

超ウラン元素の照射消滅処理と核データ

(NAIG) 飯島 俊吾, (東 芝) 深井 佑造

1. 消滅処理の意義と背景

原子炉での典型的な燃焼後に使用済み燃料を再処理した場合, ウラン, プルトニウムの大部分は抽出され, 高レベル廃液の主成分は, 0.5%の残存U, Pu, 3%のFPおよび0.1%のNp, Am, CmなどのMinor Actinide (以下TRUと呼ぶ) である。紀元2000年に運転開始する第2再処理プラントでは, 年間800トンの燃料(100万kWe軽水炉約25基分)を処理する計画となっているので, 年間800kgのTRUが出来る。Table 1に, 3%濃縮ウランLWRで40 GWD/ton の燃焼, 3年冷却で再処理した場合の, 燃料1トンあたりの廃液の主成分を示す。

長寿命FPは, 半減期100年以下の, Kr-85 (10.7y), Sr-90 (29y), Cs-137 (30y), Sm-151 (93y) と, 10万年以上の Zr-93 (1.5×10^6 y), Tc-99 (2.1×10^5 y), Pd-107 (6.5×10^6 y), I-129 (1.6×10^7 y), Cs-135 (2.3×10^5 y) の2種類にはっきりと分けられる。従って, FPの放射能は200-300年の貯蔵冷却で殆んど消失し, 非常に長寿命の極く弱い放射能だけが残る。しかし, Tc-99, I-129 は, 長期処分のさいに容器が破損して水が入った場合に生物圏に入りこみやすいことが指摘されている。これらの核の中性子共鳴吸収が大きい事を利用して, 米国ハンフォードの高速炉FFTFでは, イットリウム水素化物のアセンブリ内で強い熱外中性子束を得て消滅させることが計画されている。

TRUの毒性は非常に長期にわたって続く。一般に以前のMPC基準(Maximum Permissible Concentration)に比べて最近のICRP Publication30に基づくALI基準(Annual Limit of Intake)では放射線毒性が強く評価されている。Table 2に, 主要なアクチニドについて, 非職業人に対する許容毒性値(水中の許容濃度の逆数)を掲げる。(但し, 毒性をこう定義して良いかどうかは問題がある所である。)

Table 2の下欄は, 1トンの3%濃縮ウランを作るに要する天然ウラン量或はウラン鉱石のキュリー数およびALI毒性である。相当する天然ウラン量は, 濃縮のテイルを0.3%とすると6.4トンであり, 鉱石の場合は, ウラン含有量を0.2%とすると約3000トンの鉱石を要する。この鉱石の中にはU-234, U-238の自然崩壊で生成した各2.1Ci程度のTh-230, Ra-226, Rn-222が放射平衡状態で含まれている。(WHOレポート:喜多尾氏提供)

この表から見て, ALI基準はMPCに比べて, Pu, Am, Cmについては10-30倍, Np-237については約400倍厳しく成っている。Table 1の560gのNp-237の毒性は, MPC基準ではほぼ無害とされていたのが, ALIでは数100万年経ても自然崩壊では6.4トンの天然ウランレベル以下に成らない。

TRU及びFPを高レベル廃液から群分離 (partitioning) し、強力な放射線場で照射変換 (transmutation) をさせて、その毒性を極度に低くすることは可能である。これは米国の最近のレポートではP-Tと略称されている。

照射消滅は1970年代に米国で広範に研究された。EPR Iでの核融合炉およびFBRでの研究では、有効な消滅のためには、照射中性子束を現実的な値より10倍程度大きくすることが必要であることを結論している。また、有用な同位元素まで消滅させてしまうこと、照射用燃料ピン製造時の作業員の被曝などを考慮すると、コストは別としても消滅処理が必ずしも利点だけではないことも指摘された。米国では再処理計画を中止したため、この線のより現実的な研究はストップしたが基礎研究は依然として行われている。ちなみに、再処理、照射消滅、有用なアイソトープの抽出と生産を組み合わせたCUREプロジェクト (Clean Use of Reactor Energy) が最近提案されていると聞く。欧州ではTRUピンの照射実験が行われており、日本でも今後のpublic acceptanceの要請にも備えて研究が開始されている。

さて、上記のEPR Iの結論は基本的には現在も成り立っていると考えられる。しかし、その計算に用いられている核データは、現在の知識から見て著しくずれているものがある。放射線毒性評価もMPCに基づいており、ALI基準で評価し直す必要がある。

