

日本原子力研究所における
群分離・消滅処理の研究開発

第21回原子力バックエンド対策専門部会

1999年2月9日（火）

日本原子力研究所

はじめに

高レベル放射性廃棄物 (HLW) 中の各種元素を物理的、化学的性質に応じて群分離し、希少価値の高い元素を有効に利用したり、長寿命放射性核種のマイナーアクチノイド (MA: Np, Am, Cm) や Tc-99、I-129 等を非放射性核種や短寿命核種に核変換する事により長寿命放射性核種のインベントリーを減容して、長期的放射性リスクの低減及び地層処分の負担を軽減することが期待できる (図 1)。

1. 研究開発の経緯

原研における群分離研究は、1973 年頃から HLW を分離して長半減期放射性同位体を製造する技術の一環として開始した。消滅処理研究は 1974 年に着手し、MA は約 1 MeV 以上のエネルギーの高速中性子により核分裂する事に着目し、MA を燃料とする専焼高速炉の概念の検討を開始した。この過程で、発電用燃料サイクルと群分離・消滅処理サイクルを組み合わせた階層型核燃料サイクルの概念を創出した (図 2)。

さらに、MA は核破砕反応によっても消滅処理出来ることから、高エネルギー陽子による核破砕反応の解析に関する基礎的な研究を 1978 年頃から開始した。その基礎のもとに、大強度陽子加速器と核破砕ターゲット、MA 燃料装荷未臨界炉心を組み合わせた加速器駆動未臨界炉についての検討が進められた。

1988 年には、「群分離・消滅処理技術研究開発長期計画」(「オメガ計画」)が発足し、群分離・消滅処理研究は長期的開発課題として原子力委員会の下で進められることとなった。1989 年に、わが国の提案で OECD/NEA において群分離・消滅処理情報交換計画が発足した。

原研では、1990 年 10 月～1992 年 3 月に群分離・消滅処理研究計画特別チームが組織され、オメガ計画に関する総合的研究開発計画の立案や所内関連分野間の調整を行った。さらに、1998 年には中性子利用による基礎科学の革新的な進展と加速器駆動消滅処理技術の開発を目指した「中性子科学研究計画」が開始された。大強度陽子加速器の開発はこの計画における主要開発課題として、また、群分離・消滅処理研究開発は中性子利用研究の一環として行うこととなった。

2. 研究開発の内容と成果の概要

群分離・消滅処理(P-T)研究の目的は、HLW 中の長寿命核種のインベントリー減容に

よる、HLW最終処分に伴う長期的放射性リスクの低減及び地層処分の負担を軽減することである。そのため、対象核種としては、MA(Np, Am, Cm)及びTC-99とI-129を長寿命、放射性毒性、地層処分の負担軽減、工学的実現性等を考慮して選定した。

原研における群分離・消滅処理の研究は、発電炉燃料サイクルと群分離・消滅処理サイクルの2層からなる階層型核燃料サイクル概念(図2)を創生し、その概念達成に向けて群分離技術と消滅処理システム技術の研究開発が調和を持って進められてきた。この概念の特徴は、MA消滅処理が発電炉サイクルに負担を与えないように発電炉サイクルから独立していることである。そのためMAを小規模なP-Tサイクルに閉じこめて徹底した消滅処理を行うことが可能である。長寿命核種を99.9%以上分離回収するための湿式群分離法と、高エネルギー中性子を用いた専焼炉及び加速器駆動未臨界炉の開発を目標に研究開発を進めてきた。

群分離技術の研究開発では、1985年からは高レベル廃液中の元素を4群、即ち、超ウラン元素群、Tc-白金族元素群、Sr-Cs群、及びその他の元素群に群分離するプロセスの開発を進めてきた。プロセスの構築に当たっては、連続的な操作で高い分離度を得られること、ステンレス製の機器の使用を可能とすることで再処理プラントの施設を併用することもでき経済的であること、火災や爆発の危険がないこと、二次廃棄物の発生をできるだけ少なくすることなどを重点に考え、原研独自の群分離プロセスを開発した。これまでに実施してきた模擬高レベル廃液に少量の超ウラン元素を添加した溶液を用いたプロセスの試験では、群分離の最重点とする超ウラン元素を99.95%以上の回収率で分離できることを明らかにした。今後の課題は、実際の高レベル廃液を用いた4群群分離プロセスの試験により、高い回収率を実証することである。なお、群分離後の固化体の発生量について評価し、高レベル廃液を一括してガラス固化体にする場合に比べて約3分の1に減容できることを明らかにした。

専焼高速炉では、燃料の主成分がMAであること、MA発生を抑えるためにはU-238を使えないこと、さらに、炉心の中性子エネルギースペクトルが非常に硬いこと、により体系の実効遅発中性子割合が小さくなることが明かとなった。一方、加速器駆動未臨界炉では臨界超過になりにくいこと、また、燃料組成の自由度が大きいこと等、廃棄物処理システムとして優れた特性を有している。そこで、加速器駆動未臨界炉を消滅処理システムの第1候補として、専焼高速炉はバックアップとして研究開発を進めることとした。ただし、体系が臨界か未臨界かの違いはあるものの、原子炉技術としては共通する部分が多い。

専焼高速炉や加速器駆動炉の成立性は燃料の成立性に大きく依存している。原研の概念では、MAを主成分とする燃料を用いるため、AmとNpとの相互溶解度が低い金属燃料

よりも、AmN と NpN とが相互に固溶する窒化物燃料がより適している。その他、窒化物は熱特性が良い、高速炉環境での化学的安定性に優れるなどの特長を有している。これらのことから、MA 窒化物燃料を用いる炉概念を標準とした。また、高濃度で MA を扱いつつ経済性を確保するために、コンパクトな高温化学再処理法（乾式再処理法）の適用を検討し、窒化物燃料／高温化学再処理概念の成立性について実験・解析を進めてきた。

加速器駆動未臨界炉に必要な大強度陽子加速器に関しては、加速器の性能要件などについて検討を進めるとともに、超伝導陽子加速器の要素技術の開発をオメガ計画の下で行ってきた。1996 年からは、加速器開発は中性子科学研究計画の下で行うことになった。なお、中性子科学研究計画は、中性子散乱などの基礎研究に必要な大強度中性子源として、世界最大の 5 MW 核破砕中性子源（大電流陽子加速器と重金属核破砕ターゲットで構成される）を開発する計画である。

MA 核種のデータベース整備は、高速炉臨界実験装置（FCA）を用いたアクチノイド核反応断面積データ積分実験、高エネルギー物理学研究所（現 高エネルギー加速器研究機構）施設利用による核破砕積分実験、高崎研陽子ビームを使った核破砕中性子スペクトル測定を行ってきた。また、核データや燃料物性データ測定のために、1988 年以来、米国オークリッジ国立研究所と研究サービス協定を締結し、原研からも研究員を派遣して実験を行ってきた。

専焼高速炉や加速器駆動炉の核設計データベースとしては、1994 年 6 月に公開した JENDL-3.2 が基本データファイルである。現在、新規に評価が必要な核種として 35 のアクチノイド核種を追加し、JENDL アクチノイドファイルとして、2000 年公開を目途に整備を進めている。これには、ISTC プロジェクトのもとに行われている、Am、Cm、Np 等に関する測定データとその評価データが取り込まれる予定である。また、加速器駆動炉の設計に必要な高エネルギーファイルは、50 MeV までは 1998 年中に、3 GeV までは 1999 年度から順次公開を予定している。

2.1 高レベル廃液の群分離の研究開発

群分離に関する研究開発では、1984 年までに、最大水中許容濃度を基準にした高レベル廃棄物の潜在的毒性評価に基づき、高レベル廃液中の元素を 3 群、すなわち、超ウラン元素群、ストロンチウム－セシウム群及びその他の元素群に分離する方法を開発した。1981 年～1983 年には、新規抽出剤ジイソデシルリン酸（DIDPA）を用いた抽出分離を柱とした一連のプロセスについて、実際の高レベル廃液を使用した試験を行い、アメリカウムやキュリウムが 99.99% 以上回収できることを含めた 3 群群分離プロセスの有効性を実証した。また、群分離を適用した際の高レベル廃棄物の処理処分についての評

価を行い、高レベル廃液の全量を一括してガラス固化体とする場合に比べて、半分程度の減容が可能となることを明らかにした。

さらに、1985年には、高レベル廃棄物の潜在的毒性（年摂取限度基準）及び地層処分に伴う環境影響等の観点から、高レベル廃棄物中の元素の内でも特にネプツニウム及びテクネチウムの分離を重点とした4群（超ウラン元素群、テクネチウム－白金族元素群、ストロンチウム－セシウム群、その他の元素群）群分離プロセスの開発に着手した。

1990年には、超ウラン元素の内でも最も分離が困難とされる5価のネプツニウムの99.95%以上が、4価のネプツニウムとして分離できることを示した。これにより、高レベル廃液に含まれる全ての超ウラン元素を、DIDPAにより極めて高い回収率で一括分離できるとの見通しを得た（表1）。

これと並行して、より経済性が高いと考えられるシュウ酸塩沈殿法についても研究した。その結果、アスコルビン酸を共存させることにより、ネプツニウムを含む超ウラン元素を沈殿分離できることを明らかにした。しかし、この方法では、10%程度のストロンチウムの共沈が避けられないことがわかった。

