

原研における加速器消滅処理研究の進展

(日本原子力研究所) 西田 雄彦

I. はじめに

現在、高レベル放射性廃棄物(HLW)の処分法として地層処分技術の開発を進められている。しかし、このうち長寿命(半減期が数百年~数百万年)のマイナアクチナイド(MA: Np, Am, Cm)や Tc-99 及び I-129 など核分裂生成物(FP)を、適当な核反応によって効率良く短寿命核種に変換(消滅処理)すれば、施設管理や安全性の面での負担を大幅に減らすことができる。1988年に原子力委員会は、群分離・消滅処理研究の強化を求める決定を行った。これを受けてオメガ計画(核種分離・消滅処理の研究開発)が発足し、HLWの処分の効率化、含まれる有用金属の資源化及び積極的安全性の向上性を目指す研究開発が促進されることになった。¹⁾ 1990年には、消滅処理用加速器開発に関連した原子力先端研究国際シンポジウム(原研主催)および第1回群分離・消滅処理関連研究技術情報交換国際会議(OECD/NEA主催)がそれぞれ水戸で開催された。1992年には、OECD/NEAのもとで、3月に加速器消滅処理ワークショップ(スイス、PSI)が、11月には「アクチナイドと核分裂生成物の群分離・消滅処理情報交換会議(第2回)」(米国、ANL)がそれぞれ開催された。

近年、加速器技術の急速な進歩により、その大電流化の見通しが立つにつれて、大型加速器の原子力分野における利用も検討されてきたが、原研では、大強度陽子加速器を用いたMA消滅処理の研究を進めている。この抄文では、原研における加速器消滅処理研究の成果と現状について簡単に述べるとともに、諸外国における主な研究についても触れる。

II. 核破碎反応過程の研究

加速器消滅処理システムの設計研究では、核破碎反応に関するデータの精度が重要な因子となるが、この反応のおこる数GeV~百数十MeVのエネルギー領域での核データの測定値が十分に存在しない。このため、核反応計算モデルの高度化を行うと共に、高エネルギー陽子による核破碎実験、特に厚いターゲット実験を行い測定値と計算値を比較検討するなど、核破碎過程解析コードの精度の向上を図る基盤研究の推進が必要である。

II-1 高エネルギー粒子核反応・輸送コードの開発

加速器消滅処理システムの概念検討や設計研究を行うには、数GeV~数十MeVの高エネルギー領域での反応を扱うコードと数十MeV以下の中性子輸送過程を扱うコードの接続が必要

である。原研では、加速器消滅処理解析用として、核破砕反応・核子中間子輸送過程シミュレーションコード NMTC/JAERI と中性子輸送コード MORSE-DD および TWOTRAN2 を結合させたコードシステムを作成して使用した（第1図）。燃焼消滅計算用には、扱うエネルギー範囲に応じて SPCHAIN や ORIGEN-2 を組み込んだ。^{2）、8）}

NMTC や HETC など核破砕過程解析コードは、20年近い開発の歴史を持っているとはいえ、改善すべき点も多く、幾つかの外国研究機関で改良された。原研でも、前平衡過程の組み込みや高エネルギー核分裂の評価など計算モデルの改良を行った。^{4）、5）、6）}また、組み込みデータに関連して、中高エネルギー領域の核子-核子反応データや消滅処理に係る核種と核子の反応データの測定、整備および評価を外部関連機関にリクエストしている。^{7）}

II-2 核破砕実験^{8）、9）}

原研では、高エネルギー物理学研究所（KEK）の 500MeV 陽子シンクロトロンを用いた核破砕消滅処理基礎実験を実施している。これまでに、鉛実験体系（直径60 cm、長さ100 cm）の製作および設置、スイッチングマグネット系などビームラインの整備を行い、実験設備を完成させた。最初の核破砕積分実験としては、アクチナイドに類似した鉛の体系に陽子ビームを入射させて、体系内に分布させた鉄、ニッケル、金などの放射化検出体の γ 線を測定した。この結果、鉄サンプルからの γ 線スペクトル図（第2図）に見られるように、核破砕反応生成物である K-43 などの生成が確認された。また、第3図に Ni の中性子入射による Ni-56 生成反応（しきい値 = 22.5 MeV）の反応率空間分布の測定値と計算値（ヒストグラム）の比較を示すが、陽子ビームの入射軸近くでは、ストリーミングの影響と考えられる両者の不一致が見られた。

III. 加速器消滅処理システムの設計研究^{10）、11）}

高エネルギー陽子との核破砕反応で、Np-237 などMAの場合、1.5 GeV で1入射陽子当たり40個以上の中性子が発生する。この核破砕中性子は、ほとんどが15 MeV 以下のエネルギー領域にあり、核分裂中性子と似たスペクトルをもっている。また、Np-237 などMAも数100 keV 以上のエネルギー領域で核分裂断面積が中性子捕獲断面積より大きくなる。このため、陽子ビーム核破砕反応のみでMAを消滅処理する方式よりも、多量に発生する中性子をMA燃料で構成される未臨界炉心に投入し、高速核分裂反応を主体として消滅処理する方が、飛躍的に高い消滅率と熱出力が期待出来る。

消滅処理量の増大とエネルギーバランスの向上を図るために、原研では、大強度リニアックの陽子ビームの核破砕反応によって得られる中性子をMA燃料で構成される未臨界高速炉心に投入するハイブリッド型消滅処理システムの概念検討を進めている。ここで、消滅処理システム検討の前提条件として次の項目を採用した。

- (1) 消滅能力は、年間約 260 kg、即ち 1 GWe の PWR の排出量に換算すると約 10 基の MA が消滅処理できる。
- (2) MA 消滅処理専用システムとするが、エネルギー収支では少なくとも加速器所要電力以上の発電能力をもつ。
- (3) 加速器の陽子ビームは、1.5 GeV、数十 mA とする。

なお、この加速器消滅処理システムは、陽子ビーム制御の未臨界体系でよいことから、安全性や設計上で有利な点が多い。即ち

- (a) 反応度制御のための制御・安全棒が不要で、システムが簡素化される。
- (b) 反応度係数に対する制限が厳しくないので、設計上の自由度が大きい。
正の温度係数は許容される。また、実効遅発中性子割合 β_{eff} に制約がない。
- (c) 出力停止は加速器のビームを遮断すればよく、安全設計上の負担が少ない。
- (d) 燃焼度が炉の反応度に制約されない。また、燃料組成の微調整が不要である。