ここでは、新しい核データおよびALI基準値を用いて、核融合炉ブランケット及び大型FBRでTRUを照射した計算を行い、特に炉物理、核データの見地から核種変換、消滅のポイントを考察する。勿論、消滅処理の実現には核データ以外にも数々の他のデータや新しい技術開発を必要とし、コストの問題もあろう。しかし、ここではひたすらアクチニド殺しの炉物理に専念しよう。

計算はJENDLファイルの処理以外はすべてパソコンで出来る。ORIGENコードよりも、チェーンの組み方、データの入れ換え、結果の編集など柔軟に行えるパソコンの利点は大変大きい。

TRUだけをFPや残存ウランから更に分離し得たとして、TRUの消滅を考える。残存ウランの効果は別個に評価する。計算は、アクチニドが十分に消滅するまで (100分の1程度にまで減少、即ち燃焼度1000GWD/トン) 照射し、そのあと100万年までの冷却について毒性を考える。

消滅の有効性の目安は、

- (1) 第2再処理プラントの能力を考慮して、年間約1トンのTRUを消滅させ得ること。
- (2) 照射処理の後の永久処分時に、1000年程度以内にその放射線毒性が、相当する天然ウラン或はウラン鉱山の放射線毒性レベル以下になること。

として良いであろう。(1)は消滅速度と処理可能量についての目安であるが、もっと緩くても良い。(2)は毒性を0にすることは出来ないので、How low is low enough?の現実的な上限を設定しようとするものである。ただし、照射後の永久処分を前提としており、リサイクルなどの

方針を採れば別である。

2. 消滅計算

照射中性子場として、2600 MWthの核融合炉のブランケットと大型FBRを考え、簡単のため、固定場として扱う。出来るだけ大きな中性子束を得るために、第1壁負荷を10MW/m²にとり、第1壁近傍にTRUを装荷するようにする。(第1壁の照射限界は約30MWy/m²とされているので、3年で第1壁を交換することになる。ちなみにE.Chengによると、米国では将来計画として15MW/m²の負荷を考えているとのことである。)第1壁表面積は、D-T反応エネルギーの80%が中性子エネルギーとなるものとして、 $2600 \text{ MW} \times 0.8 / 10 \text{ MW/m}^2 = 200 \text{ m}^2$ であり、ブランケット内の装荷域厚を15cm とすると装荷域体積は30m³ である。

核融合炉ブランケットは、(a)TRUをたっぷり詰めたガス冷却ハイブリッド型、(b)TRUカプセルを入れたINTOR型、(c)EPR Iの研究で用いられたグラファイト減速で極く希薄なTRU装荷の熱中性子型、の3種類を考える。Fig.1に典型的な中性子スペクトルを示す。

全中性子束と1群縮約した断面積を主な核種についてTable 3に掲げる。JENDL-3 Tを用いているが、FBRについては、ENDF/B Summary Report から採った。但しこれらはすべて無限希釈の値なので、計算は消滅の最大効果を与える。

Np, Am, Cm からスタートするアクチニド変換の主要パスは下表に示すようになり簡明なものである。

- (1) Np-237 → Pu-238 → Pu-239 → Pu-240 → Pu-241 → Pu-242 → Am-243 → Cm-244
→ Cm-245 → Cm-246 → ……
- (2) Am-241 → Am-242m → Am-243 → Cm-244 → Cm-245 → Cm-246 → ……
(Am-242g) → Cm-242 → Pu-238 → Pu-239 → Pu-240 → Pu-241 →
→ Pu-242 ……
- (3) Am-243 → Cm-244 → Cm-245 → Cm-246 → ……
- (4) Cm-244 → Cm-245 → Cm-246 → ……

いずれのパスでも断面積の小さなCm-246 (半減期4800y) がいわば吹き溜りになる。

1群断面積と中性子束値から判るように、ERRI/Thermal型では変換、消滅の速度がFBRより断然速い。消滅は核分裂性の核種になって初めて有効に起こる。上表のパスで、Np-237, Am-241 からスタートするパスではCm-246 に達するまでにfissileを2~3回経由するのでアクチニドはほぼ全滅する。Am-243, Cm-244 からスタートするチェーンではfissileを1つしか経由しないので、Cm-246 にたどり着いてしまうことになる。結局、照射変換により、非核分裂性に初期TRUを核分裂性のアクチニドに追い込むことが殺しのポイントと言えよう。核分裂断面積はMeV域では核によらず高々2b程度で頭打ちになるので、高速スペクトル炉で消滅速度が遅いのは如何ともしがたい。高速中性子の方が消滅に有効と見るのは迷信である。

