

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」の活動報告

Report on the Impulsing Paradigm Change through Disruptive Technologies Program (ImPACT) “Reduction and Resource Recycling of High-level Radioactive Wastes through Nuclear Transmutation”

北海道大学大学院理学研究院
江幡 修一郎、合川 正幸、今井 匠太郎

EBATA Shuichiro, AIKAWA Masayuki, IMAI Shotaro
Faculty of Science, Hokkaido University

Abstract

The Impulsing Paradigm Change through Disruptive Technologies Program (ImPACT) “Reduction and Resource Recycling of High-level Radioactive Wastes through Nuclear Transmutation” was launched in 2014. This ImPACT project is organized by Cabinet Office, Government of Japan, and composes five teams in which JCPRG participates. This report summarizes the JCPRG contributions to the program; the nuclear data compilations, the collaborations for theoretical researches and the development of the novel measurement technique.

1 はじめに

革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) は、内閣府が推進する科学技術政策の一つで挑戦的な研究開発を推進する事を目的に創設されたプログラムである [1]。ImPACT には様々な分野に関する研究開発が組み込まれており、そのうちの一つに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」がある [2]。このプログラムは5つのチーム (PJ1-PJ5) によって推進されており、JCPRG は核反応理論モデル、シミュレーションを担当するチーム (PJ3) に参加している。

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」の目的は、原子力発電所の使用済み燃料を再処理した際に発生する、超長寿命かつ高レベル放射性廃棄物を低減もしくは資源化する方法を確立する事にある。このような目的の大規模プロジェクトはこれまでもにもあったが、既存核データ (主に中性子) を利用する範囲での研究開発に留まっていた [3]。本プログラムの最大の特徴は長寿命核分裂生成物 (LLFP) の核反応経路を明らかにし、その経路を踏まえて合理的な核変換法を模索する事である。そのため、原子核物理の研究者が数多く参与している。

我々JCPRG は「核反応データのコンパイル」を主たる任務として担当しており、実験担当チーム (PJ2) がRIKEN で測定したデータをいち早くコンパイルし、他の研究者が使えるようにする事が使命である。また、PJ3 内の他の理論研究者と共同研究を行い、さらに必要となるデータを測定する新しい方法等を提案している。本稿では、こうした ImPACT における活動状況について報告する。

2 ImPACT に関する活動内容

本プログラムで対象にしている LLFP は ^{79}Se , ^{93}Zr , ^{107}Pd , ^{135}Cs の四核種であり、考える反応は中性子だけでなく、ガンマ線、荷電粒子、ミュー粒子反応も対象にしている。対象四核種はすべて 10 万年以上の半減期を持っている。

2.1 データコンパイル

JCPRG はこれまで日本で測定された荷電粒子反応データを採録し、国際機関と連携しながら書式 NRDF と EXFOR でデータベース化を進めてきた。2015 年度に採録したデータは直接 ImPACT プログラムの中で計画されたものではないが、RIKEN で測定された対象四核種以外の核分裂生成核種である ^{90}Sr と ^{137}Cs と陽子、重陽子反応断面積を採録した [4]。今後も新しいデータの測定と同時に、採録を進める。

対象四核種の反応データの多くは従来の書式で採録する事が可能であるが、反応経路の制限がない為、どのような反応が現れるか不定である。一例としてミュー粒子反応の実験が挙げられる。EXFOR のデータベースではミュー粒子反応は想定されておらず、採録できない。そこで我々は、通常の反応データには従来通りの書式を採用し採録を進める一方で、より拡張性の高い新書式の開発を進める事にした。加えて、過去に測定されたデータの調査とその結果をまとめた Web サイトを作成した [5]。

新しい書式はミュー粒子反応における物理量も統一的に採録可能なものにする計画である。本プログラムではミュー粒子を吸収させた核からの中性子剥離数の分岐比が採録対象になる。この物理量に直接該当する項目は現行の EXFOR には存在しないが、代替案として Delayed-Neutron emission probability もしくは Primary Fission-Fragment Yield を指定することで採録する事を検討している。Delayed-Neutron emission probability は一回の β 崩壊に伴う中性子の収量で定義されている確率である。EXFOR では (A(0,B-)A',,PN) の様に表現される。Primary Fission-Fragment Yield は中性子を出す前の一回の核分裂で生じる分裂片の質量分布を表わす。EXFOR では (... (N,F)ELEM/MASS,PRE,FY) の様に表現される。これ等の形式を踏まえてミュー粒子吸収反応の新しい形式を検討している。

