

## 革新的研究開発推進プログラム 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

日本原子力研究開発機構

岩本 修

[iwamoto.osamu@jaea.go.jp](mailto:iwamoto.osamu@jaea.go.jp)

科学技術振興機構

藤田 玲子

[reiko.fujita@jst.go.jp](mailto:reiko.fujita@jst.go.jp)

高度情報科学技術研究機構

仁井田 浩二

[niita@rist.or.jp](mailto:niita@rist.or.jp)

九州大学

渡辺 幸信

[watanabe@aees.kyushu-u.ac.jp](mailto:watanabe@aees.kyushu-u.ac.jp)

#### 1. はじめに

内閣府が進めている革新的研究開発推進プログラム ImPACT (Impulsing Paradigm Change through Disruptive Technologies Program)の一つとして、長寿命核分裂生成物 (LLFP) の核変換処理に関わるプログラム「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」が2014年から始まり、今年度(2018年度)で終了する予定である。ImPACTはハイリスク・ハイインパクトな研究開発を行い、非連続なイノベーションの実現を目指している。このLLFPの核変換に関わるプログラムでは基礎データの取得からシナリオの提案まで五つのプロジェクトに分かれて、幅広い活動が行われている。核データに関わる研究開発も実施され、多くの成果が生まれつつある。本稿では、プログラム全体について簡単に触れつつ、核データに直接かかわる二つのプロジェクトとその中で得られた成果の一部を紹介させていただく。

## 2. プログラムの概要

本プログラムは原子力発電を進めると必ず発生する高レベル放射性廃棄物の処分問題に新たな選択肢を提示することを目的として ImPACT プログラムに採択された[1]。本プログラムの基本的な考え方を図 1 に示す。

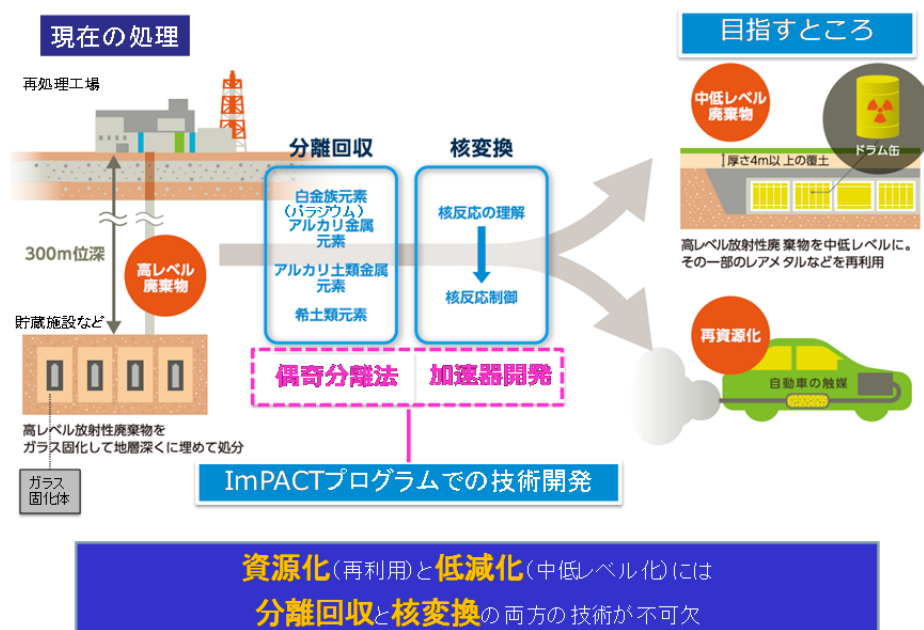


図 1 プログラムの考え方

本プログラムは分離回収と核変換を組み合わせた新しい方法により高レベル放射性廃棄物 (HLW) に含まれる半減期の長い長寿命核分裂生成物 (Long-lived Fission Products (LLFP)) を短寿命核種や安定核種に核変換することをコンセプトとするものである。主要な LLFP 核種のうち、これまで研究開発されていないもので長期間保管すると問題となる  $^{79}\text{Se}$  および  $^{135}\text{Cs}$ 、資源化の可能性のある核種として  $^{107}\text{Pd}$  と  $^{93}\text{Zr}$  を対象 LLFP とした。また、原子炉で核変換する際に必要となる同位体分離法を採用しない核変換法を検討した。その結果、同位体分離法に代わり実現性の高い偶奇分離法 (後述) と加速器による核変換法を組み合わせたアイデアを創出し、概念特許として特許協力条約 (PCT) に基づき国際的にも出願すると共に、公益社団法人発明協会の平成 30 年度全国発明表彰の 21 世紀発明賞 [2] を受賞した。