Ⅲ-1 MA 合金燃料型消滅処理システム^{12)、13)}

MA 合金燃料消滅処理システムは、ステンレススチールの反射体で包まれた未臨界炉心部分および中心に位置するターゲット部分から構成されており、いずれもナトリウムの上昇流で冷却される(第4図(a))。炉心部分は、原研で別に検討を行ってきたナトリウム冷却 MA 専焼炉と類似した炉心を採用している。MA を効率的に核分裂させるために、(1) 硬い中性子スペクトルが得られる、(2) 高温冶金法により再処理がコンパクトにできるなどの理由から、合金燃料を用いている。状態図の解析によれば、Np は、Am、Cm と溶け合い難いと予測されるため、2種類の合金系(Np-15Pu-30Zr, AmCm-35Pu-10Y)の燃料を採用している。MA スラッグが ODS 鋼被覆管に充填された燃料ピンは、三角格子状に配列され、ピンバンドル型燃料集合体を形成する(第4図(b)、(c))。1.5 GeV の陽子ビームは、上方のビーム窓を通してタングステン製のターゲットに入射して、核破砕中性子を発生し炉心部を駆動する(第4図(d))。タングステンは、ターゲット周辺部に出力ピーキングを押さえ出力分布が平坦化し消滅効率を改善するために使われているが、さらに、炉心中央で中性子発生量が最大になるように、密度が調整された。第5図にターゲット部および炉心部の発熱密度分布を示す。この消滅処理システムは、実効増倍係数 0.89、ビーム電流約 39 mA の時で 1 GWe の PWR 9.5 基分の MA (250 kg/y) を処理することが可能である。熱出力は、820 MWt で加速器所要電力の倍以上の電力が生産できる。陽子ビーム入射窓の損傷は、そのビーム径を広げることにより緩和され、1年以上の連続使用が可能であると予測されている。一方、ODS 燃料被覆材の照射特性評価から、燃料体は 1800日位の炉内滞在時間を持つとの技術の見通しが得られた。合金燃料型消滅処理システムの性能および炉心部の主要パラメータを第1表に示す。

Ⅲ-2 MA 溶融塩燃料型消滅処理システム¹⁴⁾

溶融塩燃料炉の技術的成立性は、1960年代に米国オークリッジ国立研究所で設計および運転が行われた溶融塩実験炉(MSRE)で実証されている。これまで、開発の進められた溶融塩増殖炉は、熱中性子炉であったが、原研で検討している加速器消滅処理システムでは、MAを効率よく消滅するために高速中性子スペクトルを持つ溶融塩未臨界体系を選択している。また、従来評価の高いフッ化物溶融塩ではなく、3価のMAの溶解度がより大きいと推定される塩化物溶融塩を採用し、 $64\text{NaCl}-31\text{MgCl}_2-5\text{PuCl}_3$ を現時点での最適組成とした。また、NaClはフッ化物塩のLiFや BeF_2 よりも、中性子スペクトルを硬くすることも、MAの消滅処理には、好都合である。

反応槽は、中央に溶融塩を満たした空間があり、その周りに内部反射体が設けられている。MAを溶解した塩化物溶融塩は、炉心の燃料であると同時に高エネルギー陽子ビームのターゲット部分の役割を果たしているため、システムを非常にシンプルな構造にすることが可能である(第6図)。さらに、その外側にはコンパクト型熱交換器が配置される一体型になっており、外部の1次系主配管を不要としMAの全装荷量を少なくすることができる。陽子ビームは、炉心上部の入射窓を通して鉛直方向に入射する。予備的な核熱的検討によれば、実効増倍係数が0.92の場合、1.5 GeVの陽子ビーム電流25 mAで1年間に約250 kgのMAを消滅処理できるとともに、800 MWtの熱出力を発生し加速器所要電力を充分自給できる。第7図に炉心部の出力密度分布を、第2表に、消滅処理システムの主要諸元を示す。流動体の燃料を用いることによって、MAの供給、核分裂生成物の除去をオンラインで連続的に行うことが可能となる。核分裂生成物の分別除去には、ヘリウムパーージ法、コールドトラップ法及びカドミウム抽出法を用いることが考えられている(第8図)。

IV. 大強度陽子加速器の開発^{15)、16)}

実用規模の加速器消滅処理プラントには、 ~ 1 GeV、数10 mA \sim 数100 mAの規模の大強度線形陽子加速器が必要となる。原研では、加速器消滅処理システム開発に必要な種々の工学的試験を行うために、1.5 GeV、 ~ 10 mAの工学試験用加速器(ETA: Engineering Test Accelerator)の開発・建設を提案している。ETA全体のシステムは第9図に示すように、(1)イオン源、(2)高周波4重極リニアック(RFQ)、(3)ドリフトチューブリニアック(DTL)、(4)高 β 加速空洞、(5)大電力RF源によって構成される。イオン源から引出される大電流の陽子ビームは、RFQでバンチされながら2 MeVまで加速されてDTLに入り、さらに150 MeVまで加速され、光速に近い速度になった状態で高 β 加速部に入り、最終的に1.5 GeVまで加速される。この出力規模は現存する陽子加速器のそれ

に比べて、10倍～100倍以上の値に達するため、実現にはかなりの開発努力が必要である。特に“ビームの漏れ”に起因する加速器構造の劣化や放射化を低く抑えるため、低エネルギー加速部での出力ビームの質を向上することが不可欠である。低エネルギーの荷電粒子は、加速電場の歪みや空間電荷の影響を最も受け易い。そのため第1段階として技術開発用加速器(BTA: Basic Technology Accelerator: ~10 MeV、10 mA) (第10図)を開発して、低エネルギー加速部要素技術を確立する。これまでに高輝度、大電流イオン源の試作及び試験を行うとともに、各種の設計計算コードの整備を行った。また、高周波4重極型リニアック(RFQ)及びドリフトチューブリニアック(DTL)について電磁場計算、ビーム軌道計算、熱計算を進め、RFQなどの試作機を設計・製作した。また、大電力高周波源の設計検討を進めている。

V. 海外における研究開発の状況

近年、核廃棄物の地層処分サイト決定の難航、我が国の積極的なオメガ計画の策定、加速器技術の急速な進展などによって、加速器消滅処理の研究は諸外国においても活発化しつつある。

