

## マイナーアクチニド消滅のための原子炉



竹田 敏一\*

## Nuclear Reactors for Transmutating Minor Actinides

Key Words : Nuclear reactors, Minor actinides, Transmutating

## 1. はじめに

マイナーアクチニド(MA)とは、ウランやプルトニウムの仲間で、比較的その存在量が少ないものを指す。主な元素としては、ネプツニウム(Np, 原子番号93), アメリシウム(Am, 原子番号95), キュリウム(Cm, 原子番号96), カルフォルニウム(Cf, 原子番号98)などがあり、いずれも原子燃料を原子炉で使用したあとに、高レベル廃棄物の一部として発生する。表1に原子炉1基から年間あたりに排出されるMAの量を示す<sup>1)</sup>。大まかに言ってその量は廃棄物全体(ほとんどが核分裂生成物である)の3%に相当し、文字通りマイナーな存在であることがわかる。近年、MAが着目されてきたのは、使用済み燃料の中長期的なリスクの低減という観点からである。図1には、使用済み燃料の持つ放射性毒性の強さの時間的変化を示す<sup>1)</sup>。使用済み燃料からは、主に核分裂生成物からの $\beta$ および $\gamma$ 線が発生するが、概ねこれらに寄与する核種、<sup>90</sup>Srや<sup>137</sup>Csは半減期が30年程度と短く、その

表1 年間あたりのマイナーアクチニド生成量

| 核種                 | 3410MW <sub>t</sub> -PWR |         | 2500MW <sub>t</sub> -FBR |
|--------------------|--------------------------|---------|--------------------------|
|                    | 3年                       | 10年     | 3年                       |
| <sup>237</sup> Np  | 57.9%                    | 41.3%   | 9.45%                    |
| <sup>241</sup> Am  | 27.4                     | 48.8    | 54.9                     |
| <sup>242m</sup> Am | 0.06                     | 0.04    | 1.38                     |
| <sup>243</sup> Am  | 11.9                     | 8.33    | 25.4                     |
| <sup>243</sup> Cm  | 0.03                     | 0.02    | 0.29                     |
| <sup>244</sup> Cm  | 2.67                     | 1.44    | 7.73                     |
| <sup>245</sup> Cm  | 0.15                     | 0.10    | 0.89                     |
| 全重量                | 23.8 kg                  | 33.9 kg | 24.0 kg                  |

計 算：データ JENDL-2, 計算コード SRAC-FPGS  
燃 焼 度：33GWd/MT(PWR) 150GWd/MT(FBR)  
再処理から群分離までの冷却期間：5年  
U, Puの回収率：100%

後急速にリスクが減衰する。数百年程度になると、放射性毒性の主役がプルトニウムやMAからの $\alpha$ 線に移ってくる。さらに、これらの中には半減期が数千年ないし数万年のオーダーのものが含まれており、長期間保管してもなかなか減衰しない。このような長い時間スケールで、人類の手で放射性廃棄物の完全な管理が可能かどうかについては不確定性要因が多く、いわゆる「子孫にマイナスの遺産を残す」という批判の根拠になっている。一方、MAは元々ウランやプルトニウムの仲間であり、中性子と反応して直接あるいは間接的に核分裂する性質を持っている。このため、再処理によりMAを回収

\* Toshiyazu TAKEDA  
1945年12月13日生  
昭和43年大阪大学・工学部・原子力工学科卒業  
現在、大阪大学大学院、工学研究科、原子力工学専攻、教授、工学博士、原子炉物理学  
TEL 06-879-7900  
FAX 06-879-7903  
E-Mail [takeda@nucl.eng.osaka-u.ac.jp](mailto:takeda@nucl.eng.osaka-u.ac.jp)



