

新型炉部会セッション

高レベル放射性廃棄物の減容化・有害度低減に向けた技術開発

Development of technologies for reduction in volume and toxicity of high-level radioactive wastes

(3) 核変換サイクルにおけるチャレンジ

(3) Challenge in the dedicated transmutation cycle

辻本 和文¹¹日本原子力研究開発機構

1. はじめに

分離変換技術は、商用発電サイクルの再処理工場で発生する高レベル廃液から長寿命核種であるマイナーアクチノイド(MA:Np,Am,Cm)を分離回収して、安定核種または短寿命核種に核変換する技術である。分離変換技術を導入した MA リサイクルシステム概念としては、大別して「均質サイクル型」と「階層型」がある(図1)。「均質サイクル型」では、核変換対象の MA を発電用高速炉燃料に均質に混ぜて燃料として用いるのに対して、「階層型」では、商用発電サイクルとは別の核変換を専門に行う小規模の核変換専用サイクルを用いる。「階層型」概念における核変換システムとしては、コンパクトな核変換専用サイクルで効率よく集中的に核変換を行うために加速器駆動システム(Accelerator Driven System: ADS)を用いる。それぞれの概念で特徴がり、「均質サイクル型」は、高速炉による商用発電と核変換を同時に行うことができるメリットがあり、高速炉による核燃料サイクルが実現した場合には合理的な選択肢である。一方、「階層型」は、発電用核燃料サイクルと核変換システムを切り離すことで、発電用核燃料サイクルの状況から独立して着実に高レベル放射性廃棄物処分に貢献できることが大きな特徴となる。本稿では、核変換システムとしての ADS の概要を述べるとともに、日本原子力研究開発機構(JAEA)で実施されている ADS 研究開発の現状及び将来計画を紹介する。

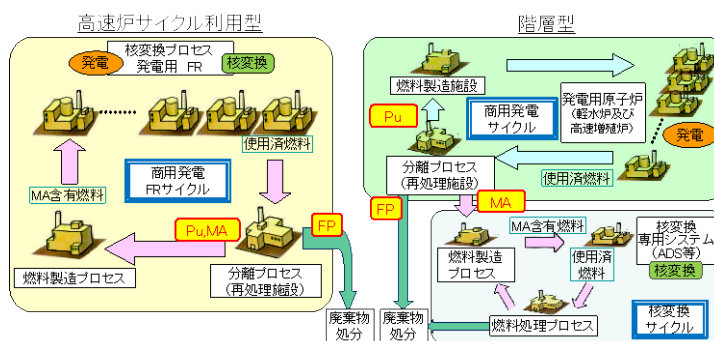


図1 原子力機構で研究開発を実施している二種類の MA 核変換燃料サイクル概念

2. 階層型核変換サイクルの概要および研究開発の状況

2-1. 加速器駆動システム(ADS)

ADS は、加速器と未臨界炉を組み合わせたシステムである。ADS の運転及び MA 核変換の原理を図2に示す。加速器で数百 MeV から数 GeV に加速した陽子を標的である重核種に入射すると、核破砕反応と呼ばれる反応が起き、大量の中性子が放出される。標的である重核種の周りに MA を主成分とする燃料を設置し、標的から放出された大量の中性子を照射すると、MA は中性子を吸収して核分裂反応を起こし、主に短寿命または非放射性の核分裂生成物になる。臨界状態、すなわち核分裂の連鎖反応が外部中性子源無しに一定状態で保持される通常の原子炉とは異なり、ADS では MA 燃料を装荷した炉心を常に未臨界状態にしておく。これにより、加速器からのビーム入射で未臨界炉心内の核分裂連鎖反応は一定状態に保持されるが、ビームを止めれば直ちに連鎖反応は停止するため、安全性の高いシステムとすることができる。

