

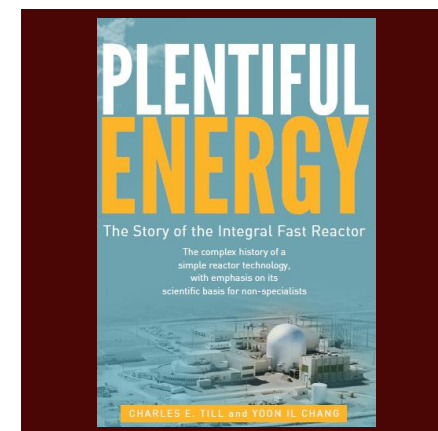
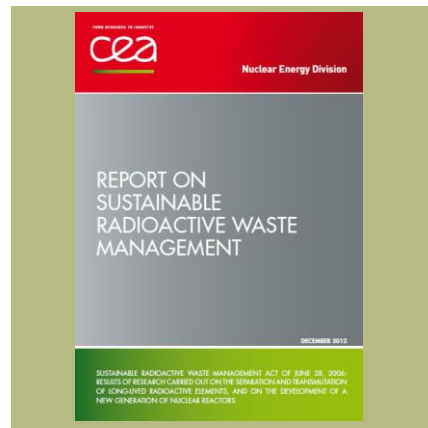


使用済燃料に含まれるマイナアクチニドは、

①発熱量が大きく、処分施設の
コストに影響をもたらし、

②自然崩壊に時間を要し「何万年も何千年も」
の放射能毒性を支配する。

各国はこの処理のための研究開発に資源を
集めており、その実態を客観的、横断的に
調査し、我が国の政策立案に資する。



高レベル廃棄物の消滅処理 について

2014年2月24日（月）13:00-17:30
キャノングローバル戦略研究所
エネルギー2050研究会シンポジウム

1

地球のウランとトリウムの起源
地球誕生45億年前にはウラン235は25%
ウランから人工的に生成されるマイナアクチニド
軽水炉の使用済燃料中のマイナアクチニド
マイナアクチニドの特徴
マイナアクチニドを使用済燃料から除去したい
マイナアクチニド除去の効果
マイナアクチニドは中性子により分裂させたい
高速中性子と熱中性子による核分裂確率

2

フランスの廃棄物政策の基本的考え方
2005年仏報告書 地層処分の安全評価
2012年仏報告書 高速中性子の生成方法と評価
2012年仏報告書 マイナアクチニド回収方法
2012年仏報告書 高レベル廃棄物処分施設の大きさ
報告書に対する国家評価委員会による独立評価

3

米国の廃棄物処理・処分政策の変遷
米国 (ANL) 乾式再処理と歴史と原理
ANL乾式再処理の実績
米国高速炉開発の最近の動向

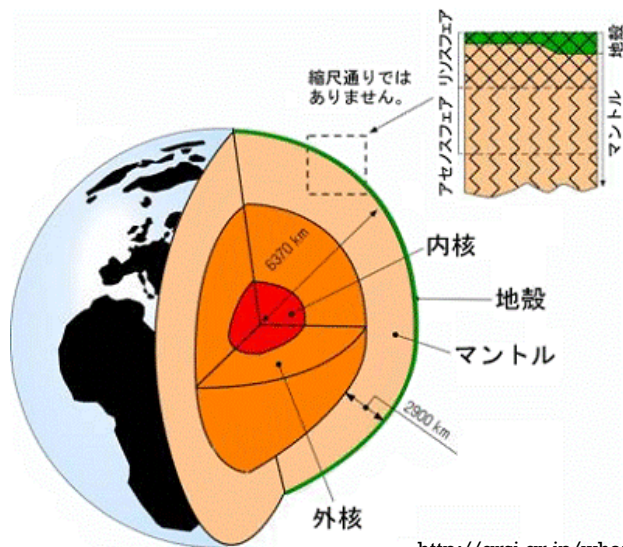
4

乾式再処理・金属燃料に関心を示すアジア諸国
韓国原子力研究所の急峻な研究立ち上げ
ロシア、インド、中国のマイナアクチニド研究

まとめ

地球のウランとトリウム の起源

ウランとトリウムは、どこかで起きた超新星爆発の一つの過程により生成され、地球物質の一部となった。人類は表層のウラン (U235,U238) 中の核分裂性物質U235を資源として利用できる知識を得た。一方で、地中深くでは、U238とTh232の核崩壊による発熱 (崩壊熱) が続いている。

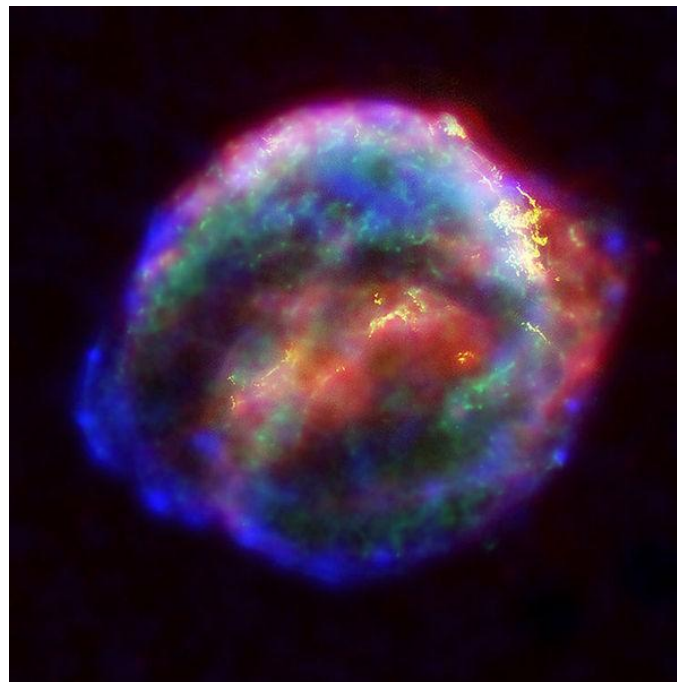


<http://grsj.gr.jp/whatbook/chapter1.html>

U235 ⇨ 7億年

U238 ⇨ 45億年

Th232 ⇨ 140億年



超新星 (SN 1604) の残骸

http://ja.wikipedia.org/wiki/%E3%83%95%E3%82%A1%E3%82%A4%E3%83%AB:Keplers_supernova.jpg

地球誕生45億年前にはウラン235は25%

-20億年前には天然原子炉も、今では0.7%-

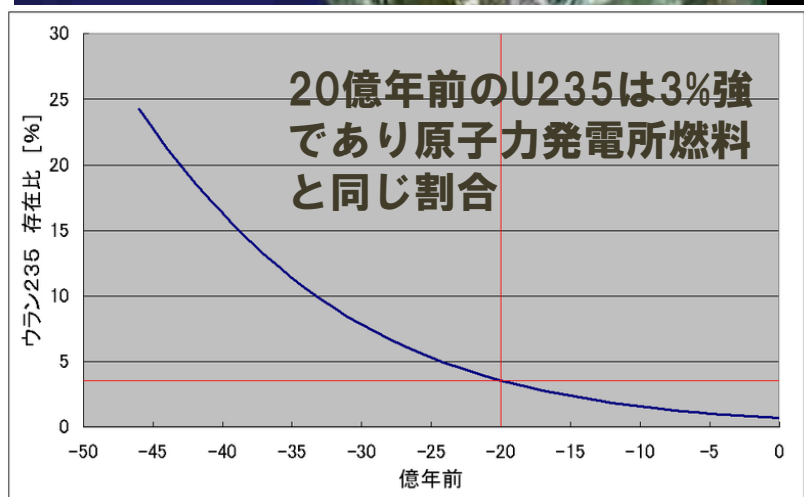
20億年ほど前、数十万年にわたって、平均で100kw相当の出力の反応が起きていた



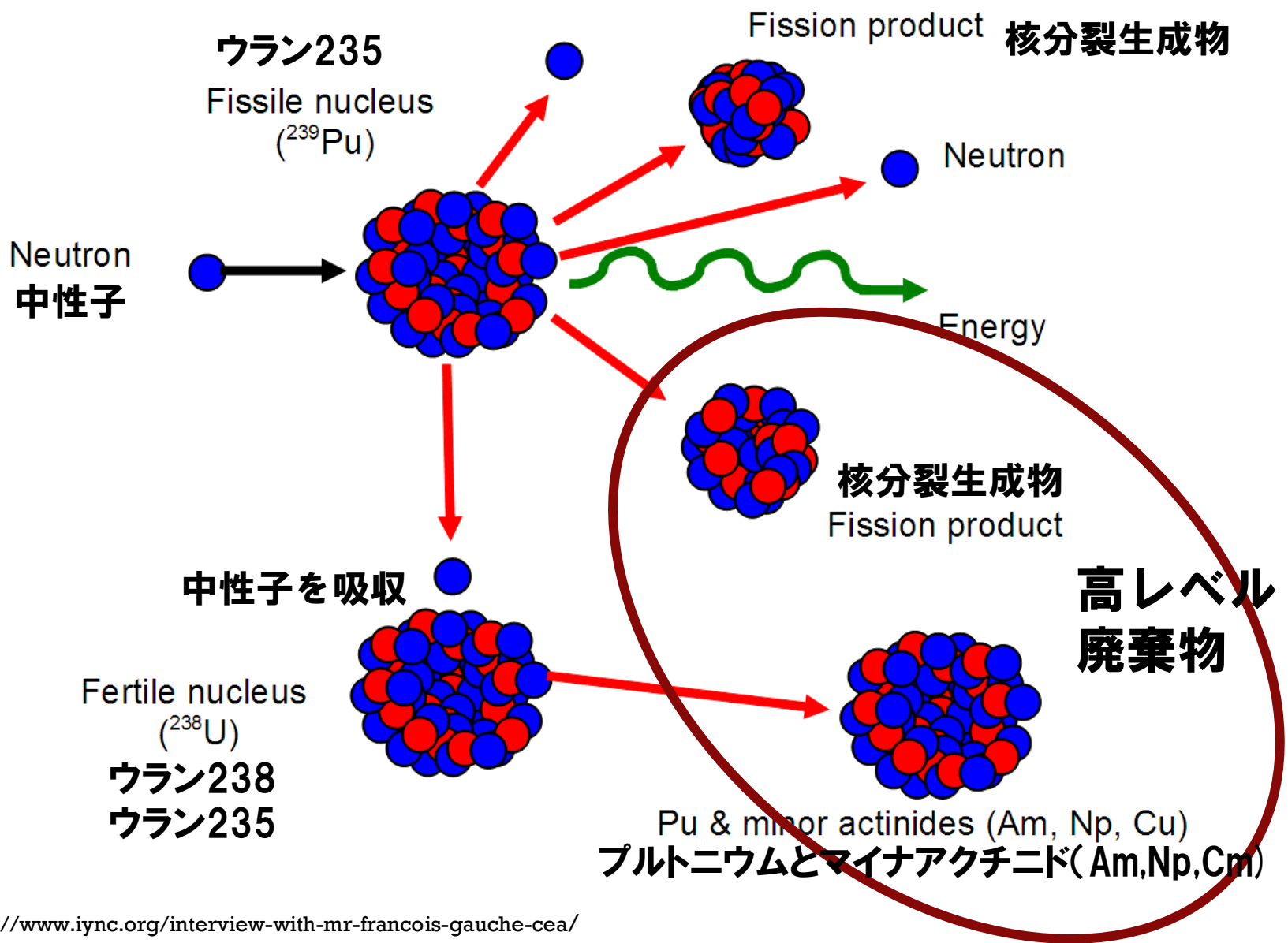
[http://falcon238](http://falcon238.img.jugem.jp/20100111_1538977.jpg)