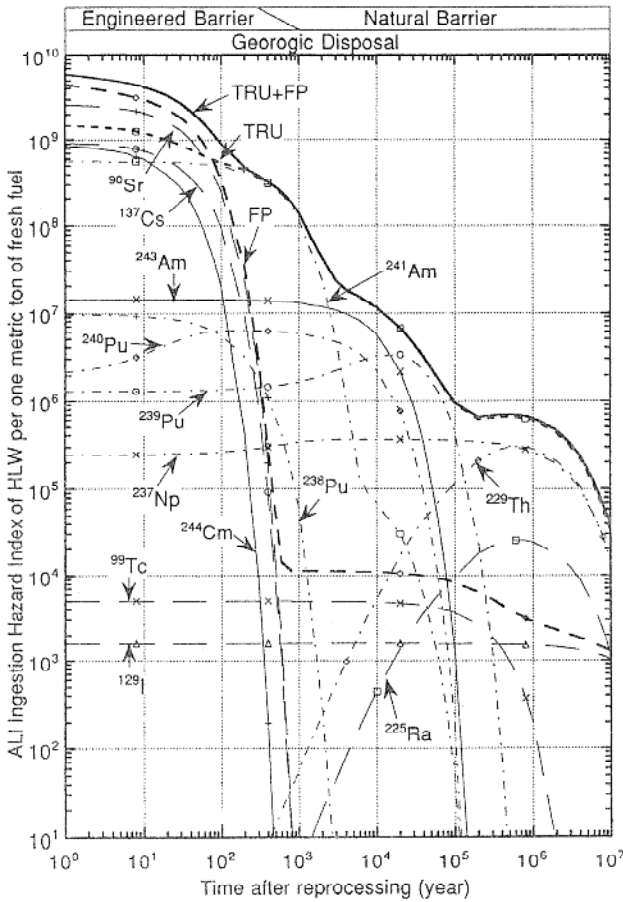


図1 PWRからの高レベル廃棄物の潜在的リスク因子の時間変化

して軽水炉や高速炉でMAを消滅するための多くの研究がなされてきた。

## 2. MA消滅の原理

MAは、中性子反応によって核分裂や捕獲反応を起こし、他の様々な核種に変換される。これらの反応は中性子スペクトルに依存し、原子炉の型によって大きく傾向が異なる。

Salvatores<sup>2)</sup>やHirakawa<sup>3)</sup>の研究では軽水炉では中性子スペクトルの軟らかい(エネルギーが低い)方がMAをより消滅できるということが言われている。我々は軽水炉で、減速材・燃料体積比を0.5~7.0まで変化させることで燃焼計算を行い、MA消滅のスペクトルによる効果を調べた<sup>4)</sup>。その結果1eV以下の中性子の割合が約8%のとき、消滅率が最大になることがわかった。しかし軟らかい中性子スペクトルを用いることで、CmやCfのような高次のアク

チニドが蓄積し、さらに<sup>240</sup>Pu、<sup>242</sup>Pu等のPu同位体が燃焼により相対的に多くなり、いわゆるプルトニウムベクトルの劣化を招く。

そのため、Hayase<sup>5)</sup>や、Masumi, Aoyama<sup>6)</sup>やMukaiyama<sup>7)</sup>らによって、MA消滅のためにはかなり硬い(エネルギーが高い)中性子スペクトルを用いた原子炉が提案されている。核分裂により消滅するMAは軟らかい中性子スペクトルを用いた原子炉より大きくなり、CmやCfの蓄積は小さい。ただしMAの中性子捕獲反応により他のMAに転換し消滅するシナリオはあまり期待できない。例えば<sup>242m</sup>Amの核分裂断面積は低いエネルギー領域で大きな値を持つが、硬い中性子スペクトルの原子炉で<sup>241</sup>Amが消滅することはあまり期待できない。

このように、中性子スペクトルが異なる炉心では、MA消滅のメカニズムが大きく異なるため、MA消滅率の内訳を細分化した新しい尺度が必要になる。軽水炉と高速炉でのMA消滅能力の比較などはその典型的なケースである。

## 3. 新しいMA消滅率の定義

MA消滅にはいくつかの経路があり、核分裂によって消滅するMA、Puに転換するMA、より高次のMAに転換するMA、ウランやプルトニウムから生成されるMAをそれぞれ考慮する必要がある。今まで一般的に使われている消滅率だけで、それらを評価するのは難しいので、通常消滅率に加え他のパラメータを用意する必要がある。

このため一般的に使われている、装荷時と取り出した時のMAの変化率で表されている消滅率を全核分裂率、Pu生成率、MA生成率、元素生成率の4つの成分に分けた。全核分裂率はMAが直接核分裂をするものと、そのMAが他のMAに転換してから核分裂をするものを含んだ消滅率を表す。Pu生成率とMA生成率はあるMAがPuや他のMAに転換した消滅率を表す。元素生成率はあるMAがU、Puや他のMAから生成する割合を表す。

一般的に使われているある核種の消滅率は、炉心に装荷した量と取り出した時の量の重量比から求められる。この定義は、その核種に関わ

る他の核種からの寄与をすべて含んでいるため、反応経路に関する情報が欠落している。そこで、消滅率を分けるために、初めの核種1から時刻Tで核種kが生成される割合すなわち生成割合を導入する。生成割合は中性子束とマイクロ断面積はいままでの燃焼計算で得られたものを使い、任意の核種1だけ存在するという条件でそれぞれ燃焼計算を行うことで計算できる。つまり今までの燃焼計算で得られる中性子束と断面積とは、それぞれのステップでこの目的のために蓄えておいたものである。

この生成割合をもとに、全核分裂率、Pu生成率、MA生成率、元素生成率の4つの成分が求められる。

#### 4. 軽水炉と高速炉のMA消滅性能比較

マイナーアクチニドの消滅率を2つのタイプの高減速軽水炉とMOX燃料、ナトリウム冷却を用いた高速炉、そして金属燃料、鉛冷却を用いた高速炉で4つの成分を用いて比較検討する。

