

放射性廃棄物減容化・ 有害度低減の技術開発 — 核種分離・転換

一般社団法人 日本原子力産業協会
原子力システム研究懇話会

放射性廃棄物減容化・ 有害度低減の技術開発 — 核種分離・転換

原子力システム研究懇話会

刊行のことば

原子力システム研究懇話会(Nuclear Systems Association, NSA)は、1990 年に(社)日本原子力産業会議(当時)中に設立され、現在は(一社)日本原子力産業協会(2006 年4月より)のもとに活動している。その活動の一つとして、1993 年より毎年「NSA コメンタリー」を刊行している。

本年度は、コメンタリー No.22 「放射性廃棄物減容化・有害度低減の技術開発 — 核種分離・転換」と題し取りまとめた。高速中性子炉「もんじゅ」で今後実施しようとしているマイナーアクチノイド(MA)照射計画の進展や加速器あるいは溶融塩炉による核変換、また関連する核種分離技術などの進展のほか、国内外の最新の状況を紹介したものである。

放射性廃棄物減容化あるいは有害度低減は残された大きな課題であり、MA や核分裂生成物(FP)をいかに減容できるかが“核燃料サイクル”を円滑に推進していくためのカギともいえる。本書が一般の方々を含め、理解の一助となることを願ってやみません。

企画にあたり、中心的役割を果たされた山脇道夫運営委員会委員長代理、柳澤務委員に謝意を表し、各章の執筆を載いた著者の各位に深甚なる謝意を表したい。

なお、3 年前には「核燃料サイクルと高速炉開発」(NSA コメンタリー No.20)を取りまとめている。あわせて読んでいただければ幸いである。

平成 28 年 3 月

原子力システム研究懇話会
運営委員長 田畑 米穂

まえがき

福島事故からの復興や廃炉を進めると共に今後の我が国のエネルギー政策を方向付けるためのエネルギー基本計画が2014年4月に閣議決定され、また2015年7月には、長期エネルギー需給見通しにおいて、エネルギー政策の基本的視点である、S+3E（安全性、安定供給、経済効率性、環境適合）を考慮し、2030年度の原子力の占める割合を20—22%と決定された。エネルギー基本計画では、原子力が重要なベースロード電源として位置付けられる一方、核燃料サイクル政策については、推進すると共に中長期的な原子力の対応の柔軟性を持たせると謳っている。使用済燃料は高レベル放射性廃棄物の後始末が本質的な課題となる。高レベル放射性廃棄物については、国が前面に立って最終処分に向けた取組を進めることを強調すると共に将来の幅広い選択肢を確保するため放射性廃棄物の減容化・有害度低減などの技術開発を進めるとしている。

現在世界で運転中の原子力発電所は、ほとんどが軽水炉発電であり、その使用済燃料には核分裂によって生成された核分裂生成物が含有されているが、それ以外の約95%の原子は再利用可能である。原子力を持続可能なエネルギー源とするには、リサイクル型のシステムとして資源の有効利用を図ると共にシステム外に排出される放射性廃棄物の環境への負荷を低減することが望ましい。それをめざして核燃料サイクルの技術開発が進められており、この考えに沿って挑戦的な課題として放射性廃棄物の減容化・有害度低減技術の開発が挙げられている。

放射性廃棄物減容化・有害度低減に向けた技術開発は、主に超長寿命の核分裂生成物とマイナーアクチニド（MA）の発生量や半減期の低減を目指すが、関連して核分裂生成物中の有用金属や放射線源の分離・利用や高次化プルトニウム、余剰プルトニウムの燃焼という事項も共通の研究基盤に含まれる。また原子力の恩恵に預かった人類は、放射性物質に対する安全確保を図ると共に放射性廃棄物中の核物質に対する保障措置という極めて人間臭い仕事を創造しその確立を図らなければならないが、その解決のために放射性廃棄物減容化・有害度低減技術が大きく貢献してくれるものと期待できる。

高レベル放射性廃棄物処分を考えるにあたり2つの基本的課題を考えておきたい。1つ目は、原子力技術はミクロの技術として核種毎に注目した核反応までを扱う科学をベースにしているところから、その後始末としての放射性廃棄物管理においても同様のミクロな科学基盤に立って構築された方策を追求することが期待されることである。即ち核種毎にふさわしい処理処分の方法に関する知見を蓄積することが究極的な目標であろう。実際には、類似の化学的特性を有する元素群をまとめて分離する、すなわち群分離も考えられている。

2つ目は、高レベル放射性廃棄物を地球環境に委ねることは、既存の知的体系では構築できない社会システムとなることである。それは何万年という超長期の時間スケールを俯瞰することや、その間における人類の社会活動並びに地球の営みの予測に関して、人類にとって

未知の領域に踏み込むことを余儀なくされることである。そのような窮境にあって、人類にとって福音ともいえる事実として、アフリカのガボンで 20 億年前に約 80 万年間、オクロの天然原子炉が稼働し、その使用済燃料は高レベル放射性廃棄物として地層処分されたと同様の状態で今日に至っている実例は特記するべきであろう。一方、本コメンタリーの主題である放射性廃棄物の減容・有害度低減技術は、放射性廃棄物の有害な期間を、数百年間に短縮することを目指すことにより、放射性廃棄物の地層処分を人類にとって受け入れやすいシステムに換えるという心躍る魅力的な開発目標である。

本コメンタリーは5章からなり、各章は次のような内容で構成されている：

第1章は、放射性廃棄物減容化・有害度低減技術に関する概論である。

第2章は、高速炉による放射性廃棄物減容化・有害度低減に関してまとめている。

第3章は、加速器駆動未臨界システム（ADS）による放射性廃棄物減容化・有害度低減に關してまとめている。

第4章は、溶融塩炉による放射性廃棄物減容化・有害度低減に関してまとめている。

第5章は、核種分離技術として重要な化学分離とレーザー分離についてまとめている。

なお、本コメンタリーで使用されるアクチニド、アクチノイドの用語は同じ意味で用いられる*。

* 原子番号 89 から 103 までの 15 元素の総称として IUPAC（国際純正・応用化学連合）ではアクチノイドを正とし、アクチニドを慣用として許容している。我が国ではアクチノイド、アクチニドとも訳語が定まらず、学術用語集間でも混乱があるためアクチノイド、アクチニドをともに同じ意味で用いる。（原子力ハンドブック オーム社 2007 年刊）

◇ 目 次 ◇

◆刊行のことば（田畠米穂）	i
◆まえがき（山脇道夫、柳澤務）	ii
◆編集・執筆者一覧	vii
第1章 核種分離・転換と高レベル放射性廃棄物処分（川崎大介）	1
1. 原子力発電に伴って発生する廃棄物の処分の状況	1
1.1 核燃料サイクルから発生する放射性廃棄物	1
1.2 わが国における使用済燃料及びガラス固化体の発生量	1
1.3 わが国における地層処分事業	2
2. 放射性廃棄物の潜在的有害度	2
2.1 使用済燃料に含まれる核種の潜在的有害度	2
2.2 分離変換技術による潜在的有害度の低減効果	3
3. 放射性廃棄物処分における分離変換技術の位置づけ	4
3.1 「廃棄物処分の負担軽減」効果の論点	4
3.2 高レベル放射性廃棄物の処分と閉鎖後長期の安全性	5
3.3 放射性廃棄物処分の安全性に対する分離変換技術の効果	8
3.4 処分施設の面積低減への効果	9
4. まとめ	10
第2章 高速炉による核変換（竹田敏一、大木繁夫、藤村幸治）	12
1. 背景と位置づけ	12
2. MA核変換量の詳細な定義	12
3. 国内に於ける研究	13
3.1 もんじゅ	13
3.2 実用高速炉におけるMA核変換研究	15
3.3 「もんじゅ」データを活用したMA核変換の研究	22
4. 国外における研究	34
5. 結言	36
第3章 ADSによる核種分離・転換（大井川宏之）	38
1. 背景と位置づけ	38
2. しくみ（原理）	39

2.1 ADS の概念	39
2.2 ADS のエネルギーバランス	41
2.3 階層型分離変換技術のマスフロー	42
3. 課題	43
3.1 ADS 用加速器	43
3.2 ADS 用核破碎ターゲット	44
3.3 未臨界炉心技術	45
3.4 ADS 用燃料サイクル技術	45
4. 国内の取組状況	46
4.1 J-PARC における核変換実験施設	46
4.2 京都大学原子炉実験所での取組	48
5. ベルギーの MYRRHA 計画	48
6. 今後の展開	48

第 4 章 溶融塩炉による核種分離・転換（山脇道夫、木下幹康、三田地紘史

W.F.G.van Rooijen 、島津洋一郎）

1. はじめに	51
2. 背景・位置づけ	51
3. 溶融塩核変換炉の検討	52
3.1 高レベル放射性廃棄物核変換処理の基礎項目	52
3.2 フリナツクを用いる大型溶融塩核変換炉の検討例	54
3.3 小型溶融塩核変換炉の検討例	60
4. 国内の取組状況	64
4.1 液体燃料の開発	64
4.2 溶融塩原子炉プラント	65
5. 海外の状況	65
5.1 第4世代炉会議や OECD/NEA などを巡る情勢	65
5.2 米国 DOE と民間会社グループの共同出資による研究開発	71
5.3 中国と米国による FHR プラント開発	72
5.4 溶融塩炉プラントの概念設計	73
5.5 韓国の状況	74
6. おわりに	74

第5章 核種分離（竹内正行、小藤博英、横山啓一）	78
1. 化学分離	78
1.1 背景	78
1.2 期待される効果	79
1.3 研究開発の状況	80
1.4 海外の状況	86
1.5 今後の展開	92
2. 核変換のための同位体分離	93
2.1 はじめに	93
2.2 放射性廃棄物低減と同位体分離	94
2.3 研究開発中の同位体分離技術	97
2.4 おわりに	103

◇ 編集・執筆者一覧 ◇

(執筆順、敬称略、所属は執筆時)

編 集

山脇 道夫 (原子力システム研究懇話会)

柳澤 務 (原子力システム研究懇話会)

執 筆

川崎 大介 (福井大学大学院工学研究科原子力・エネルギー安全工学専攻)

竹田 敏一 (福井大学附属国際原子力工学研究所)

大木 繁夫 (日本原子力研究開発機構次世代高速炉サイクル研究開発センター)

藤村 幸治 (福井大学附属国際原子力工学研究所)

大井川 宏之 (日本原子力研究開発機構事業計画統括部)

山脇 道夫 (原子力システム研究懇話会)

木下 幹康 (トリウム溶融塩国際フォーラム、東京大学)

三田地 紘史 (元豊橋技術科学大学)

W.F.G.van Rooijen (福井大学附属国際原子力工学研究所)

島津 洋一郎 (福井大学附属国際原子力工学研究所)

竹内 正行 (日本原子力研究開発機構次世代高速炉サイクル研究開発センター)

小藤 博英 (日本原子力研究開発機構次世代高速炉サイクル研究開発センター)

横山 啓一 (日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究センター)

第1章 核種分離・転換と高レベル放射性廃棄物処分

1. 原子力発電に伴って発生する廃棄物の処分の状況

1.1 核燃料サイクルから発生する放射性廃棄物

わが国では、エネルギーを長期的かつ安定に確保し、放射性廃棄物を適切に処理・処分する観点から、原子力発電で使い終えた燃料（使用済燃料）を再処理し、回収したウランやプルトニウムを再び燃料に加工して利用する「核燃料サイクル」が原子力政策における基本方針とされてきた。核燃料サイクルにおいては、原子力発電所の貯蔵プールなどで使用済燃料が貯蔵・冷却された後、再処理施設にて使用済燃料からウランやプルトニウムが抽出される。残った高レベル放射性廃液には、マイナーアクチノイド（MA：Minor Actinoid）^(脚注1) や核分裂生成物（FP：Fission Product）等が含まれる。この高レベル放射性廃液をガラス原料と混ぜて固めたガラス固化体（高レベル放射性廃棄物）を、人間の生活環境から十分離れた安定な地層中（地下300mより深い地層）に、適切な人工バリアを構築することにより処分（地層処）する予定である⁽¹⁾。

核燃料サイクルからは、この他に低レベル放射性廃棄物も発生する。低レベル放射性廃棄物には、原子力発電所の運転や定期検査等に伴って発生する発電所廃棄物、再処理施設やMOX（ウラン-プルトニウム混合酸化物）燃料加工施設の操業に伴って発生するTRU廃棄物、ウランの濃縮・転換・成型加工などに伴って発生するウラン廃棄物等が含まれる。このうちTRU廃棄物の一部については、長期間にわたり環境に影響を及ぼすおそれがある半減期の長い核種を一定量以上含むことから、最終処分法^(脚注2)において地層処分の対象とされている。TRU廃棄物には、比較的発熱量の大きいハル^(脚注3) やエンドピース^(脚注4) の圧縮体や、I-129の濃度が比較的高い廃銀吸着材、硝酸塩を含む濃縮廃液などを固化したもの、不燃性廃棄物などがある⁽²⁾。

1.2 わが国における使用済燃料及びガラス固化体の発生量

2013年3月の時点で、日本国内には約17,000トンの使用済核燃料が存在している⁽³⁾。このうち、約14,000トンは使用済燃料プール等の発電所内貯蔵施設（管理容量約20,000トン）に、約2,900トンは六ヶ所再処理工場（貯蔵容量3,000トン）に貯蔵されている。この他に、既に国内外で再処理された使用済燃料もある。使用済燃料を再処理すると燃料1トンあたりにつき

（脚注1）マイナーアクチノイド（MA）：アクチノイド元素のうち軽水炉燃料として使用されるウランとプルトニウムを除くその他の元素の総称。

（脚注2）特定放射性廃棄物の最終処分に関する法律（平成十二年六月七日法律第百十七号）。2007年の同法改正に伴い、TRU廃棄物の一部も地層処分の対象に加わった。

（脚注3）ハル：再処理の際、燃料を硝酸に溶解した後に溶け残った燃料被覆管の断片のこと。

（脚注4）エンドピース：使用済燃料集合体をせん断するときに取り除かれる燃料集合体の末端部のこと。

約 1,25 本^(脚注1) のガラス固化体が発生する。約 2,200 本のガラス固化体に相当する使用済燃料がフランスやイギリスの再処理事業者の工場に運ばれ、再処理が行われた⁽⁵⁾。再処理に伴い発生したガラス固化体はわが国に返還されることとなっている。フランスからわが国へのガラス固化体の返還は 1995 年 2 月から 2008 年末までの間に行われ、合計 1,310 本が返還された。イギリスからのガラス固化体の返還は 2010 年に始まっており、合計約 850 本が返還される予定である。これらを含めた再処理後のガラス固化体は、国内外に約 2,500 本貯蔵されている⁽³⁾。さらに 2013 年 3 月までに貯蔵されている使用済燃料をすべて再処理した場合、既存のガラス固化体と合わせて合計約 25,000 本のガラス固化体に相当する。

1.3 わが国における地層処分事業

わが国においては、「特定放射性廃棄物の最終処分に関する法律」(最終処分法)に基づいて、2000 年 10 月に原子力発電環境整備機構 (NUMO) が高レベル放射性廃棄物の地層処分を行う実施主体として設立された。また、その後、2007 年の同法改正に伴い、TRU 廃棄物の一部も地層処分の対象となった。

現在 NUMO では、2020 年前後までのおよそ半世紀に渡る原子力発電に相当する高レベル廃棄物 (ガラス固化体 4 万本以上) を処分することを想定している⁽¹⁾。ガラス固化体は、初期の高い発熱が処分システムに有意な影響を及ぼさないよう、適切な間隔をとって定置される。この発熱を考慮して、高レベル放射性廃棄物処分場の地下施設の大きさは 5 ~ 6km²と想定されている⁽¹⁾。サイト選定で 20 年程度、処分場の建設と操業を併せて 60 年程度、処分場の閉鎖で 10 年程度が見込まれ、事業全体では 100 年程度にわたる長期プロジェクトとなる⁽⁶⁾。

仮に原子力によって 3,000kW の発電^(脚注2)を 40 年間続けた場合、ガラス固化体 4 万本に相当する使用済燃料が発生する⁽⁸⁾。すなわち、この規模で原子力発電を続けると想定した場合、およそ 40 年ごとに 1 つの高レベル廃棄物処分場を建設しなければならないこととなる。それにもかかわらず、今現在、最初の地層処分サイト候補地は未定のままである。

2. 放射性廃棄物の潜在的有害度

2.1 使用済燃料に含まれる核種の潜在的有害度

人体に有害な影響を与える可能性のある放射性物質の総量を表すのに、潜在的有害度という指標がしばしば用いられる。この指標は、放射性物質に含まれる各核種の放射能 (Bq) を経口摂取による被ばく線量 (Sv) に換算して総和を取ったもので⁽⁹⁾、「放射能毒性」とも呼ばれる。

軽水炉使用済燃料 1 トンには、約 47kg の核分裂生成物と 11kg の超ウラン元素^(脚注3)が含まれて

(脚注1) 核燃料サイクル開発機構⁽⁴⁾によるモデルガラス固化体での設定値。

(脚注2) 2009 年 2 月時点における国内の原子力発電所 53 基 (運転中) の設備容量は約 4,800 万 kW であった。⁽⁷⁾

(脚注3) 超ウラン元素 (TRU) : 原子番号がウラン (原子番号 92) よりも高い元素の総称。

いる⁽¹⁰⁾。この使用済燃料を直接処分する場合には、このすべてが廃棄物となり、長期にわたり人体に有害な放射線を出し続ける。例として図1に軽水炉の使用済燃料に含まれる核種の潜在的有害度の時間変化を示す。図中、アクチノイド核種およびFP核種については加圧水型炉の使用済燃料（燃焼度 45GWd/tHM、5年間冷却した場合の組成に基づく）の経時変化である。また、新燃料 1トンを得るのに必要な天然ウラン 7.5トン（これには放射性崩壊によって生成される子孫核種も含まれる）の潜在的有害度も参考のために表示している。

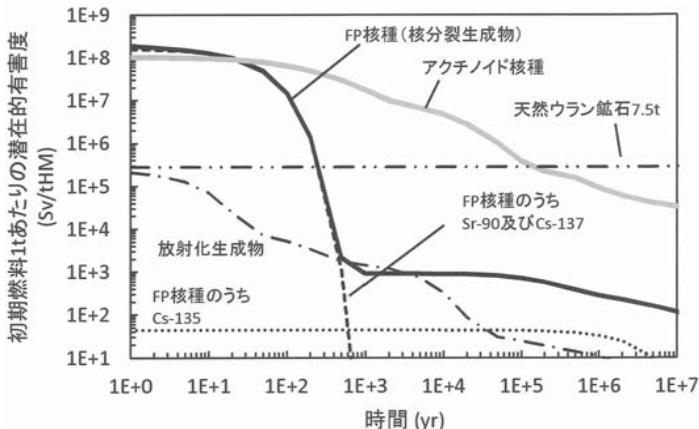


図1 軽水炉燃料サイクルにおいて発生する放射性核種の潜在的有害度（西原⁽⁹⁾に基づき作成）

初期には、使用済燃料に含まれるアクチノイド核種や FP 核種の潜在的有害度は、対応する天然ウランと比べて非常に高い。初期の FP の潜在的有害度は Sr-90 と Cs-137 の寄与により天然ウランの約 1000 倍にもなるが、放射性崩壊によってこれらの核種の量とともに潜在的有害度も減衰し、1000 年後には天然ウランの 1/100 以下にまで低下する。それ以降に残る FP 核種は Cs-135 のような長寿命核分裂生成物（LLFP：Long-Lived Fission Product）であり、潜在的有害度も非常にゆっくりと減衰する。アクチノイド核種の潜在的有害度も時間とともに徐々に低下していくが、Sr-90 や Cs-137 よりもゆっくりと減衰し、約 10 万年間は天然ウランよりも高い潜在的有害度を示している。このように、1000 年以上の長期に渡る潜在的有害度には、アクチノイド核種および LLFP 核種の寄与が含まれている。

使用済燃料に含まれる放射性核種を廃棄物として処分する場合には、初期の非常に高い潜在的有害度に対する防護と、アクチノイド核種や LLFP 核種といった長寿命核種の超長期にわたる潜在的有害度に対する防護が必要となる。

2.2 分離変換技術による潜在的有害度の低減効果

放射性核種の潜在的有害度はその量に比例するため、潜在的有害度の高い核種の廃棄物中含有量が減ると、その核種の寄与による潜在的有害度も減少する。分離変換技術によって長寿命核種を短寿命或いは安定な核種に核変換することができれば、長期的な潜在的有害度を低減

できるといえる。これによって高レベル廃棄物処分の負担が軽減されることが期待されている。

再処理や分離変換技術を想定した際の高レベル放射性廃棄物や使用済燃料の潜在的有害度の経時変化について比較した結果を図2に示す。軽水炉使用済燃料の潜在的有害度は天然ウラン鉱石のレベルまで減衰するのに約10万年もの年月を要する。一方、使用済燃料に再処理を施して、ウランとプルトニウムの大部分を分離回収する場合、高レベル廃棄物となるガラス固化体の潜在的有害度は使用済燃料の潜在的有害度よりも低く、約6000年でウラン鉱石のレベルまで低下する。さらに高レベル放射性廃棄物に含まれるMA核種も分離変換技術の導入により99.5%除去されたと仮定すると、潜在的有害度はさらに低下し、約400年でウラン鉱石のレベルまで減衰する。すなわち、分離変換技術の導入によって、高レベル放射性廃棄物の潜在的有害度がウラン鉱石並みにまで減衰する時期が大幅に早まる可能性が示唆される。

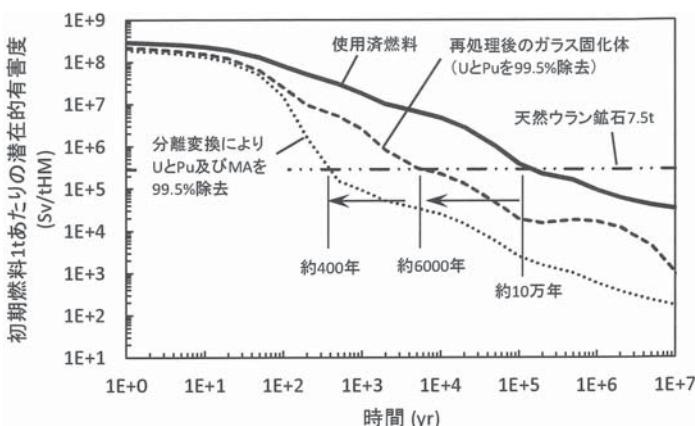


図2 再処理や分離変換による高レベル廃棄物の潜在的有害度の低減効果（西原⁽⁹⁾に基づき作成）

3. 放射性廃棄物処分における分離変換技術の位置づけ

3.1 「廃棄物処分の負担軽減」効果の論点

ここからは、分離変換技術によって廃棄物処分の負担がどのように軽減され得るのか、もう少し深く考えていきたい。廃棄物処分の負担軽減効果を判断するには、廃棄物処分の安全性、合理性、社会的受容性、技術的信頼性、費用等、様々な観点における総合的な評価が必要である。しかし、現状ではこれらの観点の多くにおいて明確な結論が出ておらず、一つ一つ整理していくことが今後の課題といえる。ここでは、廃棄物処分の安全性の確保や合理性に係る論点を紹介する。

ここで、分離変換技術によって放射性廃棄物の潜在的有害度が低減されたとしても、それが必ずしも廃棄物処分の安全性や合理性の向上を意味する訳ではないことに注意が必要である。分離変換技術等の有用性を廃棄物の潜在的有害度のみで評価することについては、これまで専門家により誤解を生む危険性が指摘されてきた⁽¹¹⁾。

放射能の危険性は（その裏返しとして安全性も）、一般に被ばく線量を指標として評価される。

「潜在的有害度」は仮想的に放射性物質の全量が経口摂取された場合の被ばく線量であり、経口摂取被ばくの理論的上限値を表現している。ただし、実際に放射性物質の全量が一個人によって経口摂取される状況は想定できずこの「潜在的有害度」が再処理や処分に伴う実際の公衆被ばく線量を表す訳ではない。公衆被ばくのリスクは、放射性物質の濃度、化学的・物理的形態やその置かれている場所や環境に依存して変化する。たとえば、地下数百メートルの処分施設内に隔離されている放射性物質と、飲用水に溶けた放射性物質とでは、潜在的有害度が同じでも被ばくのリスクは前者の方がずっと小さいのである。地層処分された放射性廃棄物に起因する公衆被ばく線量は、放射性核種の移行経路や被ばく経路に大きく依存するため、処分システム全体を考慮した安全評価が必要となる。地層処分における長期的な安全確保の概念と安全評価における被ばく線量の計算例については次節で紹介する。

3.2 高レベル放射性廃棄物の処分と閉鎖後長期の安全性

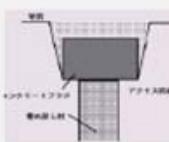
放射性廃棄物の地層処分は、前述した潜在的有害度の高い放射性物質を地下深部に「閉じ込め」、人間の生活環境から「隔離」するという考え方を基本として、安全を確保しようとするものである。このために、（例えば高レベル廃棄物の場合には表1に示すような）人工バリアと天然バリアから構成される多重バリアシステムを導入し、それぞれの構成要素が発揮すべき安全機能を設定している。

しかし、「隔離」・「閉じ込め」が完全に機能せず、人間が被ばくしてしまう潜在的な危険性として、以下の3つが考えられる⁽¹⁾。

- (a) 自然現象の著しい影響に起因する被ばく
- (b) 地下水を介した放射性物質の移行による被ばく
- (c) 処分場への侵入などの偶発的な人間活動による被ばく

このうち(a)の自然現象には、火山・火成活動や地震・断層活動による処分施設の直接的破壊や隆起・侵食による処分施設の地表への接近などが含まれる。これに対して NUMO⁽¹⁾ は、埋設の深さも含めて適切なサイトを選定することにより、地層処分システムの性能を著しく低下させるような自然現象の影響を回避することとしている。また、(b)に対しては、選定したサイト固有の条件や安全を確保するために施される工学的対策などを踏まえ、人の健康に影響を及ぼす可能性のある現象を考慮した適切なシナリオを設定して安全性を評価するための解析（安全解析）を行う。そして、その結果があらかじめ基準値として定められた放射線防護レベルを超えていないことを確認することとしている。(c)に対しては、例えば鉱物資源が存在する地域を排除するなど、人間侵入が起こる可能性の低いサイトを選定したり、埋設深さを含めた処分施設の設計を行うことによって安全性を確保することとしている。

表1 高レベル放射性廃棄物処分における多重バリアシステムの構成要素と安全機能⁽¹⁾

基本概念	安全機能		構成要素			
			天然バリア			
隔離	地質の長期的な変動からの防護					
	人の接近の抑制					
放射性物質の 浸出抑制	ガラスマトリクスによる浸出 抑制	廃棄体				
	発熱が著しい期間の地下水 接触の防止	オーバーパック				
閉鎖後閉じ込め	放射性物質の溶解度制限	還元環境を保つことなどにより機能と して発現				
	移流による移行の抑制	緩衝材				
放射性物質の 移行抑制	コロイド移行の防止・抑制					
	収着による放射性物質の移 行遅延	天然バリア				
	分散による移行率の低減					
	アクセス坑道およびその周辺 が卓越した移行経路となるこ との抑制	埋め戻し材 プラグ				

では、(b)に関する安全解析をすると、どのような放射性核種によっていつ頃どの程度の公衆被ばくが起きると予想されるのだろうか。地下水を介した放射性物質の移行による被ばく線量の計算例を図 3 に示す。これは、ガラス固化体 4 万本を地下 1000 m の深さに埋設する処分施設を想定したものである。被ばくに至るまでのシナリオを大まかにまとめると、以下のようなことが想定されている。地下水との接触を抑制するためにガラス固化体を覆っていた鋼製のオーバーパックが腐食により破損した後、ガラス固化体がゆっくりと溶けて変質するのに伴って、放射性核種は徐々に間隙水中に溶出する。溶出した核種は、粘土でできた緩衝材の中を拡散し、周辺の岩盤亀裂中を流れる地下水に染み出す。その後、核種は地下水の流れ路となる亀裂や断層などを通って地表に到達する。この途中で核種が粘土や岩盤に収着することによって移行が遅延され、その間の放射性崩壊や希釈・分散効果によって、地下水中的核種濃度は処分施設からの距離とともに低下していく。地表に到達した核種によって汚染された地表水が飲用水や農業用水として利用されることにより、公衆の被ばくが生じることを想定している。

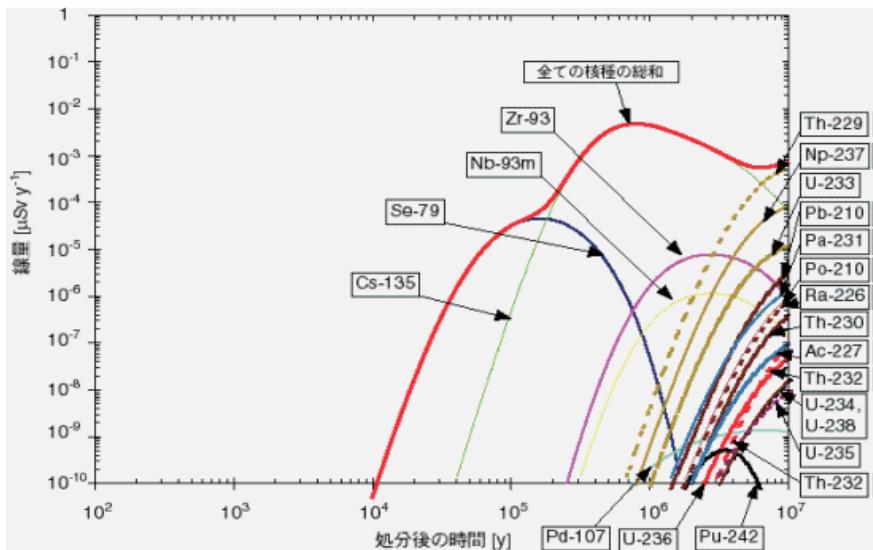


図3 高レベル廃棄物処分第2次取りまとめレファレンスケースにおける被ばく線量⁽¹²⁾

図 3 の縦軸は代表的個人の年間被ばく線量を表している。Sr-90 や Cs-137 の潜在的有害度が著しく高い初期の 1000 年間（図 1 参照）は、処分システムの隔離・閉じ込めによって被ばく線量が抑えられている。被ばく線量に寄与しているのは、アクチノイド核種や LLFP 核種である。総被ばく線量は処分後数十年でピーク（約 0.006 $\mu\text{Sv}/\text{y}$ ）を迎えるが、わが国の自然放射線レベル（900 ~ 1200 $\mu\text{Sv}/\text{y}$ ）と比較するとおよそ 10 万分の 1 程度である。その最大線量は LLFP である Cs-135 に起因している。Th-229 や Np-237 等の多くの MA 核種の線量は 1000 万年以降にピークを迎え、それらが Cs-135 の最大線量を超えることはなかった⁽¹²⁾。我が国の地層処分において一般的に想定される還元性雰囲気の処分場周辺環境においては、低い溶解度と

岩盤等への収着によって MA 核種の移動が遅延されるため、Cs-135 よりもさらに遅れて MA 核種の線量ピークが現れるのである。

3.3 放射性廃棄物処分の安全性に対する分離変換技術の効果

(1) MA 核種の核変換の効果に関する既往の議論

核種の移行を考慮した被ばく線量計算（図 3）に対する分離変換技術の効果については、これまで検討されてきた⁽¹³⁾。図 3 に示した高レベル廃棄物処分場の線量評価結果に対して、仮に分離変換技術によって MA の量が減り、MA による被ばく線量が大きく低減されたとしても、Cs-135 の線量に依存する最大線量は低減されない。最大線量を低減させるためには、まず Cs-135 を分離除去し、核変換する必要がある。ただし、Cs-135 を核変換する際、Cs-133 や Cs-134 が混在するとこれらが中性子を捕獲し、Cs-135 を新たに生成してしまう。場合によっては核変換される Cs-135 よりも多くの Cs-135 が新たに生成されることとなる。このため、Cs-135 の核変換を行うためには、Cs-133 や Cs-134 から Cs-135 を分離するセシウムの同位体分離が必要となってしまう。このように MA 核種の核変換のみならず FP 核種の同位体分離と核変換も行わなければ最大線量を低減できないこととなる。図 3 に示した線量評価のシナリオに基づく限りは、このように MA 核種の核変換の効果は線量低減効果として現れにくいともいえる。これは前述のとおり、還元性雰囲気の処分環境では、低い溶解度と岩盤等への収着によって MA 核種の移動が遅延され、より移動性の高い Cs-135 が最大線量の支配核種となるためである。他方、酸化性雰囲気の処分環境においては、アクチノイド元素の移動性も一部高くなり、MA の核変換の効果が安全評価結果に現れやすくなる。

(2) その他のシナリオおよび将来の不確実性

前項の議論は、比較的蓋然性の高いシナリオの安全解析に対する MA の核変換の効果についてである。しかし、この特定のシナリオだけでは処分システムの安全性を十分に評価できず、多様なシナリオについての検討が必要である。

例えば擾乱の加わった処分環境ではどうだろうか。地震・断層活動等によって処分場周辺環境が突然酸化性雰囲気に変化し、地表までつながる速い移行経路が出現した場合、MA 核種の移動性が高くなり、MA 核種の被ばく線量が最大線量に貢献する可能性も考えられる。また、埋設した廃棄体が土地の隆起侵食に伴って地表に露出してしまうシナリオや、偶発的な人間の侵入など、処分システムのバリア機能が働かなくなつた状況においては、処分場に埋設した廃棄物の潜在的有害度が直接的に被ばくリスクにつながると考えられる。3.2 節で述べたように NUMO は処分サイトの選定によって自然現象の著しい影響を回避するとしているが、超長期の将来にわたる不確実性は残る。このような場合には、処分対象となる放射性廃棄物の潜在的有害度を分離変換技術によって初めから低減しておくことが有効となる可能性もある。

超長期を対象とする地層処分の安全評価においては、遠い将来ほど想定される環境変遷についての不確実性が増す。すなわち、遠い将来ほど想定されるシナリオの蓋然性が低くなり、被ばく線量の評価も困難となる。また、稀頻度の事象でも考慮する期間が長ければ長いほど発生確率が高くなるため、著しく安全性を脅かす可能性のある稀頻度事象への対応が求められる。核変換技術により長寿命核種がより短寿命の核種に変換され、長期的な潜在的有害度が低減されることの効果は、大きな不確実性を内包する地層処分の長期的な安全確保の信頼性・説明性の向上に貢献するのかもしれない。

(3) 処分概念や処分サイトの選択肢の拡大に対する期待

TRU 廃棄物の地層処分の安全解析を行った NUMO の検討⁽¹⁴⁾によると、処分場周辺岩盤の透水性が低い好ましいサイトでは、被ばく線量を十分低く抑えられることが示されている。一方、岩盤の透水性の高いサイトでは地下水の流れが（すなわち放射性核種の移行が）速くなるため、被ばく線量が高くなることも示されている。例えば、「グループ1」と分類される廃棄体（主に廃銀吸着材）については、透水性の高いサイトでは目安とした線量（ $10 \mu \text{Sv/y}$ ）を支配核種である I-129 の被ばく線量が上回るという結果も得られている。このような場合に NUMO は、被ばく線量を目安値以下に下げるために、廃棄体の固化技術を高度化し、低浸出性廃棄体を採用するといった工学的な対策を講ずるとしている。

一方、分離変換技術により廃棄物中の I-129 を減量することができれば、I-129 による被ばく線量の低減に繋げることも可能である^(脚注)。すなわち、より高い岩盤透水性のサイトでも被ばく線量を目安値以下に抑えることが可能となり、処分サイトに課せられる条件が緩和し、サイトの選択肢が拡大する可能性に繋がる。また、同時に工学的対策等の処分概念の選択肢が拡がるともいえる。

3.4 処分施設の面積低減への効果

1.3 節で述べたように、使用済燃料の再処理に伴って発生する高レベル廃液をガラス固化して処分する場合、高レベル廃棄物処分場の大きさは、初期の発熱量に大きく依存する。ガラス固化体の発熱量は、初期の 100 年程度は Cs-137 や Sr-90 等に代表される FP 核種による貢献が大きく、100 年後以降は MA である Am-241 の発熱量が長らく支配的となる。

この廃棄物の発熱量を低減できれば、廃棄体の定置間隔を縮め、分施設の面積を低減することによる合理化も可能である。これまで分離変換技術の適用による処分施設の合理化を追求した検討が行われてきた^{(15),(16)}。高発熱性の FP を群分離すると、残された MA を主成分とする

(脚注) 実際には廃棄物の量や特性が変わるために、被ばく線量の低減効果は定性的な議論にとどまる。単なる核種の量だけでなく、廃棄体の化学的特性等も変化する可能性があり、処分概念の見直しなど多様な効果について検討する必要がある。

廃棄物の発熱密度が低下し、処分施設を小さくすることが可能になるという考え方である。分離された高発熱性 FP は数十年～百数十年間中間貯蔵され、発熱量が低下してから地層処分される。さらに Am-241 を分離・核変換すると地層処分施設の面積が大幅に削減できる可能性が示唆されている。

このような合理化を行わずに原子力発電を継続する場合には、前述したとおり、およそ 40 年ごとに 1 つの割合で高レベル廃棄物処分施設が必要となる。分離変換技術導入によって高レベル廃棄物処分が合理化されると、安全性を確保しつつ 1 つの処分施設における埋設容量を拡大し、処分施設の数の削減につながる可能性も示唆される。このように高レベル廃棄物処分の社会的な負担を軽減する分離変換技術の効果が期待される。

4. まとめ

分離変換技術の開発には、地層処分の処分概念や処分サイトの選択肢の拡大可能性、大きな不確実性を含む超長期の安全確保の説明性向上、処分場面積低減などの合理化等において、その効果が期待される。ただし、分離変換技術を導入した場合でも、高レベル放射性廃棄物の潜在的有害度がゼロになる訳ではないため、地層処分施設が必要となることに変わりはない。また、再処理や群分離に伴って低レベル廃棄物も副産物として生成されるが、この低レベル廃棄物による被ばくリスクも高レベル廃棄物による被ばくリスクに加えて総合的に評価しなければならない。廃棄物処分に対する分離変換技術の効果を的確に評価するためには、分離変換技術を導入した新しい核燃料サイクルから生じる新しい廃棄物に対して処分概念を再構築した上で、様々な観点から総合的に評価することが必要であり、今後の課題である。特に処分の安全性については、潜在的有害度の低減だけに留まらず、見直された処分概念における長期的な安全評価を実施することが必要である。

【参考文献】

- (1)「地層処分事業の安全確保(2010年度版)－確かな技術による安全な地層処分の実現のために－」、原子力発電環境整備機構、NUMO-TR-11-01、2011年9月。
- (2)「原子力政策大綱に示している放射性廃棄物の処理・処分に関する取組の基本的考え方に関する評価について」、原子力委員会政策評価部会、2008年。
- (3)「原子力政策をめぐる最近の動向」、経済産業省資源エネルギー庁、総合資源エネルギー調査会総合部会第2回会合資料4、2013年4月。
- (4)「わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性－地層処分研究開発第2次取りまとめ、分冊2：地層処分の工学技術」、核燃料サイクル開発機構、JNC TN1400 99-022、1999年。
- (5)「高レベル放射性廃棄物貯蔵管理事業」、日本原燃(株)、<http://www.jnfl.co.jp/recruit/business/chozou.html>。
- (6)「公募関係資料、特定放射性廃棄物の最終処分施設の設置可能性を調査する区域」、原子力発電環境整備機構、2009年。
- (7)「福井県の原子力」福井県原子力安全対策課、平成21年3月。
- (8)「今後の高レベル放射性廃棄物の地層処分に係る取組について(見解)」、原子力委員会、平成24年12月18日。
- (9)西原 健司、「使用済燃料の潜在的放射性毒性評価のためのデータベース」、日本原子力研究開発機構、JAEA-Data/Code 2010-012、2010年。
- (10)「核燃料サイクルと高速炉開発」、NSA/COMMENTARIES : NO.20、社団法人 日本原子力産業会議 原子力システム研究懇話会、平成25年3月。
- (11) J. Kessler, M. Apted, M. Kozak, M. Nutt, A. Sowder, P. Swift, "Radiotoxicity Index: An Inappropriate Discriminator for Advanced Fuel Cycle Technology Selection," WM2012 Conference, February 26 – March 1, 2012, Phoenix, AZ, 2012.
- (12)「わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性－地層処分研究開発第2次取りまとめ、分冊3：地層処分システムの安全評価」、核燃料サイクル開発機構、JNC TN1400 99-023、1999年。
- (13)「核種分離・消滅処理技術の効果及び意義」、内閣府原子力委員会原子力バックエンド対策専門部会(第26回)資料(専)26-3、平成11年11月5日。
- (14)「地層処分低レベル放射性廃棄物の安全性向上に関する検討－多様な地質環境においても地層処分低レベル放射性廃棄物の処分の安全と評価の信頼性をより一層高めることができる処分概念の検討－」、原子力発電環境整備機構、NUMO-TR-14-03、2014年6月。
- (15) C. Chabert, D. Warin, J.F. Milot, A. Saturnin, A. Leudet, M.H. Lagrange, and J.M. Hoorelbeke, "Impact of minor actinide transmutation options on interim storage and geological disposal: The French Case," Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, Twelfth Information Exchange Meeting, Prague, Czech Republic, 24–27 September 2012.
- (16) H. Oigawa, K. Nishihara, S. Nakayama, Y. Morita, "Concept of waste management and geological disposal incorporating partitioning and transmutation technology," Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, 10th OECD/NEA Information Exchange Meeting, Mito, Japan, August 2010.