高レベル廃液からのアメリシウム、キュリウムの分離では、これまでに開発されてきたいかなる抽出剤を用いても、希土類元素が同時に抽出される。このため、1990年からは、DIDPAに抽出された希土類元素とアメリシウム、キュリウムとを水相に逆抽出する段階で相互に分離する方法について研究を進めた。水相に錯形成剤であるジエチレントリアミン5酢酸（DTPA）を用いることにより、アメリシウム、キュリウムが希土類元素よりも優先的に逆抽出されることを明らかにした。また、ミキサ－セトラを用いた連続的な分離試験の結果、99.995%のアメリシウム及びキュリウムを回収する条件で、希土類元素の1.1%が混入する程度まで分離が可能であるとの見通しを得た。

これらの成果を受けて、1993年には、超ウラン元素群にDIDPA抽出法を、テクネチウム－白金族元素群に脱硝沈殿法または活性炭吸着法を、ストロンチウム－セシウム群に無機イオン交換体吸着法をそれぞれ使用する4群群分離プロセスを構築した（図3）。4群群分離プロセスを高レベル廃液の処理に適用した場合の廃棄物の発生量について評価し、高レベル廃液の善良を一括してガラス固化体とする場合に比べて、3分の1に減容されることを明らかにした（表2）。

さらに、高レベル廃液を用いた試験を行うため、1994年4月にはNUCEF（燃料サイクル安全工学研究施設）内に群分離試験施設を完成させた。現在は、本施設での模擬高レベル廃液による試験を終了し、実廃液試験を進めている。

2.2 消滅処理技術の研究開発

2.2.1 炉物理・物性

(1) 核データの整備

1) JENDL データファイルの整備

1994 年 6 月に完成し、公開した JENDL-3.2 には、 10^4 eV $\sim$ 20 MeV エネルギー範囲における中性子入射反応データが 340 核種について格納されている。これには、54 のアクチノイド核種が評価され収納されている。さらに、35 核種を追加した JENDL アクチノイドファイルの整備を進めている。このため、評価手法の高精度化を行うとともに、ISTC プロジェクトの成果も適時取り込んでいる。一方、加速器駆動炉の設計に必要な JENDL 高エネルギーファイルの整備も、122 核種の中性子及び陽子入射反応について、1999 年度からの順次公開を目標に進めている。

2) MA 核種核データの測定

MA 核種の実験データは試料入手や取扱いの困難さのため不十分である。核データや燃料物性データ測定のために 1988 年に、米国オークリッジ国立研究所 (ORNL) と研究サービス協定を締結し、毎年、原研からも研究員を派遣して実験を行っている。核データに関しては、これまでに、MA 核種の即発中性子、遅発中性子発生割合等の測定データを得た。

ISTC プロジェクトによる国際協力のもとに、Pu-238、Am-242 及び Cm-243 から Cm-248 の 0.1 から 7 MeV までの核分裂断面積の測定データ、また、Np-237 の核分裂収率、非弾性散乱断面積及び即発中性子スペクトル測定データを得ている。

3) 積分実験によるデータベースの信頼性評価

a) FCA 積分実験による MA 核データの評価

消滅処理の研究に用いる中性子断面積データの評価のために、高速炉臨界実験装置 (FCA) を用いた実験を 1979 年 $\sim$ 1981 年に行った。この実験では、種々の高純度の MA 分離同位体を試料として用い、系統的に中性子スペクトルを変化させて積分測定を行った。この積分データを用いて断面積データの評価を行い、さらに、原研が開発した手法を用いて断面積を修正し、信頼性の高い核データを得た。この実験に用いた試料は他では入手は不可能であり、20 g で 5 億円もする高価なものであったが、実験の重要性を認めた米国エネルギー省が無償貸与してくれた。

b) 英国高速原型炉 PFR 照射試料の分析

米国と英国が共同して英国高速原型炉 PFR において照射実験を行ったアクチノイド試料を、前述の ORNL との協定の下に入手した。プロトアクチニウムからキュリウムにわたるアクチノイド 21 核種の試料を最長 550 日間照射したものであり、原研分析センターおよび ORNL において分析中である。今後、結果の相互比較を通して、分析技術、核データ及び燃焼計算の検証に用いる。

c) 米国高速試験炉 FFTF における減速処理燃料照射実験の計画

MA を主成分とする燃料について、照射実験により燃料成立性を実証する必要がある。そのため、1991 年に高速試験炉 FFTF を用いた照射試験計画を米国ハンフォード研究所と検討した。当時、米国エネルギー省の方針で FFTF の閉鎖を前提に有効利用の途を検討中であり、その一環としてこの作業を行ったものである。しかしながら FFTF は 1992 年には運転停止となり、試験実施にはいたらなかった。

d) 高エネルギー陽子核破碎実験

高エネルギー領域における核データを整備し、核破碎反応計算コードの検証、精度向上を図るため、高エネルギー陽子ビームによる核破碎実験を行ってきた。1990 年より高エネルギー物理学研究所 (KEK、現 高エネルギー加速器研究機構) の 500 MeV 陽子ビームラインに鉛体系を設置し、核破碎基礎実験を実施し、反応率分布や核破碎生成物生成率など体系中の高速中性子輸送に関するデータを取得し、核破碎反応解析手法の信頼性を確認した。

一方、1993 年から、KEK のシンクロトロン陽子 (~ 1.5 GeV) を用いて、飛行時間法により炭素や鉛の中性子生成 2 重微分断面積を測定した。また、原研高崎研の 67 MeV 陽子ビーム (TIARA) を使って炭素や金からの放出中性子スペクトル測定を行った。

今後の技術的課題と計画としては、PFR 照射試料の分析・解析を継続する。核破碎ターゲットモックアップ実験を行う。ISTC プロジェクトの成果に基づいて、JENDL アクチノイドファイルの精度向上を図るとともに、重核の高エネルギー核分裂断面積及び核分裂生成物の収率データの取得を進める。JENDL 高エネルギーファイルの作成を引き続き進める。

(2) 燃料物性データの整備

TRU 合金系については、1991 年以来、米国オークリッジ国立研究所との研究協力として状態図の研究を進めた。Np-Zr 等の Np と第一遷移系列元素との合金系の相関係の概略を把握し、Np-Zr 合金燃料の挙動検討の基礎データを得た。また、Np-Am 系の測定

結果等を得て、アクチノイド元素相互の合金化挙動について系統的な理解を得た。

窒化物については、1993年に炭素熱還元法により NpN を調製し、U-Np-Pu-N 系が広い組成範囲で固溶体を形成することを確認した。これまでに、これら固溶体の熱物性データ（熱伝導度、蒸発挙動）を取得してきた。

熔融塩については1993年から熱物性研究体制を整備し、1996年には初めて熔融 UCl_3 の構造を決定し、アクチノイド-ランタニド-アルカリ金属塩化物混合系の物性シミュレーションに道を拓いた。さらに、1997年から Te 金属・合金の熱物性研究を開始した。

今後の技術的課題と計画としては、TRU 日米共研により、Am-Cd 合金等、高温化学再処理プロセス設計のための基礎データ取得を進める。また、WASTEP での窒化物調製・高温安定性試験（ AmO_2 原料の炭素熱還元法による AmN）を推進し、TRU 窒化物燃料照射試験計画につなげる。さらに、NUCEF に高純度不活性雰囲気・鉄セル（「アメリカウム高温化学セル」）を設置し、TRU 熔融塩系及び Am（Cm）系物質の基礎研究体制を確立する。

2.2.2 消滅処理専焼炉

(1) 専焼高速炉の研究開発

1) 専焼高速炉の設計研究

使用済み燃料中の MA の主な核種はいずれも閾値核分裂核種であり、中性子エネルギーが約 700 keV の閾値以上になると核分裂する確率が大きくなる。このことに注目して、MA を高速中性子により核分裂させる消滅処理技術の研究開発を 1974 に着手した。

閾値以上のエネルギーの中性子が多い体系では MA のみで臨界体系を形成することが出来る。そのため、MA を燃料として燃焼させてしまう消滅処理専用の高速炉、即ち専焼高速炉の概念が成立する事を 1978 年に指摘した。この過程で、発電用燃料サイクルと群分離・消滅処理サイクルを組み合わせた階層型核燃料サイクルの概念を創出した。

1987 年には新型炉検討特別チームにおいて専焼高速炉の設計研究を行った。研究対象の一つは MA 合金燃料ナトリウム冷却専焼高速炉 (M-ABR) であり、もう一つは MA 窒化物粒子燃料ヘリウム冷却専焼高速炉 (P-ABR) である。図 4 に粒子燃料の概念を示す。

1990 年～1992 年に設置された群分離・消滅処理研究計画特別チームにおいては、専焼高速炉の安全性を検討した。安全性の観点からは、原子炉の制御性にとって重要な遅発中性子割合 β_{eff} と M-ABR におけるナトリウム・ボイド係数の改善に重点を置いた。特に後者に対する対策として、液体鉛を用いる専焼高速炉 L-ABR を設計し、負のボイド係数を持つ炉心概念を得た。

表 3 にこれら専焼高速炉 L-ABR および P-ABR の炉心設計パラメータを示す。図 5

にこれら専焼炉と酸化物燃料高速増殖炉の中性子スペクトルの比較を示した。

粒子燃料ヘリウム冷却専焼高速炉 (P-ABR) では、高出力密度を達成するために、粒子層内にヘリウムガスを直接流して冷却する設計を採用した。この集合体の熱流動特性を実証するため、流動実験を行い、圧力損失及び軸方向流量配分のデータを取得した。

