

アクチニドの高速完全消滅を目指して

(東北大学工学部原子核) 岩崎 智彦

1. はじめに

長寿命の放射性核廃棄物の処理・処分は、核分裂エネルギー利用を行っていく上で、極めて難しい問題の一つである。「消滅処理」は、長寿命核を安定核あるいは寿命の短い核に核変換することにより、廃棄物の毒性を減らし、長寿命核の存在のためにその処分時に考慮しなければならない時間を短縮することを目的としている。アクチニドの中には 100 万年を越える長寿命核が多く存在することから、アクチニドは消滅処理の主たる対象となる。アクチニドは、その中に安定核がないこと、また短寿命アクチニド核も α 崩壊チェーンによりやがては長寿命核に成ることから、その消滅処理にはアクチニド専用の方法が必要となる。

従来から、アクチニドの消滅処理についての研究が成されている。しかし、今までに提案されている消滅処理方法による効果は大きくなく、アクチニド廃棄物の処分に要する時間を短縮する効果や毒性を減らす効果はほとんど得られていない。Fig.1 に代表的な原子炉を用いた消滅処理による毒性の推移を示す。ここで対象としたのは、炉内最高中性子束 3×10^{14} n/cm²/sec を持つ典型的な PWR と同 4.0×10^{15} n/cm²/sec を持つ典型的な FBR (MOX fuel) である。この図は、使用済み燃料から取り出されたアクチニドの組成を持つ廃棄物 (1000g) を上記の中性子束で 5 年間燃焼を続けた場合の計算結果である。この図の縦軸は、ICRP Pub.30 から取った、経口による年間摂取限度から換算して求めたアクチニドだけの廃棄物毒性である。縦軸は、燃焼開始からの時間である。

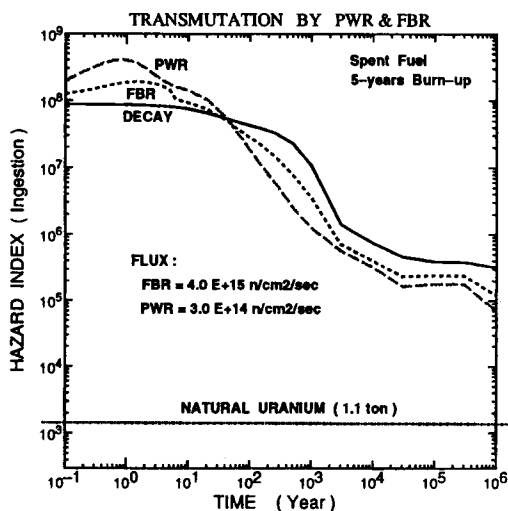


Fig.1. 代表的な原子炉 (PWR と FBR) による消滅処理時の毒性の推移

Fig.1 を見るとわかるように、燃焼終了後 50 年間は、アクチニド廃棄物を放置したときの値 (図中の"DECAY") に比べて消滅処理を行った方が大きい毒性値を示している。50 年後を過ぎると消滅処理を行った方が低い毒性を示すようになるが、DECAY との差は小さい。このような方法では、毒性低減や時間短縮の効果は得られない。これは、中性子束や実効反応断面積が小さいことに起因している。現実的な燃焼時間内で、十分な消滅処理の効果を上げるためには、より高い中性子束を持ち、より大きい実効断面積を与える中性子場が必要である。

このような条件を満たす場を持つ原子炉が現在設計されている。それは、U.S.A. の Oak Ridge

National Laboratory (ORNL) で開発中の研究用原子炉 Advanced Neutron Source (ANS)¹⁾ である。この炉は、中性子を用いた基礎研究のために中性子を供給する原子炉であり、現在の世界最高中性子束となる 1×10^{16} n/cm²/sec を持つ中性子場の実現を目標にしている。本研究は、この ANS 中性子場でのアクチニドの燃焼の研究を行い、大幅な毒性低下、処分時に必要となる時間の短縮を実現するための消滅処理法を提案する。さらに、この方法を実現するための新たな炉 "A-Burner" の概念設計を行い、消滅能力の評価を実施する。