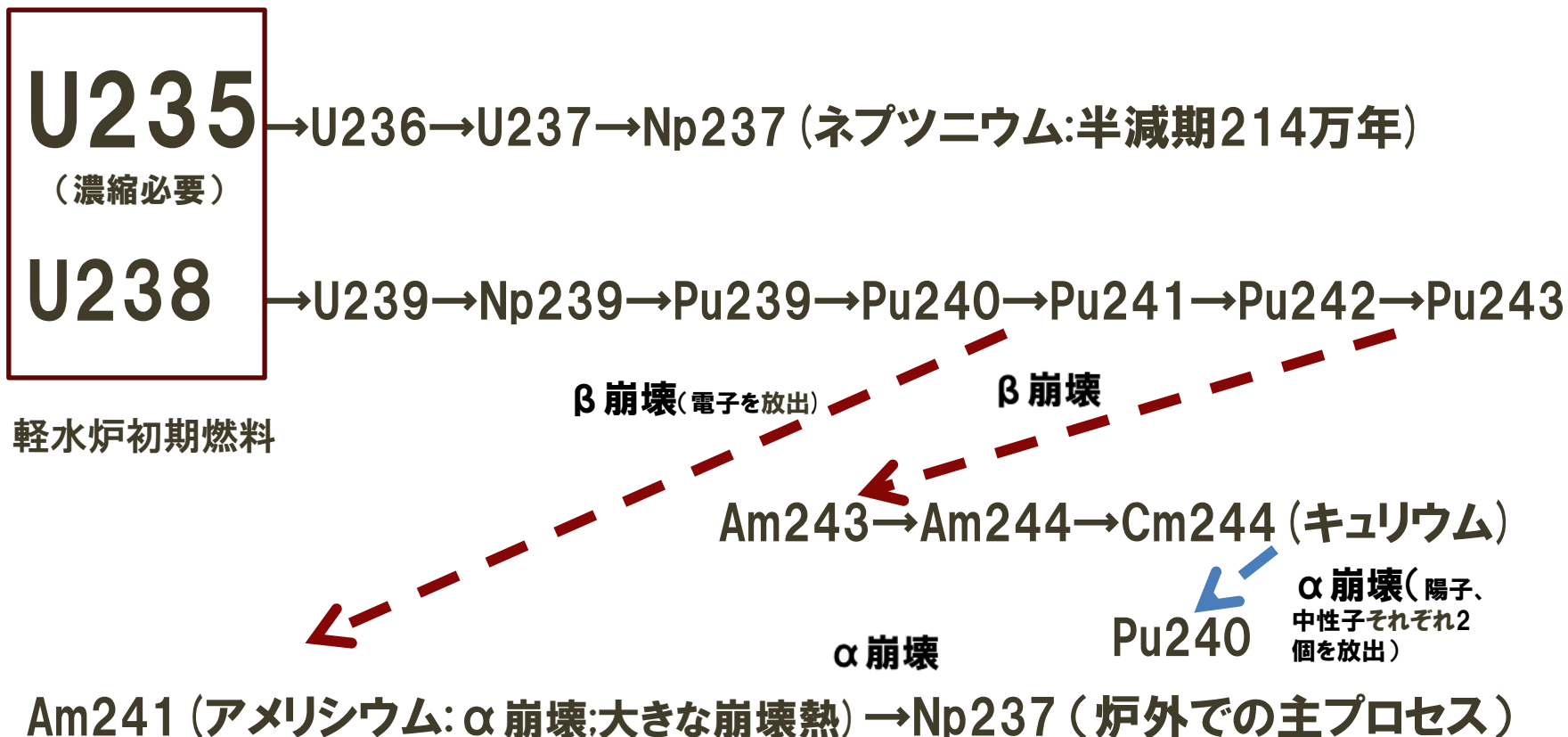
http://www.gizmodo.jp/upload_files/100922oklo15_curtin.jpg



ウランから人工的に生成されるマイナアクチニド



軽水炉の使用済燃料中のマイナアクチニド



軽水炉の使用済燃料には、マイナアクチニド(ネプツニウム、アメリシウム、キュリウム)が含まれる。実際には多種の同位体が原子炉の中で生成される。

(例えば、原子力学会誌 Vol31, No.10 (1989))



マイナアクチニド(MA)の特徴

マイナアクチニド

アメリシウム(Am)

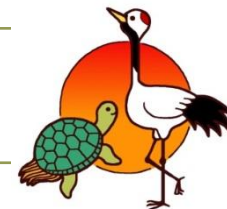
アルファ崩壊による崩壊熱が大きく、ガラス固化体中MA密度を小さくせざるを得ず広い処分施設が必要である

ネプツニウム(Np)

半減期が特に長く「千年、万年」の時間スケールを考える必要がある

キュリウム(Cm)

アルファ崩壊による発熱が大きく、長い半減期を持つ



使用済燃料の処分施設においてあらかじめマイナアクチニドを除去できれば、

▶▶▶ 処分施設の合理化につながる

除去したマイナアクチニドを消滅(核分裂や核変換)できれば、

▶▶▶ 「千年、万年」の時間スケールの圧力を取り除くことができる



各国の期待

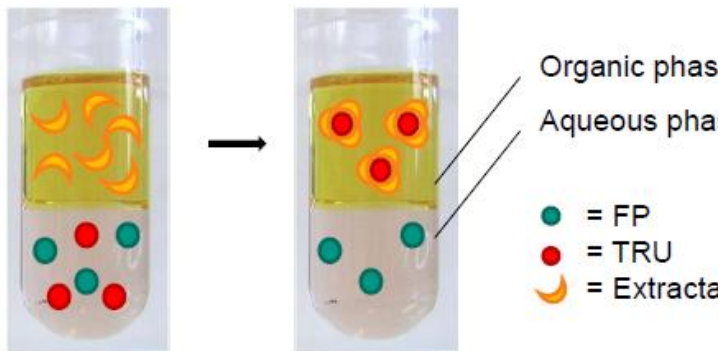
マイナアクチニドを使用済燃料から 除去したい（分離）

湿式法

水溶液と溶媒を接触させ
Pu, MAを溶媒に抽出する

Separating TRU
(Np, Pu, Am, Cm)
from fission products

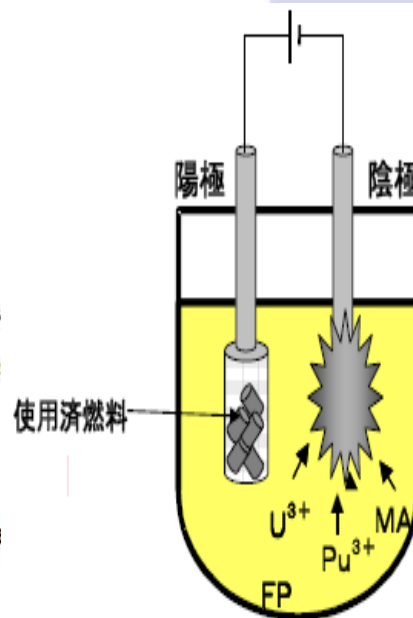
Solvent extraction:



KIT Hydrometallurgical actinide separation
processes
for advanced nuclear fuel cycles

乾式法

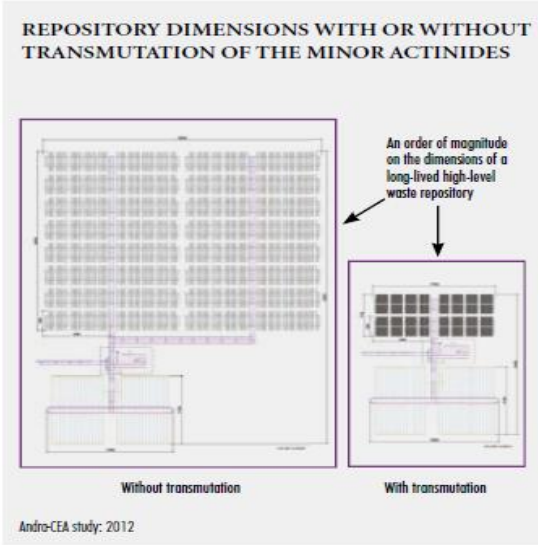
熔融塩を陽極として、液体陰極
にPu, MAを析出させる



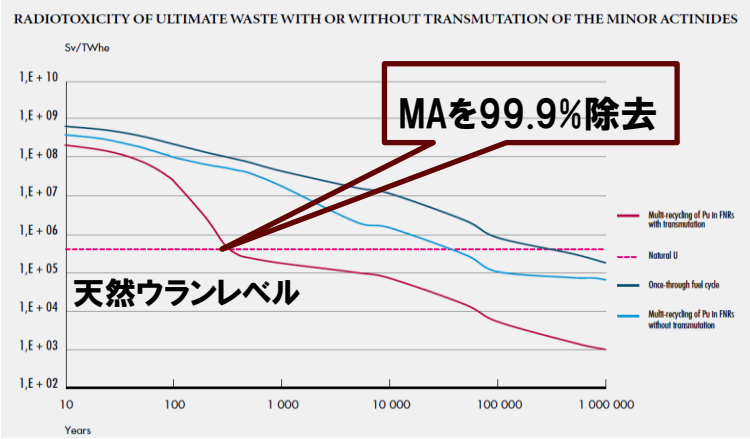
酸化還元反応	酸化還元電位 (V, Cl ⁻ /Cl ₂)	備考
Ce ³⁺ /Ce	-3.08	NaCl·2CsCl塩、973K
Np ³⁺ /Np	-2.73	
Pu ³⁺ /Pu	-2.71	Pu金属として析出させる場合にはU等も同時に析出
U ³⁺ /U	-2.44	
U ⁴⁺ /U	-2.20	
Zr ⁴⁺ /Zr	-2.17	一部FPが混入
Pu ⁴⁺ /Pu	-2.03	
UO ₂ ²⁺ /UO ₂	-0.58	
Pd ²⁺ /Pd	-0.48	一部FPが混入
PuO ₂ ²⁺ /PuO ₂	0.21	PuO ₂ は電気伝導度が小さいため単独析出不可能
NpO ₂ ²⁺ /NpO ₂	0.47	

マイナアクチニド除去の効果 (施設規模・放射能レベル)

高レベル放射性廃棄物 処分施設の削減規模	アメリシウム を除去すると...	1 / 7
	アメリシウム ネプツニウム キュリウム 全てを除去すると...	1 / 10



放射能レベル	アメリシウム ネプツニウム キュリウムを 99.9% 除去すると...	処分施設の放射能が 天然ウラン放射能による 人体への影響レベル にまで低減する期間は、 数百年オーダーにまで 短縮される
--------	--	---



マイナアクチニドは中性子により 分裂させたい（変換）

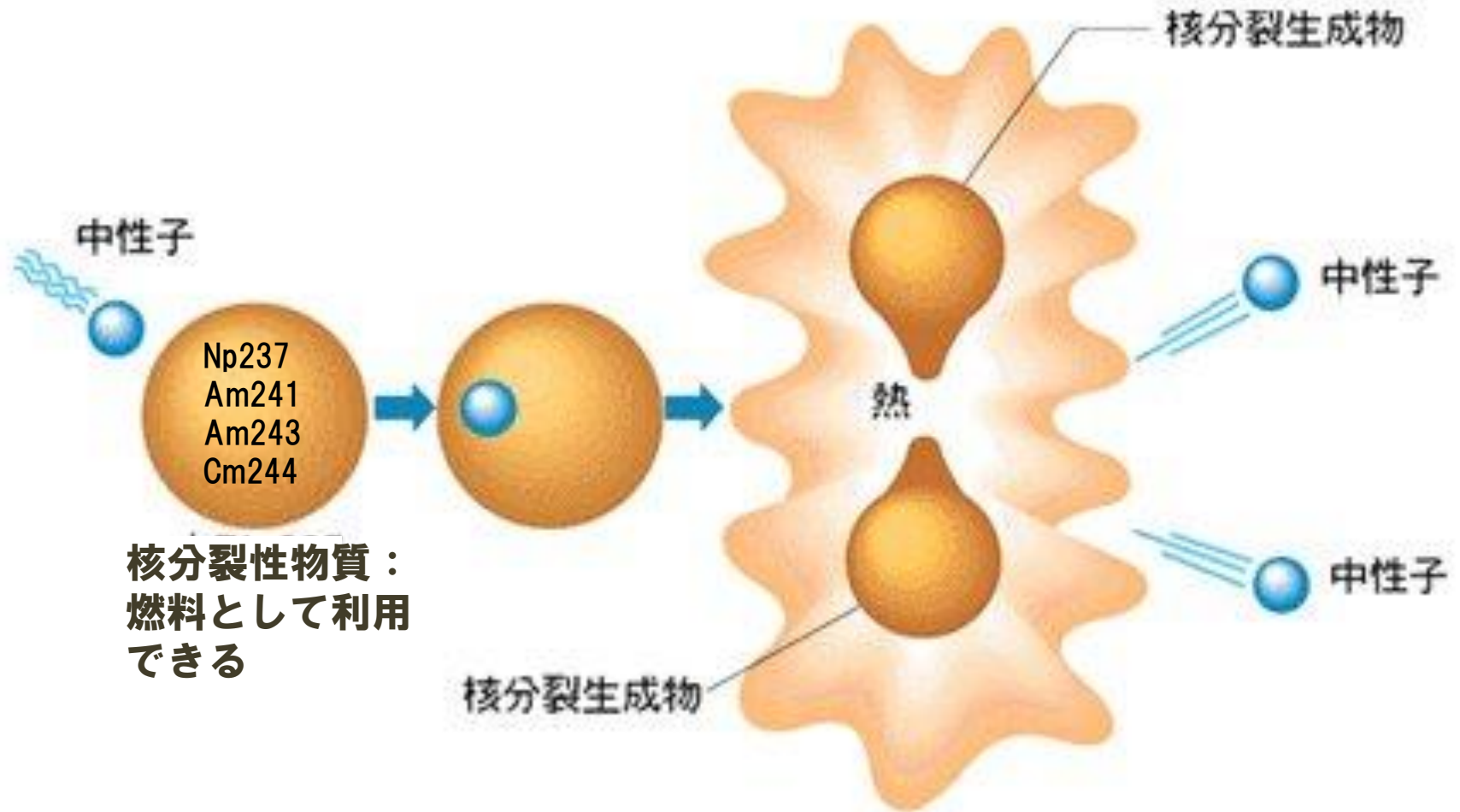


Table 11-2. Transmutation Probabilities (in %)

