

令和元年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業

原子力システム研究開発事業

高速炉を活用した
LLFP核変換システムの研究開発

成果報告書

令和2年3月

国立大学法人 東京工業大学

本報告書は、文部科学省の原子力システム
研究開発事業による委託業務として、国立大
学法人 東京工業大学が実施した平成 28 年度
－令和元年度「高速炉を活用した LLFP 核変換
システムの研究開発」の成果を取りまとめた
ものです。

目次

概略	x
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	
2.1 全体計画	2.1-1
2.2 各年度計画	2.2-1
3. 実施内容および成果	
3.1 LLFP 核データの収集・評価	3.1-1
3.1.1 LLFP 核分裂収率に関わる研究【H28-H29】	3.1-1
3.1.2 LLFP 中性子核データの評価検討【H30-R1】	3.1-1
3.1.3 LLFP 中性子核データの評価検討【R1】	3.1-2
3.2 核変換ターゲットの材質、構造、配置（再委託先：東北大学）	3.2-1
3.2.1 材質・添加剤の検討【H28-H29】	3.2-1
3.2.2 材質・配置の検討【H28-H29】	3.2-2
3.3 高速炉での核変換ターゲット集合体の配置、交換法（再委託先：東北大学）	3.3-1
3.3.1 配置、交換法の検討【H29-R1】	3.3-1
3.4 LLFP 炉心ターゲットを含む高速炉の炉心特性	3.4-1
3.4.1 炉心特性（再委託先：東京都市大学）【H28-R1】	3.4-1
3.4.2 熱特性（東京工業大学）【H29-R1】	3.4-26
3.4.3 安全性（再委託先：東京都市大学）【H29-R1】	3.4-36
3.5 核変換ターゲット集合体の構造設計（再委託先：東北大学）	3.5-1
3.5.1 集合体構造設計【H30-R1】	3.5-1
3.6 大型高速炉での適用性評価（再委託先：東北大学）	3.6-1
3.6.1 大型炉への適用解析【H30-R1】	3.6-1
3.7 核変換ターゲット構成材料の物性（再委託先：原子力機構）	3.7-1
3.7.1 物性調査・適用性検討【H28】	3.7-1
3.7.2 高温安定性試験【H29】	3.7-1
3.7.3 共存性試験【H30】	3.7-1
3.7.4 強度特性への影響試験【R1】	3.7-1
3.8 核変換ターゲットの製造（再委託先：原子力機構）	3.8-1
3.8.1 LLFP 製造試験【H30】	3.8-1
3.8.2 模擬回収 LLFP 製造試験【R1】	3.8-1
3.9 LLFP 回収技術の検討（再委託先：原子力機構）	3.9-1
3.9.1 手法評価【H28】	3.9-1
3.9.2 炉内回収のロス率評価【H29】	3.9-1

3.9.3	再処理工程からの回収手法の検証【H30】	3.9-1
3.9.4	再処理回収ロス率評価【R1】	3.9-2
3.10	照射試験計画（再委託先：東京都市大学）	3.10-1
3.10.1	照射試験計画の策定【H30-R1】	3.10-1
3.11	社会科学的意義（再委託先：東北大学）	3.11-1
3.11.1	調査・分析・まとめ【H28-R1】	3.11-1
3.12	研究推進	3.12-1
3.12.1	プロジェクトの総合推進【H28-R1】	3.12-1
3.12.2	全体まとめ【H28-R1】	3.12-4
4.	結言	4-1

表一覧

表 3.1.3-1	TMC 法によって得られた核変換率と SF の誤差	3.1-3
表 3.2.1-1	原型炉炉心基本仕様	3.2-4
表 3.2.1-2	評価条件	3.2-5
表 3.2.1-3	LLFP の核変換率 (減速材:YD ₂ (重水素化イットリウム))	3.2-5
表 3.2.1-4	LLFP の核変換率と SF (減速材:YH ₂ (水素化イットリウム))	3.2-5
表 3.2.1-5	各 LLFP の装荷量と核変換量、核変換率 (非均質化 1/2/3 各層 18/12/6 ピン、減速材 YD ₂)	3.2-6
表 3.2.1-6	各 LLFP の装荷量と核変換量、核変換率 (均質混合ペレット)	3.2-6
表 3.2.1-7	減速材材質 (YH ₂) と各 LLFP の装荷量と核変換量、核変換率 (非均質化 1/2/3 各層 18/12/6 ピン)	3.2-7
表 3.2.1-8	LLFP 部ペレット高さ (93cm 時) と各 LLFP の装荷量と核変換量、核変換率 (非均質化 1/2/3 各層 18/12/6 ピン)	3.2-7
表 3.2.1-9	LLFP 部ペレット高さ (183cm 時) と各 LLFP の装荷量と核変換量、核変換率 (非均質化 1/2/3 各層 18/12/6 ピン)	3.2-7
表 3.3.1-1	高核変特性を持つ核変換ターゲット集合体の配置、交換法	3.3-12
表 3.3.1-2	核変換特性の比較	3.3-12
表 3.3.1-3	減速材材質と LLFP 各元素のピンの本数	3.3-12
表 3.3.1-4	核変換特性	3.3-13
表 3.3.1-5	主要核特性	3.3-13
表 3.3.1-6	ボイド反応度とドップラー係数	3.3-13
表 3.3.1-7	3 基炉心システムの核種毎、炉心毎の核変換率と SF (案 1)	3.3-14
表 3.3.1-8	炉心 B での I+YH ピンの I の比率と I、T _c の核変換率の関係	3.3-14
表 3.3.1-9	3 基炉心システムの核種毎、炉心毎の核変換率と SF (案 2)	3.3-15
表 3.3.1-10	¹³⁵ Cs 同位体の装荷量の増加方策とその SF の増加効果	3.3-15
表 3.3.1-11	Cs と Zr の SF の特性	3.3-16
表 3.3.1-12	第 1 層に Cs100%とした場合と Cs70%YD30%の場合の炉心 A の SF と変換率	3.3-16
表 3.3.1-13	第 1 層に Cs100%とした場合と Cs70%YD30%の場合の炉心 A の SF と変換率、 炉心高さ 93cm 部分、各層の数値	3.3-16
表 3.3.1-14	3 基炉心システムの核種毎、炉心毎の核変換率と SF	3.3-17
表 3.3.1-15	3 基炉心システムの炉心毎の増殖比、実行増倍率	3.3-17
表 3.3.1-16	3 基炉心システムの炉心 B の隣接外側燃料の集合体内ピーキング	3.3-17
表 3.3.1-17	3 基炉心システムの炉心部軸方向平均中性子束分布	3.3-18
表 3.3.1-18	4 核種 2 基炉心システムの核変換率と SF	3.3-18
表 3.3.1-19	増殖比	3.3-18
表 3.3.1-20	LLFP3 核種の核変換システムでの核変換率と SF	3.3-19
表 3.3.1-21	LLFP3 核種の核変換システムでの核変換率と SF (Se 集合体 6 体)	3.3-19

表 3.4.1-1	LLFP ターゲット装荷炉心の 2 次元 R-Z 燃焼計算条件	3.4-7
表 3.4.1-2	LLFP ターゲット装荷炉心の 2 次元 R-Z 燃焼計算結果	3.4-8
表 3.4.1-3	LLFP ターゲット装荷炉心の核特性検討条件	3.4-8
表 3.4.1-4	LLFP ターゲット装荷炉心のナトリウムボイド反応度および ドップラー係数	3.4-9
表 3.4.1-5	LLFP ターゲット装荷炉心 (炉心 B) の最大線出力 (BOEC)	3.4-9
表 3.4.1-6	LLFP ターゲット装荷炉心 (炉心 B) の制御棒価値	3.4-10
表 3.4.1-7	LLFP ターゲット装荷炉心 (炉心 B) の炉停止余裕	3.4-10
表 3.4.1-8	最大線出力低減策の得失整理	3.4-11
表 3.4.1-9	LLFP ターゲット装荷炉心 (炉心 B) の 3 次元 TRI-Z 拡散計算結果 燃料ペレット製造密度向上の感度解析	3.4-12
表 3.4.1-10	線出力と燃料中心温度評価結果	3.4-12
付表 3.4.1-1	70 群炉定数ライブラリと 900 群縮約 79 群のエネルギー構造	3.4-19
付表 3.4.1-2	燃料集合体内 LLFP 装荷炉心 (炉心 D) 検討条件	3.4-22
付表 3.4.1-3	LLFP ターゲット装荷炉心の 2 次元 R-Z 拡散燃焼計算および摂動計算結果	3.4-23
表 3.4.3-1	もんじゅの許認可で想定した主に炉心に関する事象	3.4-46
表 3.4.3-2	LLFP ターゲット集合体を起因とした安全性に影響する事象	3.4-47
表 3.4.3-3	主要な高速炉における燃料の破損 (主として運転用燃料)	3.4-48
表 3.4.3-4	LLFP ターゲット燃料ピン内の重水素、水素量	3.4-49
表 3.4.3-5	LLFP ターゲットピン破損 (減速材による流路閉塞) の解析条件	3.4-50
表 3.4.3-6	LLFP ターゲットピン破損 (減速材による流路閉塞) の解析結果	3.4-50
表 3.4.3-7	LLFP ターゲットピン破損 (炉心部への水素、重水素の混入) の解析条件	3.4-51
表 3.4.3-8	LLFP ターゲットピン破損 (炉心部への水素、重水素の混入) の解析結果	3.4-51
表 3.5.1-1	LLFP 集合体出力と冷却材必要流量	3.5-4
表 3.5.1-2	LLFP 集合体出力および隣接集合体のピーキング	3.5-4
表 3.5.1-3	I 装荷ピンの健全性評価条件	3.5-5
表 3.5.1-4	装荷 LLFP の形態 (6 核種 3 炉心システム)	3.5-5
表 3.6.1-1	大型炉の炉心基本仕様	3.6-3
表 3.6.1-2	大型炉の燃料仕様	3.6-3
表 3.6.1-3	大型炉の体積比 (%)	3.6-3
表 3.6.1-4	LLFP 集合体ピン仕様	3.6-4
表 3.6.1-5	核変換率、SF、増殖比	3.6-4
表 3.6.1-6	反応度特性	3.6-4
表 3.7.4-1	LLFP の炉内装荷形態と供試体仕様	3.7-4
表 3.7.4-2	高温保持試験条件	3.7-4
表 3.7.4-3	SUS316 鋼の高温保持試験前後の重量変化	3.7-5
表 3.7.4-4	引張試験条件	3.7-5
表 3.7.4-5	SUS316 鋼の引張試験結果	3.7-6
表 3.8.2-1	Ag 系吸着剤からの回収条件	3.8-6

表 3.8.2-2	I の回収結果	3.8-6
表 3.8.2-3	IH 生成試験条件	3.8-6
表 3.8.2-4	吸着剤からの I の回収結果	3.8-6
表 3.8.2-5	NaI からの IH 生成条件	3.8-7
表 3.8.2-6	NaI からの IH 生成結果	3.8-7
表 3.8.2-7	IH からの BaI ₂ の製造手順	3.8-7
表 3.8.2-8	IH 回収液および BaI ₂ 製造時硝酸溶液中の不純物	3.8-7
表 3.8.2-9	模擬廃液組成	3.8-8
表 3.8.2-10	回収物の成分分析結果	3.8-8
表 3.8.2-11	ろ液、析出物の Cs 分析結果	3.8-9
表 3.8.2-12	CsNO ₃ 含有硝酸溶液による Cs ₂ CO ₃ 製造効率	3.8-9
表 3.8.2-13	LLFP と中性子減速材の混合比	3.8-9
表 3.8.2-14	粒径調節による BaI ₂ と YD ₂ の粒子数比	3.8-10
表 3.8.2-15	Y の重水素化条件	3.8-10
表 3.8.2-16	不活性ガス融解-熱伝導度法による D ₂ 分析結果	3.8-10
表 3.9.4-1	Re に対する抽出および逆抽出条件	3.9-7
表 3.9.4-2	Re 抽出における模擬廃液と逆抽出液の分析結果	3.9-7
表 3.9.4-3	Re 抽出における抽出率および逆抽出率	3.9-8
表 3.9.4-4	Pd に対する抽出および逆抽出条件	3.9-8
表 3.9.4-5	Pd 抽出における模擬廃液と逆抽出液の分析結果	3.9-9
表 3.9.4-6	Pd 抽出における抽出率および逆抽出率	3.9-9
表 3.9.4-7	高速炉における LLFP 生成量	3.9-10
表 3.10.1-1	常陽 Mark-IV 炉心および照射ターゲットの主要パラメータ	3.10-6
表 3.11.4-1	平成 30 年度の段階で導いている「コミュニケーション指針」	3.11-3
表 3.11.5-1	令和元年度のインタビューを通じて得られた知見と「指針」の関係	3.11-4

図一覧

図 2.1-1	全期間を通じた研究実施計画	2.1-1
図 2.1-2	令和元年度研究実施計画図	2.1-2
図 3.1.2-1	^{99}Tc の中性子捕獲断面積の相対標準偏差と相関行列	3.1-2
図 3.1.3-1	T6 と TMC 法の処理流れ	3.1-4
図 3.2.1-1	原型炉炉心径ブランケット領域、遮へい体領域でのイットリウム水素化物 減速材による LLFP 核変換モデル（均質混合ピンの場合）	3.2-8
図 3.2.1-2	原型炉炉心径ブランケット領域でのイットリウム水素化物減速材による LLFP 核変換モデル（減速材/LLFP 非均質化時詳細）	3.2-9
図 3.3.1-1	原型炉サイズの径方向ブランケット領域での MVP 計算モデル	3.3-20
図 3.3.1-2	Cs 核変換ターゲット集合体の装荷層と ^{135}Cs の SF の変化	3.3-20
図 3.3.1-3	原型炉サイズの径方向ブランケット領域での SCALE/XSDRN 計算モデル	3.3-22
図 3.3.1-4	減速材体積比と核変換率（%/年）、サポートファクタ (SF) との関係 (^{79}Se)	3.3-23
図 3.3.1-5	減速材体積比と核変換率（%/年）、出力ピーキング (PK) との関係 (^{79}Se)	3.3-23
図 3.3.1-6	減速材体積比と核変換率（%/年）、サポートファクタ (SF) との関係 (^{99}Tc)	3.3-24
図 3.3.1-7	減速材体積比と核変換率（%/年）、出力ピーキング (PK) との関係 (^{99}Tc)	3.3-24
図 3.3.1-8	減速材体積比と核変換率（%/年）、サポートファクタ (SF) との関係 (^{107}Pd)	3.3-25
図 3.3.1-9	減速材体積比と核変換率（%/年）、出力ピーキング (PK) との関係 (^{107}Pd)	3.3-25
図 3.3.1-10	減速材体積比と核変換率（%/年）、サポートファクタ (SF) との関係 (^{129}I)	3.3-26
図 3.3.1-11	減速材体積比と核変換率（%/年）、出力ピーキング (PK) との関係 (^{129}I)	3.3-26
図 3.3.1-12	減速材中の H 比率と核変換率（%/年）、 出力ピーキング (PK) との関係 (^{99}Tc)	3.3-27
図 3.3.1-13	減速材中の H 比率と核変換率（%/年）、 サポートファクタ (SF) との関係 (^{99}Tc)	3.3-27
図 3.3.1-14	Tc ピンの体積比率と核変換率（%/年）、 出力ピーキング (PK) との関係 (^{129}I)	3.3-28
図 3.3.1-15	Tc ピンの体積比率と核変換率（%/年）、 サポートファクタ (SF) との関係 (^{129}I)	3.3-28
図 3.3.1-16	減速材体積比と核変換率（%/年）、 サポートファクタ (SF) との関係 (^{93}Zr)	3.3-29
図 3.3.1-17	減速材 (YD_2) 体積比と核変換率（%/年）、 サポートファクタ (SF) との関係 (^{93}Zr)	3.3-29
図 3.3.1-18	減速材 (YH_2) 体積比と核変換率（%/年）、 サポートファクタ (SF) との関係 (^{93}Zr)	3.3-29
図 3.3.1-19	減速材体積比と核変換率（%/年）、 サポートファクタ (SF) との関係 (^{135}Cs)	3.3-30
図 3.3.1-20	減速材体積比と核変換率（%/年）、 サポートファクタ (SF) との関係 (^{135}Cs)	3.3-30

図 3.3.1-21	ターゲット集合体のターゲットピン配置	3.3-31
図 3.3.1-22	外側炉心第二層の燃料集合体のピン毎のピーキング係数	3.3-32
図 3.3.1-23	LLFP 配置	3.3-33
図 3.3.1-24	各領域の LLFP 装荷集合体	3.3-34
図 3.3.1-25	径方向出力分布の比較	3.3-35
図 3.3.1-26	高速炉核変換システム 案 1	3.3-36
図 3.3.1-27	BaI ₂ ピンの BaI ₂ 比率と核変換率および SF の関係	3.3-37
図 3.3.1-28	高速炉核変換システム LLFP 配置 案 2	3.3-38
図 3.3.1-29	20 年冷却と 100 年冷却の Cs 同位体の比率	3.3-39
図 3.3.1-30	RB 第 1 層の減速材装荷の有無による Cs 装荷各層での核変換率、SF、 中性子束の挙動	3.3-40
図 3.3.1-31	下部軸ブランケット体積比と Zr の FS の関係	3.3-41
図 3.3.1-32	下部ブランケットへの Zr の装荷方法	3.3-41
図 3.3.1-33	高速炉核変換システム LLFP 配置	3.3-42
図 3.3.1-34	炉心 A、B、C の炉心部軸方向平均中性子束分布	3.3-43
図 3.3.1-35	LLFP4 核種を装荷した 2 つの炉心を組み合わせた核変換システム	3.3-44
図 3.3.1-36	地層処分への被ばく量の核種の寄与	3.3-45
図 3.3.1-37	LLFP3 核種を装荷した 2 つの炉心を組み合わせた核変換システム	3.3-46
図 3.3.1-38	LLFP3 核種を装荷した 2 つの炉心を組み合わせた核変換システム (⁷⁹ Se 集合体本数増加)	3.3-44
図 3.4.1-1	LLFP ターゲット装荷炉心の構成	3.4-13
図 3.4.1-2	燃焼計算のモデル (炉心 B)	3.4-13
図 3.4.1-3	2 次元 R-Z 体系で計算した BOEC における燃料領域の出力分布 (炉心 B)	3.4-14
図 3.4.1-4	炉心 B の出力ピーキング係数 (3 次元 TRI-Z 拡散計算結果) (BOEC)	3.4-15
図 3.4.1-5	炉心 B のピーク集合体内の最大線出力 (3 次元 TRI-Z 拡散計算結果) (想定サイクル数 : 13)	3.4-16
図 3.4.1-6	制御棒位置	3.4-17
図 3.4.1-7	定格時の最大線出力と過出力時の燃料最高温度の関係 (中実燃料ペレット)	3.4-18
図 3.4.1-8	定格時の最大線出力と過出力時の燃料最高温度の関係 (中空燃料ペレット)	3.4-18
付図 3.4.1-1	燃料集合体中に配置した LLFP ピンの位置 (炉心 D)	3.4-24
付図 3.4.1-2	燃料集合体の実効断面積を計算する際の多重リングモデル (炉心 D)	3.4-24
付図 3.4.1-3	燃焼計算における 2 次元 R-Z 炉心モデル (炉心 D)	3.4-25
図 3.4.2-1	高速炉核変換システム B	3.4-27
図 3.4.2-2	RELAP5-30 による解析対象高速炉核変換炉心の解析モデル	3.4-30
図 3.4.2-3	「もんじゅ」タービントリップ試験時の炉心出口温度と解析結果	3.4-30
図 3.4.2-4	燃料部のモデルと LLFP 集合体のモデル	3.4-31
図 3.4.2-5	第 9 リングの LLFP 集合体出力分布	3.4-31

図 3.4.2-6	炉心全体の集合体出力の比較	3.4-33
図 3.4.2-7	炉心全体の集合体流量比較	3.4-33
図 3.4.2-8	炉心全体のピーキングを考慮した被覆管温度評価	3.4-34
図 3.4.2-9	出力誤差 1.02 を考慮した YH ₂ -BaI ₂ ピンの中心温度	3.4-34
図 3.4.3-1	LLFP ターゲットピン移動の解析モデル	3.4-52
図 3.4.3-2	LLFP ターゲットピン移動による燃料ピンのピーキング係数解析結果	3.4-52
図 3.4.3-3	LLFP ターゲットピン破損時の減速材の挙動	3.4-53
図 3.4.3-4	LLFP ターゲットピンの破損（減速材による流路閉塞）の解析モデル	3.4-54
図 3.4.3-5	LLFP ターゲットピンの破損（減速材による流路閉塞）の解析結果	3.4-55
図 3.4.3-6	もんじゅの破損燃料検出系	3.4-56
図 3.4.3-7	もんじゅのタギング法破損燃料検出装置の概要	3.4-56
図 3.4.3-8	レーザー共鳴イオン化質量分析法（RIMS）の概要	3.4-57
図 3.4.3-9	もんじゅへの RIMS の導入方法（提案）	3.4-57
図 3.4.3-10	希釈ガスを用いた RIMS の検出性能の確認	3.4-58
図 3.4.3-11	常陽の Na シッピング法破損燃料検出装置	3.4-58
図 3.5.1-1	(I+YH ₂ 、Tc) 集合体内発熱分布	3.5-6
図 3.5.1-2	YH90I10 の径方向出力分布	3.5-6
図 3.5.1-3	ペレット中心温度のヨウ素核変換率の依存性	3.5-7
図 3.5.1-4	ヨウ素核変換率と CDF、プレナム圧力 初期加圧を行わない場合 （初期圧力～3kg/cm ² ） CDF=0.5 核変換率 24.0%	3.5-7
図 3.5.1-5	ヨウ素核変換率と CDF、プレナム圧力（初期加圧 20kg/cm ² ） CDF=0.5 核変換率 21.5%	3.5-8
図 3.5.1-6	ヨウ素核変換率と CDF、プレナム圧力（初期加圧 30kg/cm ² ） CDF=0.5 核変換率 20.0%	3.5-8
図 3.5.1-7	炉心燃料集合体（炉心 A、B、C 共通）	3.5-9
図 3.5.1-8	炉心 A 径ブランケット第 1 層装荷用 Cs 集合体	3.5-10
図 3.5.1-9	Cs 装荷集合体（炉心 A、炉心 B、炉心 C 共通 径ブランケット第 2 層～遮蔽体第 4 層）	3.5-11
図 3.5.1-10	炉心 B 径ブランケット第 1 層装荷 (I+YH ₂)、Tc 装荷集合体	3.5-12
図 3.5.1-11	炉心 C 径ブランケット第 1 層装荷 Pd+YD ₂ 装荷集合体	3.5-13
図 3.5.1-12	炉心 C 径ブランケット第 1 層装荷 Se+YD ₂ 装荷集合体	3.5-14
図 3.6.1-1	大型炉心の炉心配置図	3.6-5
図 3.6.1-2	ターゲット集合体の構造図	3.6-6
図 3.6.1-3	R-Z 体系計算モデル	3.6-7
図 3.6.1-4	大型炉と高速炉（原型炉）との核変換率の比較	3.6-8
図 3.6.1-5	大型炉と高速炉（原型炉）とのサポートファクターの比較	3.6-8
図 3.6.1-6	大型炉と高速炉（原型炉）との増殖比の比較	3.6-9
図 3.7.4-1	共存性試験装置	3.7-7
図 3.7.4-2	共存性試験装置外観	3.7-7

図 3.7.4-3	SUS316 鋼試験片の高温保持試験前後の外観	3.7-8
図 3.7.4-4	SUS316 鋼試験片の高温保持試験前後の SEM 像	3.7-9
図 3.7.4-5	SUS316 鋼試験片の元素分析結果 (受入材試験片の表面)	3.7-10
図 3.7.4-6	SUS316 鋼試験片の元素分析結果 (ZnSe 試験片の表面)	3.7-10
図 3.7.4-7	SUS316 鋼試験片の元素分析結果 (Zr 試験片の表面)	3.7-11
図 3.7.4-8	SUS316 鋼試験片の元素分析結果 (Pd 試験片の表面)	3.7-11
図 3.7.4-9	SUS316 鋼試験片の元素分析結果 (BaI ₂ 試験片の表面および断面)	3.7-12
図 3.7.4-10	SUS316 鋼試験片の元素分析結果 (Cs ₂ CO ₃ 試験片の表面および断面)	3.7-13
図 3.8.2-1	IH 生成の試験体系	3.8-11
図 3.8.2-2	試験開始時から XRD 供試体までの試料外観	3.8-11
図 3.8.2-3	蒸発乾固体の XRD 結果	3.8-12
図 3.8.2-4	粉末状 YD ₂ の XRD 結果	3.8-12
図 3.8.2-5	細孔付ペレット状 YD ₂ の XRD 結果	3.8-13
図 3.8.2-6	40BaI ₂ -60YD ₂ ターゲット (粉末混合焼結型)	3.8-13
図 3.8.2-7	70Cs ₂ CO ₃ -30YD ₂ ターゲット (粉末混合焼結型)	3.8-14
図 3.8.2-8	Cs ₂ CO ₃ ターゲット	3.8-14
図 3.8.2-9	10BaI ₂ -90YD ₂ ターゲット (混合複合体型)	3.8-14
図 3.8.2-10	10Cs ₂ CO ₃ -90YD ₂ ターゲット (混合複合体型)	3.8-15
図 3.9.4-1	MIDOA の抽出特性	3.9-11
図 3.9.4-2	Re 抽出操作時の外観	3.9-11
図 3.9.4-3	MIDOA による抽出後の分離相	3.9-12
図 3.9.4-4	MIDOA 抽出における逆抽出液	3.9-12
図 3.9.4-5	TDGA の抽出特性	3.9-13
図 3.9.4-6	Pd 抽出操作時の外観	3.9-13
図 3.9.4-7	TDGA による抽出後の分離相	3.9-14
図 3.9.4-8	TDGA 抽出における逆抽出液	3.9-14
図 3.9.4-9	Zr、Tc、I および Cs のマテリアルバランス	3.9-15
図 3.10.1-1	Cs の主な燃焼・崩壊チェーン	3.10-7
図 3.10.1-2	常陽の炉心断面と照射集合体装荷位置	3.10-7
図 3.10.1-3	照射集合体と常陽への炉内装荷位置	3.10-8
図 3.10.1-4	照射集合体装荷位置 (Position-1)	3.10-8
図 3.10.1-5	照射集合体装荷位置 (Position-2)	3.10-9
図 3.10.1-6	FISPACT-II による燃焼計算の流れ	3.10-9
図 3.10.1-7	Position-1 に装荷した照射集合体の燃焼領域	3.10-10
図 3.10.1-8	Position-1 における Cs 同位体の照射日数依存性	3.10-11
図 3.10.1-9	Position-1 における Ba 同位体の照射日数依存性	3.10-11
図 3.10.1-10	¹⁵⁵ Gd および ¹⁵⁷ Gd の原子数密度の照射日数依存性	3.10-12
図 3.10.1-11	照射集合体に隣接する燃料棒の径方向出力ピーキング係数の 照射日数依存性	3.10-12

図 3. 10. 1-12	照射集合体に隣接する燃料棒の軸方向出力ピーキング係数	3. 10-13
図 3. 10. 1-13	ターゲット ($\text{YH}_2+\text{Cs}_2\text{CO}_3$) および減速材 (YH_2) の中性子スペクトル	3. 10-13
図 3. 10. 1-14	ガドリニア棒 (Group-1) の中性子スペクトル	3. 10-13
図 3. 10. 1-15	Position-2 に装荷した照射集合体の燃焼領域	3. 10-14
図 3. 10. 1-16	Position-2 における Cs 同位体の照射日数依存性	3. 10-14
図 3. 10. 1-17	Position-2 における Ba 同位体の照射日数依存性	3. 10-15

略語一覧

BCR	: Backup Control Rod (後備炉停止系・後備炉停止棒)
BOEC	: Beginning Of Equilibrium Cycle (平衡サイクル初期)
CCR	: Coarse Control Rod (主炉停止系・粗調整棒)
CDF	: Cumulative Damage Fraction (累積損傷和)
CG	: Cover Gas (カバーガス)
ENDF	: Evaluated Nuclear Data File
EOEC	: End Of Equilibrium Cycle (平衡サイクル末期)
EXFOR	: Experimental Nuclear Reaction Data
FCR	: Fine Control Rod (主炉停止系・微調整棒)
FFD	: Failed Fuel Detection (破損燃料検出装置)
FFDL	: Failed Fuel Detection and Location (破損燃料位置検出装置)
FP	: Fission Product (核分裂生成物)
ICP-MS	: Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry (誘導結合プラズマ質量分析)
JEFF	: Joint Evaluated Fission and Fusion Nuclear Data Library
JENDL	: Japanese Evaluated Nuclear Data Library
LLFP	: Long-lived fission products (長寿命核分裂生成物)
MA	: Minor Actinide (アクチノイドに属する超ウラン元素のうちプルトニウムを除いたもの)
MVP	: Monte carlo code for Vector Processors (連続エネルギー法に基づく汎用モンテカルロコード)
PGM	: Platinum Group Metals (白金族元素)
PIE	: Post irradiation examination (照射後試験)
RIMS	: Resonance Ionization Mass Spectrometry (レーザー共鳴イオン化質量分析法)
SD	: Smear Density (スミア密度)
SF	: Support factor (サポートファクター)
TDS	: Thermal Desorption Spectroscopy (昇温脱離ガス分析)
XRD	: X-ray Diffraction (エックス線回折)

概略

高速炉を活用する革新的な核変換システム概念を構築し、従来に比べて飛躍的に高い効率を有するLLFP核変換システムを開発する。そのために有害度の高い全てのLLFPに対し、それらを含む新規の減速材入りターゲット要素を開発し、それを用いるシステムの核変換率、炉心核熱特性、安全性の評価、ターゲットの物性測定、製造技術、LLFP回収技術、核データの高精度評価手法等の要素技術開発を遂行し、全体システムの最適化、高速炉での照射試験計画策定を行う。また、実用化段階の大型高速炉に対して、本LLFP核変換システムの適用性を評価する。

このうち、東京工業大学ではプロジェクトの総合的推進およびLLFP核分裂収率・中性子捕獲断面積データの評価、東北大学では核変換ターゲットの材質、構造、配置の解析評価、高速炉での核変換ターゲット集合体の配置、交換法の検討、社会科学的意義の検討、東京都市大学ではLLFPターゲットを含む高速炉の炉心特性の解析と照射試験の検討、原子力機構では核変換ターゲット構成材料の物性、ターゲット製造、回収技術の開発を実施する。

令和元年度の成果を以下に示す。

(1) LLFP 核データの収集・評価では、LLFP 核種断面積の共分散ファイルの作成および核変換率の誤差推定を行った。LLFP の 6 核種 ^{129}I 、 ^{99}Tc 、 ^{79}Se 、 ^{107}Pd 、 ^{135}Cs 、 ^{93}Zr の共分散ファイルを作成し、本業務で構築した Total Monte Carlo 法を用いて 3 つの炉心を組み合わせた 6 核種核変換システムにおける中性子捕獲断面積誤差に起因する核変換率の誤差を求め、サポートファクター (SF) の誤差を推定した。

(2) 核変換ターゲットの材質、構造、配置の検討 (再委託先：東北大学) では、LLFP 核種のターゲット集合体 (減速材含む) を、高速炉のブランケット領域および遮蔽体領域に装荷する場合の配置、交換法を検討し、炉心核特性解析を実施し、核変換特性、サポートファクター等との関係を明らかにした。これにより、優れた核変換特性を持つ核変換ターゲット集合体の配置、交換法をまとめた。

LLFP の元素分離での再処理の適合性の点で I、Tc、Se、Pd を別に扱うことを考えて 3 つの炉心 A、B、C を組み合わせた 6 核種核変換システムを検討した。6 核種全て $\text{SF} > 3$ となるシステムを構築でき、かつ ^{129}I 、 ^{99}Tc 、 ^{79}Se 、 ^{107}Pd は 3%/年程度の高い核変換率とすることができた。

6 核種の 3 基炉心から ^{135}Cs と ^{93}Zr を除く 4 核種とすると $\text{SF} > 3$ でかつ増殖比 1 を確保する持続性のある高速炉核変換システムを構築することができた。

I と Se は地層処分での被ばくの支配核種であることを鑑み、Pd を除く I、Tc、Se の 3 核種に対し 1 炉心で 3 核種それぞれ $\text{SF} > 3$ となる炉心を設定した。本炉心にブランケット有炉心と組み合わせ 2 基組で増殖比を 1 とできる持続性のある高速炉核変換システムを構築できた。

(3) LLFP ターゲットを含む高速炉の炉心特性に関し、①炉心特性 (再委託先：東京都市大学) では、LLFP 核変換の最適化炉心について炉心特性解析評価を行った。LLFP6 核種の核変換を目的とする 3 種類の炉心 A、B、C の炉心特性を評価した。その結果、燃焼反応度と最大線出力は炉心 B が最も高くなったため、代表として炉心 B を対象に炉停止余裕と出力分布、出力ピーキングの評価を行った。炉心 B はもんじゅ炉心と同等の炉停止余裕を有することを確認したが、ブランケットが削除されたため最大線出力は制限値 360 W/cm を超過した。このため、燃料溶融を防止する観

点から対策をまとめ、実施が現実的と考えられる燃料ペレットの高密度化と中空化の効果について検討した。その結果、中空径 1 mm、燃料ペレットの製造密度を 90%TD とすることで過出力状態を考慮しても燃料溶融を防止できる見込みが得られた。

また②熱特性では、LLFP 核変換炉体系における冷却材流量配分を決定し LLFP ターゲットの熱的健全性を評価した。LLFP 集合体の配置が適切になったことによって、炉心入口流動抵抗を変更することなくブランケットを LLFP 集合体で置き換えて照射しても駆動炉心の健全性には問題を生じないことが明確になった。一方、第 9 リングに装荷される $\text{YH}_2\text{-BaI}_2$ のピンは、ペレット中心温度がギャップ部のガス組成に左右されるが、初期に 2MPa で封入した He (100 モル%) が、照射で発生した Xe ガスで薄まって約 20%に減少するまでは、温度制限値以内で照射できることが分った。このペレットに最大 1.8 mm の中心孔を設けた場合には、より大きな余裕をもって照射が行える結果になった。

③安全性 (再委託先：東京都市大学) では、最適化炉心についてターゲット集合体ピンの破損を想定し安全性の評価を行った。また、ターゲットピンの破損検出方法概念を検討、提案した。最適化炉心を対象に安全性に影響を与えると考えられる 3 項目 (LLFP ピン内のペレット移動によるサーマルスパイク、減速材による流路閉塞、炉心部への水素・重水素混入) について評価を実施した結果、いずれの事象も燃料ピンの出力は過出力係数 (116 %) 以下であり燃料ピンの健全性は維持されることを確認した。また、もんじゅの破損燃料検出系と常陽に導入が検討されている RIMS を調査し、LLFP ターゲットピンの破損検出方法について検討した。その結果、タグガスの充填範囲を LLFP ターゲット集合体まで拡張し、CG 法 FFD とタギング法 FFDL または RIMS の組み合わせを用いることにより、LLFP ターゲットピンの破損を検知できる見通しが得られた。

(4) 核変換ターゲット集合体の構造設計 (再委託先：東北大学) では、(2) で検討した結果を基にして、LLFP 核種のピン構成、集合体構造の最適化を行った。また、LLFP 核種を装荷したピンの温度評価、ピン圧力評価を行い、健全性を確認した。それぞれの LLFP 元素をいれたペレットを装荷した集合体について、構造はブランケット燃料と同一とするが、複数の炉心を組み合わせた核変換システムで燃料集合体下部ブランケット部と Cs を装荷した集合体は Zr 装荷量を増やすために太径ピンに形状を調整した。また、LLFP 核種を装荷したピンの中でも BaI_2 ピンでは Xe の発生により内圧が発生し、さらにギャップコンダクタンスの低下により温度が上昇し発熱も大きいため温度、内圧、CDF の評価を行った。その結果、初期 He 封入圧を大きくして Xe によるギャップコンダクタンス低下を緩和することで 3 年の燃焼では燃料温度は制限値以下にすることができた。また内圧は 3 年で $100\text{kg}/\text{cm}^2$ 以下であり、CDF も制限目安を十分下回ることから健全性を確認した。

(5) 大型高速炉での適用性評価 (再委託先：東北大学) では、大型高速炉に対して、今まで検討してきた LLFP 変換手法を適用し、核特性、炉心特性、安全性を解析し、大型高速炉での適用性を評価した。原型炉クラスの高速度炉での評価に基づき、 $\text{Tc} + (\text{BaI}_2 + \text{YH}_2)$ の LLFP 集合体を装荷した炉心进行评估した。その結果、増殖比 > 1 、SF > 1 であることを確認した。安全性にかかる反応度係数は、ボイド反応度、ドップラー係数とも LLFP を径ブランケット第 1 層に装荷しても殆ど影響がないことが確認でき、安全性は LLFP 集合体を装荷しない場合と同等であると考えられる。

(6) 核変換ターゲット構成材料の物性 (再委託先：原子力機構) では、SUS316 鋼と Tc を除く 5 種類の LLFP 候補化合物の共存性試験前後の状態において引張試験を実施し、LLFP 核変換ター

ゲット 5 種類の LLFP 候補化合物のうち ZnSe、Zr、Pd と共存性試験を行った試験片には変色が認められたものの強度特性に大きな変化は無かった。また、BaI₂、Cs₂CO₃ と共存性試験を行った試験片では、変色とともに試験片表面の変質が認められ、一様伸びや全伸びがやや低下したが、引張強度や 0.2%耐力には大きな低下は認められなかった。これらの結果から、各 LLFP 候補化合物が被覆管材料の強度特性に及ぼす影響は大きくないことが明らかとなった。ターゲットの候補形態が被覆管材料の強度特性に及ぼす影響を評価した。

(7) 核変換ターゲットの製造（再委託先：原子力機構）では、ヨウ素およびセシウムについて、再処理工程を模擬したプロセスから回収しそれぞれを用いて核変換ターゲット用の候補化合物（BaI₂、Cs₂CO₃）を製造した。各候補化合物の構造解析と不純物分析を行い、それら候補化合物の特性を明らかにした。また、重水素化物を減速材とし非放射性的の LLFP 元素からなる模擬 LLFP ターゲットを試作し、製造性を明らかにした。試作する模擬 LLFP ターゲットは平成 30 年度までに検討した粉末混合焼結型と混合複合体型の 2 種類とした。

Ag 系吸着剤からの回収ヨウ素を用いた BaI₂ 製造からは、主に Al、Si が不純物として随伴するとともに、ヨウ化水素製作過程が BaI₂ の製造上で重要なポイントになることが明らかになった。一方、模擬放射性廃液から抽出したセシウムを用いた Cs₂CO₃ 製造では、主に Ba が不純物として随伴するが、これは Cs 抽出や Cs₂CO₃ 合成に用いた試薬に由来するものと推測された。

また、粉末状と細孔付ペレット状のイットリウムを重水素化し、BaI₂ および Cs₂CO₃ に対して混合粉末焼結型と混合複合型の LLFP ターゲットが製造可能であることを確認した。重水素化イットリウムと BaI₂ の混合粉末焼結ではそれぞれの粒径調節により従来困難であった混合比でも焼結できる見通しが得られた。これにより、いずれの型でのターゲットについても製造に見通しが得られた。

(8) LLFP 回収技術の検討（再委託先：原子力機構）では、先行研究や文献の調査により 6 種の LLFP の再処理工程からの分離回収におけるロス率を評価した。一部、模擬元素を用いた溶媒抽出実験を実施し、ロス率を実験的に評価した。また、LLFP サイクルに関するマテリアルフローを調査・検討し、再処理工程での分離回収、高速炉による核変換、その後のリサイクルにおけるマテリアルバランスを評価した。

6 種の LLFP のうち、Tc、Pd、Cs については過去の群分離研究の成果から 1~2%程度のロス率と推定された。Se、Zr、I については移行挙動や除去率、吸着率の研究結果等からロス率は 1%程度と推測された。Tc を模擬した Re と Pd の模擬廃液からの溶媒抽出実験からは、それぞれのロス率は約 30%および約 10%と見積もられた。これらのロス率の改善のためには抽出条件の最適化や抽出方法の多段化が必要となることが明らかとなった。

LLFP サイクルにおけるマテリアルバランスとして、⁹³Zr、⁹⁹Tc、¹²⁹I および ¹³⁵Cs は一定期間の照射後のリサイクル処理により持続的なサイクルを維持できることが明らかとなった。一方、⁷⁹Se と ¹⁰⁷Pd は同位体が多く元素分離のリサイクル処理ができないが、一定期間炉内装荷することで最大 90%近くまで変換できる見通しが得られた。

(9) 照射試験計画（再委託先：東京都市大学）では、核変換特性、集合体の健全性を確認するために高速炉を用いて核変換ターゲット集合体 1 体を照射する照射試験計画を策定した。

日本原子力研究開発機構の高速実験炉「常陽」を用いて、天然 Cs と減速材（YH₂ または YD₂）からなるターゲット集合体 1 体を照射する核的検討を行うことにより、LLFP 核変換の実証性を示

すための照射集合体および照射場を構成することができた。その結果、照射により生成される LLFP 核種である ^{135}Cs を含む Cs 同位体およびそれらの中性子吸収と崩壊により生じる Ba 同位体の生成量を評価することができた。これらにより、照射後試験で同位体組成が測定されれば積分実験として核変換の実証性を定量的に示すことができる。

(10) 社会科学的意義（再委託先：東北大学）では、LLFP 核変換の社会的受容性に関する説明方法、理解度調査のまとめを行った。原子力について理解のある女性オピニオンリーダー7 名を対象として、説明会を開催し、コメントを受け、それを反映した説明方法をまとめた。

(11) 研究推進に関して、①プロジェクトの総合推進では、本業務全体を適切に遂行するために再委託者との連絡を緊密に取り、さらに定期的な会合を開催することで進捗状況を把握し業務を滞りなく進めた。定期的な会合を開催し再委託先との連絡を緊密に取り、各機関における研究の進捗状況の把握および連携の効率化を図り、成果の出版およびプレスリリースを適宜実施し業務を滞りなく進めた。また②全体まとめでは、平成 28 年度から令和元年度における成果のまとめを行い、報告書類の作成を行った。本プロジェクトにおける研究活動を総括し、結論をまとめ成果報告書の作成を行った。未出版の成果については引き続き論文作成を行っていくこととした。

1. はじめに

使用済み燃料の再処理により発生する廃棄物には、多くの放射性核種が含まれている。そのうち、マイナーアクチノイド(MA)と呼ばれるいくつかのアクチノイド核種と長寿命核分裂生成物(LLFP)は、長寿命の放射性核種であり、特にMAは、バックエンド分野の研究において放射性廃棄物の潜在的毒性の主要因と考えられている。処分場面積の節約には、MAなどの長寿命で発熱性を有する核種を除去することが有効であるとされている。一方、LLFPには、深地層処分後に地下水に溶出し移行しやすい核種があるため、処分場の安全性能(遠い将来の公衆への被ばく線量)やリスク低減の観点から問題とされている。長期間にわたって被ばく線量をもたらすLLFP主要核種として、 ^{99}Tc : 21万年、 ^{129}I : 1570万年、 ^{79}Se : 33万年、 ^{93}Zr : 161万年、 ^{107}Pd : 650万年、 ^{135}Cs : 230万年の6核種の他に ^{126}Sn : 23万年が挙げられる。

将来の原子力エネルギーシステムには、安全性に優れ、放射性廃棄物による環境負荷を効果的に低減し環境と調和する高い性能が求められる。このような放射性廃棄物の処理・処分の分野においてMAを効率的に除去する手法として、MAを化学的に分離し、原子炉内や加速器駆動システムを用いた核変換による低害化(分離・核変換: Partitioning and Transmutation)が検討されてきた。しかしながら、MAの核変換を行っても最終的には大部分が核分裂によりFPに変換され、最終的にLLFPを生じる。このような観点から、MAの核変換とともにLLFPの分離・核変換も重要であると考える。特にLLFPは地層処分後数十万年程度経過後に地表に移動し線量を与える可能性のある主要因であることから、地層処分が社会からの感情的反発を受ける主な原因となっている。

長寿命 LLFP の核変換については、その方策の一つとして、余剰中性子が多い高速炉を利用した核変換システムが有効であり、大幅な有害度低減が期待できる。しかし、これまでの研究における高速炉を用いた LLFP 核変換の課題としては、低い LLFP 核変換率(年間 2~3%、取出し時: 約 11% : ブランケット領域装荷)が挙げられている。また、 ^{79}Se 、 ^{93}Zr 、 ^{107}Pd 、 ^{135}Cs の核変換については、ImPACT プロジェクトで検討されているが加速器が中心で、高速炉での核変換についての研究は行われていなかった。LLFP 核変換は、不確実性を伴う超長期の放射性廃棄物処分リスクを低減し、地層処分の安全性を一般社会に分かり易い形で提示すること、そして原子力の信頼性を取り戻し一層高めるため必要である。

本研究開発では、ナトリウム冷却高速炉を利用することを念頭に、中性子吸収断面積が極端に小さいと推定されている ^{126}Sn 以外の6LLFP核種、すなわち ^{99}Tc 、 ^{129}I 、 ^{79}Se 、 ^{93}Zr 、 ^{107}Pd 、 ^{135}Cs を対象として、従来に比べて飛躍的に高い核変換効率を可能とする減速材を用いた核変換ターゲットを開発し、LLFP核データ評価、核変換特性、高速炉での核変換ターゲット集合体の交換法、高速炉での炉心特性評価、熱特性評価、安全性評価、ターゲットの物性測定評価、製造技術開発、LLFP回収技術開発、核変換ターゲット集合体の構造検討、照射試験計画策定、社会科学的意義の検討等により、実現性の高い高速炉LLFP核変換システムを確立し、放射性廃棄物減容・有害度低減に寄与すること目的とする。

2. 業務計画

2.1 全体計画

本業務の全期間を通じた研究実施計画および令和元年度研究実施計画図を図 2.1-1 および図 2.1-2 に示す。

図 2.1-1 全期間を通じた研究実施計画

項目	年度	平成28年度	平成29年度	平成30年度	令和元年度
(1) LLFP核データの収集・評価		LLFP収率データの収集	LLFP収率データ評価	LLFP中性子核データ評価検討	LLFP中性子核データ評価検討
(2) 核変換ターゲットの材質、構造、配置 (東北大学)		材質、添加材の検討	材質、配置の検討		
(3) 高速炉での核変換ターゲット集合体の配置、交換法 (東北大学)			ブランケット配置検討	高速炉での核変換ターゲット集合体の配置、交換	交換法検討
(4) LLFPターゲットを含む高速炉の炉心特性 (京都市大)					
① 炉心特性		基本炉心特性解析	炉心特性解析評価	炉心特性解析評価	最適化炉心の炉心特性解析評価
② 熱特性 (平成30年度より東工大で実施)			熱特性解析	流量配分設定	最適化炉心の熱特性解析
③ 安全性				安全性解析評価	最適化炉心の安全性解析評価
(5) 核変換ターゲット集合体の構造設計 (東北大学)				集合体構造設計評価	集合体構造設計評価
(6) 大型高速炉での適応性評価 (東北大学)				大型高速炉への適用解析	大型高速炉への適用解析評価
(7) 核変換ターゲット構成材料の物性 (原子力機構)		物性調査・適応性検討	高温安定性試験	共存性試験	強度特性への影響試験
(8) 核変換ターゲットの製造 (原子力機構)				LLFP製造試験	模擬回収LLFP製造試験
(9) LLFP回収技術の検討 (原子力機構)		回収試験I(手法評価)	回収試験II(炉内回収のロス率評価)	回収試験III(再処理工程からの回収手法の検証)	回収試験III(再処理回収ロス率の評価)
(10) 照射試験計画 (京都市大)				照射試験計画の策定	集合体照射計画の検討
(11) 社会科学的意義 (東北大学)		予備調査	調査・分析	調査・分析	評価・まとめ
(12) 研究推進					
① プロジェクトの相互推進		プロジェクト推進のための会合	プロジェクト推進のための会合	プロジェクト推進のための会合	プロジェクト推進のための会合
② 全体まとめ		まとめ・評価	まとめ・評価	まとめ・評価	まとめ・評価

図 2.1-2 令和元年度研究実施計画図

区 分	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3
(1) LLFP核データの収集・評価												
①LLFP中性子核データの評価検討	←											→
(2) 高速炉での核変換ターゲット集合体の配置、交換法 (再委託先：東北大学)												
①配置、交換法の検討	←											→
(3) LLFPターゲットを含む高速炉の炉心特性												
①炉心特性（再委託先：東京都市大学）	←											→
②熱特性					←							→
③安全性（再委託先：東京都市大学）		←										→
(4) 核変換ターゲット集合体の構造設計 (再委託先：東北大学)												
①集合体構造設計	←											→
(5) 大型高速炉での適用性評価 (再委託先：東北大学)												
①大型炉への適用解析	←											→
(6) 核変換ターゲット構成材料の物性 (再委託先：原子力機構)												
①強度特性への影響評価試験	←											→
(7) 核変換ターゲットの製造 (再委託先：原子力機構)												
①模擬回収LLFP製造試験	←											→
(8) LLFP回収技術の検討 (再委託先：原子力機構)												
①再処理回収ロス率の評価	←											→
(9) 照射試験計画 (再委託先：東京都市大学)												
①照射試験計画の策定	←											→
(10) 社会科学的意義 (再委託先：東北大学)												
①調査・分析・まとめ	←											→
(11) 研究推進												
①プロジェクトの総合推進	←											→
②全体まとめ												←→

2.2 各年度計画

各年度の計画の概要を下記のような年度毎の項目別の計画概要として記載する。

平成 28 年度の項目別の計画概要は以下のとおり。

(1) LLFP 核データの収集・評価では、実験データベースおよび文献により LLFP の核分裂収率に関するデータを収集し、統計解析および理論解析のためのデータベースを構築する。また評価済み核分裂収率データライブラリーおよび核分裂理論模型を用いる計算値との比較を行う。(2) 核変換ターゲットの材質、構造、配置（再委託先：東北大学）では、「もんじゅ」ブランケット領域を想定して、LLFP または LLFP 化合物と中性子減速材の混合物の組成・混合割合、および LLFP ターゲット集合体のターゲットピン内のペレット部高さおよび減速材配置をパラメータにした核特性解析を実施し、核変換率、核変換量とこれらのパラメータの関係を明らかにする。(3) 「もんじゅ」炉心特性評価（再委託先：東京都市大学）では、核変換ターゲットを装荷した炉心との比較のために「もんじゅ」基準炉心の仕様調査、解析データの整備および炉心特性（反応度係数、出力分布、制御棒反応度等）の解析評価を行う。また、「もんじゅ」ブランケット領域に核変換ターゲット集合体を装荷した場合のターゲット核変換特性（サポートファクター(SF)等）、炉心出力分布の解析評価を行う。(4) 核変換構成材料の物性（再委託先：原子力機構）では、核変換ターゲットの候補となる構成材料について、高速炉の炉内環境や中性子減速材との混合ターゲット製造を考慮した適合性を評価するため、熱伝導度、熱膨張率、融点などの物性とともにも水溶性や酸、アルカリへの可溶性、化学的反応性について、熱力学データベースや文献により調査する。また、一部の特性については簡易的な実験（物性測定試験）により調査する。(5) LLFP 回収技術の検討（再委託先：原子力機構）では、炉内から取り出された照射後ターゲットや使用済み燃料の再処理工程からの LLFP 回収法を確立するため、それぞれにおける核種の存在状態を考慮して最適な回収手法を検討する。再処理工程からの回収については、再処理プロセスや関連先行研究の情報を収集し、これらに基づき最適な回収法を検討する。(6) 社会科学的意義（再委託先：東北大学）では、環境負荷低減の社会的受容性のアンケート調査のための予備検討を行う。(7) 研究推進のうち①プロジェクトの総合推進では、本業務全体を適切に遂行するために再委託者との連絡を緊密に取り、さらに定期的な会合を開催することで進捗状況を把握し事業を滞りなく進める。②全体まとめでは、平成 28 年度における成果のまとめを行い、次年度以降の計画策定への反映と報告書類の作成を行う。

平成 29 年度の項目別の計画概要は以下のとおり。

(1) LLFP 核データの収集・評価では、平成 28 年度に構築した LLFP 核分裂収率データベース、収集した理論模型計算コードおよび評価済み核分裂収率データライブラリーを基に LLFP 領域核の核分裂収率およびその精度評価を行う。(2) 核変換ターゲットの材質、構造、配置（再委託先：東北大学）では、LLFP ターゲット集合体内のターゲットピンおよび減速材のみのピンの本数およびピン配置をパラメータにした炉心解析をモンテカルロコード MVP にて実施し、核変換効果とこれらのパラメータの関係を明らかにする。(3) 高速炉での核変換ターゲット集合体の配置、交換法（再委託先：東北大学）では、径ブランケット領域の各層に対し、LLFP を含むターゲット集合体、減速材物質のみの減速材集合体、径ブランケット燃料集合体の 3 種類の集合体の組み合わせを変化させた各種配置に対し、炉心特性解析を実施し、核変換特性、増殖性、出力分布等とブランケット配置の関係を明らかにし、適切なブランケット領域の集合体配置を選定す

る。(4) LLFP ターゲットを含む高速炉の炉心特性のうち①炉心特性（再委託先：東京都市大学）では、調査で得られたデータを反映して、各種反応度係数を評価する。また、核変換ターゲット集合体の出力分布を解析するとともに、燃料のサーマルスパイクを解析評価する。②熱特性では、高速炉炉心槽内に核変換ターゲット集合体を装荷した場合の炉心出力分布等の炉心特性解析評価を行う。また、これらのデータを反映して LLFP 集合体の装荷前後の平衡炉心サイクル初期および末期の伝熱流動計算が行えるようにするための入力データを作成し、試計算を行う。(5) 核変換ターゲット構成材料の物性（再委託先：原子力機構）では、核変換対象核種のうち単体融点の低い Se および Cs について、化合物形態での高温安定性を調査し、高速炉核変換用ターゲットとしての適合性を評価する。また、Se、Pd および I のターゲット候補形態について、中性子減速材の母相である Y および Zr との高温での反応性を調査する。さらに、異なる形状の YH_2 および ZrH_2 を製作し、高速炉炉内温度での水素乖離性の差異について調査するとともに、Y および Zr の重水素化を試みる。(6) LLFP 回収技術の検討（再委託先：原子力機構）では、放射性ヨウ素の核変換ターゲットの候補形態である BaI_2 について、照射後ターゲット組成を模擬した体系からの回収試験を実施し、ヨウ素の回収率を評価する。得られた回収率から炉内回収ターゲットにおけるロス率を評価する。なお、本回収試験は安定同位元素を用いて実施する。また、Se、Zr、Pd および Cs について、平成 28 年度に実施した分離検討試験に基づき有効な分離が見込める核種に対して分離効率を評価する。(7) 社会科学的意義（再委託先：東北大学）では、環境負荷低減の社会的受容性のアンケート調査の分析を行う。(8) 研究推進では、本業務全体を適切に遂行するために、再委託者との連絡を緊密に取り、さらに定期的な会合を開催することで進捗状況を把握し事業を滞りなく進めるための調整を実施する。

平成 30 年度の項目別の計画概要は以下のとおり。

(1) LLFP 核データの収集・評価では、LLFP 核種の中性子捕獲反応断面積データの精度検討と、共分散データの評価を行う。(2) 高速炉での核変換ターゲット集合体の配置、交換法（再委託先：東北大学）では、径ブランケット領域の各層に対し、LLFP 核種として ^{129}I 等を対象としたターゲット集合体（減速材含む）、径ブランケット燃料集合体等の組み合わせを変化させた配置、交換法に対し、炉心特性解析を実施し、核変換特性、増殖性等とブランケット領域内の集合体配置の関係を明らかにし、高核変換特性に適切なブランケット領域の集合体配置、交換法を選定する。(3) LLFP ターゲットを含む高速炉の炉心特性のうち①炉心特性（再委託先：東京都市大学）では、主炉停止系および後備炉停止系の制御棒反応度値の解析を行い停止余裕等の評価を行う。②熱特性では、LLFP 核変換炉体系における流量配分を設定するための伝熱流動解析を行う。③安全性（再委託先：東京都市大学）では、ターゲット集合体ピンの破損を想定し、減速材漏出による炉心特性の変化を評価し安全性を確認する。そのため、減速材が分離・放出することによる挿入反応度および出力分布の評価を行う。(4) 核変換ターゲット集合体の構造設計（再委託先：東北大学）では平成 29 年度の評価で選定された目標性能（LLFP 6 核種の $SF > 1$ ）を達成するピン構成、集合体構造を設計し、健全性を確認する。そのため、本炉心の流量配分結果を基に LLFP ターゲット装荷したピンの温度評価、ピン圧力評価を行い、健全性を確認する。(5) 大型高速炉での適用性評価（再委託先：東北大学）では、大型高速炉において、高速炉を対象とした LLFP 変換システムを適用し、核特性、炉心特性を評価し、大型高速炉での適用性を評価する。(6) 核変換ターゲット構成材料の物性（再委託先：原子力機構）では、ターゲット候補形態のうち、先行研究によ

り被覆管材料との共存性が明らかとなっている I と Tc を除き、Se、Zr、Pd、Cs の候補形態について、被覆管材料との共存性を評価する。共存性評価は簡易試験と文献等による調査で実施する。(7) 核変換ターゲットの製造（再委託先：原子力機構）では、LLFP製造試験として、先行研究や一般産業技術情報を基に6種のLLFP候補形態の製造手法を明らかにする。また、中性子減速材として用いるYおよびZrの水素化物、重水素化物について、ペレット状や板状での製造と炉内装荷状態を想定した温度条件での水素保持特性評価試験を行う。(8) LLFP回収技術の検討（再委託先：原子力機構）では、6種のLLFP元素のうちターゲット候補形態の選定や照射後状態からの分離回収法に関する検討が進んでいるBaI₂に対して、再処理工程での存在状態からの回収手法について実験室規模の回収試験を行い、有効性の検証を行う。また、他のLLFP元素については再処理工程内での存在状態に応じた回収手法の検討を行い、候補となる回収手法を提示する。さらに、平成28年度および平成29年度の業務成果に基づき、照射後組成を模擬した成分系における分離手法の検討を進める。(9) 照射試験計画（再委託先：東京都市大学）では、照射炉の調査を行い、照射サンプルの種類、サンプルの形状、照射位置等を考慮して照射試験計画を立案する。(10) 社会科学的意義（再委託先：東北大学）では、LLFP核変換の社会的受容性に関する説明方法の検討を行う。(11) 研究推進①プロジェクトの総合推進では、本業務全体を適切に遂行するために再委託者との連絡を緊密に取り、さらに定期的な会合を開催することで進捗状況を把握し業務を滞りなく進める。②全体まとめでは、平成30年度における成果のまとめを行い、次年度以降の計画策定への反映と報告書類の作成を行う。

令和元年度の項目別の計画概要は以下のとおり。

(1) LLFP中性子核データの評価検討では、LLFP核種断面積の共分散ファイルの作成および核変換率の誤差推定を行う。(2) 高速炉での核変換ターゲット集合体の配置、交換法（再委託先：東北大学）では、LLFP核種のターゲット集合体（減速材含む）を、高速炉のブランケット領域および遮蔽体領域に装荷する場合の配置、交換法を検討し、炉心核特性解析を実施し、核変換特性、サポートファクター等との関係を明らかにする。これにより、優れた核変換特性を持つ核変換ターゲット集合体の配置、交換法をまとめる。(3) LLFPターゲットを含む炉心特性のうち①炉心特性（再委託先：東京都市大学）では、LLFP核変換の最適化炉心について炉心特性解析評価を行う。②熱特性では、LLFP核変換炉体系における冷却材流量配分を決定しLLFPターゲットの熱的健全性を評価する。③安全性（再委託先：東京都市大学）では、最適化炉心についてターゲット集合体ピンの破損を想定し安全性の評価を行う。また、ターゲットピンの破損検出方法概念を検討、提案する。(4) 核変換ターゲット集合体の構造設計（再委託先：東北大学）では、(2) で検討した結果を基にして、LLFP核種のピン構成、集合体構造の最適化を行う。また、LLFP核種を装荷したピンの温度評価、ピン圧力評価を行い、健全性を確認する。(5) 大型高速炉での適用性評価（再委託先：東北大学）では、大型高速炉に対して、今まで検討してきたLLFP核変換手法を適用し、核特性、炉心特性、安全性を解析し、大型高速炉での適用性を評価する。(6) 核変換ターゲット構造材料の物性（再委託先：原子力機構）では、SUS316鋼とTcを除く5種類のLLFP候補化合物の共存性試験前後の状態において引張試験を実施し、LLFP核変換ターゲットの候補形態が被覆管材料の強度特性に及ぼす影響を評価する。(7) 核変換ターゲットの製造（再委託先：原子力機構）では、IおよびCsについて、再処理工程を模擬したプロセスから回収しそれぞれを用いて核変換ターゲット用の候補化合物（BaI₂、Cs₂CO₃）を製造する。各候補化合物の構造解析と不純物分析

を行い、照射後回収元素から製造した候補化合物の特性を明らかにする。また、重水素化物を減速材とし非放射性的LLFP元素からなる模擬LLFPターゲットを試作し、製造性を明らかにする。試作する模擬LLFPターゲットは平成30年度までに検討した粉末混合焼結型と混合複合体型の2種類とする。(8)LLFP回収技術の検討(再委託先:原子力機構)では、先行研究や文献の調査により6種のLLFPの再処理工程からの分離回収におけるロス率を評価する。一部、模擬元素を用いた溶媒抽出実験を実施し、ロス率を実験的に評価する。また、LLFPサイクルに関するマテリアルフローを調査・検討し、再処理工程での分離回収、高速炉による核変換、その後のリサイクルにおけるマテリアルバランスを評価する。(9)照射試験計画(再委託先:東京都市大学)では、核変換特性、集合体の健全性を確認するために高速炉を用いて核変換ターゲット集合体1体を照射する照射試験計画を策定する。(10)社会科学的意義(再委託先:東北大学)では、LLFP核変換の社会的受容性に関する説明方法、理解度調査のまとめを行う。(11)研究推進のうち①プロジェクトの総合推進では、本業務全体を適切に遂行するために再委託者との連絡を緊密に取り、さらに定期的な会合を開催することで進捗状況を把握し業務を滞りなく進める。②全体まとめでは、平成28年度から令和元年度における成果のまとめを行い、報告書類の作成を行う。

3. 業務の実施内容および成果

3.1 LLFP 核データの収集・評価

LLFP 核種の中性子捕獲反応断面積データの精度検討と、共分散データの評価を行った。令和元年度では LLFP 核種の中性子捕獲反応断面積データの誤差を評価し、核変換ターゲット集合体の核変換率の誤差ならびにサポートファクター (SF) の誤差を評価した。

3.1.1 LLFP 核分裂収率に関わる研究 【H28-H29】

(1) LLFP 核分裂収率に関するデータの収集と評価 【H28】

実験核反応データベース EXFOR および文献により LLFP の核分裂収率に関するデータを収集し、統計解析および理論解析のためのデータベースを構築した。また評価済み核分裂収率データライブラリおよび数種類の核分裂理論モデルによる計算値との比較を行った。その結果、実験データには大きな不確定性があることや、理論計算コードの精度に課題があり、評価に利用可能な精度で実験値を再現できないことが分かった。様々な積分実験の結果等を考慮しつつ、精度を向上させることが必要であるとの結論を得た。次年度以降、核分裂生成物収率データの評価手法の確立、実験値の統計解析や計算値との比較による独自の核分裂収率評価値の決定、評価値の精度を確認するための崩壊熱や遅発中性子、照射後試験による検証などが必要となることを課題として確認した。

(2) LLFP を含む核分裂収率の精度評価 【H29】

平成 28 年度に構築した LLFP 核分裂収率実験データベースを元に、原子核質量の偶奇性などを考慮した新たな評価式を作成した。この評価式を用いて、独立収率について、 β 崩壊による累積収率への換算、崩壊熱、遅発中性子、および照射後試験解析による精度評価を行い、JENDL と同等の精度で計算できることを確認した。

Hauser-Feshbach 統計理論モデルを用いて、 ^{236}U の核分裂直後の一次収率を元に累積収率、熱崩壊、遅発中性子数の評価を行い、実験値や JENDL の評価値を概ね再現できていることを確認したが、一部で再現性に課題があることが分かった。

これらを用いて、LLFP 領域核を含む 1,000 核種以上の核分裂収率およびその精度評価を行った。

3.1.2 LLFP 中性子核データの評価検討 【H30-R1】

国際核データ実験データベース EXFOR から LLFP 中性子捕獲断面積のデータを収集し、各種核データの値との比較を行った。 ^{99}Tc 以外は実験値が少なく、 ^{93}Zr , ^{107}Pd では各種核データで熱中性子領域に違いが見られた。

(1) T6 による断面積の評価 【H30-R1】

① T6 を用いた JENDL-4.0 の断面積の再現

核データ評価コード群 T6 [3.1-1]を用いて、JENDL-4.0 の断面積を再現できることを確認した。共鳴領域は完全に再現したものの、連続領域の再現性に課題が残った。T6 と JENDL で、連続領域の断面積計算に用いる光学ポテンシャルが異なっていることが原因であることが分かった。T6 が使用しているポテンシャルのパラメータを調整して、断面積の再現精度を上げた。

② T6 を用いた JENDL-4.0 での共分散の計算

平成 30 年度に、T6 を用いてランダム計算を行うことで共分散を計算できることを確認し、その計算手法を確立した。令和元年度には、ランダム計算でランダムに振るパラメータの振り幅を調整し、計算誤差が実験誤差や評価済み誤差と一致するようにした。これにより、実験誤差と同精度の誤差を持った JENDL-4.0 の共分散とみなせる LLFP 中性子核データを作成した。JENDL-4.0 にはない LLFP 核種の共分散が得られた。図 3.1.2-1 に一例として、計算で得られた ^{99}Tc の中性子捕獲断面積の相対標準偏差と相関行列を載せた。

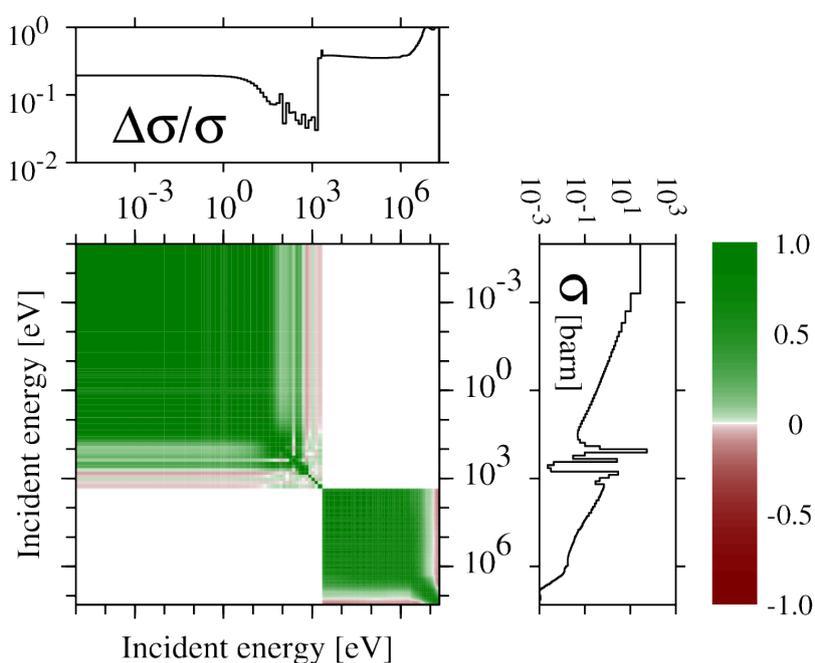


図 3.1.2-1 ^{99}Tc の中性子捕獲断面積の相対標準偏差と相関行列

3.1.3 LLFP 中性子核データによる誤差評価 【R1】

平成 30 年度までに構築した T6 による中性子捕獲断面積評価手法に基づき、今年度は LLFP 核種である ^{93}Zr 、 ^{99}Tc 、 ^{107}Pd 、 ^{129}I 、 ^{135}Cs の中性子捕獲断面積の相対標準偏差と共分散を求め、核変換ターゲット集合体の核変換率の誤差ならびにサポートファクター (SF) の誤差を算出するためのトータルモンテカルロ (TMC) 法を構築した。TMC 法を用いて、3 基の高速炉システムに装荷した核変換ターゲット集合体の核変換率の誤差ならびに SF の誤差を評価した。

(1) トータルモンテカルロ (TMC) 法

トータルモンテカルロ法は T6 で作成される一連のランダムな核データファイルを用いて、モンテカルロ法によって種々の炉物理量を求める手法である。[3.1-1]

T6 と TMC 法の一連の処理流れを図 3.1.3-1 に示す。まず、T6 で作成された ENDF-6 型式の核デ

ータファイル（1000 セット）を核データ処理コード NJOY2016[3. 1-2]によりエネルギー群 70 群構造の群定数を作成した。次に、3.2 節で述べる 3 基の高速炉システム（A, B, C）のそれぞれの核変換ターゲット集合体における中性子エネルギースペクトルを高速炉炉心解析システム MARBLE2[3. 1-3]の CITATION-FBR モジュールで計算し、得られた中性子エネルギースペクトルを用いて共鳴の自己遮蔽効果を考慮した実効 1 群断面積を作成した。さらに、この実効 1 群断面積を用いて LLFP 核種の生成・消滅計算を行い、核変換率を算出した。この計算を 1000 セットについて繰り返すことで、核変換率の期待値と分散を求めた。

(2) トータルモンテカルロ（TMC）法で得られた核変換率と SF の誤差

TMC 法によって得られた核変換率と SF の誤差を表 3. 1. 3-1 に示す。核種によって不確かさはそれぞれ異なるが、システム全体の SF の期待値は全ての LLFP 核種で 3 を超えており、所定の目標は達成されていることが分かった。誤差を考慮すると ^{93}Zr , ^{107}Pd , ^{135}Cs は平均値－標準偏差では SF が 3 以下となっている。

表 3. 1. 3-1 TMC 法によって得られた核変換率と SF の誤差

trans rate %	I-129	Tc-99	Pd-107	Se-79	Zr-93	Cs-135
A					0.460%	0.200%
B	3.410%	2.470%			0.470%	0.100%
C			2.340%	2.900%	0.480%	0.100%
system	3.410%	2.470%	2.340%	2.900%	0.470%	0.135%
uncertainty	0.155%	0.234%	0.529%	1.360%	0.158%	0.023%
SF	I-129	Tc-99	Pd-107	Se-79	Zr-93	Cs-135
A					1.041	1.613
B	3.196	3.755			1.063	0.733
C			3.254	5.832	1.086	0.733
system	3.196	3.755	3.254	5.832	3.189	3.080
uncertainty	0.145	0.355	0.736	2.736	1.073	0.515

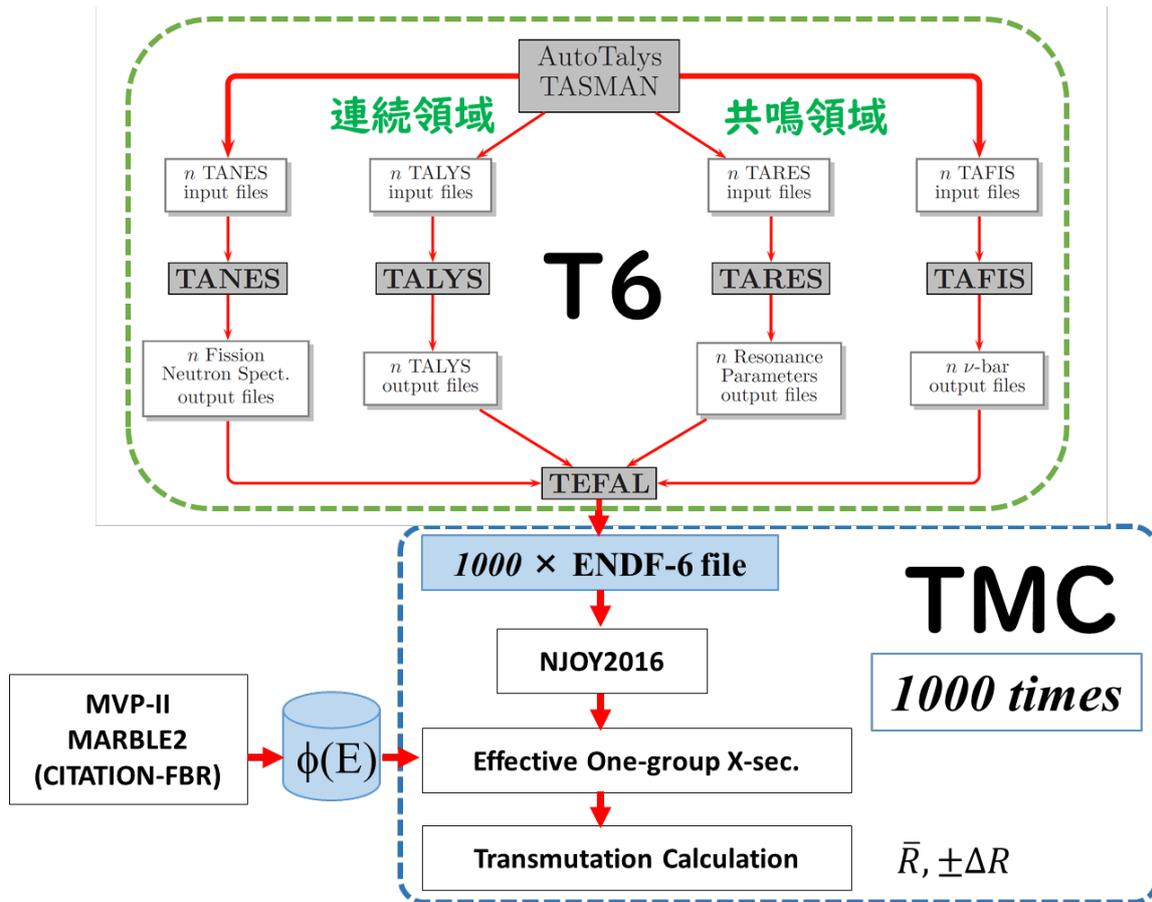


図 3. 1. 3-1 T6 と TMC 法の処理流れ

参考文献

[3. 1-1] A. J. Koning and D. Rochman, “Modern Nuclear Data Evaluation with the TALYS Code System,” Nuclear Data Sheets **113** (2012) 2841-2934.

[3. 1-2] R. E. MacFarlane, “The NJOY Nuclear Data Processing System, Version 2016,” LA-UR-17-20093 (2016).

[3. 1-3] K. Yokoyama, T. Jin, Y. Hirai and T. Hazama, “Development of the Versatile Reactor Analysis Code System, MARBLE2,” JAEA-Data/Code 2015-009 (2015).

