

## 8-2 分離・変換技術

### 1. はじめに

分離・変換技術は、使用済み燃料中に含まれる様々な放射性核種を、その処理方法や用途に応じて複数の群に分別する「分離技術」と、それらの中で半減期が長く、放射性毒性の強い核種を短寿命核種（または安定核種）に核変換する「核変換技術」を組み合わせ、放射性廃棄物の処分に係る環境負荷の低減や、処分の効率化を目指す技術体系である。長寿命放射性核種の核変換は、第1図に示すように、発電用原子炉サイクルを用いて核変換を行う方法と、加速器駆動システム（ADS: Accelerator-driven System）のような核変換に最適化された専用システムを用いる階層型サイクルに基づく方法の2種類に大別され<sup>1)</sup>、それぞれに適する分離技術及び核変換技術の研究開発が、並行して進められている。以下に、これらの原理と方法の概要を述べる。

### 2. 分離・変換技術の原理

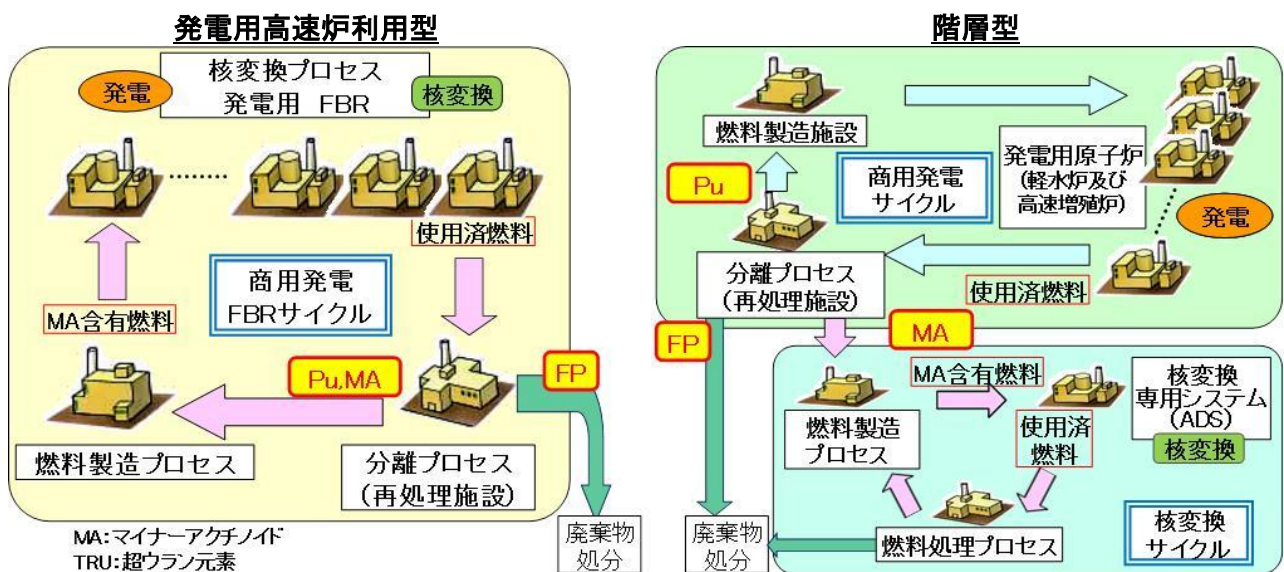
使用済み燃料の中には、長期にわたり人体に対する放射性毒性を有する核種や、地層処分への工学的な制約を支配する発熱性核種が含まれる。これらの核種を使用済み燃料の中から、処理方法や用途に応じて選択的に取り出す技術を「分離技術」と呼ぶ。分離した核種のうち、長半減期で、かつ核分裂反応を生じうる核種を、主として核分裂反応により安定核種や短寿命核種に変換する技術を「核変換技術」と呼ぶ。核変換の対象は、主としてマイナーアクチノイド（MA）と呼ばれるネプツニウム、アメリシウム、及びキュリウムである。

核変換に核分裂反応を用いる利点として、核分裂生成物が多くの場合短寿命であり、中性子一個による一回の反応で効率よく対象核種の短寿命化が行えること、反応に伴う核分裂中性子の連鎖反応により継続的に核変換が可能であること、核変換に必要なエネルギーを核分裂反応から回収できる可能性があることが挙げられる。一方、中性子捕獲反応に起因する核変換では、質量数の近い長寿命核種への移行に止まることが多く、短寿命核種への変換のためにさらに多くの中性子が必要となり、核変換の効率が低下する。核分裂反応が生じない比較的質量数の小さい核種を核変換するには、中性子捕獲反応による核変換が必要であるが、エネルギー収支をプラスとすることは困難である。