Isotope	Thermal Spectrum	Fast Spectrum
Np-237	3	27
Pu-238	7	70
Pu-239	63	85
Pu-240	1	55
PU-241	75	87
Pu-242	1	53
Am-241	1	21
Am-242m	75	94
Am-243	1	23
Cm-242	1	10
Cm-243	78	94
Cm-244	4	33

注目するマイナアクチニド (Am241, Am243, Np237, Cm244) の核分裂確率は、

高速中性子 (速度は約2万Km/s) のほうが、

熱中性子 (速度は約2km/s) よりも

一桁大きい

高速中性子の利用が合理的
(熱中性子では中性子吸収反応が支配的)

Till, Chang Plentiful Energy (2011)

1991年 バタイユ法（2006年度までの燃料サイクルと廃棄物政策:高速増殖炉 Super Phoenixをマイナアクチニド処理に活用する計画を含む）

2005年 地層処分レポート（ANDRA）

2006年 核廃棄物法（2020-25年の燃料サイクルと廃棄物政策）

－2006年法の骨子－

The Sustainable Radioactive Waste Management Act of June 28, 2006, specified clear guidelines for spent nuclear fuel management. It states two complementary principles:

- The policy of treating and recycling spent nuclear fuel is valid for reducing the quantity and toxicity of suitably packaged ultimate radioactive waste forms. **(減容、毒性低減にリサイクルは有効)**
- The reference process for high-activity and long-lived ultimate waste is deep geological disposal. **(深地層処分)**



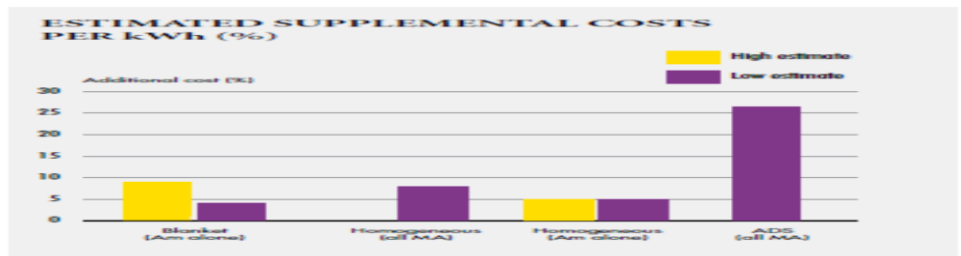
さらに、マイナアクチニドの変換により、上記目的に資する新しい原子炉と、加速器駆動システム（以下ADS）について、

- ① 2012年までに研究開発すべきオプションを提出すること
- ② 2020年までに原型プラントを投入（Commission）できること

安全性目安線量 0.25mSv/y (自然放射能の1/10)

地下水の湧出地点	線量
ソー湧出域	$8.3 \times 10^{-4} \text{mSv/y}$
オルナン湧出域	$2.0 \times 10^{-6} \text{mSv/y}$
バロワ湧出域	$5.5 \times 10^{-6} \text{mSv/y}$
ドツガー湧出域	$< 10^{-7} \text{mSv/y}$

主要原理	核分裂反応				核破砕反応
方法のオプション	Na冷却高速炉	ガス冷却高速炉	鉛冷却高速炉	溶融塩冷却高速炉	加速器駆動システム(ADS)
2012年評価結果	<ul style="list-style-type: none"> ・技術的に成熟している ・今後の技術的なリスクを実証炉建設・運転により低減できる 	<ul style="list-style-type: none"> ・高温熱利用の可能性はある ・長期間の開発が必要 	<ul style="list-style-type: none"> ・鉛の高い融点と構造材腐食の問題があり扱いにくい ・オプションから外す 	<ul style="list-style-type: none"> ・仏CNRSでトリウム溶融燃料(冷却材を兼ねる)の研究中 ・研究課題が多い 	<ul style="list-style-type: none"> ・高速炉2基に対してADS1基で同程度のMA処理性能を達成 ・余剰Pu消費のために高速炉との併存要
オプションとしての今後の対応	実証のための原子炉建設計画をフランスで具体化する1500MWth(600MWe)	75Mwtプラントの建設を視野にいれ、欧州コンソーシアムで検討を続ける	検討から外す	長期(2050年を視野)の研究と位置付ける	ベルギー原子力研究センターで開発中、仏CNRSが共同開発(CNRS:国立科学研究センター)
高速炉と加速器駆動システム(ADS)の発電コストへの影響比較	<ul style="list-style-type: none"> ・高速炉システムは5~7%増加 ・加速器駆動システムは25%増加(コスト増加要因に相対的に多量のCmを含む燃料製造がある) 				

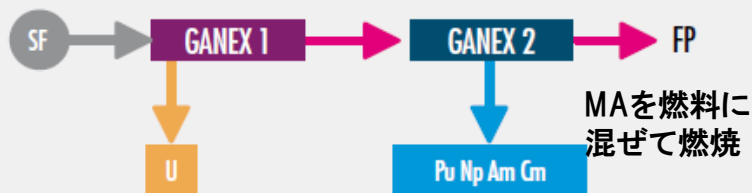


SEPARATION PROCESSES

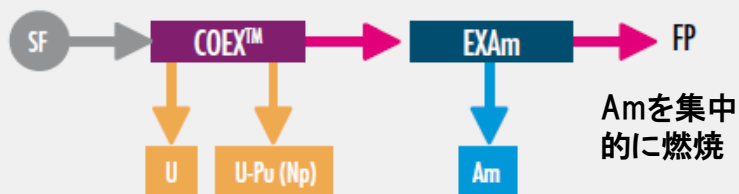
ENHANCED SEPARATION



GROUP SEPARATION



RECOVERY OF Am ALONE



SF: spent fuel
 Am: americium
 Cm: curium
 U: uranium
 Pu: plutonium
 Np: neptunium
 FP: fission products

CEA: Report on Sustainable
 Radioactive Waste
 Management(2012)

目標

99.9%以上の回収率

(処分場の放射能毒性を
 数十万年から数百年に低減する目安)

2012年 報告書

数Kg試験を実施して99%を
 上回るマイナアクチニド
 回収率を確認した

2013年 国際会議

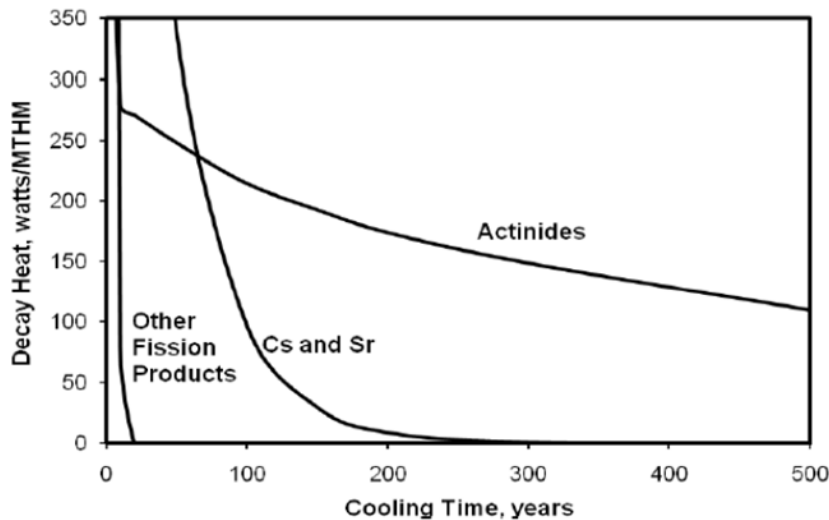
SANEXプロセスで
 アメリシウム・キュリウムの
 回収率を99.9%に向上

GANEXで99.5%の
 ネプチニウム・アメリシウム・
 キュリウム・プルトニウムを回収



高レベル廃棄物処分施設の大きさ

MA分離技術	占有面積低減割合 (70年間中間貯蔵)	占有面積低減割合 (120年間中間貯蔵)
Amを除去	2	7.3
Am,Cm,Npを除去	2.5	9.8 (120ha相当=東京ドーム約25個分)



70年ではAm、CsとSr、の崩壊熱が同程度であり処分施設の大きさはこれらの核種で決まる、100年を過ぎればAmが支配要因である

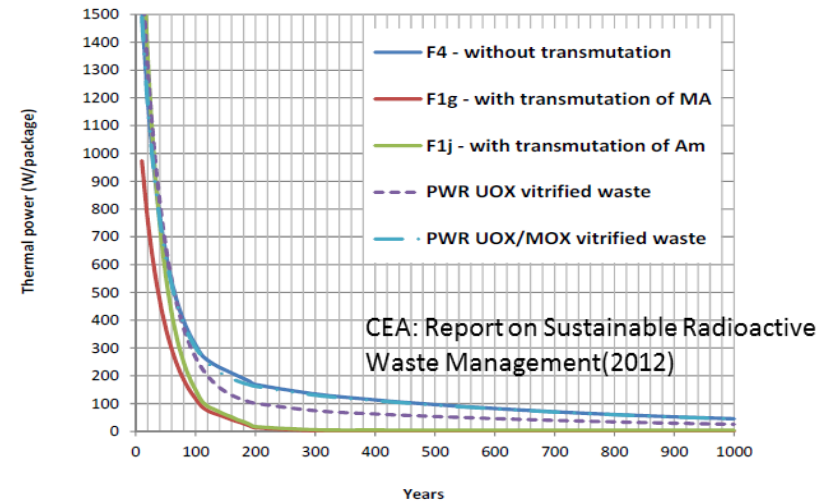


Figure 5 - Residual thermal power of HLW packages (CSD-V)

長期的な崩壊熱の推移、Amの除去あるいは全MAの除去による崩壊熱の低減が顕著

マイナアクチニド分離前の中間貯蔵期間の役割に注意

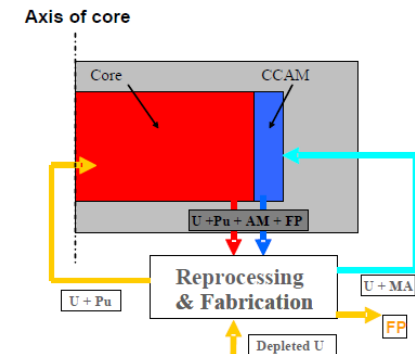
報告書に対する国家評価委員会による 独立評価

要点のみ

- Na冷却実証炉ASTRIDのプロジェクトの追及
- ガス冷却高速炉、溶融塩冷却高速炉は欧州レベルで研究
- 加速器駆動システム(ADS)も考慮にいて高速炉と比較
- ADSはPuを燃焼する高速炉との併存が必要
- アメリシウム分離と変換および高速炉での燃焼に注力
- アメリシウムをASTRID炉心に非均質に配置して燃焼実証
- ASTRIDの今後20年間にわたるロードマップ
- 長期的なU、Pu、MAの管理の仕組みを提案することを要求

注)Amと非均質を優先する理由

「均質での変換には、多くの技術的ブレイクスルー(U、Pu、Amを含む炉心)を要するが、非均質ならASTRIDの変換において漸進的に進めることができる。実際、Amは、ASTRIDの起動後、安全上の運転パラメータが確認後に実施される。また、燃料製造(U、Pu)とブランケット製造(Am、U)を分けることができるし、燃料サイクルの全ての段階でのアクチノイドの存在を避けることができる。(評価書より)」