3.2 核変換ターゲットの材質、構造、配置（再委託先：東北大学）【H28～H29】

3.2.1 材質・構造の検討

(1) 材料、配置の検討

①検討方法および解析モデル

原型炉を基準炉心として設定した。用いた基準炉心の炉心仕様を表 3.2.1-1 に示す。

^{93}Zr が LLFP であることから、Zr を含まない水素化物減速材として、Y の重水素化物を基準とすることとし、サーベイ用の基準計算モデルを作成した。イットリウム重水素化物の密度は $4.3\text{g}/\text{cm}^3$ とし、化学量論比は 2.0 とし、重水素イットリウムの組成を設定した。図 3.2.1-1 に MVP 計算モデルを示す。基準としたライブラリは JENDL-4.0 である。LLFP ターゲット集合体は径ブランケット領域第一層に 54 体、第二層、第三層に各々 60 体の合計 174 体、遮へい体領域全 4 層に合計 324 体の全 498 体を装荷する。集合体の断面構成をブランケット燃料集合体と同等（LLFP 体積比 45%）とし、被覆管厚さを 0.5 mm とした全 61 ピン集合体に対し、減速材を炉心高さ部第一層 30%、第二層 20%、第三層以下 10% とし、LLFP 元素金属または化合物を 70-90% の体積割合で混合均質ペレットとして配置した。外側炉心外周部ピンがサーマルスパイクで出力が増大しないよう、また、LLFP 集合体内の水素による中性子の吸収を低減できるよう、ターゲット集合体ピンは重水素化物 YD_2 と LLFP の混合物とした。なお、61 本のピンはセルフオリエンテーション機構と両立するよう全て同一とした。

各ターゲット集合体の軸方向ブランケット高さ部分には、Cs、Zr 集合体には LLFP ペレットを配置した。Se、Tc、Pd、I 集合体に対しては炉心高さ部分のみとした。

Se、Tc、Pd、I 集合体の場合、ターゲット集合体は径ブランケット第一層のみ（54 体）に配置した。上記の各 LLFP を含む元素の同位体組成は原型炉の燃焼度 8 万 Mwd/t 取り出し組成としたが、同位体合計の原子数密度は元素分離時原子数密度に一致するよう規格化し、上記の単体体積割合として減速材 YD_2 と混合した。但し、I については BaI_2 化合物とした。また、Cs については Cs_2CO_3 とした。その他は金属を想定した。

MVP における燃焼計算は FP193 核種の開発者用燃焼チェーンを用い、JENDL-4.0 定数に含まれていない ^{109}Pd 、 ^{110}Ag は各々 ^{107}Pd 、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ で代用した。

MVP-BURN の燃焼計算モデルでは、ターゲット集合体は燃料交換をしないまま照射される直線燃焼計算モデルとなっているので、実機適用上は燃焼途中で再処理リサイクルすることを想定する必要がある。LLFP 集合体寿命を 20 年とし、2 年 10 バッチ交換し直線燃焼計算での MVP-BURN 計算モデルにおいては 11 年（5.5 バッチ目）が平衡炉心相当であるとして、6 サイクル目の核変換率を評価した。但し、Cs の燃焼については連続照射モデルでは 2 年程度で ^{134}Cs のピークが生じたため、2 年照射-6 年冷却の照射冷却法で 10 サイクル繰り返した。また、炉心の臨界性をほぼ一定として、LLFP に照射される中性子束を一定とするために、粗調整棒 10 体を挿入したモデルとした。即ち、MVP-BURN の LLFP 反応率計算においては、炉心から漏えいする中性子束を燃焼期間中一定となるように、炉心部、軸ブランケット部の燃焼計算時入力体積を仮想的に増大（10 万倍）し、また、 ^{241}Pu 崩壊が進まないモデルとすることで、炉心、軸ブランケットの燃焼が進まず、臨界性の変化を無視できるモデルとした。核変換率結果に示す核変換経路で生成される核種（ ^{80}Se 等）は安定核種であり、LLFP 核種の重量変化は LLFP 集合体内の放射能の減少に相当する。以上の装荷位置については表 3.2.1-2 にまとめた。

原型炉 8 万 MWd / t 燃料に対する各 LLFP のサポートファクター (SF) については、ターゲット集合体内で単位時間 (単位時間としては 1 年とした) 当たり核変換されて減少する LLFP 重量 / 炉心燃料集合体内で単位時間当たり生成される LLFP 重量、と定義した。なお、年間生成量は、径方向ブランケットは全て LLFP 集合体のため、炉心燃料集合体のみで生成されたものである。

②材料、配置の検討

径方向ブランケット領域に減速材 YD_2 を装荷した評価を行った。その場合の核変換率と SF を表 3.2.1-3 に示す。高速炉余剰中性子を有効に利用でき、高速炉の炉心特性への影響を小さくできる径ブランケット領域に核変換ターゲットを装荷して、 YD_2 の減速材としての有効性と同位体分離を必要としない LLFP 各システムが構築できる見通しを得た。[3.2-1]

また減速材を YD_2 から YH_2 とした場合の核変換率と SF を表 3.2.1-4 に示す。径方向ブランケット一層に入れた I、Se、Tc、Pd は YH_2 の方が I で 1.5 倍、Tc では 1.2 倍、Pd で 1.4 倍、Se で 1.3 倍となるが、Cs、Zr は逆に YD_2 の方が YH_2 に比較して核変換率が大きくなる。これについては構造配置検討のところでも減速材を変えて比較を行う。

(2) 材料、構造の検討

① 検討方法および解析モデル

解析手法は 3.2.1(1)①と同一である。構造配置の検討において、減速材を非均質配置とすることとした。図 3.2.1-2 に体系を示す。減速材ピン減速材比を 30% の場合は 61 本中 18 本、20% では 12 本、10% では 6 本を図 3.2.1-2 の詳細図の部分にピンの配置を示した。また全ての、径方向ブランケット領域と遮蔽体領域に LLFP を装荷した。

②材料、構造の検討

非均質体系での核変換率と SF を表 3.2.1-5 に均質に装荷した場合を表 3.2.1-6 に示す。この場合は均質に装荷した方が SF と核変換率は大きくなっていることが分かる。これよりできるだけ集合体内の配置を均質配置に近づけることが核変換率を上げることに有利である。

次に、減速材を YH_2 に変更した結果を表 3.2.1-7 に示す。この場合は YD_2 よりも核変換率と SF は低下することが分かる。これは、水素 (H) の方が減速能力は大きい、中性子断面積が大きくなる効果により全体の核変換率が下がったと考えられる。3.2.1(1)項で示した径方向ブランケット第 1 層のみ入れた場合は I の場合には核変換率が 1.5 倍と高くなることが分かる。したがって、減速材を YH_2 にする場合は径ブランケット 1 層だけに配置する方が核変換率は高くなることが分かる。

また炉心長部分だけ装荷した場合の核変換率と SF を表 3.2.1-8 に、上下軸ブランケット高さの領域まで入れた場合の核変換率と SF を表 3.2.1-9 に示す。軸方向ブランケット部は flux が低下するので、核変換率は低下するが、核変換量は増加することになる。その核変換量の増加効果はほぼ 20% 程度である。したがって SF を増加させるには軸方向ブランケット領域に入れることも重要である。

(3) まとめ

3.2 章のまとめを以下に示す。

- ・減速材 YH_2 と YD_2 による変換率を比較した場合、径方向ブランケット第一層にのみ装荷している Se, Te, Pd, I については YH_2 を装荷すると変換率が大きくなる。一方径ブランケット第一層から遮蔽体領域まで装荷した Cs と Zr の場合は、 YD_2 の方が YH_2 より変換率が高くなる。
- ・集合体内での減速材は別ピンとするよりも均質ペレットにする方が核変換率は高くなる。
- ・軸方向ブランケット領域にいれるのは SF を増加させるには有効である。
- ・SF を 1 以上にするのに必要な装荷領域は Cs の場合が最も大きい。その次に装荷領域が大きい核種は Zr である。

参考文献

- [3.2-1] S.Chiba et al. “Method to reduce Long-lived Fission Products by Nuclear Transmutations with Fast Spectrum reactor”, Scientific Reports 7:13961, 24 October 2017

表 3.2.1-1 原型炉炉心基本仕様

項目	単位	仕様	備考
1. 原子炉熱出力	MW	714	ガンマ線発熱分を4MW tと想定する
2. 炉心構成			
(1) 炉心形式			
炉心概念		均質炉心	
炉心領域数		2	
(2) 構成要素数			
炉心燃料合計	体	198	
内側炉心	体	108	
外側炉心	体	90	
制御棒	体	19	
半径方向ブランケット	体	174	
中性子遮蔽体	体	324	
(3) 炉心寸法			
高さ	mm	930	
等価直径	mm	1788	
高さ／直径	mm	0.52	
容積	l	2335	
(4) ブランケット寸法			
径方向厚さ	mm	315	
軸方向厚さ（上／下）	mm	300/350	
(5) 集合体配列ピッチ	mm	115.6	
3. 炉心燃料集合体			
燃料材質		MOX	
燃料要素数	本	169	
4. ブランケット燃料集合体			
燃料材質		劣化U	
燃料要素数	本	61	基準炉心条件
5. 燃料交換			
燃焼日数	日	123	基準炉心条件
バッチ数		4	基準炉心条件

表 3.2.1-2 評価条件

LLFP	装荷量 (g)	ターゲット集合体ペレット配置
⁷⁹ Se	1.05E+05	径ブランケット領域の最内層 1 層のみ、炉心高さのみ
⁹⁹ Tc	2.09E+06	径ブランケット領域の最内層 1 層のみ、炉心高さのみ
¹⁰⁷ Pd	4.61E+05	径ブランケット領域の最内層 1 層のみ、炉心高さのみ
¹²⁹ I	3.77E+05	径ブランケット領域の最内層 1 層のみ、炉心高さのみ
⁹³ Zr	5.10E+06	径ブランケット領域の 3 層および遮へい体領域の 4 層、軸ブランケット高さ部まで
¹³⁵ Cs	4.65E+06	径ブランケット領域の 3 層および遮へい体領域の 4 層、軸ブランケット高さ部まで

表 3.2.1-3 LLFP の核変換率 (減速材: YD₂ (重水素化イットリウム))

LLFP	年平均核変換量 (g / 年)	半減期間 (年)	物理的半減期 (年)	核変換率 (%/年)	SF	核変換経路
⁷⁹ Se	3.04E+03	16.8	3.27E+5	3.0	78.4	⁷⁹ Se+n→ ⁸⁰ Se
⁹⁹ Tc	2.60E+04	39.8	2.13E+5	1.3	4.8	⁹⁹ Tc+n→ ¹⁰⁰ Ru
¹⁰⁷ Pd	6.66E+03	32.5	6.5E+6	1.5	2.8	¹⁰⁷ Pd+n→ ¹⁰⁸ Pd
¹²⁹ I	6.61E+03	28.4	1.57E+7	1.8	4.2	¹²⁹ I+n→ ¹³⁰ Xe
⁹³ Zr	1.21E+04	213	1.5E+6	0.2	3.2	⁹³ Zr+n→ ⁹⁴ Zr
¹³⁵ Cs	1.69E+04*	518*	2.3E+6	0.1*	1.6	¹³⁵ Cs+n→ ¹³⁶ Ba

表 3.2.1-4 LLFP の核変換率と SF (減速材 YH₂ (水素化イットリウム))

LLFP	年平均核変換量 (g / 年)	半減期間 (年)	物理的半減期 (年)	核変換率 (%/年)	SF	核変換経路
⁷⁹ Se	4.07E+03	11.4	3.27E+5	4.4	115	⁷⁹ Se+n→ ⁸⁰ Se
⁹⁹ Tc	3.12E+04	32.6	2.13E+5	1.5	5.5	⁹⁹ Tc+n→ ¹⁰⁰ Ru
¹⁰⁷ Pd	8.83E+03	25.4	6.5E+6	2.0	3.7	¹⁰⁷ Pd+n→ ¹⁰⁸ Pd
¹²⁹ I	1.04E+03	17.9	1.57E+7	2.8	6.6	¹²⁹ I+n→ ¹³⁰ Xe
⁹³ Zr	1.69E+04	281	1.5E+6	0.2	2.2	⁹³ Zr+n→ ⁹⁴ Zr
¹³⁵ Cs	1.45E+04*	606	2.3E+6	0.1	1.4	¹³⁵ Cs+n→ ¹³⁶ Ba

表 3. 2. 1-5 各 LLFP の装荷量と核変換量、核変換率（非均質化 1/2/3 各層 18/12/6 ピン、減速材 YD₂）

LLFP	装荷量 (g)	年平均核変換量 (g/年)	S. F.	半減期間 (年)	核変換率 (%/年)
⁷⁹ Se	2. 25E+06	1. 22E+04	313	91. 4	0. 55
⁹⁹ Tc	4. 48E+07	3. 06E+04	5. 65	746	0. 067
¹⁰⁷ Pd	9. 90E+06	8. 98E+03	3. 04	549	0. 091
¹²⁹ I	8. 10E+06	2. 10E+04	12. 86	195	0. 26
⁹³ Zr	5. 10E+06	7. 85E+03	2. 06	356	0. 15
¹³⁵ Cs	4. 65E+06	1. 09E+04	1. 06	819	0. 060

表 3. 2. 1-6 各 LLFP の装荷量と核変換量、核変換率（均質混合ペレット）

LLFP	装荷量 (g)	年平均核変換量 (g/年)	S. F.	半減期間 (年)	核変換率 (%/年)
⁷⁹ Se	2. 25E+06	1. 81E+04	466	61. 8	0. 81
⁹⁹ Tc	4. 48E+07	6. 12E+04	10. 8	364	0. 14
¹⁰⁷ Pd	9. 90E+06	1. 71E+04	5. 79	285	0. 18
¹²⁹ I	8. 10E+06	3. 22E+04	19. 8	124	0. 40
⁹³ Zr	5. 10E+06	1. 21E+04	3. 16	213	0. 23
¹³⁵ Cs	4. 65E+06	1. 69E+04	1. 65	518	0. 10

表 3.2.1-7 減速材材質 (YH₂) と各 LLFP の装荷量と核変換量、核変換率 (非均質化 1/2/3 各層 18/12/6 ピン)

LLFP	装荷量 (g)	年平均核変換量 (g/年)	S. F.	半減期間 (年)	核変換率 (%/年)
⁷⁹ Se	2.25E+06	1.09E+04	280	104	0.48
⁹⁹ Tc	4.48E+07	2.91E+04	5.37	781	0.064
¹⁰⁷ Pd	9.90E+06	8.46E+03	2.87	574.21	0.087
¹²⁹ I	8.10E+06	1.83E+04	11.24	221.95	0.23
⁹³ Zr	5.10E+06	4.97E+03	1.30	519	0.096
¹³⁵ Cs	4.65E+06	7.79E+03	0.76	1133	0.044

表 3.2.1-8 LLFP 部ペレット高さ (93 cm時) と各 LLFP の装荷量と核変換量、核変換率 (非均質化 1/2/3 各層 18/12/6 ピン)

LLFP	装荷量 (g)	年平均核変換量 (g/年)	S. F.	半減期間 (年)	核変換率 (%/年)
⁷⁹ Se	1.21E+06	7.55E+03	195	79	0.63
⁹⁹ Tc	2.40E+07	2.71E+04	5.00	453	0.11
¹⁰⁷ Pd	5.31E+06	7.99E+03	2.71	331	0.15
¹²⁹ I	4.34E+06	1.33E+04	8.19	164	0.31
⁹³ Zr	2.74E+06	4.68E+03	1.22	291	0.17
¹³⁵ Cs	2.49E+06	6.88E+03	0.67	696	0.0720

表 3.2.1-9 LLFP 部ペレット高さ (183 cm時) と各 LLFP の装荷量と核変換量、核変換率 (非均質化 1/2/3 各層 18/12/6 ピン)

LLFP	装荷量 (g)	年平均核変換量 (g/年)	S. F.	半減期間 (年)	核変換率 (%/年)
⁷⁹ Se	2.77E+06	1.29E+04	333	107	0.47
⁹⁹ Tc	5.52E+07	3.09E+04	5.70	906	0.055
¹⁰⁷ Pd	1.22E+07	9.18E+03	3.11	662	0.075
¹²⁹ I	9.97E+06	2.21E+04	13.55	228	0.22
⁹³ Zr	6.28E+06	8.24E+03	2.16	376	0.13
¹³⁵ Cs	5.72E+06	1.15E+04	1.12	952	0.0530

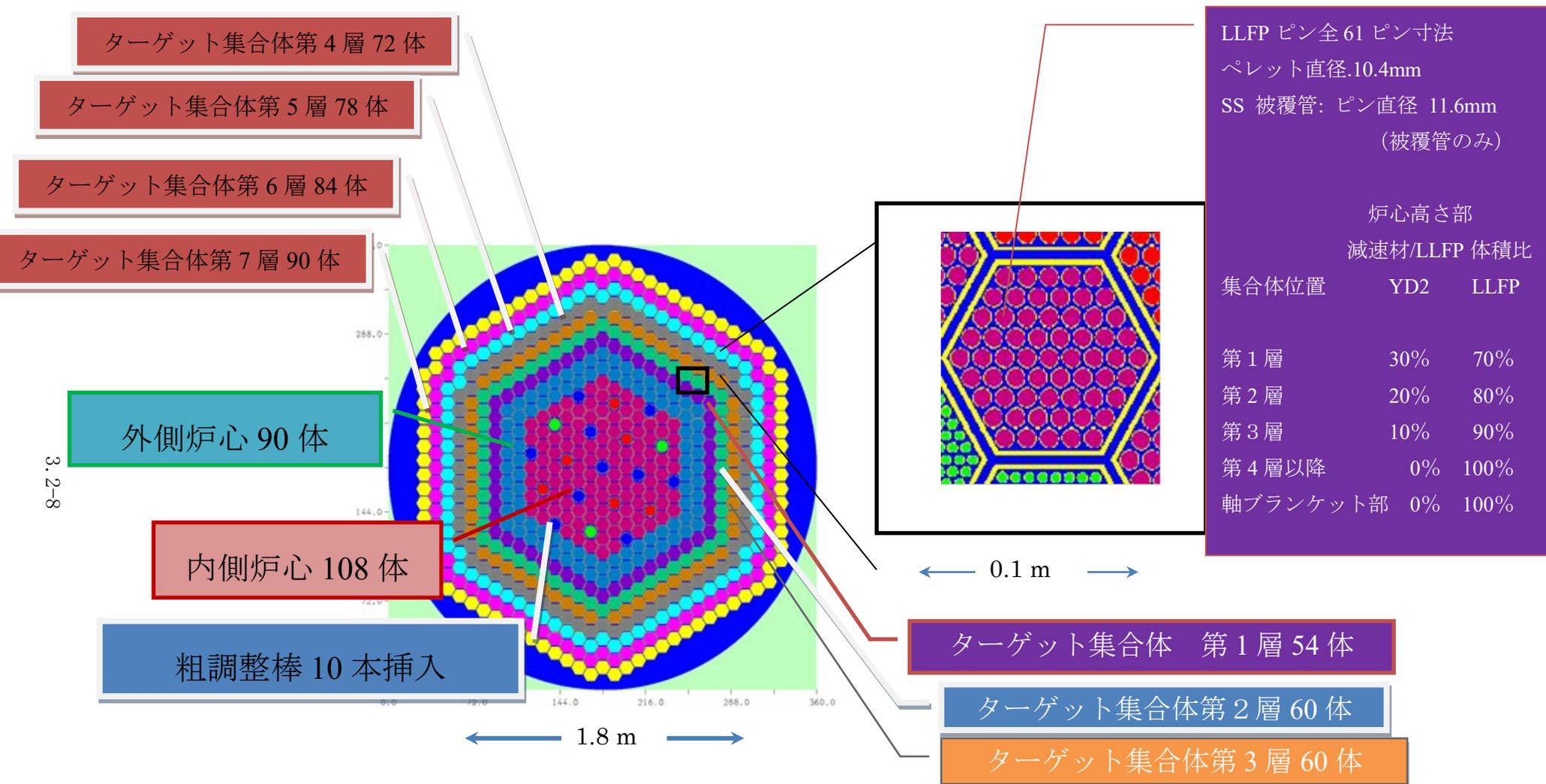


図 3.2.1-1 原型炉炉心径ブランケット領域、遮へい体領域でのイットリウム水素化物減速材による LLFP 核変換モデル (均質混合ピンの場合)

3.2-8

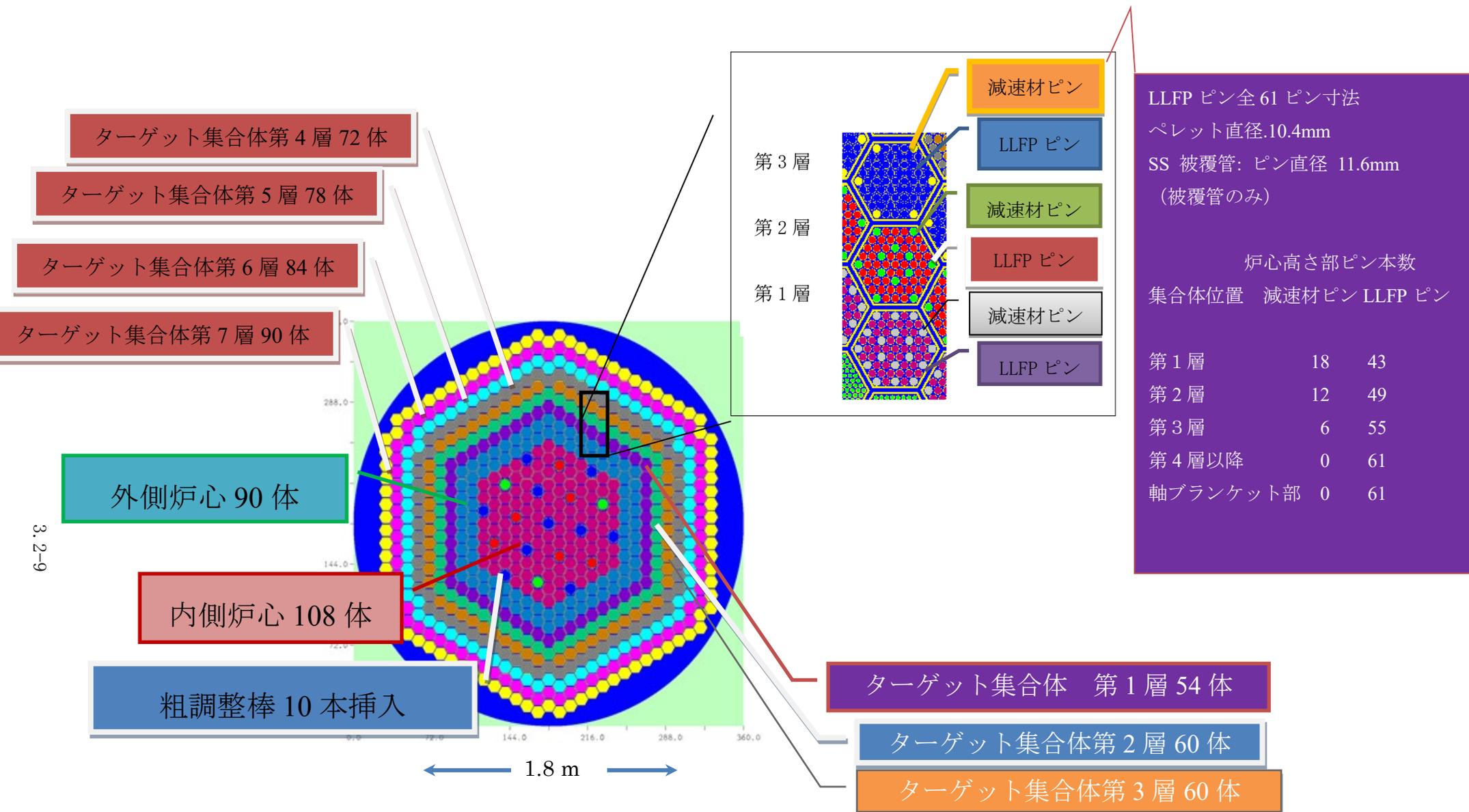


図 3.2.1-2 原型炉炉心径ブランケット領域でのイットリウム水素化物減速材による LLFP 核変換モデル (減速材/LLFP 非均質化時詳細)

3.2-9

3.3 高速炉での核変換ターゲット集合体の配置、交換法（再委託先：東北大学）

3.3.1 配置、交換法の検討【H29-H31】

(1) LLFP を 1 核種ずつ 1 炉心に単独装荷したケースについて

① 解析体系

図 3.3.1-1 に各 LLFP 集合体を配置した炉心に対する MVP 計算モデルを示す。基準としたライブラリは JENDL-4.0 である。LLFP ターゲット集合体は径ブランケット領域第 1 層に 54 体、第 2 層、第 3 層に各々 60 体の合計 174 体、遮へい体領域全 4 層に 72、78、84、90 体の合計 324 体の全 498 体を装荷する。制御棒は全て炉心から引き抜いた状態とする。

ピンへの装荷は LLFP と減速材の混合均質ペレットとする。なお、混合均質ペレットの軸方向の減速材の装荷割合(体積割合)は、径ブランケット第 1 層、第 2 層、第 3 層の炉心高さ部において、それぞれ、30%、20%、10%と変更する。径方向遮へい体集合体、および、軸方向ブランケット高さ部には、LLFP のみ装荷する。但し、軸方向ブランケット領域に装荷する LLFP ペレット径は軸方向ブランケット燃料のそれと同じとする。

減速材はイットリウム重水素化物(YD_2)とし、密度は 4.3g/cm^3 、化学量論比は 2.0 とする。LLFP は、Se, Zr, Tc, Pd は金属、Cs, I は化合物 (Cs_2CO_3 , BaI_2) の形態とする。

LLFP の同位体組成は、原型炉燃焼度 8 万 MWd/t 取り出し組成とするが、同位体合計の原子数密度は、ImPACT プロジェクト「重水炉と冷中性子を用いた新核変換法」で検討した条件での元素分離時原子数密度と一致するよう規格化する。なお、 BaI_2 化合物は ImPACT 条件と同一の 80%TD とする。

MVP-BURN の燃焼計算では、燃焼ステップを繰り返す場合は、2 年照射-6 年冷却とする。軸方向ブランケット領域に LLFP 装荷する場合、燃焼期間は炉心燃料集合体の炉内滞在期間と等価となる。「もんじゅ」炉心は最大 148 日/バッチ×5 バッチ=740 日≒2 年となるため、基本的には、第 1 ステップで計算する。径方向ブランケット、遮へい体領域への装荷では炉内滞在期間を延ばせる可能性があるため、一部のケースにおいては第 2 ステップまでの計算も行う。なお、炉心から漏えいする中性子束を燃焼期間中一定となるように、炉心燃料部の燃焼変化を無視できるモデルとする。

モンテカルロ計算は、総ヒストリ数 100 万(1 万ヒストリ/バッチ、有効バッチ数 100、スキップバッチ数 20)とする。

②Cs、Zr の核変換に必要な領域について【H29】

^{135}Cs の SF の変化を図 3.3.1-2 に示す。この図より、 ^{135}Cs のサポートファクタ (SF) =1 以上を確保するためには、第 4 層まで装荷する必要がある。つまり、全ての径ブランケット集合体と径方向遮へい体 1 層を Cs 核変換ターゲット集合体に交換する必要がある。

次に、核変換ターゲット集合体の必要体数が多いのは Zr であった。Cs 核変換ターゲット集合体を第 4 層まで装荷し、第 5 層以降の径方向遮へい体を Zr 核変換ターゲット集合体を装荷しても、 ^{93}Zr の SF は 1 以上にはならない。

以上のことから、6LLFP (^{79}Se , ^{93}Zr , ^{99}Tc , ^{107}Pd , ^{129}I , ^{135}Cs) を、1 つの炉心で同時にサポートファクタ (SF) =1 以上を確保するためには、LLFP を装荷する領域を拡大する必要がある。

(3)にて、6 核種を同時に装荷する方法を示す。

③ 6 核種のそれぞれ単独装荷での高転換率の検討【H30】

高速炉（原型炉）を想定し、 ^{79}Se 、 ^{99}Tc 、 ^{107}Pd 、 ^{129}I 、 ^{135}Cs および ^{93}Zr の 6 核種を対象に高核変換率を目指し、径ブランケット領域に LLFP と減速材（水素化イットリウム (YH_2)、重水素化イットリウム (YD_2)) を含むターゲット集合体、径ブランケット燃料集合体の集合体の組み合わせを変化させた場合の炉心核特性解析を MVP コード[3.3-1]または SCALE システム[3.3-2]の XSDRN コードを用いて実施した。断面積ライブラリーは、MVP コードは JENDL-4.0、XSDRN コードは ENDF-B7.0 の中性子 238 群を使用した。計算モデルを MVP コードについては図 3.3.1-1、SCALE システムについては図 3.3.1-3 に示す。MVP コードでは、集合体とピンの形状を忠実に模擬した計算モデルを使用した。SCALE システムでは、炉心から径ブランケット領域を 1 次元無限円柱でモデル化した。特に、外側炉心第二層の燃料集合体と径ブランケット第一層に装荷する LLFP ターゲット集合体については、ラップ管とピン列を円環でモデル化することにより、ピン形状の非均質性を考慮することにした。

1) ^{79}Se 、 ^{99}Tc 、 ^{107}Pd 、 ^{129}I の高核変換率の検討【H30】

^{79}Se 、 ^{99}Tc 、 ^{107}Pd 、 ^{129}I の 4 核種について、径ブランケット第 1 層にターゲット集合体を単独装荷する。Tc、Pd は金属形態、Se、I は化合物形態 (ZnSe 、 BaI_2) で減速材と均質に混合して、ターゲットピンに装荷する。ターゲット集合体の形状、材質は、ブランケット燃料集合体のそれと同一とする。減速材の材質を、水素化イットリウム (YH_2)、重水素化イットリウム (YD_2) の二種類について、減速材体積比をパラメータとして、核変換率、サポートファクター、および、出力ピーキング（外側炉心燃料第二層の集合体内の最大出力ピンと平均出力ピンとの比）について SCALE システムを用いて解析を行った。[3.3-3] その結果を、図 3.3.1-4 から図 3.3.1-11 に示す。減速材体積比を高めることにより、減速材材質によらず、高い核変換率を得ることが分かった。一方、サポートファクターは YH_2 については、上に凸の分布となり、体積比 30% から 60% に最大となることが分かった。 YD_2 については、体積比 0% から 40% で最大となるが、その範囲での変化は小さいことが分かった。出力ピーキングは、減速材比率とともに大きくなり、体積比 80% から急に立ち上がる傾向にあることが分かった。なお、出力ピーキングは従来炉心では 1.25 程度であり、2 を超えると最大線出力制限を超える可能性が高い。例えば、燃料ペレットを従来の低密度中空ペレットからより高い線出力が許容できる高密度中空ペレットに取り換えたとしても、出力ピーキングは 1.6 程度に抑える必要がある。なお、SCALE システムは 1 次元モデルのため、3 次元効果を考慮して制限値を定めた。

パラメータサーベイから得られた結果に基づいて、サポートファクター $\text{SF} > 1$ の条件の下で、高核変換率の目標として 8~10(%/年)程度となる減速材材質と体積比を核種毎に選定する。

^{79}Se については、 YH_2 、 YD_2 、いずれも核変換率が目標の 10(%/年)程度となる減速材体積比はあるが、出力ピーキングの観点から、 YD_2 体積比 90% を選択する。この仕様で、サポートファクターは 30 程度であり、 $\text{SF} > 1$ を満足する。

^{99}Tc について、核変換率が目標の 10(%/年)程度となる、減速材材質、体積比は YH_2 体積比 90% である。この仕様で、サポートファクターは 5 程度であり、 $\text{SF} > 1$ を満足する。一方、出力ピーキングは、1.8 程度であり、高密度中空ペレットを採用したとしても、最大線出力制限を満足し

ない可能性がある。

^{107}Pd について、核変換率が目標の 10(%/年)程度となる、減速材材質、体積比は YH_2 体積比 90% であるが、出力ピーキングの観点から、 YD_2 の体積比 90%を選択する。この仕様で、サポートファクターは 5 程度であり、 $\text{SF}>1$ を満足する。

^{129}I について、核変換率が目標の 10(%/年)程度となる、減速材材質、体積比は YH_2 体積比 90% である。この仕様で、サポートファクターは 8 程度であり、 $\text{SF}>1$ を満足する。一方、出力ピーキングは、2 を大きく超えており、高密度中空ペレットを採用したとしても、最大線出力制限を満足しない可能性がある。

以上から、 ^{99}Tc と ^{129}I については、出力ピーキングを抑制する必要があることが分かったため、その対策を検討した。

減速材材質として YH_2 を使用した場合、減速能が高いため、減速して発生した多量の熱中性子が炉心側に漏洩していき、燃料核種の熱群の核分裂断面積が大きいため、燃料集合体内で出力のピークが生じるためである。そこで、発生する熱中性子の量を制御するため、減速能の低い YD_2 を混合させる方策と、発生した熱中性子を炉心側に漏洩させないために、熱中性子フィルターを設置する方策の二つを検討した。

^{99}Tc については、減速材の材質を YH_2 と YD_2 を混合する方策をとった。図 3.3.1-12 により、減速材中の H 比率と核変換率(%/年)、出力ピーキング (PK) との関係を示す。この図より、出力ピーキングを 1.6 程度のとき H 比率は 60%であり、その時の核変換率は 8.5(%/年)程度であり、目標を満足する。また、図 3.3.1-13 により、上記仕様において、サポートファクターは 4.5 程度であり、 $\text{SF}>1$ を満足する。

^{129}I については、熱中性子フィルターを設置する方策をとった。熱中性子フィルターとしては、LLFP ターゲット集合体の I ターゲットピンを Tc に置換することとした。計算モデルの図 3.3.1-3 において、第 1 列と第 7 列のピンを LLFP ターゲットピンから Tc ピンに置換し、その体積比をパラメータとして解析を行った。Tc ピンの体積比率と核変換率(%/年)、出力ピーキング (PK) との関係を図 3.3.1-14 に示す。この図より、出力ピーキングを 1.6 程度のとき Tc ピンの体積比率は 70%であり、その時の核変換率は 9(%/年)程度であり、目標を満足する。また、図 3.3.1-15 により、上記仕様において、サポートファクターは 3 以上であり、 $\text{SF}>1$ を満足する。

2) ^{93}Zr の高転換率の検討

^{93}Zr について、径ブランケット第 1 層にターゲット集合体を装荷する。Zr は金属形態で減速材と均質に混合して、ターゲットピンに装荷する。ターゲット集合体の形状、材質は、ブランケット燃料集合体のそれと同一とする。減速材の材質を、水素化イットリウム (YH_2)、重水素化イットリウム (YD_2) の二種類について、減速材体積比をパラメータとして、核変換率、サポートファクター (SF)、および、出力ピーキング (外側炉心燃料第二層の集合体内の最大出力ピンと平均出力ピンとの比) について SCALE システムを用いて解析を行った。その結果を、図 3.3.1-16 に示す。この図より、SF が 0.5 程度であり、径ブランケット第 2 層まで装荷すれば、 $\text{SF}>1$ を満足することが分かった。また、核変換率と SF との関係で、 YH_2 と YD_2 は優劣付け難いことが分かった。第 1 層と 2 層に減速材体積比率を同じにして MVP コードにて詳細計算を行った。その結果を図 3.3.1-17、図 3.3.1-18 に示す。これらの図より、 $\text{SF}\approx 1$ での核変換率(%/年)は、 YD_2 体積比 40%

で 0.9、 YH_2 体積比 40%で 0.9 とほぼ同じ結果が得られた。これは、3.3.(3)項の LLFP を 6 核種同時に 1 炉心に装荷における $\text{SF} \approx 1$ の場合の核変換率(0.43(%/年))のほぼ倍になった。なお、出力ピーキングの観点から、 YD_2 体積比 40%を選定する。

3) ^{135}Cs の高転換率の検討

^{135}Cs について、径ブランケット第 1 層(RB1)にターゲット集合体を装荷する。Cs は化合物形態(Cs_2CO_3)で減速材と均質に混合して、ターゲットピンに装荷する。ターゲット集合体の形状、材質は、ブランケット燃料集合体のそれと同一とする。減速材の材質を、水素化イットリウム(YH_2)、重水素化イットリウム(YD_2)の二種類について、減速材体積比をパラメータとして、核変換率、サポートファクター(SF)、および、出力ピーキング(外側炉心燃料第 2 層の集合体内の最大出力ピンと平均出力ピンとの比)について SCALE システムを用いて解析を行った。 ^{135}Cs の核変換率の評価には、 $^{133}\text{Cs} \rightarrow ^{134}\text{Cs} \rightarrow ^{135}\text{Cs}$ の生成を考慮した。その結果を、図 3.3.1-19 に示す。この図より、核変換率と SF は減速材体積比 60%までは YH_2 と YD_2 の差は殆どないこと、SF は減速材体積比 60%から急に小さくなること、出力ピーキングの観点から YD_2 が有利なことが分かった。

3.3.1(3)項での結果より、径ブランケット第 1、2、3 層の炉心高さ部に YD_2 体積比 30%/20%/10%、軸ブランケット高さ部には減速材なし(以下、RB1/2/3(炉心部)= $\text{YD}30/20/10$ 、RB1/2/3(軸ブラ高さ部)= $\text{YD}00$)で $\text{SF}=1$ を達成することが分かっており、 YD_2 は減速材体積比 60%($\text{YD}60$)まで SF はほとんど低下しないため、高核変換率を得るため、径ブランケット第 1 層は $\text{YD}60$ のままにする。さらに、核変換率を高めるため、できるだけ減速材比率を上げるようにする。すなわち、第 2 層以降を $\text{YD}30$ 、軸ブランケット高さ部にも同じ比率の減速材を装荷する。 $\text{YD}30/20/10$ を $\text{YD}60/30/30$ とした場合、SF は余裕があるので、核変換率のさらなる高みを目指し、かつ、SF をできるだけ損なわないとの考えで、第 2 層の減速材比率を $\text{YD}60$ にした。それらの結果の比較を図 3.3.1-20 に示す。この時点で、ほぼ $\text{SF}=1$ になった。核変換率は 1.1 (%/年)となった。

4) まとめ

LLFP1 核種単独装荷の場合、高核変換特性を持つ核変換ターゲット集合体の配置、交換法を核種毎に表 3.3.1-1、表 3.3.1-2 にまとめた。

^{79}Se については、隣接燃料集合体の出力ピーキングの観点から、 YD_2 体積比 90%を選択することにより、 $\text{SF}>1$ で核変換率が 11.5(%/年)となり、高核変換率の目標を達成することが分かった。

^{99}Tc については、出力ピーキングを抑制するために、減速材の材質を YH_2 と YD_2 を混合する方策をとった。減速材体積比 90%で、減速材中の H 比率を 60%にすることにより、 $\text{SF}>1$ で核変換率が 8.6 (%/年)となり、高核変換率の目標を達成することが分かった。

^{107}Pd について、出力ピーキングの観点から、 YD_2 体積比 90%を選択することにより、 $\text{SF}>1$ で核変換率が 10.2 (%/年)となり、高核変換率の目標を達成することが分かった。

^{129}I については、出力ピーキングを抑制するために、熱中性子フィルターを設置する方策をとった。熱中性子フィルターとして LLFP ターゲット集合体の第 1 列と第 7 列の I ターゲットピンを Tc に置換することとした。この Tc ピンの体積比 70%にすることにより、 $\text{SF}>1$ で核変換率が 9.0 (%/年)となり高核変換率の目標を達成することが分かった。

^{93}Zr については、核変換率を高める方策として、径ブランケット第 1、2 層に YD_2 体積比 40%/40%のターゲット集合体を装荷することにより、 $\text{SF}>1$ で核変換率が 0.9(%/年)となり、3.3.1(3)項の 6LLFP 同時装荷で $\text{SF}\approx 1$ の場合の核変換率(0.43(%/年))のほぼ倍の高い変換率を得ることができた。

^{135}Cs については、核変換率を高める方策として、径ブランケット第 1、2、3 層に YD_2 体積比 60%/60%/30%のターゲット集合体を装荷することにより、 $\text{SF}>1$ で核変換率が 1.1%/年となり、3.3.1(3)項の 6LLFP 同時装荷で $\text{SF}\approx 1$ の場合の核変換率(0.43(%/年))のほぼ倍の高い変換率を得ることができた。

(2) LLFP を 4 核種同時に 1 炉心に装荷したケース【H29】

高速炉(原型炉)を想定し、 ^{79}Se 、 ^{99}Tc 、 ^{107}Pd 、 ^{129}I の 4 核種のターゲットピンを一つのターゲット集合体に装荷し、そのターゲット集合体を径ブランケット第 1 層に装荷した場合に $\text{SF}>1$ の条件の下で、高核変換率の目標として 8~10(%/年)程度となるターゲットピンの配置を検討した。ターゲットピンの減速材体積比は 90%と設定する。減速材材質として水素化イットリウム(YH_2)または重水素化イットリウム(YD_2)とした場合の炉心核特性解析を MVP コードを用いて実施した。ターゲット集合体の核種ピン配置を図 3.3.1-21 に示す。61 本のターゲットピン本数の核種割り振りは、3.3.1(1)項のサポートファクターの結果を基に設定した。また、できるだけ対称性を持たせるように配置した。

ピン内訳は表 3.3.1-3 であり 4 核種で $\text{SF}>1$ であるものを達成した。しかしながら、隣接燃料集合体のピーキングを図 3.3.1-22 に示すようにピーキングが 2 と高い為、中空ペレットを採用してスミアをレファレンスの 1/2 に下げることで、出力を 1/2 とすることで出力を下げる事ができた。

なお本集合体は、1 集合体にブランケット第 1 層に 4 種類の LLFP を入れて $\text{SF}>1$ とできることを示すことができた。但し、同一集合体に 4 種類の LLFP を入れることは LLFP の元素での再処理が困難な、Pd、Se と核変換生成元素を元素分離できる I、Tc を装荷したピンを同一の集合体に装荷することとなり、LLFP の再処理上再度分離をしないといけなくなることおよび、隣接燃料のピーキングが発生し、外側燃料のピンの仕様を変更することが必要となることから、3.3.1(4)項以降で示すように、別集合体とすることで検討を進めることとした。

(3) LLFP を 6 核種同時に 1 炉心に装荷したケース【H29】

LLFP を装荷する領域を軸ブランケット領域まで拡大した核変換ターゲット集合体の配置、交換法について検討する。すなわち、軸方向ブランケット領域および径方向ブランケット、径方向遮へい体を LLFP に変えての装荷方法を検討した。[3.3-4]

軸方向ブランケット領域に配置する LLFP は、接する炉心燃料の発熱で温度が高くなるため、熱的制限が厳しい Cs、I は除外した。また、減速材も解離温度が比較的低いため混合しないこととした。

径方向ブランケット、径方向遮へい体領域に配置する LLFP は、3.3.1(1)①項の検討結果から Cs を第 1 層から第 4 層まで装荷し、その後ろに I を装荷した。なお、第 4 層の Cs については、炉心高さ領域まで装荷した。なお、解析条件では Cs の組成を 20 年冷却の組成とした。

配置においては以下の考え方とした。

- ・下部遮へい体は炉心支持板の高速中性子照射量を低減させる機能があるため、高い吸収性能が要求される。このため、上記 3 元素のうち密度が最も高い Pd を配置する。さらに、下部遮へい体体積割合を高め 50%とした。
- ・Tc と Se は燃料ピン内のガスプレナムの中に配置する。
- ・Se はサポートファクターに余裕があるため、Tc の外側に配置する。

これにより配置検討の結果、6 核種の装荷方法として、図 3.3.1-23 に炉心配置図、図 3.3.1-24 に各領域の LLFP の装荷集合体となる配置を選定した。表 3.3.1-4 に炉心の核変換率と SF を示す。この結果は実効半減期を示すが自然半減期と比較して非常に短縮されていることが示されている。また本炉心の実効増倍率と増殖比を表 3.3.1-5 に示す。ブランケットを削除しているため、増殖比は 0.55 程度と下がっている。

炉心の出力分布（炉心部分）をブランケット有と比較したものを図 3.3.1-25 に示す。[3.3-4]

出力分布は YD_2 を用いたためにブランケット有炉心と殆ど同じで本配置は熱的には影響は小さいことが示されている。また表 3.3.1-6 にボイド反応度とドップラー係数をブランケット有炉心と比較し結果を示す。ブランケット有炉心と安全上重要な反応度特性は殆ど変わらないことが示された。また図 3.3.1-24 に示す燃料集合体では、ガスプレナム長が Tc の装荷のために減少しているが、本炉心は 492 日炉心の為、クリープ損傷に余裕があり燃料健全性上の問題はない。

以上より、6 核種の LLFP に対して、実効半減時間を自然半減時間より大幅に短縮し $SF > 1$ である核変換システムを構築できた。

(4) LLFP6 核種を装荷した 3 つの炉心を組み合わせた核変換システム【R1】

3.3.1(3)項の 6 核種装荷の配置は全ての核種で $SF > 1$ を達成したものの、核変換率が低い Cs、Zr を径ブランケット領域に置き核変換率が高くできる I、Tc 等については遮蔽体領域や、軸方向ブランケットの外側に設置した。そのため、表 3.3.1-4 に示すように全核種の核変換率が 0.5%/年を下回る結果となった。LLFP を照射後に再処理を行うことを考慮すると、低核変換率では $SF > 1$ とする為に炉心に大量の LLFP を装荷することとなり、それにより再処理量も増加するので、再処理でのロス量も大きくなる。この為、3.3.1(1)②項で検討した、高核変換率の検討結果の成果を反映して核変換率が大きくかつ 6 核種が全て $SF > 1$ となるシステムを構築することとした。

この 6 核種 (^{129}I 、 ^{99}Tc 、 ^{79}Se 、 ^{107}Pd 、 ^{93}Zr 、 ^{135}Cs) のシステム構築において、 ^{129}I と ^{99}Tc はそれぞれ核変換で ^{130}Xe 、 ^{100}Ru に核変換して元素分離により除去できる。 ^{107}Pd と ^{79}Se は核変換により高次の同位体になるため元素分離では核変換生成物を取り除けないため、元素分離による再処理は行わないこととなる。

この元素の取り扱いの差を考慮して、3 基の高速炉を 1 つのシステムとして設定し、核変換率が高くできる径ブランケット第 1 層に、炉心 A : Cs もしくは Zr、炉心 B : I および Tc、炉心 C : Pd と Se を配置することとして LLFP の配置を単純化したシステムを設定して検討を行った。なおそれぞれの核種の SF は 3 炉心で 1 システムである為、各々の核種で $SF > 3$ を目指すこととする。なお、炉心体系は 3.3.1(1)項での原型炉と同じとした。

① LLFP 配置検討

3 炉心での各炉の最適化を行う。3.3.1(3)および3.3.1(1)②項の検討結果から、径ブランケット第1層に、炉心 A は Zr+YD30%、炉心 B は Tc70%、I20%YH80%、炉心 C は、Pd40%YD60%を 48 体、Se40%YD60%組成の集合体を 6 体装荷した。また Cs については SF>3 とするにはできるだけ装荷量を増やすことが必要であることから、炉心 A-炉心 C で径ブランケット第 2 層から遮蔽体第 4 層までに装荷した。なお、ペレット密度は BaI₂ の密度は 3.3(1)と同じく 80%と、Pd、Tc、Zr、ZnSe、Cs₂CO₃は 100%とした。

炉心 B の I と Tc の集合体は、I の核変換を高くするため YH₂を減速材に用いることから隣接の外側燃料集合体の出力ピーキングを高くしないため Tc を集合体の集合体の周辺ピンに配置して YH₂により減速された中性子を吸収させる構造を採用した。

図 3.3.1-26 にその配置と、その核変換率の結果を表 3.3.1-7 に示す。本結果は、¹²⁹I の SF は 3 を切っている。また、Se は、過去の検討から想定される SF に比較して、ZnSe の体積比を 40%としているのにも関わらず、SF=3.2 と低い値となっている。また Cs についても SF は 3 以下となっている。この配置案に対し、まず炉心 B、炉心 C に対して、それぞれの炉心で径ブランケットに装荷された元素の SF が 3 を超えるように調整を行い、その炉心 B と炉心 C および炉心 A の Cs と Zr について 3 炉心での配置を調整することにより 6 核種で SF>3 となる組み合わせを検討する。

1) 炉心 B における ¹²⁹I と ⁹⁹Tc の調整

炉心 B では、SF は ⁹⁹Tc では超えたが、¹²⁹I では超えていない。これは、I20%YH80%と減速材の比率が高いためである。これに対し減速材比を下げる（I の比率を上げる）サーベイを行う。

BaI₂ピンの BaI₂比率を 10%から 40%まで変化させた場合の、炉心 B の ¹²⁹I と ⁹⁹Tc の核変換率と SF を表 3.3.1-8 と図 3.3.1-27 に示す。これによると I40%YH60%でほぼ SF=3 となり、Tc も SF>3 となった。さらに ¹²⁹I の SF に余裕を持たせるために、BaI₂の焼結密度を 80%としていたが、焼結密度を上昇可能との「3.8 核変換ターゲットの製造」での検討に基づき 95%まで上昇させた結果を同じく表 3.3.1-8 と図 3.3.1-27 に示した。SF=3.25 となったことより炉心 B については本配置を採用することとした。

2) 炉心 C における ⁷⁹Se と ¹⁰⁷Pd の調整

炉心 C については、Pd、Se とも SF>3 となっている。しかしながら、Se については、3.3.1(1)②項でのサーベイから見た場合の核変換率 7.8%に対し、1.9%と低い。この理由は、まずコーナ一部は中性子束が平均に対して 70%程度となっていることおよび、Pd と Se を混在させたために、スペクトルが固くなったことが原因である。このため、中性子束の高い六角の辺の中心近傍に装荷位置を移動させることで、核変換率は 3.22%に上昇した。これより SF も 6 程度とすることができる見通しとなった。

3) 炉心 A、炉心 B、炉心 C での ⁹³Zr と ¹³⁵Cs の調整

炉心 B と炉心 C では、いずれも SF>3 となるので、配置案としては図 3.3.1-28 の炉心 B、と炉心 C となる。これに対して、炉心 A、炉心 B、炉心 C の Zr と Cs の調整を行う。

なお Zr については燃料の上下に Zr の金属ペレット、径ブランケット第 1 層には、減速材 YD₂ との混合体のペレット状態で装荷することとした。この案を炉心案 2 とし、その時の、炉心 A から炉心 C の変換率と SF を表 3.3.1-9 に示す。これにより 3 炉心システムでは ¹³⁵Cs 以外は SF>3 が達成された。これに対して、以下の対応を行った。

a) Cs の SF の増加方策

SF の増加には装荷量を増加させることが有効と考えられる。これより、ピン径を増加させて装荷量を増やすことと、20 年冷却の組成を用いていたが、100 年冷却することで図 3.3.1-29 に示すように、¹³⁷Cs を減衰させて ¹³⁵Cs の比率を増加させることを検討した。その検討した結果を表 3.3.1-10 に示す。装荷量の増加比率 1.5 倍に対して SF の増加は 1.11 と小さい。その理由は、核変換率が 0.85 倍に低下しているためである。この効果は、Cs の捕獲断面積が Cs の量の増加で大きくなり自己遮へいが大きくなったためである。

これより、Cs の量的増加効果では、SF は $2.36 \times 1.11 = 2.64$ 程度にしか到達しない。

ここで、SF について、径方向ブランケットと下部軸ブランケットに Cs 装荷した場合と Zr を装荷した場合のおよその SF の数値を表 3.3.1-11 に示す。これより、Cs の SF>3 とするには、径方向ブランケットの Zr を Cs に置き換えることが必要である。

その場合に、Zr は SF が 0.6 程度低下することから、Zr の SF を増加する対策が必要である。なお、ブランケット第 1 層に装荷する Cs については第 1 層 Cs70%YD30%と減速材と混合するか第 1 層を Cs100%とするかを検討した。この結果は、表 3.3.1-12 に示す。1 層目に減速材をいれた方が若干 Cs の SF が大きくなるので 1 層目には 30%の YD₂ を装荷することとした。なお、表 3.3.1-13 に示すように核変換率は減速材をいれると高くなるが、装荷量は 70%となるので、核変換率×装荷量の結果の SF としてはあまり大きくない。また図 3.3.1-30 に示すように、中性子束は減速材をいれないほうが遮蔽体領域では高くなっており、全体としては、表 3.3.1-12 に示すように 3%以下しか SF は増加していない。しかしながら若干でも SF を増加させることができるので、減速材を装荷することとした。

b) Zr の増加方策の検討

下部軸ブランケットの Zr については炉心からの中性子束を集合体横断面で受ける為、断面体積比を増加させると体積比に比例して、SF は増加すると推定される。

これについて評価した結果を図 3.3.1-31 に示す。体積比にほぼ比例して増加している。これは、炉心下部の体積比を Cs 装荷ピンと同じ 61 本で 12.15mm 相当とすると、SF>1 となることが示されている。この構造を 3 炉心ともに適用すると Zr も SF>3 になると考えられた。なお、下部軸ブランケット部の Zr については高体積比とするために図 3.3.1-32 に示すセパレートピン型を採用することとした。

本対策を適用した配置案を図 3.3.1-33 に示す。表 3.3.1-14 に本対策を適用して評価した結果を示す。6 核種で全て SF>3 を達成している。

c) 炉心特性の確認

炉心特性について、炉心 A、炉心 B、炉心 C の増殖比は表 3.3.1-15 に示す。増殖比はブランケットを全て LLFP としているために増殖比は 0.6 以下となっている。

また出力分布は炉心 B の LLFP 隣接の外側炉心の燃料集合体の出力ピーキングについて評価結果を表 3.3.1-16 に示す。径ブランケット有炉心より若干小さくなっており、外側炉心のピーキングは抑えられていることが分かる。また、減速材が、 YD_2 の場合は、ピーキングは径ブランケット有と同程度であるので、この炉心システムでは流量配分への影響は小さいと考えられる。

また表 3.3.1-17、図 3.3.1-34 に炉心部軸方向平均中性子束分布を示す。炉心 A はほぼ線形に落ちているが、炉心 B、炉心 C では径方向ブランケットに装荷した I+Tc、Pd、Se の吸収が大きいので、Cs に比較して第 1 層で低下しその外側集合体は Cs であるのでほぼ線形に落ちていることが分かる。

②まとめ

LLFP6 核種の LLFP の再処理での扱いの差を考慮して 3 つの炉心を組み合わせた核変換システムを提案した。6 核種を同時に 1 炉心に装荷した場合に比較して、核変換率が高く、実効半減期を低くすることができた。LLFP6 核種の装荷配置法を検討した結果、6 核種全てで、 $SF>3$ とすることができ、隣接燃料集合体の出力ピーキングも低く抑えることができた。

炉心の設定手順は、I、Tc、Pd、Se を炉心 B と炉心 C それぞれのブランケット第一層のみに装荷し $SF>3$ を確保する。炉心 A、B、C のブランケット第二層から径方向遮蔽体領域と炉心 A のブランケット第一層には Cs を装荷する。3 炉心の上下軸方向ブランケット領域には Zr を設置する。Zr の SF を確保する為に下部軸ブランケット領域を太径にして $SF>3$ とできる装荷量を確保し、6 核種で $SF>3$ の 3 炉心システムを設定した。

なお、本結果から核変換率が低い Cs と Zr を削除した場合には、2 つの炉心で径ブランケット第一層だけで装荷 LLFP の SF を 3 以上とできる。その場合、ブランケット燃料を装荷できるため、LLFP を消滅しつつ、増殖比を 1 にできる炉心組を得ることができる可能性がある。次項以降にその検討を示す。

(5) LLFP4 核種を装荷した 2 つの炉心を組み合わせた核変換システム

4 核種 ^{129}I 、 ^{99}Tc 、 ^{79}Se 、 ^{107}Pd はブランケット第 1 層に装荷することで、核変換率と SF を大きな炉心を得ることができる。システムの配置を図 3.3.1-35 に示す。また核変換特性と SF を表 3.3.1-18 に示す。本システムで発生する LLFP は 2 基分であるので $SF>2$ でシステム発生分は核変換可能であるが、 $SF>3$ と余裕があることから例えば軽水炉からの LLFP を装荷して核変換を行うことができる。

また元素分離できない Se と Pd は可能な限り長期に炉内で照射して ^{79}Se と ^{107}Pd の装荷量に対する取り出したときの残留率を減らすことが必要になる。この場合、照射期間中に同位体元素比は低下するため照射期間中の総核変換量とその期間中のシステムで発生する同位体量が同一となる状態 ($SF=2$ の状態) で取り出すことでシステムの発生した Se、Pd を全量核変換した状態での残留率を確認した。 $SF=2$ となる照射年数は ^{79}Se では 96 年、 ^{107}Pd では 49 年となる。その場合の、残留量/装荷量比は ^{79}Se で 5%、 ^{107}Pd で 29%となる。なお炉心 B、炉心 C は、第 1 層に LLFP を配置する以外はブランケット燃料を配置することで増殖比を 0.85~0.95 に上昇可能である。2 つの炉心の増殖比は表 3.3.1-19 に示す。増殖比 1.2 程度のブランケット有炉心と組み合わせることでシステムとしては増殖比を約 1 とすることが可能である。この 3 基組と

すると Pu 供給の面で持続可能なシステムとなるが、3 基炉心の場合 SF>3 が目標となり特に ^{107}Pd の残留量/装荷量比は約 80% (10 年照射) と高くなる。

(6) LLFP3 核種を装荷した 2 つの炉心を組み合わせた核変換システム

図 3.3.1-36 に示すように地層処分においては、 ^{129}I と ^{79}Se が長期間で被ばく量の主たる核種である。[3.3-5]この 2 核種を処理し、さらに増殖炉と組み合わせることで、システムとして、増殖比 1 とした持続可能な LLFP 処理システムを設定した。Se、I を SF>3 で処理できるシステムとしては炉心 B と炉心 C の経験から Se40%YD60%の集合体を 4 体装荷するものとした。図 3.3.1-37 にシステム構成を示す。増殖比は 0.83 あることから増殖比約 1.2 のブランケット有炉心と組み合わせることで、増殖比 1.03 となり Pu の供給と Se、I の核変換できる持続可能な 2 基システムとすることができる。なお Tc70%+I40%YH60%集合体を用いるのは LLFP 集合体の隣接外側炉心燃料集合体の出力ピーキングを抑えるためであり、本炉心は実質的に Tc、I、Se の 3 つの核種を核変換できるシステムである。なお SF と核変換率は表 3.3.1-20 に示す。この炉心では ^{79}Se の SF は 3.52 である。これでは SF=2 とできる照射期間での残留率は 27%である。ここで、 ^{79}Se の残留率を低減させるために Se 集合体の装荷量を 4 体から 6 体に増加させた場合の配置を図 3.3.1-38 に示す。また Se 集合体の追加の 2 体は六角集合体の設置していなかった辺に装荷するため、核変換率はほぼ同一で SF は集合体体数比で上昇すると考えられることから表 3.3.1-21 に示すように SF=5.27 になると推定される。その場合には、Se の SF=2 となる照射期間は 54 年で残留率は約 8% (核変換率 92%) となる。

(7) まとめ

3.3 のまとめを以下に示す。

- LLFP を 1 核種ずつ単独で装荷して検討した結果、Cs、Zr のサポートファクター (SF) を 1 以上にするには径ブランケットおよび遮蔽体を殆ど占める程度の量を装荷が必要である。
- 減速材 YH₂ と YD₂ は、ブランケット第 1 層目に装荷する場合は、I は YH₂ を用いることで SF は上昇するが、径ブランケットから遮蔽体に装荷した場合 YD₂ の方が YH₂ に比較して変換率が上昇する。
- 径ブランケット第 1 層に装荷して、高核変換率を狙ったサーベイでは、I は減速材に YH₂ を用い、集合体の外周部に Tc ピンを配置することで隣接外側炉心の出力ピーキングを抑え、高核変換率を得ることができる。
- 6 核種を 1 炉心に装荷する配置方法を検討し、Cs、Zr を径方向ブランケットから遮蔽体領域内側に装荷し、その外側に I と上/下部軸ブランケットに Pd、Se、Tc を装荷することで 6 核種を全て SF>1 とすることができた。但し本配置はいずれの核種も核変換率が低いため装荷量は多くなった。
- LLFP の元素分離での再処理の適合性の点で I、Tc、Se、Pd を別に扱うことを考えて 3 炉心を組み合わせた 6 核種核変換システムを検討した。その結果は以下となった。
 - 6 核種全て SF>3 となるシステムを構築でき、かつ I、Tc、Se、Pd は 3%程度の高い核変換率とすることができた。これにより I、Tc 等の再処理でのロス量を低く抑えることができる。
 - 6 核種の 3 基炉心組から Cs と Zr を除く 4 核種とすると増殖比を 1 とした持続性のある 3 基組

での高速炉システムを構築することができた。

- 4 核種装荷した 2 炉心の組み合わせはブランケット第 1 層に装荷することで、核変換率と SF を大きな炉心を得ることができるため、軽水炉からの LLFP を装荷して核変換を行うことができる。元素分離できない Pd、Se についても SF に余裕があるので、SF=2 となる照射期間では残留率は Se で 5%、Pd で 29%となる。
- I と Se は地層処分での被ばくの支配核種であることを鑑み、Pd を除く I、Tc、Se の 3 核種に対し 1 炉心で 3 核種それぞれ SF>3 となる炉心を設定した。本炉心にブランケット有炉心と組み合わせ 2 基組で増殖比を 1 とできる持続性のある核変換システムを構築できた。また元素分離できない Se に対しても、装荷体数を 4 体から 6 体に増やすことで装荷量の 92%を核変換可能である。

参考文献

- [3.3-1] Y. Nagaya et al. : JAERI 1348 (2005).
- [3.3-2] Scale: A Comprehensive Modeling and Simulation Suite for Nuclear Safety Analysis and Design, ORNL/TM-2005/39, Version 6.1 (June 2011).
- [3.3-3] T. Wakabayashi et. Al. “Study on method to achieve high transmutation of LLFP using fast reactor” , Scientific Reports 9, 19156(2019)
- [3.3-4] T. Wakabayasi et. al. “Core concept of simulataneous transmutation of six LLFP nuclides using fast reactor” , Nucl. Engi. Design 352,110208(2019). (CN=1)
- [3.3-5] https://www.numo.or.jp/press/houkatsutekigi_jutsuhoukokusho_setsumeiyou.pdf

表 3.3.1-1 高核変換特性を持つ核変換ターゲット集合体の配置、交換法

LLFP	装荷位置	減速材材質	減速材割合(%)	備考
⁷⁹ Se	径ブランケット第1層(炉心高さ部)	YD ₂	90	
⁹⁹ Tc	径ブランケット第1層(炉心高さ部)	YH ₂ /YD ₂	90	HとDとの混合
¹⁰⁷ Pd	径ブランケット第1層(炉心高さ部)	YD ₂	90	
¹²⁹ I	径ブランケット第1層(炉心高さ部)	YH ₂	90	Tcピン設置
⁹³ Zr	径ブランケット第1/2層(炉心高さ部)	YD ₂	40/40	
¹³⁵ Cs	径ブランケット第1/2/3層	YD ₂	60/60/30	

表 3.3.1-2 核変換特性の比較

LLFP	装荷量(g)	核変換量(g/年)	核変換率(%/年)	SF	備考
⁷⁹ Se	1.05E4	1.09E3	10.4	28.2	MVP
⁹⁹ Tc	2.98E5	2.34E4	7.9	4.3	60%YH ₂ +40%YD ₂ 、MVP
¹⁰⁷ Pd	6.38E4	5.26E3	8.0	1.8	YD ₂ MVP
¹²⁹ I	3.27E4	2.45E3	7.5	1.5	Tcピン体積比=70%、MVP
⁹³ Zr	1.28E+06	1.12E+04	0.9	1.0	MVP
¹³⁵ Cs	1.72E+06	1.88E+04	1.1	1.1	MVP

表 3.3.1-3 速材材質と LLFP 各元素のピンの本数

ピン本数/減速材材質				ピン配置	備考
⁷⁹ Se	⁹⁹ Tc	¹⁰⁷ Pd	¹²⁹ I		
3/YD ₂	12/YH ₂	25/YD ₂	21/YH ₂	図3.3.1-21	最外周の燃料ピンの燃料スミア密度を1/2とした

表 3.3.1-4(1/2) 核変換特性

LLFP	装荷量 (g)	核変換量 (g/年)	核変換率 (%/年)	生成量 (g/年)	SF
⁷⁹ Se	5.08E+05	7.66E+01	0.02%	3.88E+01	1.97
⁹³ Zr	9.14E+05	3.98E+03	0.44%	3.82E+03	1.04
⁹⁹ Tc	4.78E+06	6.02E+03	0.13%	5.42E+03	1.11
¹⁰⁷ Pd	8.24E+06	3.43E+03	0.04%	2.95E+03	1.16
¹²⁹ I	1.97E+06	1.70E+03	0.09%	1.63E+03	1.04
¹³⁵ Cs	2.79E+06	1.20E+04	0.43%	1.05E+04	1.14

表 3.3.1-4(2/2) 核変換特性

LLFP	核変換率 (%/年)	核変換による 実効半減期(年)	物理的半減期 (年)
⁷⁹ Se	0.02%	4,598	295,000
⁹³ Zr	0.44%	159	1,570,000
⁹⁹ Tc	0.13%	550	211,100
¹⁰⁷ Pd	0.04%	1,666	6,500,000
¹²⁹ I	0.09%	803	15,700,000
¹³⁵ Cs	0.43%	161	2,300,000

表 3.3.1-5 主要核特性

臨界性	1.05955
増殖比	0.560

表 3.3.1-6 ボイド反応度とドップラー係数 [3.3-3]

項目	ボイド反応度 ($\Delta k/kk'$)	ドップラー係数 (Tdk/dT)
LLFP 装荷炉心	0.0085	-0.0060
ブランケット有炉心	0.0080	-0.0055

表 3.3.1-7 3基炉心システムの核種毎、炉心毎の核変換率と SF (案1)

反応率(%)

炉心	¹²⁹ I	⁹⁹ Tc	¹⁰⁷ Pd	⁷⁹ Se	⁹³ Zr	¹³⁵ Cs
A					0.48	0.23
B	5.33	2.78			0.51	0.12
C			2.58	1.85	0.48	0.13

SF

炉心	¹²⁹ I	⁹⁹ Tc	¹⁰⁷ Pd	⁷⁹ Se	⁹³ Zr	¹³⁵ Cs
A					1.41	1.14
B	2.11	4.22			0.86	0.58
C			3.58	3.73	0.81	0.64
計	2.11	4.22	3.58	3.73	3.08	2.36

表 3.3.1-8 炉心Bでの I+YH ピンの I の比率と I、Tc の核変換率の関係

組成	¹²⁹ I		⁹⁹ Tc		備考
	核変換率	SF	核変換率	SF	
I10%YH90%	6.37	1.26	2.92	4.43	BaI ₂ ペレット密度 80%
I20%YH80%	5.33	2.11	2.78	4.23	
I30%YH70%	4.48	2.65	2.65	4.03	
I40%YH60%	3.74	2.96	2.52	3.83	
I40%YH60% ペレット密度高	3.57	3.35	2.48	3.79	BaI ₂ ペレット密度 95%

Tc : 18本 スミア密度 70% Cs : 径ブランケット第2層～遮蔽体第4層、

Zr : 炉心上下軸ブランケット

Zr の核変換率と SF : 核変換率 0.51% SF:0.89 で変化なし

Cs の核変換率と SF :

核変換率 0.12%~0.13% SF : 0.55~0.63 で減速材 (YH2) の低下に伴い若干上昇

表 3.3.1-9 3基炉心システムの核種毎、炉心毎の核変換率と SF (案2)

反応率(%)

炉心	^{129}I	^{99}Tc	^{107}Pd	^{79}Se	^{93}Zr	^{135}Cs
A					0.48	0.23
B	3.57	2.48			0.51	0.12
C			2.48	3.22	0.48	0.13

SF

炉心	^{129}I	^{99}Tc	^{107}Pd	^{79}Se	^{93}Zr	^{135}Cs
A					1.41	1.13
B	3.35	3.77			0.87	0.64
C			3.45	6.48	0.83	0.66
計	3.35	3.77	3.45	6.48	3.11	2.43

表 3.3.1-10 ^{135}Cs 同位体の装荷量の増加方策とその SF の増加効果

	レファレンス	ペレット径増加(1)	ペレット径増加 + 100年冷却組成
^{135}Cs SF	1.10	1.17	1.22
SF の比率	1.00	1.06	1.11
^{135}Cs 装荷量	1.00	1.21	$1.21 \times 1.24 = 1.50$

表 3. 3. 1-11 Cs と Zr の SF の特性

	Zr	Cs
下部軸ブランケット	0.6	0.34
第1層径ブランケット	0.6	~0.4

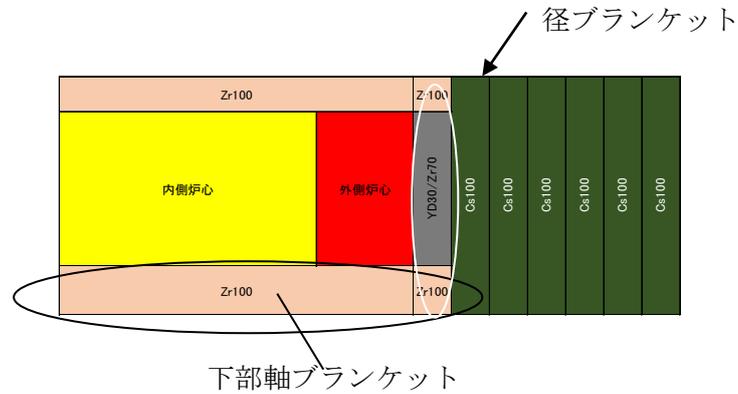


表 3. 3. 1-12 第1層にCs100%とした場合とCs70%YD30%の場合の炉心AのSFと変換率

項目	核変換率 (%)	SF
CS70%YD30%	0.20	1.57
Cs100%	0.19	1.54

表 3. 3. 1-13 第1層にCs100%とした場合とCs70%YD30%の場合の炉心AのSFと変換率
炉心高さ93cm部分、各層の数値

	核変換率 (%)		SF	
	Cs100%	Cs70%YD30%	Cs100%	Cs70%YD30%
RB1	0.61	1.02	0.31	0.36
RB2	0.47	0.56	0.26	0.32
RB3	0.34	0.34	0.19	0.19
TR1	0.22	0.20	0.15	0.14
TR2	0.14	0.12	0.10	0.08
TR3	0.08	0.06	0.06	0.05
TR4	0.04	0.03	0.04	0.03

表 3.3.1-14 3基炉心システムの核種毎、炉心毎の核変換率と SF

反応率(%)

炉心	^{129}I	^{99}Tc	^{107}Pd	^{79}Se	^{93}Zr	^{135}Cs
A					0.46	0.2
B	3.41	2.47			0.47	0.1
C			2.34	2.90	0.48	0.1

SF

炉心	^{129}I	^{99}Tc	^{107}Pd	^{79}Se	^{93}Zr	^{135}Cs
A					1.03	1.62
B	3.20	3.75			1.06	0.74
C			3.25	5.83	1.02	0.74
計	3.20	3.75	3.25	5.83	3.11	3.10

システムの実効半減期 (年)

炉心	^{129}I	^{99}Tc	^{107}Pd	^{79}Se	^{93}Zr	^{135}Cs
A, B, C	20	28	29	24	151	505

表 3.3.1-15 3基炉心システムの炉心毎の増殖比、実効増倍率

炉心	増殖比	K_{eff}	備考
A	0.541	1.095	
B	0.540	1.074	
C	0.545	1.082	

表 3.3.1-16 3基炉心システムの炉心Bの隣接外側燃料の集合体内ピーキング

炉心	隣接燃料ピーキング	備考
B	1.22	ブランケット有炉心 ピーキング~1.25

表 3.3.1-17 3基炉心システムの炉心部軸方向平均中性子束分布

	IC	OC	TRB1	TRB2	TRB3	TRS1	TRS2	TRS3	TRS4
炉心 A	4.13E+15	2.41E+15	1.22E+15	6.69E+14	3.9E+14	2.12E+14	1.13E+14	5.89E+13	2.88E+13
炉心 B	4.34E+15	2.17E+15	7.96E+14	3.83E+14	2.29E+14	1.3E+14	7.24E+13	3.87E+13	1.95E+13
炉心 C	4.3E+15	2.29E+15	9.15E+14	4.61E+14	2.69E+14	1.46E+14	7.87E+13	4.12E+13	1.99E+13

表 3.3.1-18 4核種2基炉心システムの核変換率とSF

炉心	核種	内訳	集合体	核変換率 * (%)	SF*	実効半減期 (年)
B	¹²⁷ I	37 ピン	54	3.57	3.36	19.4
B	⁹⁹ Tc	24 ピン	54	2.48	3.77	27.9
C	¹⁰⁷ Pd	61 ピン	48	2.46	3.42	27.7
C	⁷⁹ Se	61 ピン	6	3.22	6.48	21.5

*) 核変換量とSF数値は、案2の炉心での数値とした。

(ブランケット燃料が第2層に設置されている場合にはCsを装荷するよりは核変換量は大きくなる為)

表 3.3.1-19 増殖比

炉心	増殖比	備考
B	0.85	概略値
C	0.95	

表 3.3.1-20 LLFP3 核種の核変換システムでの核変換率と SF

LLFP	装荷量 (g)	核変換量 (g/年)	核変換率 (%/年)	生成量 (g/年)	SF	実効半減 期 (年)
⁷⁹ Se	3.11E+03	1.39E+02	4.45	3.88E+01	3.52	15
⁹⁹ Tc	7.60E+05	1.92E+04	2.53	5.42E+03	3.56	27
¹²⁹ I	1.44E+05	5.25E+03	3.65	1.63E+03	3.18	19

核特性	値
臨界性	1.06625 $\Delta k/kk'$
増殖比	0.837

表 3.3.1-21 LLFP3 核種の核変換システムでの核変換率と SF (Se 集合体 6 体)

LLFP	装荷量 (g)	核変換量 (g/年)	核変換率 (%/年)	生成量 (g/年)	SF	実効半減 期 (年)
⁷⁹ Se	4.67E+03	2.08E+02	4.45	3.88E+01	5.27	15
⁹⁹ Tc	7.30E+05	1.84E+04	2.53	5.42E+03	3.41	27
¹²⁹ I	1.38E+05	5.04E+03	3.65	1.63E+03	3.06	19

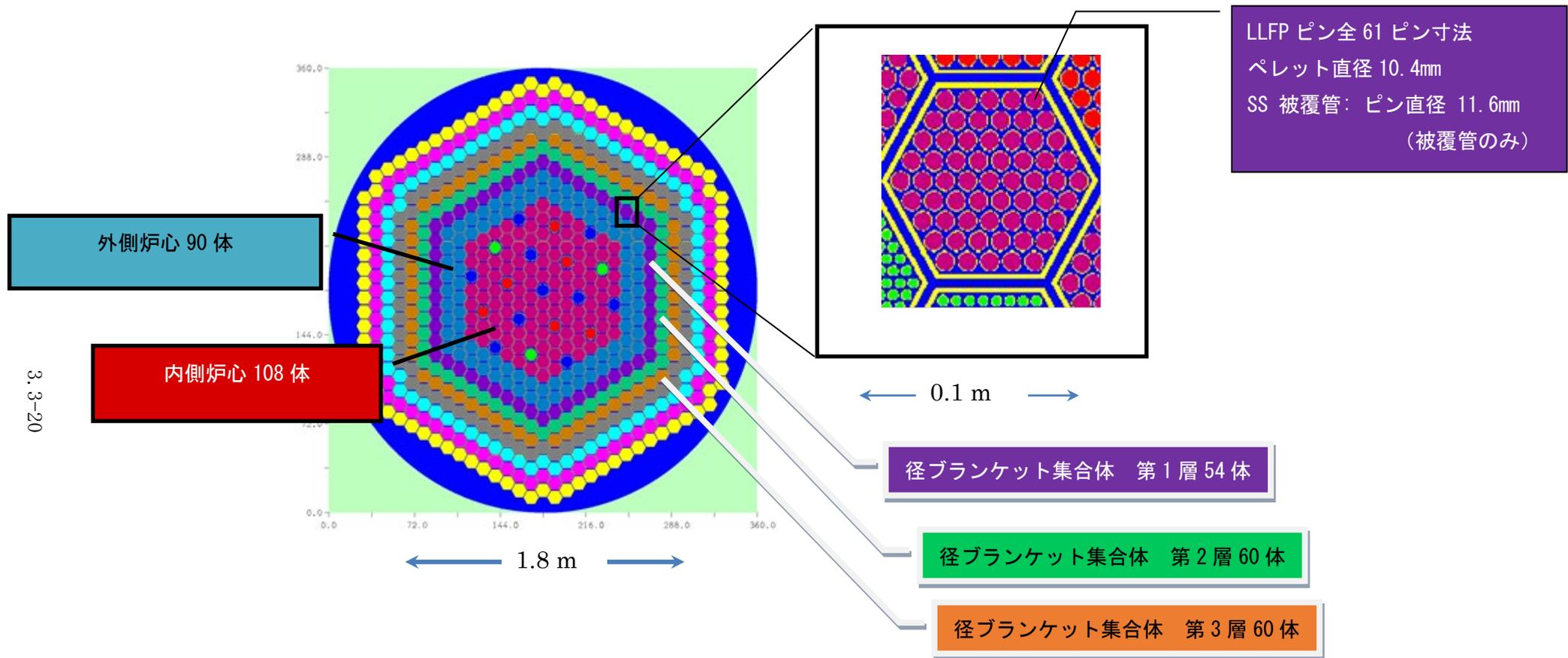


図 3.3.1-1 原型炉サイズの径方向ブランケット領域での MVP 計算モデル

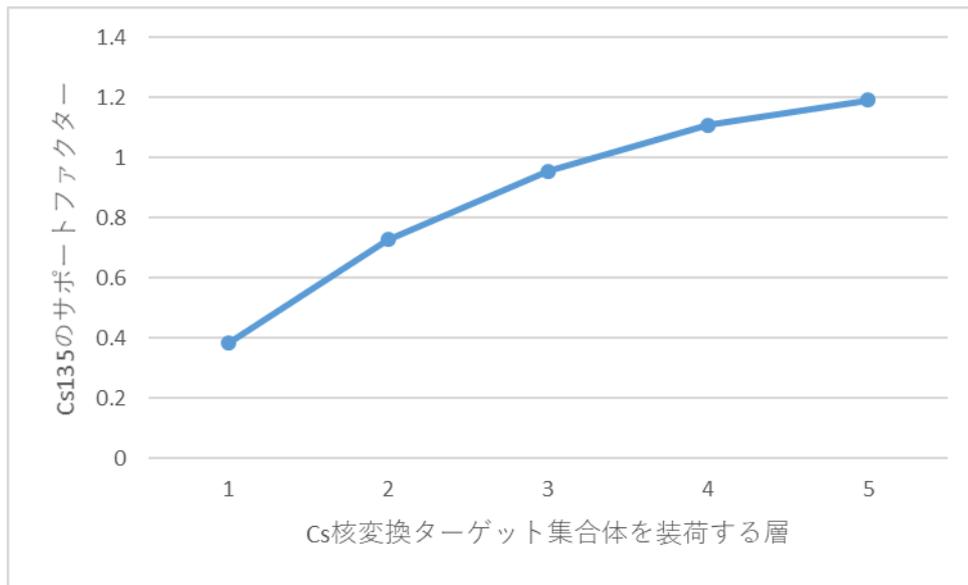


図 3. 3. 1-2 Cs 核変換ターゲット集合体の装荷層と ^{135}Cs の SF の変化

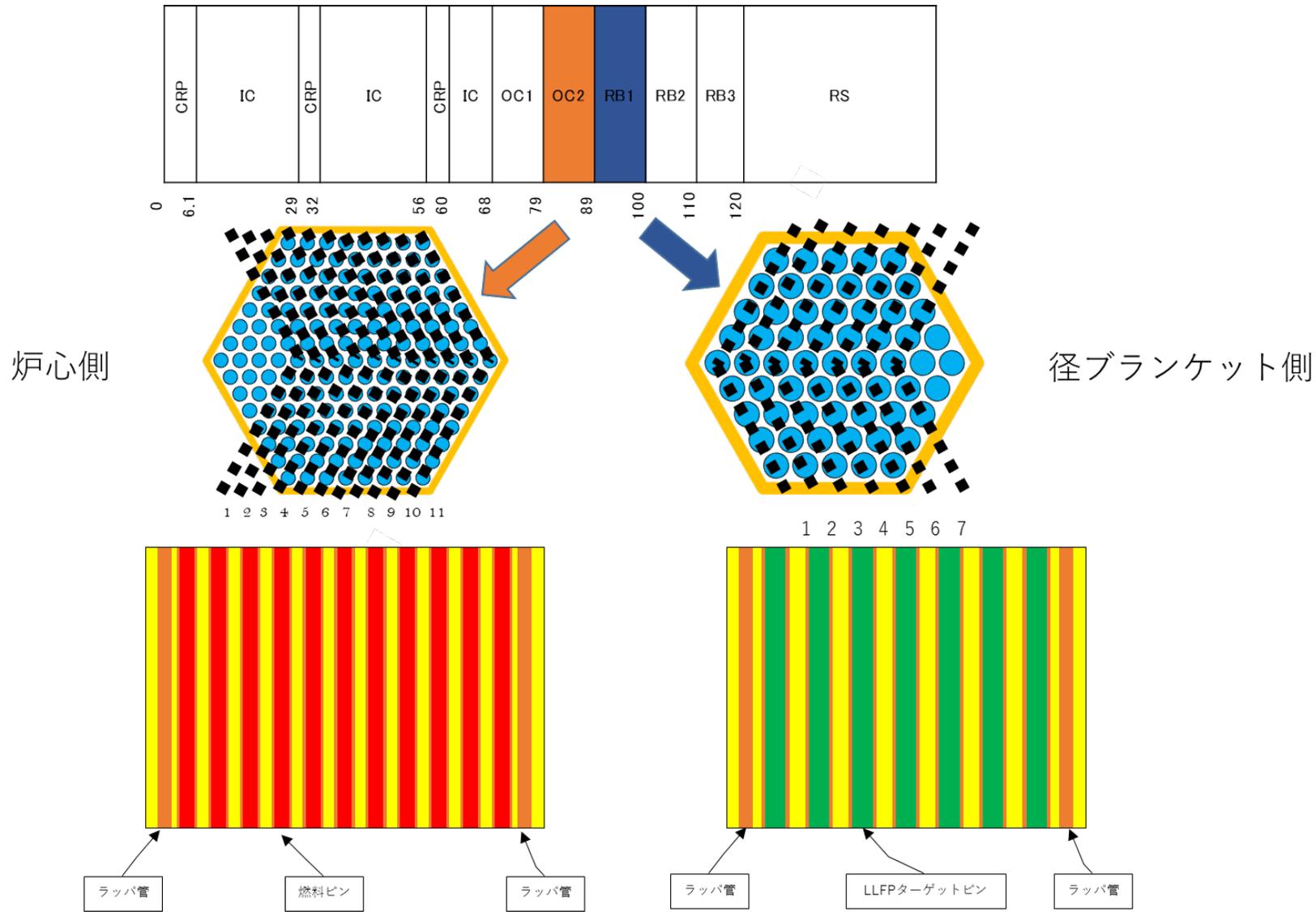


図 3.3.1-3 原型炉サイズの径方向ブランケット領域での SCALE/XSDRN 計算モデル

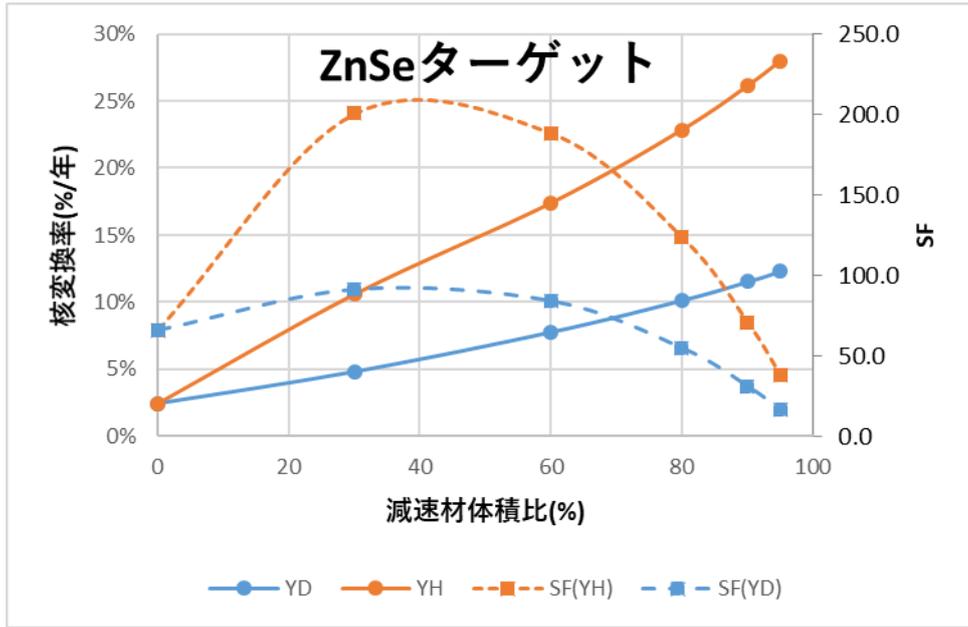


図 3.3.1-4 減速材体積比と核変換率(%/年)、サポートファクター(SF)との関係(⁷⁹Se)