##### 4.1 計算条件

現行の加圧水型原子炉では減速材料燃料体積比( $V_m/V_f$ )=1.7の燃料セルが用いられているが、MA消滅の中性子スペクトル依存性を調べ、大きな減速材対燃料体積比が適当であることがわかった<sup>4)</sup>。例えば、MAを燃料に3%装荷した場合には、 $V_m/V_f=3.0$ が最適点になる。このセルをもつ軽水炉をCase-Aとする。それに対して、セルピッチを固定しMA消滅のための最適な燃料棒半径を見つけた研究も行われた<sup>8)</sup>。このセルをもつ軽水炉をCase-Bとする。燃料に装荷したMAの組成は、 $^{237}\text{Np}$ が49.2%、 $^{241}\text{Am}$ が30.0%、 $^{243}\text{Am}$ が15.5%、 $^{244}\text{Cm}$ が5.0%とした。全体の約半分を $^{237}\text{Np}$ が占めていることがわかる。一方、燃料に装荷するプルトニウム組成(プルトニウムベクトル)は、 $^{239}\text{Pu}$ が56.2%、 $^{240}\text{Pu}$ が24.3%、 $^{241}\text{Pu}$ が12.2%、 $^{242}\text{Pu}$ が7.3%とした。炉心に装荷するプルトニウムの濃度(プルトニウム富化度)は、原子炉の運転期間中に臨界状態を保つ必要があるため、その都度調整する必要があるが、本研究では代表的な炉心として3バッチ平衡炉心を選定し、平衡サイクル末期で無限増倍率が1になるよう

に調整したプルトニウム富化度を使用した。

高速炉ではMOX燃料とナトリウム冷却を用いたものと、金属燃料と鉛冷却を用いたものを考慮した。炉心は内側炉心と外側炉心からなる2領域均質炉心とし、MA富化度は内側炉心が7.5wt%、外側炉心が15.0%とした。プルトニウム富化度は前述のように平衡サイクル末期で無限増倍率が1になるように調整した。

高速炉と加圧水型原子炉の取り出し燃焼度はそれぞれ95.2GWd/tと44.4GWd/tに固定した。MOX燃料とナトリウム冷却を用いた高速炉の電気圧力は1000MWeに固定したが、金属燃料と鉛冷却を用いた高速炉の電気出力は取り出し燃料度が95.2GWd/tになるように1200MWeまで上げた。

##### 4.2 MA消滅能力の比較

図2には、4種類の原子炉における1GWth/year当たりのMAの絶対的な変換率とその4成分を示す。変換率は折線グラフで示してある。変換率においては、元素生成率がMAの発生に寄与、すなわち変換に対して負の寄与をする。すなわち、変換率は、全核分裂率とPu生成率の合計よりも小さくなる。高速炉では、MAやPuの生成が少ないため、その和はほとんど変

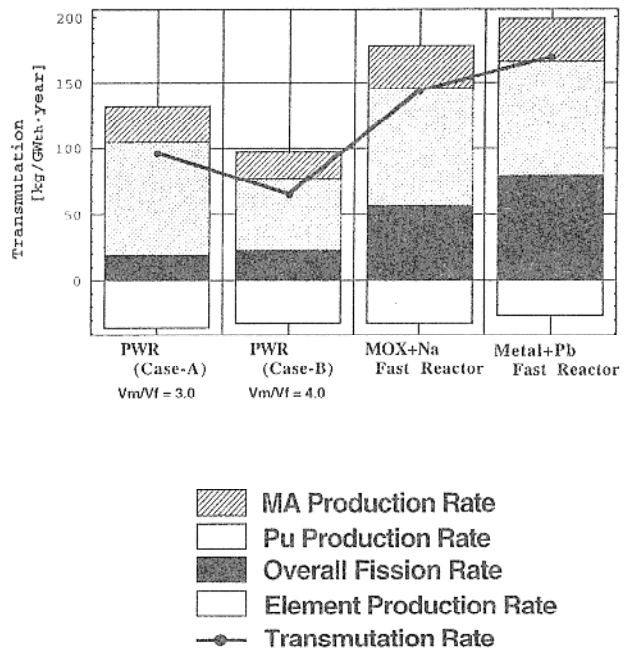


図2 絶対的なMA変換率および4成分の原子炉間での比較

換率に一致する。しかしながら、元素生成率による生成は熱中性子炉では無視できない。

金属燃料鉛冷却型の高速炉では 169 kg/GWth・year の MA を消滅でき、そのうち 79 kg/GWth・year は全核分裂によって燃焼する。全核分裂率は MOX 燃料 Na 冷却の高速炉より大きく、熱中性子炉より 3.5～4.0 倍大きい。熱中性子炉では、Pu 生成率や元素生成率は高速炉のそれとほとんど同じである。Case-A の PWR は 95 kg/GWth・year の MA を消滅でき、Case-B の PWR の消滅量 (65 kg/GWth・year) を上回っている。これは、サイクル毎の MA 装荷量が Case-B では 70 kg に対して、Case-A では 101 kg と多くなっていることによる。しかし、これは Case-B が Case-A よりも全核分裂率が小さいということを意味しない。

