

日本原子力研究所における
群分離・消滅処理技術の研究開発
〔OHP資料〕

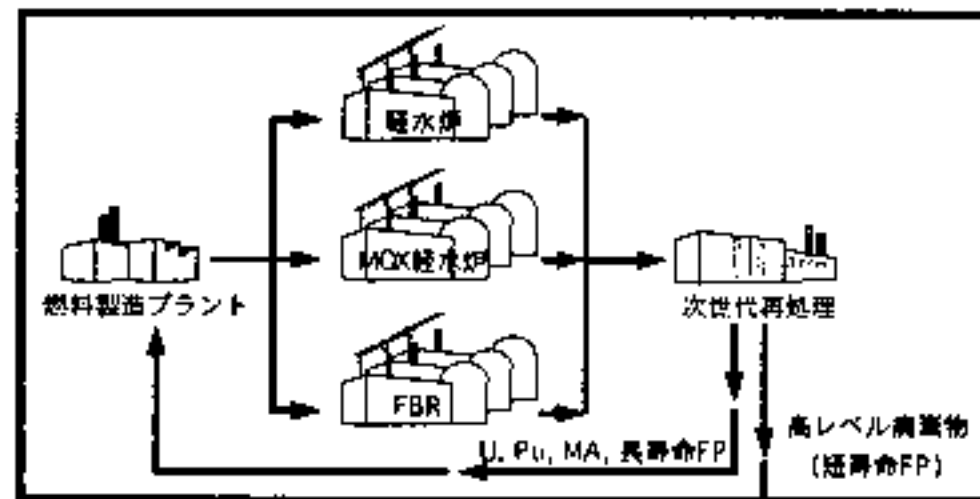
第21回原子力バックエンド対策専門部会

平成11年2月9日（火）

日本原子力研究所

群分離・消滅処理を組み込んだ核燃料サイクル

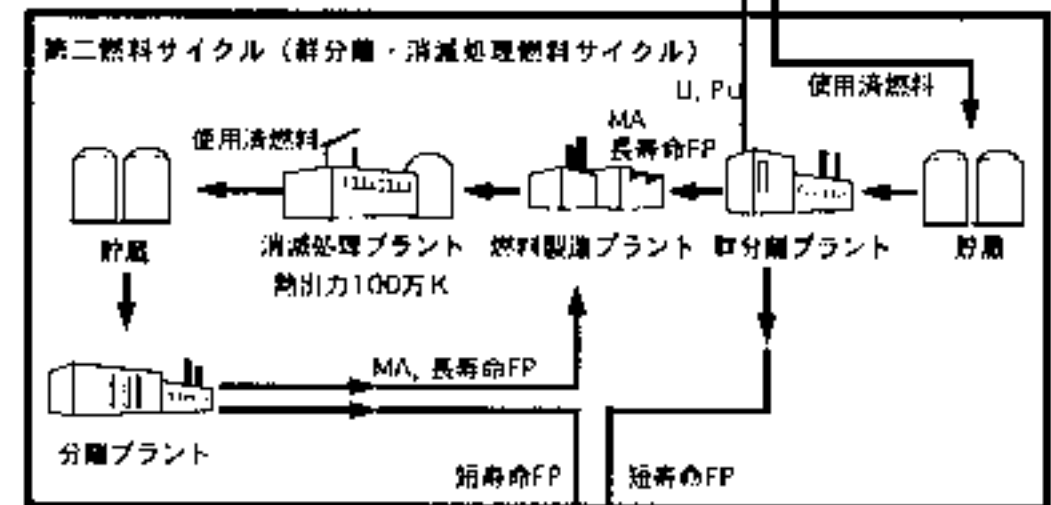
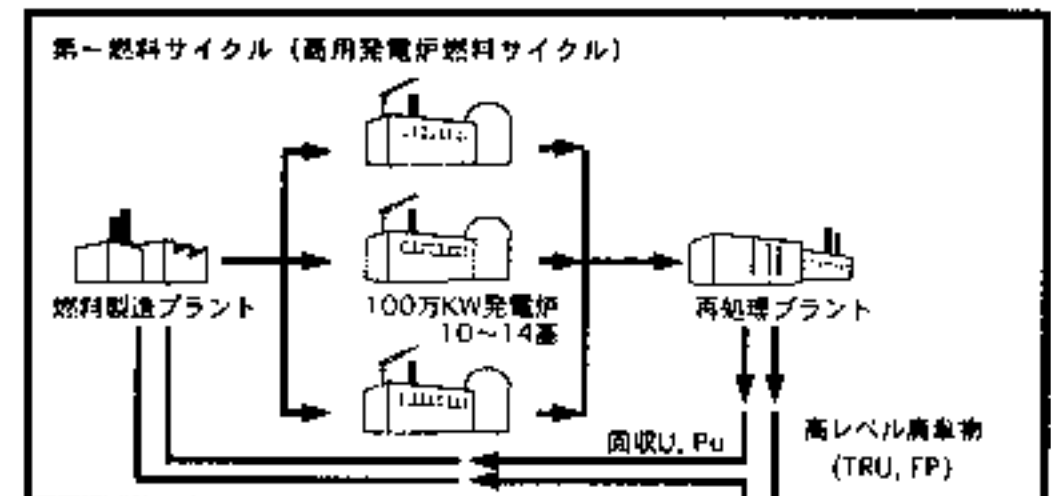
CENS/JAERI



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

先進核燃料サイクル概念

- ・ 発電炉を用いた消滅処理
- ・ MA消滅処理には発電炉（高速炉）を用いる。
- ・ PUREX再処理法を改良して、UやPuと共にMAも分離
- ・ サイクル機構、電中研、フランス等はこの方式を研究