核分裂中性子を用いる方法以外に、高エネルギー粒子を重核種に照射した際に生じる核破砕反応や、核融合反応から得られる中性子でも核変換は可能であり、これらに基づくシステム概念が提案されているが、エネルギー収支や工学的成立性の課題が多く、現在は核分裂反応による核変換技術が主流である。前述のとおり、核変換効率は中性子捕獲反応よりも核分裂反応が優れるため、核分裂反応が優勢となる高速エネルギー領域の中性子が多い高速中性子体系が多く採用されている。

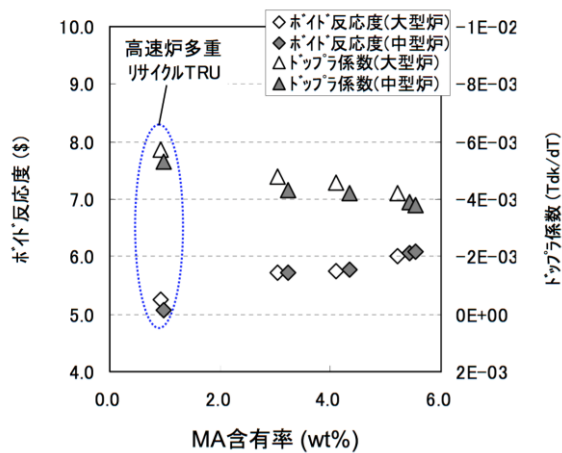
### 3. 発電用高速炉を用いる分離変換

この方法では、MAの核変換に最適な高速中性子による核分裂反応を、発電用高速炉を用いて行う。日本原子力研究開発機構（JAEA）では、「FBRサイクル実用化研究開



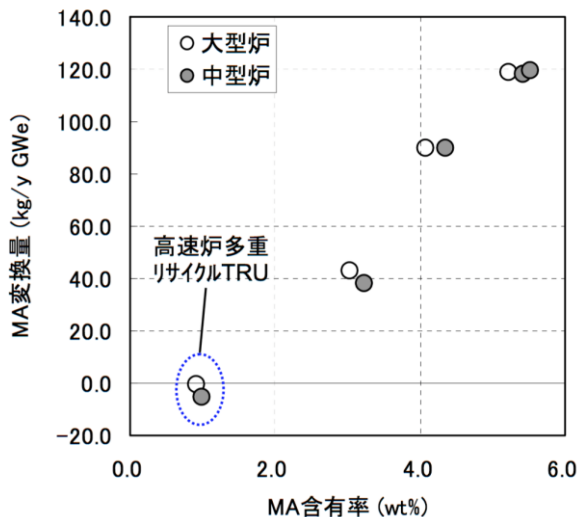
第1図 分離・変換サイクルの概念（発電用高速炉利用型及び階層型）

発計画 (FaCT計画)」の一環として、高速炉用燃料全てに少量のMAを添加した「均質リサイクル方式」による核変換を検討している。MAを添加することにより、第2図のように冷却材ボイド反応度やドップラ係数といった炉心の動特性パラメータが変化する<sup>3)</sup>ため、燃料中へのMAの添加量に一定の制限があるものの、全ての発電用高速炉を利用でき、新たな開発要素が少ないことが特長である。



第2図 MA含有率とボイド反応度・ドップラ係数の関係

均質リサイクル方式でのMAの分離には、FaCTで検討されている先進湿式再処理法のうち、抽出クロマトグラフ法が採用される<sup>6)</sup>。抽出クロマトグラフ法では、抽出材を吸着材に固定して充填した分離塔にMAを含む溶液を通過することで、抽出・逆抽出反応により対象元素を分離する。この場合、ウラン、プルトニウム、ネプツニウムを抽出後の抽出残液から、アメリカウム、キュリウムが抽出される。FaCTでは、アクチノイドと化学的挙動が近いランタノイド (Ln) を含むMAの分離工程及び分離後のMA/Ln相互分離工程の吸着材としてそれぞれTODGA及び iso-Hex BTPを採用しており、高レベル実廃液を用いた実証試験により、実用性が確認されている<sup>7)</sup>。



