

話 題 (Ⅲ)

原子力学会 (核データ・炉物理) 合同特別会合から

昭和63年日本原子力学会年会は東京工業大学で、4月4日から6日の3日間開催された。第2日目、B会場で、「シグマ」・「炉物理研究」両特別専門委員会の(核データ・炉物理)合同特別会合を次のプログラム通り行った。

(1) TRU消滅処理炉と核データ

① FBR

(原 研) 高野 秀機

② 核融合炉

(NAIG) 飯島 俊吾

(2) 量子工学研究の展望と期待

(東 大) 中沢 正治

座長は松延廣幸氏(住友原工)であった。上記3人の方に核データニュースのために、講演の要旨を書いていただいたのでここに掲載する。

TRU消滅処理と核データ—核分裂炉

(原 研) 高野 秀機

1. はじめに

核燃料サイクルを完成させるための最も大きな問題の一つは照射済み核燃料の再処理によって発生する高レベル廃棄物(HLW)を安全に管理することである。HLWに含まれる核分裂生成物(FP)に対してはTc-99, I-129, Cs-135, Zr-93などを除けば短寿命核種が殆んどて半減期は100年以下である。一方、 α -放射体の超ウラン元素(TRU)では半減期が数百年以上のものが多く、Np-237では約200万年、Am-243では約8000年である。この地質年代的な時間は、隔離のための人工バリアや地質安定性予測可能期間を考えると、遠い未来の子孫に責任がもてない。従ってこれらの長半減期をもつFPやTRU核種を核反応を利用して短寿命核種に変換することは、HLWの最終処分を工学的に可能にし、潜在的有害性を大きく低減させ、原子力利用のコンセンサス形成に大きく貢献する。

ここでは核分裂炉を用いたTRU消滅処理法の現状と核データに関する問題点を紹介する。

2. TRU核種の生成・崩壊と消滅

主要なTRU核種の半減期及び生成と崩壊のチェーンをFig.1に示す。

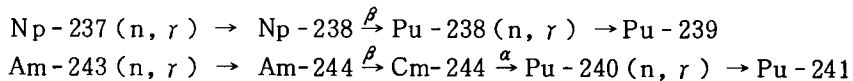
Np-237はU-235(n, γ)とU-238($n, 2n$)反応過程で生成されるものが主であるがAm-241の α -崩壊からも生じる。軽水炉ではU-235(n, γ)経路が主で、高速炉ではU-238($n, 2n$)とAm-241の α -崩壊から生成される。

AmとCmの生成はU-238 (n, γ) を起点としたPu-241のβ-崩壊系列に属している。

軽水炉ではNp-237が高速炉ではAm-241が多く生成される。33Mwd/kg燃焼させた使用済燃料1トン当り約1kgのTRUが生成される。これは発電炉1基当り年間約30kgのTRU生成となる。

HLWの隔離期間を1000年とすると、Fig. 1から分るようにNp-237とAm-243が特にTRU核種では問題である。この2核種を核反応により消滅させるには次のようなパスが考えられる。

- (1) 核分裂反応により直接FPにする。これらの核種は閾値核分裂反応であるため硬い中性子スペクトルをもつ高速炉やTRU専焼炉が有利である。
- (2) Pu核種に変換して核分裂反応でFPにするか燃料として有効に利用する。



これらの核変換を行うには軽水炉や高転換軽水炉等の熱中性子炉が有効である。

- (3) 有効利用。上述のようにNp-237とAm-243はPu-238とCm-244に、Am-241はCm-242に変換して熱源として有効に利用しつつ、自然崩壊により消滅させる。

TRUの生成量は炉型(中性子スペクトル)や燃料組成に強く依存している。Fig.1から分るようにトリウム燃料を用いればTRUは殆んど生成されない。将来はTRU消滅の観点からもトリウム炉の開発は有望である。

3. 核分裂炉によるTRUの消滅

消滅処理が正当化されるためには、消滅処理によりリスクが減少すること、処理に要するエネルギーがTRU生成時に放出されるエネルギーよりずっと小さいこと、消滅処理速度が自然崩壊速度やTRU発生速度より大きいこと、そして経済的に成立し得ることが必要である。

消滅処理に適した原子炉の条件として、処理速度を高くするために高中性子束レベルであること、TRUのリサイクル回数を減らし炉外取扱いによる回収もれ及びリスクを少なくすること、直接核分裂により消滅させる割合を増加させるには硬い中性子スペクトルが有利である。Fig. 2には消滅処理速度と高中性子束レベル及び硬スペクトルの関係をNp-237を例にして示す。LMFBRはMOX燃料の大型高速炉、Xは核分裂スペクトルを仮定した核分裂による最大の消滅処理速度である。ABMRはTRU専焼炉の一例でLMFBRとXとの中間である。

