

サイクロトロンを用いた LLFP 核変換用中性子源の概念設計

CONCEPTUAL DESIGN OF A NEUTRON SOURCE FOR LLFP TRANSMUTATION USING A CYCLOTRON

武田佳次朗^{#A)}, 福田光宏^{A)}, 土岐博^{A)}, 関亮一^{A)}, 篠塚勉^{B)}, 依田哲彦^{A)}, 神田浩樹^{A)},
中尾政夫^{A)}, 原周平^{A)}, Koay Hui Wen^{A)}, 森田泰之^{A)}, 原隆文^{A)}, 大本恭平^{A)}
Keijiro Takeda^{#A)}, Mitsuhiro Fukuda^{A)}, Hiroshi Toki^{A)}, Ryoichi Seki^{A)}, Tsutomu Shinoduka^{B)},
Tetsuhiko Yorita^{A)}, Hiroki Kanda^{A)}, Masao Nakao^{A)}, Shuhei Hara^{A)}, Hui Wen Koay^{A)},
Yasuyuki Morita^{A)}, Takafumi Hara^{A)}, Kyohei Omoto^{A)}

^{A)} Research Center for Nuclear Physics (RCNP), Osaka University

^{B)} Cyclotron and Radioisotope Center (CYRIC), Tohoku University

Abstract

We have been designing a neutron source for LLFP transmutation using spallation neutrons generated by irradiating a liquid Cs target containing the LLFP nuclide ^{135}Cs with 100 MeV/u deuteron extracted from a cyclotron. In order to carry out transmutation at a speed faster than the reprocessing speed of LLFP generated from 800 tons of spent nuclear fuel processed at the Rokkasho Village reprocessing plant in one year, an accelerator that can supply a total of 1 A or more of deuteron beams is needed. We plan operating 35 cyclotrons with an intensity of 30 mA in parallel to make the total beam intensity 1 A. The fast neutrons generated the Cs target are decelerated to 100 keV or less than using Pd and heavy water as moderators, and transmute ^{107}Pd . In this paper, we report the current design of transmutation neutron sources and the method to estimate the time evolution of 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)には長半減期なマイナーアクチノイド(MA)と長寿命核分裂生成物(LLFP)が多く含まれている。HLW はガラス固化体として30~50年冷却された後、地下300mに埋設処分することが今日の国策になっているが、長期保管による環境負荷と広大な処理場の選定がされないなどの社会問題がある。しかし、これらの長半減期核種を安定および短寿命核種に核変換することで、埋設時間を大幅に短縮でき、埋設量を減らし処分場も小さくできる。

青森県六ヶ所村の再処理工場では1年間あたりに約800tonの使用済核燃料が再処理される見込みで、再処理後に残るHLWに含まれるLLFPを再処理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。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、1A以上のビーム強度が要求される。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1Aの強度を供給することを想定している。[1] また、LLFPにはレアメタルが含まれており、低放射能化による再資源化の可能性があり、 ^{107}Pd と ^{135}Cs を対象LLFPとしている。本研究では、JAEAのPHITSコード[2]を用いたLLFPの核変換量を最大化するような核変換用中性子源の設計と長期照射による核変換量の時間変化の計算方法の高精度化を行っている。

2. 中性子源の概要

2.1 核破砕ターゲット

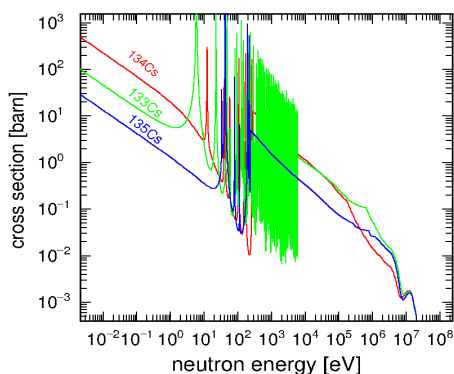
LLFPの核変換に使用する中性子は加速器で加速させた100 MeV/uの重陽子と ^{135}Cs を含むCs標的による核破砕反応で生成する。HLWからの分離後に取り出されるCsには ^{135}Cs 以外に質量数が133, 134, 137の同位体Csが含まれている。Figure 1(a)に示す通り ^{135}Cs が一番小さく、核変換が $^{133}\text{Cs} \rightarrow ^{134}\text{Cs} \rightarrow ^{135}\text{Cs}$ の順に進むため、中性子による ^{135}Cs の核変換は現実的ではない。そこで、Csを重陽子の核破砕ターゲットにすることで、重陽子との直接反応による ^{135}Cs の核変換をしつつ、中性子を発生させる。

