



Title	長寿命放射性廃棄物の中性子核転換処理 : トカマク炉による ^{241}Am の消滅計算
Author(s)	松本, 高明; Matsumoto, Takaaki; 片山, 明石 他
Citation	北海道大學工學部研究報告, 111, 63-73
Issue Date	1982-10-30
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/41764
Type	departmental bulletin paper
File Information	111_63-74.pdf



長寿命放射性廃棄物の中性子核転換処理
——トカマク炉による ^{241}Am の消滅計算——

松本高明* 片山明石** 千田正宣*** 植松邦彦****
(昭和57年6月30日受理)

Neutron Transmutation of Long-Lived Radioactive Wastes

—— Depleting Calculation of ^{241}Am
in a TOKAMAK Fusion Reactor ——

Takaaki MATSUMOTO, Meiseki KATAYAMA,
Norio SENDA and Kunihiko UEMATSU

(Received June 30, 1982)

Abstract

The physical feasibility of the neutron transmutation by a fusion reactor was evaluated. A single isotope ^{241}Am was assumed to be irradiated for 20 years in a blanket region. A calculating system of ANISN-ORIGEN was used.

It was shown that under the neutron flux $3 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$. the total quantity of the actinides is reduced to about 25% of that resulting from spontaneous decay.

1. 序 論

原子力発電所において使用した核燃料は再処理工場において溶解され、核燃料として再利用できるU及びPuが回収される。その際、高レベルの放射性廃液(High Level Radioactive Waste: 以下においてHLWと略す)が発生し、その処分が現在大きな話題となっている。HLWの放射能の原因となる主なものは、(イ)核分裂生成物 および(ロ)アクチニド核種である。後者のアクチニド核種はさらに(A)再処理工程において回収されないで廃液中に残存した少量のUおよびPuと(B)燃料照射中に中性子吸収及び核崩壊によって生成したNp, Am, Cmなどの超ウラン元素に区分できる。核分裂生成物による放射能は、比較的早く減衰して約1,000年程度の時間経過で無害になるとされている。しかしながら、アクチニド核種は α の放出体で毒性が強く、しかも中には半減期が 10^7 年にも及ぶ核種が含まれているため、超長期にわたって人間環境から隔離して保管することは極めて困難である。例として第1図に、軽水炉において照射した使用済核

* 原子工学科 原子炉工学講座
** 原子工学科 放射体応用学講座
*** センチュリーリサーチセンター-k.k.
**** 京都大学原子エネルギー研究所

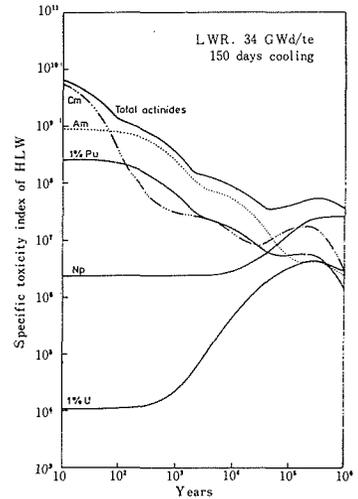
燃料のHLWのアクチニド核種に関する毒性^(注1)の時間変化を示す⁽¹⁾

将来、我国をも含めた世界において原子力発電所の建設、運転が増大し、核燃料の高燃焼度利用およびPu燃料の広範囲の利用と相まって、相当量のアクチニド核種の蓄積が予想されている。OECD加盟国全体で、1976年から2000年の期間に積算約80tonのアクチニドが原子力発電所の運転によって生成されることが予想されている⁽²⁾。また米国においても、1988年から2010年の期間に積算約770tonのアクチニド核種が軍事施設とは別に原子力発電の結果蓄積するものと見込まれている⁽³⁾

HLWの処理、処分の方法として現在いくつかの方法が提案され、研究開発が続けられている。これらの方法は大別して2つのカテゴリーに分けることができる：(イ) HLWの現在の処理・処分技術をさらに改良して長期的な危険性を減少させようとする方法で、例えば、HLWの固化技術の研究開発および処分立地の工夫などが含まれる。(ロ) アクチニド核種そのものを人間環境より無くしてしまう方法。これにはロケットによる宇宙空間への廃棄方法および中性子核転換法などが挙げられる。

中性子核転換法は実現の可能性の大きな方法で、最近になって欧米において注目され研究開発が行なわれている⁽⁴⁾。中性子核転換法とは、アクチニド核種の大部分が数100KeV以上において核分裂反応がかなりの確率で起こることを利用するものである。核分裂反応の結果、長寿命のアクチニド核種はより短寿命の核分裂生成物に変換される。このことは α の放出体から β または γ の放出体への変換でもあり、2重の意味において長期的な危険性を減少することができる。中性子核転換法に用いられる中性子源としては、(イ) 軽水炉および高速炉などの分裂型原子炉、(ロ) 核融合炉、および(ハ) 高エネルギー加速粒子による破砕反応、などが候補に上っている。