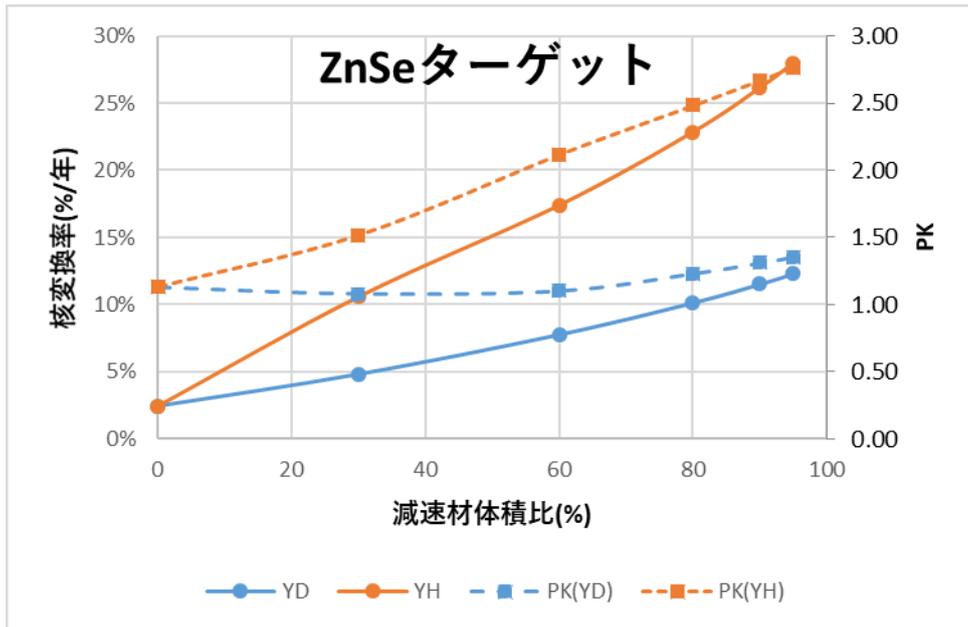


図 3.3.1-5 減速材体積比と核変換率(%/年)、出力ピーキング (PK)との関係(⁷⁹Se)

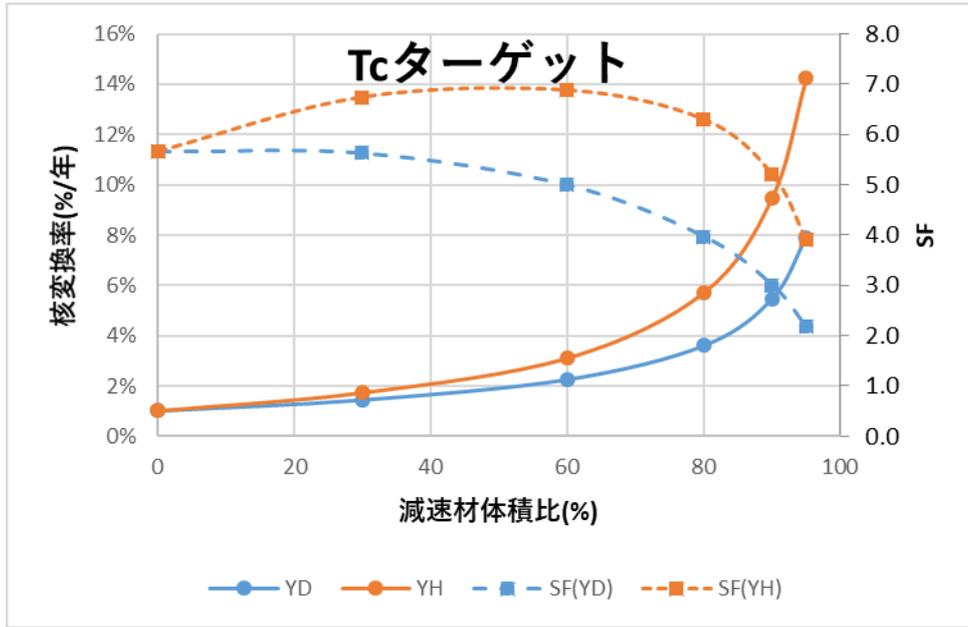


図 3.3.1-6 減速材体積比と核変換率(%/年)、サポートファクター(SF)との関係(⁹⁹Tc)

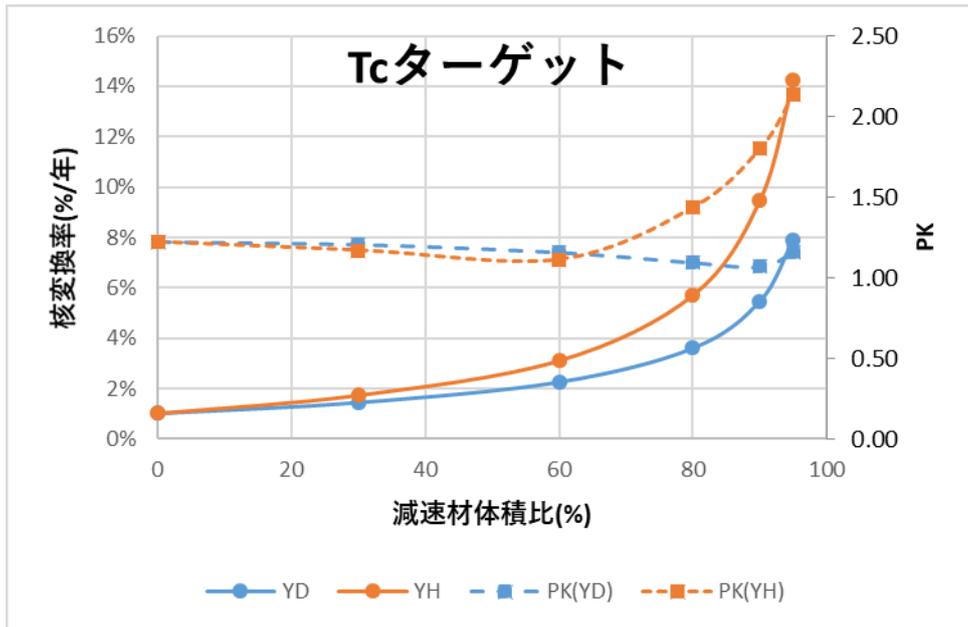


図 3.3.1-7 減速材体積比と核変換率(%/年)、出力ピーキング (PK)との関係(⁹⁹Tc)

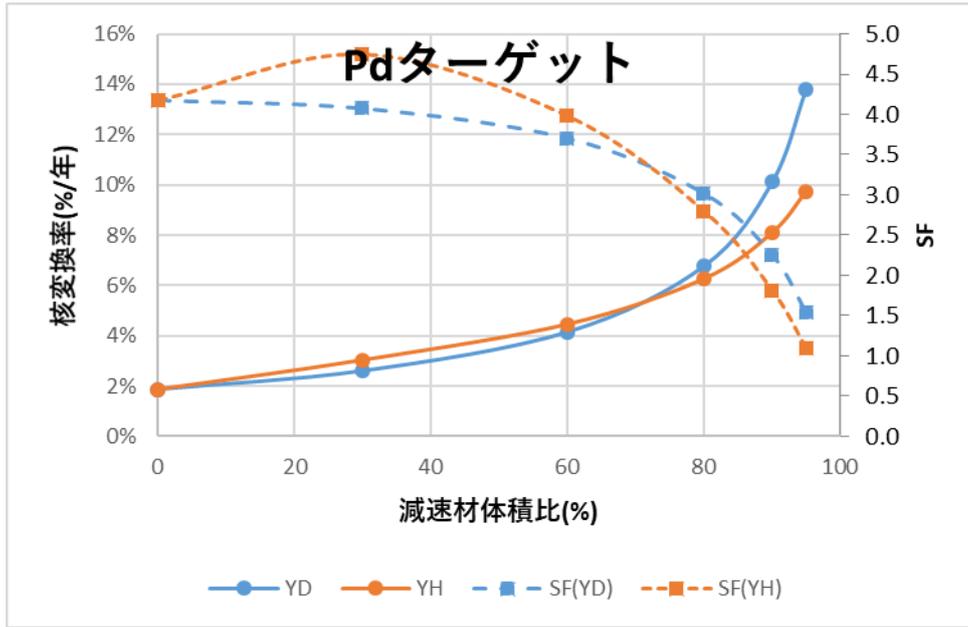


図 3. 3. 1-8 減速材体積比と核変換率(%/年)、サポートファクター(SF)との関係 (^{107}Pd)

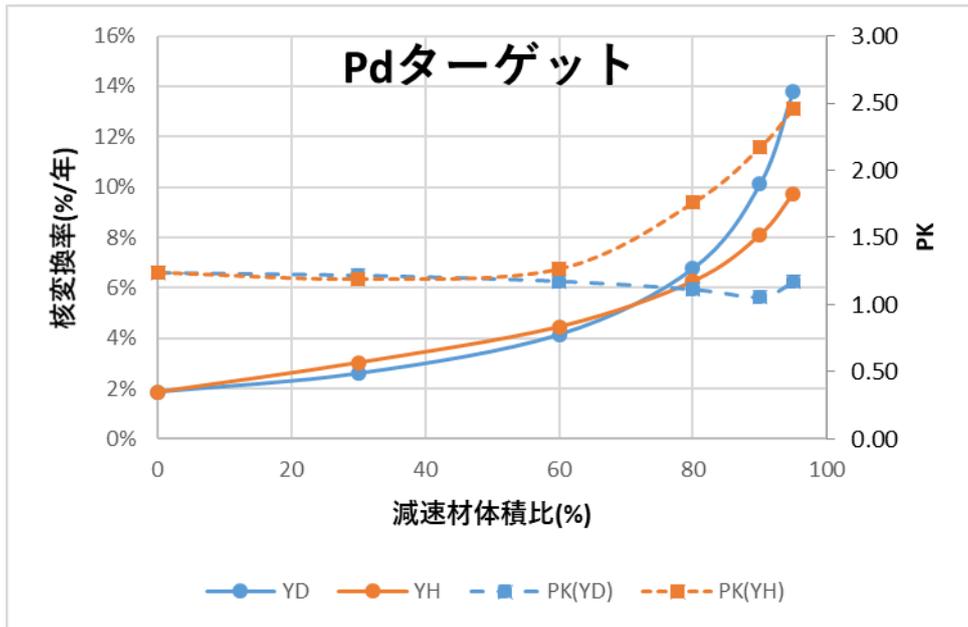


図 3. 3. 1-9 減速材体積比と核変換率(%/年)、出力ピーキング (PK)との関係 (^{107}Pd)

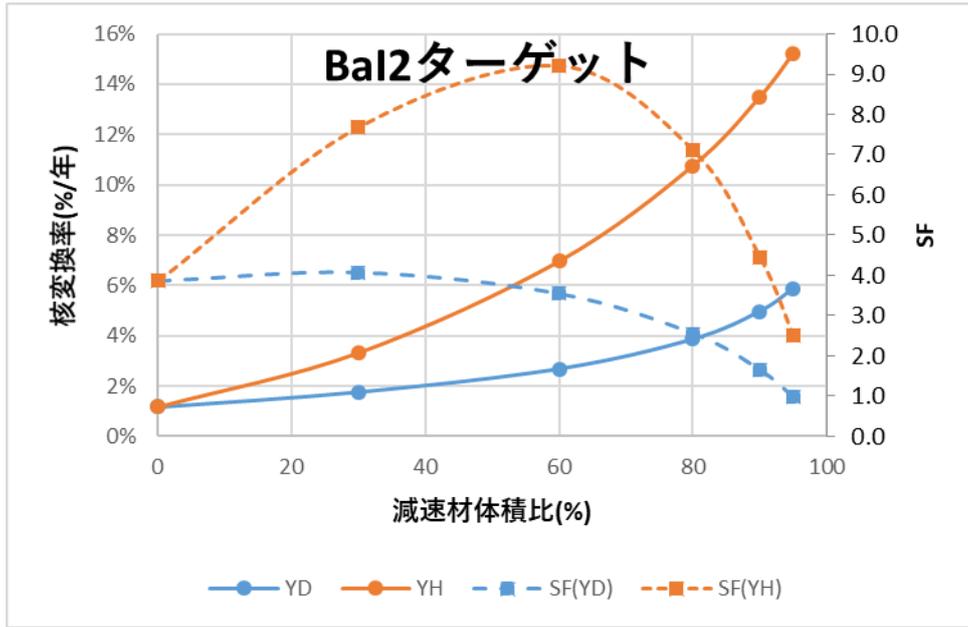


図 3.3.1-10 減速材体積比と核変換率(%/年)、サポートファクター(SF)との関係 (^{129}I)

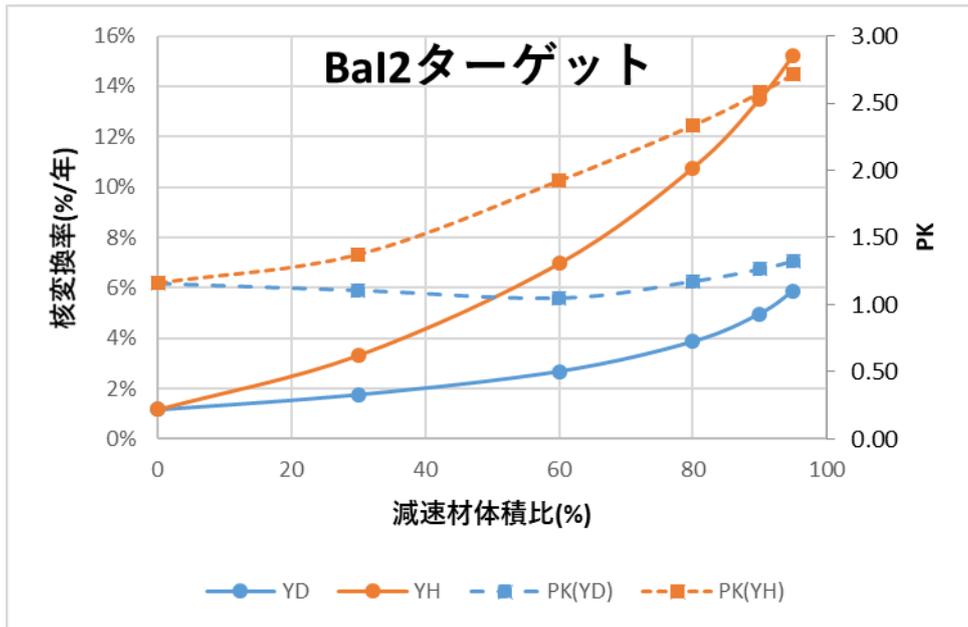


図 3.3.1-11 減速材体積比と核変換率(%/年)、出力ピーキング (PK)との関係 (^{129}I)

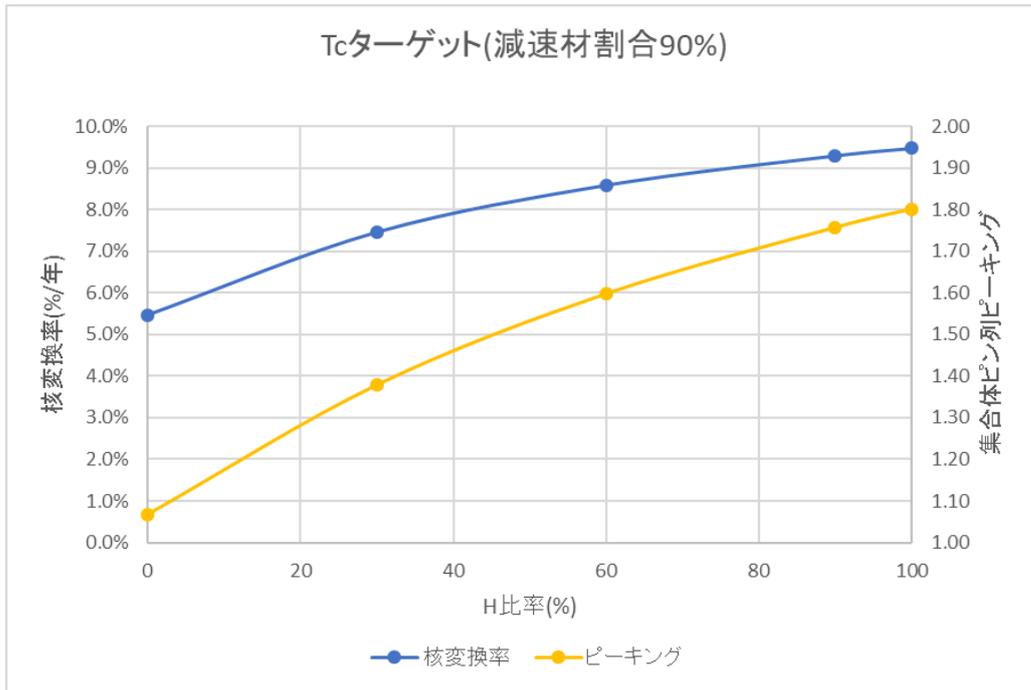


図 3. 3. 1-12 減速材中の H 比率と核変換率(%/年)、出力ピーキング (PK) との関係 (^{99}Tc)

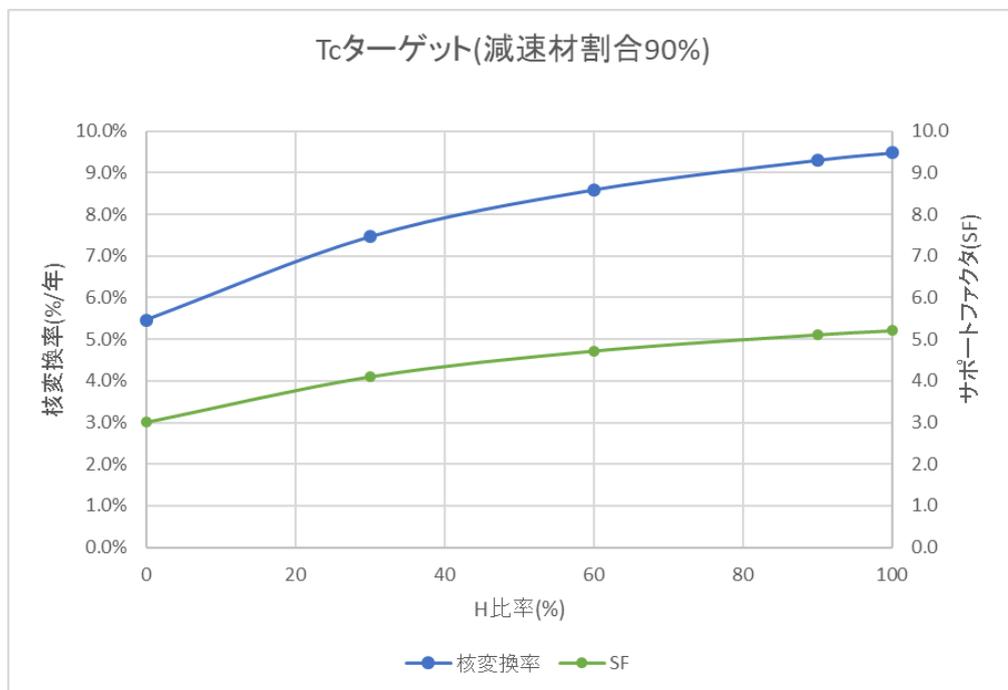


図 3. 3. 1-13 減速材中の H 比率と核変換率(%/年)、サポートファクター(SF) との関係 (^{99}Tc)

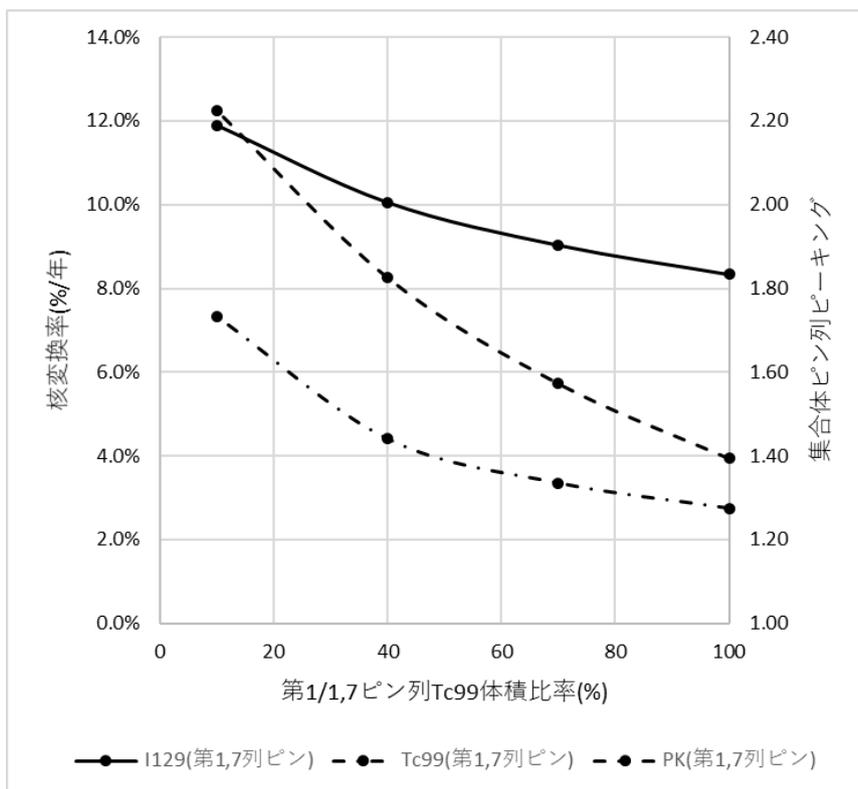


図 3. 3. 1-14 Tc ピンの体積比率と核変換率(%/年)、出力ピーキング (PK)との関係 (^{129}I)

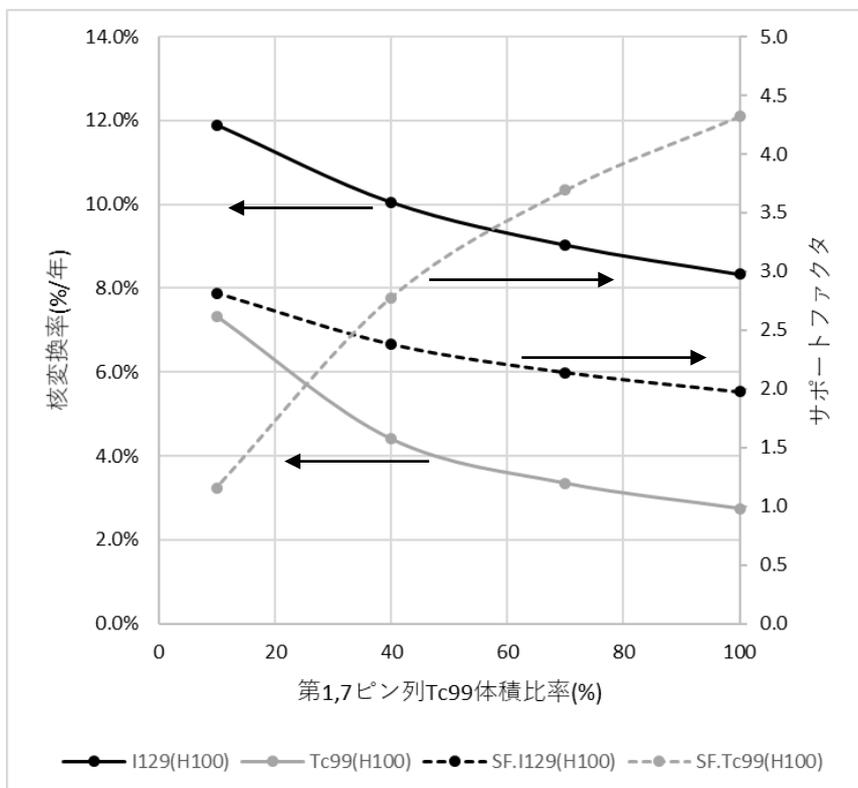


図 3. 3. 1-15 Tc ピンの体積比率と核変換率(%/年)、サポートファクター(SF)との関係 (^{129}I)

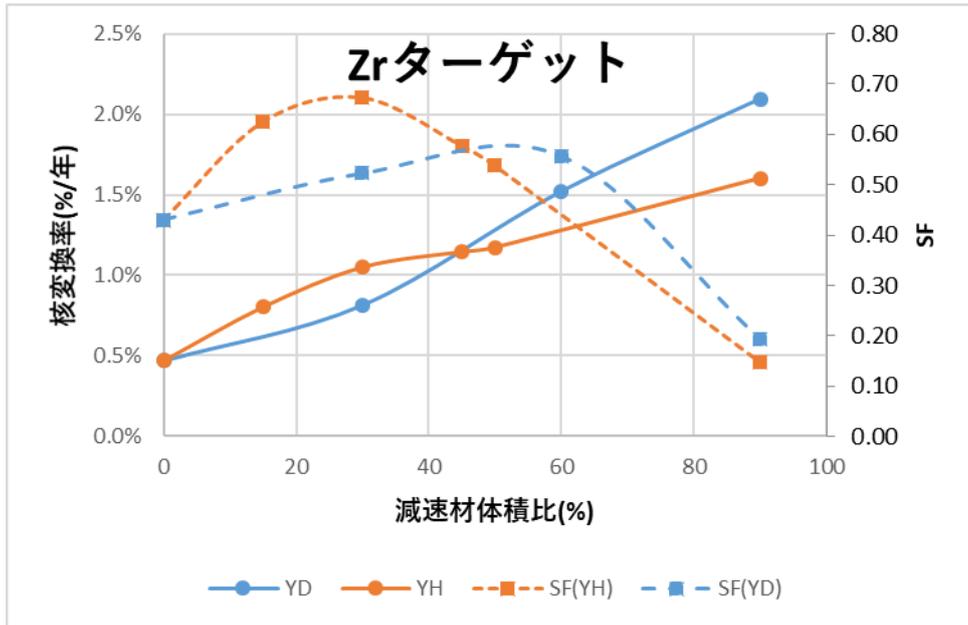


図 3.3.1-16 減速材体積比と核変換率(%/年)、サポートファクター(SF)との関係(⁹³Zr)

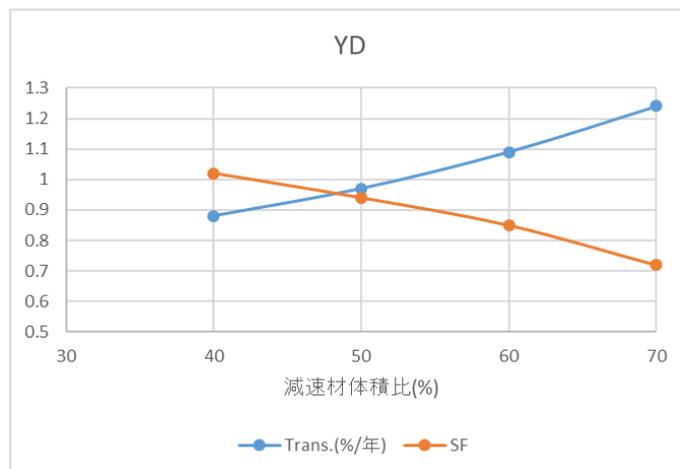


図 3.3.1-17 減速材(YD₂)体積比と核変換率(%/年)、サポートファクター(SF)との関係(⁹³Zr)

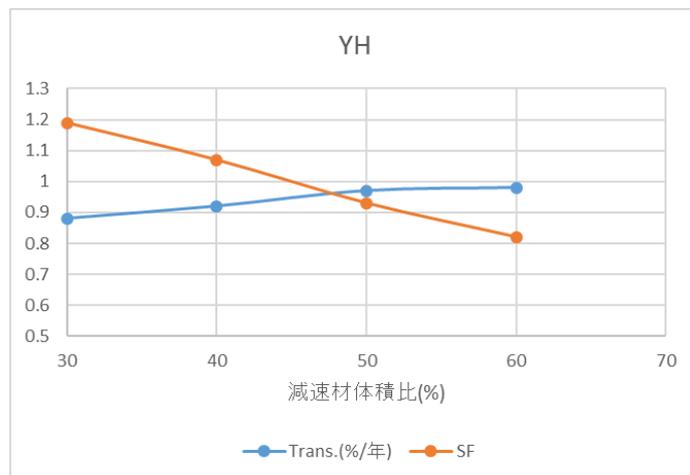


図 3.3.1-18 減速材(YH₂)体積比と核変換率(%/年)、サポートファクター(SF)との関係(⁹³Zr)

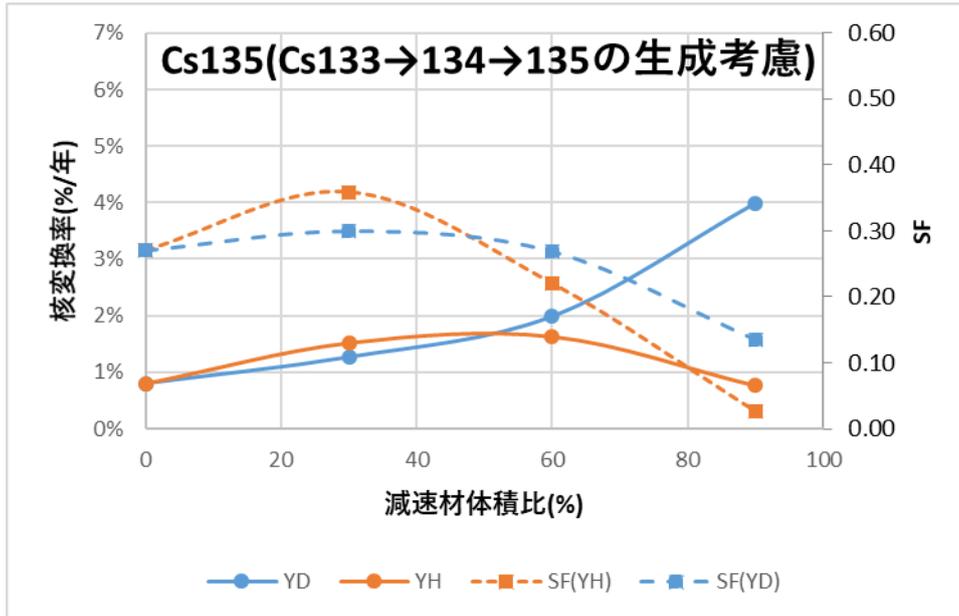
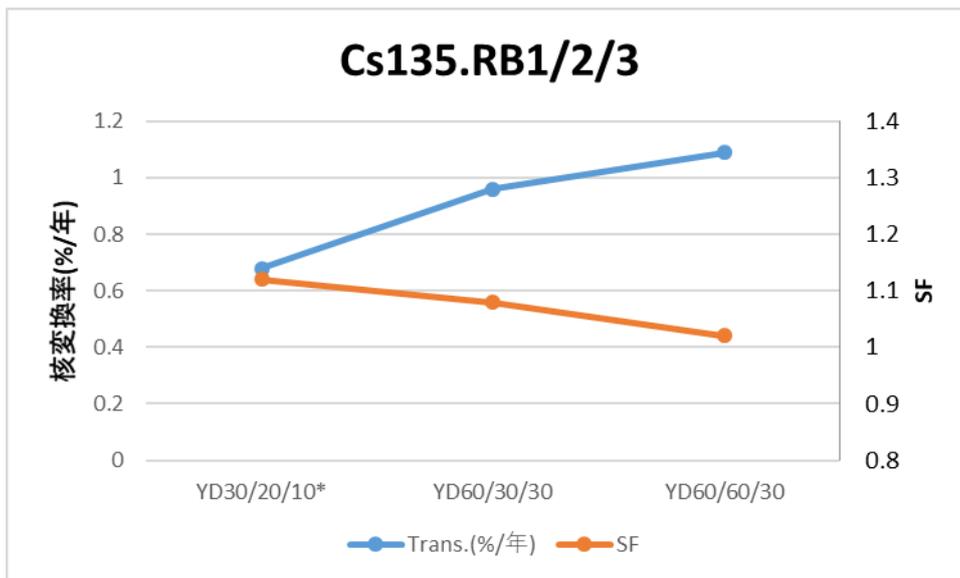


図 3.3.1-19 減速材体積比と核変換率(%/年)、サポートファクター(SF)との関係 (¹³⁵Cs)



*炉心高さ部以外は減速材なし

図 3.3.1-20 減速材体積比と核変換率(%/年)、サポートファクター(SF)との関係 (¹³⁵Cs)

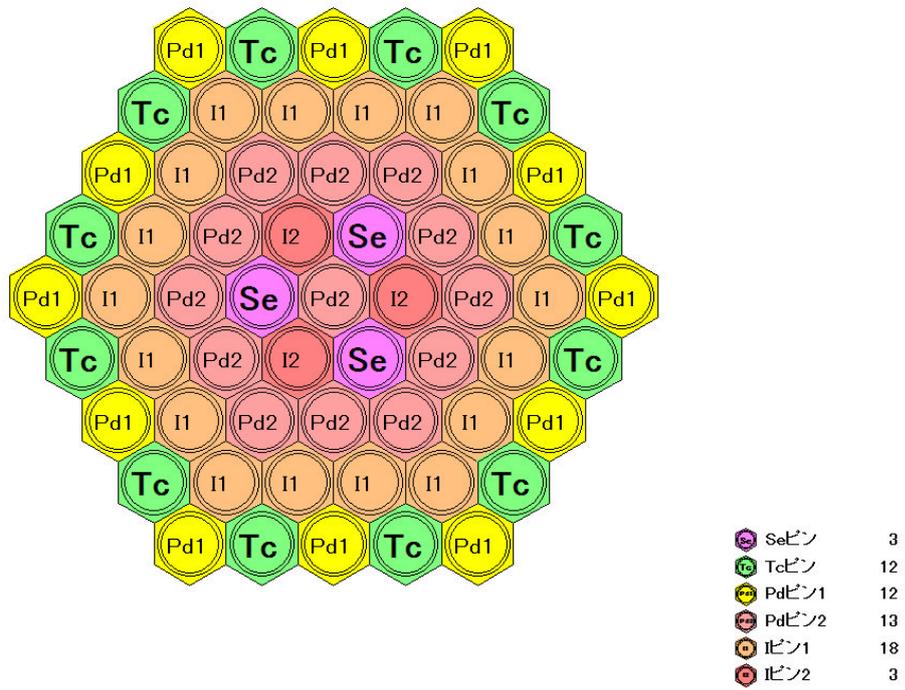


図 3.3.1-21 ターゲット集合体のターゲットピン配置

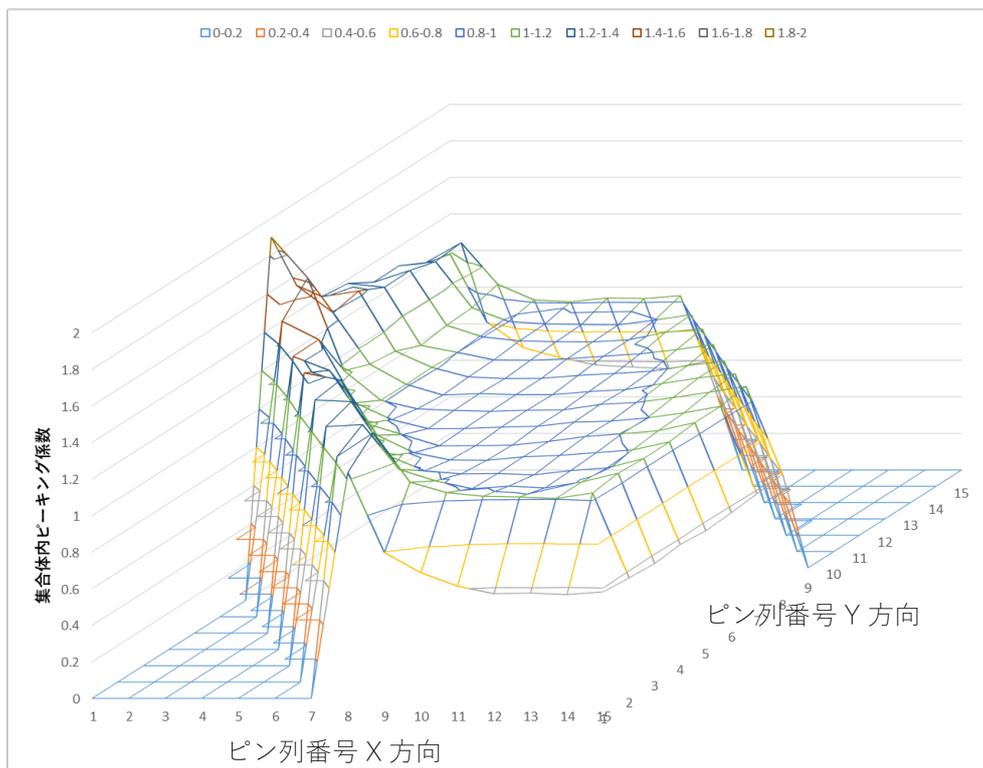
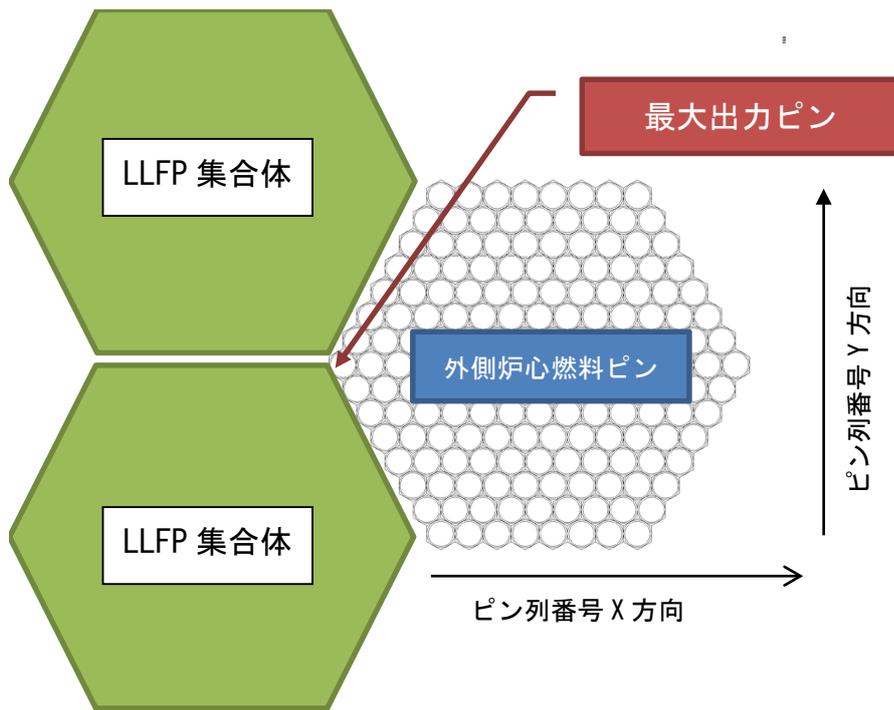


図 3. 3. 1-22 外側炉心第二層の燃料集合体のピン毎ピーキング係数

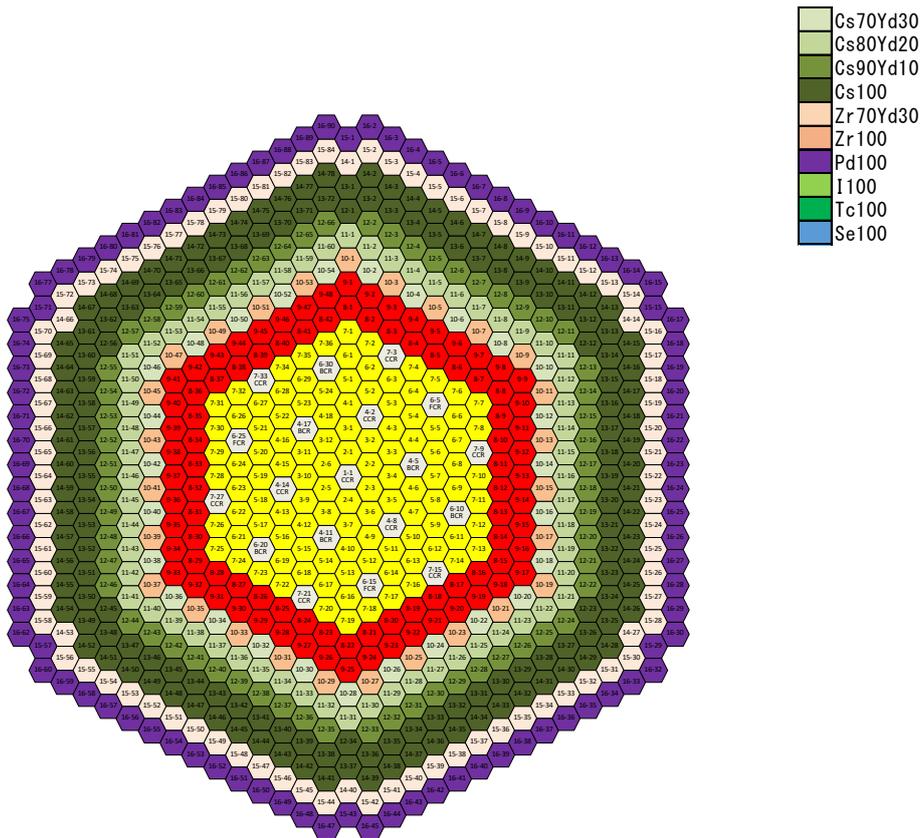
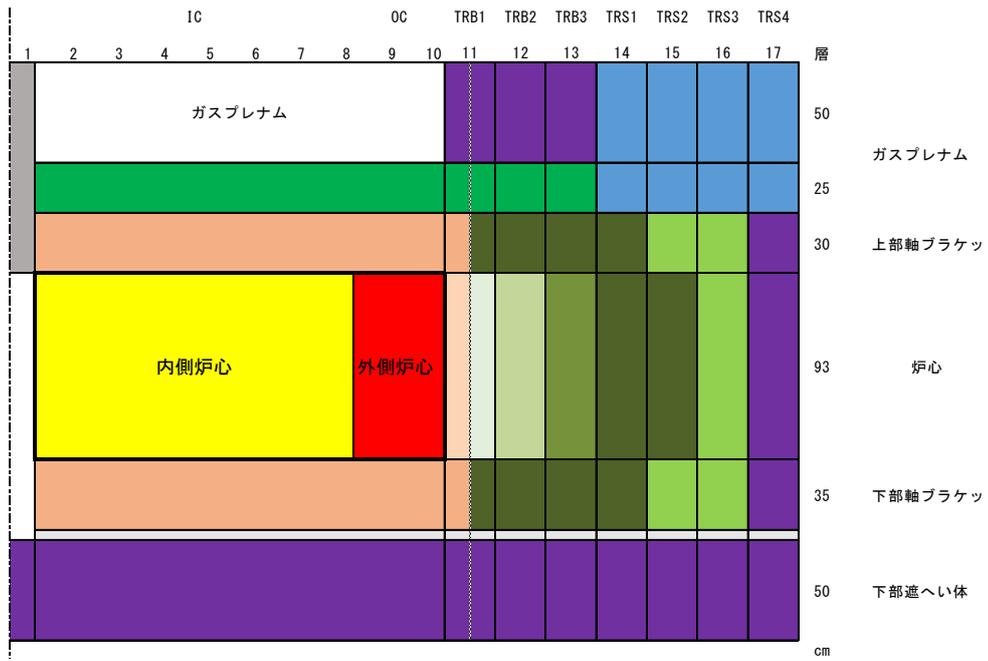


図 3. 3. 1-23 LLFP 配置

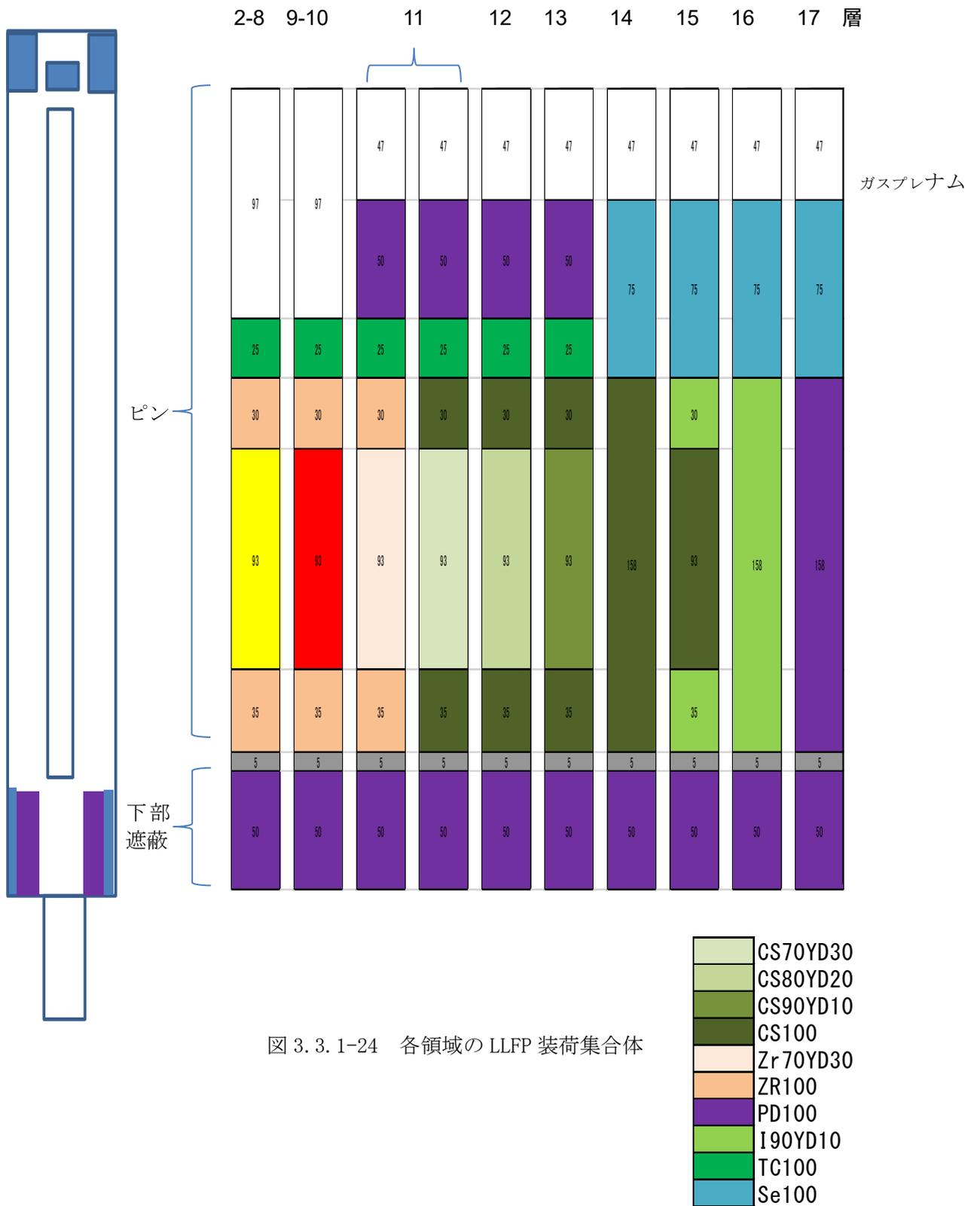


図 3. 3. 1-24 各領域の LLFP 装荷集合体

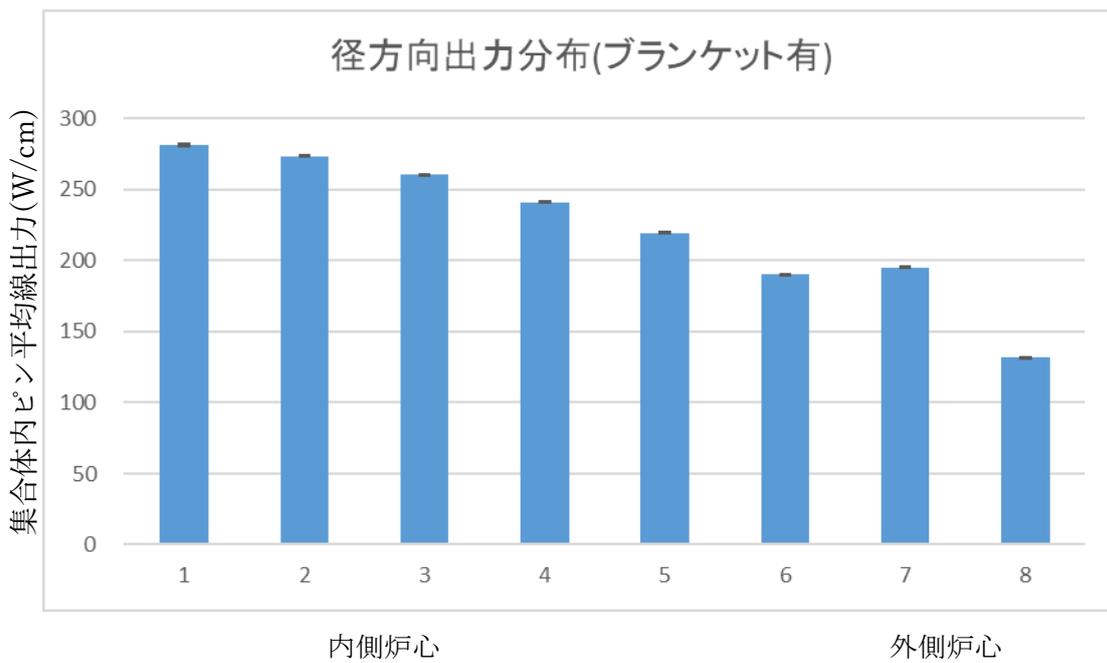
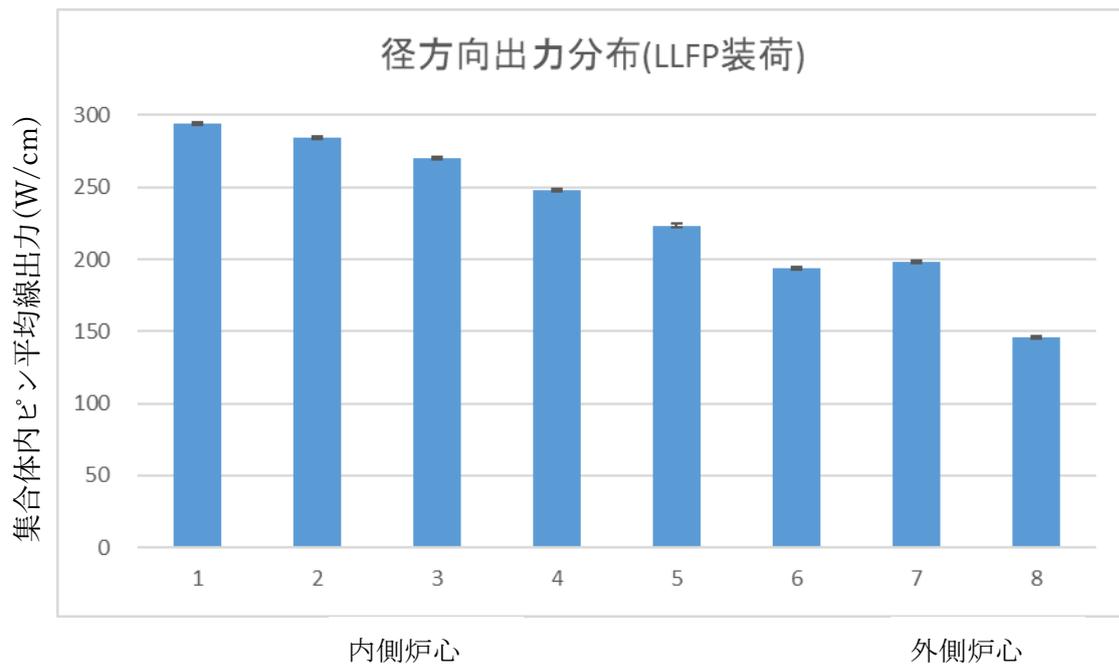
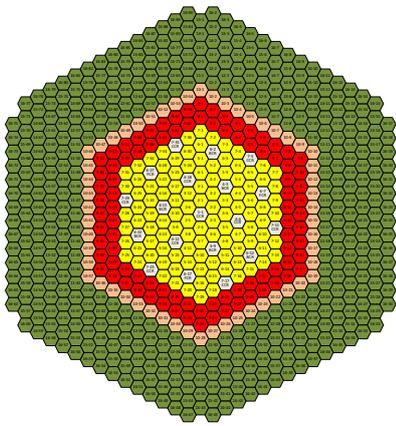
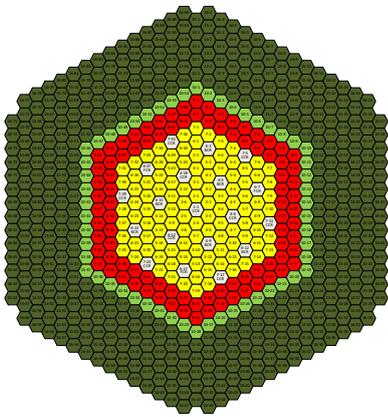
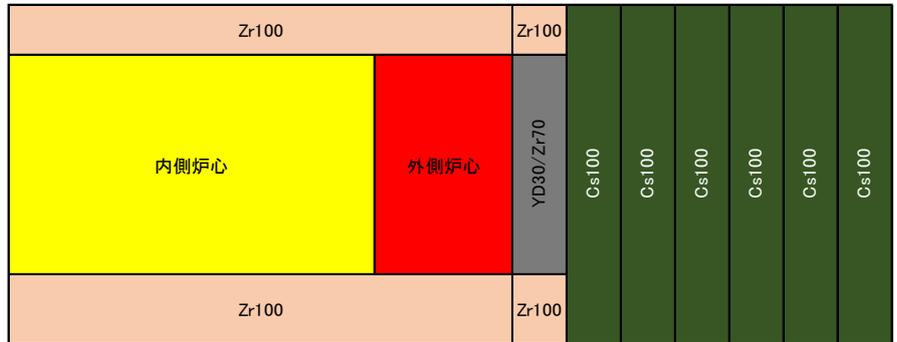


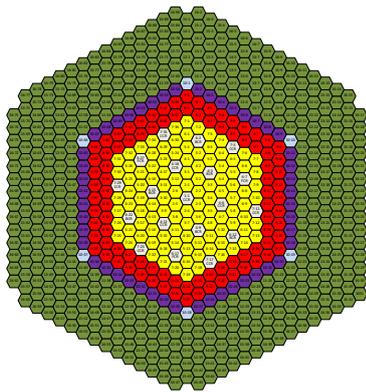
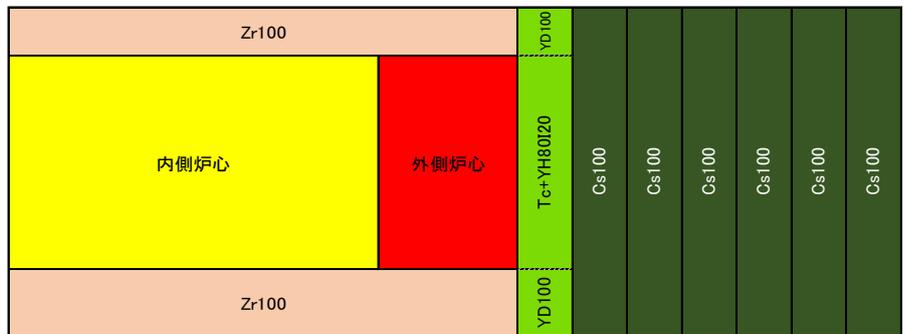
図 3.3.1-25 径方向出力分布の比較



炉心 A



炉心 B



炉心 C

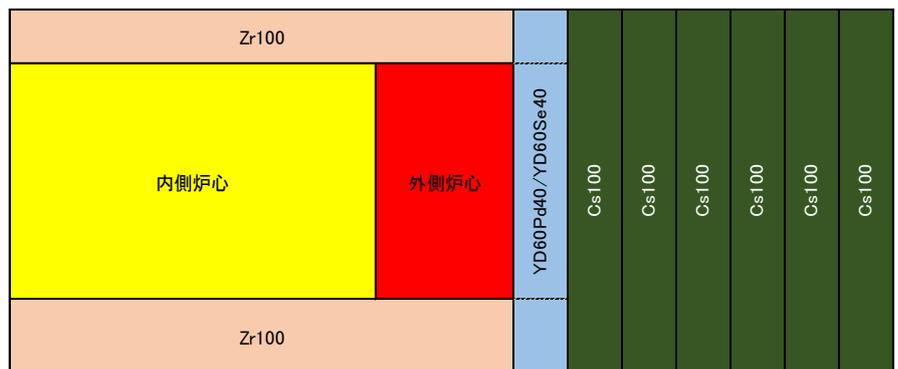


図 3.3.1-26 高速炉核変換システム 案 1

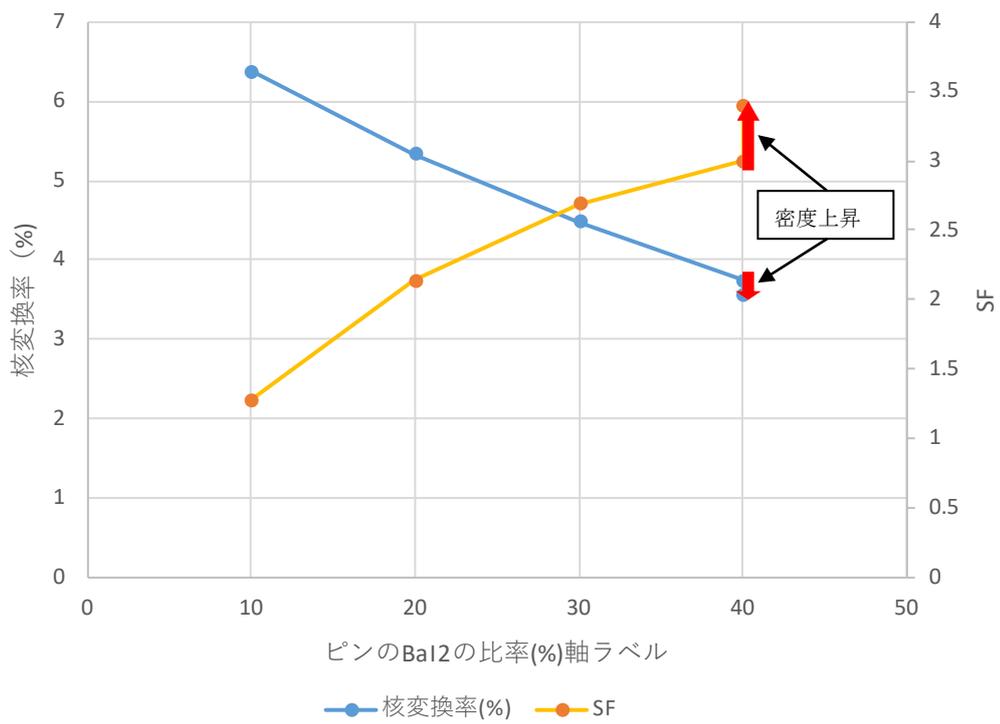
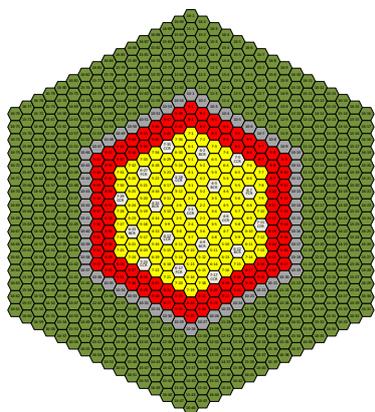
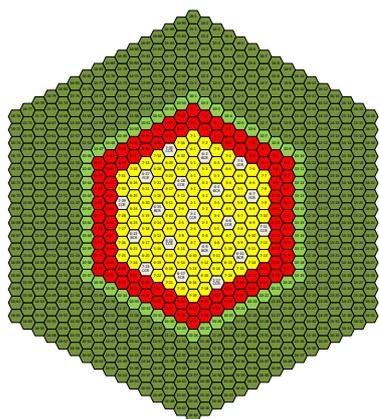


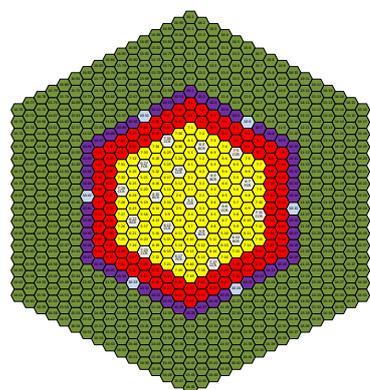
図 3. 3. 1-27 BaI₂ ピンの BaI₂ 比率と核変換率および SF の関係



炉心 A



炉心 B



炉心 C

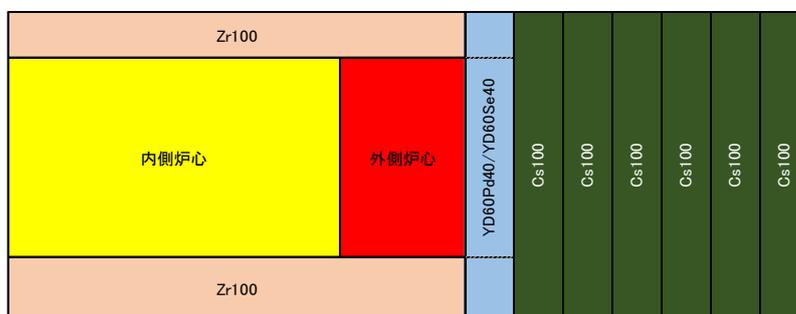


図 3.3.1-28 高速炉核変換システム LLFP 配置 案 2

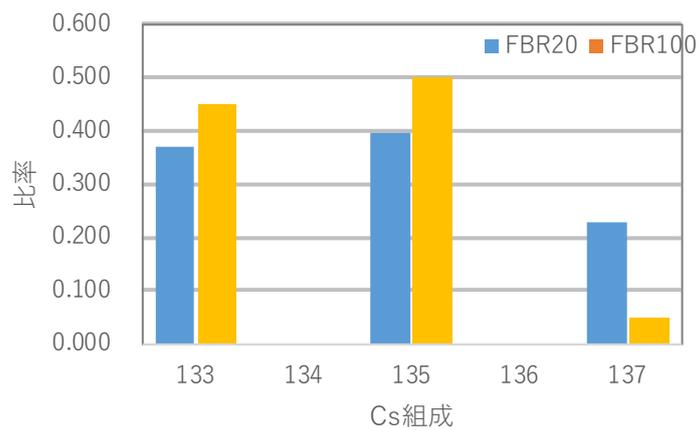


図 3. 3. 1-29 20 年冷却と 100 年冷却の Cs 同位体の比率

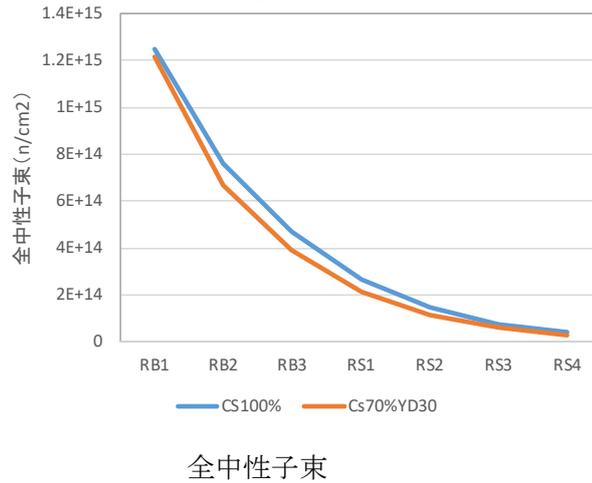
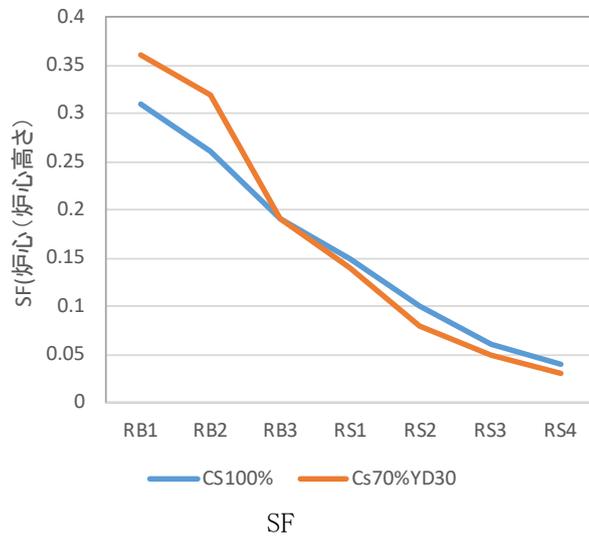
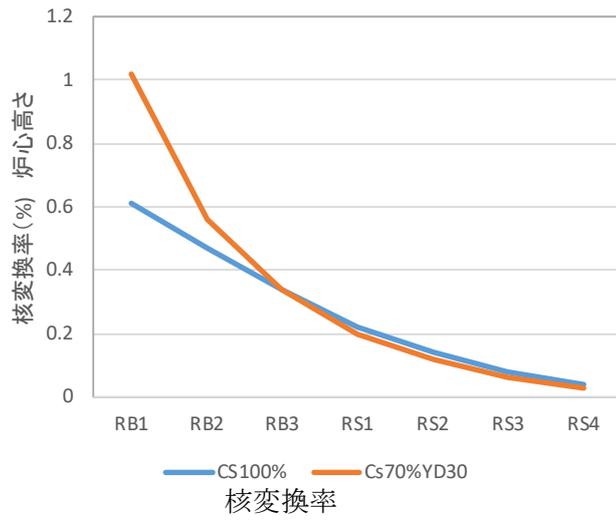


図 3. 3. 1-30 RB 第 1 層の減速材装荷の有無による Cs 装荷各層での核変換率, SF, 中性子束の挙動

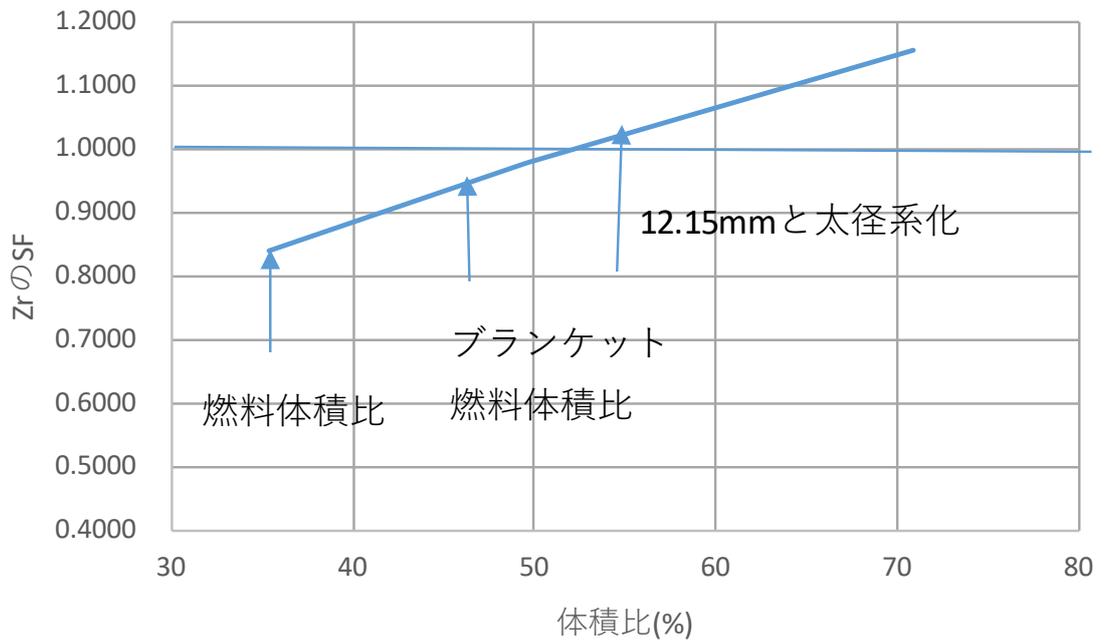


図 3.3.1-31 下部軸ブランケット体積比と Zr の FS の関係

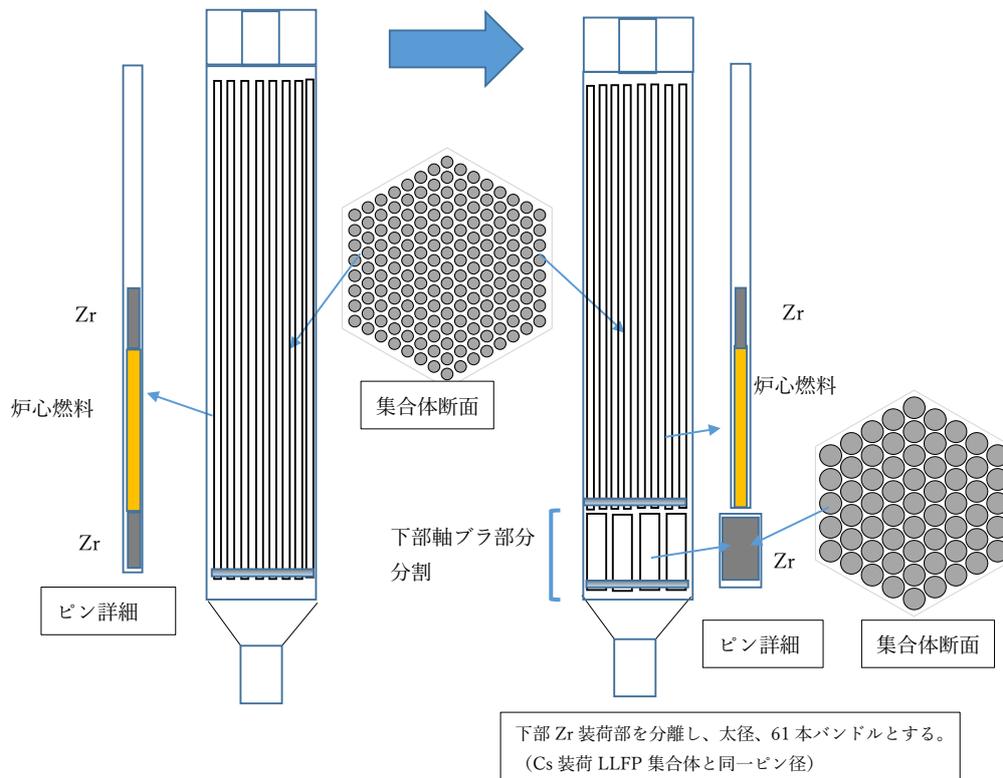
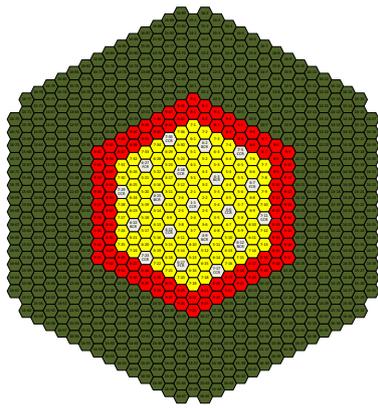
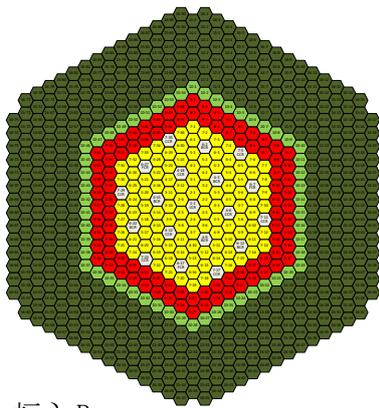
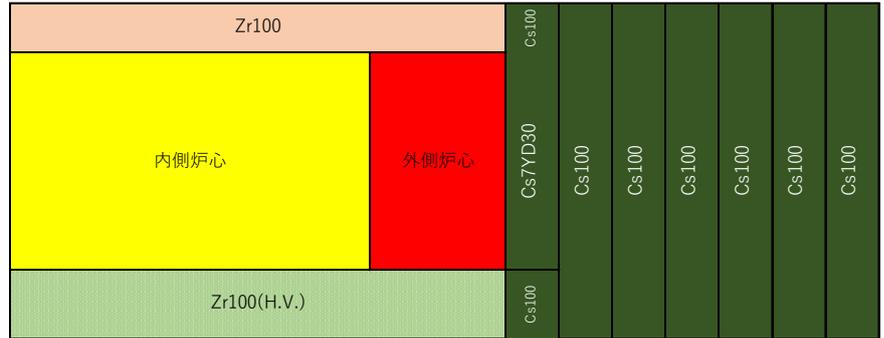


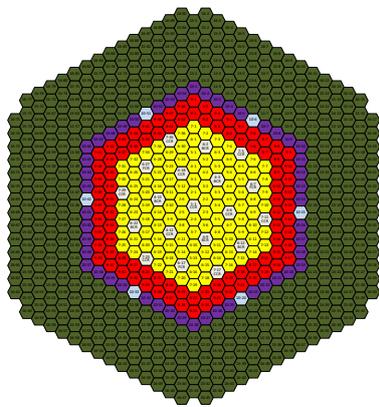
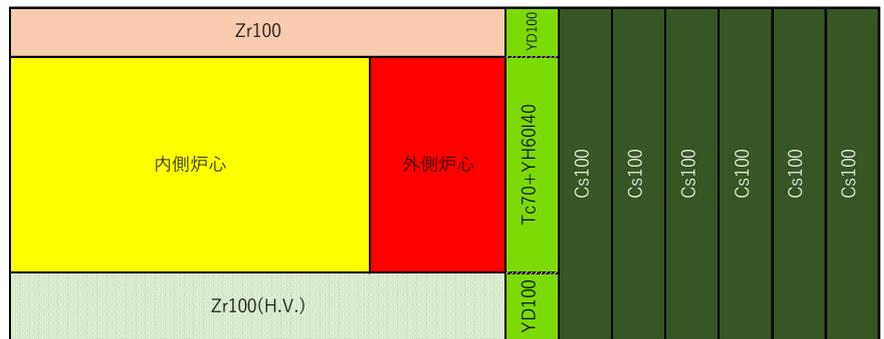
図 3.3.1-32 下部ブランケットへの Zr の装荷方法