非均質に配置して燃焼するイメージ



Carter政権の政策 (1977)

- 再処理とPuのリサイクルを永久に凍結

"we will defer indefinitely the commercial reprocessing and recycling of the plutonium produced in the U.S. nuclear power programs"

- Barnwell 再処理工場(1500t/y)と高速増殖原型炉開発がキャンセル

参考：1979年3月28日スリーマイル島
原子力発電所事故

Integrated Fast Reactor (IFR) Program (1984-1994)

- Pu、マイナアクチニドを一括回収できる乾式プロセスをANLが開発
- 回収したPu、マイナアクチニドを高速炉で燃焼させる構想を具体化

ANL: Argonne National Laboratory アルゴンヌ国立研究所

National Academy Study (1991-1996)

- エネルギー省(DOE)がNational Academyに軽水炉使用済燃料の処理・処分法の評価を要請(結果を1996年に571ページの本として発行)
- 直接処分、軽水炉、高速炉、加速器、によるマイナアクチニド核変換の技術的・経済的な優劣、と推奨する選択肢が調査された
- 主要な結論: 90-99%回収しても残りのマイナアクチニドは処分施設に行くので施設容積は減容されるもの結局は処分施設が必要

"the Panel found no evidence that the applications of advanced separations and transmutation have sufficient benefit for the U.S. high level waste program"

(直接処分のためのYucca Mountainプロジェクトが始まっており、Panelは直接処分以外の結論を推奨することが難しかった、と言われている)



Clinton政権の政策 (1993)

- 反原子力の世論に同調する形で、すべての原子力研究開発予算を終結させた
- 第四世代原子炉の研究という国際協力だけに予算が残る
- 原子炉開発の困難さから加速器駆動システム(ADS)予算が提案される



Global Nuclear Energy Partnership (GNEP) Initiative (2006-2008)

- エネルギー省のイニシアチブで米国主導の研究開発を再開する
- 国立研究所主導で20t/yのマイナアクチニドの分離研究と消滅のための高速炉(250Mwt)研究が重視された
- それに対して産業界が1600t/y規模の再処理施設の建設を働きかけた
- 産業界の働きかけは議会の承認を得られずGNEPそのものが消滅した



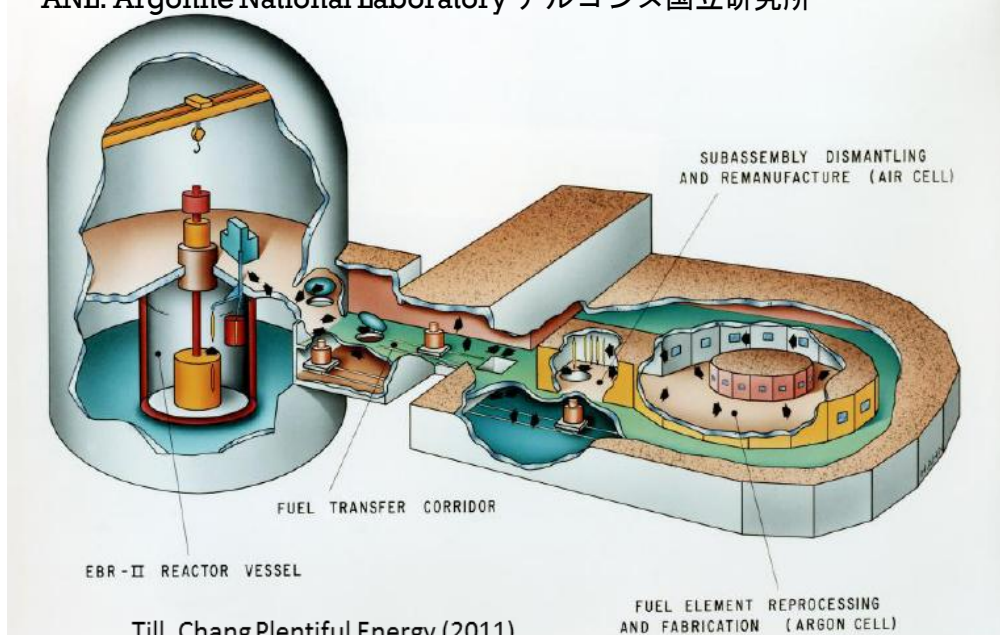
Obama政権の政策

- Yucca Mountainをキャンセル
- 超党派の委員会で廃棄物政策を検討
- 具体的方策を依然模索中



米国 (ANL) 乾式再処理と歴史と原理

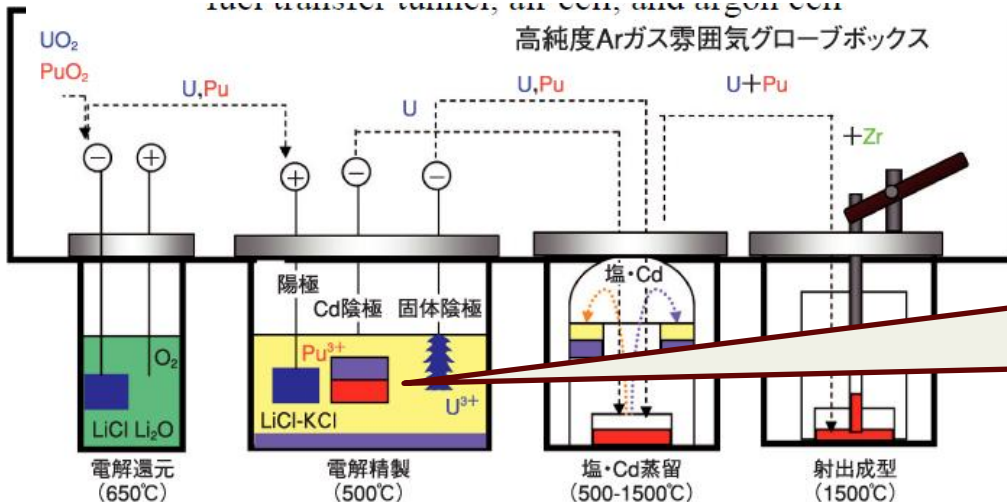
ANL: Argonne National Laboratory アルゴン国立研究所



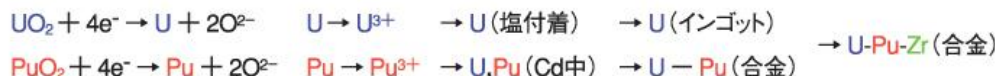
Till, Chang Plentiful Energy (2011)

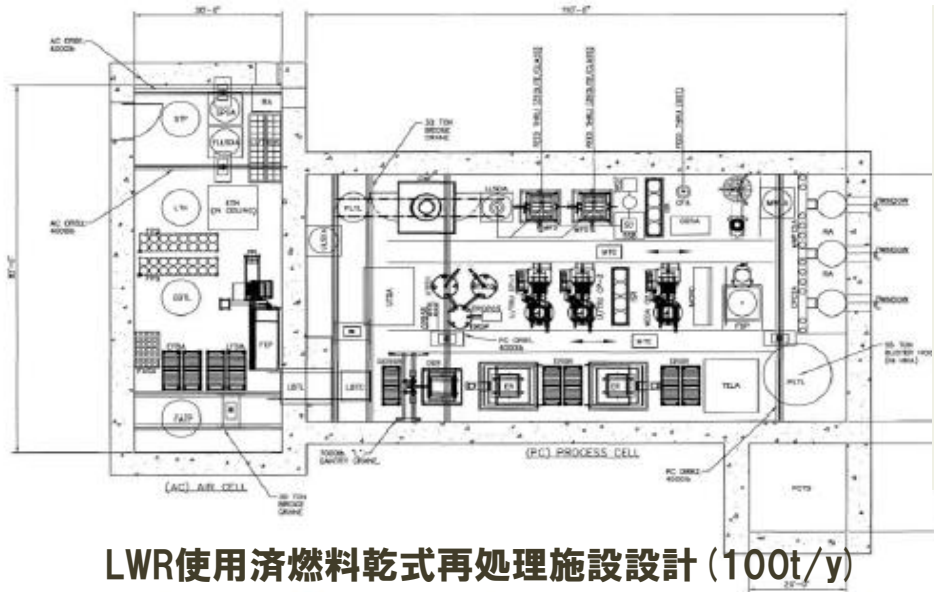
- 1964年から1967年にかけて照射燃料の再処理を実施
1969年から照射後試験施設として運用された
- 1984年から1994年まで IFR (Integrated Fast Reactor) プロジェクトの中心を担うようになる
- 1993年第二期クリントン政権により終止符
- その後はEBR-II 燃料処理等に利用されてきた

高速実験炉とFCF (Fuel Cycle Facility) の鳥瞰図



熔融塩中には、U,Pu,MA,FPが溶解している。Uは固体陰極で、Pu、MAは液体陰極に析出させる。残留したMAは熔融塩に残るため、次のサイクルで液体カドミ陰極から析出させることができるため、各サイクルでの分離効率は大きな意味をもたない

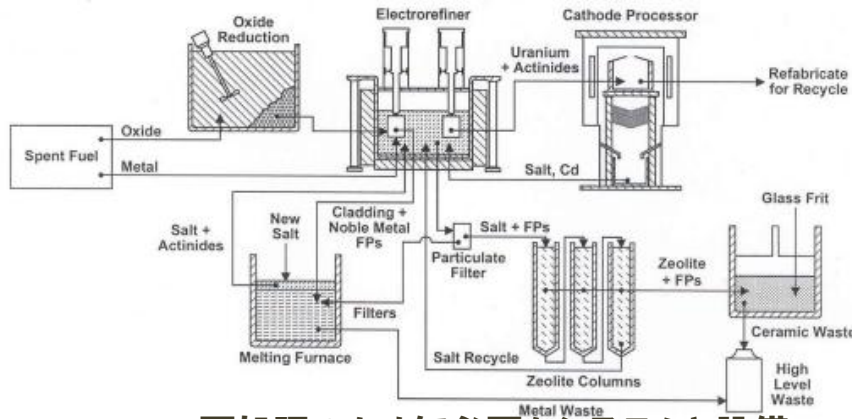




LWR使用済燃料乾式再処理施設設計 (100t/y)

Figure 10-4. Equipment layout for a 100 ton/yr pyroprocessing facility for LWR spent fuel

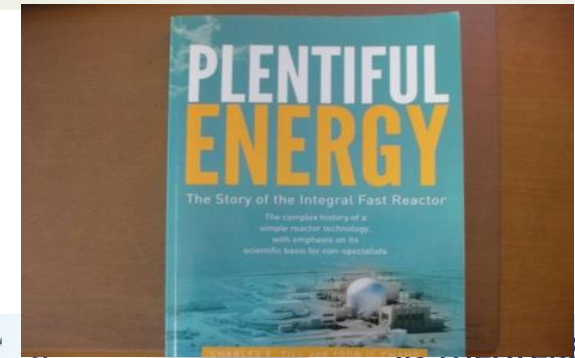
Till, Chang Plentiful Energy (2011)



再処理のために必要なシステムと設備

Figure 8-3. Schematic flowsheet of electrorefining based spent fuel treatment

- 高速炉 (EBR II) の燃料4400kgを2010年までに処理した実績あり
- 軽水炉使用済燃料から99.95%以上のTRUを回収をラボ試験で確認
- 100トン/年の軽水炉使用済燃料再処理施設の設計が完了
- 2013年に開発の成果をまとめた図書を発行



OFFICIAL SELECTION
2013
SUNDANCE
FILM FESTIVAL

JUNE 2013

FROM ACADEMY AWARD® NOMINATED DIRECTOR ROBERT STONE

PANDORA'S PROMISE

(ACTUAL SIZE)

WHAT IF THIS CUBE COULD POWER YOUR ENTIRE LIFE?