本論文においては、高中性子束および高エネルギー・スペクトルの場が期待できる核融合炉をアクチニド消滅用の中性子源としてとり上げ、ブランケットに²⁴¹Amを装荷した時の消滅計算を行なった。次節において中性子核転換法の概説を述べる。第3節において、ANISN-ORIGENコード・システムを用いた計算のモデルを説明し、第4節において計算結果を述べる。



第1図 HLWのアクチニド核種に関する毒性の時間変化

2. 中性子核転換法

中性子核転換法は、1972年に米国のORNLのClaboneが軽水炉PWRを用いて放射性廃棄物の消滅の可能性を検討したのが最初である⁽⁵⁾。一般に物質を中性子場で照射した場合、物質は中性子吸収(n, γ)、核分裂(n, f)及び(n, n')、(n, p)、(n, α)などの核反応によって

(注1) 毒性の定義は次式で与えられる;

$$\phi = \sum_i \phi_i = \sum_i Q_i / MPC_i$$

ここに Q_i : i 核種の量

MPC_i : i 核種の最大許容濃度。水および空気による希釈についてそれぞれ値が決められている。

核転換を受ける。これらの核反応の中で中性子核転換法として利用できるものは、(i)核反応断面積が十分に大きくて、照射に必要な中性子場の強度が現在または近い将来において利用可能であること及び、(ii)核転換によって生成した核種が短寿命であるかまたは放射能の危険性が低いことなどが条件になる。例えば、核分裂生成物の中性子核転換処理法も考えられているが、この場合中性子吸収が主な反応になり、 ^{139}Cs 、 ^{60}Co など核分裂生成物の主要核種の大部分はその断面積が小さいので、極めて強い中性子場が必要となり困難視されている。一方アクチニド核種の場合、中性子吸収によって生成する核種は核転換前と同じ超ウラン元素であるため（核種により半減期及び放射性危険度が異なるため、アクチニド全体について若干の危険度の増減があるが）余り有効でない。この場合は核分裂反応が主要な反応となる。

アクチニド核種の中性子場において照射した場合、アクチニド核種の消滅は次式で表わされる⁽⁶⁾⁽⁷⁾

$$\frac{dX_i}{dt} = \sum_{j=1}^N l_{ij} \lambda_j X_j + \phi \sum_{k=1}^N f_{ik} \sigma_k X_k - (\lambda_i + \phi \sigma_i) X_i + S_i \quad (1)$$

$$: \quad i = 1, 2, \dots, N$$

ここに X_i : 核種 i の原子密度

λ_i : 核種 i の崩壊定数

l_{ij} : 核種 j の放射性崩壊により核種 i が出来る割合

f_{ik} : 核種 k の核反応により核種 i が出来る割合

ϕ : 空間とエネルギーで平均した中性子束

S_i : 核種 i の系外への出入率

ϕ は厳密には時間に依存する量であるが、時間的変動が緩やかであるので一定と仮定すると、(1)式は定数係数の1階常微分方程式となる。(1)式をベクトル表示して、核分裂反応を分けて書くと、

$$\frac{dX}{dt} = \langle A' \rangle X - \langle \phi \sigma_f \rangle X + S \quad (2)$$

ここに $\langle A' \rangle = \langle A \rangle - \langle \phi \sigma_f \rangle$

全アクチニド核種に関する消滅方程式は、(2)式の両辺を核種について加え合わせて得られる。 A' に関してはアクチニド核種の保存則が成り立つので、

$$\frac{dX}{dt} = -\langle \phi \sigma_f \rangle X + S \quad (3)$$

ここに X : 全アクチニド核種の密度

S : 全アクチニド核種の出入率

$\langle \phi \sigma_f \rangle$: アクチニド核種1固当りの核分裂反応率

定常状態では $dX/dt = 0$ なので、

$$X = S / \langle \phi \sigma_f \rangle \quad (4)$$

したがってアクチニド核種の照射場における平均寿命 $\langle l \rangle$ は次のように定義できる。

$$\langle l \rangle = N / S = 1 / \langle \phi \sigma_f \rangle \quad (5)$$

(5)式より $\langle l \rangle$ の短い有効な中性子核転換を行なくためには、 $\langle \phi \sigma_f \rangle$ が大きくなければならない。そのためには (i) ϕ の大きな高中性子束場を用いること、及び (ii) σ_f の大きなエネルギー・スペクトル場であること、即ち、超ウラン元素には数100KeVの核分裂しきい値をもつ核種が多いので、スペクトルの硬い中性子場が有利である。

