

PHITSコードを活用した核変換による “高レベル放射性廃棄物の低減・資源化”

Reduction and Resource Recycling of High-level Radioactive Wastes through Nuclear Transmutation with PHITS code

国立研究開発法人科学技術振興機構 革新的研究開発推進プログラム (ImPACT)
プログラム・マネージャー
藤田 玲子

高レベル放射性廃棄物に含まれる半減期の長い長寿命核分裂生成物を核変換により低減、もしくは有用核種をリサイクルして資源化する研究開発を内閣府のImPACTプログラムで実施している。高レベル放射性廃棄物に含まれる長寿命核分裂生成物を分離、回収した後、レーザー法を用いた偶奇分離法により奇数核種のみを取り出し、加速器を用いて短半減期核種や安定核種に核変換する技術を開発している。理研のRIBFやJ-PARCを用いてPd-107、Zr-93、Se-79、Cs-135の新たな核反応データを取得すると共に、PHITSコードを用いて同位体分離せずに核変換する新しい経路を提案する。また、それを実現する加速器およびその要素技術の開発を行い、長寿命核分裂生成物を分離回収するプラントから核変換、再利用するインゴットのプラントまでの一連のプロセス概念を提案する。本編ではこのプログラムの概要を紹介する。

1. はじめに

2011年3月11日に発生した東日本大震災と津波によって引き起こされた東京電力(株)福島第一原子力発電所の事故(福島事故)により我が国の原子力発電所は再稼働がなかなか進まない。原子力規制委員会により、安全審査を通過したプラントは5基である。

福島事故直後は、原子力発電をやめるべきという脱原子力の意見も多くあったが、原子力を今直ぐやめても使用済み燃料は残り、高レベル放射性廃棄物の問題は解決しない。

高レベル放射性廃棄物には使用済み燃料を再処理した際に発生する“ガラス固化体”と再処理しない場合の“使用済み燃料”そのものの2種類がある。フランスや日本は使用済み燃料を再処理し、ガラス固化体として処分する方針である。一方、北欧のスウェーデンやノルウェー、そしてスイスは再処理せずにそのまま処分(直接処分)する予定である。しかしながら、使用済み燃料の発生量の多い

我が国では全量を直接処分することは難しい。

そこで、我々は国民の方々に高レベル放射性廃棄物の問題を解決する新しい選択肢を提示することを目的として、本テーマ“核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化”を、内閣府の革新的研究開発推進プログラム ImPACT (Impulsing PARadigm Change through disruptive Technology) に提案した。ImPACTプログラムは平成25年に550億円の基金を設け設立されたもので、「実現すれば、社会に変革をもたらす非連続イノベーションを生み出す新たな仕組み」ハイリスク・ハイインパクトな挑戦を促し、我が国の研究開発マインドを一変させるためにと5分野(資源節約からの開放とものづくりの革新「新世紀日本型価値創造」、生活様式を変える革新的省エネ・エコ社会「地球との共生」、情報ネットワーク社会を超える高度機能化社会の実現「人と社会を結ぶスマートコミュニティ」、少子高齢社会における世界で

最も快適な生活環境の提供「誰もが健やかで快適な生活を実現」、人知を超える自然災害やハザードの影響を制御し、被害を最小化「国民一人一人が実感するレジリエンスを実現」が掲げられた。当初12プログラム・マネージャー（PM）が採択されたが、平成27年に4PMが追加で採択され、現在16PMのプログラムが進められている¹⁾。本稿では「核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化」についてその概要と最近の成果について述べる。

2. 背景

高レベル放射性廃棄物には半減期の長い核種としてマイナーアクチニド（MA）と長寿命核分裂生成物（LLFP）が含まれている。MAとLLFPを図1に示す。

高レベル放射性廃棄物を低減するにはMAとLLFPを共に低減する必要がある。両者を核変換により放射能を低減すれば処理後1000

年以下に大幅に低減できる可能性がある。MAは燃料として活用できるため、核燃料サイクルの研究として日本原子力研究開発機構（JAEA）で既に研究が進められている²⁾。一方、LLFPは高レベル放射性廃棄物としてガラス固化され、地層処分されることになっているが、なかなか処分候補地の選定が進まない。そこで、LLFPについても核変換の研究を進め、国民の方々に処分に対する新たな選択肢を提示したいと考えた。

1980年代後半には我が国でオメガ（OMEGA）プロジェクト³⁾が開始され、MAの分離回収とLLFPの一種であるヨウ素（I）とテクネシウム（Tc）に関して核変換の研究がされたが、原子炉の中性子による核反応を用いるものであった。原子炉以外の加速器を用いた核変換の研究については、日本原子力研究所で1990年代末に階層型原子力システム⁴⁾として研究開発がなされていたがいずれもMAを中心にした研究であった（表1）。