第2章 高速炉による核変換

1. 背景と位置づけ

原子力発電所から出る使用済燃料の再処理で発生する高レベル放射性廃棄物（HLW）には長期に渡り放射能や発熱を有するマイナーアクチニド（MA : Np,Am,Cm 等の核種）が含まれる。HLW から MA を分離回収して ADS や原子炉で核変換する分離変換技術の研究開発は世界中で行われてきた⁽¹⁾。分離変換の効果については、潜在的な有害度、実効線量率、廃棄体発生量及び処分場の廃棄体定置面積に及ぼす影響が評価され、長期に渡る潜在的な有害度の低減や処分場の面積の抑制の観点から効果が高く、特に長期の発熱源となる Am を含む MOX 燃料利用時の効果が大きいことが明らかにされている⁽²⁾。MA の核変換炉については、様々な炉型を使った研究がなされているが、ここでは、ナトリウム冷却高速炉（SFR）を対象とする。また、SFR 燃料の化学形態としては、酸化物、窒化物、炭化物および金属燃料が検討されているが、ここでは国内の SFR で用いられ、製造、照射および許認可実績を有する酸化物（MOX）燃料を用いる原子炉に限定する。

2. MA 核変換量の詳細な定義

マイナーアクチニド（MA）の核変換量は燃焼前後の MA 量の差として定義される。しかし、MA がどのようなプロセスで核変換されたのか、即ち核分裂によって消滅したのか、燃料（ウラン、プルトニウム）に変換されたのかを物理的に理解することができない。さらに、どの MA 核種が全体の核変換にどれだけ寄与しているのかが分からない。

そこで、核変換の物理的プロセスを把握し、各核種ごとの MA 核変換量の定義、更にはその計算方法を示す。まず MA 核種の原子炉中での生成、消滅を考える。Np、Am、Cm 等の MA は Pu、U 等の燃料からの α 、 β 、 γ 崩壊、および中性子との捕獲反応、(n,2n) 反応、(n, α) 反応、電子捕獲（EC）等により生成する。また、MA 核種は崩壊、核分裂、捕獲反応、(n,2n) 反応、(n, α) 反応、等により他の MA 核種および U、Pu へ変換される。更に変換した核種が核分裂により消滅する場合もある。これらの種々の反応は次の 4 パターンにグループ分けすることができる。

- ① ある MA 核種が核分裂により消滅、あるいは、他の MA、U、Pu に変換した後、核分裂により消滅するパターン。このパターンを全体の核分裂量 OF（Overall Fission）と呼ぶ。
- ② ある MA 核種から別の MA 核種が生成するパターン。このパターンを OMA（Other MA Production）と呼ぶ。
- ③ ある MA 核種から U、Pu が生成するパターン。このパターンを PU（Pu and U Production）と呼ぶ。
- ④ U、Pu および他の MA から今考えている MA 核種が生成するパターン。このパターンを PUM 及び MAM（From Pu or MA to MA）と呼ぶ。

以上の消滅、生成量の計算方法については説明を省略するが、ある MA 核種 I の核変換量は燃焼前後の核種 I の量の差として定義されるので、以上の 5 つの項の和および差として計算される。

$$\begin{aligned} TR^I &= N_I(0) - N_I(T) \\ &= OF^I + OMA^I + PU^I - PUM^I - MAM^I \end{aligned}$$

MA 全体の核変換量は

$$\text{総 MA 核変換量} = \sum_{(I=MA)} TR^I$$

で与えられる。全 MA 核種の和を取った場合には OMA と MAM の項は互いに打ち消し合うので、MA の核種 I の核変換量は

$$TR^I = OF^I + (PU^I - PUM^I)$$

で定義できることが分かる。上式の物理的意味を考える。第 1 項 OF^I は MA 核種 I が核分裂する量及びその核種から核変換して生成された Pu および MA 核種が核分裂する量の和であり、第 2、3 項は核種 I からの正味の燃料 (Pu 或いは U) への生成量を示している。

3. 国内に於ける研究

3.1 もんじゅ

(1) 高度化計画での MA 照射計画⁽³⁾

「もんじゅ」の炉心性能向上に関する高度化炉心概念の検討では、取出平均燃焼度を現行の 8 万 MWd/t から 10 万 MWd/t、更に 15 万 MWd/t に伸長する 2 段階の高度化炉心移行計画が検討され、小規模な MA 照射試験の検討も行われていた。

上記のうち、最初の高度化炉心における MA 照射試験の検討では、5wt%の MA を添加した MOX 燃料を収納した MA 照射試験集合体 (3 体～6 体) の装荷を想定した炉心核特性評価が行われている。この評価において、5 サイクル (5×191 日 = 955 EFPD) 照射により燃料の MA 含有率が、5wt%から 3.7wt%程度に減少すると予測されている。なお、MA 照射試験集合体が最大でも 6 体と少ないことから炉心核特性への影響は軽微であるとしている。図 1 に MA 照射試験集合体の装荷パターンを示す。

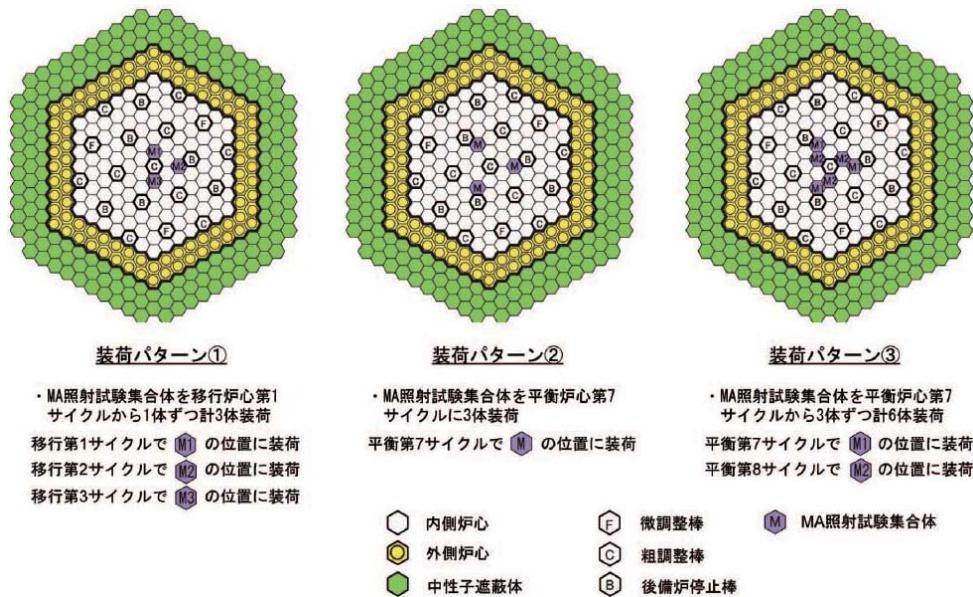


図1 MA 照射試験体の装荷パターン⁽³⁾

(2) GACID 計画⁽⁴⁾

高速増殖原型炉「もんじゅ」で MA を含んだ燃料を照射し、最終的に少なくとも燃料集合体規模での照射実証を目標とする GACID 計画が日仏米 3ヶ国間で進んでいる。GACID とは、Global Actinide Cycle International Demonstration (包括的アクチニドサイクル国際実証) の頭文字をとったものであり、2007 年 9 月に日仏米 3ヶ国により取り決めが署名された。その目的は、軽水炉の利用で発生する MA を燃料に混ぜ、これを高速増殖炉で照射することで MA の量を減少させられることを工学規模で実証することである。図 2 に示すように日仏米 3ヶ国で役割を分担しており、米国が MA 原材料提供を、仏国が燃料ピン製造を、日本は「もんじゅ」を中核とした照射試験の実施を分担している。

GACID 計画は、今までにない燃料を製造し、それを原子炉に入れて照射するため、次の 3 つの段階を踏んで進めていくものとしている。

ステップ 1 では、Np と Am のみを含有する燃料を、燃料ピン 1 本分だけ製造し、高速実験炉「常陽」における先行照射を経て、「もんじゅ」で照射する。Np と Am は放射線源の強度が弱く、ピン 1 本分のため、原料調達や燃料組立てなどの制約が少ないので、計画の早期実現が期待できる。照射試験に必要となる一連の過程の基礎を早期に確立する。

ステップ 2 では、Np と Am だけでなく Cm も含めた本格的な MA 組成での燃料ピン照射試験を行う。ガンマ線や中性子線などの放射線の影響が無視できなくなるため、燃料ペレットの焼結などはホット・セル施設で実施する。このステップでも燃料ピン 1 本であるため、MA 原料の調達や燃料集合体の組立ては比較的容易と考えられる。Cm を含む燃料の製造や照射試験は世界的

にも前例のないものである。

ステップ3では、工学規模（燃料集合体規模）での再処理及び燃料製造施設が必要となる。MA原料からの発熱や放射線を考えると、ホット・セル内での遠隔操作が基本である。したがって、その実現のためには長期的な展望に立ったパイロット・プラント構想について、3国間で協議していく必要がある。

現在までのGACID計画の進捗状況について述べる。すでに2008年に米国からMA原料が仏国に提供・輸送されている。仏国はMA含有燃料の物性測定のためのペレット試作を進めている。日本は「もんじゅ」で照射するための許認可取得の準備を進めていたが、2011年3月の福島第一原子力発電所の事故により中断した状態にある。

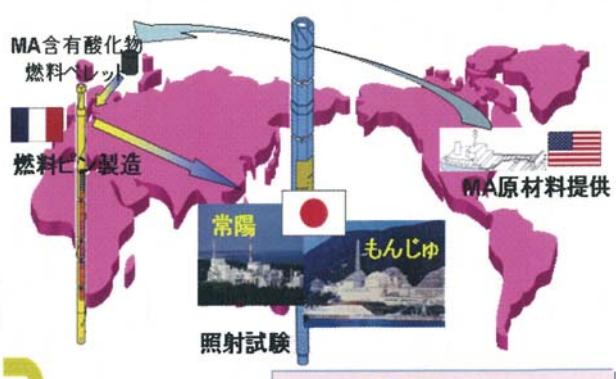
GACID計画は、文部科学省が主導して作成した「もんじゅ研究計画」（2013年9月）に記載されている。現在停止中の「もんじゅ」の再稼働にこぎつけ、もんじゅ研究計画の実現に向けた取り組みを進めることが、MAリサイクルの実証のためにも、国際的な期待に応えるためにも重要である。

目的:高速増殖炉の実用炉用燃料として有力なマイナーアクチニド(MA)含有燃料(TRU燃料とも言う)を、「もんじゅ」と「常陽」を利用して実証

- 高速増殖炉で燃焼させることによりMA全量リサイクルの可能性を実証
- 3ステップで段階的に実施
- Generation International Forum／ナトリウム冷却高速炉プロジェクトの一つ

GACID全体スケジュール

- | | |
|---------------|-------------------------------|
| ステップ-1 | Np/Am含有燃料のピン照射 |
| | → Joyo → Monju |
| ステップ-2 | Np/Am/Cm含有燃料のピン照射 |
| | → Joyo → Monju |
| ステップ-3 | Np/Am/Cm含有燃料の集合体照射 |
| | → 計画検討 → 試験燃料製造 → Monju 集合体照射 |



照射試験

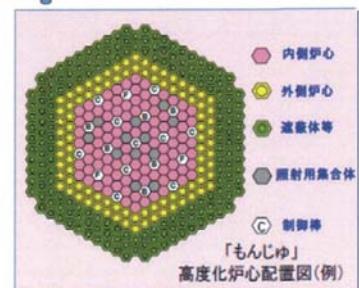


図2 「もんじゅ」 MA燃焼実証プロジェクト：GACID計画の概要

3.2 実用高速炉におけるMA核変換研究

(1) FaCT計画におけるMA均質装荷核変換検討

我が国では高速増殖炉の実用化に向けた研究開発が一貫して進められてきており、高速増殖炉サイクル実用化戦略調査研究(FS:1999年7月 - 2006年3月)、引き続く高速増殖炉

サイクル実用化研究開発プロジェクト (FaCT:2006年4月 - 2011年3月)において図3に示す「高内部転換型炉心」と呼ばれる炉心概念が構築されてきた⁽⁵⁾。

高内部転換型炉心は、太径燃料ピン(外径10.4 mm)の採用により燃料重金属密度を高めることで高い内部転換比(0.8以上)の達成を可能としたナトリウム冷却酸化物燃料炉心概念であり、従来炉心概念と比べるとブランケットの量が少なく、ブランケットを含む全炉心取出平均燃焼度が高い(約9万MWd/t以上)という経済性に優れた特長を有している。従来炉心概念では、燃焼度の低いブランケットが燃料製造費の大半を占めており、経済性悪化の一因となっていた。この他にも、高い内部転換比により長期運転サイクル(約26ヶ月)が可能であること、燃料ピンの太径化により燃料ピン製造本数が少なくて済むことは、いずれも経済性の向上に結びついている。

高内部転換型炉心におけるMA核変換特性を、軽水炉から高速炉サイクルへの移行シナリオにおいて評価した例を示す⁽⁶⁾。MAは炉心燃料に一様に添加され、均質装荷法(均質リサイクル)と呼ばれる方式が採用されている。図4は2050年(高速炉導入初年)から2200年までの炉心燃料中のMA含有率の変化の様子である。高速炉導入期においては軽水炉使用済燃料から回収されたMAが高速炉燃料において3~4wt%程度含有する。リサイクルに伴いNpとAmの核変換が進み、MA含有率はしだいに減少する。Cmは少量ではあるが、リサイクルに伴い蓄積し平衡値に漸近していく。こうして高速炉のみの平衡状態においては、MA含有率1wt%程度で炉内生成と核変換が釣り合った状態となる。第2節で示した核変換の内訳分析によって、核変換量のうち約3分の1が核分裂により燃焼すること、主な核変換過程が、 $^{237}\text{Np} \rightarrow ^{238}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Am} \rightarrow ^{242}\text{Am} \rightarrow ^{242}\text{Cm} \rightarrow ^{238}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Pu} \rightarrow ^{241}\text{Am}$ 、 $^{243}\text{Am} \rightarrow ^{244}\text{Cm}$ であることを示すことができる。

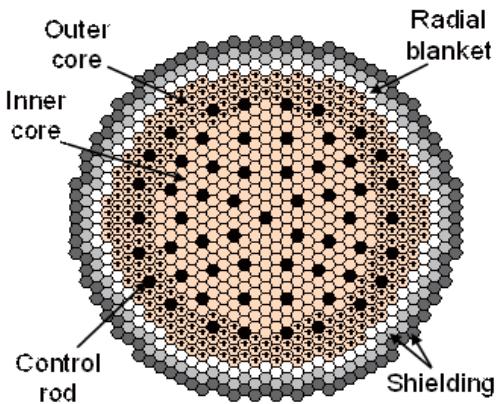


図3 高内部転換型炉心(1500 MWe)の炉心配置図

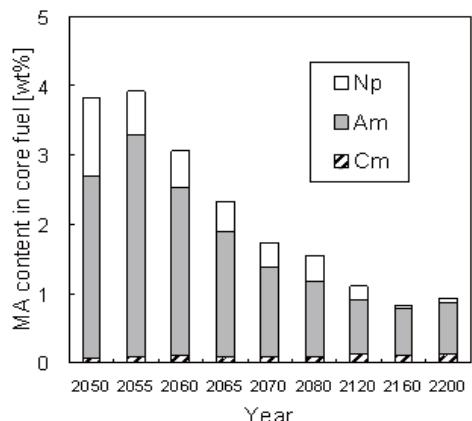


図4 高速炉導入後のMA含有率の変化

炉心燃料中の MA 含有率をパラメータとした MA 核変換量及び MA 取出核変換率の評価結果を図5に示す。MA 含有率が 3～4 wt% のとき、50～100 kg/GWeY の MA 核変換量と、30～40% の MA 取出核変換率を達成できることがわかる。MA 核変換量は炉停止期間を考慮して評価するが、高内部転換型炉心の長期運転サイクルによる高い稼動率（90%以上）により、変換量への影響は限定的である。なお、高い MA 取出変換率は、高温強度と耐照射性に優れた ODS 鋼を被覆管に用いることで可能となるものである。このように発電炉としての優れた特徴が MA 核変換特性にも有効に働いている。

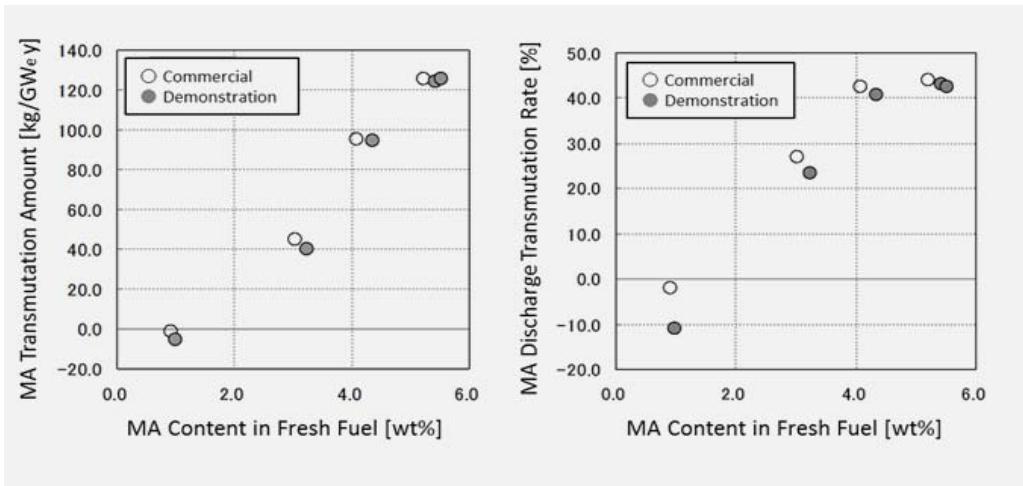


図5 高内部転換型炉心における MA 核変換特性
(実用炉(1500 MWe)、実証炉(750 MWe)についての評価結果)

以上の核変換性能により、高速炉サイクルは Pu 及び MA をサイクルシステムに閉じ込め核変換しながらそれらのシステム外への排出を抑制することにより、高レベル放射性廃棄物の減容・有害度低減に大きな効果をもたらす可能性がある。

MA リサイクルによる廃棄物減容効果の評価例⁽⁷⁾によると、ガラス固化体発生量については、軽水炉使用済ウラン燃料で 9 割程度に、軽水炉使用済 MOX 燃料で 5 割程度に低減し、高速炉使用済燃料ではほとんど変わらない結果となっている。廃棄体定置面積については、軽水炉使用済ウラン燃料で 8 割程度に、軽水炉使用済 MOX 燃料で 3 割程度に、高速炉使用済燃料では 4 割程度に低減する結果となっている。これら MA リサイクルによる効果は、数百年の時間オーダーにおいて主たる発熱源となる 241Am の回収によるものである。軽水炉使用済ウラン燃料は 241Am の生成量が少ないと及び発生量の相対的に多い FP が制約となり、MA 回収による大きな廃棄物減容効果を期待することができない。また、高速炉使用済燃料のガラス固化体発生量が MA 回収で減少しないのは、ガラス固化体の耐久性に影響を与える Mo が制約となっているためである。Mo の照射済ウランからの回収技術は将来の実用化の可能性があり、Mo の分離技術の開発を前提とすれば、MA 回収による効果を期待することができる。

従って、今後の MA リサイクルや特定 FP の回収に関する技術開発によって、ガラス固化体発生量が低減でき、処分費用を低減できる可能性がある。

一方、高レベル放射性廃棄物の有害度低減効果については、図 6 に示すように天然ウランレベルに有害度が低減するまでにかかる期間 10 万年が、Pu リサイクルにより 8 千年に、Pu と MA のリサイクルにより 300 年まで大幅に短縮することが期待できる。ただし、この有害度低減は潜在的な効果であり、地下処分場に放射能が長期間存在することに対する不安軽減によって原子力システムの社会的受容性の向上に寄与する可能性を求めるものである。なお、上記の有害度低減を達成するためには、MA 回収率 99.9% 以上という高度な技術開発が不可欠である。（廃棄物減容であれば、より低い MA 回収率であっても相当の効果を期待できる。）

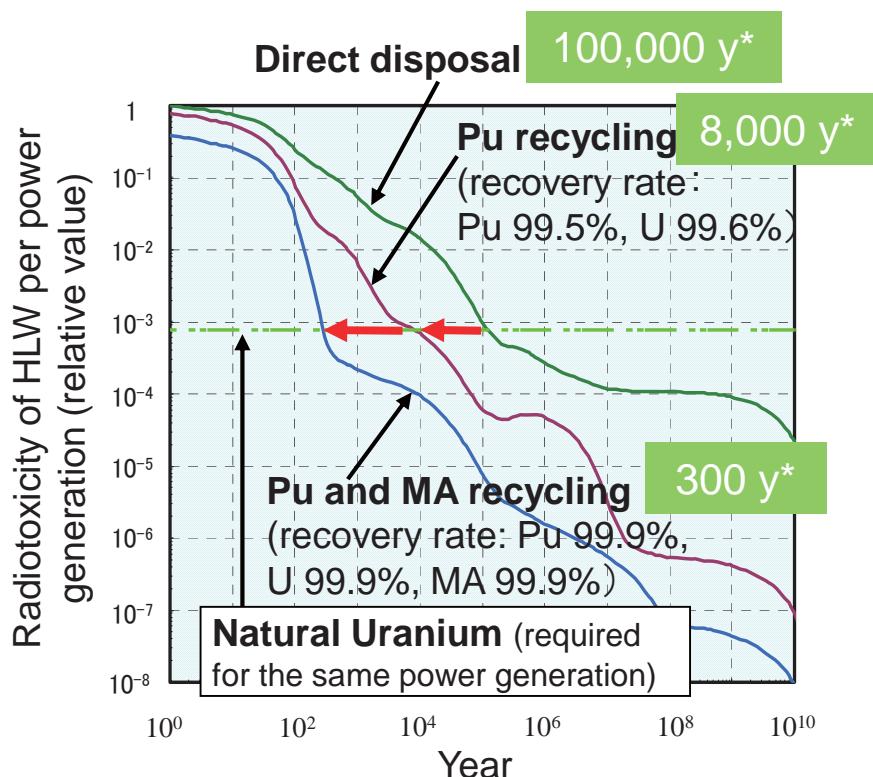


図6 MA リサイクルによる高レベル放射性廃棄物の有害度低減効果評価例
(* 天然ウランレベルに有害度が低減するまでにかかる期間)

(2) 非均質装荷核変換ターゲットの検討例

MA の炉心装荷方法としては、炉心燃料に一様に添加する均質装荷法と、MA を集中させたターゲット集合体を局所的に装荷する非均質装荷法に大別される。MA ターゲットを用いた非均質装荷炉心概念にはいくつかの既往検討があるが、MA ターゲット集合体の出力変動が非常に大きく、冷却材の必要流量が増えるために熱流力設計の観点から魅力に乏しいことや、高濃度の MA 含有燃料の開発が必要等の開発負荷が大きいといった課題があり、FaCT 計画における実用高速炉のレファレンスとしては均質装荷法を採用している。一方、非均質装荷法には、MA リサイクル技術開発を通常の燃料サイクルとは独立に行なながら技術の段階的な導入を図ることができ、開発コスト及び開発期間の低減の面で合理性を見出せる可能性がある。

非均質装荷炉心概念の検討例として、MA ターゲット集合体における出力変動の抑制に着目した炉心概念を図 7 に示す⁽⁸⁾。これは、内側炉心と外側炉心の境界付近にリング状に MA ターゲットを装荷する方式であるが、中性子吸収核種から核分裂性核種への転換が効率的に進む MA の性質を利用して、燃焼とともに減少する外側炉心の出力分担を MA ターゲットの出力増加により補い、炉心の径方向出力変動を抑制できるよう MA ターゲットの装荷位置を工夫したものである。ターゲットの MA 含有率を現状技術の延長線上での開発が可能な 10 ~ 20%とした。母材に MOX 燃料を用いることでターゲットの出力を炉心燃料と同等とし、さらにターゲットにおける極端な出力変動が起こらないようにした。図 7 に示すように MA 核変換特性や炉心安全上重要な反応度係数であるナトリウムボイド反応度については、MA を均質装荷する場合と同等であるとともに、出力分布の平坦化の結果として最大線出力を低減できること、冷却材必要流量の著しい増加を防ぐことができる結果が得られた。

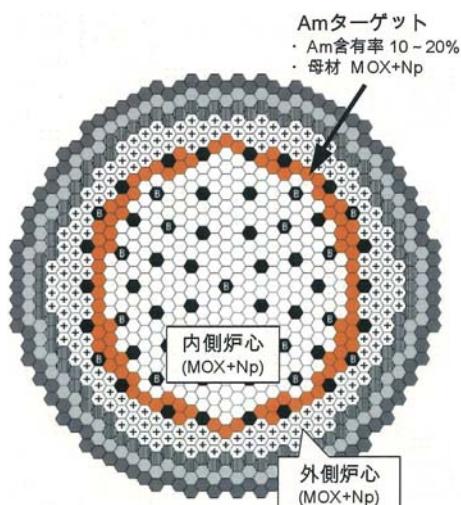


図7 MA 非均質装荷炉心の検討例

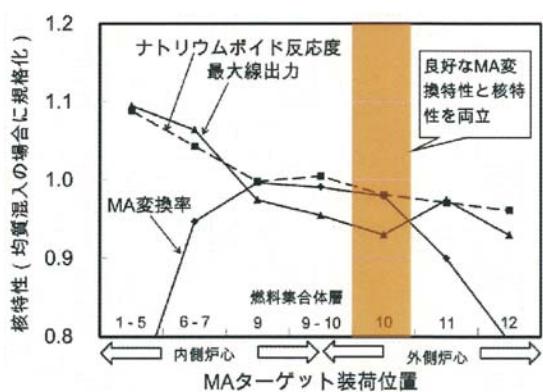


図8 MA ターゲット装荷位置と炉心特性の関係

MA ターゲットによる出力分布の平坦化のメカニズムを図 9 を用いて説明する。この図は、均質装荷法、従来の非均質装荷法（分散装荷）、内側炉心と外側炉心の境界へのリング状装荷法（本研究）について、炉心の径方向出力分布の運転中の変化を模式的に示したものである。均質装荷法では出力分布を平坦化するため内側炉心よりも外側炉心の Pu 富化度を高めることから、外側炉心の方が内部転換比が低くなり燃焼とともに出力が下がりやすい。その結果、サイクル初期では外側炉心に出力のピークが、サイクル末期では内側炉心に出力のピークが発生するような出力分布の変動が起こる。従来の非均質装荷法では、MA 変換効率の向上を考慮してターゲットを炉内に分散させて配置した。MA ターゲット（母材：劣化ウラン等）においては、サイクル初期でターゲットの出力が小さい分、通常の炉心燃料の出力増加を引き起こすことにつながっていた。また、ターゲットを炉内に分散配置したため、内側・外側炉心間の出力分布変動も残ったままだった。

本研究では、これらの問題を解決するため、ターゲットの内容物を調整し、具体的には母材を MOX 燃料として、出力が炉心燃料と同等となるようにするとともに、Pu 富化度と MA 含有率を調整することにより出力増加が緩やかとなるようにした。さらに、内側炉心と外側炉心の境界にターゲットを配置することにより、燃焼とともに出力が下がりやすい外側炉心を MA ターゲットの出力増加により補い、結果として径方向出力分布変動を抑制できることを見出した。これにより、均質装荷と比べても出力ピークを低減することができ、従来の熱流力設計上の課題の解決を図ることができた。

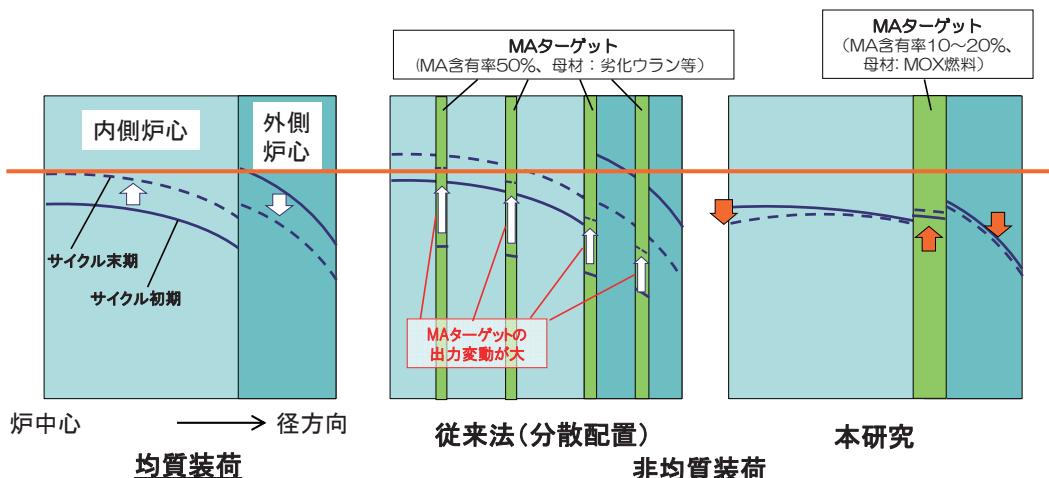


図9 MA ターゲットによる出力分布平坦化の説明図

このように本装荷法によって、従来の一般的な MA ターゲット装荷方法（分散装荷）で見られたターゲットにおける出力変動が大きくなる、炉心構成が複雑になるといった炉心設計上の課題が無くなり、基本的な炉心特性や MA 核変換特性において均質装荷法と非均質装荷法との間にはもはや大きな違いは無くなったといえる。ただし、非均質装荷法の方がより高い炉心設計精度が

必要であるし、高濃度 MA 含有ターゲット燃料の開発といった技術開発のハードルが高くなる。特に、燃料製造においては MA リサイクルによって生成する発熱性核種 (241Am、244Cm など) を集中して扱う必要があり、実現性の観点からこれら高発熱燃料に係る技術の見極めが重要な課題である。

(3) プルトニウム燃焼型炉心の検討

平成 23 年 3 月 11 日に発生した東日本大震災とそれに伴う福島第一原子力発電所の事故は、原子力政策を含む我が国のエネルギー施策を見直す契機となり、平成 26 年 4 月 11 日に「エネルギー基本計画」が閣議決定されるに至っている。なお、高速増殖炉、特に「もんじゅ」の具体的な研究計画の検討が文部科学省の主導で実施され、平成 25 年 9 月付け「もんじゅ研究計画」として公刊されている。

従来より我が国の高速増殖炉の開発は Pu の増殖と持続的な利用によるエネルギー源の確保を主な目的としてきたが、最新のエネルギー基本計画やもんじゅ研究計画によって、高速増殖炉を含む核燃料サイクルに対しては重要なベースロード電源としての役割に加え、廃棄物減容・有害度低減の観点での重要度が高められている。今後原子力による発電容量も見直されると考えられ、Pu の受給バランスによっては増殖だけでなく、余剰 Pu を燃焼してインベントリを管理することも高速炉の重要な役割となりうる (Pu の増殖だけでなく燃焼も目的とする場合、高速炉と称する)。高速炉は Pu や MA をシステム内で柔軟にリサイクルでき、炉心設計の変更により Pu の増殖だけでなく、Pu の燃焼にも対応可能であり、システム外に排出する放射性廃棄物に含まれる Pu・MA を合理的な範囲で最小化できる。

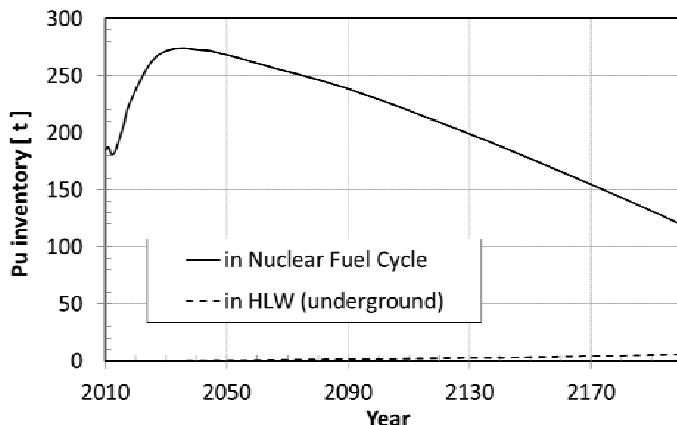
以上を背景として、検討実績の豊富な高速増殖炉の知見をベースとした Pu・MA の燃焼に着目した高速炉炉心概念の検討が開始されている^(9,10)。

Pu 燃焼率を高めるためには、ブランケットを削除すること、Pu 富化度を許容される範囲でできるだけ高くしてウランの炉内装荷量を減少させる (内部転換比を下げる) ことが必要である。Pu 富化度増加のための炉心設計対応として、まずは開発課題の少ない炉心扁平化が試みられた。なお、ブランケットを持たない Pu・MA 燃焼炉心ではリサイクルに伴う Pu 同位体組成の劣化 (高次化) への対応を考慮した。

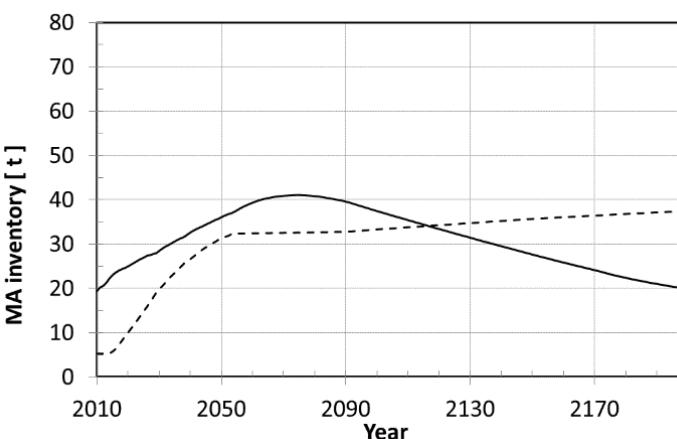
FaCT 実証炉 (750 MWe) の炉心設計をベースに燃料ピン径と取出平均燃焼度をパラメータとした比較の結果、太径燃料 (被覆管外径 10.4 mm)、高燃焼度 (13 万 MWd/t 程度) が炉心設計成立性、経済性、Pu 燃焼率、許容 MA 含有率等の観点で総合的に優れていることが確認された。Pu と MA を合わせた TRU 燃焼率は 200 ~ 300 kg/GWey を達成できる。

図 10 に 2050 年以降 7 基の燃焼炉を導入して Pu と MA を燃焼する場合の長期シナリオ評価例を示すが、高レベル廃棄物側へのリリースを抑制しながら 2200 年までに燃料サイクル内の Pu と MA のインベントリをそれぞれピーク時の半分以下に減少可能な見通しである。

こうして、Pu・MA 燃焼炉心の基本仕様と Pu・MA 燃焼特性等の関係について今後の最適化検討に資する知見が得られつつある。



(a) Pu インベントリ



(b) MA インベントリ

図10 Pu・MA 燃焼炉による Pu・MA インベントリの変化（計算例）

3.3 「もんじゅ」データを活用した MA 核変換の研究

(1) 背景と目的

2014年4月にエネルギー基本計画が閣議決定された。原子力発電を重要なベースロード電源と位置付け、核燃料サイクル政策の堅持とその中核施設である、「もんじゅ」の研究開発継続が示された。国は廃棄物の減容及び有害度低等を目指した研究に関連し、「もんじゅ」や加速器駆動未臨界炉(ADS)を用いた、長寿命放射性廃棄物の短寿命化の研究を進めることが表明された。さらに、文部科学省は、原子力システム研究開発事業「環境負荷低減技術開発」

という国プロを創設し、高レベル廃棄物のうちの MA 等の核変換による有害度低減につながる研究の募集を開始した。福井大学は、日本原子力研究開発機構、京都大学、大阪大学、日立 GE ニュークリア・エナジー(株)と連携して、上記国プロに応募し、2013 年 8 月に正式に採択された⁽¹¹⁾。研究課題名は『「もんじゅ」データを活用したマイナーアクチニド核変換の研究』であり、同年 10 月に研究を開始した。

本研究はナトリウム冷却高速炉 (SFR : もんじゅと同型の炉) による MA 核変換を対象とするものである。SFR は炉心の中性子エネルギーが高く、かつ余剰中性子数が多いことから、MA 核変換に適している。しかしながら、MA 核変換炉心の MA 装荷量と、ナトリウムボイド反応度 (以下、ボイド反応度) やドップラ係数等の炉心安全性に係わる反応度係数は、トレードオフの関係にあり、一般的には安全性確保のために MA 装荷量を抑制している。今後、一層の MA 核変換量や炉心安全性向上を目指そうとすれば、MA 核変換量と炉心安全性との新たな調和点の追求、例えば、MA 核変換量向上を目指しつつ炉心安全性を維持する或いは一層の向上を図るために、反応度係数の改善を図ることのできる炉心概念の追求が必要となる。同時に、MA 核変換炉心の MA 核変換量やその他の核特性の解析精度の向上が極めて重要である。

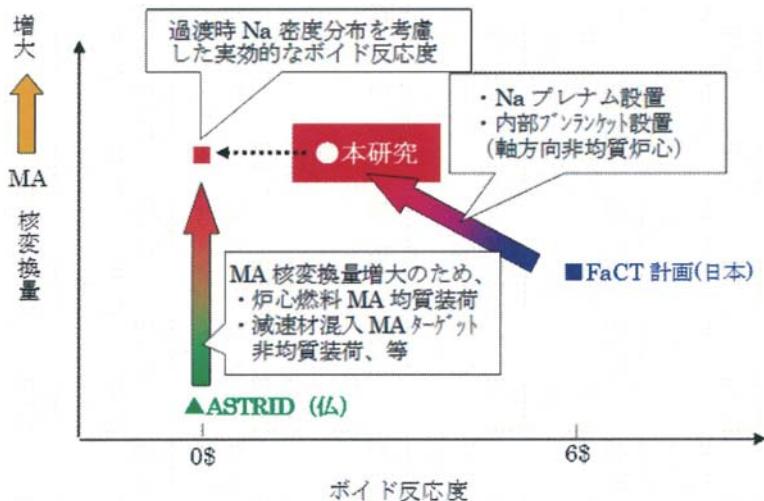


図11 本研究が目指す炉心概念

本研究の目標を図 11 に示す。我が国の高速炉サイクルの実用化研究 (FaCT 計画) で検討されてきた SFR では、MA の炉心燃料への均質装荷が想定されており、主にボイド反応度の制約から MA 含有率 5 wt%程度を上限としている。これに対して本研究が目指す炉心概念では、SFR の炉心上部にナトリウム (Na) プレナムを設けることによって、冷却材流量喪失過渡 (ULOF : Unprotected Loss of Flow Accident) 時の軸方向の冷却材 Na の密度分布を考慮した実効的なボイド反応度を負に保つ設計として、炉心燃料の MA 含有率、従って MA 核変換量増大を図る。一方、Na プレナム等を設けて低ボイド反応度を指向する仏の ASTRID と比べて、

本研究では SFR の炉心燃料への MA 均質装荷や、中性子減速材の利用により核変換効率を高めた MA ターゲットの炉心領域への非均質装荷等の方策により、MA 核変換量の増大を目指す。

(2) MA 核変換炉心概念

本研究における MA 核変換炉心概念の構築では、MA 核変換量と安全性に係わる反応度係数の調和を考慮した革新的で多様な炉心概念を追求している。ここでは、平成 25 年度に構築した MA 均質装荷炉心について、炉心の上部にナトリウムプレナムを設置する等の方策を取り入れつつ設定した基準となる MA 核変換炉心の仕様と、主要な核特性の評価結果を示す。

① 炉心設計条件

本研究における MA 均質装荷炉心の設計条件を、FBR サイクル実用化研究開発 (FaCT) におけるナトリウム冷却高速炉 (JSFR) についての検討⁽¹²⁾を参考として独自に設定した。JSFR では安全性の確保を前提に、発電炉として重要な持続可能性（資源有効利用性、環境負荷低減性を含む）、経済性、核拡散抵抗性のバランスをとった設計条件を設定している。本研究では、発電は行うものの MA の核変換を主な目的とした炉心を構築するために、安全性と環境負荷低減性の向上に重点を置くものとし、増殖比に代表される資源有効利用性や燃焼度や運転サイクル長さで表される経済性についての設計要求は JSFR に比べ緩和させるものとした。

本研究における設計条件を表 1 に示す。以下その設定根拠を述べる。

1) プラント仕様

プラントとの取合条件は、JSFR 実証炉^(13,14)のものと同一とした。経済性を追求して大型化を指向する必要のないこと、また、炉心偏平化やプランケット領域の核変換への利用の観点からも 750 MWe クラスの中型炉を選ぶものとした。当面の検討ではプラントとの取合条件を JSFR 実証炉と同一とするが、MA 核変換へのメリットが見込める場合には、取合条件の変更も視野に入れるものとする。

2) 炉心型式

炉心型式は、川島らによって初めて提案された低ボイド反応度型（軸方向非均質、階段型、ナトリウムプレナム付き）⁽¹⁵⁾を検討するものとした。低ボイド反応度を指向するため、内部ダクトによる CDA 遷移過程における溶融燃料排出が期待できなくなることから、内部ダクトは設置しない。

3) 燃料組成

本研究で用いる燃料組成条件を表 2 に示す。MA 核変換炉心の 2050 年頃の導入を想定し、同時期の入手量が最も多いと考えられる高燃焼度軽水炉の使用済燃料から回収される TRU 組成を標準組成とした。BWR と PWR の使用済ウラン燃料（取出平均燃焼度 60 GWh/t、冷却貯蔵期間 30 年）を新燃料 U 重量換算で 1 : 1 混合したものから回収した TRU 組成であり、TRU (LWR60G-30y) と表記する。

なお、サーベイ計算においては、現行軽水炉の使用済燃料から回収した TRU 組成を用いた

場合の炉心特性への影響についても調べるものとし、BWR と PWR の使用済ウラン燃料（取出平均燃焼度 45 GWd/t、冷却貯蔵期間 40 年）を新燃料 U 重量換算で 1 : 1 混合した TRU（LWR45G-40y）も対象とした。

これら使用済燃料からの TRU 回収には、新規再処理施設における先進湿式法による再処理を仮定した。すなわち、Np は Pu と共に抽出され、U+Pu+Np 製品として得られる。一方、Am と Cm（RE の一部を随伴）は一旦分離した後に U+Pu+Np 製品に混合される。これより、炉心設計における Pu 富化度調整において Np は Pu とともに増減する。また、MA 含有率の調整は Am+Cm の添加量を変えることで行う。

随伴 FP については、暫定的に JSFR での設定と同一とし、FP 混入率 0.2 vol%、Nd-143 を代表核種とした FP 等価係数を 3 とした。

4) 安全要求

JSFRにおいては ULOF 起因過程における即発臨界回避のため、ナトリウムボイド反応度 6 \$ 程度以下、炉心高さ 100 cm 以下、炉心平均比出力 40 kW/kg-MOX 程度以上の安全要求が設定されている。本研究での安全要求は、低ボイド反応度炉心に対応した全く異なるものになると考えられるが、上部ナトリウムプレナム設置によるボイド反応度低減効果や CDA 事象推移について十分な知見が得られているわけではなく、明確に安全要求を設定できるだけの技術的レベルにはない。

そこで、現段階では、過渡時の冷却材密度分布を考慮した炉心部から上部ナトリウムプレナムまでの実効的なボイド反応度を 0 以下とすることを条件に設定し、その条件下でなるべく MA 含有率を増やし MA 変換量を可能な限り増加させる。なお、ドップラ係数については、絶対値が JSFR の設計値から大幅に減少しないようにする。

5) 許容線出力

表 3 に、Am 含有 MOX 燃料の融点と熱伝導率の測定値に基づき設定した MA 含有燃料の定格時許容線出力の評価値⁽⁶⁾を示す。本研究で用いる MA 含有燃料の許容線出力は、上記文献情報を参考に、Pu+Np 含有率 [wt%] と Am+Cm 含有率 [wt%] の 2 つのパラメータについての最小二乗フィッティングにより評価する。MA 含有率の高い場合についても、上記の最小二乗フィッティングを暫定的に外挿して用いるものとする。