階層核燃料サイクル概念

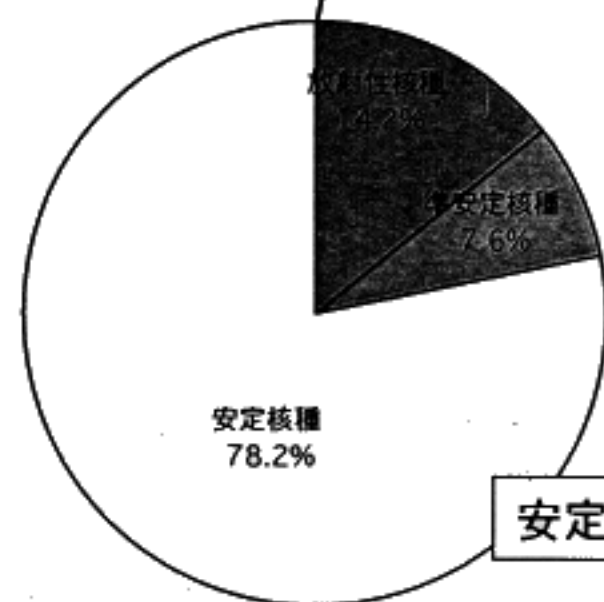
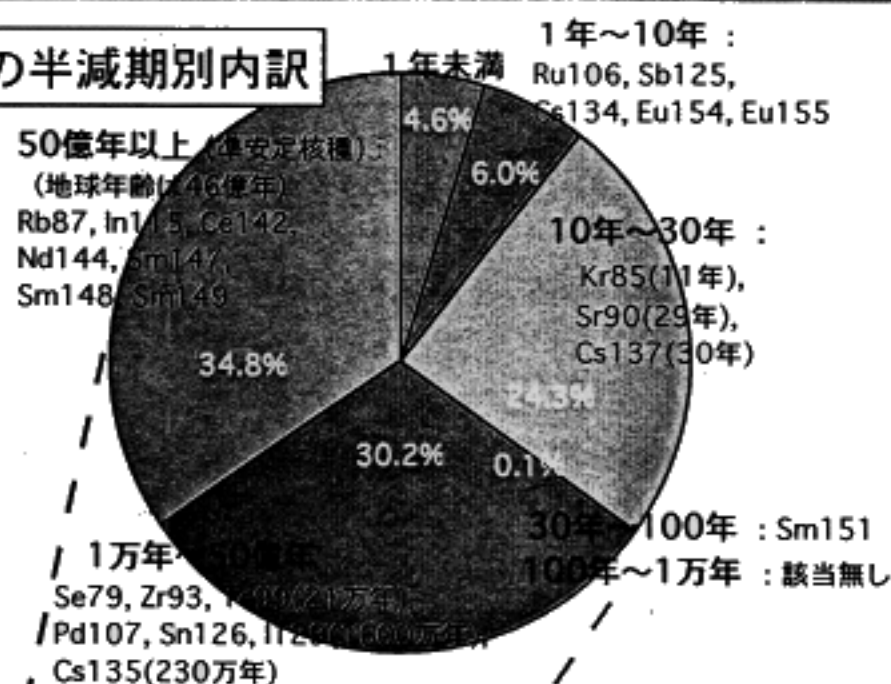
- ・ 発電炉燃料サイクルに群分離・消滅処理サイクルを付設
- ・ 発電炉燃料サイクルの再処理廃液からMAや長寿命核種を回収
- ・ 消滅処理専用システム（加速器駆動未臨界炉や専焼炉）を用いた消滅処理
- ・ 原研が提案

フランス（スーパーフェニックス放棄決定後）がこの方式へ

核分裂、中性子捕獲反応による消滅処理

CENS/JAERI

放射性核種の半減期別内訳



安定核種と放射性核種の割合

核分裂生成物の半減期による区分 (重量比)
核分裂による消滅処理

中性子捕獲反応による消滅処理

存在比	対象核種	短半減期核種	安定核種
76%	27バーン I-129 + n → 1600万年	β^- I-130 → 12.4時間	Xe-130 + n → Xe-131 + n → Xe-132 安定 安定 安定
24%	6.2バーン I-127 + n → 105日	β^- I-128 → 25分	Xe-128 + n → Xe-129 + n → Xe-130 安定 安定 安定 (Xe は-113℃以上でガス)
100%	20バーン Tc-99 + n → 21万年	β^- Tc-100 → 16秒	Ru-100 + n → Ru-101 + n → Ru-102 安定 安定 安定

(Tc 及び Ru は2172℃以下では固体)

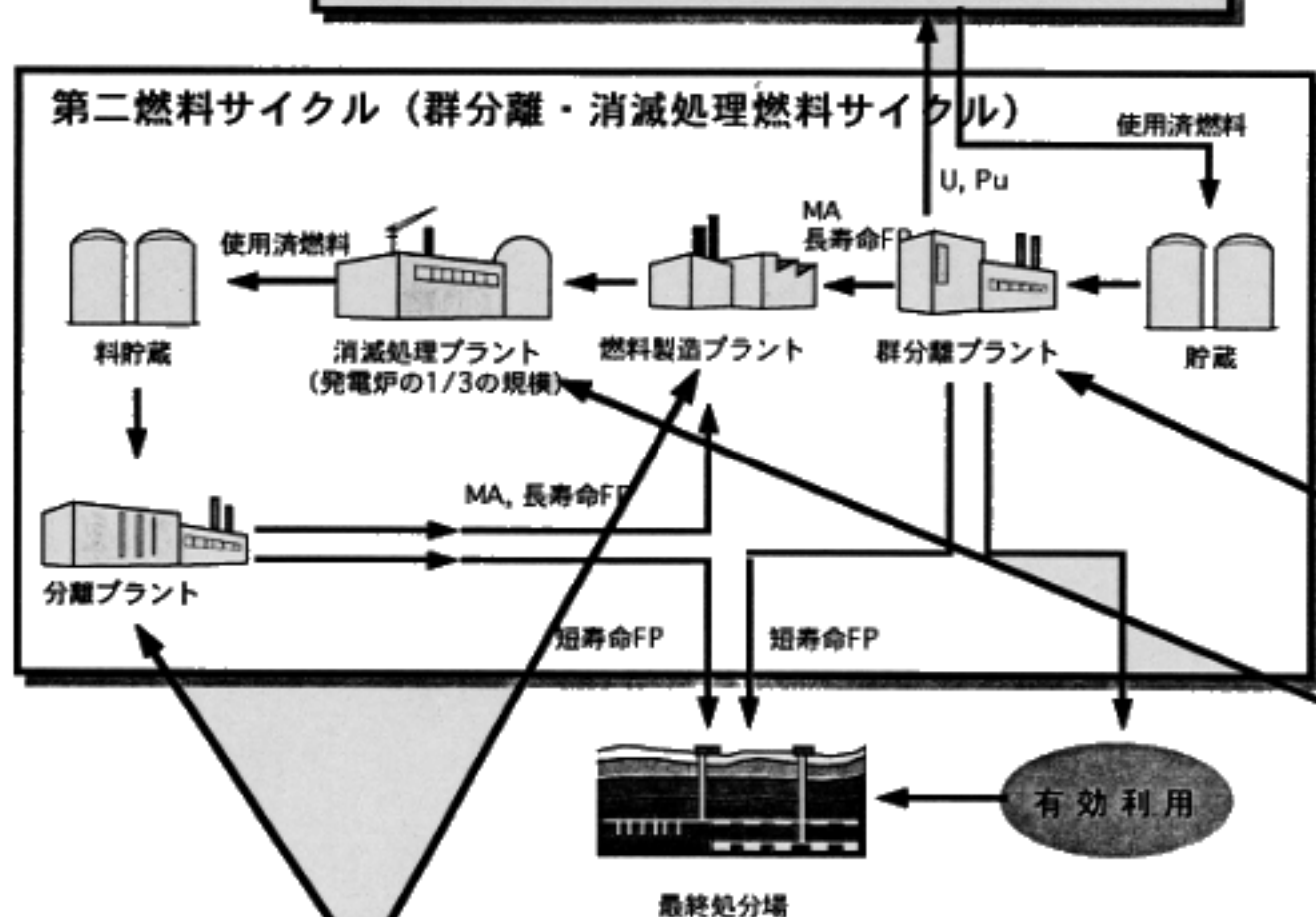
ヨウ素とテクネチウムの消滅処理

研究開発の内容

CENS/JAERI

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・消滅処理燃料サイクル）



目標

階層核燃料サイクルの開発 原研が創出した概念
効率的、経済的な群分離・消滅処理のため

- ・この概念達成に必要な技術の研究開発を行う
- ・99.5%以上の群分離・消滅処理効率を目指す
(0.5%以下の長半減期核種が廃棄物として放出される)