ロスアラモス研究所(LANL)が提案している加速器消滅処理システム^{17)、18)}は、原研が提案している高速炉心型と異なり、核破砕熱中性子源型を基本としたもので、ATW概念(Accelerator Transmutation of Nuclear Waste)と呼ばれる。第11図に示すように、大強度陽子加速器と熔融鉛(あるいは鉛・ビスマス)ターゲットあるいはタングステン固体ターゲットと重水減速材によって非常に高い熱中性子束($\sim 10^{16}$ n/cm²·sec)を発生させてブランケット内の核廃棄物を効率的に消滅処理させようとするものである。短期的には、軍用廃棄物(主に長寿命FP)を消滅処理する専焼システムを目的としているが、将来的には、発電、核燃料増殖および核廃棄物消滅処理を並行して行う総合発電プラントを目標としている。専焼システムでは、1年間にMA 20 kgと核分裂生成物 70 kgが消滅処理される。系全体の中性子実効増倍係数は0.2程度と小さいため、消滅処理量のわりにはかなり大出力の加速器が必要とされる。また、エネルギーバランスは期待出来ず、250 MWe程度の加速器用電力を外部から供給しなければならない。このシステムの特徴は、MAの水溶液あるいはスラリーを用いるので連続的な燃料供給と反応生成物の処理が可能なことである。また、ブランケット中のMA濃度は希薄でよく、インベントリも約70kg以下と少くできる利点がある。非常に高い中性子束を発生させることからターゲット容器材料の照射損傷が大きな問題となる。一方、総合発電プラントの概念では、中央のターゲット領域を取り囲んで3重のブランケット領域が設けられている。外側の重水ブランケット中で核燃料物質の生産(TH-232 → U-233)が行われる。生産されたU-233は、中間の熔融塩ブランケットに供給され、核分裂によって熱を発生し、40%近い効率の発電が可

能になる。内側の重水ブランケット中では、長寿命のFPの消滅処理が行われる。この体系の実効増倍係数は0.8～0.9である。

最近、ブルックヘブン研究所(BNL)が提案しているPHOENIXプロジェクト¹⁾²⁾の加速器消滅処理システム概念では、1.6 GeV、104 mAの陽子ビームを広げて炉心部(MA: 2.6 ton/y)と沃素(I-129、300 kg/y)で構成される未臨界格子(k~0.9、3600 MWt)に照射して1年間に約1 tonの消滅処理、約1300 MWeの発電を行うシステムが検討されている。

VI おわりに

原子力は、その利用について種々の議論がなされているが、現実には今後とも基幹的なエネルギー源としてますます重要な役割を担っていくことになるだろう。21世紀を視野にいたした原子力発電では、安全性および経済性の両面から、群分離・消滅処理過程を含んだ核燃料サイクルの構築が必要と考えられる。この観点から考えると、加速器消滅処理システムは核破砕反応過程を含んだ先端的システムとして消滅効率を高めることが可能であり、核廃棄物処理に新たな選択肢を提供するものである。現在、加速器・ターゲット炉心のハイブリッド方式を中心にした消滅処理システムの概念検討や基礎実験が進められている段階である。MA金属など固体燃料高速炉心の消滅処理システムの検討では、消滅効率は目標値の70～80%を達成できる見通しが得られているが、さらに消滅率の向上や工学的成立性を検討する必要がある。MA熔融塩高速炉心や核破砕熱中性子束を利用する場合は、より効率的な消滅処理システムが期待できるが、なお十分な基本検討が必要である。専焼炉など原子炉による消滅処理との大きな差は、本質的に未臨界システムでよいことで、システムの設計上や安全性の面でさまざまな利点が考えられる。大強度線形加速器の建設は、消滅処理システム開発の大きな部分を占め、多くの開発努力と歳月を必要とする。しかし、消滅処理工学利用を主目的としたETAなどを先端技術として開発していくことは、現在のような原子力利用の転換期に際して、新たな展望を開くともに、世界の原子力技術の進歩に大きく貢献することができる。

参考文献

- 1) Kaneko, Y. : "THE INTENSE PROTON ACCELERATOR PROGRAM", Proc. 2nd Int. Symp. on Advanced Nuclear Energy Research- Evolution by Accelerator -, (1990)(Mito).
- 2) Nishida, T. et al. : "Calculation code system for fission and spallation products", Proc. ICANS-XI, (Tsukuba) (1990).
- 3) Nishida, T. et al. : "Analysis of produced nuclei and emitted neutrons in nuclear spallation reactions," Kerntechnik, 50, 193(1987).

- 4) Nishida, T. et al. : "Mass formula dependence of calculated spallation reaction distributions", *Kerntechnik*, 55, No.3, 147(1990).
- 5) Nishida, T. et al. : "Benchmark Study on the Computational Model in the Accelerator-based Transmutation Simulation Code", *PSI-Proc. 92-02*, ISSN 1019-6447 (1992).
- 6) Ishibashi, K. et al. : "Moving Source Model Analysis of Neutron Production Cross Section for Proton Induced Spallation Reactions", *Jour. Nucl. Sci. Tech.*, 29, No.6, 499(1992).
- 7) 西田、他 : " OMEGA 計画と核データ"、核データニュース、No. 37 (1990).
- 8) Takada, H. et al. : "Production of Radioactive Nuclides in a Lead Assembly with 500 MeV Protons", *PSI-Proc. 92-02*, ISSN 1019-6447 (1992).
- 9) 高田、他 : " 鉛体系を用いた 500 MeV 陽子による核破砕積分実験"、1992 年核データ研究会報文集(1993).
- 10) Nishida, T. et al. : "STUDY OF TRU TRANSMUTATION SYSTEM WITH A PROTON ACCELERATOR", *Proc. 1st Inform. Exchange Meeting OECD/NEA*, (Mito) (1990).
- 11) Takada, H. et al. : "A Concept of Actinide Transmutation with Intense Proton Accelerator", *Proc. ICENES '91* (1991)(USA).
- 12) Takizuka, T. : "Overview on Nuclear Design Problems of Accelerator-based Transmutation Systems with Emphasis on Target Facilities and Their Interfaces with Accelerators", *PSI-Proc. 92-02*, ISSN 1019-6447 (1992).
- 13) Takizuka, T. et al. : "Conceptual Design Study of an Accelerator-Based Actinide Transmutation Plant with Sodium-Cooled Solid Target/Core", *Proc. 2nd Inform. Exchange Meeting OECD/NEA*, (Chicago) (1992).
- 14) Katsuta, H. et al. : "A Continuous Transmutation System for Long-Lived Nuclides with Accelerator-Driven Fluid Targets", *Proc. 2nd Inform. Exchange Meeting OECD/NEA*, (Chicago)(1992).
- 15) 金子、他 : " 大強度陽子加速器計画"、JAERI-M 91-095 (1991).
- 16) Mizumoto, M. et al. : "HIGH INTENSITY PROTON ACCELERATOR FOR NUCLEAR WASTE TRANSMUTATION", *Proc. LINAC Int. Conf.*, (Ottawa) (1992).
- 17) Bowman, C.D. et al. : "SPALLATION-BASED AND TECHNOLOGY AND ASSOCIATED NUCLEAR DATA REQUIREMENTS", *Proc. 2nd Int. Symp. on Advanced Nuclear Energy Research - Evolution by Accelerator -*, (1990)(Mito).
- 18) Cappiello, M. et al. : "TARGET/BLANKET CONCEPTUAL DESIGN FOR THE LOS ALAMOS ATW CONCEPT", *PSI-Proc. 92-02*, ISSN 1019-6447 (1992).