第3図 MA含有率とMA変換量の関係

典型的なナトリウム冷却高速炉でのMA核変換特性を、第3図<sup>3)</sup>に示す。燃料へのMA含有率を3%とした場合、年間約40kg/GWeのMAが核変換できる。この核変換量は、装荷されたMAの約30%に相当する。高速炉へのMA装荷量を燃焼ステップごとに適切に調整することにより、高速炉から排出されるMA量を増やすことなく原子力発電を持続的に利用することが可能である。

高速炉への燃料の装荷方法には、上述の均質装荷方式とともに、MAを集約して装荷したターゲット燃料とMAを含まないMOX燃料を併用する非均質装荷方式<sup>4)</sup>も検討されている。非均質装荷方式では、MAを装荷する燃料を少数に限定することで、MA燃料施設を小規模化するとともに、通常的高速炉燃料とMA燃料の製造工程を独立することで、必要に応じてMA燃料の製造量・装荷量を調整して、燃料サイクルに柔軟性を持たせる事ができる。一方、MA均質装荷方式と同等の核変換性能を確保するためには、燃料へのMA含有率を10~20%と高める必要があるため、燃料製造に関する技術課題が増える。特に、多量にMAを含む新燃料はMA核種の崩壊に伴う発熱・放射線量が高く、その取扱いに注意が必要であり、遮へいや遠隔操作のための設備の増強も必要になる。また、ターゲット燃料の装荷方式により、炉心内の中性子束分布や出力分布に歪みが生じるため、炉心設計上の課題が増える。

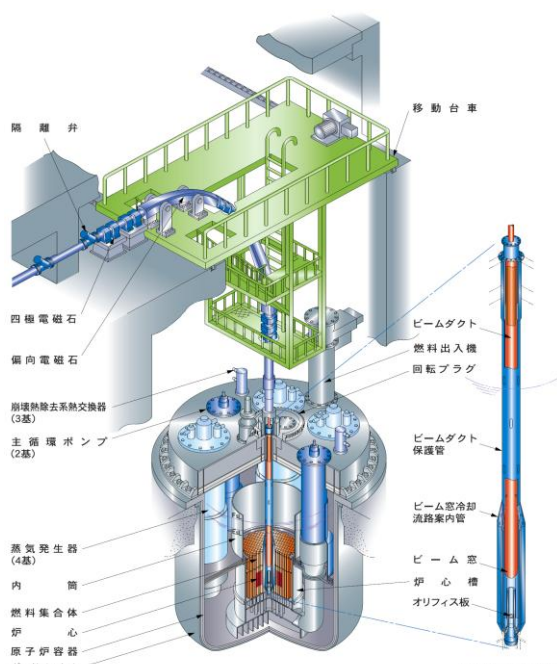
#### 4. 階層型核変換

階層型サイクルでは、再処理工程に続いてMAを分離し、MA核変換専用の燃料サイクルで核変換を行う。このため、発電用燃料サイクルに依存せず、廃棄物の核変換を行うことができることが特長である。つまり、高速炉の導入時期や、エネルギーミックスでの原子力のシェアなどの技術的問題、政策的問題に依らずに廃棄物処理を進めることができることになる。

この階層型サイクルでは、分離変換の対象となる元素を複数の群に分けて分離する。MAの分離については、高レベル廃液からのLnを含むMAの分離工程と、LnとMAの分離工程を段階的に実施することにより、核変換に適する高純度のMAを抽出する。日本原子力研究所 (現JAEA) では、DIDPAによるMAとLnの一括回収を目指し、実廃液試験で良好な分離性能を得たが、二次廃棄物の物量等に課題があることがわかった。このため、DIDPAに代わる新たなDGA抽出剤 (TODGA, TDdDGA) の開発が進められている。現在、模擬廃液による良好な試験結果を踏まえ、実廃液試験に向けた検討が進められている<sup>5)</sup>。

MA・Lnの一括回収後の分離工程に続くMA/Ln相互分離工程では、分離係数は低い抽出速度に優れるHONTA抽出剤が見いだされ、HONTA抽出剤を用いたMA/Ln相互分離プロセスの構築が進められている。今後、実廃液試験を実施するとともに、工学規模での実証に必要な研究開発が計画されている<sup>2)</sup>。