今後の技術的課題と計画としては、専焼高速炉概念の具体化、詳細化を図り、消滅性能、技術的成立性、安全性及び経済性を含めた総合的な評価・検討を行う。専焼高速炉は、消滅処理システムの加速器駆動未臨界炉の第2候補として、研究開発を進める。

(2) 加速器駆動未臨界炉の研究開発

1) 加速器駆動未臨界炉の設計研究

1988年に加速器消滅処理プラントの構成、エネルギー収支、加速器規模等の検討に基づいて加速器消滅処理システム概念の基本的枠組みを定めた。核破砕核反応のみで消滅するシステムでは、数 100 mA の非常に大きなビーム電流が必要であるばかりでなく、プラント全体のエネルギー収支が負になる。このため、核破砕ターゲットの周囲を MA 未臨界炉心で取り囲み、未臨界炉心内の核分裂反応により MA を消滅処理する ハイブリッド型のシステムとした。未臨界炉心は専焼高速炉と同様に、MA を燃料の主成分とする高速中性子体系である。これによって、加速器ビーム電流を数 10 mA 程度に減少し、また加速器電力を自給できるようにした。

MA 金属燃料を用いるシステムでは、陽子ビームを水平に入射する構成の概念について 1990 年から検討を開始し、ターゲット及び未臨界炉心の基本的な核熱特性を解析した。MA ターゲットとタングステン ターゲット、ナトリウム冷却と鉛・ビスマス冷却などを比較し、消滅能力の点からタングステントargetとナトリウム冷却の組合わせが、正のボイド反応度低減の点からは鉛・ビスマス冷却が優れていることが分かった。1991 年に、システム構成の再検討を行い、主としてビーム入射窓やターゲットなどの交換性の観点から、陽子ビームを垂直下向きに入射する構成に変更した。1992 年始めに、この構成のシステム概念 (図 6) の構築をほぼ終了した。現在は、熱特性に優れた酸化物燃料を採用したシステム概念の検討を進めている。このシステムの性能及び主要パラメータを表 4 に示す。

1992 年には、溶融塩システムの概念検討を行った。従来研究された溶融塩炉はフッ化物を用いる熱中性子システムであったが、ここでは MA 溶解度が大きいと考えられる塩化物を用いる高速中性子システムとした。溶融塩は、燃料、ターゲット物質、冷却材を兼ねるので炉心構成が非常に単純にでき、またオンラインで連続的に燃料添加や反応生成物除去が可能になる。また、1993 年には、非常に高い消滅率の達成を狙って、アクチノイド合金 (MA-Pu-Co-Ce-Tc) 融体を用いるシステムの検討も行った。

今後の技術的課題と計画としては、陽子ビーム入射系まわりの検討、他のシステムと

の比較・評価等の検討を行って、システム概念の具体化、詳細化を行ない、システム概念設計に進む。また、中性子科学計画の消滅処理実験施設の設計・開発を行う。

2) 加速器駆動未臨界炉設計コードの開発

加速器消滅処理の設計研究には、これまでの原子炉とは異なり、数 GeV から 10 数 MeV の領域における高エネルギー核反応・カスケード過程の取扱いが重要である。原研では、1975 年頃より高エネルギー核反応・核子中間子輸送コード NMTC/JAERI 等の開発や精度向上の研究を続けている。

1989 年から、高エネルギー陽子ビームによる核破碎積分実験を行うとともに、実験データに基づいてコードの性能評価や計算モデルの改善を行う研究を進めた。これまでの研究成果は、1997 年の最新版の NMTC/JAERI97 コードに集約されている。

1981 年には、加速器消滅処理システムの設計研究において、高エネルギー領域から低エネルギー領域までの一貫した計算ができるように、カスケードコードと中性子輸送コードを結合させたコードシステム ACCEL (ATRAS) を作成した。一方、1985 年には計算モデルや核データの評価を効率的に行うため、核内カスケード計算のみを行うコード NUCLEUS を開発した。

今後の技術的課題と計画としては、炉設計コード、空間依存動特性解析コードの開発整備及び設計データベースの整備を進める。

(3) 窒化物燃料サイクル技術の研究開発

窒化物／高温化学再処理法に基づく TRU 燃料サイクルの概念図を図 7 に示す。窒化物燃料の製造については、酸化物の炭素熱還元法によって窒化物を合成する粉末法を用いて、プルトニウム、ネプツニウムの高純度窒化物を得ることに成功した。また、窒化物燃料製造時のアルファ汚染廃棄物発生の問題を最小にする可能性のある方法として、マイクロウェーブにより原液 (アクチノイド硝酸塩+アンモニア・ドナー) を瞬時にゲル化する高周波誘電加熱ゲル化法の技術開発を行った。また、(酸化ウラン+炭素) ゲル球から高純度 UN 微小球を合成できることを実証した。

TRU 窒化物燃料の再処理については、ANL によって提案された金属燃料乾式再処理技術に着目し、その窒化物燃料への適用可能性について 1993 年から研究を開始した。窒化物はセラミックスに分類されてはいるが、見方によっては金属間化合物の一種であるため、金属燃料の溶融塩電解精製法を基礎にした窒化物燃料／高温化学再処理法の検討を進めてきた。

1994 年には UN の陽極溶解、金属ウランの陰極析出を確認し、1997～1998 年には PuN、NpN の溶融塩電解試験に成功した(図 8)。また、N-15 のリサイクル利用に関し、AmN の模擬物質としての NdN の溶解試験により、NdN 中の窒素の 90% 程度の放出を確認

した。しかし、一方で、UN については、陽極反応副生成物として UNCl が生成することを見だし、UN を含む混合窒化物燃料の溶解法の最適化については今後の課題となっている。また、NpN についても同様な複雑化要因が存在しないかどうか、今後の実験によって明らかにする必要がある。ただし、平成 9～10 年度に実施した、PuN、NpN 電解試験では UN の場合のような複雑な挙動は確認されていない。

また、窒化物燃料／高温化学再処理法の中の代替プロセスとして、窒化物を熔融塩に溶解した際に発生する窒素を金属リチウムでトラップし、そこで生成する Li_3N を熔融塩中に戻すことにより、アクチノイド窒化物を優先的に直接合成・分離するプロセス（"LINEX" プロセス）を考案し、併せて検討を進めている。

今後の技術的課題と計画としては、UN 粒子製造技術を NpN、PuN 系へ適用し、照射試験用燃料体製造に発展させるとともに、AmN の調製技術開発を本格化させる。さらに、燃料要素規模の照射試験による燃料の成立性の確認、及び MA 混合窒化物の熔融塩電解試験等を通じた窒化物燃料／高温化学再処理法の技術的成立性の確認を行う。また、より経済的な N-15 濃縮技術、熔融塩燃料に関する検討を進める。

(4) 大強度陽子加速器の開発

加速器駆動消滅処理システム研究の一環として、先ず、必要な加速器の性能、開発手順等の検討を進め、1991 年から加速器要素技術開発を開始した。当初、オメガ計画としては 1.5GeV、10mA 超伝導陽子加速器を開発目標としたが、現在では、中性子科学研究計画の下で、中性子散乱研究用大強度核破砕中性子源開発の一環として、1.5GeV、5.3mA の加速器を開発している。

大電流加速にとって最大の課題は良質のビーム発生である。低エネルギー部のビームの質の向上を図る目的で前段加速部（高輝度イオン源、高周波 4 重極リニアック (RFQ) 及びドリフトチューブリニアック (DTL)）の開発を行った。

高エネルギー加速部としては、経済性、安定性の面から将来技術として有望な超伝導を用いたリニアックを開発することとし、超伝導加速空洞の設計、試作、性能試験を行った。

高輝度イオン源、RFQ を用いた陽子ビーム加速試験では、エネルギー 2 MeV、ピーク電流 80 mA、デューティ 10% の世界第一級のビームが得られた。また、1/6 スケールの DTL ホットモデルの高負荷試験では、デューティ 20% の負荷試験に成功した。超伝導空洞の試作器による性能試験では、ヘリウム温度 2 K で世界最高の加速電界 44 MV/m を達成した。

また、加速器の概念設計では、電磁場・構造強度設計、ビーム軌道計算を行うための設計コードの整備、設計手法の確立、シミュレーション計算を実施し、加速器システム構成 (図 9) の最適化を進めた。

今後の計画は、連続モード（CW）運転の技術的確立を目的に、低エネルギー入射部のプロトタイプを製作し、ビーム加速試験を行う。また、超伝導空洞の開発では、クライオモジュールの試作・試験を通して設計・製作手法の確立を図る。それに引き続き、陽子加速器の製作・整備を行い、さらに、出力を増力する。

3. 技術的達成度と今後の課題

3.1 群分離プロセスの研究

(1) 技術的達成度

再処理によって発生する濃縮高レベル廃液を対象に、4群群分離プロセスを開発した。群分離の最重要課題である超ウラン元素群の分離では、高レベル廃液からの回収率の目標を定め、DIDPA を使用する抽出分離プロセスを、テクネチウム－白金族元素群の分離では脱硝沈殿法を、ストロンチウム－セシウム群の分離では無機イオン交換体カラム分離法をそれぞれ開発し、二次廃棄物の発生量の少ない、安全性や経済性に優れた原研独自の群分離プロセスを構築した。このプロセスについて、これまでは主に模擬廃液を用いた実験室レベルでの試験により、目的元素について十分に高い分離度が得られることを明らかにした。また、群分離プロセス全体を通しての物質フローを求め、製品の純度や固化体の量、廃棄物発生量などを推定した。