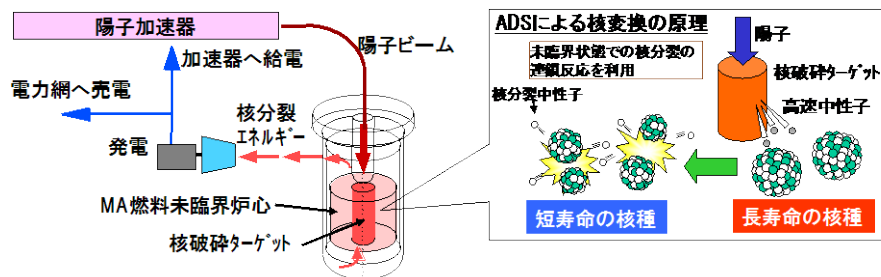
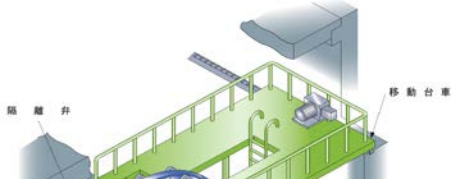


図 2 ADS の原理

ADS を MA 核変換システムとして用いることの利点は、比較的コンパクトなシステムに MA を大量に装荷して MA の核変換量を大きくして効率よく MA の核変換を行うことができるという点にある。中性子による MA の核分裂反応は中性子のエネルギーが 1MeV 以上の領域で大きくなるので、MA を核分裂させて核変換するためには、高速中性子を用いるのが効率的である。しかし、高速炉で MA を核変換する場合には、原子炉の運転制御性の観点からいくつかの問題点が生じる。例えば、正のフィードバック効果を持つ冷却材ボイド反応度が大きくなる一方で負のフィードバック効果を持つドップラー効果は小さくなる。このために、高速炉では装荷できる MA は燃料の数%程度に制限される。一方、ADS は未臨界なので上記の問題点の影響は小さく、燃料の約 60%程度まで MA を装荷することが可能となる。

ADS 用の中性子源として用いる高エネルギー陽子による核破砕反応は、発生中性子当たりの投入エネルギーが少なく、かつ除熱が少なくてもすむという利点があるが、大強度の陽子加速器の開発が必要である。ADS 用の大強度陽子加速器としては、線形加速器が最も有望であると考えられている。線形加速器の加速空洞を超伝導体で製造して超伝導化することで加速器性能（エネルギー効率）を飛躍的に向上できると考えられる。核破砕反応で発生する中性子数は、標的核種の質量数にほぼ比例するので、質量数の大きい核種を標的核種に用いることが望ましい。ADS 用ターゲットとしては、ターゲット自体を冷却材として使える液体ターゲットを用いるのが主流の考え方であり、ADS 用液体ターゲットとして最も注目されているのは、鉛ビスマス共晶合金である。鉛 45%とビスマス 55%の場合、融点(124℃)から沸点(1670℃)まで幅広い温度域で液体であるために比較的扱いやすい。MA を主成分とする燃料で構成される未臨界炉心の冷却には、核破砕ターゲット冷却と同じものを使用するのが設計上合理的であり、液体ターゲットの場合には、ターゲット材が炉心冷却材としても使用される。



JAEA が提案する ADS (図 3) は、超伝導陽子加速器と高速中性子スペクトル未臨界炉心を組み合わせたタンク型システムで、炉心冷却材及び核破砕ターゲットには溶融鉛ビスマス合金を、MA を大量に含む燃料には窒化物を使用する。JAEA では、これまでに ADS の各構成要素に対する基礎的な研究開発を実施してきた。ADS 用加速器については、超伝導線形加速器の構成要素となるクライオモジュールの試作・試験を行い、連続ビーム高エネルギー加速器の技術的成立性に関する基礎的なデータを得てい