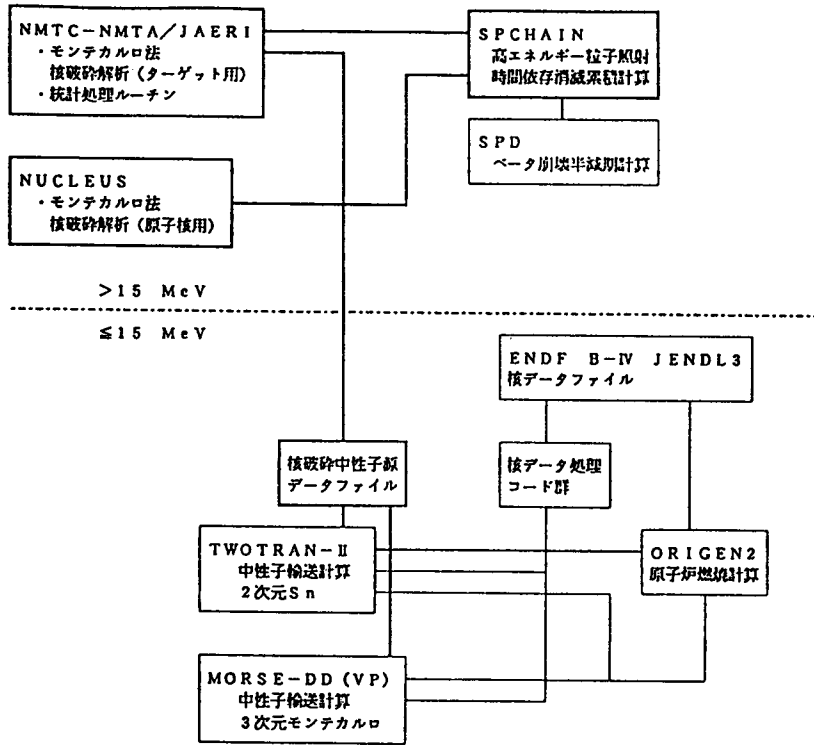
- 19) Takahashi, H. : "THE ROLE OF ACCELERATORS IN THE NUCLEAR FUEL CYCLE", Proc. 2nd Int. Symp. on Advanced Nuclear Energy Research - Evolution by Accelerator -, (1990) (Mito).
- 20) Tuyle, G.V. et al. : "Proposed Transmutation of Long-Lived Radioactive Wastes to Produce Electric Power," Transactions of the A. N. S. (1990).

第1表 MA合金燃料消滅処理システムの主要諸元

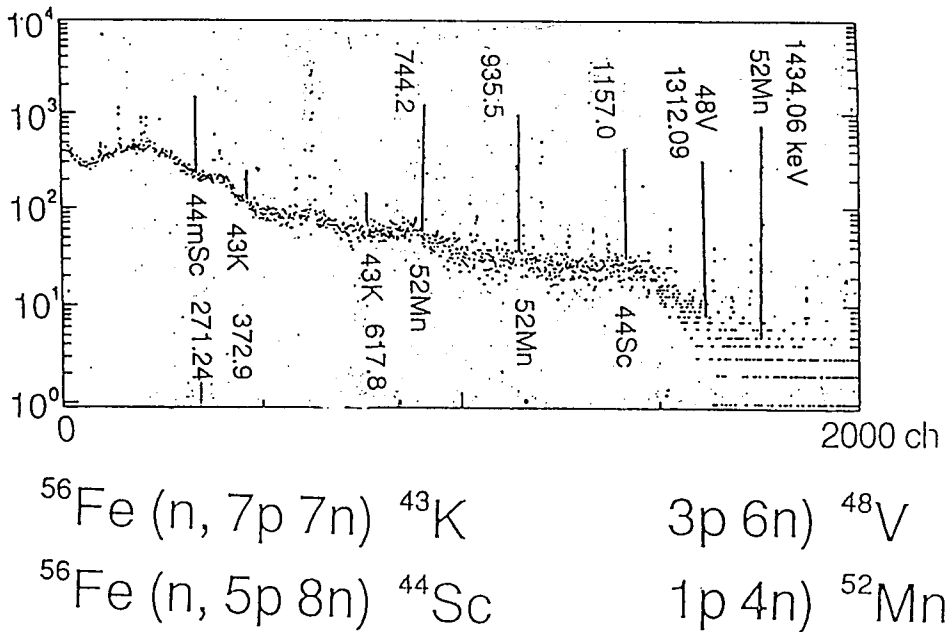
陽子ビーム電流		39	mA
アクチナイド装荷量		3160	kg
中性子実効増倍係数		0.89	
核破碎中性子数/陽子		~40	
平均中性子束		4.6×10^{15}	$n/cm^2 \cdot s$
	(> 1 MeV)	20	%
	(> 0.1 MeV)	70	%
平均中性子エネルギー		690	keV
消滅処理量		250	kg/年
熱出力		820	MWt
発電量		246	MWe
年間稼働日		270	日
出力密度	最高	930	MW/m ³
	平均	400	MW/m ³
最高温度	冷却材出口	473	°C
	燃料	890	°C
	被覆材	528	°C

