# 高エネルギー加速器セミナー OHO'05

# 陽子ビームの原子核変換応用

柴田徳思(原研)

# 1. 加速器駆動型未臨界炉

#### 1.1. 系内での中性子の振る舞い

中性子を捕獲して核分裂を起こす核種は、核分 裂するときに数個の中性子を放出する。その中性 子が他の核に吸収されて核分裂を起こす。これを 連鎖的に繰り返すのが連鎖反応といわれる現象 である。核分裂で発生する複数の中性子の内1個 より多い中性子が次の核分裂を引き起こすと、連 鎖反応で核分裂の数はねずみ算的に増える。原子 爆弾はこのような原理を利用している。一方、原 子力発電では核分裂で発生する中性子の内、丁度 1 個が次の核分裂を起こすように、中性子を吸収 する制御棒を用いて制御している。この状態を臨 界状態という。このため一定の状態を保って連鎖 反応が続く。しかし、中性子を吸収する制御棒が 誤って抜かれるようなことがあれば、核分裂連鎖 反応が急激に増殖して出力が上昇し、暴走するこ とが有りうるので、これを防止する対策を取らね ばならない。

核分裂で発生する中性子の内、次の核分裂を引き起こす中性子数が1個未満だとすると、連鎖反応はやがて途絶えてしまう。これを未臨界状態という。未臨界状態の原子炉は暴走するどころか、停止してしまうので、ある意味では極めて安全であるといえる。未臨界状態の体系では、中性子を連続的に加えなければ連鎖反応を持続することは出来ない。つまり、未臨界炉でエネルギーを取り出すためには外から絶えず中性子を供給しなければならない。

連鎖反応の続く系で、核分裂中性子に注目したとき、ある世代の中性子数と一世代前の中性子数の比を増倍率 k という。

kの値により、k>1を超臨界、k=1を臨界、k<1を未臨界という。この世代による増倍率の定義は扱いにくいので、実践的な定義として増倍率を炉

心内における中性子のバランスと以下のように 表す。

$$k = \frac{$$
炉内での中性子生成率 $}{$ 炉内での中性子損失率 $= \frac{P(t)}{L(t)}$  (1-2)

炉内での損失は、中性子の吸収と漏れである。 N(t) を時刻 t における中性子数密度とすれば、中性子が炉内から失われるのに要する平均の時間、つまり中性子の寿命  $\ell$  は

$$\ell = \frac{N(t)}{L(t)} \tag{1-3}$$

で表される。但し、この寿命は中性子の物理学的 半減期(615秒)より十分小さいとしている。中 性子の時間変化は

$$\frac{dN}{dt} = \pm 成率 - 損失 = P(t) - L(t)$$
 (1-4)

これより

$$\frac{dN}{dt} = \left[\frac{P}{L} - 1\right]L = (k - 1)L = (k - 1)\frac{N}{\ell} \quad (1-5)$$

を得る。この解は時刻 t=0 での中性子数を  $N_0$  と すると

$$N = N_0 \exp(\frac{k-1}{\ell})t \tag{1-6}$$

となり、臨界状態(k=1)では時間を経ても中性子数は変化なく、超臨界状態(k>1)であれば時間と共に指数関数的に増大し、未臨界状態(k<1)では時間と共に指数関数的に減少する。

核分裂で発生した中性子は、系外へ漏れたり、 核燃料物質以外の物質に吸収されたり、核燃料物 質へ吸収されても捕獲されるだけで核分裂を起 こさない場合があるために、全てが次の核分裂に 使われるわけではない。この様子を図示すると図 1のようになる。

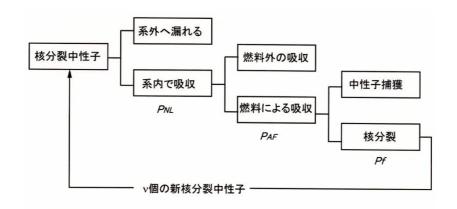


図1 中性子の循環

ここで

 $P_{NL}$ :核分裂中性子が系から漏れずに系内で 吸収される割合

 $P_{AF}$ : 系内で吸収された中性子の内、核燃料に吸収される割合

 $P_f$ :核燃料に吸収された中性子の内、核分裂を引き起こす割合

とする。ここで、核燃料のマクロ吸収断面積を $\Sigma_a^F$ とし、系内の核燃料以外の物質のマクロ吸収断面 積 $\Sigma_a^R$ とすると $P_{AF}$ は

$$P_{AF} = \frac{\sum_{a}^{F}}{\sum_{a}^{F} + \sum_{a}^{R}} \tag{1-7}$$

で与えられる。また、核分裂を引き起こす割合 $P_f$ は核燃料のマクロ核分裂断面積を $\Sigma_f^F$ とすれば

$$P_f = \frac{\Sigma_f^F}{\Sigma_a^F} = \frac{\sigma_f^F}{\sigma_a^F} = \frac{\sigma_f^F}{\sigma_f^F + \sigma_c^F}$$
(1-8)