Fig.2は、照射済み燃料1トン当たりの初期TRU(約1kg)を照射した時の、照射時間に対するアクチニド総重量の減少を表しており、ほぼ指数関数的に減少する。消滅の半減期は、EPR I/thermal, INTOR, FBR(あるいはhybrid)でそれぞれ約4ヶ月, 1.6y, 4.7yである。照射後の放射線毒性を十分に低くするためには初期量の1%以下にまでアクチニド総量を消滅させることが必要であるので、半減期の約6-8倍の照射が必要であり、EPR I/Thermalで3年, INTORで10年, FBRおよびHybridで約30年を要する。装荷可能量は、EPR I/Thermalで300kg, Hybridで120トン, FBRで6トンと見積られる(INTORでは不明)ので、それぞれ年間、最大、100kg, 200kg, 4トンのTRUを消滅出来ることになる。

Fig.3, Fig.4はそれぞれ熱中性子型, およびFBRでの照射のさいのアクチニド組成の変化を示す。熱中性子型では、3年照射後の成分は殆どがCm-246(半減期4800年)である。FBRでは30年照射時にはPu-240, Pu-241, Am-243, Cm-244, Cm-246が混在するが、長期冷却時の毒性と半減期を考慮するとPu-241の崩壊によるAm-241と、やはりCm-246がトップの重要性を占める。

3. 冷却計算

自然崩壊とEPR I/Thermalで3年照射, FBRで30年照射後の長期冷却時の放射能変化をFig.5-9に示す。Fig.5は、キュリー数を天然ウラン6.4トン, ウラン鉱石3000トンの値と比較したものである。Fig.6は、ALI毒性についての同様のプロットである。なお、図にはTRU消滅のさい生じたFPの効果も示したが、予期通り、FPの毒性は数100年後には極めて小さくなる。

Fig.7, 8は、冷却時のALI毒性に寄与する主な核種の内訳を示したものである。ここでもCm-246が長期の毒性を支配していることが判る。

Fig.9は、0.5%残存ウランを照射した時の毒性を示したもので、Pu生成による強い毒性を生じており、残存ウランを現行の0.5%よりも1桁程度低く抑えない限り、消滅処理は何をやっているか判らなくなる訳である。

4. 核データについて

核データは与えられたものとして来たが、実はかなりの問題がある。Table 4に、ドシメトリ場CFR MFでの、アクチニド核種反応率の測定値と評価データファイルにもとづく計算値との比較を示す。Pu-242(n, r), Am-241(n, r)について特に大きなずれが見られる。測定は少数の反応しかカバーしていないので他のminor actinideの反応については判らないが、現状の核データの精度にはかなりの疑いを持たざるを得ない。Am-241(n, r)のmeta/ground比が良く判っていないことも指摘されている。原研, 高野氏の、FBRによるTRU燃焼計算では、JENDL-3TとENDF/B-Vを用いた場合、EOC実効増倍率に20%(!)近い差を

生じたとのことである。1980年のORNLの消滅処理研究のレビューでも、今後しなければならぬ研究のトップ項目としてアクチノイド核データの精度向上を挙げている。

5. Concluding Remarks

- (1) 自然崩壊では放射線毒性は天然ウランレベルに達し得ないので、照射消滅は基本的に有効であり、長期処分の際の容器の設計や監視上大きな改善が得られる。ただし中性子束をもう1桁近く大きくすることが望ましい。

F Pの毒性は数100年の冷却でほとんど消滅するが、残存ウラン量を現行の0.5%よりもう1桁程度低く抑えなければ照射消滅は無効である。
- (2) 現在の処分基準はキュリー数をベースとして行われている。毒性をここで扱ったようにA L I基準で定義するのは妥当かどうか、天然ウランレベルと比較して良いのかどうか、基本的な問題が残っている。
- (3) 熱中性子型は消滅速度は非常に早いですが、装荷可能量が小さく年間100kg程度しか消滅出来ない。ハイブリッド型では年間4トンの消滅が可能であり、これは100万kweプラント130基分からの使用済み燃料中のTRUを1基で賄うことに相当する。実際には大幅に制限されるであろうが、夢はある。
- (4) ハイブリッド型でもっと大強度の中性子束を得る際、第1壁の負荷が更に高まる。TRUカプセルの組成、形状、配置、冷却材の選択などについて今後大巾な改良が可能であろう。又、将来技術としてDD核融合が可能になれば同一出力で、より高い中性子束が得られ、且つDPAが低くなるので第一壁負荷も軽く出来る可能性もあろう。