1. 群分離技術の開発
4群群分離技術： 溶媒抽出法

2. 消滅処理専用システムの開発
加速器駆動未臨界炉 (ADS)
専焼高速炉 (ABR)
高エネルギー中性子を用いた

3. 窒化物燃料技術
燃料製造
電気精錬法分離

4. 消滅処理に必要な技術の開発

- 1) 大強度陽子加速器
(現在、中性子科学研究計画の一環として開発)
- 2) 技術開発を支える基礎的な研究
データベース整備：核データ、燃料物性データ

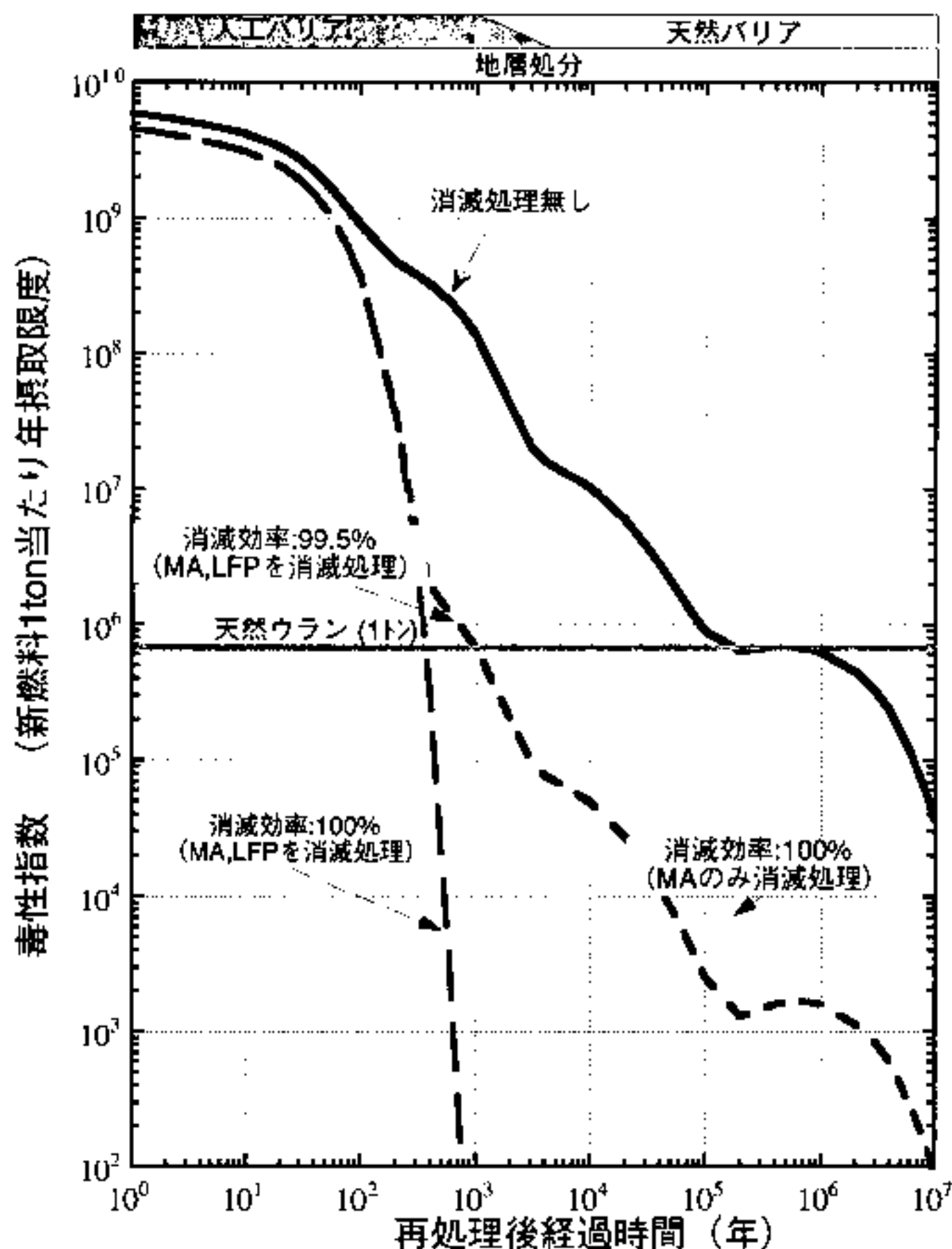


図 消滅処理による高レベル廃棄物の毒性の減少
(LFP：半減期が30年以上の核分裂生成物)