 $\sigma_a^F$ 、 $\sigma_f^F$ 、 $\sigma_c^F$  はそれぞれ核燃料物質のミクロ吸収断面積、ミクロ核分裂断面積、ミクロ捕獲断面積を表す。これらを用いて現世代の中性子数を $N_1$ とすると次世代の中性子数  $N_2$  は

$$N_2 = \nu P_f P_{AF} P_{NL} N_1 \tag{1-9}$$

であたえられる。ここでレは核分裂当たりに発生

する平均の中性子数である。ここで $\eta=vP_f$ 、  $f=P_{AF}$  とおくと  $N_2=\eta f P_{NL} N_1$  で与えられるので、増倍率 k は

$$k = \frac{N_2}{N_1} = \eta f P_{NL} \tag{1-10}$$

であらわされる。無限の体系では中性子が漏れることはないので $P_{NL}=1$ となり、このときの増倍率を $k_{\infty}$ とすると、 $k_{\infty}$ は

$$k_{\infty} = \eta f \tag{1-11}$$

で表される。

#### 1.2. 系内における中性子の分布

定常状態にある系内の中性子の分布は、中性子東を $\phi$ で表すと次のような拡散方程式で記述できる。

$$D\nabla^2 \phi - \Sigma_a \phi + S = 0 \tag{1-12}$$

ここで、D は拡散係数、 $\Sigma_a$  はマクロ吸収断面積、S は中性子の生成項を表す。中性子が系内の核分裂で発生するものと外から加えられるものと両方の寄与がある場合、

$$S = \nu \Sigma_f \phi + C \tag{1-13}$$

で与えられる。ここで、Cは外部から加えられる

中性子数密度を表す。これより、(1.13)式は

$$\nabla^2 \phi + (\frac{\nu \Sigma_f - \Sigma_a}{D})\phi + \frac{C}{D} = 0 \qquad (1-14)$$

ここで、  $\nu \Sigma_f / \Sigma_a = \nu P_f f = \eta f = k_\infty$ 、  $L^2 = D / \Sigma_a$  とおくと、

$$\nabla^2 \phi + (\frac{k_{\infty} - 1}{L^2})\phi + \frac{C}{D} = 0 \qquad (1-15)$$

となり、外からの供給がなければ

$$\nabla^2 \phi + (\frac{k_{\infty} - 1}{L^2})\phi = 0 \tag{1-16}$$

となる。増倍率kは(1.10)式と(1.11)式から  $k=k_{\infty}P_{NL}$ であり、現実の体系では $P_{NL}$ <1であるので、臨界状態を達成するには $k_{\infty}>1$ であることが必要となる。(1.16)式において、x軸についての 1 次元で考えたとき、 $x=\pm a$  の壁で中性子束を 0 とする。つまり  $\phi(-a)=\phi(a)=0$  なる境界条件を考えると、臨界状態における最低次数の対称分布を持つ $\phi$ は

$$\phi \approx A \cos Bx \tag{1-17}$$

ここで、Aは定数であり、 $B=(k_{\infty}-1)/L^2$ である。このように臨界状態では中性子の分布は距離の変化に対し緩やかな分布を示す。

未臨界の場合にはk < 1であり、 $k_{\infty} < 1$ のときには、

$$\phi \approx e^{-|B|x} \tag{1-18}$$

で表され、距離と共に指数関数的に減少する分布を示す。未臨界の度合いが深いほど急激に減少する分布となる。

### 1.3. 中性子及び核反応の総数

連鎖反応が続いているとき発生する中性子の総数  $N_n$  は、中性子増倍率を k とすると、初めの中性子数を  $N_0$  として次式が成り立つ。

$$N_n = N_0 (1 + k + k^2 + k^3 + \cdots)$$
 (1-19)

k < 1の場合には

$$N_n = \frac{N_0}{1 - k} \tag{1-20}$$

と表すことができる。1回の核分裂で発生する平均の中性子数を $\nu$ 個とすると核分裂の総数 $N_{\ell}$ は

$$N_f = \frac{N_n - N_0}{\nu}$$
 (1-21)

となり、k < 1の場合は、

$$N_f = \frac{N_n - N_0}{\nu} = \frac{N_0 k}{(1 - k)\nu}$$
 (1-22)

で与えられる。

例えば、初めに 40 個の中性子が有って、4 個の中性子で 1 個の核分裂を起こすとし、1 回の核分裂で 2 個の中性子を発生する場合、図 2 に示すように 18 回の核分裂で連鎖反応は停まってしまう。未臨界状態の系では中性子を供給しつづけないと連鎖反応は持続しない。

この中性子源として加速器を使った系を加速器駆動型未臨界炉という。外から入れる中性子のスペクトルと連鎖反応を起こす体系中での中性子のスペクトルは一般に異なるので、外から入れた中性子数を、連鎖反応の続く体系中での実効的な中性子数で置きかえ、この換算係数を $\xi$ とする。