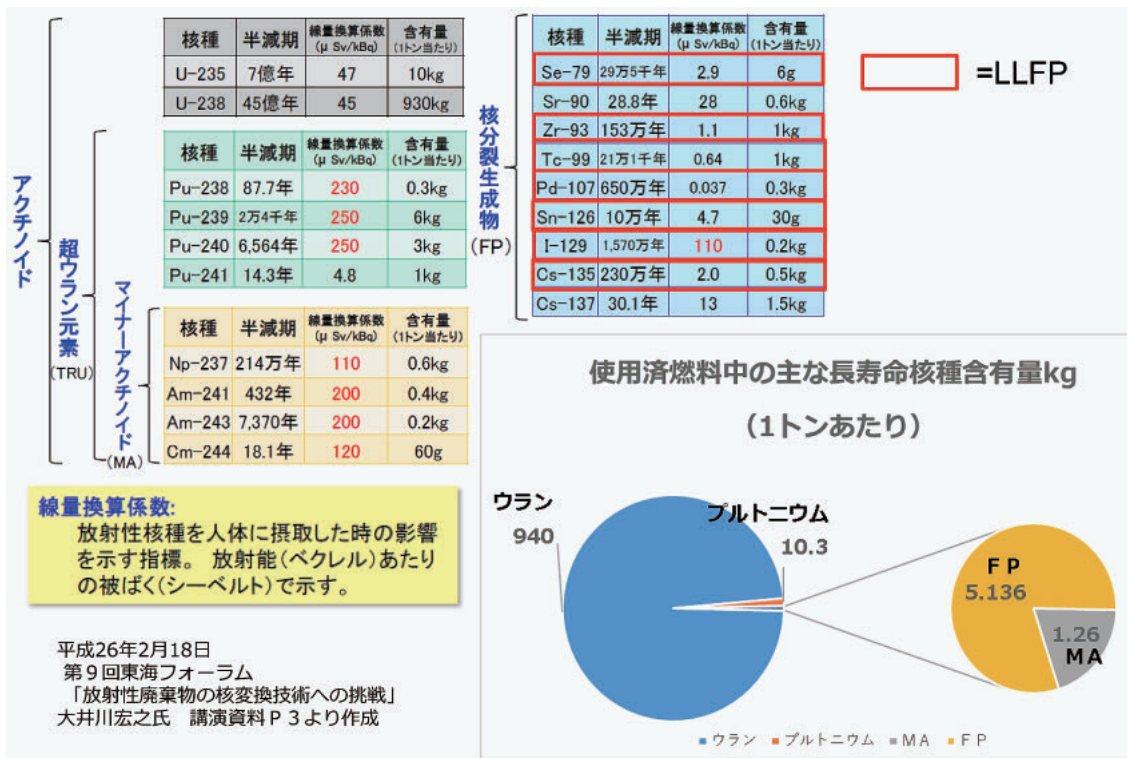


図1 半減期の長い核種

表1 分離・核変換の既往研究

	核変換対象					設備			課題
	アクチニド		核分裂生成物(FP)			原子炉	加速器駆動炉	加速器その他	
	U	Pu	MA	長寿命FP					
			Np,Am,Cm	129I, 99Tc	79Se, 93Zr, 107Pd, 135Cs, (126Sn)				
ヨーロッパ			○	○		○	○	高レベル廃棄物の地層処分、長寿命FPのリスク	
米国		○	○			○	○	同上	
日本(オメガ)			○	○		○	○	長寿命FPのリスク	
日本(SCNES*)			○	○	○			長寿命FPは同位体分離が必要	
日本(加速器駆動炉)			○				○	長寿命FPのリスク	
日本(ImPACT)			加速器駆動炉の成果利用	オメガ、SCNESの成果利用	○			○	オメガ、SCNES、加速器駆動炉と組み合わせ同位体分離せずに高レベル廃棄物のゼロ化を目指す、加速器の技術革新が不可欠

*SCNES (Self-Consistent Nuclear Energy System) : 自己整合性のある原子力システム

しかしながら、LLFPを対象として原子炉以外で核変換するためには核反応データは十分ではなく、新しい核反応データを取得する必要がある。

一方、近年、世界中で高強度エネルギーの加速器の建設が進められ、日本でも理化学研究所で世界最高性能のRIビームファクトリー (RIBF) が2007年から運転が開始された。RIBFの運転によりあらゆる核反応のデータを取得できるようになった。

また、高レベル放射性廃棄物に含まれるLLFPにはレアメタルなど有用元素が多く含まれている。これらのLLFPは再処理工場の高レベル廃液に含まれているが、このLLFPを分離、回収しても放射性核種が含まれているため、再利用が困難であった。