3.1 発電炉を用いた消滅処理

現在運転中の原子炉を用いてTRUの消滅が可能であれば、自から生成した廃棄物を自から消滅するのであるから、最も好ましい方法といえる。この場合の重要な制限条件は、発電炉の運転特性、燃焼率、反応度、線出力、出力空間分布などに大きな影響を与えないことである。

TRUリサイクルには、TRUを発電炉の燃料ペレット中に均質に混ぜる均質リサイクルとTRUの特殊燃料ペレットまたは集合体を炉心に混入する非均質リサイクルが考えられる。

3.1.1 軽水炉によるTRUの消滅

均質リサイクル方式ではTRUの混合量が0.1～0.2%以下ならば運転特性への影響は少なく、技術的困難もないが、高位のアクチノイドCmやCfの生成率が大きくなり、中性子放出率が増加する問題がある。

ここでは、Fig. 3, 4と5に大変興味ある結果を示す⁽¹⁾。これらの図で、SRAC-FPGSで示されている結果は各炉型での標準燃料組成による結果である。VHBPWRは20%のPuを含むMOX燃料超長寿命型軽水炉⁽²⁾であり、HCPWRは高転換軽水炉である。これらの各燃料にTRU(Np, Am, Cm)を均質に混合した場合の燃焼反応度変化がTRUの混合割合と共に比較されている。PWRでは0.2%が燃焼率変化の限界と思われる。しかし超長寿命型(VHBPWR)では非常に興味ある結果が観察される。TRUを1.5%混合できると共に、初期の余剰反応度を10% $\Delta k/k$ も大幅に減少させることが可能であることである。これはTRUが燃焼初期ではバーナブル・ポイズン(GdO₂)の役用をし、燃焼と共にNp→PuにAm→Cm等の核分裂性核種に変換されて正の燃焼反応度を与え、反応度変化を非常にゆるやかにしている。TRU核種が炉制御に大きなプラスの効果をもたらすことになる。これはTRUを非常に有効に消滅させ得る方法である。その上この炉型ではサイクル長が2300日と長く、リサイクルによるリスクを大巾に減少させることが可能である。このタイプの炉を開発することはTRU消滅処理の観点からも重要な意味をもつといえる。

Fig. 5には現在、日本及びヨーロッパで盛んに研究されている高転換軽水炉(HCPWR)での解析結果を示す。この炉でもVHBPWRの場合と同様に初期余剰反応度を減少させ、燃焼反応度変化をゆるやかにすることが可能である。

PWR等では90トン近い装荷量が必要であり0.1%のTRU混合率でも90kgのTRUが装荷できる。HCLWRやVHBPWRは更に多くのTRU混合が可能であり、発電炉1基当たり1年間で生成される約30kgのTRUの処理の可能性は十分考えられよう。

3.1.2 高速炉によるTRUの消滅

高速炉は軽水炉に比べ、中性子スペクトルが硬く、中性子束レベルが高い特徴がある。中性子束レベルが高いことはTRU消滅には有利であるし、硬い中性子スペクトルもTRUを直接核分裂反応で消滅させる可能性をもつといえる。しかしTRU核種の多くは閾値核分裂反応であり、核分裂断面積が小さく、スペクトルも十分に硬い必要がある。但し、軽水炉よりスペクトルが硬いためTRU核種の共鳴の自己遮蔽効果は小さくなり、多量のTRUを装荷できる。

Fig.6と7には、大型MOX燃料高速炉と金属燃料高速炉⁽³⁾にTRUを均質に燃料に混合した場合の燃焼反応度変化を示す。

MOX燃料型高速炉では軽水炉と同様初期の余剰反応度を減少させるが、燃焼と共に大きな正の反応度を与えTRUを20%装荷する例では反応度変化が非常にゆるやかになり長寿命型高速炉の開発が可能となる。また、TRU装荷量が18%と20%とでは反応度への影響は殆んど変

らなくなる。これは共鳴の自己遮蔽効果のためであり装荷量20%以上は意味がないが、燃料成立性の観点から20%ものTRUが混合できるかは疑問である。この炉型でもTRUは燃焼反応度変化をゆるやかにし、燃料として非常に有効である。

金属燃料高速炉では中性子スペクトルがMOX燃料型よりも非常に硬くなる。そのため、Fig.7に示すようにTRUは燃焼初期から正の反応度をもっている。従ってTRUの装荷量は今までの軽水炉やMOX型高速炉と異なり、TRU装荷による正の反応度変化を考慮した設計で決定されるようになる。この金属燃料高速炉ではTRUは燃料であり、Pu富化度の減少、即ちPu燃料の節約になる。