ガンマ線吸収反応 (光核反応) も本プログラムの対象としている反応であるが、この反応において、PJ3 メンバーの利用者から書式に対して疑問点が挙がった。光核反応における実光子と仮想光子の区別についてである。光核反応実験では直接ガンマ線を用いる方法と、 ^{208}Pb などの重い核種を標的にし仮想光子を用いる方法とがある。現行の EXFOR では両者を区別せずにどちらもガンマ線として採録されている。この採録についてはもう一つ注意する点があり、それは反応が逆運動学に基づいている点である。反応式は標的粒子 (T)、入射粒子 (P)、放出粒子 (E)、残留粒子 (R) で書くと通常 $T(P,E)R$ と書かれる。逆運動を用いた系では $P(T,E)R$ となる。反応式は異なる様に見えるが、もちろん核反応は物理的に同じものである。さて仮想光子利用の実験では、ガンマ線が“標的”であり、反応させる核が“入射”物 (今 ^{93}Zr とする) である。この反応式を直接書けば $\gamma(^{93}\text{Zr}, X_E)X_R$ となる。ところが EXFOR では軽い核種を入射粒子とする仕様の為、 $^{93}\text{Zr}(\gamma, X_E)X_R$ と記述される。問題点はこの最終的な書式から、実際に行われた実験は、仮想光子源として ^{208}Pb が標的粒子として用いられている事が分からない事にある。新しい書式ではこの点を記述できる方法を検討する。

現在理研で行われている実験に加えて、過去にのデータ、論文を調べて対象四核種と $\gamma, n, p, d, \alpha, ^{12}\text{C}$ の反応データを収集した。核反応データは EXFOR, NRDF の範囲で、文献はアメリカ National Nuclear Data Centre の NSR を利用して調べ、JCPRG サーバーで公開している [5]。また実験デー

タだけでなく、 (γ, n) 反応については筆者が理論計算した結果も載せてある。今後新しいデータが公開され次第、順次更新していく予定である。

2.2 理論研究者との共同研究

PJ3 には JCPRG のほかに、核反応シミュレーションには高度情報科学技術研究機構 (RIST) の仁井田氏のグループ、核反応理論には大阪大学の緒方氏のグループ、核構造理論には筑波大学の中務氏のグループ、核反応評価データベースには日本原子力研究機構の岩本氏のグループが参画している。

核反応データは最重要なデータであるが、本プログラムの対象は kg, m スケールの物質であるため、微視的なデータだけでは目的を達成できない。対象の核廃棄物の形状、物質状態なども考慮して反応経路を検討しなければならない。その為、本プログラムの実験で得られた基礎データを核反応シミュレーションコード (PHITS) に入力する事は非常に重要である。JCPRG はこの部分で入力データへの変換に関して共同研究を行っている。筆者はこれまでに平均場模型を用いた原子核構造の研究を続けてきた [6] ので、核反応理論へ対象四核種の核子密度分布を提供し、核構造理論のグループと共同研究を実施している [7]。

2.3 新しいデータの測定方法

昨年度、我々は標的の物性を含んだ物理量 (厚標的生成反応率: TTY) に注目し、TTY を逆運動系の反応率から変換する方法を提案した [8]。本年度は広いエネルギー範囲のデータを一度に取得する方法を提案した (現在 Nucl. Inst. Method B へ投稿中)。我々はこの方法を厚標的トランスミッション法 (Thick-Target transmission method: T3 method) と呼んでいる。

T3 法は名前にある様に通常のトランスミッション法に厚い標的を導入し拡張したものである。通常のトランスミッション法では薄い標的を用意し、入射粒子数と標的を通過した粒子数から反応断面積を導出する。この時の入射エネルギー (E) が測定する断面積のエネルギーに対応する。従って、エネルギーに関する断面積の関数 $\sigma(E)$ を取得する為には、各エネルギー毎に入射エネルギーを変えて測定を行う必要がある。物質を対象にした系を考えた場合に必要となる TTY はこの $\sigma(E)$ が必要になる。測定の回数を大きく減らす為の方法として、T3 法を考えた。基本コンセプトは入射エネルギーの調整を加速器で行うのではなく、標的の厚さで変化させて行うのである。入射ビーム調整よりも標的厚を変化させる方が明らかに労力が少ない。まだ実際の実験は行われていないが、PJ3 で利用されているモンテカルロシミュレータ PHITS[9] を用いて検証した (図 1)。図 1 は $^{12}\text{C}+^{27}\text{Al}$ の反応断面積のエネルギー関数では中空の丸のシンボルは統計数 10^5 の T3 による結果を、塗りつぶされた丸は統計数 10^6 の結果を破線は PHITS 内で用意されている断面積である。破線からのズレが大きいほど誤差が大きい事を示している。低エネルギーでは 10^6 が破線に近くなっている事がわかる。また三角のシンボルは武智氏等による実験値 [10] であり、T3 が有効である事がわかる。低エネルギーでは統計誤差が大きい、40MeV/u より高いエネルギーでは非常によく再現している。