そこでMAだけでなく、LLFPも核変換するべく核反応データを取得し、新しい核反応の経路を提案できる可能性が出てきた。

LLFPの核変換に関する研究はオメガPJの研究から派生した“自己整合性のある原子力システム (Self-Consistent Nuclear Energy System (SCNES))”⁵⁾を藤家洋一らが提唱した。SCNESは廃棄物を極力発生させない概念で、LLFPはレーザーで同位体分離することにより高速炉で核変換することを科学的に示したものであった。

しかしながら、LLFPは同位体シフトが小さく、すべてのLLFPをレーザー法で分離することが難しいことから、本研究では同位体分離をせずに核変換する経路 (パス) を提案することにした。

図2に「核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化」の概念を示す。

使用済み核燃料の再処理工場の高レベル放射性廃液と地層処分用のガラス固化体からLLFPを経済性のある分離回収プロセスを用いて回収する。回収したLLFPは新しい核変

換プロセスで半減期の短い核種 (Short-lived Fission Products (SLFP) もしくは安定核種に変換する。放射能を低減されたSLFPは中レベル放射性廃棄物もしくは低レベル放射性廃棄物として浅地層処分をするか、あるいは安定核種はリサイクル製品として再利用する。

3. 「核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化」プログラムについて
ImPACTが開始されて約3年が経過した。

そこで各プロジェクトの内容と最近までの成果をまとめる。

本プログラムの全体構成を図3に示す。本プログラムは5プロジェクト、分離回収技術(プロジェクト1)、核変換データの取得(プロジェクト2)、核反応理論モデルとシミュレーション(プロジェクト3)、新しい核反応制御と要素技術開発(プロジェクト4)およびプロセス概念検討(プロジェクト5)から構成される。