超ウラン元素群は消滅処理を行なうことで、高レベル廃棄物の超長期にわたる潜在的毒性を大幅に低減出来ることになる。また、発熱の大部分を占めるストロンチウム－セシウム群は吸着分離に使用した無機イオン交換体を直接高温で処理することにより、ガラス固化体よりもはるかに耐熱性や難溶性に優れた固化体にすることが出来、その体積も群分離をしない場合の全量ガラス固化体の約 10% にすぎないことを明らかにした。その他の元素群は、発熱も少ないことから、全量ガラス固化体の約 5 分の 1 に減容することが出来、長期貯蔵をすることなく、地層への直接処分が期待出来ることになる。また、群分離後各群の固化体総量は、全量ガラス固化体の場合の約 3 分の 1 程度であり、群分離によって大幅な減容化が期待できることになる。群分離によって発生する二次廃棄物の固化体体積は、再処理で発生する量の約 5 分の 1 で、しかも、アルファ放射能濃度は 1 GBq/ton 以下にできるものと考えられる。

(2) 今後の課題

当面（今後 5 年間程度）の課題としては、4群群分離プロセスに関する実廃液試験、化学工学的要素技術開発、群分離プロセスの解析評価に関する研究、より効率的な希土類元素からの超ウラン元素の分離法開発などのプロセスの高度化研究及び資源化に関する研究がある。

更に、当面の課題以外に実用化するまでには、ストロンチウム－セシウム群の処理処分技術の開発、アルファ廃棄物の処理処分と群分離技術との係りなどの検討などが必要である。

3.2 消滅処理システム技術開発の研究

3.2.1 消滅処理システムの研究

(1) 技術的達成度

消滅の高効率化のために、MAの直接核分裂を目指した硬いスペクトルを有する消滅処理専用システムとして、専焼高速炉 (ABR) と加速器駆動未臨界炉 (ADS) の2つの炉型を提案し、P-T サイクル MA 処理割合 99.5% 及び現行軽水炉 10 基分以上の MA 処理能力を設計目標とした。ABR 及び ADS の炉設計を実施し、この目標値を満足する炉心概念を得た。その主な性能は、MA 消滅量 (kg/GWt/y) が ABR: 250 kg、ADS: 354 ~ 366 kg、サポートファクターが 10~14 基 (33 GWd/t 燃焼 PWR、5 年冷却時の MA 量)、正味消滅率 ((消滅量-漏れ量)/消滅量) が ~99.5% である。Tc-99 と I-129 の消滅については、ADS の反射体領域に Tc 金属と NaI 化合物を挿入して検討した結果、消滅量は Tc-99 が 44kg、I-129 が 6 kg であり、これらは現行軽水炉年間当たりの生成量の約 1.8 と 1.2 基分に相当する。

専焼高速炉及び加速器駆動炉は MA 体系が臨界か未臨界かの違いはあるものの、原子炉技術としては共通する部分が多いので、当分の間、並行して開発を進め、陽子加速器の大電流化の工学的見通しが得られた段階で何れか一方を選択することとする。

加速器駆動システムの冷却方式に関して、これまでの高速炉開発における経験が豊富なナトリウム冷却を第一候補としているが、ボイド係数、ナトリウム火災を考慮して鉛・ビスマス冷却についても検討を進めている。ヨーロッパや米国における検討では鉛・ビスマス冷却方式が主流となっている。今後、ロシアにおける経験や、ISTC の下での実験によりデータを蓄積し、この方式の採否についての判断を下さなければならない。一方、I-129、Tc-99 の消滅処理について検討は不十分であり、ターゲット材料の選択も含め今後検討が必要である。

これらの設計研究に必要な核設計データベースとして、JENDL-アクチニドファイル (89 核種) 及び高エネルギー核データファイル (122 核種) の整備及び高エネルギー核子・中間子輸送コード NMTC/JAERI、ADS 設計コード ATRAS、ABR 設計コード ABC-SC、ABR 動特性コード、群定数ライブラリー等の開発・整備を行った。

(2) 今後の課題

ADS について冷却材 (Na/Pb-Bi) の選択及び多様な (MA, LLFP) 組成燃料への最

適な適応炉心の検討、核設計データベースの～層の充実等を行って、炉概念設計を継続するとともに、ADS システム特有の技術課題であるビーム窓の材料開発・設計、ターゲット特性実験及びゼロ出力加速器駆動炉運転特性実験を行う。また、消滅処理実験施設を建設し、運転制御システムの炉工学技術の開発及び実証を実施する。

3.2.2 燃料/燃料サイクル技術開発

(1) 技術的達成度

TRU 混合窒化物系の熱物性データの整備を進め、窒化物燃料技術の基盤を形成した。また、UN、PuN、NpN の熔融塩電解試験等により、窒化物高温化学再処理概念の成立性について初期的な見通しを得た。さらに、AmN、CmN の調製試験についての準備をほぼ完了した。合金については、アクチノイド相互の合金化挙動予測が可能となった。これらの技術開発の成果により、消滅処理専用システム及び関連する燃料サイクルの技術的見通しが得られた。窒化物燃料・燃料サイクル技術及び窒化物・合金基礎物性データは、消滅処理研究開発の他、先進的核燃料リサイクル技術開発にも応用可能である。

(2) 今後の課題

N-15 のより経済的な濃縮法及び回収技術の開発、AmN、CmN の調製試験、MA 燃料サンプル試作及び照射実験、MA 窒化物燃料の電解精製試験を行うとともに、燃料ビン照射、再加工技術開発、廃塩処理技術開発等を実施して技術的成立性を実証する。また、WASTEF の利用拡大、NUCEF 不活性雰囲気気鉄セル設置により、MA の高温化学研究体制を確立する。

3.2.3 陽子加速器開発

(1) 技術的達成度

1000 MWt-ADS のシステム概念検討の結果、必要な陽子加速器の性能は陽子エネルギーが約 1 GeV、電流が 20～40 mA となった。これは既存の加速器の 20～40 倍の大電流加速器である。ADS 開発のためには、このような大電流陽子加速器の技術的可能性及び陽子加速器を用いたハイブリッドシステムの実験的研究が必要となる。

これまでにインジェクター部（イオン源、高周波四重極リニアック (RFQ)、ドリフトチューブリニアック (DTL)）の要素技術開発では、パルスモード試験により目標値を上回る性能を実証し、大電流化の見通しを得た。また、超伝導空洞の開発では目標値を大幅に超える表面加速電場強度を実現し、超伝導加速技術開発に対する見通しを得た。

(2) 今後の課題

ビームロス低減、大電流化、連続ビーム化等を図り、技術的確立を目的に、低エネルギー入射部のプロトタイプを製作し、ビーム加速試験を行う。また、超伝導空洞の開発では、クライオモジュールの試作・試験を通して設計・製作手法の確立を図る。それに引き続き、陽子加速器の製作・整備を行い、さらに、出力を増力する。

以上のまとめとして、群分離・消滅処理システムの技術的達成状況及び実用化までのステップを表5に示す。

表 1 群分離対象元素の分離回収目標値及び実験値

対象元素		目標値	実験値
超ウラン元素	Np	99.5 %	> 99.95 %
	Pu	99.9 %	> 99.9 %
	Am	99.99 %	> 99.99 %
	Cm	99.9 %	> 99.99 %
Tc		99 %	> 99 %
Sr & Cs		99.9 %	> 99.9 %

表 2 4 群群分離後の固化体発生量
使用済燃料 (33 GWd/t) 1 トン当り

群	主な核種又は元素	固化形態	体積 (L)
超ウラン元素群	Np-237, Am-241	酸化物	0.09
テクネチウムー白金族元素群	Tc-99, Ru, Rh, Pd	金 属	0.39
ストロンチウムーセシウム群	Sr-90, Cs-137	無機イオン交換体ーか焼体	14
その他の元素群	Zr, Mo, Fe, 希土類元素	ガラス固化体 (酸化物含有率 30 %)	31
4 群固化体総量			46
群分離をしない場合のガラス固化体量			150

表 3 専焼高速炉設計諸元

	L-ABR ¹⁾	P-ABR ²⁾
燃料型式 組成	ピンバンドル ($^{64}\text{NbAmCm}-36\text{U}^{3)}$) $_{1.0}\text{H}^{4)}$ $_{1.0}$	被覆粒子 ($^{65}\text{NbAmCm}-35\text{U}^{3)}$) $_{1.0}\text{H}^{4)}$ $_{1.0}$
MA 初期装荷量, kg	918	2870
MA/U	588/330	1865/1005
炉出力, Mth	180	1200
冷却材	Lead	Helium
中性子束 10^{15} n/cm ² /sec	3.1	6.6
炉心平均中性子エネルギー, keV	700	700
反応度 (% $\Delta k/k$)		
冷却材ボイド反応度/炉心	-1.3	
ドップラー反応度/炉心 ($\Delta t=300^\circ\text{C}$)	-0.01	-0.01
動特性パラメータ		
β_{eff}	2.6×10^{-3}	2.6×10^{-3}
L_p sec	1.3×10^{-7}	1.5×10^{-7}
サイクル長さ, fpd	550	300
MA 燃焼度, %/cycle	11	13

