

原研における消滅処理研究の進展

— 原子炉を利用した消滅処理 —

(日本原子力研究所) 吉田 弘幸

1. はじめに

1988年にわが国の通称オメガ計画が策定されて4年が経過した。この間、わが国においてもまた世界においても、TRU等の長寿命核種の消滅処理に関する研究への関心は、衰えることなく、高まり続けている。米国では、高速炉開発の一環としてアクチノイドリサイクル計画等が進められており、フランスでは、地下実験所の建設等地層処分に係わる研究開発と並行して群分離-消滅処理技術の研究開発を行なうこととする廃棄物法案が成立し、それを受けてSPIN計画が発足したことは耳に新しい。一方、原研においては、研究開発の進展速度は早いとは言えないが、着実に研究基盤を整えてきた。しかし、未だ充分とは言えず、今もTRU等の核データ及び物性データ等の研究開発に不可欠な基礎的データを充実するために、自前の研究施設を整備しつつ、国際協力を積極的に活用する等の努力を続けている。

2. 群分離・消滅処理研究の考え方

高レベル放射性廃棄物(HLW)を深地層に埋設処分し、長期にわたって生物圏から隔離することは、HLWに種々の長寿命核種が存在するからである。すなわち、現行のHLW処理処分技術は、長期にわたって生物圏から長寿命核種を隔離することを保証すべく、長寿命核種の地層中の移行特性等関連する種々の特性把握に努めるとともに適切なサイト選定の努力等が反映された技術であり、適切なHLW処理処分法である。一方、群分離・消滅処理技術は、地層処分の研究開発成果を参考にしつつ、HLWを生物圏から隔離する期間を可能な限り短縮する新しいHLW処理処分法を目指すものである。この技術は、その技術の成熟度に従って、地層処分の支援技術、地層処分の相補的な技術、地層処分とは別のHLW処理処分技術へと成長するものと考えている。

燃焼度 33000 MWD/T 、冷却期間 3年を経た軽水炉燃料からのHLWに含まれる核分裂生成物とTRUを半減期の観点から眺めてみると、核分裂生成物の85%以上がU以上の半減期を持つ準安定核種と安定核種であり、長寿命核種(半減期; 1万年以上)に相当するものは、 ^{99}Tc 、 ^{129}I 、 ^{135}Cs 等全体の6%強である。したがって、これらの長寿命核種と半減期が30年程度の ^{90}Sr と ^{137}Cs 、及び半減期が20年~200万年に分布するTRUをHLWから分離し、適切に消滅処理することが可能であれば、残りの廃棄物の放射能源は半減期が10年以下の核種となり、放射能は短期間で減衰する。原研は、このようにHLWの半減期を人為的に10年以下にする技術に挑戦することを群分離-消滅処理研究の最大目的と考えて

いる。

3. 群分離・消滅処理の研究開発状況

1) 国内機関の研究開発状況

オメガ計画では、原研と動燃事業団の協力の下に、電中研等の国内機関の動向に留意しつつ、研究開発を推進することとしている。動燃事業団は、高速増殖炉の開発実績を背景にし、その燃料サイクルでのTRUリサイクルを目指し、電中研は、金属燃料高速炉でのTRU消滅処理を目指し、それぞれ目的に適した群分離・消滅処理技術の研究開発を進めている。原研は、発電炉燃料サイクルで発生するHLWをTRUを含めて4つの群に効果的に分離する群分離技術とTRU等を積極的に消滅処理を図る専焼炉及び陽子加速器による消滅処理システムの研究開発を進めている。

2) 海外での研究開発状況

フランスでは、SPIN計画に基づき、現行再処理技術の高度化によりPuとNpの分離効率を高めて廃棄物の放射性毒性の低減を図る”PURETEX”（中期計画）と新しい技術を開発してTRU及び長寿命FPの分離・消滅を図る”ACTINEX”（長期計画）を、CECと協力しつつ、推進している。消滅処理には、これまで開発を進めてきた高速炉を利用することが主である。

米国では、ANLにおいて、金属燃料高速炉を柱とするIFR計画の一環として、TRUリサイクルの研究を精力的に進めている。LANL及びBNLでは、大強度陽子加速器を用いた消滅処理の研究を進めており、前者は熱中性子束を極めて高くした中性子場との、後者は酸化燃料高速炉とのハイブリッド型を提案している。

ロシアでは、再処理の実績を踏まえて、湿式及び乾式分離法の開発を併行して進めている模様であり、また、消滅処理についても、陽子加速器、高速炉、専焼炉等多岐に亘る利用法を提案し、そのためのデータ整備を進めている。

4. 原子炉を利用したTRUの消滅処理の概要

1) 原研のTRU専焼炉

消滅処理に先だて行なうHLWの群分離技術の研究開発では、原研は、独自のTRU抽出剤を開発し、実験室規模ではあるがTRU、Tc、Sr、Csを極めて高い回収効率で分離できる域に達している。今後は、プロセス工学的研究を進めて、プロセスとして米国のTRUEX、高温冶金法に基づく処理プロセスを越える技術とすべく努力している。

TRU専焼炉としては、高速中性子による核分裂を利用するTRU専焼高速炉について主に研究を進めてきた。この専焼高速炉は、しきい核分裂反応を最大限に利用して、炉を臨界にするとともに、その反応によってTRUの消滅を図るユニークな炉概念である。これまでに、