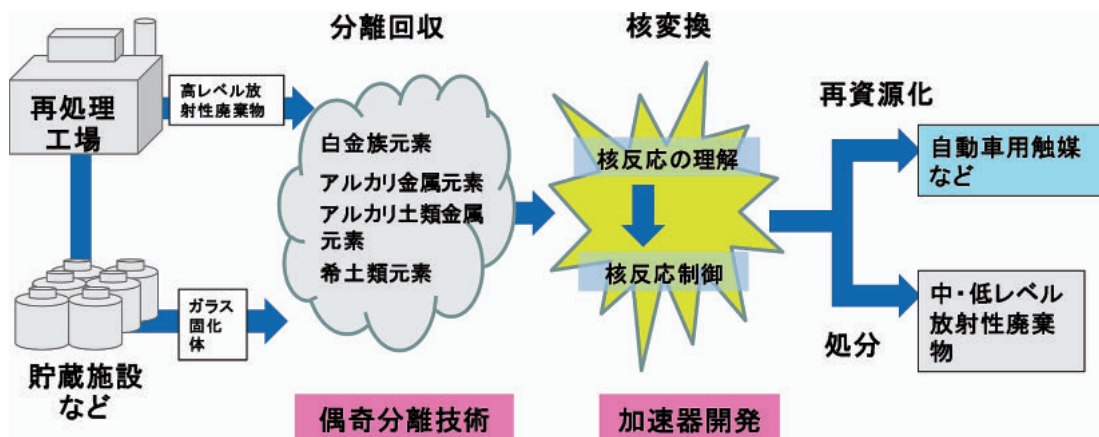


図2 プロセス概念¹⁾

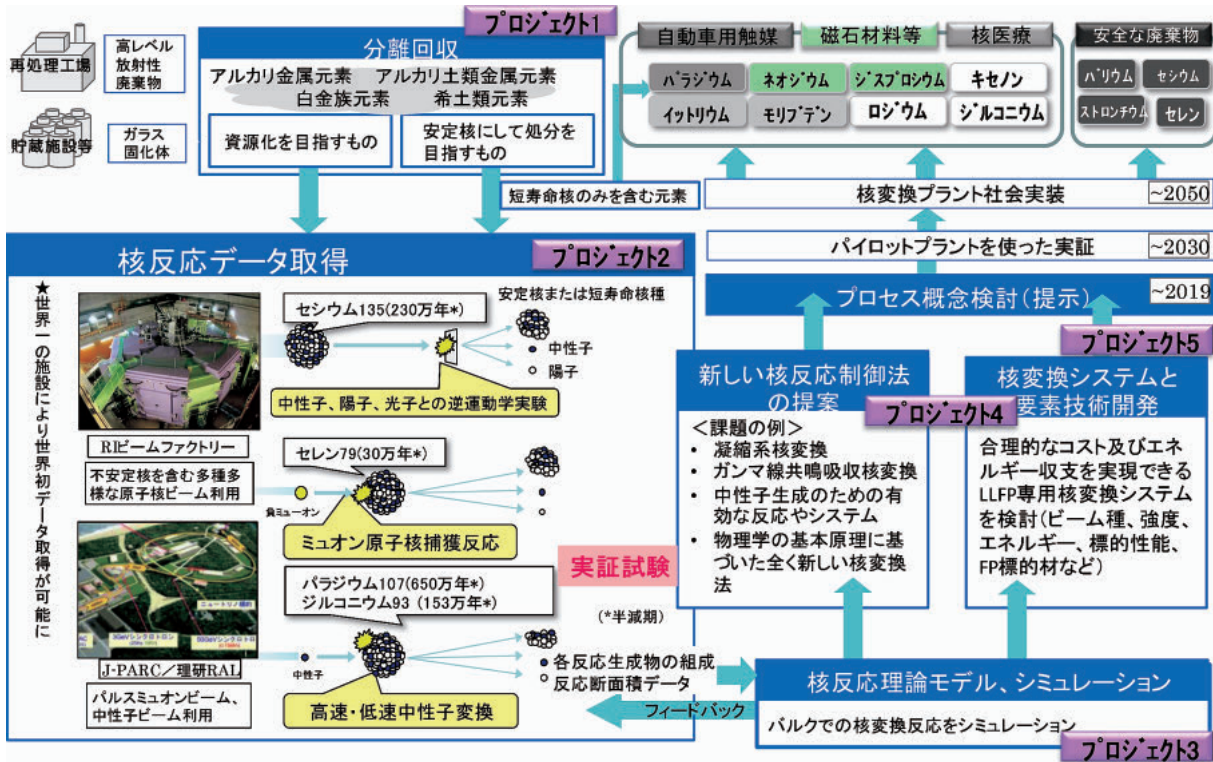


図3 本プログラムの全体構成¹⁾

プロジェクト1は高レベル放射性廃棄物である再処理工場の高レベル廃液および返還ガラス固化体からLLFPを分離回収する技術を開発する。プロジェクト2では理研のRIBFや日本原子力研究開発機構(JAEA)のJ-PARCを用いて新しい核変換の反応データを取得する。プロジェクト3では新しい核反応の理論やモデルを構築し、核反応シミュレーションコード Particle and Heavy Ion Transport Code System (PHITS) の改良高度化を行うと共に、有望な核変換経路(パス)を提案する。プロジェクト4では提案された核反応経路を実現する加速器とその要素技術の開発を行う。最後にプロジェクト5ではプロジェクト1~4を実現するプロセスの概念設計とそれを実現する高レベル放射性廃棄物の低減および資源化のシナリオを構築する。

3.1 分離回収技術の開発

プロジェクト1の分離回収技術では核変換

を効率的に行うために、核燃料再処理工場から発生する高レベル廃液からLLFPを回収する技術とガラス固化体からLLFPを回収するためにガラス固化体を溶解する技術を開発している。対象とする元素はLLFPのうち、Pd、Zr、SeおよびCsである。プロジェクト1は「ガラス固化体の溶解技術」「高レベル廃液からのLLFP回収技術」および「レーザー偶奇分離法」から構成される(図4)。核変換を効率的に行うために、対象とするLLFPを分離・回収することを目的としている。

半減期の長いLLFPは基本的に奇数核種が多く、レーザー同位体分離法の前処理プロセスとして開発された偶数核種と奇数核種を分離する“偶奇分離法”を用いて、奇数核種を選択的にイオン化することにより偶数核種と分離する。偶数核種はそのまま資源として使うこともできる。偶奇分離法の開発においては、直線偏光レーザーと共通イオンコアを用いることにより従来技術である円偏光レー