1) L-ABR: MA 窒化物燃料鉛冷却専焼炉

2) P-ABR: MA 粒子燃料ヘリウム冷却専焼炉

3) 90% 濃縮ウラン

4) H-15 濃縮

表4 消滅処理炉における消滅性能比較

	加速器駆動炉	専焼炉	高速増殖炉
燃料物質	窒化物	窒化物	混合酸化物
燃料形態	焼結ペレット	被覆粒子	焼結ペレット
冷却材	鉛・ビスマス	ヘリウム	ナトリウム
熱出力 (MWt)	820	1200	2600
サイクル長 ¹⁾ (EFPD)	600	300	1368
炉心平均高速中性子束 ($\times 10^{15}$ n/cm ² ·s)	3.6	5.9	4.1
MA/LLFP 装荷量 (kg)	2568 / 1000	1865	1450 ²⁾
MA/LLFP 消滅量 (kg / 1GW·年)	305 / 49	292	41

1) 実効的な燃料照射時間

2) 燃料中のMA割合: 5%

MA = Np, Am, Cm

LLFP = Te-99, I-129

表5 技術的達成度と実用化までのステップ

	達成状況	概念実証 2010年	技術 / 工学実証 2020年	実用化 2030年
群分離	4群群分離法開発 Am、Cm: 99.99%、Np: 99.9% 以上 分離・回収	MUCEFでの実廃液試験 模擬高レベル廃液試験 群分離プロセス高度化	パイロットプラント建設・運転	プラント実用化
消滅処理システム技術 概念検討	ABR及びADSの炉設計 アクチノイド及び高エネルギー核デ ータの整備 炉設計コードの開発	Na/Pb-Bi 冷却材の選定 多様な MA、LLFP 適応最適炉心設計 未臨界炉の安全性の検討 核データ及び設計コードの精度向上	実用炉概念設計	実用炉
システム技術	実験炉概念検討 ビーム窓予備設計 ターゲット予備設計	実験炉概念設計 ターゲット特性実験	実験炉 運転・制御の実証 システム炉工学技術の実証	
燃料・燃料サイクル	MA 窒化物燃料選定 UO ₂ 、PuO ₂ 電解試験 燃料サイクル概念構築 物性データベース整備	AmO ₂ 、CmO ₂ 調製試験 MA 窒化物燃料サンプル試作・照射 MA 窒化物燃料電解精製 データベースの拡充	MA 窒化物燃料ピン照射 健全性実証 電解精製技術の実証 燃料再加工技術開発 廃塩処理技術開発	実用燃料開発
材料・構造	ビーム窓材料調査	材料照射実験 材料・構造データベース整備	材料選定 健全性実証	
加速器	入射系主要コンポーネント開発 超伝導空洞開発	ビームロス低減化 大電流化、CW 化 1.5 MW 加速器 8 MW 加速器	信頼性向上 実証加速器(～20MW)	実用加速器(～40MW)

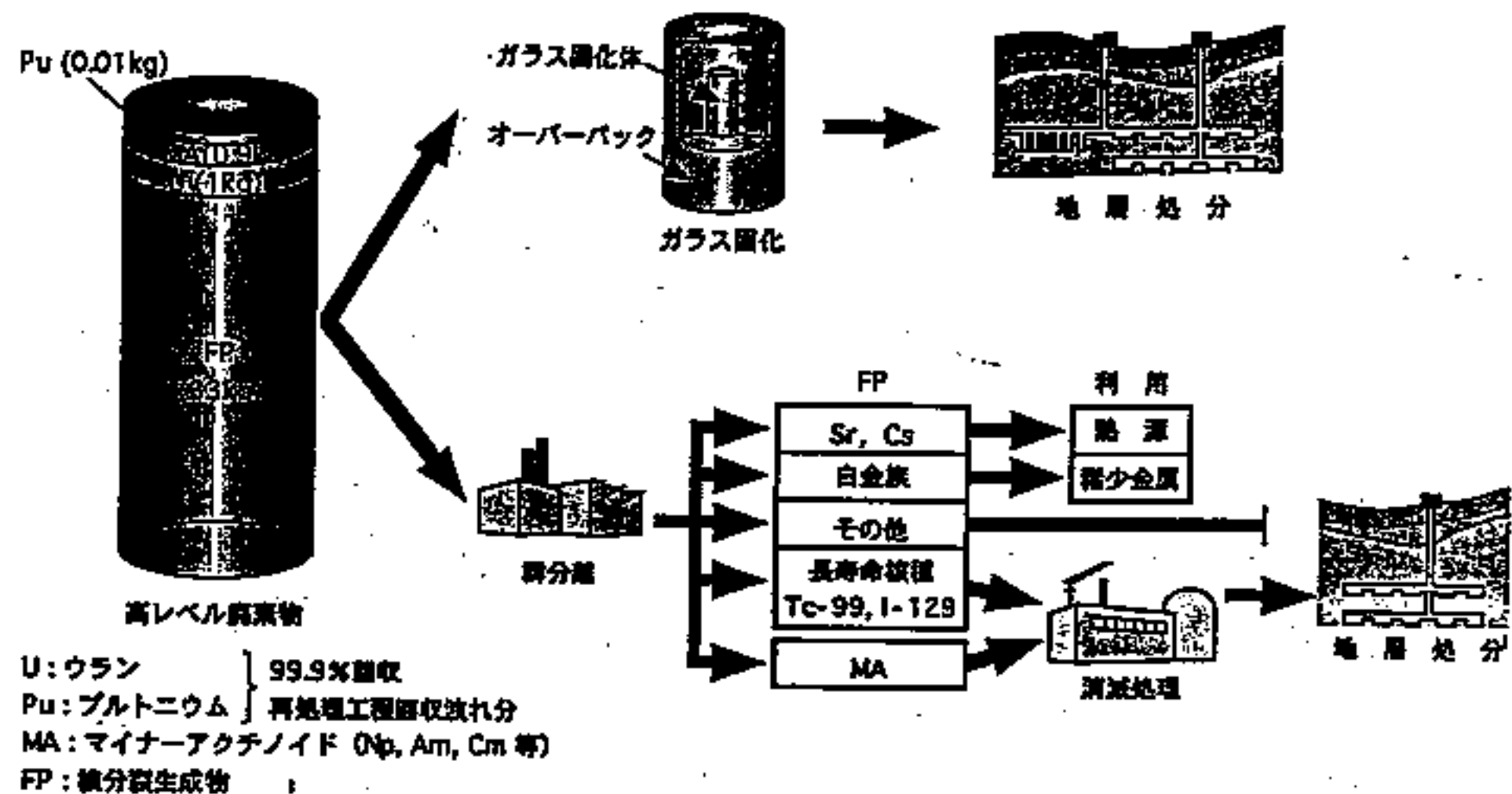
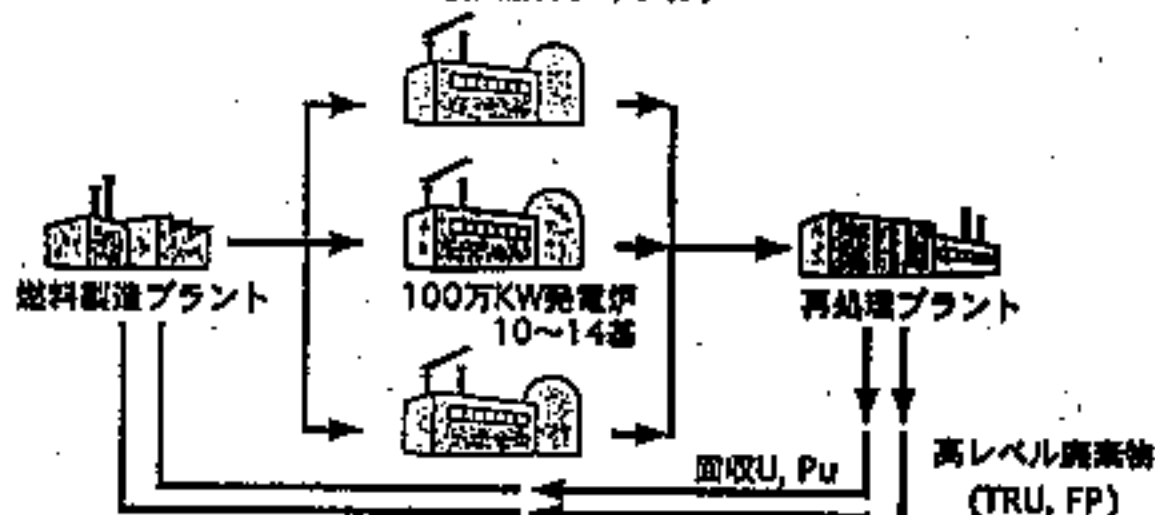
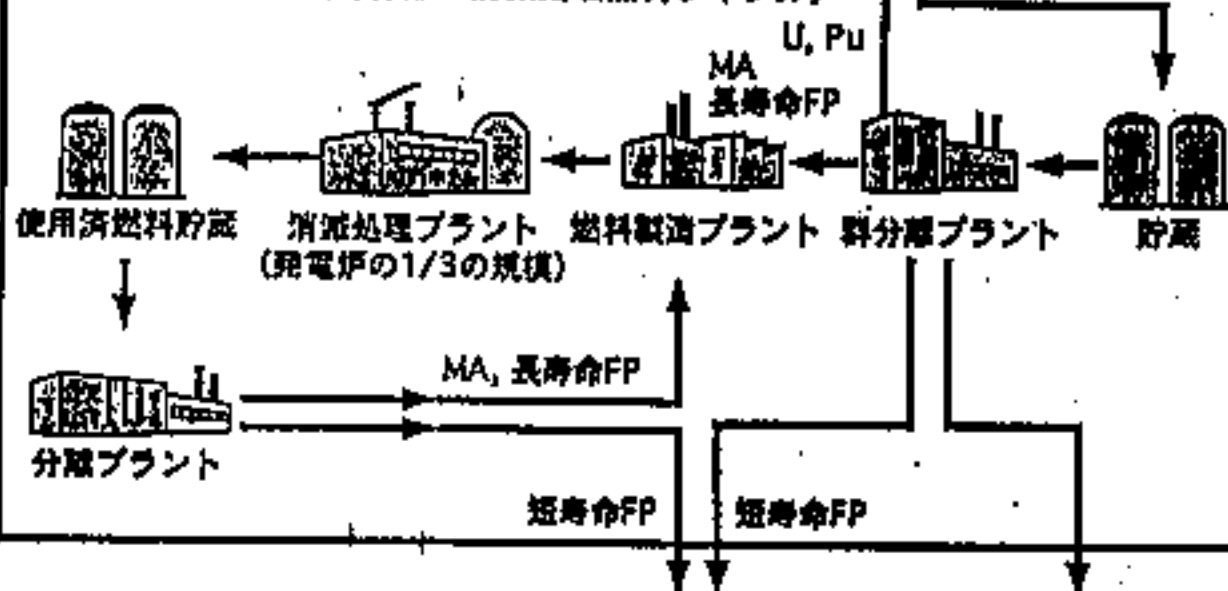