プログラムの構成を図 2 に示す。HLW から LLFP を回収する分離回収する技術を開発するプロジェクト 1、加速器で核変換するために必要となる新しい核反応データを取得するプロジェクト 2、測定した核反応データを核変換の経路 (パス) にする理論モデルとシミュレーションコードの開発ならびにそれらの高度化を実施するプロジェクト 3、

提案する核反応経路を実現する加速器ならびにその周辺システムを開発するプロジェクト4、およびプロジェクト1～4で技術開発した技術をプラントの概念を検討すると共にプラント概念を設計するプロジェクト5から構成される。プロジェクト5では併せて、高レベル放射性廃棄物の低減化を実現するシナリオと資源化するためにリサイクルする放射性核種のクリアランスレベルの提案をも行う。加速器の技術開発は種々の要素技術を並行して実施できることを考慮し、社会実装は2040年を目標とした。

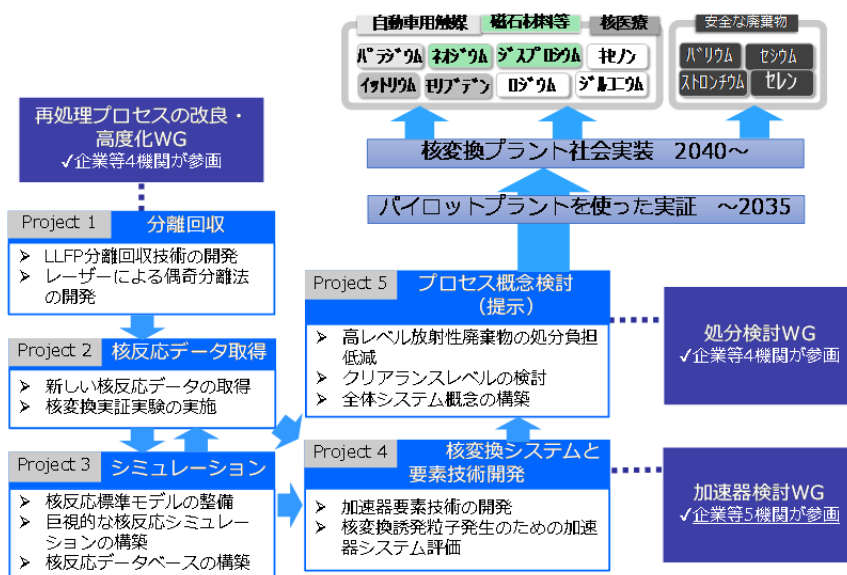


図2 プログラムの構成

各プロジェクトの最近の成果の概要を紹介する。

プロジェクト1ではHLWからLLFPを分離回収する技術を開発している。対象とする高レベル放射性廃棄物は再処理工場で発生する高レベル廃液と既に高レベル廃液を固化した変換ガラス固化体の2種類がある。そこで、「ガラス固化体の溶解技術」と「高レベル廃液からのLLFPの回収技術」を開発している。発生量の多い「高レベル廃液からのLLFPの回収技術」ではPd、Se、Cs、およびZrを化学的に分離し回収率約90%で回収する候補技術を成立させることができた。PdおよびSeは電解法により陰極に回収し、その残液からCsをイオン交換法で、Zrを溶媒抽出法でそれぞれ回収できることを模擬高レベル廃液を用いて確認した[3]。回収したPdおよびZrのうち、半減期の長い奇数核種を直線偏光レーザー、共通イオンコアや自動イオン化準位の採用により奇数核種のみを分離回収する偶奇分離法を考案し、Pdの場合は既往研究の約10万倍の処理量の装置を既に開発した[4]。

プロジェクト2では詳細を後述するように理研のRIビームファクトリーや日本原子力研究開発機構(JAEA)のJ-PARCで新しい核反応データを測定した[5,6]。このうち、<sup>107</sup>Pd

についてはインプラントで  $^{107}\text{Pd}$  の純度 100% の標的(ターゲット)を理研 AVF で作製し、重陽子ビームを照射して核変換の割合を実際に確認する実証試験を世界で初めて実施中である。

プロジェクト 3 では詳細を後述するように、プロジェクト 2 で測定した新しい核反応データのデータベース JENDL/ImPACT-2018 を構築すると共に重陽子の反応をシミュレーションできるコード DEURACS を開発した [7]。

