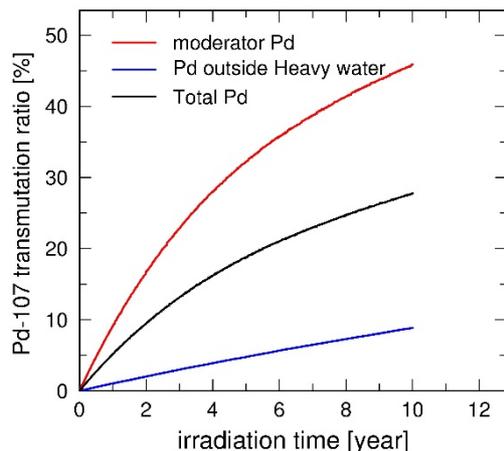


Figure 5: Time-evolution of ^{107}Pd transmutation ratio for each Pd region. Pd mass in two region are almost the same, but the transmutation ratio of moderator-Pd is about 5 times, so, drastically changing composition.

4. まとめと課題

4.1 まとめ

重陽子 100 MeV/u と Cs の核破砕反応により生成した核破砕中性子を LLFP である ^{107}Pd の反応断面積が大きいエネルギー領域に減速して核変換を行う中性子源のさらなる最適化を行った。ビーム前方に対して 30 度方向に核破砕中性子の高エネルギー成分が放出されること

を利用し、円筒形の中性子源[2]と同様の最適化条件のもとに Pd 装荷量を 3 分の 1(3380 kg→1116 kg)に減らし、コンパクト化に成功した。また、核変換量推定に使用する PHITS と DCHAIN-PHITS を組み合わせた時間依存解析手法にも改良を加え、Pd 以外の元素・同位体を含む場合において最大 250 核種まで組成追跡ができるようにした。この計算により、1 A 重陽子ビームの 10 年照射を仮定した場合に、 ^{107}Pd の核変換量 / 核変換率は 50 kg / 28% となり、六ヶ所村の再処理工場で 1 年間あたりに処理される使用済核燃料 800 ton に含まれる ^{107}Pd に相当する量であることが示された。

4.2 課題

今回、報告した核変換用中性子源の最適化条件には最大の課題である熱除去を考慮していない。ビーム強度の増大が核変換量の増加に比例する加速器ベース中性子源において、熱除去を考慮した最適化なしにその実現性を示すことは困難である。しかし、標的である液体 Cs は循環させることを想定していたが、Cs の発熱を考慮した熱流体解析コードを所有していなかった。今後は、新たに導入した熱流体解析コード FloEFD[8]により、6 MW の重陽子ビーム(100 MeV/u, 30 mA)の熱除去も可能な構造・循環システムの最適化を行っていく。

参考文献

- [1] Mitsuhiro Fukuda *et al.*, Summary report of 30th ImPACT PJ-4 meeting, July, 26, 2018.
- [2] K. Takeda *et al.*, “日本加速器学会年会 論文投稿要領”, Proceedings of the 16th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, July 31 – Aug 4, 2020, Kyoto, Japan, FRPH022. ; https://www.pasj.jp/web_publish/pasj2019/proceedings/PDF/FRPH/FRPH022.pdf
- [3] T. Sato, Y. Iwamoto, S. Hashimoto, T. Ogawa, T. Furuta, S. Abe, T. Kai, P.-E. Tsai, N. Matsuda, H. Iwase, H. Shigyo, L. Sihver, and K. Niita, Features of Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) version 3.02, J. Nucl. Sci. Technol. 55, 684-690 (2018); <https://www.tandfonline.com/doi/full/10.1080/00223131.2017.1419890>
- [4] K. Okumura, Y. Nagaya, T. Mori, MVP-Burn: Burn-up calculation code using a continuous-energy monte carlo code MVP, JAEA-Data/Code (2006); https://catatanstudi.files.wordpress.com/2009/10/jaeri_051011e_manual-mvpburn.pdf
- [5] https://catatanstudi.files.wordpress.com/2009/10/mcnp5_manual_vol_ii.pdf
- [6] 菅原隆徳, 他. 加速器駆動核変換システム用三次元炉心解析コード ADS3D の整備, JAEA-Data/Code 2014-024 (2014); <https://jopss.jaea.go.jp/pdfdata/JAEA-Data-Code-2014-024.pdf>
- [7] T. Kai *et al.*, DCHAIN-SP 2001: High energy particle induced radioactivity calculation code, JAERI-Data/Code-2001-016(2001); <http://dx.doi.org/10.11484/jaeri-data-code-2001-016>
- [8] <https://www.cae-sc.com/products/floefd.html>