図1 高レベル放射性廃棄物処理処分の方法
群分離・消滅処理と地層処分の比較

第一燃料サイクル（商用発電炉燃料サイクル）



第二燃料サイクル（群分離・減速処理燃料サイクル）



TRU : 超ウラン元素
FP : 核分裂生成物
MA : マイナー・アクチノイド



最終処分場

電力利用

図2 階層核燃料サイクル概念図

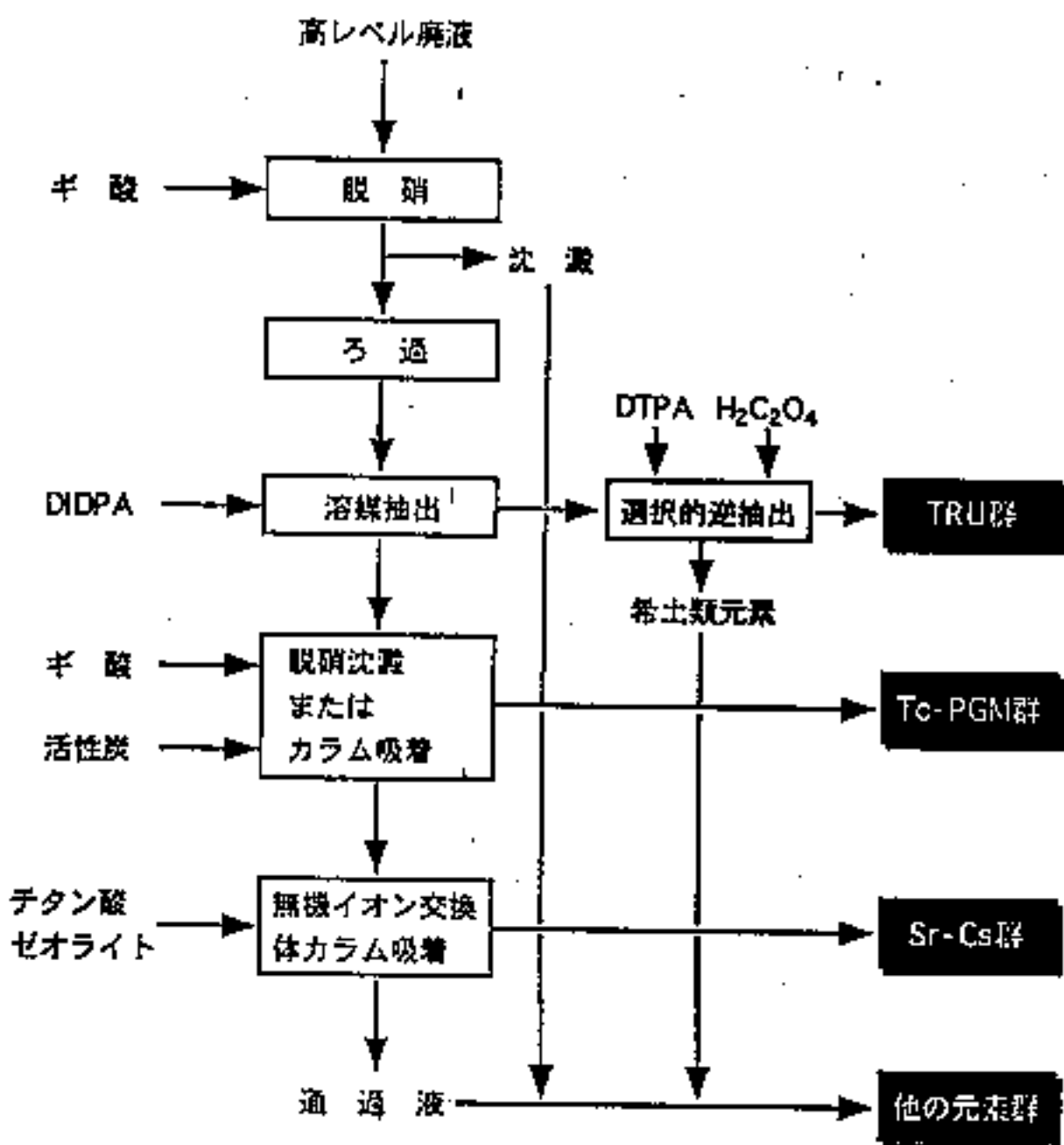