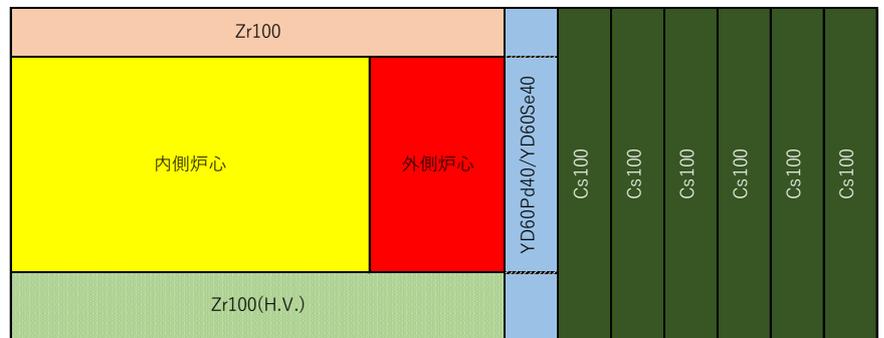
炉心 A



炉心 B



炉心 C



構成概要

炉心	RB 第 1 層	RB2-遮蔽体領域	燃料上下軸ブランケット
A	Cs ₂ CO ₃ : YD ₂ =70:30 太径(12.7mm)ピン	CS ₂ CO ₃ 100% 太径(12.7mm)61本	下部 61ピン太径12.7mm 上部 燃料ピン中装荷
B	Tc スミア 70% 24本ピン BaI ₂ :YH ₂ =60:40 37本ピン	同上	同上
C	Pd:YD ₂ =60:40 集合体 48体 ZnSe:YD ₂ =60:40 集合体 6体	同上	同上

図 3.3.1-33 高速炉核変換システム LLFP 配置

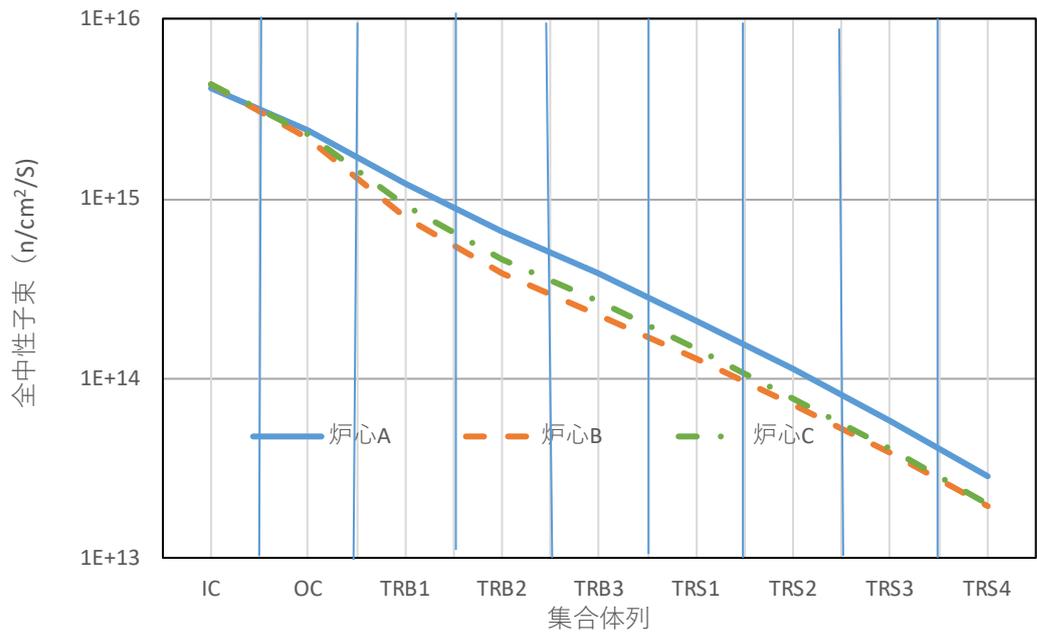


図 3.3.1-34 炉心 A, B, C の炉心部軸方向平均中性子束分布

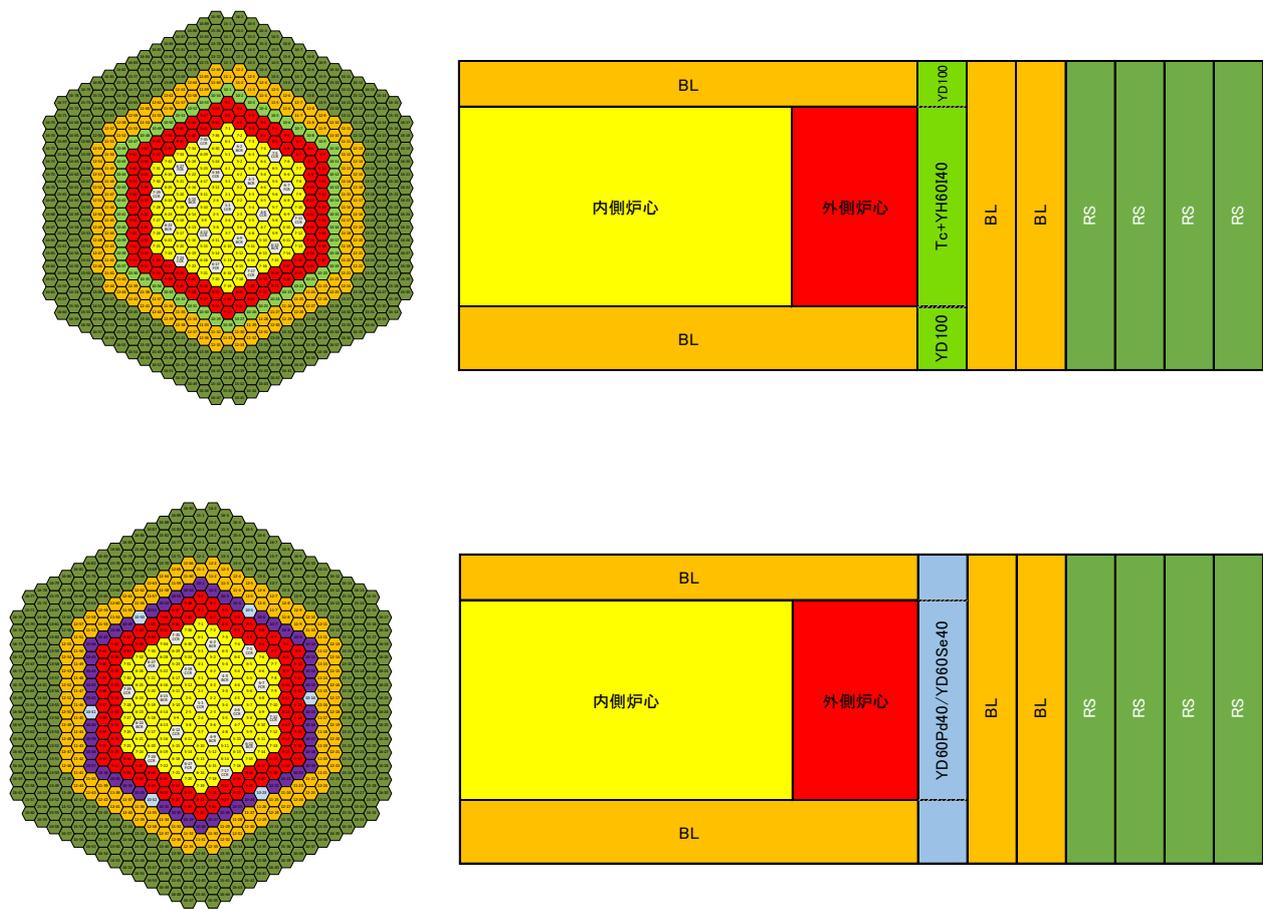


図 3.3.1-35 LLFP4 核種を装荷した 2 つの炉心を組み合わせた核変換システム

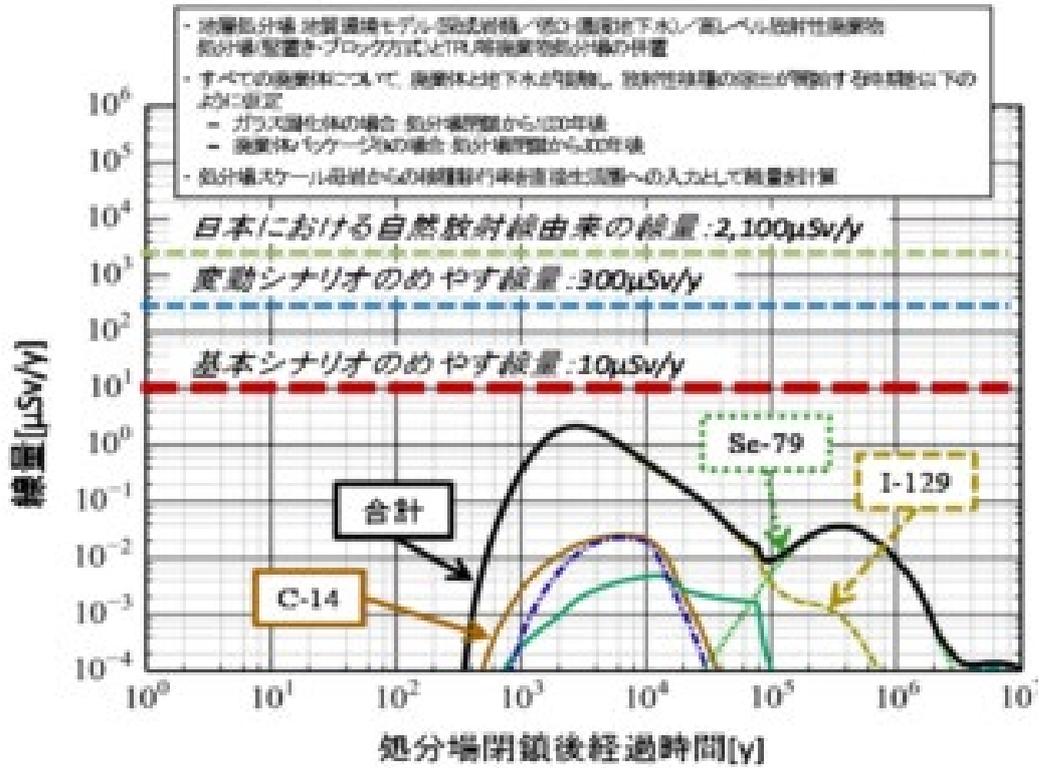


図 3. 3. 1-36 地層処分の被ばく量の核種の寄与

^{129}I 、1000年から100000年

^{79}Se 100000年以降

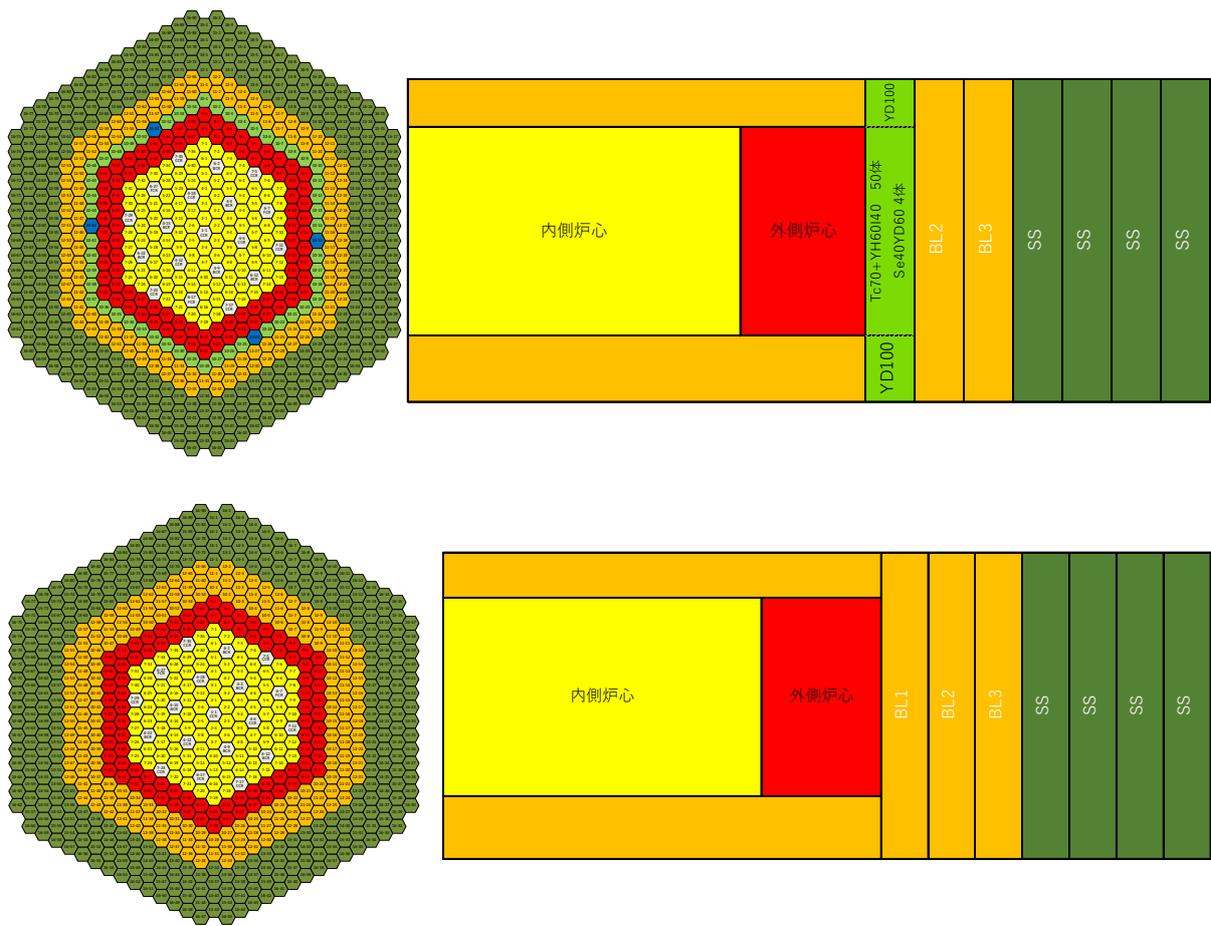


図 3. 3. 1-37 LLFP3 核種を装荷した 2 つの炉心を組み合わせた核変換システムの配置

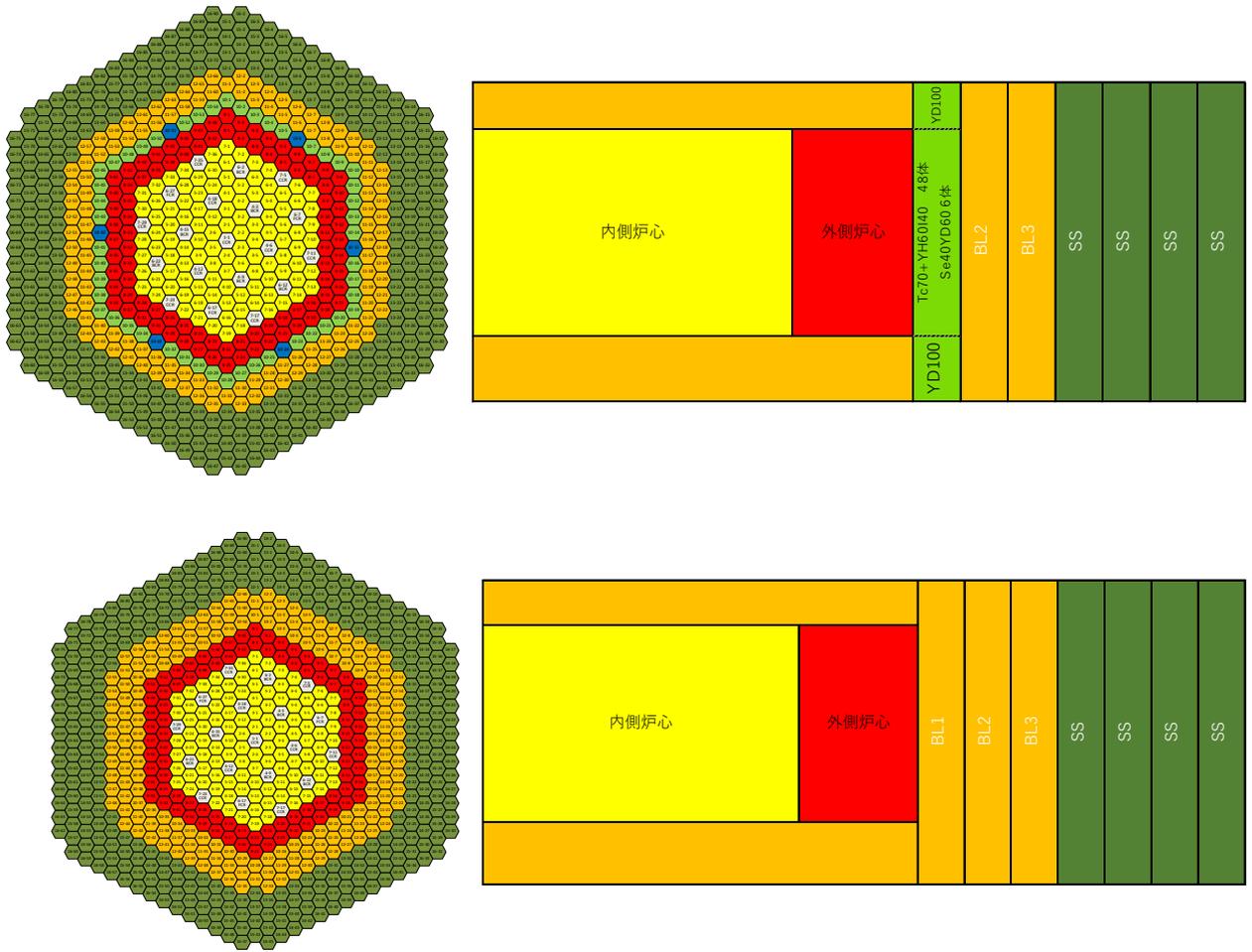


図 3.3.1-38 LLFP3 核種を装荷した 2 つの炉心を組み合わせた核変換システムの配置 (Se 集合体本数増加)

3.4 LLFP 炉心ターゲットを含む高速炉の炉心特性

3.4.1 炉心特性（再委託先：東京都市大学）【H28-R1】

(1) 平成 28 年度の実施内容および成果

「もんじゅ」基準炉心の仕様調査、解析データの整備を行い、核変換ターゲットを装荷した炉心との比較のために炉心特性の解析評価を行った。また、「もんじゅ」ブランケット領域に核変換ターゲット集合体を装荷した LLFP 装荷炉心の核変換特性[サポートファクター(SF)等]、炉心出力分布の解析評価を行った。

「もんじゅ」の仕様を基に構築した炉心の炉心特性（反応度係数、出力分布、制御棒反応度等）は基準炉心「もんじゅ」の設置許可申請書を参照して妥当であることを確認した。また、この炉心の径方向ブランケット領域および遮へい体領域（498 集合体分）に、減速材 YD₂ と LLFP 化合物を核変換率最大となるように適切な比率で混合して装荷した場合、SF>1 を満足しつつ対象 6 核種の同時核変換が可能であること、さらに各核種単独照射であれば、SF>約 2~5（⁷⁹Se については約 80）であることが分かった。

(2) 平成 29 年度の実施内容および成果

LLFP 装荷炉心の各種反応度係数を評価した。また、核変換ターゲット集合体の発熱分布および、燃料のサーマルスパイクを解析評価した。

反応度係数としてナトリウムボイド係数およびドップラー係数の評価を行った。また、 γ 線などによる LLFP 棒の発熱解析を行い核変換ターゲット集合体各層の平均発熱量を求めた。第一層のピンの発熱が最も大きく約 15 W/cm となった。さらに、核変換ターゲット集合体に隣接する燃料棒のサーマルスパイクの大きさを評価した結果、減速材として水素を用いると集合体内出力ピークは著しく悪化するが、重水を用いると大きく改善されることが分かった。

(3) 平成 30 年度の実施内容および成果

LLFP 装荷炉心の主炉停止系および後備炉停止系の制御棒反応度値の解析を行い停止余裕等の評価を行った。

必要な燃焼補償反応度および出力補償反応度を評価することにより制御棒所要反応度を求め、主炉停止系および後備炉停止系の制御棒 1 本固着時の制御棒値を求めることにより両停止系の停止余裕の評価を行い十分な停止余裕があることを確認した。

(4) 令和元年度の実施内容および成果

LLFP 核変換のための最適化炉心として仕様が決定された炉心について炉心核特性の評価を行った。

① 平衡サイクルにおける実効増倍率および出力分布の評価

図 3.4.1-1 に LLFP ターゲット集合体装荷炉心の集合体配置図と LLFP ターゲット集合体の構成

を示す。LLFP ターゲット集合体は外側炉心燃料集合体の外側に 7 層装荷されている。図 3.4.1-1 に示すように LLFP ターゲット集合体の種類と配置は 3 種類の炉心（炉心 A、B、C）で異なり、炉心 A は ^{135}Cs 、炉心 B は ^{129}I と ^{99}Tc 、炉心 C は ^{79}Se と ^{107}Pd の核変換を主目的とした構成である。また、全ての炉心の燃料領域の上下に LLFP を含むペレット（Zr）が装荷されている。

上記炉心を対象とした平衡サイクルの炉心特性評価を目的として燃焼計算を行った。燃焼計算は拡散計算コード CITATION[3.4.1-1]を用いて 2 次元 RZ 体系（図 3.4.1-2(a)に炉心 B の解析体系を示す。）で行い、実効増倍率が平衡サイクル末期で 1 付近かつ平衡サイクル初期の最大線出力が最小となるように内側炉心および外側炉心の Pu 富化度を求めた。

表 3.4.1-1 に燃焼計算の条件を示す。燃焼計算は 148 日を 1 サイクルとし、10 サイクル目を平衡サイクルとした。計算に用いるエネルギー群数は 79 群とし、付表 3.4.1-1 に示すように、通常の高速炉用 70 群ライブラリで最もエネルギーが低い 70 群目を 10 分割して熱中性子エネルギー領域の中性子の挙動も考慮している。全ての炉心の炉心燃料集合体の交換バッチ数は 5、炉心 B の ^{99}Tc および ^{129}I を含む LLFP ターゲット集合体の交換バッチ数は 8 とした。図 3.4.1-2(b)に燃焼計算における炉心 B の第 1 層 LLFP ターゲット集合体のバッチ交換の取り扱いを示す。Pu 組成は「もんじゅ」設計基準組成[3.4.1-2]、Pu 富化度の上限は 35 wt%とし、制御棒の中性子吸収体の下端位置は炉心上端に固定した。

表 3.4.1-2 に燃焼計算結果を示す。平衡サイクル末期で実効増倍率が約 1 となるように内側炉心と外側炉心の Pu 富化度を上限 35 wt%の範囲で設定した結果、炉心 B では外側炉心の Pu 富化度が制限値である 35 wt%に達し、半径方向の出力分布が平坦化できなかった。このため表 3.4.1-2 および図 3.4.1-3 に示すように出力密度は炉心 B の内側炉心の最内層・軸方向中心で最大となっている。一方、炉心 A および C では、表 3.4.1-2 に示すように内側炉心と外側炉心の最大線出力がほぼ等しく、半径方向の出力分布が平坦化されていることが分かる。2 次元計算で求めた最大線出力では燃料交換による集合体毎の燃焼度の違い（燃焼ミスマッチ効果）や集合体内部の出力ピーキングが考慮されていないため、最終的な最大線出力は、①項で求めた平衡サイクルの燃焼組成を用いて③項で議論する。

また、軸・径方向ブランケットを削除した影響により、増殖比は全ての 0.6 を下回っており、外部から Pu を供給する必要がある。

② ナトリウムボイド反応度およびドップラー係数の評価

表 3.4.1-3 に核特性計算の検討条件（次項の出力ピーキング、炉停止余裕の評価分を含む）を示す。ドップラー係数およびボイド反応度は平衡サイクル末期の燃焼組成を用いて計算した。

表 3.4.1-4 にナトリウムボイド反応度およびドップラー係数の計算結果を示す。ナトリウムボイド反応度は炉心 A が最も大きく約 1.4 \$ となり、炉心 B が最も小さく約 0.5 \$ となった。炉心 B のボイド反応度が炉心 A、C と比べて小さくなったのは、炉心 B の LLFP 集合体に含まれる減速材が、減速能の高い YH_2 であるため、外側炉心領域のスペクトルがより柔らかくなった結果、ボイド時の η 値増加が抑えられたためと考えられる。また、全ての炉心でドップラー係数は「もんじゅ」設置許可申請書[3.4.1-3]記載の核設計値の範囲内となった。

③ 出力分布および出力ピーキングの評価

①項の検討結果より、最大線出力が最も高い炉心Bを対象に、CITATIONのTRI-Z体系で計算した最大線出力と出力ピーキングの計算結果を表3.4.1-5、図3.4.1-4、図3.4.1-5に示す。なお、燃料交換によって隣り合う燃料集合体の燃焼度が異なることによる最大線出力の変化（燃焼ミスマッチ）を考慮するために必要となる「もんじゅ」の燃料交換パターンは非公開のため、11サイクルから15サイクルにおける燃料装荷パターンを仮に想定し、①項で検討した平衡サイクル初期の燃焼組成を用いてTRI-Z体系による拡散計算をCITATIONで行った。

その結果、表3.4.1-5および図3.4.1-5に示すように内側炉心最内層に初装荷燃料が装荷された13サイクルにおいて、最大線出力が約409 W/cmと最も高く、燃焼ミスマッチを考慮しない計算と比較して、約16%の出力増加となった。なお、平衡サイクル後も最大線出力がサイクルによって変化するの、燃料交換バッチ数が5であり、各サイクルで装荷される新燃料集合体数がサイクル毎に異なることに起因する。13サイクルにおけるピーク出力集合体は図3.4.1-6(a)に示す集合体番号2-3であり、集合体内の出力は図3.4.1-5に示すように炉心中心のナトリウムフローに接する領域で最大となった。

上記の計算で求めた各三角メッシュの中性子束から、出力ピーク集合体内の滑らかな中性子束分布を幾何学的対称性を用いて求め[3.4.1-4, 5, 6, 7]、集合体内燃料棒位置での中性子束から出力ピークを評価した。出力ピーク集合体の平均出力で規格化した集合体内出力ピーキング係数は1.02であり、表3.4.1-5に示す出力ピーク集合体平均軸方向最大線出力との積より、出力ピークピンの最大線出力は411.8 W/cmとなった。以上の結果より、炉心Bの種々の効果を考慮した最終的な最大線出力は411.8 W/cmであり、制限値360 W/cmを超過するため、⑤、⑥項で線出力を抑制する対策を示す。

④ 炉停止余裕の評価

①項の検討結果を受けて、燃焼反応度が最も高く炉停止余裕が小さいと予想される炉心Bを対象にワンロードスタックを考慮した制御棒価値を計算し、炉停止余裕の評価を行った。図3.4.1-6(a)に制御棒配置、図3.4.1-6(b)に解析で想定した制御棒挿入時の中性子吸収材の軸方向位置を示す。表3.4.1-3で示したように、制御棒の反応度価値は3次元六角体系用中性子輸送法計算コードMINISTRI[3.4.1-8]に組み込まれている拡散計算モジュールを用い、対称位置を代表する制御棒1本がスタックした場合と制御棒全挿入時における実効増倍率の差から直接計算した。

表3.4.1-6に制御棒価値の計算結果を示す。主炉停止系のうち制御棒価値が最大となるのは図3.4.1-6(a)に示す制御棒配置のうち、1-1CCRであり、この制御棒1本がスタックした場合の挿入制御棒価値（主炉停止系）は約10.3 %dk/kk'となった。後備炉停止系のうち制御棒価値が最大となるのは図3.4.1-6(a)に示す制御棒配置のうち4-5BCRと対称位置にある制御棒であり、この制御棒1本がスタックした場合の挿入制御棒価値（後備炉停止系）は約4.9 %dk/kk'となった。

表3.4.1-7に炉停止余裕の検討結果を示す。炉停止余裕を計算するために必要となる燃焼補償は①の検討結果を用い、出力補償はもんじゅ設置許可申請書に記載された各種温度係数から算出した温度反応度と②項の検討結果であるドップラー反応度を用いて設定した。運転余裕と炉の反応度の誤差吸収は、もんじゅ設置許可申請書に記載された値を用いた。余裕反応度は主炉停止系で3.6 %dk/kk'、後備炉停止系で2.5 %dk/kk'となり、もんじゅ設置許可申請書[3.4.1-3]記載の値と比較して同等の停止余裕を有することを確認した。

⑤ 最大線出力低減策の検討

③項の検討結果より、炉心 B の最大線出力は燃焼ミスマッチ効果や集合体内中性子束分布を考慮すると 411.8 W/cm となり、制限値 360 W/cm を超過した。これは軸方向ブランケットと径方向ブランケットの削除により、炉心部の出力分担率が増加したことに加え、Pu 富化度上限のため、半径方向の出力分布が十分平坦化できなかつたこと(表 3.4.1-2 参照)による。なお、もんじゅ設置許可申請書[3.4.1-3]ではブランケット合計の出力分担率は平衡炉心初期で 9 %である。

上記の最大線出力増加の要因を受けて表 3.4.1-8 に種々の最大線出力抑制対策とその定性的な効果および課題・制約を示す。

表 3.4.1-8 より、燃料の被覆管内スミヤ密度を向上させる方策は、燃料-被覆管相互作用を防止できる範囲であれば導入が容易と考えられるため、ここでは、もんじゅ高度化炉心設計時の燃料-被覆管機械的相互作用抑制の考え方より被覆管内スミヤ密度を 85 %TD まで上昇させ、Pu 装荷量および熱伝導率を増加させる検討を行った。

表 3.4.1-9 にペレットの外径は変えずに、燃料ペレットの製造密度を 85 %TD から 90 %TD(被覆管内スミヤ密度は 85 %TD)まで増大させた場合の CITATION(TRI-Z)による最大線出力の計算結果を示す。燃料ペレットの製造密度の増大により、Pu 富化度 35 wt%以下を維持したまま内側炉心と外側炉心の出力を平坦化できたため、最大線出力は約 19 W/cm 低減され、内側炉心で約 390 W/cm、外側炉心で約 392 W/cm となった。しかしながら、線出力制限値 360 W/cm を依然として超過しているため、⑥項で最大線出力と燃料最高温度の関係について考察し、表 3.4.1-8 に示す対策②(中空ペレット燃料の採用)の効果を検討する。

⑥ 最大線出力と燃料最高温度の評価

通常運転および異常な過渡変化においては、燃料の許容設計限界を逸脱することなく燃料の健全性が維持されることが要求されており、最大線出力制限値は下記の燃料設計の考え方により決定される。

燃料の許容設計限界：原子炉の設計と関連して、燃料の損傷が安全上許容される程度で
且つ、継続して原子炉の運転をすることができる限界

具体的方針：

- 1) 冷却材の沸騰が生じないこと
- 2) 燃料最高温度が燃料融点(2650 °C)未満となること[未照射燃料]
(もんじゅ設置許可申請書[3.4.1-3]記載の燃料溶融を防止する観点から設定された燃料最高温度の制限値：2650 °C)
- 3) 運転時の異常な過渡変化時の被覆管温度が 830 °C未満となること
[通常運転時は被覆管肉厚中心で 675 °C未満]

上記を踏まえて LLFP 装荷炉心 B における線出力超過への対策として燃料ペレットの製造密度を 85 %から 90 %に変更した炉心の燃料中心温度(中実ペレット燃料)を概略評価した。なお、評価にあたってもんじゅ設置許可申請書[3.4.1-3]記載の下記式を用いた。

$$k(T) = 0.01169 + \frac{1}{\left[0.06717 + \frac{0.02226(1-\rho)}{O/M - 1.90}\right]T} + 7.214 \times 10^{-13}T^3 \quad (3.4.1-1)$$

ここで、 k は熱伝導率、 T は温度(°C)、 ρ は燃料ペレット製造密度(%TD)、 O/M は化学量論比でもんじゅでは 1.97[3.4.1-2]である。これに対応してギャップコンダクタンスは 0.5678 W/cm²°C である。図 3.4.1-7 および表 3.4.1-10 に燃料ペレット製造密度を向上させた場合の燃料最大温度と最大線出力の関係を示す。燃料ペレットの製造密度が 85 %TD の場合、表 3.4.1-5 より CITATION-TRI-Z 計算による通常運転時の最大線出力が 409.1 W/cm であり、表 3.4.1-10 より過出力時に燃料最高温度が 2786 °C となり、2650 °C を超過する。燃料ペレットの製造密度が 90 %TD の場合も、表 3.4.1-9 の結果から通常運転時の最大線出力が 391.6 W/cm であるため、表 3.4.1-10 より過出力時の燃料最高温度が 2667 °C となり、2650 °C を超過する。

次に表 3.4.1-8 の対策②(中空ペレット燃料の採用)について検討した。中空ペレット燃料はもんじゅの高度化炉心において検討されており[3.4.1-9, 10]、燃料最高温度の抑制が期待できる。中空ペレット燃料の温度を燃料稠密化効果を含まない下式により評価した。

$$\int_{T_o}^{T_i} k(T)dT = \frac{q'}{4\pi} \left\{ 1 - 2 \frac{R_i^2}{(R_o^2 - R_i^2)} \ln \frac{R_o}{R_i} \right\} \quad (3.4.1-2)$$

ここで、 i は中空ペレットの内径、 o はペレット外径である。

図 3.4.1-8 および表 3.4.1-10 に温度評価結果を示す。燃料ペレットの製造密度を 90 %TD、ペレット中心に 1 mm 径の空孔をあけた場合、通常運転時の最大線出力が 409.1 W/cm であっても燃料最高温度が 2590 °C であり、温度制限値 2650 °C 以内となった。図 3.4.1-8 より③項で検討した炉心 B の最終的な最大線出力 411.8 W/cm であっても 2650 °C を下回る見通しである。

さらに、上記の条件では被覆管内スミヤ密度が約 82%TD であり、表 3.4.1-2 に示す炉心 B よりも Pu インベントリが増加するため、外側炉心の Pu 富化度を 35 wt% としたまま内側炉心の Pu 富化度を 22.8 wt% から低減することが可能となり、その場合は出力分布平坦化による最大線出力低減効果も期待できる。

以上の結果より、燃料ペレットの中空化、高密度化(例えば中空径 1 mm、燃料ペレットの製造密度 90 %TD)を実施することで、過出力時でも燃料最高温度の制限値 2650 °C を超過しない見通しである。なお、本計算で求めた燃料最高温度は工学的安全係数が含まれない最確値であり、実炉の設計においては温度評価に十分な余裕を考慮するため、表 3.4.1-8 に示すような対策の効果と課題・制約を勘案の上最適な炉心設計を行うことが必要である。

⑦ まとめ

LLFP6 核種の核変換を目的とする 3 種類の炉心 A, B, C の炉心特性を評価した。その結果、燃焼反応度と最大線出力は炉心 B が最も高くなったため、炉心 B を対象に炉停止余裕と出力分布、出力ピーキングの評価を行った。炉心 B はもんじゅ炉心と同等の炉停止余裕を有することを確認したが、最大線出力は 3 次元拡散計算結果より線出力制限値 360 W/cm を超過したため、燃料熔融を防止する観点から対策をまとめ、実施が現実的と考えられる燃料ペレットの高密度化と中空化の効果について検討した。その結果、例えば中空径 1 mm、燃料ペレットの製造密度を 90 %TD とすることで炉心 B の過出力状態を考慮しても燃料熔融を防止できる見込みが得られた。

参考文献

- [3.4.1-1] T. R. Fowler, D. R. Vondy and G. W. Cunningham, “Nuclear Reactor Core Analysis Code: CITATION”, ORNL/TM-2469 Rev. 2, Oak Ridge National Lab., (1971).
- [3.4.1-2] 高下浩文他, “核設計手法報告書(技術報告書)”, 核燃料サイクル開発機構 東海事業所、JNC TN8410 2000-011、2000年5月。
- [3.4.1-3] 高速増殖炉研究開発センター, 原子炉設置許可申請書(高速増殖原型炉もんじゅ原子炉施設)本文および添付資料(一～十一), 独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成18年10月 変更
- [3.4.1-4] M. Goldsmith, “Symmetry Properties of Some Eigenfunctions Occurring in Reactor Analysis,” Nuclear Science and Engineering, 17, 3.4.1-124 (1963).
- [3.4.1-5] M. Makai, “Symmetries and the Coarse-Mesh Method,” Swiss Federal Institute for Reactor Research, EIR-414, 1980.
- [3.4.1-6] M. Makai and J. Arkuszewski, A Hexagonal Coarse-Mesh Program Based on Symmetry Considerations, Trans. Am. Nucl. Soc., 38, 347-349 (1981).
- [3.4.1-7] M. Makai, “Symmetries Applied to Reactor Calculations,” Nuclear Science and Engineering, 82, 338-353 (1982).
- [3.4.1-8] 杉野 和輝, “3次元六角体系用中性子輸送計算コードの整備 -NSHEX、MINIHEX、MINISTRICコードの整備-”, JAEA-Data/Code 2011-018, (2011).
- [3.4.1-9] 金城 秀人, “「もんじゅ」高度化炉心概念の検討”, 敦賀本部 国際技術センター, サイクル機構技報 No. 7, 2000, 6.
- [3.4.1-10] HIDEHITO KINJYO et al., “FEASIBILITY STUDY ON AN UPGRADED FUTURE MONJU CORE CONCEPT WITH EXTENDED OPERATION CYCLE LENGTH OF ONE YEAR AND INCREASED FUEL BURNUP”, NUCLEAR TECHNOLOGY, VOL. 167, P. 254, AUG. 2009.
- [3.4.1-11] 原子力発電環境整備機構, “包括的技術報告書(レビュー版)の概要「包括的技術報告:わが国における安全な地層処分の実現-適切なサイトの選定に向けたセーフティケースの構築-”, p54, 2018年11月21日。
- [3.4.1-12] 羽様 平, 他, “SLAROM-UF: Ultra Fine Group Cell calculation Code for Fast Reactor -Version 20090113 -,” JAEA-Review 2009-003, (2009).
- [3.4.1-13] 飯島進, 他, “多群拡散摂動計算コード PERKY (2002年版)”, JAERI-Data/Code 2002-023, (2002).

表 3.4.1-1 LLFP ターゲット装荷炉心の 2 次元 R-Z 燃焼計算条件

項目	単位	値		
		炉心 A	炉心 B	炉心 C
炉心	—	炉心 A	炉心 B	炉心 C
LLFP ターゲット集合体 (第 1 層) 装荷 LLFP 核種	—	^{135}Cs	^{99}Tc 、 ^{129}I	^{79}Se 、 ^{107}Pd
LLFP ターゲット集合体 (第 2~7 層) 装荷 LLFP 核種	—	^{135}CS	←	←
燃料領域の上部/下部 装荷 LLFP 核種	—	^{93}Zr	←	←
LLFP ターゲット集合体 (第 1 層) 装荷減速材	—	YD_2 (30%TD)	YH_2 (60%TD) ^{*2}	YD_2 (60%TD)
燃焼計算コード	—	CITATION (2 次元 RZ)	←	←
実効断面積計算コード ^{*3}	—	SLAROM-UF ^[3.4.1-12]	←	←
計算に用いるエネルギー群構造	—	79 群 ^{*1}	←	←
炉心出力 (γ 発熱を除く)	MWt	710	←	←
1 サイクル長さ	EFPD	148	←	←
炉心燃料交換バッチ数 (内側炉心/外側炉心)	—	5/5	←	←
LLFP ターゲット集合体 (第 1 層) 交換バッチ数	—	—	8	—
平衡サイクル数	—	10	←	←
Pu 組成 (もんじゅ設計基準組成) Pu-238/239/240/241/242/Am-241	wt%	0/58/24/14/4/0 ^[3.4.1-2]		
Pu 富化度上限値	wt%	35	←	←
燃料ペレット製造密度	%TD	85	←	←
制御棒の B-10 濃縮度 (主炉停止系/後備炉停止系)	wt%	39/90	←	←
制御棒位置(中性子吸収材下端)	—	炉心上端	←	←

*1 添付表 1 に示す 900 群縮約 79 群のエネルギー構造

*2 YH_2 は、図 3.4.1-1 に示す BaI_2 ピンのみ装荷

*3 LLFP ターゲット集合体 (Tc , $\text{BaI}_2\text{-YH}_2$) はリングモデル、その他の領域は均質モデルで計算

表 3. 4. 1-2 LLFP ターゲット装荷炉心の 2 次元 R-Z 燃焼計算結果

項目	単位	炉心 A (Cs)	炉心 B (Tc、I)	炉心 C (Pd、Se)	
Pu 富化度 (Pu/HM) (内側/外側)	wt%	21. 7/33. 4	22. 8/35. 0	22. 0/35. 0	
平衡サイクル末期実効増倍率*1	—	0. 9997	1. 0003	0. 9992	
最大線出力*2 (内側/外側)	平衡初期	W/cm	323. 8/321. 9	352. 4/316. 4	333. 4/331. 2
	平衡末期		321. 2/315. 5	345. 1/311. 8	329. 2/324. 7
出力分担率(内側/外側)	%	56/44	58/42	57/43	
取出平均燃焼度(内側/外側)	GWD/t	91/86	95/81	93/84	
燃焼反応度	%dk/kk'	2. 82	2. 94	2. 85	
増殖比	—	0. 58	0. 55	0. 57	

*1 平衡サイクル末期の実効増倍率 1 を目標に Pu 富化度調整

*2 燃焼ミスマッチ未考慮

表 3. 4. 1-3 LLFP ターゲット装荷炉心の核特性検討条件

項目	ボイド反応度*1 ドップラー係数*2	制御棒価値 (スタック制御棒価値*3)	ピーキング係数*5
計算コード	・ CITATION ・ PERKY ^[3. 4. 1-13] (2 次元 R-Z)	・ MINISTR (拡散計算モジュール) (3 次元 TRI-Z)	・ CITATION (3 次元 TRI-Z)
計算に用いる エネルギー群構造	79 群	79 群	79 群
燃料組成	燃焼計算結果の EOEC 組成*4	燃焼計算結果の BOEC 組成*4	燃焼計算結果の BOEC 組成
反応度計算法	厳密摂動理論	直接計算	—

*1 内側燃料と外側燃料領域のラッパ管内部の Na をボイド化させて評価

*2 内側燃料と外側燃料を定格時の温度から 500 K 昇温させて評価

*3 主炉停止系または後備炉停止系の制御棒全挿入時と制御棒一本のみスタックした際の実効増倍率の差から評価

*4 バッチ交換による燃焼期間の違いを平均化した燃料組成を使用

*5 燃焼ミスマッチ考慮

表 3. 4. 1-4 LLFP ターゲット装荷炉心のナトリウムボイド反応度およびドップラー係数

項目		単位	炉心 A (Cs)	炉心 B (Tc、I)	炉心 C (Pd、Se)
ナトリウム ボイド反応度*1	内側炉心	\$	2.6	2.4	2.5
	外側炉心	\$	-1.2	-1.9	-1.7
	炉心合計	\$	1.4	0.5	0.9
ドップラー係数*2	内側炉心	Tdk/dT×10 ⁻³	-5.5	-5.4	-5.5
	外側炉心	Tdk/dT×10 ⁻³	-1.7	-1.4	-1.2
	炉心合計	Tdk/dT×10 ⁻³	-7.2	-6.8	-6.7
定格時⇒低温停止時*3の ドップラー反応度*4	炉心合計	%dk/kk'	0.9	0.9	0.9

*1 実効遅発中性子割合は 0.353 % (炉心 B の平衡サイクル末期、計算の都合上 70 群で計算)

*2 「もんじゅ」設置許可申請書記載のドップラー係数は-(4.4~7.6)×10⁻³ Tdk/dT

*3 燃料温度が 1142 °C から 180 °C まで低下すると想定

*4 小数点第 2 位を切り上げ

表 3. 4. 1-5 LLFP ターゲット装荷炉心(炉心 B)の最大線出力 (BOEC)

計算 コード	項目	単位	炉心 B				
			11	12	13	14	15
CITATION TRI-Z	最大線出力 (燃焼ミスマッチ未考慮) *1	W/cm	353.8				
	燃料配置 (想定サイクル数)	-	11	12	13	14	15
	出力ピーク集合体位置*2	-	3-9	3-2	2-3	3-12	2-2
	出力ピーク集合体 最大線出力	W/cm	389.2	387.8	409.1	387.3	399.5
	燃焼ミスマッチファクタ	-	1.16				
	出力ピーク集合体平均軸方向 最大線出力(想定サイクル:13)	W/cm	403.7				
集合体内出力 分布計算	集合体内出力ピーキング (集合体最大/集合体平均)	-	1.02				
	最大線出力	W/cm	411.8				

*1 図 3. 4. 1-3 に示す 2 次元 R-Z 体系の各リングに対応する集合体毎に平均した燃焼組成を設定

*2 図 3. 4. 1-6(a) の集合体番号に対応

表 3.4.1-6 LLFP ターゲット装荷炉心(炉心 B)の制御棒価値

項目		実効増倍率 [-]	挿入制御棒価値 [%dk/kk']	1 スタック制御棒価値 [%dk/kk']
制御棒全引き抜き		1.0275	—	—
主炉停止系制御棒全挿入		0.9185	11.55	—
後備炉停止系制御棒全挿入		0.9662	6.17	—
ワンロッド スタック	1-1 CCR スタック*1	0.9291	10.31	1.24
	4-14 CCR スタック	0.9289	10.33	1.22
	6-15 FCR スタック	0.9270	10.55	1.00
	7-15 CCR スタック	0.9265	10.61	0.94
	4-5 BCR スタック*1	0.9782	4.90	1.27
	6-30 BCR スタック	0.9758	5.16	1.01

*1 主炉停止系(CCR、FCR)/後備炉停止系(BCR)においてスタック制御棒価値が最大

表 3.4.1-7 LLFP ターゲット装荷炉心(炉心 B)の炉停止余裕

項目		単位	主炉停止系	後備炉停止系
所要反応度	出力補償*1	%dk/kk'	2.4	2.4
	燃焼補償	%dk/kk'	3.0	—
	運転余裕	%dk/kk'	0.3	—
	炉の反応度の誤差吸収	%dk/kk'	1.0	—
所要反応度の合計		%dk/kk'	6.7	2.4
挿入制御棒価値(1 ロッドスタック考慮)		%dk/kk'	10.3	4.9
余裕反応度*3		%dk/kk'	3.6	2.5 (3.7)*4

*1 もんじゅ設置許可申請書記載の温度係数から算出した低温停止までの温度反応度*2に

表 3.4.1-4 に示す定格時⇒低温停止時に挿入されるドップラー反応度を加えた。

*2 もんじゅ設置許可申請書記載の温度係数

燃料温度係数 $-(3.0\sim 3.9)\times 10^{-6} \Delta k/k/^\circ C$

構造材温度係数 $+(6.0\sim 14)\times 10^{-7} \Delta k/k/^\circ C$

冷却材温度係数 $+(1.0\sim 28)\times 10^{-7} \Delta k/k/^\circ C$

炉心支持板温度係数 $-(10\sim 12)\times 10^{-6} \Delta k/k/^\circ C$

の絶対値が最も大きくなる組み合わせの和に定格時の燃料温度(1142 °C)と低温停止時の冷却材温度(180 °C)の差(=962 °C)をかけて温度反応度を算出。

*3 もんじゅ設置許可申請書では主炉停止系の余裕反応度が 1.4 % $\Delta k/k$ 、後備炉停止系の余裕反応度(1 ロッドスタック未考慮)が 4.1 % $\Delta k/k$

*4 括弧内の値は1 ロッドスタック未考慮の場合

表 3.4.1-8 最大線出力低減策の得失整理

最大線出力抑制対策	期待される効果	課題・制約など
①ペレット製造密度増加	<ul style="list-style-type: none"> • Pu 富化度減少により、径方向出力分布の平坦化が可能 • 燃料の熱伝導度向上により燃料温度が低下 	<ul style="list-style-type: none"> • 被覆管内スミヤ密度が 85%TD 以下であれば PCMI (被覆管-燃料相互作用) を回避できる事を示唆する照射データ^[3.4.1-9, 10]がある。
②中空ペレット燃料の採用	<ul style="list-style-type: none"> • 燃料最高温度の抑制 	<ul style="list-style-type: none"> • 中空ペレット燃料の場合インベントリ低下 • 上記を補うために燃料高密度化、もしくは太径燃料の採用が必要
③燃料有効長の長尺化	<ul style="list-style-type: none"> • 長尺化の度合いに応じて最大線出力低下 	<ul style="list-style-type: none"> • 炉心圧損の増加 • ボイド反応度の増加 • LLFP 核変換率(%/年)の低下
④燃料ピンの細径化による本数増加	<ul style="list-style-type: none"> • 本数増加に反比例して最大線出力低下 • 線出力低下に伴い燃料温度が低下 	<ul style="list-style-type: none"> • インベントリが低下し Pu 富化度が増加 • 炉心圧損が増加 • ピン本数の増加による燃料製造コスト増加
⑤炉出力の低下 (削除したブランケット分の出力低下を想定)	<ul style="list-style-type: none"> • 出力低下に比例して最大線出力が低下 • 線出力低下に伴い燃料温度が低下 	<ul style="list-style-type: none"> • 経済性の悪化 • LLFP 核変換率(%/年)の低下
⑥冷却材流量の増加	<ul style="list-style-type: none"> • 流量増加により燃料温度が低下 	<ul style="list-style-type: none"> • ポンプ揚程増加 • 1次冷却材出口温度低下による熱効率低下 • 流量が燃料温度低減に与える効果は小さい
⑦線出力余裕の見直し	<ul style="list-style-type: none"> • 線出力制限値が増加 	<ul style="list-style-type: none"> • 安全余裕の低下
⑧燃料交換パターン工夫	<ul style="list-style-type: none"> • ハード設計の変更なしに、燃焼ミスマッチファクタを低減できる 	<ul style="list-style-type: none"> • もんじゅの平衡炉心の燃料交換パターンは非公開。 • 六角形状の炉心配置に対して燃料交換バッチ数が 5 であることを考慮し最適な燃料交換パターンを作る必要がある。

表 3. 4. 1-9 LLFP ターゲット装荷炉心 (炉心 B) の 3 次元 TRI-Z 拡散計算結果
燃料ペレット製造密度向上の感度解析

項目	単位	炉心 B	炉心 B (燃料ペレット 製造密度向上)
被覆管内スミヤ密度	%TD	80. 2	85. 0
燃料ペレット製造密度	%TD	85. 0	90. 1
Pu 富化度 (Pu/HM) (内側/外側)	wt%	22. 8/35. 0	21. 2/34. 1
内側炉心出力ピーク集合体 最大線出力	W/cm	409. 1	390. 1* ¹
外側炉心出力ピーク集合体 最大線出力	W/cm	376. 3* ²	391. 6

*1 表 3. 4. 1-5 のケースと同じ集合体位置で確認

*2 燃料ペレット製造密度向上のケースと同じ集合体位置で確認

表 3. 4. 1-10 線出力と燃料中心温度評価結果

線出力 (W/cm)	被覆管平均温度 の最大値 (°C)	燃料最高温度 (°C)		
		燃料ペレット 製造密度 85 %TD	燃料ペレット 製造密度 90 %TD	燃料ペレット 製造密度 95 %TD
通常運転時: ×1. 00 過出力条件: ×1. 16				
中実ペレット (外径 5. 4 mm)				
360×1. 00	589 (76. 5 cm)	2313 (46. 5 cm)	2262 (46. 5 cm)	2195 (46. 5 cm)
360×1. 16	621 (76. 5 cm)	2564 (46. 5 cm)	2519 (46. 5 cm)	2457 (46. 5 cm)
391. 6×1. 00	607 (76. 5 cm)	2454 (46. 5 cm)	2407 (46. 5 cm)	2342 (46. 5 cm)
391. 6×1. 16	642 (76. 5 cm)	2710 (46. 5 cm)	2667 (46. 5 cm)	2609 (46. 5 cm)
409. 1×1. 00	616 (76. 5 cm)	2529 (46. 5 cm)	2483 (46. 5 cm)	2420 (46. 5 cm)
409. 1×1. 16	653 (76. 5 cm)	2786 (46. 5 cm)	2745 (46. 5 cm)	2689 (46. 5 cm)
中空ペレット (内径1 mm, 外径5. 4 mm)				
360×1. 00	589 (76. 5 cm)	2168 (46. 5 cm)	2119 (46. 5 cm)	2054 (46. 5 cm)
360×1. 16	621 (76. 5 cm)	2413 (46. 5 cm)	2368 (46. 5 cm)	2307 (46. 5 cm)
391. 6×1. 00	607 (76. 5 cm)	2306 (46. 5 cm)	2258 (46. 5 cm)	2195 (46. 5 cm)
391. 6×1. 16	642 (76. 5 cm)	2556 (46. 5 cm)	2513 (46. 5 cm)	2455 (46. 5 cm)
409. 1×1. 00	616 (76. 5 cm)	2379 (46. 5 cm)	2333 (46. 5 cm)	2271 (46. 5 cm)
409. 1×1. 16	653 (76. 5 cm)	2631 (46. 5 cm)	2590 (46. 5 cm)	2534 (46. 5 cm)

注) 括弧内は温度評価の軸方向位置を示す。

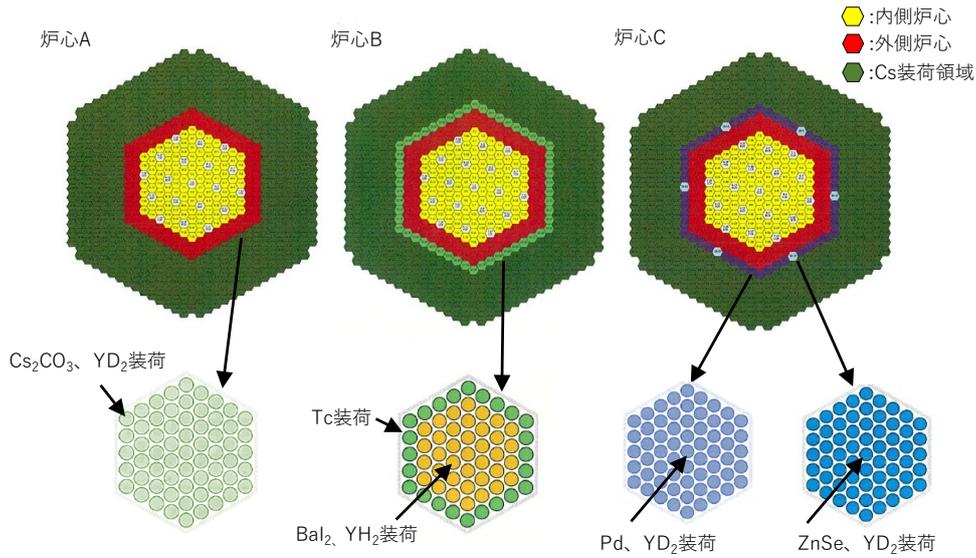
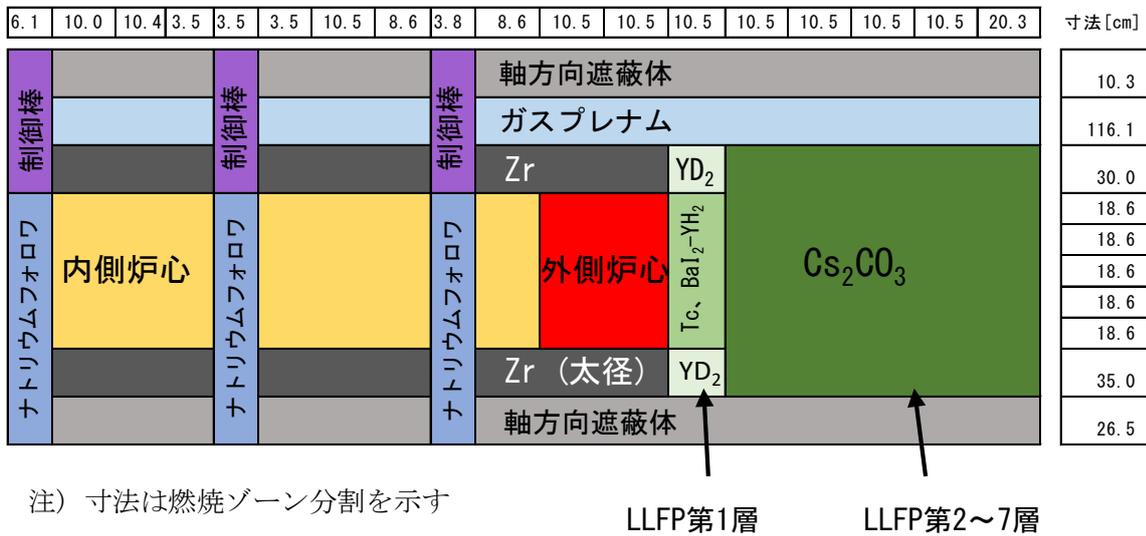
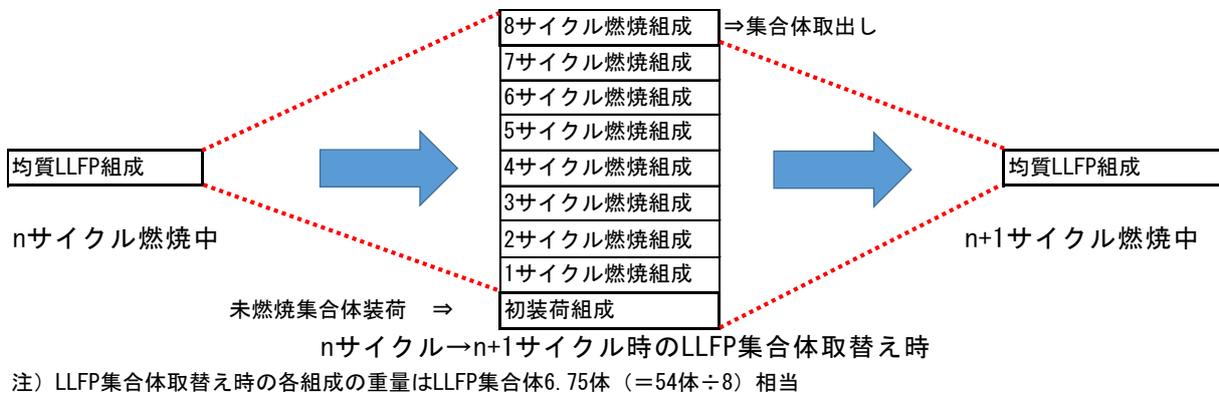


図 3.4. 1-1 LLFP ターゲット装荷炉心の構成



(a) 2次元 R-Z 炉心体系



(b) 燃焼計算中の LLFP ターゲット集合体のバッチ交換

図 3.4. 1-2 燃焼計算のモデル (炉心 B)

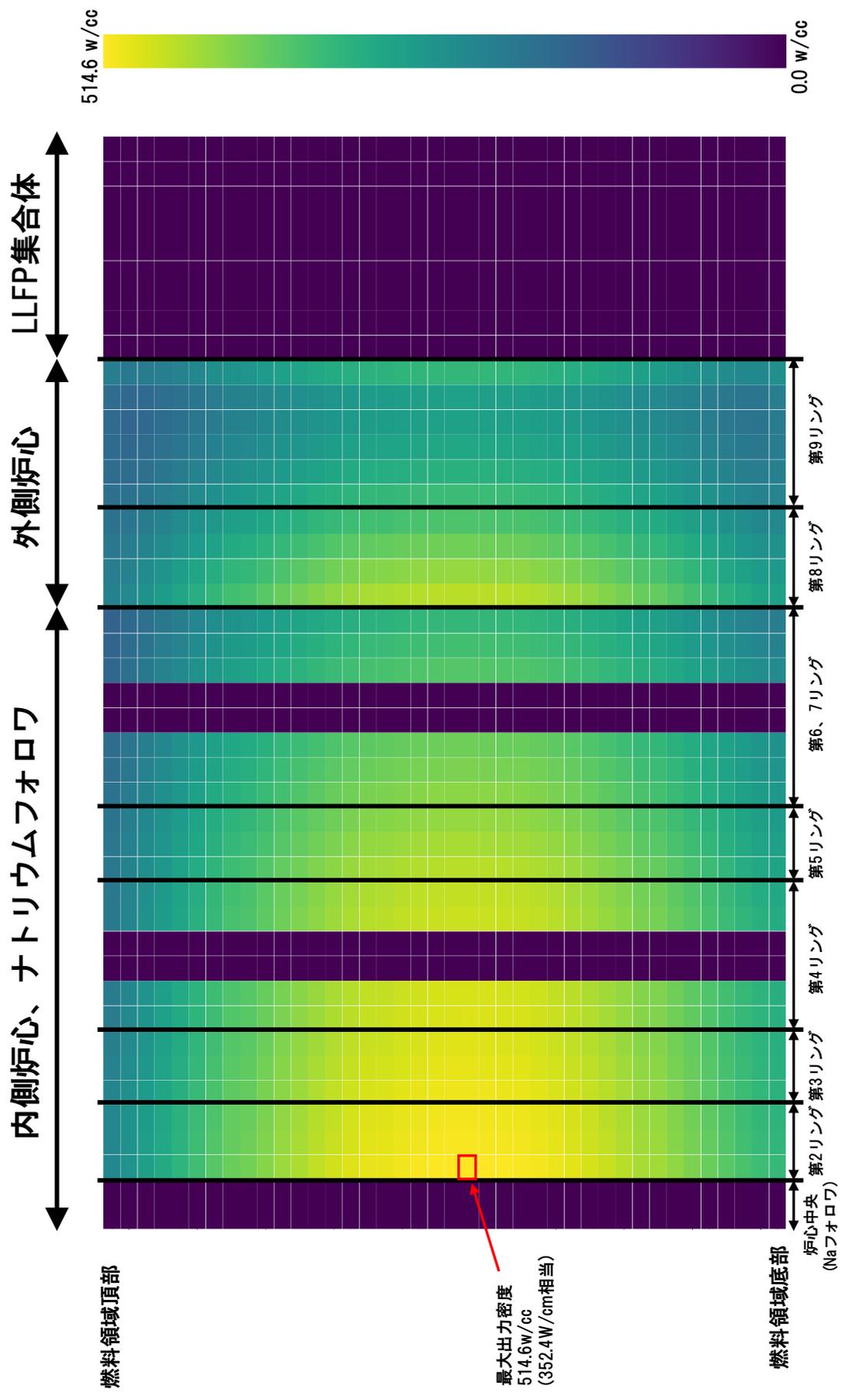
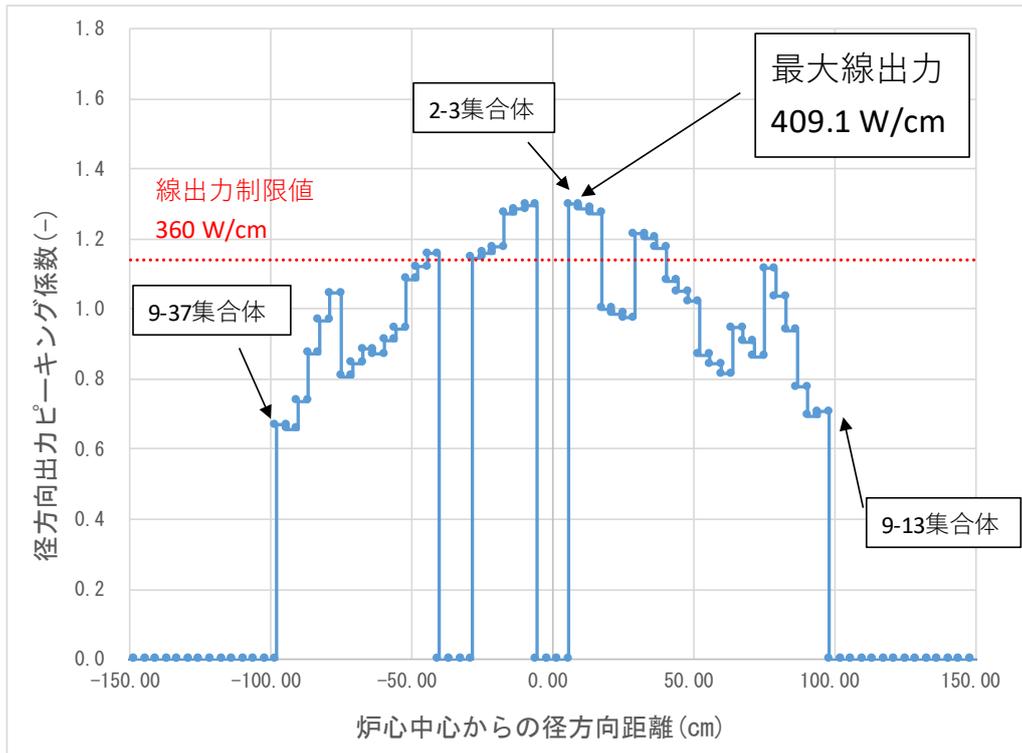
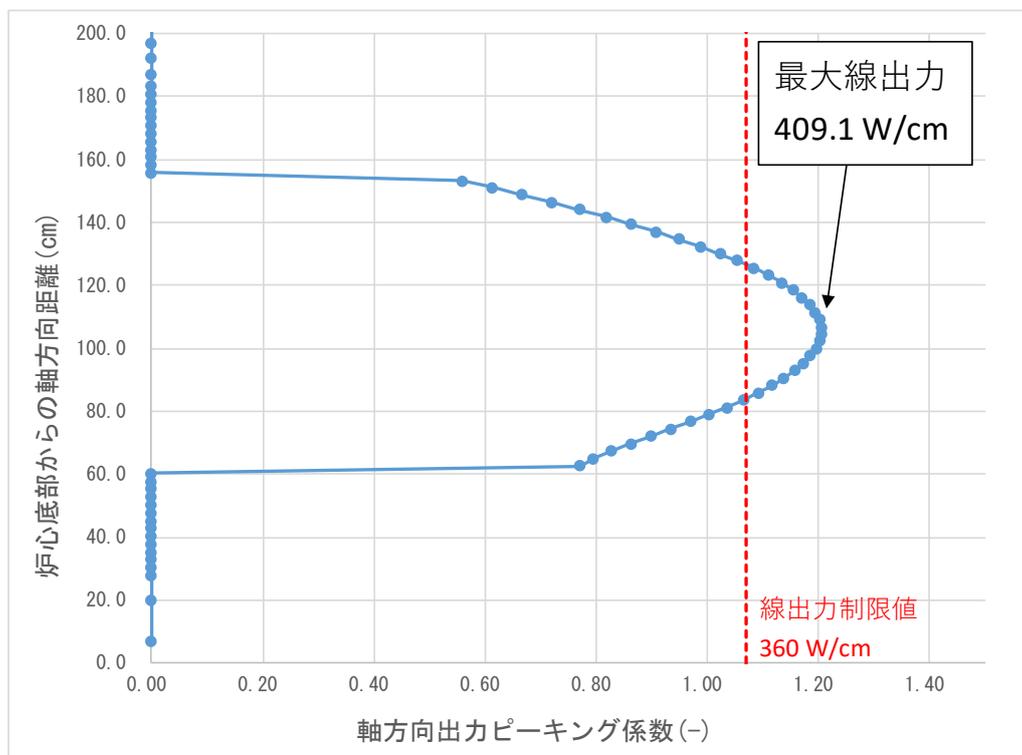


図 3. 4. 1-3 2次元 R-Z 体系で計算した B0EC における燃料領域の出力分布 (炉心 B)

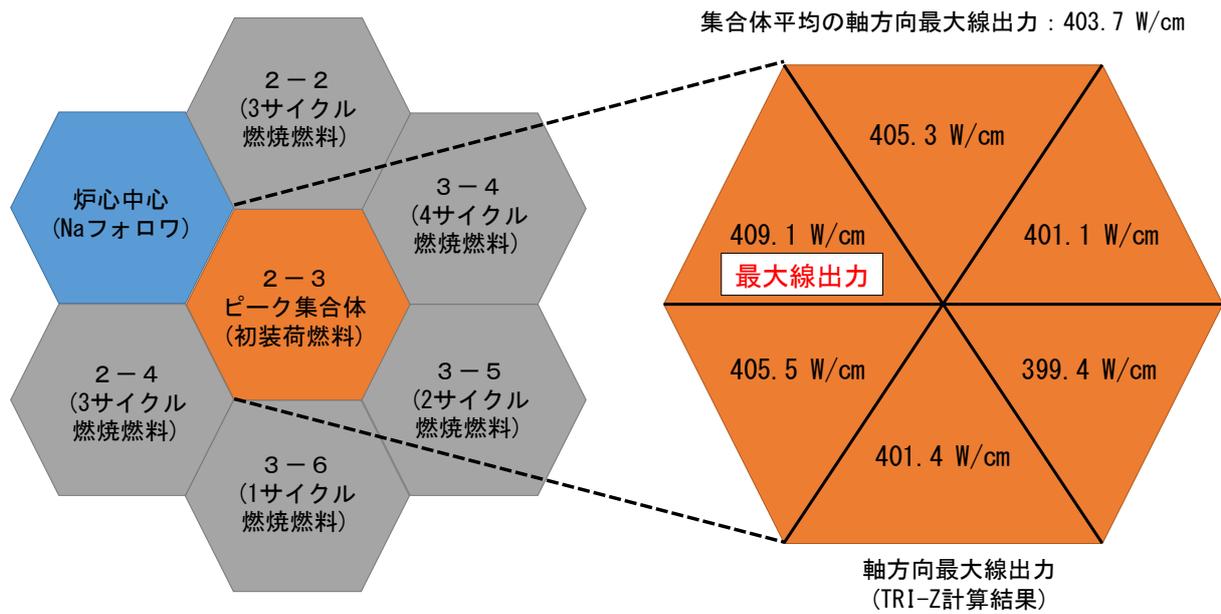


(a) TRI-Z 拡散計算による燃焼ミスマッチを考慮した径方向(図 3. 4. 1-6(a)における 9-37 集合体から 9-13 集合体の方向)出力ピーキング係数 (想定サイクル数:13)



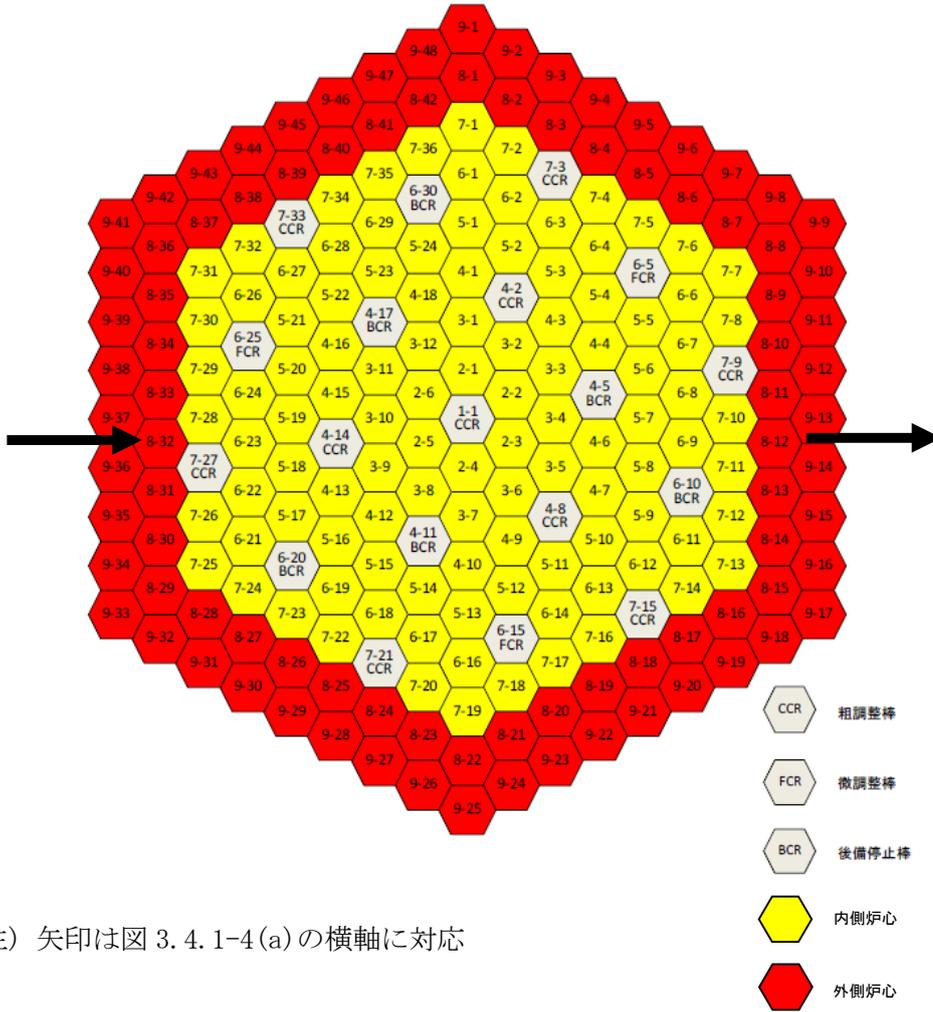
(b) TRI-Z 拡散計算による燃焼ミスマッチを考慮した軸方向出力ピーキング係数 (想定サイクル数:13、2-3 集合体の最大線出力位置)

図 3. 4. 1-4 炉心 B の出力ピーキング係数(3次元 TRI-Z 拡散計算結果) (BOEC)



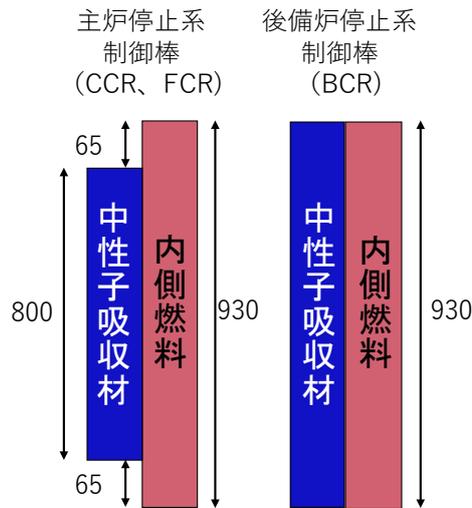
注) 集合体番号は図 3.4.1-6(a)に対応している。

図 3.4.1-5 炉心 B のピーク集合体内の最大線出力(3次元 TRI-Z 拡散計算結果)
(想定サイクル数:13)



注) 矢印は図 3. 4. 1-4 (a) の横軸に対応

(a) 制御棒配置



(b) 制御棒挿入時の中性子吸収材の軸方向位置

図 3. 4. 1-6 制御棒位置

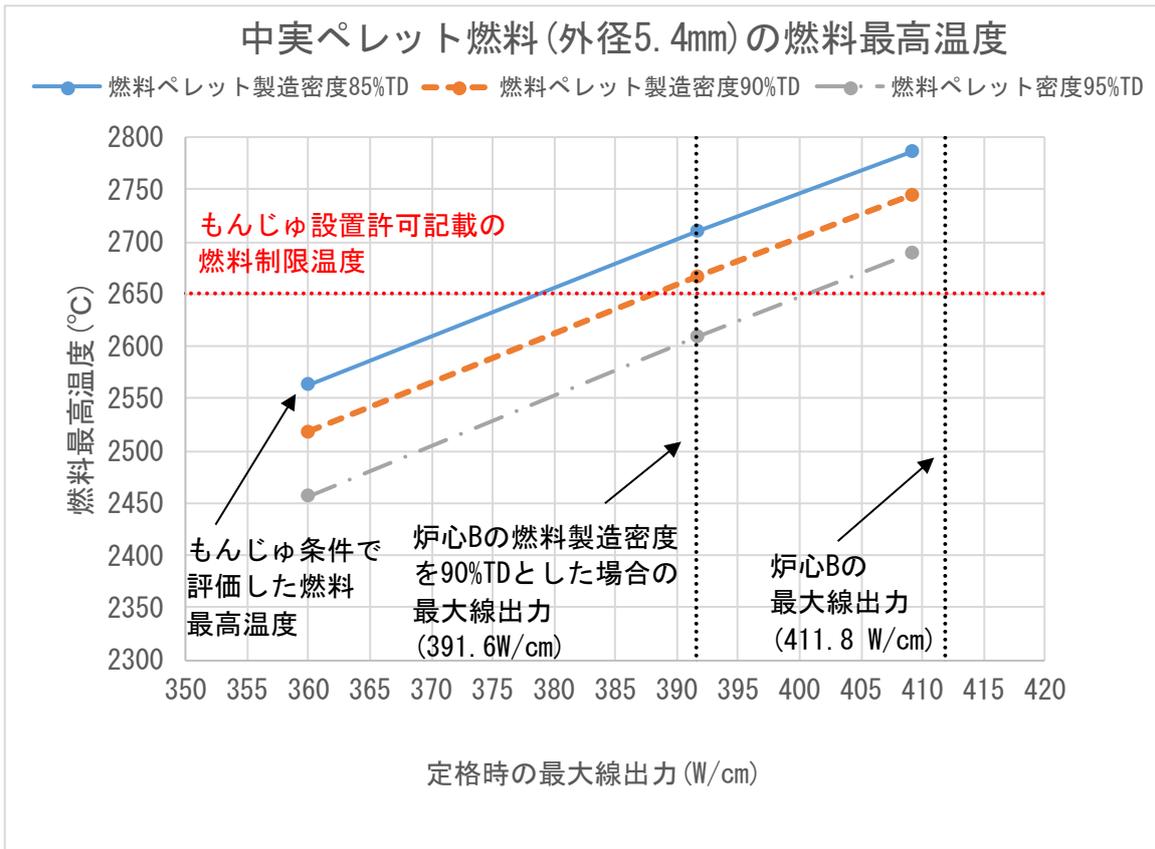


図 3. 4. 1-7 定格時の最大線出力と過出力時の燃料最高温度の関係(中実燃料ペレット)