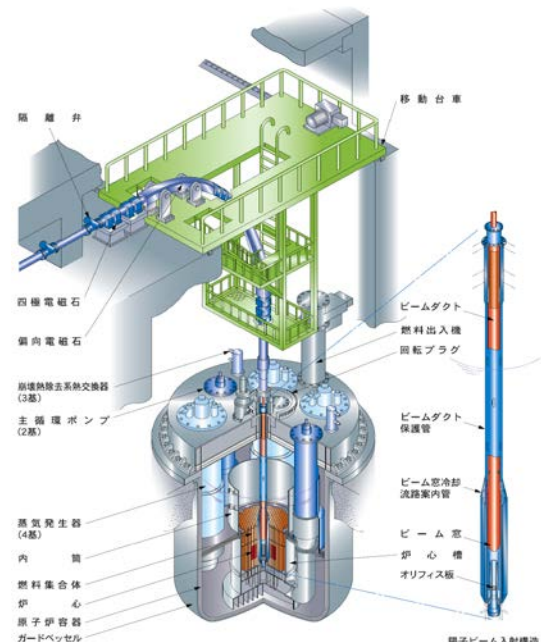


図3 JAEAで検討している熱出力800MWの鉛ビスマス冷却タンク型ADS概念

る。また、J-PARC では加速エネルギー400MeV の陽子加速器を建設・運転を行っており、J-PARC 加速器の運転経験を蓄積し、加速器信頼性の向上を図っていく。鉛ビスマス技術及び核破砕ターゲット技術については、鉛ビスマス中の材料腐食試験、熱流動試験、不純物挙動試験、材料照射試験等が行われている。材料腐食に関しては、静的腐食試験及びループ試験により、腐食の温度・酸素濃度依存性に関する基礎的データが取得されている。また、材料の腐食特性に大きく関係する酸素濃度測定・制御システムの開発が進められている。さらに、スイスのポールシェラー研究所の陽子加速器を使って行われた MEGAPIE 国際共同実験で約 1MW の鉛ビスマス核破砕ターゲットの約 4 ヶ月にわたる運転に成功し、現在、ビーム窓材料等の照射後試験が参加各国で進められている。未臨界炉の設計に関しては、核的・熱的・構造面からの解析的研究が進められている。通常の原子炉と最も大きく異なるビーム窓については、球殻を組み合わせたビーム窓概念と流調ノズルの設置による温度及び座屈強度を考慮した概念が検討されている。また、未臨界度の監視技術に関しては、臨界集合体を用いた炉物理試験により、基礎的な見通しが得られている。

2-2. マイナーアクチノイド核変換用製造・再処理

ADS 用の MA 含有燃料としては、窒化物燃料の使用を想定している。図 4 には、MA 核変換用窒化物燃料」の製造工程の概要案を示す。これまでの検討結果から、MA 核変換用燃料として、ウランを含まない高濃度 MA 含有窒化物燃料が第一候補とされている。窒化物燃料は、燃料中に MA 元素を多様な組成で安定な状態で共存させることが可能である点が MA 核変換燃料として適している。また、融点が高く、かつ熱伝導率が大きいため、定常運転条件において燃料温度を融点よりも十分に低く保つことによって燃料中の物質の移動を抑制することが可能である（「コールド・フューエル(cold fuel)」概念）。これによって、燃料の燃焼に伴う FP ガス放出やスエリングなどが抑制されるという利点がある。一方、天然窒素を用いる場合に大量に生成する C-14 の生成を抑えるために天然存在比が 0.36% の N-15 を濃縮して使用すること、空気雰囲気では化学的安定性が十分ではないため不活性ガス雰囲気で行う必要があることなどの課題がある。また、これまでに高速炉用燃料用の (U, Pu)N などを含めた窒化物燃料の照射挙動については、十分に把握されているとは言えず、今後の試験研究が必要である。なお、燃焼による MA の生成を抑制し MA 核変換速度を大きくするためには、U を含まない燃料が有利である。U を含まない燃料で問題となる燃焼による反応度変化の抑制を実現するために、現在の設計では燃料中に Pu を含むことにしている (MA と Pu の重量比はおよそ 3:2)。また、熱出力調整のために燃料中に含む中性子に対して不活性な母材の第一候補は ZrN であり、その濃度は約 50wt% としている。ZrN は、MA 窒化物や Pu 窒化物と固溶体を形成するため、燃料内の核種分布の均質性を確保するとともに、化学的に不安定な MA 窒化物の安定性を改善することにも寄与する[4, 8]。MA 及び Pu(超ウラン元素: TRU) 含有窒化物の製造については、実験室規模では、原料である酸化物を炭素粉末と混合し、窒素ガス気流中で加熱する炭素熱還元法による窒化物生成後に窒素-水素気流中での加熱により残存炭素を除去する調製法が確立されている。これまでに、この方法などで調製された各種の TRU 含有窒化物を用いた物性測定が実施され、その物性値はデータ集にまとめられている。