3. トカマク炉によるアクチニド消滅計算のモデル

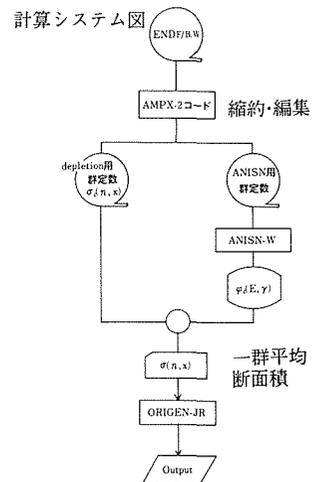
D-T反応を利用する核融合炉は14MeV中性子を発生するので、高速炉と同程度またはそれ以上の高エネルギー・スペクトル場が得られる可能性がある。さらに分裂型の原子炉に比べて比出力においてneutron-richであるため高中性子束場が期待できる。これらの点から核融合炉をアクチニド消滅炉として利用することは以前から考えられており、米国のEPRIではトカマク炉TFTRを念頭においた設計計算を行なっている⁸⁾。EPRIの計算では、装荷されるアクチニド核種の成分として使用済燃料中の成分がそのまま用いられている。

中性子核転換法は使用済燃料の再処理工程においてアクチニド核種が効率よく分離できることを前提としている。現在研究開発が進められている群分離法ではAm-Cmが混合体として抽出される。したがってAm-Cm混合体を照射試料として用いる場合が最も現実的である。本報告ではAm-Cm混合体の消滅計算を行なう前に、まず²⁴¹Amの単体照射によりどの程度の消滅が可能であるかの計算を行なった。それは(i)アクチニド消滅計算のシステムを確立すること及び(ii)単体照射の計算により、混合体照射の場合のアクチニド核種の消滅の道筋を明らかにするためである。

アクチニド核種の消滅計算を行なうためには、アクチニド核種の中性子核データが不可欠であるが、現在のところ核データには不備な点が多い。それは(i)Am, Cmなどのアクチニド核種は原子炉中に余り多く存在しないので、原子炉物理の観点からは重要視されなかった。また(ii)核データ測定のための試料入手が困難であるなどの理由によっている。したがってアクチニド消滅計算の精度を向上させるには、(i)核データの精度を上げること、及び(ii)感度解析を行なうことなどの努力が必要である。本報告で述べる単体照射の計算はアクチニド消滅の道筋が定量的に明らかになるので、感度解析と同じような役割が期待できる。

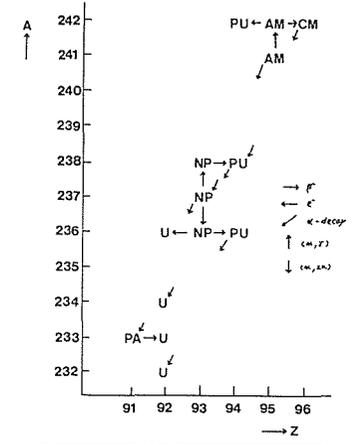
計算モデルは、アクチニド消滅における物理的可能性を検討することを主眼としたために簡単なモデルを採用した。すなわちトカマク炉のドーナツ形状を無視して、体系は円柱及び球体系として一次元で取扱った。また核融合燃料のD及びTは極めて希薄であるので、中性子スペクトルへの影響は無視した。したがって核融合反応領域は単なる14MeV中性子発生を伴う真空領域として取扱った。²⁴¹Amは酸化物の形でブランケット領域に装荷し、その外側に中性子利得を上げるための黒鉛の反射体を配置した。よって体系は3領域より構成され、(i)中心部の真空(中性子源)領域、(ii)²⁴¹Am装荷のブランケット領域及び(iii)黒鉛の反射体領域である。

第2図にアクチニド消滅計算の流れを示す。計算は大別して2つの部分より成立っている。すなわち(i)体系中の中性子エネルギー・スペクトル及び平均中性子束 ϕ の計算、(ii) ϕ を入力とした(1)式によるアクチニド核種の生成消滅の計算。前者の中性子エネルギー・スペクトルの計算は中性子輸送計算コードANISNを用いて行なった。100群の多群 $S_N(N=16)$ 計算である。散乱における非等方性は P_3 まで考慮した。使用した核データのライブラリーは、ENDF/B-IVである。AMPX-2コードにより100群の群定数を作成してANISN計算の入力とした。後者のアクチニドの生成消滅計算はORIGEN-JRにより行なった。ここで使用される断面積は1



第2図 アクチニド消滅計算の流れ

群表示であるので、ANISN 計算により得た中性子スペクトルを重み関数として1群平均断面積を計算した。計算に用いた下限及び上限エネルギーはそれぞれ 1.0×10^{-4} eV 及び 1.49×10^7 eV である。第3図に ORIGIN 計算に用いられているアクチニド核種の崩壊形式を示す。