使用済燃料：燃焼度33GWD/MT、3年冷却
再処理効率：99.9%U,Pu回収

群分離の研究開発

CENS/JAERI

■ 群分離の目的

消滅処理、発熱性核種の安定固化、有用元素の利用等のために
再処理廃液から元素群を分離回収

■ 群分離プロセス開発の指針

- (1) 高分離性・選択性を有す連続プロセス
- (2) 化学的に安定なプロセス
- (3) 二次廃棄物発生が少ないプロセス

安全性、経済性

■ 群分離研究の成果

4 群群分離法開発

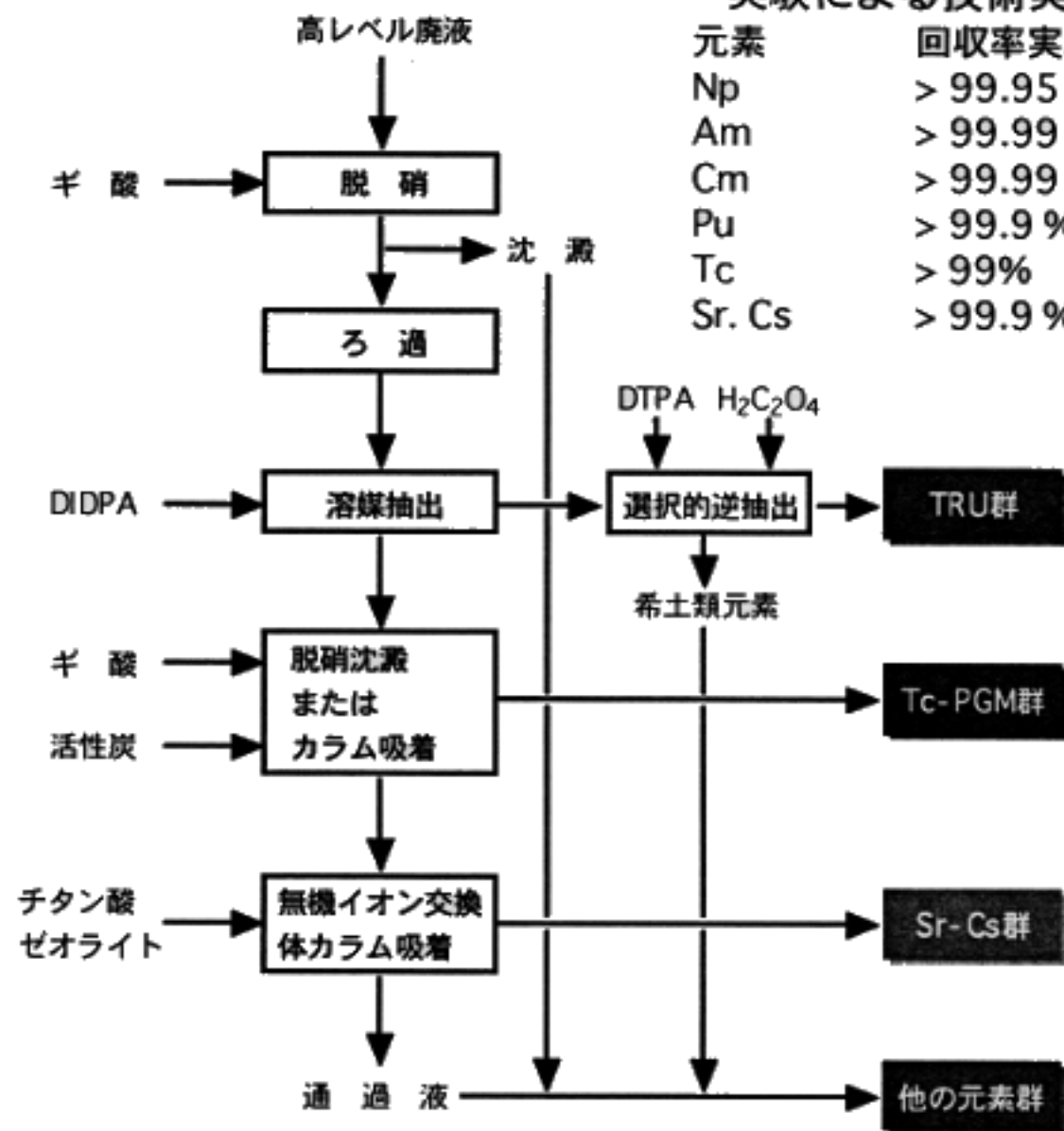
- 新しい溶媒抽出剤開発 DIDPA (ジイソデシルリン酸)
- MAを99.95%以上の効率で分離、回収を実験室規模で実証
 - ⇒ 希土類元素からの超ウラン元素の効率的な分離法開発
DTPAによる逆抽出
 - ⇒ Tc-白金族元素群の分離
脱硝沈殿法を開発、二次廃棄物の発生少ない
 - ⇒ Sr-Cs群の分離
吸着剤を安定な固化母材に ⇒ 廃棄物の減容化
- 固化体発生量を群分離しない場合のガラス固化体量の約3分の1にすることが可能

4 群群分離プロセスの開発

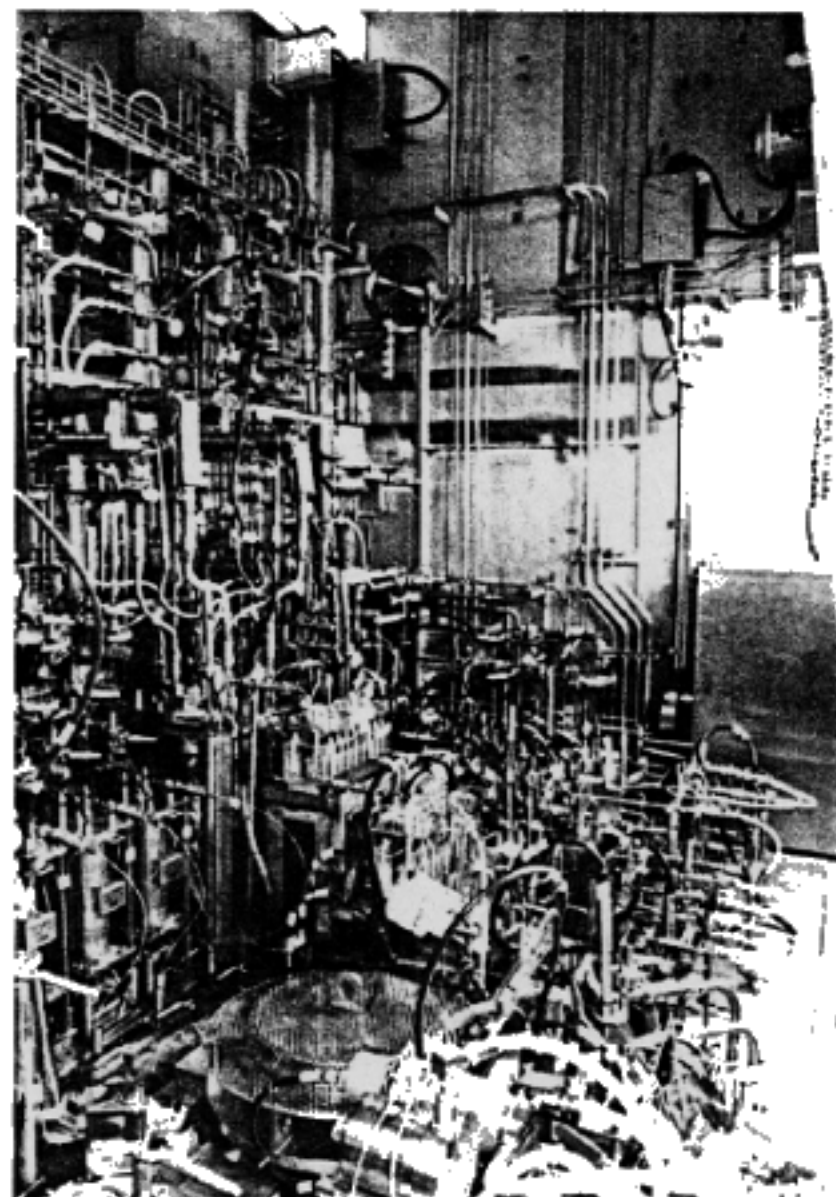
CENS/JAERI

実験による技術実証

元素	回収率実験値
Np	> 99.95 %
Am	> 99.99 %
Cm	> 99.99 %
Pu	> 99.9 %
Tc	> 99 %
Sr, Cs	> 99.9 %



4 群群分離工程



NUCEFにおける試験装置

4 群群分離後の固化体の性状とその後の処理

使用済燃料 (33 GWd/t) 1 トン当たり

群	主な核種 又は元素	固化体形態	体積 (l)	発熱密度 (W/l)	群分離後の処理	
超ウラン元素群	Np- 237 Am- 241	酸化物	0.09		消滅処理	
テクネチウム- 白金族元素群	Tc- 99 Ru, Rh, Pd	金属	0.39		有効利用 Tc: 消滅処理	最大中間貯蔵量 ²⁾
ストロンチウム- セシウム群	Sr- 90 Cs- 137	無機イオン交換体 -焼成体	14	82 50年後 19	中間貯蔵 →処分	 336 m ³
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	6.1 5年後 1.7	(中間貯蔵) →処分	 124 m ³
4 群固化体総量			46			
群分離無しの時 の固化体量		ガラス固化体 (酸化物含有率12%)	150	10.0 50年後 1.8	中間貯蔵 →処分	 3600 m ³
群分離後の 二次廃棄物	硝酸ナトリウム、 リン酸カルシウム	セメント固化体 (含有率40%)	330 ¹⁾		浅地層処分 (α<1GBq/t)	