ここで提案する消滅処理法の第 1 の特徴は、高中性子束・熱中性子場中での「高速消滅」にある。さらに、本方法には、もう一つの特徴がある。それは、熱中性子場燃焼を図った場合に避けられない高次アクチニドの生成に対する対策である。その高次アクチニドの主たる核種は、熱中性子反応断面積が極めて小さい ²⁴⁶Cm (このために蓄積する訳であるが) である。この核の娘核種は半減期 3.8×10^5 年の ²⁴²Pu であるために、処分時の時間短縮する上で大きな障害となる。この核の高速燃焼を図ることが不可欠である。ここでは、²⁴⁶Cm 燃焼に望ましい中性子スペクトル場の研究を行う。

2. ANS 場内でのアクチニドの燃焼

ANS により、 1.0×10^{16} n/cm²/sec の中性子束を持つ熱中性子場が提供される。ANS については、Ref.1 に詳しく述べられている。Fig.2 にその模式図を示す。ANS は、約 67 liter の小さい炉心を、直径 3 - 4 m の大きな重水反射体タンクで囲ったものである。炉心には、93%濃縮ウランをアルミ被覆材で覆った板状燃料が用いられ、インポリュート型の燃料板を組み込んだ中空円筒型燃料要素2個で構成されている。炉内装荷ウラン量は 15 kg であり、熱出力 350 MW で 14 日間運転される (年間約 21 サイクル)。炉心内には極めて硬い高速中性子場が形成され、反射体内には、逆に熱中性子場が作られる。反射体内のスペクトルは、中性子吸収の少ない重水を用いるため、中性子損失が少なく極めて軟らかいものとなる。ORNL の計算によれば、反射体内でのピーク中性子束は、熱中性子束で 8×10^{15} n/cm²/sec であり、全中性子束で 1×10^{16} n/cm²/sec である。ANS の場合、その反射体内に実験用のビームチューブ・ガイドや冷中性子源が置かれる。以下、ここでは、それら実験用具をすべて取り払った状態の、ANS 反射体内でのアクチニドの燃焼を解析する。

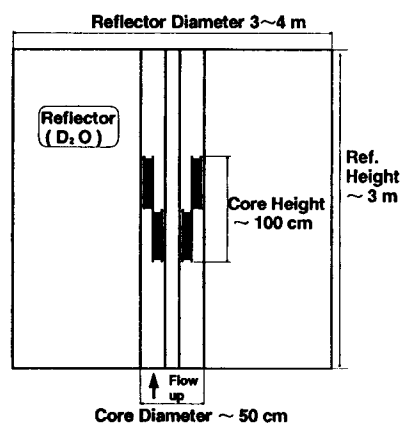


Fig.2. ANS 炉心の模式図

対象とするアクチニドは、PWR 取り出し組成のアクチニド廃棄物であり、 1.0×10^{16} n/cm²/sec の一定中性子束での燃焼を ORIGEN-2²⁾ で解析した。ORIGEN-2 に必要となる断面積データは、JENDL-3³⁾ および ENDF/B-VI⁴⁾ から、後で述べる方法により作成した。Fig.3 に燃焼中のアクチニド核種の重量変化を、また、Fig.4 に 5 年間燃焼した後の毒性の変化を PWR と FBR の変化とともに示す。Fig.3 からアクチニド廃棄物の燃焼が極めて速いことがわかる。廃棄物全重量が半分になるのに約 15 日、1/10 になるのに約 120 日である。