これまではTRUを燃料に均質に混合する均質リサイクルについて論じてきたが、TRUのみの燃料集合体を炉心に装荷する非均質リサイクルも検討されている。^{(4),(5)} この方法での問題は、TRU燃料と通常燃料集合体間での熱出力マッチングがあり、それを解決するために中空ペレットや希釈剤の混合が研究されている。更にTRUのみの燃料とすると酸化物(AmO₂, CmO₂)でも金属でも熱伝導率がウランの約 $\frac{1}{3}$ と小さく融点もかなり低いこと、及び希釈剤として酸化マグネシウムを用いるとその黒化現象などによるFCCI(Fuel-Cladding Chemical Interaction)など大きな問題がある。

以上述べてきたように軽水炉でも高速炉でもTRUを有効に利用して消滅させ得る可能性が、特に新型炉では十分に存在する。しかし大量のTRUを発電炉で使用するため、燃料の加工、再処理、運送等取り扱い全般に放射線遮蔽追加、遠隔操作、除熱対策等が必要になり、核燃料サイクル全体が複雑になるという問題が考えられる。

3.2 TRU消滅処理専用原子炉(専焼炉)

発電炉利用上の問題点を解決するため、再処理工場に隣接したTRU消滅処理専用原子炉の導入が考えられる。TRU燃料を主体とした専焼炉の本格的な設計研究は原研の大杉らによって始めて検討された。⁽⁶⁾ アクチノイド酸化物を酸化マグネシウムで希釈した燃料を用い、ヘリウム冷却による1000MWクラスのTRU専焼炉であったが酸化物のため中性子スペクトルが軟いことや、前述した低い熱伝率や黒化現象等の問題があり、TRU消滅効率は年間約7%であった。しかしこれによりTRU燃料を主とする原子炉の設計が可能であることが明らかにされた。

Fig.6と7から分るように金属燃料を用いた方がスペクトルが硬く、TRUが正の反応度をもつことから、TRU専焼炉としては金属燃料が有利である。このためTRUからなる金属燃料(Np-Zr, Am-Cm-Y)専焼炉の設計が研究された。⁽⁷⁾

金属燃料専焼炉は中性子スペクトルが非常に硬いことを示すためにTable 1にTRU核種のスペクトル・インデックス(σ_f/σ_c)の値を各炉型で比較した。例えばNp-237を見るとTRU金属燃料専焼炉(ABMR-BP)はMOX型(FBR)より5倍、金属燃料型(MFBR-BP)より3倍、そして大杉らのHe-冷却TRU専焼炉より2倍 σ_f/σ_c 値が大きく、これだ

け消滅処理に適しているといえる。現在設計されているTRU金属燃料専焼炉の年間当りの消滅効率は約10%である。これはTRU燃料の熱伝導率が悪く（ウランの半分以下）比出力が大きくとれないことが大きな原因となっている。

3.3 核設計上の問題

専焼炉でもTRU燃料集合体を装荷する非均質炉でも同様であるが、燃料はTRUが主であるため、核データ、物性データ、燃料組成データのもつ不確かさが大きく核設計等に及ぼす影響は重大である。

- (1) 核データ：U-235やPu-239に比べるとNp, Am, Cmのもつ核データの不確かさは非常に大きい。特にスペクトルが硬くなると閾値をもつ核反応 (q , σ_{in} , $q_{n,2n}$) が重要になり、不確かさは増大するし、 ν -値の不確かさも大きい。一例をTable 2に示す。これは評価済み核データ間のTRU専焼炉での増倍係数の比較であるが、(Am-Cm)領域ではJENDL-2とENDF/B-IVでは20%、ENDF/B-Vでは15% $\Delta k/k$ の極めて大きい差を生じる。また核分裂生成率データや動特性パラメータ (λ , β) のデータも不足しており、核データの測定及び評価の精度向上はTRU消滅計算には極めて重要な問題である。
- (2) 物性データ：前述したようにTRUを組成とする燃料は熱伝導率が悪く、融点も低いと予測されるが、高温及び燃焼状態でのデータは皆無であり炉心性能（出力密度や中性子束レベル）を制限し、TRU消滅量の予測を困難にしている。
- (3) 燃料組成データ：軽水炉や高速炉から生成される主要TRU核種の中でも、AmとCmの生成量の評価にはかなりのバラツキがある。その一例をFig. 8に示す。これはPWRの燃焼解析を行ったものであるが、SRAC-FPGSとORIGEN-2の計算結果の差は大きい。また冷却期間の取り方や群分離効率の考え方によっても組成比は大きく変わってくる。更にこの組成比は燃料の成立性、加工・製作上にも大きな影響を及ぼす。Pu-238, Cm-242やCm-244は発熱量が大きく燃料製作上はできるだけ少ないことが必要とされる。