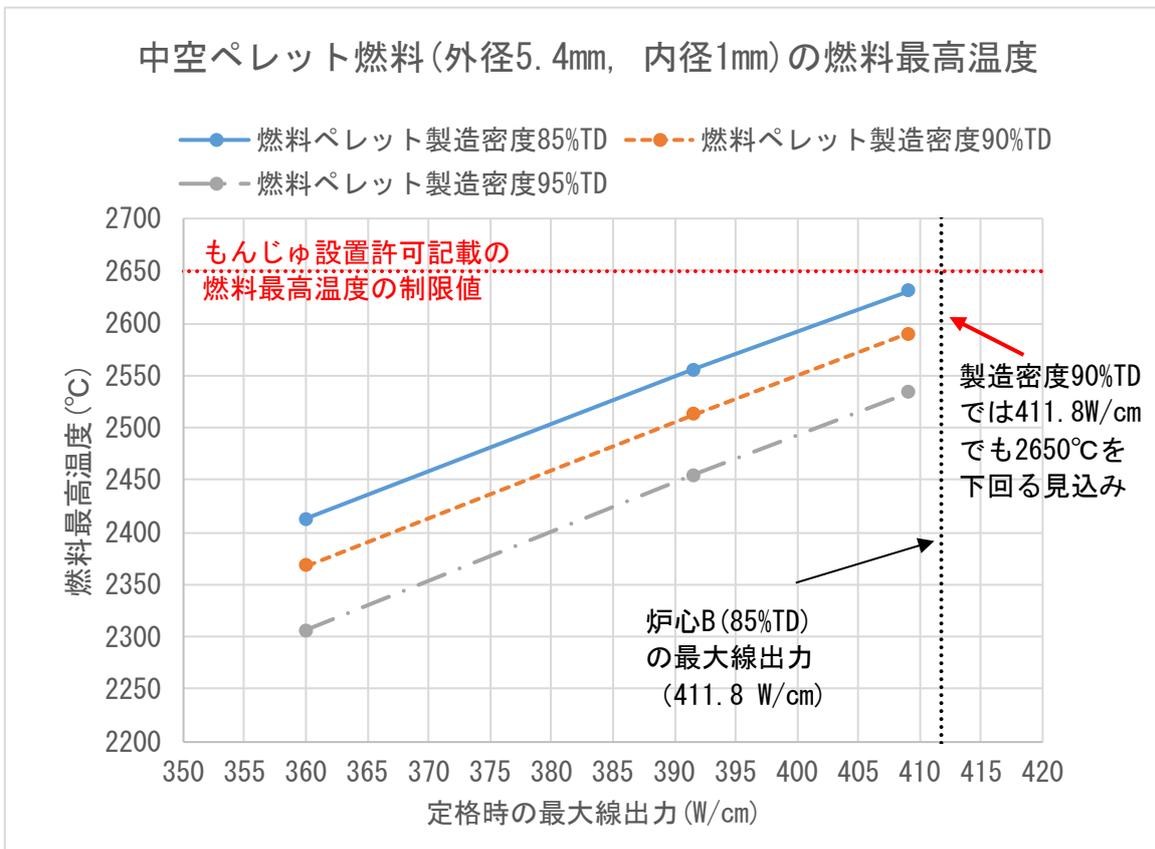


図 3. 4. 1-8 定格時の最大線出力と過出力時の燃料最高温度の関係(中空燃料ペレット)

付表 3.4.1-1 (1/2) 70 群炉定数ライブラリと 900 群縮約 79 群のエネルギー構造(1/2)

Group	Upper energy (eV)		lethargy	
	UFLIB. J40 70 群	900 群縮約 79 群	UFLIB. J40 70 群	900 群縮約 79 群
1	2.00000E+07	←	0.94315	←
2	7.78801E+06	←	0.25000	←
3	6.06531E+06	←	0.25000	←
4	4.72367E+06	←	0.25000	←
5	3.67879E+06	←	0.25000	←
6	2.86505E+06	←	0.25000	←
7	2.23130E+06	←	0.25000	←
8	1.73774E+06	←	0.25000	←
9	1.35335E+06	←	0.25000	←
10	1.05399E+06	←	0.25000	←
11	8.20850E+05	←	0.25000	←
12	6.39279E+05	←	0.25000	←
13	4.97871E+05	←	0.25000	←
14	3.87742E+05	←	0.25000	←
15	3.01974E+05	←	0.25000	←
16	2.35178E+05	←	0.25000	←
17	1.83156E+05	←	0.25000	←
18	1.42642E+05	←	0.25000	←
19	1.11090E+05	←	0.25000	←
20	8.65170E+04	←	0.25000	←
21	6.73795E+04	←	0.25000	←
22	5.24752E+04	←	0.25000	←
23	4.08677E+04	←	0.25000	←
24	3.18278E+04	←	0.25000	←
25	2.47875E+04	←	0.25000	←
26	1.93045E+04	←	0.25000	←
27	1.50344E+04	←	0.25000	←
28	1.17088E+04	←	0.25000	←
29	9.11882E+03	←	0.25000	←
30	7.10174E+03	←	0.25000	←
31	5.53084E+03	←	0.25000	←
32	4.30743E+03	←	0.25000	←
33	3.35463E+03	←	0.25000	←
34	2.61259E+03	←	0.25000	←
35	2.03468E+03	←	0.25000	←
36	1.58461E+03	←	0.25000	←
37	1.23410E+03	←	0.25000	←
38	9.61180E+02	←	0.25000	←
39	7.48518E+02	←	0.25000	←
40	5.82947E+02	←	0.25000	←
41	4.53999E+02	←	0.25000	←
42	3.53575E+02	←	0.25000	←
43	2.75365E+02	←	0.25000	←
44	2.14454E+02	←	0.25000	←
45	1.67017E+02	←	0.25000	←
46	1.30073E+02	←	0.25000	←
47	1.01301E+02	←	0.25000	←
48	7.88932E+01	←	0.25000	←
49	6.14421E+01	←	0.25000	←

付表 3.4.1-1 (2/2) 70 群炉定数ライブラリと 900 群縮約 79 群のエネルギー構造 (2/2)

Group	Upper energy (eV)		lethargy	
	UFLIB. J40 70 群	900 群縮約 79 群	UFLIB. J40 70 群	900 群縮約 79 群
50	4.78512E+01	←	0.25000	←
51	3.72665E+01	←	0.25000	←
52	2.90232E+01	←	0.25000	←
53	2.26033E+01	←	0.25000	←
54	1.76035E+01	←	0.25000	←
55	1.37096E+01	←	0.25000	←
56	1.06770E+01	←	0.25000	←
57	8.31529E+00	←	0.25000	←
58	6.47595E+00	←	0.25000	←
59	5.04348E+00	←	0.25000	←
60	3.92786E+00	←	0.25000	←
61	3.05902E+00	←	0.25000	←
62	2.38237E+00	←	0.25000	←
63	1.85539E+00	←	0.25000	←
64	1.44498E+00	←	0.25000	←
65	1.12535E+00	←	0.25000	←
66	8.76425E-01	←	0.25000	←
67	6.82560E-01	←	0.25000	←
68	5.31579E-01	←	0.25000	←
69	4.13994E-01	←	0.25000	←
70	3.22419E-01	←	10.38102	0.12500
71	—	2.84533E-01	—	0.12500
72	—	2.51100E-01	—	0.12500
73	—	2.21595E-01	—	0.12500
74	—	1.95557E-01	—	0.12500
75	—	1.72578E-01	—	0.12500
76	—	1.52300E-01	—	0.25000
77	—	1.18611E-01	—	2.00000
78	—	1.60523E-02	—	3.00000
79	—	7.99196E-04	—	4.38102

付録1 LLFPの炉心内装荷

減速材を用いた径・軸方向ブランケット位置へのLLFP装荷方式では、下記の課題がある。

- ・ブランケットの削除による炉心出力分担率の増加および増殖比の低下
- ・LLFPターゲット集合体に含まれる減速材による隣接燃料集合体での出力ピークの発生
- ・大型炉心でのLLFP核変換率およびサポートファクタの低下

そこで、軸方向・径方向ブランケットを維持するLLFP装荷法の可能性について検討するため、付図3.4.1-1に示すように減速材を含まないLLFPピンを燃料集合体の6つの角に配置した炉心(炉心D)の炉心特性を評価した。

検討条件を付表3.4.1-2に示す。装荷するLLFP核種は、地層処分後の放射性核種の移行量を考慮した生活圏での被ばく線量の支配核種(処分場閉鎖後約10万年まで支配的)である ^{129}I [3.4.1-11]とし、化学形態は炉心Bと同じ BaI_2 とした。その他のLLFP核種は装荷せず、炉心A~Cとは異なり、軸方向ブランケットおよび径方向ブランケット集合体は装荷する。

炉心Dは減速材を用いないため、計算には通常の高速炉用70群ライブラリと同じエネルギー群構造を用いた。LLFPピンを含む燃料ピンの実効断面積はLLFPピンが集合体の角に存在する効果を簡易的に考慮するため付図3.4.1-2に示す多重リングモデルで計算し、その結果を用いて付図3.4.1-3に示す炉心Dの2次元体系で拡散燃焼計算を行った。

検討結果を付表3.4.1-3に示す。ブランケットを維持したことにより、炉心部の出力分担率が炉心Bと比較して減少し、最大線出力は約300 W/cmとなり、1.16程度の燃焼ミスマッチファクタを考慮しても線出力制限値360 W/cmを下回る見通しが得られた。

付表3.4.1-3に参考値として示している、「LLFPピンを装荷していないもんじゅ相当の炉心」の解析結果と比較しても、LLFPピンの装荷によるボイド反応度やドップラー係数への影響は小さい。また増殖比は約1.1となり、炉心A~Cとは異なりPuの増殖が可能である。なお、 ^{129}I の年間核変換率は約3.7%/年となった。

まとめると、LLFP6核種のうち、地層処分後約10万年までの被ばく線量の支配核種となる ^{129}I のみを燃料集合体内に装荷し、軸・径方向ブランケットを維持した炉心の特性を評価した。その結果、ボイド反応度、ドップラー反応度に大きな影響を与えることなく、増殖比は約1.1、 ^{129}I の年間核変換率が約3.7%/年となることを確認した。ここでは、LLFP集合体の炉内装荷による炉心への影響や核変換への効果を評価したものであり、より具体的な検討においては物性や熱的制限等も考慮する必要がある。

付表 3. 4. 1-2 燃料集合体内 LLFP 装荷炉心（炉心 D）検討条件

項目	単位	値
炉心	—	炉心 D
燃料集合体内装荷 LLFP 核種	—	^{129}I
LLFP ピン装荷位置		内側/外側炉心燃料集合体の角 6 ピン (付図 3. 4. 1-1)
燃焼計算コード	—	CITATION (2 次元 RZ)
計算に用いるエネルギー群構造	—	70 群
炉心出力 (γ 発熱を除く)	MWt	710
1 サイクル長さ	EFPD	148
炉心燃料交換バッチ数 (内側炉心/外側炉心)	—	5/5
径方向ブランケット交換バッチ数	—	5
平衡サイクル数	—	10
Pu 組成 (もんじゅ設計基準組成) Pu-238/239/240/241/242/Am-241	wt%	0/58/24/14/4/0 ^[3. 4. 1-2]
Pu 富化度上限値	wt%	35
燃料ペレット製造密度	%TD	85
制御棒の B-10 濃縮度 (主炉停止系/後備炉停止系)	wt%	39/90
制御棒位置(中性子吸収材下端)	—	炉心上端

付表 3.4.1-3 LLFP ターゲット装荷炉心の 2 次元 R-Z 拡散燃焼計算および摂動計算結果 (炉心 D)

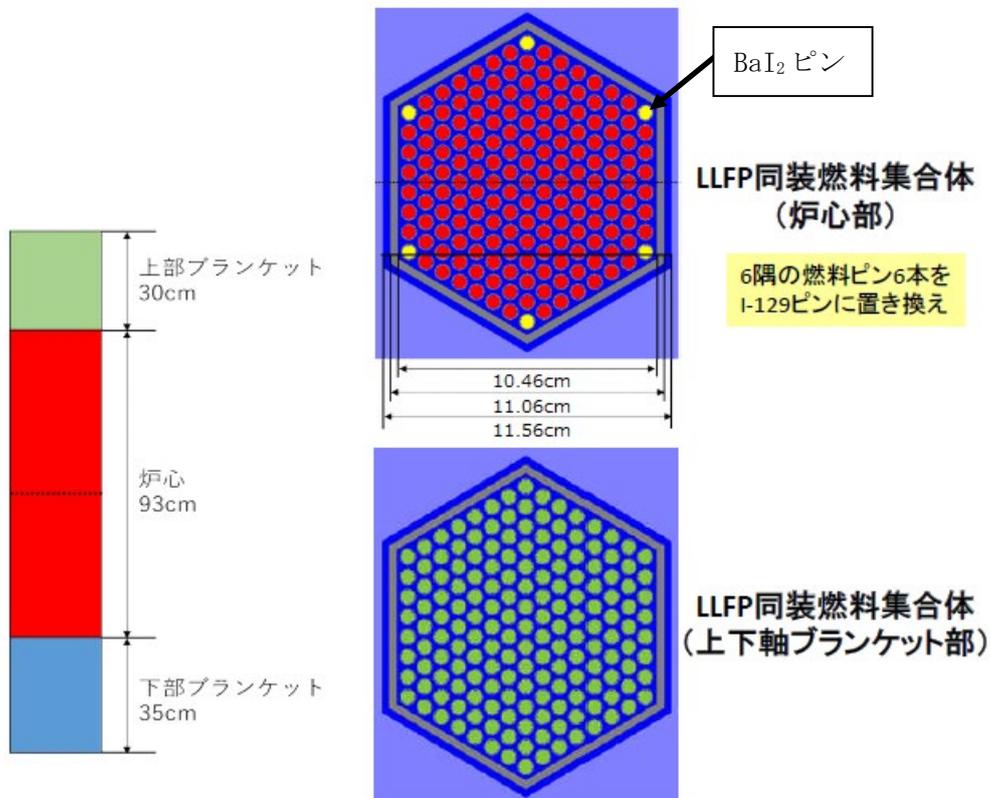
項 目		単位	炉心 D (¹²⁹ I)	LLFP 装荷しない もんじゅ相当炉心*4 (参考値)
Pu 富化度 (Pu/HM) (内側/外側)		wt%	22.4/32.0	21.2/30.8
平衡サイクル末期実効増倍率*1		—	1.0010	1.0013
最大線出力*2 (内側/外側)	平衡初期	W/cm	298.9/295.0	297.7/298.0
	平衡末期		286.1/283.5	286.4/286.0
燃焼反応度		%dk/kk'	2.3	2.2
増殖比		—	1.12	1.15
実効遅発中性子割合		%	0.361	0.364
ボイド反応度		\$	1.7	1.6
ドップラー係数		Tdk/dT × 10 ⁻³	-6.4	-7.1
取出し LLFP (¹²⁹ I) 核変換率 (5 サイクル)*3		%	7.6	—
取出し LLFP (¹²⁹ I) 年間核変換率*3		%/年	3.7	—
平衡サイクルの LLFP (¹²⁹ I) 核変換量		kg/年	2.3	—

*1 平衡サイクル末期の実効増倍率 1 を目標に Pu 富化度調整

*2 燃焼ミスマッチ未考慮

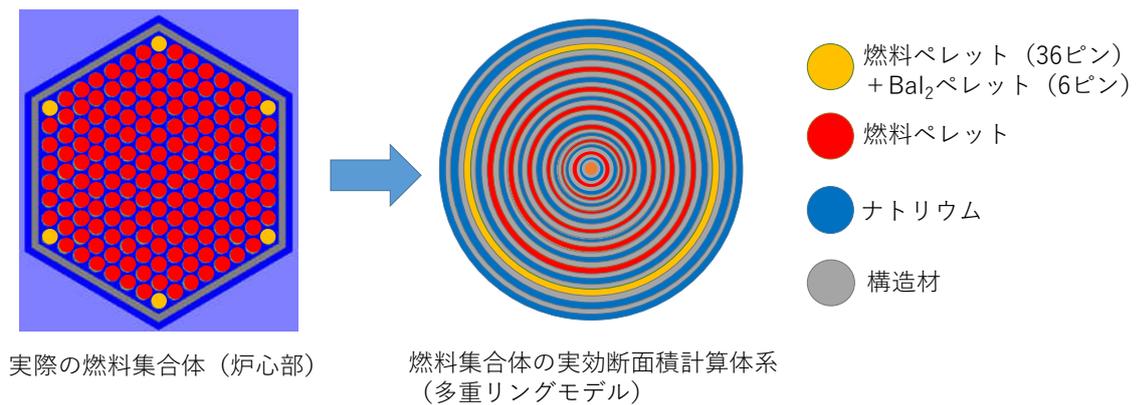
*3 参考結果

*4 LLFP を装荷しないこと以外は付表 3.4.1-2 の条件と同じとした。



7

付図 3. 4. 1-1 燃料集合体中に配置した LLFP ピンの位置 (炉心 D)



付図 3. 4. 1-2 燃料集合体の実効断面積を計算する際の多重リングモデル (炉心 D)

6.1	10.0	10.4	3.5	3.5	3.5	10.5	8.6	3.8	8.6	10.5	10.5	10.5	10.5	10.5	10.5	10.5	20.3	寸法 [cm]
制御棒			制御棒		軸方向	制御棒	軸方向遮蔽体					径方向遮蔽体	10.3					
				ガスプレナム					116.1									
				ブランケット					30.0									
ナトリウムフロー	内側炉心 (含BaI ₂ ピン)	ナトリウムフロー	軸方向	ナトリウムフロー	軸方向	ナトリウムフロー	外側炉心 (含BaI ₂ ピン)	径方向 ブランケット	18.6									
									18.6									
		軸方向	ナトリウムフロー	軸方向	ナトリウムフロー	軸方向遮蔽体	18.6											
							18.6											
							18.6											
						35.0												
						26.5												

付図 3.4.1-3 燃焼計算における 2 次元 R-Z 炉心モデル (炉心 D)

3.4.2 熱特性【H29-R1】

(1) 平成 29 年度の実施内容および成果（再委託先：東京都市大学）

高速炉炉心槽内に核変換ターゲット集合体を装荷した場合の炉心出力分布等の炉心特性解析評価を行った。また、これらのデータを反映して LLFP 集合体の装荷前後の平衡炉心サイクル初期および末期の伝熱流動計算を行うための入力データを作成し、試計算を行った。

炉心特性解析から、LLFP 装荷時の径方向および軸方向の炉内出力分布を評価した。また、核変換ターゲットの物性値および使用制限値を基に各 LLFP を単体で装荷した場合の許容線出力を評価し LLFP ピン仕様の選定・炉内装荷位置選定のデータとした。さらに、セシウムは発熱が大きいことから核変換ターゲット集合体の製造工程（ピンの自然循環、He リーク試験、集合体組み立て時）を想定して必要な冷却時間を設定した。これらの試計算を通して伝熱流動解析に必要な LLFP ペレットの仕様・物性、LLFP 集合体仕様・装荷位置、炉心の出力分布などの熱計算用入力データを作成した。

(2) 平成 30 年度の実施内容および成果

LLFP 核変換炉体系における流量配分を設定するための伝熱流動解析を行った。

LLFP 核変換炉体系における伝熱流動解析より、LLFP ターゲットピンの中心温度が制限温度以下となるための流量配分を設定した。これにより、本解析で示した流量になるように集合体入口部の抵抗を調整することで、LLFP 入り集合体を装荷することができると結論できた。しかし、炉心中央部領域の被覆管中心温度は制限値に近く、サーマルスパイクによるローカルピーキングを低減する工夫が求められる事が判明した。

(3) 令和元年度の実施内容および成果

LLFP 核変換炉体系における冷却材流量配分を決定し LLFP ターゲットの熱的健全性を評価した。

① はじめに

本研究においては、LLFP4 核種 (^{79}Se , ^{99}Tc , ^{107}Pd , ^{129}I) を「もんじゅ」並みの高速炉炉心のブランケット第 1 列（リング 9）（炉心中心を 0 列として第 9 列目）に配置し、全核種に対して核変換率 10%/年でサポートファクタ（SF）が 1 以上となるような炉心配置を可能とすることを検討してきた。しかしながら、この案では、 ^{129}I を装荷した集合体に面した外側炉心の数本のピンに、3 倍を超える局所ピーキングが発生し、内側炉心および外側炉心の集合体全体の流量を限度まで低減し第 8 列の外側炉心集合体にまわすことをしなければ冷却できない状態であった。この状態を改善するため、LLFP は 3 つの独立した炉心で燃焼させ、LLFP の燃焼と同時に増殖比も 3 基平均で 1 を超えるようにし、サーマルスパイクを避けるため ^{129}I ピンの周囲を ^{99}Tc ピンで囲む案が提案された。炉心 A は第 9 列目に ^{135}Cs 単体、炉心 B は $60\text{YH}_2\text{-}40\text{BaI}_2$, (^{129}I)、炉心 C は $60\text{YD}_2\text{-}40\text{Pd}$, (^{107}Pd), $60\text{YD}_2\text{-}40\text{Se}$, (^{79}Se) の集合体案が提案された。第 10 列目以降は、全ての炉心で ^{135}Cs の集合体が装荷される。これら LLFP の集合体に関しては、元来径方向のブランケット集合体が装荷されていた第 9 列からの 3 列および反射体・遮蔽体の 4 列に、目的に合わせピン本数を変更した炉心 B の第 9 列目、全ての炉心の 10 列目以降は、太径化したピンを用いて SF の値を向上させている。LLFP として 1 種類のピンしか装荷されておらず重水素を減速材として用いている

炉心 A、C のピーキングは、水素を減速材として用いた Tc ピンの中性子吸収で高いピーキングが生じる炉心 B より小さくなる。上記の理由によって、炉心 B が熱的に厳しくなる炉心となる。

さらに、炉心の軸方向ブランケットに装荷していた ^{93}Zr をこれまで以上に燃焼させるため、図 3.4.2-1 に示すように駆動燃料集合体の下側に配置してある ^{93}Zr の集合体を上部の燃料と分離した短尺の太径 61 本集合体で置き換えた体系が提案された。3 つの炉心の中で熱水力的に最も厳しくなる炉心は、炉心 B であり、下側の集合体を狭いピッチで配置しているため、流路面積が減少して流動抵抗が増し、集合体の温度が上昇する可能性がある。これら、全ての問題を統合的に解析して、LLFP のペレット、被覆管温度が制限値以内に入るための条件を見出す解析を実施した。しかしながら、 $60\text{YH}_2\text{-}40\text{BaI}_2$ の燃焼に伴い多量の Xe が被覆管内に放出されてペレットの温度を上昇させるため温度制限値を満足することが難しいと判断されたことから、LLFP 集合体の出力を MVP 解析と比較して見直した出力での評価を実施した。

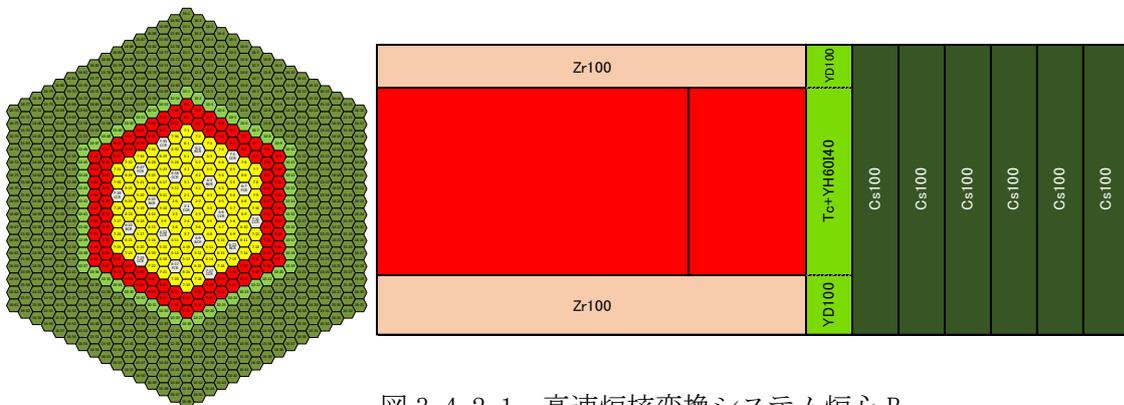


図 3.4.2-1 高速炉核変換システム炉心 B

② 解析モデル

1) システムモデル

炉心を中心の制御棒を取り囲む 6 体から構成される燃料集合体をリング 1 として、順次リング 2、3 のように分割して RELAP5-3D で解析した。図 3.4.2-1 に示している LLFP を装荷した集合体を解析する場合の各リングの集合体の種類を示す。第 1 列は、中心の制御棒を囲む 6 本の集合体で構成されている。

- 1) リング 1-6 : 第 1 列- 第 6 列リング (内側炉心)
- 2) リング 7-8 : 第 7 列- 第 8 列リング (外側炉心)
- 3) リング 9 : 第 9 列、集合体内外側 24 ピンは ^{99}Tc 単体、内側 37 ピンは $60\text{YH}_2\text{-}40\text{BaI}_2$
- 4) リング 10-11 : 第 10 列—第 11 列 Cs_2CO_3
- 5) リング 12 (第 12-14 列) : Cs_2CO_3
- 6) リング 13 (第 15 列) : Cs_2CO_3
- 7) リング 14 : 制御棒を 1 つにまとめた流路

解析モデルを図 3.4.2-2 に示す。炉心は、全燃料集合体、ブランケット集合体、反射体および制御棒を模擬したモデルである。熱輸送系は、「もんじゅ」の 3 ループを模擬しており、中間熱

交換器 (IHX) の 2 次側流量と入口温度を境界条件として解析するようになっている。また、燃料の外側の集合体間熱移行に関しても同時に解析している。本解析モデルは、「もんじゅ」の 45%出力状態で実施されたタービントリップ試験時に得られた炉心出口温度の計測結果で解析モデルの妥当性を確認した。図 3.4.2-3 に「もんじゅ」で計測された炉心出口温度と解析結果の比較を示す。解析結果は、集合体内のピーキングや誤差を考慮しない結果であり、計測結果をほぼ再現する流量配分が設定できていることが分かる。計測結果が開示されていない 10 リング以降の遮蔽体出口の温度は、JAEA の解析結果よりも高くなっているが、これは RELAP5 で集合体間熱移行が解析できるように解析モデルを工夫しており、炉心部中央部からの熱が周辺に移行している結果が解析されているためであると解釈している。

2) 燃料部モデル

燃料の下側に配置してあった軸方向ブランケット部は、燃料から切り離れた 61 ピンの太径 Zr 短尺集合体で置き換えて照射する。このため、燃料部と LLFP 装荷部の集合体解析モデルは、図 3.4.2-4 に示すように、複雑になる。燃料が装荷される流路は、入口部、Zr 部、燃料部、ガスプレナム部、上部遮蔽体部、ラッパー管の 6 種類のヒートストラクチャーで模擬している。これは、熱の授受の機構が異なる部位毎に部品を分けているためである。このため、流体とヒートストラクチャーの位置関係を間違わないようにする細心の注意が必要である。

第 9 リングの集合体の出力分布概略を図 3.4.2-5 に示す。元々の集合体は、61 ピンのブランケット集合体であったが、それを 37 ピンの $60\text{YH}_2\text{-}40\text{BaI}_2$ で置き換え、外側に Tc 単体 24 ピンを配置した集合体になっている。91 ピン集合体の場合には、ピン直径を細くし、61 本の $60\text{YH}_2\text{-}40\text{BaI}_2$ と Tc 単体 30 本の集合体としてピン 1 本当たりの線出力を低下させている。集合体出力は、燃焼初期 (BOC) から燃焼末期 (EOC) にかけて徐々に減少する。周囲に配置した Tc ピンの出力は高くなり、平均出力の 2 倍以上の出力になっているため、このピンを抜き出して解析し、健全性を評価する。61 本集合体の場合、ピン最高出力は、5.735kW であり、ピーキングに換算すると 2.41 に相当する。また、 $60\text{YH}_2\text{-}40\text{BaI}_2$ は、出力が低いものの、燃焼に伴って熱伝導率の悪い Xe が多量にギャップ部に放出されギャップ部で大きな温度上昇があるため、ピンの中心温度に注意する必要がある。このピンの最高出力は、燃焼初期には 1.782kW であり、燃焼末期に Xe が大量に発生した時点では 1.604kW になり、ピーキングに換算すると 0.69 に相当する。第 9 リングより外側のリング 10-15 には全て CS_2CO_3 , (^{135}Cs), が装荷されている。

3) LLFP 熱伝導率

LLFP を装荷するペレットは、LLFP と減速材を混合して構成されている。このため、混合材料の熱伝導率を評価してペレットの温度計算をする必要がある。 $60\text{YH}_2\text{-}40\text{BaI}_2$ の等価熱伝導率は、分散系化合物の熱伝導式[1]を使って推定した。

$$k = \frac{k_p k_c}{(1 - \phi_p) k_p + \phi_p k_c} \quad (1)$$

k_p : LLFP の熱伝導率 [W/m K]

k_c : 減速材の熱伝導率 [W/m K]

ϕ_p : LLFP の体積割合

また、比熱は、次の様に LLFP の質量割合 x に基づき評価した。

$$C_p = x C_{p_p} + (1-x) C_{p_c} \quad (2)$$

$$x = \frac{\phi_p \rho_p}{(1-\phi_p) \rho_c + \phi_p \rho_p} \quad (3)$$

ρ_p : LLFP の密度 [kg/m³]

ρ_c : 減速材の密度 [kg/m³]

C_{p_p} : LLFP の比熱 [J/kg K]

C_{p_c} : 減速材の比熱 [J/kg K]

4) 混合気体熱伝導率

第 9 リングの集合体内の 60YH₂-40BaI₂ は、燃焼によって Xe ガスが発生するため、初期に封入した He ガスと Xe ガスが混合した場合の気体熱伝導率を評価する必要がある。Udoetok [2] によると、混合気体の熱伝導率は、

$$k_{mix} = 0.5 \frac{k_1 k_2}{X_1 k_2 + X_2 k_1} + 0.5 (X_1 k_1 + X_2 k_2) \quad (4)$$

で与えられる。ここで X_i は i 気体のモル分率、 k_i は i 気体の熱伝導率である。上式の妥当性は、種々の混合気体を用いた計測結果と一定の誤差範囲で一致することが確認されている。He の熱伝導率は、Ordzhonikidze [3] の計測値 Xe の熱伝導率に関しては、Jain [4] の式を用いて算出した。

本評価では、基本ケースとして初期に 2MPa で封入した He と核分裂で生成された Xe との混合比が 20% : 80% になった状態を考えている。Xe は熱伝導率が低く、ギャップコンダクタンスを非常に低下させ 60YH₂-40BaI₂ ピンのペレット中心温度を高めてしまうため、特に注意する必要がある。

燃料被覆管ギャップ内の気体熱伝導率は、安全評価で使用されるギャップコンダクタンス 1000BTU/ft² h °F (= 5.678kW/m²K) 相当の熱伝導率を用いて解析した。

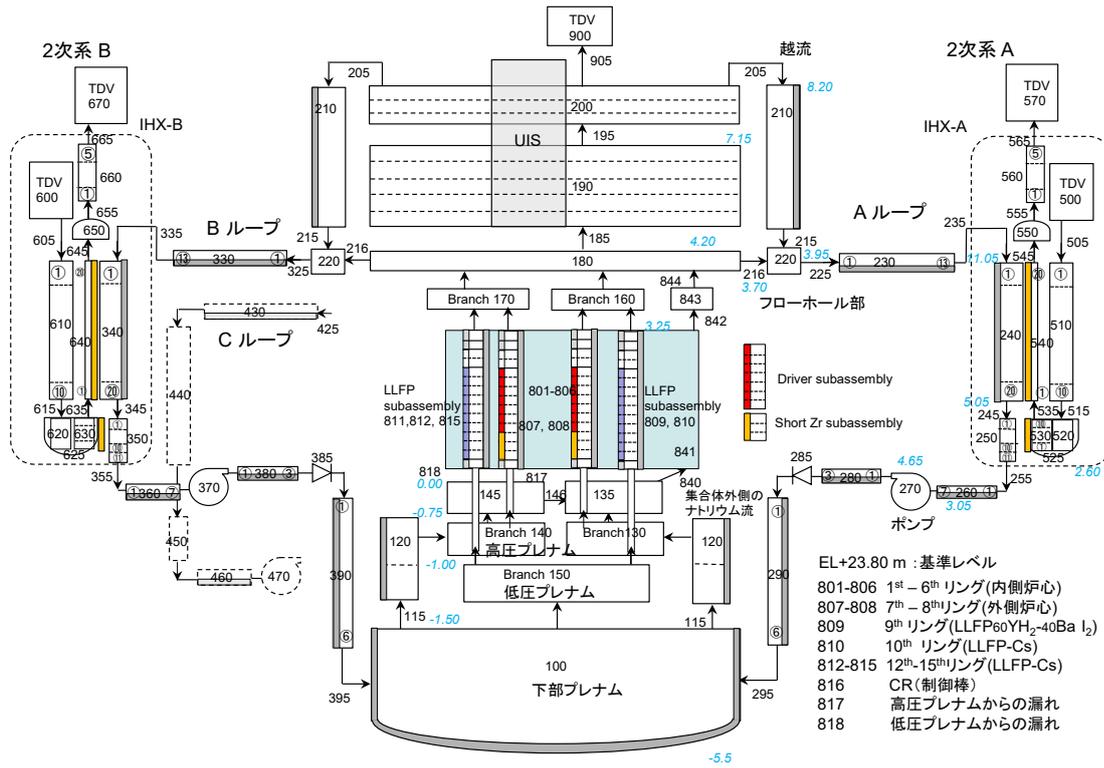


図 3. 4. 2-2 RELAP5-3D による解析対象高速炉核変換炉心の解析モデル

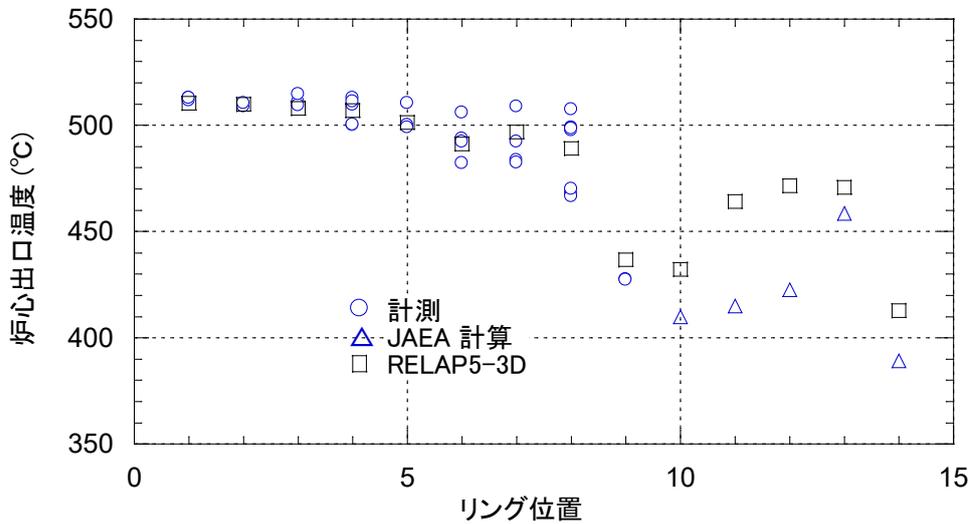


図 3. 4. 2-3 「もんじゅ」タービントリップ試験時の炉心出口温度と解析結果

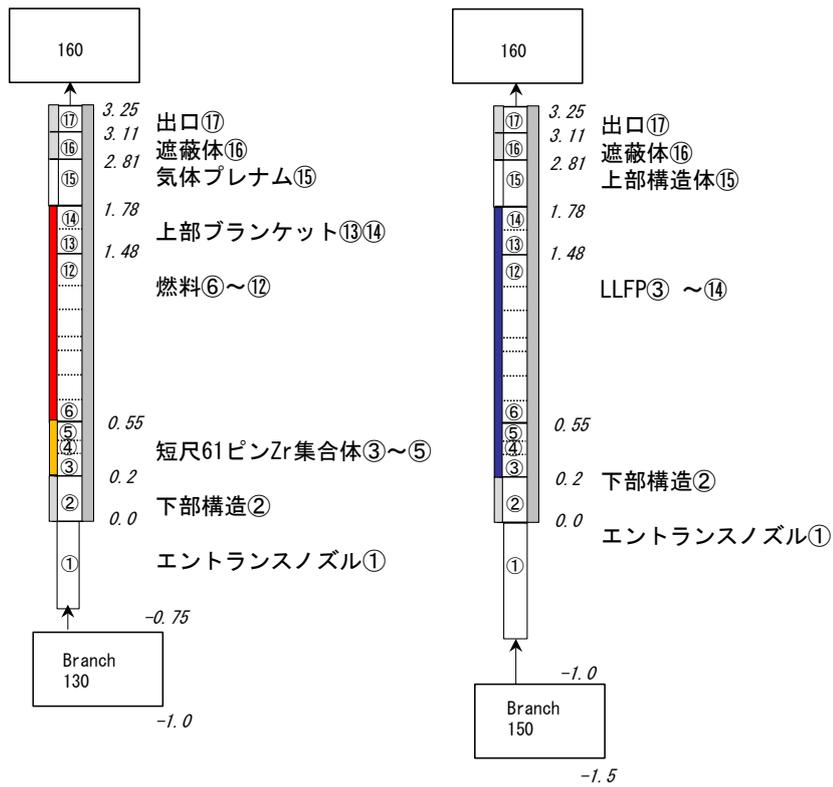


図 3. 4. 2-4 燃料部のモデルと LLFP 集合体のモデル

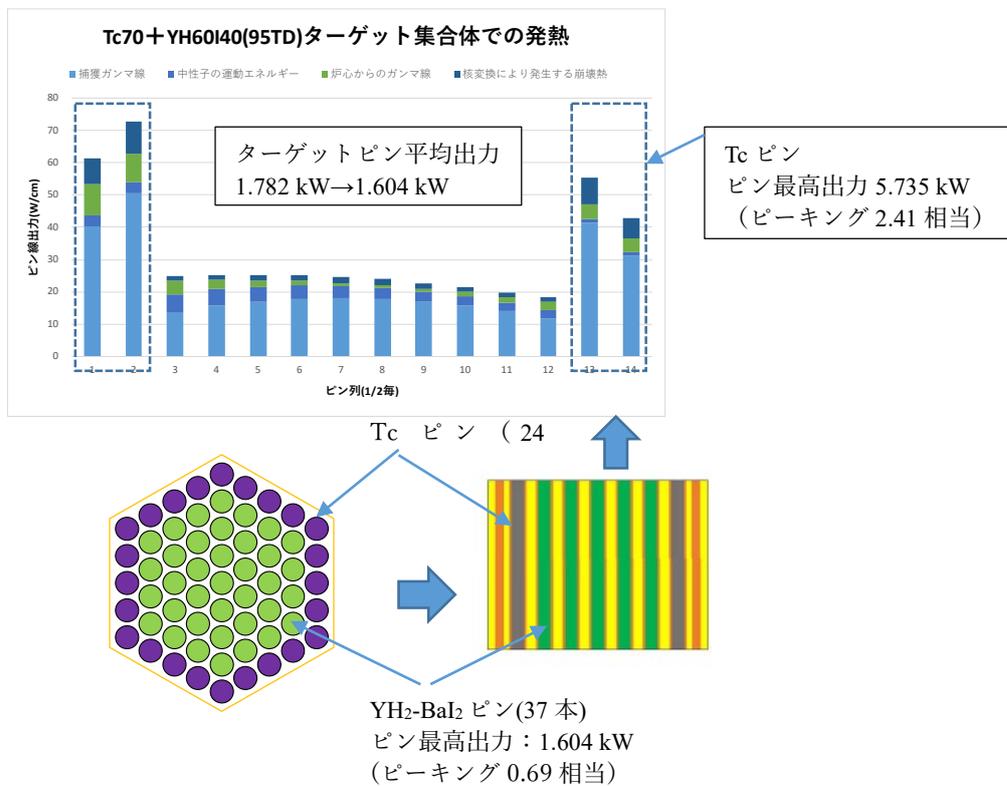


図 3. 4. 2-5 第 9 リングの LLFP 集合体出力分布

③ 解析結果

^{129}I の LLFP ピンを取り囲むように ^{99}Tc ピンを配置したことによって、炉心全体の出力分布は、図 3.4.2-6 に示すように、もともとの炉心と大差ない出力になっており、LLFP を装荷したことによる隣接ドライバーのスパイクは見られていない。しかしながら、燃料下部に流路の狭い太径 61 ピンの短尺集合体を入れたことによって炉心全体の流動抵抗が増加して、図 3.4.2-7 に示すように LLFP 炉心の集合体流量が少し減少する。この条件で、燃料上端位置の被覆管の肉厚中心温度を集合体の局所ピーキングを考慮して評価すると、図 3.4.2-8 に示すような結果になり、被覆管温度が温度制限値内で上昇している。ピーキングは、以下のように設定している。

- 1) 出力誤差 : 1.02
- 2) リング 1-7 燃料集合体の局所ピーキング : 1.208
- 3) LLFP 炉心のリング 8 燃料集合体の局所ピーキング : 1.22
- 4) リング 9 の Tc ピンのピーキング : 2.04

Tc ピンのピーキングは、2.04 と大きいため、このピンだけを切り出した 1 ピン解析を行った。ワイヤスペーサの効果で、周辺ピンの流速が大きくなるが、流量は平均値で与え、出力誤差とピーキングを考慮した大きな出力を 1 ピンに与えて解析した。誤差を考慮した被覆管最高温度とペレット中心温度はそれぞれ、約 456°C、約 504°C となり、健全性上全く問題ない状況である。

同じ燃料集合体には、 $\text{YH}_2\text{-BaI}_2$ ピンが装荷されているため、このピンの中心温度が制限値である 711°C より低くなることを確認した。このペレットからは、燃焼に伴い熱伝導率の低い Xe が放出されるため、初期に He ガスを 2 MPa で封入し、3 年の燃焼で 10% が変換され、Xe が発生して He 分圧が 20% になる場合を想定した。ペレット-被覆管間のギャップは、通常の燃料より狭い 0.07 mm を仮定した。この時の混合気体熱伝導率でギャップ部の熱伝達を考えた場合、 $\text{YH}_2\text{-BaI}_2$ ピンの中心温度は、図 3.4.2-9 に示すように、温度制限値以下になる。燃焼とともにペレットも変形して被覆管に接触する可能性もあるが、初期のギャップが保存されると仮定した場合の結果である。ターゲットピンの出力は、燃焼初期の 1.782 kW から燃焼末期にかけて徐々に減少し、最終的には 1.604 kW となる。初期は、He 濃度が高いため、ギャップの熱伝達が大きく、末期には、Xe が多くなりギャップの熱伝達が悪くなる。

出力に誤差を考慮した場合の解析結果を図 3.4.2-9 に示している。燃焼の結果出力が低下したことを考慮して、He と Xe の濃度費が 20 : 80 になった場合のペレット中心温度は、約 709°C と制限温度範囲に入る。しかしながら、より裕度をもって燃焼させるためには、最大 1.8 mm までの中心空孔を設けることによって、688°C と制限温度に対して約 23°C の裕度となる。

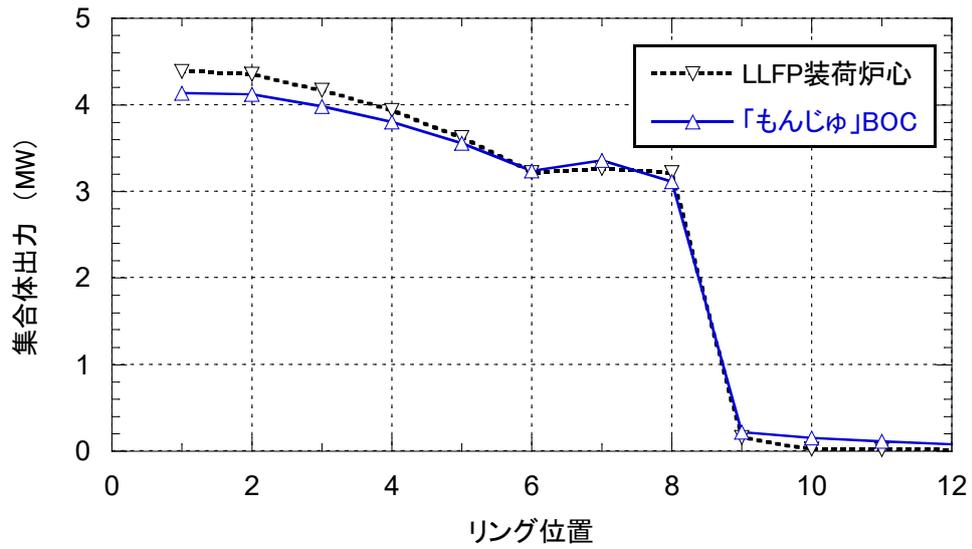


図 3. 4. 2-6 炉心全体の集合体出力の比較

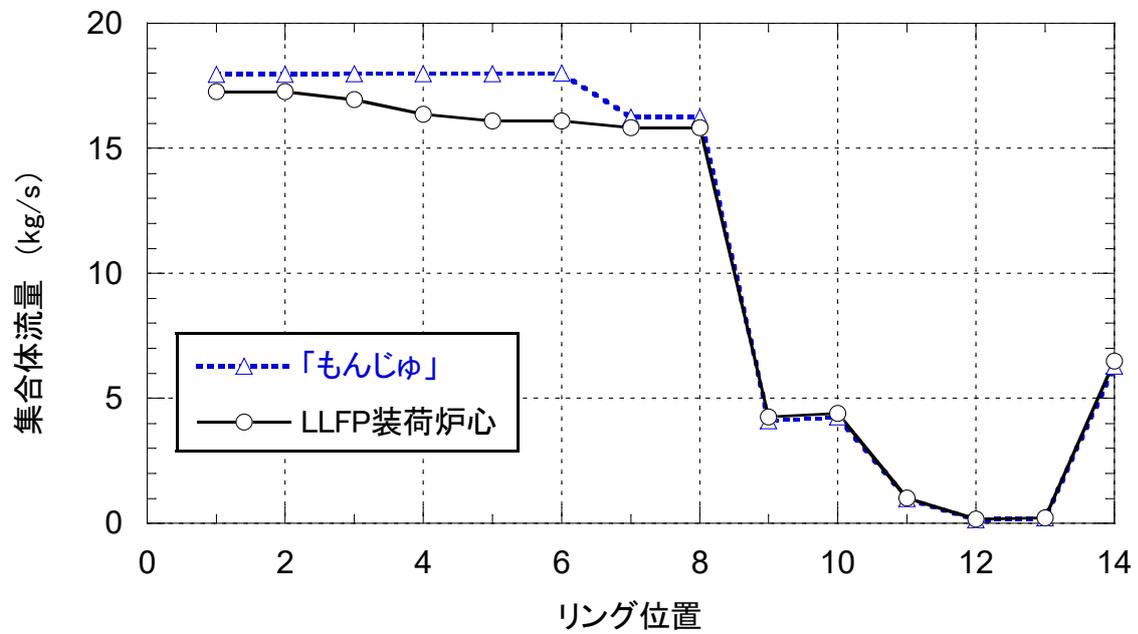


図 3. 4. 2-7 炉心全体の集合体流量比較

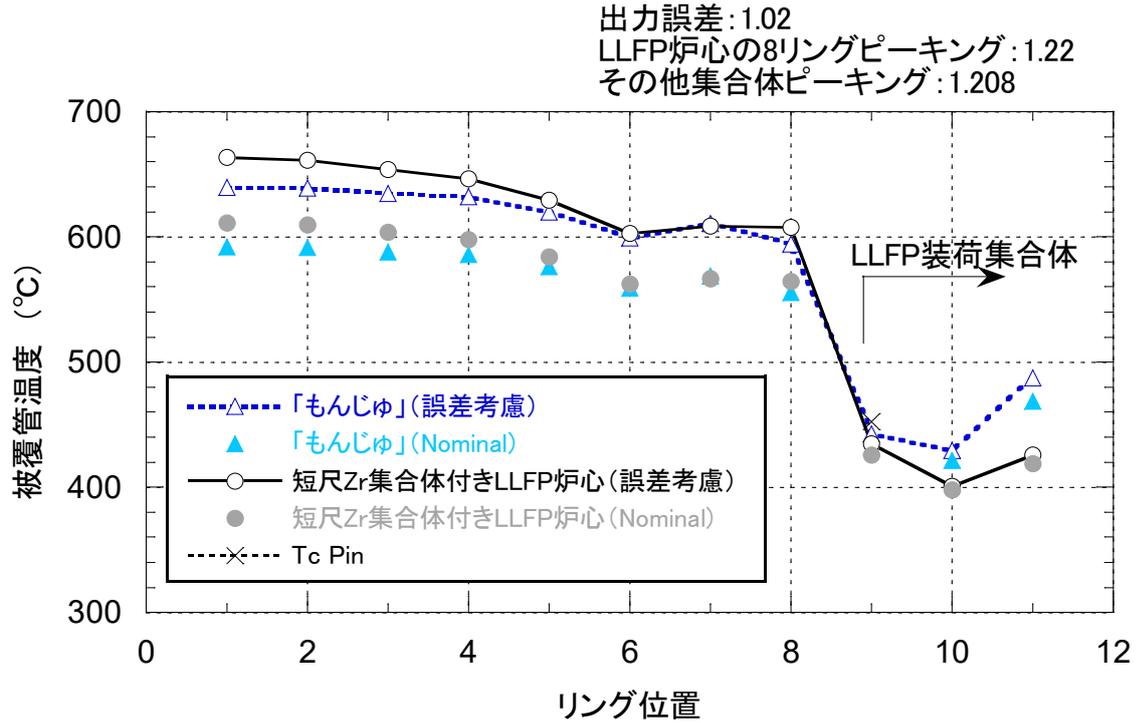


図 3.4.2-8 炉心全体のピーキングを考慮した被覆管温度評価
(リング 1-7 : ピーキング 1.208、リング 8 : ピーキング 1.22、リング 9 の Tc ピンはピーキング 2.44 および出力誤差 1.02 を考慮して被覆管温度を評価)

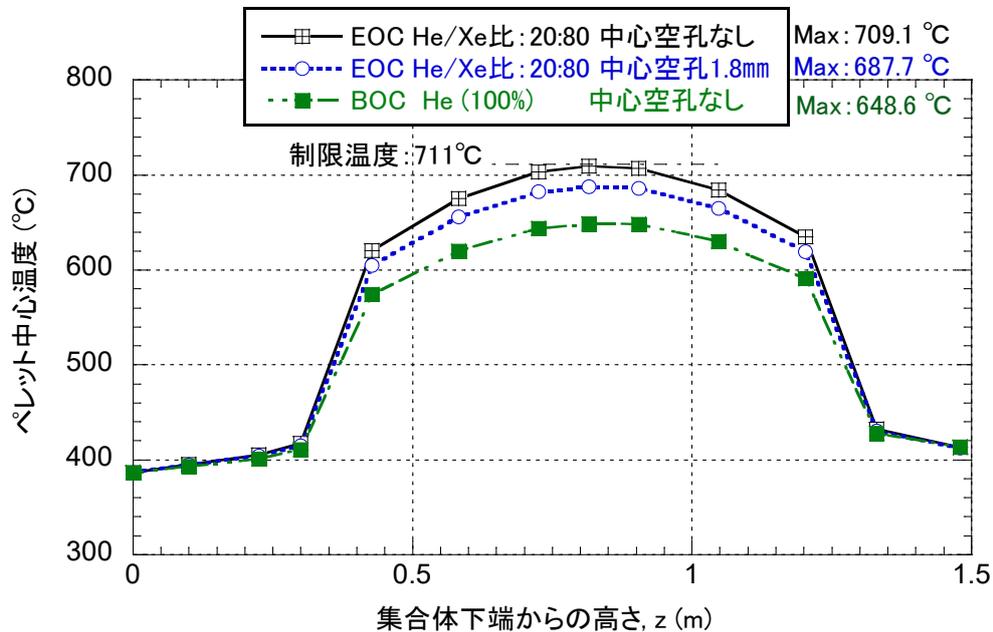


図 3.4.2-9 出力誤差 1.02 を考慮した $\text{YH}_2\text{-BaI}_2$ ピンの中心温度
(中心空孔なし燃焼末期 He : Xe=20% : 80%モル分率時、中心空孔 1.8 mm燃焼末期 He:Xe=20%:80%、および中心空孔なし燃焼初期 He100%のケース)

④ まとめ

炉心全体の被覆管の最高温度は、炉心中央部が最高になり、出力誤差と集合体内ピーキングを考慮した場合 663.8°Cである。被覆管の温度制限は、PNC316 で 675°C、PNC1520 で 700°Cであるため、ブランケットを LLFP 集合体で置き換えて照射しても駆動炉心の健全性には問題を生じない。一方、第 9 リングに装荷される $\text{YH}_2\text{-BaI}_2$ のピンは、ペレット中心温度がギャップ部のガス組成に左右され、初期に 2MPa で封入した He (100 モル%) が発生した Xe ガスで薄まって照射で約 20% に減少するまでは、温度制限値以内で照射できる。このペレットに最大 1.8 mm の中心孔を設けた場合には、約 13°C 前者のケースよりも余裕をもって照射が行える。また、初期には、ピン出力が高いがギャップは He 濃度が高いため、燃焼末期よりはペレット中心温度には余裕がある。

参考文献

- [1] 山田悦郎、分散系混合物の有効熱伝導率、Netsu Bussei, 3, 2 (1989), 78-83.
- [2] E. S. Udoetok, Thermal conductivity of binary mixtures of gases, Frontiers in Heat and Mass Transfer, 4, 023008, (2013), 1-5.
- [3] S. Ordzhonikidze, Temperature dependence of thermal conductivity of helium, Translated from Inzhenerno-Fizicheskii Zhurnal, 32, 5, (1977), 822-824.
- [4] P. C. Jain, The prediction of the thermal conductivity of xenon, J. of Physics D: Applied Physics, 11, (1978), 2371-2373.

3.4.3 安全性（再委託先：東京都市大学）【H30-R1】

(1) 平成30年度の実施内容および成果

ターゲット集合体ピンの破損を想定し、減速材漏出による炉心特性の変化を評価し安全性を確認するため、減速材が分離・放出することによる挿入反応度および出力分布の評価を行った。

ターゲット集合体ピンの破損により検討対象となる事象を抽出し、代表事象として2項目を選定し解析を実施した。一つは、LLFP ターゲットピンが破損して炉心部へ水素・重水素が混入した場合であり、投入反応度は4 ϕ と小さいことが分かった。他の一つは、破損した減速材により流路閉塞が起こる場合であり、YH₂ 減速材では当該集合体の燃料棒出力ピークは過出力係数 1.16 を超えるが、隣接燃料集合体では制限内であることが分かった。

(2) 令和元年度の実施内容および成果

最適化炉心についてターゲット集合体ピンの破損を想定[3.4.3-1]し安全性に影響を与えると考えられる3項目について安全性の評価を行った。また、LLFP ターゲットピンの破損検出方法の概念を検討し提案を行った。

①安全性に影響する原因・事象の想定

もんじゅの許認可[3.4.3-2]、新規制の考え方[3.4.3-3]を参考に、LLFP ターゲットピン（以下、LLFP ピンと称する）を内包する LLFP ターゲット集合体（以下、LLFP 集合体と称する）を含む高速炉の安全性に影響する原因と想定される事象を検討した。

LLFP 集合体を含む高速炉は、表 3.4.3-1 に示すもんじゅの許認可で想定された、運転時の異常な過渡変化、事故、技術的には起こるとは考えられない事象に加えて、LLFP ピンを起因とした安全性に影響する事象を考慮する必要がある。表 3.4.3-2 に LLFP ピンを起因として安全性に影響すると想定される事象とその影響を示す。

1) LLFP ターゲットピン内のペレット移動

表 3.4.3-1 に示す燃料スランピング事故と同様に、偶発的に LLFP ピン内のペレットが移動することを想定する。この場合、LLFP 集合体が炉心周辺部に配置されていることから、反応度の影響は小さいと考えられる。

一方、LLFP 集合体周辺部の LLFP ピン内でペレットが移動した場合、LLFP 集合体内で減速された熱中性子が隣接する燃料集合体に直接飛来し、サーマルスパイクにより局所的に出力が上昇する可能性もある。

そこで、LLFP 集合体周辺部の LLFP ピンのペレット間に隙間が生じた場合の隣接燃料集合体のサーマルスパイク（局所的な出力上昇）を、検討対象として選定する。

2) LLFP ターゲットピンの破損（LLFP 流出）

LLFP ピンの破損に伴い、LLFP が Na 中に流出した場合、通常時被ばくや1次冷却材漏えい事故（Na 火災）等の被ばく評価に影響する。LLFP は崩壊定数が小さいので被ばくに対する影響は小さいと考えられ、検討対象より除外する。

3) LLFP ターゲットピンの破損（減速材流出）

LLFP ピンが破損すると、減速材である水素化イットリウム、重水素化イットリウム（以下それぞれ、 YH_2 、 YD_2 と略す）と解離した水素、重水素（以下それぞれ、 H 、 D と略す）が Na 中に流出する可能性がある。LLFP ピンから Na 中に流出した気体の H_2 、 D_2 は大部分がそのままカバーガス中に放出されると考えられるが、一部は Na に融解して冷却系内を循環して再び炉心に流入すると考えられる。この場合、以下に示す a) 項から f) 項の影響があると想定される。

a) LLFP 核変換効率の低下

減速材の流出により、LLFP 集合体における核変換効率が低下する。しかし、反応度挿入などの炉心の安全性への影響は小さいと予想され、検討対象より除外する。

b) 隣接 LLFP ターゲットピンへのガスジェット

Na 中に流出される解離した H 、 D がジェット形状の気泡を形成し隣接する LLFP ピンに到達して、除熱性能（熱伝達率）の低下などで、隣接 LLFP ピンが破損伝播する可能性がある。しかし、LLFP ピンの発熱（線出力）が小さいこと、「局所事故に関する研究の現状と展開」[3.4.3-4]で燃料ピンを対象としたガスジェットの熱的影響や機械的效果により破損伝播は生じないとされていることから、本事象の影響は小さいと予想され、検討対象より除外する。

c) 減速材、 Na 化合物による流路閉塞

Na 中に流出される減速材や解離した H 、 D と Na の Na 化合物（ NaH 等）が、中間熱交換器や循環ポンプ、燃料集合体で流路閉塞する可能性がある。表 3.4.3-1 で想定しているもんじゅの閉塞物は構造材であるが、減速材が閉塞した場合は中性子の減速効果によるサーマルスパイクによる局所過熱の影響を評価する必要がある。このため、本事象を検討対象として選定する。

d) 中間熱交換器の伝熱性能の低下

Na 中に融解できる H 、 D の量は、もんじゅのコールドトラップの設計[3.4.3-5]により次式に示す Vissera らの式で表わすことができる。

$$\log C = 6.067 - 2880/T$$

ここで、 C : 水素融解度（ Wppm 水素）、 T : Na 温度（ K ）を示す。

本式に従い中間熱交換器の熱交換により Na 温度が低下すると、原子炉容器上部プレナムにおいて Na 中に融解した H 、 D が気体となり、中間熱交換器の伝熱性能を低下させる可能性がある。但し、直接、炉心性能に影響しないため、検討対象より除外する。

e) 炉心部への水素・重水素の混入

Na に融解した H 、 D および中間熱交換器で気体となった H_2 、 D_2 が、冷却系内を循環して炉心に流入し、反応度および中性子の減速効果による炉心出力に影響することが考えられる。このため、本事象を検討対象として選定する。

f) 炉心部への減速材の混入

減速材が冷却系内を循環して炉心に流入し、燃料集合体内の燃料ピンの近傍を通過する際に、中性子の減速効果により局所的に出力が上昇することが考えられる。本事象の影響は、燃料集合体内に減速材がとどまる流路閉塞に比べると、局所的な出力上昇の影響は小さいと予想され、検討対象より除外する。

4) 減速材の重水素、水素のトリチウム化

原子炉内の LLFP 集合体中に内包する減速材中の D、H が中性子捕獲反応により、トリチウムを生成し、被ばくに影響することが予想される。

もんじゅの長期運転予測[3.4.3-6]より、30年間の炉心（燃料および制御棒）からのトリチウム放出累計量は、7,400 TBq と予想されている。一方、ブランケット集合体内に重水素化ジルコニウム、水素化ジルコニウム等を設置する検討[3.4.3-7]において、ブランケット集合体取出し時（123日×5バッチ=1.685年）のトリチウム放射能はそれぞれ4.2E+11 Bq、1.5E+9 Bq（減速材割合90%のピン、18本/集合体設置の場合）が示されている。ZrとYの違いはあるがD、H質量当たりのトリチウム生成量は同じとして、30年間のLLFP集合体からのトリチウム放出累計量を求めると、次式に示すように最大約21 TBqと予想される。

$$\text{炉心 A : } 4.2\text{E}+11 \times (30/90)_a \times (930/1580)_b \times (61/18)_c \times (2/1.6)_d \times (30/1.685)_e = 6.2\text{E}+12$$

$$\text{炉心 B : } [4.2\text{E}+11 \times (100/90)_a \times (650/1580)_b + 1.5\text{E}+9 \times (60/90)_a \times (930/1580)_b] \\ \times (37/18)_c \times (2/1.6)_d \times (30/1.685)_e = 8.8\text{E}+12$$

$$\text{炉心 C : } 4.2\text{E}+11 \times (60/90)_a \times (1580/1580)_b \times (61/18)_c \times (2/1.6)_d \times (30/1.685)_e = 2.1\text{E}+13$$

計算式中の $()_a$ は減速材割合、 $()_b$ はピン長さ、 $()_c$ はピン本数、 $()_d$ は減速材中のD、Hの化学量論比、 $()_e$ は運転長さの補正係数を示す。

これは、前述のもんじゅ炉心からのトリチウム放出累計量の約0.28%に相当し、減速材を使用することによる被ばくに与える影響は小さいと予想され、検討対象より除外する。

② 詳細検討事象の選定と判断基準

1) 詳細検討事象の選定

表3.4.3-2に示すように、安全性に関してLLFP集合体を起因とする想定事象のうち、詳細に影響検討が必要と考えられる事象として、以下の3事象を選定した。

- LLFP ターゲットピン内のペレット移動（隣接集合体のサーマルスパイク）
- LLFP ターゲットピンの破損（減速材による流路閉塞）
- LLFP ターゲットピンの破損（炉心部への水素・重水素混入）

2) LLFP ターゲットピンの破損本数と解析対象炉心

「局所事故に関する研究の現状と展開」[3.4.3-4]によると、表3.4.3-3に示すように1984年までに全世界で約350,000本の高速炉用燃料が照射され、通常運転用燃料ピンの破損は300本以下である。これより燃料ピンの破損率を求めると0.086%以下である。この破損割合を発熱量が小さいLLFPピンに適用することには議論が必要であるが、仮に適用すると、LLFPピンが2本同時に破損する確率はIAEAの将来炉の安全目標[3.4.3-8][3.4.3-9]である 1×10^{-5} 以下となる。よって、LLFPピンの破損想定本数は1本とする。

表3.4.3-4に代表炉心のLLFPピン内のH、Dモル数と質量を示す。中性子減速効果が大きいHを放出するのは炉心Bのみであり、最も放出するH、Dのガスモル数が多いのも炉心Bである。よって安全性の詳細検討する代表炉心は炉心Bとする。

3) 水素、重水素の解離速度

減速材である YH_2 、 YD_2 に対する H、D の解離温度、解離速度に対する知見は見当たらない。

高速増殖炉サイクル実用化研究開発プロジェクトでは、 ZrHx を用いた炉心径方向遮蔽体の設計検討[3.4.3-10]が行われており、 $500\text{ }^\circ\text{C}$ を超えると急激に水素解離が大きくなるとして、遮蔽体温度を $500\text{ }^\circ\text{C}$ 以下に制限している。また、 ZrHx の解離に関する研究[3.4.3-11]における、平衡解離圧と温度、H/Zr 比の相関では、 $546\text{ }^\circ\text{C}$ を超えると急激に水素解離が進む知見が示されている。一方、ハフニウムを用いた水素化物中性子吸収材（以下、 HfHx と略す）を用いた制御棒の研究[3.4.3-12]において HfHx の水素解離の試験が行われ、試験体を高温で 10 時間保持した温度勾配下試験で、 $700\text{ }^\circ\text{C}$ で 0.003 mol/h の水素解離速度になる結果が得られている。

現時点において、 YH_2 、 YD_2 に対する解離量および解離速度が不明であるため、保守的に YH_2 や YD_2 内の H や D は完全に解離するとし、炉心 B で破損を想定する LLFP ピン内の 5.2 モルが Na 中に放出されるとする。

今後、H、D を用いた減速材（ YH_2 、 YD_2 ）の解離温度と解離速度、および LLFP ピンの温度の確認が必要である。

4) 燃料ピン健全性の判断基準

燃料破損の判断は、もんじゅの設置許可申請書[3.4.3-2]に記載された運転時の異常な過渡変化の判断基準である以下とする。

- ・燃料温度融点 ($2,650\text{ }^\circ\text{C}$) 未満
- ・被覆管肉厚中心最高温度 $830\text{ }^\circ\text{C}$ 以下

なお、流路閉塞以外は、燃料出力が過出力係数 (116%) 以下であれば、この判断基準を満足する。流路閉塞は、燃料出力が過出力係数を超えないことと、もんじゅ設置許可申請書に記載された流路閉塞時の被覆管肉厚中心最高温度と燃料出力より、減速材閉塞時の被覆管肉厚中心最高温度を求めて、判断基準を満足することを確認する。

③ 安全性評価

1) LLFP ターゲットピン内のペレット移動（隣接集合体のサーマルスパイク）

炉心 B の LLFP 集合体は、集合体中心の減速材（ YH_2 ） 60% を含む LLFP（ $\text{BaI}_2\text{-YH}_2$ ）ピン 37 本と、その周囲の減速材を含まない LLFP（ Tc ）ピン 24 本で構成される。集合体内部の LLFP（ $\text{BaI}_2\text{-YH}_2$ ）ピンで減速された熱中性子の隣接燃料集合体への影響（サーマルピーク）は、集合体周辺の LLFP（ Tc ）ピンにより緩和されている。

そこで、本評価では、炉心 B の LLFP 集合体の炉心燃料に隣接する LLFP（ Tc ）ピンのペレットが移動（喪失）した場合の、隣接燃料集合体の出力上昇を評価する。

a) 解析条件

燃料集合体に隣接する LLFP 集合体のコーナから 1 番目 LLFP（ Tc ）ピンまたは 2 番目 LLFP（ Tc ）ピン内のペレット移動（解析では被覆管内の全ペレットを除外）を想定する。

隣接燃料集合体は、LLFP 集合体内の移動ピン近傍の 5 燃料ピンの出力を評価する。

解析は以下の手法を用いる。

- ・計算コード：連続エネルギーモンテカルロ法コード MVP-3.0

- ・計算モデル：図 3. 4. 3-1
- ・核データライブラリ：JENDL-4. 0
- ・中性子ヒストリ数：2, 000 万以上

b) 解析結果

図 3. 4. 3-2 に解析結果を示す。

LLFP(Tc) ピン内ペレット移動前の LLFP 集合体に隣接する燃料集合体において、コーナ部の燃料ピンの出力が最も高い。

燃料集合体に隣接する LLFP 集合体のコーナから 1 番目 LLFP(Tc) ピン内のペレット移動、2 番目 LLFP(Tc) ピン内のペレット移動により、隣接燃料集合体のコーナ部の燃料ピンの出力は約 106 %、約 105 % (いずれも切り上げ) まで上昇する。また、隣接燃料集合体のコーナ部から 2 番目以降の燃料ピンの出力も上昇するが、LLFP ピン内のペレット移動時におけるコーナ部の燃料ピンの出力以上となることはない。

c) 燃料ピン健全性評価

炉心 B の LLFP 集合体内、隣接する燃料集合体に影響すると考えられる LLFP(Tc) ピンのペレット移動を想定しても、出力ピークが現れる燃料集合体は炉心周辺にあり出力が低いためコーナピンの相対出力は 1.0 より十分小さいが、安全側に 1.0 だとしても出力の増大は 6 % であるので最大線出力燃料ピンの 116 % を超えることはない。したがって、健全性が維持される。

2) LLFP ターゲットピンの破損 (減速材による流路閉塞)

図 3. 4. 3-3(a) に Na 中に放出された LLFP ピン中の減速材 (粒子) に加わる力の計算モデルを示す。沈降力 < 流体力の場合は減速材が集合体外へ放出される。図 3. 4. 3-3(b) に計算条件を示し、図 3. 4. 3-3(c) に計算結果を示す。図 3. 4. 3-3 に示すように、LLFP 集合体の流量 4.56 kg/s では、LLFP ピン破損により Na 中に放出された減速材は集合体外に流出する。

LLFP ピン 1 本が破損し、Na 中に放出された減速材 (YH₂) が 1 次系内を循環し、炉心燃料集合体中で流路閉塞した場合の影響を評価する。

a) 解析条件

LLFP 集合体外に放出された減速材は 1 次系内では沈降せずに、全燃料集合体に分散して混入し、最も発熱が高い炉心中心部で閉塞するものとする。解析対象炉心として、中性子減速効果が大きな YH₂ を内包する炉心 B とし、YH₂ による閉塞を想定する。なお、評価上考慮する安全係数として、解析する集合体に混入する減速材の量を平均の 2 倍とする。

表 3. 4. 3-5 に、閉塞の形態として 3 本の燃料ピンで囲まれた 1 サブチャンネルが閉塞する場合と、1 本の燃料ピンの周辺 6 サブチャンネルが閉塞する場合の閉塞高さを求めた結果を示す。1 サブチャンネル閉塞の場合は閉塞高さ 47 mm、6 サブチャンネル閉塞の場合は閉塞高さ 8 mm とする。

解析は以下の手法を用いる。

- ・計算コード：連続エネルギーモンテカルロ法コード MVP-3. 0
- ・計算モデル：図 3. 4. 3-4
- ・核データライブラリ：JENDL-4. 0
- ・中性子ヒストリ数：2, 000 万以上

b) 解析結果

表 3. 4. 3-6 および図 3. 4. 3-5 に解析結果を示す。

中性子の減速効果が高い YH₂ が燃料集合体の 1 サブチャンネルに閉塞した場合のピーキング係数は 103 %、6 サブチャンネルに閉塞した場合のピーキング係数は 112 %まで上昇する結果となった。

もんじゅの設置許可申請書[3. 4. 3-2]によると、流路閉塞時（出力上昇なし）の被覆管肉厚中心最高温度は約 730 °C である。炉心入口温度 397 °C と解析結果であるピーキング係数を用いて、YH₂ が燃料集合体の 1 サブチャンネルまたは 6 サブチャンネルに閉塞した場合の被覆管肉厚中心最高温度をもんじゅの結果を参照して求めると、それぞれ約 740 °C (= (730-397) × 1.03 + 397)、約 770 °C (= (730-397) × 1.12 + 397) となる。

c) 燃料ピン健全性評価

炉心 B の LLFP 集合体の内、中性子減速効果が大きな LLFP (BaI₂-YH₂) ピンの破損により、YH₂ による燃料集合体の流路閉塞を想定しても、燃料ピンのピーキング係数は過出力係数 (116 %) を超えることはなく、被覆管肉厚中心最高温度も制限値 (830 °C) 以下であるため、燃料ピンの健全性は維持される。

3) LLFP ターゲットピンの破損（炉心部への水素・重水素混入）

LLFP ピンの破損により解離し原子炉容器上部プレナム温度で Na 中に融解した H、D が、炉心入口プレナムで一部が気体に戻って、内側炉心と外側炉心（高圧プレナムに接続）に均一に混入した場合の影響を評価する。

a) 解析条件

気体が入口プレナム等に蓄積されて、一過性で炉心を通過する事象は、表 3. 4. 3-1 で示す気泡通過事故と同様であるため、ここでは、連続的に炉心を通過すると想定する。

解析対象は、中性子の減速効果が高い YH₂ を減速材として使用している炉心 B とする。なお、炉心 B には YD₂ も減速材として装荷されているため、H₂ 気泡と D₂ 気泡が混入した場合を解析する。

表 3. 4. 3-7 に解析条件を示す。炉心部では、H₂ 換算で 0.0034 kg (1.7 mol) の気泡となって、炉心部を通過する。炉心部の圧力を 0.468 MPa (カバーガス圧 0.155 MPa + 液頭 0.070 MPa + 炉心圧損の半分 0.243 MPa)、温度を 463 °C として、気泡体積を求めると 0.023 m³ となる。これは、約 3.5 % のボイド率に相当する。

解析は炉心特性のボイド反応度計算と同じ以下の手法を用いる。

- ・解析手法：国内高速炉の標準的な核計算手法（CITATION、厳密摂動理論）
- ・計算体系：全炉心 2 次元 RZ 体系
- ・計算に用いるエネルギー群構造：79 群（JENDL-4.0 ベース）
- ・炉心のボイド率：内側炉心および外側炉心（ブランケット含まず）の冷却材の 4%
- ・ボイドの流体：パラメータ (Na、H₂、D₂)

b) 解析結果

表 3. 4. 3-8 に解析結果を示す。炉心部の Na が 4 % ボイド化すると、約 2.9 ¢ の反応度が挿入される。4 % の H₂ ボイドの場合は、約 3.3 ¢ の反応度が、4 % の D₂ ボイドの場合は、約 3.0 ¢ の反応度が挿入される。Na のボイド化、H₂ ボイド混入、D₂ ボイド混入の反応度の違いは、水素・重

水素により、中性子スペクトルが軟化した効果と考えられるが、混入する水素・重水素量はわずかであるため、その影響も小さい。

表 3. 4. 3-8 に反応度挿入による炉心出力を次式の即発跳躍近似で求めた結果も併記する。

$$P=P_0/(1-\rho)$$

ここで、反応度挿入後の出力、 P_0 は初期出力、 ρ は反応度(\$)を示す。即発跳躍後は炉心の反応度フィードバックにより出力が低下し且つ自動制御であれば制御棒挿入により所定の出力に回復するので、上式で求めた出力が反応度添加後の最大出力である。表 3. 4. 3-8 に示すように、炉心部への水素、重水素混入による、炉心出力は 104%以下である。

c) 燃料ピン健全性評価

炉心 B の LLFP ピンが破損し、解離した H、D が炉心へ混入する事象を想定しても、炉心出力は過出力係数 (116 %) を超えることはなく、燃料ピンの健全性は維持される。なお、中性子束高信号等で原子炉がトリップしないため、原子炉出力制御系により原子炉出力は所定の出力に調整された後、運転中にコールドトラップにより Na 中の水素・重水素が除去されて、事故は終息すると予想される。

④ LLFP ターゲットピンの破損検出方法の検討

もんじゅの破損燃料検出系 (遅発中性子法、カバーガス法、タギング法) に加え、常陽で検討されたレーザ共鳴イオン化質量分析法 (RIMS : Resonance Ionization Mass Spectrometry) の実績ともんじゅへの適用性の研究内容、および常陽の破損燃料検出を調査し、LLFP ピンの破損検出方法を検討した。

1) もんじゅの破損燃料検出装系

図 3. 4. 3-6 にもんじゅの破損燃料検出系の概要[3. 4. 3-13]を示す。もんじゅの破損燃料検出系は次の 3 系統で構成される。

- ・遅発中性子法破損燃料検出装置 (DN 法 FFD)
- ・カバーガス法破損燃料検出装置 (CG 法 FFD)
- ・タギング法破損燃料検出装置 (FFDL)

a) 遅発中性子法破損燃料検出装置 (DN 法 FFD)

1 次系配管近傍に各グループで独立した 3 チャンネルの中性子検出系を設置し、破損燃料から Na 中に流出した核分裂生成物が放出する遅発中性子を検出して破損の有無を検知する。本検出装置により、燃料破損警報または原子炉トリップ信号が発信される。

LLFP ピン破損時に Na 中に放出される減速材および LLFP は中性子捕獲に伴い高次同位体に移行するが遅発中性子先行核の質量数はかなり高い[3. 4. 3-14]ため、遅発中性子が発生したとしても極微量と予想され、DN 法 FFD で LLFP ピンの破損を検知することはできない。

b) カバーガス法破損燃料検出装置 (CG 法 FFD)

破損燃料から 1 次系カバーガスへ漏えいした核分裂生成物 [^{88}Kr (2.84 h)、 ^{138}Xe (14.08 ms)] からの β 線または γ 線を検出して、破損の有無を検知する。本装置より、燃料破損警報が発信され、タギング法破損燃料検出装置 (FFDL) が起動して、破損燃料集合体を同定する。

LLFP ピン破損時に CG 法 FFD で検出可能なガスが放出するかが課題となる。後述のタギング法 FFDL で使用するタグガスの放射化が常陽の燃料破損模擬試験で確認されており、タグガスと組み

合わせることで、CG 法 FFD で LLFP ピン破損を検知できるとの見通しがある。今後、常陽の運転再開に伴い、燃料破損検知に関する知見の蓄積が必要となる。

c) タギング法破損燃料検出装置 (FFDL)

図 3.4.3-7 に FFDL の系統構成図を示す。あらかじめ燃料集合体の燃料ピンに希ガス同位体で構成するタグガスを封入しておき、CG 法 FFD の燃料破損警報により起動し、燃料破損時に放出されるタグガスを検出して、破損した燃料の位置を検知する。検知された破損集合体位置は、中央制御室で表示される。

タグガスは、炉内に長期間置かれるため、中性子やγ線によって変化しにくい安定核種として、 ^{78}Kr 、 ^{80}Kr 、 ^{82}Kr 、 ^{126}Xe 、 ^{129}Xe の希ガス安定同位体を使用する。もんじゅでは、質量分析計を用いて、安定同位体の比である $^{78}\text{Kr}/^{80}\text{Kr}$ (11 種類)、 $^{82}\text{Kr}/^{80}\text{Kr}$ (4 種類)、 $^{126}\text{Xe}/^{129}\text{Xe}$ (9 種類) を分析するため、270 種類の組み合わせを準備した。