この燃焼の速さは、高中性子束のためばかりでなく、極めて軟らかい熱中性子スペクトルによる実効断面積の増加の効果が大きく寄与している。例えば、 ^{237}Np 捕獲反応の実効断面積は、PWR で 32 barn、FBR で 1.4 barn であるのに対して、ANS では 117 barn であり、約 3.7 倍から 82 倍である。また、 ^{239}Pu の核分裂断面積の場合、PWR 106 barn、FBR 1.8 barn、ANS 560 barn であり、5.3 から 308 倍になっている。この燃焼の速さは、Fig.4 に示す通り、毒性低下に大きく貢献する。さらに、この毒性変化図からわかるように、ANS の場合、約 20,000 年の時点で、アクチニド廃棄物の生みだす元の天然ウラン（等価ウラン）の毒性を下回る。他と比べて、ANS 場での燃焼はアクチニド処分に必要な時間の短縮効果があることがわかる。Fig.3 を見ると、アクチニドの燃焼速度ははじめの 1 年は速いが、その後、速度が急速に低下していることがわかる。これは、図中にも見られる通り、 ^{246}Cm の蓄積によるものである。 ^{246}Cm の実効断面積は、ANS 場中で 2.2 barn であり、非常に小さい。この ^{246}Cm の燃焼速度を大きくすることができれば、 ^{246}Cm 以上の高次核には、大きな核分裂性断面積や自発核分裂率 100 % の核が多く存在しているので、同じ燃焼期間でも消滅処理の効果を大幅に上げることができる。

^{246}Cm は熱中性子断面積が小さく、1 - 100 eV にわずかな共鳴があるだけである。 ^{246}Cm の燃焼速度を上げるには、この共鳴を利用するしか方法はない。即ち、1 - 100 eV 領域

の中性子束の高い場を作る必要がある。Fig.5 に 5 群エネルギー分割をした時の ANS 内の各領域の中性子束分布を示す。第 3 群（図中の "3G"）が 1 - 100 eV に対応している。この図を見ると、第 3 群の中性子束は、炉心中心部（中空部分）で最も高い値を示していることがわかる。そこでは、全中性子束も $1 \times 10^{16} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ となっており、この部分に ^{246}Cm を装荷し、燃焼を行えばその燃焼の高速化を図ることができるものと考えられる。ANS 炉をベースに、いくつかの炉心中心部の減

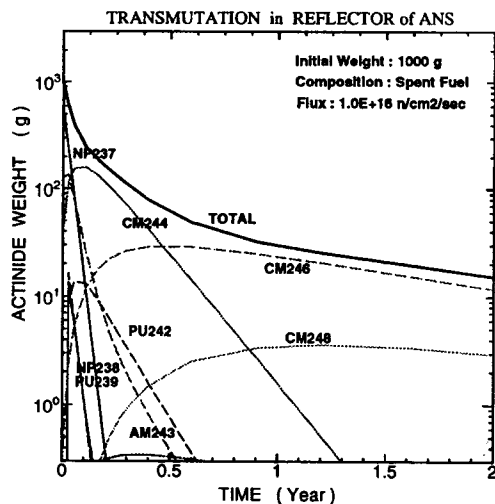


Fig.3. ANS 反射体内での燃焼（重量変化）

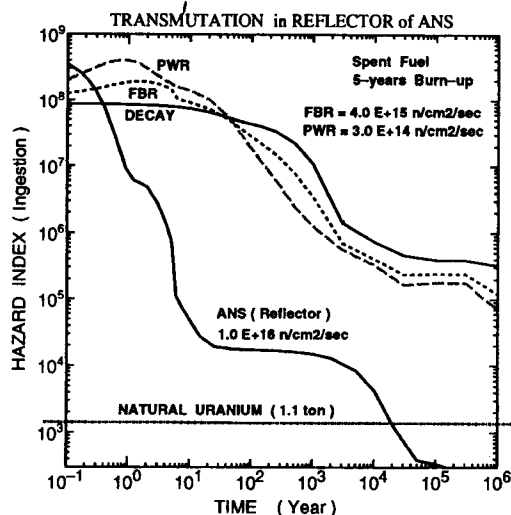


Fig.4. ANS 反射体内での燃焼（毒性変化）

速材比について、この核の実効断面積を計算すると、減速材比が約 0.5 程度で最も大きな値を示し、5.5 barn となる。この値は、反射体内の値の 2.5 倍である。5 年間の ^{240}Cm の燃焼を考えると、アクチニド減少率に換算して、約 100 ($= 2.5^5$) 倍となり、大きな効果がある。このような場での燃焼は高次アクチニドの消滅に大きく貢献すると考えられる。