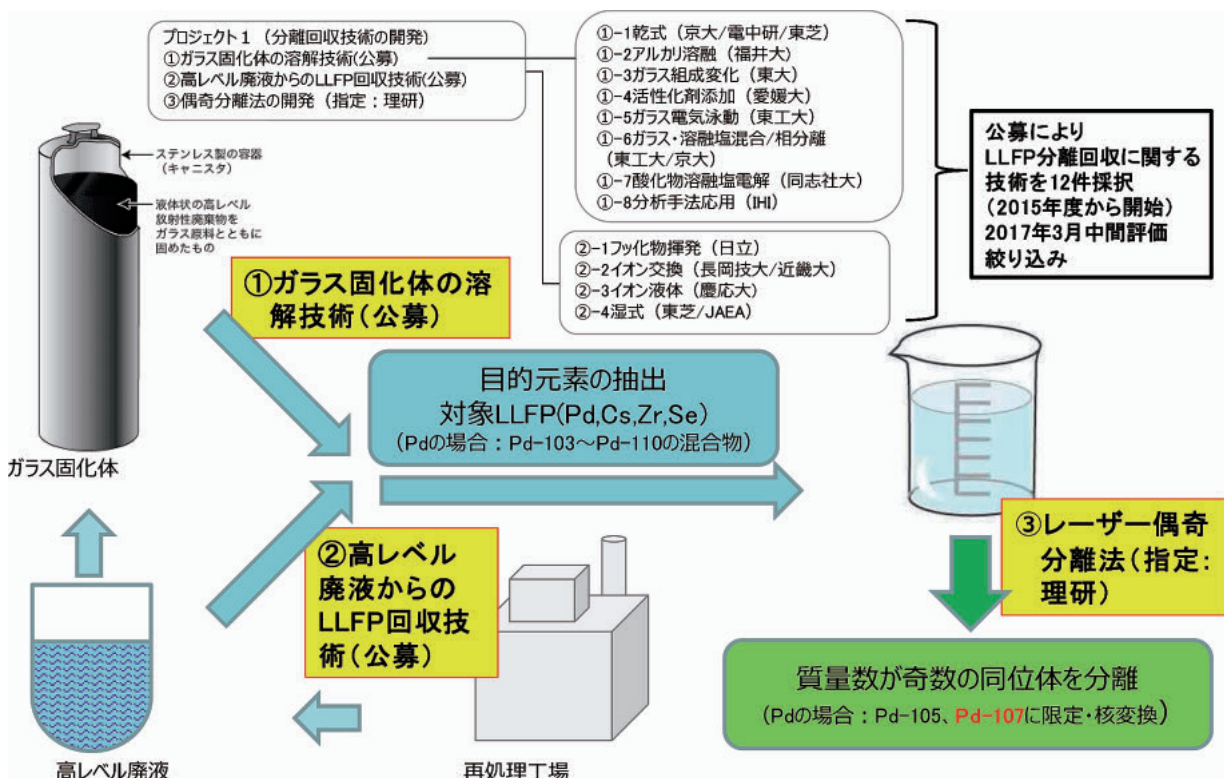


図4 プロジェクト1の研究内容

ザーを用いる場合に比べて処理量を10000倍にすることができた⁶⁾。

3.2 核反応データの取得

これまで加速器で核変換を行うLLFPの核変換のデータはほとんどなかった。しかし、2007年に運転を開始した理研のRIBFはLLFPをビームとして用い、逆運動学法を用いることによりあらゆる核変換のデータが取得できるようになった。

プロジェクト2では理研のRIBFやJAEAのJ-PARCを用いてPd-107、Zr-93、Se-79、Cs-135の新しい核反応データを取得する(図5)。RIBFでは逆運動学法でウラン(U-238)のビームを核分裂させてLLFPビームをつくり、このLLFPビームを陽子(水素)や重陽子(重水)の二次ターゲットに衝突させ、核反応断面積を測定する。RIBFを用い、Pd-107、Zr-93、Se-79、Cs-135の100MeV、200MeV、50MeVの陽子および重陽子のデータを既に取得した⁷⁾。

低入射エネルギーの測定データの精度を向上するために改造したOEDO(理研)で25MeVのデータ取得も開始した。

また、Pd-107のインプラントターゲットを加速器を用いて作製し、実際の核変換率のデータを取得する実証試験を予定している。

3.3 核反応理論モデルとシミュレーション

プロジェクト3では我が国で開発された核反応計算ソフトで核変換反応を評価できるPHITSのシミュレーション精度を向上させる。プロジェクト2で測定した核反応データを用い、核反応理論や構造モデルを改良し、PHITSに反映する。また、バルクの核反応をより精度良くシミュレーションできるようにすると共に、有望な核反応経路(パス)を提案する。プロジェクト3の研究内容を図6に示す。長寿命核種の核変換反応のシミュレーションの精度を向上させることを目的としている。さらに、微視的モデルを高精度化し、