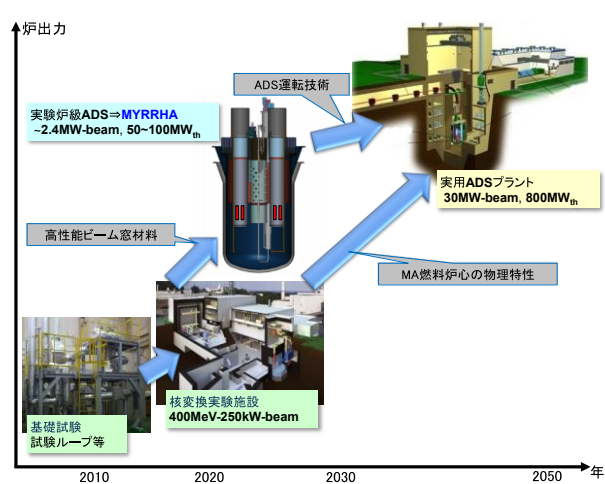
MAを多量に装荷した炉心では、冷却材ボイド反応度、ドップラ係数、実効遅発中性子割合などの動特性パラメータが変化し、炉心の安全余裕が低下する傾向が見られる。高速炉では炉心に装荷されるMAの総量を抑制することで安全性への影響を限定している。一方、炉心を未臨界状態として安全余裕を確保し、外部から連続的に中性子を供給することにより炉心内での核分裂連鎖反応を持続する、加速器駆動システム（ADS: Accelerator-driven System）を用いた核変換システム概念が提案されている。ADSでは、MAを主成分とする燃料が装荷できるため、高いMA核変換効率を得ることができる。ADSは大強度の陽子加速器とMA燃料を装荷した未臨界高速炉心から構成され、未臨界炉心の中央に重金属製の核破砕ターゲットが配置される。加速器からの陽子をターゲットに入射することで、1陽子あたり30個程度の中中性子が核破砕反応により放出されて中性子源を形成する。この核破砕中性子源から中性子を連続的に供給することにより、未臨界炉心内で核分裂連鎖反応が生じて、MAの核変換が行われる。第4図に、JAEAが提案する鉛ビスマス合金（LBE: Lead-Bismuth Eutectic Alloy）を冷却材及び核破砕ターゲットに用いるADS炉心概念を示す<sup>8)</sup>。このシステムでは、陽子加速器から1.5GeV-30MWの陽子ビームを供給することにより、未臨界炉心から800MWの熱出力が得られ、年間に250kgのMAを核変換することができる。典型的な発電用軽水炉からは、1年間に25kg程度のMAが生成するため、1基のADSで発電用軽水炉10基分のMAを核変換することができる。



第4図 JAEAが提案するMA核変換用ADS概念

JAEAでは、ADSによる核変換の早期実現を目指し、第5

図に示すロードマップに基づく研究開発<sup>8)</sup>を進めている。現在は基礎研究段階として、LBEの利用に関わる基礎研究や共存性の高い構造材料に関する研究、炉心解析コードの開発、MA装荷未臨界炉の炉心特性の研究、大強度陽子加速器の運転安定性向上に関する研究等を実施している。また、研究レベルを基礎研究段階から工学研究段階に進めるために必要な核変換実験施設（TEF: Transmutation Experimental Facility）の建設のための要素技術開発を進めている。TEFはJAEA原子力科学研究所の大強度陽子加速器施設J-PARC（Japan Proton Accelerator Research Complex）に接続し、大強度陽子ビームを用いる工学技術試験の実施を目指している。これらの研究開発について以下に概説する。



第5図 ADSの実現に向けたロードマップ

### 5. 大強度陽子ビームを用いる工学技術試験の概要

#### 5.1 大強度陽子加速器の開発<sup>9)</sup>

熱出力800MWのADSを駆動するためには、10MW級の出力を持つ陽子加速器が必要となる。また、工学レベルの信頼性ととも、燃料の燃焼に伴って加速器の出力を調整可能な機能も求められる。加速器の信頼性の向上を図るため、JAEAではJ-PARCの運転データをもとに信頼性向上効果を定量化する研究を進めている。あわせて、より加速効率の高い加速器を開発するため、超伝導加速空洞の開発も進めている。

#### 5.2 LBE核破砕ターゲットに関する研究開発

ADS特有の構成要素である核破砕ターゲットは、加速器からの陽子ビーム輸送管終端部に設置され、その境界は陽子ビーム窓により形成する。陽子ビーム窓は、陽子ビームの通過による照射損傷と発熱を受けると同時に、ターゲットから放出される中性子の照射を受ける。また、LBEの流動による腐食が懸念される上、400℃～500℃といった高温での構造強度が要求されるなど、厳しい環境での利用が想定される。これらの特性を的確に把握し、陽

子ビーム窓の合理的な設計と寿命評価を行うことがADSの運転の安定性を確保する上で重要である。材料照射に関する試験では、スイス・ポールシェラー研究所のSINQ施設において、2006年に590MeV・0.8MWの陽子ビームを4箇月間照射したMEGAPIE国際共同実験<sup>10)</sup>を通じて、流動LBE環境下での材料データが取得されている。