我々は逆運動系からの TTY 変換方法とこの T3 法を効果的に利用すれば、対象四核種の相互作用断面積、核変換反応断面積に一致する $\sigma(E)$ と対応する TTY を得る事ができると考えている。

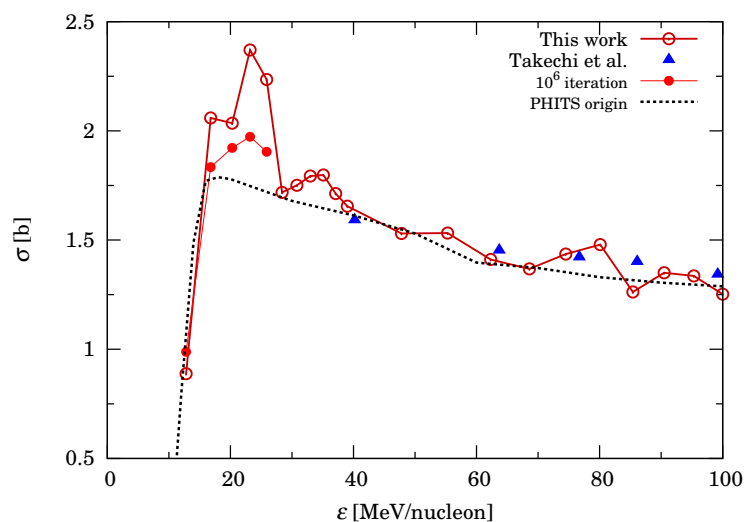


図 1: $^{12}\text{C}+^{27}\text{Al}$ の反応断面積のエネルギー依存性。

3 まとめ

JCPRG は「核反応データのコンパイル」の役割を担当して、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」に参画している。新しい核データの採録だけでなく、他の理論グループメンバーとの共同研究を通して貢献している。2015 年度は対象四核種 (^{79}Se , ^{93}Zr , ^{107}Pd , ^{135}Cs) に関するデータではなかったが、理研で測られた ^{90}Sr と ^{137}Cs の生成断面積を採録した。間近には ^{93}Zr と ^{107}Pd の光核反応断面積が公開されるので順次採録を進める。共同研究では大阪大学への核密度分布の提供、筑波大学とは核構造についての研究、RIST とは PHITS への入力書式開発で貢献している。我々独自の研究では、厚標的に注目し、逆運動系で測定された TTY の変換と厚標的を利用したトランスミッション法による相互作用断面積のエネルギー依存性の取得を進めている。今後も精力的に進めていきたい。

謝辞

本研究は、総合科学技術・イノベーション会議により制度設計された革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) により、科学技術振興機構を通して委託されたものです。

参考文献

- [1] 革新的研究開発推進プログラム ImPACT: <http://www.jst.go.jp/impact>
- [2] 「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」:
<http://www.jst.go.jp/impact/program/08.html>
- [3] 梅澤弘一, 「「OMEGA 計画」の概要 新たな可能性を目指す群分離・消滅処理の研究開発」, 日本原子力学会誌 **31** 1317 (1989), 向山武彦, 平川直弘, 高橋博, 滝塚貴和, 木村逸郎, 小川徹,

小寺正俊、安俊弘、若林利男、原田秀郎、井上正、高木直行, 「高レベル廃棄物の消滅処理研究開発」, 日本原子力学会誌 **37** 159 - 193 (1995).

[4] H. Wang, et. al., Phys. Lett. B**754** 104 (2016).

[5] Reaction Data for Long Live Fission Products: http://www.jcprg.org/impact/index_0j.html

[6] S. Ebata, T. Nakatsukasa and T. Inakura, Phys. Rev. C**90** 024303 (2014).

[7] 江幡修一郎、中務孝, 「偶々核基底状態変形の三次元 HF+BCS による系統的計算」, 日本物理学会 第 71 回年次大会, 21aAC-11.

[8] M.Aikawa, S.Ebata, S.Imai, Nucl. Instr. Meth. B**353** 1 (2015), 今井匠太朗、江幡修一郎、合川正幸, 「逆運動学を用いた放射性厚標的の反応収率評価法」, 北海道大学原子核反応データベース研究開発センター年次報告 No.4, 41 (2014).

[9] T. Sato, et. al., J. Nucl. Sci. Technol. **50**:9, 913-923 (2013).

[10] M. Takechi, et. al., Phys. Rev. C**79**, 061601(R) (2009).