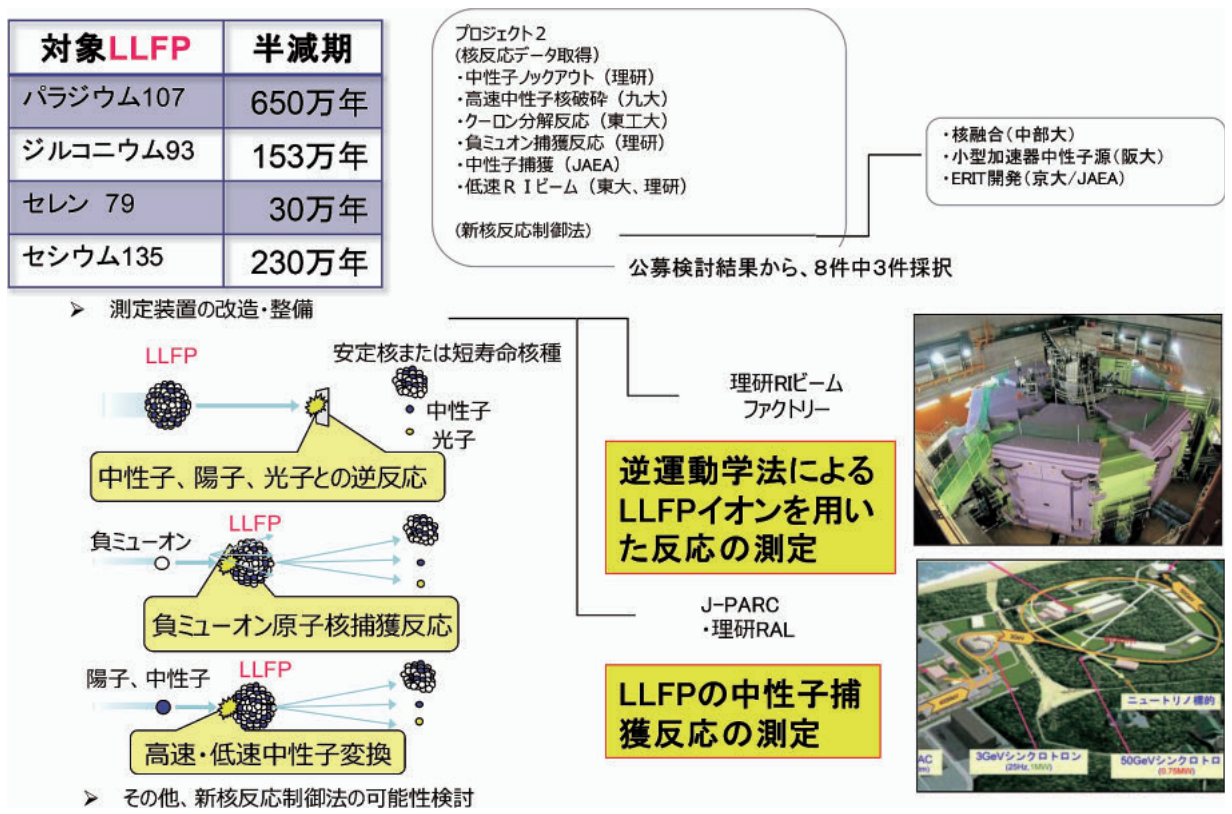


図5 プロジェクト2の研究内容

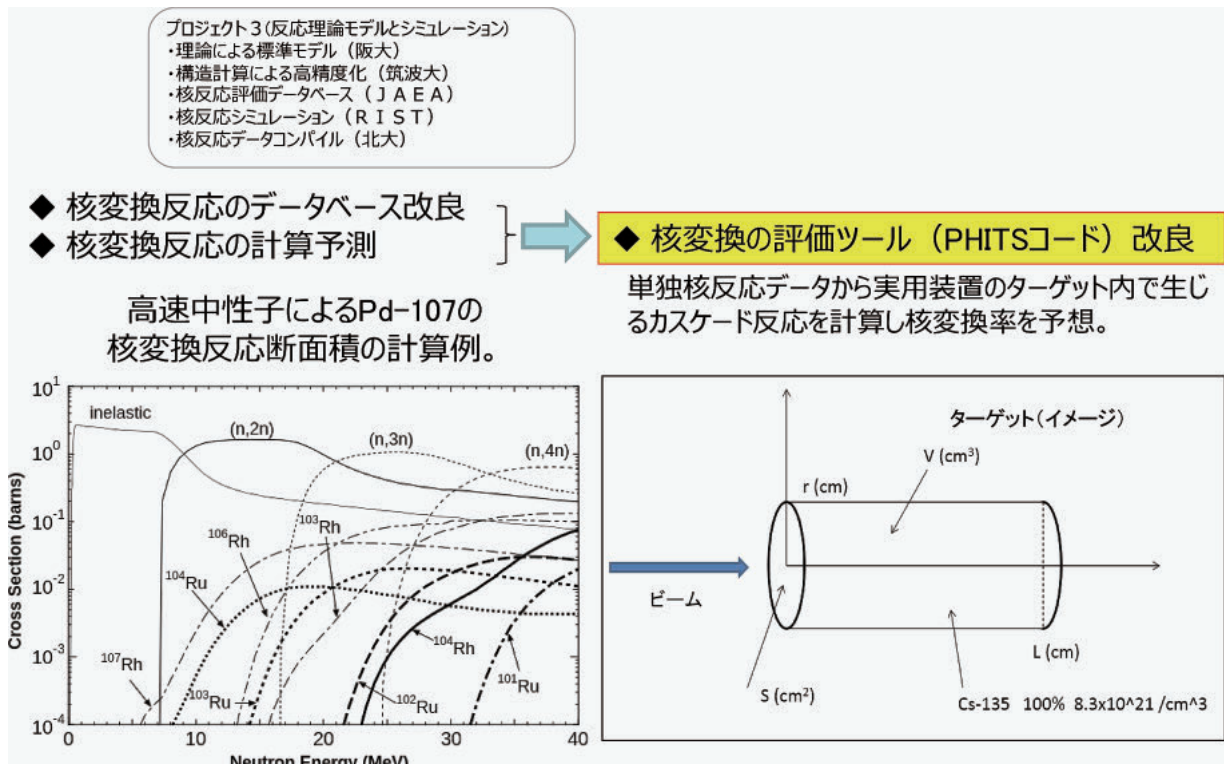


図6 プロジェクト3の研究内容

PHITSに組み入れることも想定している。

有効半減期という、ターゲットの大きさおよび期間を限定した円柱体系に基づき、プロジェクト2で取得した核反応断面積を用いた定量評価を実施している。既にPd-107およびCs-135については核変換エネルギーの評価を行っている。

円柱のシンプル体系、長さ=入射粒子のレンジの1.1倍、半径は、200mA、有効半減期3年(単位体積当たりの変換率、変換密度を一定)の条件で変換エネルギー(E/h)の入射エネルギー依存性を調べた。その結果を図7に示す。重陽子のビームを用いる場合はPd-107で500MeV、Cs-135では300MeVで変換エネルギーを最も小さくできることが分かる。

3.4 加速器開発および要素技術の開発

プロジェクト4では実際の核変換に適用する核変換システムの要素技術を開発すると共に核変換に適用できる加速器の仕様を提案す