図3 原研で開発中の4群群分離プロセス

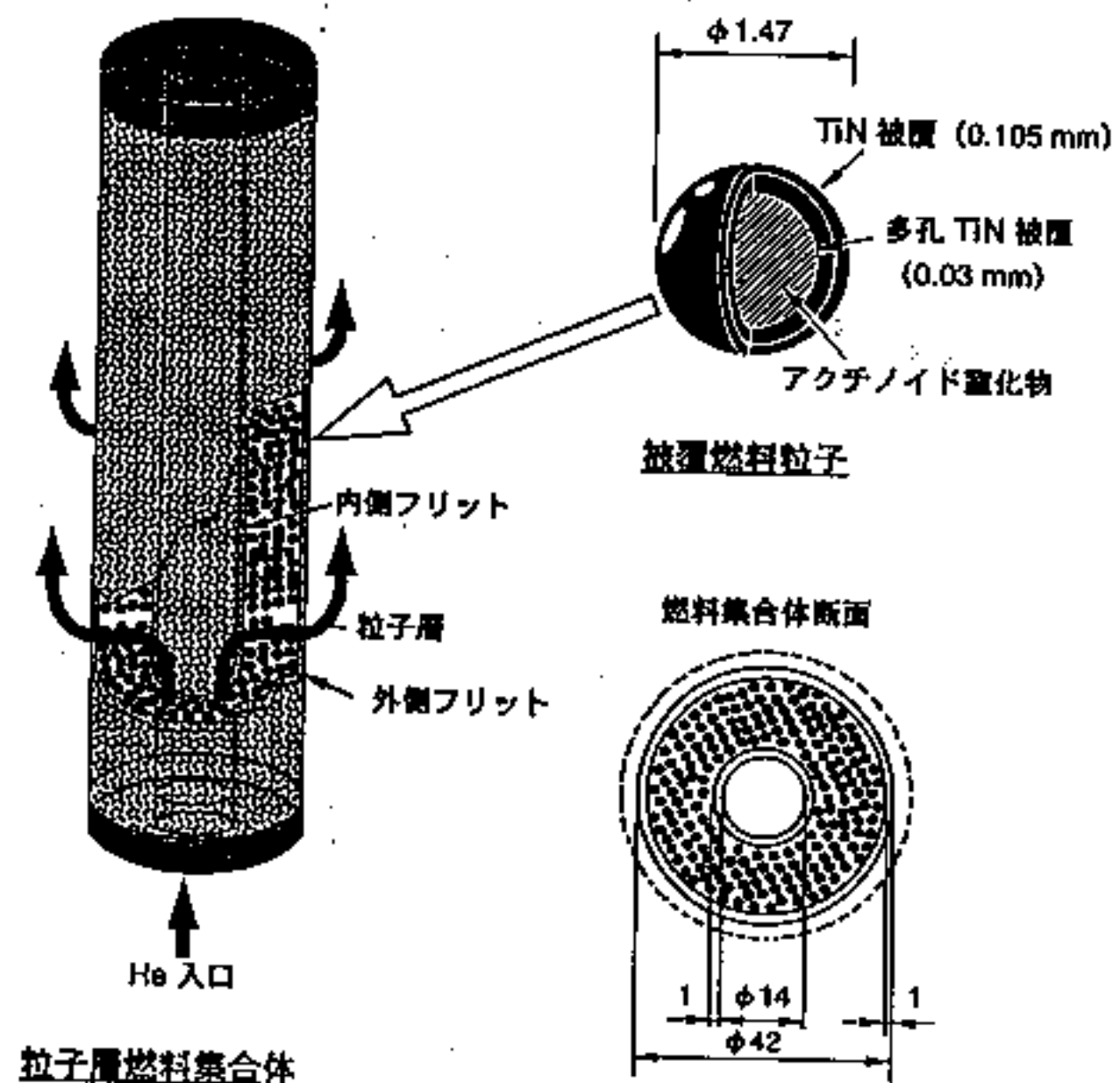


図4 粒子燃料型専焼炉の被覆粒子燃料と粒子層燃料要素

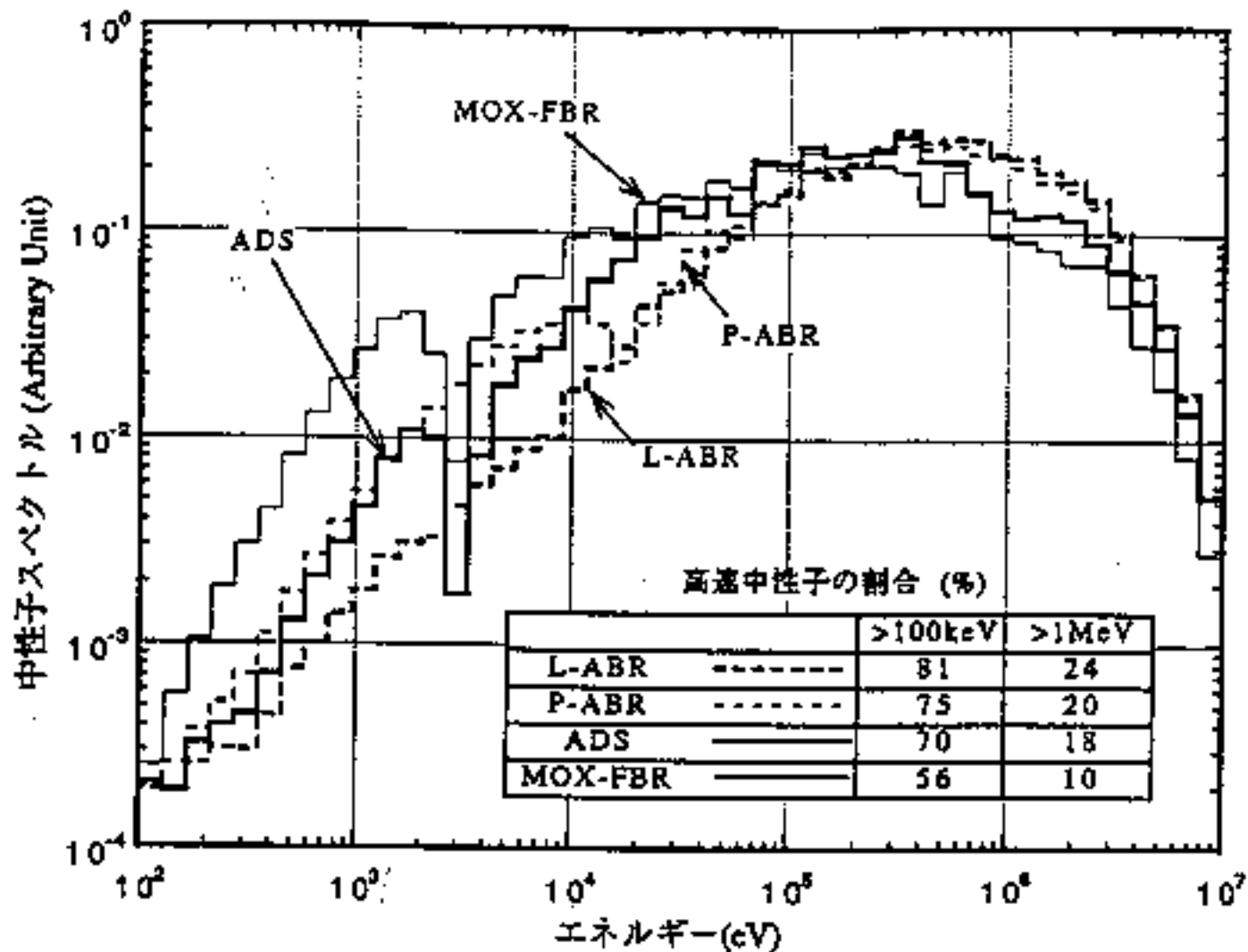
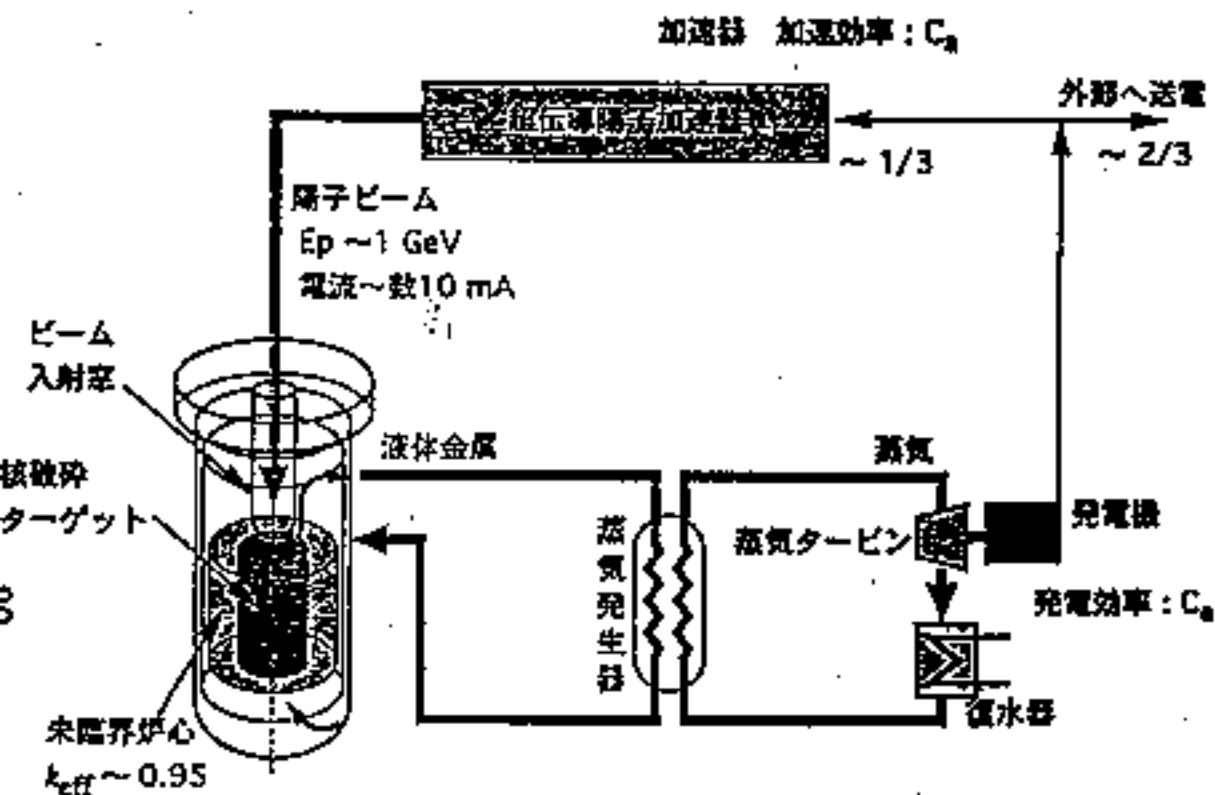