プロジェクト 4 ではプロジェクト 2 および 3 で提示した核反応経路を実現する革新型加速器 ImPACT2017 の仕様を決定した。その加速器仕様は、入射ビーム電流約 1 A、入射ビーム径 10cm 以上、入射エネルギー 40~200MeV/u の重陽子ビームを用いるもので、世界初の処理装置としての加速器である[8]。

プロジェクト 5 ではプロジェクト 1~4 で検討した分離回収する技術から革新型加速器による核変換する技術のプラント概念を設計している。また HLW を低減する概念として JAEA が提案している Cs および Sr を長期間保管するシナリオ [9] を採用し、マイナーアクチニド (Minor Actinides (MA)) を金属燃料高速炉で核変換することにより、HLW の処分場の面積を 1/4~1/100 に低減できるようにすると共に中深度処分に適用できるようにする。一方、資源化に必要であるクリアランスレベルとして  $^{107}\text{Pd}$ 、 $^{93}\text{Zr}$  それぞれ、3200Bq/g、70Bq/g を試算し、論文が受理された [10]。今後、ICRP および IAEA に働きかけることにより世界的に認められる値としたい。

### 3. プロジェクト 2

#### 3.1 プロジェクト 2 の概要

プロジェクト 2 の目標は、加速器を用いた核変換による LLFP の短寿命化あるいは資源化に有効な反応経路を提案・検討するために必要な新規核反応データを取得することである。そのために、世界最高性能の国内加速器施設 (理研 RIBF や J-PARC 施設等) にて、実験核物理学の革新的測定手法を適用し各種核変換データの新規取得を行ってきた。核反応データの精度は核変換システムの成立条件 (安全性、信頼性、効率性等を含む) を決めるために大きな影響を与えることから、核反応データの新規取得ならびに精度の向上は本 ImPACT プログラムの中で重要な位置を占めている。

本プロジェクトは、主に 6 項目の研究開発テーマから構成されている。①中性子ノックアウト反応 (理研)、②高速中性子核破碎反応 (九大)、③クーロン分解反応 (東工大)、④低速 RI ビーム誘起反応 (東大)、⑤中性子捕獲反応 (JAEA)、及び⑥負ミューオン捕獲反応 (理研) である。図 3 にこれら研究開発テーマをエネルギー軸上に大まかに分類している。

項目①②③の実験は、理研 RIBF にて理工連携の共同実験 (参加者数約 50 名規模) として実施された。最新の逆運動学手法を用いて、LLFP 核種 ( $^{79}\text{Se}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{107}\text{Pd}$ ,  $^{126}\text{Sn}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ )

に対する 50, 100, 200MeV/u の陽子及び重陽子入射核破砕・フラグメンテーション反応やクローン分解反応に対する残留核の同位体生成断面積が系統的に測定された。得られた研究成果 ( $^{93}\text{Zr}$  及び  $^{107}\text{Pd}$ ) は、文献[11,12,13] に PTEP 誌の三部作として発表されている。次に、項目④では、低エネルギー領域での RI ビーム核反応データの取得を目指して、RI ビーム減速・収束装置 OEDO が開発され、新ビームラインが理研 RIBF に建設された。OEDO ビームラインを用いて、 $^{93}\text{Zr}$  と  $^{107}\text{Pd}$  に対する 20~30MeV/u 陽子及び重陽子入射同位体生成断面積の測定、並びに  $^{79}\text{Se}$  の MeV 領域中性子捕獲断面積データを得るための (d,p)代理反応実験が実施された[14]。項目⑤では、 $^{135}\text{Cs}$  に対し、J-PARC MLF の ANNRI を用いて中性子捕獲断面積が測定され[15]、さらに中性子照射放射化実験 (@京大炉) により熱中性子捕獲断面積データが取得された。項目⑥では、J-PARC MUSE 施設にて、負ミューオン捕獲原子核反応による  $^{107}\text{Pd}$  の放射化断面積測定が行われ[16]、さらに捕獲反応から放出される中性子の測定実験が阪大 RCNP-MuSIC 施設にて実施された。

本プロジェクトには核変換実証試験も含まれている。インプラネーション装置により 100%に濃縮した  $^{107}\text{Pd}$  標的を独自に作製し、理研にて 24MeV 重陽子を長期間照射し、核変換による安定 Pd 同位体生成を実験的に検証するためのデータ取得が実施されている。