4. おわりに

核分裂炉（軽水炉、高速炉、専焼炉）を用いてのTRU消滅の可能性について述べた。軽水炉でも高転換炉、さらには超長寿命型軽水炉を用いると、TRU核種はU-238よりも非常に優れた親物質燃料として作用し、余剰反応度を抑えて高燃焼度が得られ、一石二鳥以上の有効利用の可能性があることを明らかにした。高速炉でもTRUは燃料として十分優れており、特に金属燃料高速炉ではPu富化度が低減できることを示した。しかし発電炉を用いる場合は、TRUの輸送、分散、リサイクル数の増大等によるリスクの増加が生じる問題がある。その点、再処理施設に隣接したTRU専焼炉の導入は上述の問題を軽減し、TRUの消滅効率を高める可能性がある。

膨大なエネルギーを使って生成した希少なTRU核種の消滅は、そんなに急ぐ必要はないか

も知れない。医学、バイオテクノロジーなどハイテク社会での種々の有効利用に、当然、長寿命型熱源として (Pu-238, Cm-242, Cm-244)、北国で、あるいは宇宙の彼方で発電炉としての利用、かっこい日本人の出現を望む。後世の人に何んともったいないことをしてくれたといわれそうな気がする。まして核融合や加速器を利用したのTRU消滅はそれら本来の開発目標から離れすぎているように思える。

参 考 文 献

- (1) H.Takano: to be published in JAERI-M report.
- (2) H. Ichikawa, Y.Naito and H.Takano: "A Very High Burnup Pressurized Water Reactor with Highly Enriched Plutonium Fuel Assemblies Using A Spectral Shift Concept," Reactor Physics Conference, Jackson Hole, Wyoming, 1988.
- (3) T.Hiraoka, K.Sako, H.Takano and M.Osakabe: "A High Breeding Fast Reactor with A New Concept of Metallic Fuel Assemblies," *ibid*, 1988.
- (4) E.Schmit et al. "Assessment Studies on Nuclear Transmutation of By-Product Actinides," ISPRA, S.A./I.05.03.83.13 (1983).
- (5) L.Koch, "Formation and Recycling of Minor Actinides in Nuclear Power Stations," Handbook on the Physics and Chemistry of the Actinides, 1986.
- (6) T.Osugi, H.Yoshida and R.Tanaka: "Conceptual Design Study on Actinide Burning Fast Reactor," JAERI-M 83-217 (1983).
- (7) T.Mukaiyama, H.Takano, T.Ogawa, M.Osakabe and T.Takizuka: "Conceptual Study of Higher Actinide Burner Reactors," Reactor Physics Conference Jackson Hole, Wyoming, Sept. 1988.

Table 1 Comparison of fission to capture ratios

Nuclide	F B R	G C F R	M F B R - B P	M F B R - T S	He - A B F R	A B M R - B P	A B M R - T S	A B M R - P B
Np-237	0.16	0.25	0.30	0.36	0.42	0.95 (0.63)	1.00 (0.68)	0.65
Pu-238	1.17	1.60	1.81	2.03	2.14	3.12	3.19	2.54
Pu-239	3.10	3.76	5.28	6.16	4.98	9.61	9.87	7.01
Am-241	0.13	0.22	0.21	0.24	0.37	0.66	0.70	0.48
Am-242 m	7.69		8.31	8.52		9.77	9.90	
Am-242 g	5.22		5.73	5.84		6.22	6.29	
Am-243	0.12	0.25	0.21	0.25	0.48	0.75	0.80	0.51
Cm-242	0.71	0.62	1.31	1.54	0.62	3.83	4.02	2.75
Cm-243	13.3		19.1	21.7		31.7	32.4	
Cm-244	0.60	0.55	1.12	1.31	0.90	3.02	3.16	2.25
Cm-245	13.2		16.8	18.0		22.3	22.6	

F B R : 大型高速炉 (Na - 冷却, MOX燃料)

G C F R : ガス冷却高速炉

M F B R - B P : バンドル型金属燃料高速炉

M F B R - T S : チューブ・イン・シエル型金属燃料高速炉

He - A B F R : He-冷却アクチノイド専焼炉 (AcO₂ - MgO)

A B M R - B P : バンドル型金属TRU燃料専焼炉

A B M R - T S : チューブ・イン・シエル型金属TRU燃料専焼炉

A B F R - P B : ガス冷却粒子TRU燃料専焼炉

Table 2 Comparison of multiplication factors

nuclear data	k-eff	k- infinity	
		Am - Cm - 5wt % Y	Np - 20wt % Zr
J E N D L - 2	1.069	1.465	1.155
E N D F / B - V	0.998	1.319	1.207
E N D F / B - IV	0.971	1.274	1.237