3. 2 段階消滅処理法

低次アクチニドには、軟らかい熱中性子場での燃焼により大きな燃焼速度が得られ、それにより蓄積する高次アクチニド（キュリウム）の燃焼には、1 - 100 eV に大きな成分を持つ少し硬いスペクトル場が望ましい。これを踏まえて、アクチニドの消滅処理法として、上記の2つの燃焼を組み合わせた2段階消滅法を提案する。第1段階では、PWR からのアクチニド廃棄物を ANS 反射体内に溶解させ装荷し燃焼する。そこでの燃焼は極めて速いので、その燃焼期間は数 10 日でよい。その燃焼の後、残留物からキュリウム以上の廃棄物を分離し、中心領域に装荷する。そこで第2段階として5年間程度の燃焼を行う。これにより、大幅な毒性の低下や時間の短縮の効果を得ることができる。

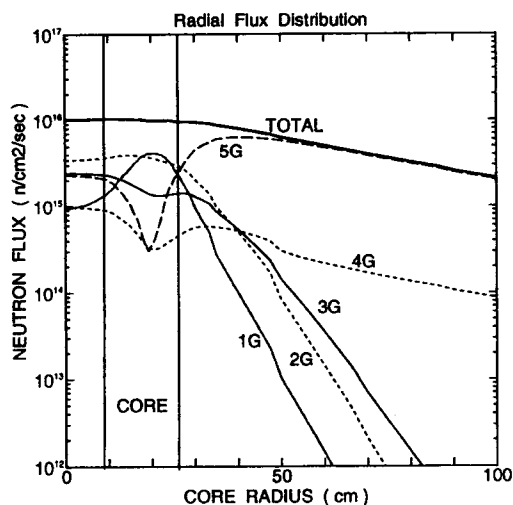


Fig. 5. ANS 内の径方向中性子束分布

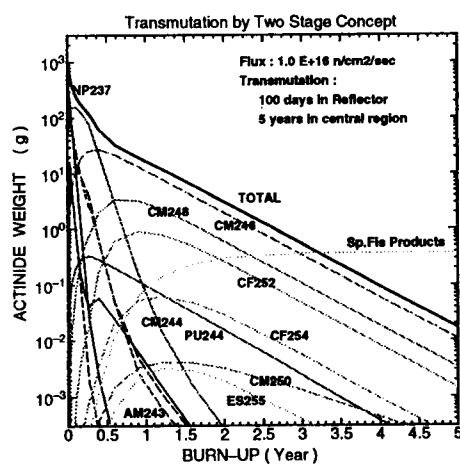


Fig. 6. 2段階消滅法によるアクチニド重量の変化

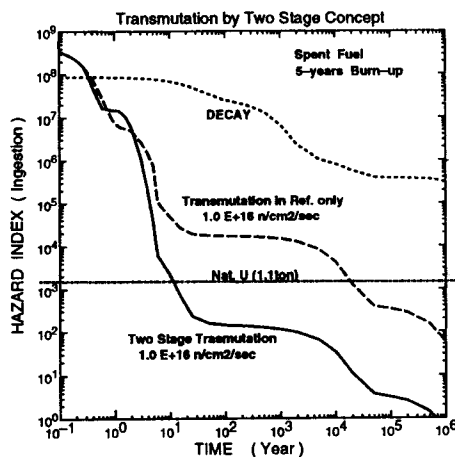


Fig. 7. 2段階消滅法によるアクチニド毒性の変化

この方法による燃焼を、Fig.6 および Fig.7 に示す。この計算結果は、 1×10^{16} n/cm²/sec の一定中性子束で、反射体内で 100 日間、その後、中心領域において 5 年間燃焼を行った場合の結果である。図に示す通り、5 年間の燃焼でアクチニド重量は、 10^4 にまで減少する。また、毒性は 5 年の燃焼終了後、5 年で等価ウランの毒性を下回り、30 年後には、等価ウランの毒性の 1/10 以下となる。5 年間という現実的な燃焼期間で毒性低下は DECAY に比べて 10^6 と極めて大きく、等価ウラン以下となる。この方法によれば、アクチニドの処分時に必要となる時間は不要となる。この方法は、消滅処理の本来の目的を達成できる方法である。