未臨界炉の体系へ、外から加える中性子数を $N_0^A$ とし、発生した中性子の総数を $N_n^A$ とすると

$$N_n^A = \frac{N_0^A \xi}{1 - k} \tag{1-23}$$

で与えられる。また、核分裂の総数 $N_f$ は

$$N_f^A = N_0^A \xi \frac{k}{1 - k} \frac{1}{\nu} \tag{1-24}$$

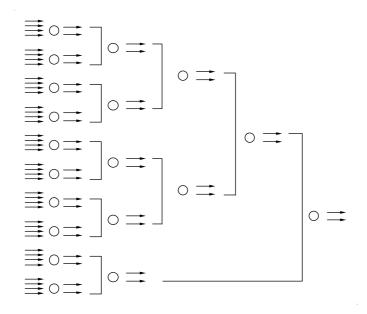


図2 未臨界系での中性子数の変化

で与えられる。

加速器駆動型の未臨界炉は、加速されたビーム をターゲットに入射し、ターゲットで発生する高 エネルギー中性子で核燃料体系を照射し、核燃料 を燃焼させる。中性子捕獲により核燃料になるよ うな親物質と核燃料との混合燃料を用いると、燃 焼を続けながら親物質の核燃料への転換ができ る。このような利用の仕方をしながら加速器駆動 型未臨界炉の運転に必要なエネルギー以上のも のを生み出せるとするとエネルギー増幅が実現 する。また、核廃棄物のうち、半減期の長い核分 裂性核種と核燃料を混合したものを用いて燃焼 させると、半減期の長い核種を半減期の短い核種 に転換することができる。このように長半減期核 種を変換させることができるので変換処理と云 われている。次節以降で示すように、エネルギー 増幅や変換処理のために加速器駆動型未臨界炉 の研究が各国で行われている[1]。

#### 2. エネルギー増幅

#### 2.1. 加速器駆動型未臨界炉によるエネルギー増幅

核分裂性の燃料、又は核分裂性の燃料と減速材を 組み合わせた体系では、体系内の中性子の増倍率  $k \circ k = 1$  に保つようにすると臨界状態となり、外部からの中性子の供給がなくても核分裂は持続する。体系内に中性子を捕獲して核分裂核種に転換できる親物質を含んでいる場合、親物質は転換されて核燃料物質に変わる。未臨界状態 (k < 1) では中性子の供給が止まれば核分裂は停止する。この場合でも系内の中性子の総数は増倍し、核分裂によるエネルギーが発生する。親物質が含まれていれば核燃料に転換される。

高エネルギーの粒子をターゲットに打ちこむと、核反応で中性子を発生することができる。効率の良い大強度加速器があれば、未臨界状態の系に、高エネルギー粒子を体系内のターゲットに打ちこみ、発生する中性子で未臨界体系内での核分裂を持続させることができる。このようなシステムを加速器駆動型未臨界炉という。原子炉を用いて親物質を転換し核燃料を製造する場合、核分裂を起こすための中性子が必要で、さらに転換に要する中性子が必要なため、燃焼だけの場合に比べ、臨界状態を維持する条件が厳しくなる。未臨界系であれば制約がゆるくなり、エネルギー発生と共に親物質の転換を目指すシステムを考えることができる。近年この考え方は C.Rubbia 等がまとめて提案し注目された[2]。

加速器駆動型未臨界炉の特徴及び問題点とし

て以下のことが挙げられる。

- (1) 加速器を停止すると直ちに炉出力が下がる。 したがって、燃焼に異常が発生した場合、通 常の原子炉のように制御棒による停止機構に 頼る必要はない。
- (2) 通常の原子炉で何らかの原因で正の反応度が加わると、臨界を大きく超える反応度事故が起こる可能性がある。このため多重の安全システムを用いて安全性を高めている。これに対し、未臨界系を用いるので暴走する可能性はきわめて小さい。
- (3) 未臨界度が深くなると、中性子分布が指数関数的に急速に減少する分布となり熱設計と燃焼管理に注意が要る。
- (4) 加速器と未臨界炉を結合するところに窓が必要となる。この窓での発熱密度は高く照射損傷も大きいので、材料や冷却に注意が要る。
- (5) 核破砕反応を起こすターゲットでの発熱密度 も高く、照射損傷も大きいのでターゲットの 設計・製作は重要な課題である。液体ターゲットの使用を考える必要がある。
- (6) 通常の原子炉より高エネルギー中性子の生成 が大きいので遮蔽や機器の放射化に注意が要

- る。また、保守上も通常の原子炉と異なる対 策が必要となる。
- (7) 加速器のビームでは加速空洞内の放電などにより瞬間的にビームが途切れることがランダムに発生する。このようなビームの時間的変化がターゲットなどへ影響を与えるので十分な考慮が必要である。

### 2.2. トリウム燃料サイクル

現在、核エネルギーの利用はウラン燃料サイクルを用いている。高速増殖炉は核分裂エネルギーを取り出しながら親物質である <sup>238</sup>U を核燃料物質 <sup>239</sup>Pu に転換するシステムである。

加速器駆動型未臨界炉でエネルギー増幅を考える場合、現在発電に用いられているウラン燃料サイクルに用いることも可能であるが、現在は開発研究に着手し始めたばかりという段階にあり、その実用化には今後かなりの時間を要することが予想される。したがって、高速増殖炉等の開発が進められているウラン燃料サイクルに適用するよりも、加速器駆動型未臨界炉の特徴を生かした新しい燃料サイクルを開発することが考えられる。核原料であるトリウムは熱中性子捕獲による核分裂を起こさないので、核燃料として用いる