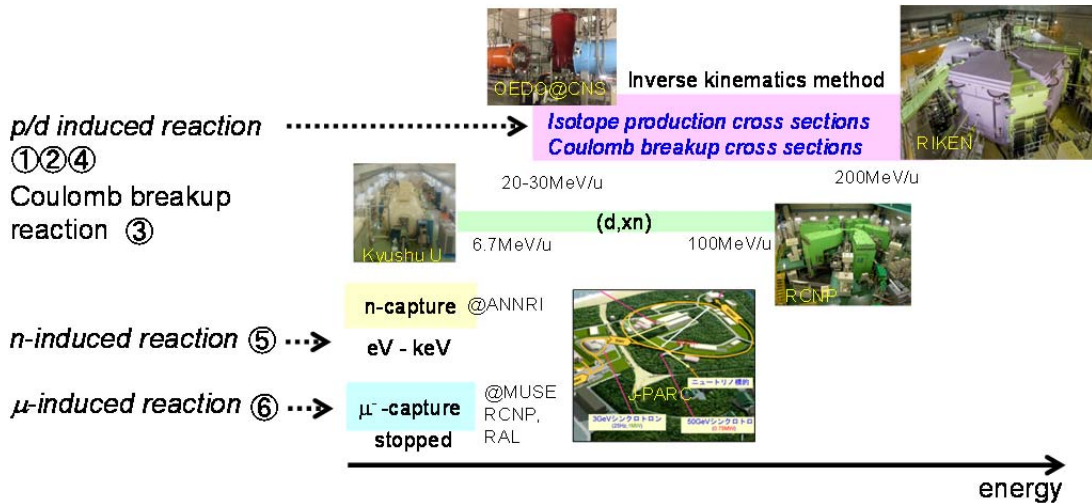


図3 プロジェクト2で実施した核反応データ測定

### 3.2 九大チームによる研究成果

九大チームは研究開発項目「高速中性子核破砕反応」を担当した。中性子を標的にした逆運動学実験はできないので、陽子や重陽子を標的とした核破砕反応同位体生成実験により核反応データの新規取得と理論モデル解析や改良を行うことを目的とした。また、加速器による高速中性子ビーム生成に関連した核反応として、重陽子入射中性子生成反応データの取得ならびにデータベース化を行った。

理研 RIBF にて、逆運動学的手法を駆使して LLFP の RI ビームと陽子及び重陽子標的との核破碎反応による同位体生成断面積および放出中性子の角度・エネルギー分布を測定した。本研究開発では、LLFP 核種 ( $^{79}\text{Se}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{107}\text{Pd}$ ,  $^{126}\text{Sn}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ ) に対し、エネルギーを 200, 100, 50 MeV/u と変えて測定を実施した。実験は、中性子ノックオン反応 (理研) とクーロン分解反応 (東工大) を担当する研究チームも合わせた理工連携実験チームを編成して行った。九大チームは、主に  $^{93}\text{Zr}$  データのデータ解析を担当した[12]。各実験では、固体標的 ( $\text{CH}_2$ ,  $\text{CD}_2$ ,  $\text{C}$ ) や水素・重水素の気体または液体標的を用いた測定から、陽子、重陽子との核破碎反応により生成される同位体の生成断面積データを取得した。RIBF の実験装置であるインフライトセパレータ BigRIPS と ZeroDegree スペクトロメータを組み合わせた検出器系を用いた実験で、核破碎による生成同位体の生成量を導出した。さらに、BigRIPS と広アクセプタンス多粒子スペクトロメータ SAMURAI を用いることで、核破碎反応で生成した残留核と放出中性子との同時計測を行い、中性子相関データを新規取得した。ZeroDegree 実験に関しては、安定核も含む  $^{93}\text{Zr}$  周辺核 ( $^{91,92}\text{Y}$ ,  $^{92}\text{Zr}$ ,  $^{93,94}\text{Nb}$ ) に対する核子当たり 100MeV の陽子・重陽子入射同位体生成断面積データも同時に取得できた。これらの系統的な測定データに対して、核破碎反応に与える中性子魔法数 50 の殻効果の系統的な調査研究を進めている[17]。新規測定データを粒子・イオン輸送計算コード PHITS に使用されている核内カスケードモデル (INCL) + 蒸発モデル (GEM) による計算結果と比較し、理論モデルの検証ならびに改良を行った。具体的な実験手法やデータ解析、測定結果については、本号掲載の川瀬氏の記事 (奨励賞受賞報告) を参考にしたい。