### 4.3 MA 核種ごとの分析

これらの現象を理解するために、それぞれの MA 核種ごとの絶対的な変換率とその 4 成分を比較する。図 3 には  $^{237}\text{Np}$ 、 $^{241}\text{Am}$ 、 $^{243}\text{Am}$ 、 $^{244}\text{Cm}$  の変換率と 4 成分の絶対量を示してある。

#### (a) $^{237}\text{Np}$

MA として装荷されているもののうち 49.2

%を占めている  $^{237}\text{Np}$  は、特に高速炉において大きな変換率を持っている。熱中性子炉においては全核分裂による  $^{237}\text{Np}$  の燃焼は少ないが、高速炉ではかなり大きい。これは、 $^{237}\text{Np}$  がエネルギーの高い中性子に対してのみ反応する閾値核分裂を起こしているためである。熱中性子炉では、 $^{237}\text{Np}$  は主に Pu 同位体に変換され、Pu 生成率が大きい。なお、高速炉、熱中性子炉とも MA 生成率は小さい。

#### (b) $^{241}\text{Am}$

熱中性子炉における  $^{241}\text{Am}$  の全核分裂率は  $^{237}\text{Np}$  に比べて大きい、高速炉では  $^{237}\text{Np}$  より小さい。熱中性子炉における  $^{241}\text{Am}$  の全核分裂が多いのは、熱エネルギー領域において大きな断面積を持つ中性子捕獲反応によって生成される  $^{242\text{m}}\text{Am}$  の核分裂による寄与が大きいことが原因である。MA 生成率は  $^{237}\text{Np}$  の時のように無視することはできない。また、 $^{241}\text{Pu}$  の壊変による  $^{241}\text{Am}$  の生成がわずかだが影響する。

#### (c) $^{243}\text{Am}$

$^{243}\text{Am}$  は、高速炉、熱中性子炉ともに全核分裂率は比較的少ない。熱中性子炉では、 $^{241}\text{Am}$  の 2 回の中性子捕獲反応による  $^{243}\text{Am}$  の蓄積が

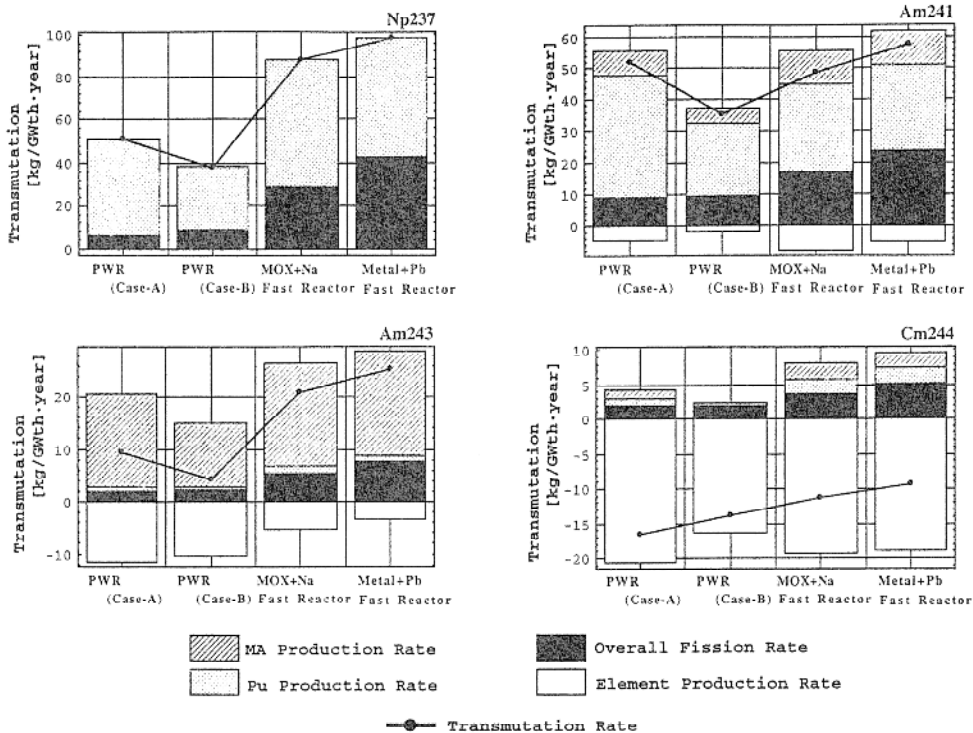


図3 MA 核種毎の絶対的な変換率および 4 成分の原子炉間での比較

多い。また、MA生成率も大きく、その主な生成核種は<sup>244</sup>Amと<sup>244</sup>Cmである。

(d) <sup>244</sup>Cm

<sup>244</sup>Cmでは、全核分裂率、Pu生成率、MA生成率による消滅は少なく、他のMAからの<sup>244</sup>Cmの蓄積がかなり大きい。これより、図2の元素生成率の主な寄与は<sup>244</sup>Cmによるものであることが分かる。