2013年、CNNの映画が反対していた市民にインパクト

	PRISM(Na冷却)	TWR(Na冷却)	EM2(ガス冷却)
炉心概念図	<p>S-PRISMをベースに ANLがMA燃焼炉設計</p> <p>http://www.osti.gov/scitech/biblio/973480</p>	<p>複数本の制御棒を設置</p> <p>http://terrapower.com/uploads/docs/ICAPP_2011_Paper_11199.pdf</p>	<p>PyCとSiCの組み合わせた板状燃料集合体</p> <p>GA at 4th Annual Asia-Pacific Nuclear Energy Forum</p>
特徴	<ul style="list-style-type: none"> 炉心内部の転換比(0.0-1.0)に関わらず要求に応じて対応できる炉心構成 Pu及びMA専焼炉心 	<ul style="list-style-type: none"> ビル・ゲイツがスポンサー 劣化ウランをPuに転換することで燃焼を持続させるので40年間新燃料の補給は不要 40年間廃棄物の発生はなし 	<ul style="list-style-type: none"> 軽水炉使用済燃料を再処理なしで初期燃料(+12%U235)として利用 燃焼サイクル後期でFPを取り除き再度燃料として利用する 長期間廃棄物発生なし
最近の動向	英国Pu処理用原子炉として提案中	2013年12月17日、米国/中国共同開発のための協定を締結 B&W社と提携(2014年2月)	DOE資金獲得を目指す



乾式再処理・金属燃料に関心を示す アジア諸国



インドでは、MOX燃料から初めて2020年からは、MOXよりも密度が大きいため増殖比が大きい金属燃料に移行する計画

Fast Reactor Technology – Future Plans

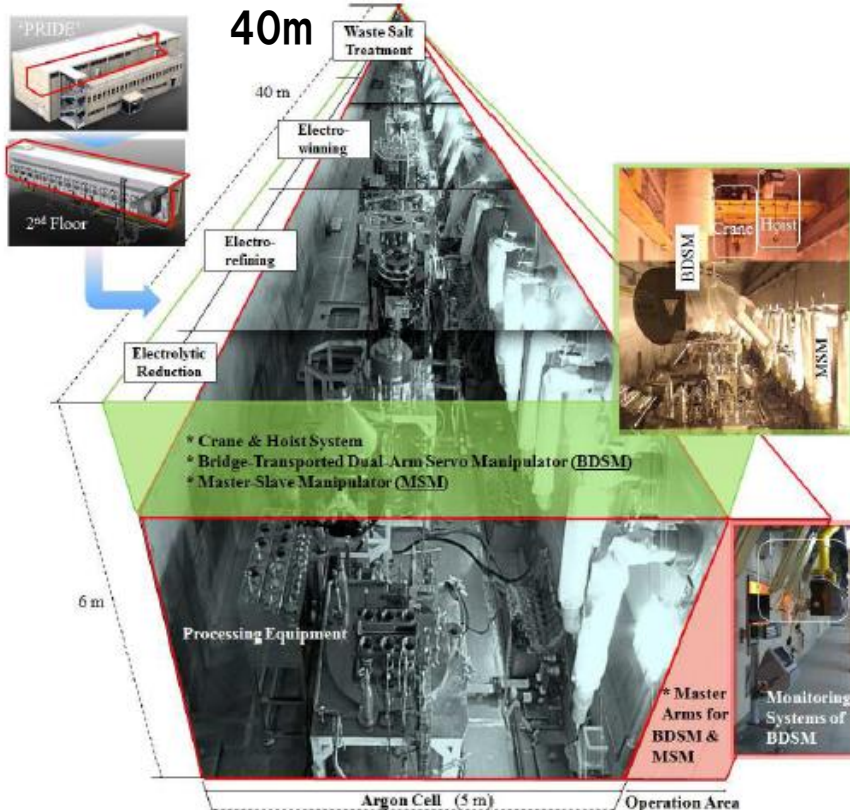
- Four FBRs after PFBR .
- These reactors would use **MOX** fuel.
- Metal fuelled FBR around 2020.**
- Development of **Metal Fuel Cycle** being taken up to meet this objective.

- Thorium based reactors & fuel cycle probably meets sustainability demands even better-Long Term System.
- But Thorium cycle may always need an external fissile feed Eg:Pu

最終目的はPuを使ってトリウムを核分裂性のU233に変換すること



韓国原子力研究所(KAERI)は金属燃料乾式処理(再処理)技術の実用化を目指す(PRIDE)、高速炉は600MWe実証炉を2020年代に導入する計画



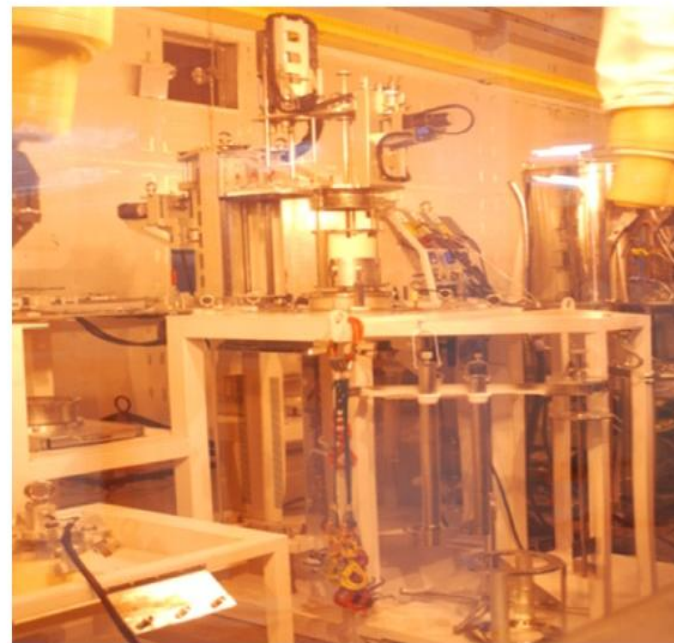
乾式処理（再処理技術）を米国から2006年までに導入し、
2012年に実証規模の試験施設を建設完了、
本格的試験を開始している



軽水炉酸化物燃料を
金属に還元する電界槽
(50Kg/バッチ)



ウランを固体陰極に析出
する電解槽(50Kg/d:直径
は1m以上と推定)



Pu,MAを液体陰極に析出
させる電界槽

IAEA Inspection of PRIDE through DIV

- ◆ **PRIDE Design Information Verification (DIV) was carried out by IAEA (2012. 8)**
 - **DIV of each Essential Equipment (EE)** were performed using essential equipment verification working papers prepared jointly by IAEA and ROK in advance for the DIV purpose.
 - **Photo-taking of EE was performed.** Photo taking of EEs in Ar cell was performed from inside and outside of the cell.
 - For the purpose of Facility Attachment preparation process finalization, the validity of inventory **KMPs structure was confirmed and agreed** during the DIV. The Agency proposed flow KMPs structure was accepted by operator.
 - **3D laser mapping measurements** were performed in Ar cell and in the process room at first floor.
 - **Perspectives were shared with regard to possible data sharing for process monitoring parameters.** KAERI expressed its readiness to share process monitoring parameters.
- ◆ **These activities will support IAEA in terms of inspection and monitoring the process, resulting in high reliability of PRIDE material control and transparency.**



ICAPP2013



PRIDE Program

◆ Program

	2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018	2019	2020
Blank est									
Salt test									
U test									
Surrogate mat'l test									
Long-term integral test									

◆ Achievement

- ✓ Utility Operation experience
- ✓ Equipment design improvement
- ✓ Material Measurement – online offline monitoring
- ✓ Material Flow Check
- ✓ Applicability of the other concepts
- ✓ Personnel Training

2014年よりウラン試験開始
(米韓原子力協定により使用済燃料の再処理試験は実施できない)



ロシア、インド、中国のマイナアクチニド研究

ロシア



Principal results of fuels study: BORA-BORA inert matrices fuels

Transmutation and incineration are innovative options in management and disposal of fission products and actinides. In order to improve the efficiency of these processes, materials inert to neutron activation are of interest.

❖ Irradiated PuN-ZrN has 2-phase structure consisting of solid solutions based on Zr and Pu nitrides differing by its proportion and fission products content.

Swelling rate <0,1%/1at.%.
Gas release ~ 1%.

Max cladding corrosion depth ~ 15µm.

❖ Irradiated PuO₂ - MgO has 2-phase structure consisting of Pu and Mg dioxides with fission products dissolved.

Swelling rate ~ 0.5%/1at%.
Gas release - 9%.

Max cladding corrosion depth < 10µm.

Fuel type	PuO ₂ +MgO	PuZrN
Pu content, %	35.8	37.5
Density, %th	88...91	83...84
Irradiation time, efpd	900/514 ^{a)}	900/514 ^{a)}
Max burn-up, at. %.	19.0/11.1 ^{a)}	19.4/11.3 ^{a)}
Max cladding temperature, °C	551	547
Max linear rating, kW/m, BOL/EOL	10.0/8.8	20.7/18.2

^{a)} end of 1-st irradiation stage / end of 2-nd stage

DOVITA program: irradiation of UNpO₂ vi-pack fuel to 20at% has been done at BOR-60. No principal difference is seen comparing MOX or uranium oxide.

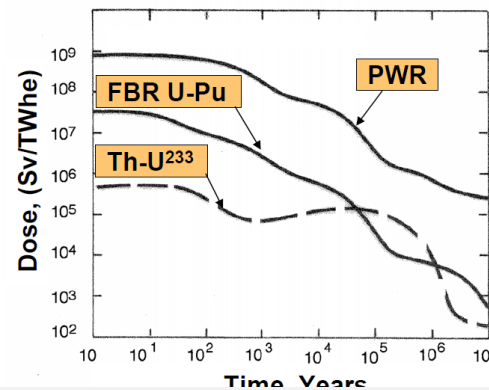
ISTC MATINE Project: the possibility has been considered on fabrication of (Pu,Am,Cm,Zr)N with up to 10mol% Cm on RIAR site. Electrolytic refining in molten chlorides on liquid metal

ロシアではMAを発生させるウランを使わないPu燃料、MA燃料の照射などの開発が行われている

インド



Radio-toxicity of Wastes



インドの目標はトリウムサイクル
ただしPa(プロトアクチニウム)などによる毒性に課題あり

中国



清華大学とKITの共同研究

Am(III)/Cm(III) Separation
16 Stage CC Setup at Jülich



JÜLICH
FORSCHUNGSZENTRUM

INET, Tsinghua University Beijing, China
10 mm rotor diameter

<p>使用済燃料からマイナアクチノイドを分離する技術</p>	<p>湿式法 (フランス) 2012年報告書他 99.9%の分離効率を達成</p>			<p>乾式法 (米国) 乾式再処理システムに閉じ込めているので実質的な分離効率は99.9%以上が可能</p>	<p>トリウムサイクル</p>
<p>マイナアクチノイドを核分裂により消滅する技術</p>	<p>Na高速炉 ASTRID</p>	<p>He高速炉、 溶融塩高速炉 (ともに長期間の研究テーマ)</p>	<p>加速器駆動システム (ADS)</p>	<p>Na高速炉 PRISM TWR</p>	
<p>課題</p>	<p>分離技術 ・MA分離効率とMA分離施設追加コスト</p> <p>高速炉 ・安全性向上 (ボイド反応度等) ・実証炉による確認</p>	<p>・ニーズの確認</p>	<p>・建設・運転コスト (加速器、原子炉) ・余剰Puを消費するために高速炉との併存が必要 ・ニーズの確認</p>	<p>分離技術 ・研究開発インフラの劣化 ・インゴット重量測定に伴い不確かさに起因する保障措置 (ホットセルの有利さとのバランス) 高速炉 ・金属燃料安全性実証 ・実証炉による確認</p>	<p>・再処理が実用化できなければU-Puサイクルによる世界のウラン資源延長には及ばない ・毒性が高い時期がある ・ニーズの確認</p>