る。図8に日本原燃(株)六ヶ所村に建設された再処理工場(800トン/年)で1年間に発生する高レベル放射性廃液に含まれるPd-107、Zr-93、Se-79、Cs-135を処理するために必要な加速器のビーム電流を示す。しかしながら、現状の加速器の入射ビーム電流は2~5mAであるのに対し、目的とする加速器のビーム電流は数百~数千mAであるため、第一および第二のブレークスルーすなわち、非連続イノベーションが必要である。加速器開発はこのプログラムの最も重要な課題であり、この入射ビーム電流値のコンパクトな加速器は未だ実用化されていない。2019年3月には実現可能性の高い加速器仕様を提案する予定である。ImPACTの核変換用加速器の仕様の検討を開始した。

一方、実機の加速器に必要な超伝導空洞、プラズマウインドウ、液体や粒子ターゲットなどを開発している。純ニオブ製のイオン用超伝導空洞の高加速電圧試験にも成功している⁸⁾。

変換エネルギー(E/h)の入射エネルギー依存性の評価

E = 入射エネルギー
h = 入射粒子当たりの変換数

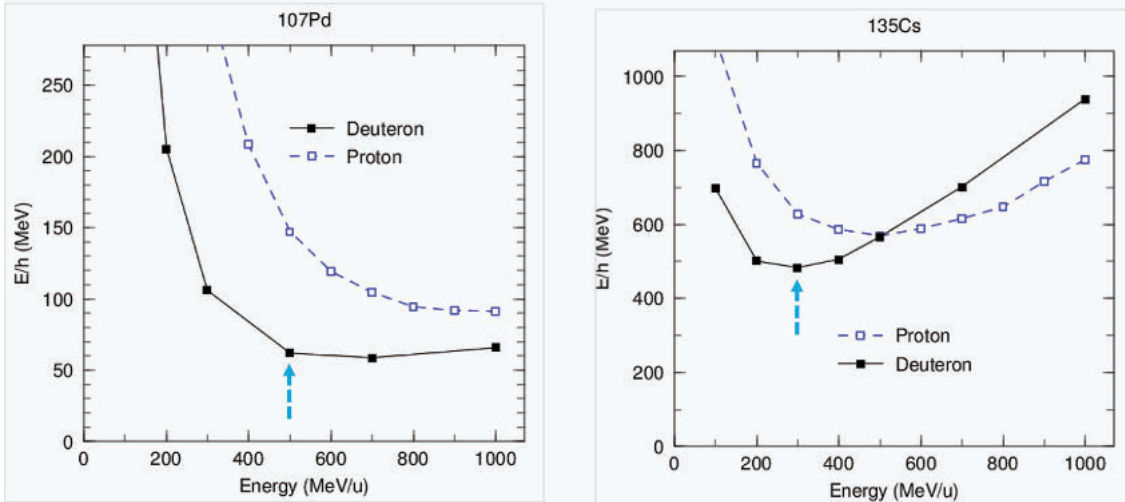
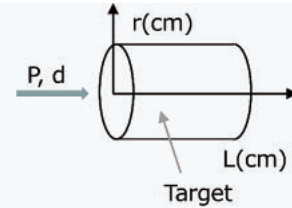
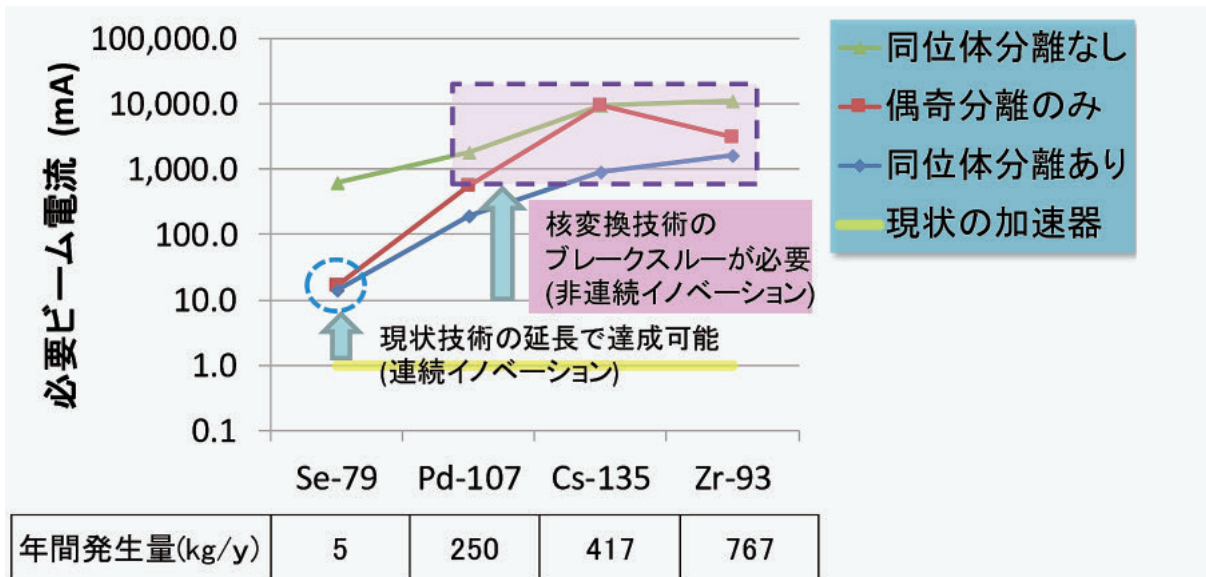