第3図 アクチニド核種の崩壊形式

4. 計算結果

計算は第1表に示す3つの体系について行なった。各体系について ANISN コードにより 100群の P₃-S₁₆ の計算を行ない中性子のエネルギー・スペクトルを求めた。ブランケット領域の中心における中性子スペクトルを重み関数と

		真空領域	ブランケット領域	反射体領域
No.1	球	半径 0~25 cm	25 ~ 30	30 ~37.5
No.2	円柱	0~30	30 ~42.5	42.5~52.5
No.3	円柱	0~37.5	37.5~52.5	52.5~62.5

第1表 計算を行なった体系

して、ORIGEN 計算用の1群断面積を13種のアクチニド核種 (^{233, 234, 235, 236}U, ²³⁷Np, ^{238, 239, 240, 241, 242}Pu, ^{241, 243}Am及び²⁴⁴Cm) について求めた。第2表に各体系における1群平均断面積 $\sigma(n, f)$, $\sigma(n, \gamma)$, $\sigma(n, 2n)$ 及び $\sigma(n, 3n)$ の値を比較して示す。その他の核種については必要な核データが ENDF/B-IV に収納されていないので、ORIGEN コード備え付けの値を使用した。上記13種のアクチニド核種について、スペクトル計算より求めた1群断面積を ORIGIN コード備え付けの値と比較して示す。高次のアクチニド核種になる程、両者の差が大きくなる傾向がある。またしきいエネルギーの高い断面積ほど両者に差が現われているが、これは本計算では 14MeV 中性子源を使用したために高エネルギー・スペクトルになっているからである。

中性子エネルギー・スペクトルの計算結果の例として、体系毎のエネルギー・スペクトルを第4図から第6図に示す。ここに MESH-6 はブランケット領域の中心、MESH-4 及び-8 はそれぞれブランケット領域の内側及び外側の境界点を示す。当然のことながら MESH-8 において黒鉛の反射体効果によりスペクトルが軟かくなっている。また第7図から第10図に体系No.1に関するエネルギー毎の中性子束の空間分布を示す。GROUP-1 は14MeV 中性子源のエネルギー群であるため体系中心において盛り上っている。GROUP-10~60は高エネルギー群に相当し一様分布に近い。GROUP-70~100の低エネルギー群は黒鉛反射体の効果が著しい。

次に²⁴¹Amをブランケット領域に装荷した場合の消滅計算を ORIGIN-JR コードにより行った。 ϕ の入力としてブランケット領域の中心点における中性子束を利用した。中性子束をパラメータ

第2表 一群断面積の比較

	$\bar{\sigma}(n, f)$				$\bar{\sigma}(n, \gamma)$			
	ORIGEN -LIB	THIS WORK LIB			ORIGEN -LIB	THIS WORK LIB		
		No.1	No.2	No.3		No.1	No.2	No.3
U-233	3.15	2.122	2.148	2.151	3.96-1	1.405-1	1.490-1	1.497-1
U-234	5.10-1	6.240-1	5.726-1	5.684-1	4.50-1	2.951-1	3.106-1	3.120-1
U-235	2.03	1.440	1.454	1.455	5.66-1	2.678-1	2.880-1	2.898-1
U-236	1.16-1	2.801-1	2.456-1	2.429-1	6.63-1	2.926-1	3.075-1	3.088-1
Np-237	3.60-1	7.070-1	6.450-1	6.398-1	7.65-1	6.300-1	6.836-1	6.884-1
Pu-238	1.38	1.394	1.338	1.333	2.24-1	1.364-1	1.483-1	1.494-1
Pu-239	1.85	1.695	1.680	1.679	5.03-1	1.732-1	1.892-1	1.906-1
Pu-240	3.54-1	7.145-1	6.567-1	6.519-1	4.15-1	2.071-1	2.356-1	2.251-1
Pu-241	2.49	1.888	1.907	1.909	4.32-1	2.201-1	2.346-1	2.359-1
Pu-242	2.78-1	6.127-1	5.602-1	5.558-1	3.42-1	1.317-1	1.411-1	1.419-1
Am-241	4.63-1	6.359-1	5.783-1	5.737-1	9.90-1	3.632-1	4.032-1	4.069-1
Am-243	2.37-1	8.434-1	6.581-1	6.446-1	5.55-1	1.233	1.164	1.160
Cm-244	4.12-1	9.489-1	8.825-1	8.770-1	3.73-1	1.655-1	1.783-1	1.794-1