共通課題として、処分施設サイト外での安全評価上重要なCs135,Se79の取り扱いがある

付録

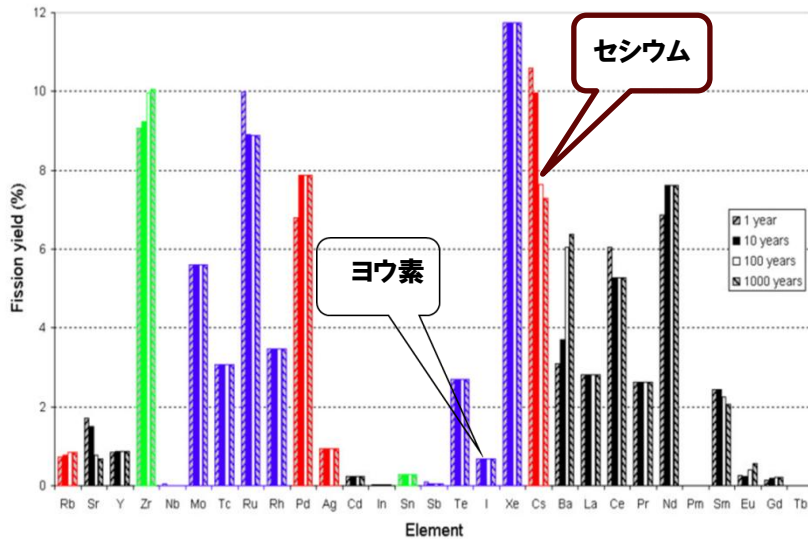
① 長半減期FP (LLFP) の存在

ガラス固化体経年損傷過程での処分施設から
周辺地下水への移動と被ばく可能性の
観点から

② トリウム燃料

ウランを使わない燃料としてマイナアクチニドを
発生させない観点から

半減期の長い水溶性核分裂生成物質(LLFP)が、貯蔵容器の寿命による損傷後の被ばく(地下水を移動)という観点から注目されている



http://en.wikipedia.org/wiki/Fission_product_yield

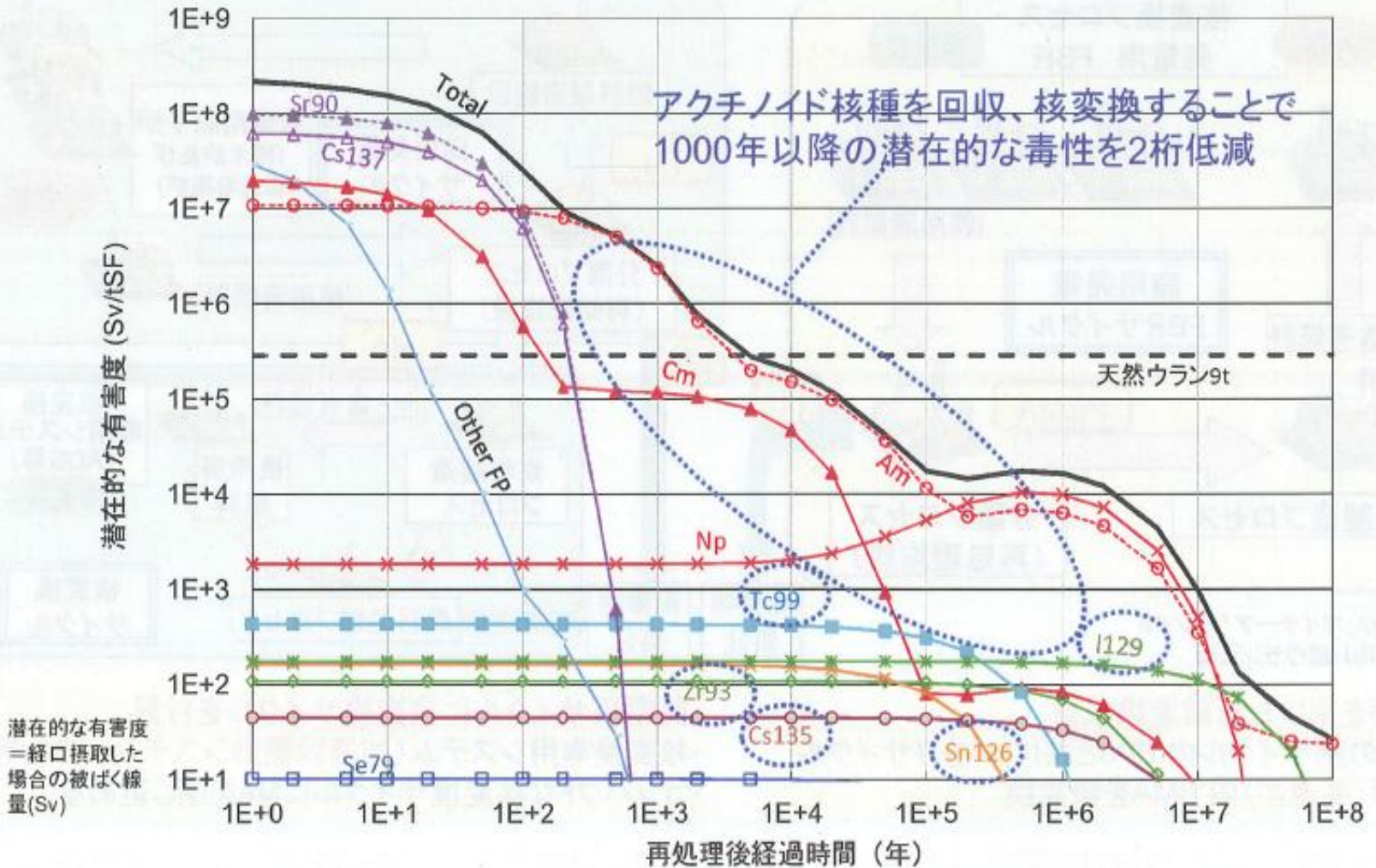
半減期が長く、被ばく上課題があるという観点からテクネシウムTc99,ヨウ素I129,セシウム135に関心が集まる

核種	半減期	線量換算係数 (Sv/Bq)	含有量 (1トン当たり)
Se-79	29万5千年	2.9×10^{-9}	6g
Sr-90	28.8年	2.8×10^{-8}	0.6kg
Zr-93	153万年	1.1×10^{-9}	1kg
Tc-99	21万1千年	6.4×10^{-10}	1kg
Pd-107	650万年	3.7×10^{-11}	0.3kg
Sn-126	10万年	4.7×10^{-9}	30g
I-129	1,570万年	1.1×10^{-7}	0.2kg
Cs-135	230万年	2.0×10^{-9}	0.5kg
Cs-137	30.1年	1.3×10^{-8}	1.5kg