6) 燃料崩壊熱

JSFRにおいては、燃料製造、燃料輸送、使用済燃料の再処理施設への受入れ等の観点から、新燃料崩壊熱と使用済燃料崩壊熱に上限目安が設定されている。本研究では MA リサイクルの自由度を増す観点から制限を設けないことにすると、新燃料及び使用済燃料の崩壊熱への影響を把握し、MA リサイクルと燃料製造・取扱いにおける得失評価ができるよう情報を整理する。

7) 炉心性能目標

MA の核変換量を可能な限り増加させるため、増殖比、取出平均燃焼度、運転サイクル長さに

についての性能目標を低下させた。増殖比は持続可能性の観点で最低限必要な 1.0 以上（計算上は余裕を含めて 1.03 以上）、取出平均燃焼度は先行炉である「もんじゅ」や Phénix を上回る 80 ~ 100 GWd/t 程度以上、運転サイクル長さは現行軽水炉を上回る 13 ヶ月以上を条件とした。

②上部ナトリウムプレナム付き MA 均質装荷炉心の仕様選定

JSFR の炉心燃料集合体の内部ダクトをなくし、燃料ピンに置き換えた従来型炉心からスタートし、本研究における炉心概念と同様の低ボイド反応度型炉心である ASTRID のレファレンス炉心 CVF の検討例^(17,18)を参考に、炉心の仕様を設定した。

ナトリウムプレナム厚さや、内側・外側炉心の段差、内部ブランケット厚さと軸方向の位置等の主要なパラメータについての広範なサーベイを行い、MA 均質装荷基準炉心の仕様を設定し、核特性を評価した。核特性は、JENDL-4.0⁽¹⁹⁾に基づく高速炉用炉定数セット JFS-3-4.0⁽²⁰⁾を用い、SLAROM-UF コード⁽²¹⁾で作成した 70 群の実効断面積を用い、CITATION コード⁽²²⁾の 2 次元 RZ 体系拡散燃焼計算によって評価した。表 4 に MA 均質装荷基準炉心の主要な仕様と核特性を示す。また、炉心の水平断面を図 12 に、垂直断面を図 13 に、それぞれ示した。

MA 核変換量について MA 含有率を変数としてプロットしたものを図 14 に示す。MA 含有率に比例して MA 核変換量が増加する様子がわかる。TRU 組成の違いによる影響は、ほとんど見られなかった。

ナトリウムボイド反応度の評価結果を図 15 に示す。炉心部からナトリウムプレナムにかけての合計値で見た場合、従来型炉心に比べ 3 \$ 程度の大幅な低減を期待できることがわかる。また、MA 含有率とともにボイド反応度は増加するが、燃料組成の違いによる影響は小さい。実効的ボイド反応度の評価は暫定的な評価を行った。すなわち、炉心上部（上部ガスプレナム・端栓、ナトリウムプレナム）におけるボイド率を 100% とし、炉心部（内部ブランケット含む）のボイド率をパラメータにとって実効的ボイド反応度が 0 以下とできる範囲を調べた。結果を図 15 に示すが、炉心部ボイド率 30 ~ 50% の間で実効的ボイド反応度を 0 とできる見込みが得られた。しかしながら、実効的ボイド反応度は、炉心部のボイド率やボイド反応度に対するナトリウムプレナム領域の輸送効果（ここでは暫定的に補正係数 0.8 を適用）の感度が大きく、MA 含有率の違いによる感度はむしろ小さい。そのため、冷却材密度分布評価の反映やボイド反応度自体の詳細評価が不可欠であり、今後検討する。

なお、ドップラ係数については内部ブランケットの寄与も含めるものとすれば、従来型炉心からの大幅な悪化は生じない見込みである。

表1 MA 均質装荷炉心の設計条件

項目			設計条件	
			JSFR	本研究
プラント仕様	電気出力		750 MW _e	←
	炉心熱出力		1,765 MW _t	←
	原子炉出口／入口温度		550 / 395 °C	←*1
炉心燃料基本仕様	燃料形態		MOX	←
	炉心型式		均質2領域	低ボイド反応度型
	燃料組成	重金属	2025年の実証炉運転開始を想定し、高除染U-Pu燃料及び低除染TRU燃料 ^{*2} の組成変動幅を設定。	2050年頃の軽水炉使用済燃料回収TRU組成(取出平均燃焼度6万MWd/t,冷却貯蔵期間30年) ^{*2}
		随伴FP	低除染TRU燃料の場合、FP混入率0.2 vol%を暫定(¹⁴³ Ndを代表核種としたFP等価係数を設定) ^{*2}	左記に加え、上記組成に随伴するFP混入率とFP等価係数を設定 ^{*2}
	被覆管/ラッパ管材料		ODS鋼/PNC-FMS鋼	
制限条件	安全要求	ボイド反応度	6 \$程度以下	過渡時の冷却材密度分布を考慮した炉心部からナトリウムプレナムまでの実効的なボイド反応度が0以下
	燃料健全性	定格時許容線出力	430 W/cm	Pu+Np含有率、Am+Cm含有率をパラメータとした最小二乗フィッティングにより暫定
炉心性能目標	増殖比		導入期: 1.1, 平衡期: 1.03	1.03以上 ^{*3}
	取出平均燃焼度	炉心部	150 GWd/t	80~100 GWd/t程度以上 ^{*3}
	MA核変換特性	MA含有率	炉心部: 1~5 wt%	可能な限り増加 (径方向プランケットへのMA含有率上限は20 wt%を目安とする。)

*1 当面の検討ではプラントとの取合いをJSFRと同一とするが、MA核変換へのメリットが見込める場合には変更も視野に入る。

*2 新規再処理施設における先進湿式法による再処理を仮定: NpはPuと共に抽出する。Am+CmはU+Pu+Npから一旦分離した後に混合する(Am+Cmの混合によってMA含有率を調整する)。FP(希土類元素の一部)はAm+Cmに随伴する。

*3 MA変換量を可能な限り増加させるため、増殖比、取出平均燃焼度、運転サイクル長さについての性能目標を低下させる。取出燃焼度は先行炉である「もんじゅ」やPhénixを、運転サイクル長さは現行軽水炉を上回るものとした。

表2 燃料組成条件(軽水炉使用済燃料回収 TRU 組成) [wt%]

核種	標準組成	
Np-237	6.8	5.6
Pu-238	3.2	2.0
Pu-239	42.7	47.8
Pu-240	23.2	22.5
Pu-241	3.1	1.8
Pu-242	8.3	6.9
Am-241	10.3	11.8
Am-242m	0.009	0.008
Am-243	2.0	1.5
Cm-242	0.000	0.000
Cm-243	0.005	0.003
Cm-244	0.34	0.14
Cm-245	0.08	0.04
Cm-246	0.011	0.004

*1 BWR と PWR の使用済ウラン燃料(取出平均燃焼度60GWd/t、冷却貯蔵期間30年)を新燃料 U 重量換算で1:1混合

*2 BWR と PWR の使用済ウラン燃料(取出平均燃焼度45GWd/t、冷却貯蔵期間40年)を新燃料 U 重量換算で1:1混合

表3 MA 含有 MOX 燃料の定格時許容線出力評価例⁽⁶⁾

(スマア密度 82 %TD (ペレット密度 95 %TD)、中空燃料)

評価ケース	Pu+Np 含有率 [wt%]	Am+Cm 含有率 [wt%]	定格時許容線出力 [W/cm]	
			寿命初期	寿命末期
Case-1	18.4	0.8	442	398
Case-2	21.0	0.9	438	396
Case-3	21.5	1.1	435	394
Case-4	24.3	0.8	433	394

表4 MA均質装荷基準炉心の主要炉心仕様・核特性

項目		MA均質装荷基準炉心
炉心基本仕様	電気出力 [MWe]	750
	炉心熱出力 [MWt]	1765
	炉心型式	低ボイド反応度型 (軸方向非均質、階段型、ナトリウムプレナム付き)
	運転サイクル長さ [ヶ月]	18.6
	燃料交換バッチ数 (炉心/径方向ブランケット)	6 / 6
	炉心高さ (内側炉心/外側炉心) [cm]	60 / 90
	内部ブランケット厚さ [cm]	20
	軸方向ブランケット厚さ (上部/下部) [cm]	— / 30
	ナトリウムプレナム厚さ (内側炉心/外側炉心) [cm]	40 / 30
	炉心燃料集合体数	内側炉心 244
		外側炉心 108
		合計 352
	径方向ブランケット燃料集合体数	72
	制御棒本数	主炉停止系 21
		後備炉停止系 6
	集合体配列ピッチ [mm]	206.0
	炉心等価直径 [cm]	421
炉心主要特性	燃料組成	TRU (LWR60G-30y)
	炉心燃料HM組成 (内側炉心/外側炉心) [wt%]	Pu富化度 (Pu/HM) 26.8 / 26.2
		TRU富化度 (TRU/HM) 33.3 / 32.6
		MA含有率 (MA/HM) 6.5 / 6.4
	相伴FP含有率 (内側炉心/外側炉心) (FP/HM) [wt%]	0.2 / 0.2
		(0.14 / 0.14)
	取出平均燃焼度 [GWd/t]	炉心 150.1
		内部ブランケット 69.9
		軸方向ブランケット 16.8
		径方向ブランケット 9.2
		全炉心 77.0
	燃焼反応度 [%Δk/kk]	0.74
	増殖比	1.12
	定格時許容線出力 (内側炉心/外側炉心) [W/cm]	400 / 399
	最大線出力 ^{*1} (内側炉心/外側炉心) [W/cm]	388 / 390 (381 / 400) ^{*2}
ナトリウムボイド反応度 ^{*3} (平衡末期) [‰]	最大高速中性子照射量 ^{*1} (E>0.1MeV) [10 ²³ n/cm ²]	4.4
	炉心	4.6
		内部ブランケット 1.5
		上部ガスプレナム・端栓 -0.4
		ナトリウムプレナム -2.0
	合計	3.6
	ドップラ係数 ^{*4} (平衡末期) [10 ⁻³ Tdk/dT]	炉心 -2.4
		内部ブランケット -2.4
		合計 -4.8
	MA変換量 [kg/GW _{th}]	105
	MA取出変換率 [%]	36

^{*1} 3次元計算結果^{*2} 制御棒挿入時 (PCR 40cm均等挿入)^{*3} ラッパ管間ギャップの冷却材は非ボイド。炉心及び内部ブランケット部の非均質効果補正 0.97(暫定)、上部ガスプレナム・端栓・ナトリウムプレナム部の輸送効果補正 0.8(暫定)を考慮。^{*4} 非均質効果補正 1.05(暫定)を考慮。

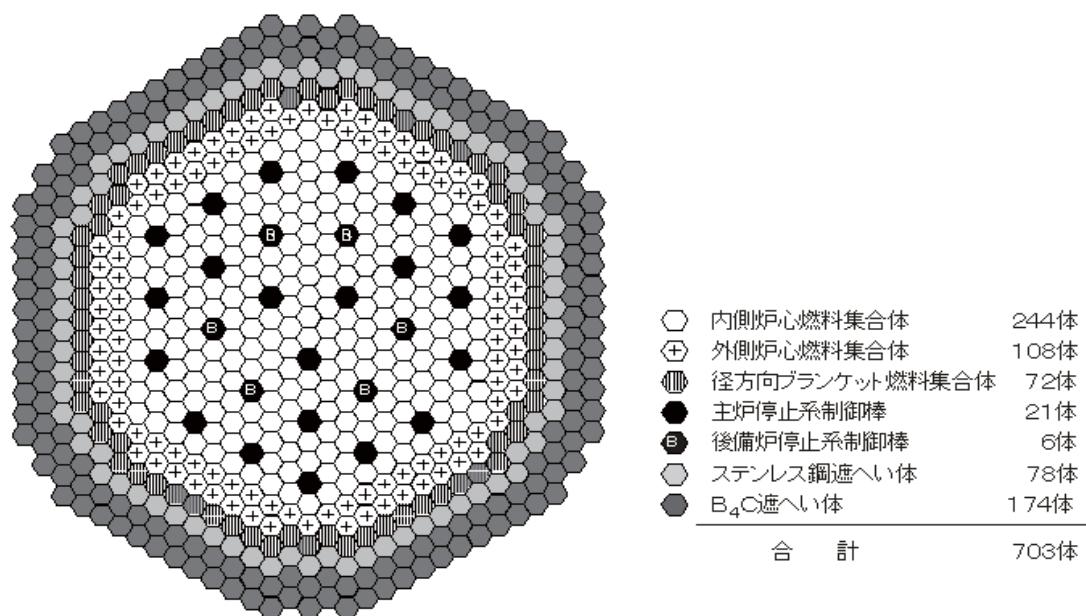


図12 MA 均質装荷基準炉心の水平断面

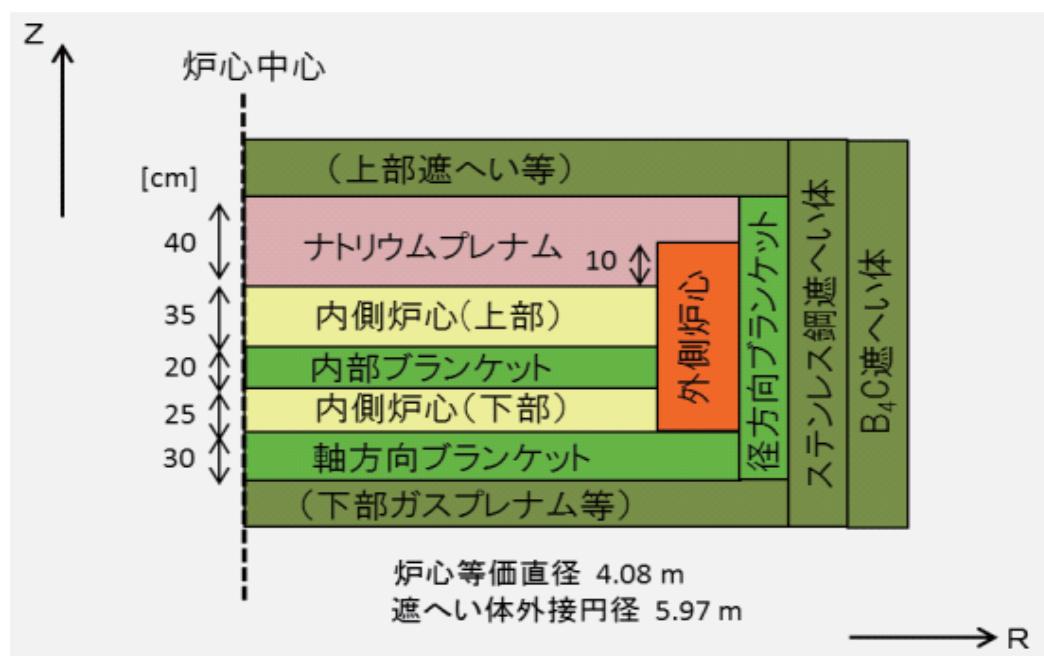


図13 MA 均質装荷基準炉心の垂直断面

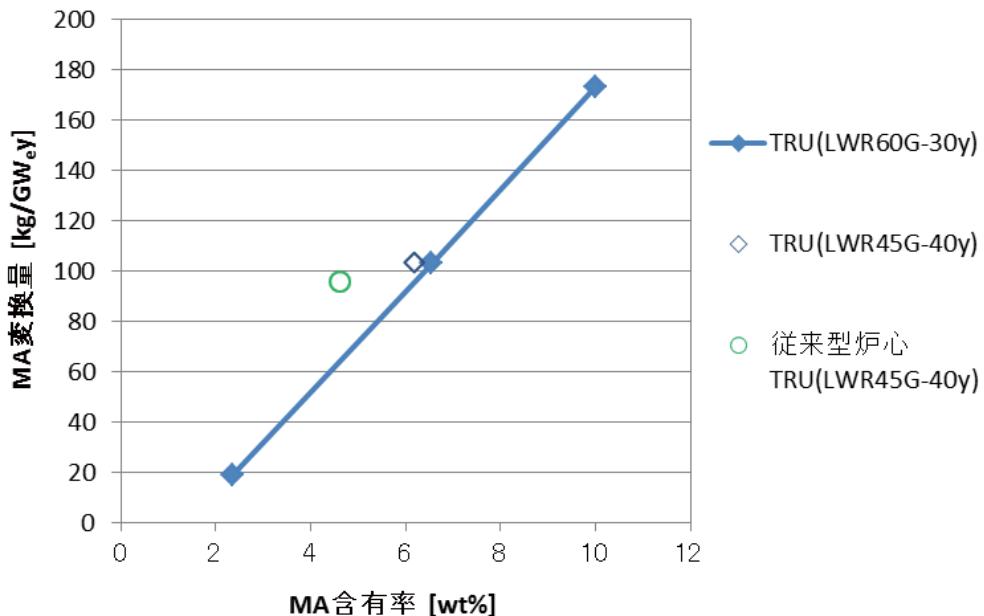


図14 MA 均質装荷炉心の MA 核変換特性

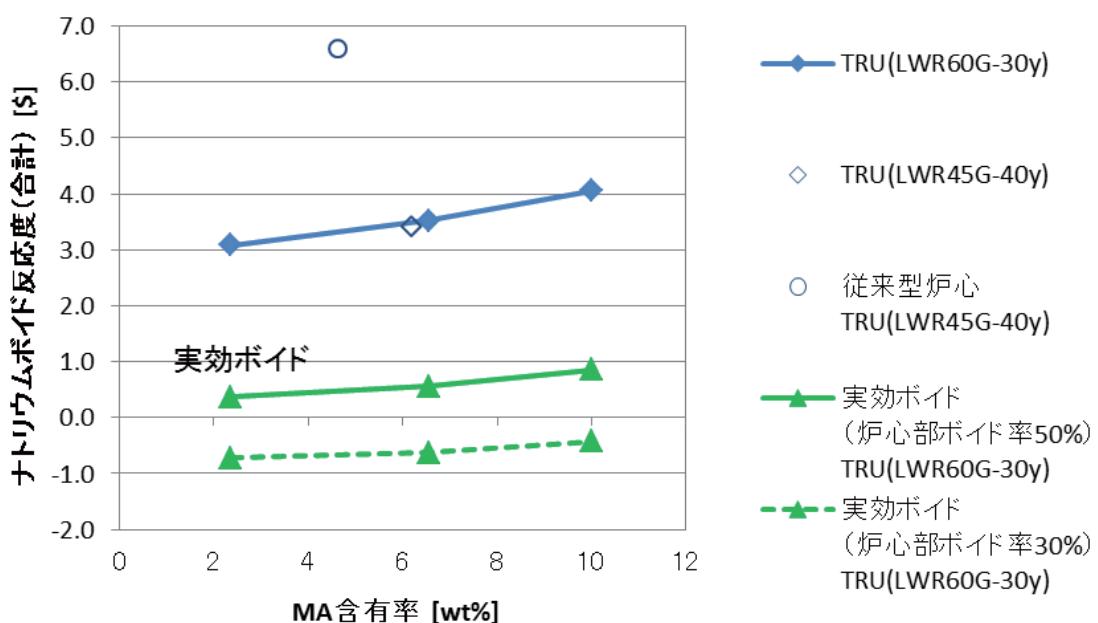


図15 MA 均質装荷炉心のナトリウムボイド反応度

(3) MA 核変換量の計算システムの開発

2. で示した、詳細な MA 核変換の定義に基づき、MA 核変換プロセスに着目した核変換量計算システムを構築した。核種ごとの核変換量の式を図 16、17 に示した MA 核変換用 SFR に適用し、核種ごとの核変換量を計算した。炉心は図 17 に示したようにナトリウムプレナムおよび内部プランケット領域を持っており、炉心の Pu 富化度は内側、外側炉心で表 5 に示したように 26.5、27.7 wt% であり、MA 含有量は 6.4、6.7 wt% である。電気出力は 750 MW であり、ここではまず 1 年間の燃焼での核変換量を計算した。MA 核種の燃焼前後の計算結果を表 6 に示す。

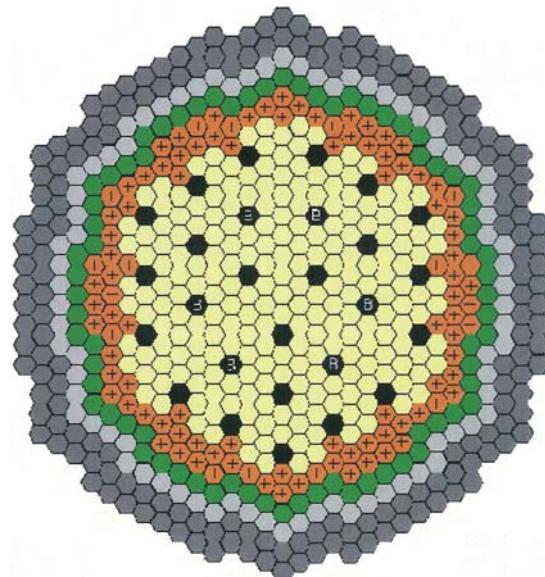


図16 MA 装荷炉心配置

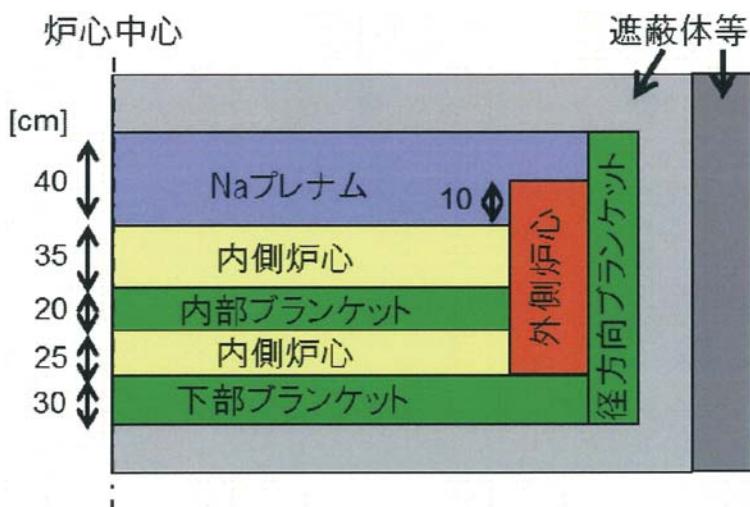


図17 MA 装荷炉心 RZ 方向体系

表5 燃料組成及び計算条件

燃料組成		TRU(LWR60G-30y)
炉心燃料 HM 組成 (内側 / 外側) [wt%]	Pu 富化度(Pu / HM)	26.5 / 27.7
	MA 含有率(MA / HM)	6.4 / 6.7
炉心熱出力 [MWth]		1765
燃焼期間 [day]		365.25

表6 燃焼後の各核種生成量の比較

燃焼前の核種 及び重量(kg)	Np-237	Am-241	Am-243	計算核種すべての合計
	5.222E+02	1.111E+03	1.398E+02	2.734E+04
燃焼後 の核種 及び 重量 (kg)	U-235	1.727E-03	8.506E-04	1.977E-07
	U-236	1.446E-05	5.983E-06	6.999E-06
	U-237	1.057E-08	4.344E-09	4.778E-09
	Np-237	4.696E+02	1.567E+00	5.075E-08
	Np-238	3.324E-01	1.102E-03	1.072E-10
	Pu-238	3.945E+01	3.232E+01	1.440E-03
	Pu-239	6.896E-01	4.311E-01	1.149E-02
	Pu-240	6.753E-03	3.573E-03	1.997E-01
	Pu-241	5.504E-05	4.007E-04	1.960E-03
	Am-241	5.300E-07	9.905E+02	2.371E-05
	Am-242	1.379E-10	2.108E-01	9.530E-06
	Am-242m	1.522E-09	1.347E+01	7.537E-08
	Am-243	1.809E-09	3.539E-01	1.270E+02
	Cm-242	5.849E-09	3.390E+01	1.521E-03
	Cm-243	4.559E-11	9.226E-01	1.372E-04
	Cm-244	8.491E-11	1.861E-02	1.044E+01
核分裂による消滅分		1.216E+01	2.283E+01	2.003E+00
				6.300E+02

表7 MA 核変換量及び各成分の比較

	Np-237	Am-241	Am-243	合計
TR*	5.060E+01	6.226E+01	-1.263E+01	9.853E+01
OF	1.216E+01	2.283E+01	2.003E+00	3.809E+01
PU	4.030E+01	4.719E+01	2.152E-01	8.817E+01
PUM	1.852E+00	7.762E+00	1.485E+01	2.773E+01

* TR=OF+PU-PUM

表 6 より Np-237、Am-241、Am-243 は燃焼前で 522.2 kg、1111.1 kg、139.8kg の量であるが、1 年間の燃焼により、それぞれ、469.6 kg、990.5 kg、127.0 kg に減少することが分かる。

個々の MA ごとに調べると、Np-237 については Pu-238 が 39.5 kg 生成されるが、その他の MA 核種の生成は殆どないことが分かる。

Am-241 に対しては、1 年間の燃焼で 32.3 kg の Pu-238 が生成されるが、そのほか Pu-242 が 14.3 kg、Am-242m が 13.5 kg、Cm-244 が 33.9 kg 生成されており、Np-237 に比べると高次の MA の生成量が多いことが分かる。

Am-243 に対しては Cm-244 が 10.4 kg 生成されている。

このように個々の MA の核変換の振る舞いは異なっており、それぞれの核変換率及びその成分は表 7 のようになる。TR は核変換量、OF は全核分裂量、PU は初期に装荷されたそれぞれの MA がプルトニウム（或いはウラン）に核変換される量、PUM は初期に装荷されたプルトニウムが今考えている MA に核変換される量を示している。OF には初期に装荷された MA の核分裂量のほか、その MA が核変換により一旦他の MA 或いはプルトニウムに変換された後核分裂する量も含まれている。核変換量 TR は $TR=OF+PU-PUM$ により与えられる。表 7 の TR の成分を見ると、Np-237 は OF が 12.2 kg であるが、プルトニウム生成量（PU）が 40.3 kg あり、このため Np-237 の TR は 50.6 kg と Am-241 の 62.3 kg にくらべそれほど少くない。Am-241 は OF が 22.8 kg と多いが PU は Np-237 とあまり変わらず、PUM が 7.7 kg と多いため全体の TR がそれほど大きくなっていないことが分かる。Am-243 に対しては核変換量が負になっている。これは OF が 2.0 kg と少なく、またプルトニウムから Am-243 への核変換量が 14.9 kg と他の成分にくらべ大きいためである。結局、核変換には Np-237 と Am-241 が主要な寄与をするが、それぞれの成分は大きく異なっていることが分かった。

4. 国外における研究

(1) フランスの状況⁽²³⁾

フランス原子力・代替エネルギー庁（CEA）は、放射性物質及び放射性廃棄物の持続可能な管理に関する法律（2006 年）に基づき、付加価値を有する物質の再利用ならびに核変換対象廃棄物の核変換に特化した第 4 世代原子力システムの研究を、国内外の公的研究機関および原子力企業と共同で実施している。使用済燃料に含まれる U 及び Pu をリサイクルする高速炉の使用をベースとしたシステムの開発により、温室効果ガスを排出せずに電力を生産する将来の見通しが提示され、安全かつ経済競争力があり、核物質の持続可能な管理という目的を達成することができるとしている。また、長期的なエネルギー供給保障だけでなく、産業競争力や雇用の観点からも同開発は国益にかなうとしている。

フランスは、ナトリウム冷却高速炉を第 4 世代高速炉のレファレンス概念に、ガス冷却高速炉を代替概念としており、豊富な実績に基づく産業的成熟度、将来開発への道筋が明確といった

本質的な優位性の組み合わせにより、前者を今世紀前半における最良の解決策と位置づけている。

実用化に向けた必須のステップとして、60 万 kWe の総合技術実証炉 ASTRID (Advanced Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration) の開発プロジェクトが進行中である。早く 2017 年には詳細概念設計を完了し、2020 年代前半の運転開始を目指した建設開始の可否を判断するものとしている。

ASTRID では負のナトリウムボイド反応度係数を持った革新的な炉心概念 (CFV: Coeur à Faible Vidange) をレフアレンスに採用している。CFV は内部ブランケットを持つ軸方向非均質炉心であり、内側炉心と外側炉心の間に段差をつけ、心上部にナトリウムプレナムを設置、軸方向上部への極端な中性子漏洩によって、ナトリウムボイド反応度を大きく低減させている。ナトリウムボイド反応度の低減によって過渡時の事象推移が緩慢となり、原子炉停止操作等の対応に時間的余裕を得ることが期待されている。

我が国の高速炉開発の主力部隊(原子力機構、プラントメーカ)も ASTRID の炉システム設計や関連する R&D の一部を担うべく実質的な参画を開始している。2014 年 5 月 5 日の日仏首脳会談において高速炉の研究開発の協力促進で合意、同年 8 月 7 日、「仏国次世代炉計画及びナトリウム高速炉の協力に関する実施取決め」を締結した。

フランスにおける実用高速炉の導入については、2040 年頃に第一段階として基数を限定して導入し既存の軽水炉と併存させ、第二段階として大規模に導入する段階的アプローチが提案されている。高速炉は核物質管理の観点から柔軟性が極めて高い。必要に応じて、外部のウラン資源に頼らずに発電容量を増加することが可能であるし、遠い将来に高速炉をフェードアウトする場合には、燃焼炉モードにより核物質のインベントリを減らすことが可能である。

MA の核変換は、深地層処分場の必要性を排除するものではないが、高レベル廃棄物の貯蔵領域を 1/10 に縮小する可能性や、数世紀後の廃棄物の放射性毒性を 1/100 まで減少させられることから、長期的視点に立ち発展の道を開く可能性があるとしている。

MA のリサイクル方法として、均質モードと非均質モードの双方が検討されている。結果として、均質モードでは MA 添加による工学的不利益が燃料全体に及ぶことになるため、積極的な MA 均質装荷は行わず、炉心燃料の MA 含有率を 1 ~ 2% 程度に制限している。その代替として、炉心外周の径方向ブランケットへの Am 非均質装荷 (母材 UO₂) を挙げている。ここで、燃料製造や輸送における発熱や放射線の影響を避けるため、実用化には多くの課題克服が必要と考えられるが、Cm を分離可能な技術 (Exam スキーム : 実験室レベルまで実証済み) を採用し、Am のみをリサイクルするものとしている。MA 装荷ブランケットでの MA 含有率としては 10 ~ 20 % 程度が考えられている。なお、かつては減速材付きターゲットによるワンススルー燃焼方式 (不活性母材 MgO を使用) も提案されていたが、不活性母材の開発課題が大きく、現在の優先度は低い。

MA の核変換の実現可能性は、高速炉の炉心部において、均質モードでの数個のペレット規模で実証済みである。非均質モードでの炉心周辺部における核変換については最初の照射試験の分析が進められている。

高速炉における核変換の工学規模での実施効果を評価した結果、高レベル廃棄物の貯蔵領域の減少によるメリットが示された一方、核燃料サイクルにおけるハンドリングの悪化に伴うデメリットも示されている。高速炉の発電コストへの核変換の影響は 5%から 10%程度と報告されている（発電コストの大部分が炉のコストによって決まるため、核変換オプションの導入によって受ける影響が限定的であった）。工学的規模での核変換を実施するにあたっては、特に MA 含有燃料の製造と取扱いの観点での研究開発努力が必要としている。

5. 結言

ナトリウム冷却高速炉で、かつ MOX 燃料を使用する場合に限定し、高レベル放射性廃棄物中の長寿命核種であるマイナー・アクチニド（MA）を高速炉を使って核変換する研究を調査した。国内については「もんじゅ」や実用化研究開発における検討例を概観し、国外における研究例として、仏の ASTRID の概要を述べた。さらに、廃棄物の有害度低減に関する文部科学省の公募研究で実施している、MA 核変換高速炉、特に均質装荷炉心について、少しでも多くの MA 核変換と安全性の調和を目指し、炉上部ナトリウムプレナムを設置して実効的なボイド反応度負を目指した設計例を示した。さらに、MA 核変換量の詳細な定義と、それに基づく核変換プロセスに着目した核変換量の計算システムと、その検証結果を示した。

【参考文献】

- (1) “Accelerator-driven systems (ADS) and fast reactors (FR) in advanced nuclear fuel cycles,” URL <http://www.oecdnea.org/ndd/reports/2002/nea3109.html>, OECD/NEA AEN, (2002).
- (2) 「放射性廃棄物の分離変換技術にどこまで期待できるか?「分離変換サイクル」研究専門委員会活動報告に代えて」, 日本原子力学会誌 , Vol.50, No.3, pp.158–163, (2008).
- (3) 照山英彦 他, 「もんじゅ」高度化炉心における MA 照射試験概念の検討」, 日本原子力開発機構 , サイクル 機構技報 No.2 (資料番号 : 20-5), (2003, 9).
- (4) 此村 守, 「もんじゅ」を中心に据えた GACID 国際共同研究プロジェクト – 将来世代のエネルギー選択肢を 広げる技術の提供」, 日本原子力学会誌 , Vol.54, No.5 (2012).
- (5) T. Mizuno and H. Niwa, “Advanced MOX Core Design Study of Sodium-Cooled Reactors in Current Feasibility Study on Commercialized Fast Reactor Cycle Systems in Japan,” Nucl. Tech., 146, 155 (2004).
- (6) S. Ohki, et al., “Design Study of Minor-Actinide-Bearing Oxide Fuel Core for Homogeneous TRU Recycling Fast Reactor System,” Proc. Tenth Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, October 6–10, 2008, Mito, Japan (2010).
- (7) 日本原子力研究開発機構, 「高レベル放射性廃棄物処分への分離変換技術の導入意義」, 原子力委員会 研究開発専門部会 第1回分離変換技術検討会, 平成 20 年 9 月 19 日 .
- (8) S. Ohki, et al., “Fast Breeder Reactor Core Concept for Heterogeneous Minor Actinide Loading,” J. Nucl. Sci. Tech., 50, 59 (2013).
- (9) 大木 繁夫, 大島 宏之, 「高速炉を用いた Pu・MA 燃焼の研究 –(1) 炉心概念–」, 日本原子力学会 2014 年 秋の大会 , L11 (2014).
- (10) 向井田 恭子 , 他, 「高速炉を用いた Pu・MA 燃焼の研究 –(2) 長期シナリオ評価–」, 日本原子力学会 2014 年秋の大会 , L12 (2014).
- (11) 平成 25 年度「原子力システム研究開発事業」採択課題 , JST ホームページ
http://www.mext.go.jp/b_menu/boshu/detail/_icsFiles/afldfile/2013/08/09/1338263_01.pdf.
- (12) H. Niwa, K. Aoto, M. Morishita, “Current Status and Perspective of Advanced Loop Type Fast Reactor in Fast Reactor Cycle Technology Development Project,” Proc. Int. Conf. Advanced Nuclear Fuel Cycles and Systems (2007), pp.62–70, September 9–13, 2007, Boise, Idaho, US (2007).
- (13) 大久保 努, 大木 繁夫, 小倉 理志, 大久保 良幸, 「高速増殖実証炉に向けた炉心概念検討(1)全体概要」, 日本原子力学会 2010 年秋の大会 , P30, 2010 年 9 月 15 日 ~ 17 日 , 北海道大学 (2010).
- (14) 小倉 理志, 森脇 裕之, 大久保 良幸, 大木 繁夫, 大久保 努, 「高速増殖実証炉に向けた炉心概念検討(2) 炉心設計」, 日本原子力学会 2010 年秋の大会 , P31, 2010 年 9 月 15 日 ~ 17 日 , 北海道大学 (2010).
- (15) K. Kawashima, K. Fujimura, K. Kurihara, K. Kaneko, “Study of the Advanced Design for Axially Heterogeneous LMFR Cores,” Proc. Int. Conf. Fast Reactors and Related Fuel Cycles (FR' 91), Vol.I, p3.3, October 28 – November 1, 1991, Kyoto, Japan (1991).
- (16) M. Naganuma, T. Ogawa, S. Ohki, T. Mizuno, S. Kotake, “Minor Actinide-Bearing Oxide Fuel Core Design Study for the JSFR,” Nucl. Tech., 170 (1), 170–180 (2010).
- (17) P. Sciora, et al., “Low Void Effect Core Design Applied on 2400 MWth SFR Reactor,” Proc. Int. Conf. ICAPP 2011, pp.487–495, May 2–5, 2011, Nice, France (2011).
- (18) M.S. Chenaud, et al., “Status of the ASTRID Core at the End of the Pre-conceptual Design Phase 1,” Proc. Int. Conf. on Fast Reactors and Related Fuel Cycles: Safe Technologies and Sustainable Scenarios (13), March 4–7, 2013, Paris, France (2013).
- (19) K. Shibata, et al, “JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering,” J. Nucl. Sci. Technol., 48 (1), 1–30 (2011).
- (20) 杉野 和輝ほか, 「JENDL-4.0 に基づく高速炉用炉定数 UFLIB.J40 及び JFS-3-J4.0 の作成」, JAEA-Data/ Code 2011-017, 日本原子力研究開発機構 (2011).
- (21) T. Hazama, et al., “Development of a Fine and Ultra-Fine Group Cell Calculation Code SLAROM-UF for Fast Reactor Analyses,” J. Nucl. Sci. Tech., 43, 1, pp.908–918 (2006).
- (22) T.B. Fowler, D.R. Vondy, “Nuclear Reactor Core Analysis Code: CITATION,” ORNL-TM-2496, Rev.2 (1970).
- (23) “Rapport sur la gestion durable des matières nucléaires” , URL <http://www.cea.fr/energie/rapport-sur-la-gestion-durable-des-matières-nucléaires-106009>, CEA (2012).

