

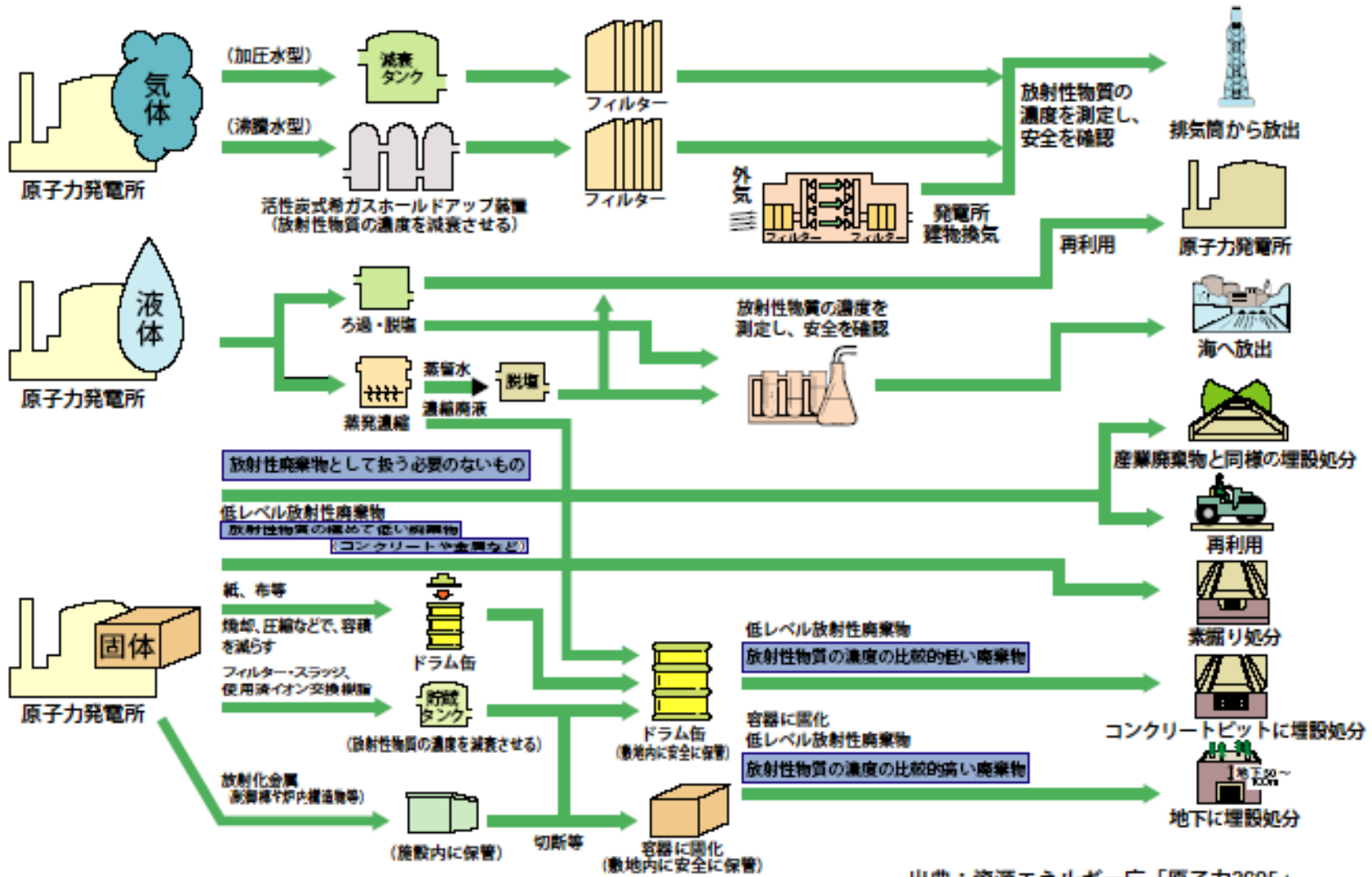
分離変換技術開発と核データ研究の展望

(2) 分離変換研究開発の現状

深 堀 智 生

日本原子力研究開発機構
原子力基礎工学研究センター

原子力発電所の廃棄物処理方法



出典：資源エネルギー庁「原子力2005」

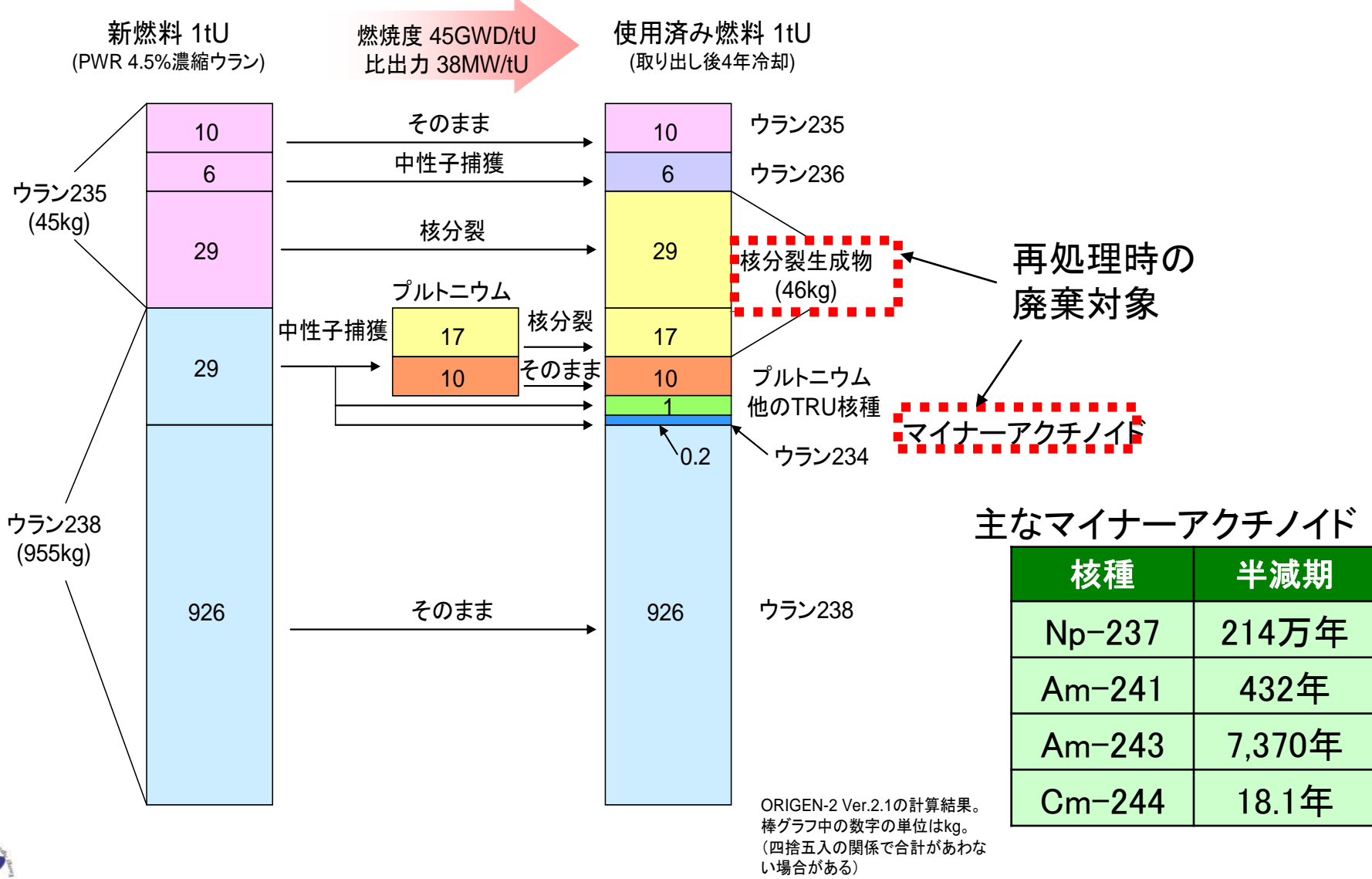


世界の高レベル放射性廃棄物処分計画

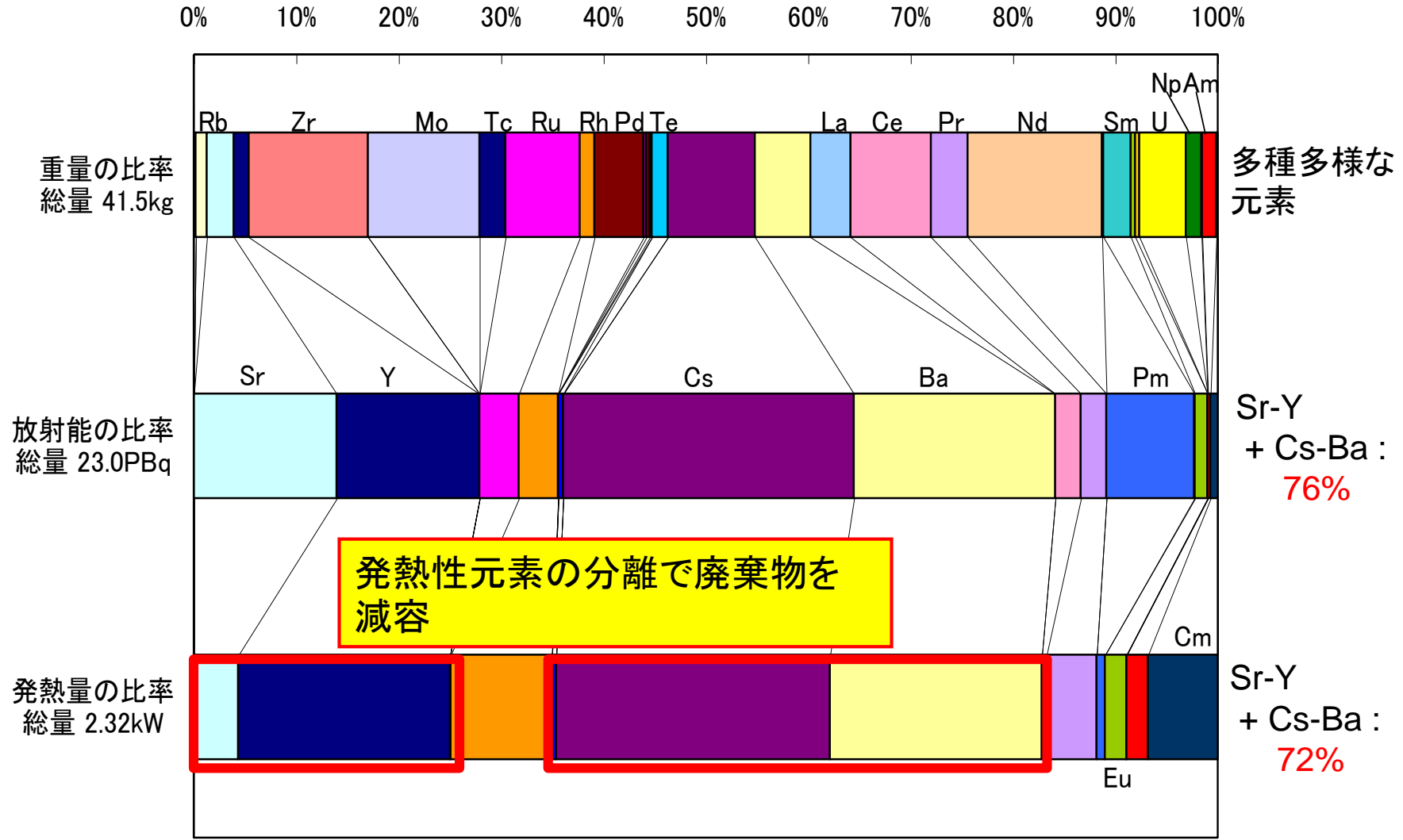
国名	使用済燃料取扱	軽水炉 プルトニウム利用	廃棄物処分 実施主体	廃棄物処分形態	処分量	処分地候補 及び岩種	処分深度	処分開始 予定時期	備考
フランス	再処理	推進中	放射性廃棄物 管理機構 (ANDRA)	未定	未定	未定	400~ 1,000m	未定	処分形態について、地層処分、分離変換 技術、長期貯蔵について、研究実施中
日本	再処理	少量の使用 実績あり	原子力発電 環境整備機構 (NUMO)	ガラス 固化体	未定	未定	300m 以深	2030年代~ 2040年代半ば	
ベルギー	(海外委託)再処理 (1991年まで) 間接処分	推進中	放射線廃棄物・ 核物質管理庁 (ONDRF/NIRAS)	ガラス固化体 (返還廃棄物) 使用済燃料	未定	候補地: 選定未着手	220m	2010年	現在、再処理中止
スイス	(海外委託)再処理 (2006年まで) 間接処分	推進中	放射線廃棄物 管理協同組合 (NAGRA) (政府・民間共同出資)	ガラス固化体 (返還廃棄物) 使用済燃料	4,400トン (ウラン換算、内再 処理は1,200トン)	候補地:未定 岩種:花崗岩 オランダ粘土	400~ 1,000m	2050年	
アメリカ	(国が引き取り) 直接処分	実績あり 現在は中止	エネルギー省 (DOE)	使用済燃料 ガラス固化体	70,000トン (ウラン換算)	候補地: ユッカマウンテン 岩種:凝灰岩	200~ 500m	2010年	
ドイツ	(海外委託)再処理 (2005年まで) 直接処分	推進中	連邦放射線 防衛庁 (BfS)	使用済燃料 ガラス固化体	24,000m ³ (廃棄物量 使用済燃料、 ガラス固化体等)	候補地: ゴアレーベン 岩種:岩塩ドーム	840~ 1,200m	2030年	ゴアレーベンを含めサイト 選定手続再検討中
フィンランド	直接処分	実績なし	(民間会社) ポシヴァ社	使用済燃料	6,500トン (ウラン換算)	候補地: オルキルナ 岩種:結晶質岩	500m (基本ケース)	2020年	
スウェーデン	直接処分	実績あり 現在は中止	(民間会社) 核燃料・廃棄物 管理会社 (SKB)	使用済燃料	9,300トン (ウラン換算)	候補地:オスカンム エストハンマル 岩種:結晶質岩	400~ 700m	2023年	