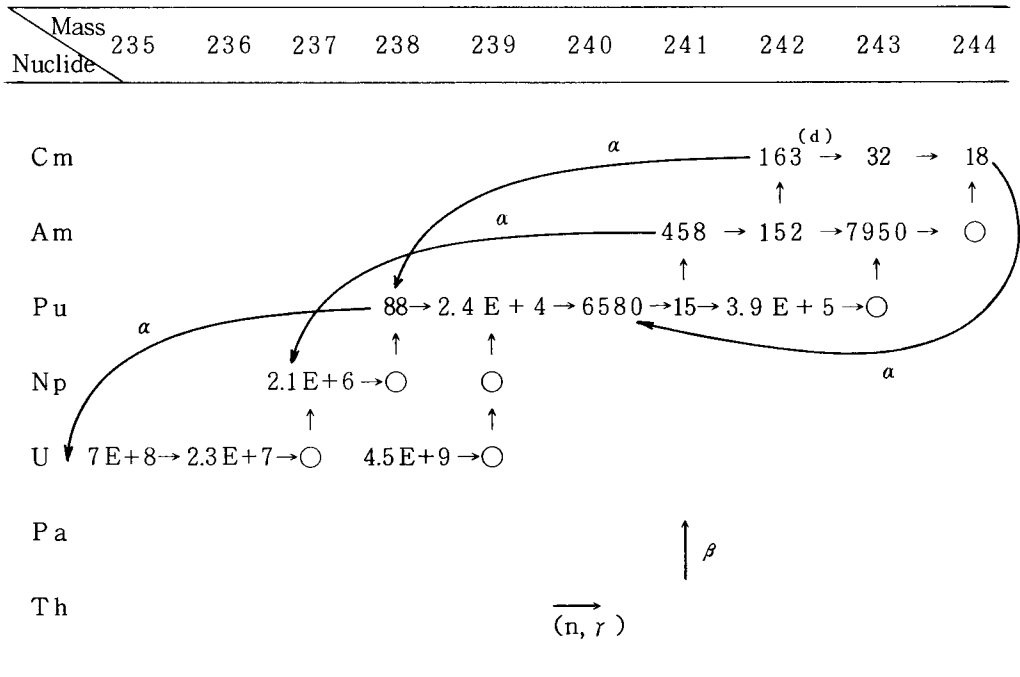


Fig. 1 Half life (year) and build-up-decay chain scheme for the TRU nuclides

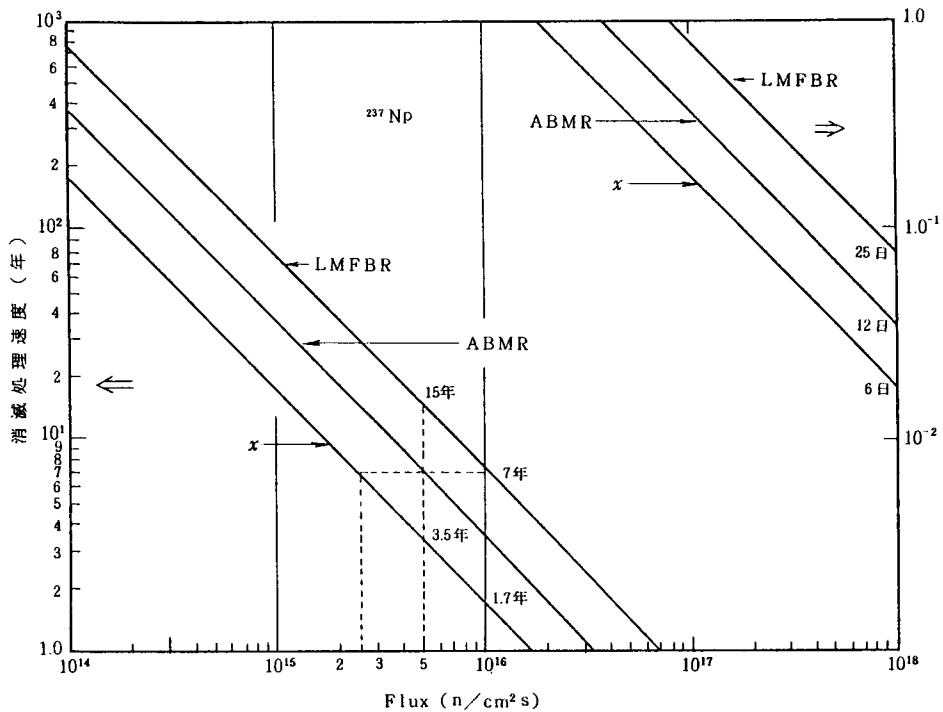