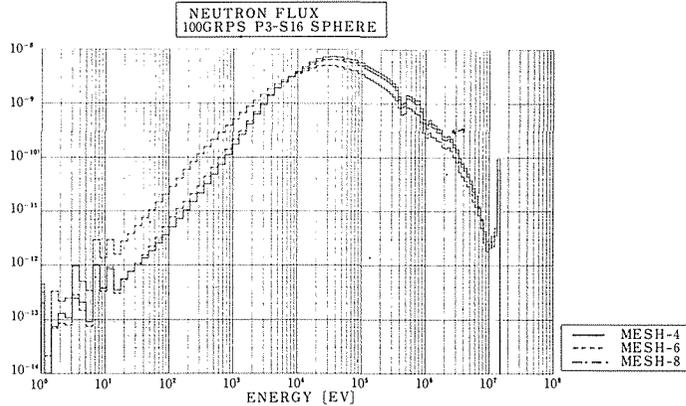
	$\bar{\sigma}(n, 2n)$				$\bar{\sigma}(n, 3n)$			
	ORIGEN -LIB	THIS WORK LIB			ORIGEN -LIB	THIS WORK LIB		
		No.1	No.2	No.3		No.1	No.2	No.3
U-233	2.48-4	2.070-2	1.449-2	1.403-2	4.72-7*	1.314-3	8.302-4	7.964-4
U-234	5.40-4	1.359-2	9.003-3	8.672-3	3.30-6	4.907-3	3.106-3	2.979-3
U-235	1.12-3	1.414-2	1.014-2	9.846-3	3.52-6	1.077-2	8.107-3	7.906-3
U-236	4.88-4	2.352-2	1.641-2	1.589-2	5.40-6	1.790-2	1.138-2	1.092-2
Np-237	9.75-5	1.811-2	1.269-2	1.224-2	7.10-7	2.629-3	1.665-3	1.597-3
Pu-238	1.95-4	2.840-3	1.930-3	1.864-3	2.25-6	6.420-4	4.058-4	3.892-4
Pu-239	2.00-4	8.570-3	5.954-3	5.764-3	4.35-6	8.093-4	5.124-4	4.916-4
Pu-240	5.10-4	7.415-3	4.998-3	4.824-3	2.62-6	2.562-3	1.625-3	1.560-3
Pu-241	2.10-3	1.433-2	1.185-2	1.166-2	5.90-6	4.159-3	2.658-3	2.551-3
Pu-242	5.60-4	1.288-2	8.869-3	8.617-3	5.50-6	0.0	0.0	0.0
Am-241	3.75-5	0.0	0.0	0.0	3.75-7	0.0	0.0	0.0
Am-243	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
Cm-244	0.0	4.287-3	3.002-3	2.907-3	0.0	2.489-3	1.578-3	1.514-3

* 4.72-7=4.72×10⁻⁷

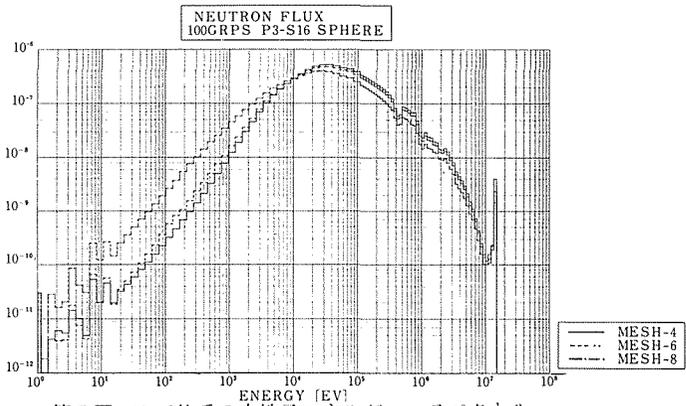
として変化させて、代表的なアクチニド核種の生成・消滅の様子を調べた。結果は体系によって余り差がないので、体系 No.1 について述べる。

第11図から第14図にそれぞれ²⁴¹Am, ²³⁷Np, ²³⁸Pu及び²⁴²Puの生成消滅の様子を示す。図中の中性子束0は自然崩壊の場合を示す。また中性子束1+14は1×10¹⁴ n/cm²·secの意味である。照射期間は20年間とし、それ以降は冷却期間である。第11図において²⁴¹Amは中性子束が3×10¹⁵ n/cm²·secの場合、20年間照射の時点で自然崩壊に比べれば約15%に減少している。また第12図から²³⁷Npは同条件の下で自然生成に比べて約8%に減少していることが分る。一方、²³⁸Puは、