出典：原子力ポケットブック2005年版
原子力委員会新計画策定会議(第4回)資料等

軽水炉内でのウラン燃料の転換



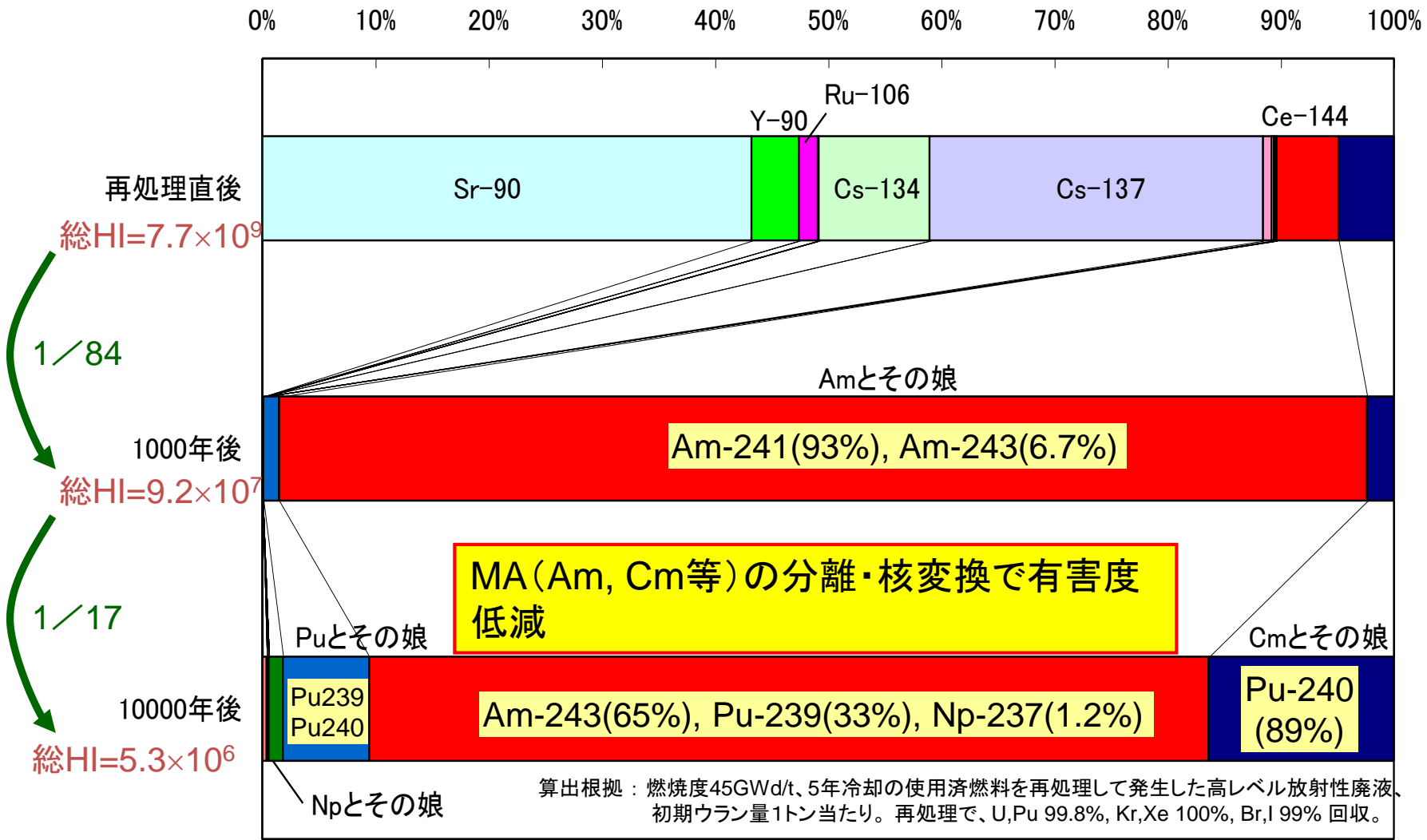
高レベル放射性廃液の組成



算出根拠： 燃焼度45GWd/t、5年冷却の使用済燃料を再処理して発生した高レベル放射性廃液、初期ウラン量1トン当たり。再処理で、U,Pu 99.8%, Kr,Xe 100%, Br,I 99% 回収。



高レベル放射性廃液の放射能毒性の比率



HI(Hazard Index):放射能毒性指標=放射能量[Bq/t] / 年摂取限度[Bq]



高レベル放射性廃棄物の年間生成量(原子炉1基当り)

マイナーアクチノイドの生成量

核種	冷却期間 半減期 (year)	3410MWt-PWR	
		3年 (%)	10年 (%)
²³⁷ Np	2.1×10 ⁶	57.9	41.3
²⁴¹ Am	432	27.4	48.8
²⁴³ Am	7380	11.9	8.33
²⁴³ Cm	28.5	0.03	0.02
²⁴⁴ Cm	18	2.67	1.44
²⁴⁵ Cm	8500	0.15	0.1
全重量		23.8(kg/年)	33.9(kg/年)

計算： データJENDL-2、計算コードSRAC-FPGS

燃焼度： 33GWd/MT (PWR)

再処理から群分離までの冷却期間： 5年

U, Puの回収率： 100%

~25kg

核分裂生成物の年間生成量¹⁾
(半減期10年以上の核種)

半減期区分	核種名	半減期 (year)	重量 (kg/年)
10年~100年	⁸⁵ Kr	11	0.70
	⁹⁰ Sr	29	16.3
	¹³⁷ Cs	30	36.4
	¹⁵¹ Sm	90	0.37
100年~10 ⁴ 年	該当無し		
10 ⁴ 年 ~ 5×10 ⁹ 年 ²⁾	⁷⁹ Se	6.5×10 ⁴	0.15
	⁹³ Zr	1.53×10 ⁶	21.3
	⁹⁹ Tc	2.13×10 ⁵	23.4
	¹⁰⁷ Pd	6.5×10 ⁶	6.21
	¹²⁶ Sn	1.0×10 ⁵	0.64
	¹²⁹ I	1.57×10 ⁷	5.00
合計 ³⁾	¹³⁵ Cs	2.3×10 ⁶	9.52
			120
5×10 ⁹ 年以上 (準安定核)	⁸⁷ Rb, ¹¹⁵ In, ¹⁴² Ce, ¹⁴⁴ Nd, ¹⁴⁷ Sm, ¹⁴⁸ Sm, ¹⁴⁹ Sm		76.5

1) 生成量1g以上の核種のみ記載

2) ²³⁸Uの半減期は4.47×10⁹年

3) 半減期が10年~5×10⁹年の核分裂生成物の合計値

計算：データJENDL-2、計算コードSRAC-FPGS

燃焼度：30GWd/MT

冷却期間：照射停止150日後の値

全FP生成量：1,002kg/年

~1ton

核変換技術開発の目的・意義・目標

長寿命・放射性毒性が大きい核種を核反応を利用して短寿命及び安定核種に変換

対象核種：

マイナーアクチノイド (MA : Np、Am、Cm)

長半減期核分裂生成物 (LLFP : ^{129}I 、 ^{99}Tc 等)

発熱の大きい核分裂生成物 (^{90}Sr 、 ^{137}Cs 等)

意義：

廃棄物蓄積量、潜在的毒性、発熱量を低減して、地層処分の負荷を軽減。

目標：

MAやLLFPの99.5%を核変換し、毒性指数を約300年後には2桁以上低減。
(天然ウランの毒性指数と同等にする)