第2表 MA熔融塩燃料消滅処理システムの主要諸元

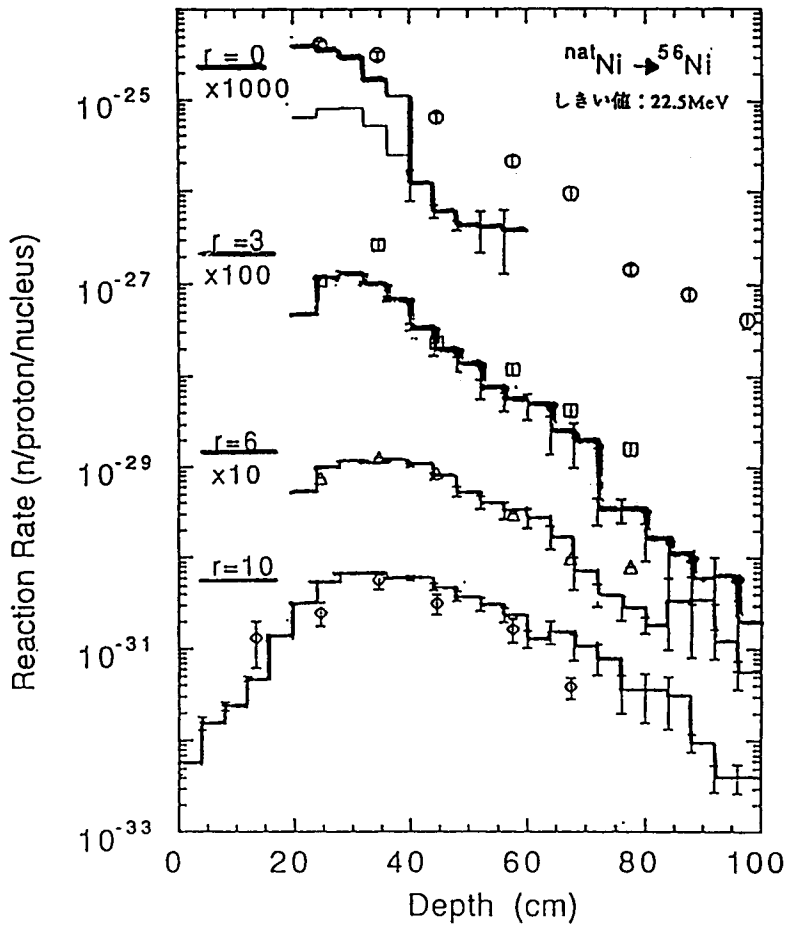
ターゲット熔融塩	
組成	64NaCl-5PuCl ₃ -31MACl ₃ (MA: Np、Am、Cm)
融点	~453 °C
体積	2.6 m ³
装荷量	熔融塩 9,000 kg アクチナイド 5,000 kg
反射体	低炭素鋼
中性子実効増倍係数	0.92
陽子ビーム入射系	
加速エネルギー	1.5 GeV
陽子電流	約 25 mA
入射方式	垂直方向, 中心軸 入射
ビーム窓	ODS, Heガス充填
冷却系	中間熱交換器内蔵型
1次冷却系:	
材料	ターゲット塩化物熔融塩
出口温度	約 650~600°C
2次冷却系:	
材料	2次熔融塩 (フッ化物熔融塩)
出口温度	約 600~550°C
消滅処理量	250 kg/年
熱出力	800 MWt



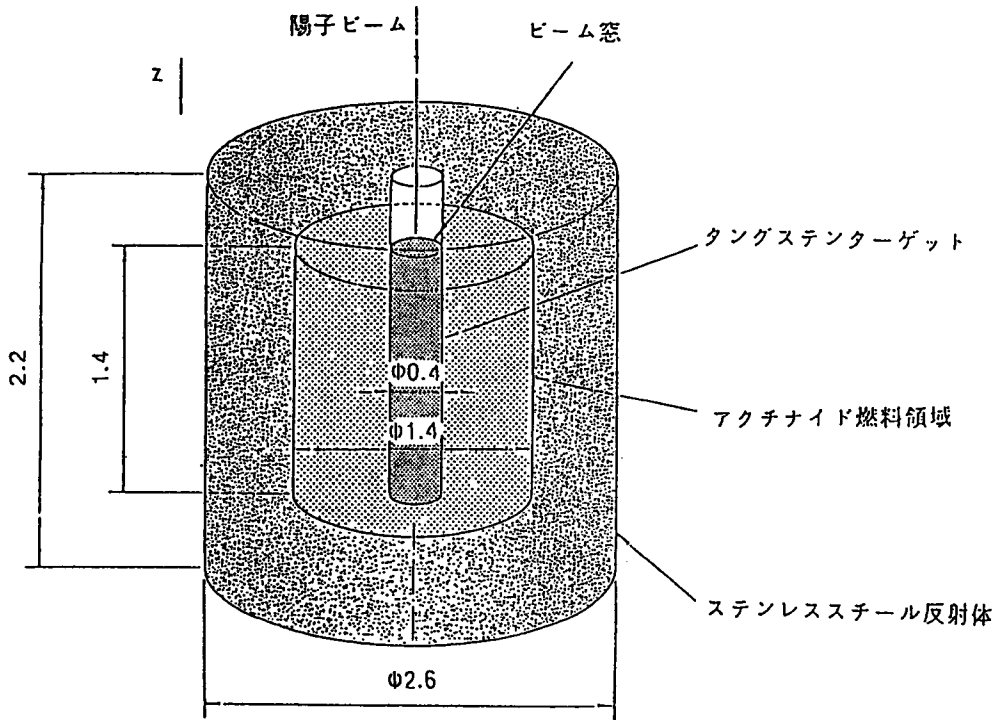
第1図 加速器利用消滅処理システム解析用コードシステム



第2図 鉄の放射化検出体からの γ 線スペクトル

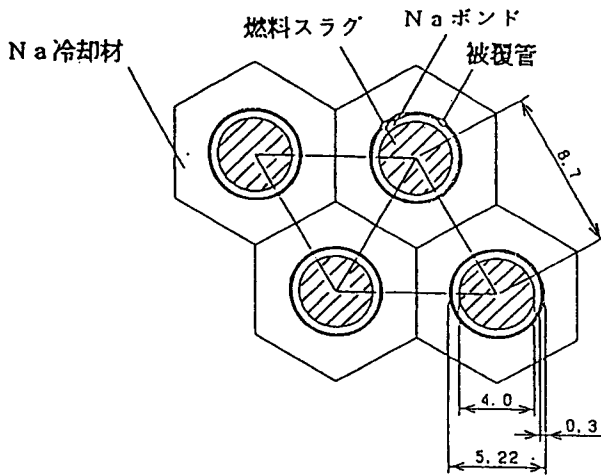


第3図 ニッケルペレット中に生成した ^{56}Ni の鉛体系内空間分布に関する実験結果と計算結果との比較
 (○: $r = 0\text{ cm}$, □: $r = 3\text{ cm}$, △: $r = 6\text{ cm}$, ◇: $r = 10\text{ cm}$, 実験値。ヒストグラムはNMTC/JAERIによる計算結果。
 $r = 0\text{ cm}$ の点線は陽子及び中性子による寄与の大きさを示す。
 $r = 3\text{ cm}$ 以降では陽子による寄与がないため点線は実線と重なっている。)