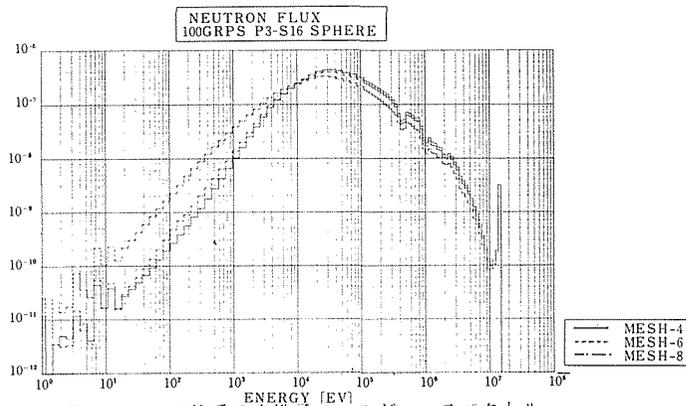
$^{241}\text{Am} \xrightarrow{\alpha} ^{242m}\text{Am} \xrightarrow{\beta} ^{242}\text{Cm} \xrightarrow{\alpha} ^{238}\text{Pu}$ の生成過程と $^{238}\text{Pu} \xrightarrow{\alpha} ^{234}\text{U}$ の崩壊過程の競合により左右される。中性子束が $1 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 以下の低中性子束で照射時間が短い時は ^{238}Pu は単調な増加傾向を見せている。 $3 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ の場合、10~20年照射において消滅効果が現われている。第15図にアクチニド核種の総量の時間変化を示す。中性子束が $3 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ の場合、20年照射時点においてアクチニド核種の総量は自然崩壊に比べて約25%に減少していることが分る。第16図から、第18図において中性子束がそれぞれ 10^{14} 、 10^{15} 及び $3 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ の場合のアクチニド核種毎の生成・消滅の様子を示す。