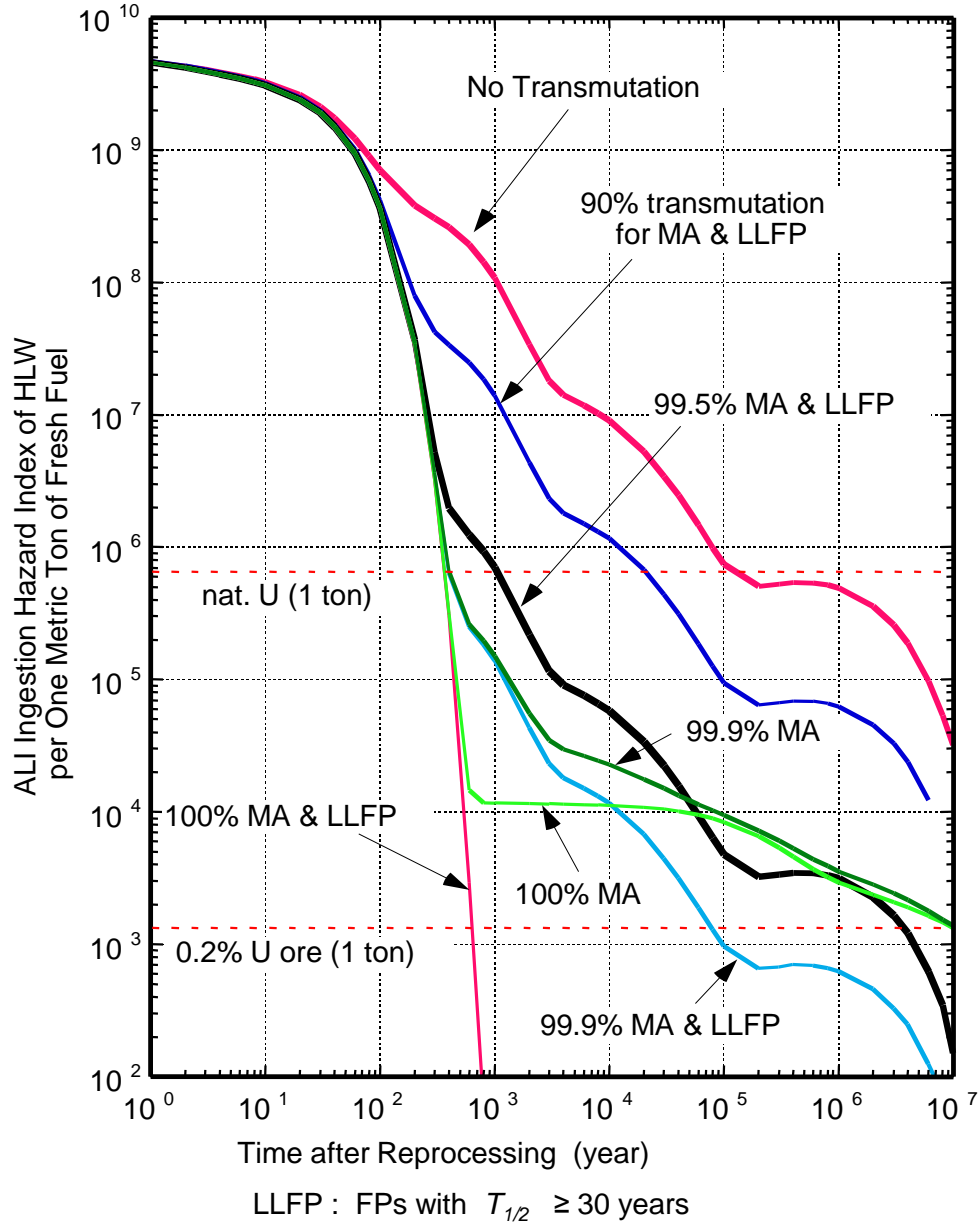
- 廃棄物の効果的で効率的な処理・処分を行う技術は循環型社会の実現を目指す我が国社会にとって必須の技術。

潜在的有害度

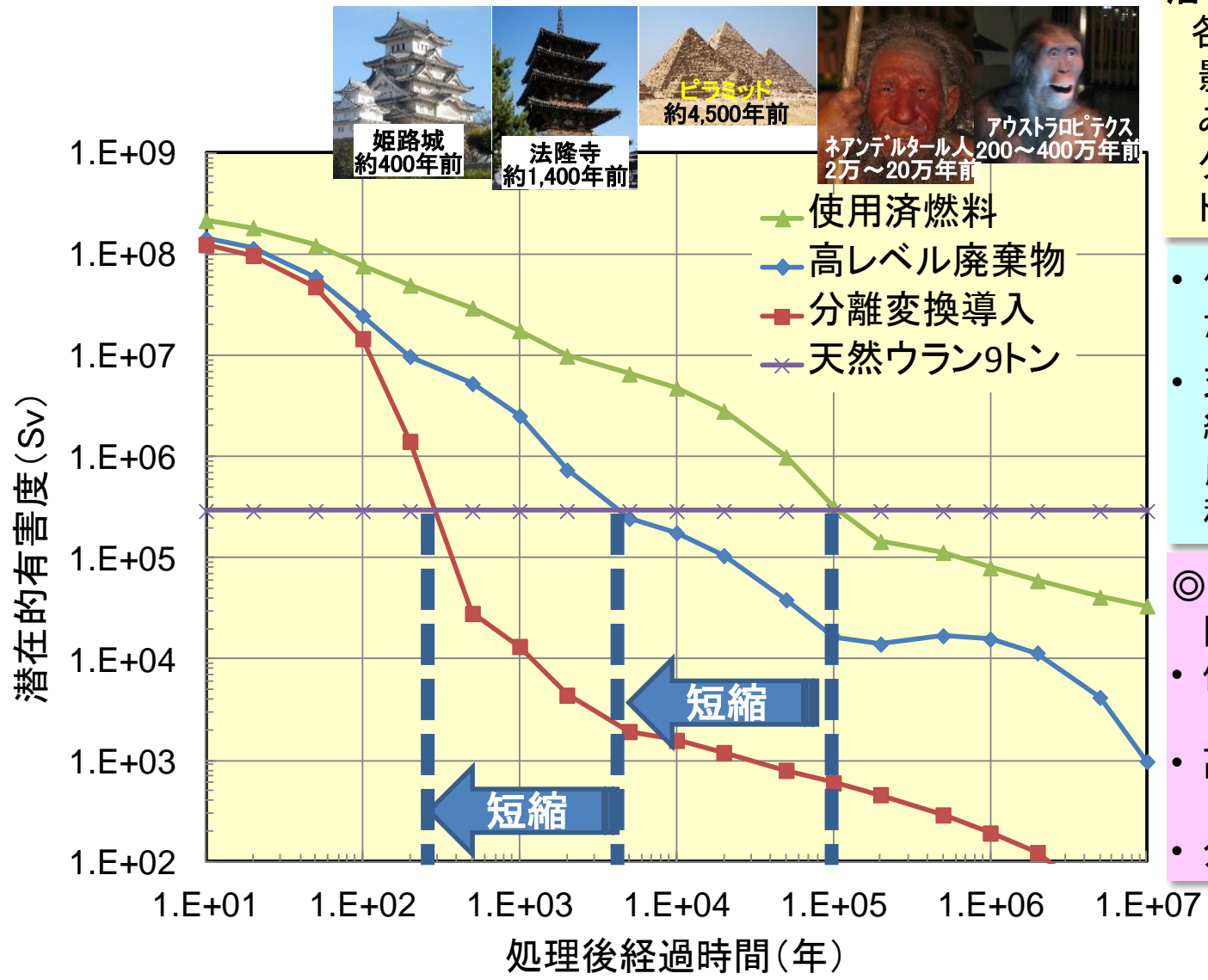
主な廃棄物の年間摂取限度(経口)
(ALI: Annual Limit of Intake (Ingestion))

核種	ALI(Bq)
⁹⁰ Sr	1×10^6
¹³⁷ Cs	4×10^6
⁹⁹ Tc	1×10^8
¹²⁹ I	2×10^5
²³⁷ Np	3×10^3
²⁴¹ Am	5×10^4

毒性指数: 含まれる核種の質量をそれぞれの年摂取限度(ALI)で除した数値



潜在的有害度の減衰と核変換の効果

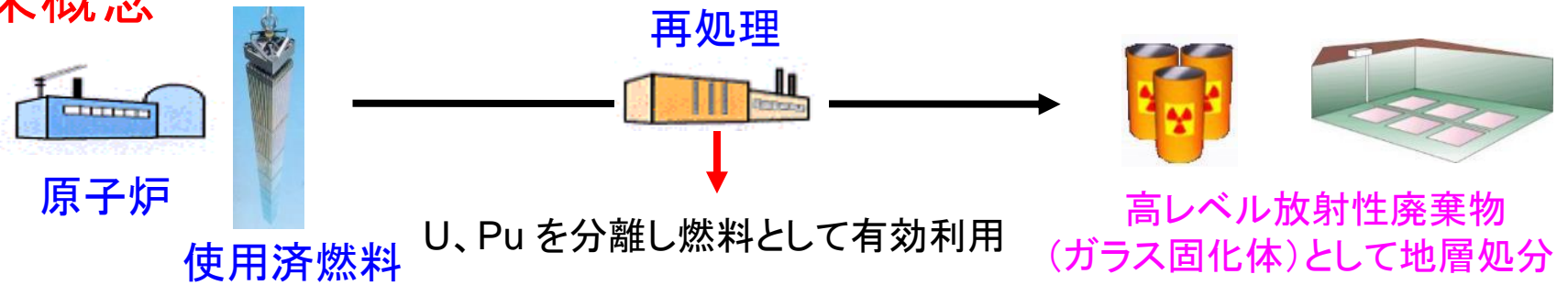


潜在的有害度:
各放射性核種の人体への影響(線量換算係数)で重みづけた指標。放射能(ベクレル)を被ばく(シーベルト)に換算。

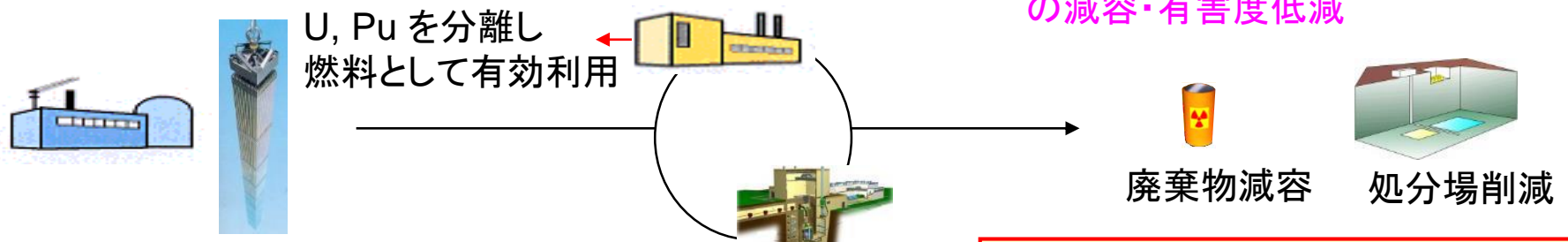
- 低濃縮ウラン燃料1トン当たりの値
- 天然ウラン9トンは、低濃縮ウランの原料。ウランの崩壊で蓄積している娘核種の放射能を含む。

- ◎原料の潜在的有害度を下回るまでに要する時間:
- 使用済燃料: **約10万年**
 - ↓
 - 高レベル廃棄物: **数千年**
 - ↓
 - 分離変換導入後: **数百年**

従来概念



分離変換技術適用



トイレなきマンションと言われている問題を打破する可能性を持つ

我が国の現状

- ・原子炉: 軽水炉が再稼働に向け準備中。高速炉は研究開発段階
- ・再処理: 六ヶ所再処理工場が操業に向け準備中
- ・地層処分: 原子力発電環境整備機構 (NUMO) 主体に処分場を探索中
- ・分離変換技術: 概念開発段階から原理実証段階に移行することが可能な研究開発段階

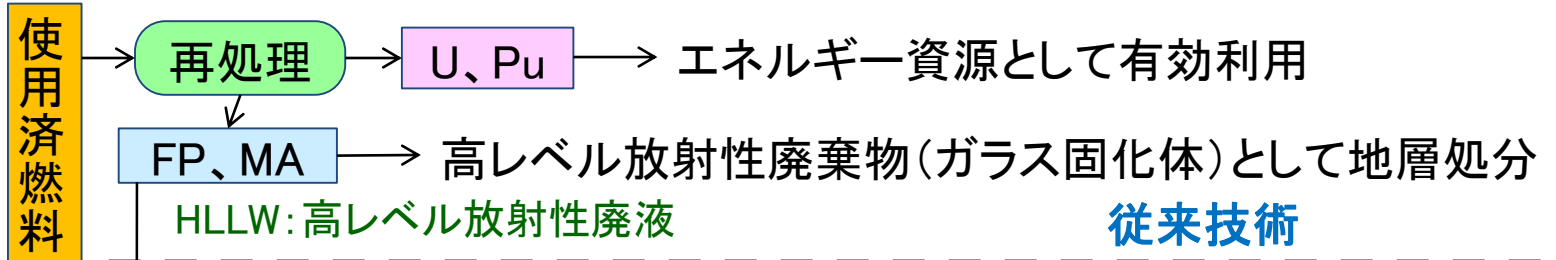
分離変換技術

高レベル放射性廃棄物に含まれる放射性核種を、その半減期や利用目的に応じて分離する（分離技術）とともに、長寿命核種を短寿命核種あるいは非放射性核種に変換する（変換技術）ための技術