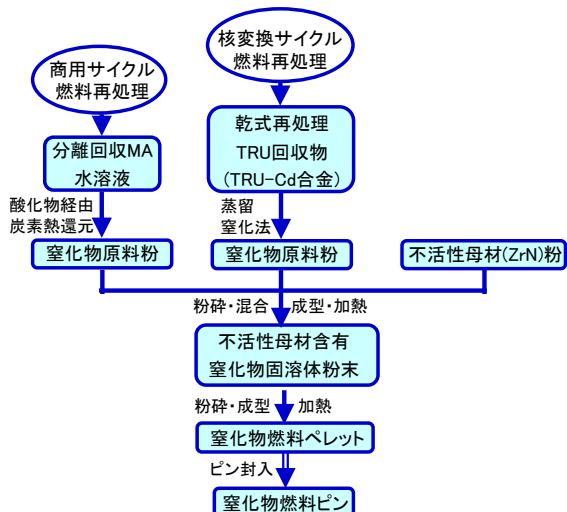


図 4 MA 核変換用窒化物燃料製造工程の概要案

MA 核変換率を向上させるためには、MA 核変換終了後の使用済燃料から残存する TRU を回収し、それを原料として次のサイクルで使用する燃料を製造することが必要である。この燃料処理工程においては、使用済燃料中の核分裂生成物(FP)を分離して安定な廃棄体とする工程も不可欠である。TRU 窒化物は硝酸に可溶であるため、TRU 窒化物への湿式再処理法の適用は可能であると考えられている。しかし、これまでの検討では硝酸に直接溶解すると N-15 の回収が不可能であること、及び処理工程の製品で得られる硝酸溶液から窒化物を製造するには多くの工程が必要なことから湿式再処理法のメリットはないとされている。一方、窒化物燃料は高融点のセラミックスでありながら金属と同程度の電気伝導度を示すこと、窒化物の生成自由エネルギーは熔融塩電解による溶解が可能な程度であること、及び N-15 の回収が比較的容易であることから、金属燃料再処理法として開発された熔融塩電解を主工程とする乾式処理法を第一候補として研究開発を行っている。図 5 には、現在検討されている MA 核変換用窒化物燃料の乾式処理工程の概要案を示す。熔融塩電解工程においては、陽極において窒化物が窒素ガスを発生しながら溶解し、金属元素はイオン化して熔融塩中に溶解する。陽極における金属元素溶解後の熔融塩電解工程の原理は金属燃料再処理と同様で、TRU は塩化物の生成自由エネルギーの差を利用して FP と分離され、陰極において回収される。これまでに検討されてきた陰極に液体 Cd を用いる方法は、Pu と MA を一括回収することができるため、原理的に核拡散抵抗性を大きくすることにも寄与する。熔融塩電解によって液体 Cd 陰極中に回収された TRU 元素を窒化物に転換する再窒化工程では、窒素ガス気流中で TRU-Cd 合金を 700℃程度で加熱する「蒸留窒化法」が開発された。これまでに原子力機構では、Pu 及び MA を含んだ窒化物を用いて実験室規模の乾式処理法要素技術に関する試験を実施し、その原理的成立性を確認している。