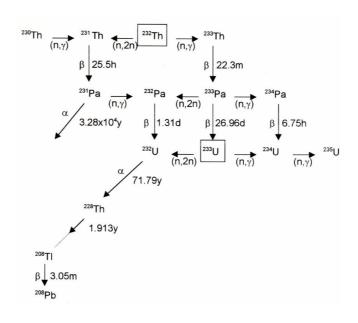


図3 トリウム燃料サイクルに関連する壊変図

ことはできず原子力発電には利用されていないが、中性子捕獲により核燃料に変換される。トリウムの核燃料への変換を含めた燃料サイクルとしてトリウム燃料サイクルが研究されてきた。加速器駆動型未臨界炉とトリウム燃料サイクルと組み合わせたシステムを考えることにより、ウラン燃料サイクルを補完して余りある、新しい核エネルギーの利用が展開できる可能性が広がる。このため新たな燃料サイクルとして注目されている[2],[3]。

トリウム燃料サイクルは、天然に存在する <sup>232</sup>Th の中性子捕獲により <sup>233</sup>Th を生成しβ壊変を 2回経て核分裂性核種 <sup>233</sup>U を生成する方法である。トリウム燃料サイクルにおける主用核種の連鎖 関係を図 3 に示す。

トリウム燃料サイクルの特徴は以下のようにまとめられる。

- (1) 地殻中の元素の割合を表すクラーク数による と資源として地殻中に存在する割合はウラン の3 倍以上多いとされている。但し、調査が 不充分なため確認資源としてはウランよりも 少ない。分布がウランと異なりアジアにも多い。
- (2) ウラン燃料に <sup>233</sup>U を混ぜて使用すれば <sup>235</sup>U の 濃縮に対する要求を減らすことができる。
- (3)ウラン燃料サイクルでは多量の超ウラン元素を生じる。これらの多くは超長半減期のα放出核種で、およそ 100 年後に高レベル放射性廃棄物の主成分となる。これに対し、232Th は質量数が小さいので超ウラン元素の生成がはるかに小さい。このため十万年までの環境への負担が非常に小さい[4]。
- (4)酸化トリウムは融点が非常に高いので高温度 に耐えられ、電力への転換効率のよいシステム が可能になる。
- (5) 233U 燃料が使えるようになれば Pu のリサイクルに対する要求を減らすことが可能となり、Pu を燃焼させて Pu の蓄積量を減らしてもエネルギー資源が確保できることになる。

このような特徴を持つ一方以下のような点で

注意が必要である。

- (1) <sup>232</sup>Th 壊変系列核種の中の <sup>208</sup>Tl は高エネルギーガンマ線を放出するので天然ウランより燃料周辺の線量は高くなり取扱が厄介になる。
- (2)ウランと異なりトリウム燃料サイクルには核分裂性核種は存在しないので、中性子捕獲により 233U を作る必要がある。原子炉を用いて変換を行う場合には臨界を維持するための中性子と変換に用いられる中性子が必要で、中性子損失に対する条件は厳しい。このため加速器駆動型未臨界炉のように中性子を外から供給するシステムに向いている。
- (3)<sup>233</sup>U は熱中性子に対する中性子再生率 η が 2.3 と <sup>235</sup>U や <sup>239</sup>Pu より大きいので熱中性子炉でも増殖できるが、熱中性子炉を用いる場合、遅発中性子の発生率が <sup>235</sup>U よりずっと小さいので、炉の時定数が短くなり制御がやりにくくなるので反応度事故に対する注意が必要である。
- (4)<sup>233</sup>Th から <sup>233</sup>U へ壊変する過程で生じる <sup>233</sup>Pa は半減期が長く熱中性子捕獲断面積が 39b と大きいので <sup>233</sup>Pa(n,γ)<sup>234</sup>Pa 反応により損失を生じる。損失は炉内の中性子エネルギー分布で大きく変わる。

原子力の利用で半減期の長い高レベル放射性 廃棄物の処理が大きな問題となっている現在、超 長半減期のα放出核種の生成が少ないことは エ ネルギー利用の面で非常に有利である。但し、現 在のウラン燃料を用いる原子力発電は、その開発 に非常に多くの時間と資金が投入されてきた。ト リウムサイクルへの転換には膨大な開発研究を 必要とするという問題がある。将来のエネルギー 需要の動向によるが、エネルギーの選択肢を広げ るという観点からその研究開発を進めることは 十分意義があろう。

# 2.3. システムの概要

加速器駆動型未臨界炉では、大強度陽子加速器と、 未臨界炉が組み合わされる。未臨界炉で発生する 熱を電力に変え、この電力の一部で加速器を運転 する。余剰の電力がエネルギー利用に供される。 加速器駆動型未臨界炉を用いるシステムの概念 図を図4に示す。

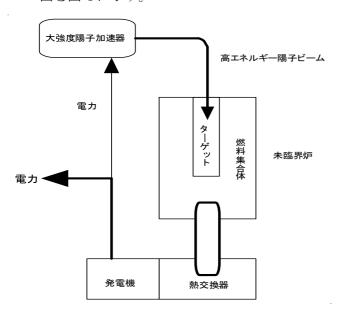


図4 エネルギー増幅システム

加速器駆動型未臨界炉システムをトリウム燃料サイクルへ利用する場合、232Th の転換と核エネルギーの利用の両方が考えられる。ここではエネルギーを取り出すという点からエネルギー効率を考える。

システムがエネルギー増幅として働くためには、核分裂反応によって生じるエネルギーが加速器を含むシステムの運転に必要なエネルギーを上まわらなければならない。システムのエネルギー増幅率 $G_E$ は次式で与えられる。

$$G_E = \frac{N_f^p Q_f \varepsilon_{ACC} \varepsilon_E}{E_n}$$
 (2-1)