消滅処理の研究は未だにすることが沢山あり、特に核データ、炉物理のエキスパートの関心が期待される分野であると思う。

本研究の成果は、「核融合反応の多角的利用を目指して」（昭和63年3月、日本原子力産業会議）に一部掲載しており、文献も記載してある。この研究にさいして、原研の関、中川、高野氏、電中研の宅間、吉舖氏、N A I Gの山岡、青木氏からデータの提供を頂き、或は有益な議論を交わした。ここに謝意を表明する。

Table 1 Actinide Inventory in High Level Waste (weight/MTU)

U-235 (7.04 x10 ⁸ y)	24 g	Np-237 (2.1 x10 ⁶ y)	560 g
U-236 (2.34 x10 ⁷ y)	20 g	Am-241 (432 y)	240 g
U-238 (4.47 x10 ⁹ y)	4700 g	Am-243 (7370 y)	180 g
Pu-239 (2.41 x10 ⁴ y)	26 g	Cm-244 (18.1 y)	62 g
Pu-240 (6560 y)	13 g		
Pu-241 + Pu-242	10 g		
U total	5 kg	TRU total	1 kg
Pu total	50 g		
FP total	30 kg		

Table 2 Radiological Toxicities of Actinides

Nuclide	Curies (/gram)	MPC Toxicity (m ³ water/g)	ALI Toxicity (m ³ water/g)
Nat. U	6.86 x 10 ⁻⁷	0.644	0.571
Rn-222	1.54 x 10 ⁵	—	—
Ra-226	0.99	9.89 x 10 ⁷	5.23 x 10 ⁶
Th-229	0.21	—	3.96 x 10 ⁶
Th-230	0.021	1.03 x 10 ⁴	7.63 x 10 ⁴
U-234	0.0062	1560	5770
U-235	2.16 x 10 ⁻⁶	0.54	1.60
U-236	6.47 x 10 ⁻⁵	13	48
U-238	3.36 x 10 ⁻⁷	0.56	0.25
Np-237	7.05 x 10 ⁻⁴	235	8.69 x 10 ⁴
Pu-238	17.1	3.42 x 10 ⁶	2.11 x 10 ⁷
Pu-239	0.062	1.24 x 10 ⁴	1.15 x 10 ⁵
Pu-240	0.23	4.54 x 10 ⁴	4.20 x 10 ⁵
Pu-241	103	5.17 x 10 ⁵	3.82 x 10 ⁶
Pu-242	0.0039	786	4850
Am-241	3.43	8.58 x 10 ⁵	2.54 x 10 ⁷
Am-242 m	10.5	2.62 x 10 ⁶	7.75 x 10 ⁷
Am-242 g	8.08 x 10 ⁵	8.08 x 10 ⁹	1.50 x 10 ⁹
Am-243	0.20	4.99 x 10 ⁴	1.48 x 10 ⁶
Cm-242	3310	1.65 x 10 ⁸	6.12 x 10 ⁸
Cm-243	51.6	1.03 x 10 ⁷	2.73 x 10 ⁸
Cm-244	80.9	1.16 x 10 ⁷	3.33 x 10 ⁸
Cm-245	0.17	4.29 x 10 ⁴	1.27 x 10 ⁶
Cm-246	0.304	7.60 x 10 ⁴	2.25 x 10 ⁶
Cm-247	9.2 x 10 ⁻⁵	22.9	678
Cm-248	0.0042	1.06 x 10 ⁴	1.57 x 10 ⁵
Cf-252	537	7.68 x 10 ⁷	9.94 x 10 ⁸
Nat. U *)	4.4	4.1 x 10 ⁶	3.65 x 10 ⁶
Uran Ore**)	10.7	2.1 x 10 ⁸	2.3 x 10 ⁷

*) 6.4 ton of nat. U, **) 3000 ton of uranium ore

Table 3 Spectrum – Averaged Cross Sections (barn)