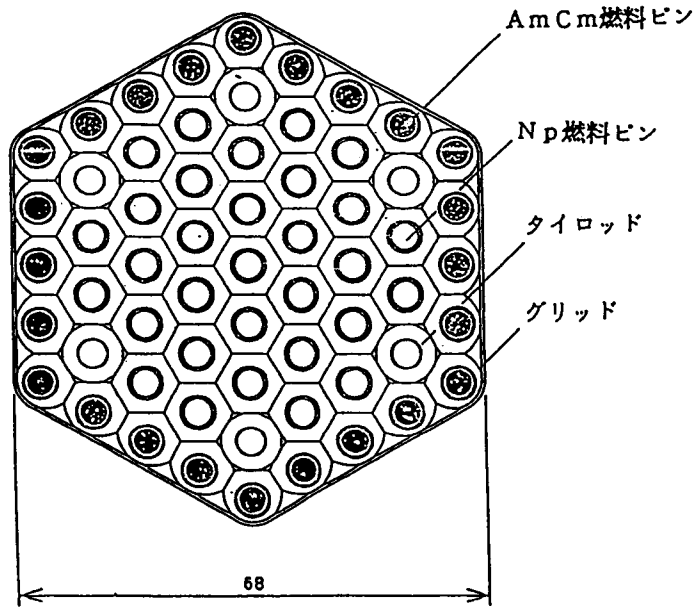
単位：m

a) ターゲット炉心計算モデル

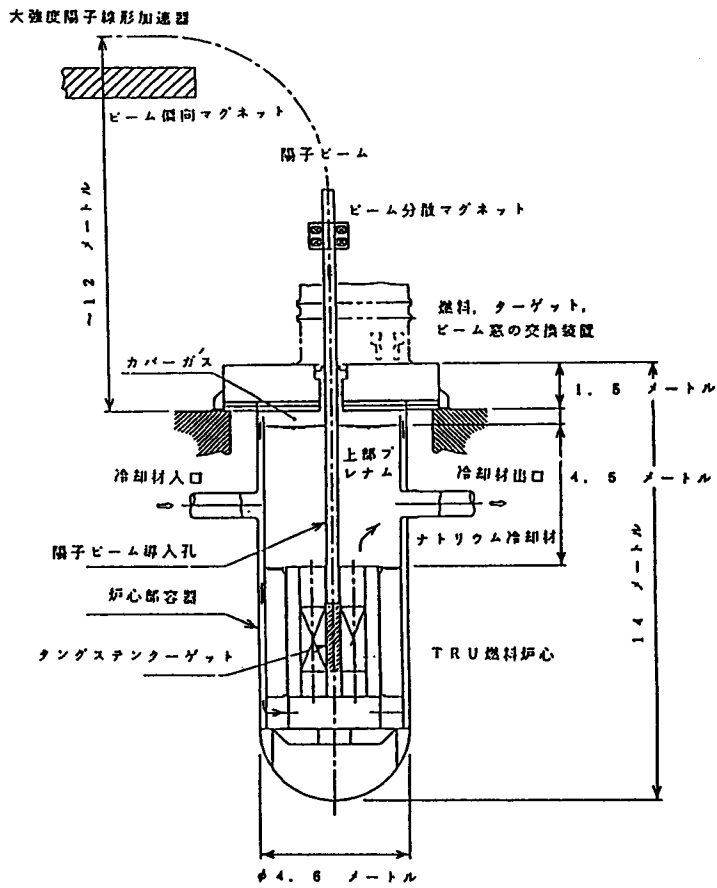


b) 燃料ピンの格子状配置

第4図 MA合金燃料消滅処理システム