4.4 相対的なMA消滅率の比較

次に相対的なMA消滅率について考える。相対的なMA消滅率とは、1サイクルあたりのMA消滅量をMA装荷量で割った値である。装荷したMAがどれだけ効率良く消滅したかを示す尺度と考えられる。図4は相対的な変換率とその4成分を示す。絶対量を対象とする変換率と異なり、Case-Bが最も大きな変換率をもつことが分かる。Case-Bでの全核分裂率はほぼ高速炉のものと同様になっていて、Case-Aよりも大きい。4つの原子炉の中でCase-Bの相対的な全核分裂率が最も大きいのは興味深い。線出力がCase-A、Case-Bとも同じで、かつCase-Bの方が核分裂生物質の数密度がCase-Aよりも少ないため、Case-Bの中性子束はCase-Aの1.5倍ほどになっている。それ

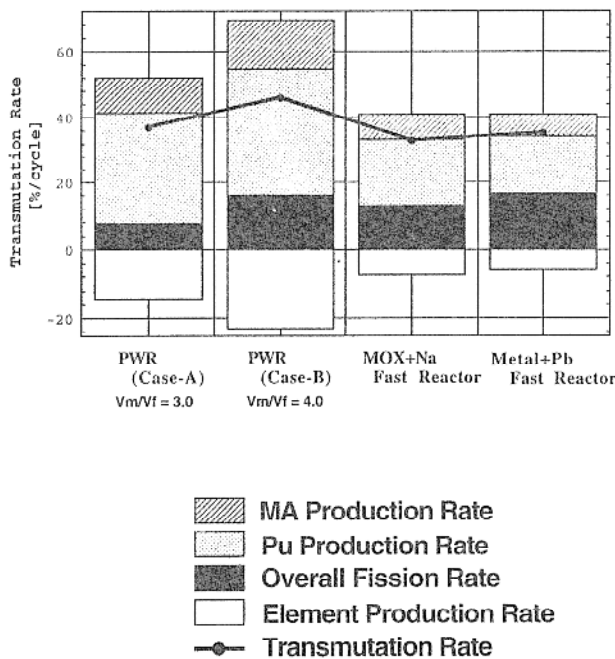


図4 相対的なMA変換率および4成分の原子炉間での比較

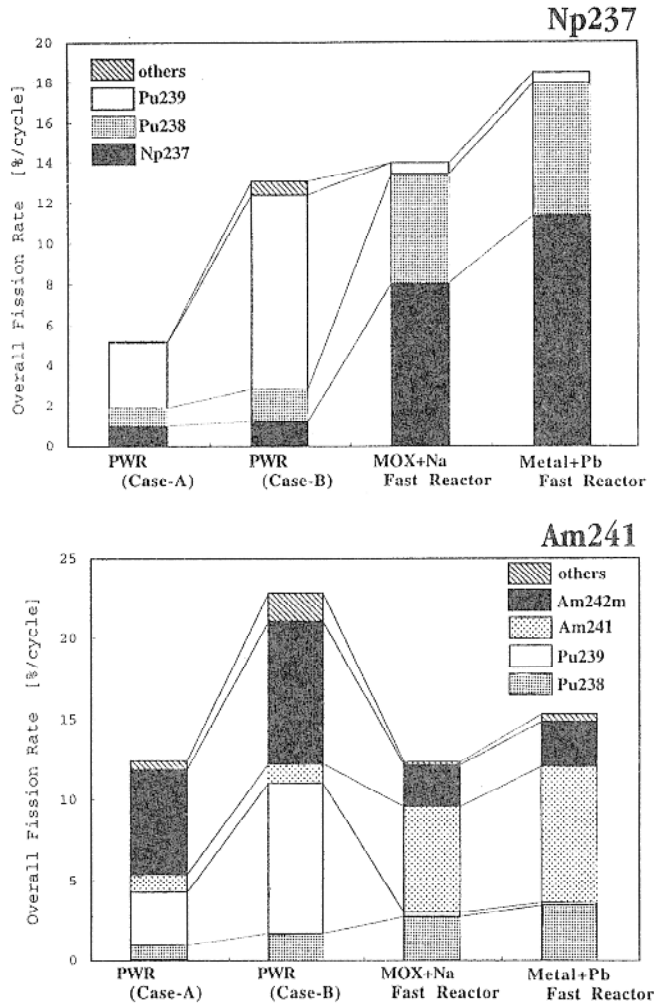


図5 <sup>237</sup>Npと<sup>241</sup>Amの全核分裂率への核種ごとの寄与

ゆえに、Case-BではPu生成が大きく、そのために<sup>239</sup>Puの起こす核分裂が多くなる。このことは、図5より判明する。図5は<sup>237</sup>Npおよび<sup>241</sup>Amの全核分裂率の核種別寄与の値を示している。<sup>241</sup>Amでは、最も大きな全核分裂率はCase-Bであり、その主な寄与核種は<sup>239</sup>Puと<sup>242m</sup>Amである。一方、<sup>237</sup>Npでは最も大きな全核分裂率は金属燃料高速炉であり、その主な寄与は<sup>237</sup>Np自身の起こす核分裂である。Case-Bの全核分裂率はMOX燃料高速炉とほぼ同じ値で、その主な寄与核種は<sup>239</sup>Puである。Case-Aの全核分裂率は小さい。Case-Bの相対的な全核分裂率は最大であるが、燃料半径が0.305 cmしかないので、MAインベントリーは少なく、図2に示したとおり、絶対的な変換率は小さくなる。