目標

- ・長期リスクの低減: 廃棄物の潜在的有害度の総量を大幅に低減
- ・処分場の実効処分容量の増大: 発熱の大きい核種を除去してコンパクトに処分
- ・放射性廃棄物の一部資源化: 希少元素の利用（白金族など）

放射性廃棄物の減容化・有害度低減



従来技術

分離変換技術の適用例

- MA (Np, Am, Cm) → **核変換**による短寿命化
- 白金族 (Ru, Rh, Pd等) → 利用 → **ゴミの資源化**
- 発熱性元素 (Sr, Cs) → 焼成体として冷却(又は利用)後に地層処分
- その他の元素 → ガラス固化体として地層処分 → **ゴミの減容**

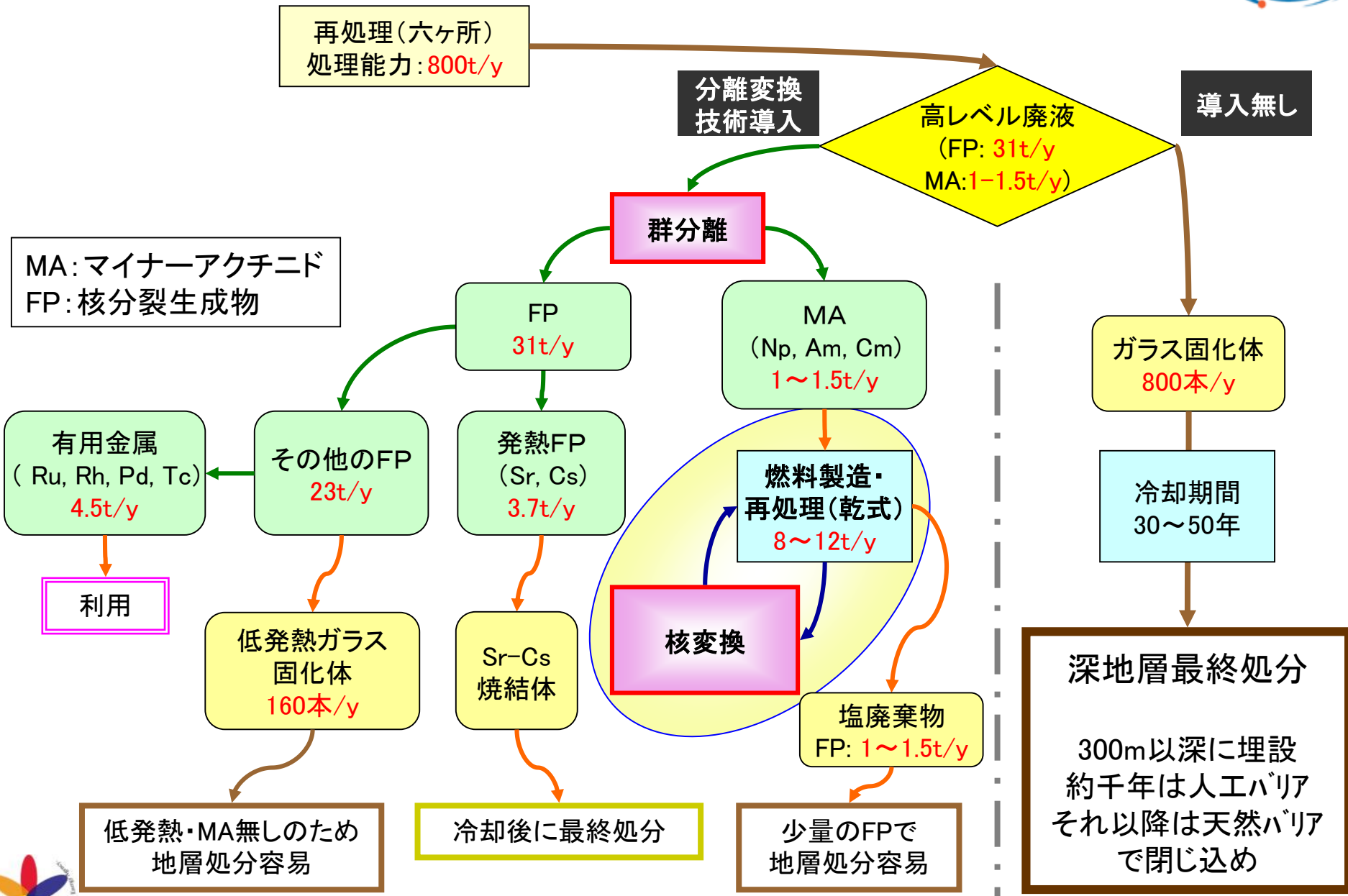
ゴミの分別

群分離

MA: マイナーアクチノイド
FP: 核分裂生成物

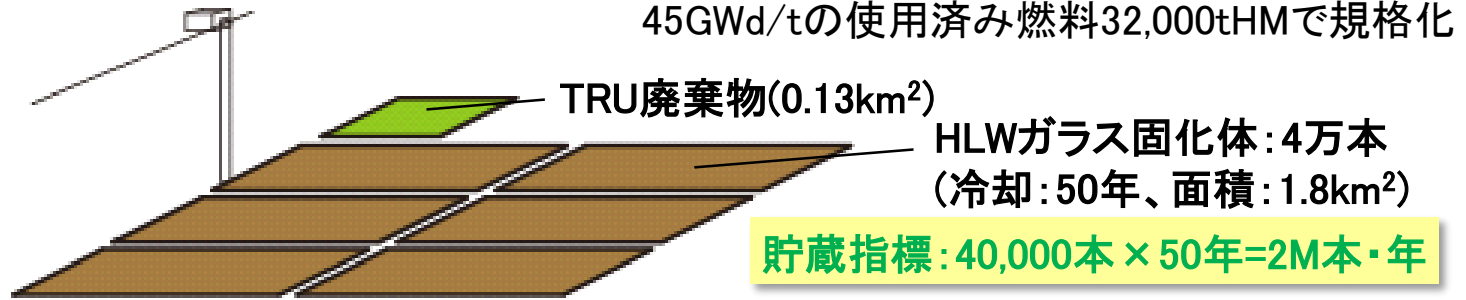


分離変換研究とは



処分概念の合理化(長期貯蔵との組み合わせ)

従来の地層処分



分離変換導入

MA核変換は超長期の潜在的有害度削減と長期発熱核種(Am-241)の除去に有効



さらに長期貯蔵

Sr-Cs焼成体: 5,100本
(冷却320年、面積: 0.005km²)



核変換処理の対象核種

■ 核変換処理対象核種選定の考え方

- PuとUはリサイクルが前提
- 短半減期核種は自然崩壊に任せる(Sr-90、Cs-137)
- 人工バリアが期待できないような長期(千年以上)に影響を持つ核種を対象とする
- 短寿命であっても、上記の核種の親核種は対象とする
- 処分場設計において長期の発熱影響の大きい核種(Am-241)も対象とする
- 同位体分離が必要な核種(Cs-135)はエネルギー収支の観点から現時点では困難



- MA核種: Np-237、Am-241、Am-243、Cm-244
- FP核種: Tc-99、I-129

半減期:

Sr-90 = 28年

Cs-137 = 30年

Tc-99 = 21万年

I-129 = 1600万年

U-238 = 45億年

Np-237 = 214万年

Pu-239 = 24000年

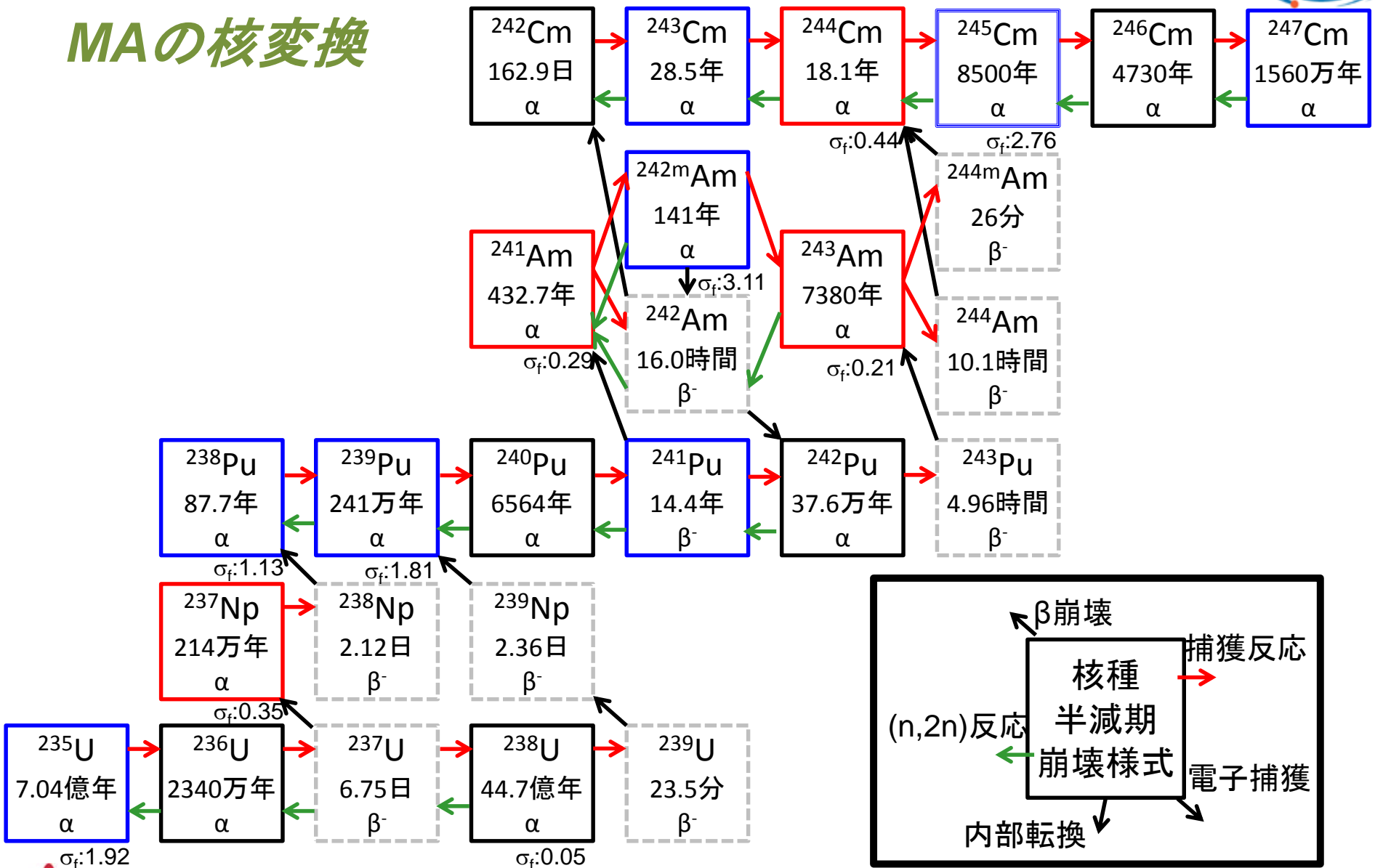
Pu-240 = 6500年

Am-241 = 433年

Am-243 = 7370年

Cm-244 = 17.6年

MAの核変換



核変換の条件

1. 弱害化：

核変換反応による2次生成核種や分離工程からの2次廃棄物に起因するリスク（短期的リスク、**長期的リスク**）の低減。

2. エネルギーバランス

原子力発電で発生する（廃棄物を作り出す）エネルギーと比較して、分離変換に要するエネルギーが**ずっと**小さい。

3. 経済性

核変換を行うことによって**大幅なコスト**の上昇をもたらさない。

4. 処理速度

核変換の速度が自然崩壊速度よりも速い。

中性子発生反応(効率の比較)