第3章 ADS による核種分離・転換

1. 背景と位置づけ

我が国では、高レベル放射性廃棄物の処分に係る負担の軽減を目指し、1988年、原子力委員会が世界に先駆けて「群分離・消滅処理研究開発長期計画」⁽¹⁾（通称オメガ計画^(脚注)）を策定し、分離変換技術に関する研究開発が本格化した。オメガ計画は、主に、再処理で生じる高レベル廃液をいくつかの群に分ける群分離工程に関する研究開発と、原子炉や加速器を用いた核変換（当時は「消滅処理」と呼んだ。）技術に関する研究開発で構成された。この内、核変換技術に関しては、専焼高速炉及び陽子線加速器を用いる方法を旧日本原子力研究所（以下、原研という。）が、商用酸化物燃料高速炉及び電子線加速器を用いる方法を旧動力炉・核燃料開発事業団（以下、動燃という。）が、金属燃料高速炉を用いる方法を電力中央研究所（以下、電中研という。）がそれぞれ担当して研究開発を進めることとされた。本章で中心的に述べる加速器駆動システム（Accelerator Driven System: ADS）による核変換技術は、後述するように旧原研が担当した専焼高速炉と陽子線加速器による方法を融合させたものであり、その研究開発は、現在の日本原子力研究開発機構（以下、原子力機構といふ。）に引き継がれてきた。

オメガ計画では定期的なチェック・アンド・レビュー（以下、C&Rといふ。）を行いつつ、研究開発を進めることができられており、第1回目⁽²⁾が1999年から2000年にかけて、第2回目⁽³⁾が2008年から2009年にかけて原子力委員会において行われた。

旧原研では、オメガ計画に従い、マイナーアクチノイド（MA）を集中的に核変換するためのシステムを中心に研究開発が実施された。MAを効率良く核変換するためには、MAを主成分とする燃料で高速中性子による臨界体系を構築し、高速中性子によるMAの核分裂連鎖反応を利用することが合理的であり、鉛冷却やヘリウム冷却の専焼高速炉の概念検討が進められた。しかしながら、MAを主成分とする燃料を臨界炉で使うと、臨界状態の安定な制御に欠かせない遅発中性子割合が小さくなり過ぎてしまう点や、事故時の安全性を左右する冷却材ボイド反応度が大きな正の値になってしまふ等の問題点があることが分かってきた。

一方、旧原研では、並行して、陽子線加速器でMAに直接的に陽子を照射する方法や、高エネルギー陽子を重金属に照射したときに起こる核破碎反応で生じる高速中性子をMAに照射して核変換する方法も検討されてきた。しかしながら、陽子の加速に要するエネルギーが大きくなり過ぎてしまい、経済的に厳しいことが分かってきた。

そこで、旧原研では、未臨界状態とした専焼高速炉の連鎖反応を加速器中性子源で維持するADSの概念が有望であるとし、これを第一候補として第1回目のC&Rにおいて提示した。この第1回目のC&Rでは、旧原研が対象としてきた専焼高速炉やADSを用いた核変換技術につ

（脚注）OMEGA：Option Making Extra Gain from Actinides and Fission Productsの略とされる。

いて、核変換専用のコンパクトな核燃料サイクルを商用核燃料サイクルとは別に設ける概念であることから「階層型」概念と呼び、旧動燃及び電中研が行う「高速増殖炉サイクル利用型」概念と区別して検討がなされた。その結果、双方の概念にはそれぞれ特徴があり、並行して研究開発を進めることとされた。

第2回目のC&Rにおいては、高速増殖炉サイクルの実用化を目指した研究開発が活発に進められる状況であったため、ADSを中心とした分離変換技術は、そのバックアップ的な位置付けとされ、必要な基盤的データを着実に取得・整備することが適切であるとされた。

その後、2011年3月の東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故を契機に、軽水炉の使用済燃料の処理処分が進んでいないことへの危惧が高まり、分離変換技術が注目される状況になってきた。文部科学省は2013年8月に「群分離・核変換技術評価作業部会」⁽⁴⁾を設置し、ADSを中心とした分離変換技術の研究開発を本格的に進めることとした。2014年4月に閣議決定された「エネルギー基本計画」⁽⁵⁾では、放射性廃棄物の減容化・有害度低減のための研究開発として、高速炉や加速器を用いた方法への取組を進めることができた。

2. しくみ（原理）

階層型分離変換技術では、再処理によって使用済燃料からプルトニウムとウランを分離した後に高レベル廃液中に残るMAを主な核変換対象とし、一部の長寿命FPについても小規模に研究が行われてきた。

2.1 ADSの概念

ADSは階層型分離変換技術の中心となる核変換専用システムであり、未臨界炉心における核分裂の連鎖反応を強力な加速器中性子源で維持する概念である。

原子力機構が検討を進めているADS⁽⁶⁾（図1及び図2参照）では、加速器として、大電流の高エネルギー陽子（1.5 GeV程度）を連続ビームで効率良く加速できる超伝導線形加速器（LINAC）を採用する。最大電流は20 mAであり、最大出力は30 MWである。この他、加速器としては比較的コンパクトな配置が可能となるサイクロotron等の円形加速器を用いる概念もあるが、この場合は出力10 MW程度が上限と考えられている。

陽子ビームを入射する核破碎ターゲットには溶融した鉛ビスマス合金を用いる。鉛ビスマスの他、中性子源用の核破碎ターゲットとしては、液体では溶融鉛や水銀等、固体ではタンゲステンやタンタル等が考えられているが、ADS用としては、中性子の吸収が少なく、液体の温度範囲が広い鉛ビスマス又は溶融鉛が研究開発の対象となっている。

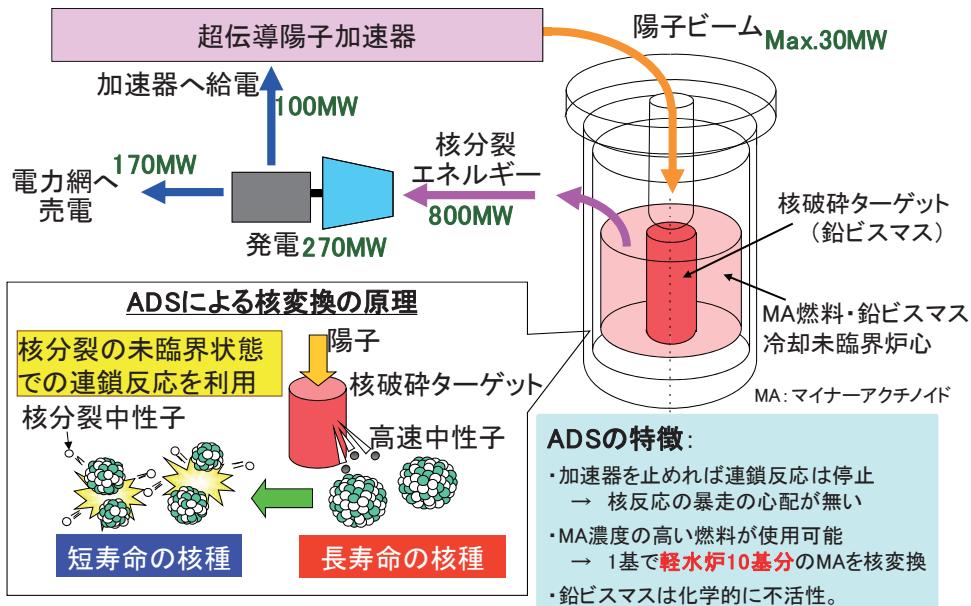


図1 ADS の概念

未臨界炉心は MA を主成分とした燃料で構成するが、MAだけでは燃焼初期に反応度が低すぎ、燃焼が進むに従ってプルトニウムが増加し、未臨界状態を保てなくなる恐れがある。このため、プルトニウムを予め 40%程度添加し、残りの 60%を MA とすることで、燃焼に伴う組成変化の影響を最小限に抑えることを目指す。燃料の化学形としては、原子力機構では、高濃度の MA が安定して存在でき、熱伝導率の高い窒化物を第一候補として研究を進めている。ADS では、核変換の効率を可能な限り上げるため、MA の発生源となるウランを含まない燃料を用いる。このため、窒化ジルコニウム等の不活性母材を燃料に混合して、濃度の調整を行う。欧州では、酸化物燃料を酸化マグネシウム等の酸化物母材に分散させた CERCER 燃料や、金属 Mo 母材に分散させた CERMET 燃料の研究が進められている。燃料はペレット状に成形され、主にステンレス鋼製の被覆管に封入し、それを束ねて燃料集合体を形成する。

未臨界炉心の冷却材は、できるだけ中性子を高速に保って MA の核分裂反応を利用する観点から、鉛ビスマス、鉛、ナトリウム、ヘリウム等が考えられている。この内、ナトリウムは高速増殖炉開発での知見が活かせることが長所であるが、ボイド発生時に大きな正の反応度が投入され、未臨界状態から臨界状態に移行してしまう恐れがあるため、現在は研究対象となっていない。ヘリウムなどの気体冷却システムは、減圧事故時の除熱性能確保等の観点から出力密度を高くできないため、体系が大きくなってしまうという短所がある。このため、現在、鉛ビスマスと鉛が候補として研究されている。鉛ビスマス（融点：124 °C、沸点：1670 °C）は鉛（融点：328 °C、沸点：1750°C）に比べて融点が低いため取扱いが比較的容易であるという長所があるが、天然ビスマス（²⁰⁹Bi）は中性子を吸収してビスマス-210（²¹⁰Bi、半減期：約 5 日）になり、β崩

壊で生じるポロニウム-210（ ^{210}Po 、半減期：約 138 日）が α 線を放出する核種であるため、その閉じ込めには注意を要する。原子力機構では、現在のところ、比較的低温で使える鉛ビスマスを冷却材として使用することを想定している。

- ・ 陽子ビーム : 1.5GeV
- ・ 核破碎ターゲット : 鉛ビスマス
- ・ 冷却材 : 鉛ビスマス
入り口 : 300°C、出口 : 407°C
- ・ 最大 k_{eff} = 0.97
- ・ 熱出力 : 800MWt
- ・ MA 初期装荷量 : 2.5t
- ・ 燃料組成 :
 $(\text{MA} + \text{Pu})\text{N} + \text{ZrN}$
- ・ 核変換効率 :
10%MA / 年
- ・ 燃料交換法 : 600EFPD, 1 バッチ
- ・ 主循環ポンプ : 2基
- ・ 蒸気発生器 : 4基
- ・ 崩壊熱除去計 : 3系統

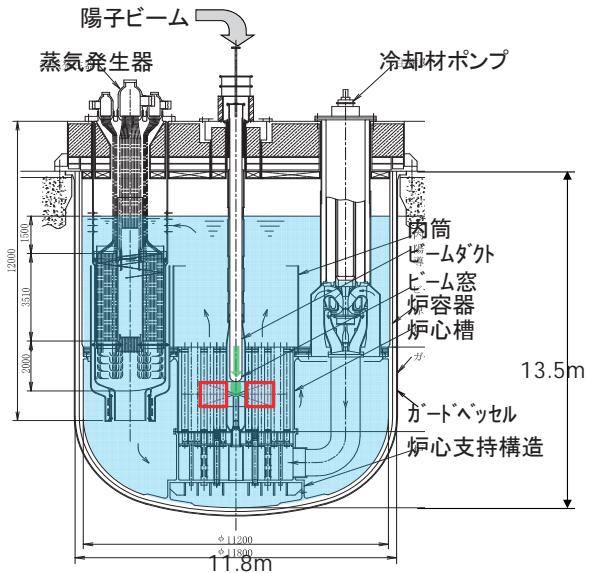


図2 ADS の概略仕様

2.2 ADS のエネルギーバランス

未臨界炉心では、核分裂反応で中性子を増倍しながら効率良く核変換することを目指す。中性子の増倍の程度を示す指標は増倍係数と呼ばれ、1 個の中性子が核分裂反応を起こして次の世代に何個になるかを表す。増倍係数がちょうど 1 の時に体系は臨界となる。ADS ではこの値を 1 未満に保つことが必要である。増倍係数を k で表すと、 $(1-k)$ は未臨界度と呼ばれ、中性子の数はこの値に反比例する。例えば k が 0.95 の時、未臨界度は 0.05 で、1 個の中性子は $(1/0.05)$ 倍、すなわち 20 個に増倍される。 k が 1 に近いほど中性子を多く増倍できるので効率は良くなるが、臨界状態に近づいてしまう。このため、原子力機構では、様々な事故を想定しても臨界状態に達するがないように、ADS における増倍係数 k の上限を 0.97 に設定している。

原子力機構における ADS の設計を例に、エネルギーの増幅について簡略化して定量的に考察する。1.5 GeV 程度に加速された陽子ビームは核破碎反応で陽子 1 個当たり 30 個程度の中性子を生み出す。未臨界炉心の増倍係数を 0.95 に設定すると、それぞれの核破碎中性子が 20 倍に増倍するので、結局、1 個の陽子で 600 個程度の中性子を生み出し、核変換に使うことができる計算になる。600 個の中性子を生みだすのには、1 核分裂あたりの中性子発生を 2 個

とすると、約 300 回の核分裂反応が起こっていると換算できる。1 核分裂あたりの放出エネルギーを 200 MeV とすると、300 回の核分裂で得られるエネルギーは約 60 GeV になる。すなわち、1.5 GeV の陽子が 60 GeV の熱エネルギーを生み出すので、エネルギーの増倍率としては 40 倍ということになる。システム全体でみると、30 MW の陽子加速器で増倍係数を 0.95 に設定すれば、1200 MW の熱出力が得られる。実際には、MA とプルトニウムの燃焼に伴って増倍係数は徐々に下がるように設計するので、燃焼の初期には加速器は電流を絞って運転し、一定の出力を保つために燃焼に伴って加速器出力を上げていき、燃焼末期には加速器を最大出力で運転することになる。原子力機構における設計では、加速器の最大出力は 30 MW、未臨界炉心の熱出力は 800 MW と設定している。この炉心では年間 300 日の運転で約 250 kg の MA を核変換することができ、これは、電気出力 1GW の軽水炉 10 基で 1 年間に生成する MA に相当する。800MW の熱出力は鉛ビスマス冷却材で除去され、蒸気発生器を経て発電用タービンに送られる。図 1 に示すように、原子力機構の設計検討では 800 MW の熱出力に対して 270 MW の電気出力が見込まれ、この内 100MW を加速器の運転に使い、残りの 170MW を売電に供することを目指す。すなわち、外部からのエネルギー供給なしに核変換することが可能である。

2.3 階層型分離変換技術のマスフロー

年間 800 トンの処理能力を持つ再処理工場に対して階層型分離変換技術を適用した場合の各構成要素の規模とマスフローを図 3 に示す。

再処理工場で 800 トンの軽水炉使用済燃料を処理すると、約 39 トンの核分裂生成物 (FP) と約 1 トンの MA が高レベル廃液に移行する。これをまず群分離プロセスにおいていくつかの群に分別する。ここでは、MA、白金族、発熱元素 (ストロンチウムとセシウム)、その他の元素の 4 群に分けるものとした。

MA は核変換サイクルにおいて核変換する。白金族は有効利用するか、そのまま金属廃棄物として処分する。長寿命のパラジウム-107 (107Pd、半減期 : 6500 万年) が含まれているため、地層処分が必要であろう。発熱元素には半減期約 30 年のストロンチウム-90 (90 Sr、半減期 : 28.8 年) とセシウム-137 (137Cs : 半減期 : 30.1 年) が含まれているため、熱源や放射線源として利用しつつ、十分に減衰するのを待ってから処分する。長寿命のセシウム-135 (135Cs、半減期 : 230 万年) が含まれているので地層処分が必要であろう。その他の元素には発熱性の核種や潜在的有害度の高い MA は含まれないので、高密度での処分が可能となる。但し、ジルコニウム-93 (93 Zr、半減期 : 153 万年) 等の長寿命核種が含まれるので、地層処分が必要であろう。このように、MA の核変換のみでは、長期にわたる潜在的な有害度の大幅低減は可能であっても、長寿命 FP を核変換しないままでは地層処分そのものの回避までは難しいと考えられる。



図3 階層型分離変換技術のマスフロー

さて、核変換サイクルに投入される毎年 1 トンの MA を核変換するには、熱出力 800MW の ADS が 4 基必要である。1 基の ADS には 2 年に一度約 4 トンの燃料を装荷するので、年間では 8 トンの核変換専用燃料を製造する必要がある。それと同時に、4 基の ADS からは年間 8 トンの使用済燃料が発生し、これを処理することで、燃え残った 7 トンのアクチノイド（MA とプルトニウム）と 1 トンの FP に分け、アクチノイドには 1 トンの MA を加えて再度燃料として加工し、FP は廃棄物として冷却後に処分する。

すなわち、年間処理能力 800 トンの再処理工場に対して、年間 8 トンの燃料処理プロセスと燃料製造プロセスが必要ということになり、規模としては 1/100 で済むことになる。このように、非常にコンパクトな核変換サイクルに MA を閉じ込めて効率良く核変換を行うことが階層型概念の特徴である。再処理工場に隣接して、群分離プロセス、ADS 用燃料製造・処理施設、4 基の ADS を同一事業所内に設置することで、厄介な燃料輸送の回避や核物質の防護措置の集中管理が可能になる。

3. 課題

3.1 ADS 用加速器

現在、30MW もの大出力の陽子加速器は実現していない。世界における中性子源用の加速器は、米国オーバリッジ国立研究所の核破碎中性子源施設 SNS の超伝導線形加速器（パルスビーム）で $1 \text{ GeV} \times 1.4 \text{ mA} = 1.4 \text{ MW}$ （目標値）、日本の J-PARC の 3 GeV シンクロトロン（パ

ルスビーム)で $3 \text{ GeV} \times 0.33 \text{ mA} = 1 \text{ MW}$ (目標値)、スイスのポールシェラー研究所の SINQ 加速器(サイクロトロン、連続ビーム)で $0.59 \text{ GeV} \times 2.3 \text{ mA} = 1.4 \text{ MW}$ と、概ね 1.5 MW 程度までである。今後、1 柄以上電流を上げる必要があるが、その際に加速器停止中のメンテナンス性等を確保するためにビームロスを低減することが求められる。ADS 用の大出力加速器として線形加速器が考えられているのは、加速中にビームを曲げないので、ビームロスを低減できるためである。但し、既に実現しているサイクロトロンを複数台並行運転して、ビームを束ねてから入射するというアイデアもあり、コストや技術の進捗を見極めながら選択することになると考えられる。

ADS 用加速器に求められる要件に、安定性とエネルギー効率がある。安定性に関しては、通常の加速器と同様に頻繁に高電圧部の放電等によるビームの不意の停止(ビームトリップと呼ぶ。)を起こしては、その都度、未臨界炉の出力が下がるため、機器が熱サイクル疲労で損傷する可能性がある。また、数分を超えるような加速器の停止時には発電系までも含めて再起動が必要となり、設備稼働率が極端に悪くなる可能性もある。現在、ADS 用加速器のビームトリップ頻度の算定と、ADS の設計上許容できるビームトリップ頻度の比較検討を行っており、特に復帰まで数分以上を要するビームトリップの回数を減らすことが必要であることが分かってきている⁽⁷⁾。

エネルギー効率については、できるだけ売電に回せる電気を増やすという観点から重要である。今のところ、超伝導線形加速器によって、 100 MW 程度の給電で 30 MW のビームを加速できる見込みである。

3.2 ADS 用核破碎ターゲット

ADS 用の核破碎ターゲットの材料としては世界的に鉛ビスマスを用いることが主流となっており、その構造から「窓あり型」と「窓なし型」に大別できる。窓あり型は、真空中で加速された陽子ビームが薄いビーム窓を透過して 1 MPa 程度の静圧がかかる鉛ビスマスターゲットに入射する構造であり、ビーム窓には耐熱性等の様々な技術課題が生じる。一方、窓なし型は、鉛ビスマスの自由液面を形成して、ビーム窓を介さずに陽子ビームを入射するものである。

窓あり型におけるビーム窓は、その設計において、陽子ビームによる発熱、陽子及び中性子による照射損傷、鉛ビスマスによる外圧及び腐食等を考慮する必要があり、工学的に成立したとしても寿命の評価を精度良くできるほどのデータが揃っていない。そこで、スイス・ポールシェラー研究所の SINQ 中性子源施設に鉛ビスマスターゲットを据え付け、 0.7 MW で運転する国際共同プロジェクト MEGAPIE が行われた⁽⁸⁾。日本を含む 8 カ国が参加し、2006 年 8 月から 4 ヶ月間の運転に成功した。その後、ターゲットを分解して鋼材の試料を作製し、陽子ビームによる照射の影響を研究するための照射後試験を各国が分担して進めている。しかし、MEGAPIE だけでは温度や照射量の観点で十分なデータが得られているとはいえないため、後述するように J-PARC を用いた系統的なデータ取得を考えている。また、原子力機構では、ビーム窓部の熱

流動状況を把握するために、ループ試験装置を設置してデータを取得している⁽⁹⁾。

窓なし型では上記のようなビーム窓に関する技術課題は払拭できるが、安定的に自由液面を形成し、大出力のビームを受け入れることができるかどうか、未知な部分も多い。

3.3 未臨界炉心技術

未臨界炉心の冷却材は、前述のように鉛や鉛ビスマスが主流となっているが、550 °Cを超えるような高温では鋼材に対して腐食性が高くなることが知られており、多くの国でループ試験や静的腐食試験が行われている。原子力機構でも、ループ試験装置及び静的腐食試験装置を設置して、10年以上にわたってデータを蓄積してきている。腐食を抑制するためには、鉛ビスマス中の酸素濃度を適切にコントロールすることが有効であることが分かっており、そのための技術開発も各国で進められている。さらに、腐食に強い鋼材の開発や表面処理の開発も並行して進められている。これら鉛合金技術の進捗については、OECD/NEA のワーキンググループがハンドブックにまとめている⁽¹⁰⁾。

ADS の炉心は未臨界状態で運転されるため、燃焼の進展とともに出力分布が変化しやすい。特に、炉心の中心部に置かれる核破碎ターゲットの近傍で出力ピークが生じるため、腐食を抑制するための温度上限の制限を考えると、出力ピークを如何に抑制するかが設計の要点となる。しかし、核破碎ターゲットで生じる中性子のエネルギー、角度分布等の特性や、炉心の燃焼に伴う MA 及びプルトニウムの組成の変化等を正確に把握できなければ、上記のような出力ピークを抑制する設計は困難である。そこで、MA 核種の核データ測定や核破碎中性子の特性測定等が行われてきているが、これらを総合的に試験するための実験装置が世界的にも整備されていない。原子力機構では、後述する J-PARC において、このような ADS の設計に資するための実験施設を建設する計画である。

この他、鉛ビスマスの循環ポンプ、蒸気発生器、停電時に受動的に崩壊熱を除去する系統、燃料交換機等の開発が必要であるが、今のところ机上検討の段階である。今後、特に後述するベルギーの MYRRHA 計画が本格化すれば、これらの技術についても実証されることになる。

3.4 ADS 用燃料サイクル技術

これまで述べたように、ADS は核変換を主目的とするため、MA を大量に含んだ燃料を取り扱うことになる。MA はウランやプルトニウムに比べて発熱、ガンマ線強度、中性子線強度などが桁違いに大きいため、取り扱いの全般にわたって遠隔操作が必要になる。特に、燃料集合体の製作時には、冷却しながら遠隔操作で作業を進める必要があり、工学的な技術開発が必要な分野である。

ADS 用燃料の照射試験はフランス、オランダ、ロシア、日本等の照射炉で行われている。原子力機構では、窒化物燃料の照射を JMTR、常陽、フランスのフェニックス炉等で実施し、良好

な照射挙動が確認されている。

ADS で照射した後の燃料は再処理して FP を取り除いた後、新たな MA を加えて燃料に再加工されることになる。原子力機構で第一候補としている窒化物燃料では、高温化学プロセス（乾式法）により再処理する。窒化物燃料では、天然窒素の大部分を占める窒素-14 (^{14}N) の (n, p) 反応によって炭素-14 (^{14}C 、半減期：5700 年) が発生するのを抑制するべく、窒素-15 (^{15}N) を濃縮して使用することを考えている。乾式処理では、電解精製する際に濃縮窒素-15 のガスが発生するので、これを回収して再利用する。

ADS 用燃料は放射線や発熱が高いため、核不拡散上の問題は大きくないと考えられるが、逆にそのような燃料の計量管理の方法が確立されていないことが問題となる。また、ADS の初装荷燃料としては MA にプルトニウムを添加したものを用いるが、現在の設計研究では、添加するプルトニウムには軽水炉使用済燃料を再処理して得られるプルトニウムの組成を適用している。すなわち、プルトニウムが再処理で単離されるとの想定となっており、これは核不拡散の観点から許されない想定である可能性がある。そこで、ウランと共に抽出されたプルトニウムを MA に加えた後、ウランを分離する等の複雑な手順を検討しておくことが求められる。

4. 国内の取組状況

4.1 J-PARC における核変換実験施設

前章で述べたビーム窓寿命及び未臨界炉心の核設計に資するデータを蓄積することを目的に、J-PARC に「核変換実験施設 (Transmutation Experimental Facility : TEF)」の建設を計画している⁽¹¹⁾。核変換実験施設は、図 4 に示すように、J-PARC の LINAC で加速された最大 250 kW (400 MeV × 0.62 mA) の陽子ビームで鉛ビスマスターゲットの技術開発を行う「ADS ターゲット試験施設」(TEF-T) と、最大 10 W の核破碎ターゲットの周りに核燃料を配置して小規模な ADS を構築する「核変換物理実験施設」(TEF-P) の 2 施設で構成する。

核変換物理実験施設: TEF-P

目的: 低出力で未臨界炉心の物理的特性の探索とADSの運転制御経験を蓄積
施設区分 : 原子炉(臨界実験施設)
陽子ビーム: 400MeV-10W
熱出力 : 500W以下

ADSターゲット試験施設: TEF-T

目的: 大強度陽子ビームでの核破碎ターゲットの技術開発及び材料の研究開発
施設区分 : 放射線発生装置
陽子ビーム: 400MeV-250kW
ターゲット: 鉛ビスマス合金



図4 核変換実験施設

TEF-Tでは、実用ADSに比べて出力規模は1/100であるが、ビーム径を1/10にすることで、実用ADSと同等の陽子ビーム密度を得ることができ、照射温度や照射時間等の様々な条件を系統的に変えたデータの取得が可能である。TEF-Tでは、ADS用核破碎ターゲットの技術開発だけでなく、陽子ビーム及び中性子を用いた様々な実験が可能となるような多目的照射施設としての機能も持たせるべく、設計検討を進めているところである。

TEF-Pに導入する10Wの陽子ビームは、TEF-Tへ向かう200kWの陽子ビームからレーザー荷電変換の技術で抜き出すことを考えている。J-PARCのLINACは負イオンとなっている水素(H^-)を加速している。これは、原子核(陽子1個)の周りを電子が2個飛んでいる状況である。これにある波長のレーザーを照射すると、2個の電子のうちの1個が引き剥がされ、中性の水素原子(H^0)ができる。その状態で偏向電磁石を通すと、大部分の H^- イオンは曲げられるが、レーザーを照射して生じた H^0 だけは磁場の影響を受けずに直進する。これをを利用して H^0 を本流から分離し、その後に薄い黒鉛箔を通して残る1個の電子も引き剥がして正電荷を帯びた H^+ イオンとして、偏向電磁石でTEF-Pに導く。

TEF-Pは原子力機構に既存の高速炉臨界実験装置FCAと類似の水平二分割型臨界実験装置で、固定側集合体の背後から陽子ビームが導入できることと、ピン型のMA燃料が使用可能であることが特徴である。10Wの陽子ビームであっても、例えば $k = 0.95$ の未臨界状態の集合体に導入すれば、400Wもの出力となり、臨界実験レベルとしては十分すぎる出力規模である。TEF-Pでは、ADSの核設計の妥当性を把握するためのデータを蓄積するほか、高速炉に

よる TRU 燃焼の実験等、幅広い核工学実験が可能である。

4.2 京都大学原子炉実験所での取組

京都大学原子炉実験所では、既存の臨界実験装置 KUCA に、FFAG (Fixed Field Alternating Gradient、固定磁場強集束型) 陽子加速器を連結し、2009年より世界で初めて陽子ビームを用いた加速器駆動炉の基礎実験を実施している⁽¹²⁾。KUCA ではトリウム燃料を用いた ADS の模擬実験も実施している。

5. ベルギーの MYRRHA 計画

ベルギーのモル研究所では、老朽化した照射炉 BR2 の代替施設として、燃料・材料の照射試験や放射性同位元素の製造等を行う ADS の検討を 1990 年代から進めてきており、これを MYRRHA と名付け、2010 年代後半に建設を開始する計画である。

MYRRHA は、熱出力 50 ~ 100 MW とされ、加速器を接続した未臨界運転だけでなく、臨界状態でも運転できるように設計される。

加速器には 600 MeV、最大 4 mA (2.4 MW) の連続ビームを供給可能な陽子線形加速器を採用する。1 秒に 1 回、故意に 200 μ 秒のビーム停止を挟むことによって、未臨界状態の監視を行う。一方、3 秒を超えるビームトリップは 3 カ月あたり 10 回以内に制限される。

核破碎ターゲット及び炉心冷却材には鉛ビスマスを用いる。核破碎ターゲットについては、以前は窓なし型が検討されていたが、現在は窓あり型を採用することとしている。燃料には通常の高速炉に使われる MOX 燃料を用いる。運転開始当初は、冷却材の炉心入り口温度を 270 °C に下げて、被覆管には使用実績の豊富な 15-15 Ti 鋼を使用する計画である。その後、鉛ビスマスによる高温での腐食に強い T91 鋼に変更していく。熱交換器が炉容器内に設置され、2 次系の加圧水が 1 次系の鉛ビスマスの熱を除去する設計である。

現在のところ、2024 年までに定格運転を開始することを目指しており、建設に向けた国際コンソーシアムの形成を進めている。

6. 今後の展開

核変換技術は、まだ基礎的な段階から個別技術の成立性を実証する段階へ移行している状況にあり、実現までには相当な研究開発が不可欠である。しかし、放射性廃棄物の安全な処理処分は人類共通の課題であり、幅広い学術・技術分野での国際協力により、効果的に開発を進めることができる。

国際協力によって ADS の開発を進めていく際には、J-PARC の核変換実験施設と、ベルギーの MYRRHA 計画が中心的な役割を果たすと考えられる。既に、原子力機構とベルギー原子力研究センター (SCK · CEN) の間には研究協力取り決めが結ばれており、今後、一層この協力

関係を強固なものにして、研究開発を加速する必要がある。両者を通して技術の蓄積を図り、図5に示したように、2030年頃には実用ADSへ進むかどうかの判断ができるようにし、2050年頃の核変換の実現を目指す。

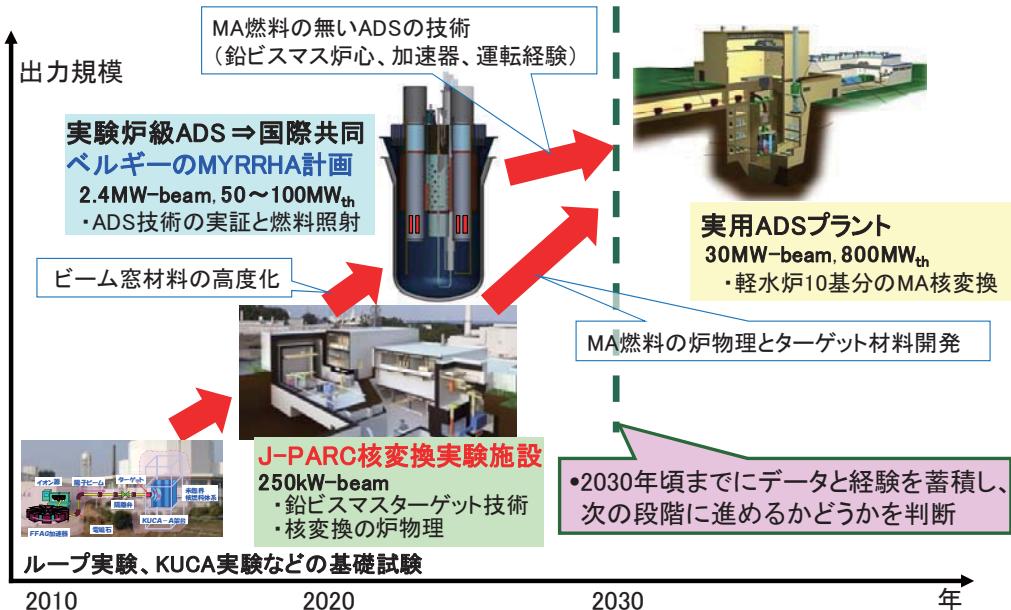


図5 ADSによる核変換技術の実用化に向けた道筋

また、近年、中国でもADSの研究開発が活発化しており、加速器の開発や斬新な窓なし型核破碎ターゲット概念の開発が進められているとともに、大型のADS実験炉の建設構想も持っている。今後は中国やその他の国々とも協力関係を構築して、技術課題の解決に取組んでいくべきであろう。

本稿は「高レベル放射性廃棄物の核変換技術の現状と展望」(大井川宏之、RADIOISOTOPES誌, 61, 571–586 (2012))を基に加筆・修正したものである。

【参考文献】

- (1) 「群分離・消滅処理技術研究開発長期計画」昭和63年10月11日、原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会(1988). 以下のURLで閲覧可能
<http://www.aec.go.jp/jicst/NC/senmon/old/backend/siryo/back21/sanko2.htm>
- (2) 「長寿命核種の分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方」平成12年3月31日、原子力委員会原子力バックエンド対策専門部会(2000). 以下のURLで閲覧可能
<http://www.aec.go.jp/jicst/NC/iinkai/teirei/siryo2000/siryo20/siryo14.htm>
- (3) 「分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方」2009年4月28日、原子力委員会研究開発専門部会分離変換技術検討会(2009). 以下のURLで閲覧可能
<http://www.aec.go.jp/jicst/NC/senmon/bunri/houkokusho-090428.pdf>

- (4) 「群分離・核変換技術評価について(中間的な論点のとりまとめ)」平成25年11月、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(2013). 以下のURLで閲覧可能
http://www.mext.go.jp/component/b_menu/shingi/toushin/_icsFiles/afieldfile/2014/01/28/1341663_2.pdf
- (5) 「エネルギー基本計画」2014年4月. 以下のURLで閲覧可能
<http://www.meti.go.jp/press/2014/04/20140411001/20140411001-1.pdf>
- (6) K. Tsujimoto, et al., "Feasibility of Lead-bismuth-cooled Accelerator-driven System for Minor-actinide Transmutation", Nucl. Technol., 161, 315 (2008).
- (7) H. Takei, et al., "Estimation of Acceptable Beam-trip Frequencies of Accelerators for Accelerator-driven Systems and Comparison with Existing Performance Data", J. Nucl. Sci. Technol., 49 (4), 384 (2012).
- (8) W. Wagner, et al., "MEGAPIE at SINQ - The First Liquid Metal Target Driven by a Megawatt Class Proton Beam", J. Nucl. Mater., 377, 12 (2008).
- (9) 林健一、他、「加速器駆動核変換システムの技術開発におけるビーム窓熱流動試験」、日本原子力学会和文論文誌, 7, 44 (2008).
- (10) OECD/NEA, "Handbook on Lead-bismuth Eutectic Alloy and Lead Properties, Materials Compatibility, Thermal-hydraulics and Technologies (2007 Edition)", 以下のURLから閲覧可能
<http://www.oecd-nea.org/science/reports/2007/nea6195-handbook.html>
- (11) H. Oigawa, et al., "Conceptual Design of Transmutation Experimental Facility", International Conference on Back-end of the Fuel Cycle, GLOBAL 2001, 10-13 Sep., 2001, Paris, France, (2001).
- (12) C. H. Pyeon, et al., "First Injection of Spallation Neutrons Generated by High-Energy Protons into the Kyoto University Critical Assembly", J. Nucl. Sci. Technol., 46, 1091 (2009).
- (13) P. Baeten, et al., "Recent developments of the MYRRHA Project", Proc. of Second International Workshop on Technology and Components of Accelerator-driven Systems (TCADS-2), 21-23 May 2013, Nantes, France, p.338 (2015), 以下のURLから閲覧可能 <https://www.oecd-nea.org/science/docs/2015/nsc-doc2015-7.pdf>
この他、<http://myrrha.sckcen.be/>に情報が掲載されている。

第4章 溶融塩炉による核種分離・転換

1. はじめに

溶融塩炉は、液体燃料炉かつ高温炉であり、また安全炉であることから、高レベル放射性廃棄物核変換用原子炉として、近年世界的に注目を受けている。我が国では、高速炉や ADS の開発が国家プロジェクトとして位置づけられているのとは対照的に、いまだに国家プロジェクトとして認められていないが、現時点で溶融塩炉の核変換炉としての可能性について調査し、評価することは有意義であろう。本章では、先ず溶融塩炉の歴史的背景と位置づけについて記述し、続いて溶融塩核変換炉について検討した研究の代表的な 2 例を紹介する。さらに、溶融塩炉に関する国内および海外の取組状況についてレビューを行う。

2. 背景・位置づけ

溶融塩原子炉の歴史は 1950 年代、オークリッジ国立研究所における航空機用原子炉の開発 (ARE) に始まる。すなわち、原子炉で発生した熱を航空機推進用タービンエンジンへと供給する高温熱供給システム (インダイレクト熱サイクルジェット機関) であり、1955 年にはほぼ 24 時間の連続運転に成功している⁽¹⁾。液体核燃料の研究は、同時期にロス・アラモス国立研究所やブルックヘブン国立研究所でも行われ、前者では液体金属プルトニウム燃料の照射が実施されている。実験炉となる溶融塩炉 (MSRE) はオークリッジで 1965 年に運転し、1967 年まで二年間の実験期間を通じ、循環系の故障や炉容器損傷などを経験することなく実験が続けられた。この原子炉は増殖性能を目指したブランケット付きの溶融塩増殖炉建設への準備段階の実験であったが、引き続く計画は今日実在する液体金属冷却高速炉の開発を提案したアルゴンヌ国立研究所とのプロジェクト取り合いで敗退し、その後立ち上がること無く消滅した。

1960 年代、米国以外では、フランス、ロシア、一部では中国上海で、溶融塩炉の基本技術の開発（基礎物性、溶融塩ループ、フッ素系の乾式再処理）が行われ、プラント規模を目指したものとしては、乾式再処理プラントの設計（エクソン・ニュークリア／リッチランド）や建設（GE 社）、炉内ループ試験（ロシア）、ゼロ出力炉（上海）の製作などが行われたが、原子力技術の主流になることはなく今日に至っている。

しかしながら、その概念の優位性は主として設計の観点から指摘され続けていた。1980 年には、ループ型溶融塩炉に対する、迅速に且つ容易に高純度の核物質を核兵器用に取り出せるとの批判に答え、J. R. Engel⁽²⁾ らにより減損ウラン (depleted Uranium) を用いた核拡散耐性のある溶融塩炉設計が、また 1986 年には Uri Gat⁽³⁾ により究極的な安全炉としての可能性、すなわち事故時のソースタームの根源である核分裂生成物も崩壊熱とともに同時に除去ができる原理的優位性が指摘されている。

我が国では、日本原子力研究所の初代ナトリウム研究室長であった古川和男（故人、元東海

大学教授)により早くからその技術的可能性が指摘され、70年代からは電力中央研究所(高橋実特別研究室)や日本原子力学会で調査が行われ報告書が刊行されている^(4,5)。1980年代には加速器と溶融塩炉との結合したシステムが、また1990年代始めには古川、三田地によりオークリッジのMSRE実験報告を基本とした一液式の溶融塩炉「不二(Fuji)」が設計された^(6,7)。この設計案は現在でも、標準的な溶融塩炉設計の一つとして引用されている。

一方、2011年3月11日の東日本大震災を引き金として生じた福島原発事故における沸騰水型発電炉での冷却水喪失、メルトダウン事故の後、溶融塩炉への見方が変化したと考えられる。すなわち軽水炉とは異なり、溶融塩炉が冷却材とするフッ化物溶融塩は、アルカリ金属とフッ素との熱化学的に安定な化合物であり、構造材と反応して分解することではなく、水素のような爆発性の気体を発生することもない。また沸点は1500°C以上と高温であり、加圧を前提として設計する必要はなく、蒸発して消失することはない。とくに、熱供給炉として誕生したことから明らかのように高い運転温度(～700°C)でも常圧で冷却材として利用でき、蒸気爆発も生じないなど原子炉の冷却材として安全性の観点から見直されつつある。また原子力プラントとしては、崩壊熱を発生し続ける燃料そのものが液体であるため、事故時における燃料ドレンシステムの起動(フリーズバルブなどによる)や受動的冷却設計が適切になされていれば、放射性物質の放出リスクを大きく低めることができ、安全性は高まると期待されている。

一方、原子炉物理的観点からは、液体燃料ゆえ被覆管や燃料集合体などの炉内構造材なしで炉心を構成でき、理想とされる均質炉により近づくことが可能であり、中性子経済の観点からも優位にある。高速中性子だけでなく構造材の吸収断面積が大きくなる熱外中性子、熱中性子に至る広いスペクトルで中性子を有効に用いることが可能になり、とくに核変換炉としての高性能化が期待されている。しかし高速中性子体系でMA割合を増やすと遅発中性子割合が低下するため、固体燃料炉心の場合は負の反応度係数を得る構造上の工夫が必要となるのに対して、液体燃料では熱膨張率が固体燃料より約1桁大きく、即発臨界までの裕度が広く設計でき、核的な安全性が原理的に保障できる⁽⁸⁾。また、核燃料サイクルプロセスからは、セラミックス燃料に必要な焼結工程や燃料成形工程を省略でき、マスプロセスを構築する際のスケールアップの実現性やコスト低減において大きな優位性が指摘されている。

3. 溶融塩核変換炉の検討

3.1 高レベル放射性廃棄物核変換処理の基礎項目

高レベル放射性廃棄物(HLW)の主要組成は、マイナーアクチニド(MA)を構成するNp, Am, Cmの同位体であり、このHLWをできる限り削減することを目的として、中性子を用いた核変換技術の開発が行われている。その目的は、MAを核分裂させ、寿命の短い核分裂生成物核種に変換することである。

核分裂炉を用いる場合、どのような中性子スペクトルを用いるかを検討する必要がある。熱中

性子を用いる利点は、核分裂断面積が大きくなることから、たとえ中性子束レベルが低くても、核変換率が大きくなることである。他の利点としては、軽水炉での経験の蓄積により、熱中性子炉技術はよく知られた技術であることである。

一方、中性子経済の観点からは、熱中性子スペクトルはあまり有利ではない。どのような MA も、何回もの中性子吸収によって生成するものであり、MA の生成には余分の中性子が必要となる。核分裂によって中性子が発生するが、何個発生するかが重要なパラメータである。すなわち、もし、ある同位元素の核変換連鎖において、例えば U-238 が Pu-239 を経てさらに上位の同位元素になり、核分裂に至るまでに必要な中性子数が、核分裂によって発生する中性子数よりも多ければ、臨界原子炉は核変換炉として成立しない^(脚注1)。この観点からは、高速中性子スペクトルは有利である。高速中性子スペクトルでは、核分裂あたりに発生する中性子数、 v 、の値が大きく、多くの MA 同位体は高エネルギー中性子により直接核分裂（いわゆる閾値核分裂）し、さらには、中性子吸収と核分裂の断面積比、いわゆる捕獲・核分裂比、 $\alpha = \sigma_c / \sigma_f$ の値は小さい。図 1 に Np-237 と Am-241 の α の値を JENDL-4.0 から引用して示す。さらに、図 2 に核分裂に際し有効な中性子発生数を表す指標である $\eta = v \sigma_f / \sigma_a$ の値を Np-237 と Am-241 について示す。また図 3 には Pu-239, Pu-241, Cm-243 についてその値を示す。高速中性子領域では、中性子発生数が増加することがわかる。

核変換の観点から見ての、その他の重要な項目は、所定の核変換率を達成するうえで必要とされる燃料処理に必要な手順の回数である。もともと、いずれの再処理においても費用が掛かり、廃棄物が発生するので、処理回数は少ないほうが好ましい。次の問題は、使用済燃料中の MA 含有量が増えるに従い再処理が複雑になることである。

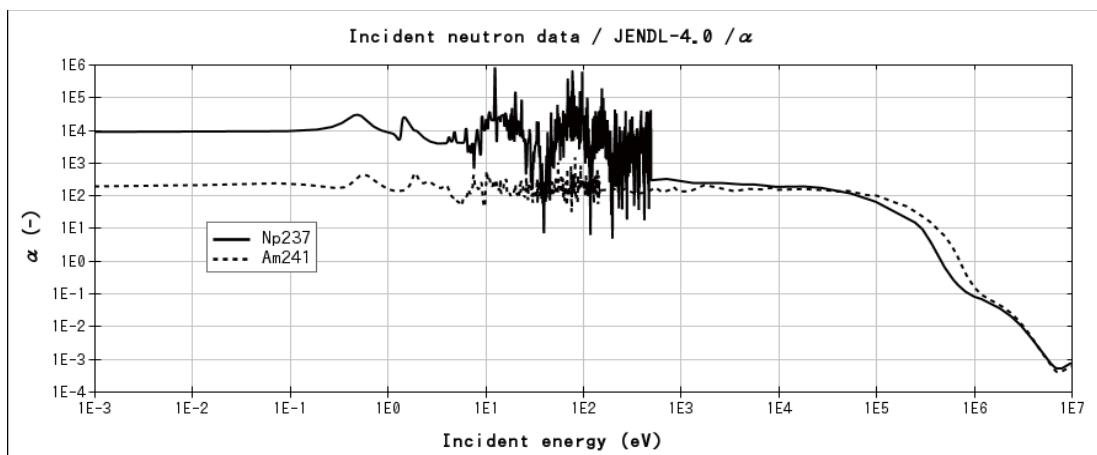


図1 Np-237 と Am-241 の α 値 (JENDL-4.0)

(脚注) もし、現実的な原子力発電構成と理想的な核変換シナリオを組み合わせようすれば、核燃料サイクル全体での中性子バランスは負になり、このようなシナリオは成立しなくなる。これが ADS のような外部中性子源を有する未臨界装置を開発する主たる動機であり、溶融塩炉や高速炉を核変換炉として利用しようとする場合に工夫を要する点である。

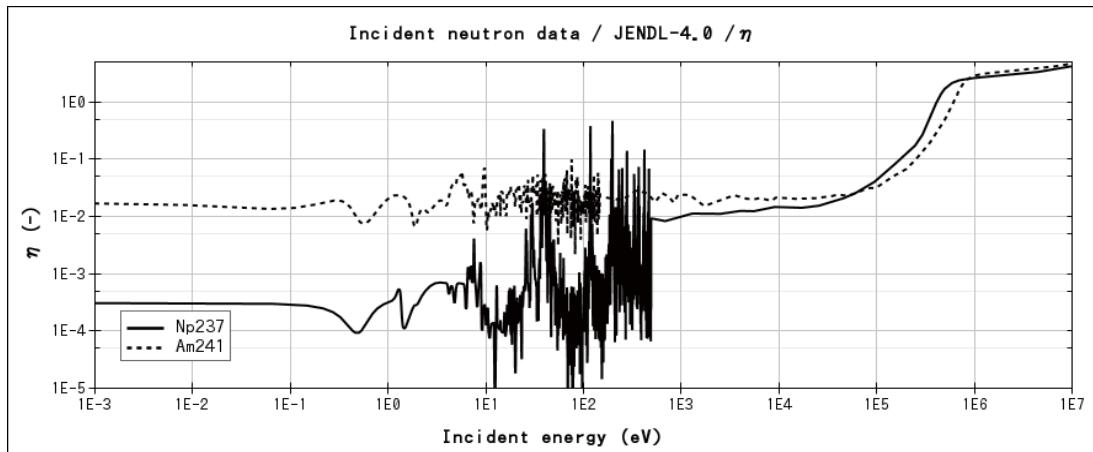


図2 Np-237とAm-241の η 値(JENDL-4.0)