Csは常温で液体(融点:28.8°C)であるため、循環時の加熱が必要なく、ビーム発熱の除去が容易であると予想されるが、6 MW(200 MeV×30 mA)重陽子ビームの発熱量を1 kW/cc以下に抑えるためにビーム半径と標的半径を10 cmとし、Bragg peakに相当する部分にはCsより融点が高く、LLFPであるPdを置くことでCsが受けるビーム熱が小さくなるようにした。標的に使われたPdは(d,n)反応などによって核変換されつつ中性子も生成する。

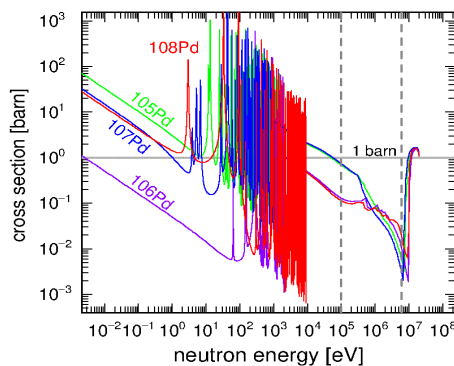
2.2 減速材の物質検討

Pdの $(n,\gamma)+(n,2n)$ の反応断面積をFig. 1(b)に示す。LLFPの ^{107}Pd の0.1~6 MeVまでの (n,γ) 反応の断面積は非常に小さくなっているが、Cs標的で発生する中性子の99%は0.1 MeV以上であるため、効率よく核変換するためには、Csの周りに減速材を置くことで0.1 MeV以下に減速しなければならない。

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



(a) (n,γ) cross section of Cs



(b) (n,γ)+(n,2n) cross section of Pd

Figure 1: The neutron reaction cross section of (a) Cs and (b) Pd from JENDL-4.0. ^{107}Pd has a (n,γ) cross section smaller than 1 barn at 0.1 MeV or more ((b) dotted area), it needs to decelerate to less than 0.1 MeV for ^{107}Pd transmutation by (n,γ) reaction.

高速中性子の減速には軽水や重水のような弾性散乱による減速ではなく重金属の(n,2n), (n,3n)による減速を考えた。核破碎標的の外側を囲むように置いた Fe, Zr, Pd, 重水の 6 MeV 以上の中性子の減速度を Fig. 2 に示す。

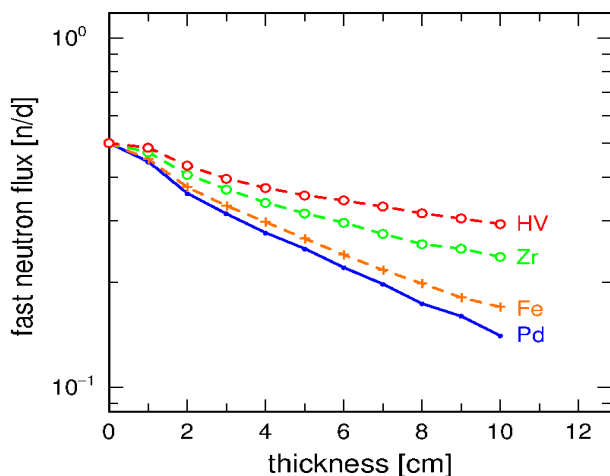


Figure 2: The deceleration of fast neutrons.