Fig. 2 核分裂反応によるNp-237の消滅処理速度の中性子束レベルとスペクトル依存性

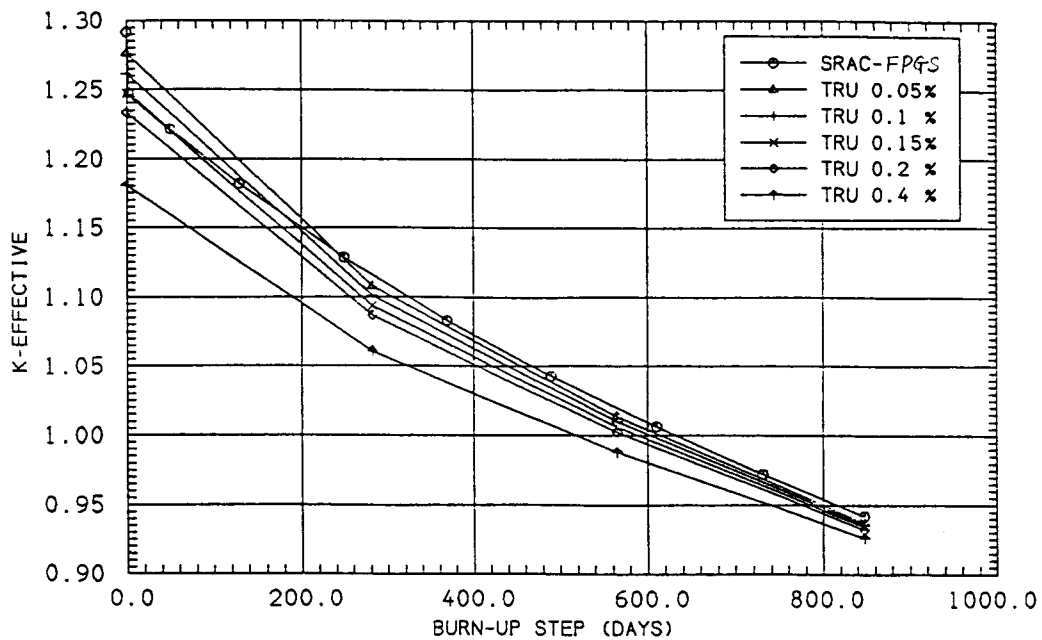


Fig.3 TRU混合割合による実効増倍率の変化の比較 (PWR炉)

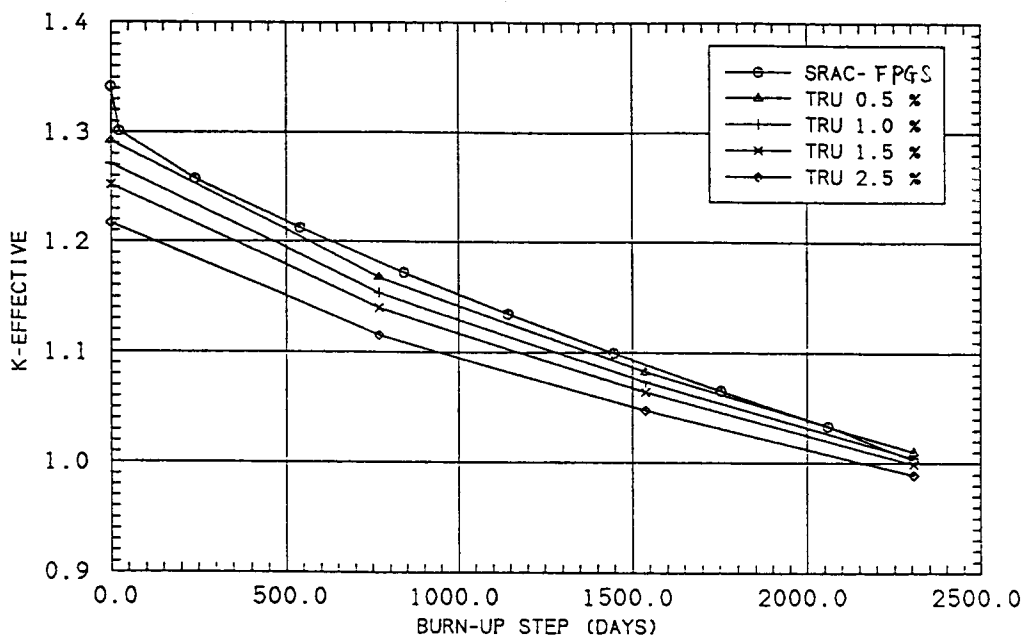


Fig 4 TRU混合割合による実効増倍率の変化の比較 (VHB PWR炉)