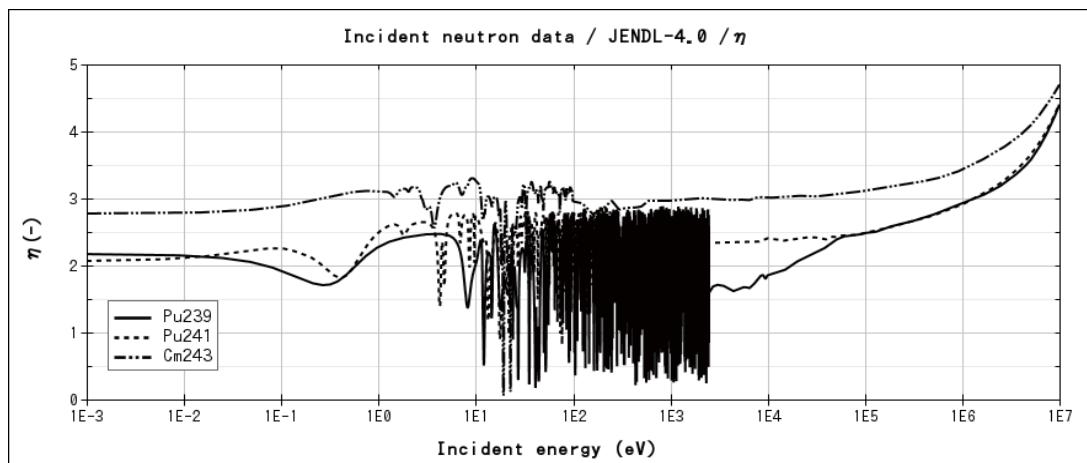


図3 Pu-239, Pu-241とCm-243の η 値(JENDL-4.0)

3.2 フリナックを用いる大型溶融塩核変換炉の検討例

(1) フリナック

フリナック(FLiNaK)はリチウム、ナトリウム、カリウムのフッ化物混合塩である。ヨーロッパの研究機関を中心とする報告書ALICIAでその物性が詳しく再検討され⁽⁹⁾、プルトニウムに対する溶解度の高いことが示されて注目されるようになった。組成は以下の通りで、凝固温度は454 °Cであり、ORNLが設計した溶融塩増殖炉(MSBR)で使われた溶融塩、フリーベ(FLiBe、凝固温度459 °C)と同程度である。



46.5	11.5	42	mol%
------	------	----	------

溶媒塩として核変換炉で使用する場合には、フリナックに超ウラン元素を溶融させて燃料塩とする。フリナック燃料塩の密度は実測値を補間して求めているが、現状では実験値が少なく予測精度の点で問題がある。今後改善すべき課題である。

(2) フリナックを用いる溶融塩核変換炉の検討例

以下、(2)～(8)項では、三田地らが行った、溶融塩炉を用いる超ウラン元素の核変換処理に関する解析評価の結果について記述する^(10,11)。超ウラン元素を減量するために、図4に示す構造の核変換炉を考えた。Delpech らによるトリウム溶融塩増殖炉（TMSR）とほぼ同形で⁽¹²⁾、炉心内に減速材が無く、中性子は硬いスペクトルのまま利用する。炉心は中央部の直径2.8 m、高さ2.7 mの円柱領域で、燃料塩のみが入っている。炉心の外側を厚さ40 cmの反射体で囲み、炉容器に収納する。炉容器の外側に1次熱交換器やポンプを配置し、これら全体を熱遮蔽体で覆う。炉心内の燃料塩容積は16.64 m³あり、熱交換器や配管系統を含めた一次系全体の燃料塩容積は25 m³である。燃料塩温度は炉心入口で600 °C、炉心出口で700 °Cとする。炉の熱出力は2.5 GWthであり、電気出力1.0 GWeに相当する。炉の稼働率は約0.9とする。

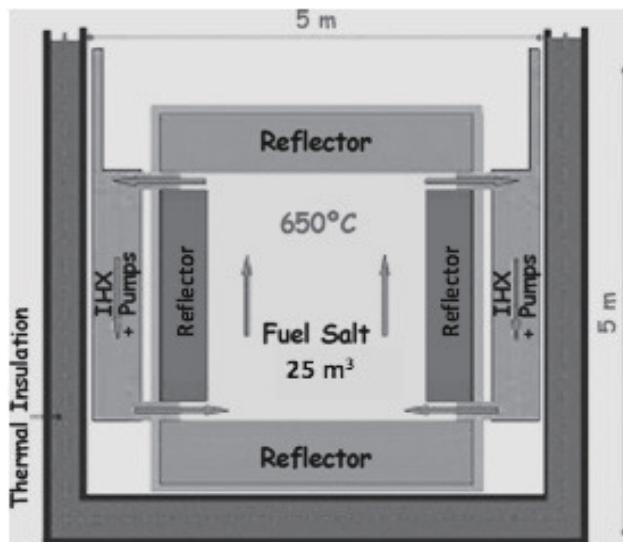


図4 炉構造の概要

燃料塩はフリナックに超ウラン元素を混合したフッ化物溶融塩である。初装荷の燃料塩に用いる超ウラン元素は、加圧水型軽水炉で60 GWD/tまで燃焼した後5年間冷却した使用済燃料より得られるプルトニウム、ネプツニウム、アメリシウム、キュリウムである。プルトニウムとマイナーアクチニドは分離することなく、そのまま燃料として利用する。炉特性は、核解析コードSRAC 2006のPIJ-BURNルーチンを使用して求める⁽¹³⁾。炉心の外に漏洩する中性子の影響を考慮

するために、バッククリング $3.2 \times 10^{-4} \text{ cm}^{-2}$ を入れる。核データは JENDL-3.3 を使用する⁽¹⁴⁾。

炉の運転を続けると核分裂性核種が消費され、炉の反応度が低下するので、全出力運転 25 日ごとに使用済燃料からの超ウラン元素を補給する。また、長期間にわたり運転を続けると、炉内に核分裂生成物が蓄積して中性子を無駄に消費するようになるので、一定の運転年数ごとに再処理を行い、燃料塩より核分裂生成物を取り除く。

このような運転を続けると、初めは運転年数の増加と共に、超ウラン元素の核変換率（=超ウラン元素の核変換量／超ウラン元素の投入量）も上昇する。しかしその割合は次第に緩慢になり、炉の運転年数を増やしても核変換率はそれほど上昇しない状態となる。

（3）二段核変換システム

超ウラン元素の核変換率を向上させ、高レベル放射性廃棄物を効率よく減量するために、図 5 に示す二段核変換システムを考える。図中の 1.0 GWe 出力の炉は、いずれも（2）項で述べたフリナック燃料塩を用いる核変換炉である。

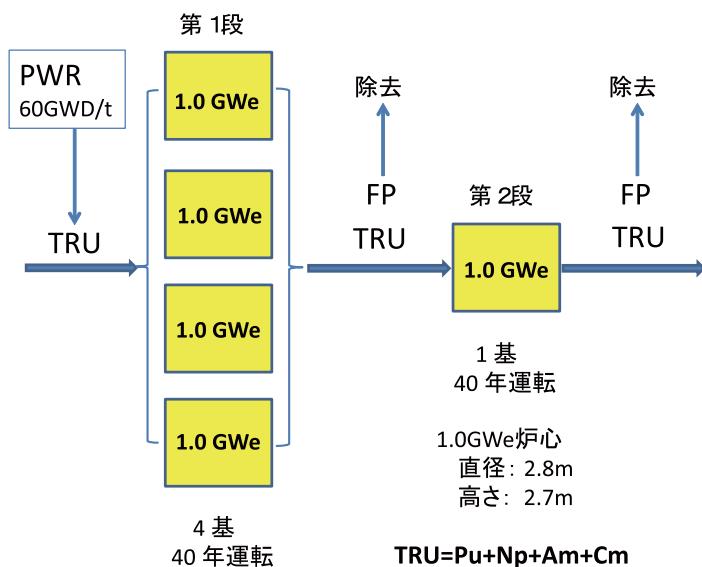


図5 二段核変換システムの構成⁽¹¹⁾

まず、軽水炉使用済燃料から得られる超ウラン元素をフリナックに混合して燃料塩を作り、これを初装荷燃料および追加補給燃料として、一段目の 4 基の 1.0 GWe 炉を 40 年間運転する。次に、40 年後に一段目 4 基の炉内に残っている超ウラン元素を取り出し、この残留超ウラン元素だけを初装荷燃料および補給燃料として使い、二段目の 1 基の 1.0 GWe 級炉を 40 年間運転する^(10,11)。なお、二段目の炉の出力は、一段目の残留超ウラン元素を 40 年間でちょうど使い切るように 設定する。

(4) 再処理廃液に含まれる超ウラン元素の量（二段核変換システム）

核変換炉では一定の運転年数ごとに燃料塩を再処理して、燃料塩より核分裂生成物を取り除く。この際に、再処理までの運転年数を短くすれば、中性子を無駄に吸収する核分裂生成物の蓄積量を少なくできるので、核変換炉の核的特性は向上する。一方、40年間に必要となる再処理溶媒量が増加して経済性を低下させ、さらに微量ではあるが、再処理廃液と共に破棄される回収漏れの超ウラン元素が増加する。これらの重金属は放射性であり、微量ではあるが環境を汚染するなら、とくに生物の生活環境に大きな影響を及ぼすので、その漏洩防止には細心の注意を要する。

図6に再処理する超ウラン元素の合計処理量と、燃料塩再処理の頻度との関係を示す。横軸は1年、2年、5年…のように、1次系内の燃料塩が再処理されるまでの運転年数である。例えば1年毎に再処理する場合で見ると、左の白抜き棒グラフは燃料として80年間に炉に投入する超ウラン元素の合計量、中の黒塗り棒グラフは80年間の運転で発生するガス成分を除く核分裂生成物の合計量、右の灰色棒グラフは80年間に再処理する超ウラン元素の合計処理量である。燃料塩の再処理を1年毎に行う場合には超ウラン元素の合計処理量は2,620 tonにもなるが、再処理を2年毎に行うと超ウラン元素の処理量は半減し、5年毎に行うと処理量は更に少なくなる^(10,11)。

一般に再処理を行う際には、ごく微量の超ウラン元素は回収されずに再処理廃液に残り、最終的には核分裂生成物に混入する。超ウラン元素の回収漏れの合計処理量に対する割合は、従来の湿式処理で0.3～0.5%、高性能乾式処理で0.1%と言われているが⁽¹⁵⁾、酸化物沈殿法を適用すれば0.01%にできる^(8,16)。フリナック燃料塩を使用する核変換炉では、超ウラン元素をプルトニウムとマイナーアクチニドに分離する必要が無いので、燃料塩の再処理に酸化物沈殿法を適用することとする。

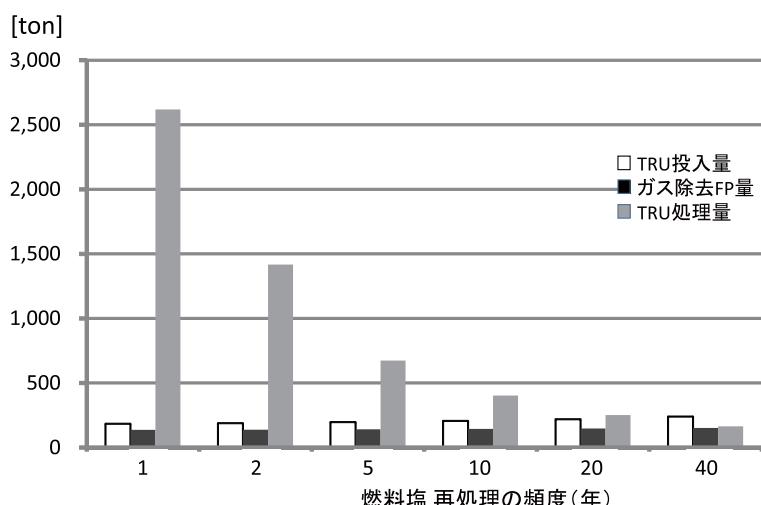


図6 80年間の超ウラン元素の合計再処理量⁽¹¹⁾

(5) 二段核変換システムの特性

表1に二段核変換システムの特性を示す。1年毎、2年毎…のように再処理までの運転年数ごとに1列に特性を並べてある。例えば、表1の最左列に示すように、1年毎に燃料塩再処理を行う場合には、一段目に1.0 GWe炉を4基、二段目に1.0 GWe炉を1基使用する。一段目4基の核変換炉に対して、初装荷燃料および追加補給燃料とし40年間の運転期間中に投入する超ウラン元素の総量は185トンとなる。また、二段目核変換炉の運転40年後に(一段目と二段目の通年で80年後に)炉内に残留する超ウラン元素の量は19トンとなる。これより二段核変換システムの超ウラン元素の核変換率は89.7%である。二段核変換システムの運転80年間における超ウラン元素の合計処理量は、(4)項で考察したように2,620トンになり超ウラン元素の回収漏れは0.262トンとなる。また、このシステムでは80年間に178 GW-yearの発電をしており(熱で445 GW-year)、これに伴って生ずる核分裂生成物は、ガス成分を除いて137トンとなり、このガス成分除去核分裂生成物に混入する超ウラン元素の割合は0.191%となる^(10,11)。

超ウラン元素の核変換率は、再処理までの運転年数が1年毎で0.90%、2年毎で0.89%、5年毎で0.87%のように、少しずつ低下する。一方、ガス成分除去核分裂生成物に混入する超ウラン元素の割合は、1年毎で0.191%、2年毎で0.103%、5年毎で0.048%のように、再処理までの運転年数の増加に伴い大幅に低下する^(10,11)。

表1 二段核変換システムの特性に及ぼす再処理頻度の影響^(10,11)

再処理頻度	1年毎	2年毎	5年毎	10年毎	20年毎	40年毎
第一段炉出力 [GWe]	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0
第二段炉出力 [GWe]	1.00	1.05	1.16	1.27	1.40	1.56
TRU投入量 [ton]	185	188	197	206	219	240
TRU残留量 [ton]	19.0	20.9	25.6	31.6	40.5	55.6
TRU核変換率 [—]	0.90	0.89	0.87	0.85	0.82	0.77
最終TRU濃度 [mol%]	6.9	7.2	7.9	8.9	10.3	12.6
ガス除去FP [ton]	137	138	141	144	148	152
TRU漏洩量 [ton]	0.262	0.142	0.067	0.040	0.025	0.016
ガス除去FPのTRU含有率 [%]	0.191	0.103	0.048	0.028	0.017	0.011

TRU: 超ウラン元素、 ガス除去FP: ガス成分を除く核分裂生成物

(6) 2年毎に再処理を行う二段核変換システムの性能

以上のサーベイの結果より、超ウラン元素の核変換率が高く、核分裂生成物の放射性有害度が早期に低下する2年毎に再処理する二段核変換システムに注目し。その性能をまとめると以下のようになる。

表1に示すように二段核変換システムは外部より約188トンの超ウラン元素を供給されて80年間運転する(一段目40年、二段目40年)。この間のシステム総発電量は約180[GWe year]

EFPY]となる(一段目 142.4 GWe year、二段目 37.4 GWe year)。運転 80 年後にはシステム内に 20.9 トンの超ウラン元素が残留するので、超ウラン元素の核変換率は 0.89 となる。残留超ウラン元素は 10 万年に及ぶ超長期の保管管理を必要とするが、核変換により地層埋設処分地面積は大幅に減少させることができることになる。なお、80 年間の平均のマイナーアクチニド変換率は 41 [kg / (GWth year EFPY)]となつた。

一方、80 年間の運転で二段核変換システムは約 138 トンのガス成分除去核分裂生成物を生成する。この核分裂生成物には、燃料塩再処理時に分離・回収されずに廃液に残る超ウラン元素が 142 kg 混入するが、核分裂生成物に対する回収漏れ超ウラン元素の混入割合は 0.103 %程度であり、その有害度は約 400 年で天然ウランの潜在的有害度レベルまで低下する^(10,11)。

オークリッジ国立研究所で設計された溶融塩増殖炉 (MSBR) と同様に、本核変換炉に於いても 1 次ループ内に気泡分離器および濾過器を設置し、核分裂生成物のガス成分および固体成分を分離除去する。2 年毎に燃料塩再処理をする場合には、燃料塩中の超ウラン元素濃度と核分裂生成物濃度は表 2 に示すようにプルトニウム溶解度に比べて十分に低濃度を保っており、炉の運転に支障を起こさない。

表2 燃料塩中の TRU 濃度と FP 濃度

	初期	40 年後	80 年後
TRU [mol%]	1.61	4.91	7.22
FP [mol%]	0	0.22	0.22

(7) フリナックを用いる溶融塩核変換炉の課題^(17~19)

燃料塩に含まれるプルトニウムやマイナーアクチニドが核分裂して核分裂生成物に変わると、核分裂生成物の原子価に応じて燃料塩はフッ素過剰状態あるいはフッ素不足状態になり、その結果 燃料塩は酸化性あるいは還元性の媒体になる。この現象は炉容器や配管材料の耐腐食性に関する重要な問題であり、フリナック燃料塩を使う場合には、電解還元を行うか、H₂/HF 吹込みをするか、あるいはイッテルビウム Yb₃ 値 /Yb₂ 値のような緩衝材を入れるなど、燃料塩の酸化還元状態を制御する工夫をしなければならない。

フリナック燃料塩の密度は、現状では測定値が少なく問題である。精度よく炉心特性を予測するために、あるいは各種の機器を最適設計するために、とくに超ウラン元素濃度の高い領域のデータ取得を行う必要がある。また、超ウラン元素の各々についてフリナックベースの燃料塩に対する溶解度を確認することも重要である。

さらに実際に溶融塩核変換炉を作る場合には、炉容器材料の選択、制御棒の設計、安全系の構築と設計など、確認すべき課題が多くある。

(8) さらなる展開

最近、ナトリウムとカリウムとウランのフッ化物塩（フナックと名付けられている）に超ウラン元素を溶融させた燃料塩が提案されている⁽²⁰⁾。このフナック燃料塩では構成成分のウランが緩衝材になるので、金属材料の腐食性に影響を及ぼす燃料塩の酸化還元電位を容易に制御できる利点がある。フリナック燃料塩をこのフナック燃料塩に置き替えた二段核変換システムが考えられ、上述のフリナック燃料塩使用炉と同様に高性能な核変換システムを構築できると期待されている。

さらにフナック燃料塩を用いる増殖炉と組み合わせると素晴らしいエネルギー発生システムを構築できる。数10年間軽水炉での発電を続け、この間に発生した超ウラン元素を用いてフナック増殖炉を起動させ、起動の後には劣化ウランだけを追加補給して発電を続けることができる。この増殖炉は超ウラン元素のインベントリーを増やすことなく、発生する核分裂生成物の潜在的毒性は約400年でウラン鉱石レベルまで減衰すると期待できる。最終的に原子力発電が不要となつた時には、(2)項以下で記述した二段核変換システムを、フナック燃料を用いて構築すれば、増殖炉内に残留する超ウラン元素量を相当減らすことができる。このようなエネルギーシステムを構築できれば、ウラン資源の有効利用と放射性廃棄物の減量の両面で貢献が可能な技術を達成できることが期待される。

3.3 小型溶融塩核変換炉の検討例

ローイエン、島津らによれば、小型の溶融塩高速炉は、核変換処理用として可能性のある選択肢といえる。以下に、小型溶融塩炉を対象とした核変換処理についての解析評価の結果について紹介する^(21~23)。

(1) 小型溶融塩核変換炉の特徴

- ① 小型炉：想定される核燃料サイクルで取り扱われるMA同位元素の量は通常少ないので、技術的にも、また規制対応上からも、小型炉の方が便利である。
- ② 高速スペクトル：3.1で述べられたように、高速中性子を利用するほうが中性子経済上有利である。
- ③ 溶融塩炉：このタイプの原子炉では、小さな超過反応度で運転できるので安全上有利であり、さらに核燃料を連続的にオンライン処理でき、再処理工場に運ぶ必要がないので、核拡散防止上にも有利である。

(2) 溶融塩の選択と運転パラメータの選択

適した溶融塩の選択には、多くの因子を考慮に入れねばならず複雑な過程が必要となるので、一般的に言って容易ではない。今回の検討においては、融点の観点に重点を置いて選択した。担体塩は、フリナック（FLiNaK）とした。この溶融塩に3価のMAを溶融すると、溶融塩の融点を上昇させる強い効果が認められる。原子炉の長期運転の観点からは、溶融塩温度は650℃

以下が望ましい。最近の研究では、 $\text{FLiNaK-PuF}_3\text{-AmF}_3$ 体系の融点について議論されている^(24~26)。理論的な研究では、3 個の MA の溶解度は低いとされた⁽²⁴⁾が、実験によると、高い溶解度が示されている^(25~26)。今回の検討においては、Pu や Am の溶解度は 10 モル%以下と仮定した。これにより、融点は 600 °C 程度と推定されるので、入口温度 650 °C、出口温度 750 °C として設計を行った。また、今回の検討においては、燃焼解析に注目しており、溶融塩の熱水力特性（粘性と熱伝導度）は検討対象にしていないことを断わっておく。

熱出力 600 MWth、炉心出力密度 300 MWth / m³と仮定した。このため、炉心体積は 2 m³となる。また、高速炉であることから、円筒形状を仮定し、直径は 140 cm、高さ 140 cm で計算した（炉心体積は 2.16 m³）。また、1 次系の燃料体積は 6 m³と仮定した。燃料組成を表 3 に示す。この組成は軽水炉の使用済燃料を 15 年間冷却したものから取り出したものに相当している。

表3 MA 燃料組成データ

同位体	モル%	同位体	モル%
Np-237	5.29	Am-241	8.71
Np	5.29	Am-243	1.39
Pu-238	1.93	Am	10.1
Pu-239	49.0	Cm-244	0.27
Pu-240	22.0	Cm-245	0.04
Pu-241	5.22	Cm	0.31
Pu-242	6.26		
Pu	84.3		

（3）燃焼解析

炉心初期の燃料組成、すなわち MA 入り燃料の割合は、実効増倍率が～ 1.02 となるように決定した。その後の燃焼解析条件は下記のとおりである。

- [1] SCALE6.0 の TRITON コードの自動燃焼解析手順^(27,28)に従い、燃料組成全ての同位体、並びに主たる核分裂生成物核種の実効微視的断面積を作成する。
- [2] 上記ステップで得られた断面積を用い、自立型燃焼解析コード ORIGEN-S による解析を行う。同時に、連続的な燃料組成調整と核分裂生成物の除去を模擬する。核分裂生成物の除去率は、核種ごとの化学的特性に応じて定めた。例えば、全ての希ガスは比較的簡単に除去されるとし、また希土類元素は緩慢に除去されたとした。
- [3] ORIGEN-S (SCALE の一部) の計算は、燃焼計算の最後の実効増倍率が初期値の近辺に維持されるように燃料組成を調整しながら繰り返す。なお、計算時間幅は 1 ヶ月とした。

[4] 燃料割合が決まると、その燃焼ステップの最後における燃料組成を求め、1次系全体の燃料組成の評価を行う。新たな燃料組成が定まると最初のステップ1に戻り、次の燃焼計算のための核定数解析を行う。

[5] 今回の解析では、20年間の運転を模擬した。

主な結果を以下の図に示す。図7は、無限増倍率の変化を示す。値が小さく変動しているのは、数値解析上の理由により、実効増倍率の許容値に幅を持たせていることによる。連続的な結果を得るのは、計算手順上困難であった。

図8には燃料塩中のMA割合を示す。MA割合は燃焼とともに増加する。その理由は、燃料組成の劣化（核分裂性物質は早くなくなり、非核分裂性物質成分の多い燃料塩が残る）により、核分裂生成物による寄生吸収が増加することによる。ただ、連続的な燃料処理により、核分裂生成物の濃度は比較的一定に保たれるが、ゼロではない。20年間の運転による核分裂生成物の蓄積量は10モル%以下であり、これは許容値以内と考えている。

図9には燃焼に伴う中性子束の変化を示している。予想通り、燃料塩の核分裂断面積の減少に伴い、炉出力を一定に保つため、中性子束レベルの下降がみられる。その理由は、燃焼に伴い吸収断面積が増えるため、臨界を保つためには核分裂物質濃度を増やすことになり、それにより中性子束は減少する。最後に表4にMAの初装荷量、核変換された量、20年運転後の炉心内蔵量を示す。

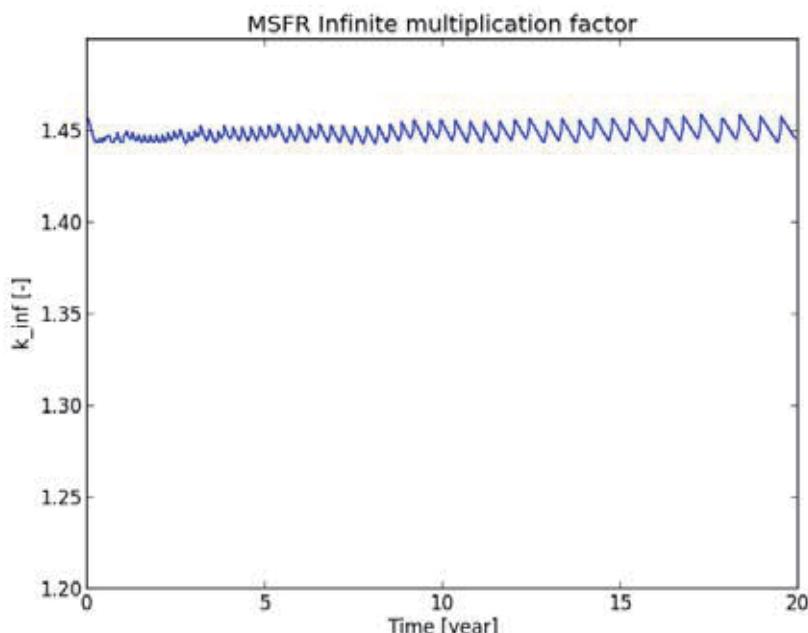


図7 小型溶融塩核変換炉の20年間運転の無限増倍率

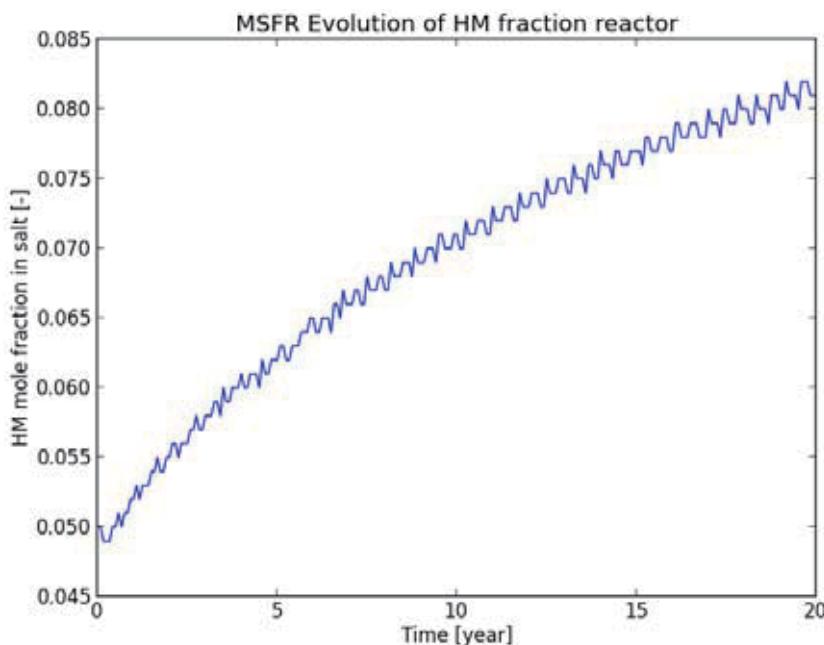


図8 小型溶融塩核変換炉の燃料中の MA の割合

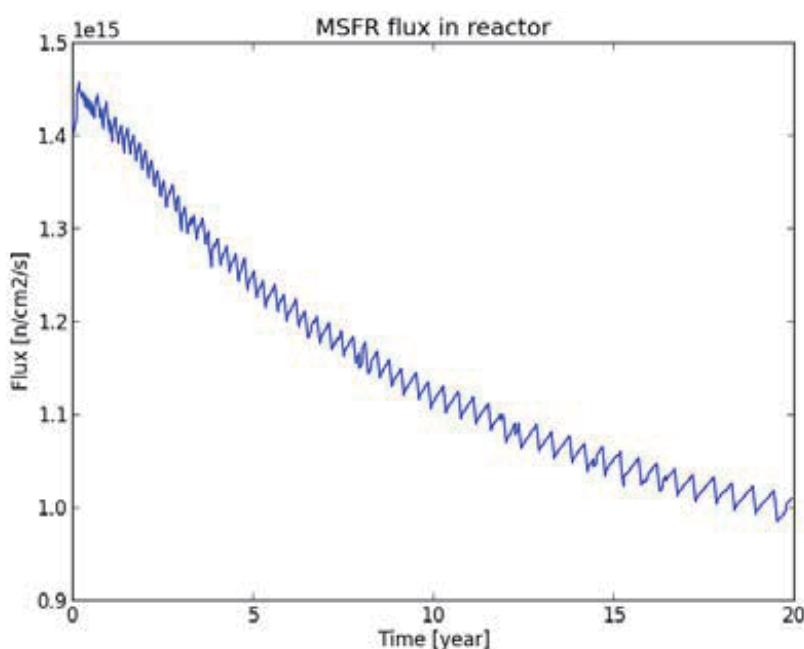


図9 小型溶融塩核変換炉の中性子束

表4 MSFR の 20 年運転時の燃料の質量バランス

	MA 質量 [kg]
初期装荷量	3570
核分裂した MA 重量	4613
20 年後の残留重量	7700
MA 消費量*	8743

* MA 消費量は初期装荷量以外に運転のために必要となる量を含む

(4) 小型溶融塩核変換炉のまとめ

今回の予備検討により、小型溶融塩高速炉は、長期間 MA 燃料のみの連続追加、並びに連続化学処理により運転可能であることが示された。核燃料の組成の劣化はあるが、燃料追加量の調整により運転が可能である。

今後検討すべき解析評価項目としては、原子炉システムの安全性パラメータや、炉物理特性などが挙げられる。

4. 国内の取組状況

4.1 液体燃料の開発

エネルギー生産工程において、マスフローを排出工程から前段にもどす循環は、環境を上質に維持し、持続可能性を得るために本質的な要件である。石油化学工業で経験したようにマスフローの物質系を固体から液体に進化させることは効率性を高める上で有効である。核燃料サイクルに於いても多種類のマイナーアクチニドを原子炉内で均質に保持できる液体燃料の溶媒と、その適切な使用条件を見出すことができれば同様な技術革新が期待できる。さらに固体燃料に比べ大きな熱膨張率を持ち即発臨界へのマージンが高まるため、より安全設計の自由度が増加し、機器の簡素化においても有利となる⁽²⁹⁾。

2015 年の時点で、国内民間資金により小規模な研究開発が進行している⁽³⁰⁾。これは目的を液体燃料の経験蓄積に絞り、既存原子炉の燃料集合体に対応する大きさの化学反応容器・モジュール (Reactor in Reactor, RinR と略称) を開発対象とし、既存炉(もんじゅ、常陽、ないし水冷却の商用炉)のごく一部炉心領域での代替照射をめざすことによって開発の技術的かつ資金的なしきいを下げ、ハルデン試験炉照射プロジェクトを立ち上げることによって開発フィールドを確保しつつ迅速に炉内データと経験とを得ようとする路線である (TTS (トリウム・テック・ソリューション) 社が実施中)。その成果は燃料ふるまい解析コード、液体燃料要素技術、関連機材の設計情報などとして取りまとめる予定である。液体燃料技術の適用対象には、乾式再処理・群分離の後段に置くプルトニウム・マイナーアクチニドの燃焼・減容工程、福島事故廃炉処理の

延長線上にある残存核分裂性物質のクリーンアップ、高温対応の原子力技術を念頭においていた教育用小型原子炉などが想定されている。

4.2 溶融塩原子炉プラント

溶融塩炉には、近年の動きから、水冷却型発電炉とは異なる事故シナリオ、とくに過酷事故でのパラダイム転換が期待されている。フッ化物溶融塩の長所は、破壊力を発生しない化学的安定性（安全性）や沸点が 1500 °C を越える高温特性（使用目標温度：700 ~ 1000 °C）、燃料の流動による伝熱特性改善などにある。安全性に関する実験的検討として、とくにフッ化物の採用による過酷事故時のセシウム・ヨウ素放出防止／低減効果について、福井大学と東京大学が共同で気相への物質移行実験（クヌードセンセル法、トランスペイレーション法）を実施し、評価手法の開発を進めている^(31,32)。燃料塩が環境に漏出するような仮想的事故を想定しての放射能放出量評価では、軽水炉の過酷事故時の放射能放出量に比べて 2 衍程度低いことが示され、溶融塩炉の事故時安全性の高いことが再確認された⁽³¹⁾。また、並行して構造材であるニッケル合金（ハステロイ-N）のフッ化物溶融塩による腐食についても福井大学で試験され、腐食機構の解明が進められている⁽³³⁾。

新しいプラント概念として静置燃料型プラントの設計が福井大学から提案され、燃焼解析などが進められている。燃料が炉心容器から外部に配管を通して出て熱交換器に至るという、配管内を液体燃料が循環する設計を避け、燃料は液体とするがこれをプール型容器内に静置し、一次系熱交換器を炉心容器内に設置する設計である⁽²²⁾。事故時にも放射能の環境への放出を防止しようとする設計であり、また遅発中性子の一部が炉心外領域で発生するという循環燃料型溶融塩炉における反応度上の不利をカバーできる設計である。

さらに、塩化物燃料溶融塩炉に高温化学処理（pyrochemical processing）を組み合わせる新しい統合型溶融塩高速炉（Integral Molten Salt Fast Reactor（IMSFR））のコンセプトが山脇と小山によって提案された⁽³⁴⁾。アルゴンヌ研究所で提案され、研究された統合型高速炉（IFR）は、金属燃料高速炉と高温化学処理を組み合わせる方式であったが、IMSFR はその発展型と言えるもので、溶融塩燃料は塩化物のまま化学形を変えることなく処理系との間を行き来させるメリットがある。塩化物溶融塩では、TRU の溶解度が 50% 以上にも達するので、高い核変換効率を達成できることが期待できる。

5. 海外の状況

5.1 第4世代炉会議や OECD/NEA などを巡る情勢

第4世代炉会議（GIF）のうち溶融塩炉（MSR）部門⁽³⁵⁾（GIF/MSR）は第一回準備会議を、2004 年 2 月に仏カダラッシュで開催した。この会議で対象となる MSR 炉形式には熱中性子型炉と高速中性子型炉、トリウム炉と非トリウム炉、溶融塩燃料炉と固体燃料溶融塩冷却炉などの

対立軸とその組み合わせが存在する。しかし発足時 2004 年の時点から 2007 年への予備的検討の中で、商用炉使用済燃料から取り出されたプルトニウム・マイナーアクチニド (MA) を主要な燃料とする、高速中性子型溶融塩燃料炉 (FMSR) が議論の主要テーマとなった⁽³⁶⁾。

ここに至る過程として、1990 年代から 2000 年代初頭にかけて積極的に行われていた MA 燃焼と廃棄物焼却を目的とする原子炉システムの炉物理的な設計検討がある。すなわち MA 系の核的性質にはウラン・プルトニウム系と比較して、(1) ドップラー効果の減少、(2) 遅発中性子割合の減少、の相違がある。前者においては U238 が無いこと、後者においては Am241, Cm 244 で一桁小さい値となることが原因とされている⁽³⁷⁾。結果として即発臨界へのマージンが減るため、MA 燃焼では核的な安全性に特に留意しなければならない。加速器駆動未臨界炉 (ADS) はこの点で優位にありその設計検討の中でフッ化物溶融塩技術の適用が評価されていた。特にチェコ国立原子力研究所 (Rez/NRI) では、Hron, Matal, Choklowski, らによりフッ化物塩およびフッ化物塩燃料の原子炉照射 (BLANKA, 2002 年) が実施され、放射化学的および炉物理的な検討が行われた⁽³⁸⁾。またロシアではクルチャトフ研究所の Alekseev, Ponomarev らの主導により CMSR (Cascade Subcritical Molten Salt Reactor) と引き続く MSR の炉物理的研究が進められた^(39,40)。そのなかで、即発臨界時の投入エネルギーを減らすため固体燃料炉心では扁平形状として大きな中性子の漏れ率をとるが、液体燃料では原子間距離が大きいため固体燃料に比較して熱膨張率が一桁以上大きく、体積効率のよい球形・均質炉としての設計が可能となり、設計の自由度が増すことが指摘された。

GIF/MSR 準備会 (2004 年) から第一回パリ運営会議 (2006 年) 、チェコ・プラハ会議 (2007 年) 、第六回パリ会議 (2008 年) にかけて、フランスから提案された高速中性子 (非減速 (NM)) 型溶融塩炉と、ロシアの溶融塩燃料技術⁽⁴¹⁾、チェコのフッ化物乾式再処理技術⁽⁴²⁾を合わせ、溶融塩炉のもうひとつの特徴である燃料組成の自由度 (雜食性、omnivorous) を活かし MA 燃焼とトリウム燃料サイクルも取り入れた、トリウム・溶融塩炉・非減速型 (T-MSR-NM) で、集約する方向となった。ちなみに、仏では OECD/NEA 会議を主導するとともに、国内にはこの高速中性子型溶融塩燃料炉を液体金属冷却高速中性子炉と核融合炉との間に位置づけ、グルノーブル大学を窓口として国内研究計画を進めている。

この GIF を受け皿とした持ち寄り型の国際共同研究は 2004 年の予備検討開始以来、欧州共同体 EURATOM の研究計画すなわち MOST/FP5, LICORNE/FP6, ALISIA, EVOL と並行して進められ、この流れは 2013 年の終了まで基本路線として継続した。この間ロシアでは、ソ連崩壊後のロシア国立研究所への支援 ISTP 、ならびにその継続として上記と同様の高速炉計画 (MOSALT 、クルチャトフ研究所等) を推進し、欧州とロシアで情報交換を中心とする共同研究が行われてきた。

MSFR

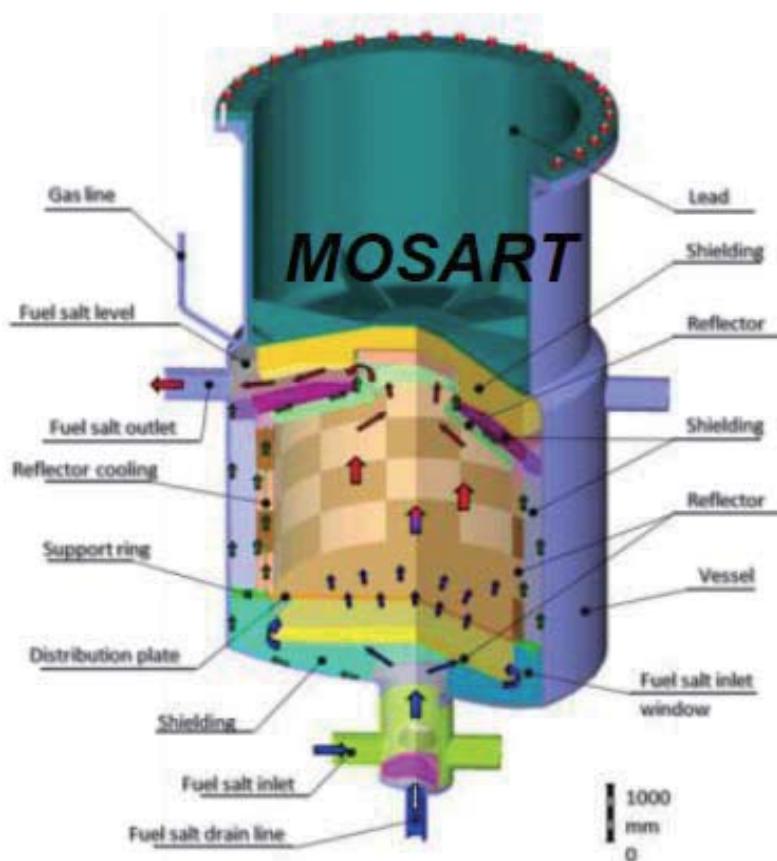
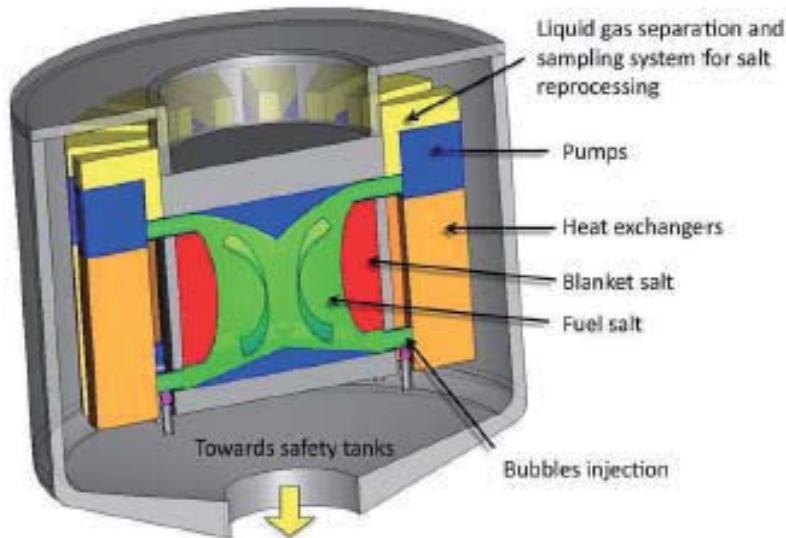


図10 高速中性子型一流体式溶融塩炉（仏：MSFR、露：MOSART）⁽⁴¹⁾

Fuel circuit	MOSART (MARS)	MSFR (EVOL)
Fuel salt, mole %	$\text{LiF}-\text{BeF}_2+1\text{TRUF}_3$ $\text{LiF}-\text{BeF}_2+5\text{ThF}_4+1\text{UF}_4$	$78.6\text{LiF}-12.9\text{ThF}_4-3.5\text{UF}_4-5\text{TRUF}_3$ $77.5\text{LiF}-6.6\text{ThF}_4-12.3\text{UF}_4-3.6\text{TRUF}_3$
Temperature, °C	620 - 720	650 - 750
Core radius / height, m	1.4 / 2.8	1.13 / 2.26
Core specific power, W/cm ³	130	270
Container material in fuel circuit	Ni-Mo alloy HN80MTY	Ni-W alloy EM 721
Removal time for soluble FPs, yrs	1 - 3	1 - 3

表5 露 (MOSART) と仏 (MSFR) の溶融塩炉設計パラメータ⁽⁴¹⁾

図 10 にフランスおよびロシアが設計解析対象とした高速中性子型一流体式溶融塩炉の概要図を示す。

表 5 に GIF 会議で議論に供された両国の溶融塩炉設計パラメータを示す⁽⁴¹⁾。両者ともに炉心直径は 3 m 弱。原子炉出力は仏設計では 3000 MWth (溶融塩燃料総量は 18 m³)、露設計では 2400 MWth である。ロシア設計の出力密度は 100 W/cc (軽水炉並み) をやや越える程度に抑えられ既存材料の性能限界が考慮されている。共に一種類の溶融塩燃料を循環させる一液式であり、仏設計では炉心周囲にトリウム増殖を助け中性子を減速する効果をもつ一液式ブランケットを配置している⁽⁴³⁾。図 11、図 12 に仏、露による燃料溶媒の選択とその組成の時間的変化に対する炉物理計算の結果を示す。