検討した物質の中で Pd が最も高速中性子の減速力があり、(n,2n)や(n,3n)により Pd に含まれる LLFP 核種 ^{107}Pd の核変換も同時に行われる。中性子の大半は(n,γ)の断面積が小さい 0.1~6 MeV に減速されるため、Pd の外側に重水を置いて熱化・熱外化させる。重水は軽水よりも(n,γ)の断面積が 2 桁程度小さいため、中性子の吸収が少なく核破碎中性子をすべて核変換に使うことができる。また、重水は減速材としてだけでなく中性子源の冷却にも使うことを想定している。

2.3 中性子源の概念設計

減速材の物質検討を行った後に、中性子源の厚みやサイズなどの核設計を行った。核破碎中性子が中性子源の外に出る損失量を 5%未満に抑え、できるだけコンパクト(Pd 質量は数 ton だが)になるようにパラメータスタディを行った。Figure 3 に核変換用中性子源の現時点でのジオメトリ、Table 1 に詳細を示した。

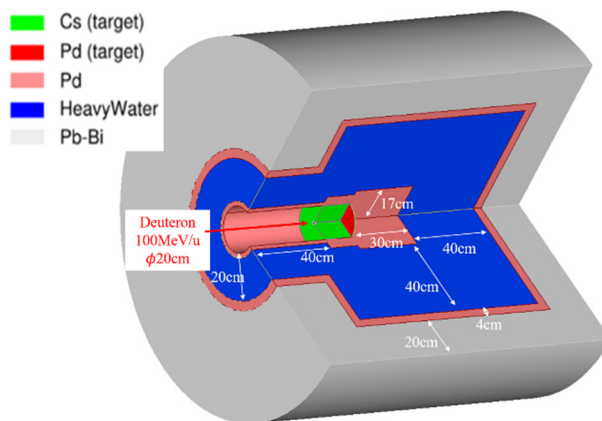


Figure 3: The conceptual design of neutron source for LLFP transmutation. Pd contains 17% of ^{107}Pd .

Table 1: The Property of Neutron Source

Beam power	6MW (100 MeV/u 30 mA)
Beam type	Deuteron φ20 cm
Target (Length/Radius)	Cs (liquid) (14 cm / 10 cm)
Target Behind Cs (Length/Radius)	Pd (0.25 cm / 10 cm)
Pd moderator (Length/Thickness)	Forward (30 cm / 17 cm) Vertical (14.25 cm / 5 cm) Backward (40 cm / 2 cm)
Heavy water moderator (Length/Thickness)	Forward (40 cm / 57 cm) Vertical (54.25 cm / 40 cm) Backward (30 cm / 18 cm)
FP region (Thickness)	Pd (4 cm)
Reflector (Thickness)	Pb-Bi (20 cm)

核破碎中性子のうち高エネルギー中性子は前方に散乱されるので、ビーム前方により厚めの減速材 Pd を置き、後方に散乱され中性子源外に出る中性子の立体角を減らすためにビーム後方には十分な長さを与えた。Pd の総質量は、3380 kg (減速材:460 kg, FP 領域:2920 kg)となり、LLFP の ^{107}Pd は 550 kg 含まれている。

3. 核変換量の経時変化の見積もり

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。核変換により Pd 中の同位体組成・元素組成が変化すると、 ^{107}Pd の核変換量も変化するはずで、核変換速度を維持できる適切な核変換周期(照射→冷却、組成のリフレッシュ等)を見つけなければならず、核変換量の経時変化の計算は中性子源の性能評価に必要である。しかし PHITS のインプットファイルにおける主要な物質定義は組成と密度だけであり、入射粒子 1 個あたりの核反応による核種生成率を計算する PHITS では時間変化の計算ができない。また、PHITS の計算結果をもとに照射時間および冷却時間を定義して核種生成量や誘導放射能を計算できる DCHAIN-SP コード[3] (以下 DCHAIN)もあるが、PHITS 計算で得られた核種生成率や中性子エネルギー分布をもとに計算するため、長期的な照射で組成が変化していくさまをシミュレートし、核変換量の経時変化をシミュレートすることはできない。