ここで、 $N_f^p$ は入射陽子 1 個当たりに引き起こされる核分裂の総数、 $Q_f$  は核分裂エネルギー、 $\varepsilon_{ACC}$  は加速器の加速効率、 $\varepsilon_E$  は電力へのエネルギー変換効率、 $E_p$  は陽子エネルギーである。 $N_f^p$  は(1.24)式で与えられる。

$$N_f^p = N_0^p \xi \frac{k}{1 - k} \frac{1}{\nu}$$
 (2-2)

ここで、 $N_0^P$  は陽子 1 個当たり発生する中性子数、 $\xi$  はターゲットで発生した中性子スペクトルと体系内のスペクトルの差を補正する変換係数、k は中性子の増倍率、 $\nu$  は核分裂当たりに発生する平均の中性子数である。

これらの値は未臨界炉の詳細や、加速器の種類により異なるが、エネルギー増幅率がどの程度になるかおよその値で当たってみる。 例として 1GeV の陽子ビームを鉛ターゲットへ打ちこむとする。

 $N_0^p$ : ターゲットで発生する中性子数でおよそ

 $\xi$ :簡単のため $\xi=1$ とする。

k: 例えば<math>k=0.96とする。

 $Q_f$ : 核分裂のエネルギーとして $Q_f$ ~200MeV。

 $arepsilon_{ACC}$ : 現状の加速器で $arepsilon_{ACC}\sim$ 3%。  $E_{\scriptscriptstyle p}$ : 陽子エネルギー $E_{\scriptscriptstyle p}$ =1 GeV

 $arepsilon_{\it E}$ : 系の温度によるが現在の軽水炉程度として $arepsilon_{\it E}$  ~30%。

これより、 $N_f^p=192$ 、 $G_E=0.35$  となり、エネルギー増幅はできない。これらのパラメータの中で最も改善の期待できる量は、加速器の加速効率であり、少なくとも 10 倍程度の加速効率の改善が必要と考えられる。この改善は、今後の研究開発により十分可能であると考えられている。

その他の課題について以下に簡単に触れる。

未臨界炉の中性子エネルギーを熱中性子の領域で行うか、高速中性子領域で行うかは未臨界炉の設計で重要な点である。核分裂性核種が1個の中性子を吸収して核分裂により発生する中性子の数 $\eta$ は前節で示したように

$$\eta = v \frac{\sigma_f^F}{\sigma_a^F}$$

で与えられる。この値は中性子エネルギーや核種により異なる。 $\eta$ のエネルギー依存性を図5に示

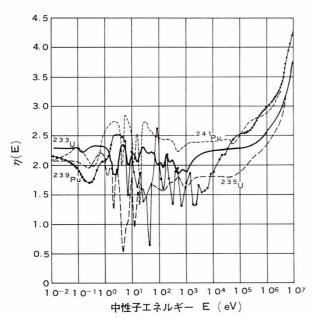


図5 ηのエネルギー依存性

した[5]。この図から分かるように、エネルギーが高いほど $\eta$ は大きくなるので、核燃料の増殖を目的とするときは高速中性子を用いるほうが有利となる。 $^{238}$ Uを用いて $^{239}$ Puを増殖するために高速増殖炉が用いられるのはこのためである。

高エネルギー大強度ビームを打ちこむターゲ ット及び冷却材に何を選ぶかは重要な問題であ る。これまでに提案されているものとして、重水 中に鉛の球を混ぜた流動床をターゲットとし、冷 却材は重水とする案、鉛または鉛とビスマスの液 体金属ターゲットを用いる案、溶融塩をターゲッ トとする案などがある[1]。ターゲットの周辺を核 燃料及び親物質を含むブランケットで囲む構造 となるが、ブランケットの部分を液体金属とする 案と溶融塩を用いる案とが考えられている。液体 金属として鉛や鉛とビスマスの混合物を用いる 場合には系内の中性子のエネルギーは高く高速 中性子炉として働く。溶融塩を用いる場合は溶融 塩の種類にもよるが、LiF-BeF2系溶融塩の場合に は中性子エネルギーは低くなり、熱中性子炉とし て動作する。

核燃料を増殖する場合には、核拡散防止に対す

る考慮が必要となる。トリウムサイクルでは 232U が生成され、233U 燃料の中に必然的に含まれ、高エネルギーのガンマ線を放出する。これを扱うには大掛かりな遮へいが必要となり、過激派など小グループで取り扱うことはできず核拡散防止のために利用できると考えられている。また、238Uを燃料体に混ぜることにより質量分離をしない限り濃縮度を上げられないようにする案も考えられている[6]。

# 3. 長半減期放射性核種の変換

#### 3.1. 長半減期放射性核種の変換処理

我国における原子炉の運転にともない生じる使 用済み燃料の処理は、再処理することにより再利 用できるウラン・プルトニウムを取り出し、残っ た高レベル放射性廃棄物を、超ウラン、Tc・Pt を含む貴金属、Sr·Cs を含む放射性核種、その 他、の4グループに分離し(これを群分離という。)、 利用できない部分を安定なガラス固化体として 地層処分することが方針とされている。超ウラン 元素には半減期の長いアクチナイドが含まれて いて、ウラン鉱石と同程度のレベルになるまでに 数十万年以上かかるといわれている。数十万年の 間安全に保たれていることを事前に証明して保 証することはほとんど不可能である。このような アクチナイドは中性子を捕獲して核分裂を起こ すので、専用の原子炉や加速器駆動型未臨界炉で 核分裂を起こして短寿命核種へ変換させること ができる。