4. A-Burner

A-Burner は、この 2 段階消滅法を実現するための炉であり、ANS を基本として設計した。A-Burner の燃料板、ギャップ幅やウラン量および運転条件などは、ANS と同じである。ただし、ANS では、上下 2 分割炉心であるが、A-Burner では、熱外中性子束の高い体積を大きくするために、上中下 3 分割としている。中心領域の体積は約 28 liter である。炉心の周囲は、ANS と同様、高さ 4 m、半径 4 m の重水反射体で覆う。重水反射体体積は、約 50,000 liter である。アクチニド廃棄物は重水に直接溶解させ、最外周部分を除いた反射体領域に装荷する。アクチニド装荷領域の体積は、約 20,000 liter である。以下の計算で示される通り、アクチニド装荷濃度は 1 g/l 程度であるので、約 20 kg のアクチニドが装荷されることとなる。そこで、第 1 段階の燃焼を行う。この液体装荷形式を取れば、この段階での成型加工は不要となる。また、反射体の材料照射損傷の問題もない。

第 1 段階の残留物は再処理にまわし、核分裂生成物とプルトニウムを取り除く。さらに、その段階で、キリウム以上のアクチニドを群分離する（実際には、キュリウム以上の核はできない）。その他のアクチニド廃棄物（アメリカウム以下）は反射体内に再装荷する。取り出されたキュリウムは、成型加工し、肉厚の被覆管内に収納し、A-Burner の中心領域に装荷する。そこで第 2 段階の燃焼を行う。このキュリウム以上の廃棄物の生成量は年間 2-3 kg 程度であるので、この群分離・成型加工は、実験室規模の装置で充分可能であると考えられる。第 2 段階の燃焼は、1 年単位で 5 年間行う。1 年間燃焼した後、ピンを取り出し、核分裂生成物を取り除き、再度装荷する。以上のような消滅処理を想定したときの A-Burner の炉心特性ならびに燃焼特性を以下に示す。

Fig.8 に解析手順の流れ図を示す。断面積データは、JENDL-3 および ENDF/B-VI から取り出し、RESEND-D および CRECTJ コードにより、²³⁵U から ²⁵⁵Fm までの 42 核種について 107 群の断面積ライブラリーを作成した。1 次元のセル計算を SRAC⁹⁾ コードにより行い、炉内各領域の 107 群中性子スペクトルを求め、そのスペクトルを基に、107 群断面積を 5 群断面積に縮約した。また、SRAC コードにより求めた CITATION 用のデータを用いて、CITATION⁹⁾ コードにより、2 次元拡散計算を行い、炉内の各領域における 5 群スペクトルおよび全中性子束を求めた。ORIGEN-2 用の 1 群実効断面積は、5 群断面積および 5 群スペクトルから 1 群化し作成した。ORIGEN-2 計算は、炉内の各領域について、個別に行っている。特に、反射体内については、中性子束の半径方向の変

化が大きいこと、さらに、炉心近傍では、中性子スペクトル変化による実効断面積の変化が大きいことを考慮して、Table 1 に示す通り、8 分割している。

アクチニドを反射体内に装荷したときの炉心実効増倍率を様々な濃度について解析した。その結果、1 g/l の濃度の時に 1 サイクル 14 日間の運転が可能であることがわかった。この濃度で装荷すると、アクチニド廃棄物のインベントリは約 20 kg である。この時の、A-Burner 内の中性子束分布を Fig.9 に示す。この図に示すように、反射体内の炉心近傍および炉心中心領域で、全中性子束は 1.0×10^{16} n/cm²/sec の値を示している。この中性子束分布の下での燃焼特性を先の手法により解析した。