そこで、PHITS および DCHAIN のソースファイルを書き換え、次の 2 通りの方法によって、組成および核変換量の時間変化の評価を行った。

(1) PHITS の繰り返し計算

(2) PHITS+DCHAIN の繰り返し計算

繰り返し計算のフローチャートを Fig. 4 に示す。

(1). PHITS の繰り返し計算

物質の組成が微小な時間幅内で変化しないと近似して考えるとその時間幅における核種生成率は不変であ

るという仮定をもとに、PHITS で計算された入射粒子1個あたりの核種生成率と親核反応率にその時間幅のあいだに入射させたビーム強度(原子核数)を線形近似で乗算することで核変換量を計算する。親核反応率は核反応による親核を指定したときの全核種生成率を足し合わせることでその親核の核反応率を計算できるが、PHITS の標準タリーでは複数の核種が含まれる場合の親核反応率は計算できないため、ユーザー定義タリーを作成し、PHITS の src ファイルをコンパイルすることで可能にした。計算で得られた核変換量と物質の質量をもとに、ビーム照射後の質量と組成を計算し、その組成を PHITS の実行ファイルにインプットとして与える。これらを繰り返すことで、核変換量と組成の経時変化を計算する。

(2). PHITS+DCHAIN の繰り返し計算

PHITS のみの繰り返し計算(1)と仮定は同じだが、(1)の方法では親核の減少量と核反応による核種生成量は計算できるが、生成核種の崩壊による遷移の計算はできない。そこで DCHAIN により核反応と崩壊による核種生成量を計算することにした。しかし DCHAIN には核反応による親核の減少量を計算できないため(単に、核種生成量を計算するだけ)、(1)の方法で PHITS (により親核減少量を計算し、DCHAIN の結果と合わせて核変換量を計算する方法を考えた。この方法の問題点は、PHITS と DCHAIN で 2 次中性子の評価法が異なるため、親核減少量計算用(emode=2)と DCHAIN 計算用(emode=0)の PHITS 計算を行う必要があり、計算時間が(1)の倍近く要することである。

今回、最適化を行った中性子源(Fig. 3)について、(1)と(2)の方法で核変換量の時間変化を計算した(Fig. 5)。組成を不変とみなす期間を 1 か月とし、ビーム照射を 20 年間続けた場合の核変換量と安定核種の増加量について Table 2 にまとめた。初期組成は Pd のみだが、Ru, Rh, Ag, Cd ($Z = 44\sim 48$)も含めた経時変化を計算し、核反応と崩壊によってできた他元素による核変換量への寄与も考慮に入れた計算を行った。