現在、世界的に問題となっている核燃料物質は 軍事用プルトニウム及び発電炉で生じるプルトニウムの処理である。トリウム燃料サイクルでは 超ウラン元素の生成が少ないこと、リサイクルせずにプルトニウムを燃焼させることにより蓄積 量を減らすことができる、などの理由でプルトニウム処理という観点から加速器駆動型未臨界炉とトリウム燃料サイクルの組み合わせで処理する提案もなされている[1]。

表1電気出力1GW。の発電炉から発生するマイナアクチナイド

核種	半減期 3年冷却後	加圧型軸 5 年冷却後	 圣水炉	3年冷却後	高速増殖炉
237 <b>N</b>	p 2.14×10 <sup>6</sup> y	57.9%	41.3%		9.45%
$^{241}\mathrm{Ai}$	m $4.32 \times 10^{2}$ y	27.4%	48.8%		54.9%
242m/	Am $1.60 \times 10^{2}$ y	_	_		1.38%
$^{243}\mathrm{Ai}$	m $7.37 \times 10^{3}$ y	11.9%	8.33%		25.4%
$^{243}\mathrm{C}_{1}$	m $2.91 \times 10^{1}$ y	0.03%	0.02%		0.29%
$^{244}\mathrm{C}_{1}$	m $1.81 \times 10^{1}$ y	2.67%	1.44%		7.73%
$^{246}\mathrm{C}_{1}$	m $4.73 \times 10^{3}$ y	0.15%	0.10%		0.89%
合計(	(1年当たり)	20.9kg	29.8kg		28.8kg

燃燒度:軽水炉 33GWd/t(金属)、高速増殖炉 150GWd/t(金属)

再処理/郡分離時間:5年

ウランプルトニウムの回収率:100%

としている。

### 3.2. 原子炉で生成される放射性核種の量と毒性

原子炉では <sup>235</sup>U と <sup>238</sup>U の混合燃料が使われてい る。これらの物質が中性子を捕獲して質量の大き な元素が生成される。生成される元素は Np、Pu、 Am、Cm などである。これらは超ウラン元素と 呼ばれる。超ウラン元素のうち燃料として再利用 できる Pu を除いた Np、Am、Cm をまとめてマ イナアクチナイドと呼んでいる。原子炉の運転に 伴い生じる放射性廃棄物の量は消費された燃料 の量に依存する。燃料が消費された量を示すのに 燃焼度が用いられる。これは運転に伴い発生した エネルギーの積算で表され、燃料1トン当たりに 発生する積算エネルギー(出力×日数)で表され る。電気出力 1GWe の発電炉から発生するマイナ アクチナイドを表1に示す[7]。この値は、原子炉 の燃焼度を軽水炉について 33GW d/t(金属)、高 速増殖炉について 150GWd/t(金属)として、燃料 を取り出して冷却期間を3年あるいは5年経た後 に再処理し、さらに5年を経て群分離を行う場合 を示している。また、ウラン及びプルトニウムは 100%回収できると仮定している。軽水炉で生成 されるマイナアクチナイドは <sup>235</sup>U の中性子捕獲 と <sup>238</sup>U の(n,2n)反応を経由して生じる <sup>237</sup>Np が最 も多い。冷却期間が長いと <sup>241</sup>Pu のβ壊変により <sup>241</sup>Amが増えてくる。半減期毎にどのような核分

裂生成物を生じるかについて、燃料1トン当たり に生じる量(g)を表 2 に示した[7]。このうち 10 年 以下の核種は短い時間で減衰するので問題とは ならない。また、5×109年以上の核種はウランの 半減期と同等以上に長いので安定同位元素と見 なしてもよい。1年間に燃焼する燃料はおよそ33 トンなので半減期が 10 年以上 5×109年以下の核 分裂生成物はおよそ 140kg となる。これらの超ウ ラン元素及び核分裂生成物の毒性はそれぞれの 核種の放射性毒性による。放射線防護の観点から 放射性同位元素について核種毎に年摂取限度が 決められている。年摂取限度は核種の生物学的半 減期を含めた有効半減期、放射線の種類とエネル ギー、体内における代謝経路、被ばくする器官の 荷重係数などに依存し、経口摂取及び吸入摂取に ついて国際防護委員会が放射線業務従事者に対 し年間に摂取する限度[Bq]を定めている。原子炉 で生じる放射性物質の毒性を示す尺度としてそ れぞれの核種の量を経口摂取に対する年限度で 割った値を指標として用い、放射性毒性あるい は毒性指数と呼ばれている。

軽水炉の新燃料1トン当たりに生じる超ウラン元素(TRU)及び核分裂生成物(FP)の毒性指数を図6に示した[7]。この図では、核分裂生成物として半減期30年以上を対象とし、使用済燃料は燃焼度33GWd/tで3年冷却後を想定している。