1) 群分離後の二次廃棄物の量は再処理によって発生する二次廃棄物の量の約 5 分の 1 である。

2) 800 t/y の再処理プラント及びそれに附随する群分離プラントを30年間運転した場合、その他の元素群は5年間貯蔵する事とする。

消滅処理システムの設計

CENS/JAERI

■ 設計目標

- 消滅処理専用システム
 - MA を燃料の主成分とする
- 高エネルギー中性子の割合が多いシステム
 - ⇒ MA を直接核分裂させる
- 消滅処理専用システム 1 基で発電炉 10 基以上に対応
- 窒化物燃料の使用

■ システム概念設計

- A. 加速器駆動消滅処理システム ADS
 - 加速器駆動MA未臨界体系ハイブリッド・システム
- B. 専焼高速炉 ABR
 - 鉛冷却専焼炉 L-ABR
 - ヘリウム冷却粒子燃料専焼炉 P-ABR

■ システム設計の成果

- 高エネルギー中性子割合が多いシステム概念成立性確認
 - 1MeV以上の中性子の割合
 - ADS、ABRでは18%以上
 - 窒化物FBRでは10%程度
- MA消滅処理能力
 - 発電炉の1/4規模の消滅処理システム 1 基当たり
 - 発電炉（軽水炉）の10～14基に対応
- 但し、 ^{99}Tc 、 ^{129}I の消滅処理能力向上が必要
- ADSを第1候補、ABRはバックアップ

消滅処理専用システムの開発 加速器駆動未臨界炉

CENS/JAERI

構成

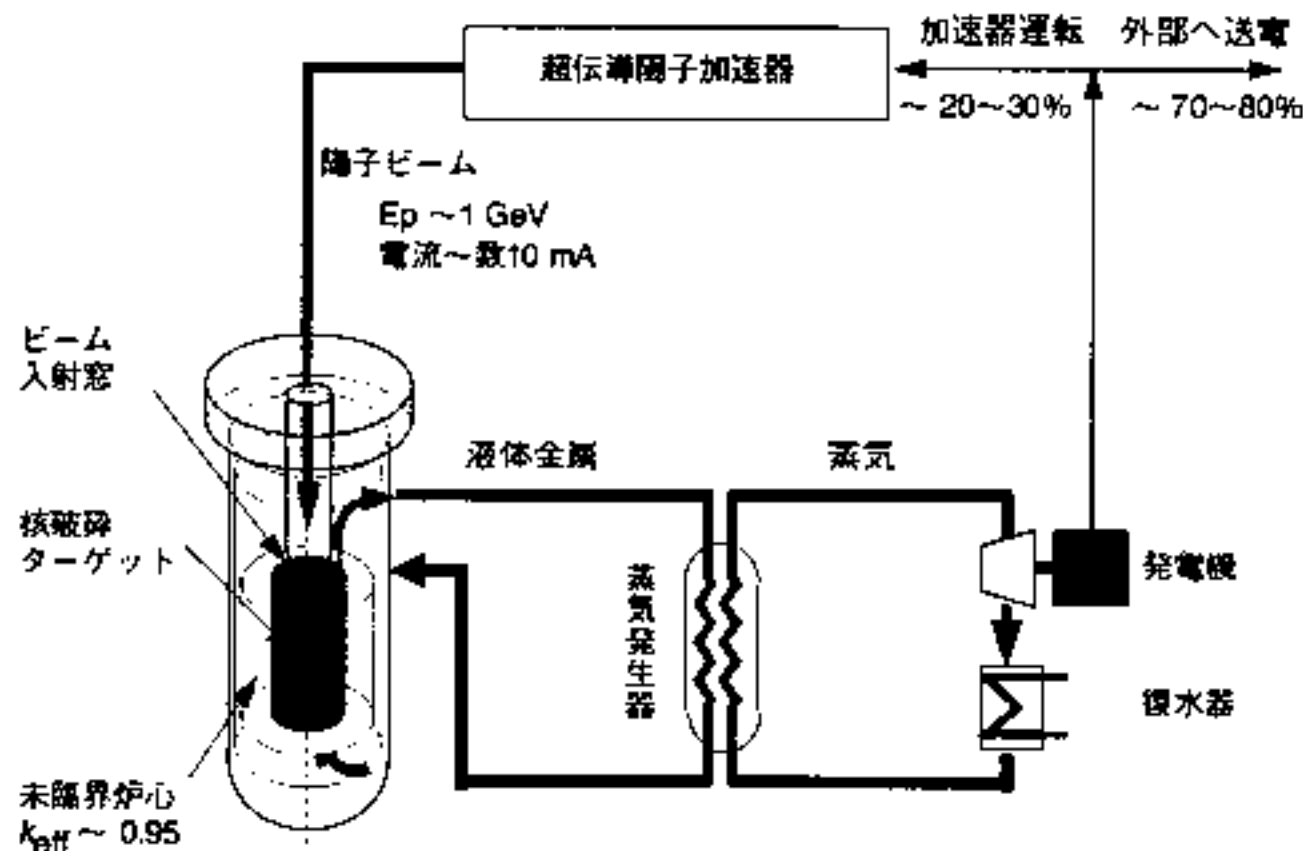
陽子加速器、陽子ビーム・ポート
ビーム入射窓、核破砕ターゲット
未臨界炉心、冷却材

特徴

未臨界炉

- ・ 中性子実効増倍係数 $k_{eff} < 1$
(臨界炉 $k_{eff} = 1$)
- ・ 核分裂反応の持続 $\Rightarrow$ 外部中性子源が必要
- ・ 陽子ビーム遮断 $\Rightarrow$ 核分裂連鎖反応終息
- ・ 制御棒は補助的な役割、安全棒の機能は不要
 $\Rightarrow$ 燃料組成／設計の自由度大きい