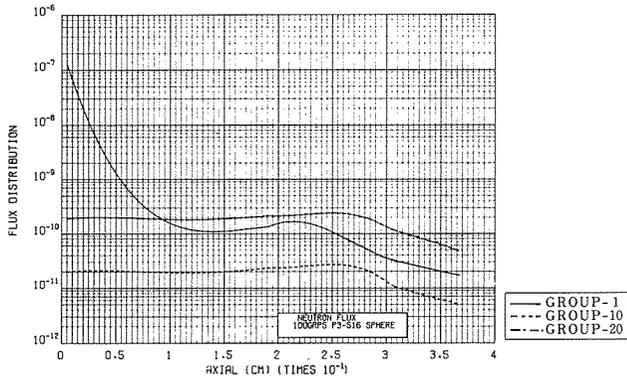
第4図 No.1体系の中性子エネルギー・スペクトル



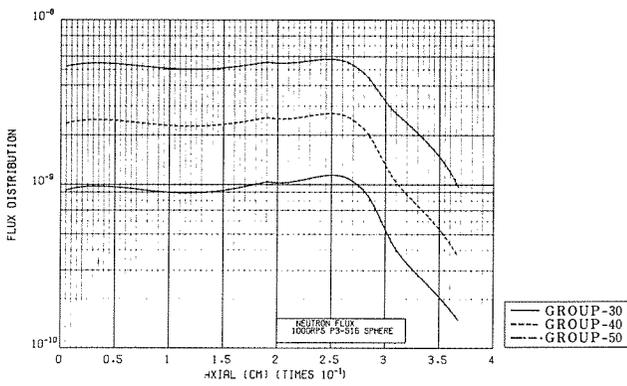
第5図 No.2体系の中性子エネルギー・スペクトル



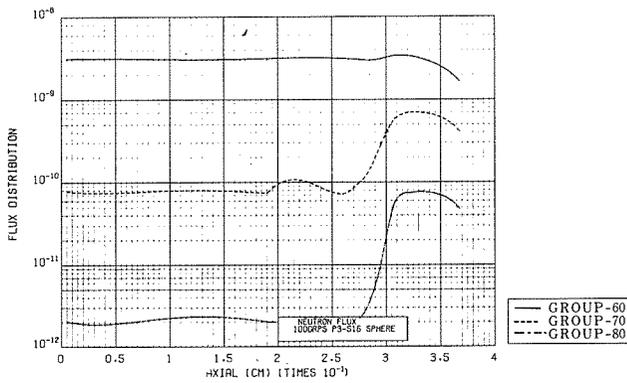
第6図 No.3体系の中性子エネルギー・スペクトル



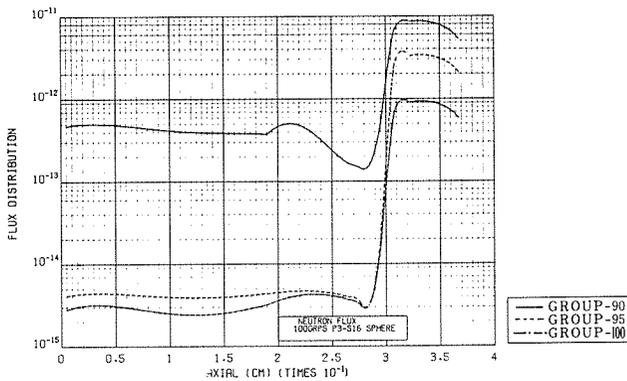
第7図 No.1体系の中性子束空間分布



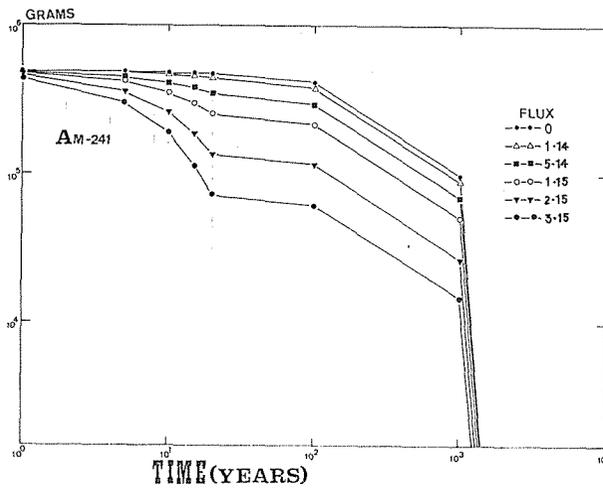
第8図 No.1体系の中性子束空間分布



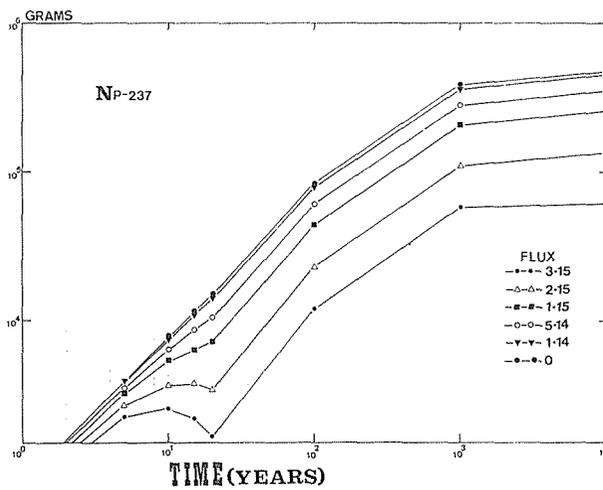
第9図 No.1体系の中性子束空間分布



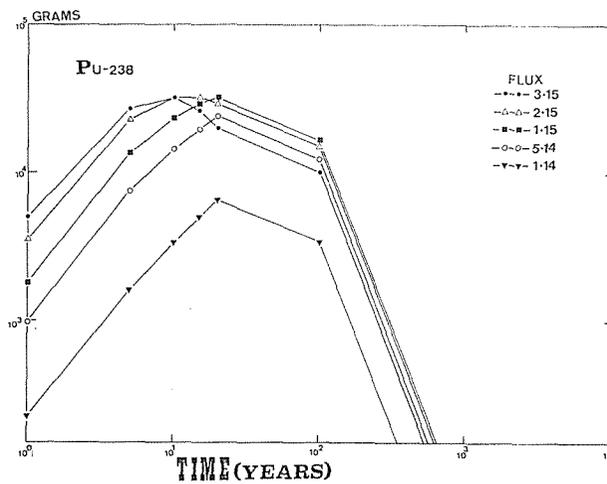
第10図 No.1体系の中性子束空間分布



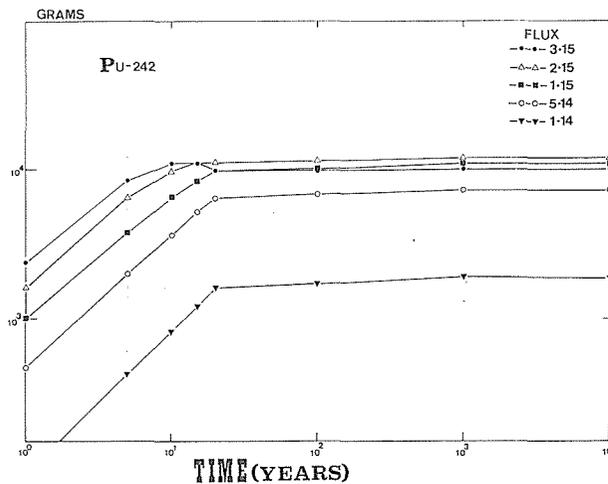
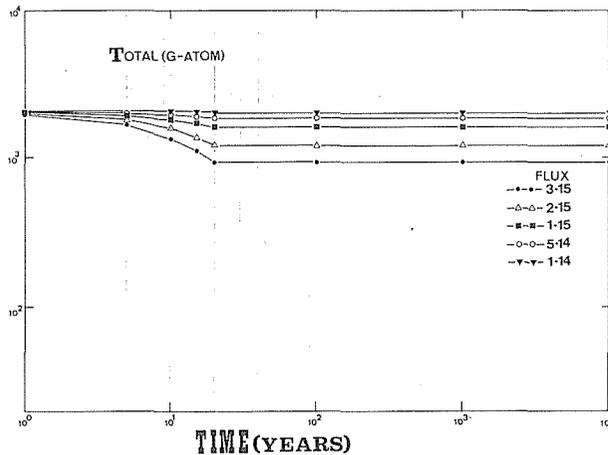
第11図 ^{241}Am の消滅