集合体数は、燃料集合体 198 体 (内側炉心集合体 108 体、外側炉心集合体 90 体)、LLFP 集合体 52 体の、合計 250 体であるため、もんじゅで準備した 270 種類のタグガスで LLFP ピン破損を生じた LLFP 集合体を検知することは可能である。

2) レーザ共鳴イオン化質量分析法 (RIMS) の利用

「もんじゅ」における高速増殖炉の実用化のための中核的研究開発[3.4.3-15]において、常陽で導入を検討している RIMS[3.4.3-16][3.4.3-17]をもんじゅに導入する検討が行われた。

図 3.4.3-8 に RIMS の概略系統、図 3.4.3-9 にもんじゅへの導入検討結果を示す。質量分析計を用いるもんじゅのタギング法 FFDL では、活性炭吸着によるタグガス回収に 6 時間以上の時間を要するが、RIMS ではより短時間でガス成分分析が可能となる。

カバーガス空間の大きなもんじゅへの適用に際して、希釈ガスによる性能確認が行われた。図 3.4.3-10 に希釈ガスの分析結果を示す。図 3.4.3-10 に示すように、希釈ガス (希釈率 1/893) でも性能劣化しない結果を用いて、RIMS のもんじゅへの適用性が検証された。

3) LLFP ターゲットピン破損の検出方法

もんじゅの破損燃料検出系を調査し、炉心の破損燃料集合体検知に用いられているタグガスを LLFP 集合体まで適用することで、CG 法 FFD で検知後にタギング法 FFDL または RIMS により LLFP ピン破損を検知できる見通しを得た。

一方、もんじゅのタギング法 FFDL に用いられるタグガスは高価であり、経済性の面で課題となることも予想される。今後、常陽の運転が再開され破損模擬試験の知見が蓄積されれば、より安価な放射性ガス封入と図 3.4.3-11 に示す常陽の Na シッピング法 FFDL でも LLFP ピン破損を検知できる可能性も考えられる。

⑤ まとめ

安全性について、最適化炉心を対象に平成 30 年度に検討した LLFP ターゲットピン破損により安全性に影響を与えると考えられる以下の 3 項目について安全性評価を実施した。

- ・ LLFP ターゲットピン内のペレット移動 (隣接集合体のサーマルスパイク)
- ・ LLFP ターゲットピンの破損 (減速材による流路閉塞)

・LLFP ターゲットピンの破損（炉心部への水素・重水素混入）

その結果、いずれも事象も燃料ピンの出力は過出力係数（116 %）以下であり、燃料ピンの健全性は維持できることを確認した。

また、LLFP ターゲットピンの破損検出方法について、もんじゅの破損燃料検出系と常陽に導入が検討されている RIMS を調査した。その結果、タグガスの充填範囲を LLFP ターゲット集合体まで拡張し、CG 法 FFD とタギング法 FFDL または RIMS の組み合わせを用いることにより、LLFP ターゲットピンの破損を検知できる見通しが得られた。

参考文献

- [3.4.3-1] 東京工業大学、平成 30 年度 文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業 原子力システム研究開発事業 高速炉を活用した LLFP 核変換システムの研究開発 成果報告書、平成 31 年 3 月
- [3.4.3-2] 日本原子力研究開発機構、高速増殖炉研究開発センター 原子炉設置許可申請書（高速増殖原型炉もんじゅ原子炉施設）本文および添付資料（一～十一）、平成 18 年 10 月 変更
- [3.4.3-3] 日本原子力学会 新型炉部会、「研究開発段階発電用原子炉安全設計方針検討会」報告書、2014 年 4 月
- [3.4.3-4] 動力炉・核燃料開発事業団、局所事故に関する研究の現状と展開、PNC TN2410 87-002、1987 年 3 月
- [3.4.3-5] 動力炉・核燃料開発事業団、コールドトラップ設計指針 コールドトラップ委員会 答申、PNC SN2410 79-21、1979 年 5 月
- [3.4.3-6] 核燃料サイクル開発機構、高速増殖原型炉「もんじゅ」における水素・トリチウム挙動－性能試験データによる解析コード(TTT9)の検証と定格運転予測評価－、JNC TN4400 99-002、平成 11 年 3 月
- [3.4.3-7] 東北大学、平成 21 年度 文部科学省 原子力システム研究開発事業 高速増殖炉における炉心燃料とブランケット燃料の配置最適化手法の研究開発 成果報告書、平成 22 年 3 月
- [3.4.3-8] 内閣府原子力政策担当室、原子力発電所の事故リスクコストの試算、平成 23 年 5 月
- [3.4.3-9] IAEA、“Basic Safety Principles for Nuclear Power Plants 75-INSAG-3”、INSAG-12、1999
- [3.4.3-10] 核燃料サイクル開発機構、ナトリウム冷却炉の炉心・燃料設計検討（MOX 燃料炉心）－2003 年度報告－、JNC TN9400 2004-039、2004 年 6 月
- [3.4.3-11] J. Am. Ceram. “Thermodynamics of the Zr-H System”、Soc, 78(12) 3323-28、1995
- [3.4.3-12] 東北大学、平成 19 年度 文部科学省 原子力システム研究開発事業 水素化物中性子吸収材を用いた革新的高速炉炉心に関する研究 成果報告書、平成 20 年 3 月
- [3.4.3-13] 日本原子力研究開発機構、「もんじゅ」タギング法破損燃料検出装置の性能確認 (1)、JAEA-Technology 2014-045、2015 年 5 月
- [3.4.3-14] 竹腰英子、黒井英雄、五十嵐信一、「総説 [49] 遅発中性子の核物理および炉物理的研究の現状」、日本原子力学会誌 Vol. 14, No. 7, 340-356、1972
- [3.4.3-15] 福井大学、平成 24 年度 文部科学省国家基幹研究開発推進事業 原子力システム研

究開発事業 「もんじゅ」における高速増殖炉の実用化のための中核的研究開発、平成 25 年 3 月

[3.4.3-16] 名古屋大学、核燃料サイクル開発機構、レーザ共鳴イオン化分光法を用いた FP ガスモニタリングの基礎研究 -先行基礎工学分野に関する最終報告書 -、JNC-TY9400 2000-019、2000 年 5 月

[3.4.3-17] 核燃料サイクル開発機構、レーザ共鳴イオン化質量分析法(RIMS)を用いた Na 冷却型高速炉用破損燃料位置検出システムの開発 -「常陽」RIMS システムの設計 -、JNC-TN9400 2000-076、2000 年 7 月

表 3.4.3-1 もんじゅの許認可で想定した主に炉心に関する事象

区分	事象
運転中の異常な過渡変化	未臨界状態からの制御棒の異常な引抜き [3 ϕ /s]
	出力運転中の制御棒の異常な引抜き [3 ϕ /s]
	制御棒落下 [-19 ϕ]
	外部電源喪失
事故	制御棒急速引抜き事故 [7 ϕ /s]
	燃料スランピング事故 [7 ϕ]
	気泡通過事故 [20 ℓ]
	冷却材流路閉塞事故
	1次主冷却系循環ポンプ軸固着事故
	1次冷却材漏えい事故
技術的には起こるとは 考えられない事象	局所的燃料破損事象 (燃料要素の局所的過熱事象)
	(集合体内流路閉塞事象) [流路面積の 3 分の 2]
	1次主冷却系配管大口徑破損事象
	反応度抑制機能喪失事象 (1次冷却材流量減少時反応度抑制機能喪失事象)
	(制御棒異常引抜き時反応度抑制機能喪失事象)
安全評価	重大事故
	仮想事故

高速増殖炉研究開発センター 原子炉設置許可申請書（高速増殖原型炉もんじゅ原子炉施設）本文および添付資料（一～十一）、独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成 18 年 10 月 変更より

[]内は想定規模（挿入反応度、混入ガス量、閉塞範囲）

表 3. 4. 3-2 LLFP ターゲット集合体を起因とした安全性に影響する事象

No	想定事象	想定される影響	定性的な検討結果等	詳細検討の要否
①	LLFP ターゲットピン内のペレット移動	反応度の挿入	影響は小さい	×
		隣接集合体のサーマルスパイク	LLFP 集合体設計依存	○
②	LLFP ターゲットピンの破損 (LLFP 流出)	被ばく評価への影響	影響は小さい	×
		隣接核種の放射化生成物への影響	安全性への影響は小さい	×
③	(減速材流出)	LLFP 核変換効率の低下	安全性への影響は小さい	×
		隣接 LLFP ターゲットピンへのガスジェット	影響は小さい	×
		減速材、Na 化合物による流路閉塞	減速材閉塞時の影響の確認が必要	○
		中間熱交換器の伝熱性能の低下	炉心の性能に影響しない	×
		炉心部への水素、重水素の混入	影響の確認が必要	○
		炉心部への減速材の混入	流路閉塞より影響は小さい	×
④	減速材の重水素、水素のトリチウム化	トリチウムによる被ばく量の増加	安全性への影響は小さい	×

表 3.4.3-3 主要な高速炉における燃料の破損 (主として運転用燃料) PNC TN2410 87-002 より抜粋

原子炉	運転用燃料 仕様概略	燃料ピン 照射本数(a)	最高到達燃焼度 (at. % or MWd/t)	燃料ピン 破損本数(b)	通算破損率 (b)÷(a), (%)	備考
EBR-II (米国) 実験炉 62.5Mwth	① 4.4mm ② 100%TD ③ 91 ④ ワイヤー	~110,000	16.4at. %	(実験用燃料を含め 124)	(1.1×10^{-1})	1964~1984年の実績
FFTF (米国) 実験炉 400Mwth	① 5.8mm ② 90%TD ③ 217 ④ ワイヤー	~30,000	135,000MWd/t	0 (実験用燃料: 3)	0 (1.0×10^{-2})	1982~1985年の実績
ラプンダイ (仏) 実験炉 40Mwth	① 5.1mm ② 92%TD ③ 61 ④ ワイヤー (フォルテシモ炉心)	~30,418	213,000MWd/t	運転用燃料: 44 (実験用燃料を含め 83)	0.15 (0.28)	1967~1982年の実績 合計83本のうち45本が開口 破損, 破損率~0.17%
フェニックス (仏) 原型炉 568Mwth	① 6.55mm ② 95%TD ③ 217 ④ ワイヤー	~120,000	11.6at. % (100,000~ MWd/t)	(8体破損のみ)	(6.7×10^{-9})	1973~1984年の実績
PFR (英) 原型炉 600Mwth	① 5.84mm ② ~80%TD (スミア密度) ③ 325 ④ グリッド	55,000	100,000~ MWd/t	開口破損: 1 (ピンホール破損数 不明)	1.1×10^{-9}	1973~1980年4月の実績
BOR-60 (ソ連) 実験炉 600Mwth	① 6.0mm ② 93.5%TD (孔あき10 ₂) ③ 37 ④ ワイヤー	>11,000	~120,000MWd/t	運転用燃料: 6 (実験用燃料: 2)	1.1×10^{-2} (1.5×10^{-2})	1975~1985年11月の実績
常陽 (日本) 実験炉 75/100Mwth HK-I/HK-II	① 6.3/5.5mm ② 93.5/93%TD ③ 91/127 ④ ワイヤー	10,010/15,621	48,000/51,900 MWd/t	0/0	0/0	1970~1974年8月の実績 1977~1985年末の実績

①燃料ピン直径 ②燃料ペレット密度 ③集合体あたりピン本数 ④スベサー型式

表 3.4.3-4 LLFP ターゲット燃料ピン内の重水素、水素量

(a) 検討条件

No	項目	単位	検討条件
1	LLFP ペレット外径	mm	10.4
2	LLFP ペレット全長 (下部軸ブランケット) (炉心部) (上部軸ブランケット)	mm	1,580 (350) (930) (300)
3	イットリウム密度	kg/m ³	4,472
4	イットリウム分子量	—	89
5	YH ₂ 分子量 (H ₂ 気体分子量)	—	91 (89+2) (2)
5	YD ₂ 分子量 (D ₂ 気体分子量)	—	93 (89+4) (4)

(b) 検討結果 (ガスモル数、ガス質量)

No	項目	単位	炉心 A	炉心 B		炉心 C
1	減速材	—	YD ₂	YH ₂	YD ₂	YD ₂
2	LLFP ペレット長	mm	930	930	650	1,580
3	減速材割合	%	30	60	100	60
4	減速材体積	mm ³	23,701	47,402	55,217	80,532
5	イットリウム質量	g	106	212	247	360
6	イットリウムモル数	—	1.2	2.4	2.8	4.1
7	ガスモル数	—	1.2	5.2		4.1
8	ガス質量	kg	0.0048	0.0048	0.0112	0.0164
9	合計ガス質量	kg	0.0048	0.0160		0.0164

表 3.4.3-5 LLFP ターゲットピン破損（減速材による流路閉塞）の解析条件

(a) 検討条件

No	項目	単位	値	備考
1	燃料ピン外径	mm	6.5	入力条件
2	ワイヤ外径	mm	1.32	入力条件
3	燃料配列ピッチ	mm	7.87	入力条件
4	減速材体積	mm ³	47,402	表 3.4.3-4 より
5	燃料集合体数	本	198	入力条件
6	安全係数	—	2	入力条件

(b) 検討結果（閉塞高さ）

No	項目	単位	1 サブチャンネル 閉塞	6 サブチャンネル 閉塞
1	集合体内の減速材体積	mm ³	479	479
2	閉塞部断面積	mm ²	10.23	61.36
3	閉塞部高さ	mm	47	8

表 3.4.3-6 LLFP ターゲットピン破損（減速材による流路閉塞）の解析結果

項目	1 サブチャンネル 閉塞	6 サブチャンネル 閉塞	参考（もんじゅ設 置許可）
燃料ピンピーキング係数	103 % (○)	112 % (○)	100 % (*1)
被覆管肉厚中心最高温度	740 °C (○)	770 °C (○)	730 °C

(注) 評価条件：燃料ピンピーキング係数、○ < 116 % (過出力係数) ≤ ×

被覆管肉厚中心最高温度、○ < 830 °C ≤ ×

被覆管肉厚中心最高温度 = (730 °C - 397 °C) × 燃料ピン出力 + 397 °C

397 °C = 炉心入口冷却材温度

(*1) 被覆管肉厚中心最高温度評価のため 100 % を仮定

表 3.4.3-7 LLFP ターゲットピン破損（炉心部への水素、重水素の混入）の解析条件

No	項目	単位	炉心入口	炉心出口	備考
1	集合体内流路面積	mm	3,636		入力条件
2	集合体本数	本	198		入力条件
3	炉心長	mm	930		入力条件
4	炉心部 Na 体積	m ³	0.670		
5	炉心部 Na 温度	℃	397	529	入力条件
6	炉心部平均 Na 密度	kg/m ³	841.0		at 463 °C
7	炉心部 Na 質量	kg	563.5		=0.670×841
8	最大 H 濃度	Wppm	5.87	11.9	
9	最大 H 量	kg	0.00331	0.00671	
10	炉心部水素気泡量	kg	0.0034		1.7 mol
11	炉心部水素気泡体積	m ³	0.023		at 0.468 MPa
12	炉心部ボイド率	%	3.5（切り上げ）		0.023/0.670

(注) Na 中に融解できる H の量は、次式に示す Vissera らの式で表わす

$$\log C = 6.067 - 2880/T$$

ここで、 C : 水素融解度 (Wppm 水素)、 T : Na 温度 (K) を示す。

表 3.4.3-8 LLFP ターゲットピン破損（炉心部への水素、重水素の混入）の解析結果

検討ケース	挿入反応度 (ϕ)		
	ボイド化のみ	水素ボイド混入	重水素ボイド混入
内側炉心	11.4	11.3	11.0
外側炉心	-8.6	-8.0	-8.0
合計	2.9	3.3	3.0
炉心出力	103.0 % (○)	103.4 % (○)	103.1 % (○)

(注) 検討条件：内側炉心および外側炉心の 4 %がボイド化(ラッパ管外含む)

炉心出力最大値の近似式： $P=P0/(1-\rho)$

ここで、反応度挿入後の出力、 $P0$ は初期出力、 ρ は反応度(ρ)を示す。

評価条件：燃料ピンピーキング係数、 $\circ < 116 \% (過出力係数) \leq \times$

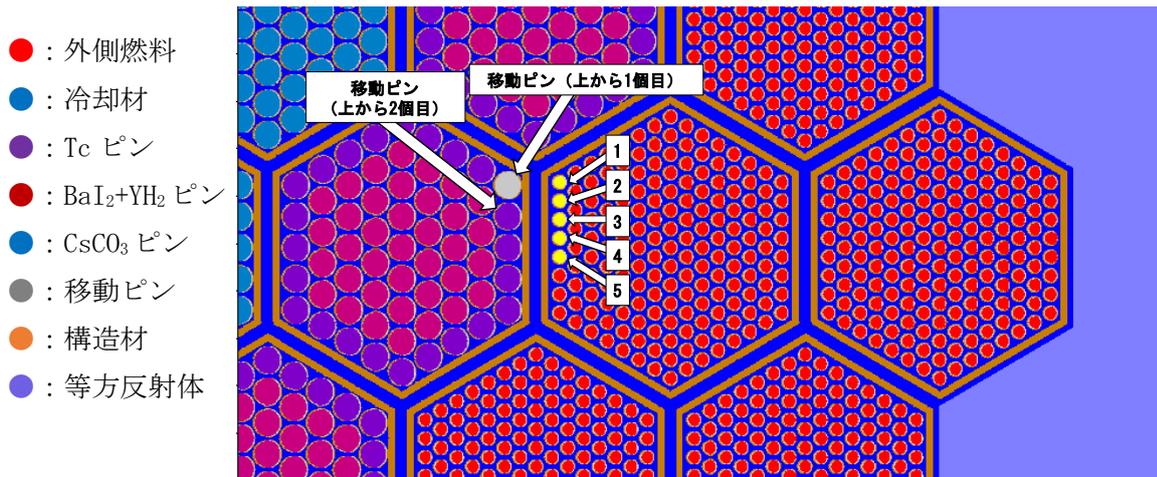


図 3. 4. 3-1 LLFP ターゲットピン移動の解析モデル

隣接燃料集合体燃料ピン	ピーキング係数 (移動なしの最大値で規格化)		
	移動無し	上から 1 番目移動	上から 2 番目移動
コーナ部から 1 番目	1.000	1.053	1.042
コーナ部から 2 番目	0.933	0.969	1.007
コーナ部から 3 番目	0.942	0.941	0.982
コーナ部から 4 番目	0.923	0.939	0.999
コーナ部から 5 番目	0.945	0.949	0.970

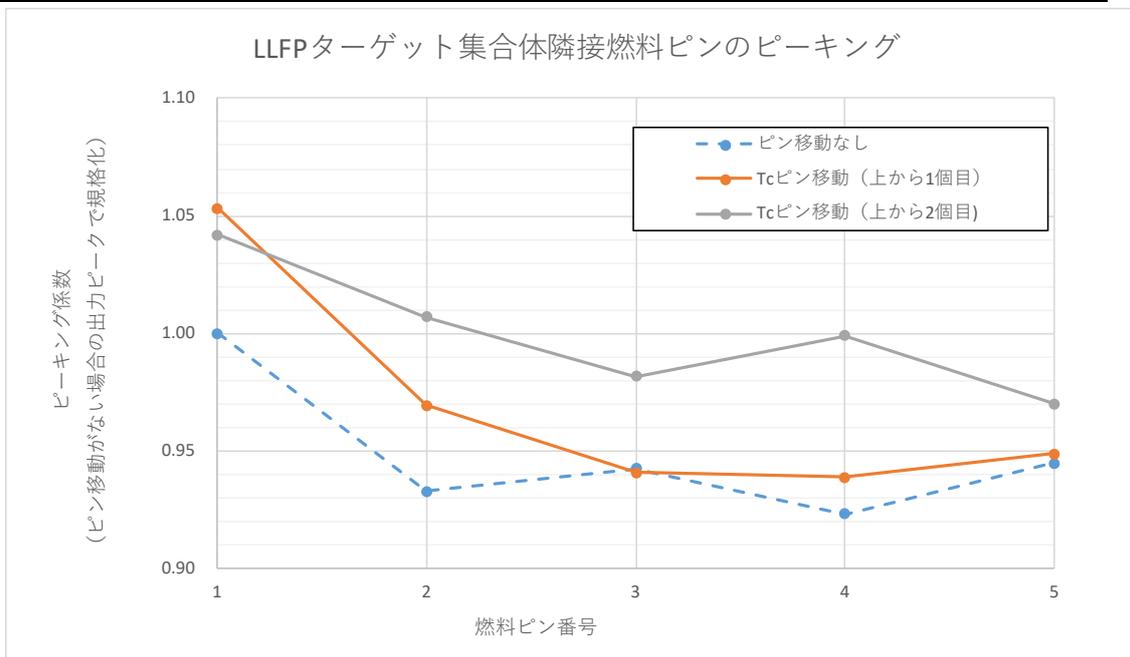
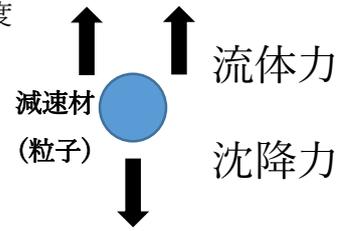


図 3. 4. 3-2 LLFP ターゲットピンの移動による燃料ピンのピーキング係数解析結果

○減速材(粒子)に加わる力

- ・沈降力=粒子体積×(減速材密度-ナトリウム密度)×重力加速度
- ・流体力=抗力係数×粒子投影面積×1/2×密度×流速²
流速=ナトリウム流量/ナトリウム密度/集合体流路面積



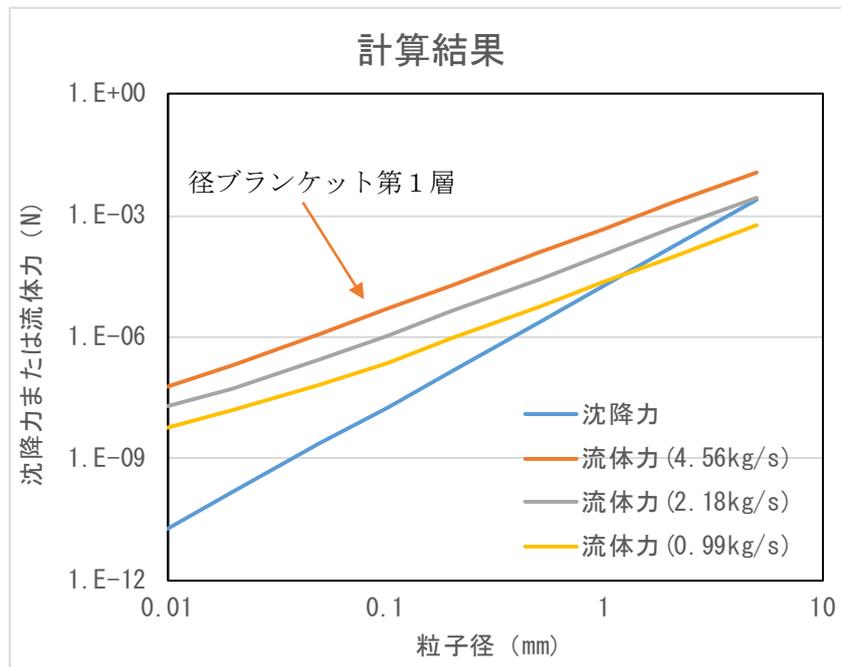
○判断条件

- ・沈降力>流体力：集合体外へ放出無し
- ・沈降力<流体力：集合体外に放出

(a) 計算モデル

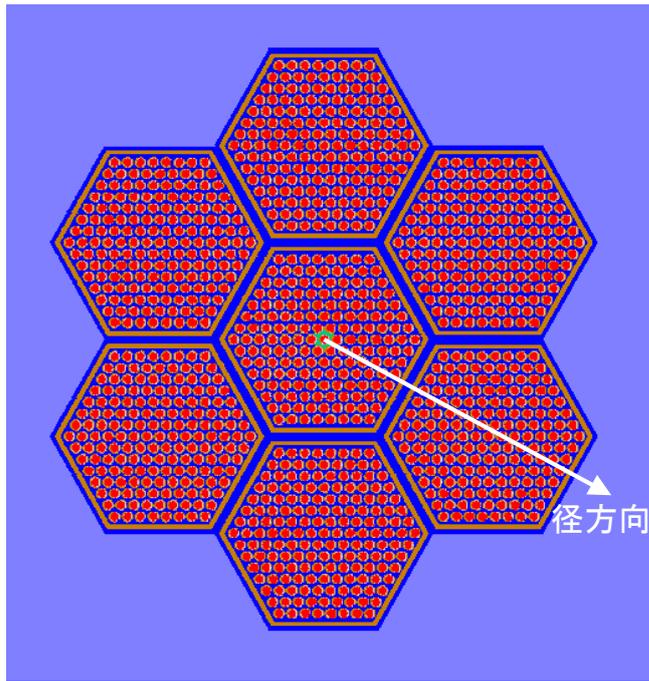
(b) 計算条件

項目	単位	値	パラメータ
ナトリウム温度	℃	397	・粒子径：0.01 mm～5 mm ・ナトリウム流量 : 4.56 kg/s～0.99 kg/s
ナトリウム密度	Kg/m ³	856.8	
イットリウム密度	Kg/m ³	4472	
集合体流路面積	cm ²	29.48	
抗力係数(C _D)	—	実験式 最小0.44	アレンの実験式 (機械工学便覧、A5-p. 98-99)



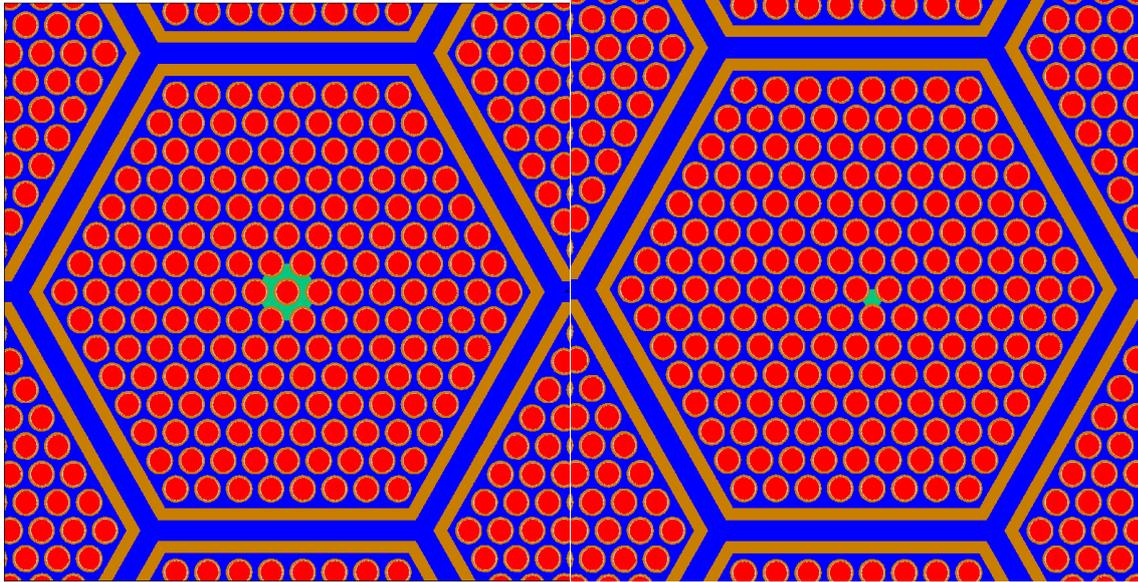
(c) 計算結果

図 3.4.3-3 LLFP ターゲットピン破損時の減速材の挙動

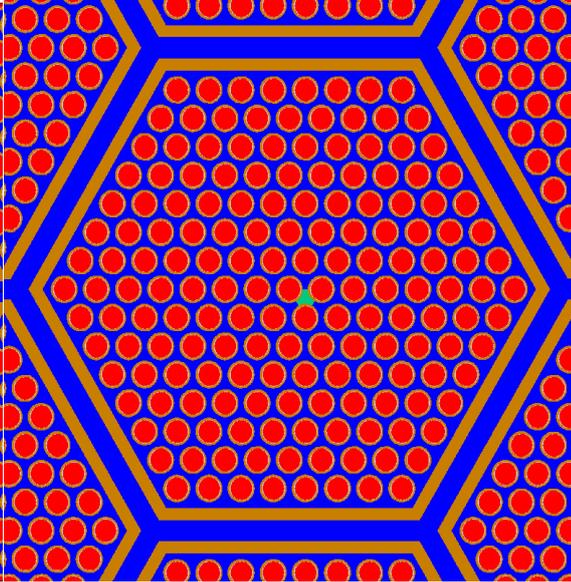


(a) 解析モデル全体

● : 内側燃料 ● : 冷却材 ● : 閉塞領域 ● : 構造材 ● : 等方反射体

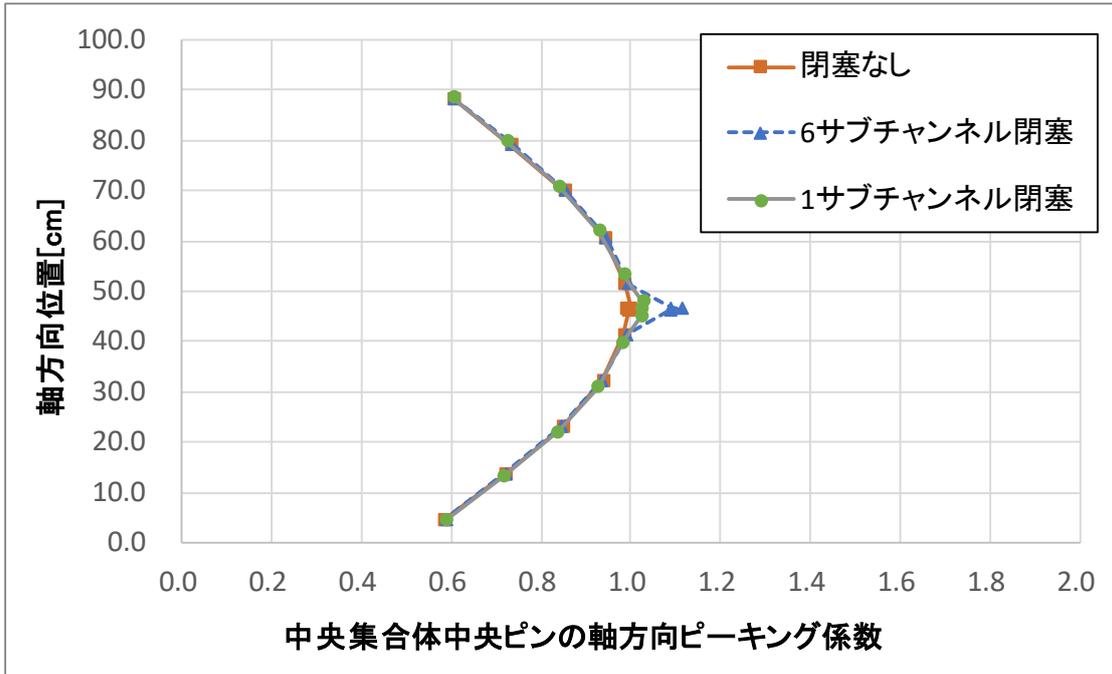


(b) 6サブチャンネル閉塞

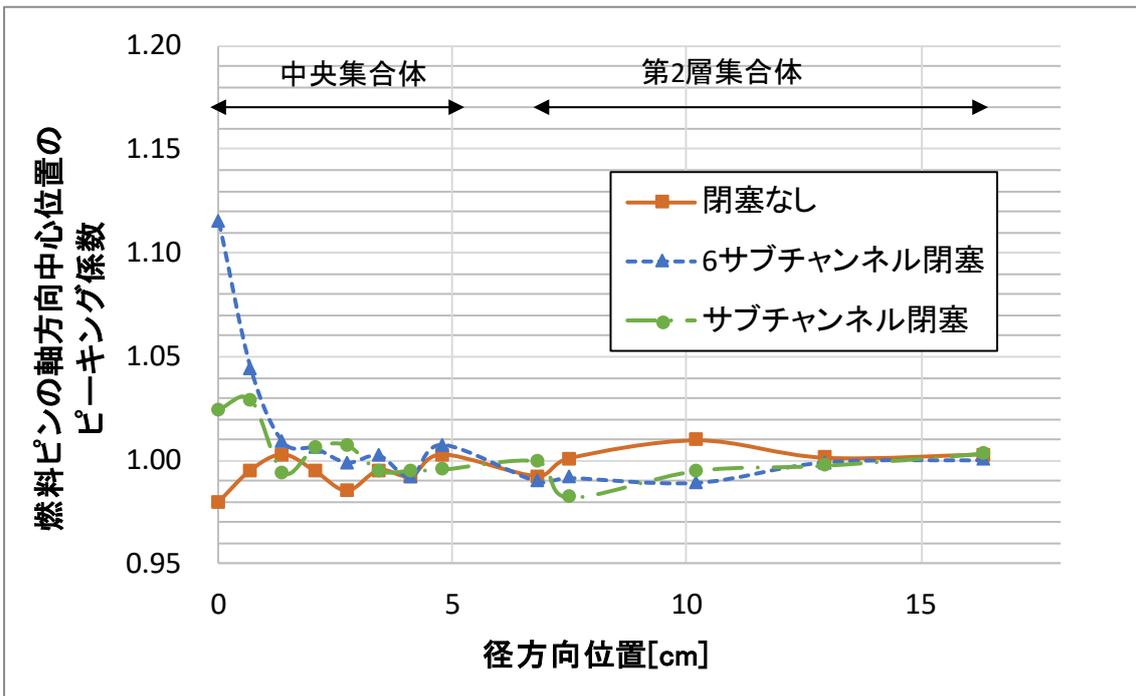


(c) 1サブチャンネル閉塞

図 3.4.3-4 LLFP ターゲットピンの破損（減速材による流路閉塞）の解析モデル

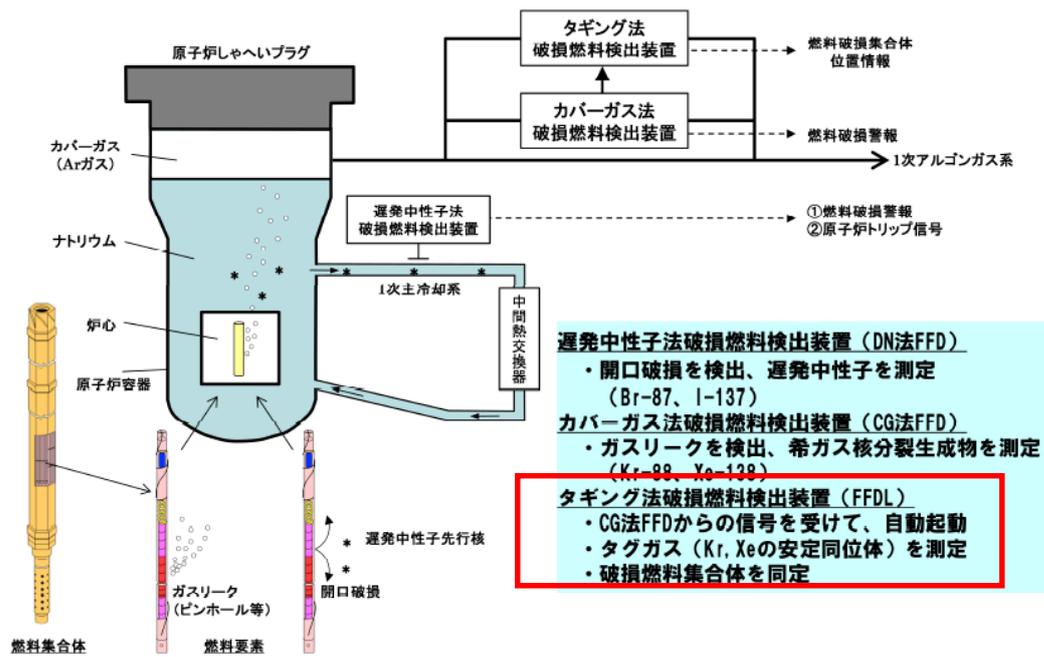


(a) 閉塞近傍燃料ピンの軸方向ピーキング係数



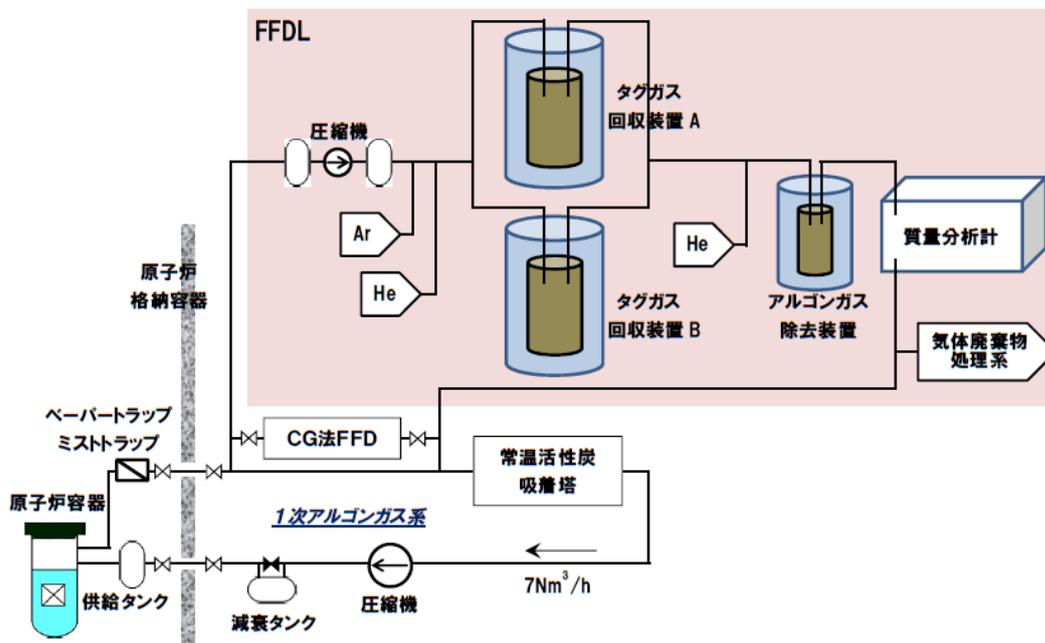
(b) 炉心中心の径方向のピーキング係数

図 3.4.3-5 LLFP ターゲットピンの破損 (減速材による流路閉塞) の解析結果



JAEA-Technology 2014-045

図 3. 4. 3-6 もんじゅの破損燃料検出系



JAEA-Technology 2014-045

図 3. 4. 3-7 もんじゅのタギング法破損燃料検出装置の概要

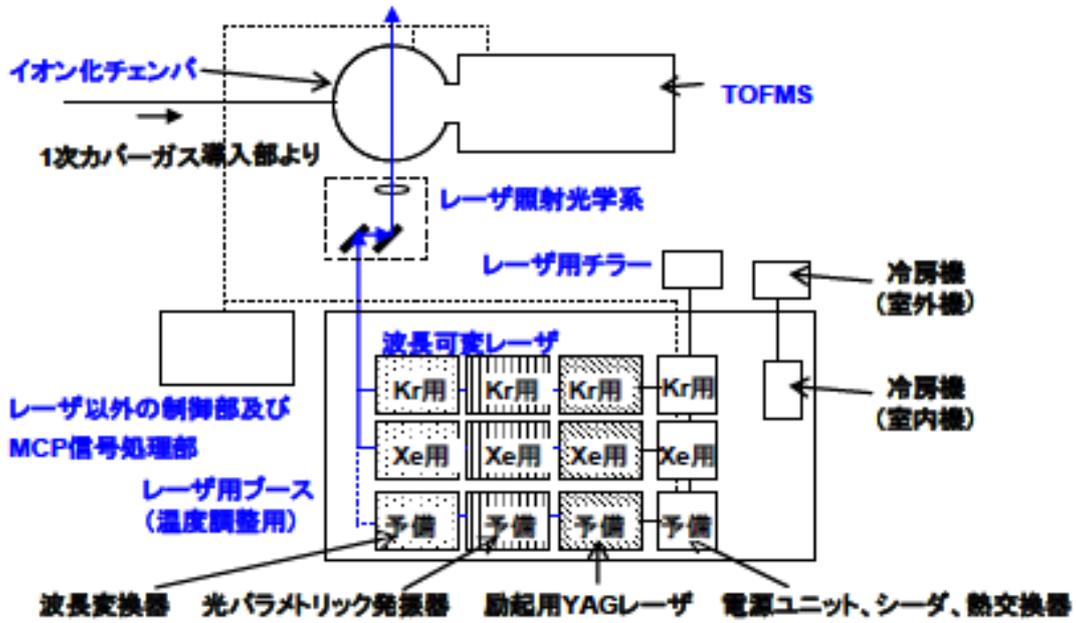


図 3. 4. 3-8 レーザ共鳴イオン化質量分析法 (RIMS) の概要

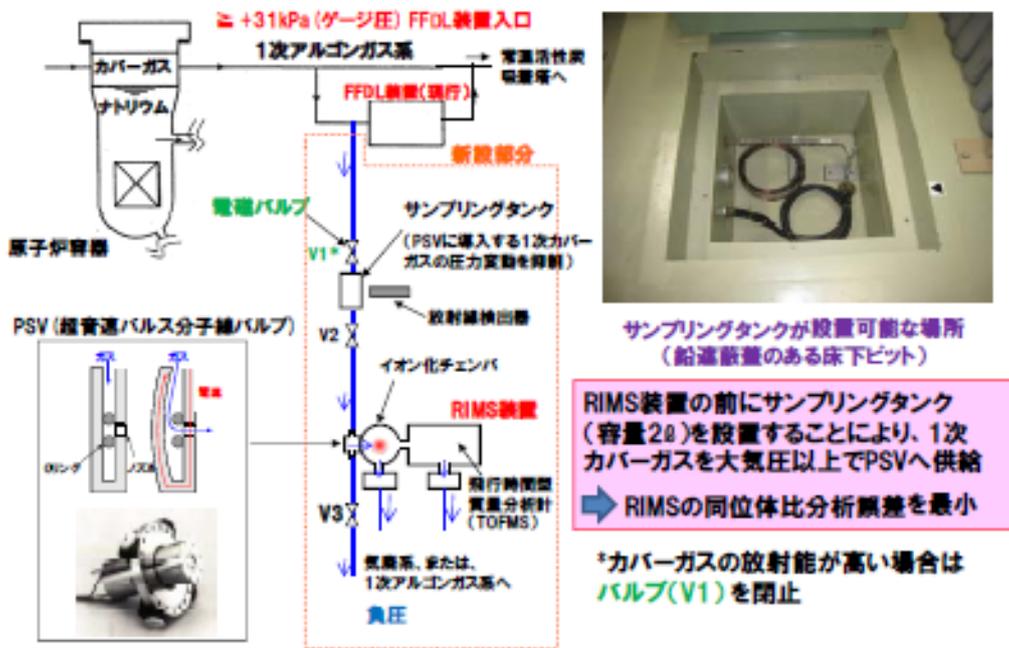
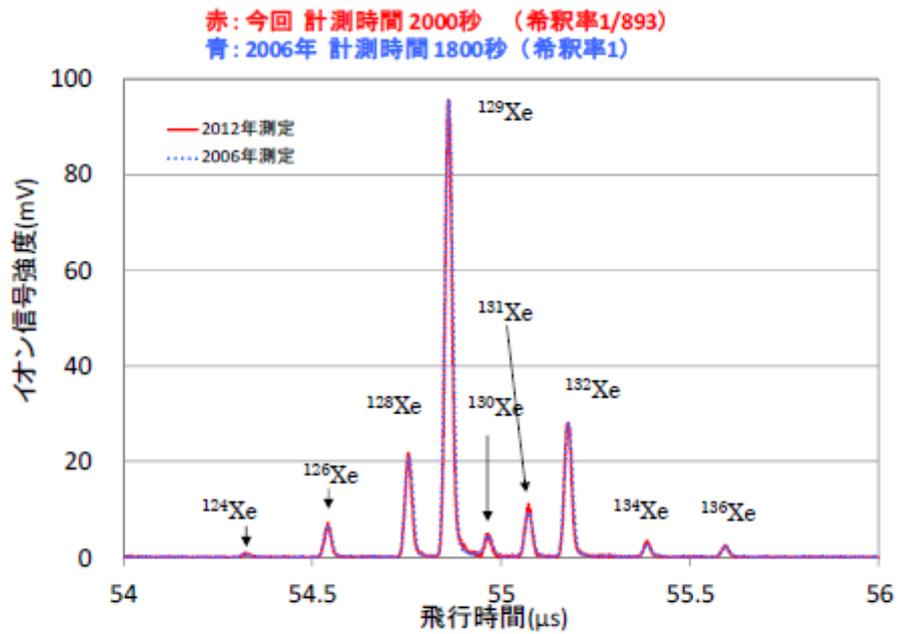


図 3. 4. 3-9 もんじゅへの RIMS の導入方法 (提案)



＜希釈調整した「常陽」カバーガス試料の同位体比＞

測定結果の比較	^{126}Xe	^{128}Xe	^{129}Xe	^{131}Xe	^{132}Xe
2012年測定/2006年測定	0.97	0.94	1	1.09	1.02

図 3. 4. 3-10 希釈ガスを用いた RIMS の検出性能の確認

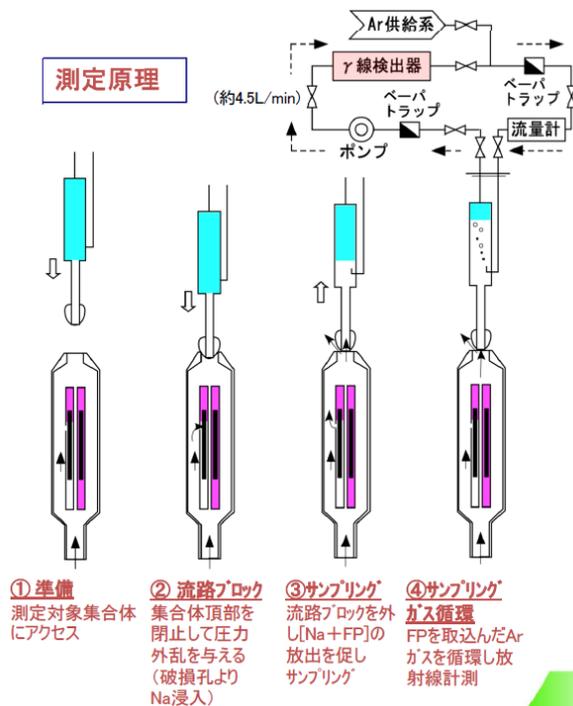


図 3. 4. 3-11 常陽の Na シッピング法破損燃料検出装置

3.5 核変換ターゲット集合体の構造設計（再委託先：東北大学）

3.5.1 集合体構造設計【H30-R1】

3.3 高速炉での核変換ターゲット集合体の配置、交換法で検討した結果を基にして、LLFP 核種のピン構成、集合体構造の設計を行った。また、LLFP 核種を装荷したピンの温度評価、ピン圧力評価を行い、健全性を確認した。

(1) LLFP 集合体の出力評価と温度評価 【H30-R1】

SCALE システムの XSDRN/ENDF-B7.0/中性子 238 群による 1 次元無限円柱体系で中性子束を求める。この中性子束を元に捕獲ガンマ線、中性子運動エネルギー、核変換により発生する崩壊熱、炉心からの伝播ガンマ線を考慮して出力を求めた。[3.5-1]

1 核種装荷、径方向ブランケット第 1 層の装荷でピン仕様は、原型炉の径ブランケット燃料と同一の $\phi 11.6\text{mm}$ 、61 本/集合体を想定した線出力と集合体出力評価結果を表 3.5.1-1 に示す。軸方向ピーキング（最高線出力/炉心部平均線出力の比）は 1.2 である。

さらに LLFP6 核種を装荷した 3 つの炉心を組み合わせた核変換システムにおいて検討をした結果、流量配分を考えると LLFP 隣接する外側炉心集合体の出力ピーキングを大きくしないように、LLFP 集合体に装荷する減速材としては、 YD_2 が適切である。

但し、I の装荷においては、核変換率を高めるために YH_2 を用いることとした。LLFP 集合体の隣接外側燃料集合体の出力ピーキングを抑えるために、 Tc ピンを集合体内の周辺部に 1 層配置することとした。その場合の隣接外側燃料集合体のピーキングは、ブランケット燃料集合体を装荷している場合と同等に抑えられることが分かった。

このピーキングを抑えたことにより 3.4.2 項熱特性では流量配分は基本的には炉心流量は同等となり、ブランケット燃料と同一の流量を流すことが可能となった。

1 核種の場合の被覆管制限目安温度を満足させるための冷却材必要流量について、最大出力ピンの出力 P_{pin} に対して冷却材低圧比熱と被覆管最高温度制限目安値に対する冷却材温度上昇量で除することでピン 1 本当たりの流量を求め、それを集合体本数 61 本と周辺流れ効果による流量増加分を 1.1 倍することで算出した。[3.5-2]

表 3.5.1-1 にその結果を示す。これは径方向ブランケット第 1 層の冷却材流量 4.6kg/s [3.5-3] に比較して、とくに YD_2 減速材を用いた場合には非常に低い必要流量となり流量冷却材温度は殆ど上昇しない結果となる。さらに、3.3.1(4)項で示す 3 つの炉心を組み合わせた高速炉システムでは、I の核変換を行う集合体には YH_2 を用いて Tc を集合体内の周辺に設置したものであり、表 3.5.1-1 での集合体出力の傾向から 3 炉心の場合でも I の核変換を行う集合体出力が最も高いと考えられる。

出力分布を図 3.5.1-1 に示す。また比較のため $\text{I}+\text{YH}_2$ の単一装荷の集合体内の出力分布を図 3.5.1-2 に示す。また表 3.5.1-2 に集合体出力と隣接外側燃料の出力ピーキングを示す。この結果、隣接集合体ピン出力は Tc ピンが高くなっていることが分かる。これは、 Tc が減速された中性子の吸収を行っているためであり、外側集合体のピーキングが低いのは、集合体から減速中性子を Tc フィルターの働きをして遮断しているからである。

I は BaI_2 で装荷しているため、融点の 711°C に制限することが必要である。これについて最高ペレット温度について評価を行った。

I については、核変換による Xe ガスが放出されるため、ギャップ伝達低下による温度上昇と、I の Xe への変換による出力の低下が生じる。3.4.2 項熱特性では、3 年照射で中空ペレット、ギャップは場 0.07mm の時に照射期間が 3 年で 10% であるとして Xe : He = 80 : 20 になるように初期ピンで内圧 18atm を加圧した。その場合に 10% で出力も 10% 低下するとほぼ 709°C となることが示されている。ここで、照射期間で Xe の放出によるギャップコンダクタンスの低下と出力の低下による効果で照射期間中の温度変動を評価した結果を図 3.5.1-3 に示す。照射初期では温度が低く、Xe の放出によるギャップコンダクタンスの低下で温度が上昇し、出力が照射とともに下がるが照射末期で温度が最高になることが示されている。

これより、照射末期でも健全性が保つことができる。なお、BaI₂ ペレットの密度は現状 95% であるが、焼結密度は 100% 程度とすることができ、ギャップをもんじゅの 0.1mm から 0.07mm と小さくしていることから中心空孔を 1.8mm あけることができ、その効果で、688°C まで下げることができる。

(2) ピン構造と健全性評価 【H30-R1】

核変換によりガスが発生する核種で、I で Xe が発生しピン内圧が上昇することによる被覆管の破損を考慮することが必要である。その他ガスを発生させるものは Se が Br に変換するものの、その量は少なく健全性に影響はしない。これより、I 装荷ピンについて健全性を検討する。

Xe ガス発生による被覆管応力による CDF (Cumulative Damage Fraction) の評価を行う。

表 3.5.1-3 に評価条件を示す。被覆管材には ODS 鋼 (分散強化鋼) [3.5-4] を用いた。I を装荷したピン構造は原型炉のブランケット燃料と形状は同一である。また平成 30 年度と比較して、減速材比を 90% から 60% に減らしたために BaI₂ の装荷量は多いため発生する Xe の量が多くなること、また Xe の放出によるギャップコンダクタンスの低下を緩和するために初期に He を 0-30kg/cm² 加圧して装荷することを想定することから平成 30 年度と比較して内圧は高くなり CDF は厳しい条件で評価することとなる令和 1 年度の結果を中心に記載する。

図 3.5.1-4 には初期加圧を行わない場合、図 3.5.1-5 には 20kg/cm²、図 3.5.1-6 には 30kg/cm² で初期に加圧した場合の CDF と内圧を評価した結果を示す。なお初期加圧をしない場合に初期内圧が 3kg/cm² となるのは 1kg/cm² で封入してガス温度の上昇により内圧が初期で約 3 倍になるためである。CDF が制限目安 0.5 を超えるのは、初期加圧が 30kg/cm² と大きい場合でも核変換率 20% であり 10% 程度の核変換率 (炉内滞在期間約 3 年相当) では破損はしないことを確認できた。

なお、熱的には、初期加圧 20kg/cm² で内圧は 100kg/cm² 以下となるので He 比は 20% 以上であり、熱的にも核変換率 10% (炉内滞在期間約 3 年相当) で成立する。

その他の LLFP 装荷ピンはガスを発生しないため内圧による損傷が発生しないことと、熱的にも余裕があり健全性が確保できる見通しである。

(3) 集合体構造 【R1】

3.3 章の核変換ターゲットピン構造は原型炉のブランケット燃料と形状は同一であるが、3.3.1(4) 項での複数の炉心を組み合わせた核変換システムにおいては形状の変更がある。

① 炉心燃料ピンの下部軸ブランケットについてはセパレートピンを採用し太径ピンを装荷したこのような構造については前例としては仏国ラプソディーの燃料の例がある [3.5-5]。径方向ブ

ランケット領域の Cs 装荷ピンはブランケットより若干の太径化 (11.6mm→12.15mm) している。

3.3(3)の炉心 A、炉心 B、炉心 C でのピンの図面を示す。

燃料集合体 (炉心 A-C 共通) については図 3.5.1-7 に示す。下部に太径 61 本バンドルの Zr 装荷ピンを設置したものである。図 3.5.1-8 に径方向ブランケット第 1 層位置に装荷する Cs 装荷集合体を示す。このピン径はブランケット燃料より若干太径の 12.15mm のピンを用いている。また炉心 A-C に共通にブランケット第 2 層から遮蔽体に入れる Cs 集合体の図を図 3.5.1-9 に示す。このピンは、軸方向に炉心部、上部、下部のブランケット領域に Cs_2CO_3 を装荷している。

図 3.5.1-10 には、炉心 B の I および Tc 装荷ピンを示す。この集合体は Tc ピンを周辺に配置して内側に BaI_2+YH_2 ピンを配置している。炉心 C の Pd 装荷集合体および Se 装荷集合体を図 3.5.1-11、図 3.5.1-12 に示す。これはブランケット燃料と形状は同じである。

また、装荷する LLFP ペレットの装荷形態については表 3.5.1-4 に示す。

(4) まとめ

LLFP 核種を装荷したピンでは Xe の発生による内圧が発生し、さらにギャップコンダクタンスの低下による温度が上昇し発熱も大きい BaI_2 ピンに対して温度、内圧、CDF の評価を行った。その結果、初期 He 封入圧を大きくして、Xe によるギャップコンダクタンス低下を緩和することで 3 年の燃焼では燃料温度は制限値以下にすることができる。また内圧は 3 年で $100\text{kg}/\text{cm}^2$ 以下であり、CDF も制限目安を十分下回ることから健全性を確認した。

それぞれの LLFP 元素を独立に装荷した炉心における LLFP 集合体の構造は基本的には「もんじゅ」のブランケット燃料集合体と同一とした。6 核種を 3 炉心で組み合わせた核変換システムでは十分な SF を確保するため燃料集合体下部ブランケット部に配置した Zr 装荷集合体を太くし、それによる冷却特性に問題が生じないことを確認した。

参考文献

- [3.5-1]平成 29 年度 原子力システム研究開発事業「高速炉を活用した LLFP 核変換システムの研究開発」成果報告書
- [3.5-2]平成 30 年度 原子力システム研究開発事業「高速炉を活用した LLFP 核変換システムの研究開発」成果報告書
- [3.5-3]原子炉設置許可申請書 (高速増殖原型炉もんじゅ原子炉施設) 平成 18 年 10 月変更
- [3.5-4] JNC-TN9400-2000-048 「ODS フェライト鋼被覆管の設計評価用式の検討」2000 年 4 月
- [3.5-5] https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/37/062/37062532.pdf?r=1&r=1

表 3.5.1-1 LLFP 集合体出力と冷却材必要流量

項目	最大線出力 (W/cm)	集合体出力 (MW)	被覆管制限温度 (°C)	冷却材必要流量 (kg/s)
90YD ₂ -10BaI ₂	25	0.089	600	0.51
90YH ₂ -10BaI ₂	39	0.160	600	0.78
90YD ₂ -10Tc	36	0.135	600	0.72
90YH ₂ -10Tc	44	0.209	600	1.06
90YD ₂ -10ZnSe	24	0.080	470	1.35
90YH ₂ -10ZnSe	30	0.150	-	採用無し
90YD ₂ -10Pd	32	0.147	600	0.77
90YH ₂ -10Pd	41	0.198	600	1.00
60YD ₂ -40Cs ₂ CO ₂ *1	19	0.068	500	0.87
40YD ₂ -60Zr*2	<36	<0.135	600	<0.72

*1) H29 年度 70YD₂-30Cs₂CO₂ より出力は外挿評価

*2) 密度が大きい Tc に包絡される

表 3.5.1-2 LLFP 集合体出力および隣接集合体のピーキング

種類	ピン出力 (W)	集合体出力 (MW)	ピーキング	隣接ピーキング	備考
Tc	5735	0.158	2.41	1.22	
BaI ₂ +YH ₂	1782		0.69		

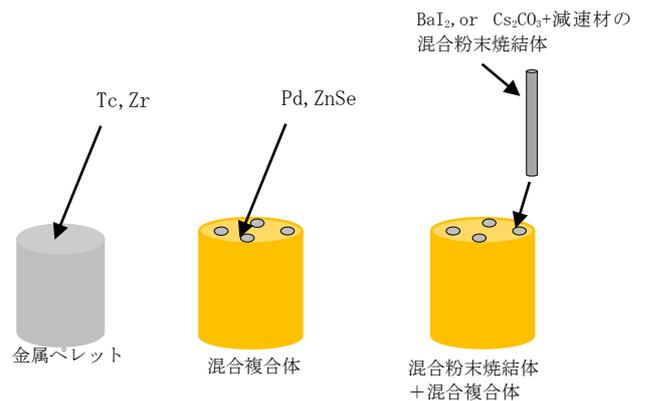
最大出力は Tc ピンで生じる。(74W/cm、軸方向ピーキング : 1.2)

表 3.5.1-3 I 装荷ピンの健全性評価条件

項目	値	備考
被覆管外径／内径 (mm)	11.6/10.6	
ペレット径 (mm)	10.4	
BaI ₂ 比率 (%)	40	
YH ₂ (%)	60	
ペレット密度 (%)	95	
ガス生成量変換	¹²⁹ I→ ¹²⁹ Xe	但し ¹²⁷ Xe→ ¹²⁷ Xe も生じているので左記の量を 1.2 倍する。
被覆管材料	ODS 相当鋼	強度データ [3.5-4]
プレナム長 (mm)	1000	
初期加圧	0-30kg/cm ²	昇温時
被覆管温度 (°C)	600	CDF 評価用 流量配分の結果は 450°C以下であり、保守側の想定
プレナム温度 (°C)	600	同上

表 3.5.1-4 装荷 LLFP の形態 (6核種 3炉心システム)

LLFP	装荷形態	ペレット形態
I	BaI ₂ +YH ₂ BaI ₂ :YH ₂ =60:40	混合粉末焼結体+混合複合体
Tc	Tc 金属	金属ペレット
Pd	Pd+YD ₂ Pd:YD ₂ =60:40	混合複合体
Se	ZnSe+YD ₂ ZnSe:YD ₂ =60:40	混合複合体
Cs	Cs ₂ CO ₃ +YD ₂ RB1 Cs ₂ CO ₃ :YD ₂ =70:30 RB2—遮蔽体 Cs ₂ CO ₃ 100%	混合粉末焼結体+混合複合体
Zr	Zr 金属	金属ペレット



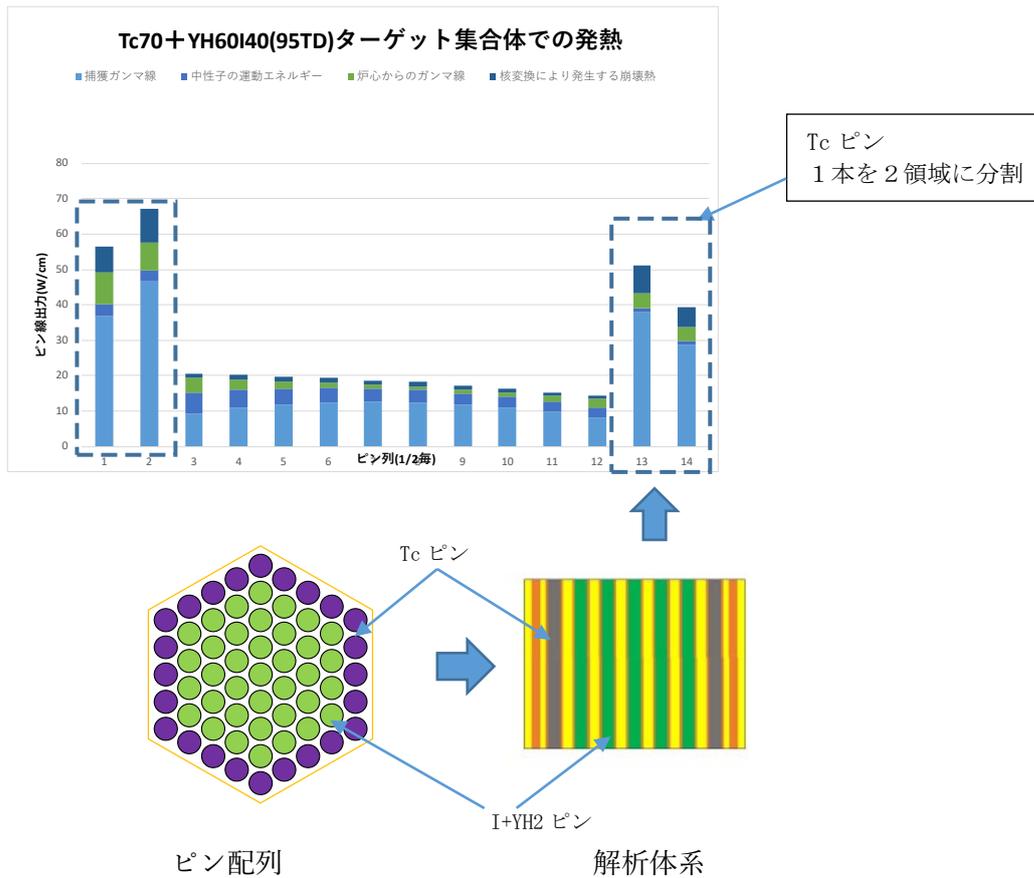


図 3. 5. 1-1 (I+YH2、Tc) 集合体内発熱分布

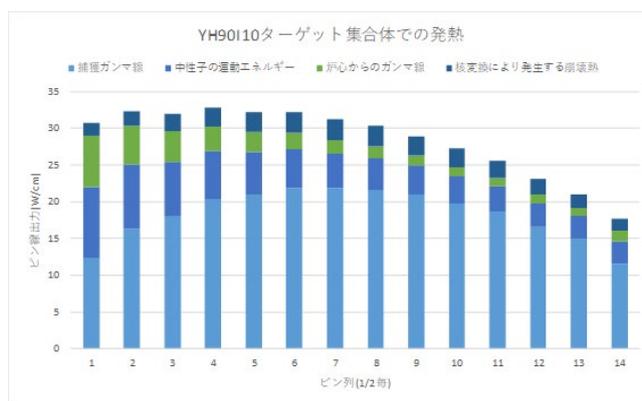


図 3. 5. 1-2 YH90I10 の径方向出力分布

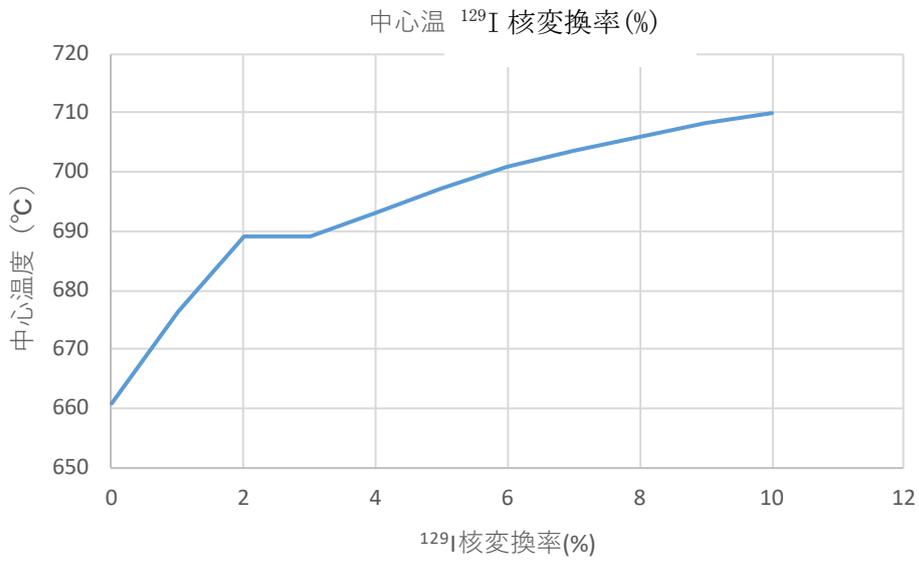


図 3.5.1-3 ペレット中心温度のヨウ素核変換率の依存性

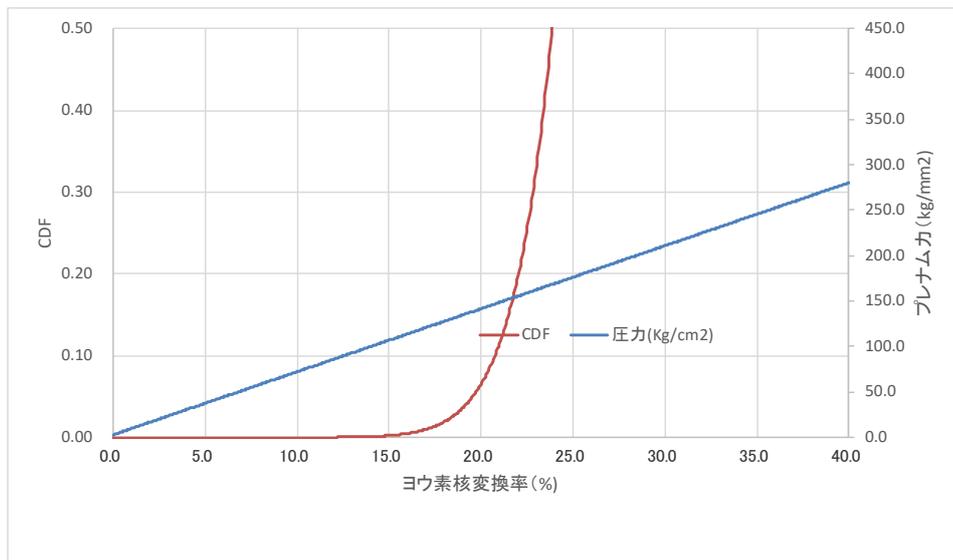


図 3.5.1-4 ヨウ素核変換率と CDF、プレナム圧力

初期加圧を行わない場合 (初期圧力 ~3kg/cm²) CDF=0.5 核変換率 24.0%

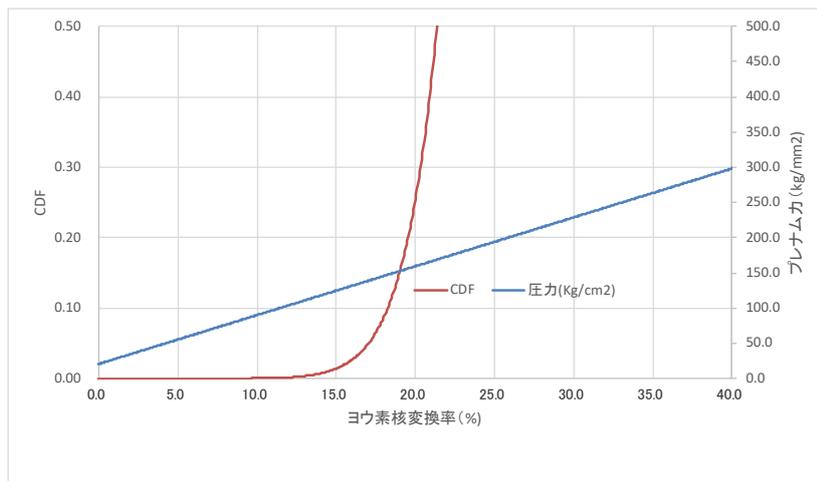


図 3.5.1-5 ヨウ素核変換率と CDF、プレナム圧力
 (初期加圧 20kg/cm²) CDF=0.5 核変換率 21.5%

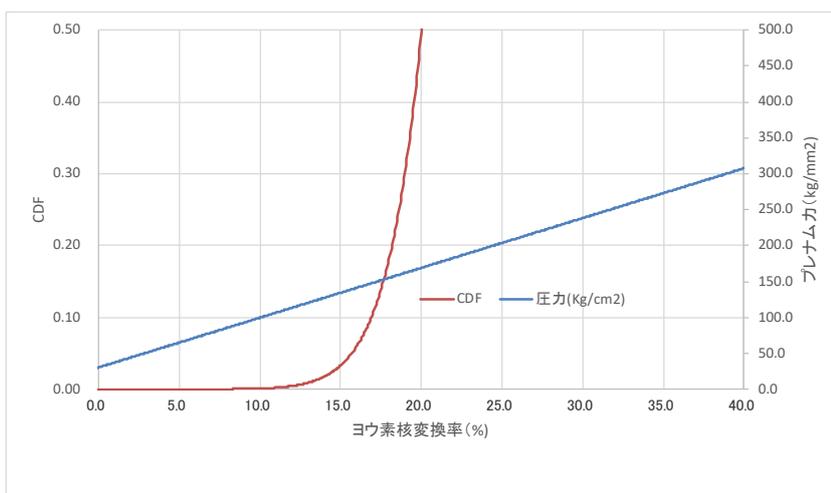


図 3.5.1-6 ヨウ素核変換率と CDF、プレナム圧力
 (初期加圧 30kg/cm²) CDF=0.5 核変換率 20.0%

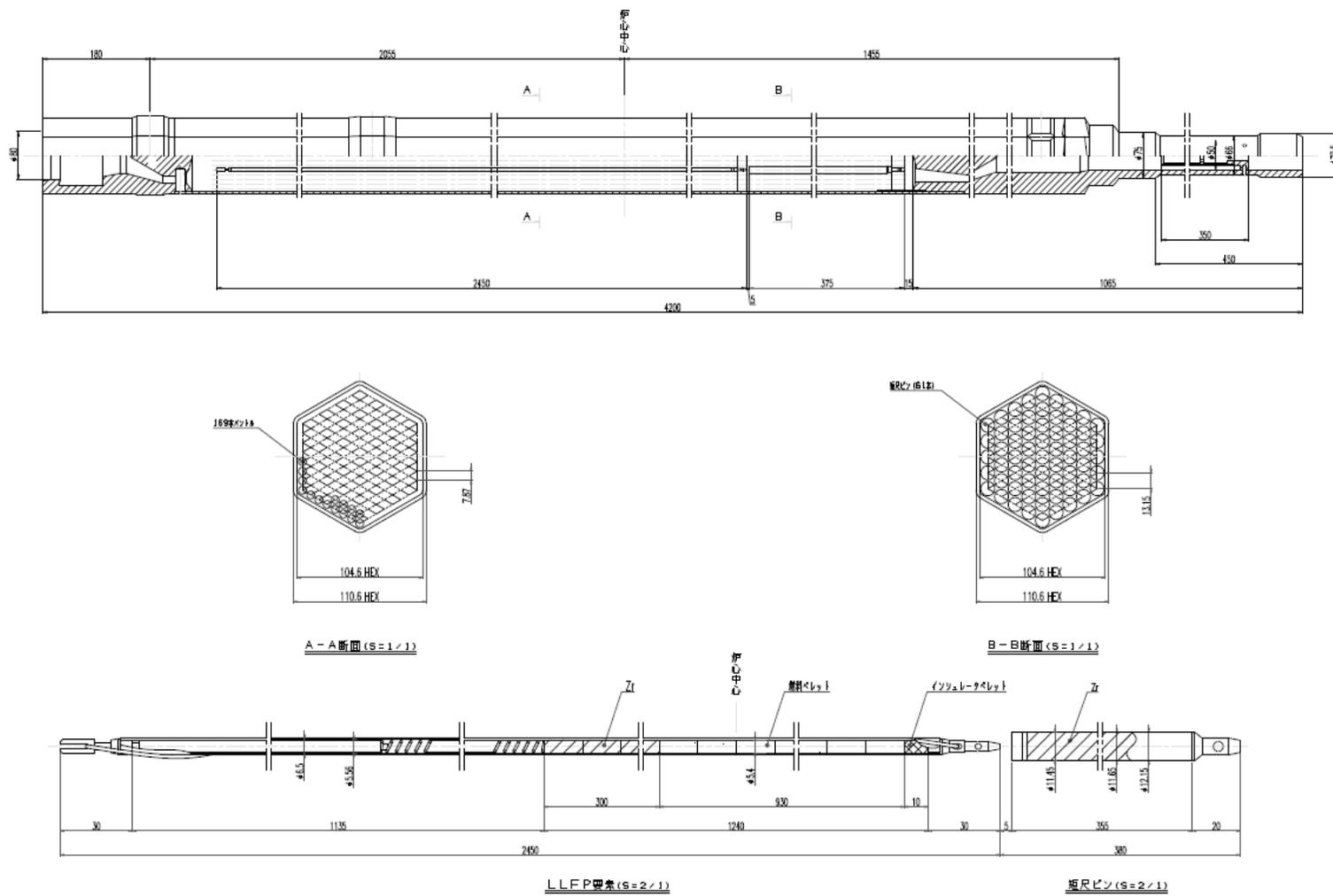


図 3.5.1-7 炉心燃料集合体 (炉心 A、B、C 共通)