加速器駆動未臨界炉は
消滅処理専用システムとして最適

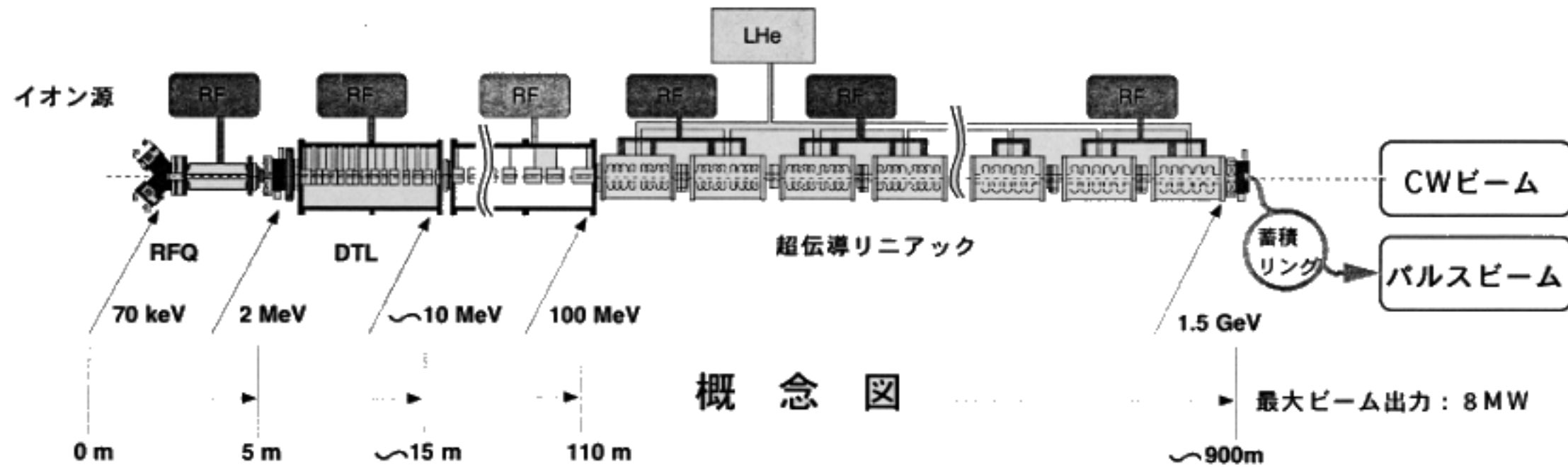


MA消滅処理性能

- ・ 熱出力80万KW(発電炉の1/4規模) 炉心
- ・ 年間当り250 kgのMA消滅
- ・ 現行軽水炉10基分に相当

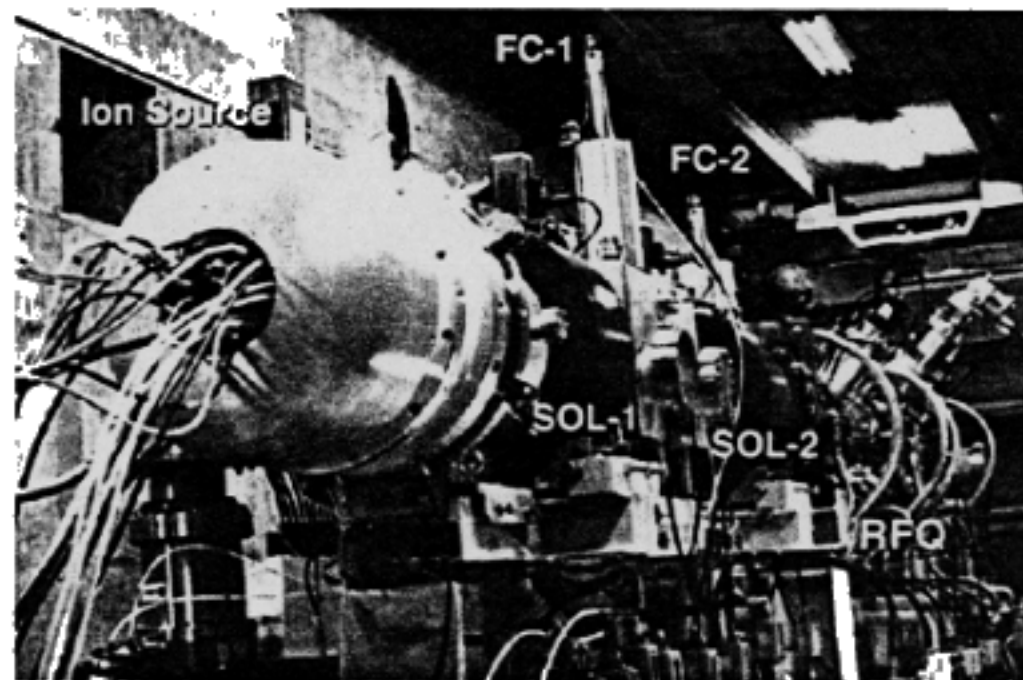
大強度陽子加速器の開発

CENS/JAERI

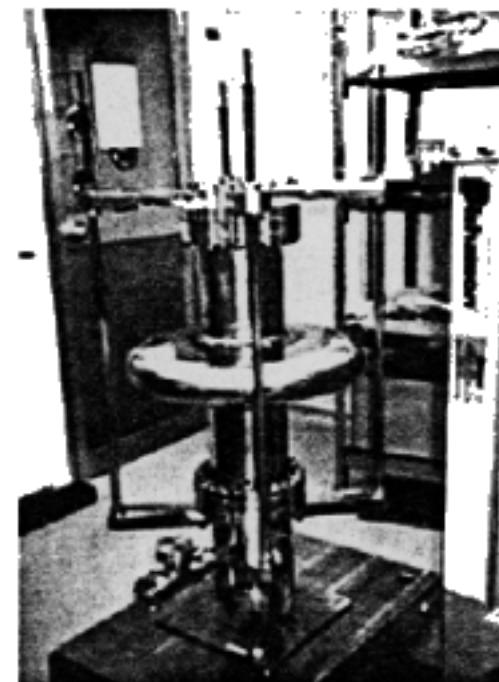


概念図

RFQ最大出力電流
70 mA (10% デューティ)