核反応	入射粒子	エネルギー等	中性子収量	発生する熱量 (MeV/n)
T(d,n)	重陽子	250keV (静電加速器)	$8 \times 10^{-5} \text{ n/d}$	2500
光核反応	電子、 γ 線	10~100MeV (電子加速器)	$3 \times 10^{-2} \text{ n/e}$	3100
核分裂	中性子	分裂炉	1~2n/fission	200*
核破砕	陽子	1GeV (陽子加速器)	20~30n/p	23
核融合	(d-t)	融合炉	1n/fusion	3*
	*発熱反応			

中性子:クーロン障壁に遮られることなく低い運動エネルギーでも原子核に容易に到達し、核反応を起こすためエネルギー収支の観点から有利。

核変換の効率(中性子断面積)

核変換半減期

$$T_{1/2} = \ln 2 / (\sigma \cdot \phi) \quad N = N_0 \exp(-\ln 2 t / T_{1/2})$$

σ : 断面積(barn:cm⁻²⁴)
 Φ : 粒子線束(cm⁻²·s⁻¹)

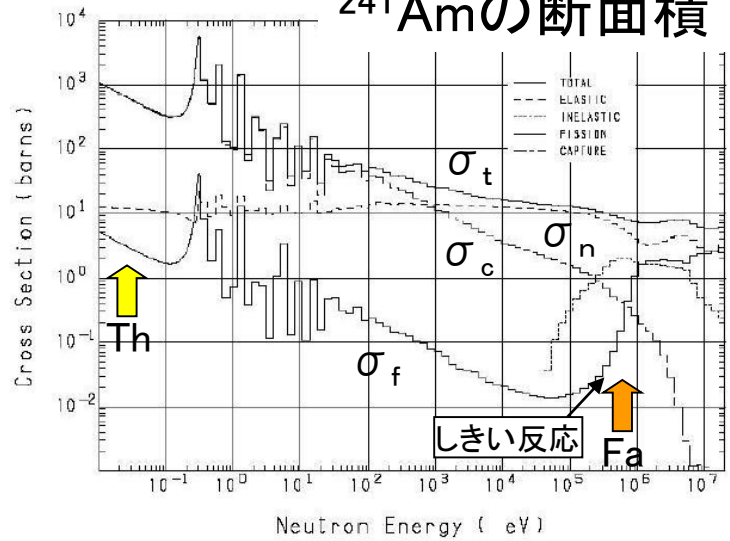
(T_{1/2} : 1年を得るには、反応断面積 $\sigma=1$ barn
 $\phi=2.2 \times 10^{16}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$ の粒子線束が必要。)

有力と考えられる反応(中性子束平均)

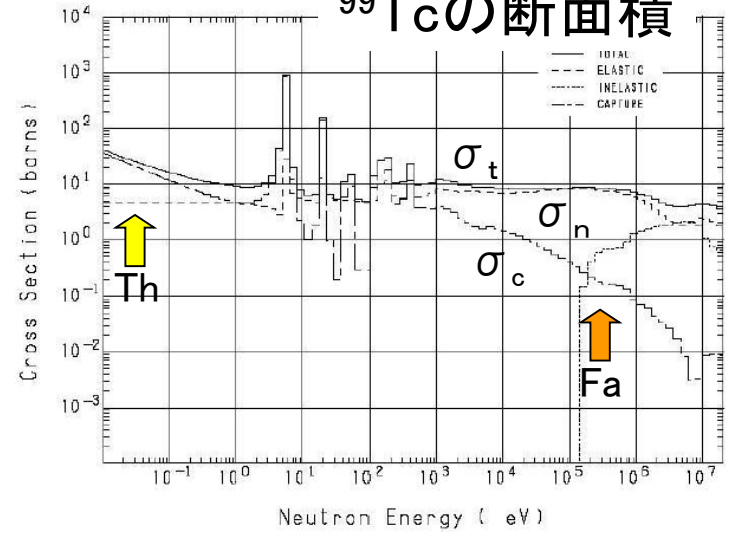
- MA核種 : 高速中性子による核分裂反応
断面積1~2 barn @1MeV
- LLFP : 熱中性子による捕獲反応。
断面積は核種によって大きく異なる

⁹⁹Tc、¹²⁹Iではそれぞれ約20barnと24barn
⁹⁰Sr、¹³⁷Csではそれぞれ0.01barnと0.2barn

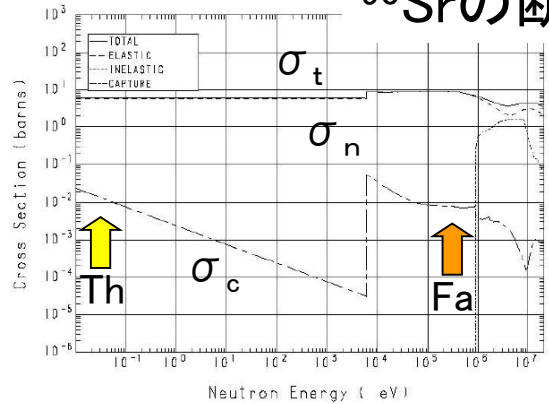
²⁴¹Amの断面積



⁹⁹Tcの断面積



⁹⁰Srの断面積



核変換の効率(光核反応)

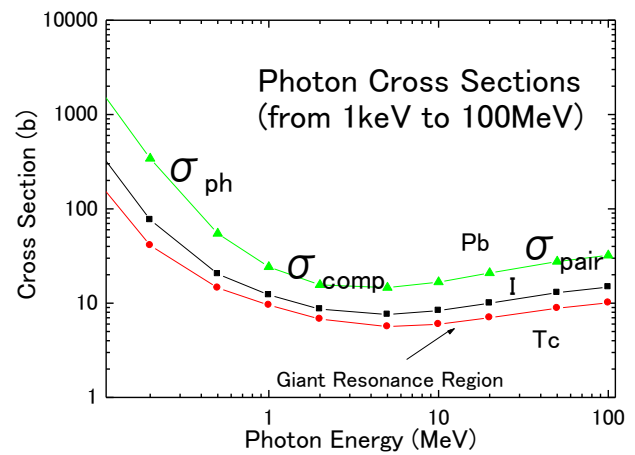
巨大共鳴(15MeV領域)

- ・ 断面積の最大値でも0.2~0.3barn

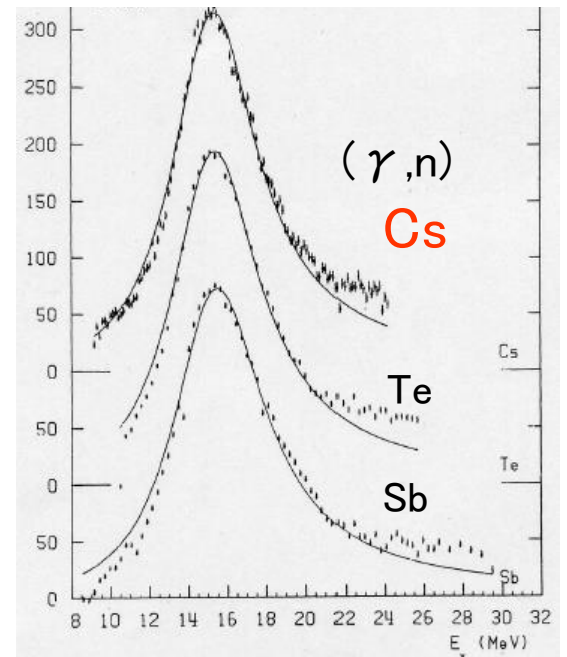
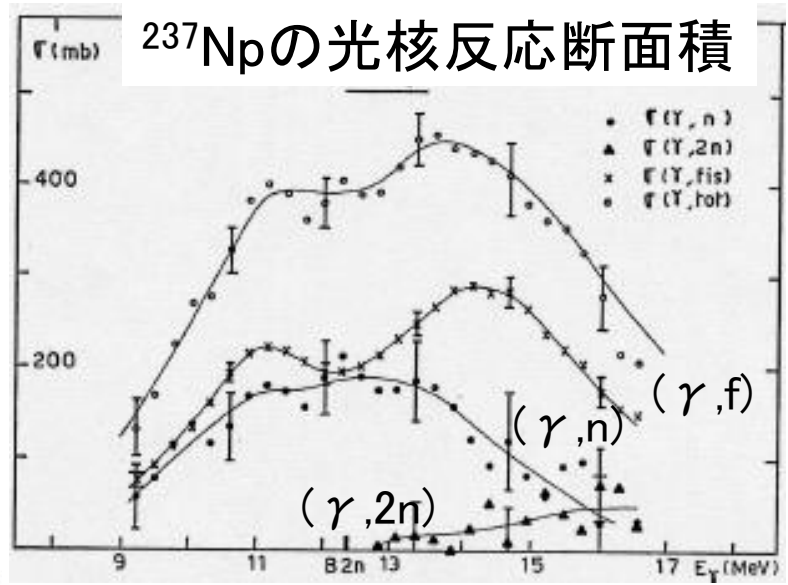
原子との相互作用(核変換に寄与しない)

- ・ 電子対創生(pair creation)等の断面積(約10barn)との競合(ターゲット内の発熱)

効率が悪く非現実的とされている



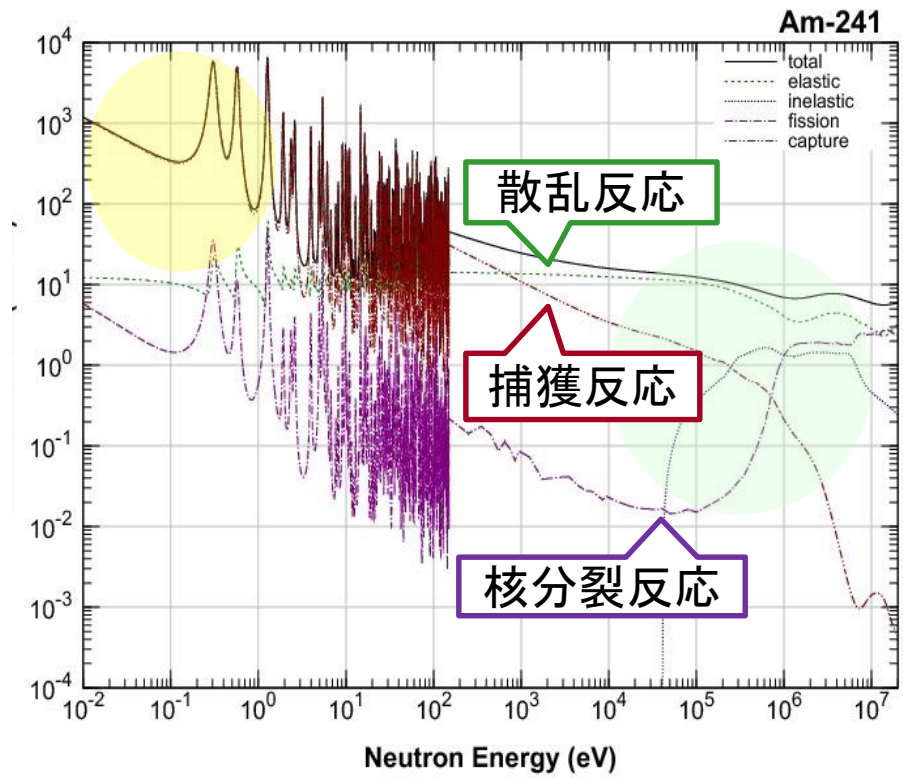
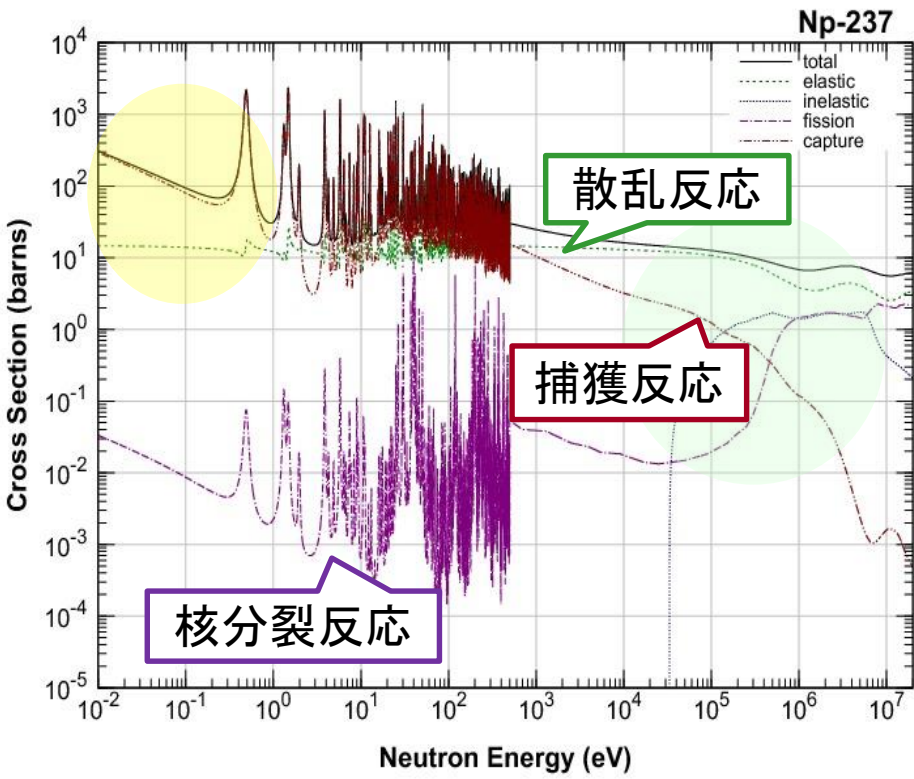
^{137}Cs の光核反応断面積