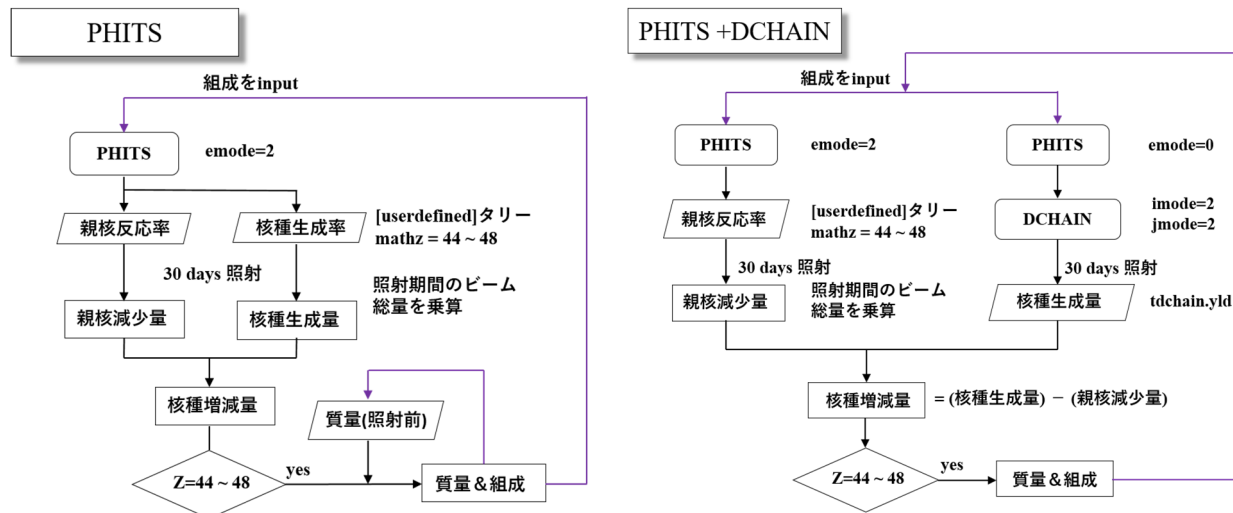
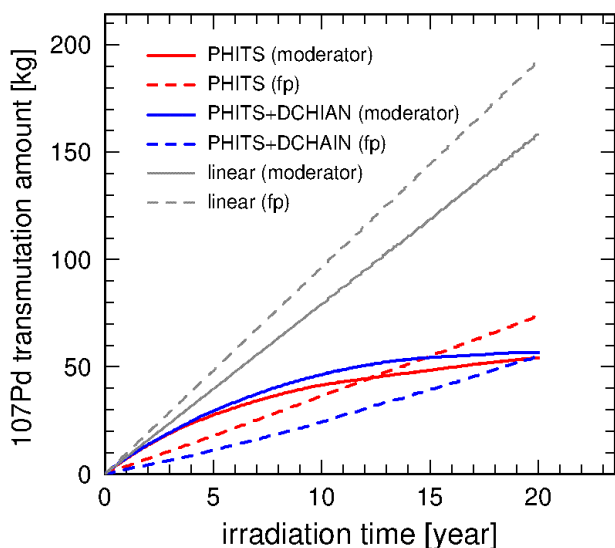
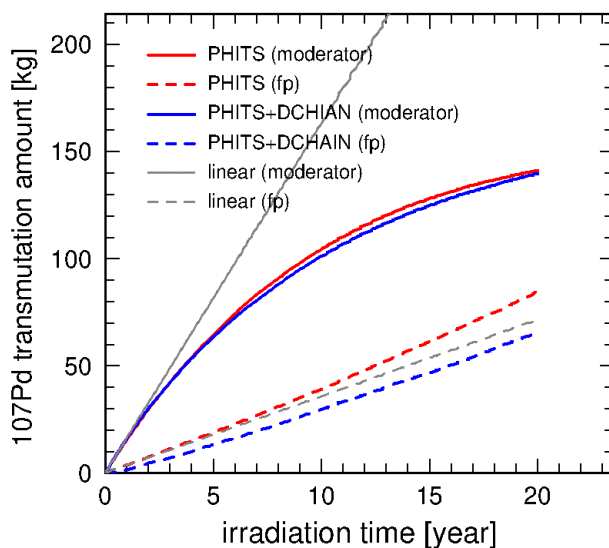


Figure 4: The method flow charts of calculating the time evolution of Pd transmutation amount considering composition change. PHITS iteration is left, PHITS+DCHAIN iteration is right.



(a) Initial composition is Pd composition in HLW.



(b) Initial composition is Pd even-odd separated.

Figure 5: The time evolution of ^{107}Pd transmutation amount in the neutron source dsigned (Fig. 3) this time with and without odd-even separation[4]. Although there is no difference in PHITS iteration(red) and PHITS+DCHAIN iteration(blue), it is very defferent from the calculation of linear approximation of ^{107}Pd reduction rete obtained in one PHITS.