図7 Pd-107およびCs-135の変換エネルギーの評価結果



注: 入射エネルギー1000MeVの陽子により年間発生量を有効半減期3年で核変換した場合

図8 加速器の開発方針 (プロジェクト4)

3.5 プロセス概念検討

プロジェクト5ではLLFPの分離、変換のシナリオを具体化し、プロジェクト1～4の成果を利用してプロセスの概念設計を検討する。LLFPの分離、変換のシナリオを検討す

ることにより、処分の負担低減とレアメタルの再利用を目指している。

LLFP核変換の処分に与える効果や資源化する際のクリアランスレベル (Pd-107、Zr-93) を提案する研究を開始している。また、処分

概念については合理的な考えにより、従来の概念を見直ことを考えている。さらに、将来のHLWの処分を念頭に第二再処理工場に向けた不溶性残渣を別処分するPurex法の改良・高度化や従来の処分場の概念に捕らわれない理想に近い処分のあり方についても検討を開始している。

最終的に平成31年3月にはこのプログラムの概念を実現するプラント概念を提示する。

4. おわりに

これまで高レベル放射性廃棄物の処分に関しては問題視されながら、その解決策になる研究開発は十分されてきたとは言えない。福島事故以前の研究開発の体制から脱却し、原子力分野の研究開発をしてこなかった若手の研究者もこの分野の研究に参加して新しい研究分野を構築し、原子力の再生を目指すことが重要である。幸いにも本プログラムには多くの若手研究者が参画しており、彼らの活躍により今後の発展を期待したい。

参考文献

- 1) ImPACTプログラム“核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化”、<http://www8.cao.go.jp/cstp/sentan/about-kakushin.html>
- 2) 原子力科学技術委員会群分離・核変換技術評価作業部会(議事録):文部科学省審議会資、
http://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/gijyutu/gijyutu2/070/gijiroku/1352357.htm
- 3) 「分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方」2009年4月28日、原子力委員会研究開発専門部会分離変換技術検討会、
<http://www.aec.go.jp/jicst/NC/senmon/bunri/houkokusho-090428.pdf>
- 4) 西原健司他、階層型核変換システムにおけるMAの蓄積と核変換のマスバランス、JAERI-Research 99-074 (1999)。
- 5) Y. FUJII-E et. al., “A Self-Consistent Nuclear Energy Supply System”, Int'l. Specialists'Mtg. on Potential of Small Nuclear Reactors for Future Clean and Safe Energy Sources, Tokyo, 23-25 October (1991)
- 6) http://www.riken.jp/pr/press/2017/20170110_1/
- 7) http://www.riken.jp/pr/press/2016/20170213_1/
- 8) http://www.riken.jp/pr/press/2016/20160930_1/