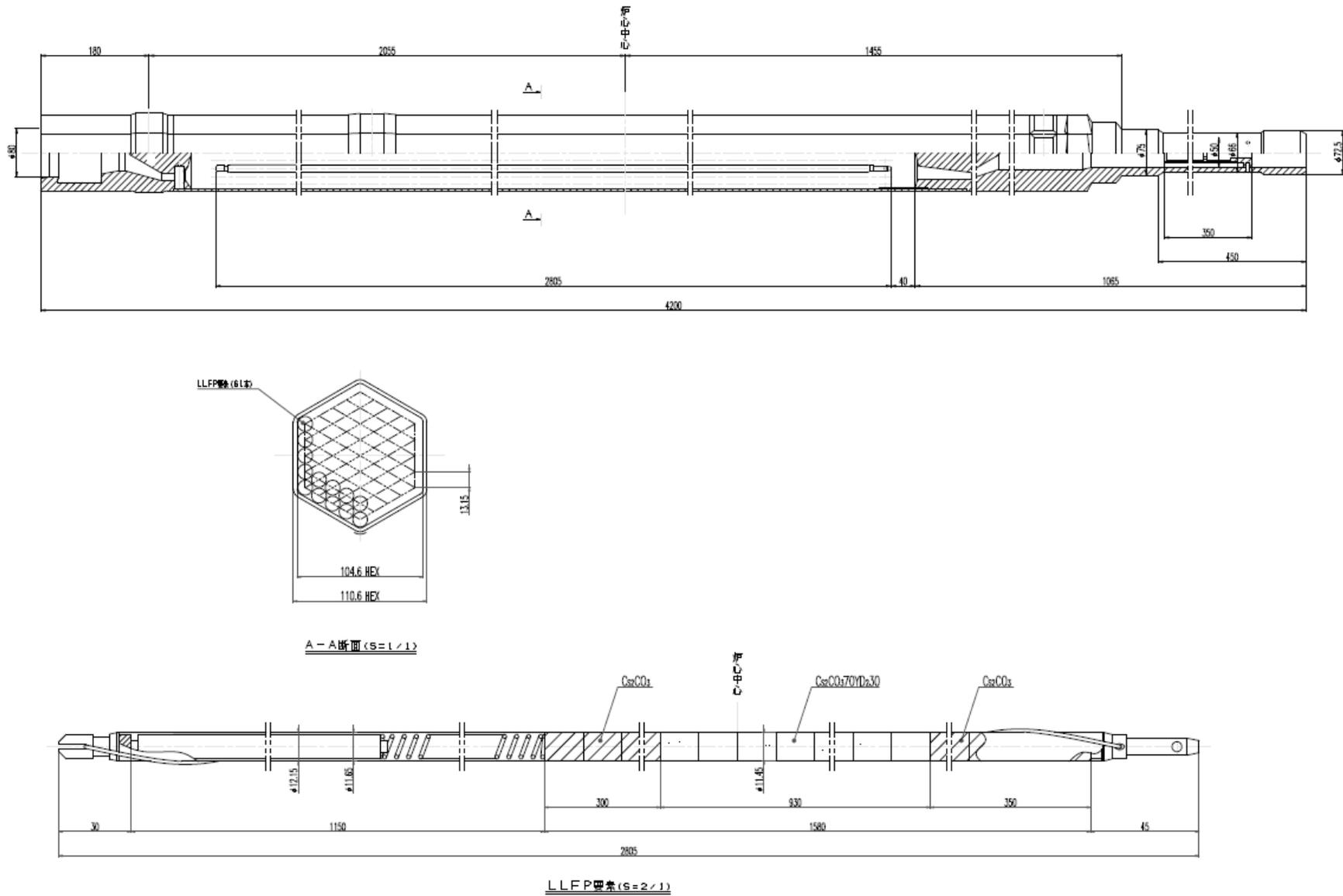


図 3.5.1-8 炉心A 径ブランケット第1層装荷用Cs 集合体

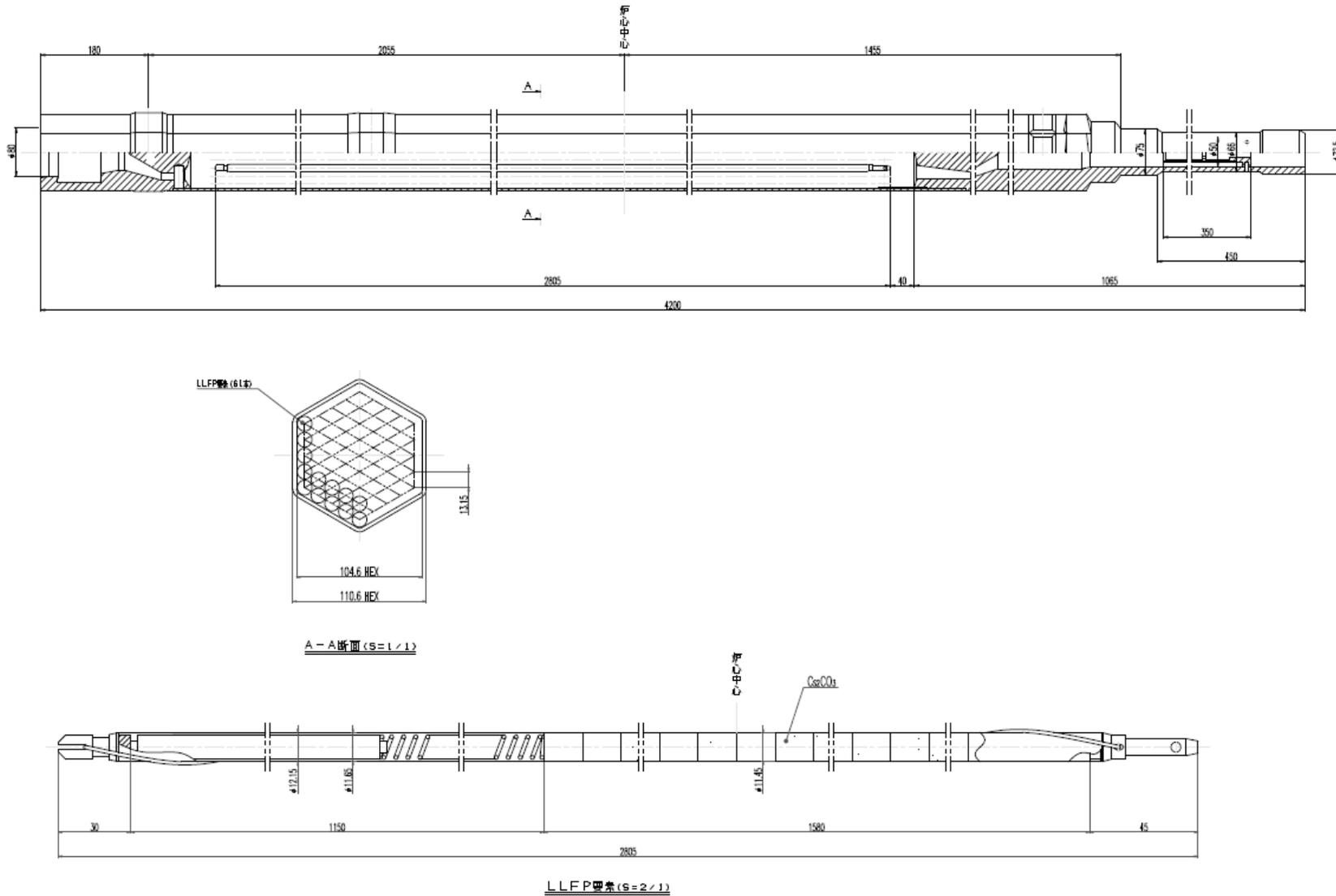
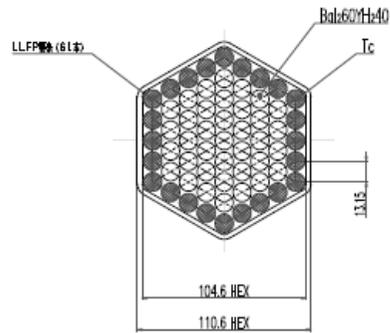
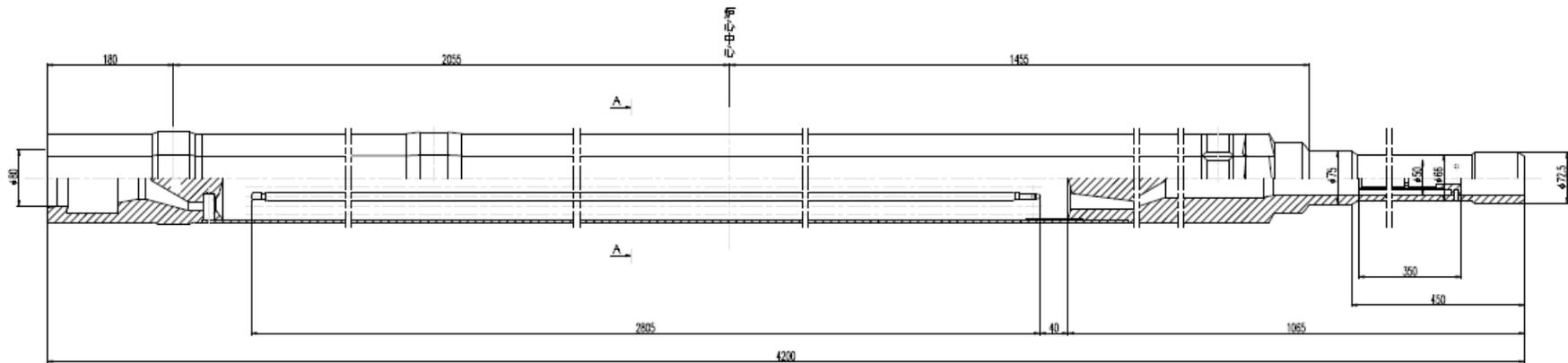
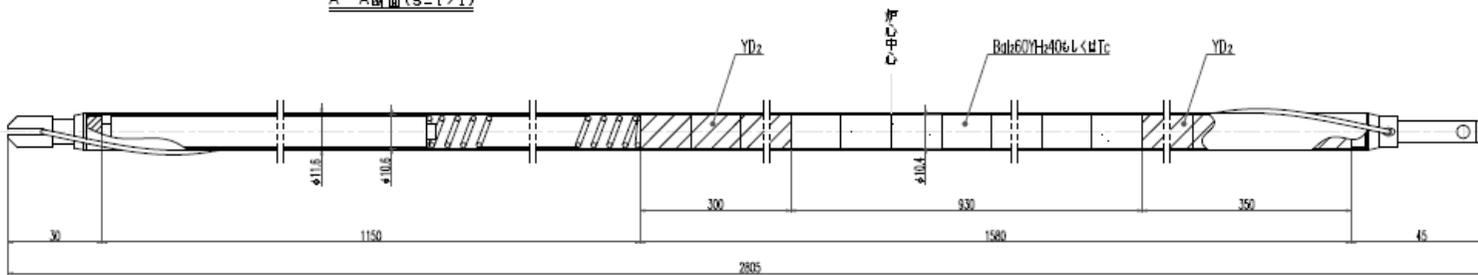


図 3.5.1-9 Cs 装荷集合体 (炉心 A、炉心 B、炉心 C 共通 径ブランケット第 2 層～遮蔽体第 4 層)



A-A断面 (S=1/1)



LLFP図集 (S=2/1)

3.5-12

図 3.5.1-10 炉心 B 径ブランケット第1層装荷 (I+YH2)、Tc 装荷集合体

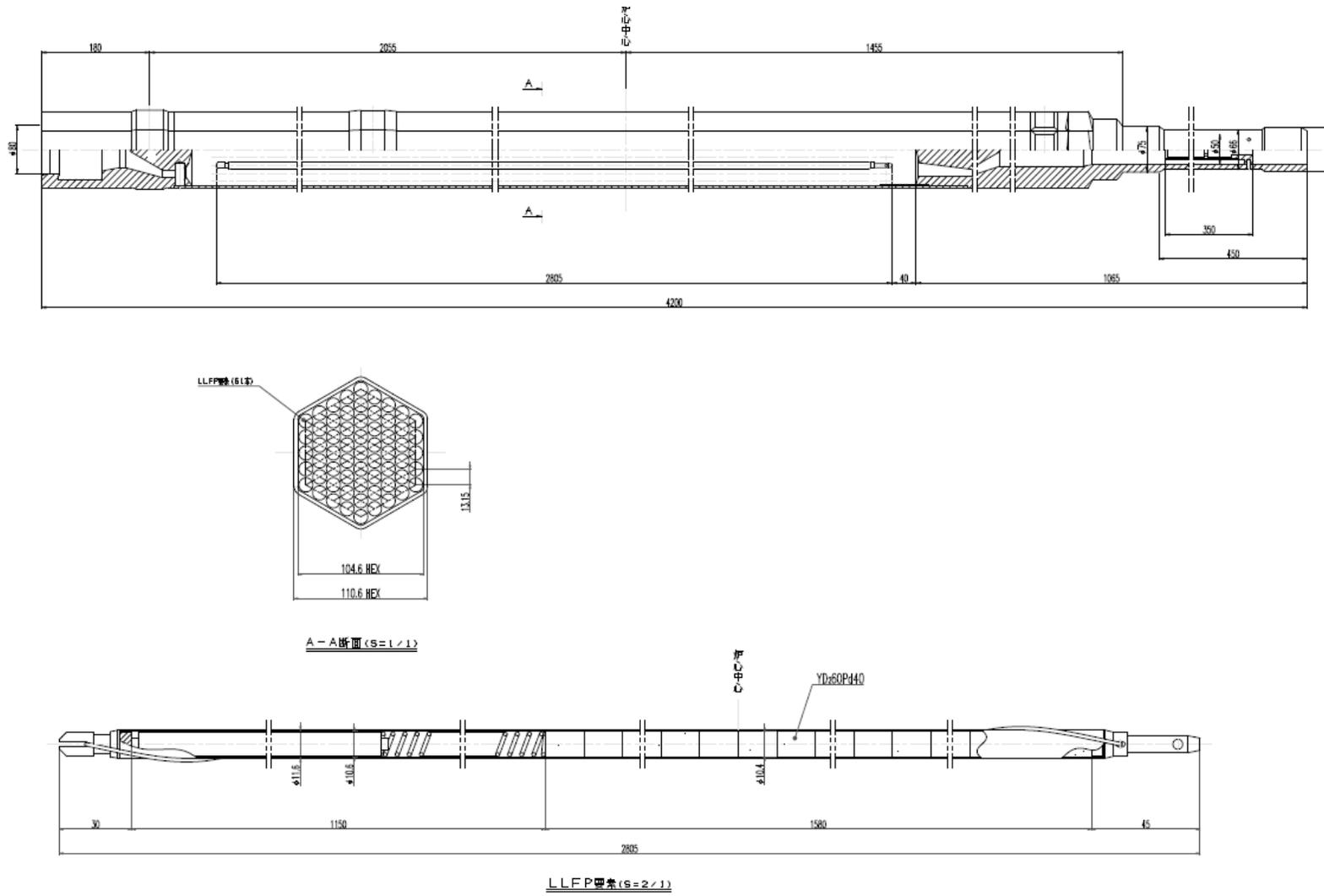
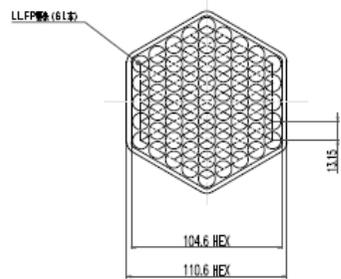
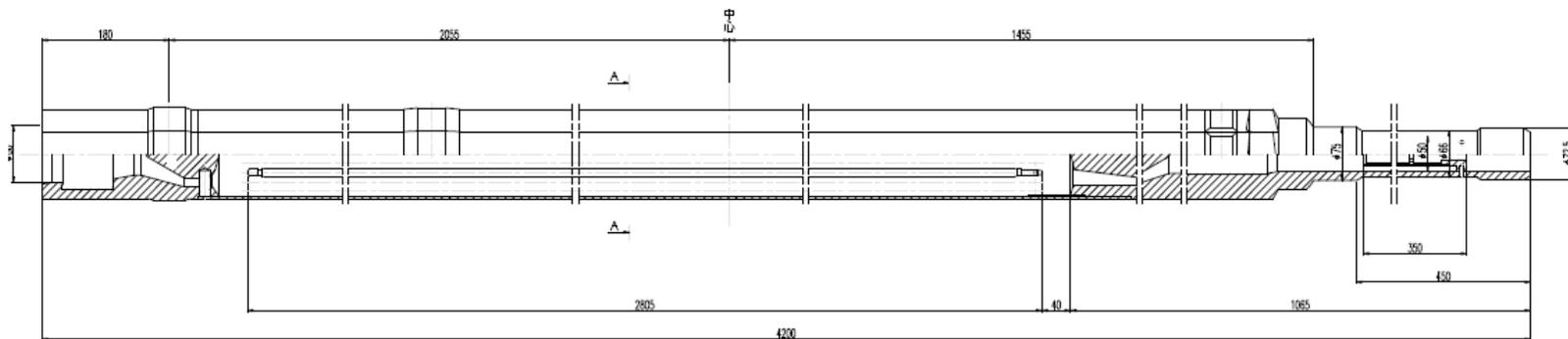
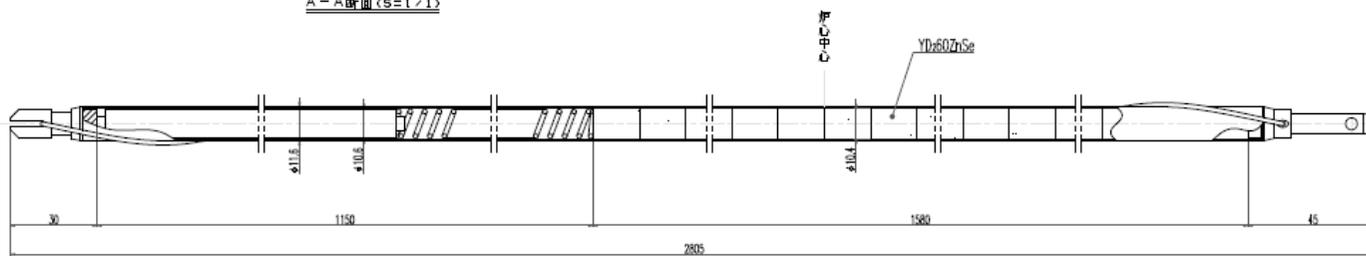


図 3.5.1-11 炉心C 径ブランケット第1層装荷 Pd+YD2 装荷集合体



A-A断面 (S=1/1)



LLFP要素 (S=2/1)

3.5-14

図 3.5.1-12 炉心C 径ブランケット第1層装荷 Se+YD₂ 装荷集合体

3.6 大型高速炉での適用性評価（再委託先：東北大学）【H30-R1】

3.6.1 大型炉への適用解析

大型高速炉に対して、今まで検討してきた LLFP 核変換手法を適用し、核特性、炉心特性、安全性を解析し、大型炉への適用性を評価した。

(1) 大型炉の設定【H30】

大型コンパクト型炉心(導入期炉心) [3.6-1]に準じて設定する。主要項目を表 3.6.1-1~3 に示す。炉心全体系を図 3.6.1-1 に示す。核種は、3.2 項での 1 核種ずつ単独装荷の結果に準じて設定する。すなわち、ターゲット集合体は径ブランケット第 1 層に装荷する。ターゲットピンに装荷する減速材割合は 90%とし、減速材材質は、 ^{79}Se 、 ^{99}Tc 、 ^{107}Pd には重水素化イットリウム(YD_2)、 ^{129}I には水素化イットリウム(YH_2)とする。

ターゲット集合体の LLFP 装荷部は、高速炉(原型炉)と同様、径ブランケットの燃料体積比と一致するように、ピン本数、ピン径、被覆管肉厚を設定した。これを表 3.6.1-4 に示す。表のように、ターゲットピン本数は、もんじゅ仕様を参考にして、燃料バンドルから 2 層少ない、169 本を選択した。設定した、ターゲット集合体の構造を図 3.6.1-2 に示す。

(2) 解析方法【H30】

CITATION コード[3.6-2]による R-Z 体系拡散計算で核変換特性の評価を行った。図 3.6.1-3 に R-Z 体系計算モデルを示す。断面積ライブラリーは JENDL-4.0 の中性子 70 群を用いた。原型炉クラスも同様の計算を行い、核変換特性等の比較し、増殖比、SF についての検討を行う。

また、ターゲット集合体を 3.3 章で設定した、I+Tc 集合体(集合体中央部に I+ YH_2 ピン、集合体遺体周辺部に Tc ピンを配置)をブランケット集合体第 1 層に配置した場合の核変換特性・炉心特性を 3 次元体系での MVP コードにより解析を行った。

(3) 解析結果【H30-R1】

図 3.6.1-4 に CITATION による R-Z 体系 70 群拡散計算での大型炉と高速炉との核変換率の比較を行った結果を示す。図 3.6.1-4 に示すように、大型炉と高速炉の比は、0.3~0.5 であることが分かった。これは、炉心径が大きくなることによる、径方向への中性子の洩れの減少と、集合体サイズが 2 倍としたことで集合体内の径方向中性子束が減衰することによる、集合体平均の反応率の低下が要因と考えられる。

図 3.6.1-5 にサポートファクター(SF)の大型炉と高速炉との比較を示す。 ^{107}Pd の SF が 1.0 を下回ることが分かった。SF=1 を確保するためには、減速材体積比を 90%から 80%に下げることがある。

図 3.6.1-6 に増殖比の大型炉と高速炉との比較を示す。大型炉の増殖比は基準炉心(径ブランケット有)と比較してほとんど変化がなく、1.1 程度を確保できることが分かった。これは、大型炉の増殖比の寄与は軸ブランケットが大きく、径ブランケット第 1 層がターゲット集合体に置換したとしても、影響が小さいことによる。

令和 1 年度は 3.3 項で検討した高速炉核変換システムにおいて径方向ブランケット集合体位置に設置が必要な構造として、(I、 YH_2) +Tc 集合体を装荷することを選定しその核変換特性と炉

心特性の評価を行う。その理由は、ヨウ素は廃棄物処分で重要な核種であること、またヨウ素は核変換により Xe ガスを放出することから大きなガスプレナムの設定が必要でかつ、装荷するときの物質 BaI₂ は融点が低いため、温度が高い炉心燃料集合体の上部ブランケットには置けないことから照射量が大きい燃料集合体の上下ブランケット領域には設置できない。これより径ブランケットにおいた場合に中性子吸収が大きいため、ブランケット第 2 層以降の増殖比を低下させるので、この集合体を設置した場合に、増殖比 > 1 と SF > 1 で高速炉として性能確保可能かを確認する。

集合体の図 3.6.1-2 の 169 本バンドルでは、図 3.6.1-2 に示すように炉心 B と相似の I+YH₂ は 91 本、Tc は 78 本と設定した。炉心特性を表 3.6.1-5 に示す。増殖比と SF はともに 1 を超えている。大型炉で核変換率が原型炉に比較して下がるのは、炉心径が大きくなることによる径方向への中性子束の漏れの減少と、集合体サイズが約 2 倍と大きくなるためである。増殖比が原型炉に比較して大きくなるのは径ブランケットの寄与が原型炉に比較して小さいためである。また、安全性に係るドップラー係数とボイド反応度を評価した。ブランケットを第 1 層に装荷した炉心とで比較をした結果を表 3.6.1-6 に示す。LLFP を装荷してもドップラーとボイド反応度には殆ど影響がないことが示されており、安全性は LLFP 集合体を装荷しない場合と同等と考えられる。

なお、炉心の軸ブランケット部分に Zr を装荷した場合の Zr の核変換率は 0.3% で SF は 2.49 となり、高速炉の核変換率は 0.48%、SF は 0.9 程度と比較して核変換率が低く SF が高い。これは、大型炉のほうが、外部への中性子束が低いが炉心が扁平であるために装荷量が相対的に大きくなるからと考えられる。またブランケット第 2 層に Cs を装荷した場合は高速炉の核変換率は 0.38% で SF は 0.22 程度であるが、大型炉では核変換率は 0.05% で SF は 0.07 と変換率は 1/8 に SF は 1/3 程度に低下する。これは高速炉より大型炉では径ブランケット第 1 層ですでに中性子束が低くなっていることに加えバンドルの大きさは 1.6 倍程度であるため径ブランケット第 1 層での減衰が大きくなり径ブランケット第 2 層の中性子束が高速炉に比較して低くなるからである。

(4) まとめ

原型炉クラスの高速度炉での評価に基づき、炉心 B と同じ、Tc70+I40YH60 の LLFP 集合体を装荷した炉心の評価した。その結果、増殖比 > 1、SF > 1 であることを確認した。

安全性にかかる反応係数は、ボイド反応度、ドップラー係数とも LLFP を径ブランケット第 1 層に装荷しても殆ど影響がないことが確認でき、安全性は LLFP 集合体を装荷しない場合と同等であるとされる。

本炉心に 10-11 体の Se40YD60 集合体を装荷することで、増殖比 > 1 で Se、I の SF > 1 となると考えられる。

参考文献

[3.6-1] JNC TN9400 2004-039 ナトリウム冷却炉の炉心・燃料設計検討(MOX 燃料炉心); 2003 年度報告

[3.6-2] T. B. Fowler, D. R. Vondy, G. W. Cunningham, "Nuclear Reactor Core Analysis Code: CITATION," ORNL-TM-2496, Rev. 2, with Supplements 1, 2, and 3 (October 1971).

表 3.6.1-1 大型炉の炉心基本仕様

原子炉熱出力	3570 MWt
電気出力	1500 MWe
炉心型式	均質 2 領域炉心
運転サイクル長さ	18 ヶ月 (548 日)
燃交バッチ数 (炉心/径方向ブランケット)	4/ 4 バッチ
炉心高さ	80 cm
軸方向ブランケット厚さ (上部/下部)	30/40 cm
炉心燃料集合体数 (内側/外側/合計)	316 / 278 / 594 体
径方向ブランケット体数	198 体 (2 層)
制御棒本数 (主炉停止系/後備炉停止系)	40 / 15 体
径方向遮へい体数	108 /114 体

表 3.6.1-2 大型炉の燃料仕様

燃料形態	MOX (ペレット型)
ラップ管外対面間距離	179.2 mm
ラップ管肉厚	5.0 mm
集合体配列ピッチ	183.2 mm

燃料組成は高速炉多重リサイクル TRU 組成

$^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}/^{242}\text{Pu}/^{241}\text{Am}/^{242m}\text{Am}/^{242}\text{Am}/^{243}\text{Am}/^{242}\text{Cm}/^{243}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}/^{245}\text{Cm}/^{237}\text{Np}$

= 1. 1/54. 1/32. 1/4. 3/ 3. 9/2/0/0/1/0/0/1/0/0. 5

表 3.6.1-3 大型炉の体積比 (%)

	炉心	軸ブラン ケット	径ブラン ケット
燃料	44.1	38.1	50.0
構造材	24.2	24.2	18.0
冷却材	31.7	31.7	32

表 3.6.1-4 LLFP 集合体ピン仕様

		燃料	169 本	127 本
		ピン肉厚	mm	0.52
ピン内径		7.76	10.5	12.1
ピン径	mm	8.8	11.5	13.1
ピンピッチ	mm	10.12	12.8	14.7
ピン本数		271	169	127
ペレット径	mm		10.3	11.9
集合体内対面距離	mm	169.2	169.2	169.2
ラップ管肉厚	mm	5	5	5
バンドルピッチ	mm	4	4	4
ワイヤー径	mm	1.39	1.2	1.6
集合体配列ピッチ	mm	183.2	183.2	183.2
バンドル層数		9	7	6
Di		169.1952	169.2918	169.0669
燃料体積比		0.441	0.503	0.502
構造材体積比		0.244	0.211	0.199
冷却材体積比 (ラップ管内)		0.272	0.242	0.255
冷却材体積比 (ラップ管外)		0.043	0.043	0.043
計		1	1	1

表 3.6.1-5 核変換率、SF、増殖比

核種	大型炉		原型炉炉心 B	
	核変換率 (%)	SF	核変換率	SF
⁹⁹ Tc	0.73	1.16	2.67	3.75
¹²⁹ I	1.61	1.08	3.86	3.20

項目	大型炉	原型炉炉心 B
増殖比	1.104	0.837

表 3.6.1-6 反応度特性

	基準ケース 第1層にブランケット燃料装荷	LLFP 装荷ケース 第1層 Tc+I40YH ₂ 60 装荷
ボイド反応度	5.24±0.004 (\$)	5.26±0.004 (\$)
ドップラー係数	-6.57E-3±1.14E-4 (Tdk/dT)	-6.53E-3±1.14E-4 (Tdk/dT)

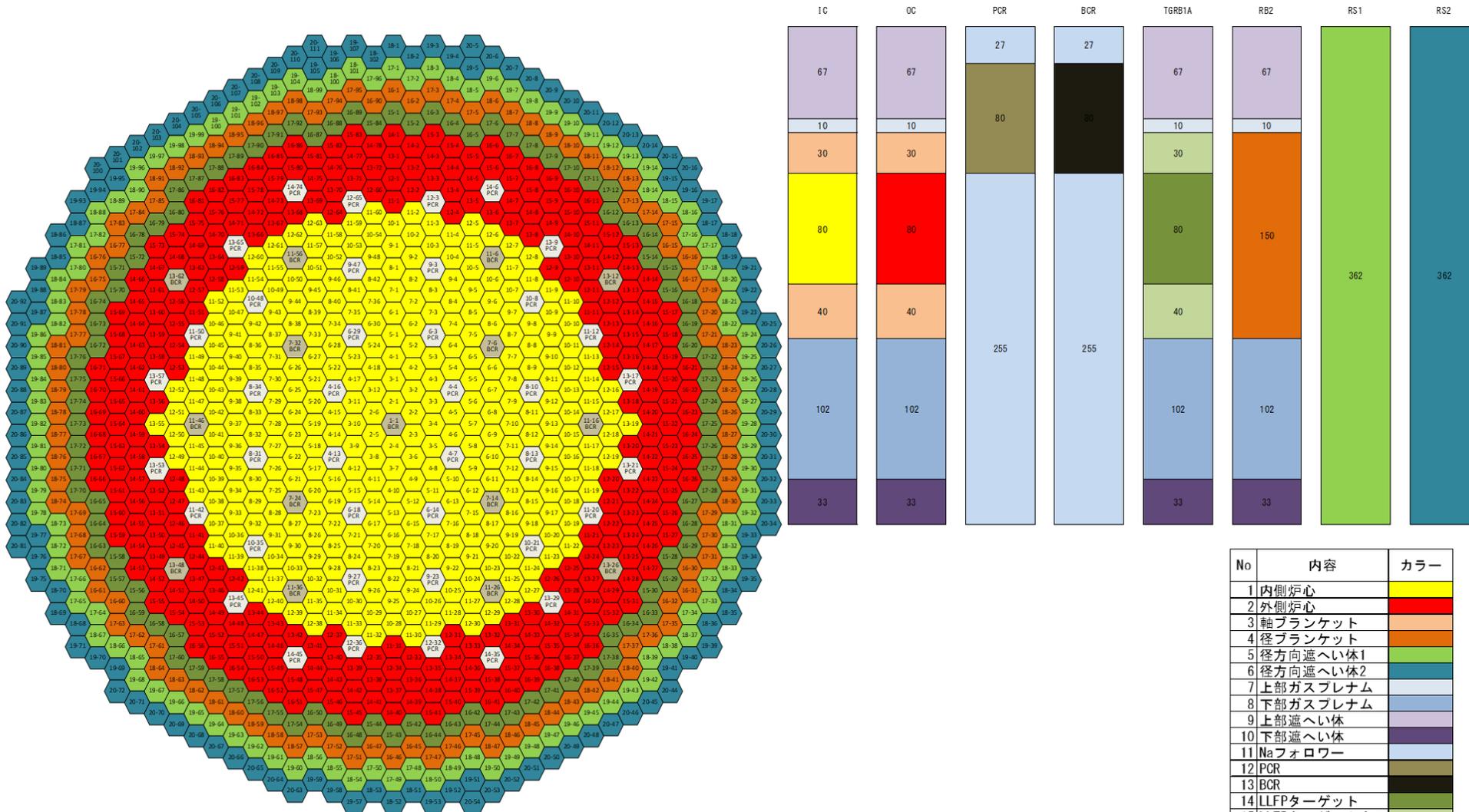


図 3. 6. 1-1 大型炉心の炉心配置図

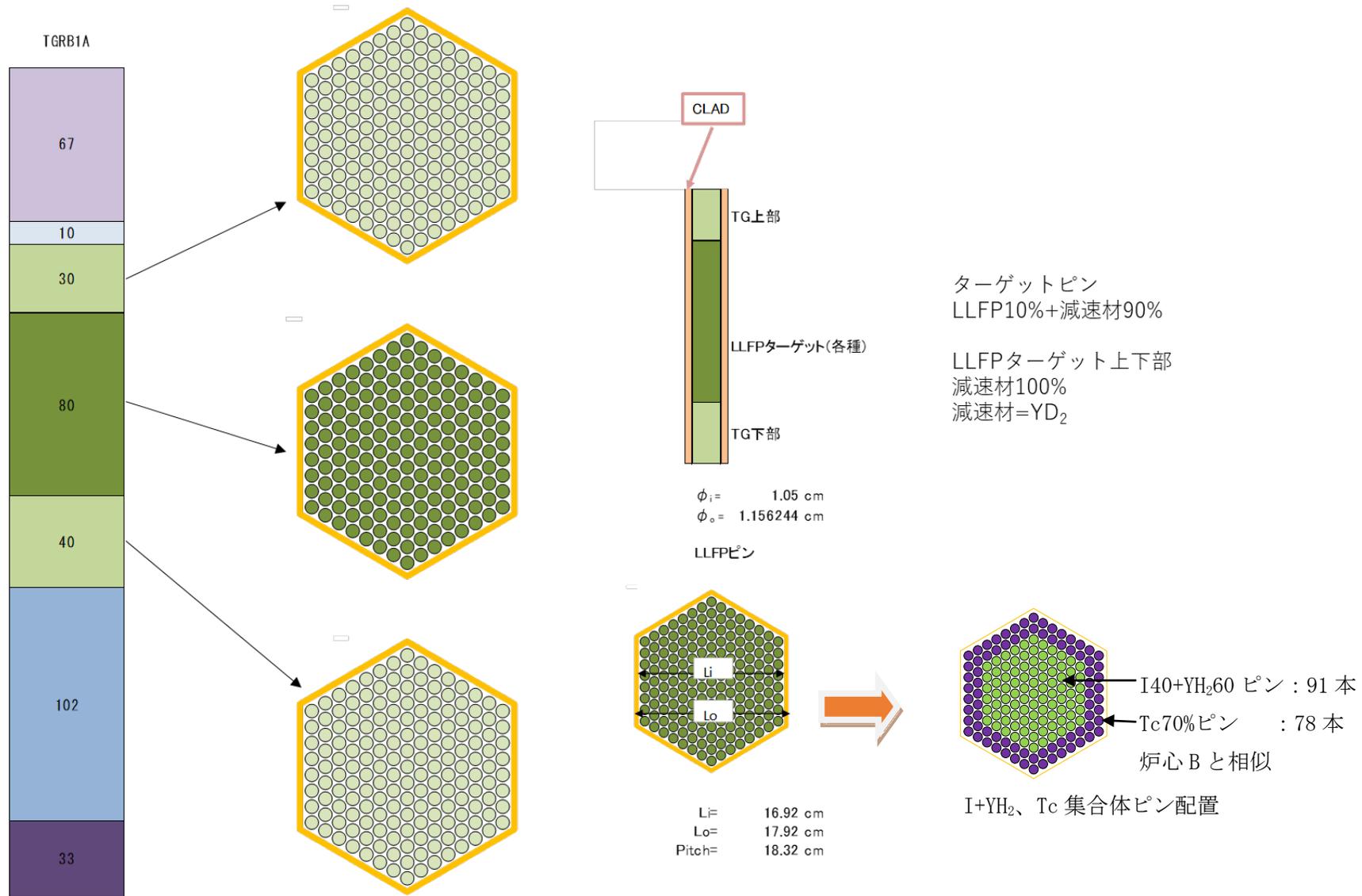
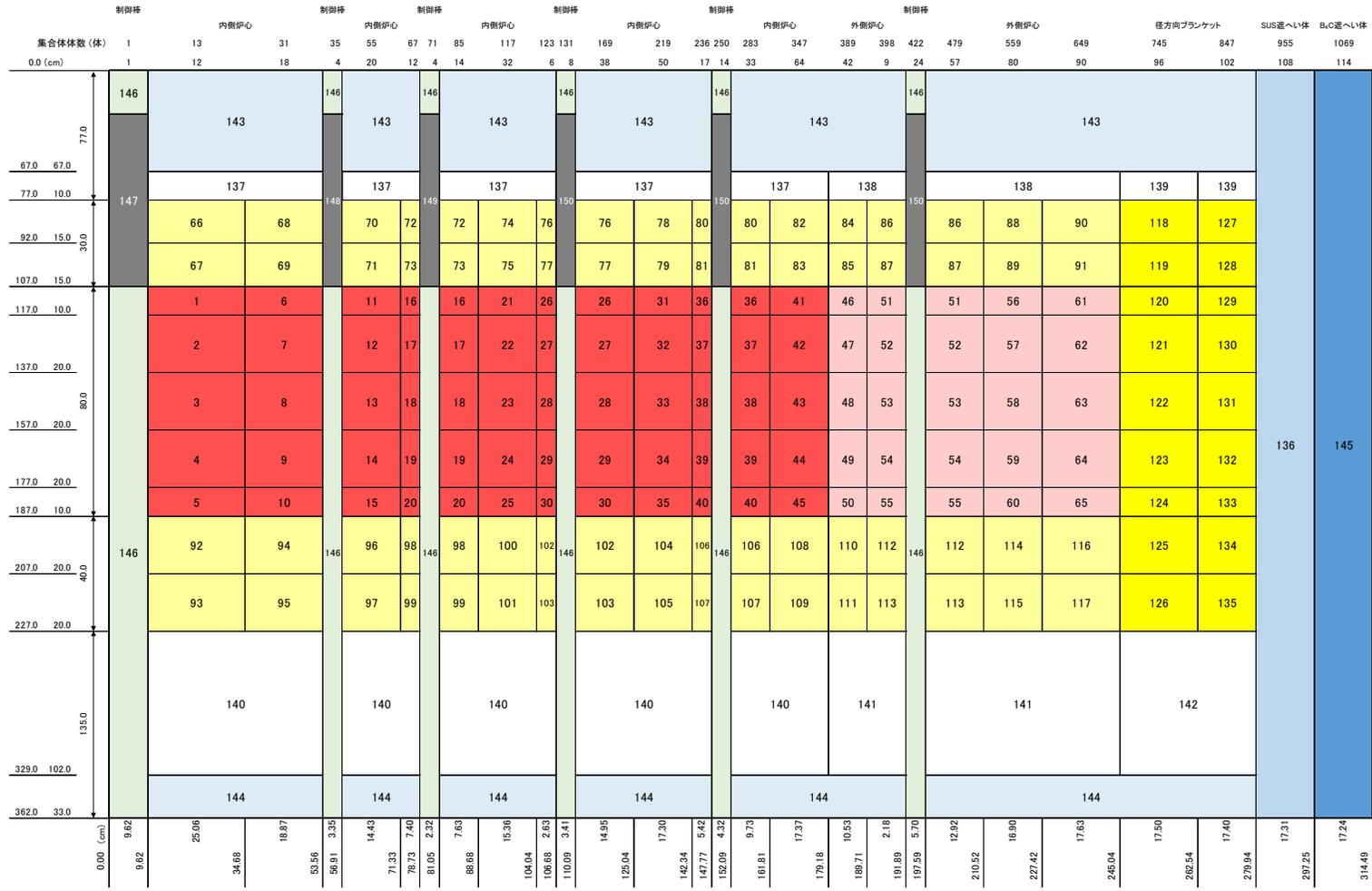


図 3.6.1-2 ターゲット集合体の構造図

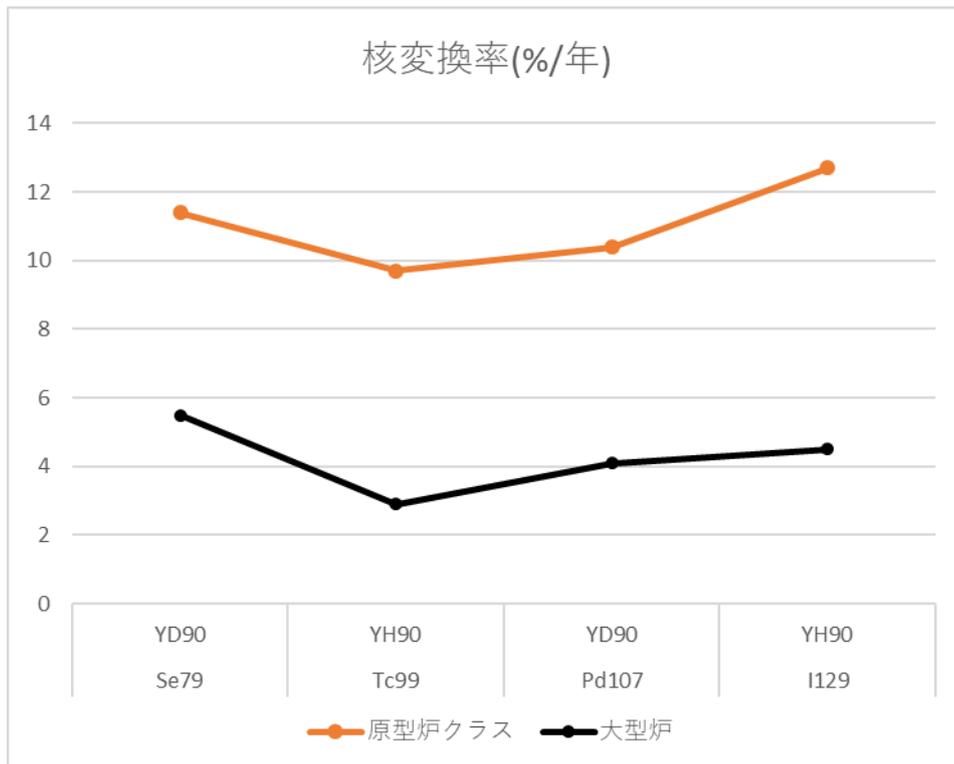
3.6.1



集合体数
内側炉心 316
外側炉心 278
径方向ブランケット 198
制御棒 55
径方向SUS遮蔽体 108
径方向B ₄ C遮蔽体 114
合計 1069

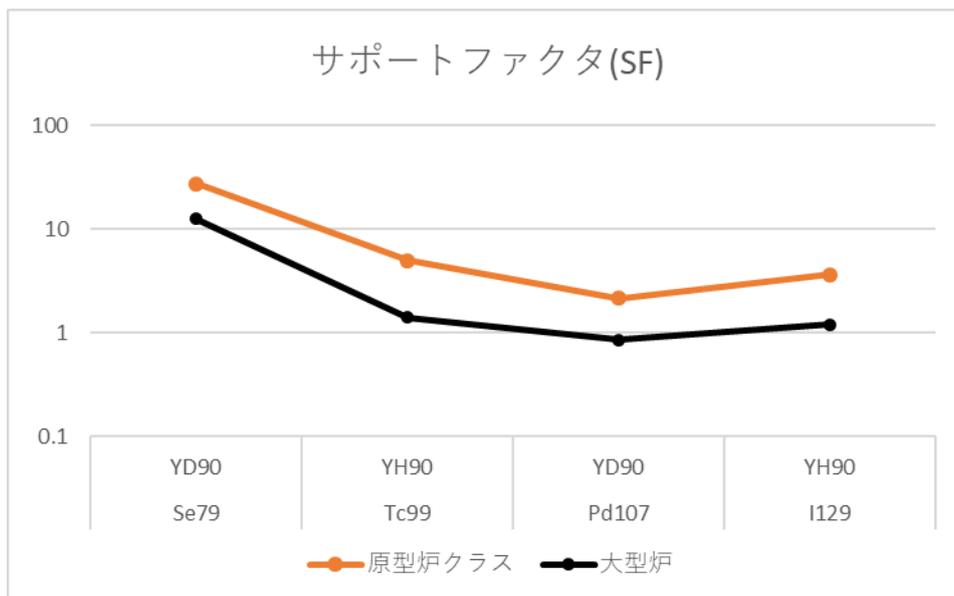
組成種類	数	領域番号
内側炉心	45	1 - 45
外側炉心	20	46 - 65
軸方向ブランケット	52	66 - 117
径方向ブランケット	18	118 - 135
径方向SUS遮へい体	1	136
径方向B ₄ C遮へい体	1	145
上部ガスプレナム	3	137 - 139
下部ガスプレナム	3	140 - 142
上部遮蔽体(炉心)	1	143
下部遮蔽体(炉心)	1	144
Naフロー	1	146
制御棒吸収体	1	147 - 150

図 3.6.1-3 R-Z 体系計算モデル



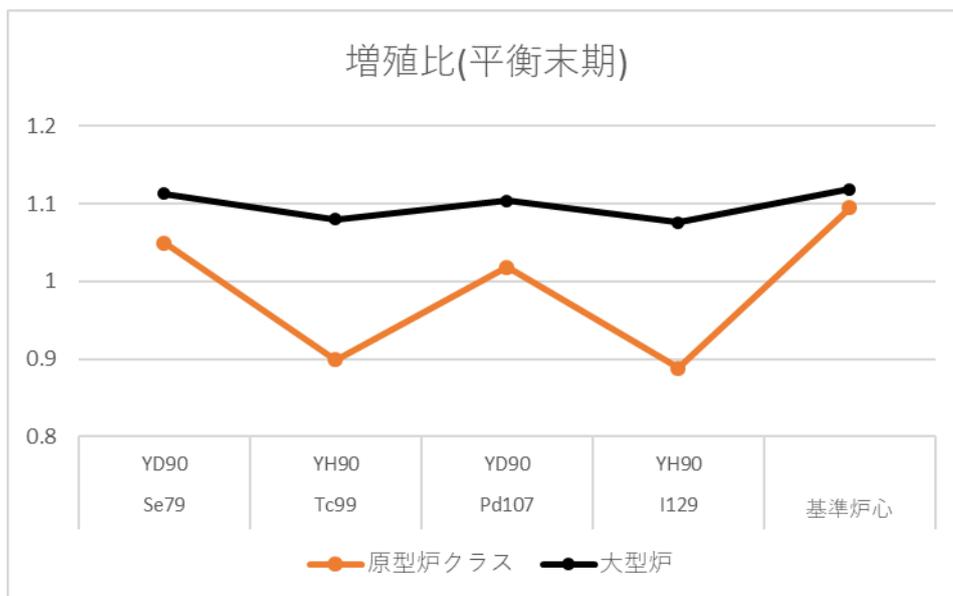
注)CITATION による計算結果

図 3.6.1-4 大型炉と高速炉(原型炉)との核変換率の比較



注)CITATION による計算結果

図 3.6.1-5 大型炉と高速炉(原型炉)とのサポートファクターの比較



注) CITATION による計算結果

図 3.6.1-6 大型炉と高速炉(原型炉)との増殖比の比較

3.7 核変換ターゲット構成材料の物性（再委託先：原子力機構）

3.7.1 物性調査・適用性検討【H28】

^{79}Se 、 ^{93}Zr 、 ^{99}Tc 、 ^{107}Pd 、 ^{129}I および ^{135}Cs の 6 種の長寿命核分裂生成物を高速炉内で短寿命または安定核種へ核変換することを目的に、高速炉炉心に装荷可能な最適な形態を検討するため、先行研究でその物性が明らかにされている Tc、I を除く 4 元素について、単体、酸化物、炭化物等の熱伝導度、熱膨張率、融点などの物性、水溶性や酸およびアルカリへの可溶性、化学的反応性について文献・データベースや実験実施により調査した。その結果、高速炉炉心領域の温度に対して Se、 SeO_2 は融点が低く、PdO や Cs_2CO_3 も昇華や分解が生じ高温安定性に劣ることが明らかになった。[3.7.1-1]

3.7.2 高温安定性試験【H29】

平成 28 年度の物性調査結果から ^{93}Zr 、 ^{99}Tc および ^{107}Pd については単体金属状態が、 ^{129}I については BaI_2 がそれぞれ最適な高速炉炉内装荷形態とした。一方、 ^{79}Se 、 ^{135}Cs については、単体や酸化物などの範囲では候補形態の選定に至らなかったため、候補材調査を進め、 ZnSe 、 CsCl および Cs_2CO_3 を対象として示差熱・熱重量分析（TG-DTA）を実施した。その結果、 ^{79}Se については ZnSe 、 ^{135}Cs については Cs_2CO_3 が高温安定性に優れていることが明らかとなり、それぞれを候補形態とした。LLFP の核変換効率を高めるために水素化物または重水素化物を中性子減速材として適用することを想定している。Zr と Y を母材とした水素化物と重水素化物を製造して TG-DTA による水素・重水素解離特性を調査した。その結果、Zr よりも Y が水素・重水素解離温度が高く、高温まで水素・重水素保持性能が期待できること、粉末状や塊状などの形状の違いにより水素・重水素解離特性が異なることが明らかとなった。[3.7.2-1]

3.7.3 共存性試験【H30】

6 種の LLFP 元素のうち、Se、Zr、Pd および Cs の炉内装荷形態の候補である ZnSe 、Zr、Pd および Cs_2CO_3 について、被覆管材料と想定した SUS316 鋼との共存性を評価した。短冊状の SUS316 鋼を粉末状の ZnSe 、Zr、Pd および Cs_2CO_3 と接触させ、 500°C または 650°C で 500 時間保持した。その後、外観観察、重量変化量測定、組織観察、元素分析に供した結果、 ZnSe と Zr は良好な共存性を有していることが明らかになり、Pd と Cs_2CO_3 では SUS316 鋼に酸化層が生成されることが明らかになった。Pd、 Cs_2CO_3 については、適用環境において雰囲気中の酸素量の低減や被覆管との接触防止処置の必要性が明らかとなった。[3.7.3-1]

3.7.4 強度特性への影響試験【R1】

LLFP の炉内装荷候補形態と被覆管材料との共存性確認の一環として、高温にて LLFP 装荷候補形態と保持した SUS316 鋼製試験片の引張試験を行い、共存性が強度特性に及ぼす影響について調査した。

(1) 高温保持試験

LLFP の炉内装荷形態は表 3.7.4-1 に示すものとし、これらを図 3.7.4-1 および図 3.7.4-2 に示す石英製の円筒管で構成された共存性試験装置において、引張試験片形状の SUS316 鋼試験片の標点間位置で LLFP 候補形態と接触させ高温に保持した。高温保持試験は表 3.7.4-2 に示すように平成 30 年度に実施した共存性試験と同じ条件で実施した。高温保持後の SUS316 鋼試験片は、エタノールで洗浄した後、外観観察、重量測定、走査型電子顕微鏡 (SEM) による表面および断面の観察、エネルギー分散型 X 線分析 (EDX) による元素分析、引張試験に供した。高温保持試験の試験片数は LLFP 候補形態毎に 4 本とし、外観観察と重量測定は全数について実施し、SEM 観察と元素分析は 4 本のうちの 1 本について、引張試験は残りの 3 本について実施した。表 3.7.4-1 に高温保持試験に供した LLFP 装荷形態の仕様、表 3.7.4-3 に高温保持試験前後の重量変化、図 3.7.4-3 に試験片の外観を示す。また、図 3.7.4-4 に SEM による観察、図 3.7.4-5～図 3.7.4-10 に分析結果を示す。

高温保持試験後の外観について、図 3.7.4-3 のように ZnSe の試験片では ZnSe との接触部分に変色が認められたが、他の試験片では試験片全体にわたって変色が認められた。高温保持前後の重量変化は、ZnSe では重量の増減は無く、Zr ではわずかな重量増加、Pd ではわずかな重量増加と重量減少、BaI₂ では重量減少、Cs₂CO₃ では重量増加をそれぞれ示した。これらのうち平成 30 年度に同じ試験条件で共存性試験を行った ZnSe、Pd、Cs₂CO₃ については、平成 30 年度の重量変化結果と同じ傾向であった。SEM による表面および断面観察の結果、ZnSe の試験片では表面に微粒子の付着があるものの試験前の受入材時の研磨痕が残っており表面状態に大きな変化はなかった。断面観察においても変化は認められず、元素分析結果からも劣化の痕跡はなかった。Zr の試験片では、Zr との接触部分では受入材時の研磨痕があり変化はなかったが、接触部位の隣接部位では研磨痕が薄くなり、付着層の存在が示唆された。元素分析の結果、Mg が検出され、これは Zr 粉末に含まれる不純物であった。断面観察からは劣化の痕跡は認められなかった。Pd の試験片では、表面に多数の付着物が認められた。元素分析の結果から、これらは Pd、または Pd による酸化層と想定されるが、断面観察からは大きな劣化の痕跡は認められなかった。BaI₂ の試験片では、試験片表面が大きく変化し、断面観察からは 30 μm 程度の変質相が認められた。元素分析の結果、Ba や I との反応は認められなかったため、BaI₂ と高温保持時に生じた変質であると推測される。Cs₂CO₃ の試験片では、試験片表面が大きく変化し、断面観察からも付着物の存在が認められた。元素分析の結果、この付着物は Cs またはその酸化物であると推測され、SUS316 鋼の Fe 成分も影響していることが示唆された。これらの ZnSe、Pd および Cs₂CO₃ による SUS316 鋼の変化についても平成 30 年度に実施した共存性試験の結果とほぼ同じであった。

(2) 引張試験

これらの試験片について、表 3.7.4-4 に示す条件において引張試験を実施した。引張試験

の結果、ZnSe、Zr および Pd の試験片の引張強度、0.2%耐力、一様伸び、全伸びは表 3.7.4-5 に示すようになり、受入材との比が 0.9~1.0 であり、強度特性に大きな変化はなかった。一方、BaI₂、Cs₂CO₃ の試験片では、一様伸びや全伸びが低下したが、引張強度や 0.2%耐力には大きな変化は認められなかった。

(3) まとめ

これらのことより、6 種の LLFP 核種のうち ZnSe、Zr、Pd については被覆管材料の候補である SUS316 鋼に対して高温保持による大きな変化がなく、強度特性にも影響を及ぼしていないことが明らかとなった。BaI₂、Cs₂CO₃ については、高温保持により SUS316 鋼の表面に変化は生じるものの、これらの変化は SUS316 鋼の強度特性に大きく影響していないことが明らかとなった。

参考文献

- [3.7.1-1] 平成 28 年度成果報告書「「もんじゅ」を活用した LLFP 核変換システムの研究開発」
- [3.7.2-1] 平成 29 年度成果報告書「高速炉を活用した LLFP 核変換システムの研究開発」
- [3.7.3-1] 平成 30 年度成果報告書「高速炉を活用した LLFP 核変換システムの研究開発」

表 3.7.4-1 LLFP の炉内装荷形態と供試体仕様

LLFP 核種	炉内装荷形態	供試体仕様
^{79}Se	ZnSe	純度：99.999%、形態：粉末
^{93}Zr	Zr	純度：98%、形態：粉末
^{99}Tc	Tc	
^{107}Pd	Pd	純度：99.9+%、形態：粉末
^{129}I	BaI ₂	純度：99.95%、形態：粉末
^{135}Cs	Cs ₂ CO ₃	純度：99.99%、形態：粉末

表 3.7.4-2 高温保持試験条件

LLFP 装荷形態	保持温度	保持時間	雰囲気
ZnSe	500°C	500 時間	Ar
Zr	650°C		
Pd			
BaI ₂			
Cs ₂ CO ₃			

表 3.7.4-3 SUS316 鋼の高温保持試験前後の重量変化

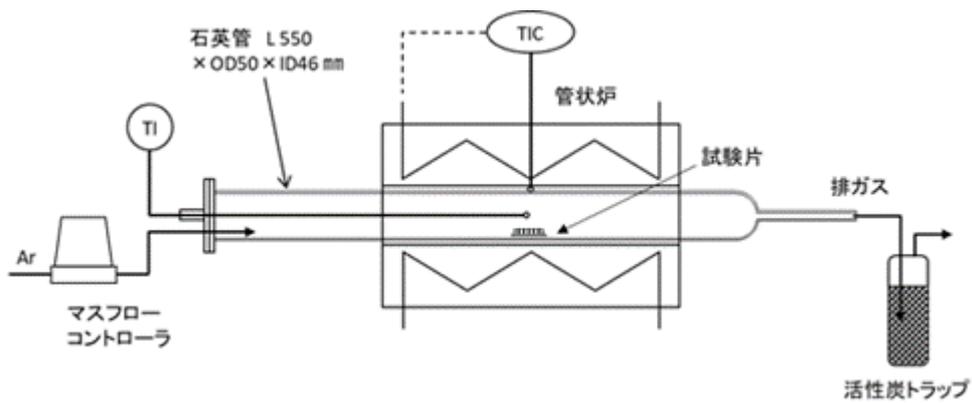
LLFP 装荷形態	試験片 No.	試験前重量(g)	試験後重量(g)	重量変化(g)
ZnSe	1	0.5029	0.5029	0.0000
	2	0.5073	0.5073	0.0000
	3	0.5076	0.5076	0.0000
	4	0.5078	0.5078	0.0000
Zr	13	0.4990	0.4991	0.0001
	14	0.5018	0.5020	0.0002
	15	0.5065	0.5066	0.0001
	16	0.5077	0.5079	0.0002
Pd	17	0.5042	0.5046	0.0004
	18	0.5031	0.5031	0.0000
	19	0.4997	0.4995	-0.0002
	20	0.5036	0.5035	-0.0001
BaI ₂	5	0.5060	0.5029	-0.0031
	6	0.5058	0.5028	-0.0030
	7	0.5054	0.5025	-0.0029
	8	0.5022	0.4988	-0.0034
Cs ₂ CO ₃	22	0.4988	0.5081	0.0093
	23	0.5012	0.5098	0.0086
	24	0.5044	0.5044	0.0089
	25	0.5061	0.5061	0.0080

表 3.7.4-4 引張試験条件

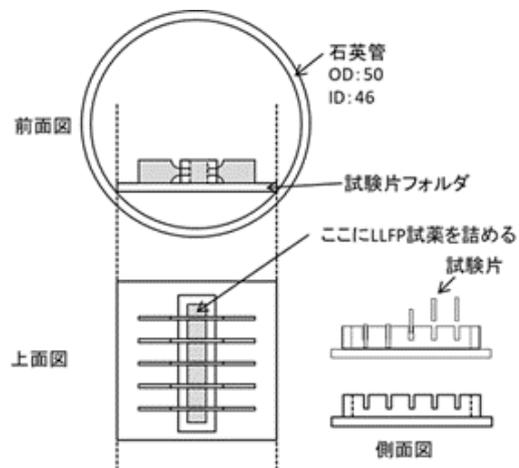
試験温度	室温
引張速度	0.381mm/min
雰囲気	大気

表 3.7.4-5 SUS316 鋼の引張試験結果

LLFP 装荷形態	試験片 No.	0.2%耐力 (MPa)	引張強度 (MPa)	一様伸び (%)	全伸び (%)
受入材	26	396.8	630.6	65.4	81.4
	27	399.2	632.0	65.6	78.5
	28	374.7	627.6	67.1	80.4
ZnSe	1	358.9	636.9	62.9	76.1
	2	444.9	657.1	57.9	81.9
	3	351.3	631.7	65.1	80.2
Zr	13	337.6	633.0	62.3	74.0
	14	341.6	630.2	62.4	75.7
	15	377.0	640.3	57.3	68.1
Pd	17	343.9	632.5	63.0	80.0
	18	392.3	647.0	58.2	74.3
	19	380.0	635.2	61.6	74.2
BaI ₂	5	334.7	586.1	45.4	50.6
	6	368.8	591.8	44.0	51.0
	7	299.4	577.9	46.2	52.3
Cs ₂ CO ₃	22	380.5	646.6	45.1	50.0
	23	333.7	640.2	55.4	64.5
	24	376.7	638.7	40.8	45.2



① 装置体系



② 石英管内試験部

図 3.7.4-1 共存性試験装置

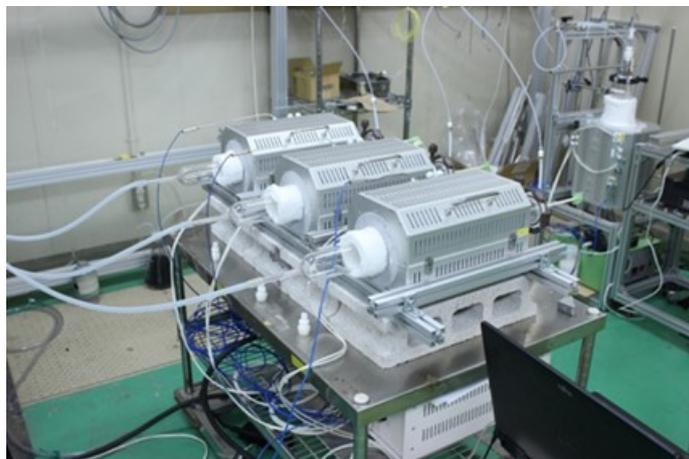


図 3.7.4-2 共存性試験装置外観

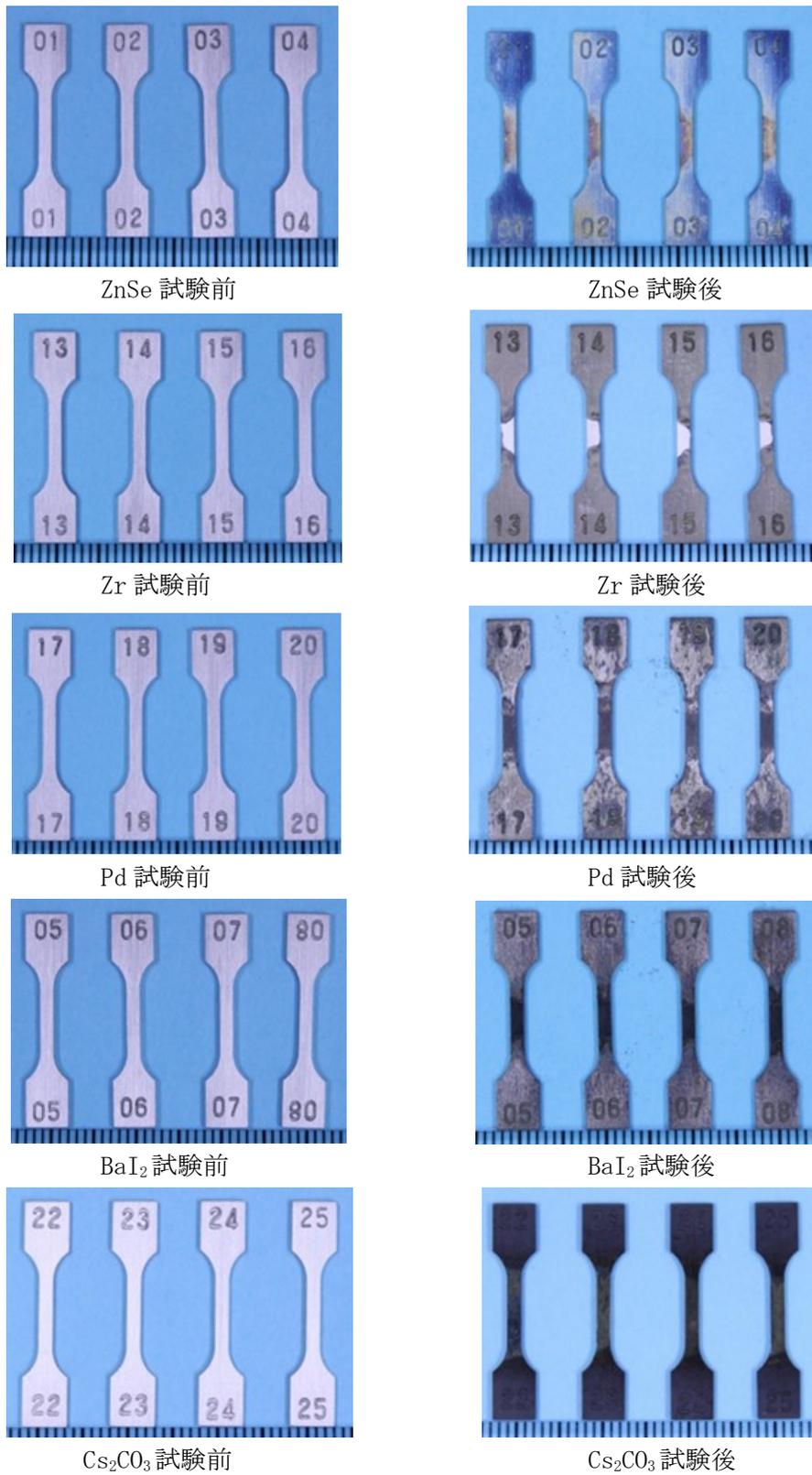
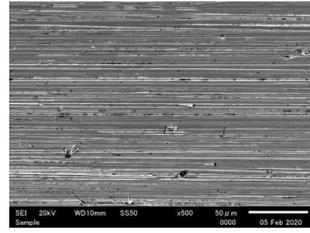
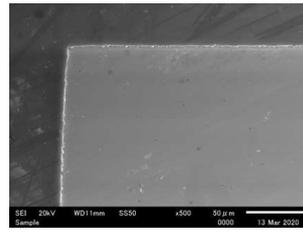


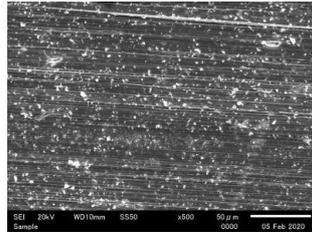
図 3.7.4-3 SUS316 鋼試験片の高温保持試験前後の外観



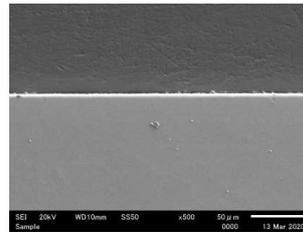
受入材試験片の表面



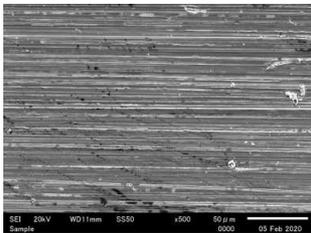
受入材試験片の断面



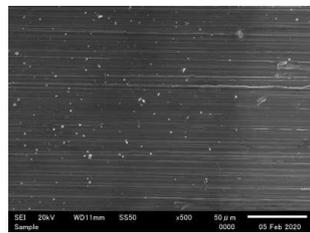
ZnSe 試験片の表面



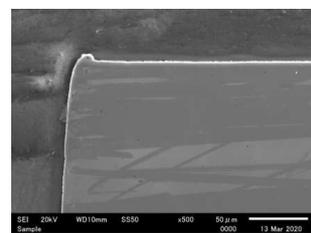
ZnSe 試験片の断面



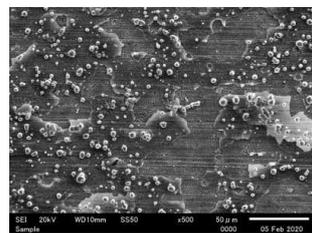
Zr 試験片の表面 (Zr 接触部)



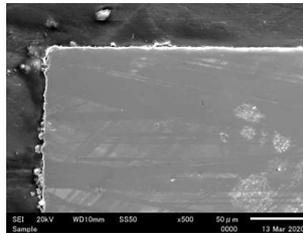
Zr 試験片の表面 (隣接部)



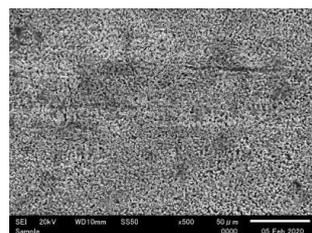
Zr 試験片の断面



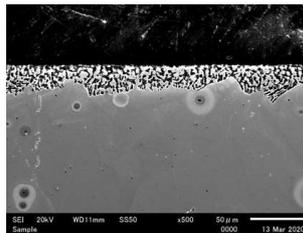
Pd 試験片の表面



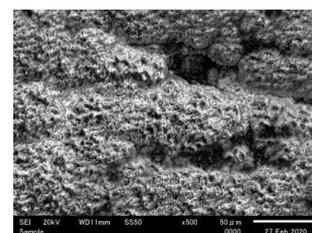
Pd 試験片の断面



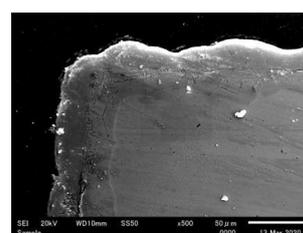
BaI₂ 試験片の表面



BaI₂ 試験片の断面



Cs₂CO₃ 試験片の表面



Cs₂CO₃ 試験片の断面

図 3.7.4-4 SUS316 鋼試験片の高温保持試験前後の SEM 像

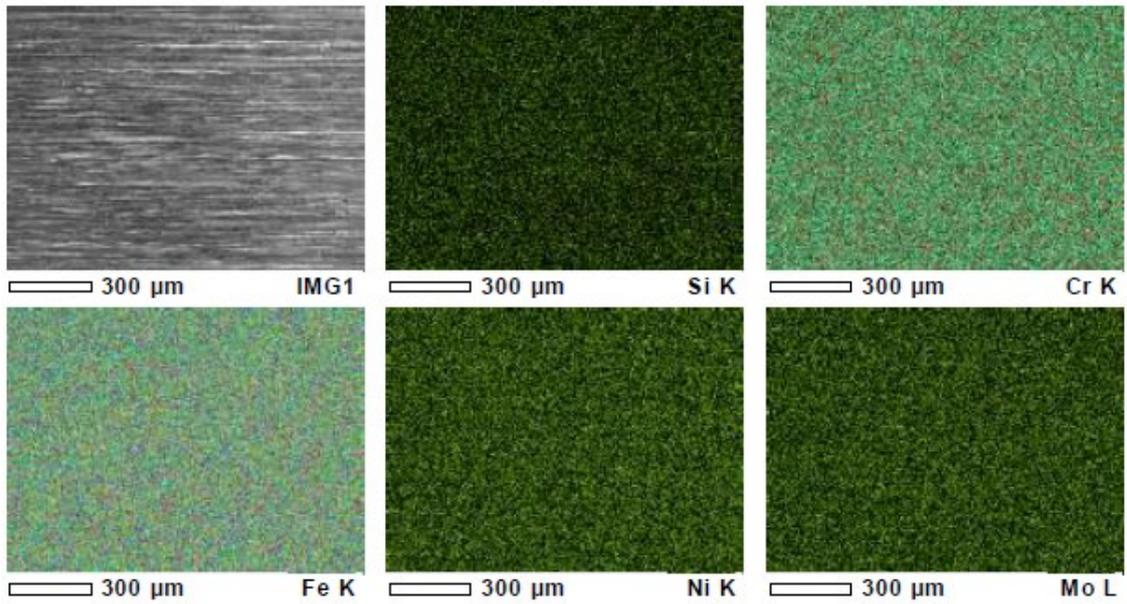


図 3.7.4-5 SUS316 鋼試験片の元素分析結果 (受入材試験片の表面)

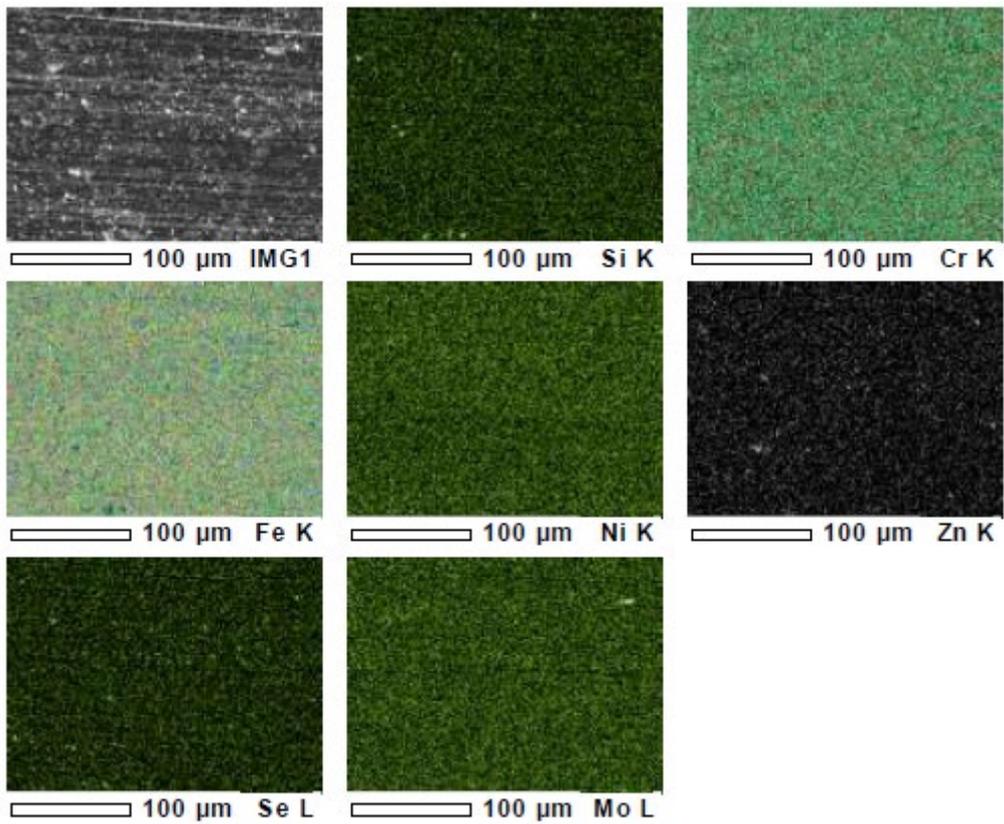


図 3.7.4-6 SUS316 鋼試験片の元素分析結果 (ZnSe 試験片の表面)

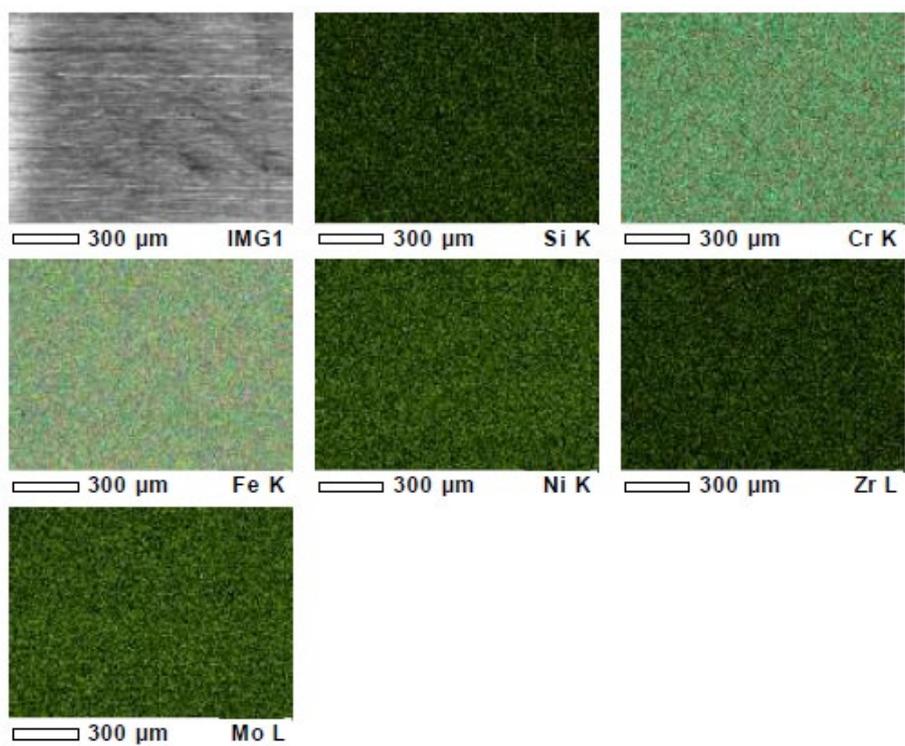


図 3.7.4-7 SUS316 鋼試験片の元素分析結果 (Zr 試験片の表面)

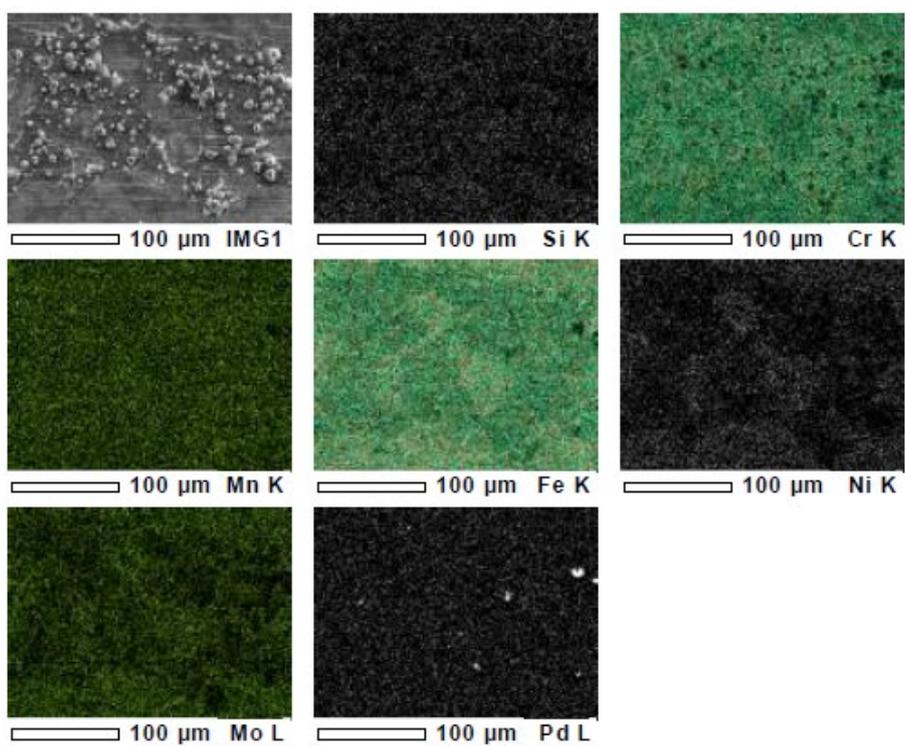
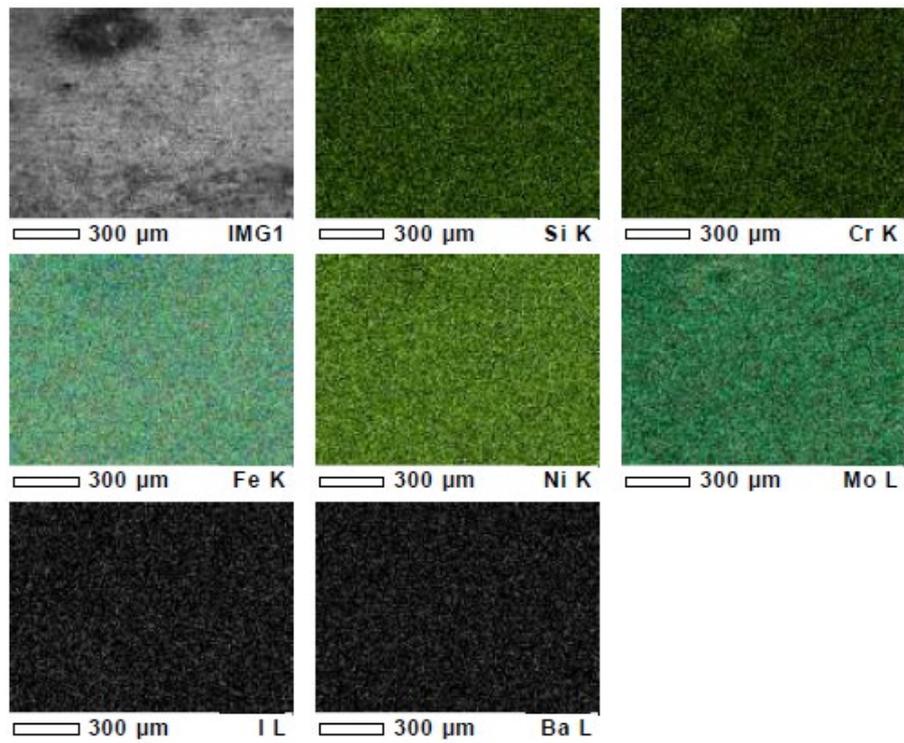
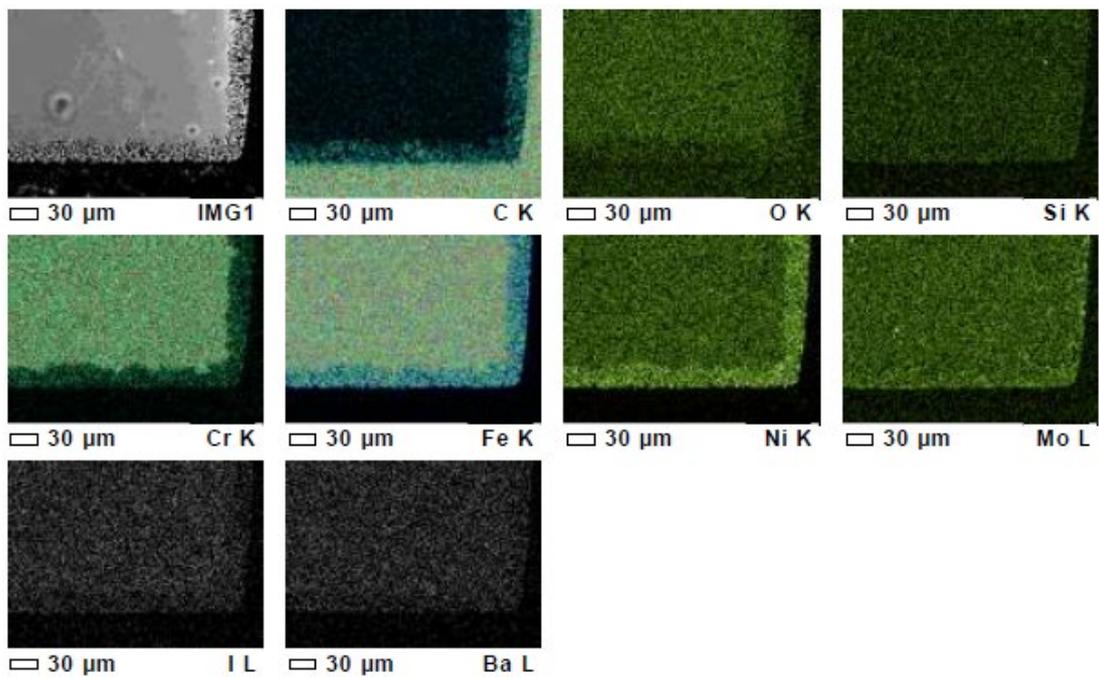