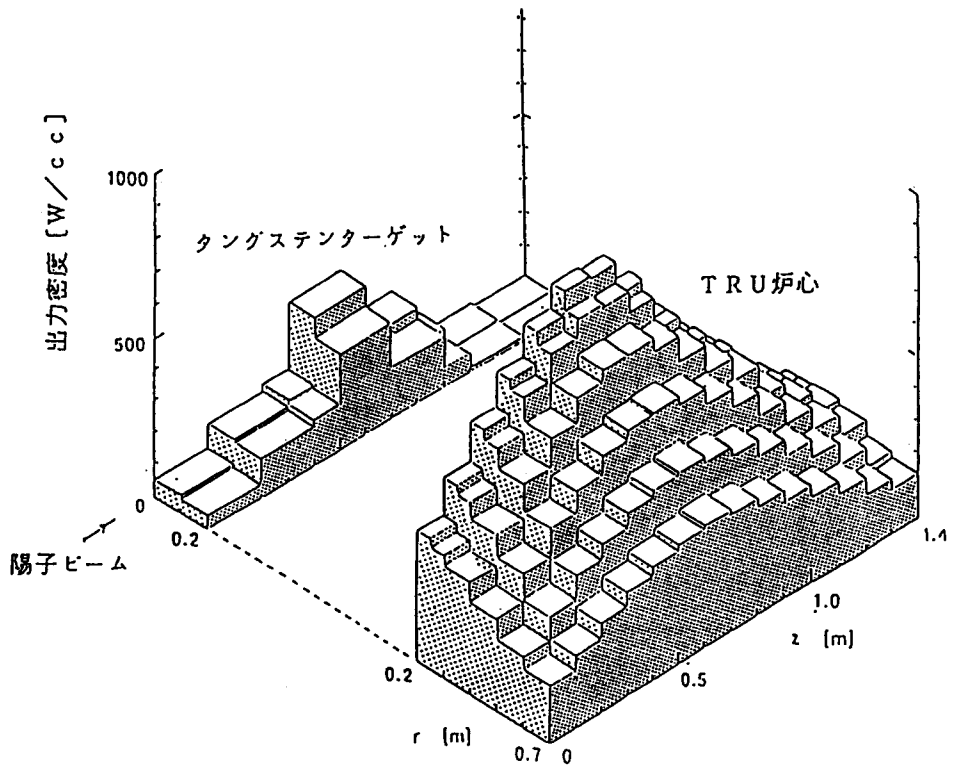


c) 燃料集合体

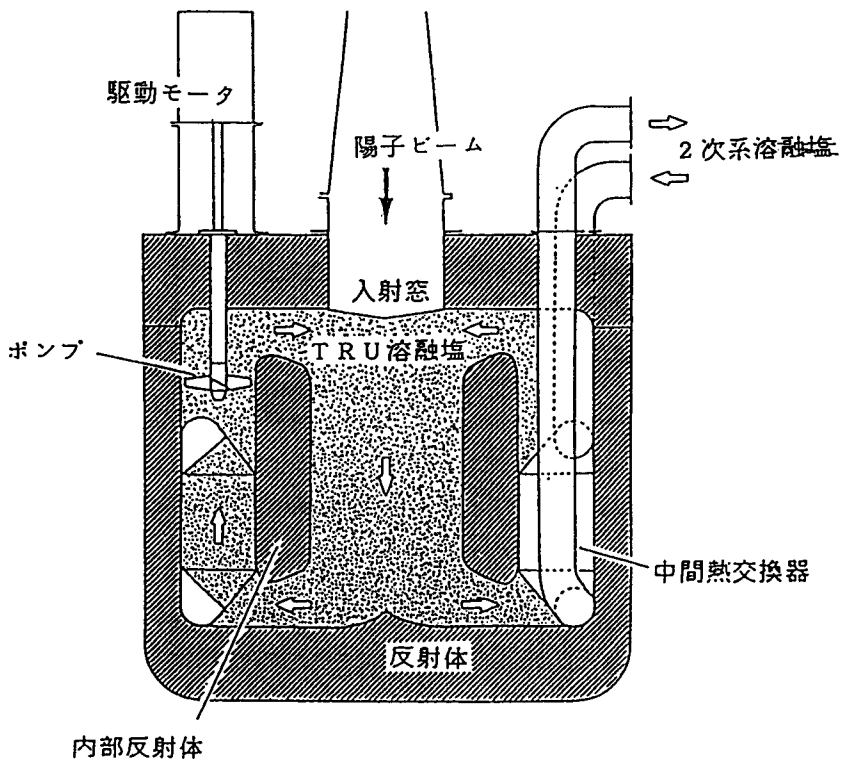


d) 全体図

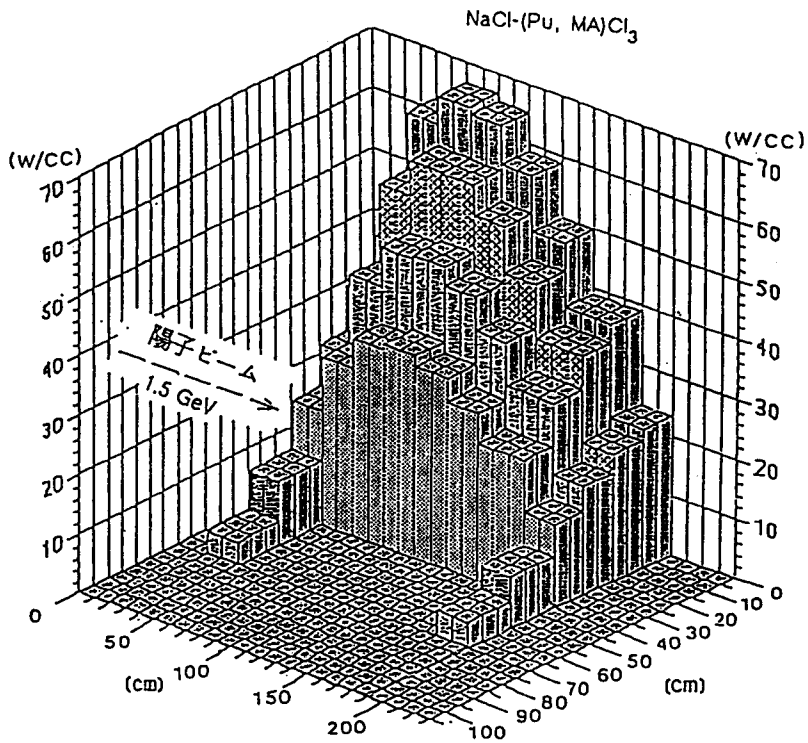
第4図 MA合金燃料消滅処理システム (続き)