5. 超長寿命高速炉による MA 消滅の検討

次に、超長寿命高速炉について検討する。この炉心の特徴は、燃料滞在期間が長く、高燃焼度が得られる点である。MAは<sup>238</sup>Uより優れた親物質として使用できるため、炉心の高性能化が期待でき、燃料交換及び、シャッフリングなしにMAを高い消滅率でエネルギーとして利用しながら、30年程度の連続運転が可能と考えられる。本研究では高い重金属密度、増殖比、融点、熱伝導度を得られ、経済性、安全性に優れた特性を持つ窒化物燃料を使用し、さらに冷却材に鉛を使用することにより硬い中性子スペクトルをねらった。

超長寿命高速炉の計算体系は内側、外側炉心からなる2領域炉心で、径方向長が異なる小型炉心(4.0m)と大型炉心(5.7m)の2種類を用意した。炉心核設計において、炉心のPu富化度とMA添化加量に対するパラメータサーベイをする事により、燃料組成、炉心形状、出力分布、MA消滅量、燃焼反応度(燃焼に伴う臨界性の低下)、高速中性子フルエンス等を評価した。高速中性子フルエンスは、高速中性子の照射量を運転期間中にわたり積分したものであり、原子炉材料の損傷の尺度として使われる量である。

表2に超長寿命高速炉のMA、Pu消滅量、消滅率、燃焼反応度損失、高速中性子フルエンスを示す。図6は実効増倍率の経年変化を示す。図7に小型、大型炉心それぞれの出力分布の経年変化を示す。最適なPu、MAの富化度により燃焼反応度が低減され、出力変動が抑制され

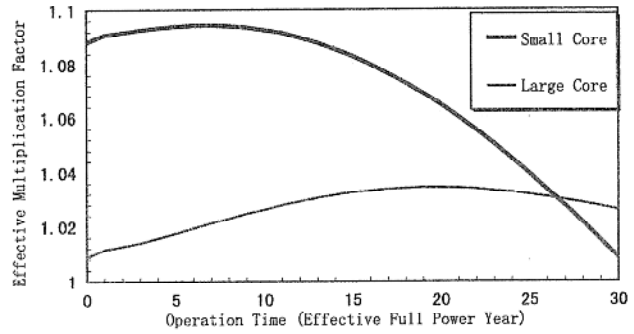
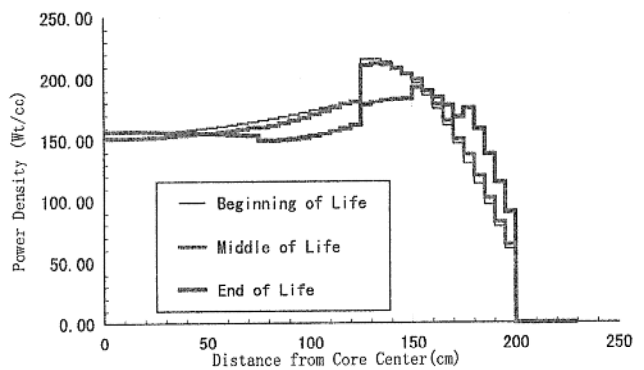
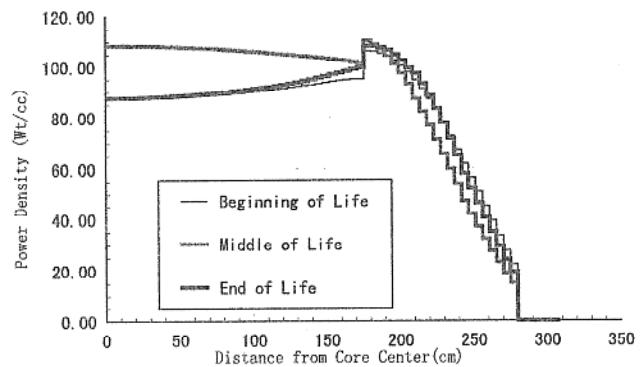