Na冷却合金燃料専焼炉とHe冷却窒化物粒子燃料専焼炉について検討を進めてきたが、表 1 から明かなように、TRUのインベントリーが少ないこと、消滅処理効率が高いこと、に加えて熱的裕度、正のボイド係数等の安全性の緩和、HTTR技術の活用等の観点から、後者の炉概念をレファレンスとして、更に検討を深めることとした。

表 1 TRU専焼高速炉の消滅特性

項 目	M-A B R	P-A B R
原子炉出力 (MW t)	1 7 0	1 2 0 0
燃料	Np-22Pu-20Zr AmCm-35Pu-5Y	(NpAmCm-34Pu)N
冷却材	Na	He
炉心平均中性子束 ($\times 10^{15}$)	3.6	8.4
平均中性子エネルギー (KeV)	780	750
サイクル長 (FPD)	730	300
TRU装荷量 (kg)	666	2065
Np/Am、Cm/Pu	255/199/212	765/598/702
MA 消滅率 (%/サイクル)	26.0	25.3
MA 燃焼率 (%/サイクル)	17.8	17.2
MA 正味消滅率 (kg/GWt・年)	407	435
MA 正味燃焼率 (kg/GWt・年)	279	296

M-A B R ; 合金燃料専焼炉、 P-A B R ; 窒化物粒子燃料専焼炉
 MA消滅=MA(BOC)-MA(EOC)
 MA燃焼=核分裂による消滅

また、軽水炉の高度化の一環として、軽水炉による効果的なTRU消滅処理の可能性についても検討を進め、それを可能にするとともに、適正な負のボイド係数を保持するTRU専焼軽水炉の概念を構築した。その炉心特性とTRU消滅特性を表 2 に示した。

2) 高速炉を利用したTRU消滅処理

TRUの消滅処理に利用する原子炉としては、TRU装荷が炉特性に与える影響が小さい、高次TRUを創らない等の理由から、高速炉を対象とすることが多い。その高速炉には、これまでの開発実績の多いMOX燃料によるLMFBRと金属燃料によるLMRがある。前者については、わが国の動燃事業団及びフランスを中心とするCEC諸国、後者については、わが国の電中研及び米国のANL、がそれぞれ検討を進めている。

表 2 TRU専焼軽水炉の消滅特性

原子炉出力 (MWt)	3410
燃料	MOX
水対燃料体積比 (V_m/V_p)	3.0
Pu富化度 (wt%)	9.0
燃焼度 (GWD/T)	62
サイクル長 (EFPD)	1610
装荷TRU	Np, Am, Cm
装荷量 (kg)	2756
消滅量 (kg/サイクル)	1370
生成量 (kg/サイクル)	640
正味消滅量 (kg/サイクル)	730
正味消滅率 (kg/GWt・年)	40

5. TRU消滅処理を目的とした炉概念の核特性予測精度

1) TRUの核データの精度の現状

わが国のTRU消滅処理の消滅処理特性を含む核的特性の検討には、わが国の評価済核データライブラリー（JENDL-2または-3）が用いられている。TRUの消滅処理に高速炉等の発電を主目的とした原子炉を利用する場合には、燃料に対するTRU装荷比率が低く限定される（軽水炉；0.2%、高速炉；5%）ので、核データの不確かさは、TRUの消滅処理特性には影響するが、原子炉の特性予測に与える影響は比較的小さいと考えられる。一方、TRU専焼高速炉の場合では、Np、Am及びCmの占める比率が60%を越えるので、その核的特性の検討にはより信頼性の高い核データを必要とする。最近、TRUの核データ要求精度をまとめるに際して、原研核データセンターの中川氏が行なった専焼高速炉の中性子スペクトル場を念頭に置きJENDL-3の精度予測によると、 ^{237}Np 、 ^{241}Am 、 ^{243}Am 、 ^{244}Cm の核分裂断面積と中性子捕獲断面積については、今後の精度向上を必要とするものの精度現状は比較的良好であると思われる。JENDL-3とは異なるが、専焼高速炉を対象として、JENDL-2とENDF/B-Vを用いて核特性を計算し、両者に相違を検討しているが、2つの核データの相違ほど核特性の相違は大きくないようである。

2) TRUの核データの精度検証・向上のための積分実験

核データの検証のために、原子炉を用いた試料照射実験、パルス炉を用いた反応度実験及び臨界実験装置を用いた反応率比、反応度値等々の積分実験、が代表的な積分実験である。TRUに関しては、過去にEBR-2、PHENIX、PFR等を用いた高速中性子場での照射実験、軽水炉及び高転換軽水炉を対象としたフランスでの材料試験炉での照射実験とパルス炉での実験、等がある。最近では、KNK-2及びPHENIXを用いたTRUの本格的な実験が行なわれており、また、わが国においても動燃事業団が常陽による照射実験を計画していると聞いている。

原研では、FCAを用いて中性子スペクトルが系統的に異なる中性子場においてTRUの反応率比と反応度値の測定を行なった、最近では、日米共同研究の一環として、PFRで照射したTRU試料を原研に搬入して、核データ検証を目的とした試料分析を開始している。

6. おわりに

原研は、効率的、効果的なTRU消滅処理を目指して、TRU専焼炉の研究開発を進めている。この炉については、信頼性の高い核データ、物性データの整備が不可欠であるとの認識のもとに、国内外の協力を含めて、そのための基盤整備が着実に軌道に乗りつつあるところである。特に、この分野におけるロシアとの研究協力を積極的に進めるべく努めている。