反射体内の各領域での ORIGEN-2 計算をまとめると、以下の通りとなる。1 サイクル 14 日運転した後、アクチニド全重量は、650 g 減少する。これは、1 年間に換算すると、約 14 kg に相当する。また、その間、生成するプルトニウムは、1 サイクル当たり 550 g、年間 12 kg である。キュリウムは、年間 2.2 kg が生成する。このキュリウムの主成分は、燃焼期間が短いため、²⁴⁶Cm には至らず、²⁴⁴Cm である。この第 1 段階の燃焼で、A-Burner の系から年間消える量は、消滅分とプルトニウムを合わせて、年間当たり 26 kg となる。これは、典型的な PWR 1 基が 1 年間に排出するアクチニド廃棄物の量に相当する。

第 2 段階では、第 1 段階でのキュリウムを肉厚 2 mm のピンに詰め、そのピンを 6 角形状に配置し装荷することを仮定し、炉心特性・燃焼特性を計算した。ピンピッチを 10 - 12 mm に取ると、減速材比は、約 0.5 となる。この時、ピン内に装荷する濃度を 1 g/cc とした場合、アクチニド装荷可能重量は、3 kg 程度となり、上記の重量に充分対応できる。ここで想定した濃度は、通常軽水炉の燃料の約 10 g/cc と比べて非

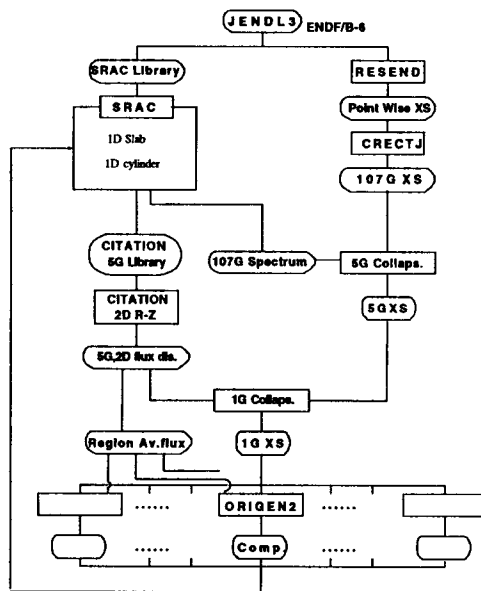


Fig.8. A-Burner の炉心特性・燃焼特性の解析フロー

Table 1 A-Burner の炉心特性・燃焼特性
解析のための反射体内の分割：
体積、平均中性子束および
²³⁷Np の捕獲反応実効断面積

領域	体積	平均 中性子束	実効 断面積
1	38.4	0.902	68.4
2	122.	0.724	96.9
3	254.	0.635	116.
4	672.	0.382	123.
5	1838.	0.206	124.
6	4320.	0.084	125.
7	7700.	0.034	125.
8	5592.	0.014	125.

*1 体積 : liter

*2 中性子束 : $\times 10^{16}$ n/cm²/sec

*3 断面積 : barn

常に薄い値となっている。このような体系で 2.4 kg の ^{244}Cm を炉中心領域に装荷した時、それらの実効増倍率への影響は、負となる。しかし、 ^{244}Cm は 1 個の中性子を吸収すると、高核分裂性核種である ^{245}Cm になるため、両者が平衡状態になったときには、正の反応度となる。A-Burner の中心領域の中性子束で平衡状態になるのは約 10 日後であり、全体としてキュリウムの装荷の効果は、反応度に対しては正となり、炉の運転サイクルに影響はしない。一方、このキュリウム中性子束に対する効果も、大きくない。これは、 ^{244}Cm が小さい断面積（約 17 barn）であること、および ^{245}Cm の核分裂反応による寄与が正に働らくことによる。キュリウムを装荷したときの中心領域の平均中性子束は、 $0.83 \times 10^{16} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ であり、無装荷時と比べて約 10 % 減程度である。このように中心領域では ^{244}Cm による大きな影響は見られない。

Fig.10 に、ここでの ^{244}Cm の燃焼特性を示す。この図は、キュリウムを初期 1000 g とした時の図である。燃焼の始めは、 ^{244}Cm が燃焼するためその速度は速いが、 ^{246}Cm が蓄積するとその速度は低下する。アクチニド重量は、5 年間の燃焼で、初期の 2×10^4 まで減少する。