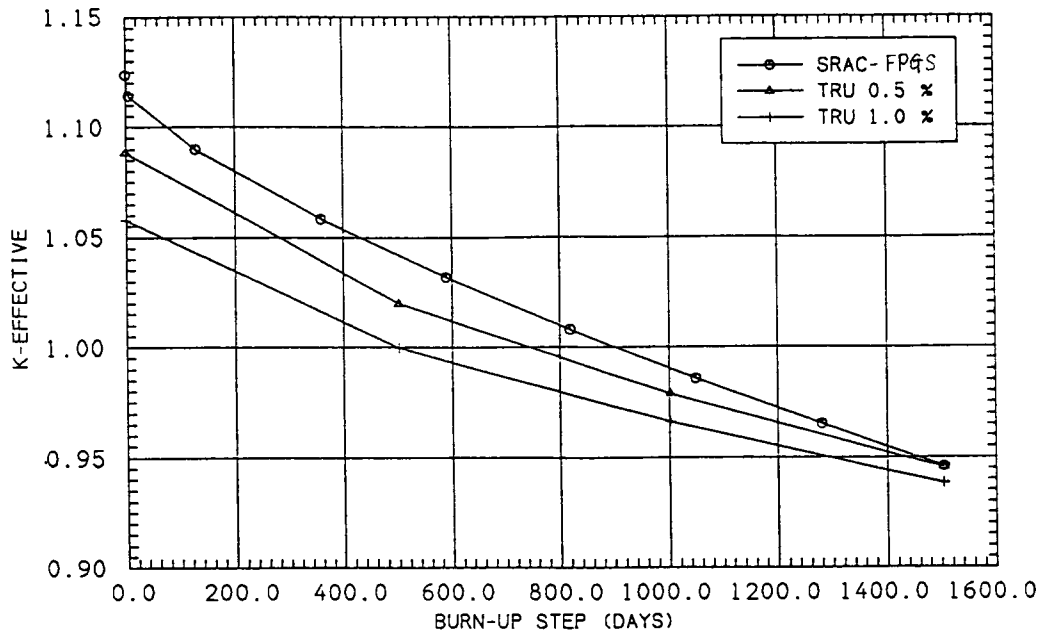


Fig.5 TRU混合割合による実効増倍率の変化の比較 (HCLWR炉)

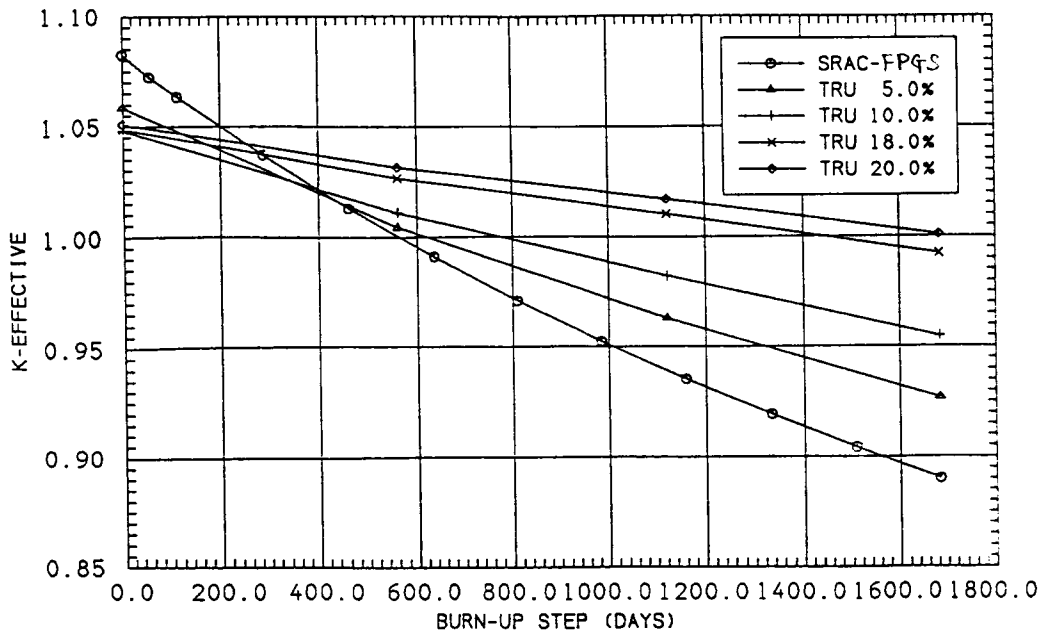


Fig.6 TRU混合割合による実効増倍率の変化の比較 (大型MOX高速炉)