Table 2: Result of the Time Evolution Calculation (Sum of Moderator and FP Region)

Irradiation time	^{107}Pd transmutation [kg]		Increased stable Pd [kg]		Increased Ru+Rh+Ag [kg]	
	phits	phits+dchain	phits	phits+dchain	phits	phits+dchain
1 year (even-odd yes/no)	19.2 / 10.7	17.5 / 10.2	15 / 1.5	22.0 / 9.4	0.7 / 0.6	0.7 / 2.8
10 years (even-odd yes/no)	143.5 / 77.9	130.7 / 75.2	81.7 / <u>-33.6</u>	128.0 / 52.1	3.3 / 2.9	2.9 / 11.9
20 years (even-odd yes/no)	225.7 / 127.9	205.3 / 115.7	58.2 / <u>-124.0</u>	194.0 / 78.6	4.6 / 4.2	3.1 / 14.5

^{107}Pd の核変換量は PHITS による計算よりも PHITS+DCHAIN の方が 20 年照射で偶奇分離[4]をした場合で 14%, 偶奇分離をしない場合でも 10%小さく見積もられることが分かった。逆に安定核種の増加量は PHITS+DCHAIN の方がかなり多く見積もられている。 ^{107}Pd の核変換量だけ(Fig. 5)を見ると、2 つの計算法の違いが見えにくい、安定核種の増加量(Table 2)も合わせてみると 2 つの計算方法は明らかに異なる。安定な Pd 核種の増加量をみると、PHITS のみでは減少しているが、PHITS+DCHAIN では増加している。これは、核反応で生成された Rh や Ag が Pd に β^\pm 崩壊して Pd にもどる分が相当数あることを示している。 ^{107}Pd の核変換量についても PHITS のみのほうが大きい値を示しているのは、 $^{107}\text{Rh} \rightarrow ^{107}\text{Pd}$ などの崩壊により ^{107}Pd が増加する遷移が含まれていないからだと考えられる。

4. まとめと今後の課題

4.1 まとめ

重陽子 100 MeV/u と Cs の核破砕反応と Pd との複合核(d,n)反応により生成した中性子により核変換を行う中

性子源の核設計を行った。減速材に Pd を用いることで高速中性子を減速しつつ ^{107}Pd の核変換も同時に行うことができる。さらに、重水と合わせて熱化・熱外化させるのに最適な厚みの検討を行い、中性子損失率が 5%以下になるような設計を行った。また、PHITS と DCHAIN を組みあわせることで、核変換の進行により変化する組成を考慮に入れた計算が可能になった。2 次中性子の評価方法の違いゆえに PHITS 計算を 2 回行う必要があることが難点ではあるが、核反応と生成核の崩壊を含めた計算により核変換量だけでなく核変換により生成される安定核種の増加量も評価できるようになった。

4.2 今後の課題

今回報告した中性子源のジオメトリには長期的なビーム照射による核変換速度を維持するための最適化計算がなされていない。Figure 5 や Table 2 に示されているように核変換速度は徐々に低下していくので、核変換速度の低下を抑える工夫を考えていく。また、今回新たに考案した PHITS と DCHAIN を組み合わせた経時変化の計算方法には、親核が放射性核種である場合の崩壊に

よる減少は含まれていない。HLW 中の Cs には ^{134}Cs ($T_{1/2} = 2 \text{ year}$)や ^{137}Cs が含まれているため Cs の核変換量の経時変化を計算するうえでは考慮すべきことであるが、現在の PHITS や DCHAIN ではこれに対応していないため、原子炉の炉心設計に使われている燃焼計算コード MVP-Burn[5]などを参考に改良を行っていく。

参考文献

- [1] Mitsuhiro Fukuda *et al.*, Summary report of 30th ImPACT PJ-4 meeting, July, 26, 2018.
- [2] 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>
- [3] 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>
- [4] T. Kobayashi *et al.*, “Spectroscopic investigation of autoionizing Rydberg states of palladium accessible after odd-mass-selective laser excitation”;
<http://iopscience.iop.org/article/10.7567/JJAP.56.010302/meta>
- [5] 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