図 11 は、Lucotte が主導し EURATOM の学術研究プロジェクト EVOL (2011 ~ 2013 年) で行われたベンチマーク計算の結果である⁽⁴⁴⁾。3 つの機関 (クルチャトフ研究所・KI, 露)、グローブル大 (LPSC, 仏)、ミラノ工大 (POLIMI, 伊) 各々の計算結果はよい一致を示している。この計算では、初装荷起動時にトリウムを大量 (30.6 トン) 投入し、核分裂性物質として Pu, Np, Am, Cm の混合組成、すなわち軽水炉 (EPR を想定) の使用済ウラン燃料 (5 年冷却、Pu 87.5% (238Pu 2.7%, 239Pu 45.9%, 240Pu 21.5%, 241Pu 10.7%, 242Pu 6.7%), Np 6.3%, Am 5.3%, Cm 0.9%) から供給するとした。溶融塩炉の特徴であるオンライン再処理 (溶融塩中に溶け込んだ FP (ランタン族 Ln を含む) の除去) は、プロセス流量 50 kg/day から 200 kg/day の範囲で行うとした。これは 10 ~ 30 年で全量処理する速さに対応する。

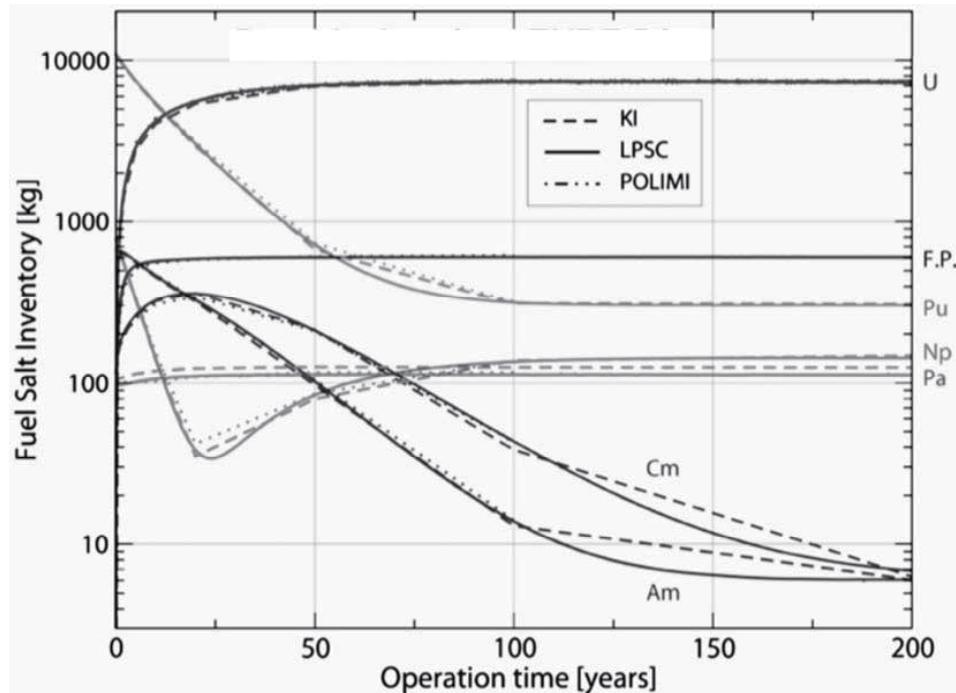


図11 仏設計 MSFR の燃焼特性（炉内組成の変化）⁽⁴⁴⁾

本ケースにおける運転開始時のプルトニウム投入量は約 11 トンであり、60 年（全出力年）の運転で約 0.7 トンまで減少する。平衡状態（約 100 年後）ではプルトニウム約 200 kg、ネプツニウムはその 1/3 程度となる。この計算では超ウラン元素（Pu+MA）が 60 年で約 1/30、平衡状態で 1/100 のオーダまで減少し、トリウムサイクルへの移行が完了する。

一方、ロシアでは国際共同ロシア研究所支援プログラム（ISTP-1606, および ISTP-3749）のなかでデータ取得実験を行い、その結果を用いて仏ないし EURATOM と同様の高速中性子型溶融塩炉の設計研究（MOSALT）を推進し、情報交換を通じた共同研究を行ってきた⁽⁴¹⁾。これとは独立に古くからロシア科学アカデミーメンバー（Ponomarev ら）が中心となった活動も継続されている⁽⁸⁾。

MOSART プロジェクトにはクルチャトフ研究所（Ignatiev ら）を中心に複数の国立研究所が参加し、資金的には ISTP に続き ROSATOM の支援で運営されている。標準設計（図 10）は熱出力 2400 MWt の一流体（one stream）型の高速中性子型溶融塩炉であり、仏の MSFR に類似して同心円状のブランケット有無のオプションがある。炉内構造物はもたないが、上下周辺を囲む反射体（構造材金属へのフルエンスを低減するための遮蔽）に黒鉛材を用いている^(41,45)。

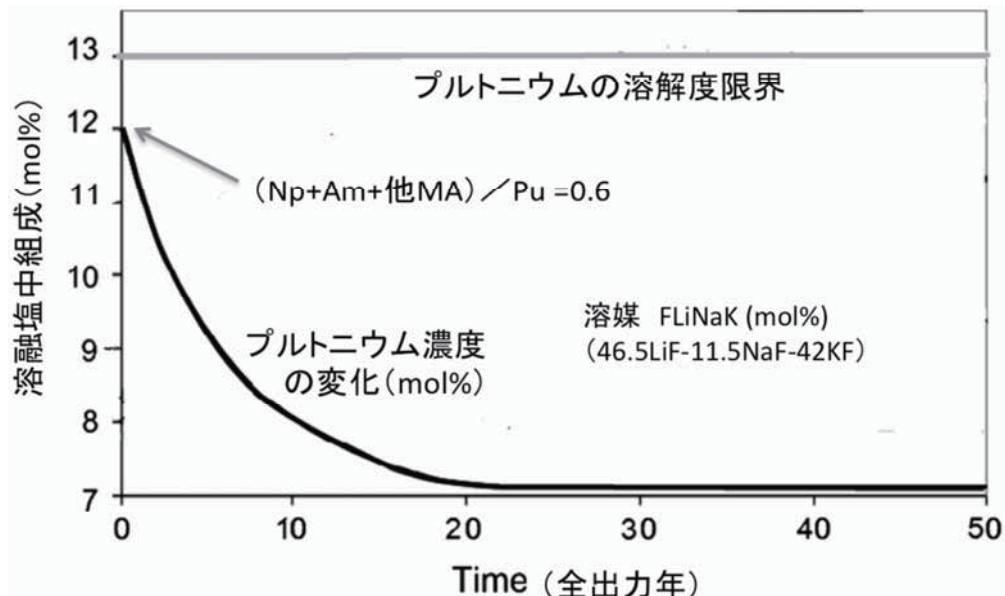


図12 ロシア MOSART 設計における MA 燃焼消滅計算の例⁽⁴⁵⁾

図12にMAを燃焼消滅させる運転モード(燃料組成と供給スキーム)の計算例を示す⁽⁴⁵⁾。全出力換算の運転時間に対してPu濃度の変化が示されている。このケースは、最終的にMAのみを燃料とする運転モードに至る計算例である。溶媒溶融塩には塩中で3価となるFP元素(Ln)およびPu、MAに対し高い溶解度が実測されたFLiNaK(46.5LiF-11.5NaF-42KF)を用いている⁽⁸⁾。Feynbergらの炉物理計算によれば、運転初期に若干の核分裂性プルトニウム(12 mol%)を投入し起動するが20年後にはMA濃度は一定となり、MA専焼炉モード、すなわち核分裂性のMAのみを燃料として駆動可能な炉となる⁽⁴⁵⁾。付属する再処理プロセスでは、運転開始から12年後(Ln濃度はこの時点で約0.1%moleに達する)から溶融塩中に溶け込んだFP(ランタン族Lnを含む)の除去を開始する。これは、1~3年で全量を処理するプロセス速度に対応する。

これら仏、露がおのおの独立に行った炉物理設計計算により、発電出力100万kWe級の高速中性子型溶融塩燃料炉(MSFR)1基数十年の運転で10トン規模のPu+MAが燃焼転換されることが確かめられた。但し、計算に用いられた再処理工程の実証、炉心周辺に用いられる材料(フッ化物溶融塩と接触する金属材料ならびに中性子遮蔽材)の性能実証は残された課題である⁽⁴⁶⁾。

2014年から2015年にかけて多くの動きが生じた。ひとつは欧州EURATOMの研究計画であり、EVOLの後継として新たな研究計画SAMFOR(Safety Analysis of MOLTEN salt FAst Reactor)が発足した(2015年8月1日)。目的は、福島事故の後を受け原子力発電がコスト的に不利な状況にある中、MSR固有の原理的な安全性と実機の建設コストとの関係を、基礎的な材料特性

データの取得評価やプラントモックアップ施設（シミュレータ）構築を含む設計段階からの検討調査により明らかにすることにある。平行して 2015 年春オランダの原子力研究所（NRG/Petten）と超ウラン元素研究所（EU, Karlsruhe）は共同して Petten HFR 炉を用いたフッ化物溶融塩燃料の照射計画 SALIENT（Salt と同義語）を開始した⁽⁴⁷⁾。また英国では議会（貴族院）の調査予算により世界各国の溶融塩炉開発動向に関する報告書が上程された⁽⁴⁸⁾。

米国では欧州と同様に MSR の原理的安全性と建設コストの関係に注目し、その適用のひとつとして、フッ化物溶融塩冷却固体（被覆粒子）燃料高温炉 FHR（Fluoride cooled High temperature Reactor）の設計検討を大学を中心に行い、同炉の中国 SINAP による開発に協力している。米国 ANS では 2013 年より FHR プラント安全性評価について枠組み構築を始め、2015 年初頭に GDC（General Design Criteria）の基本的な構築を終えている。

また IAEA では、2015 年 11 月より、米国、中国、フランス、ロシアを基軸として FHR/MSR、すなわちフッ化物溶融塩を冷却材のみ、或いは液体燃料兼冷却材とする原子炉プラントを対象にして報告書作成に向けたワーキンググループを立ち上げることとなった。

第 4 世代炉会議溶融塩炉部会（GIF/MSR）では、これらの各国の動きを情報交換の中で追跡しつつ、安全評価の考え方など注目事項につき報告書の検討とその取りまとめ作業を進めている。2014 年の時点で、後述する中国／米国共研の進展を受け、検討対象の原子炉プラントを、液体燃料塩を用いないフッ化物冷却固体燃料炉（FHR）まで拡大し、中国は正式に GIF/MSR 会議に加盟した。2015 年時点で米国、ロシア（ROSATOM）、韓国（UNIST）、日本（ITMSF^{脚注2)} はオブザーバ参加である。

5.2 米国 DOE と民間会社グループの共同出資による研究開発

米国エネルギー省（DOE）は、2035 年プラント実証を目指とした原子炉将来技術の公募 Gateway for Accelerated Innovation in Nuclear（GAIN）において、塩化物溶融塩原子炉を採択した（2016 年 1 月 15 日）。この溶融塩炉は、燃料として塩化物を用い、グラファイトなどの減速材を用いない高速中性子型（Molten Chloride Fast Reactor）である。資金投入は、国が優先するマッチングファンド（20%が民間）により初年度に DOE から 6 M\$（約 7 億円）、民間資金から 1.5 M\$、合計で約 9 億円とされている。主契約者は Southern Company Services であり、テラパワー（ビル・ゲイツ創立）、EPRI（米国電力研究所）、Vanderbilt 大学（テネシー州、ナッシュビル）、オークリッジ国立研究所（テネシー州、ノックスビル）によりグループを成す。

塩化物溶融塩技術は、我が国においてはウラン・プルトニウム系の燃料サイクルにおいてマイナーアクチニドの群分離を目的として、1980 年代から電力中央研究所が主導し欧州の超ウラン

^(脚注2) ITMSF : International Thorium Molten Salt Forum（トリウム溶融塩国際フォーラム）は古川和男（原研 初代ナトリウム研究室長、元東海大学教授、2011 年 12 月没）により 2008 年 10 月に設立されたトリウム溶融塩炉の技術的可能性の追求と知識普及を目的とする NPO。

元素研究所と共同で開発を進めてきた乾式再処理の中心となる技術である。したがって塩化物溶融塩炉は、燃料増殖を前提とする高速炉体系の先進的技術として適合性が高いと考えられる。主契約者の Southern Company は、1972 年運転の BWR 発電炉 Hatch-1, 2 を傘下に持ち、その積極的な研究開発で多大な実績があり、現在、AP1000 の 2 基を 2019 年運転予定で建設中である。同社と有力なベンチャー企業のテラパワーとが協力したことは、溶融塩炉開発をテーマとして、民間主導による先端原子力開発が始動したと見ることができよう。

5.3 中国と米国による FHR プラント開発

米国エネルギー省 (DOE) と中国科学アカデミー (CAS) は溶融塩炉技術に関する共同研究契約 (2011 年 MOU) を結び、オークリッジ国立研究所と上海応用物理学研究所 (SINAP) は CRADA (Cooperative Research and Development Agreement) 契約を締結 (2014 年) している。上記協力の下で SINAP は 2016 年末を目指して原子炉システムのモックアップ施設 (シミュレータと呼称) (MSR-SFO) を上海郊外 (嘉定、Jiading) に建設する (図 13)。その目的は高温フッ化物の取り扱い訓練も含む開発フィールドの構築であり、関連機器と原子炉システム全体の機能実証、1MW 電気加熱で炉心部に充填したペブル燃料模擬体に溶融塩 FLiNaK を流し熱交換器を含む伝熱流動の模擬実験を行う。溶融塩ループの仕様は 150 kg/s (700 °C) であり、我が国の国立核融合科学研究所 (NIFS、多治見) の FLiNaK ループ (500 °C、流量約 1.6 kg /s) より 2 衍ほど大きい規模である。この装置の運転により、大型ポンプ等の関連機器と原子炉システム全体の機能の実証 (デモンストレーション) が期待されている。

大学独自の活動では MIT の Forsberg が主導し DOE 予算 5 M\$ (2014 年) を得て、大学内で溶融塩冷却高温原子力プラント (FHR) の研究を進めている。この原子力工学プログラム NEUP Initiative (Nuclear Engineering University Program) は大学連合 IRP (integrated research project) によって統合され、MIT (Forsberg ら)、UCB (Petterson ら)、ウイスコンシン大学 (Allen)、ジョージア工大などが活発な研究活動を行っている。この動きの中で UCB において 2015 年 3 月に第 1 回国際セミナーが中国 (SINAP)、韓国 (UNIST) からも参加を集めて開催された。

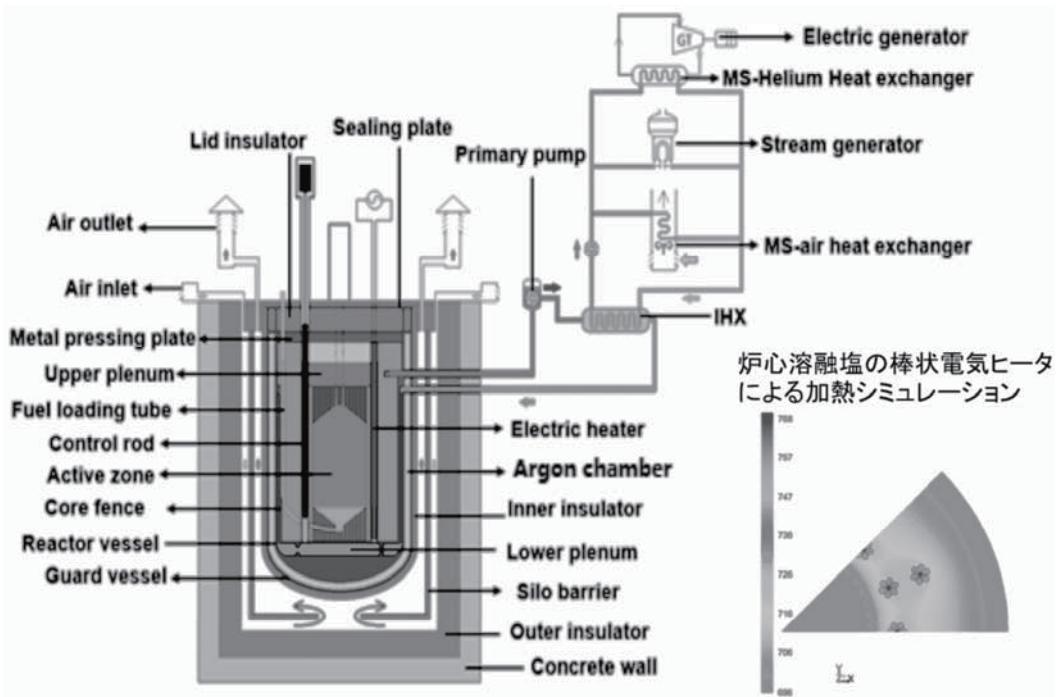


図13 上海応用物理学研究所が計画中の溶融塩炉1号機のモックアップ施設
(シミュレータ)(電気加熱1MW、2016年末稼働予定)

5.4 溶融塩炉プラントの概念設計

かねてからの ORNL・MSRE 実験炉を基本とする標準的な概念設計 (FUJI など) に加えて、2011 年以降に新しい発想による設計案が生まれている。英国 MOLTEX 社の Ian Scott による設計提案^(49,50)、カナダ Le Blanc による設計提案 (IMSR)⁽⁵¹⁾ などである。前者は英国議会を基として設立されたトリウム溶融塩炉開発を支援する Weinberg Foundation から派生した活動であり、燃料棒で炉心を構成する溶融塩冷却タンク型炉を提案している。その設計解析では、塩化物の溶融塩燃料を細径燃料棒 (直径 2 cm 程度) に封入し、対流熱伝達による除熱で 200 W/cc を越える発熱密度が可能としている (線出力 600 W/cm 相当)^(49,50)。後者 LeBlanc の設計は、熱交換器と炉心がひとつの容器内に格納された一体型であり 7 年間燃料交換なしで運転することを目標としている⁽⁵¹⁾ (図 14)。一体化容器の外側は融点が高く熱容量の大きい凍結したフッ化物塩を置き全電源喪失 (SBO) 等事故時の安全性を高めている。この設計は TMI 事故にスウェーデン ASEA-ATOM 社が提案した PIUS 炉 (水炉) を想起させる。米国 ORNL への委託によって 2015 年末を目指して本設計の工学的評価が進められている。

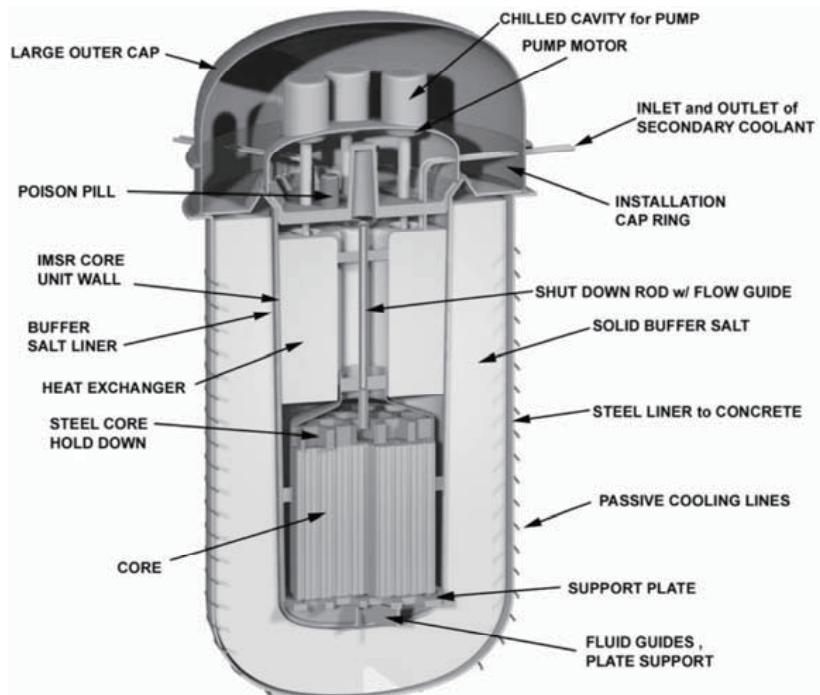


図14 LeBlanc (Terrestrial Energy) による固体塩で囲った一体型 IMSR の設計⁽⁵¹⁾

5.5 韓国の状況

韓国の大学ではトップダウンで各大学ごとに得意分野を絞った経営が主流である。南部釜山近郊の蔚山工科大学(UNIST)では、韓国原子力学会核燃料部会長を務めた元 KAERI 原子力部長の D.S. Sohn 教授が主導し、2012 年よりトリウム溶融塩炉の国際セミナーを米国、ロシア、EURATOM、日本などから専門家を集めて、毎年開催している。また米国の大学連合 NEUP Initiative の会合にもオブザーバ(複数人数)を派遣して技術検討に参加し、平行して大学内に専門家チームを構築しつつある。成果の一例として、2015 年のセミナーでは熱中性子型増殖炉(ORNL による MSBR 設計)の詳細な設計寸法を取り入れた炉物理計算(MCNP)を行い、黒鉛減速炉の MSBR でも温度係数が負となって安定性が保たれるとの結果を得ている^(52,53)。これは、2004 年から 2006 年にかけて第 4 世代炉会議(GIF/MSR)で高速中性子型溶融塩炉を標準設計とする方向を決定づけた時の結果を否定するものであるが、専門家間では一定の評価を得ている。

6. おわりに

溶融塩炉の開発の状況と、それによる高レベル放射性廃棄物核変換に関する研究の状況について、現状のサーベイを行った。3 節では、溶融塩核変換炉による超ウラン元素の核変換に関して、核変換を効率よく行う方式の工夫と、それによって核変換率がどこまで向上するのかの

評価を行った例を2件紹介した。FRより効率の高い核変換が期待できる可能性が示されたが、残された課題も指摘された。続いて、溶融塩炉の国内外の開発状況についてレビューした。第4世代炉会議などで情報交換しながら、EURATOM、ロシアなどが溶融塩高速炉について研究を続けている一方、近年中国と米国がフッ化物溶融塩冷却固体燃料炉の開発で協力を進めている。福島事故以来、高レベル放射性廃棄物の処理処分への関心が一層高まったことを反映して、安全性が高く効率のよい放射性廃棄物核変換システムとして関心が持たれるようになってきている。我が国でも、近年溶融塩炉に関する複数の研究が始まられ、そして継続されている状況にあるが、一部企業からの資金援助はなされたものの国からの支援はまだなされていない。高速炉とADSの開発が、放射性廃棄物の核変換システムを目指す国家プロジェクトの一環として進められているのとは対照的である。本章のレビューで明らかにされたように、溶融塩炉は効率的で安全な核変換システムとなりうる有望な技術であり、世界的にその開発に向けて大きく動こうとしている状況にあることが認識された。特に今年2016年1月に米国で原子炉将来技術の公募(GAIN)において、塩化物溶融塩炉が採択されたことは画期的である。我が国においても、国家プロジェクトの一翼として溶融塩炉の研究開発が進められるようになることを期待したい。溶融塩炉というポテンシャルの高い技術に広く関心が持たれるとともに、その研究開発への積極的な参加と支援が拡大することを願いたい。

【参考文献】

- (1) "Operation of the Aircraft Reactor Experiment," ORNL-1845 (1955)
- (2) "Conceptual Design Characteristics of a Denatured Molten-Salt Reactor with Once-Through Fueling," ORNL-TM-7207 (1980)
- (3) Uri Gat, Oak Ridge National Laboratory, 4th Int. Conf. Emerging Nuclear Energy Systems, July 4, 1986.
- (4) 高橋実、「エネルギーと原子力」(財)電力中央研究所 No.6 電力経済研究、(1974年9月)p11. および、高橋実特別研究室 溶融塩炉 調査報告。
- (5) 溶融塩増殖炉研究専門委員会編、溶融塩増殖炉(改訂増補版)、日本原子力学会(1981)
- (6) K.Furukawa, K.Minami, T.Oosawa, M.Ohta, N.Nakamura, K.Mitachi, Y.Kato, "Design Study of Small M.S. Fission Power St. suitable for coupled with Accel. M.S. Breeders", Emerg. Nucl. Ene. System (Proc.4thICENES) World Sci. (1987) P.235
- (7) K. Furukawa, K. Minami, K. Mitachi, Y. Kato, "Compact Molten-Salt Fission Power Station (FUJI-series) and Their Developing Program", Proceed., No.87, 896 (1987) Electrochem. Soc.
- (8) Leonid Ponomarev, "Molten Salt Fast Reactor (MSFR) with the U-Pu Fuel cycle based on LiF-NaF-KF eutectics," INES-4, A12-1, November 6, 2013.
- (9) O. Benes, et al., "Review Report on Liquid Salts for various Applications" , ALISIA DELIVERABLE (D-50), February 2009.
- (10) 三田地紘史、廣瀬保男、島津洋一郎、「熔融塩炉を使用する超ウラン元素の減量法 --- (II) TRU 焼却率に及ぼす燃料塩生成効率の影響 ---」日本原子力学会2014年秋の大会講演要旨集 H39、2014年9月。
- (11) 三田地紘史、「熔融塩炉を用いる超ウラン元素の減量法」トリウム熔融塩国際フォーラム 研究会配布資料、2014年11月。
- (12) S. Delpech et al., "Reactor Physic and reprocessing scheme for innovative molten salt reactor system" J. Fluorine Chemistry July 2008.

- (13) K. Okumura et al., “SRAC2006: A Comprehensive Neutronics Calculation Code System” , JAERI Data/Code 2007-004 (2007).
- (14) K. Shibata et al., “Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 3 Revision 3: JENDL-3.3” , J. Nuclear Science & Technology Vol.39, pp.1125 (2002).
- (15) 原子力科学技術委員会、群分離・核変換技術評価作業部会「群分離・核変換技術評価について(中間的な論点のとりまとめ)」文部科学省 第43回原子力委員会 資料第1-2号、平成25年11月。
- (16) A. Degtyarev et al., “Molten Salt Fast Reactor with U-Pu Fuel Cycle” , Progress in Nuclear Energy 1-4, 2014.
- (17) 廣瀬保男、三田地紘史、島津洋一郎、「弗化物溶融塩高速炉の成立性と効用 --- (III) 燃料塩の化学プロセス概念(その1)燃料塩の化学的特性 ---」、日本原子力学会2015春の年会講演要旨集K38、平成27年3月。
- (18) Y. Hirose, K. Mitachi, Y. Shimazu, “Feasibility of Molten Salt Fast Reactor for Emerging National Tasks” , ANS2015 IHLRWM #12671, April 2015.
- (19) 三田地紘史、「弗化物溶融塩高速炉の成立性と効用 --- (IV) FUNAK 溶融塩高速炉の核特性 ---」、日本原子力学会2015秋の年会講演要旨集、平成27年9月。
- (20) 廣瀬保男他、「弗化物溶融塩高速炉の成立性と効用 (II) および (III)」、日本原子力学会2015春の年会講演要旨集、平成27年3月。
- (21) 島津洋一郎、W.G.F. Rooijen, “核変換のための溶融塩高速炉の燃料サイクル”、日本原子力学会2014春の年会講演要旨集、K20, 平成26年3月
- (22) M. Yamawaki, Y. Arita, W.F.G. van Rooijen, Y. Shimazu, M. Taira, “New Concept of Static-Fuel-Type Molten Salt Reactor” , paper-1694, ICONE23, May (2015).
- (23) K. Nishihara, T. Iwamura, H. Akie, Y. Nakano, W.F.G. van Rooijen, Y. Shimazu, “Comparative study of Plutonium and minor actinide transmutation scenario” , Proceedings of Global 2015, September 20-24, Paris (France) Paper 5382(2015), Accepted for presentation at GLOBAL2015.
- (24) O. Beneš, R.J.M. Konings, Thermodynamic evaluation of the (LiF + NaF + BeF₂ + PuF₃) system: actinide burner fuel. The Journal of Chemical Thermodynamics, 41:1086 – 1095, 2009
- (25) M.B. Seregin, A.P. Parshin, A.Yu. Kuznetsov, L.I. Ponomarev, S.A. Mel'nikova, A.A. Mikhalichenko, A.A. Rzheutskii, and R.N. Manuilova, Solubility of UF₄, ThF₄, and CeF₃ in a LiF-NaF-KF Melt. Radiochemistry, 53(5):491 – 493, 2011. Original Russian text published in Radiokhimiya, 2011, 53, 5, 416 – 418.
- (26) A.A. Lizin, S.V. Tomilin, O.E. Gnevashov, R.K. Gazizov, A.G. Osipenko, M.V. Kormilitsyn, A.A. Baranov, L.V. Zaharova, V.S. Naumov, and L.I. Ponomarev, PuF₃, AmF₃, CeF₃ and NdF₃ solubility in LiF-NaF-KF melt. Atomic Energy, 115(1):11 – 17, 2013
- (27) M.D. DeHart, TRITON: a two-dimensional transport and depletion module for characterization of spent nuclear fuel. Oak Ridge National Laboratory, January 2009. ORNL/TM-2005/39, Version 6, Vol. I, Sect. T1
- (28) ORNL, SCALE: A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation. Oak Ridge National Laboratory, January 2009. ORNL/TM-2005/39, Version 6, Vols. I – III.
- (29) H. Endo, H. Kawashira, H. Matsumiya, A. Shimizu, “Safety Features of Liquid Metal Fueled Core,” ANP’92 international conference on design and safety of advanced nuclear power plants, pp18.2-4.
- (30) F. Chiba, M. Kinoshita, H. Miyata, N. Tohyaya, T. Iwashita, K. Furukawa, M. Furukawa, poster 1a-21, International Symposium on Nuclear Back-end Issues and the Role of Nuclear Transmutation Technology after the accident of TEPCO’s Fukushima Daiichi Nuclear Power Stations, Dec. 2013
- (31) M. Yamawaki, Y. Arita, T. Terai, T. Koyama, K. Uozumi, Y. Sekiguchi, M. Taira, “Fundamental Study of Source Term for Severe Accident Analysis of Molten Salt Reactors” , paper 1566, ICONE-23, May (2015).
- (32) M. Yamawaki, Y. Arita, K. Fukumoto, M. Taira, R. Fujimura, “Evaluation Study of Source Term for Severe Accident Analysis of Molten Salt Reactors” , J. Plasma Fusion Res. SERIES, Vol. 11, 113-119 (2015).
- (33) R. Fujimura, K. Fukumoto, Y. Arita, M. Yamawaki, “Effects of Cs and Cs-Te for Corrosion Behavior of Hastelloy -N in Molten Fluoride Salt FLiNaK” , paper 1657, ICONE-23, May (2015).
- (34) M. Yamawaki, “Decreasing the Amount and Toxicity of High Level Radioactive Waste by Transmutation Technique including Molten Salt Reactors” , Plenary Lecture, 3rd Japan-China Academic Symposium on Nuclear Fuel Cycle, Tokyo, Dec. 2-5, 2015.

- (35) Jerome Serp et al., “The molten salt reactor (MSR) in generation IV: Overview and perspectives” , Progress in Nuclear Energy, (2014) 308–319.
- (36) F. Michel Sendis, “Introduction to Generation IV Nuclear Energy Systems and the International Forum”, Molten salt Reactor Steering Committee, May 2012, Paris.
- (37) Janne Wallenius (KTH, Stockholm), “Physics of Americium Transmutation,” Nuclear Engineering and Technology, Vol.44, No.2, March 2012.
- (38) Vladimir Lelek, Miloslav Hron, “Closed Fuel Cycle and Contemporary Tendencies of the Nuclear Facilities Development,” Review of Solid and Mobile Fuels for Partitioning and Transmutation Systems” IAEA Technical Meeting, CIEMAT, Madrid, Spain, December 15 –18, 2003.
- (39) A. Vasiliev, P. Alekseev, A. Dudnikov, P. Fomichenko, K. Mikityuk, S. Subbotin, “Conceptual Development of Molten-Salt Reactor–Burner of Minor Actinides,” PHYSOR 2002, Seoul, Korea, October 7–10, 2002.
- (40) P.N. Alekseev, V.V. Ignatiev, O.E. Kolyaskin, L.I. Men’shikov, L.I. Ponomarev, N.N. Ponomarev– Stepnoy, S.A. Subbotin, A.V. Vasiliev, R.Ya. Zakirov, “Concept of the Cascade Subcritical Molten Salt Reactor (CSMSR) for Harmonization of the Nuclear Fuel Cycle,” Proceeding of International Conference on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems, “GLOBAL– 99” . Wyoming, USA, (1999).
- (41) Victor Ignatiev, “Developing the Next Generation of Nuclear Systems: Potential Role and Uses of Thorium,” NEA Policy Debate on the Thorium Fuel Cycle, October 31, 2014.
- (42) Jan Uhlir, Martin Marecek, “Fluoride volatility method for reprocessing of LWR and FR fuels,” Journal of Fluorine Chemistry, 130 (2009) pp89–93.
- (43) Elsa Merle Lucotte, D. Heuer, M. Allibert, V. Ghetta, C. Le Brun, R. Brissot, E. Liatard, L. Mathieu, “The thorium molten salt reactor: Launching the thorium cycle while closing the current fuel cycle,” Session 17.2.2, European Nuclear Conference, Brussels, 17 Sept. 2007.
- (44) Elsa Merle Lucotte, “Bilan du projet EVOL: systeme MSFR,” Atelier “Surete–MSFR” – Novembre 2014.
- (45) V. Ignatiev, O. Feynberg et. al., “Molten salt actinide recycler and transforming system without and with Th–U support: Fuel cycle flexibility and key material properties,” Annals of Nuclear Energy 64 (2014) 408–420.
- (46) S. Delpech, E.M.Lucotte et al., “MSFR: Material issues and the effect of chemistry control,” GIF Symposium – Paris (France) – 9–10 September, 2009.
- (47) P.R. Hania, D.A. Boomstra, A.J. de Koning, I. Bobeldijk (NRG), O. Benes, P. Soucek, R.J.M. Konings (JRC–ITU), “SALIENT– HFR Irradiation of fluoride fuel salt,” GIF/MSR pSSC meeting, Delft, Aug. 2015.
- (48) Jasper Tomlinson, Rory O’ Sullivan, Trevor Griffiths, “MSR Review, Feasibility of Developing a Pilot Scale Molten Salt Reactor in the UK,” Energy Process Development LTD., July 2015.
- (49) Ian Scott, Molten Salt Discussion Group (MSDG) Research Meeting, London 2015.
- (50) Ian Scott, John Durham, 溶融塩技術の原子力への展開研究専門委員会（日本原子力学会）, 12月, 2014.
- (51) D. LeBlanc, 3rd International Technical Meeting on Small Reactors, Ottawa, Canada, Nov. 5–7, 2014.
- (52) Yongjin Jeong, Jinsu Park, Hyun Chul Lee, Deokjung Lee, J. Nucl. Sci. Tech. DOI: 10.1080/00223131.2015.1062812.
- (53) Jinsu Park, Yongjin Jeong, Hyun Chul Lee, Deokjung Lee, Int. J. Energy Res. (2015), DOI: 10.1002/er.3371.

第5章 核種分離

1. 化学分離

1.1 背景

放射性廃棄物の減容化・有害度低減のための分離変換サイクルを確立する上で、分離技術が必須である。この分離工程では、高レベル放射性廃棄物に含まれる長寿命核種や発熱性核種が対象であり、これら核種の分離核変換により、潜在的有害度の低減、放射性廃棄物の減容化による処分面積の低減が期待される。ここで潜在的有害度は高レベル放射性廃棄物の放射能について、経口摂取による各核種からの実効線量に換算した指標である。減容化・有害度低減の観点から、代表的な分離対象核種を表1に示す⁽¹⁾。長寿命核種では、TRU元素としてプルトニウムやMA(マイナーアクチニド:Np,Am,Cm)の核種の他、長寿命核分裂生成物(LLFP:Long life fission products)が挙げられ、発熱性核種ではFP中の⁹⁰Srや¹³⁷Csが代表的である。中でも、長寿命核種や発熱核種を含むMAの変換効果は大きく、世界的に分離技術の開発が行われている。以上のように、廃棄物の減容化や有害度低減の効果は特定の核種に依存しているが、核種レベルの分離は技術的に極めて困難であることから、元素としての分離を前提とした開発を進めている。

表1 高レベル廃液中の長半減期核種と量⁽¹⁾
(軽水炉 UO₂燃料:燃焼度 43 GWd/t)

	核種	半減期	使用済燃料1tHM当たりの含有量 ¹⁾ (g)	使用済燃料1tHM当たりの発熱率 ²⁾ (W)
主なTRU	Np-237	214万年	582	<0.1
	Pu-238	87.7年	1.13	0.6
	Pu-239	2.44万年	31.3	<0.1
	Pu-240	6570年	13.0	<0.1
	Pu-241	14.4年	6.6	<0.1
	Am-241	433年	413	47.1
	Am-243	7400年	136	0.9
	Cm-244	18.1年	38.9	110
主なFP	Se-79	6.5万年	6.63	<0.1
	Sr-90	29.1年	617	550 ³⁾
	Zr-93	153万年	926	<0.1
	Tc-99	21.3万年	994	<0.1
	Pd-107	650万年	282	<0.1
	Sn-113	10万年	30.5	<0.1
	I-129	1570万年	2.33 ¹⁾	<0.1
	Cs-135	230万年	487	<0.1
	Cs-137	30.0年	1419	580 ³⁾
	Sm-151	90年	13.1	<0.1

1) UO₂-LWR、43GWd/t、取り出し後5年、再処理によるPuは99.5%除去後、Iは1%が高いレベル廃液へ移行すると仮定

2) 娘核であるY-90を含む

3) 娘核であるBa-137mを含む

分離技術は、水溶液や有機試薬を用いる湿式法と溶融塩や液体金属を用いる乾式法に大別される。湿式法は溶媒抽出又はその原理を利用した方法であり、常温に近い条件で連続操作による大容量処理が可能であるとともに、制御やスケールアップ性に優れる特徴がある。加えて、技術の実用化を図る上では PUREX 再処理プラントで培ってきた工学的知見や経験を活かす

ことが可能である。乾式法は 500 °C を超える高温条件での処理技術であり、プロセス構成が単純であるとともに、溶融塩等を使用するため、放射線劣化による影響が極めて小さい。また原理上、Pu の単離が技術的に困難であるため、核拡散抵抗性に優れる等の利点を有している。

MA の分離変換技術に関しては、図 1 に示すように、高速炉サイクル利用型と核変換専用システム（ADS）を利用した階層型に大別され⁽²⁾、発電用原子炉から取り出された使用済酸化物燃料の他、核変換プロセス用高速炉又は階層型の各分離変換サイクルから取り出された燃料を対象に分離操作を行う。これまでの技術開発では、酸化物燃料に対する分離技術として湿式法の開発が主流であり、一方、階層型分離変換サイクルに適用する MA 含有燃料は窒化物燃料等が検討されており、その分離技術として乾式法の開発が主に進められている。

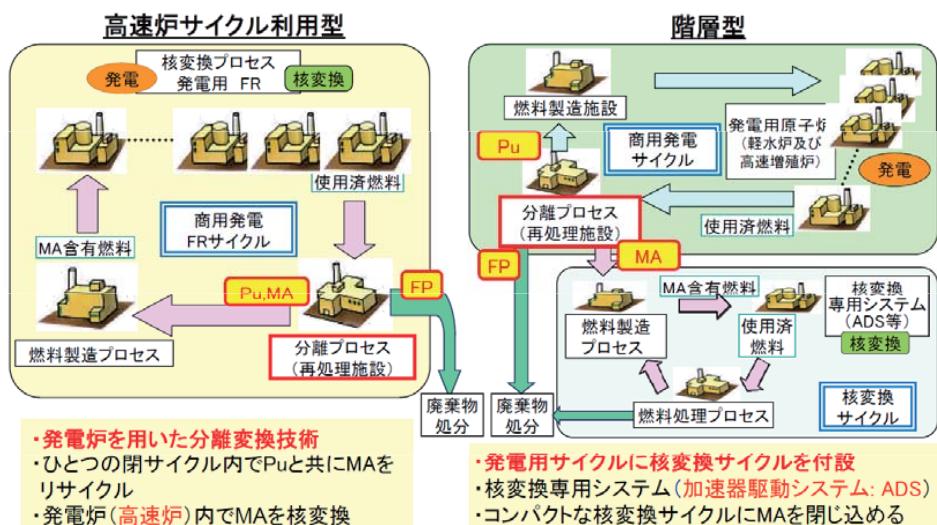


図 1 MA 等の核変換における高速炉サイクル利用型と階層型の比較⁽²⁾

1.2 期待される成果

分離変換技術によって、放射性廃棄物の減容化・有害度低減の効果を高めるためには、優れた分離性能が求められる。例えば、高レベル放射性廃棄物の潜在的有害度が燃料製造に使用する天然ウラン全量のレベルを下回るのに要する時間を再処理後数百年とするためには、使用済燃料中の MA に対して、99.9% 程度の高い分離回収率が要求される。以上の点から、将来のサイクルオプションとして、分離変換サイクルの実現を図るためにには、高い分離性能を備えた技術の構築が必要不可欠であることは言うまでもないが、さらに次世代の分離プロセスには、核拡散抵抗性や環境負荷低減の視点も一層重要となるであろう。

これらの点をふまえ、将来の分離プロセスに適合可能な抽出剤の開発を進めるとともに、その性能を活かしたフローシート条件を構築することが必要である。そのためには、幅広い分離条件の想定の下でデータを整備し、実プロセス液によるフローシートのホット性能実証に関する成果が期待される。さらに本分離プロセスによる製品には、次の燃料製造への適合性も求められる

ため、その技術的見通しを得るための知見も求められる。さらに将来的には、分離技術の実用化に向けた開発にも目を向ける必要があり、信頼性の高い分離システムを構築するため、適用する機器の開発等、工学的知見に基づく成果が期待される。

1.3 研究開発の状況

分離技術に関する研究開発の状況を湿式法と乾式法に分けて示す。湿式法に関しては、旧日本原子力研究所（現 日本原子力研究開発機構）において、放射性廃棄物の減容化・有害度低減や希少金属の有効利用の観点から、4群群分離の研究が進められている。4群群分離は、高レベル放射性廃液中の元素を(a) MA、(b) 白金族、(c) 発熱性元素(Sr,Cs)、(d) その他から成る計4つの元素群に分離するプロセスの研究である。プロセスの一例を図2に示す⁽³⁾。本項では、(a) MA、(c) 発熱性元素(Sr,Cs)の開発状況について示す。

本研究におけるMAの分離技術では溶媒抽出法を利用し、MA+RE（希土類元素）の共分離とMA/REの相互分離の2段階プロセスを中心開発が進められている。高レベル放射性廃液からのMA+REの分離では、従来、DIDPA（ジイソデシルリン酸）を用いた抽出法によりTRU元素の分離に成功したが、その後、二次廃棄物の発生量等の課題を解決するため、希釈剤ドデカンに可溶なアミド系抽出剤としてTODGA（テトラオクチルグリコールアミド）が開発された。近年では、TODGAに比べて抽出容量が約5倍のアミド系抽出剤TDdDGA（テトラドデシルグリコールアミド）が開発され、抽出試験によりAmの回収率99.99%以上の性能を有することが確認されており、今後の計画として、実高レベル放射性廃液からの抽出試験が予定されている。