		E P R I	I N T O R	Hybrid	F B R
Total Flux		6×10^{14}	1.7×10^{15}	4×10^{15}	5×10^{15}
U-235	(n, f)	450	130	2.0	2.0
	(n, r)	100	6.6	0.50	0.60
U-238	(n, f)	0.05	0.060	0.18	0.042
	(n, r)	72	11	0.28	0.36
Np-237	(n, f)	1.7	0.31	0.58	0.33
	(n, r)	280	28	14	18
Pu-238	(n, f)	20	1.7	1.4	1.1
	(n, r)	39	7.1	0.75	0.79
Pu-239	(n, f)	560	35	1.9	1.9
	(n, r)	220	22	0.46	0.56
Pu-240	(n, f)	2.3	0.46	0.63	0.37
	(n, r)	2200	250	0.49	0.60
Pu-241	(n, f)	810	35	2.5	2.6
	(n, r)	280	12	0.43	0.49
Pu-242	(n, f)	1.4	0.29	0.50	0.26
	(n, r)	295	38	0.42	0.47
Am-241	(n, f)	5.6	0.68	0.63	0.29
	(n, r) m	580	55	1.4	1.6
	(n, r) g	75	8.7	0.22	0.25
Am-242 m	(n, f)	4700	820	3.1	4.2
	(n, r)	925	130	0.37	0.45
Am-243	(n, f)	3.0	0.31	0.53	0.23
	(n, r)	510	58	1.4	1.2
Cm-242	(n, f)	6.0	0.56	0.53	0.16
	(n, r)	39	5.0	0.48	0.36
Cm-243	(n, f)	770	33	3.2	2.8
	(n, r)	190	14	0.20	0.27
Cm-244	(n, f)	5.4	0.81	0.73	0.41
	(n, r)	160	22.5	0.49	0.90
Cm-245	(n, f)	1500	31.5	2.6	2.7
	(n, r)	250	4.2	0.17	0.34
Cm-246	(n, f)	2.5	0.60	0.56	0.26
	(n, r)	27	3.9	0.29	0.25

Table 4 CFRMF Spectrum-Averaged Cross Sections

	Exp. (mb)	Calc. to-Exp.	
		JENDL-3	I R D F 82
^{237}Np (n, f)	$550 \pm 3\%$	1.04	1.07
^{239}Pu (n, f)	$1790 \pm 2\%$	0.98	1.00
^{240}Pu (n, f)	$570 \pm 4\%$	1.05	1.08^{B5}
^{242}Pu (n, f)	$560 \pm 10\%$	0.82	0.85^{B5}
^{242}Pu (n, γ)	$150 \pm 15\%$	2.05	1.84^{B5}
^{241}Am (n, f)	$450 \pm 6\%$	1.06	1.09
^{241}Am (n, γ)	$1550 \pm 4\%$	0.72	0.72^{B5}
^{243}Am (n, f)	$350 \pm 6\%$	1.01	1.19^{B5}
^{243}Am (n, γ)	$900 \pm 5\%$	1.08	0.59^{B5}

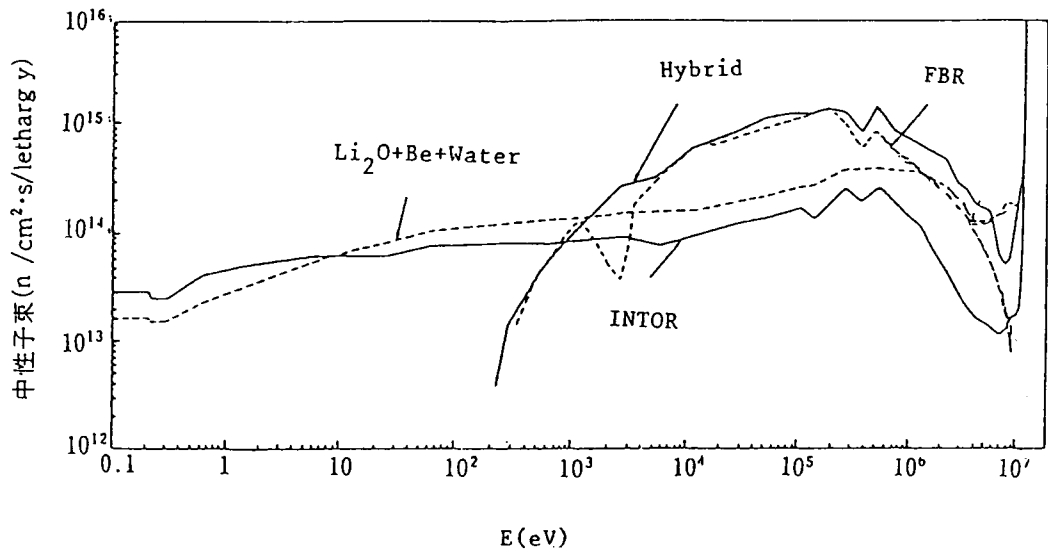


Fig.1 Typical Neutron Spectra in Fusion Reactor Blanket and FBR.