低エネルギー加速部テスト



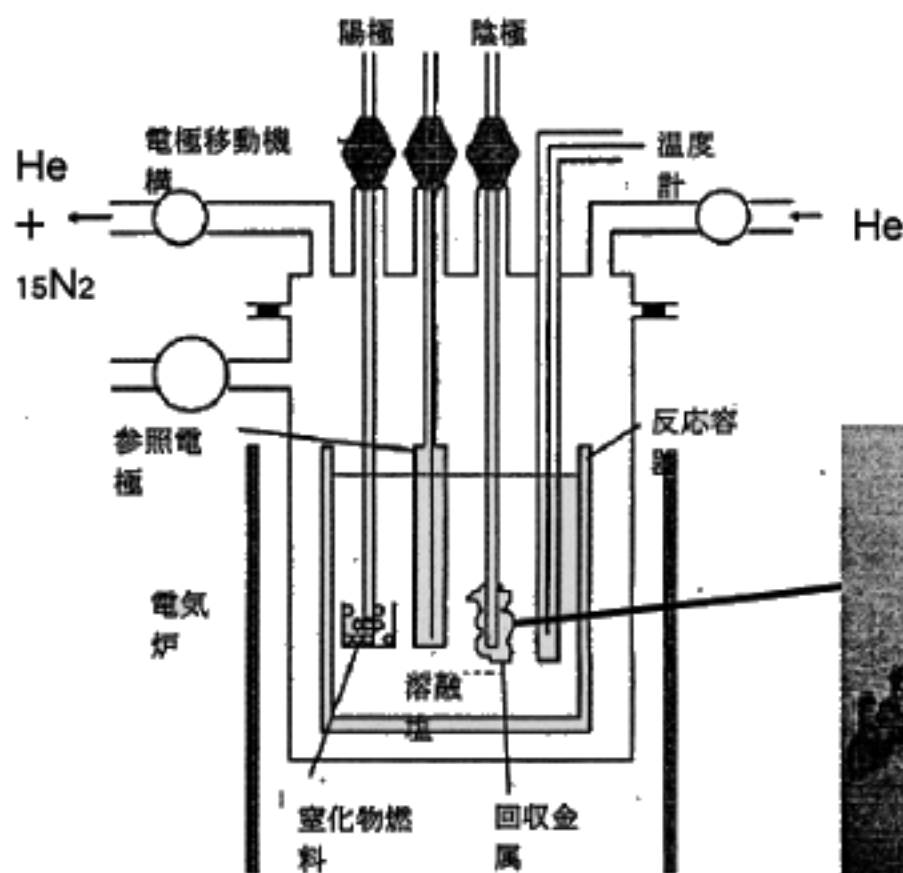
超伝導空洞
-単セルモデル-

MA窒化物燃料の開発

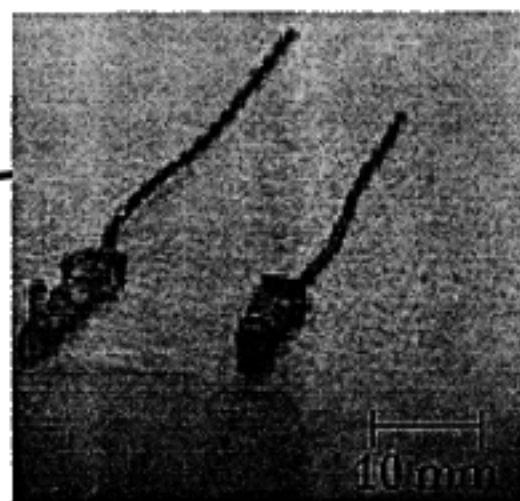
特長：

- 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



回収された金属Np

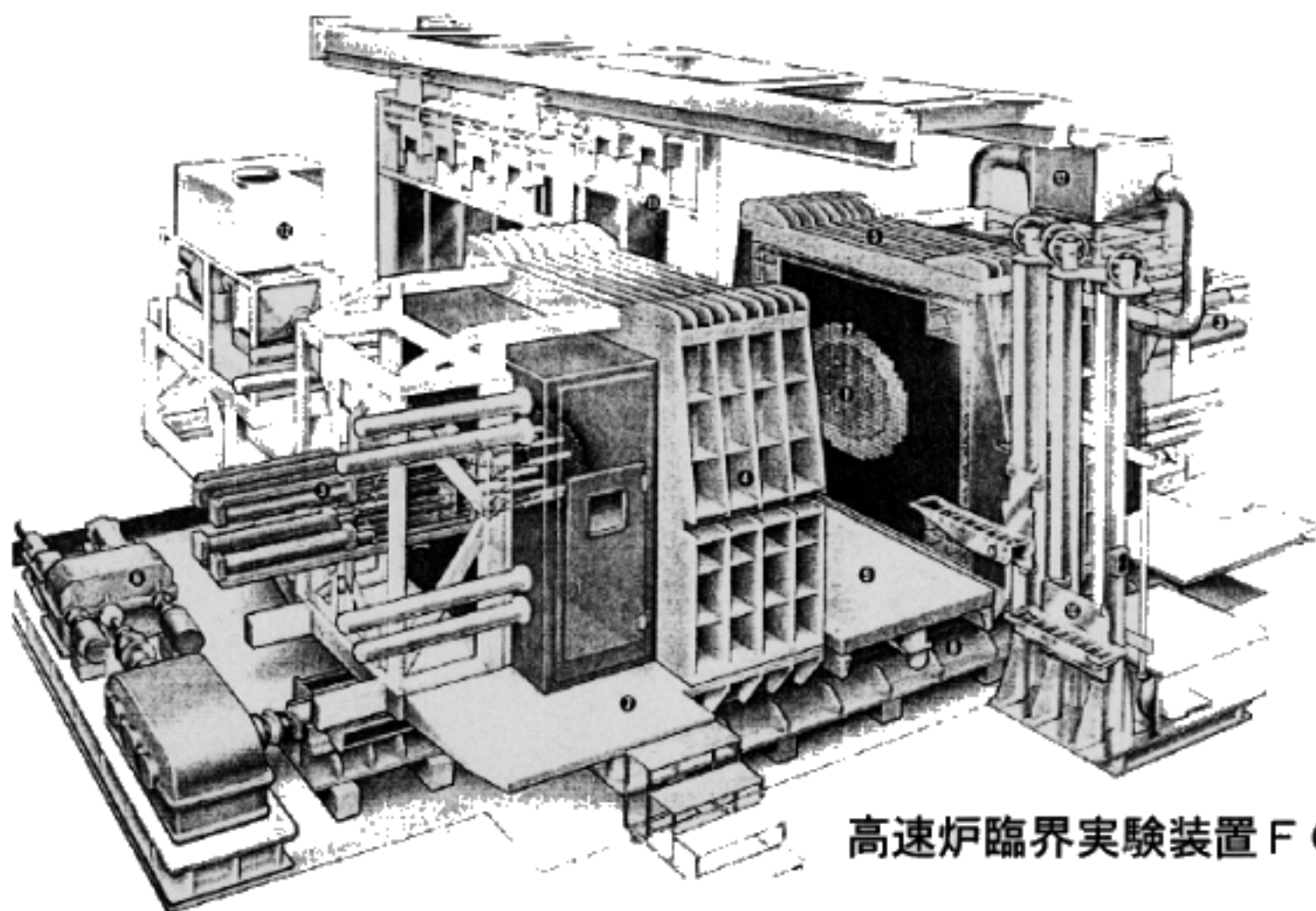


MA窒化物燃料の熔融塩電解

- ・ 熔融塩中で照射済み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。
- ・ 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。

FCAにおけるアクチノイド積分実験

CENS/JAERI



高速炉臨界実験装置 FCA

実験の目的：アクチノイド核種断面積データの評価と修正

消滅処理システム設計に必要なデータベースの整備

測定体系： FCAIX-1～IX-7炉心（U炉心）

中性子エネルギースペクトルを系統的に変えた一連の炉心

測定量： 1) 核分裂率比（平行板核分裂計数管）

2) 試料反応度価値（試料重量；15～20g, 酸化物）

対象核種： Np-237, Pu-238, Am-241

Am-243（米国より借用、5億円）

Pu-240（試料反応度価値のみ）

Pu-242, Cm-244（核分裂率比のみ）

U-235, Pu-239（標準核種として）

断面積データの修正

最小自乗法断面積修正コードシステム"DOYC"