第12図 ^{237}Np の生成・消滅



第13図 ^{238}Pu の生成・消滅

第14図 ^{242}Pu の生成・消滅

第15図 アクチニド核種全体の生成・消滅

5. 結 論

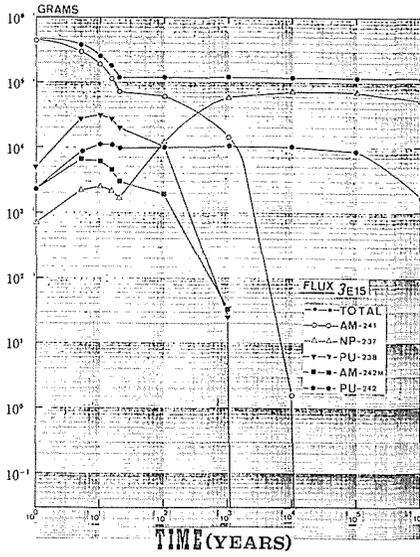
前節までにおいて、アクチニド消滅炉として核融合炉をとりあげ、トカマク炉のブランケット領域に ^{241}Am を装荷した場合の消滅計算を行った。その結果を要約すると次のように結論できる。

(1) 中性子束 $3 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ において20年間 ^{241}Am の照射を行えば、アクチニド核種の量は全体で約25%に減少することができる。

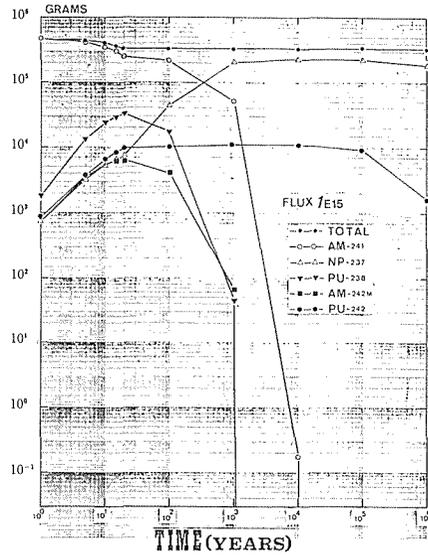
(2) ^{241}Am の単体照射の場合の計算により、Am-Cm 混合体照射の場合におけるアクチニド核種の生成・消滅の道筋が部分的ながら定量的に明らかになった。

(3) 中性子源として14MeV中性子を用いるため、群定数はORIGENコード備え付けの値では不十分で、エネルギー・スペクトル計算からの導出が必要である。

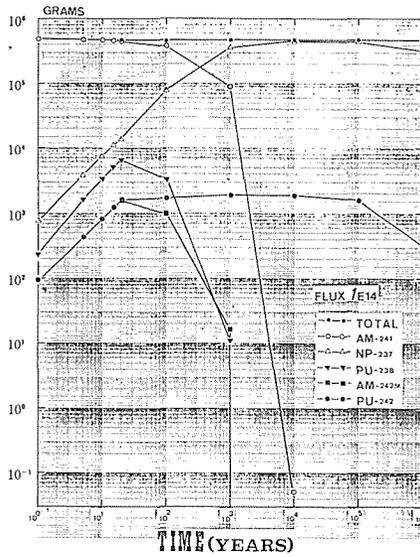
(4) 計算に使用したENDF/B-ANISN-ORIGENの計算コード・システムは良好な結果計算が得られるので、今後、他のアクチニド消滅計算にも有効に利用できる。



第16図 $10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ の場合のアクチニド核種の生成・消滅



第17図 $10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ の場合のアクチニド核種の生成・消滅



第18図 $3 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ の場合のアクチニド核種の生成・消滅

Reference

1. McKay H.A.C. et al.: 'The Separation and Recycling of Actinides' EUR-5801(1977).
2. Schmidt E; EUR-5690e(1977).
3. Blomeke J.O. et al.: CONF-76701(1976).
4. Proc. of the Technical Meeting of the Nuclear Transmutation of Actinides, EUR-6929(1980).
5. Claibone H.C.: ORNL-TM-3964(1972).
6. Berwald D.H. et al.: Nucl. Technol., 42, 34(1979).
7. Bell M.J.: ORNL-4628(1973).
8. Rose R.R.: EPRI-ER-451(1976).