もう 1 つの研究課題である高速中性子ビーム生成に関する核反応データ取得については、九大加速器・ビーム応用科学センター及び阪大 RCNP にて、重陽子入射中性子生成反応の系統的な測定を行った。九大では、厚い Li や C 等の標的に入射エネルギー 6.7MeV の重陽子を入射して、放出される高速中性子のエネルギー・角度分布を測定した[18]。阪大 RCNP では、薄い標的 (Li, Be, C, Al, Cu, Nb, In, Au, Ta) に対し、飛行時間法により 200MeV 重陽子入射における高速中性子生成二重微分断面積を測定した[19]。Li の新規測定データに先行研究の Li データ (25, 40, 100MeV) を加えた系統的な測定データに対し、理論モデル計算コードシステム DEURACS[20]を用いた理論解析を行い、プロジェクト 3 の核反応理論モデル・シミュレーション担当チームと協働して、Li 標的に対する核子当たり 200MeV までの重陽子入射中性子生成二重微分断面積データベースを作成することに貢献した。

## 4. プロジェクト 3

### 4.1 プロジェクト 3 の概要

本プロジェクトの目標は、シミュレーションを用いて核変換システムの核変換率、熱

除去等の工学的な検討を行い、核反応経路等を特定することである。そのために、LLFP核種についての PHITS シミュレーションの精度向上を図ってきた。まず、既存の論文や北大の原子核反応データ研究開発センター(JCPRG)等に格納されている核反応断面積、プロジェクト2で測定された新たな断面積データを PHITS で直接利用できるようにした。また、これらの特定チャンネルの断面積データについて最新の核反応理論・構造理論を用いた解析を行い、評価された核データベースを構築した。

本プロジェクトは、次のような 5 つの研究テーマから構成されている。核反応理論モデルの改良として、①核反応理論による標準モデルの構築 (阪大)、②核構造計算による核反応モデルの高精度化 (筑波大)、核反応評価データベースの改良として、③核反応データコンパイルの実施 (北大)、④長寿命核分裂生成物の標準的核反応評価データベースの構築 (JAEA)、核変換の巨視的シミュレーションとして、⑤巨視的な核反応シミュレーションの実施 (RIST) である。プロジェクト3の概要と各研究テーマの関係を以下の図に示す。