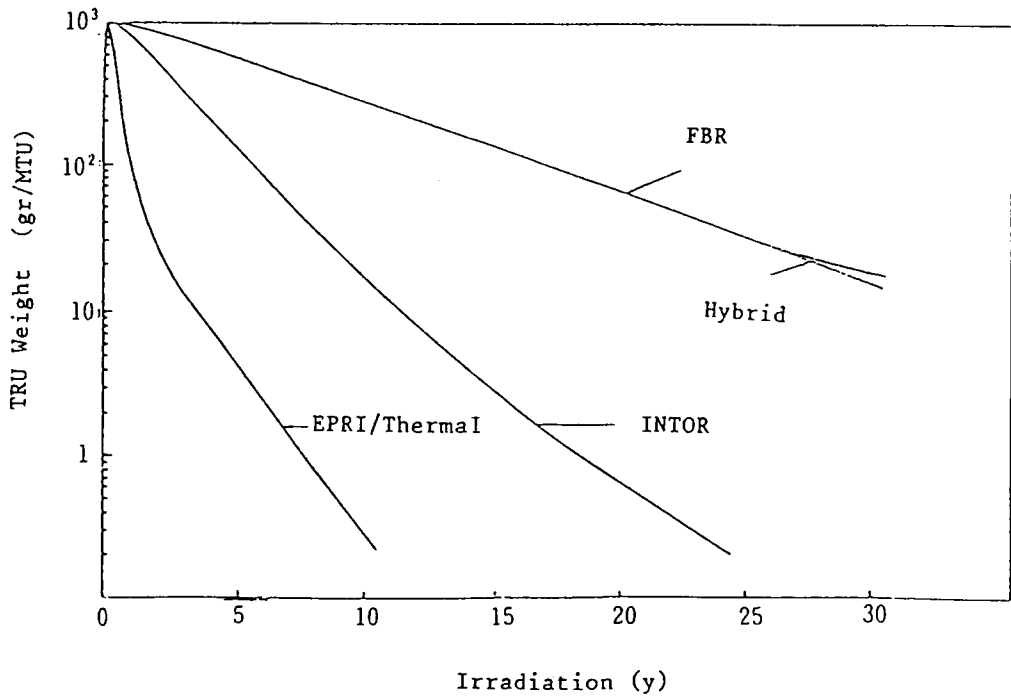


Fig.2 Depletion of TRU Weight versus Irradiation Time.