図6 超長寿命炉心の燃焼による反応度変化の比較



(a) small core



(b) large core

図7 超長寿命炉心の出力分布変化の比較

表2 超長寿命炉心の炉心特性

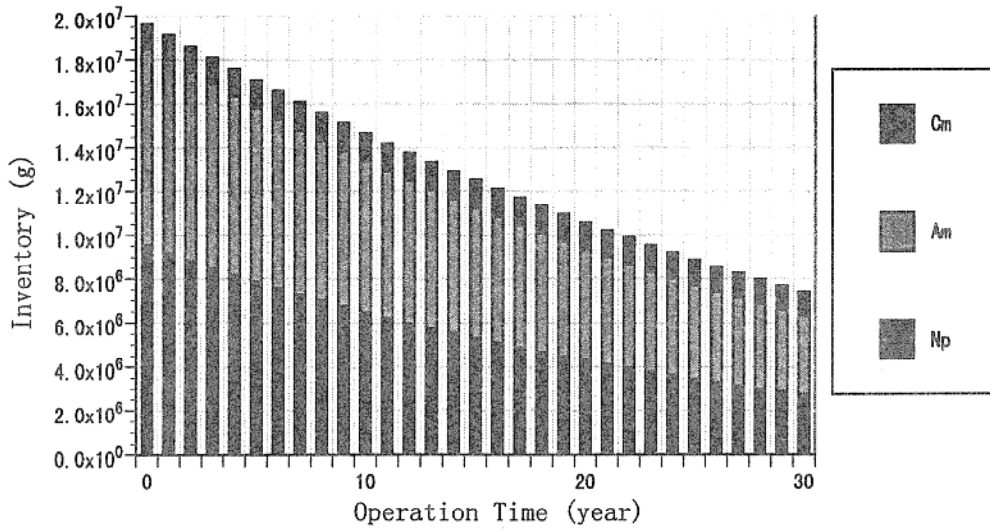
|   | Small Core | Large Core |
|---|------------|------------|
| Loading MA Inventory (t)                                    | 19         | 19         |
| MA Transmutation Amount (t)                                 | 12         | 6.5        |
| MA Transmutation Ratio (%)                                  | 62         | 37         |
| Loading Pu Inventory (t)                                    | 18         | 31         |
| Pu Transmutation Amount (t)                                 | -1.5       | -5         |
| Pu Transmutation Ratio (%)                                  | -9.2       | -15        |
| Burnup Swing (% Δk/k')                                      | 7.7        | -2.4       |
| Fast Neutron Fluence (×10 <sup>23</sup> n/cm <sup>2</sup> ) | 8.3        | 5.0        |

出力分布が平坦化していることがわかる。図8, 9に小型, 大型炉心それぞれの装荷したMAおよびPuのインベントリーの経年変化を示す。30年間のMA消滅量は小型, 大型炉心共に19tのMAを装荷した場合であるが, 一定出力で規格化しているため, 小型炉心では中性子束が高くなり, より高い消滅率が得られた。Puについては両炉心ともに増加した。小型炉心では

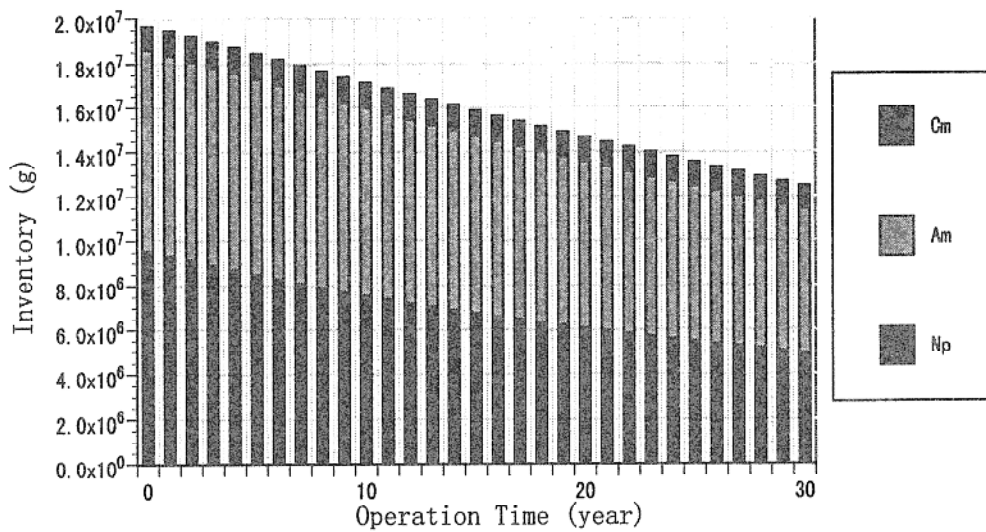
20年を越えたあたりから, Puが減少に転じるが, 大型炉心では増加し続ける。また大型炉心では高いMA, Pu消滅率は期待できないが, 高速フルエンスが低くなることで, 材料的な制約に余裕が生じる。