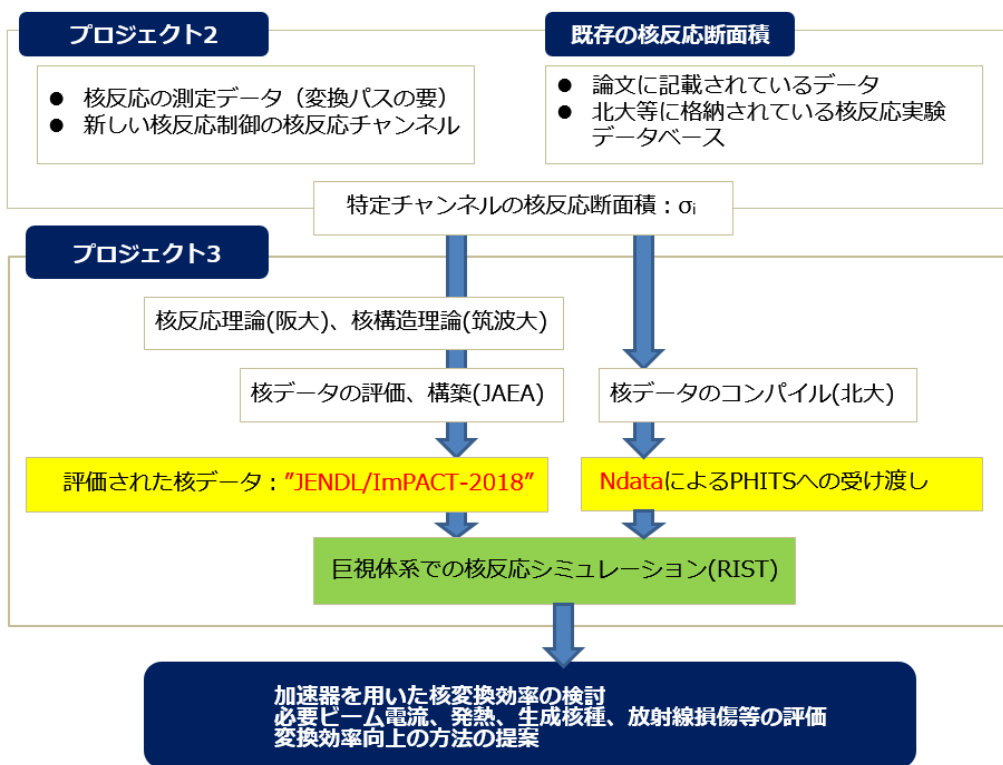


図 4 プロジェクト3の概要

図4の右側のパスでは、既存の断面積データとプロジェクト2で測定された断面積データを PHITS で利用するために、核種生成断面積を格納するデータのフォーマット“Ndata”を決定し、PHITS の Yield タリーで直接利用できるようにオプションを導入した。北大で

はこのフォーマットに従って、既存のデータやプロジェクト2で測定された新しい核種生成断面積をコンパイルし PHITS のシミュレーションに供した。このことにより、プロジェクト2で測定された新たな断面積を直接使用した場合と、従来の核データもしくは核反応モデルを利用した場合の違いについて、バルクなシミュレーションの結果で即座に比較することが可能になった。もうひとつのパスは、阪大の微視的有効反応理論 (MERT) を用いた核データの生成・補間、そのために必要な核構造情報の筑波大の微視的モデルによる生成、また、JAEA による微視的な手法を取り入れた核反応計算モデルによる核データの生成及び評価された核データ“JENDL/ImPACT-2018”の作成であり、これらによって PHITS による LLFP 核種のシミュレーションの精度向上が図られた。

## 4.2 LLFP 核データライブラリ

加速器による LLFP の核変換システムのシミュレーションの精度を向上させるため、プロジェクト2の測定やプロジェクト3の理論の成果を利用し、核反応の評価データベースを構築した。データベースの構築にあたり、本プログラムで取り扱う LLFP である  $^{79}\text{Se}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{107}\text{Pd}$ ,  $^{135}\text{Cs}$  の4核種に加え、これらの核変換において生成が想定される周辺核を対象とした。LLFP を含むこれらの対象核種には多くの不安定核が含まれており、測定データは非常に限られている。プロジェクト2の新たな測定データをもとに、これまでの JENDL の核データ評価で用いてきた核反応のモデル計算を改良しつつ、プロジェクト3の理論的な知見を活用して、評価データの精度向上を図った。

プロジェクト2で実施された理研 RIBF の測定では、LLFP に対して逆運動学を用いた手法により、核破碎反応によって生成される多くの核種の生成断面積が得られている。これらのデータに対して従来用いてきたモデル計算の再現性が必ずしも良くなかったが、改善には前平衡過程のモデルパラメータを一部調整することが有効であることが分かった。前平衡のモデルは通常、陽子や中性子などの粒子放出のスペクトルをもとに決定されているが、核破碎反応における核種生成にも大きく影響しており、核データの精度向上には、これらのデータの活用が重要であった。

核反応のモデル計算では準位密度やガンマ線強度関数などの核構造に関わる物理量が重要である。これまでの JENDL の評価では現象論的なモデルを利用してきたが、現象論のモデルは測定データが豊富な安定核に基づいてパラメータを決定しており、不安定核への適用性は必ずしも明らかではない。プロジェクト3では核構造や核反応に対する微視的な理論によるアプローチを行っており、これらの理論的な成果を活用することにより、不安定核に対する核データの信頼性の向上を図った。ガンマ線強度関数に関して、3次元の平均場理論計算の結果を利用した。準位密度については、微視的な核構造計算結果も利用しつつ、新たな現象論的なモデルを構築することにより従来のモデルより、断面積の計算の再現性を向上できる可能性があることを見出した。このモデルでは、原子



核の変形による準位密度への影響を考慮しており、球形核から変形核まで広い対象に対して、一貫したパラメータを用いて中性子反応断面積を精度よく再現できることが分かった。

これらの成果を、これまで JENDL の開発で利用してきた核反応モデル計算コード CCONE へ統合して、中性子及び陽子誘起核反応による核種生成断面積や 2 次放出粒子のエネルギースペクトル・角度分布等の核データを評価した。最終的に原子番号 25 (Mn) ~56(Ba)までの 32 元素、163 核種に対して、200 MeV までの陽子及び中性子誘起反応データを収録した核データライブラリ JENDL/ImPACT-218 を作成した。