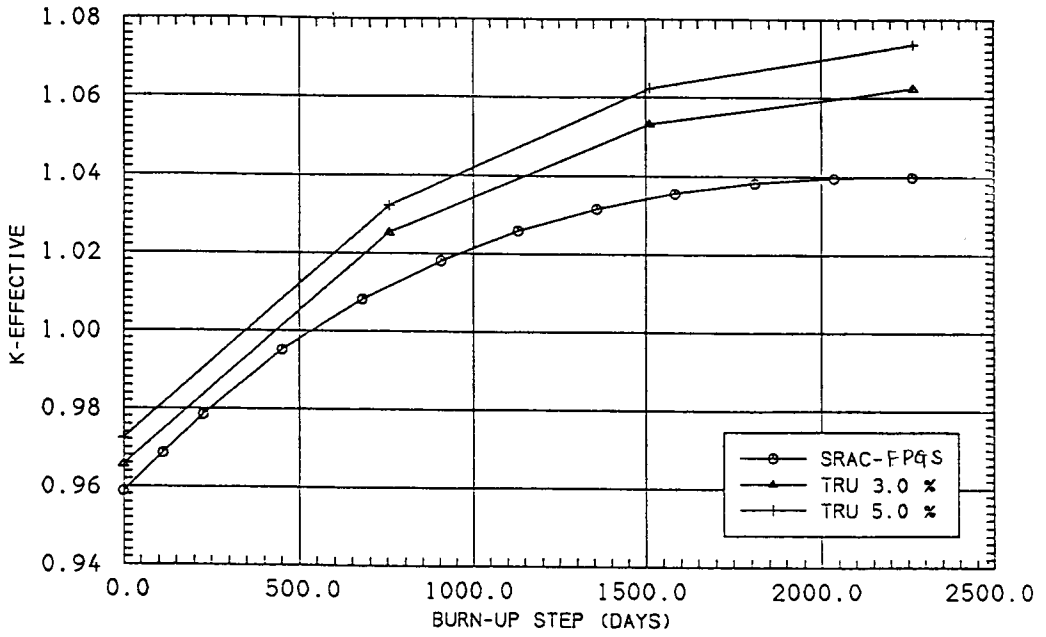


Fig.7 TRU混合割合による実効増倍率の変化の比較 (金属燃料高速炉)

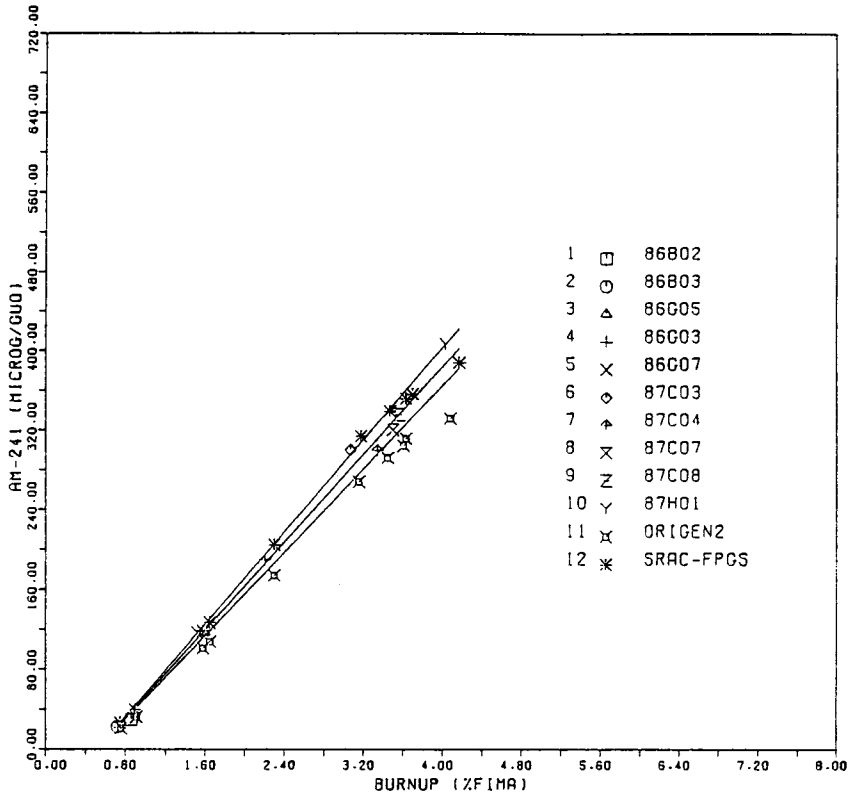


Fig.8 Comparison of Am-241 build-up rates calculated by SRAC-FPGS and ORIGEN-2 codes for PWR assembly. The number from 86B02 to 87H01 shows the measured data.