表 2 軽水炉で生成される核分裂性生物

半減期	核種	割合 %	量 g/t(金属)
<1年	_	4.8	1650
<1年-10年	$^{106}{Ru}  ^{125}{Sb} \\ ^{127}{Pm}  ^{134}{Cs} \\ ^{154}{Eu}  ^{155}{Eu}$	1.3	451
10年-30年	$^{85}\mathrm{Kr}$ $^{90}\mathrm{Sr}$ $^{137}\mathrm{Cs}$	5.3	1830
30年 - 100年	$^{151}\mathrm{Sm}$	0.03	13
100年 - 104年	無	0	0
10 <sup>4</sup> 年 - 5×10 <sup>9</sup> 年	$^{79}{ m Se}$ $^{93}{ m Zr}$ $^{99}{ m Tc}$ $^{107}{ m Pd}$ $^{126}{ m Sn}$ $^{129}{ m I}$ $^{135}{ m Cs}$	6.6	2270
>5×10 <sup>9</sup> 年	87Rb <sup>115</sup> In <sup>142</sup> Ce <sup>144</sup> Nd <sup>147</sup> Sm <sup>148</sup> Sm <sup>149</sup> Sm	7.6	2620
安定核種		75.1	25800
合 計		100	34300

燃燒度: 33GWd/t(金属)

冷却期間 150 日

灰色の線は再処理過程でUおよびPuの回収率を99.9%、マイナアクチナイドの回収率を100%と仮定して場合である。この図よりはじめの100年は核分裂生成物が毒性の大部分を占めている。その後の毒性の大部分は超ウラン元素の寄与である。したがって、超ウランのうちプルトニウムは燃料として再利用するとして、マイナアクチナイドを短半減期核種に転換することができれば、数100年で毒性指数を十分低い値にすることができ、地層処分が不必要になるか、地層処分をするにしても、非常に僅かの量で済むことになる。変換処理ができると仮定したときの毒性指数の変化を図7に示した[8]。この図は、核分裂生成物について半減期30年以上を対象にし、使用済燃料は燃

焼度 33GWd/t で 3 年冷却後を想定したもので、 U および Pu の回収率を 99.9%を仮定している。 図から分かるようにマイナアクチナイド (MA) と長半減期核分裂生成物 (LLFP) を 99.5%で処 理できたとすると 1000 年程度で天然ウランと同 程度の毒性となり、変換しない場合に同程度の毒 性になるのに 10 万年必要とするのに比べ管理へ の負担は非常に軽くなる。

#### 3.3. 加速器駆動型未臨界炉による変換処理

高エネルギー陽子でターゲットを照射すると 核破砕反応により中性子を発生する。中性子発生 数の陽子エネルギー依存性及びターゲットの質

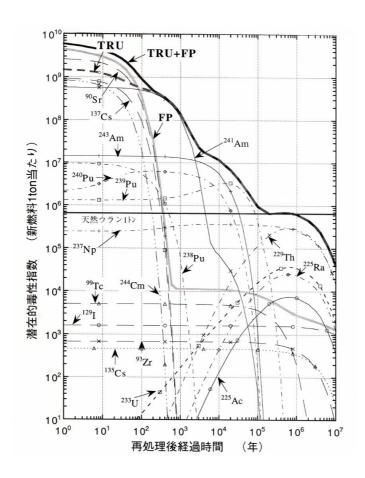


図6 廃棄物の毒性指数

量依存性を図8に示す[9]。この図から分かるようにターゲットとして陽子1個当たりの中性子発生数は質量数の大きいほど増えるので、変換処理の場合、マイナアクチナイドをターゲットにすることができると有利になる。変換処理を行う場合、加速ビームを得るための加速器に費やされる電力があまり大きいと、そのための発電で生じるマイナアクチナイドが増えてしまう。このために核分裂で変換させて、その時に得られる核エネルギーで必要な電力を賄う必要がある。このために核分裂の効率をよくすることが望まれる。マイナアクチナイドはエネルギーの高い中性子に対して核分裂断面積が捕獲断面積を上回る。したがって、炉内の中性子をなるべく高いエネルギーで用いると効率よく変換できる

加速器駆動型未臨界炉で変換処理を行う場合 の全体のシステムは、原理的にエネルギー増幅に 用いるシステムと同じである(図4参照)。表1に 示したように軽水炉1基から年間に生じるマイナアクチナイドの量はおよそ 30kg である。マイナアクチナイドの質量を平均 240 とすると生成される原子数は、年当たり  $7.5 \times 10^{25}$  個となる。陽子 1 個当たりに変換できる数はマイナアクチナイドを直接ターゲットとすると核破砕反応で直接壊れるものと、核分裂で壊れるものがある。なお、中性子捕獲がおこる場合は何回か中性子捕獲を行い、核分裂断面積の大きな核へ転換されてから核分裂することになる。直接核破砕される数を $N_s$  とし、陽子 1 個当たり引き起こされる核分裂の総数を $N_f^p$  とすると陽子 1 個で変換できる数 $N_I$  は $N_I = N_S + N_f^p$  で与えられる。未臨界炉での核分裂総数は(1.24)式で与えられるので $N_I$  は

$$N_I = N_S + N_0^p \xi \frac{k}{1 - k} \frac{1}{\nu}$$
 (3-1)