#### 4.3 LLFP 核変換シミュレーション

RIST の担当である「巨視的な核反応シミュレーションの実施」では、効率の良い変換システムの構築に向けて、加速器による核変換の基礎的なデータを PHITS シミュレーションによって取得してきた。まず、陽子、重陽子入射の場合の変換数の入射エネルギー依存性を LLFP の簡単な円柱形体系で求めた。

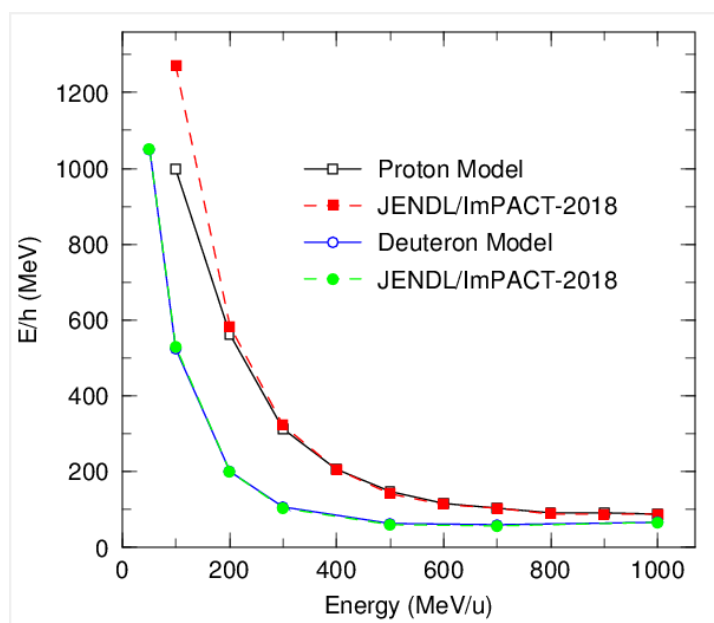


図 5  $^{107}\text{Pd}$  の円柱体系での変換エネルギー( $E/h$ )の入射エネルギー依存性

図 5 は、 $^{107}\text{Pd}$  のある一定の変換密度を実現する大きさの円柱体系に陽子と重陽子を入射させ、入射粒子当たり変換された Pd の入射エネルギー( $E$ )を変換数( $h$ )で割った変換エネルギー( $E/h$ )を比較したものである。陽子で 500MeV、重陽子で 200MeV/u 以上のエネルギー領域の変換エネルギーが小さく効率の良いことが分かる。図 5 の実線の結果 (Proton Model 及び Deuteron Model と記載) は、陽子と 20MeV 以上の中性子の入射反応、また重陽子入射反応を PHITS 内蔵の核反応モデル INCL で計算したものであるが、同じ図に今

回作成された核データ JENDL/ImPACT-2018 を用いて 200MeV までの陽子、中性子入射反応を計算した結果を赤と緑で示している。200MeV 以上の領域ではほとんど差異はないが、陽子入射の場合の 200MeV 以下では INCL を用いた結果は JENDL/ImPACT-2018 の結果と比較して変換エネルギー(E/h)を過小評価している。このことは、核子入射の INCL の結果もまだ改善されるべき点が残っていることを示しており、重陽子入射反応に関しても同様にモデル計算の精度を向上するために、評価された核データが必要であることを示唆している。そのために JAEA では重陽子反応のシミュレーションコード DEURACS を開発した。

核種生成断面積は変換数 h に直接影響を与えることから本プロジェクトでは特に重要である。図 6 は  $^{135}\text{Cs}$  標的、200MeV 陽子入射反応からの Cs 同位体生成率である。これまでのモデル計算では、断面積が大きい中性子 1 個抜けチャンネルの再現性が悪く、いろいろな改良が試みられたが改善されなかった。この図が示すように JENDL/ImPACT-2018 を使うことによって、核変換のシミュレーションの精度は格段に向上した。