後段のMAとREの相互分離プロセスについては、窒素や硫黄等の配位子を有するソフトナー系の抽出剤であるTPDN等が開発されている。ソフトナー系抽出剤はMAとREに対する水溶液中での錯体形成能力の違いにより、REよりもAmやCmと結合しやすい性質を有する。この抽出剤TPDNによるAmとEuの抽出分離試験の結果から、pH=1～5の領域において、良好な分離性能を有することが実験的に示されている（図3）⁽²⁾。ただし、今後の開発課題としては、希釈剤としてニトロベンゼンを使用していることから、実績のある希釀剤ドデカンへの溶解性を確保するための分離構造の検討や抽出速度の向上が挙げられる。また、このソフトナーと酸素を配位子とするハードナーを組み合わせたハイブリッド抽出剤の開発も進められており、

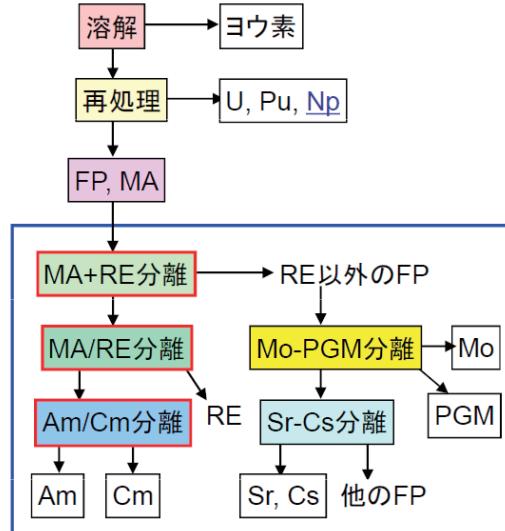


図2 群分離プロセスの一例⁽³⁾

ドデカンへの溶解性が良好で優れた抽出速度を備えるHONTA(ヘキサオクチルNTAトリアミド)の他、酸化領域で良好な分離性能を示し、高い化学的安定性と耐放射線性を有するOctolPTAやdi-OcBIZa等の新抽出剤が開発されている⁽³⁾。

発熱性元素(Sr、Cs)の分離に関しては、適用可能なプロセスの検討が進められている。その具体例として、抽出クロマトグラフィ法により、Sr吸着材にDtBuCH18C6、Cs吸着材にCalix-crown R14を適用した条件で、分離性能の評価を行っており、RIトレーサーや実際の高レベル放射性廃液を用いた分離試験結果から、Sr、Csの良好な分離性能が得られている。発熱性元素(Sr、Cs)の分離研究については現時点でのフェージビリティ研究の段階ではあるが、将来的には、MA分離システムと統合することにより、包括的な分離システムの構築を目指している。

旧核燃料サイクル開発機構(現日本原子力研究開発機構)では、高速炉燃料の再処理技術開発の中で、溶媒抽出法によるAm、Cmの分離技術としてSETFICS法の開発が進められた。本法はTBPの濃度調整により重金属の装荷濃度を高めるとともに、二次廃棄物発生量の低減を図るため、プロセスに使用する塩析剤として、ソルトフリー試薬の硝酸ヒドロキシルアミン(HAN)が適用されている。この分離フローシートの成立性は、実高レベル放射性廃液を用いたホット試験により確認され、Am、Cmの良好な分離性能が確認されている。

また、2006年に開始された高速増殖炉サイクルの実用化研究開発(通称FaCTプロジェクト)では、U-Pu-Npの一括抽出技術や抽出クロマトグラフィ法による高レベル放射性廃液からのAm、Cmの分離技術の開発が進められている。本プロジェクトにおけるMAの分離技術の選定にあたっては、実用化戦略調査研究(FS)により、溶媒抽出法に比べて、経済性や二次廃棄物の発生量の観点から抽出クロマトグラフィ法に利点があると評価され、実用化のための研究開発が行われている。

U-Pu-Npの一括抽出技術については、先進湿式再処理法の一環として開発を進めており、燃料溶解液から晶析法で大半のウランを分離した溶液を対象に、U-Pu-Npを一括で抽出・逆抽出する簡素化プロセスである。この中で、Npは硝酸溶液中で抽出性のNp(IV)、Np(VI)と難抽出性のNp(V)で存在するが、これを硝酸濃度のみの簡便なNp原子価制御により、Npの抽出性をコントロールしている。これまでに、実照射済燃料溶解液の抽出試験を実施しており、99%程度のNp回収率が得られている。

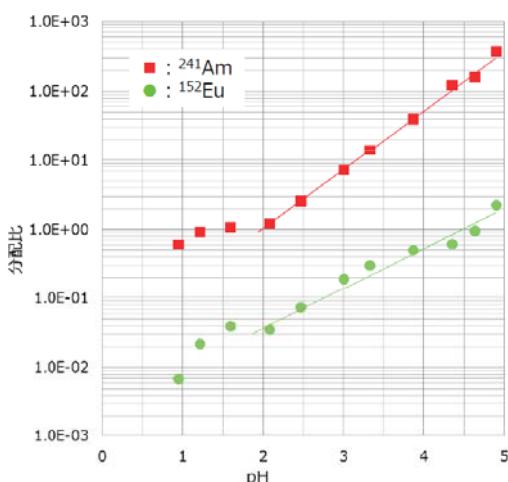


図3 TPDNによる²⁴¹Am、¹⁵²Euの溶媒抽出試験結果⁽²⁾

この先進湿式再処理法では、高レベル放射性廃液からの Am, Cm の分離技術として、抽出クロマトグラフィ法の適用が検討されている。抽出クロマトグラフィ法の概要を図 4 に示す。本法は、抽出剤を含浸させた固体の吸着材を用いて、カラム操作により、溶媒抽出法の原理を利用した分離技術である。吸着材は多孔質 SiO_2 担体粒子に有機ポリマー（スチレンジビニルベンゼン）を被覆し、抽出剤を含浸させた構造である。吸着材の粒径は $600 \mu\text{m}$ 程度であり、抽出剤が含浸される吸着材内の細孔径は数十 μm である。本法の主な利点としては、抽出剤を吸着材に直接含浸させるため、一般に溶媒抽出法で使用される希釈剤が不要であり、有機溶媒の廃液発生量が低減可能であることや、溶媒抽出法に比べて、使用する機器点数が少なく、コンパクトな装置構成が可能であること等が挙げられる。

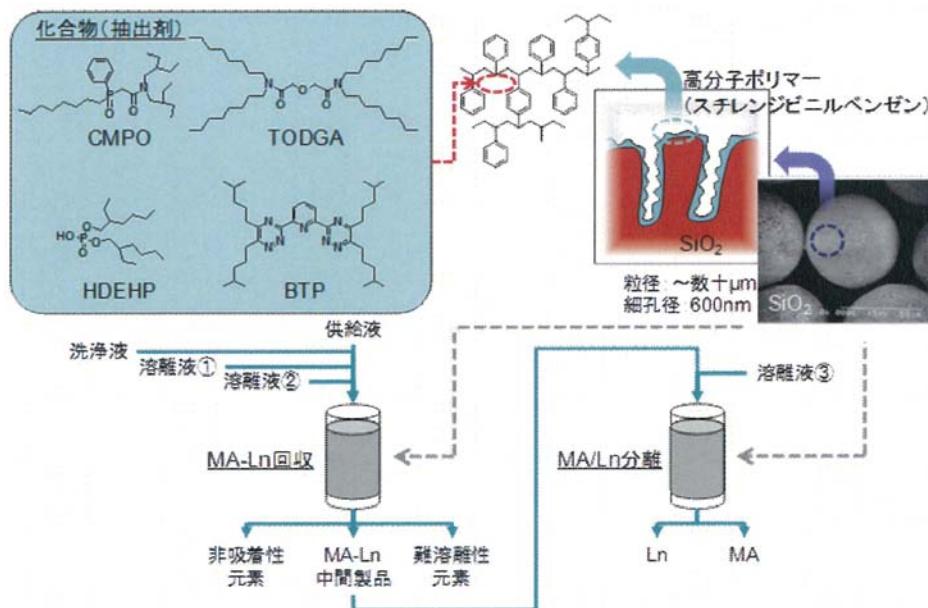


図4 抽出クロマトグラフィ法による MA 分離技術の概要

抽出クロマトグラフィ法による Am, Cm の分離は、高レベル放射性廃液からの MA+RE の分離と MA/RE の相互分離の 2 段階プロセスが検討されており、一例として CMPO/ SiO_2 -P カラム試験により得られた溶離曲線の結果が示すように（図 5）、MA の分離技術として成立性の見通しが得られている。現在、分離性能の向上を図る上で、適用する吸着材構造の改良を進めている。さらに日本原子力研究開発機構では、放射性廃棄物の減容化・有害度低減の開発として、使用済燃料から分離した

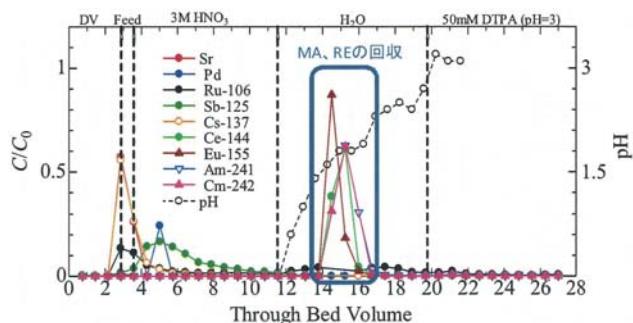


図5 抽出クロマトグラフィ法による MA, RE の分離例

少量 MA を出発原料とした MA サイクル (SmART サイクル) 研究を進めており⁽⁴⁾、使用済燃料からの MA 分離技術として抽出クロマトグラフィ法の適用を計画している。

また、本プロジェクトにおける LLFP 分離の位置付けについては、高速増殖炉サイクルの実用化研究開発での選定プロセスにおいて、「2050 年頃の実用化以降の目標」と位置付けられ、基幹電源の具体化を目指す本実用化研究開発では、当面研究開発を行わないこととされた⁽⁵⁾。

乾式法に関しては、米国アルゴンヌ国立研究所（当該部署は現アイダホ国立研究所）において金属燃料の電解処理技術として開発された金属電解法を基本に、日本原子力研究開発機構と電力中央研究所との共同研究を中心として開発が進められている。加速器駆動未臨界システム (ADS) に使用される窒化物燃料の再処理においても、燃焼による炭素 14 の生成量を抑制するために利用される同位体組成比を高めた窒素 15 の回収が比較的容易な金属電解法が適していると考えられており、開発が進められている。

高速増殖炉サイクルの実用化研究開発等で進められている金属燃料を対象とした乾式再処理のフロー概念を図 6 に示す。本プロセスでは活性金属や溶融塩を使用することから、ほとんどの工程は水分濃度を抑えたアルゴン雰囲気のセル内に配置される。

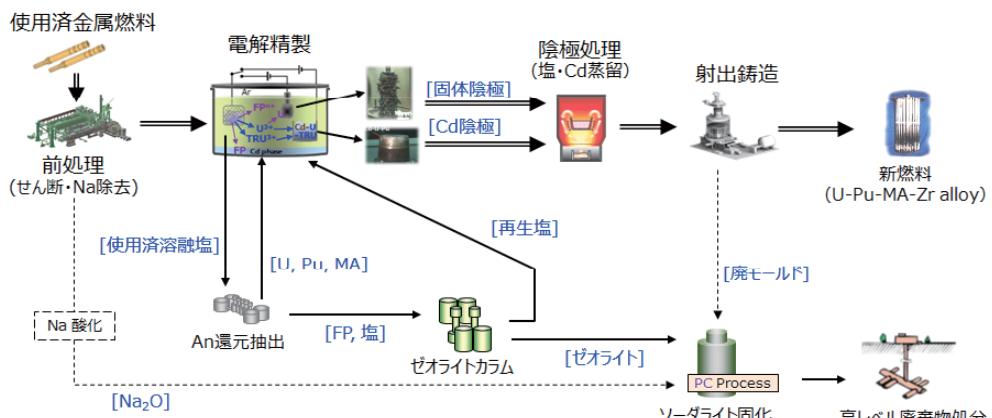


図6 金属燃料乾式再処理フロー概念

解体、せん断された使用済金属燃料は、約 500 °C の LiCl-KCl 溶融塩中で電解精製される。電解精製の概念を図 7 に示す。使用済燃料のせん断片は金属製のバスケットに入れ、これを陽極とする。陰極としては、金属 U の回収用に鉄等で作られた固体陰極が、U, Pu, MA の回収用にセラミック等の絶縁性ルツボに入れられた液体 Cd 陰極が用いられる。それぞれの陰極での各元素の酸化還元電位の差を利用して、電解の電位を制御することにより目的の物質を

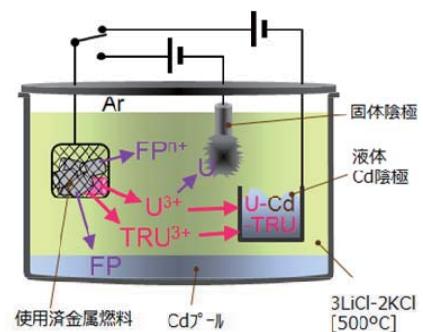


図7 電解精製の概念

電解により析出回収する。液体 Cd 陰極中では、アクチニドは Cd と金属間化合物を作るため、ほぼ同じ電位で析出することから、これらは電解により一括して回収される。したがって Pu の単離は難しく、核拡散抵抗性に優れている特長を有する。一方で、主要な FP である RE とも比較的酸化還元電位が近いことから、湿式法のような高い除染係数を得ることは難しい。

固体陰極上に析出した U 及び液体 Cd 中に析出した U, Pu, MA は、それぞれ約 1700 °C の高温での陰極処理により塩や Cd が蒸留除去され、金属 U や U-Pu-MA (-Zr) 合金が得られる。これらの金属は石英モールドへの射出鋳造により新たな金属燃料ピンに加工される。処理運転中は電解精製槽の溶融塩中の核燃料物質濃度はほぼ一定に保たれる一方、運転の継続に伴って核分裂生成物 (FP) の塩化物が蓄積されていくため、一定の運転期間毎に FP を分離して処理処分する必要がある。溶融塩の処理では液体 Cd を用いた向流多段抽出により Cd 中にアクチニドを還元抽出し、溶融塩はゼオライトにより FP を吸着除去した上で電解精製槽で再利用される。FP を吸着したゼオライトはガラス基材と混合して高温高圧処理により人工鉱物であるガラス結合ソーダライトの形で高レベル廃棄物とする。

電解精製による U, Pu 及び MA と RE の分離に関しては、米国 INL で実施された高速実験炉 EBR-II 使用済燃料を用いた基礎試験⁽⁶⁾ (図8)、日本原子力研究開発機構で実施された MA 分離試験⁽⁷⁾ (図9)、および電力中央研究所と ITU で実施された TRU 回収試験⁽⁸⁾ 等により、電解電位と分離係数の関係や TRU の分離性能が評価され、電解精製による TRU の一括回収の技術的成立性が確認されている。

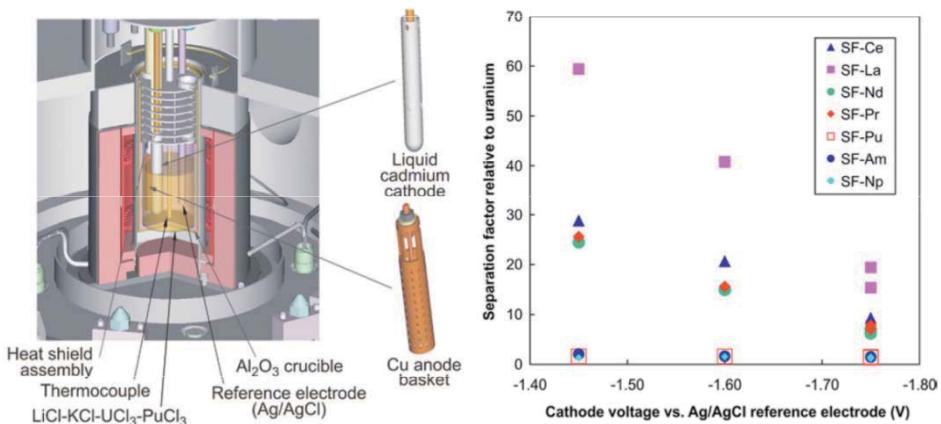


図8 INL の電解装置 HDEF の概念 (左) と EBR-II 使用済燃料の電解精製試験によるアクチニドと希土類分離係数 (右)⁽⁶⁾

また、未照射の MOX 燃料を出発物質とした場合の還元から、電解精製、U, Pu 及び MA インゴットの製造までの一連のプロセス試験が日本原子力研究開発機構と電力中央研究所により実施され⁽⁹⁾、プロセス制御条件の検討に利用可能な物質収支データが得られている。その他、金属電解法における高温融体の移送やハンドリングの工学的な実証、使用済溶融塩からのアク

チニド回収からゼオライトによる FP 吸着及び廃棄体製造に至る個々のプロセスの成立性評価試験は電力中央研究所で実施され、工程の原理実証及び機器の成立性に関する知見が得られている⁽¹⁰⁾。

技術的な課題としては、電解精製工程における微量の酸素による酸化ウラン副生成物の分離、蒸留工程等における Am の揮発挙動の把握、高レベル廃棄物となるソーダライトへの FP 含有量が制限されることによる廃棄物発生量の増大等が挙げられ、電力中央研究所や日本原子力研究開発機構等により研究開発が継続されている。その他、金属電解法では、電解精製槽の溶融塩中には常にほぼ一定量の核燃料物質が溶解しており、受け入れた使用済燃料の陽極溶解と陰極での回収を同時に行うことから、Pu 等の核燃料物質の入量計量が難しい。従って乾式再処理に適した計量管理技術や保障措置概念の確立が必要であり、IAEA 等による国際的な取り組みも検討されている。

加速器駆動システム（ADS）において使用される窒化物燃料に関しても、金属燃料とほぼ同様の技術が利用できる。窒化物燃料は導電性を有するため、金属燃料と同様に使用済燃料を金属製のバスケットに入れ、これを陽極として電解により陽極溶解を行う。図 10 に示すように、アクチニド及び希土類の窒化物の平衡電位はほぼ窒化物の生成自由エネルギーに相当する分、金属の電位からそれぞれ約 0.6 ~ 0.8 V 貴側（正側）へシフトしていることから、電解電位を調整することにより金属燃料と同様の溶解処理が可能となる。核変換用窒化物燃料には基本的に U が含まれないため、固体陰極による U の回収は不要で、超ウラン元素（TRU、Pu 及び MA）は液体 Cd 陰極に回収される。回収された Pu 及び MA は再度窒化する必要があるが、Pu は Cd 中で安定であり、プロセス温度である 500 °C 程度での窒素ガス吹き込みでは窒化されない。そこで、温度を 700 °C 以上として Cd の蒸留と同時に窒化を行う蒸留窒化法が開発され、良好に窒化されることが確認されている⁽¹¹⁾。また、電解精製工程において発生する窒素ガス (¹⁵N₂) は、窒素 15 濃縮コストとの兼ね合いで回収利用が望まれる。

国内でこれまでに開発が行われた乾式再処理技術は、上記の金属電解法の他に、MOX 燃

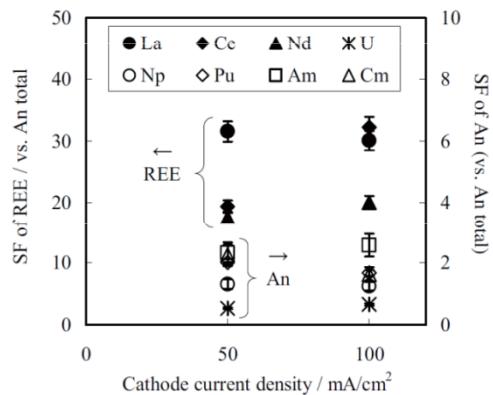


図9 液体 Cd 陰極によるアクチニドと模擬 FP (希土類) の分離係数⁽⁷⁾

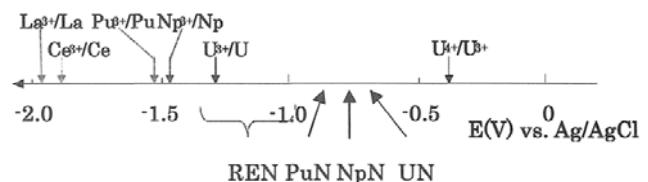


図10 500 °Cにおける LiCl-KCl 系溶融塩中の金属と窒化物の平衡電位⁽¹¹⁾

料の溶解及び電解を酸化物の状態で行う酸化物電解法(改良 RIAR 法)⁽¹²⁾ や使用済燃料中に多量に存在する U を UF⁶ の化学形態で揮発回収するフッ化物揮発法及びこれを利用した FLUOREX 法⁽¹³⁾ 等が挙げられるが、主に U と Pu のリサイクルを対象としており、分離・転換技術に求められる MA の回収法としての適用性は現時点で厳密な評価まで至っていない。

1.4 海外の状況

(1) フランス

CEA は 1991 年の放射性廃棄物管理研究法を受けて、MA の分離技術として、DIAMEX、SANEX プロセスの開発を進めてきた。さらに、2006 年の放射性廃棄物等管理計画法に係る取り組みとして、欧州各機関による共同研究計画 ACSEPT (Actinide reCycling by SEParation and Transmutation) の中で MA 分離技術等の研究を推進している。

CEA では主要 R & D プログラムとして、Pu のマルチリサイクル技術とともに MA の分離技術及び核変換技術を掲げている。この中で MA の分離については、多様なオプションを想定し、全ての MA を一括分離する GANEX プロセスや、Am, Cm を分離する DIAMEX/SANEX プロセス、Am を単独で分離する EXAm プロセスなどの開発を進めている。以下に、各分離プロセスと開発状況の概要を示す。

(i) DIAMEX プロセス (Diamide extraction)

DIAMEX プロセスは DMDOHEMA (dimethyl dioctyl hexyl ethoxy malonamide) を用いてラフィネート中から MA と RE を回収する技術である。フローシートの一例を図 11 に示す。フランスでは、本技術について完全焼却が可能で固体廃棄物を生じない(これを CHON 原則という)試薬としてアミド系抽出剤が探索され、様々な二座配位のマロンアミドについて調査した結果、最終的に DMDOHEMA (N, N' -dimethyl- N, N' -dioctylhexylethoxy malonamide) の特性が DIAMEX (DIAMide EXtraction) プロセスに最適であるとして提案された。

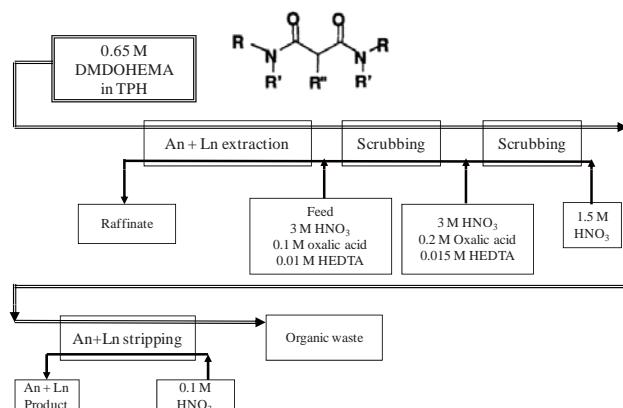


図11 DIAMEX フローシートの一例

このマロンアミドを用いて、MA 製品溶液を対象に Am/Cm 分離を行う DIAMEX-2 プロセスの研究も進められている。この DIAMEX プロセスについては、2005 年に 15 kg の使用済燃料から得られた実ラフィネート液を用いて、Am, Cm, RE の分離試験をパルスカラムで実施しており、99.9% 以上の回収率を実証している⁽¹⁴⁾。

(ii) SANEX プロセス (Separation of actinides by extraction)

SANEX プロセスは米国で開発された TALSPEAK 法の改良であり、ソフトナー抽出剤 iPr-BTP (2,6-bis- (6-di-iso-propyl-1,2,4-triazin-3-yl) -pyridine) 等を用いて MA と RE を分離する技術である。

本プロセスは 2001 年に An/Ln 分離試験を実施しており、Am 回収率 99.9% 以上、Ln に対する DF = 150 程度の結果を得ている。上記の DIAMEX 法と組み合わせた DIAMEX-SANEX のプロセス研究については、2005 年に ATALANTE にて軽水炉使用済燃料 13 kg を用いて、U 及び Pu だけでなく Np も回収する改良 PUREX 法により Np を 99.6% 以上分離後、DIAMEX-SANEX 法により Am 及び Cm をそれぞれ 99.9% 以上分離することに成功した実績を有している。なお、SANEX プロセスには、DIAMEX プロセスから得られる製品から Am (III) と Cm (III) を選択的に回収する r-SANEX、Purex プロセスの廃液から Am (III) 及び Cm (III) を直接抽出する 1c-SANEX、有機相中の Am (III) 及び Cm (III) を選択的に逆抽出する i-SANEX 等のさまざまなオプションがある⁽¹⁵⁾。SANEX BTP フローシートの一例を図 12 に示す。

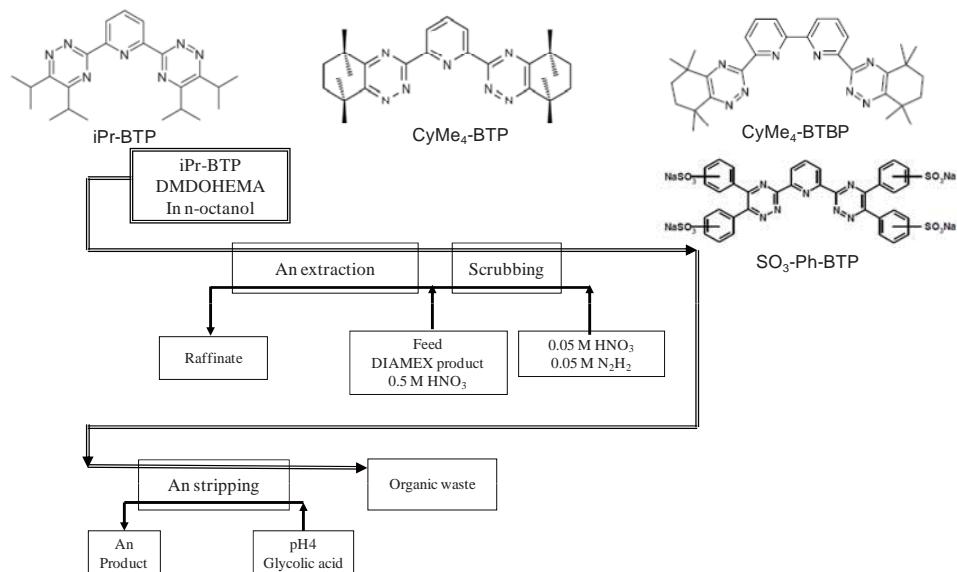


図 12 SANEX BTP フローシートの一例

(iii) GANEX プロセス (Group Actinide Extraction Process)

GANEX プロセスはすべてのアクチノイドを回収する概念で、均一サイクルでの利用を目指し

た技術である。本プロセスはモノアミドを用いて U を選択的に回収する GANEX 1st と U, Pu, Np, Am, Cm を回収する GANEX 2nd から構成され、GANEX 2nd には DIAMEX-SANEX プロセスが適用される。GANEX 1st ではモノアミド DEHiBA を抽出剤として採用している。2008 年に GANEX 1st の試験を実施しており、99.9%以上の優れた U 回収性能と FP に対する高い除染係数が得られている⁽¹⁶⁾。

後段の GANEX 2nd の抽出剤には、HDEHP+DMDOHEMA が使用される。同様に 2008 年には DIAMEX-SANEX プロセスを利用した改良性能確認試験が実施され、Pu, Np, Am, Cm の回収性能を評価している⁽¹⁷⁾。

(iv) EXAm プロセス (Extraction of Am)

EXAm プロセスは Am の単独回収プロセスである。2006 年の放射性廃棄物等管理計画法で示された基本方針の一つに、長半減期放射性元素の分離・変換が挙げられている。その主たる目的は放射性廃棄物の有害度低減であり、これには高レベル放射性廃棄物の長期的な放射能毒性や発熱の問題が密接に関連している。これを進めるためのシナリオが検討されているが、その一つが、Am 単独の分離変換であり、EXAm はこれを実現するために開発が進められている分離プロセスである。

本プロセスは DIAMEX プロセスで適用されている抽出剤 DMDOHEMA がベースとなっている。本抽出剤にはわずかに Am と Cm 間の分離選択性が認められるため、高硝酸濃度条件で Am と軽希土類の有機相抽出が可能となり、水相には Cm と他の希土類が残存する。そこで、アミドによる Cm と重希土類の選択性的錯形成を促進させることで、Am と Cm あるいは重希土類元素との分離選択性を高めるために、水相に TEDGA (TetraEthylDiGlycolAmide) を親水性配位子として添加する。最終的に、DIAMEX-SANEX/HDEHP プロセスのような形で、Am は軽希土類元素から選択的に逆抽出させて分離する。分離フローシートの例を図13に示す⁽¹⁸⁾。

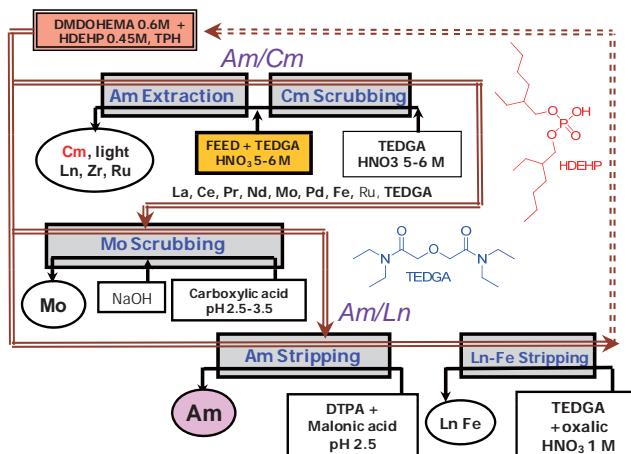


図13 EXAm 法のフローシート例⁽¹⁸⁾

これまで、2009年に模擬 PUREX ラフィネートを用いた向流接触試験、2010年には PUREX ラフィネートを用いたホット試験を実施しており、使用済燃料から本法により Am を単独回収し、それを U と混合して U-AmO₂ペレットを製造し、炉で照射挙動を評価する一連のサイクル試験の計画が進められている⁽¹⁸⁾。この中で EXAm 法を用いた実ラフィネート液からの Am 分離試験が予定されている（図14）。

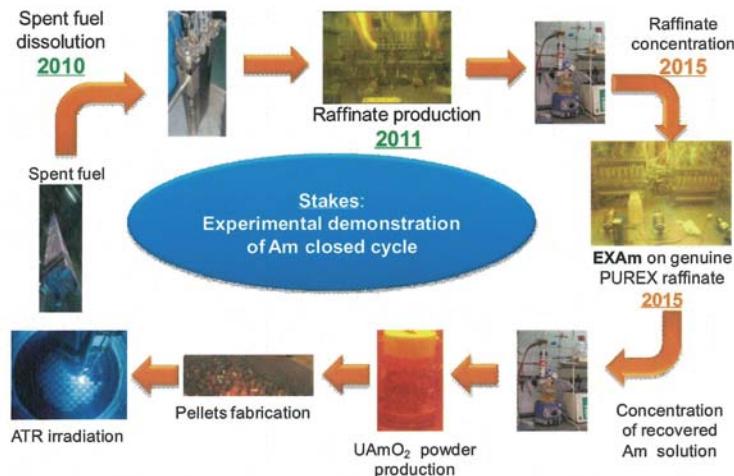


図14 EXAm プロセスで回収した Am 原料によるサイクル研究の実績と予定⁽¹⁸⁾

(2) 米国

米国は商業炉使用済燃料の再処理をせずに、全量を高レベル廃棄物として扱い、深地層貯蔵の最終処分（直接処分）とすることが国の基本政策である。この状況の中で、放射性廃棄物の最小化、地層処分場の有効活用を図るため、MA 等の分離技術開発が進められている。以下に開発の概要を示す。

(i) UREX+ 法

UREX+1a 法では、UREX 法により U を単離し、CCD (Chlorinated cobalt dicarbollide) / PEG (Polyethylene glycol) 法により Sr、Cs を分離した後に TRUEX-TALSPEAK 法により、Np、Pu、Am、Cm を分離回収する。2006 年には、軽水炉使用済燃料 1kg を用いて、UREX+1a 法の試験が行われ、99.9%以上の Np、Pu、Am、Cm の分離に成功した。しかし本法では、TRU 元素が一括して分離されるため、遠隔燃料製造が必要となることから、その後、Am, Cm を Np,

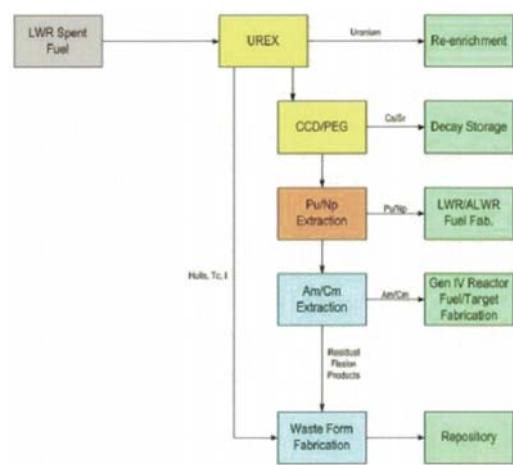


図15 UREX+3 プロセスの概要⁽¹⁹⁾

Pu から分けて回収する UREX+3 の研究も進められている。UREX+3 プロセスの概要を図 15 に示す⁽¹⁹⁾。

(ii) 先進 TALSPEAK 法

近年では、ALSEP (Actinide Lanthanide SEparation Process) 開発の一環として、従来、TRU と RE の分離方法として開発された TALSPEAK 法を改良し、新たな抽出剤を適用した先進 TALSPEAK 法等の開発を進めている。

TALSPEAK 法は MA と RE を含む溶液に DTPA を加え、HDEHP で MA を分離するプロセスであるが、この HDEHP の代わりに抽出速度が速く、pH 変化の影響を受けにくい HEH[EHP] (図 16) の適用性について評価するための研究が行われている。さらには、MA/RE 分離の選択性を向上させる錯化剤として DPA 及びその誘導体等を活用する手法等の研究も進められている。

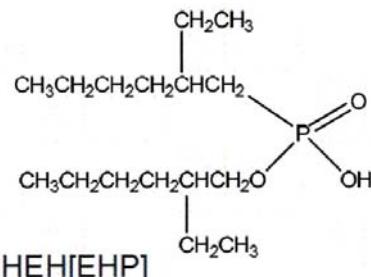


図16 改良型 TALSPEAK 法に使用される抽出剤 HEH[EHP]

(iii) 乾式再処理法

金属燃料の電解処理技術は、元来、米国のアルゴンヌ国立研究所 (ANL) で開発された高温冶金法が基になっており、1980 年代前半からは ANL (現アイダホ国立研究所 (INL)) において IFR (Integral Fast Reactor) 計画として高速炉燃料の再処理技術として開発が進められてきた。IFR 計画とは、金属燃料高速増殖実験炉 EBR-II (20 MWe のナトリウム冷却タンク型高速増殖炉) に金属電解法による乾式再処理工程と射出成型燃料製造工程を備えた FCF (Fuel Cycle Facility) を一体化して設置し、FBR から取り出された燃料をその場で再処理、燃料製造して再び原子炉に装荷する実証試験を行う計画であった。しかし、FCF の設備が完成して劣化ウランを用いた試験が終了した 1994 年に、米国の政策判断により計画は中止された。

その後、FCF は “Fuel Conditioning Facility” と名称を変え、EBR-II から発生した使用済燃料約 25 トンの処理処分を目的とした実証運転を継続して、電解処理や廃棄物処理等の金属電解法の枢要技術に係る実績を蓄積しており、現在も運転は継続している。MARK-IV 電解槽 (図 17) にてドライバー燃料の処理をほぼ終了し、今後 MARK-V 電解槽にてブランケット燃料の

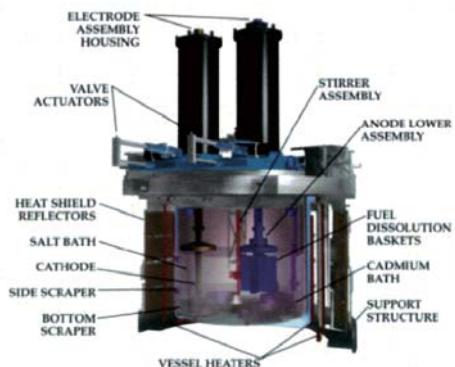


図17 INL の FCF 内に設置されている MARK-IV 電解槽概念⁽²⁰⁾

処理を行う予定となっている。

近年は INL の FCF での試験と並行して、ANL においても液体 Cd による TRU 一括回収に代わる固体陰極による U/Pu の共析出研究等の基礎試験も行われている。

(3) 中國

中国では、TRPO プロセス及び CYANEX301 プロセスによる MA の分離技術開発が進められている。分離プロセスの概要を図 18 に示す⁽²¹⁾。本プロセスでは、PUREX プロセスで得られた廃液から Sr 及び Cs の分離を行った後、TRPO プロセスにより Np、Pu と Am、Cm、RE の分離が行われる。Am、Cm 及び RE を含む溶液については、CYANEX301 プロセスにより Am、Cm と RE の分離が行われる。TRPO プロセスは、抽出剤として TRPO (trialkylphosphine oxides) を用いたプロセスであり、硝酸中のアクチニド (An) 及び RE に選択性の高い抽出性能を有する。PUREX プロセスからの廃液に含まれる An は RE と共に TRPO に抽出される。抽出された An/ RE については、5 mol/L 硝酸系で Am、Cm 及び RE の回収、0.5 mol/L 硝酸系で Np、Pu の回収が行われ、最後に Na_2CO_3 により U の回収が行われる。中国では、高レベル放射性廃液を用いた本プロセスの試験を実施している。

CYANEX301 プロセスは、CYANEX301 (dialkyl-di-thiophosphinic acid) を用いるプロセスであり、TRPO プロセスから得られる Am、Cm 及び Ln を含む溶液を対象に、Am、Cm と Ln の分離を行う。CYANEX301 は Am (III)、Cm (III) に対して高い抽出性を有しており、Am と Eu の分離性能は 5000 以上となっている。しかし、このプロセスへの供給液は pH 3 ~ 5 に調整する必要があり、これを工業規模でコントロールすることは難しく、本抽出剤の化学的安定性にも課題がある。

(4) インド

インドでは PUREX プロセスから排出される高レベル放射性廃液の有害度低減の観点から、MA 分離を行う方針である。分離フローの概要を図 19 に示す⁽²²⁾。MA 分離研究の開発成果を得る目的で、タラプールに An 分離実証施設を建設している。当施設では、多段階の溶媒抽出

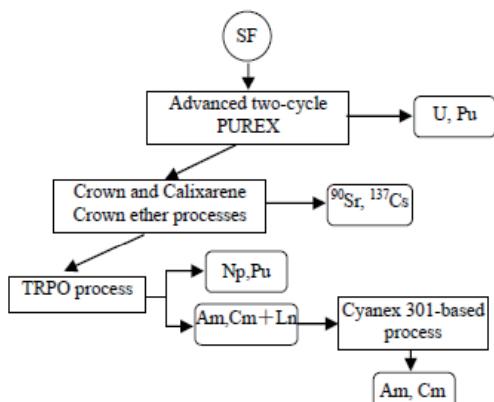


図18 中国での分離プロセス概要⁽²¹⁾

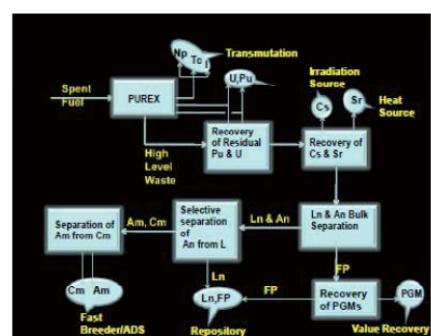


図19 インドにおける MA 分離フローの例⁽²²⁾

プロセスの開発を進めており、(a) 高放射性廃液中の残留 U、Pu の分離、(b) 高放射性廃液からの RE と 3 倍 An の一括分離、(c) RE からの 3 倍 An 分離の各工程から構成されている。また、将来高速炉燃料の候補と考えられている金属燃料の乾式再処理研究も実験室規模で行われている。RE の分離性等の評価を主眼とした実験が進められており、数 kg 規模の実証施設の準備も進められている。開発されている乾式再処理のプロセスフローは米国 ANL における金属電解法と同様である。

(5) 韓国

韓国では、米韓原子力平和利用協定に基づき、再処理が禁止されており、2014 年 3 月の協定更新では 2 年間延長されている。研究開発活動は韓国原子力研究所（KAERI）を中心進められており、米国との共同研究により金属電解法の開発に取り組んでいる。基礎研究は 1997 年から開始し、現在は PRIDE（Pyroprocess Integrated inactive Demonstration facility）と呼ばれる工学規模のウラン試験施設で燃料受入から廃棄物処理までの一連のプロセス試験を行う準備が整っている（図 20）。

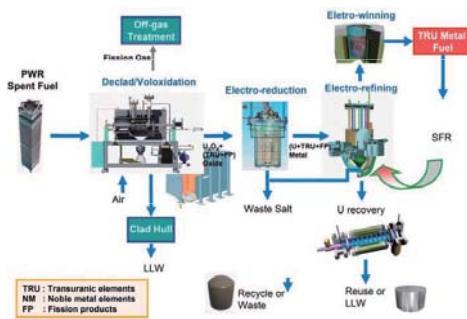


図20 韓国で研究開発が進められている乾式再処理プロセス概念⁽²³⁾

1.5 今後の展開

放射性廃棄物の減容化・有害度低減のための分離技術については、MA を中心として世界的に研究が進められている。湿式法では MA の分離性能を高めるための新抽出剤の開発やプロセス研究が活発であり、その多くは、コールド模擬液や実プロセス液による分離性能の評価など、基礎研究が中心である。また、MA+RE の分離、MA/RE の相互分離の 2 サイクルの研究とともに、単サイクルを指向する研究も世界的な潮流となりつつあり、このようなプロセスの合理化を目指した検討にも注目すべきである。

以上の現状をふまえ、今後の開発展開として、分離変換サイクルに求められる優れた分離性能を備えたプロセスの確立に向けて、これまでの研究成果をもとに検討された分離フローシート条件を対象に、実証段階へと開発の比重を移していくことが想定される。また、さまざまな分離オプションを想定しつつ、分離プロセスの高度化のための改良も積極的に進められることであろう。乾式法についても、ADS サイクルでの適用を含め、各種燃料オプションを想定しつつ、着実に研究開発が進められており、今後も有力な候補技術の一つとして、分離プロセスの構築に向けた成果が期待できる。