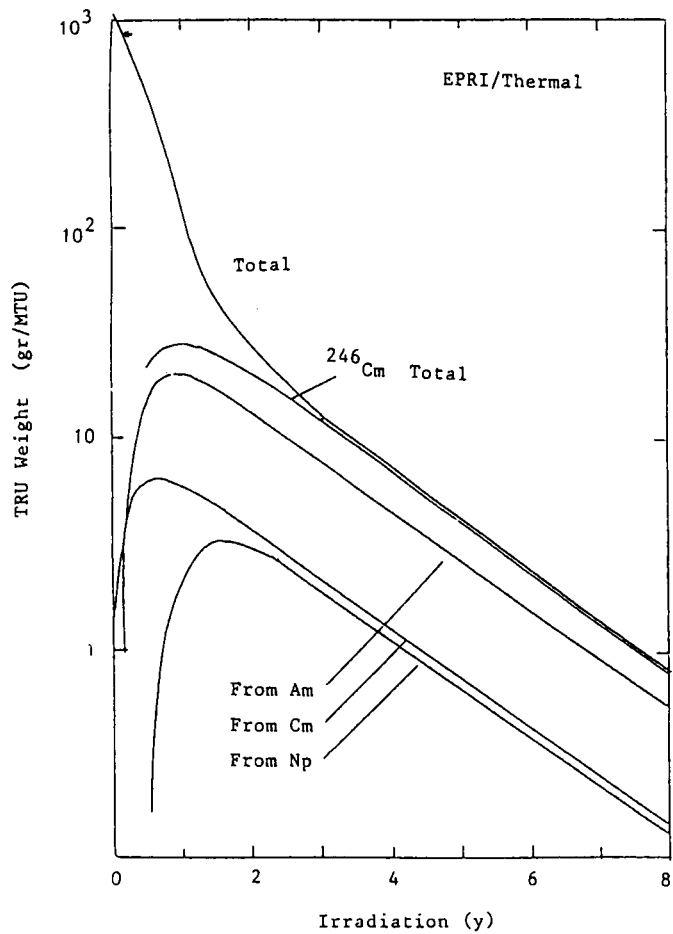


Fig.3 TRU Compositions vs. Irradiation in EPRI / Thermal Blanket.

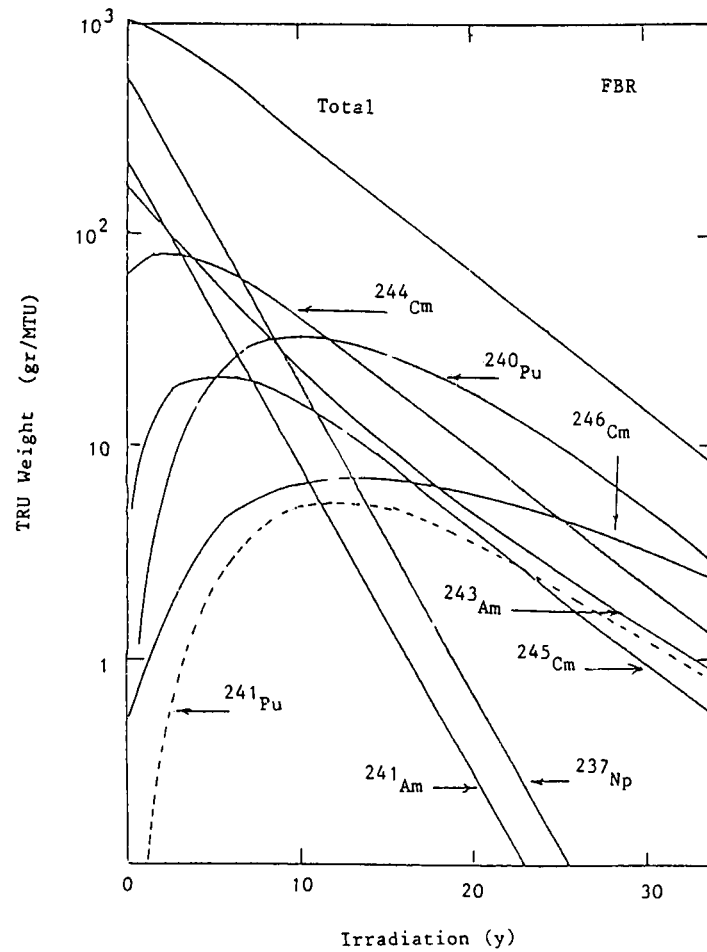


Fig.4 TRU Compositions vs. Irradiation in Large LMFBR Core.

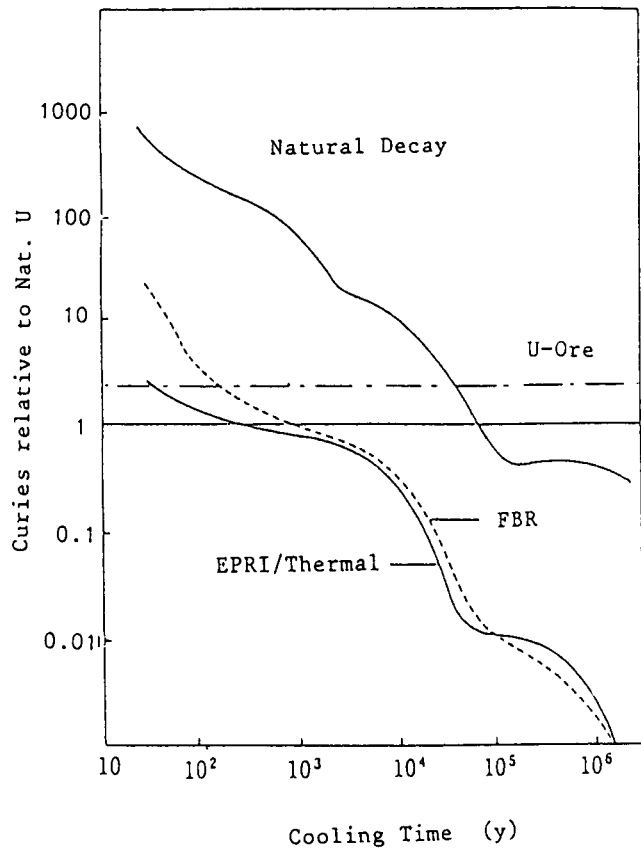


Fig.5 Curies relative to Nat. Uranium vs. Cooling Time.