MAの原子核反応

◆MAの核変換には、高速中性子による核分裂の連鎖反応の利用が有利。

軽水炉のエネルギー領域では、ほとんど核分裂しない
高速炉のエネルギー領域では、核分裂しやすくなる。



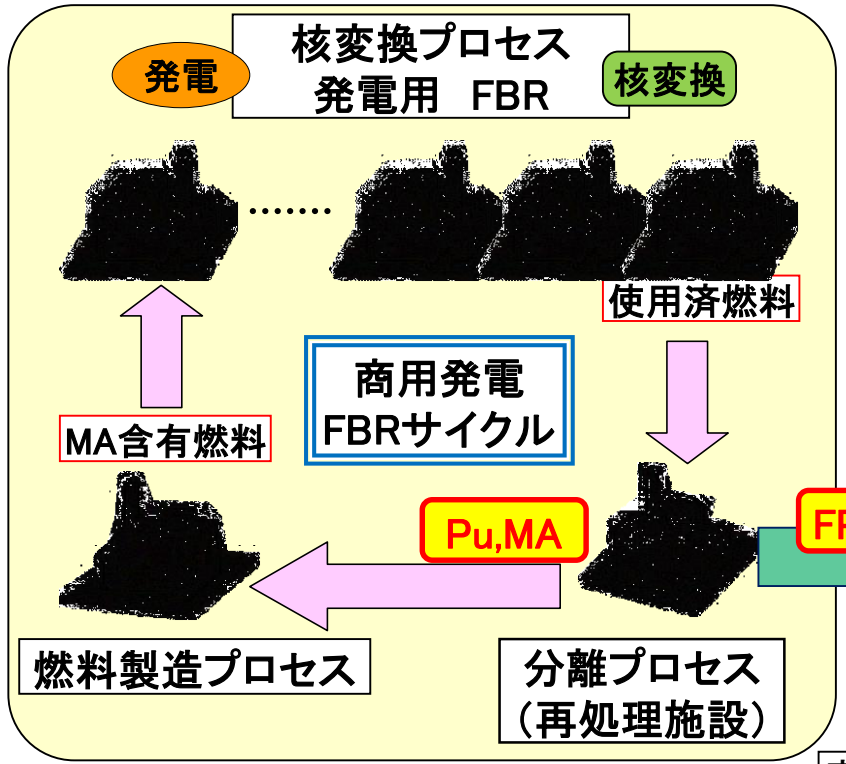
 軽水炉のエネルギー領域

 高速炉のエネルギー領域

核変換システム概念

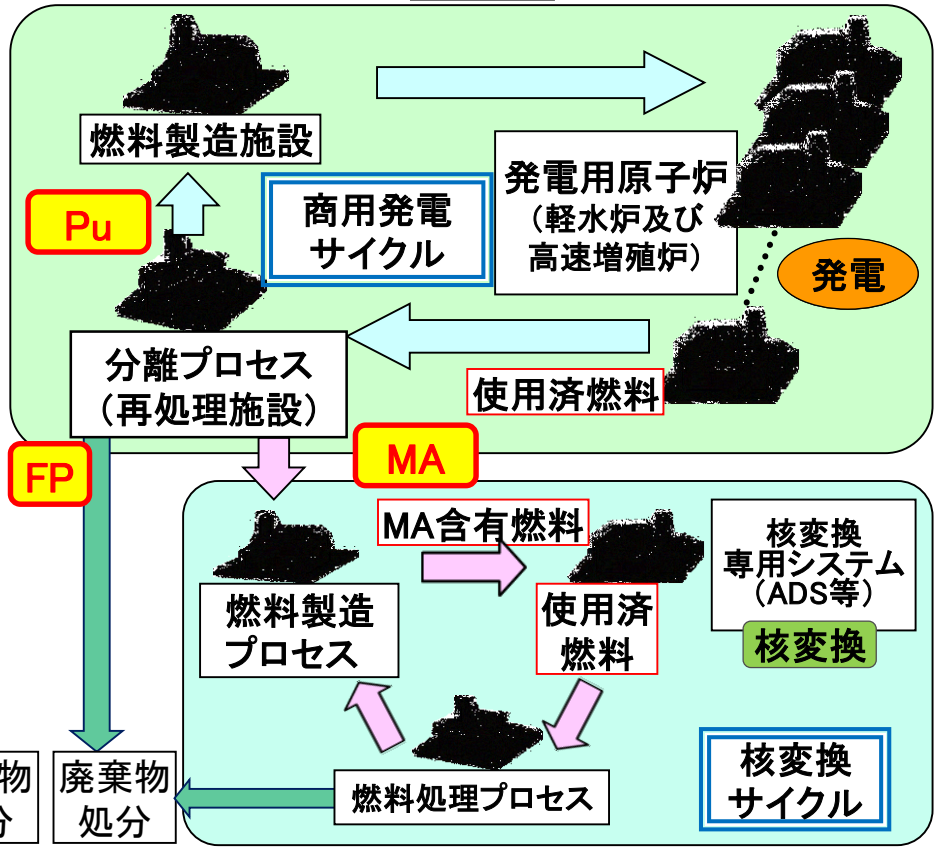
99.5%ものMAを核変換するには、照射→処理→燃料製造→照射→...を繰り返す核燃料サイクルが必要となる。

高速炉サイクル利用型



MA:マイナーアクチノイド
TRU:超ウラン元素

階層型



- ・発電炉を用いた分離変換技術
- ・ひとつの閉サイクル内でPuと共にMAをリサイクル
- ・発電炉(高速炉)内でMAを核変換

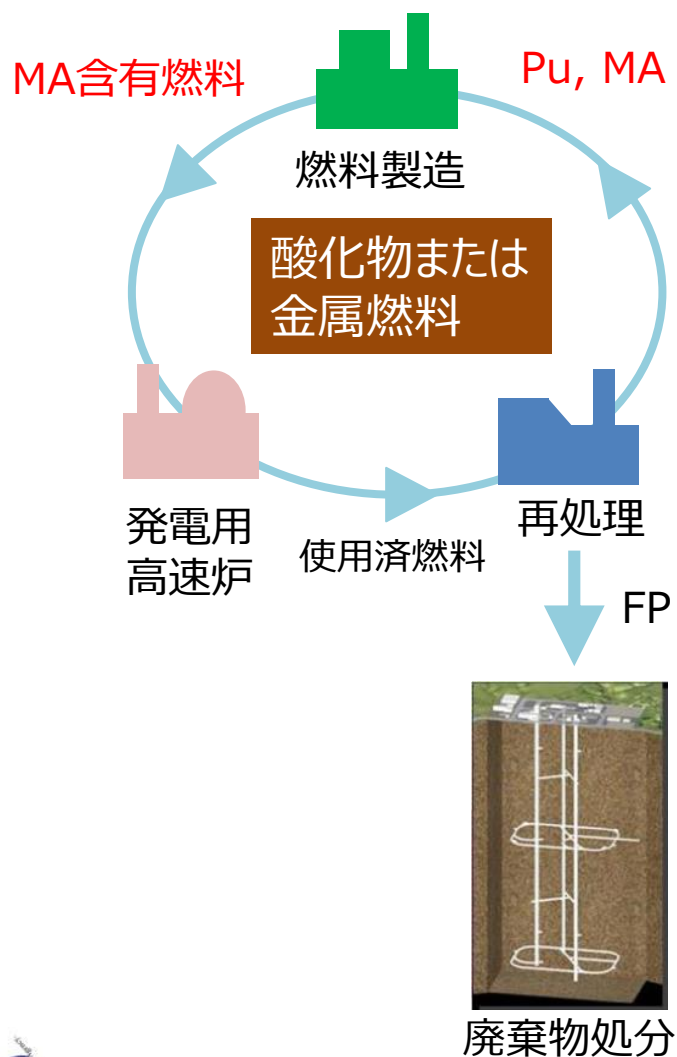
- ・発電用サイクルに核変換サイクルを付設
- ・核変換専用システム(加速器駆動システム: ADS等)
- ・コンパクトな核変換サイクルにMAを閉じ込める

核変換サイクルの比較

項目	FBR (均質装荷)	FBR (非均質装荷)	ADS
燃料サイクル	均質サイクル	非均質サイクル	階層型
燃料組成	(U, Pu, MA)O ₂ (U, Pu, MA)Zr 金属 MA 割合: 最大5%	(U, Pu, MA)O ₂ (U, Pu, MA)Zr 金属 MA 割合: ~20%	(MA, Pu)N+ZrN MA 割合: ~60%
再処理	先進湿式 (MOX) 乾式 (金属)		第1階層: 先進湿式 第2階層: 乾式
核変換システム	Na冷却FBR		LBE冷却 ADS
熱出力	3570 MWth (MOX) 3900 MWth (金属)	3570 MWth	800 MWth
電気出力	1500 MWe	1500 MWe	270 MWe
発電割合 (58GWで規格化)	MA装荷FBR: 58GW	MA非装荷FBR: 43GW MA装荷FBR: 15GW	MA非装荷FBR: 58GW ADS: ~2GW
単位熱出力あたりの 核変換率	50 kg/GWth/y (MOX) 60 kg/GWth/y (metal) (MA 割合 5%の時)	30kg/GWth/y	310kg/GWth/y

☆「日本原子力研究開発機構」において、両方の戦略の研究開発を実施中

発電用高速炉を利用した分離変換サイクル



均質型

- ✓ MAを高速炉燃料に低濃度(5%以下)で混合し、炉心全体に均一に装荷して燃焼
- ✓ MAを低濃度に抑えて影響を抑制
- ✓ MAによる燃料の崩壊熱増加を最小限に抑制