さらに日本やフランスでは、使用済燃料から MA を分離し、それを原料として燃料製造、炉内

照射を行うフィードストック型の MA サイクル試験も着実に進められている。その中で、提案された分離フローシートの実証とともに、回収製品による燃料製造性等を見極めることが分離変換サイクルとしての技術的見通しを得る上で極めて重要な知見となることから、今後の開発動向について注視したい。

一方、LLFP や発熱性核種を含む Sr, Cs の分離プロセスについては相対的に開発が遅れていることから、放射性廃棄物の減容化・有害度低減に対する有効性や技術開発の優先度をふまえ、必要に応じて開発を推進させるための環境整備が重要と考えられる。

2. 核変換のための同位体分離

2.1 はじめに

核種分離の中でも特に難しいのが同位体分離と呼ばれる分離操作である。よく知られているウラン濃縮は同位体分離の一種である。本節ではこの同位体分離の必要性と研究開発の現状について紹介する。

(1) 同位体について

原子は原子核とその周りを回る電子で形成されている。原子核は中性子と陽子により構成される。同位体とは、この電子の数が同じで中性子の数がわずかに異なる原子のことである。電子の数が同じなので化学結合の作り方など化学反応におけるふるまいは全く同じになる。また、中性子の数がわずかに違うことから微妙に質量が異なる。そのため、物質中の固有振動数など物理的挙動が微妙に異なる。一方、核反応において同位体は全く別物としてふるまう。例えばウランの同位体として²³⁵U と²³⁸U があるが、²³⁵U は軽水炉の燃料となり²³⁸U はそうではない。一般に様々な同位体が核分裂や核破碎、核融合などの核反応により生成する。そのため、使用済燃料中には様々な元素の様々な同位体が多量に存在する。また、同位体には放射性のものと非放射性のものがある。例えばウランの核分裂生成物 (FP) であるセシウムには高い放射能を持つ¹³⁷Cs と放射線を出さず安定な¹³³Cs がある。

(2) 同位体分離について

同位体分離とは、複数の同位体を含む混合物の中から特定の同位体を分別することである。同位体間の化学的あるいは電子的性質には違いが全くないため、元素分離で蓄積された化学的手法や電気化学的手法などの知見は直接には使えない。代わりに、電磁波や光に対する応答の違いや、吸着など他の物質との相互作用の違いを利用する物理的な手法により分離が可能である。また、使用済燃料中に含まれる放射性元素はほとんどが重元素であるが、都合の悪いことに重元素では同位体間の相対的な質量差が小さくなるため、物理的な違いも極めてわずかになってしまい、同位体分離は難しくなる傾向にある。

2.2 放射性廃棄物低減と同位体分離

放射性廃棄物の低減技術に対して同位体分離はどのような意味をもっているのか。同位体分離を考えることの最大の理由は、核変換において無駄な中性子消費を抑えるためといえる。例えばセシウムの場合、 ^{133}Cs （安定）、 ^{135}Cs （長寿命放射性）、 ^{137}Cs （短寿命放射性）が使用済燃料中にほぼ同量含まれる。長寿命の ^{135}Cs を中性子捕獲反応により核変換するために使用済燃料中のセシウム全量を原子炉に戻してしまうと、安定な ^{133}Cs も核変換を起こし、逆に長寿命放射性の ^{135}Cs が再生産されてしまう（図21）。そのためシステム全体の中性子数が不足してしまい、長寿命 ^{135}Cs を変換するという本来の目的を達成できなくなってしまう。これを回避するために ^{133}Cs を核変換の前に分別しておく必要がある。⁽²⁴⁾

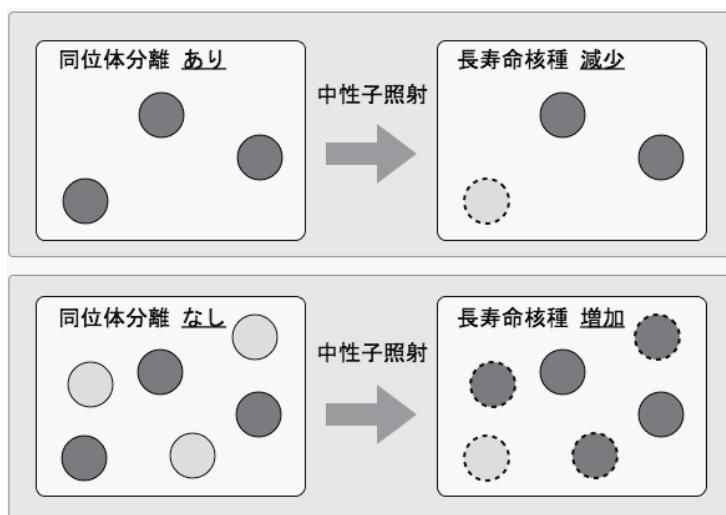


図21 核変換における同位体分離の効果。同位体分離により有害な核変換（下段）を防ぎ、中性子の浪費を回避できる（上段）。利用可能な中性子数が限られているため一部の核分裂生成物は同位体分離しなければ核変換が成立しない。黒丸が ^{135}Cs 、灰色の丸が ^{133}Cs に相当する。

また、もう一つの同位体分離の意義として、核変換の対象ではない隔離保管すべき核種を究極まで減らすことができる事が挙げられる。例えば、 ^{133}Cs に加えて ^{137}Cs まで分別すれば核変換の際に原子炉内に装荷するセシウムの量を減らすとともに ^{137}Cs 自体を放射線源として利用できる可能性がある。すなわち、短寿命核種と長寿命核種を分けることで隔離保管する際の管理の負担を軽減できる。セシウム以外にもジルコニウムやスズなど、同様な理由により同位体分離が必要なFPが存在する。⁽²⁵⁾

さらに、管理の負担を減らすという目的以外にも、パラジウムなど希少価値のある元素を使用済燃料から取り出して利用するという目的が考えられる。その場合、放射性のパラジウムと非放射性のパラジウムを分別する必要がでてくる。ここでも同位体分離が必要になる。⁽²⁶⁾

一方、使用済燃料に含まれるマイナーアクチノイド（Minor Actinide, MA）に関しては、今のところ、放射性廃棄物低減に直接関わるような同位体分離の要請は聞かない。高速炉を使えば MA は基本的に燃料として燃やすことができる。その場合、MA が中性子を無駄に消費することはないと思われる。

このように FP の同位体分離に対する需要は間違いなく存在する。しかし、これらに適用して直ちに実用化できそうな有望な分離技術の概念が今のところ見当たらない。なぜ見当たらないのか、これまでに実用化されている同位体分離技術について概観した後、考察する。

（1）すでに実用化されている同位体分離技術

FP の同位体分離の工業化例はないが、それ以外の元素に対する同位体分離技術はいくつか実用化されている。重元素では、ウラン濃縮に使われたガス拡散法や遠心分離法、レーザー原子法がある。⁽²⁷⁾ 軽元素では、酸素の分離に用いられている蒸留法や炭素の分離に用いられているレーザー分子法などがある。分析用トレーサーなど少量でよい場合は電磁的分離法なども使える。その他にもいくつかの実用化例はあるが、ここでは上記 6 種類の分離法について簡単に紹介する。

（i）ガス拡散法⁽²⁸⁾

六フッ化ウラン（UF₆）の蒸気が細孔を通る際、細孔を通過する速度が質量の平方根に反比例する。一段あたりの分離係数は極めて小さいが（1.003）、分離操作を繰り返し適用するカスケード機構が大規模に構成できるというメリットがある。1000 段程度のカスケードを組むことで初期のウラン濃縮に採用されていた。

（ii）遠心分離法⁽²⁹⁾

同じく UF₆ の蒸気を用いる。超高速回転させた蒸気に強い遠心力が働き、遠心分離機の動径方向の空間分布に同位体の質量差に応じた差が現れる。遠心力は質量に比例するため、原理的にもガス拡散法より重元素に有利である。一段あたりの分離係数は 1.4 程度であり、カスケード段数 10 段程度の施設が実際に稼働している。現在のウラン濃縮の主流となっている方法である。

（iii）レーザー原子法⁽³⁰⁾

真空中で金属ウランに電子ビームを照射することにより加熱し原子状のウラン蒸気を発生させる。これに対して複数種類のレーザーを照射し 3 段階程度の共鳴電子遷移を起こす。最終段では光イオン化を起こす。同位体により電子遷移の周波数が微妙に異なるため（同位体シフト）、十分にスペクトル線幅の狭いレーザーを用いることにより同位体選択的なイオン化が可能になる。生成したイオンは極性が反対の電極に付着させて回収する。分離係数は最大で 20 程度である。カスケード機構は構造的に実装困難である。パイロットプラントは建設されたが正確には未だ工業化されていない。

(iv) レーザー分子法⁽³¹⁾

分子振動における振動周期の同位体差を利用する。炭酸ガスレーザーなどの赤外線領域のレーザーにより多段階の振動励起を起こし、最終的に分子を同位体選択的に分解する。重元素では、 $\text{UF}_6 \rightarrow \text{UF}_5 + \text{F}$ の赤外多光子解離反応を利用したウラン濃縮が試みられたが、現時点では実用化に至っていない。これに対して軽元素では、 ^{13}C の濃縮に関してロシアで工業化例がある。2つの事例で明暗を分けた理由の一つは、同位体シフトの差もさることながら、重元素で顕著になる熱的なスペクトル広がりの問題である。回転状態のエネルギー準位密度が高いため、重元素の同位体を峻別して振動励起するためには「気体状態のままで」極低温に冷却する必要がある。そのため、高真空中に原料ガスをジェットとして噴き出す断熱冷却が必要となり、熱的非平衡条件の下で光反応と回収反応を完了する必要があった。これらの理由も一因となつてウラン濃縮では分子法は採用されていない。

(v) 電磁的分離法

イオンビームに対して電場あるいは磁場を作用させた時、同位体の質量差によりイオンの飛跡が異なることをを利用して分別する。スループットを稼ぐことができないという欠点はあるが、原理的にもつともシンプルである。マンハッタン計画で原爆製造のために作られたカルトロンがこの方法を用いていた。

(vi) 蒸留法⁽³²⁾

気液平衡の同位体差を利用する。一段あたりの差は小さいが大規模なカスケードを構成することが可能なため酸素の大量同位体分離などに用いられている。軽元素で有効であると思われる。

以上の実用化例を参考にしつつ同位体分離技術に関する傾向を整理してみる。まず一般的な傾向として、技術的には分離係数と処理速度が相反関係にあると言える。また需要としても、小さい分離係数でも大量に製造する必要がある場合（ウラン濃縮など）か、少量でも高い分離係数で処理する必要がある場合（少量の分析用トレーサー製造など）のどちらかで満たされることが多い。また、製品と廃品の関係に着目すると、必要とされるのは製品（目的同位体が濃縮されたもの）であり、濃縮の過程で生じる廃品（目的同位体の組成比が小さくなったもの）に対する要請はあまり重要ではないという傾向がある。さらにもう一つの視点として、軽元素と重元素の関係がある。軽元素ほど同位体による質量差が相対的に大きくなり分離しやすくなる、という傾向があり実用化されやすい。逆に、最も困難な同位体分離とは、高い分離係数で大量に処理する必要のある重元素の同位体分離と言える。

（2）FP 同位体分離の課題

さて、FP の同位体分離に対して有望な概念がないのはまさに前述の理由による。すなわち、重元素であり、高い分離係数の要請があり、しかもある程度大きな処理速度が要求されている

ためである。放射性廃棄物の同位体分離では、核変換用ターゲットとしての要請により、製品は高濃縮の長寿命核種でなければならない。それと同時に、環境に放出可能な除染レベルという要請により、廃品中には長寿命核種がほとんど含まれないことが望まれる。例えば、セシウムの場合、製品中の¹³⁵Cs の組成比は 99% 程度⁽³³⁾、廃品中の¹³⁵Cs は 1% 程度という設定が妥当である。この時の分離係数は 10000 にも達する。最新の技術を駆使したウラン濃縮でも分離係数は高々 20 程度であることを考えればいかに高いハードルかが理解できる。処理速度としては、国内の原発が仮に 10 基稼働しているとして、これらから生産される量を全て処理するには¹³⁵Cs の場合で年間 100 kg オーダーの処理速度が必要になる。したがって、非常に高い分離係数が要請されると同時にある程度大量の原料を処理する必要がある。

最も高い分離係数を期待されるのがレーザー法であるが、レーザー原子法を適用しようとしてもセシウム原子の電子遷移における同位体シフトはウランよりも 2 衍程度小さく、通常のドップラー幅よりも小さい。そのため、原子法はそのままでは使えない。一方の分子法では、同じ重元素としてウラン濃縮で問題となった回収・冷却の問題が予想される。Zr を対象としたレーザー分子法⁽³⁴⁾・原子法⁽³⁵⁾の研究報告があるが、いずれも回収反応の問題、冷却の問題が指摘されている。微量ながら Sn を対象とした遠心分離法の研究も報告されている。⁽³⁶⁾

2.3 研究開発中の同位体分離技術

それでは、FP の同位体分離を実現するにはどうすればいいのであろうか。いくつかの新しい方法について研究が進められている。以下にそれぞれの手法の概略をまとめる。

(i) Silex 法

オーストラリアの企業 Silex 社が開発した方法である。UF₆と赤外線レーザーを利用するという点でレーザー分子法ウラン濃縮の一種と言える。しかし核心技術は秘匿されており詳細は不明である。2006 年アメリカの GE 社と協定を締結しウラン濃縮工場の用地を取得した。現在建設に向けて許認可の手続き中である。完成すればレーザーを使った初めての重元素の同位体分離の工業化例になる。JAEA の調査報告書⁽³⁷⁾によると、同位体選択の最終段は分子の赤外多光子解離ではなく、希ガス原子と UF₆のクラスターの分解と推定されている。ただし、目的がウラン濃縮なので分離係数の要求レベルが今回の FP の同位体分離よりはるかに低い。そのため、そのまま FP の同位体分離には適用できないと思われる。しかしながら、何らかのブレーカスルーが含まれている可能性があり、今後も注視していく必要がある。Silex 社は Zr の分離も一時期計画していたが現在は中止している。

(ii) プラズマ法

最初のウラン濃縮に用いられたカルトロンはイオンビームを用いる電磁法であった。上述のように、電磁法はそのままでは処理速度が極端に小さいという問題がある。これを克服したのが Ion Cyclotron Resonance (ICR) あるいは回転プラズマと呼ばれる現象を用いる方法である。⁽³⁸⁾

真空容器中に発生させたプラズマに強力な磁場を作用させることにより共鳴する質量のプラズマだけが旋回運動しながら移動し回収電極に衝突する。プラズマの体積と密度を大きくすることにより、イオンビームの場合に比べてスループットが大幅に向かう。また、この方法の特徴の一つとして核種依存性がないことが挙げられる。ロシアやウクライナにおけるパラメトリック ICR 研究^(39,40)、アメリカのアルキメデスフィルター⁽⁴¹⁾はこの一種といえる。日本では高エネルギー加速器研究機構で研究が継続されている。プラズマのエントロピー低減技術、大型超伝導ソレノイドや高周波技術などプラズマ発生と制御技術の開発が必要である。

(iii) 偏光制御による偶奇分離

レーザー原子法の一種である。偏光状態が揃った光を原子に作用させた場合、電子遷移における角運動量選択則が偶数核と奇数核で異なることを利用する。福井大学の仁木らは直線偏光による3段階の電子励起とイオン化を用いて複数のZr同位体の中から⁹³Zrだけを選択的にイオン化できることを示した。⁽⁴²⁾ 選択比は100以上と報告されている。また、Gdでは同位体シフトによる分別との組み合わせにより¹⁵⁷Gdだけをイオン化することに成功している。⁽⁴³⁾ この方法は、質量が一つだけ異なる同位体間など、同位体シフトが小さいためにそれだけでは分離が困難な場合に有効である。偏光を精密に制御する技術が必要である。偏光を用いる以外はウラン濃縮のレーザー原子法とほぼ同じであり、回収などには同様の仕組みが必要になると思われる。

(iv) レーザー化学法

1987年、アメリカのMyersらのグループが提案した方法である。⁽⁴⁴⁾ ウラン濃縮のレーザー原子法と同様、十分にスペクトル線幅の狭いレーザーを用いて、原子の電子遷移における同位体シフトにより同位体を選別する。1段階の電子励起までイオン化はさせない。電子励起状態に上がった同位体のみが、あらかじめ混合しておいた水素ガスと反応し、水素化物の結晶が気相から直接凝縮する。この方法は原子を電子励起するという意味では原子法であるが、ウラン濃縮の原子法で用いられた高真空中での原子ビームのような熱的に非平衡な状態ではなく、セルに充填されたバルクのガスに対して機能する。そのため容器の壁との衝突が何度も起こっても原料ガスを利用しつづけることができる。結果として、原料利用効率やレーザー光利用効率が高くなると考えられる。また、回収反応においても有利な特徴を持つ。すなわち、ウラン濃縮レーザー分子法で問題となったインパクター周辺の流体力学的な問題や原子法で問題となったイオン回収時の電荷移動反応やプラズマの空間電荷による制限などの問題を回避することができる。アルメニアのBadalyanらによりRb原子で同位体分離が実証された。⁽⁴⁵⁾ ただし、Csでは同位体シフトが通常のドップラー幅以下になるためそのままでは同位体選別できない。ドップラーフリー分光の応用など工夫が必要である。JAEAの田村らもこの研究を進めており、Rb原子と同様にCs原子でもCsH結晶の凝縮による回収反応を確認した。今後は、回収効率や選択性の検証が課題となる。

(v) 量子拡散法^(46,47)

この方法はレーザー分子法の一種であるが、原理はコヒーレント量子制御と呼ばれる新しい物質操作の概念に基づいている。研究段階のものも含めて、全ての従来法が物質の存在を確率密度として扱うのに対して、この方法はそれを確率振幅として扱うところが本質的にユニークな点である。現時点では文字通り原理の研究であるが、将来、同位体分離の技術革新につながる可能性がある。本章ではこの新しい技術について詳しく説明する。

a. 背景

上述のように、核変換のための FP の同位体分離には、現状で実現可能な値よりも遥かに高い分離係数が要求される場合がある。それを追求するための 1 つのアイデアとして、分子内部自由度（分子振動と分子回転）のエネルギー準位を単位操作の装置と見立てた分子内カスケード同位体選択の原理がある。電子励起と異なり、分子内部自由度を用いると容易に数 100 段のエネルギー準位にアクセスできる。そのため、ガス拡散法なみのカスケード段数を実装しつつ、各段がレーザー法なみの高い分離係数を有する方法となる可能性がある。重元素ではこの段数が特に多くなる。一方、この 20 年でレーザーを用いた原子分子の量子制御技術の目覚ましい進歩があった。量子制御技術は物質の存在を確率振幅として捉え、操作するための技術であり、コヒーレント量子制御と呼ばれている。これに必要な極短パルスレーザーの高出力化、パルス波形整形技術、波長変換技術などの発達がこの技術の発展を後押ししている。

b. 原理

量子拡散法の基本原理は量子力学的拡散において現れる驚異的な同位体差である（図 22）。この現象は量子ウォーク及びアンダーソン局在と呼ばれる数学的概念の表出として理解できる。JAEA の横山らは強い THz 波パルス列を照射することにより 2 原子分子の回転角運動量空間で量子拡散が実装されることを見いだした。他の方法では、原料の熱的なエネルギー分布広がりがしばしば選択性を低下させてしまうが、この方法では量子拡散の同位体差が著しく大きいため熱エネルギー分布があってもそれを凌駕して高選択性が維持される。その結果、特定の同位体の分布だけをエネルギー空間上で移動させる同位体選択的加熱という操作が実現する。

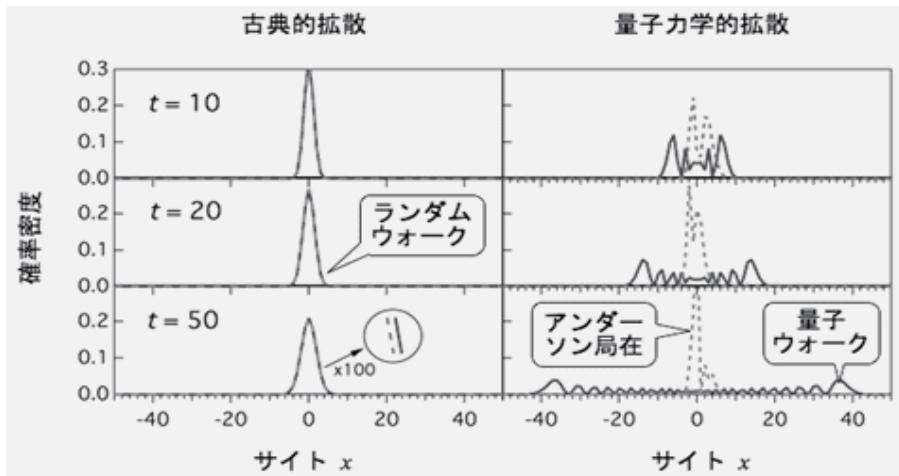


図22 数学的モデルを用いた古典的拡散と量子力学的拡散の比較。時刻 $t = 0$ でサイト $x = 0$ に存在した質点が $t = 10, 20, 50$ の各時刻でサイト x に見いだされる確率密度を表す。量子力学的拡散では量子ウォークとアンダーソン局在の発現によって驚異的な同位体差が出現する。黒色の実線と灰色の破線は ^{133}Cs と ^{135}Cs に対応する。

c. 数値計算

セシウム同位体分離に関する同位体選択的加熱の数値シミュレーションが行われている。原料ガスとしては2原子分子であるヨウ化セシウム(CsI)が想定されている。CsIは、水がない環境での高温の使用済燃料から蒸発するセシウムの主要な化学形態である。CsI分子の集団にTHz波パルス列を照射したときに回転状態のエネルギー分布が分布移動する様子の一例を表す(図23)。特定の同位体だけが熱分布を凌駕して高エネルギー状態に移動することがわかる。

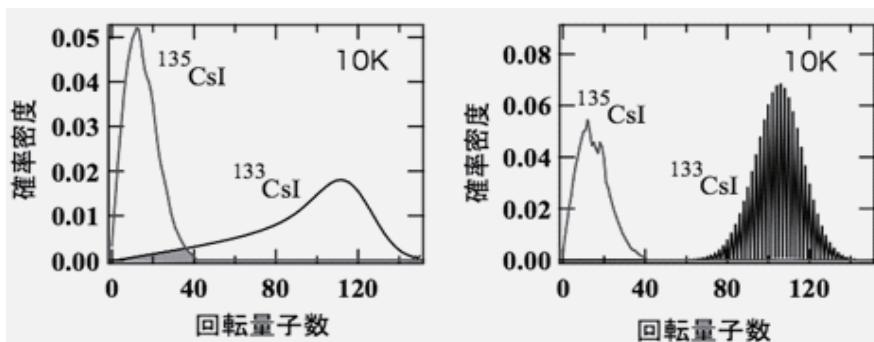


図23 同位体選択的加熱のシミュレーション。THz波パルス列照射後のCsI分子の回転状態分布を表す。この例では ^{133}CsI 分子の回転周期に合わせたパルス列を照射しているため ^{133}CsI 分子のみ分布移動している。通常のパルス列の結果(左図)と比べて位相制御したパルス列では右図のように同位体間の分布の重なりが消え完全選択が実現する。なお、初期分布の同位体差は無視できる程度である。

さらに高い選択性を出すためにパルス毎に位相を反転させたようなパルス列を照射することで、図23右側のように2つの同位体の間で分布のオーバーラップが完全になくなるように分布移動させることもできる。⁽⁴⁸⁾ 最終的に、1000 Kの高温でも分離係数は8000程度になると予想された。⁽⁴⁹⁾ ただしこの予想には回収時の選択性低下は想定されていない。

d. 原理実証に向けた取組

原理実証に向けた取組は概ね光反応と回収反応の2つに分類される。光反応では、特定の同位体の回転状態分布だけを高エネルギー側に移動させる同位体選択性的加熱、その結果として高エネルギー回転状態に分布移動した分子全てを光分解させる回転分布選択性的光分解の実証が必要になる。回収反応では、CsI分子には影響を与えずにCs原子のみを迅速に固定し、かつ同位体交換反応を回避できる技術の実証などが必要になる。また、これらの実証を行うために必要となる高強度THz波源及びTHz波波形制御技術の開発が必要であり、現在それらの開発研究がJAEA関西研で続けられている。また、必要なTHz波が得られる前に、既存の近赤外レーザー光を用いて原理実証の一部を実施することができる。その目的で、誘導ラマン散乱による窒素分子の同位体選択性的加熱の実証実験が同時並行して行われた。回転状態分布における¹⁴N₂と¹⁵N₂のズレの程度が予想通りの結果となり、シミュレーションの妥当性が支持された(図4)。一方、回収反応の実証に向けて理論的検討が進められており、フラーレンC₆₀が回収材の有力な候補として浮上している。実験による理論予測の検証が待たれる。

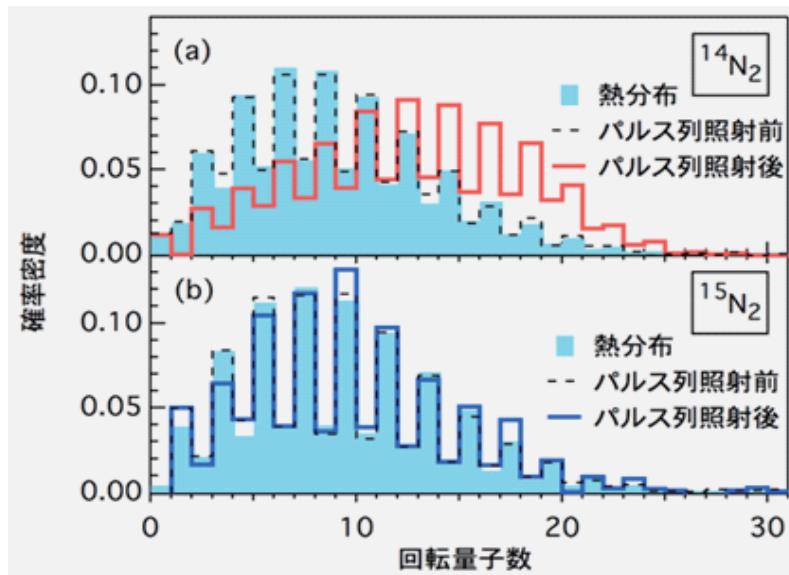


図24 窒素分子の誘導ラマン散乱実験による同位体選択性的加熱の確認。¹⁴N₂の回転周期に合わせた近赤外パルス列を照射した後の回転分布の実測値。窒素ガスの圧力は200 Torr、温度は300 K。ただし、誘導ラマン散乱では原理確認までしかできない。分子の遠心力歪みを補償し十分に高いエネルギー領域まで分布移動させるためにはTHzパルス列が必要となる。

e. 今後の課題

実用化の時期を今から正確に予測することは難しいが、鍵となる技術開発は THz 波分散制御と THz 波高強度化であろう。THz 波のパルスエネルギーは現状よりも 2 衡大きい値が必要である。しかし、最近の THz 波関連の技術革新のペースは目を見張るものがあり、10 年後には両方の技術ともに目処が立っている可能性は十分ある。また、回収反応の技術開発も重要である。

f. 概念全体の成立性

ここまででは量子拡散法の技術的・科学的成立性について述べてきたが、科学的成立性が実証された後で問題となる工学的成立性や経済的成立性の見込みについても暫定的に検討がなされている。まずこの方法の工学的な優位性として、ウラン濃縮のレーザー分子法や原子法と違って熱平衡条件下で原料ガスをハンドリングできることが挙げられる。従来技術では、容器の壁との衝突が許されない、すなわち熱的非平衡の環境を維持するために課せられていた装置的な制約があった。量子拡散法ではその制約がなくなるため、レーザー化学法と同じく、原料利用効率、光利用効率、回収効率の向上に有利に働くと考えられる。仮に、想定される最良のケースで回収反応が実現できた場合、原子力発電所 20 基分から発生する量の¹³⁵Cs を 1 m × 30 mm 程度の反応容器及び体育館規模のレーザー設備で処理できる可能性がある（図 25）。また、経済性の評価に関しては、他に競合する方法がないため、分離に要するエネルギーと総発電量の間のエネルギー収支を考えることで代用される。現在のテラヘルツ波発生効率などから類推すると総発電量の 1 万分の 1 以下の電力で分離を実現できる可能性があり、エネルギー収支的に十分成立する。

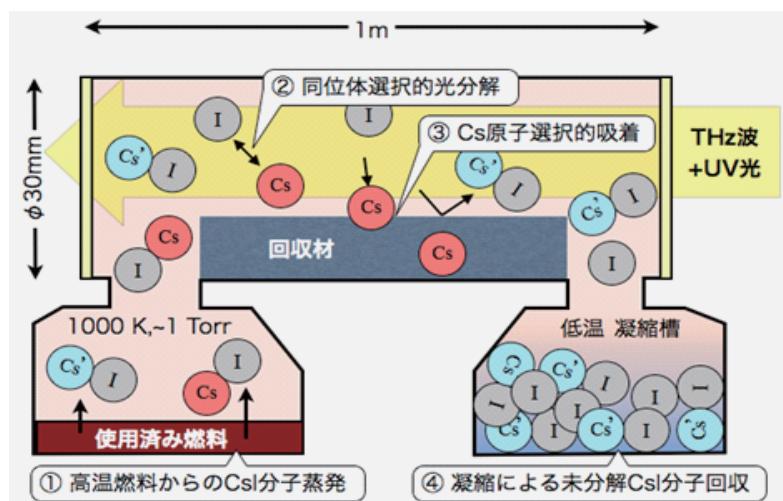


図25 量子拡散法による同位体分離プロセス全体の想像図。
プロセス②と③の実現性評価が今後の研究開発課題となる。

g. 将来性

現時点では、二原子分子でしか量子拡散法の有効性が（理論的にも）確認されていない。Cs は CsI という安定な二原子分子が存在するためこの方法の対象となり得ているが、Zr や Sn では安定な二原子分子の存在は確認されていない。これらの元素に量子拡散法を適用するためには多原子分子への拡張が必須になる。そのためには多次元量子ウォークの理論や特徴をよく理解し、実現可能なパルス波形が存在するかどうか検討を重ねる必要がある。多原子分子に拡張できるかどうかは今のところ全くの白紙の状態にある。

2.4 おわりに

本章では、同位体分離技術の現状と放射性廃棄物に適用するための課題、現在研究開発が進められている新しい分離技術の特徴をまとめた。特に量子拡散法について詳しく解説した。どの分離技術も課題は多いが、レーザーやテラヘルツ波、量子制御、高周波、超伝導、加速器など様々な技術が急速に発展している今、近い将来必ず FP の同位体分離が実現されると思われる。

【参考文献】

- (1) 井上 正 : 高レベル廃棄物管理に対する分離変換技術導入効果の検討、日本原子力学会「分離変換・MA サイクル」研究専門委員会資料 (2008).
- (2) 松村達郎 : ADS による分離変換技術の概要と高レベル廃液からの分離技術の詳細と現状について、第 10 回再処理・リサイクル部会セミナー (2015).
- (3) 日本原子力研究開発機構 : 群分離技術の研究開発状況、第 2 回群分離・核変換技術評価作業部会 (2013).
- (4) H.Nakamura *et al.* “SmART [Small Amount of Reused fuel Test] Cycle Concept – Irradiation test program of MA-bearing MOX fuel fabricated by using recovered MA from spent fuel ” , Actinide and fission products partitioning and transmutation 13th exchange meeting, Sep. 23–26, Seoul, Republic Korea (2014).
- (5) 原子力委員会 研究開発専門部会 分離変換技術検討会、分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方(案)(2009).
- (6) SHELLY X. LI, ACTINIDE RECOVERY EXPERIMENTS WITH BENCH-SCALE LIQUID CADMIUM CATHODE IN REAL FISSION PRODUCT-LADEN MOLTEN SALT, NUCLEAR TECHNOLOGY VOL. 165 FEB. 2009.
- (7) H.Kofuji, Electro-deposition behavior of minor actinides with liquid cadmium cathodes, Mater. Sci. Eng. 9 012010.
- (8) K.Uozumi, Recovery of Transuranium Elements from Real High-Level Liquid Waste by Pyropartitioning Process, Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY, Vol. 48, No. 2, p. 303–314 (2011).
- (9) M.Kurata, Sequential Electrolysis of U-Pu Alloy Containing a Small Amount of Am to Recover U- and U-Pu-Am Products, Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY, Vol. 46, No. 2, p. 175–183 (2009).
- (10) JAEA, 高速増殖炉サイクル実用化研究開発 (FaCT プロジェクト) - フェーズ I 報告書 -.
- (11) Y.Arai, 窒化物燃料の乾式再処理技術開発の現状について, JAERI -Conf 2005 -008.
- (12) H.Kofuji, MOX Co-deposition Tests at RIAR for SF Reprocessing Optimization, Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY, Vol. 44, No. 3, p. 349–353 (2007).
- (13) T.Fukasawa, Nuclear Fuel Cycle Technologies for Long-term Stable Energy Supply, Hitachi Review Vol. 58 (2009), No.2.

- (14) D.Warin et al., IAEA TWGNFO, Vienna (2010).
- (15) S. Bourg et al., “ACSEPT – the Current European Project on Actinide Recycling” , Proc. of Global 2011, Paper No.357353 (2011).
- (16) M. Migurdichian *et al.*, “HA demonstration in the Atalante facility of the Ganex 1st cycle for the selective extraction of Uranium from HLW” , Proc. of Global 2009, Paper No.9377 (2009).
- (17) M. Migurdichian et al., “HA demonstration in the Atalante facility of the Ganex 2nd cycle for the group TRU extraction” , Proc. of Global 2009, Paper No.9378 (2009).
- (18) J.Dancausse *et al.* “EXAM selective Am recovery process: near past results and near future liquid–liquid separation experiments” , Actinide and fission products partitioning and transmutation 13th exchange meeting, Sep. 23–26, Seoul, Republic Korea (2014).
- (19) “Advanced Fuel Cycle Initiative (AFCI) Program Plan” (2005).
- (20) Charles W. Solbrig, Cadmium release from a reprocessing electrorefiner falling over, Nuclear Engineering and Design 255 (2013) 226– 239.
- (21) H. CHEN et al., “Develop Advanced Nuclear Fuel Cycle in China” , Proc. of Global2009, Paper No.9030.
- (22) P. K. Wattal, “BACK-END OF THE FUEL CYCLE – INDIAN SCENARIO” , Proc. of Global2013 Paper No.7736 (2013).
- (23) IAEA, “Status of Developments in the Back End of the Fast Reactor Fuel Cycle” , IAEA Nuclear Energy Series, No.NF-T-4.2 (2011).
- (24) 「核分裂生成物の核変換技術の現状について」、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2回）資料2–4、平成25年9月9日。
http://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/gijyutu/gijyutu2/070/shiryo/_icsFiles/afieldfile/2013/09/12/1339435_6.pdf
- (25) K. Arie, M. Kawashima, Y. Araki, M. Sato, K. Mori, Y. Nakayama, K. Ishiguma, Y. Fuji-ie, “The sustainable system for global nuclear energy utilization” , GLOBAL2007 (Sep. 2007, Idaho).
- (26) M. Ozawa, T. Suzuki, S. Koyama, H. Akatsuka, H. Mimura, Y. Fujii, “A new back-end cycle strategy for enhancing separation, transmutation and utilization of materials (Adv.-ORIENT cycle)” , Prog. Nucl. Ener. 50, 476 (2008).
- (27) ATOMICA, ウラン濃縮法 (04-05-01-02),
http://www.rist.or.jp/atomica/data/dat_detail.php?Title_Key=04-05-01-02
- (28) ATOMICA, ガス拡散法によるウラン濃縮 (04-05-01-05),
http://www.rist.or.jp/atomica/data/dat_detail.php?Title_Key=04-05-01-05
- (29) ATOMICA, 遠心分離法によるウラン濃縮 (04-05-01-04),
http://www.rist.or.jp/atomica/data/dat_detail.php?Title_Key=04-05-01-04
- (30) ATOMICA, 原子法レーザーウラン濃縮 (04-05-01-13),
http://www.rist.or.jp/atomica/data/dat_detail.php?Title_Key=04-05-01-13
- (31) ATOMICA, 分子法レーザーウラン濃縮 (04-05-01-14),
http://www.rist.or.jp/atomica/data/dat_detail.php?Title_Key=04-05-01-14
- (32) 神辺、木原、林田、川上、” Development of oxygen-18 separation unit by oxygen distillation” , 太陽日酸技法 23, 20 (2004).
- (33) 西原健司、”長寿命核分裂生成物の核変換について”、「同位体分離のための量子制御技術」研究会資料 (H18.2.20、木津)
- (34) J.L. Lyman, W.D. Breshears, “Zirconium isotope separation program” , LA-UR-03-3495,
<http://lib-www.lanl.gov/cgi-bin/getfile?00937128.pdf>

- (35) M.R. Humphries, O.L. Bourne, P.A. Hackett, "Laser isotope separation of zirconium atoms cooled in a supersonic beam" , Chem. Phys. Lett. 118, 134 (1985).
- (36) I.A. Suvorov, A.N. Tcheltsov, L.Y. Sosnin, A.A. Sazikin, A.I. Rudnev, "Centrifugal extraction of highly enriched tin isotopes and increase of specific activity of the radionuclide ^{119}mSn on the gas centrifuge cascade" , Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A 480, 22 (2002).
- (37) 須藤、”第三世代のウラン濃縮技術”、<https://www.jaea.go.jp/03/senryaku/seminar/08-3.pdf>
- (38) 鈴木、藤井、”ICR プラズマ同位体分離”、プラズマ・核融合学会誌 74, 250 (1998).
- (39) E.P. Potanin, "Analysis of the separation of Gadolinium isotopes by the ICR method" , Plasma Phys. Reports 34, 121 (2008).
- (40) V.V. Olshansky, K.N. Stepanov, "Parametric instability influence on isotope separation by ion-cyclotron resonance method" , Plasma Phys. 12, 204 (2006).
- (41) T. Ohkawa, R.L. Miller, "Band gap ion mass filter" , Phys. Plasmas 9, 5116 (2002).
- (42) H. Niki, T. Kuroyanagi, Y. Horiuchi, S. Tokita, "Laser isotope separation of Zirconium for nuclear transmutation process" , J. Nucl. Sci. Tech. Supp. 6, 101 (2008).
- (43) H. Niki, K. Motoki, M. Yasui, Y. Horiuchi, S. Tokita, Y. Izawa, "Selectivity and efficiency of laser isotope separation processes of Gadolinium" , J. Nucl. Sci. Tech. 43, 427 (2006).
- (44) E.G. Myers, D.E. Murnick, W.R. Softky, "Isotope selective laser enhancement of the Li+H₂ reaction" , Appl. Phys. B 43, 247 (1987).
- (45) A. Badalyan, V. Chaltykyan, Y. Fujii, Y. Malakyan, M. Ozawa, A. Papoyan, S. Shmavonyan, "Studies of laser induced Cesium and Rubidium hydride formation in vapor cells and their application for isotope separation" , Prog. Nucl. En. 47, 389 (2005).
- (46) 横山、松岡、”光周波数コムが拓く長寿命核分裂生成物の精密同位体分離技術”、日本原子力学会誌 56, 51 (2014).
- (47) 横山、”レーザーによる同位体分離”、国際シンポジウム「放射性廃棄物低減に向けた現状と将来の展望」
<https://www.jaea.go.jp/news/symposium/RRW2014/shiryo/7-2.pdf>
- (48) L. Matsuoka, A. Ichihara, M. Hashimoto, K. Yokoyama, "Theoretical study for laser isotope separation of heavy-element molecules in a thermal distribution" , GLOBAL2011, 392063 (Dec. 2011, Makuhari).
- (49) K. Yokoyama, L. Matsuoka, T. Kasajima, M. Tsubouchi, A. Yokoyama, "A new scheme for the laser isotope separation applicable to heavy elements" , Advances in Intense Laser Science & Photonics, ed. J. Lee et al. (Publishing House for Science and Technology, Hanoi, 2010) pp113-119.

— NSA COMMENTARIES —

原子力システム研究懇話会 編著

No.1	「原子力と環境」(1700円) [品切れ]	平成5年6月23日発行
No.2	「原子力と先端技術〔I〕」(1750円) ①材料関連 ②バイオ関連	平成6年6月20日発行
No.3	「原子力と先端技術〔II〕」(1950円) ①原子力への先端的計算機技術の応用 ②核融合技術開発の最前線	平成7年6月21日発行
No.4	「原子力と先端技術〔III〕」(1950円) [残部僅少] ①放射線利用による新材料開発 ②レーザー応用	平成8年6月18日発行
No.5	「原子力と先端技術〔IV〕」(1950円) ○原子力におけるロボット技術の動向	平成9年6月18日発行
No.6	「原子力と先端技術〔V〕」(2160円) ○加速器の現状と将来	平成10年6月29日発行
No.7	「中性子科学」(2160円)	平成11年6月29日発行
No.8	「放射線利用における最近の進歩」(2160円)	平成12年6月27日発行
No.9	「原子力利用の経済規模」(2160円)	平成13年6月26日発行
No.10	「原子力による水素エネルギー」(2160円)	平成14年6月18日発行
No.11	「放射線と先端医療技術」(2160円)	平成15年6月23日発行
No.12	「原子力とそのリスク」(2160円)	平成16年6月21日発行
No.13	「原子力施設からの放射性廃棄物の管理」(2160円)	平成17年6月21日発行
No.14	「軽水炉技術の改良と高度化」(2160円)	平成18年6月20日発行
No.15	「原子力による運輸用エネルギー」(2160円)	平成19年6月19日発行
No.16	「原子力と地球環境」(2160円)	平成20年6月17日発行
No.17	「原子力国際人材育成の必要性と戦略」(1080円)	平成21年12月1日発行
No.18	「原子力開発の光と陰を見つめて」(2160円)	平成22年6月15日発行
No.19	「対談集：原子力の利用」(2160円)	平成23年9月30日発行
No.20	「核燃料サイクルと高速炉開発」(2160円)	平成25年3月29日発行
No.21	「福島第一原子力発電所事故と原子力のリスク」(2160円)	平成26年6月17日発行
別冊シリーズ		
No.1	「原子力のリスクと安全の確保」内藤奎爾著 (1500円) [品切れ]	平成18年12月19日発行
No.2	「カーボン ネガティブ エネルギー システム」(1080円)	平成27年6月16日発行

放射性廃棄物減容化・有害度低減の技術開発－核種分離・転換 －NSA/COMMENTARIES : No.22－

平成 28 年 3 月 30 日発行

編集・発行 (一社) 日本原子力産業協会

原子力システム研究懇話会

〒105 - 0001 東京都港区虎ノ門 1-7-6 升本ビル 4 階

電話 : (03) 3506-9071

URL : <http://www.syskon.jp>

E-mail:syskon@syskon.jp

印刷 有限会社 トック 東京都港区虎ノ門 1-11-10

ISBN978-4-88911-309-9