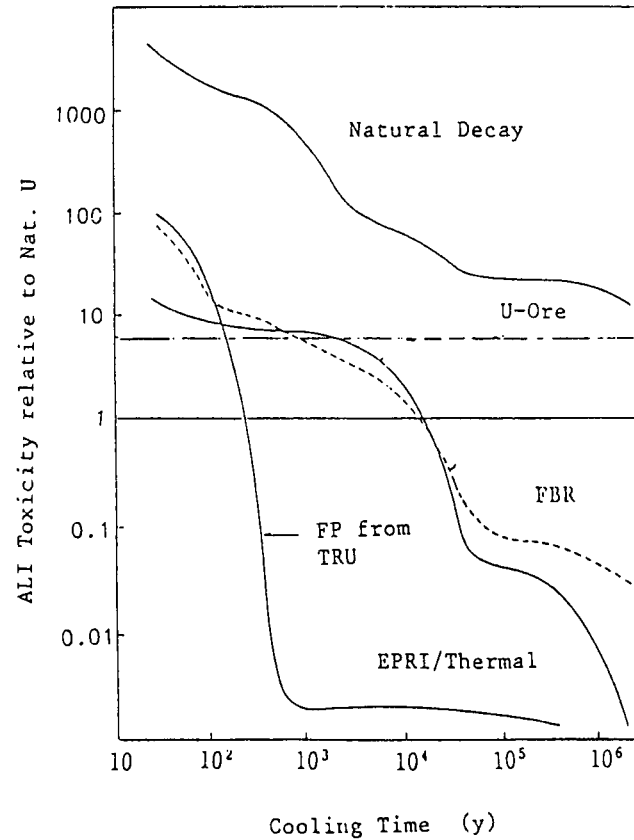


Fig.6 ALI Toxicities relative to Nat. Uranium vs. Cooling Time.

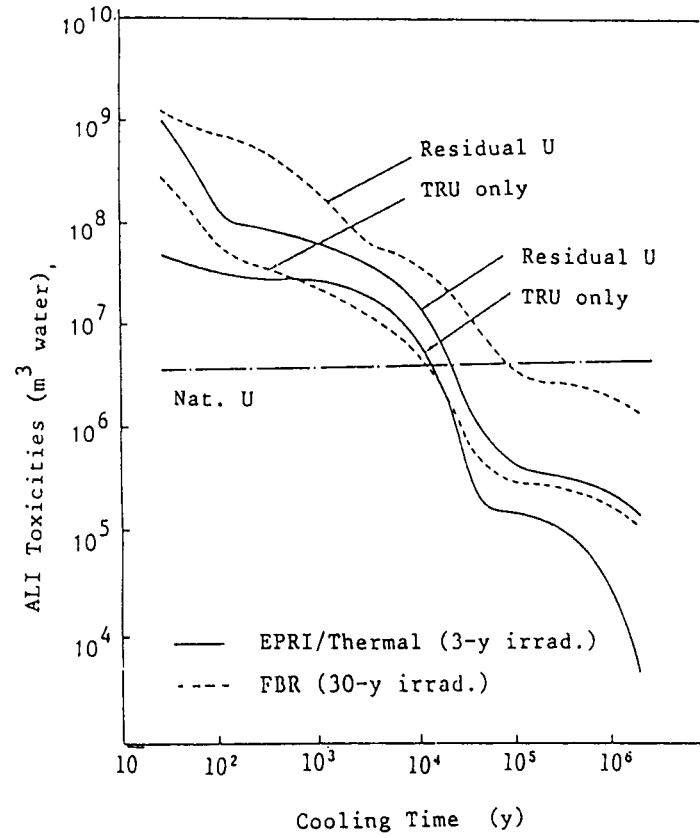


Fig.9 Effect of Irradiating Residual Uranium in EPRI /Thermal Blanket and FBR on Radiological Toxicity.