非均質型

- ✓ MAを比較的高濃度(20~30%)で炉心またはブランケットの一部に集中装荷して燃焼
- ✓ 少数の燃料体でMAを集中的に燃焼
- ✓ 均質炉心と同等の核変換性能

発電用高速炉を利用した分離変換サイクル

高速実験炉「常陽」

所在地: 茨城県大洗町
熱出力: 140 MW(14万kW) (Mark-III:2003年～)
燃料: MOX燃料
建設: 昭和46年着工
運転: 昭和52年～昭和53年 Mark-I
昭和57年～平成9年 Mark-II
平成15年～ Mark-III
(平成19年より実験装置不具合により停止中)

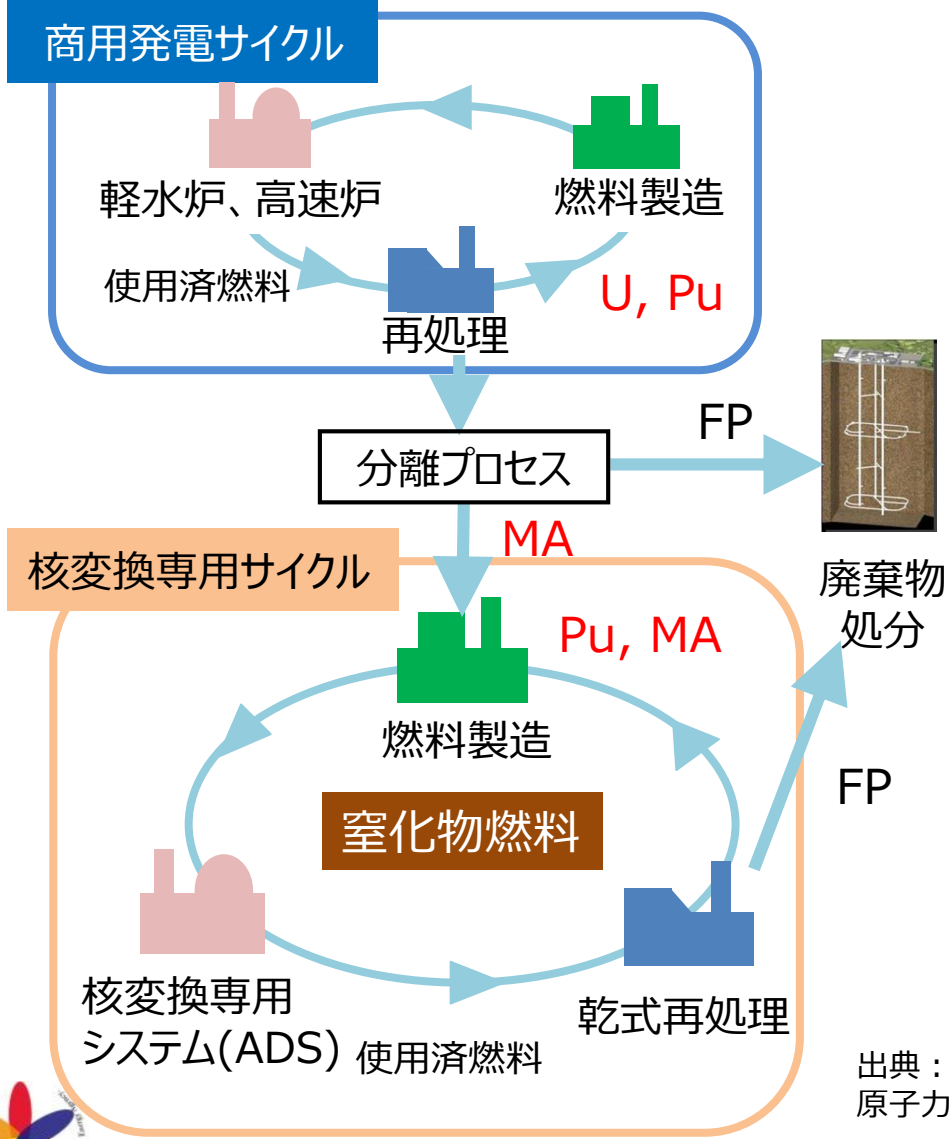


高速原型炉「もんじゅ」

所在地: 福井県敦賀市
熱出力: 714 MW (71.4万kW)
燃料: MOX燃料
建設: 昭和60年着工
運転: 平成6年 初臨界
平成7年 ナトリウム漏洩事故
平成22年 運転再開、燃料交換器脱落



ADS階層型分離変換サイクル



ADS階層型サイクル

- ✓ MA主体の燃料を核変換専用システムにより燃焼する専用サイクルを構成
- ✓ 核変換専用サイクルでのHM取扱量は商用発電サイクルの約100分の1 (HM=U, Pu, MA)
- ✓ MAの高い発熱と放射能が課題 ⇒ 乾式再処理が適する

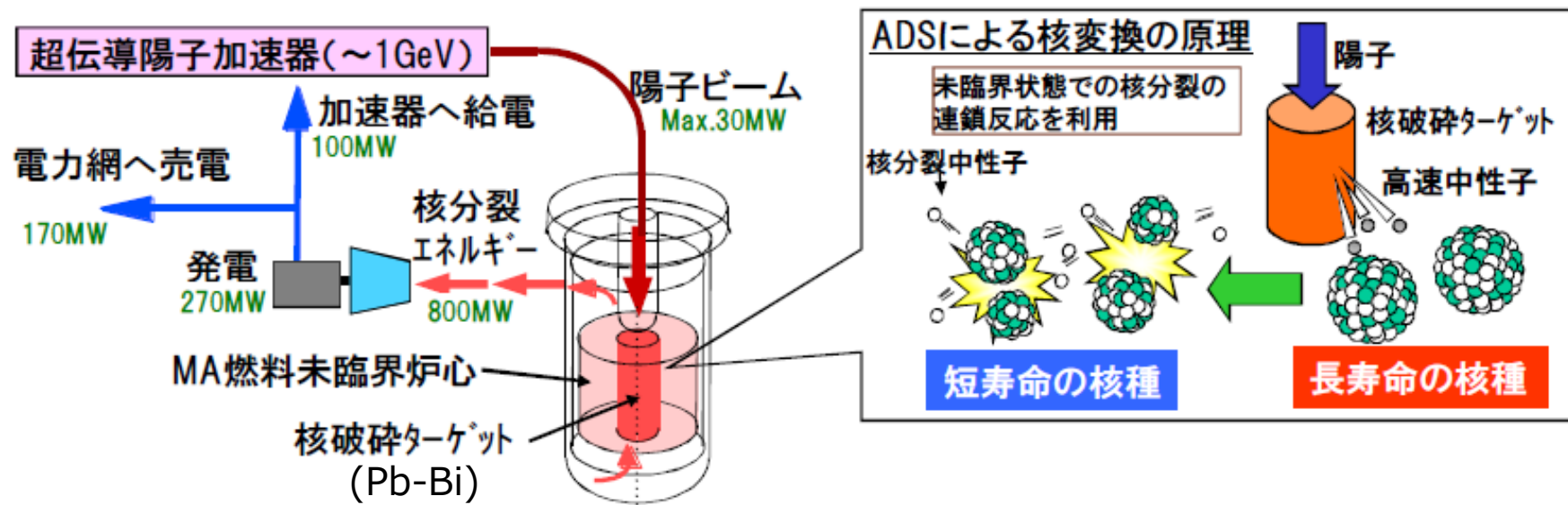
MA核変換率の目標：99%以上
(高レベル廃棄物の放射能毒性が天然ウランの潜在毒性レベルまで減衰するまでの時間を、数千年 → 数百年に短縮)

1サイクル当たりのMA核変換率：20%
⇒ マルチリサイクルによってMA核変換率を高める

出典：日本原子力学会分離変換・MAリサイクル研究専門委員会編集、原子力委員会研究開発専門部会分離変換技術検討会資料(2009.1.21)



ADS階層型分離変換サイクル



ADSのしくみ

- ✓ 陽子加速器とMAを燃料とする原子炉を組み合わせたハイブリッドシステム
- ✓ 陽子加速器からの陽子ビームを核破砕ターゲット (Pb-Bi)に入射し、核破砕反応で中性子を発生
- ✓ その中性子によりMAを核分裂反応で核変換し、未臨界状態での核分裂の連鎖反応を利用
- ✓ 核分裂で発生する熱で発電し、加速器に供給

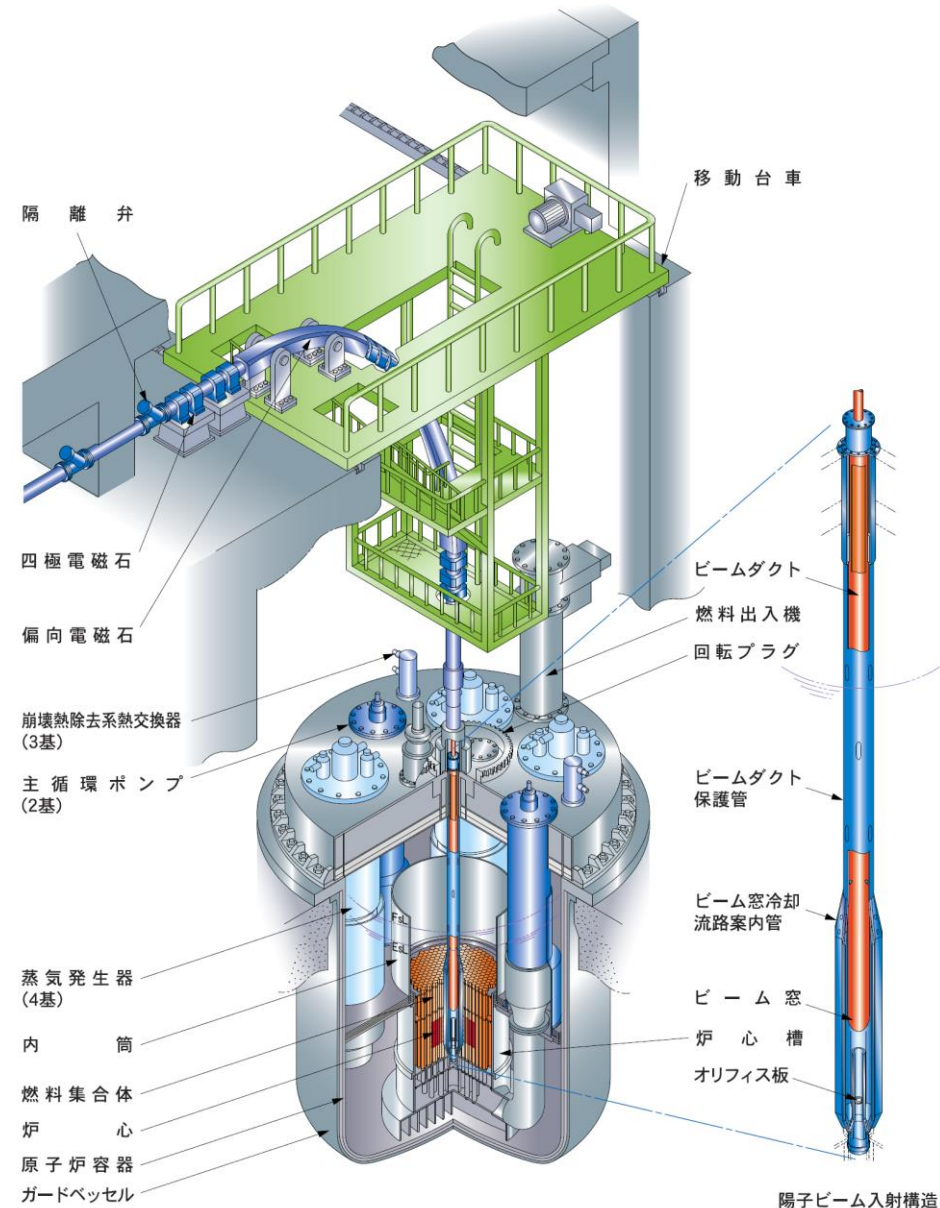
ADSの特徴

- ✓ 加速器を止めれば連鎖反応は停止
⇒安全性が高い
- ✓ MA濃度の高い燃料が使用可能.
⇒1基で軽水炉10基から出たMAを核変換可能
- ✓ Pb-Biは化学的に不活性