A-Burner では、消滅に利用する中性子を核分裂反応により生成している。アクチニドの消滅特性を考える場合、炉内でのアクチニド廃棄物の生成を考慮しておく必要がある。炉内には、初期 ^{235}U および ^{238}U がそれぞれ 15 kg および 1.1 kg 装荷されている。この炉心内での 1 サイクル運転後に生成されるアクチニド量を、ORIGEN-2 で計算した。この時、使用した核データは、先の手法により炉心用に作成したものをを用いている。A-Burner の炉心内は極めて硬いスペクトルであるため、各核種の実効捕獲反応断面積は小さくなる。このため、生成されるアクチニド廃棄物の量は大きくない。1 サイクル運転後の生成量は、ネプチウムおよびプルトニウムともに 0.1 kg であり、年間生成量は約 2.1 kg である。アメリカシウムは生成しない。このネプチウム

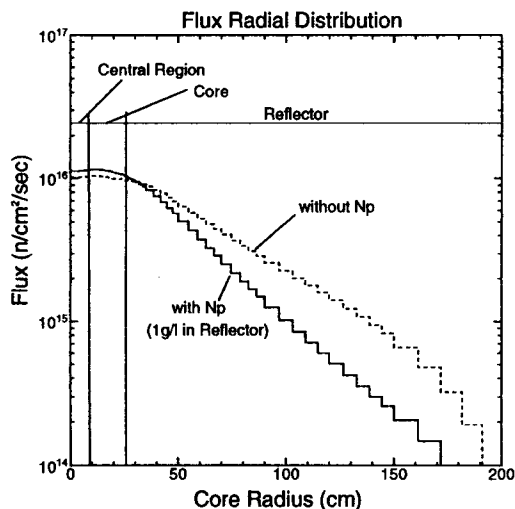


Fig.9. A-Burner 反射体内に ^{237}Np を装荷したときの中性子束分布

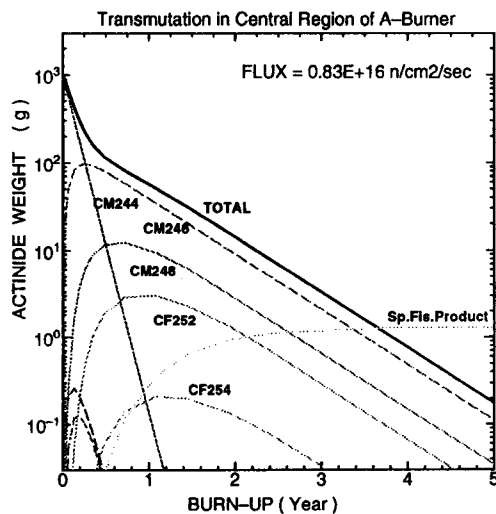


Fig.10. A-Burner 中心領域での燃焼（重量変化）

の生成量は、A-Burner に装荷されるアクチニド廃棄物量に比べて小さい。これらネプチニウムは、LWR からの廃棄物と混合して、消滅処理の対象とする。

A-Burner における 2 段階消滅法の燃焼特性を総合してアクチニド量の変化をまとめたものを、Fig.11 に示す。基本的に A-Burner 1 基で、1175 MWe 級 PWR 1 基の廃棄物を消滅することができる。PWR 1 基を 1 年間運転すると、ネプチニウムが 13.2 kg、アメリカシウムが 12.8 kg、キュリウムが 0.6 kg 生成される。一方、A-Burner 炉心内から、年間 2.1 kg のネプチニウムが生成される。これらを合わせると、28.7 kg となる。これらを順次アクチニド反射体内に溶解させていき、燃焼する。A-Burner 1 基を運転するには、年間 320 kg の ^{235}U が必要となるが、運転後にその 55 % が燃え残るので、それらを PWR 運転にまわすことを考えると、PWR - A-Burner の組み合わせを 1 年間運転するのに、約 145 kg の ^{235}U が余分に必要となる。この量は、PWR 1 年間運転するのに必要なウラン量の約 15 % に相当する。