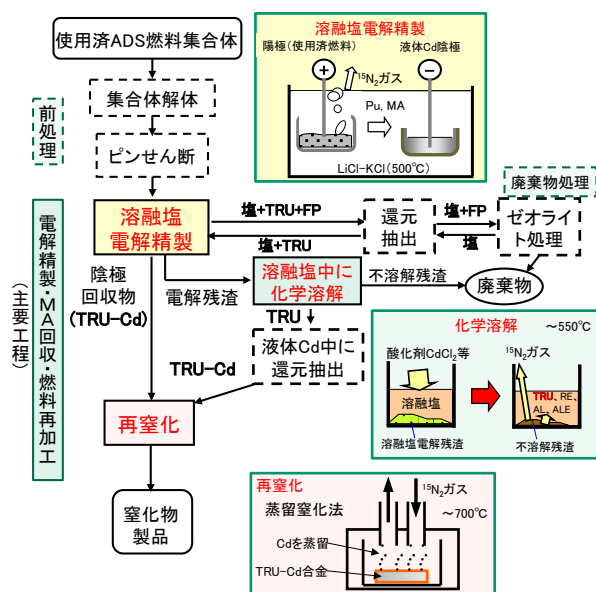


図 5 MA 核変換用窒化物燃料の乾式処理工程の概要

なお、核変換専用サイクルで取り扱う物質の量については以下のように評価されている。現在の ADS(熱出力 800MW)の設計では、炉心に装荷する MA 量は約 2.6t、Pu 量は約 1.8t (TRU 合計 4.4t)であり、1 燃焼サイクル(約 2 年間)で核変換される MA 量は 0.5t である[5, 8]。この MA 量は軽水炉 10 基から 2 年間に発生する量に相当し、軽水炉 40 基から発生する MA を核変換するためには 4 基の ADS が必要となる。4 基の ADS 用の燃料として合計 17.6t(燃焼期間が 2 年間なので、1 年当たり 8.8t)の TRU を含んだ燃料の製造、及び同程度の量の使用済燃料の処理を実施することが必要となる。単純に取り扱う燃料の重量で比較すると、核変換専用サイクルの物量規模は、商用発電サイクルの 1/100 程度であると言える。

3. 今後の計画

ADS に関する基礎的な研究開発が実施されているが、実現には多くの技術課題がある。現在、JAEA では J-PARC の陽子加速器を用いて ADS の枢要技術に対する研究開発を行う核変換実験施設 (TEF: Transmutation Experimental Facility) の建設を計画している。TEF は、400MeV-250kW の陽子ビームを鉛ビスマス核破砕ターゲットに入射して ADS 用中性子源の技術開発と材料照射を行う ADS ターゲット試験施設 (TEF-T: ADS Target Test Facility) と高速中性子スペクトルの臨界集合体と低出力 (10W 程度) 陽子ビ

ームを組み合わせて ADS や FBR を用いた核変換システムの炉物理特性を研究する核変換物理実験施設（TEF-P：Transmutation Physics Experimental Facility）で構成される。TEF-T は、ADS 用ビーム窓材料の流動鉛ビスマス中での材料照射試験を行うとともに液体鉛ビスマスターゲット取扱技術の開発を研究開発目的としている。TEF-P は、未臨界状態とした臨界実験施設に陽子ビームを導入し、高速中性子増倍体系

を核破碎中性子源で駆動する実験装置である。未臨界度の測定精度や反応度に関する情報の精度を高めるために、臨界状態での実験も行う臨界実験装置である。平成 25 年度から実施された「文部科学省 原子力科学技術委員会 群分離・核変換技術評価作業部会」の「中間的論点の取りまとめ」（平成 25 年 11 月）においては、「J-PARC の核変換実験施設については、次のステージに向けて進むことが適当と考える」と評価されており、今後、TEF 建設に向けた取組を進めていく計画である。

また、「中間的論点の取りまとめ」においては、階層型燃料サイクル概念の燃料サイクル技術を含めた各技術分野について、「技術成熟度の検討を行った結果、概ね、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にあり、工学規模の次のステージに移行することが適当である」と評価された。また、既に原理実証段階にあり実用化に近いと評価されている「高速炉サイクル利用型」に対する技術的オプションとしての成立性の判断に必要なデータ・知見を蓄積していくことが必要である、と指摘された。これらの指摘に対して、原子力機構では使用済 MA 核変換用窒化物燃料の乾式再処理技術の技術成熟度を原理実証段階まで引き上げることを目指し、以前よりも取扱試料量の多い試験に適した装置の開発とコールド模擬試料を用いた試験、及び MA の発熱を考慮に入れたバッチサイズの評価などを実施してきた。今後は、TRU 試料を用いた小規模試験をさらに進め、照射済み酸化燃料の湿式処理で得られた廃液から分離回収した MA を用いた試験を実施するとともに、高速炉用金属燃料再処理技術として研究開発が進められてきた塩浴からの FP 除去技術や塩廃棄物の処理技術、及び電解残渣の化学溶解などの周辺工程も含めた技術の工学規模での実証を目指したコールド試験などの取り組みを開始する予定である。

参考文献

- 1) 「「群分離・核変換技術評価について」の中間的な論点のとりまとめについて」文部科学省 科学技術・学術審議会 研究計画・評価分科会 原子力科学技術委員会 群分離・核変換技術評価作業部会 (2013 年 11 月)。



図 6 核変換実験施設(TEF)の概念図

Kazufumi Tsujimoto¹

¹ Japan Atomic Energy Agency