JENDLファイル・データの修正

群分離・消滅処理サイクルの経済性

CENS/JAERI

- 群分離・消滅処理専用サイクルはコンパクト
群分離・消滅処理サイクルではHLWを出発点
➡ 取り扱い量が発電炉燃料サイクルより遙かに少量

群分離	高レベル廃液を対象	発電炉燃料の約1/30
消滅処理	MAとTc、Iを対象	発電炉燃料の約1/50

- 窒化物燃料の特長：
 - 燃料製造：微粒子燃料製造 → ダストフリー燃料サイクル
 - 溶融塩電解法MA回収 → 経済性のよい燃料サイクル
：コンパクト

■ 経済性評価（試算）

階層核燃料サイクルを採用した場合の経済性について、保守的な試算を行い、消滅処理による発電を考慮に入れると、群分離・消滅処理導入による発電コストの増加は8%程度。

但し、地層処分の負担減少の効果含まず。

仮定

- ・未臨界炉建設費 同じ出力の軽水炉の3倍
- ・加速器建設費 500億円
- ・群分離費 処理量当たり再処理の5倍
- ・燃料費 処理量当たり現行軽水炉燃料費の3倍

成果の概要

CENS/JAERI

■ 階層核燃料サイクル概念の創出

最近、フランス原子力庁がこの概念を取り入れた消滅処理サイクルの検討を開始。

■ 群分離

実験室規模でマイナー・アクチノイドの
回収率99.95%以上を実証。

■ 消滅処理システム設計

□ エネルギー自給型、効率良い消滅処理システム概念

消滅処理システム1基（軽水炉の1/4規模）で軽水炉12基分のマイナー・アクチノイドを消滅処理出来る。

□ システム設計の信頼性確認

⇒ マイナー・アクチノイドの核データ測定、評価

⇒ 高速炉臨界実験装置FCAを用いた臨界実験

■ 燃料技術

原理実験による以下の技術の可能性確認

□ 窒化物燃料調整法

□ 熔融塩電解法による消滅処理使用済み燃料からのマイナー・アクチノイド分離法

□ N-15の回収法

■ 陽子加速器

□ 低エネルギー加速部 大電流化の見通しを得た。

□ 高エネルギー加速部 超伝導加速空洞政策技術基盤確立

■ 技術開発全体の段階

階層核燃料サイクルに必要な基本技術の可能性は確認できた。

今後の課題

CENS/JAERI

■ 群分離

- ランタノイドとアクチノイドの分離の高度化
化学的に似た性質

ランタノイド 原子番号57-71の元素の総称

アクチノイド 原子番号89-103の元素の総称

- 二次廃棄物の低減
- 工業規模プロセスの開発

■ 消滅処理

- 加速器駆動未臨界炉の制御性実証、技術開発
- 窒化物燃料技術開発
 - ・ MA燃料の実証：燃料試作及び照射試験
 - ・ MA回収の実証試験：溶融塩電解法
- 大電流陽子加速器の技術確立

■ 群分離・消滅処理システム総合評価

発電炉燃料サイクルとの整合性、安全性、経済性

■ 群分離・消滅処理を組み込んだ新しい地層処分の検討 地層処分研究者との協力

■ 技術開発の目的

HLW中の長寿命核種を可能な限り少なくする

■ 内容

- HLWからの対象物の分離：化学的（湿式）分離
- MA消滅処理：消滅処理専用システム

■ 成果

- 群分離：実験室規模（実際のプラントの1/1000規模）で技術の可能性を実証した。
- 消滅処理：効率よくMAを消滅処理出来るシステムの概念を得た。燃料に関する実験室規模の技術を実証

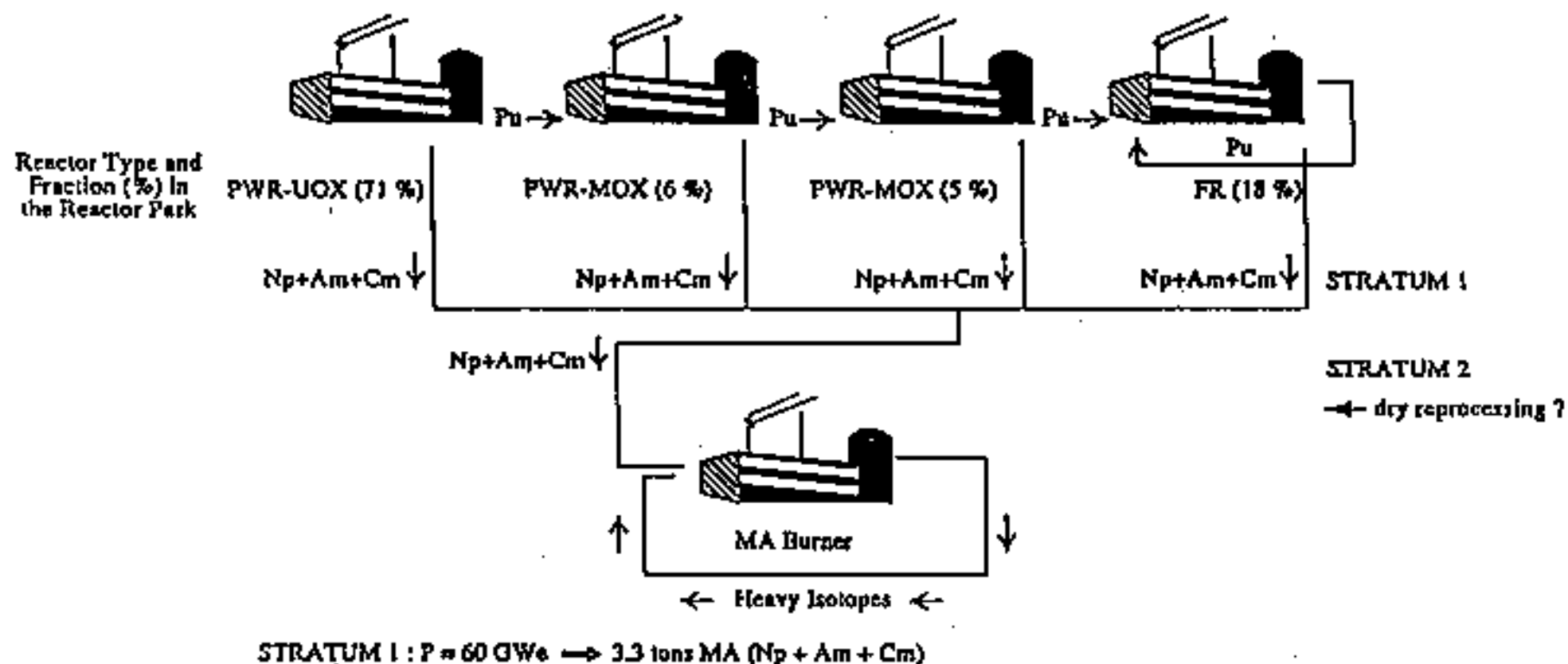
■ 今後の課題

- 群分離：工学規模の技術開発
- 消滅処理：
 - ➡ 実験によるシステム設計の信頼性確認
 - ➡ 燃料技術の実証
 - ➡ 大電流陽子加速器の開発

■ 研究開発の進め方

内外の研究機関との協力による効率的な研究開発

Scenario "Double strata", with Np, Am and Cm Transmutation



This reactor park allow to reduce waste potential radiotoxicity by a factor of **100** with respect to a reactor park operated in open cycle.

The limit is due to the level of losses during reprocessing (here assumed to be 1% for all MA, and 0.1% for U and Pu). If dry reprocessing, fractions can be lower.