図5 MA専焼炉(ABR)・加速器消滅処理システム(ADS)・MOX高速炉の炉心平均中性子スペクトルの比較

図6 消滅処理専用システムの開発
加速器駆動未臨界炉

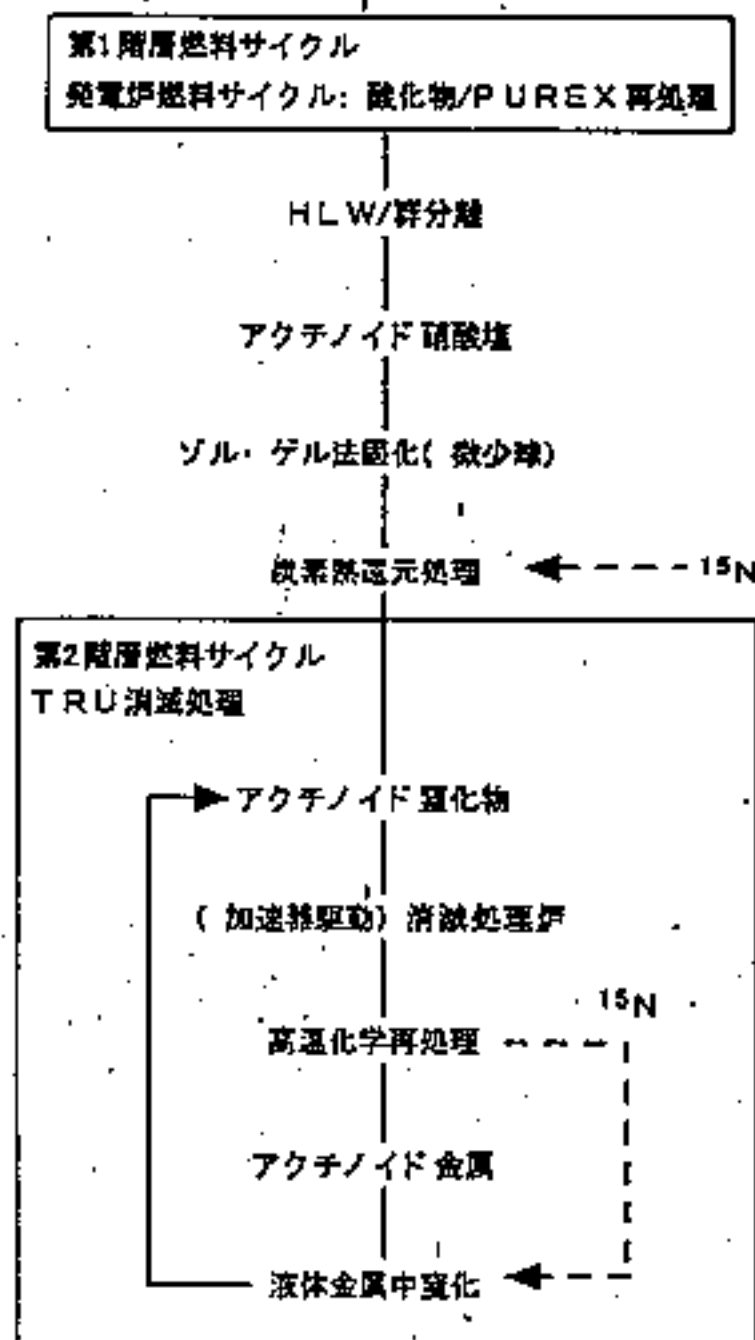


何故、加速器駆動システムか

MA消滅処理性能

- 外部中性子源による制御
- 安全性の向上
 - ・ 反応度事故に対する
 - ・ 余裕が大きい
- 設計の自由度大
 - 燃料組成への自由度大

- ・ 熱出力800 Mw炉心
- ・ 年間当り250 kgのMA消滅
- ・ 現行軽水炉10基分に相当



特長:

- MAを高密度で含有
- 高融点 (~3000K)
- 金属並の熱伝導度
- 組成が変わっても性質が一定

高い消滅効率、
安定した性能

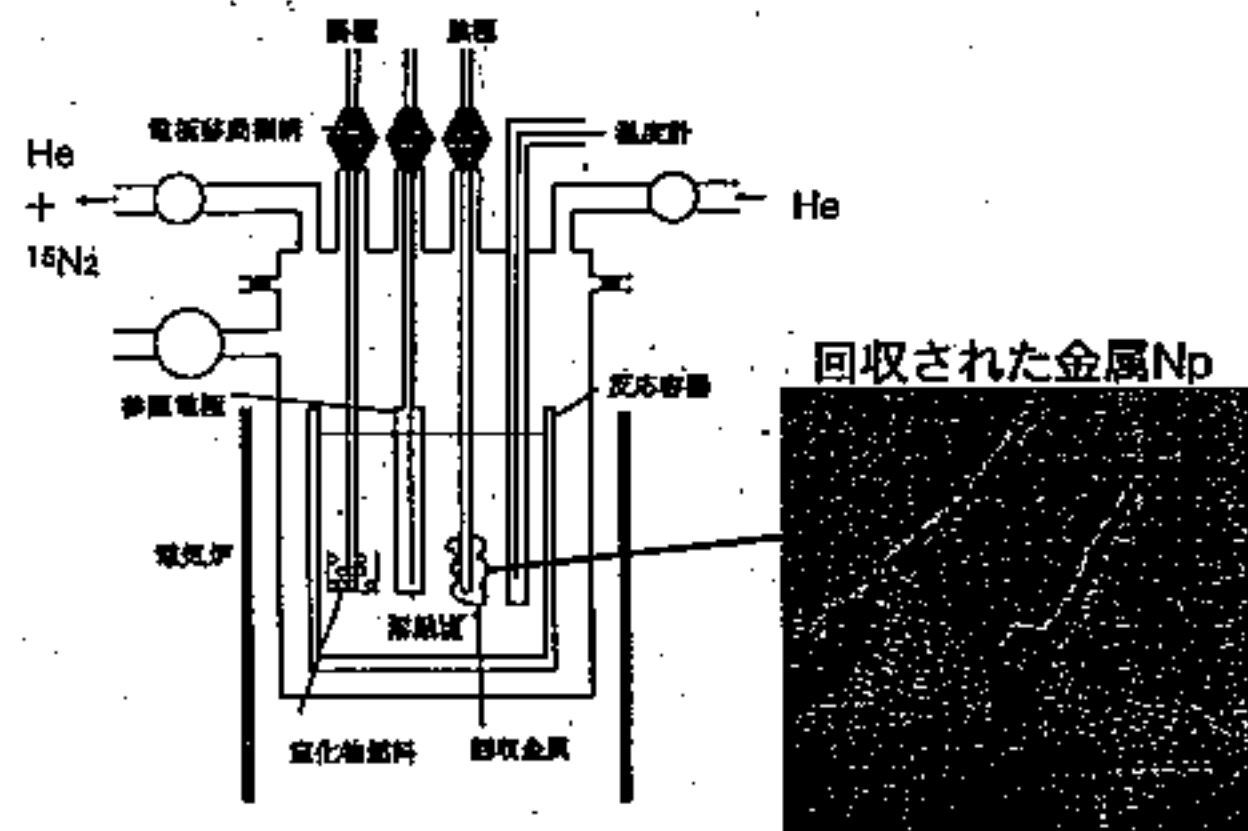
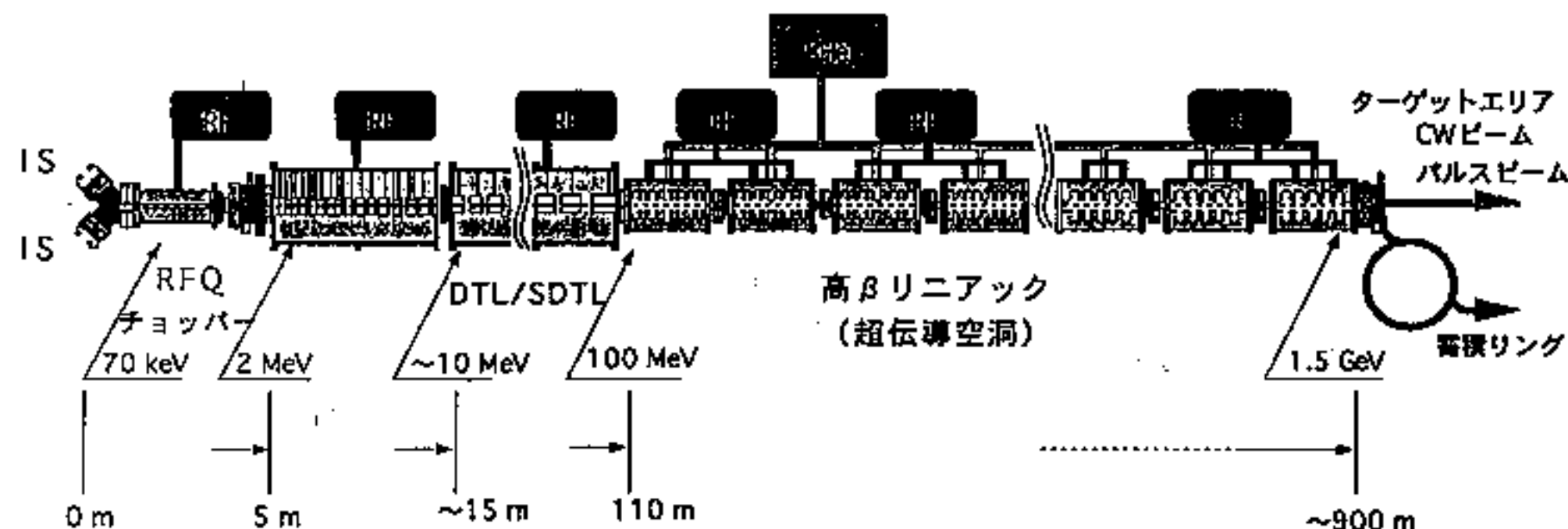


図8 MA窒化物燃料の溶融塩電解

溶融塩中で照射済みMA窒化物燃料を電解し、MA金属を核分裂生成物から分離・回収してリサイクルする。階層型核燃料サイクル概念では、消滅処理炉に併設した小規模な施設で照射済みMA燃料の処理を実施する。実験室試験において、窒化ネプツニウムから金属ネプツニウムを回収することに成功した。

図7 窒化物/高温化学再処理法に基づくTRU燃料サイクル概念

加速器概念図



陽子リニアック基本仕様

加速粒子:	正負水素イオン
エネルギー:	1.5 GeV
ビーム電流:	1st stage ; パルス平均 1 mA ピーク 16.7 mA (パルス幅 2 ms, 繰り返し 50 Hz)
	2nd stage ; CW < 5.33 mA パルス平均 < 5.33 mA ピーク 30 mA
低エネルギー部:	RFQ & DTL 常温リニアック : 200 MHz
高エネルギー部:	超伝導リニアック : 600 MHz
チョッピングファクター:	60 % (中間パルス幅 400 ns)

図9 加速器システム構成