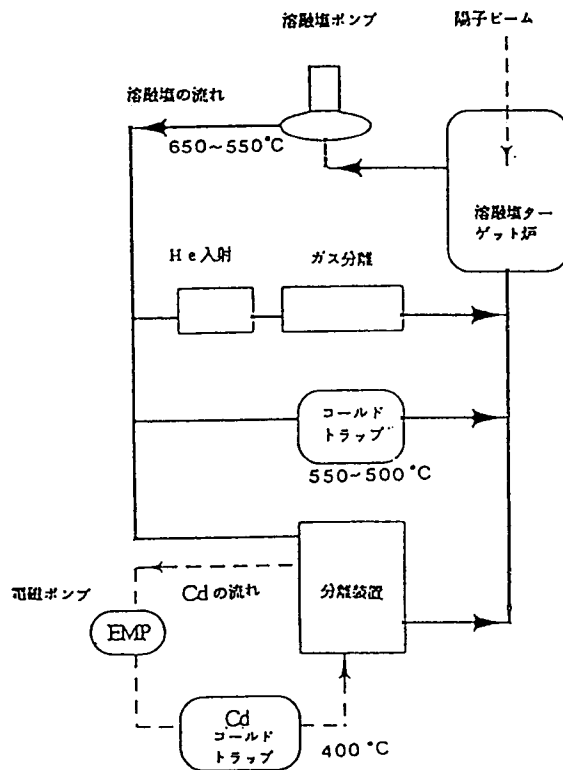
第5図 ターゲット炉心の出力密度分布



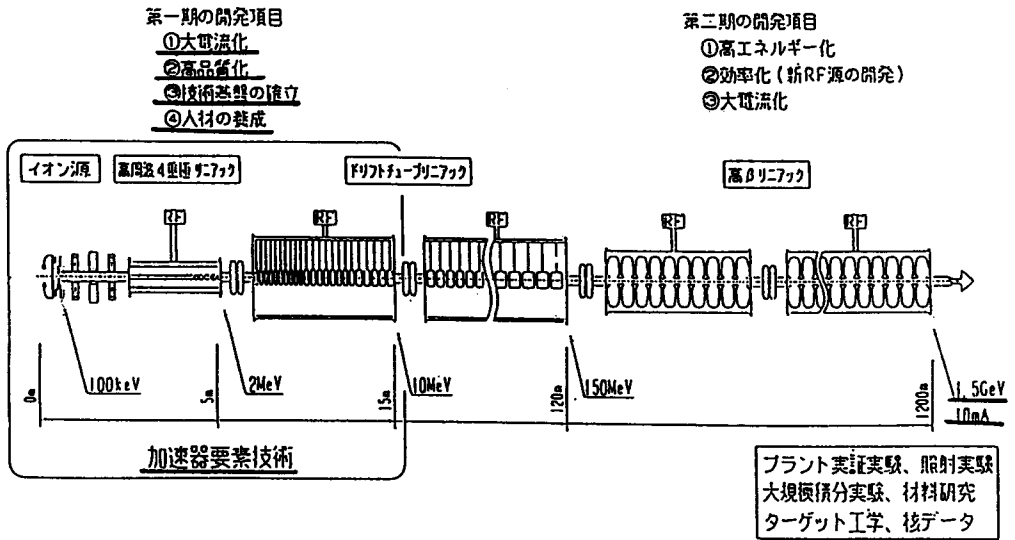
第6図 MA溶融塩燃料消滅処理システム概念図



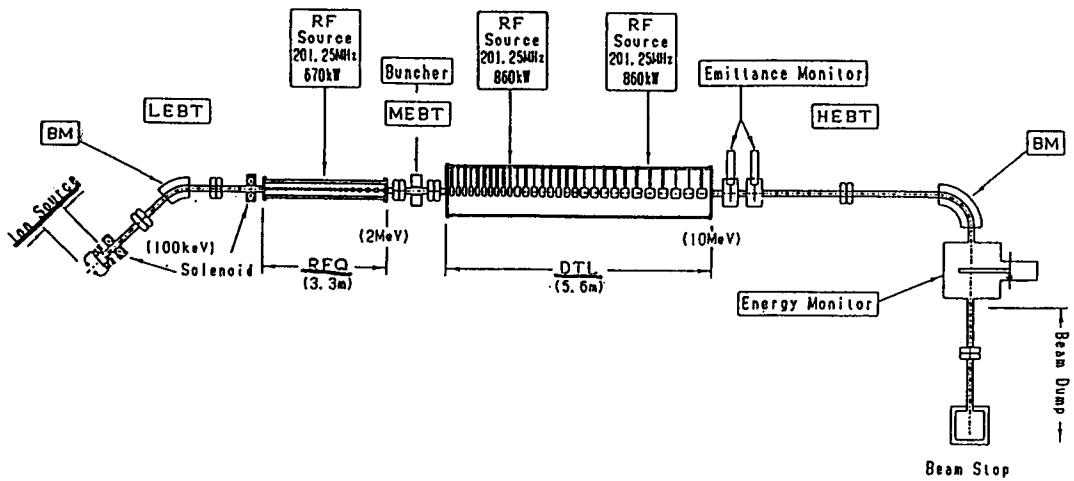
第7図 MA溶融塩炉心中の出力密度分布（陽子電流：1 mA）



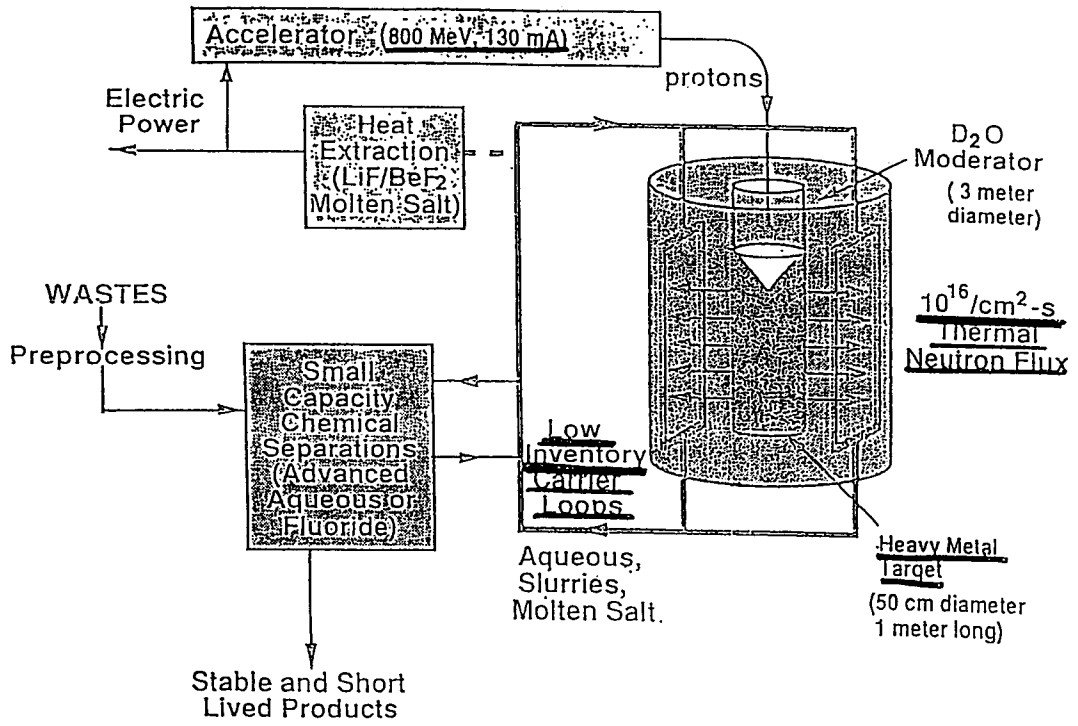
第8図 核分裂生成物オンライン分離の概念



第9図 工学試験用加速器E.T.A.(1.5 GeV, ~10mA)の構成概念図



第10図 技術開発用加速器B.T.A.(~10MeV, 10mA)の構成概念図



第11図 ATWシステム概念