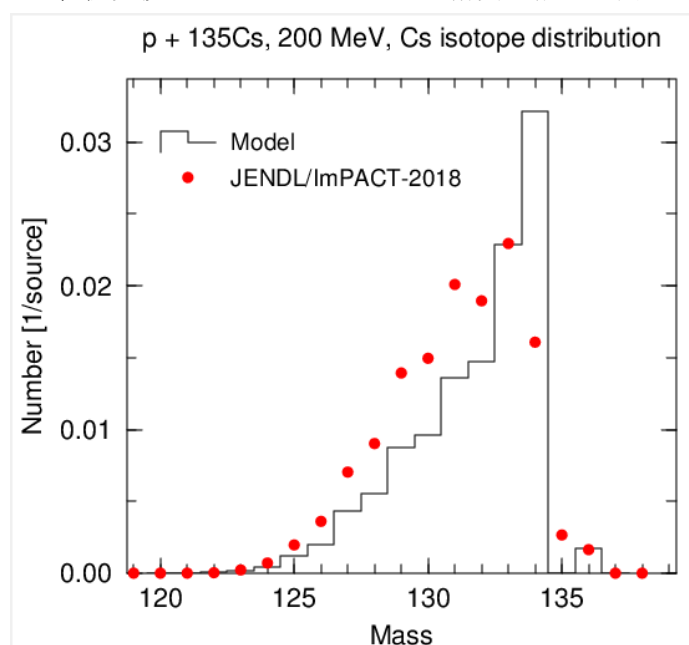


図 6  $^{135}\text{Cs}$  標的、200MeV 陽子入射反応からの Cs 同位体生成率

核変換システムの設計では変換効率の他に、発熱、損傷、生成される長寿命核種等の評価が重要になる。これらについても、PHITS シミュレーションを用いて、発熱と入射エネルギーの関係、除熱のための標的形状の評価、格納容器や LLFP 自身の放射損傷の評価、照射時の生成放射性同位元素の生成量、それらの長時間照射、貯蔵後の残留放射の評価等を行い、核変換システムの設計の基礎データを作成し、核変換システムの全体像の構築に寄与した。

## 5. おわりに

高レベル放射性廃棄物の処理は今後原子力を進める進めないにかかわらず、非常に大きな課題である。ImPACT という枠組みでこの課題に取り組み、核データに関するものも含め様々な成果が生み出された。しかしながら、このプロジェクトで放射性廃棄物の課題がすべて解決されたわけではない。今後も課題の解決に向けた更なる歩みが求められるであろう。ただし、ここで得られた成果は貴重なものであり、放射性廃棄物の核変換のみならず、他の様々な応用や基礎的な研究の発展にもつながることを期待する。また、これまであまり接点がなかった研究者間の交流が促されたことは、このプロジェクトの重要な側面である。異なる考えの新たな結合がイノベーションをもたらすと考えると、これらの交流から更なる革新的なアイデアが生み出される可能性にも期待したい。

## 参考文献

- [1] <https://www8.cao.go.jp/cstp/sentan/about-kakushin.html>
- [2] <https://www.jst.go.jp/impact/download/data/press20180517.pdf>
- [3] <https://www.jst.go.jp/pr/announce/20180323/index.html>
- [4] <https://www.jst.go.jp/pr/announce/20170110/index.html>
- [5] <https://www.jst.go.jp/pr/announce/20170213/index.html>
- [6] <https://www.jst.go.jp/pr/announce/20170911/index.html>
- [7] <https://www.jst.go.jp/pr/announce/20181012/index.html>
- [8] <https://www.jst.go.jp/impact/sympo/fujita/index.html>
- [9] [http://www.mext.go.jp/b\\_menu/shingi/gijyutu/gijyutu2/070/gijiroku/1352357.htm](http://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/gijyutu/gijyutu2/070/gijiroku/1352357.htm)
- [10] <https://www.jst.go.jp/pr/announce/20181003/index.html>
- [11] H. Wang et al., Prog. Theor. Exp. Phys. 2017, 021D01 (10 pages) (2017).
- [12] S. Kawase et al., Prog. Theor. Exp. Phys. 2017, 093D03(10 pages) (2017).
- [13] S. Takeuchi et al., Prog. Theor. Exp. Phys. 2019, 013D02 (2019).
- [14] N. Imai et al., JAEA-Conf 2018-001, 39-44 (2018).
- [15] S. Nakamura et al., JAEA-Conf 2018-001, 199-204 (2018).
- [16] T. Matsuzaki et al., KEK Progress Report 2018-2, 31-32 (2018); *ibid.*, 71-72 (2018).
- [17] Y. Watanabe et al., Proceedings of the 15th Varrena Conference on Nuclear Reaction Mechanisms, Villa Monastero, Italy, June 11-15, 2018, pp.139-143 (2019).
- [18] H. Takeshita et al., presented at 2018 Symp. on Nuclear Data, Nov. 29-30, 2018, Tokyo Institute of Technology, Japan
- [19] H. Sadamatsu et al., JAEA-Conf 2018-001, 131-136 (2018).
- [20] S. Nakayama et al., Phys. Rev. C 98, 044606 (2018).