A-Burner 反射体内での燃焼を 1 年間行くと、プルトニウムが 12 kg および キリウムが 2.2 kg 生成する。残りのアクチニドは核分裂により消滅している。A-Burner の中心領域で、このキリウムを 1 年間燃焼させると、その量は、約 0.2 kg となり、5 年間燃焼を繰り返すと、最終的な残留物は、0.5 g となる。この量は、初期装荷量の約 10^5 である。これらによる毒性は、燃焼の数年後で等価ウランより低くなる。A-Burner と 2 段階消滅法は、アクチニドをほぼ完全に燃すことができ、長寿命アクチニドの処分時に必要となる時間を不要なものとすることができる。

5 おわりに

ここでは、アクチニドの「消滅処理」に関して、新たな方法を提案した。この方法はネプチニウムやアメリカシウム等の低次アクチニドを軟らかい熱中性子場で燃焼し、それにより蓄積

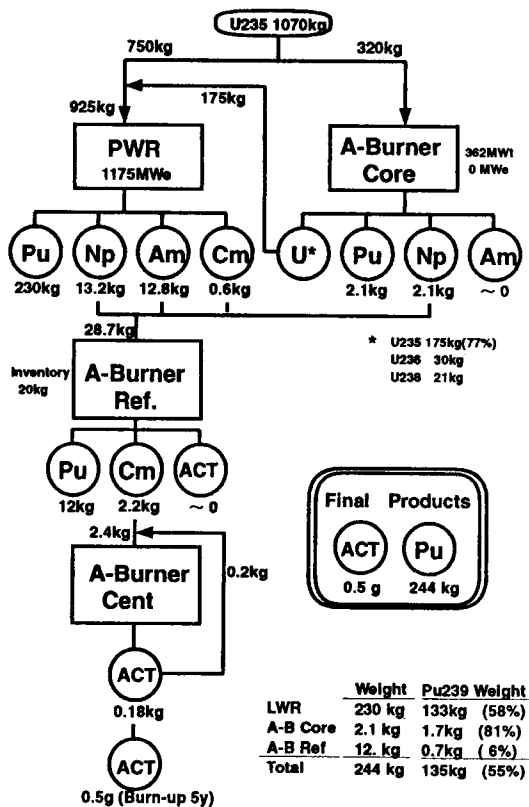


Fig.11. A-Burner による消滅処理

する高次アクチニド（キュリウム）を、1 - 100 eV に大きな成分を持つ少し硬いスペクトル場で燃焼させる方法である。これによると、中性子束が 1×10^{16} n/cm²/sec の時、PWR からのアクチニド廃棄物を 5 年間の燃焼により、初期量の 10^{-5} まで減少させることができる。燃焼後の毒性は、燃焼後数年で初期の毒性の 10^{-6} にまで減少し、アクチニドを生み出す元となったウランの毒性よりも低くなる。この方法を実現させるための炉として、現在開発が進められている ANS を基本とした A-Burner の概念設計、炉心特性および燃焼特性の評価を行った。この A-Burner を用いた 2 段階消滅法では、PWR 1 基分のアクチニド廃棄物ををほぼ完全に燃し尽くすことができる。この方法は、長寿命アクチニドの処分時に必要となる時間を不要なものとすることができる方法であり、長寿命アクチニドの消滅処理の「目的」を完全に達成した方法である。

参考文献：

1. J. M. Ryskamp et al., "Reactor Design of Advanced Neutron Source", Nuclear Technology, 3 (1991) 330-349
2. A. G. Croff, "ORIGEN-2 - A Revised and Updated Version of the Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code", ORNL-5621, ORNL (1980)
3. K. Shibata et al., "Japanese Evaluated Nuclear Data Library, Version-3", JAERI-1319 (1990)
4. P. Rose and C. Dunford, "Data Formats and Procedures for the Evaluated Nuclear Data file ENDF/B-VI", ENDF-102, BNL (1991)
5. K. Tsuchihashi et al., "Revised SRAC Code System", JAERI-1302 (1986)
6. T. B. Fowler, "Nuclear Reactor Core Analysis Code: CITATION", ORNL-TM-2496, Rev.2 (1971)