http://www.nins.jp/public_information/doc/sympol13_2_3.pdfより

LLFPとMAの毒性 (Sv):施設内ではLLFPはMAより二桁小さい

JNC TN1400 99-020



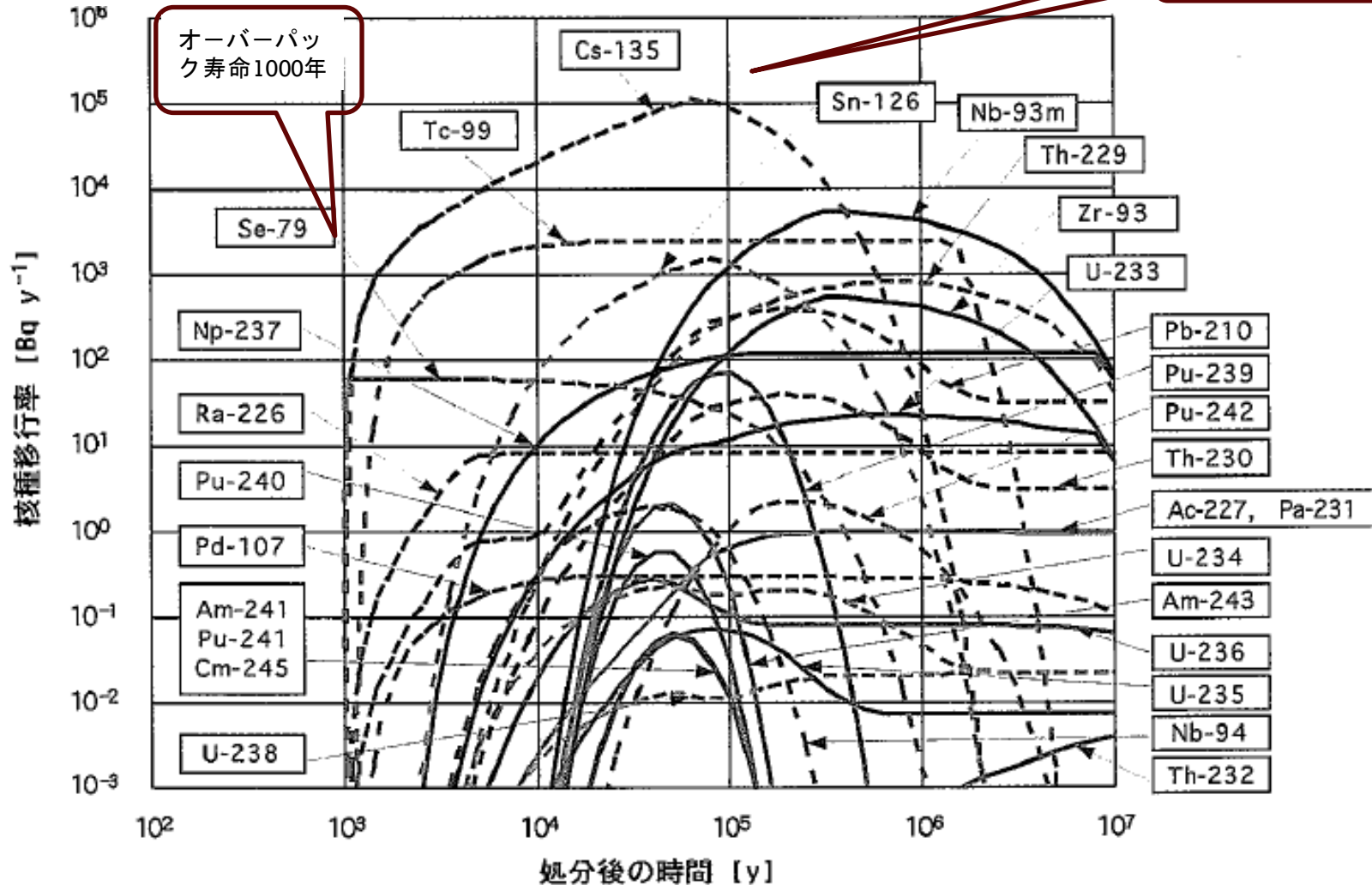
MAを99.9%除去したあとにTc, I, Csの毒性が問題として残る

施設外への移行率: Cs135がもっとも大きい

わが国における高レベル放射性廃棄物 JNC TN1400 99-020

地層処分の技術的信頼性

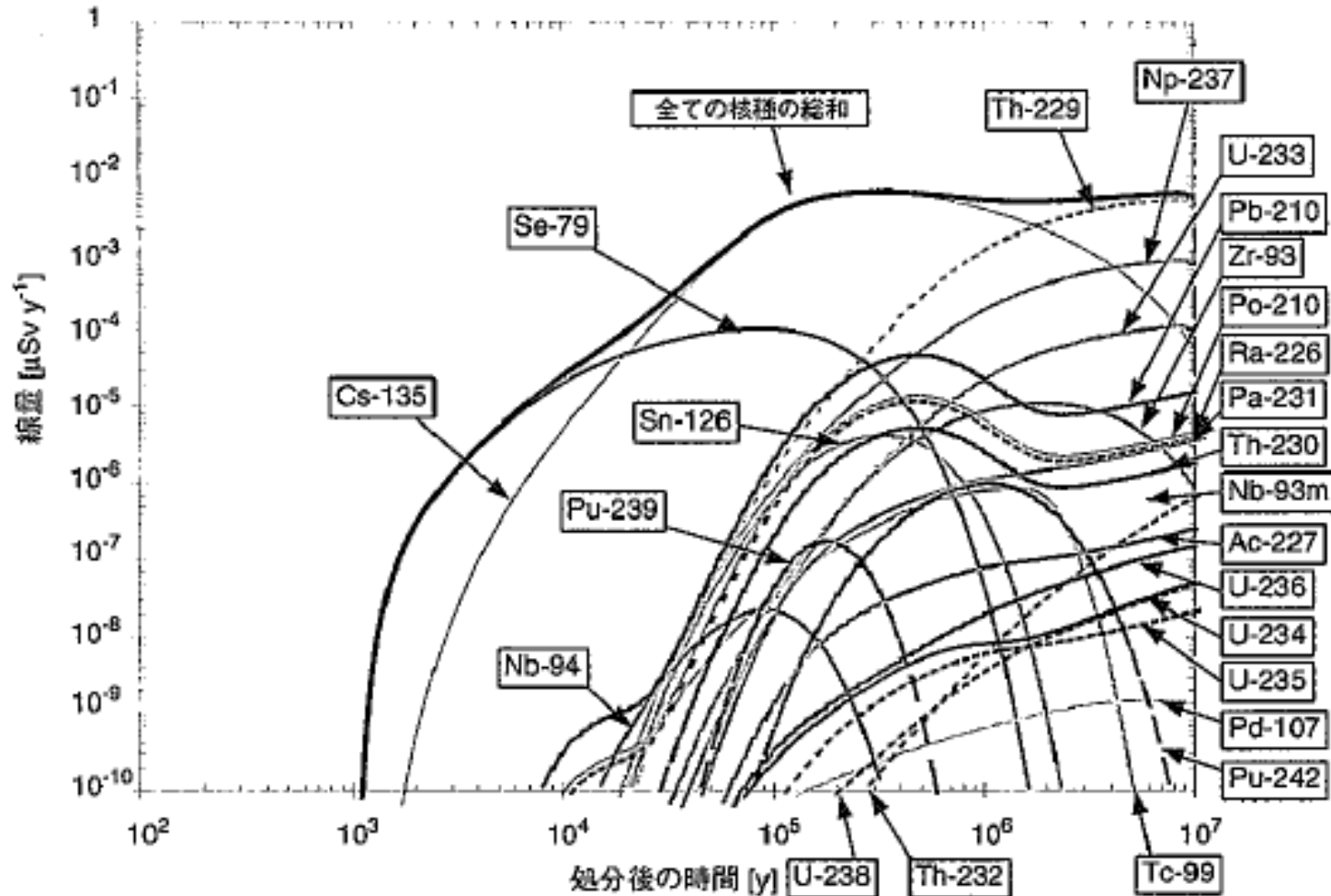
ガラス固化体溶解7万年



オーバパック破損(1000年)後のガラス固化体からの移行率

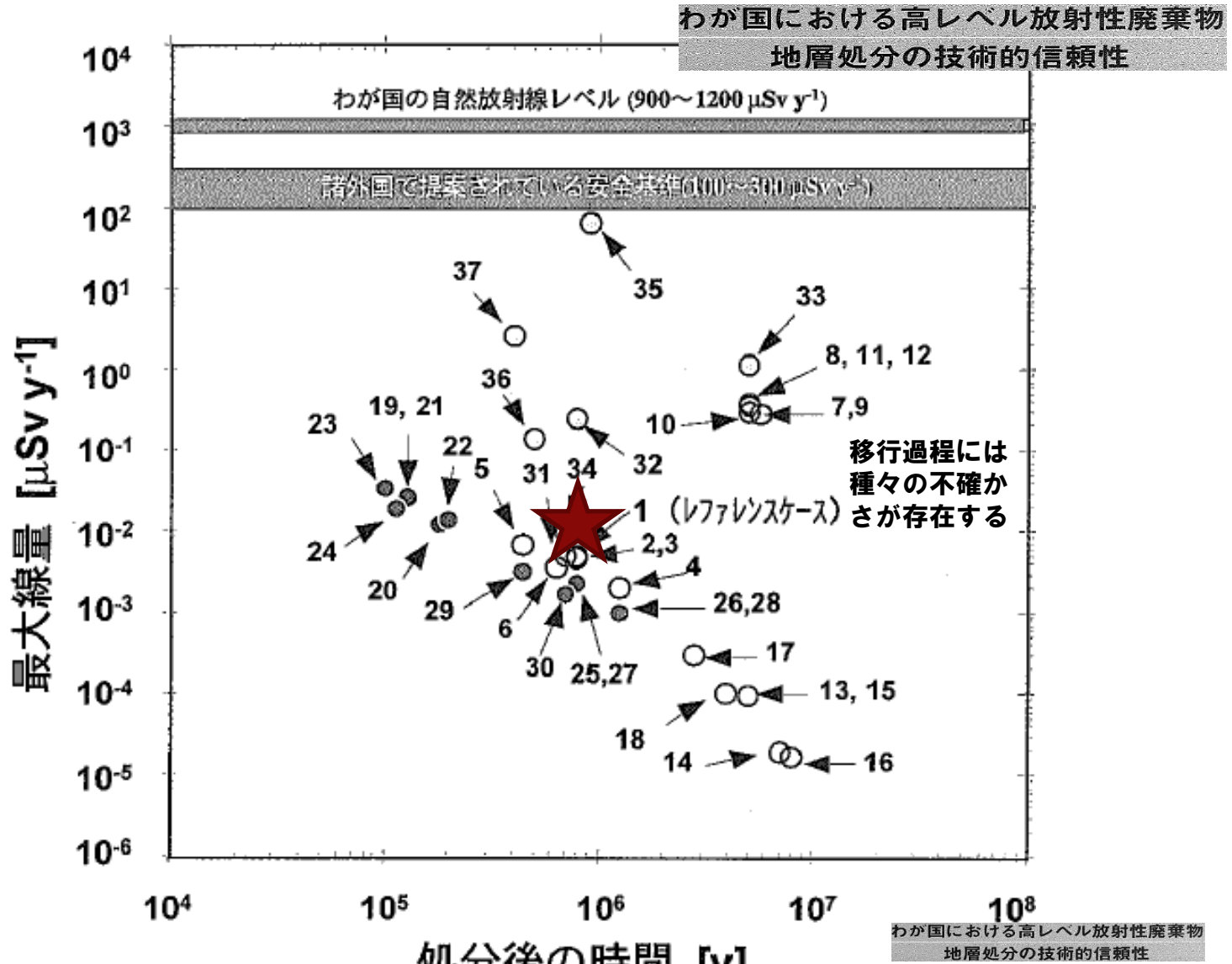
処分施設から移行した核種による被ばく可能性

わが国における高レベル放射性廃棄物
地層処分の技術的信頼性



百万年まではSe、Csによる被ばく、その後はトリウムによる被ばくが支配的である

モデルの不確かさを考慮しても許容値以下



LLFP消滅の意義づけは、機器の合理化と「長期間」という圧力からの解放

LLFPの核変換および処分についての研究現状

- a. 熱中性子の吸収確率が大きい性質を利用して熱中性子場(熱中性子炉、高速中性子炉の一部にこの場を設ける)により核変換する(ただし対象核種が増えると課題あり)
- b. 高速中性子炉の高速中性子束の大きさを利用して核分裂させる
- c. ADS(加速器駆動)により高速中性子場で核変換する



Study on the LLFPs transmutation in a super-critical water-cooled fast reactor
 Huihui Luo¹, Yoshihiro Kawai², Yoshiaki Okai³

¹China Nuclear Power Engineering Research Institute, Suzhou, Jiangsu, 215008, China
²Department of Nuclear Engineering and Management, The University of Tokyo, Tokyo, Japan 113-8654, Japan

ARTICLE INFO ABSTRACT
 Received 11 March 2010
 Received in revised form 2 September 2010
 Accepted 19 October 2010

The performance of the super-critical water-cooled fast reactor (SCWR) for the transmutation of long-lived fission products (LLFPs) has been studied. The reactor with the 400 MW thermal power is designed with the 10% enrichment core. The LLFPs selected in the transmutation include ⁹⁹Tc, ¹²⁹I and ¹³⁵Cs discharged from SCWR fuel and inventory. Special regard is given to ⁹⁹Tc and ¹²⁹I, which are expected to exist the longest. By using the ⁹⁹Tc and ¹²⁹I as the initial condition in the reactor region, respectively, the transmutation rates of 3.302E-04 per year and 2.736E-04 per year are obtained for ⁹⁹Tc and ¹²⁹I, respectively. The transmutation rates of ⁹⁹Tc and ¹²⁹I are compared with the rates of 1.1E-04 and 1.00E-04 per year (PWR). Because of the low initial concentration of ⁹⁹Tc and the effect of the neutron spectrum, ⁹⁹Tc can be loaded with the initial concentration of 10% and the effect of the neutron spectrum is more significant than that of ¹²⁹I. However, the transmutation of ¹²⁹I is a difficult and the transmutation rate is less than that predicted by the Super-TR. Some of the transmutation of ¹²⁹I can be achieved in the Super-TR but the other transmutation of ¹²⁹I and ¹³⁵Cs cannot.

日本の研究 (岡教授
他)

NUCLEAR ENGINEERING AND DESIGN 248 (2010) 118–124

Long-Lived Fission Product Transmutation Studies

W. S. Yang, Y. Kawai, R. N. Hill, T. A. Tarwo, and H. S. Kawai
 Argonne National Laboratory, Nuclear Engineering Division
 9700 S. Cass Avenue, Argonne, Illinois 60439

Received March 26, 2010
 Accepted June 10, 2010

Abstract – A systematic study on long-lived fission products (LLFPs) transmutation has been performed with the aim of deriving an optimal strategy for their transmutation in critical or subcritical reactor systems and evaluating impacts on the power spectrum. ⁹⁹Tc, ¹²⁹I and ¹³⁵Cs were considered to have the longest transmutation periods. The transmutation rates of ⁹⁹Tc, ¹²⁹I and ¹³⁵Cs were evaluated by considering a typical practical super reactor (SCWR) and a super-critical water-cooled fast reactor transmutation rate of waste system. To determine the best transmutation capabilities, various target design and loading configurations were studied. It was found that both ⁹⁹Tc and ¹²⁹I can be subjected to a very low production rate in the SCWR. The transmutation rates of ⁹⁹Tc and ¹²⁹I are compared with the rates of 1.1E-04 and 1.00E-04 per year (PWR). Because of the low initial concentration of ⁹⁹Tc and the effect of the neutron spectrum, ⁹⁹Tc can be loaded with the initial concentration of 10% and the effect of the neutron spectrum is more significant than that of ¹²⁹I. However, the transmutation of ¹²⁹I is a difficult and the transmutation rate is less than that predicted by the Super-TR. Some of the transmutation of ¹²⁹I can be achieved in the Super-TR but the other transmutation of ¹²⁹I and ¹³⁵Cs cannot.

米国ANLの研究

米国ANL研究結果

- ・処分場所でのLLFPの有害度はMAのそれより約二桁小さい
- ・MAを99.9%除去したあとはTcとIの有害度に対する寄与が大きい
- ・MAを除去したあとにコンテナがこわれると米国直接処分場 Yucca Mountainから20Km離れた井戸ではTcとIによる被ばくが問題
- ・ただし、被ばくは1–3mrem/年なので許容値を下回り核変換の必要性はない
- ・前提として10000年までコンテナ形が崩れないように設計されていることが重要である。
- ・しかし、LLFPが除去できるならば、コンテナの設計条件(10000年は壊れてはいけない)が緩和される

ウランを使わないU233/Th232という選択



Th232

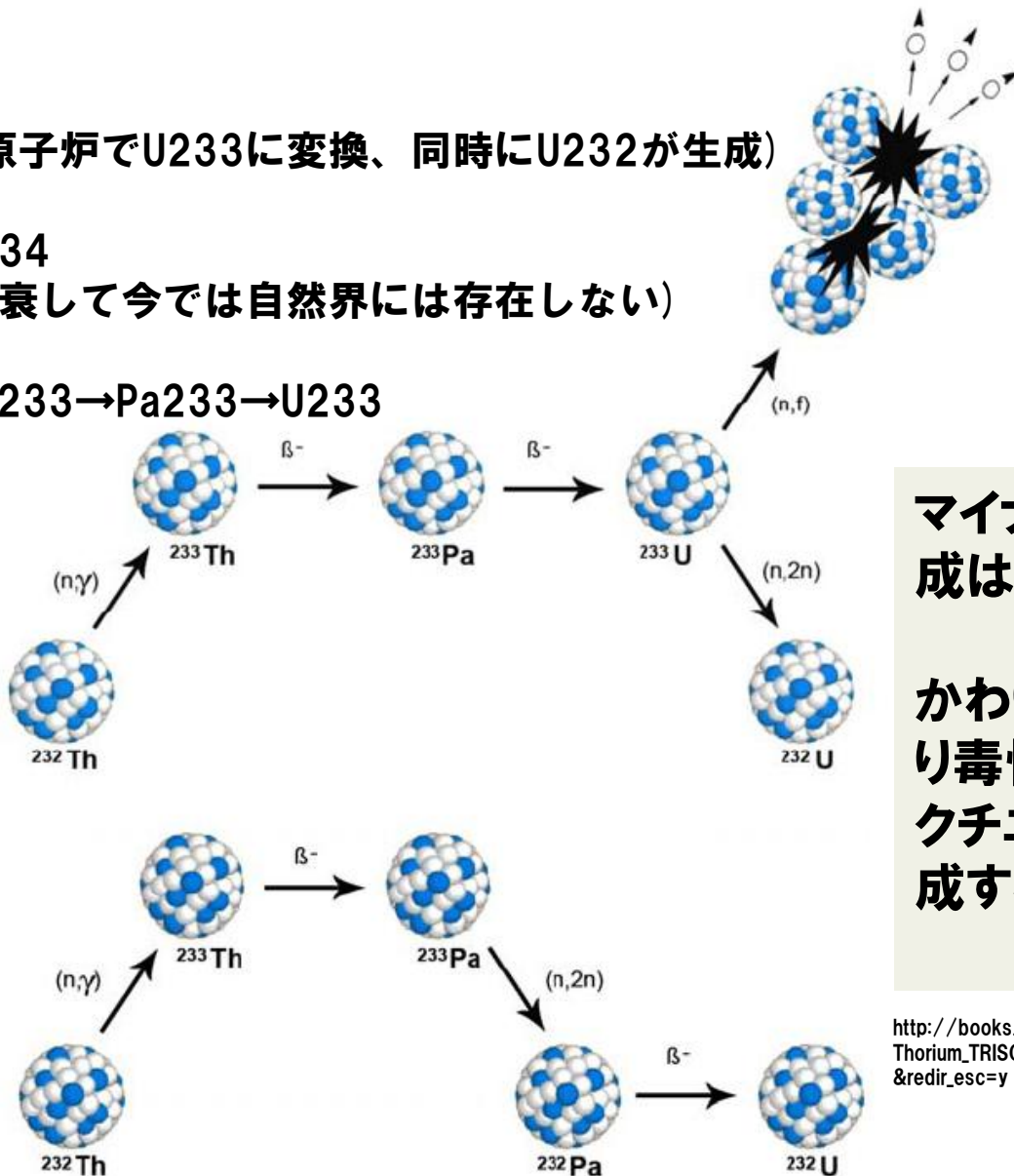
(別の原子炉でU233に変換、同時にU232が生成)