核破砕ターゲットとしてLBEなどの液体金属を用いる場合、高温運転への対応、耐腐食性確保のための液体金属の純度管理、核破砕反応に伴う生成物の液体金属中での挙動など、液体金属の取扱技術の確立が必要となる。高速炉の構造材として汎用性が高いステンレス鋼や高クロム鋼とLBEとの共存性を確保するには、LBE中の酸素濃度を $10^{-5} \sim 10^{-7}$ wt%の濃度に調整し、鋼材表面に酸化皮膜を形成する必要がある。この技術については、ロシアや欧州の成果がハンドブック<sup>11)</sup>などに取りまとめられている。JAEAでは、高出力で長寿命だが外気導入部が必要なプラチナ塗布・大気参照型のLBE中酸素濃度センサについて、センサ破損時に放射化したLBEが外部に漏洩しない独自の構造を有する新しいセンサを開発し、流動LBE中の酸素濃度制御技術の開発を進めている。

### 5.3 未臨界炉心の炉心特性予測技術

ADSでは、炉心を未臨界状態に維持する必要があるため、炉心の未臨界度をあらかじめ精度良く予測しておくことが重要となる。また、炉心領域内の中性子束分布や発熱密度分布を正確に予測して機器や燃料を設計する必要がある。このため、未臨界炉心を構成する核種の断面積データとともに、炉心特性を予測する解析システムの解析精度の検証と向上が重要である。JAEAでは、核破砕挙動解析を行うカスケード解析コードと高速炉心体系の核特性・燃焼特性を解析する炉心解析コードを結合したコードシステムの開発<sup>12)</sup>を進めてきた。これらのコードをモジュール化し、炉心特性の3次元解析が可能なADS3Dコード<sup>13)</sup>を開発した。ADS3Dでは、可燃性毒物などの炉内挿入物を模擬した3次元の非均質な計算体系について、陽子・中性子の輸送から燃料交換を含む炉心燃焼計算を取り扱うことが出来る。

### 5.4 J-PARC核変換実験施設

ADS実用化に必要な要素技術課題を実験的に解決していくためには、第5図のように段階的に研究開発を進めていく必要がある。基礎実験の次の工学試験のステップとして、JAEAでは第6図に示すTEFの建設を計画している<sup>8)</sup>。TEF施設は、J-PARC施設の一環として、既設LINACの下流に設置する予定である。TEFは、核破砕ターゲットに関する工学的技術課題の解決に取り組むADSターゲット試験施設 (TEF-T: ADS Target Test Facility) 及びMAを装荷した未臨界炉心特性とその予測精度を検証していく核変換物理実験施設 (TEF-P: Transmutation Physics

Experimental Facility) の2施設から構成され、LINACからの400MeVの陽子ビームを導入することが計画されている。



第6図 J-PARC核変換実験施設

### 参考文献

- 1) 文部科学省 科学技術・学術審議会研究計画・評価分科会 原子力科学技術委員会 群分離・核変換技術評価作業部会, 第1回, 資料2-2 (2013).
- 2) 同上, 第2回, 資料2-2 (2013).
- 3) 原子力委員会 研究開発専門部会 分離変換技術検討会 資料第4-1-2号(2008).
- 4) 同上, 資料第5-1-5号(2008).
- 5) 同上, 資料第3-2-2号(2008).
- 6) H. Funasaka, et al., Proc. Global2007 (CD-ROM, 2007).
- 7) S. Watanabe, et al., Proc. Global2011 (CD-ROM, 2011).
- 8) T. Sasa, AAPP Bulletin, 24(5), 13-17 (2014).
- 9) “平成25年度文部科学省国家課題対応型研究開発推進事業原子力システム研究開発事業 加速器駆動未臨界システムによる核変換サイクルの工学的課題解決に向けた研究開発 成果報告書”, (2014).
- 10) W. Wagner, Proc. of Int. Topical Meeting on Nuclear Research Applications and Utilization of Accelerators (2009).
- 11) OECD/NEA, “Handbook on Lead-bismuth Eutectic Alloy and Lead Properties, Materials Compatibility, Thermal-hydraulics and Technologies 2015 Edition”, (2015).
- 12) T. Sasa et al., JAERI-Data/Code 99-007 (1999).
- 13) 菅原隆徳ら, JAEA-Data/Code 2014-024 (2015).

日本原子力研究開発機構 佐々敏信  
(2016年3月8日)