出典：原子力委員会研究開発専門部会分離変換技術検討会第5回資料第5-5-1号
日本原子力研究開発機構における核変換技術に関する研究開発の現状について - 階層型 - (2008.12.19)

ADSの仕様概略

- 陽子ビーム : 1.5GeV
- 核破砕ターゲット : Pb-Bi
- 炉心冷却材 : Pb-Bi
- 最大 $k_{\text{eff}} = 0.97$
- 熱出力 : 800MWt
- MA初期装荷量 : 2.5t
- 燃料組成 :
(MA + Pu)窒化物 + ZrN
- 初期組成:
領域-1: Pu/HM=30.0%
領域-2: Pu/HM=48.5%
- 核変換率 :
10%MA / 年
- 燃料交換 ; 600EFPD, 1 バッチ



ADS階層型分離変換サイクル



新たな分離プロセスの開発

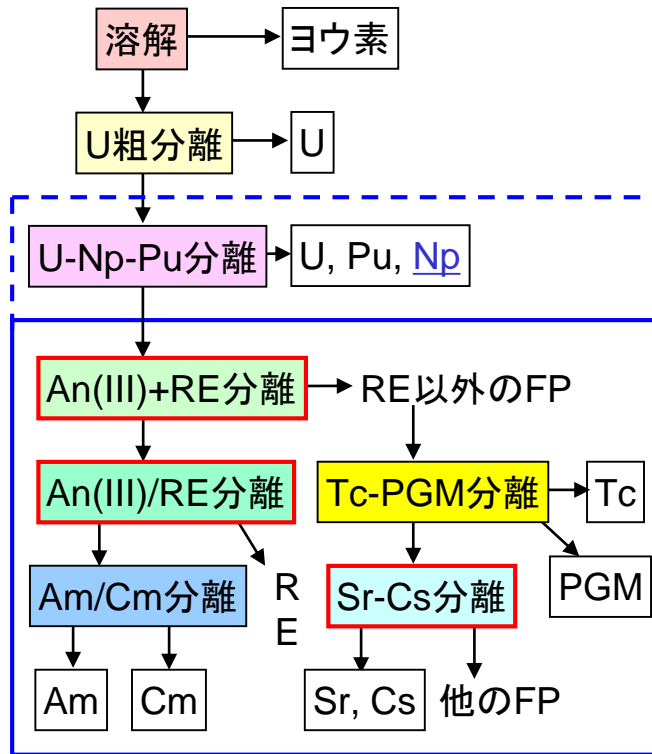


図 分離プロセスの一例

要素技術の組み合わせで様々な分離プロセスが構築される

マイナーアクチノイドMA=Am, Cm及びNp
→長寿命核種

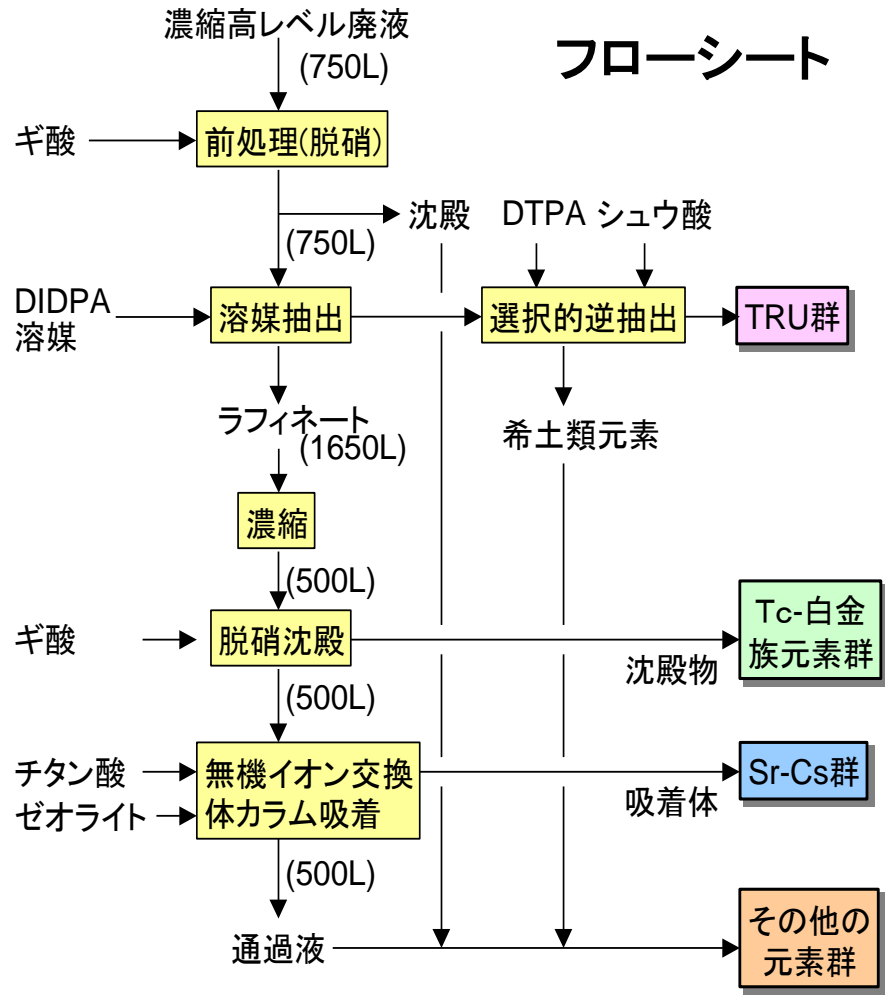
Sr-Cs→発熱性元素 (Cs-135 →長寿命核種)

PGM: 白金族元素 (Ru,Rh,Pd)
→有用元素

Tc-99→長寿命核種(また、貴重元素)



新たな分離プロセスの開発(4群群分離法)



- 4群に分離

- ① 超ウラン元素(TRU)群 (Npも対象)→核変換
- ② Tc-白金族元素群→有効利用(備蓄)、Tcは核変換
- ③ Sr-Cs群: 発熱性元素→分離による廃棄物減容
- ④ その他の元素群→高密度固化

- 濃縮高レベル廃液を対象とする

- 再処理(Purex)に影響を与えない

- 前処理: 脱硝法

硝酸濃度を約0.5M、Zrの除去。但し、沈殿が生成。

- NUCEFのホットセルに、実プラントの約1000分の1の規模の試験装置を整備。これを用いて、コールド試験、少量の実高レベル廃液を用いたホット試験を実施。

Am, Cm: 抽出率 >99.998%, 逆抽出率 99.98%

Np: 抽出率 98.2%, 逆抽出率 >99.93%

PGM沈殿率 >99%、Tc沈殿率 96.6%

Sr、Cs除染係数: 10^4 , 10^6

- 各分離フラクションの組成、プロセス規模、二次廃棄物発生量等を評価

カッコ内: 軽水炉使用済燃料(33,000MWd/t) 1tonより発生する高レベル廃液を処理する際の手扱液量(リットル)

- プロセス規模はPUREX法再処理の30~35%と推定

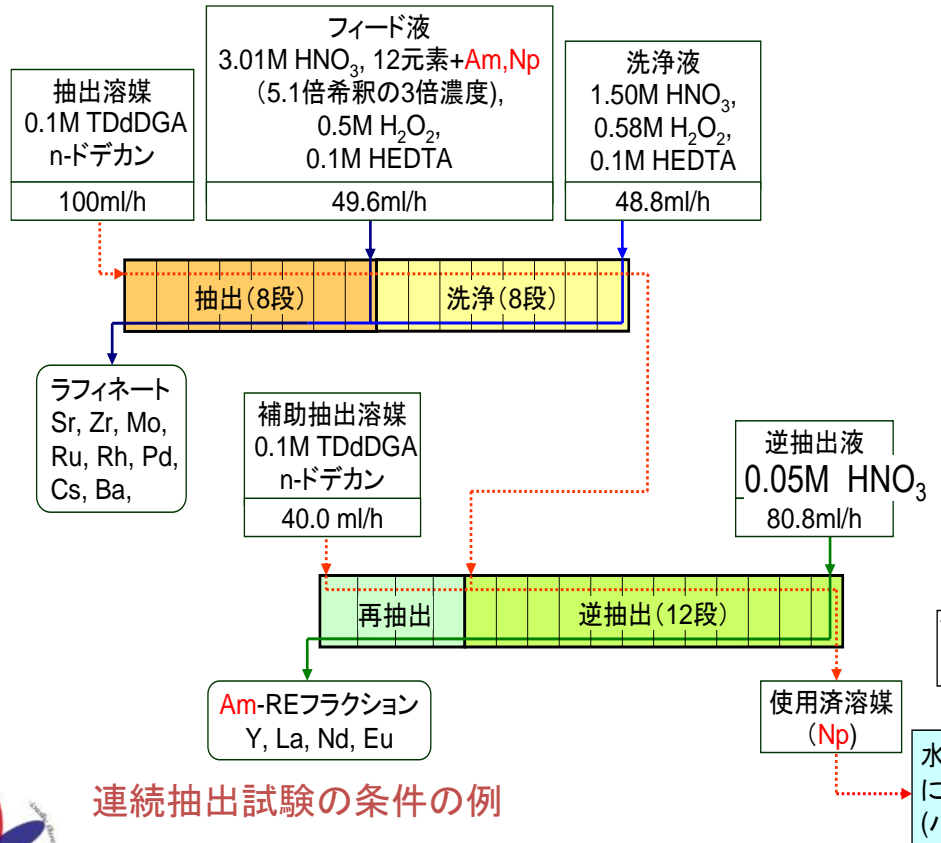
- 現在はより高性能な新規抽出剤の開発等を実施中



An(III)+RE一括回収プロセス

- 模擬液を用いたTDdDGAによる連続抽出試験を実施
 - ・抽出器の運転状態は良好
 - ・Am, Ndの抽出率・逆抽出率: ほぼ100%を達成
 - ・プロセス条件最適化、沈殿生成防止を検討
 - ・シミュレーション解析技術を開発

○次のステップは実液試験



連続抽出試験の条件の例



連続抽出試験の状況

元素	濃度(mM)	元素	濃度(mM)
Sr	2.48	Pd	11.56
Y	1.39	Cs	14.07
Zr	14.39	Ba	5.87
Mo	9.87	La	11.7
Ru	14.78	Nd	20.75
Rh	4.41	Eu	4.57
HNO ₃	3.0 M	Am, Np	7~8×10 ³ Bq/ml

※FBR燃料 (軸方向ブランケットを含む) 1tあたり2.1m³のHLLWが発生として計算

LLFPの核変換の検討

- 分離後のFP核種再利用法の検討
例) Cs-137の有効利用法
- 新しい分離法の検討
例) 新規抽出剤、新規抽出法、分離効率の向上・分析
- 同位体分離せずに核変換する方法の検討
例) Cs-134とCs-135,137
- 中性子以外の核変換方法の検討
例) 光子(γ 線、レーザー)、ミューオン、他
- RIBFの積極的利用
例) 逆運動学