U 233 → U234

(U233は減衰して今では自然界には存在しない)

Th232 → Th233 → Pa233 → U233

トリウム燃料
初期組成



マイナアクチニドの生成はほとんどない

かわりに長期にわたり毒性の強いプロトアクチニウム(Pa)が生成する

http://books.google.co.jp/books/about/High_Quality_Thorium_TRISO_Fuel_Performa.html?id=grmqxXdZQboC&redir_esc=y

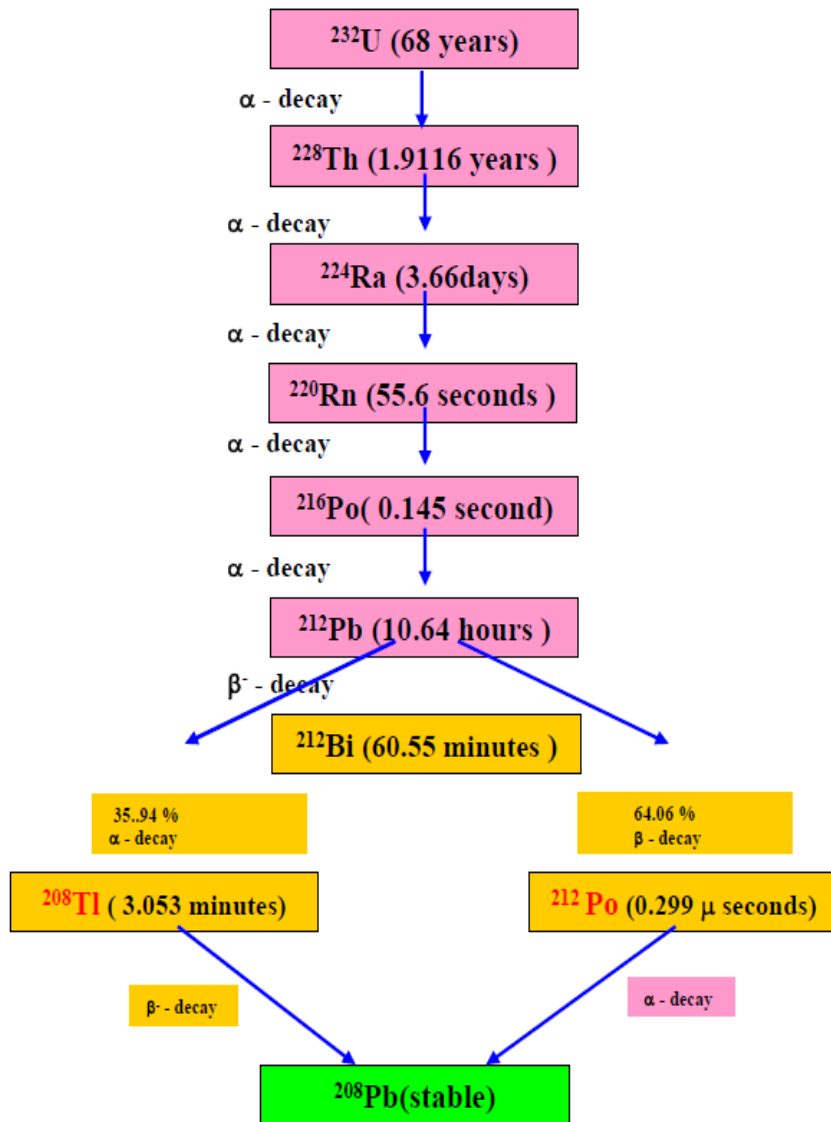
トリウム/ウラン燃料の照射経験

Country	Name	Type	Power (MW)	Startup date	Fuel	Note
USA	Indian point 1	PWR	265 _e	1962	ThO ₂ - UO ₂	1
	Elk River	BWR	22 _e	1964	ThO ₂ - UO ₂	2
	Shippingport	PWR	60 _e	1957	ThO ₂ - UO ₂	3
	Peach Bottom	HTR	40 _e	1967	ThC ₂ - UC ₂	4
	Fort St. Vrain	HTR	330 _e	1976	ThC ₂ - UC ₂	5
	MSRE	MSR	10 _{th}	1965	ThF ₄ - UF ₄	6
UK	Dragon	HTR	20 _{th}	1964	ThC ₂ - UC ₂	7
Germ.	AVR	HTR	15 _e	1967	ThC ₂ - UC ₂	8
	THTR	HTR	300 _e	1985	ThC ₂ - UC ₂	9
	Lingen	BWR	60 _e	1968	Th/ Pu	10
India	Kakrapar (KAPS) 1 - 2	PHWR	200 _e	1993/95	UO ₂ - ThO ₂	11
	Kaiga 1 - 2	PHWR	200 _e	2000/03	UO ₂ - ThO ₃	12
	Rajasthan (RAPS) 3 - 4	PHWR	200 _e	2000	UO ₂ - ThO ₄	13
	KAMINI	Neutron Source	30 Kwe	-	U233	14

過去に実績ある燃料のほとんどがU235/Th燃料である
U233を装荷した経験のある原子炉は、
Shippingport (PWR) と MSRE(溶融塩炉)である
高温ガス炉での照射実績はない

- 1 - Power includes 104 Mwe from oil-fired superheater
- 2 - Power includes 5 Mwe from coal-fired superheater. Th loaded in the first core only
- 3 - Used both U235 and Pu as the initial fissile material. Successfully demonstrated thermal breeding using the "seed/blanket" concept (TH/U233)
- 4 - Coated particle fuel in prismatic graphite blocs - TH/HEU
- 5 - Coated particle fuel in prismatic graphite blocs - TH/HEU
- 6 - Did operate with U233 fuel since October 1968 - No electricity production
- 7 - Coated particle fuel - No electricity production
Many types of fuel irradiated

U232の崩壊過程で生じるタリウムのガンマ線



・Th232からU233をブランケット領域で生産する過程の副産物としてU232が生成される。

・U232が崩壊する過程でタリウム208 (Tl208) とビスマス(Bi212) がうまれる。

・Tl208は強いガンマ線 (2.6Mev) を出し、Bi212のガンマ線も強く(1.8Mev)、容易に人が近づくことができない。

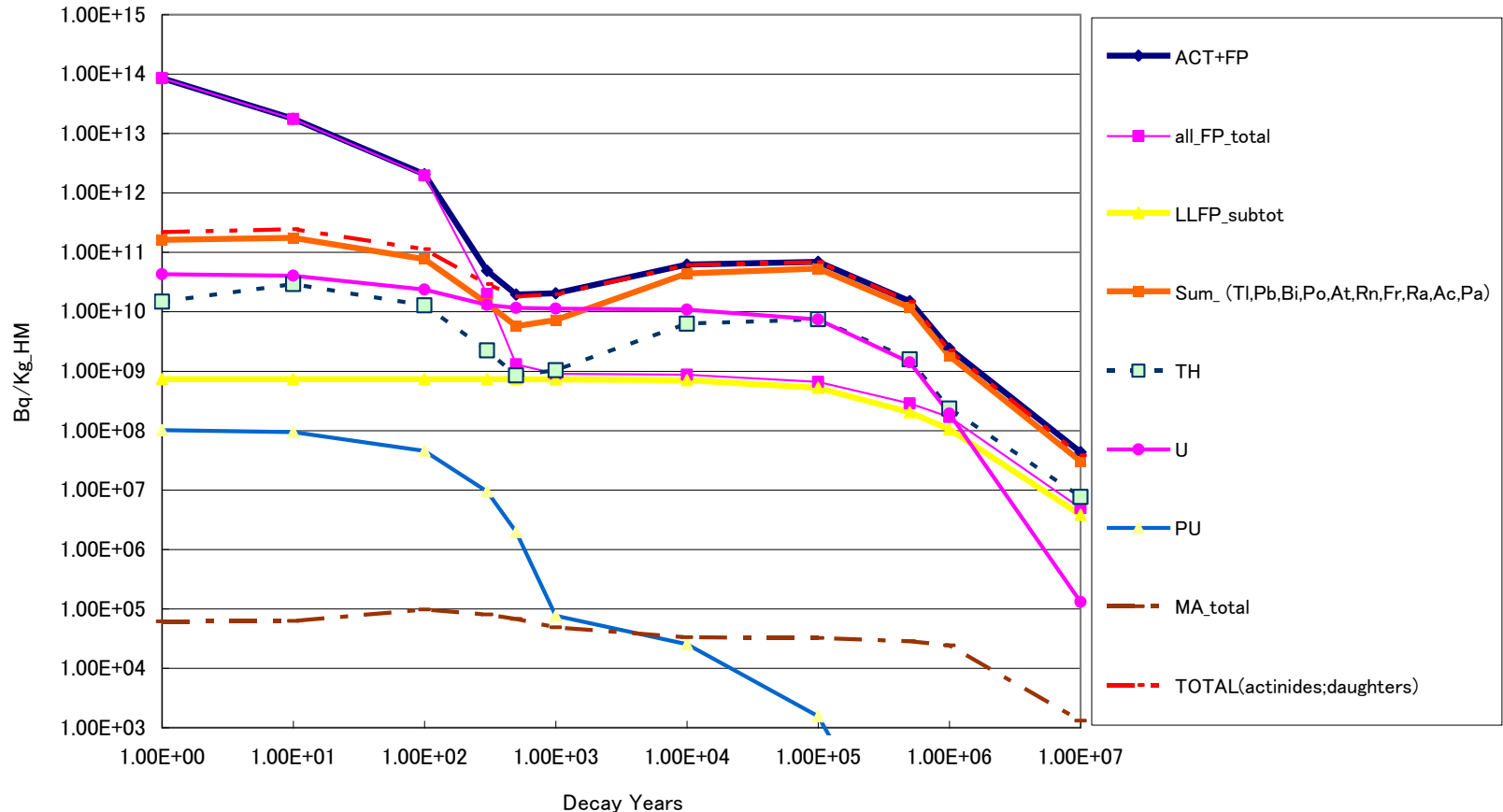
・U232はU233と化学分離はできない。この重遮蔽のため経済的な燃料製造や再処理を行うには大きな課題がある。

・トリウム酸化物は硝酸にほとんど溶けない。したがって、U233を分離するための溶液は腐食性の強い溶液が必要であり、材料の問題が解決されていない。

・1968年米国でU233/Uu235/溶液で分離し15年後に酸化物に転換した例がある。

U233の分離はとても厄介

U233/Th燃料（4%燃焼）使用済燃料の放射能（Bq/kg）変化:Paの毒性



- U233/Th使用済燃料ではMAの放射能は小さい
- U同位体の放射能およびPa（プロトアクチニウム）などThとUから生成される娘核種の放射能が大きい
- これらの娘核種の放射能は 10^5 時間に極大値をもつ