で与えられる。 $1 {
m GeV}$  の陽子を用いて変換する場合、 $N_S\sim 5$  であり、ターゲットの質量が大きい場合  $N_0\sim 40$  である(図 8 参照)。 $\xi=1$  として k=0.9、 $\nu=2.9$  とすると  $N_0^p=124$  となり  $N_I=129$  を得る。 $1 {
m mA}$  の陽子ビームで変換できる総数  $N_T$  は

 $N_T = 8.1 \times 10^{17} \text{ s}^{-1} \text{mA}^{-1} = 2.5 \times 10^{25} \text{ y}^{-1} \text{mA}^{-1}$  (3-2)

となる。10 基分の軽水炉からのマイナアクチナイドを1年間で処理するためには30mAの電流が必要となる。このときの加速器の出力は30MWである。この核分裂で得られる熱出力Pは陽子ビームの強度を $I_p$ 毎秒とし、核分裂当たりのエネルギ

 $-eQ_f$  とすると

$$P = I_p Q_f N_f^p \tag{3-3}$$

で与えられる。陽子ビーム 30mA とし、 $Q_f$  = 200MeV すると P = 740MW を得る。発電効率を 33%とすると 240MWe の電力が得られる。加速器 の効率が現状のように 3%程度では加速器に必要 な電力 30MW を供給するには 1000MW が必要と なり出力が足らず成り立たない。したがって、効率のよい加速器の開発が重要である。

マイナアクチナイドに対して吸収断面積と核分裂断面積の比 $P_f$ を炉内の中性子エネルギー分布で平均した値が小さいと(1.10)式にあるように中性子増幅率が1よりずっと小さくなり、得ら

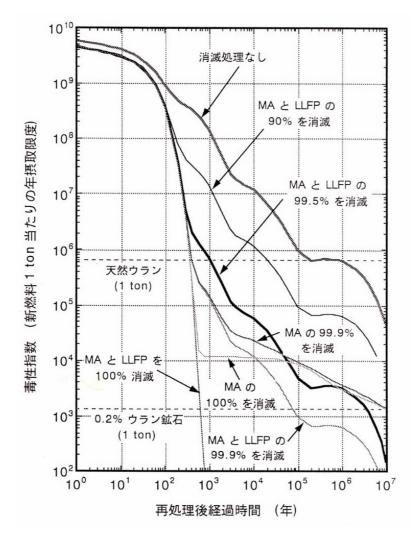
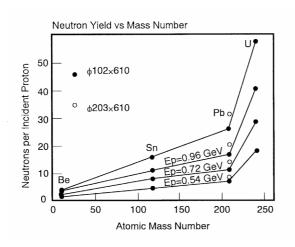


図7 毒性指数の変化



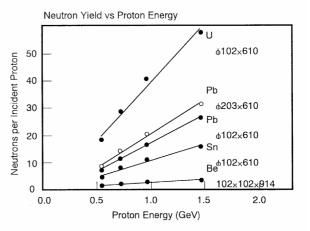


図8 中性子生成量

れる熱出力は小さくなる。また、炉内の中性子東 分布は(1.18)式に示すようにビーム軸を離れる につれて急激に減少する分布となるので炉の効 率は悪くなる。

マイナアクチナイドを燃料とした処理専用の 未臨界炉で変換処理をする場合にも、燃料を処理 し、残ったマイナアクチナイドを取り出し、再び 装荷し燃焼させるなど燃料処理は避けられない。 ビームの除熱や連続処理をするために、溶融塩を 用いたシステムも考えられる。炉内の中性子のエ ネルギーを高くすること、また、マイナアクチナ イドの溶解度の高いことなどで、塩化物溶融塩が 検討されている。

マイナアクチナイドの変換だけでは最終的に 放射性毒性を十分に小さくはできない。核分裂生 成物についても変換する必要がある。いくつかの 核種については化学分離だけで分離し中性子捕 獲により変換できるので、炉内の中性子密度が高 ければ未臨界炉で変換させることも可能である。

高レベル放射性廃棄物の処理について長半減期核種の変換が可能になれば、その後の処理の負担は軽減される。加速器駆動型未臨界炉による核変換技術について、その基礎的な研究が高エネルギー加速器研究機構と日本原子力研究所の合同で計画されている大強度陽子加速器計画の中で予定されている。

# 参考文献

- [1] IAEA-TECDOC-985"Accelerator driven systems: Energy generation and 1. transmutation of nuclear waste", 1997
- [2] F.Carminati etal., CERN/AT/93-47(ET), 1993
- [3] 木村逸郎他、日本学術振興会 未来開拓学術研究推進事業 準備研究報告書, 1999
- [4] S.Raman, C.W.Nestor, Jr., and J.W.T.Dabbs, Nat.Bur.Stand.(U.S.), Spec.Pub.425, p.222(1975).
- [5] A.M.Perry and A.M.Weiberg, "Thermal Breeder Reactors" Ann. Rev. Science **22**(1972)317
- [6] C.D.Bowman, IAEA-TECDOC-985, 1997, p.135
- [7] 向山武彦、消滅処理の現状 「消滅処理」研究 専門委員会報告 p.1、日本原子力学会, 1994
- [8] "Actinide and Fission Product Partitioning and Tranmutation", Status and Assessment Report, OECD/NEA, 1999
- [9] J.S.Fraser and G.A.Barthoromew, "Spallation Neutron Sources", Neutron Sources for Basic Physics and Applications p.217, ed. Cierjacks, Pergamon Press, 1983