6. お わ り に

MAの核分裂による燃焼, Puのビルドアッ



(a) small core



(b) large core

図8 超長寿命炉心の燃焼によるMAインベントリー変化の比較

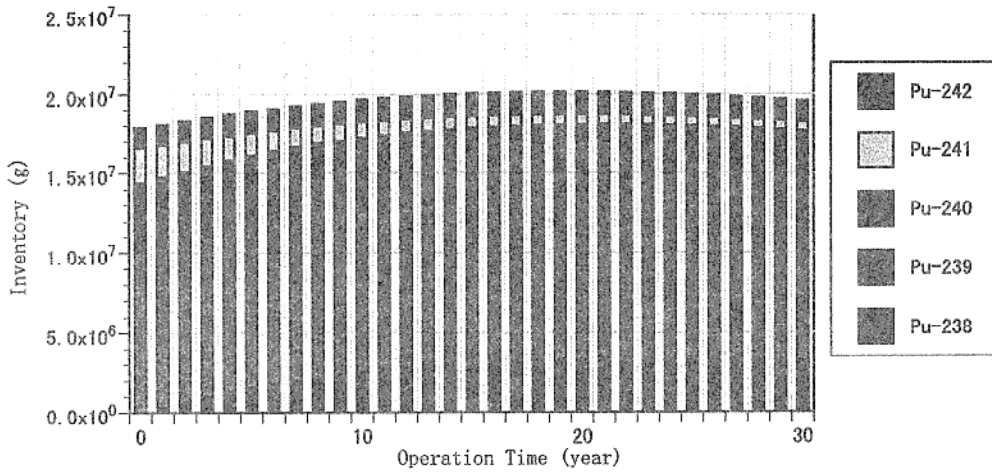
プ、高次 MA の蓄積や MA の生成を評価するために、一般的に用いられている MA 変換率を4つの成分に細分化して詳細に分析した。また、MOX 燃料を用いた2種類のPWRと2種類の高速炉の持つ MA 消滅のポテンシャルを、これら4成分を用いて評価した。

4つの原子炉のうち、MA 消滅に最適なものは金属燃料鉛冷却高速炉であることが分かった。この原子炉は79 kg/GWth・yearのMAを全核分裂率によって消滅できる。また、全核分裂率はMOX燃料Na冷却高速炉に比べて41%大きく、熱中性子の3.5~4.0倍に達する。Case-AのPWRは、Case-BのPWRよりも多くの

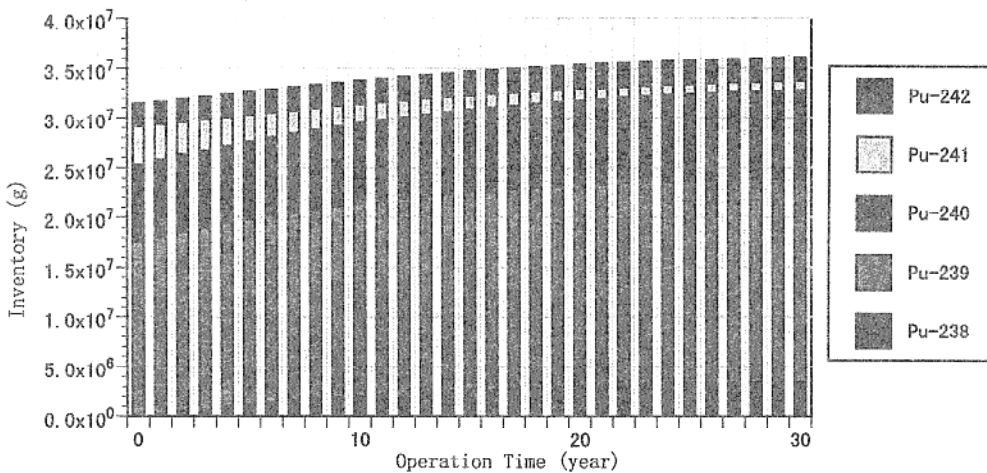
MAを変換できるが、この2つのPWRは同じ全核分裂率(20 kg/GWth・year)を持つ。

全核分裂率による<sup>237</sup>Npの燃焼は熱中性子炉では小さいが、特にCase-Bでは<sup>241</sup>Amの燃焼は大きい。これは、<sup>241</sup>Amに関しては熱中性子炉での燃焼消滅のポテンシャルが高いことを意味している。

多量のMAを30年間で消滅でき、高レベル廃棄物の大幅な低減が可能である超長寿命小型及び大型炉心の特性を比較した。両炉心ともに出力分布、燃焼反応度の変化は少なく、小型炉では高速フルエンスは高いが消滅率は大きい事が分かった。



(a) small core



(b) large core

図9 超長寿命炉心の燃焼によるPuインベントリー変化の比較



参 考 文 献

- 1) 安 成弘, 他 : 消滅処理研究の現状, 日本原子力学会 (1992)
- 2) M. Salvatores, et al. : Nucl. Sci. Eng., 116, 1 (1994)
- 3) T. Iwasaki and H. Hirakawa : J. Nucl. Sci. Technol., 32 [1], 8 (1995)
- 4) T. Takeda and K. Yokoyama : Ann. Nucl. Energy, Vol.24, No.9, pp.705-719 (1996)
- 5) T. Hayase, et al. : Int. Conf. on Physics of Reactors, Vol.4, PIII-1 (1990)
- 6) R. Masumi and M. Aoyoma : J. Nucl. Sci. Technol., 32 [10], 965 (1995)
- 7) T. Mukaiyama, et al : Proc. Int. Conf. on the Physics of Reactors, Operation, Design and Computation, Vol.I, p.97 (1990)
- 8) T. Takeda and H. Nakabayashi : To be published in International Conference on Future Nuclear Systems, Global97, Oct.5-10, 1997, Yokohama, Japan.