図 3.7.4-8 SUS316 鋼試験片の元素分析結果 (Pd 試験片の表面)

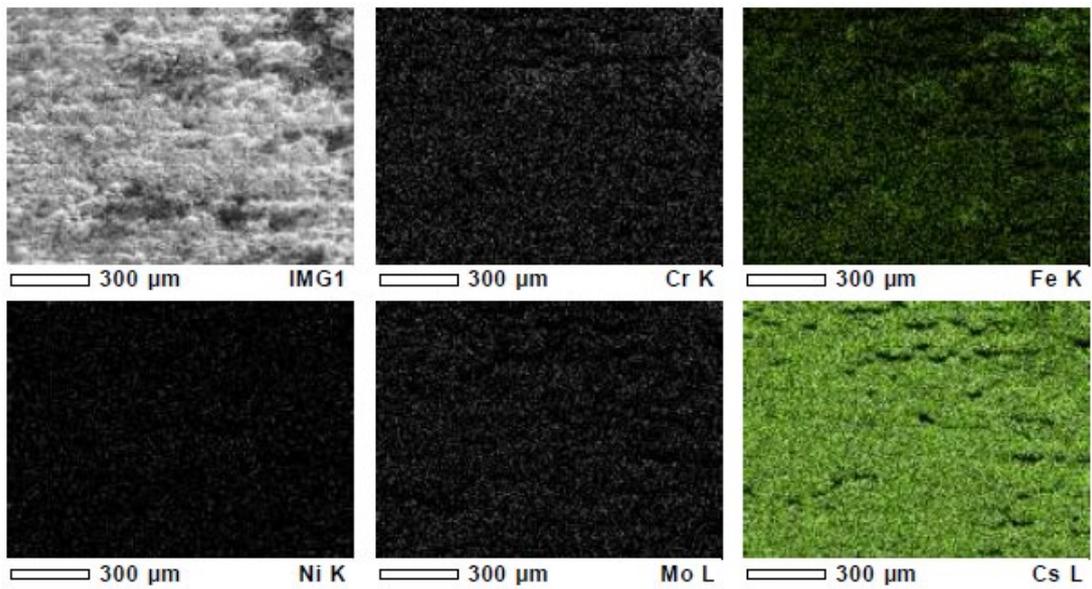


① BaI₂試験片の表面

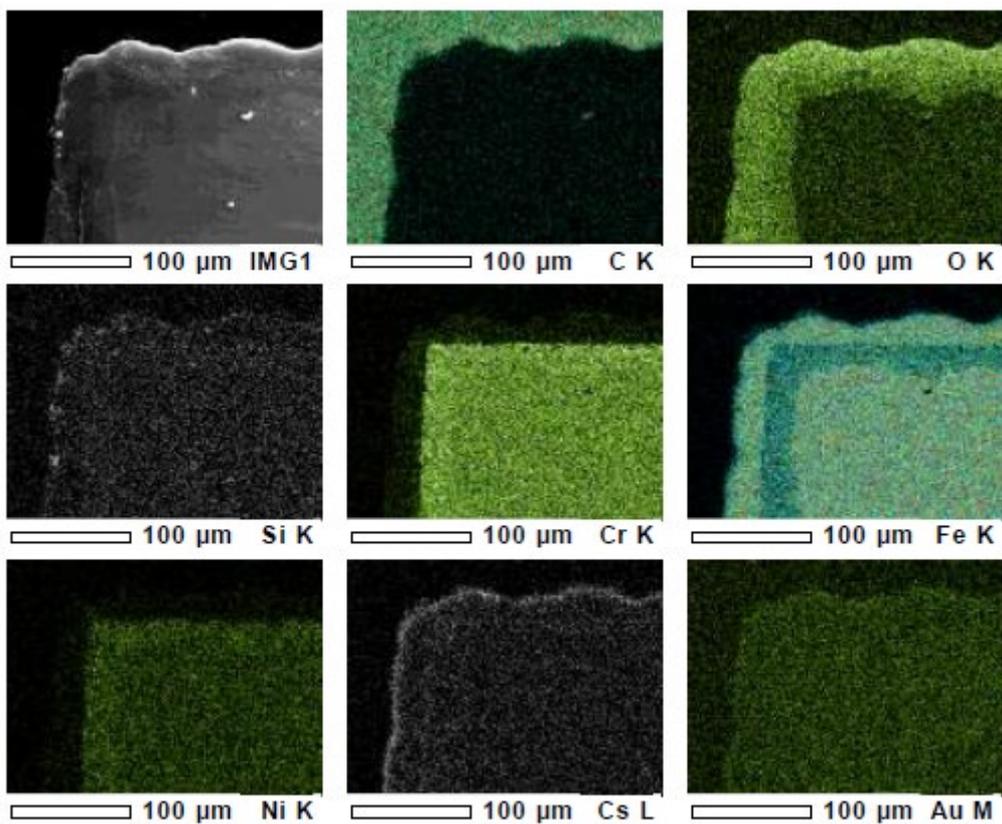


② BaI₂試験片の断面

図 3.7.4-9 SUS316 鋼試験片の元素分析結果 (BaI₂試験片の表面および断面)



① Cs₂CO₃ 試験片の表面



② Cs₂CO₃ 試験片の断面

図 3.7.4-10 SUS316 鋼試験片の元素分析結果 (Cs₂CO₃ 試験片の表面および断面)

3.8 核変換ターゲットの製造（再委託先：原子力機構）

3.8.1 LLFP 製造試験【H30】

LLFP 製造試験として、先行研究や一般産業技術情報を基に 6 種の LLFP 候補形態の製造手法を明らかにした。また、中性子減速材として用いる Y および Zr の水素化物、重水素化物について、ペレット状や板状での製造と炉内装荷状態を想定した温度条件での水素保持特性評価試験を行った。その結果、6 種の LLFP 候補形態について、既存の製造技術や精製技術により製造可能な見通しを得た。また、Y および Zr の水素化物、重水素化物はペレット状や板状にも製造可能であるが、Y については YH_3 または YD_3 が生成されると形状安定性が著しく劣り、低温域での水素または重水素の解離量も多くなることが明らかになった。

[3.8.1-1]

3.8.2 模擬回収 LLFP 製造試験【R1】

I と Cs について、再処理工程を模擬したプロセスから回収し、それぞれを用いて候補形態である BaI_2 、 Cs_2CO_3 を製造し、この製造過程に随伴する不純物について調査した。また、粉末状と細孔付ペレット状の YD_2 を製作し、 BaI_2 および Cs_2CO_3 に対して粉末混合焼結型と混合複合体型の LLFP ターゲットの試作を行った。なお、本試験では BaI_2 、 Cs_2CO_3 を、再処理工程を模したプロセスからの回収品から製造することに主目的としているため、回収率には着目していないが将来的にはこれらの回収率は 99%以上を目標としている。

(1) BaI_2 の製造試験

再処理工程に使用される吸着材と同じ原理、性能の Ag 系吸着剤に I を吸着させ、Zn 粉末と硫酸により I の回収を検討した。表 3.8.2-1 に吸着剤からの I の回収条件を、表 3.8.2-2 に I 回収の結果を記す。吸着剤から回収した I を用いて IH の生成を実施した。IH の生成はリン酸とハロゲン化塩の反応を参考とし、 N_2 ガス通気下で液状と蒸発乾固後の I の回収液にリン酸を滴下して実施した。IH は気体状で発生するが、これを純水に回収し、誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) によりヨウ素量および不純物量を測定した。ここで、リン酸は事前に 240°C で脱水したものをを用いた。図 3.8.2-1 に IH 生成の試験体系、表 3.8.2-3 に IH 生成試験条件を示す。

I を吸着させた吸着剤からの I の回収結果は表 3.8.2-2 に示す通り 67.4%となり、平成 30 年度に実施した LLFP 回収技術開発時の回収率に比べてやや低くなっていた。I 回収液とリン酸を用いた IH 生成試験の結果は、表 3.8.2-4 に示すように溶液状の場合では純水回収液中の I は ICP-MS の定量下限値未満であり、IH は回収されなかった。また、乾固状の場合では純水回収液中の I は $5.7 \times 10^{-5}\text{g}$ であり、I の初期量の 0.2% と非常に低く、この場合にも IH はほとんど回収されなかった。これらは、吸着剤から回収後に IH を生成する過程において I が揮発したこと、あるいは IH 生成時のリン酸との反応後に純水に回収するまでの途中で試験器具に付着したことによるものと想定される。

このため、IH の生成は市販の試薬である NaI を用いることに変更し、リン酸との反応により生成し、純水で回収した。NaI を用いた IH 生成条件を表 3.8.2-5 に、またその結果を表 3.8.2-6 に示す。I 回収量は初期量の 28.2% に相当する 0.453g であり、回収率は 28.2% となり、非常に低い値であった。この IH 回収液に Ba(OH)₂ を加えて BaI₂ の製造を行った。表 3.8.2-7 に IH から BaI₂ を製造する手順を示す。溶液中に生成される BaI₂ は最終的には蒸発乾固し、固体状態での X 線回折 (XRD) による構造分析に供した。図 3.8.2-2 に試験開始時から XRD 供試体までの試料外観を示す。XRD の結果、図 3.8.2-3 に示すように蒸発乾固によって得られた生成物は Ba(OH)I であり、BaI₂ となっていなかった。BaI₂ 製造が最終的に Ba(OH)I にとどまった原因としては、IH 回収液中の I の不足が想定され、これは NaI から IH を生成する過程で多くの I が喪失し、IH として回収できなかったことによるものと推測される。このことから、再処理工程から回収される I から BaI₂ を製造するためには、製造途中の IH 生成が重要なポイントとなり、BaI₂ 製造には製造条件の更なる最適化が必要であることが明らかになった。また、IH の生成には赤リンを使用する方法もあるが、赤リンは爆発性が高く取扱いが困難なため、今回はリン酸を使用した。BaI₂ 製造を確実にするためには赤リンによる IH 生成を検討していく必要がある。

上記製造工程における IH 回収液と BaI₂ 製造時の硝酸溶液に対して ICP-MS による不純物分析を行った結果、表 3.8.2-8 に示すように IH から BaI₂ への製造時の硝酸溶液中からわずかな量の Al と Si が検出された。これは蒸発乾固時に使用した磁器製坩堝から混在したものと推定される。これらの元素以外の不純物は検出されなかったが、これは IH 生成過程に気化分離を行っているためであると考えられる。今回の製造手法では IH 生成の過程を改善する必要が明らかになったが、その一方で気化分離は不純物の随伴を低減することに有効であることも明らかになった。

(2) Cs₂CO₃ の製造試験

再処理工程での放射性廃液を模擬した模擬廃液を用いて、Cs を回収し Cs₂CO₃ を製造する試験を実施し、その過程における不純物を調査した。模擬廃液は高レベル放射性廃液から TRU 群を分離した後の主要な元素で構成される組成とした。表 3.8.2-9 に模擬廃液の組成を示す。

Cs₂CO₃ の製造は、模擬廃液中の Cs を AlCs(SO₄)₂ の Cs 塩として析出させ、Ba(OH)₂、CO₂ を用いて Cs₂CO₃ とする手法を採用した。Cs 塩の析出操作として模擬廃液に Al₂(SO₄)₃・16H₂O を加えてろ過した。Al₂(SO₄)₃・16H₂O の添加量を変えてこの操作を 3 回実施し、濾別した析出物を純水に溶解した。この水溶液に Ba(OH)₂ を添加し、攪拌後ろ過した。その後、ろ液に CO₂ を通気したが、本来得られると想定していた析出物が生成しなかったため、Ba(OH)₂ を再度添加し攪拌するとともに、酸濃度を測定し酸性であったため NaOH で中和処理した。中和処理に伴い析出物が生成したため、析出物を濾別した。ろ液に再び Ba(OH)₂ を添加し、再度析出物を濾別した。ろ液からの Ba の除去操作として、ろ液に CO₂ を通気し、析出物を濾別し

た。ろ液に再び CO_2 を通気し、ろ過した。 Cs_2CO_3 の回収操作として、ろ液に CO_2 を通気し、蒸発乾固した。これらの操作により最終的に 1.47g の回収物が得られた。

回収物の成分分析を行った結果、表 3.8.2-10 に示すように、17.6%の Na、12.9%の Ba が検出されたが、Cs は 4.1% で非常に低い値であった。また、XRD の結果、回収物は BaSO_4 、 $\text{Ba}(\text{OH})_2$ 、 NaHCO_3 および CsNO_3 であり、 Cs_2CO_3 は確認されなかった。このため、本製造過程におけるろ液および析出物（ろ過残渣）の Cs 分析を行ったところ、表 3.8.2-11 に示すようになり、当初の想定のような Cs の分離ができていなかったことが明らかとなった。Cs の分離が想定通りにならなかった理由としては、Cs 塩を溶解するために添加した $\text{Ba}(\text{OH})_2$ などの試薬が他の元素の析出に消費された可能性などが考えられ、原液が模擬廃液といった多種多様な元素が含まれるものであったためと考えられる。そのため、再処理工程からの回収 Cs を用いて Cs_2CO_3 を製造するためには、先行研究例にあるような群分離手法を用いて Cs を高効率で回収し、そこから Cs_2CO_3 を製造する必要がある。なお、 $\text{AlCs}(\text{SO}_4)_2$ を利用して Cs を抽出し、 $\text{Ba}(\text{OH})_2$ 、 CO_2 を用いて Cs_2CO_3 を製造する手法については、原液を、 CsNO_3 を溶解した硝酸溶液とした場合には表 3.8.2-12 に示すように約 70% の効率で Cs_2CO_3 製造ができることを別試験により確認している。

また、この製造手法における Cs 以外の不純物の随伴は、模擬廃液を原液として実施した場合では Na と Ba であり、それぞれ最終回収物の段階で 15.5% と 83.5% となった。Na は原液から随伴したもの、Ba は原液から随伴したものに加え、 Cs_2CO_3 の製造過程で添加した試薬によるものであると考えられる。一方、 CsNO_3 含有硝酸溶液を原液とした場合は主に Ba のみであり、その含有率は 2.7% となり模擬廃液の場合よりも非常に低かった。

(3) 粉末混合焼結型／混合複合体型 LLFP ターゲットの試作

6 種の LLFP の炉内装荷候補形態である ZnSe 、Zr、Tc、Pd、 BaI_2 および Cs_2CO_3 について、効果的な核変換のための炉内装荷体（ターゲット）とするためには、中性子減速材との混合体とする必要がある。Zr、Tc、Pd は、高融点金属の単体形態で中性子減速材と混合または複合化させることとなるため、これまでの本事業の成果報告書[3.8.1-1]で述べてきたように減速材ペレットに細孔を設け、そこにそれぞれの単体 LLFP を装填する混合複合体型のターゲット構造が候補となる。一方、 ZnSe 、 BaI_2 、 Cs_2CO_3 はそれぞれ化合物形態として中性子減速材と混合することとなるため、また、それぞれの粉末に焼結性が期待できるため、中性子減速材との混合比によって粉末同士を混合し焼結する粉末混合焼結型のターゲットか、または中性子減速材ペレットに細孔を設け、そこに粉末または焼結した LLFP または LLFP と中性子減速材の混合体を装填する混合複合体型のターゲットが想定される。粉末混合焼結型のターゲットは、中性子減速材の YH_2 および YD_2 のいずれも水素または重水素の保持温度において YH_2 または YD_2 の粉末同士の焼結性が期待できないため、混合する ZnSe 、 BaI_2 、 Cs_2CO_3 の焼結性に期待することになる。この場合、LLFP 候補形態と中性子減速材の混合比が重要となり、従来知見[3.8.2-2]から LLFP 候補形態の混合比が 7 割以上でない困難で

あることが知られている。

今回、中性子減速材としては、粉末状と直径 2.5mm、深さ 5mm の細孔を 4 つ設けた直径 10mm、高さ 10mm のペレット状の Y を重水素化し、それを用いて BaI_2 と Cs_2CO_3 を対象とした粉末混合焼結型と混合複合体型のターゲットの試作を行った。表 3.8.2-13 に試作したターゲットの LLFP と中性子減速材との混合比を示す。ここで、 BaI_2 - YD_2 と Cs_2CO_3 - YD_2 の混合比は 3.3 節における核変換炉心の設計検討を踏まえて選定した。重水素化した Y は、XRD による構造分析と不活性ガス融解-熱伝導度法による重水素分析を行った。粉末混合焼結型ターゲットにおける混合粉末の焼結には放電プラズマ焼結法を用いた。この手法は通電による昇温となるため、粒子境界での局所的な発熱により短時間で細部まで焼結が進むことが特長であり、重水素化物粉末からの重水素解離防止や LLFP 粉末の焼結促進にとって有効であると考えられる。さらに、混合比が $BaI_2 : YD_2 = 40 : 60$ となる混合粉末は焼結性を有する BaI_2 の含有量が少ないため、 BaI_2 と YD_2 の粒径を調節し、 YD_2 粒子表面を BaI_2 粒子で覆うようにして焼結性を高めることとした。幾何学的な計算からは表 3.8.2-14 に示すように、180 μm の YD_2 粒子を想定すると、 BaI_2 粒子を 30 μm とすることにより粒子数比が 0.993 : 0.007 となり、体積比で 40 : 60 の混合比であっても YD_2 粒子の表面全てを BaI_2 粒子で覆うことができることとなる。 YD_2 粒子の表面を覆った BaI_2 粒子同士が焼結することによって、 BaI_2 - YD_2 粉末混合焼結型ターゲットが製作できると考えられる。

表 3.8.2-15 に示す条件により重水素化した Y は、XRD の結果から粉末状および細孔付ペレット状のいずれに対しても重水素化できていることを確認した。図 3.8.2-4 と図 3.8.2-5 にそれぞれの XRD 結果を示す。一方、不活性ガス融解-熱伝導度法による D_2 分析の結果は表 3.8.2-16 に示すように粉末および細孔付ペレットのいずれの形態での YD_2 においても D_2 の含有率は理論値よりも低い値であった。この理由は、 D_2 が軽元素であり、不活性ガス気流による融解分析法のため、融解で発生した D_2 の一部が分析装置の系内に残留してしまい、全てを検出できていなかったことによるものと考えられる。一方で、XRD の結果からは図 3.8.2-4 および図 3.8.2-5 に示すように複数位置から採取した供試体においても Y 単体のピークがないことから、全てが YD_2 化していると考えられる。

この YD_2 粉末と市販の BaI_2 、 Cs_2CO_3 粉末を用いて、直径 15mm、高さ 10mm を想定した混合粉末焼結型ターゲットを製作した。 BaI_2 - YD_2 粉末混合型ターゲットの製造には、45 μm 以下の粒径の BaI_2 粉末と 180~300 μm の粒径の YD_2 を用いた。その結果、図 3.8.2-6~図 3.8.2-8 に示す焼結体を得られた。いずれの混合粉末焼結型ターゲットも焼結できていた。特に混合比から従来は焼結ができなかった 40 : 60 の体積比の BaI_2 - YD_2 ターゲットについては、粒径調節の効果が明らかとなった。一方、混合複合型ターゲットについては、ターゲット全体の混合比が体積比で LLFP : YD_2 が 10 : 90 となるように BaI_2 または Cs_2CO_3 と YD_2 の混合比を表 3.8.2-13 のように設定した。その結果、図 3.8.2-9 と図 3.8.2-10 に示すような混合複合型ターゲットを得られた。これらの結果より、LLFP ターゲットとして粉末混合焼結型および混合複合体型のいずれのターゲット形態についても、その製造性に見通しが得られた。

参考文献

- [3.8.1-1] 平成 30 年度成果報告書「高速炉を活用した LLFP 核変換システムの研究開発」
- [3.8.2-2] Y. Tachi, T. Wakabayashi, T. Yokoyama: “Study on Target Fabrication for LLFP Transmutation by Fast Reactors”, Proceedings of GLOBAL2009(Paper No. 9158), Paris (France), September 6-11 2009

表 3.8.2-1 Ag 系吸着剤からの回収条件

Zn 粉末	2g
硫酸濃度 (体積比濃度)	(1+3)
加熱温度	60°C
加熱時間	10 分間

表 3.8.2-2 I の回収結果

吸着剤量 (g)	10.1395
亜鉛粉末量 (g)	2.0246
I 吸着量 (g)	1.030
I 回収量 (g)	0.694
I 回収率 (%)	67.4

表 3.8.2-3 IH 生成試験条件

I 回収液量 (ml)	50
リン酸添加量 (ml)	5
純水量 (ml)	30 (15×2 段)
N ₂ 通気時間 (h)	1

表 3.8.2-4 吸着剤からの I の回収結果

	原液の I 量 (g)	ICP-MS 測定値 (μ g/l)	I 回収量 (g)	I 回収率 (%)
溶液状	0.014	< 0.5	-	-
乾固状	0.028	11.421	5.711E-05	0.2

表 3.8.2-5 NaI からの IH 生成条件

NaI 量(g)	1.8971
リン酸添加量(ml)	20
純水量(ml)	30 (15×2 段)
N ₂ 通気時間(h)	2

表 3.8.2-6 NaI からの IH 生成結果

初期 I 量(g)	ICP-MS 測定値(μg/l)	I 回収量(g)	I 回収率(%)
1.606	45.271	0.453	28.2

表 3.8.2-7 IH からの BaI₂ の製造手順

1	IH 回収液に Ba(OH) ₂ ・8H ₂ O を添加
2	攪拌 (30℃、30 分) 後、沈殿物をろ過
3	ろ液を 120℃程度で蒸発乾固
4	乾固後の析出物を粉碎し、再度加熱

表 3.8.2-8 IH 回収液および BaI₂ 製造時硝酸溶液中の不純物

元素	IH 生成時の回収液 (mg/l)	BaI ₂ 製造時の硝酸溶解液 (mg/l)
Na	< 0.1	< 0.2
Al	< 0.1	1.3
Si	< 0.1	15.4
P	< 0.1	< 0.2
Zn	< 0.1	< 0.2
Ag	< 0.1	< 0.1
I	9050	1450

表 3. 8. 2-9 模擬廃液組成

元素	添加形態	含有量(Mo1/1)	含有率(%)
H	HNO ₃	2. 47	65. 5
Na	NaNO ₃	1. 04E+00	27. 6
P	H ₃ PO ₄	1. 27E-02	0. 34
Fe	Fe(NO ₃) ₃ ・9H ₂ O	7. 77E-02	2. 06
Cs	CsNO ₃	1. 61E-02	0. 43
Sr	Sr(NO ₃) ₂	8. 39E-03	0. 22
Ba	Ba(NO ₃) ₂	9. 72E-03	0. 26
Zr	ZrO(NO ₃) ₂ ・2H ₂ O	2. 74E-03	0. 07
Mo	Na ₂ MoO ₄ ・2H ₂ O	2. 88E-03	0. 08
Mn	Mn ₂ (NO ₃) ₂ ・6H ₂ O	2. 50E-02	0. 66
Ru	硝酸溶液	1. 46E-02	0. 39
Rh	硝酸溶液	3. 14E-03	0. 08
Pd	硝酸溶液	7. 92E-03	0. 21
Ce	Ce(NO ₃) ₃ ・6H ₂ O	5. 32E-02	1. 41
Nd	Nd(NO ₃) ₃ ・6H ₂ O	2. 50E-02	0. 66

表 3. 8. 2-10 回収物の成分分析結果

(wt%)

	Na	Al	P	S	Fe	Cs	Sr
1 回目の Ba(OH) ₂ 添加後の析出物	3. 11	0. 59	1. 23	12	-	-	2. 04
2 回目の Ba(OH) ₂ 添加後の析出物	-	2. 23	-	9. 16	1. 85	-	-
中和操作で生成した析出物	3. 59	35. 31	0. 23	-	0. 6	-	-
中和後ろ液に Ba(OH) ₂ 添加後の析出物	0. 71	1. 68	-	-	-	-	-
模擬廃液からの回収物	15. 46	1. 03	-	-	-	-	-

	Ru	Pd	Mo	Ba	Ce	Nd
1 回目の Ba(OH) ₂ 添加後の析出物	-	-	23. 73	50. 06	-	7. 24
2 回目の Ba(OH) ₂ 添加後の析出物	-	-	17. 15	69. 6	-	-
中和操作で生成した析出物	1. 49	0. 75	-	19. 28	24. 31	14. 42
中和後ろ液に Ba(OH) ₂ 添加後の析出物	-	-	-	97. 61	-	-
模擬廃液からの回収物	-	-	-	83. 5	-	-

表 3.8.2-11 ろ液、析出物の Cs 分析結果

	全体量 (g)	分取量 (g)	溶解液量 (l)	Cs 濃度 (g/l)	Cs 含有量 (g)	初期量比 (wt%)
Al(SO ₄) 添加分離後の模擬廃液			0.135	0.1053	0.0142	7.0
1 回目の Ba(OH) ₂ 添加後の析出物	4.3499	0.114	0.05	0.0146	0.0280	13.8
2 回目の Ba(OH) ₂ 添加後の析出物	1.2752	0.105	0.05	0.0064	0.0039	1.9
中和操作で生成した析出物	0.4834	0.1134	0.05	0.0199	0.0042	2.1
中和後のろ液の Ba(OH) ₂ 添加後の析出物	1.1952	0.1128	0.05	0.0010	0.0005	0.3
模擬廃液からの回収物	1.4704	0.1147	0.05	0.0938	0.0600	29.7

表 3.8.2-12 CsNO₃ 含有硝酸溶液による Cs₂CO₃ 製造効率

初期 Cs 量(g)	0.214
初期量から製造可能な Cs ₂ CO ₃ 量(g)	0.262
最終回収物中の Cs ₂ CO ₃ 量(g)	0.1845
Cs ₂ CO ₃ の製造効率(%)	70.4

表 3.8.2-13 LLFP と中性子減速材の混合比

	混合比 (vol%)	ターゲット型式	備考
1	40BaI ₂ -60YD ₂	粉末混合焼結型ターゲット	
2	70Cs ₂ CO ₃ -30YD ₂		
3	100Cs ₂ CO ₃		
4	10BaI ₂ -90YD ₂	混合複合体型ターゲット	細孔内 (82BaI ₂ -18YD ₂ : wt%)
5	10Cs ₂ CO ₃ -90YD ₂		細孔内 (78Cs ₂ CO ₃ -22YD ₂ : wt%)

表 3.8.2-14 粒径調節による BaI₂ と YD₂ の粒子数比

	混合比 (vol%)	粒径 (μm)	粒子体積 (cm^3)	粒子数 (n/cm^3)	粒子数比
BaI ₂	40	30	1.13×10^{-7}	3.54×10^6	0.993
YD ₂	60	180	2.44×10^{-5}	2.46×10^4	0.007

表 3.8.2-15 Y の重水素化条件

重水素	D ₂ 、純度：99.6%	D ₂ ：50%、Ar：50%
キャリアガス	Ar、純度：99.9%	
高温保持条件	800°C×3h	
昇温速度	400°C/h	
冷却速度	炉冷	

表 3.8.2-16 不活性ガス融解-熱伝導度法による D₂ 分析結果

(wt%)

		1回目	2回目	3回目	平均値
YD ₂ 粉末	サンプル①	1.82	1.93	1.91	1.89
	サンプル②	1.87	1.75	-	1.81
YD ₂ ペレット	サンプル①	2.34	2.27	-	2.31
	サンプル②	2.28	2.21	-	2.25

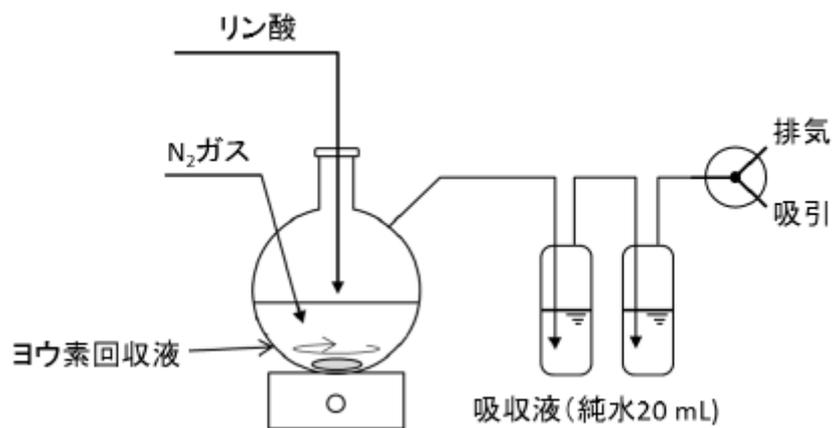


図 3. 8. 2-1 IH 生成の試験体系

試験開始時	水酸化バリウム添加時	空気通気時	ろ過前
ろ過後	蒸発乾固	XRD 試料(加熱前)	XRD 試料(加熱後)

図 3. 8. 2-2 試験開始時から XRD 供試体までの試料外観

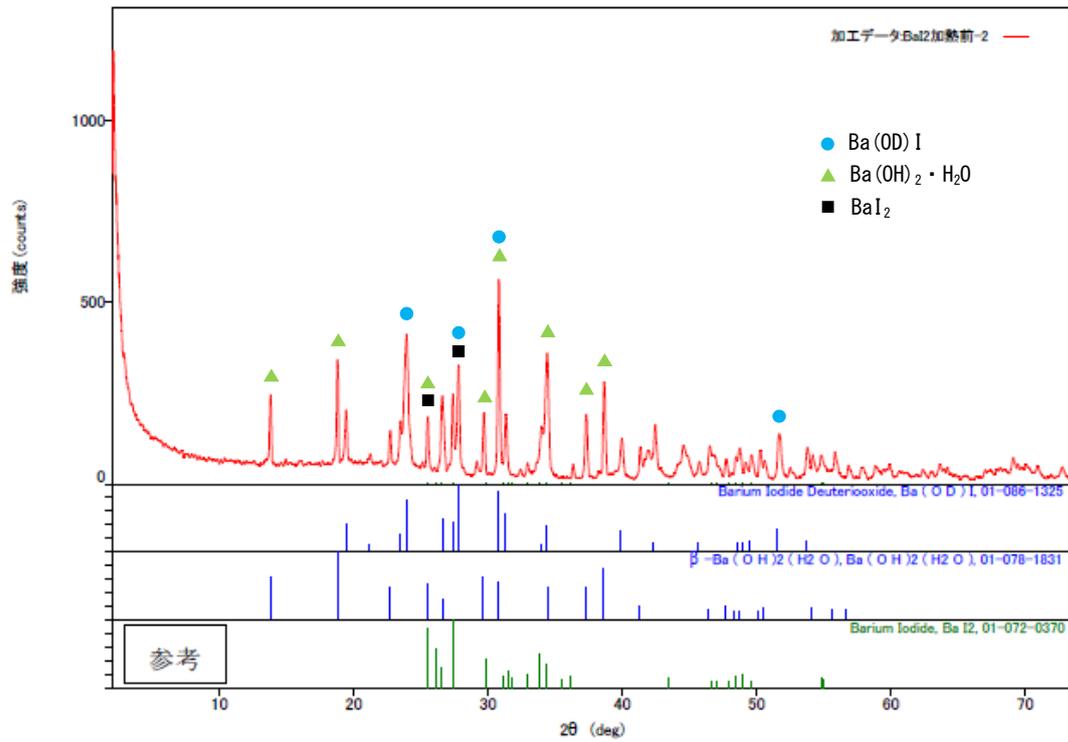


図 3. 8. 2-3 蒸発乾固体の XRD 結果

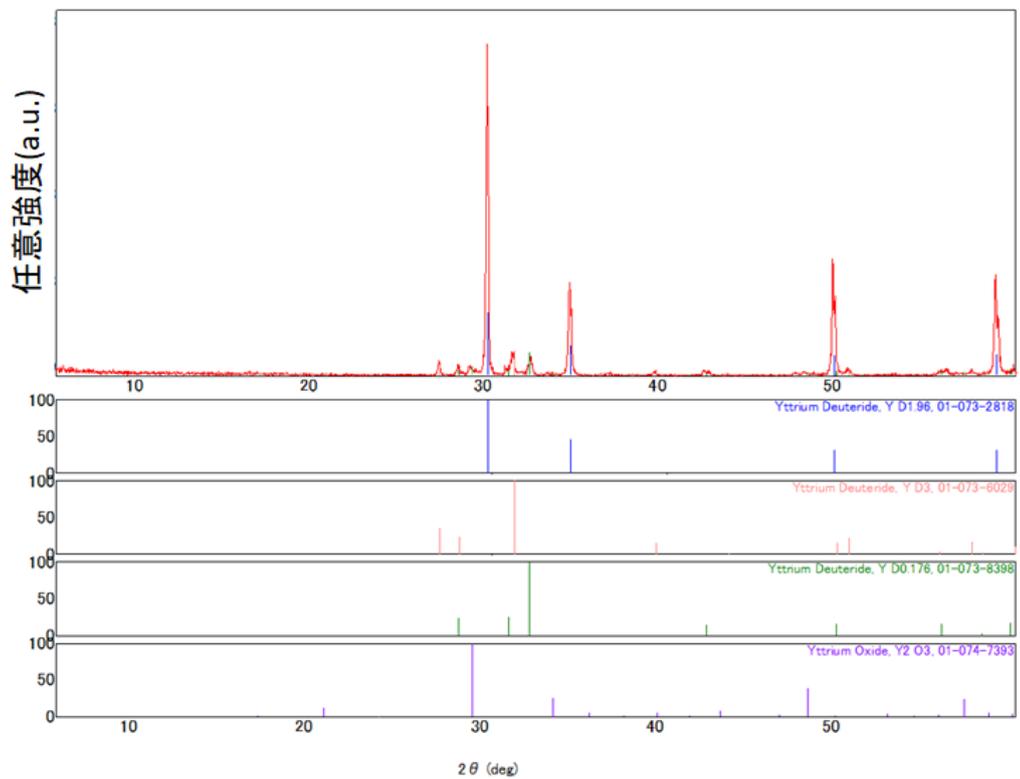


図 3. 8. 2-4 粉末状 YD₂ の XRD 結果

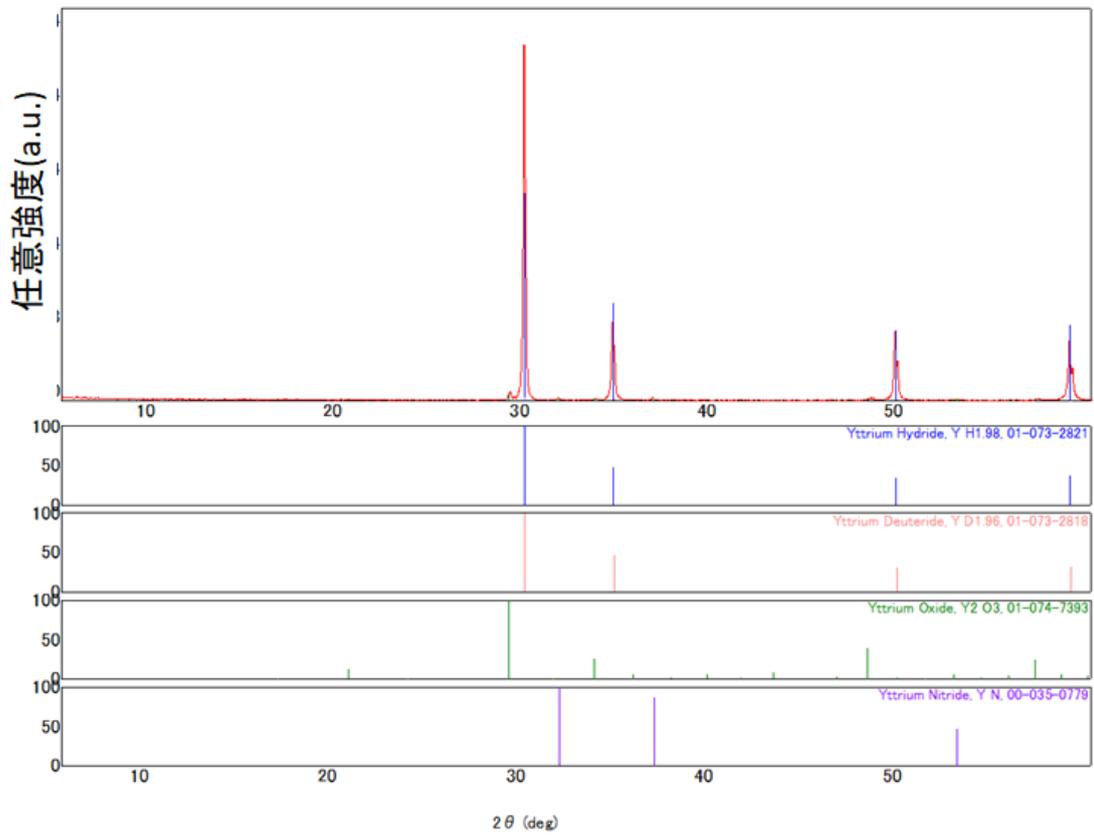


図 3. 8. 2-5 細孔付ペレット状 YD_2 の XRD 結果



図 3. 8. 2-6 $40BaI_2-60YD_2$ ターゲット (粉末混合焼結型)



図 3.8.2-7 70Cs₂CO₃-30YD₂ ターゲット (粉末混合焼結型)



図 3.8.2-8 Cs₂CO₃ ターゲット



図 3.8.2-9 10BaI₂-90YD₂ ターゲット (混合複合体型)



図 3. 8. 2-10 $10\text{Cs}_2\text{CO}_3-90\text{YD}_2$ ターゲット (混合複合体型)

3.9 LLFP 回収技術の検討（再委託先：原子力機構）

3.9.1 手法評価【H28】

炉内から取り出された照射後ターゲットや使用済燃料の再処理工程からの LLFP 回収法を確立するため、それぞれにおける核種の存在状態を考慮して最適な回収手法を検討した。なお、照射後ターゲットからの未変換 LLFP の回収については、未変換 LLFP 元素と変換生成元素との分離挙動を把握するため、安定同位体を用いた固液分離や溶媒抽出に関わる要素試験を実施した。再処理工程からの回収については、再処理プロセスや関連先行研究の情報を収集し、これらに基づき最適な回収法を検討した。照射後ターゲットからの回収法の検討のため、Se-Br 系、Cs-Ba 系、Pd-Ag 系および Zr-Mo 系における分離手法について検討し、固液分離可能な手法や分離手法における課題を明らかにした。また、使用済燃料の PUREX 法による再処理工程における LLFP 核種の挙動を調査し、回収法を検討した。[3.9.1-1]

3.9.2 炉内回収のロス率評価【H29】

放射性ヨウ素の核変換ターゲットの候補形態である BaI_2 について、照射後ターゲット組成を模擬した体系からの回収試験を実施し、ヨウ素の回収率を評価した。得られた回収率から炉内回収ターゲットにおけるロス率を評価した。なお、本回収試験は安定同位元素を用いて実施した。また、Se、Zr、Pd および Cs について、平成 28 年度に実施した分離検討試験に基づき有効な分離が見込める核種に対して分離効率を評価した。 BaI_2 の回収率を評価した結果、ロス率は最大 5%程度であることが明らかとなった。ロスした BaI_2 は分離回収工程内にとどまっていると想定されるため、このロス率は回収プロセスの改善によってさらに低減できると考えられる。Se について不揮発性の酸による分離を試みたが分離は困難であった。Pd は塩化物化により高効率で分離できることが明らかになった。Zr および Cs については 95%以上の効率で分離可能であることが明らかとなった。[3.9.2-1]

3.9.3 再処理工程からの回収手法の検証【H30】

6 種の LLFP 元素のうちターゲット候補形態の選定や照射後状態からの分離回収法に関する検討が進んでいる BaI_2 に対して、再処理工程での存在状態からの回収手法について実験室規模の回収試験を行い、有効性の検証を行った。また、他の LLFP 元素については再処理工程内での存在状態に応じた回収手法の検討を行い、候補となる回収手法を提示した。さらに、平成 28 年度および平成 29 年度の業務成果に基づき、照射後組成を模擬した成分系における分離手法の検討を進めた。

再処理工程でのヨウ素の存在箇所であるヨウ素フィルターの Ag 系吸着剤からヨウ素を高効率で分離回収する手法として、亜鉛粉末による還元とキシレンによる抽出によって可能であることを確認し、ヨウ素の回収手法の有効性が明らかになった。他の LLFP 元素についても、先行研究例の適用や既存の精製技術によって再処理工程よりそれぞれ回収できる見通しを得た。一方、Se とその核変換生成元素である Br との単体分離は、新たに試みたアル

カリ溶液抽出法や酸化揮発法によっても困難であることが明らかになった。このため Br については Se との単体分離は行わず、そのまま炉内照射を継続させることとした。[3.9.3-1]

3.9.4 再処理回収ロス率の評価【R1】

先行研究や文献の調査により 6 種の LLFP の再処理工程からの分離回収におけるロス率を評価した。Tc および Pd については模擬元素を用いた溶媒抽出試験を実施し、ロス率を実験的に評価した。また、LLFP サイクルに関するマテリアルフローを調査・検討し、再処理工程での分離回収、高速炉による核変換、その後のリサイクルにおけるマテリアルバランスを評価した。

(1)再処理工程からのロス率評価

Zr については TRU 分離の前処理工程において溶媒抽出法により有機相に抽出でき、ほぼ全量が抽残液に移行し、 H_2SO_4 により逆抽出が可能であることが明らかにされている[3.9.4-1, 3.9.4-2]。また、近年の研究では、Zr を溶媒抽出法で有機相に回収した後、逆抽出溶液の水素イオン濃度 (pH) 調整により Zr を水酸化物として沈殿回収し、その後、酸化物に転換後熔融塩電解して回収する手法やモリブデン酸ジルコニウムを沈殿生成し、フッ化物揮発法により Zr を回収する手法が明らかにされており、いずれも 90%以上の回収率となっている[3.9.4-3, 3.9.4-4, 3.9.4-5]。Tc については、白金属を $5 \times 10^3 M$ 以上含む高レベル廃液において硝酸に対するモル比が 1.8 以上のギ酸を添加して脱硝することにより 98%以上を沈殿回収できることが明らかにされている[3.9.4-6]。また、活性炭吸着によりさらに回収率の向上が期待できることが明らかにされている[3.9.4-7, 3.9.4-8]。Pd については、脱硝沈殿工程の抽残液に対し、濃縮-脱硝-ろ過-中和-ろ過の操作を加え、pH 6.7 での Pd の沈殿率として 99%以上の値が得られている[3.9.4-9]。なお、この手法において Sr が一部共沈するが、0.01M 硝酸による Sr の選択的な抽出除去が可能となっている。Se は現状では高レベル廃液からの分離対象となっていないが、レアメタルとしての工業利用を想定した回収技術として含浸樹脂に吸着させ、NaOH により回収する手法でほぼ 100%回収可能なことが示されている[3.9.4-10]。I については、再処理の初期の工程でオフガス系へ移行し、Ag 系フィルターや活性炭フィルターにより捕集される。この捕集率は 99%以上となることが明らかにされている[3.9.4-11, 3.9.4-12]。Cs については、無機イオン交換体による吸着分離により 10^4 および 10^6 以上の除染係数が得られ、Sr-Cs 群からの単体分離が可能であることが明らかとなっている[3.9.4-9]。

これらのように、Tc、Pd、Cs は過去の群分離研究の成果から高い分離効率の手法が構築されている。また、複数の分離技術を併用、多段化適用することによってより高い分離回収効率も期待できる。これらのことから、Tc、Pd、Cs に対する将来の再処理工程時のロス率としては 1~2%程度にできるものと推定された。また、Se、Zr、I についてもこれまでの研究活動により得られた移行挙動や除去率、吸着率等から高い回収率が期待でき、ロス率は

1%程度にできるものと推測された。

^{99}Tc と ^{107}Pd の分離抽出を想定し、Tc と化学的特性が類似する Re と Pd の安定同位体を用いて模擬廃液からの溶媒抽出試験を行った。模擬廃液は「3.8.2 (2) Cs_2CO_3 の製造試験」で使用したものと同一組成で、酸濃度が 0.5mol/l と 2.5mol/l の 2 種類を用いた。高レベル廃液の組成では Tc と Re は TcO_4^- 、 ReO_4^- のオキソアニオン形態で存在し、他の金属イオンと異なり抽出剤の開発は難しいものとされていたが、TDGA の基となった DGA の改良よりエーテル酸素を窒素に置換した MIDOA (メチルイミノビスジオクチルアセトアミド) が開発され、 TcO_4^- 、 ReO_4^- に対して硝酸溶液から高い分配比で抽出が可能であることが確認された [3.9.4-13]。試薬メーカーからの入手が容易であるため、Tc および Re の抽出剤としては MIDOA を選択した。2 種類の酸濃度の模擬廃液に抽出剤を添加し、攪拌後 30 分間静置し、分離した相を別々に回収した。Re は図 3.9.4-1 に示すように低い酸濃度において高い溶媒相/水相の分配傾向を示すため、逆抽出には高い酸濃度の HNO_3 を用いた。表 3.9.4-1 に抽出操作および逆抽出操作の条件を示す。抽出操作および逆抽出操作の結果、いずれの過程においても溶媒相と水相 (模擬廃液、逆抽出液) の間に中間相が生成した。各相は静置分離後に回収して液量を測定し、水相である模擬廃液と逆抽出液の分析を行った。図 3.9.4-2 に抽出操作時の外観を、図 3.9.4-3 と図 3.9.4-4 に分離相と逆抽出液を示す。分析結果を表 3.9.4-2 に示す。また、これらに基づき、模擬廃液からの Re 抽出における抽出率および逆抽出率を表 3.9.4-3 に示す。0.5N と 2.5N 硝酸の模擬廃液における MIDOA による Re の抽出率は 55~68% を示し、低い酸濃度の抽出効率が若干高くなる傾向を示した。さらに、溶媒相側に随伴する元素として Pd が 90% 以上抽出された。同じ白金族の Ru、Rh は 10% 以下であることから、Pd に対し特異的な抽出効率が示された。また Zr は酸濃度に影響なく 10~25% 程度抽出され、Mo は 2.5N 硝酸の模擬廃液では 10% に対し、0.5N 硝酸の模擬廃液では 60% 以上抽出された。Mo は低い酸濃度では析出しやすいため、0.5N 硝酸の模擬廃液の抽出後の液相が乳化したが、原因はその影響によるものと推測する。アルカリ土類の Sr と希土類の Ce は 1~7% が抽出された。6N 硝酸による逆抽出の結果、0.5N 硝酸の模擬廃液から抽出した溶媒から約 70% の効率で Re が回収できた。2.5N 硝酸の模擬廃液から抽出した溶媒からの Re の回収率は 20% 程度を示し、高い酸濃度の模擬廃液からの抽出は Re の回収率が低くなる傾向を示した。随伴元素については、0.5N 硝酸の模擬廃液から抽出した溶媒の場合、Pd が 6% 回収され、次いで Ce が 10% 近く回収された。2.5N 硝酸の模擬廃液の場合、Pd が 2%、Zr、Mo が 10~15% となるほか、Ce が 23% 回収された。

一方、Pd については、配位型抽出剤が用いられることが多いが、他の金属と比較して白金族の抽出速度は遅いとされる。配位型抽出剤として工業分野では DHS (ジ-n-ヘキシルスルフィド) が広く普及しているが、Pd の抽出速度が十分ではなく、またスルフィド基の硫黄が酸化しやすい問題点がある。それらが改善された抽出剤の TDGA (スルフィド含有ジアミド化合物チオジグリコールアミド) は、同じ配位錯体を形成し高い耐酸性が見いだされている [3.9.4-13]。TDGA は一般的な産業界では塩酸系で抽出検討がなされており、原子力分野の

硝酸系の溶液からの抽出研究は少ない。応用研究を経て現在 TDGA は試薬メーカーから入手可能となり、入手性より Pd の抽出剤として選択した。Re の場合と同様に 2 種類の酸濃度の模擬廃液に抽出剤を添加し、攪拌後 30 分間静置し、分離した相を別々に回収した。Pd は図 3.9.4-5 より 3N HCl で良好な分配比を示すことから、模擬廃液の酸濃度で良好な分配比が得られるものと推測した。また、Pd の逆抽出は 28%アンモニア水で実施した[3.9.4-14]。表 3.9.4-4 に抽出操作および逆抽出操作の条件を示す。Pd の抽出および逆抽出の結果、Re の場合と同様に、溶媒相と水相（模擬廃液、逆抽出液）の間に中間相が生成した。図 3.9.4-6 に抽出操作時の外観を、図 3.9.4-7 と図 3.9.4-8 に分離相と逆抽出液を示す。各相は静置分離後に回収して液量を測定し、水相である模擬廃液と逆抽出液の分析を行った。分析結果を表 3.9.4-5 に示す。また、これらに基づき、模擬廃液からの Pd 抽出における抽出率および逆抽出率を表 3.9.4-6 に示す。これらの抽出および逆抽出の結果、Pd は模擬廃液の酸濃度の影響を受けず 100%近い抽出率が得られた。白金族では Ru が酸濃度 2.5N 条件では 20%、酸濃度 0.5N 条件では 5%抽出され、Rh は抽出されなかった。その他の溶媒相側には Zr、Mo、Re、Ce の測定した元素については全て随伴し、酸濃度が低い 0.5N の模擬廃液で移行量が多い傾向が見られた。28vol%のアンモニア溶液による逆抽出の結果、2.5N 硝酸の模擬廃液を抽出した溶媒からは 90%、0.5N 硝酸の模擬廃液の抽出溶媒から 40%の抽出効率で回収され、酸濃度が高い模擬廃液で抽出された条件からの回収率が高かった。溶媒側に随伴した元素についても 2.5N 硝酸の模擬廃液から抽出した溶媒からの抽出率が全般的に高かった。

これらの試験結果から見積もられるロス率は約 30%および約 10%であった。これらのロス率の改善のためには、抽出条件のさらなる最適化や抽出方法の多段化が必要となることが明らかとなった。

(2) LLFP のマテリアルバランス

高速炉を利用した LLFP サイクルに関するマテリアルフローを検討するに当たり、将来の高速炉で生成される LLFP 量を 288MWe の原型炉クラスのデータを基に推定した。その結果、1GWe の高速炉の場合、5 年冷却後の LLFP 量は年間当たり表 3.9.4-7 に示すようになる。この LLFP を一定期間炉内に装荷し、高い核変換効率を維持するために定期的に取り出し、核変換生成核種と未変換核種を分離し、未変換核種を再び炉内に装荷するリサイクルシステムにおけるマテリアルバランスを評価した。ここで、核変換生成核種と未変換核種の分離は元素分離を想定し、同位体内の高次化核種を対象とした同位体分離は想定しないこととし、再装荷の際には炉内装荷中に運転燃料で生成した LLFP を加えることとした。炉内装荷中の核変換量は、3.3 節「高速炉での核変換ターゲット集合体の配置、交換法」で検討・評価された高速炉 3 基を組み合わせたシステムにおける核変換率に基づき算出した。また、本マテリアルフローの評価においては各径路における総量把握に主眼を置き、再処理時のロス率は考慮せず、回収率を 100%として評価している。実規模レベルのマテリアルフローに回収率を反映するためには、工学規模の回収試験による回収率評価が必要と考えられ、これは今後

の課題である。

その結果、 ^{93}Zr 、 ^{99}Tc 、および ^{129}I については、それぞれ 30 年、10 年および 3 年毎の炉内からの取り出しとリサイクルを経た再装荷により核変換を持続できることが明らかになった。一方、 ^{135}Cs については、60 年毎の取り出しと再装荷となることが明らかとなったが、一般的な原子炉の設計寿命が最長 60 年程度であることを考慮すると、 ^{135}Cs については長期間の炉内装荷となることが明らかとなった。これらの核種に対するマテリアルフローと炉内からの取出量、リサイクル処理量、再装荷量などのマテリアルバランスは図 3.9.4-9 に示すようになる。一方、 ^{79}Se と ^{107}Pd は中性子捕獲による高次化核種が多く、元素分離による未変換核種の回収が困難となるため、リサイクルによる核変換サイクルの構築が難しいことが明らかになった。これらの核種については、元素分離のリサイクル処理を行わず、長期間炉内装荷を継続することで LLFP 量を縮減できることが見込まれ、 ^{79}Se の場合は 69 年で 89%が、 ^{107}Pd の場合は 46 年で 67%が変換できる見通しが得られた。

参考文献

- [3.9.1-1] 平成 28 年度成果報告書「「もんじゅ」を活用した LLFP 核変換システムの研究開発」
- [3.9.2-1] 平成 29 年度成果報告書「高速炉を活用した LLFP 核変換システムの研究開発」
- [3.9.3-1] 平成 30 年度成果報告書「高速炉を活用した LLFP 核変換システムの研究開発」
- [3.9.4-1] 再処理プロセス・化学ハンドブック検討委員会：「再処理プロセス・化学ハンドブック 第 3 版」，JAEA-Review 2015-002 (2015)
- [3.9.4-2] 内山、朝倉、宝徳、渡辺、根本、藤根：「再処理工程における放射性核種の抽出移行挙動」，JAERI-Research 96-069 (1996)
- [3.9.4-3] 高橋、村田、山下、金子、大森、浅野、佐々木、鈴木、伊藤：「高レベル廃液から LLFP 回収技術 (2) 高レベル廃液からの電解法と溶媒抽出法を用いた長寿命核種の分離回収技術の開発」，日本原子力学会 2018 春の年会 2016 (2018)
- [3.9.4-4] 可児、渡邊、福井：「フッ化法による高レベル廃液からの Zr 分離回収」，日本原子力学会 2018 秋の大会 1G06 (2018)
- [3.9.4-5] 森田、鈴木、松村、高橋、大森、金子、浅野：「高レベル廃液からの LLFP 回収技術 (4) Zr 回収のための新規抽出剤の検討」，日本原子力学会 2018 秋の大会 2J18 (2018)
- [3.9.4-6] 山口、久保田：「群分離法の開発：テクネチウムの回収法 その 1」，JAERI-M 87-034 (1987)

- [3.9.4-7] I. Yamagishi, M. Kubota: “Desorption of Technetium from Active Carbon with Alkaline Thiocyanate Solution”, J. Nucl. Sci. Technol., 27, 743(1990)
- [3.9.4-8] 森田、山口、藤原、溝口、久保田：「4 群群分離プロセスの NUCEF 内群分離試験装置によるコールド試験およびセミホット試験」, JAERI-Research 2000-024 (2000)
- [3.9.4-9] 森田、久保田：「原研における群分離に関する研究開発 4 群群分離プロセス開発までのレビュー」, JAERI-Review 2005-041 (2005)
- [3.9.4-10] 緒方、古賀、倉田：「セレンイオンの分離・回収に関する研究」, 平成8年度 福岡県工業技術センター研究報告 (第7号) (1996)
- [3.9.4-11] 游佐、神谷、土屋、高木、何、船橋：「ヨウ素回収基礎試験」, TJ102 79-01 (1979)
- [3.9.4-12] 加藤、宮原：「ヨウ素フィルター試験 (中間報告)」, PNC TN9410 93-282 (1993)
- [3.9.4-13] 佐々木：「アクチノイド分離用溶媒抽出試薬の開発」, ぶんせき vol.1 (2014)
- [3.9.4-14] 「クレアスターPd-Ex」, Wako Organic Square No.38, p.7

表 3.9.4-1 Re に対する抽出および逆抽出条件

抽出操作	抽出溶媒	0.1M MIDOA/n-dodecane
	模擬廃液	0.5N, 2.5N
	溶媒相/水相	50ml / 50ml
	抽出時間	30 min
	抽出温度	室温
	抽出回数	1回
逆抽出操作	逆抽出液	6N HNO ₃
	溶媒相/水相	40ml / 50ml
	抽出時間	60 min
	抽出温度	室温
	抽出回数	1回

表 3.9.4-2 Re 抽出における模擬廃液と逆抽出液の分析結果

	MIDOA 0.5N HNO ₃ の模擬廃液			MIDOA 2.5N HNO ₃ の模擬廃液		
	初期量	抽出量	回収量	初期量	抽出量	回収量
Sr	4.14E-04	6.11E-06	<7.13E-06*	4.19E-04	1.11E-05	<7.13E-06*
Zr	1.49E-03	3.93E-04	<6.85E-06*	1.37E-03	1.64E-04	1.87E-05
Mo	1.18E-03	7.57E-04	<6.51E-06*	1.44E-03	1.08E-04	1.67E-05
Re	1.27E-03	8.66E-04	6.00E-04	1.25E-03	6.74E-04	1.30E-04
Ru	7.48E-04	6.13E-05	<6.18E-06*	7.32E-04	0.00E+00	<6.18E-06*
Rh	1.55E-04	5.05E-06	<6.07E-06*	1.57E-04	4.37E-06	<6.07E-06*
Pd	4.00E-04	3.89E-04	2.29E-05	3.96E-04	3.82E-04	8.40E-06
Ce	2.79E-03	1.91E-04	1.69E-05	2.66E-03	4.21E-05	9.68E-06

*) ICP-AES の検出下限値から算出した参考値

表 3.9.4-3 Re 抽出における抽出率および逆抽出率

	MIDOA 0.5N 硝酸の模擬廃液[%]		MIDOA 2.5N 硝酸の模擬廃液[%]	
	抽出率	逆抽出率	抽出率	逆抽出率
Sr	1.5	-*1	2.6	-*1
Zr	26.4	-*1	12.0	11.4
Mo	64.3	-*1	7.5	15.4
Re	68.1	69.3	54.0	19.2
Ru	8.2	-*1	0.0	-*1
Rh	3.3	-*1	2.8	-*1
Pd	97.4	5.9	96.5	2.2
Ce	6.8	8.8	1.6	23.0

*1) ICP-AES の検出下限値以下を含むもの、および溶媒に抽出されなかったもの

表 3.9.4-4 Pd に対する抽出および逆抽出条件

抽出操作	抽出溶媒	0.05M TDGA / n-dodecane+20vol%ethyl hexanol
	模擬廃液	0.5N, 2.5N
	溶媒相/水相	50ml / 50ml
	抽出時間	30 min
	抽出温度	室温
	抽出回数	1 回
逆抽出操作	逆抽出液	28vol% アンモニア水
	溶媒相/水相	40ml / 50ml
	抽出時間	60 min
	抽出温度	室温
	抽出回数	1 回

表 3.9.4-5 Pd 抽出における模擬廃液と逆抽出液の分析結果

	TDGA 0.5N 硝酸の模擬廃液[mo1]			TDGA 2.5N 硝酸の模擬廃液[mo1]		
	初期量	抽出量	回収量	初期量	抽出量	回収量
Sr	4.14E-04	0.00E+00	<7.13E-06*	4.19E-04	0.00E+00	<7.13E-06*
Zr	1.49E-03	3.10E-04	<6.85E-06*	1.37E-03	9.92E-05	<6.85E-06*
Mo	1.18E-03	6.28E-04	2.89E-05	1.44E-03	1.01E-04	4.18E-05
Re	1.27E-03	3.94E-04	1.81E-04	1.25E-03	2.83E-04	2.11E-04
Ru	7.48E-04	3.41E-05	<6.18E-06*	7.32E-04	1.58E-04	4.31E-05
Rh	1.55E-04	0.00E+00	<6.07E-06*	1.57E-04	0.00E+00	<6.07E-06*
Pd	4.00E-04	3.95E-04	1.54E-04	3.96E-04	3.91E-04	3.55E-04
Ce	2.79E-03	1.18E-04	<4.46E-06*	2.66E-03	8.56E-05	<4.46E-06*

*) ICP-AES の検出下限値から算出した参考値

表 3.9.4-6 Pd 抽出における抽出率および逆抽出率

	TDGA 0.5N 硝酸の模擬廃液[%]		TDGA 2.5N 硝酸の模擬廃液[%]	
	抽出率	逆抽出率	抽出率	逆抽出率
Sr	0.0	-*1	0.0	-*1
Zr	20.8	-*1	7.3	-*1
Mo	53.3	4.6	7.0	41.3
Re	31.0	45.9	22.6	74.4
Ru	4.6	-*1	21.6	27.3
Rh	0.0	-*1	0.0	-*1
Pd	98.8	39.1	98.8	90.6
Ce	4.2	-*1	3.2	-*1

*1) ICP-AES の検出下限値以下のものおよび溶媒相に抽出されなかったもの

表 3.9.4-7 高速炉 (1GWe) における LLFP 生成量

LLFP	年間生成量 (kg)	同位体比率	全同位体重量 (kg)
^{79}Se	0.13	0.133	1.01
^{93}Zr	18.82	1.000	18.82
^{99}Tc	10.24	0.217	47.16
^{107}Pd	5.66	0.761	7.44
^{129}I	13.26	0.200	66.48
^{135}Cs	36.46	0.352	103.55

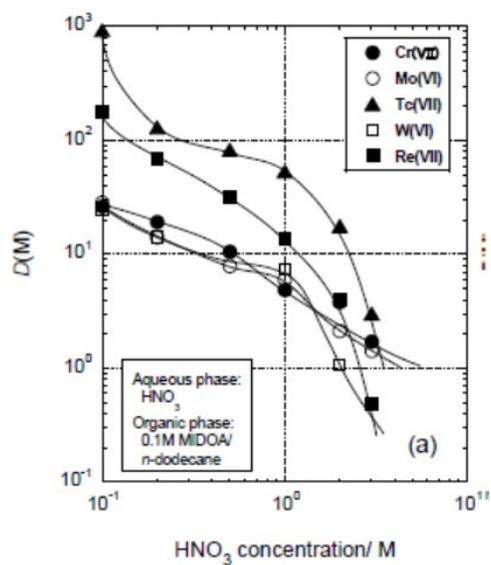


図 3.9.4-1 MIDOA の抽出特性 (出典[3.9.4-13])

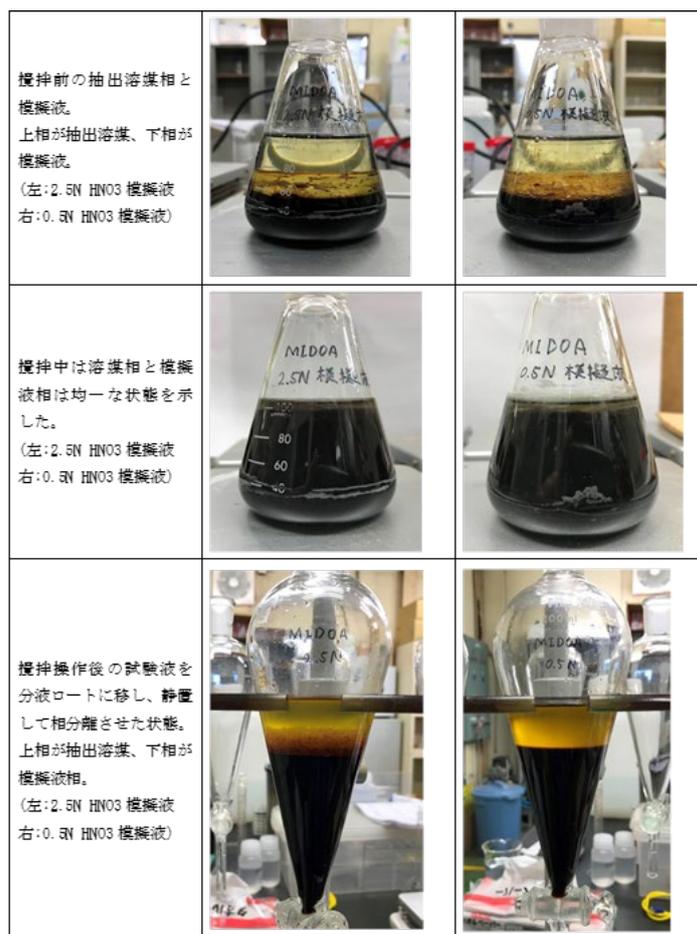


図 3.9.4-2 Re 抽出操作時の外観

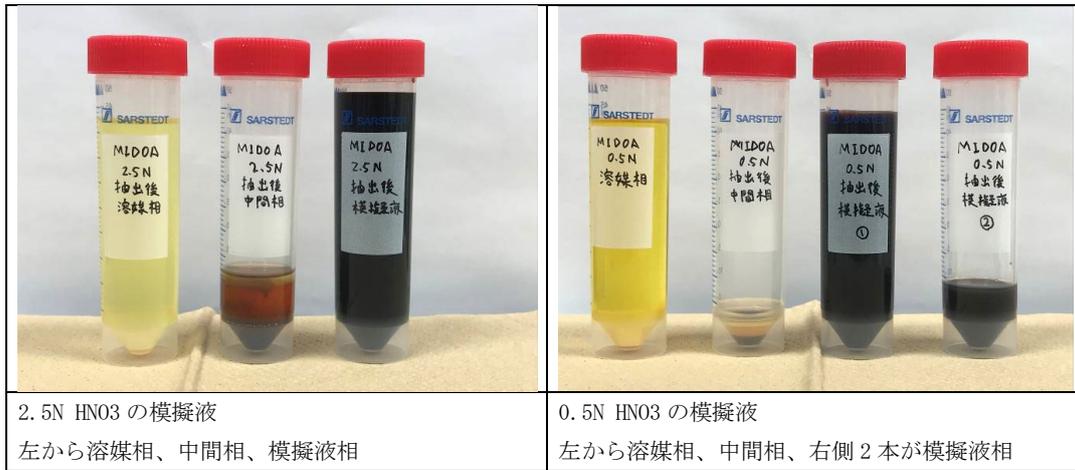


図 3.9.4-3 MIDOA による抽出後の分離相

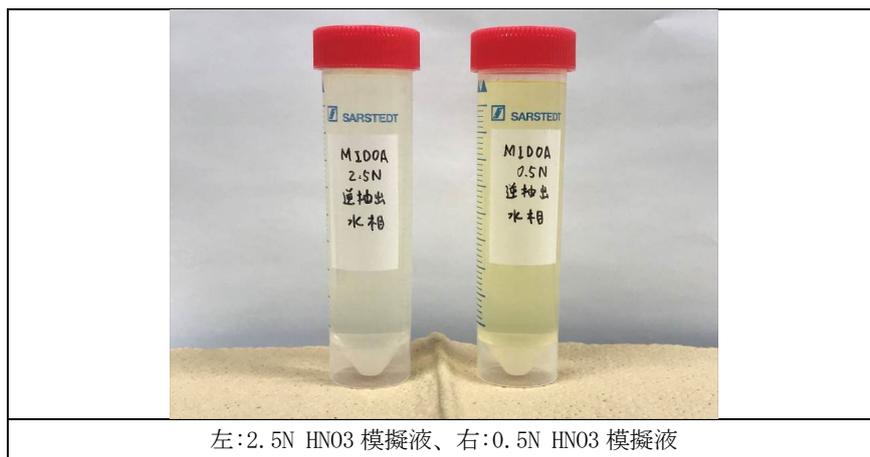


図 3.9.4-4 MIDOA 抽出における逆抽出液

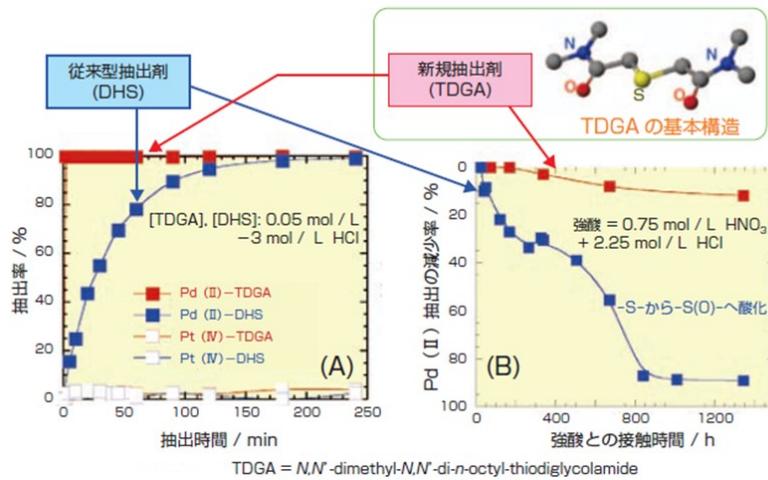


図 3.9.4-5 TDGA の抽出特性 (出典「3.9.4-13」)

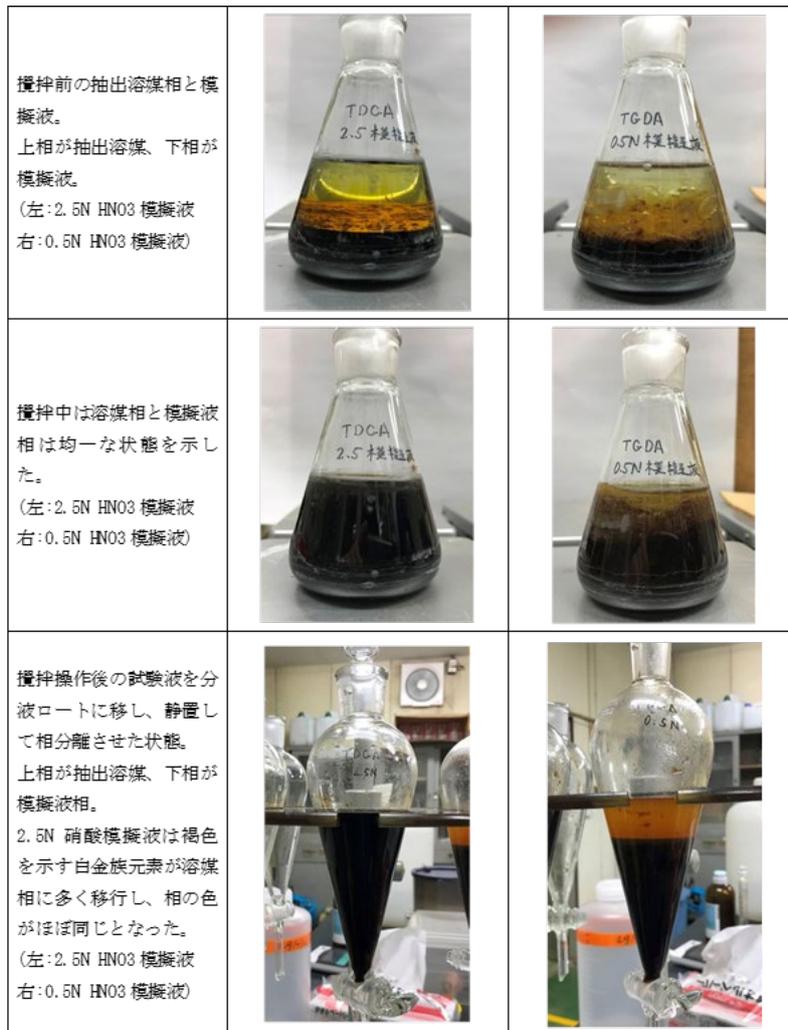


図 3.9.4-6 Pd 抽出操作時の外観

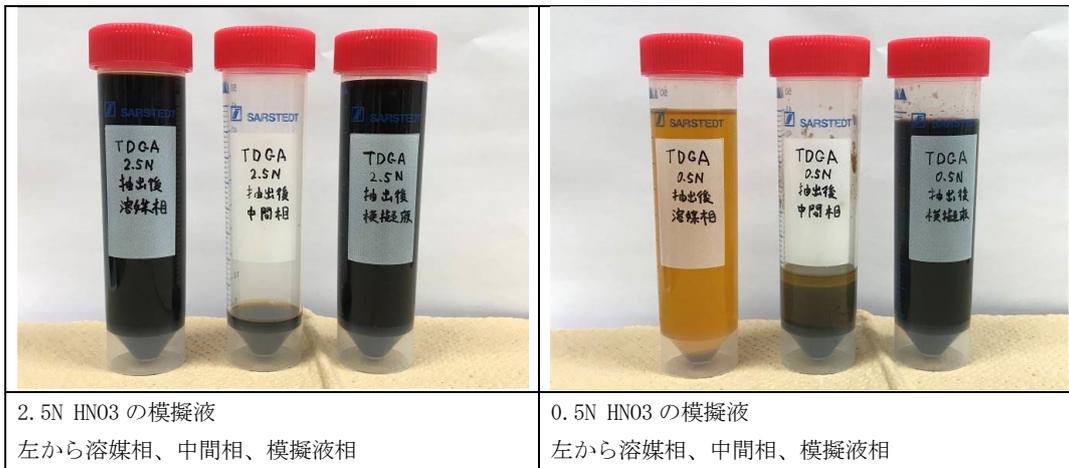


図 3.9.4-7 TDGA による抽出後の分離相

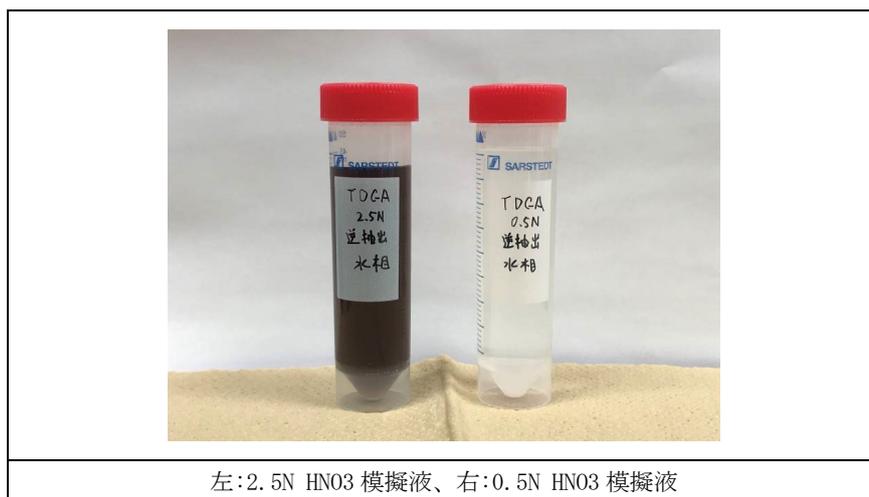


図 3.9.4-8 TDGA 抽出における逆抽出液

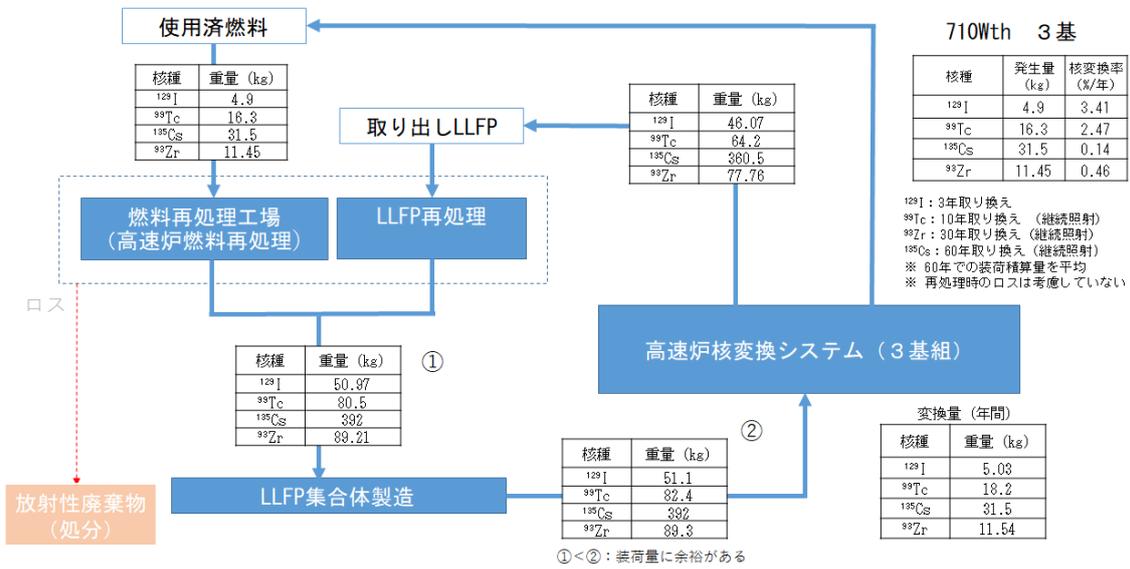


図 3.9.4-9 Zr、Tc、I および Cs のマテリアルバランス

3.10 照射試験計画（再委託先：東京都市大学）

3.10.1 照射試験計画の策定【H30-R1】

① 平成 30 年度の実施内容および成果

照射炉の調査を行い、照射サンプルの種類、サンプルの形状、照射位置等を考慮して核変換ターゲットピンを照射する照射試験計画を立案した。

LLFP 照射試験（フェニックス炉）および照射計画（もんじゅ、常陽）について、照射サンプルの種類、サンプルの形状、照射位置等について調査を行い参考となる情報を収集した。これらの情報を基に照射炉は、日本原子力研究開発機構の高速実験炉「常陽」を用いることとした。照射サンプルは I、Se および Cs の 3 種類とした、照射のための LLFP 試料の入手が困難であることから、天然元素を照射して燃焼チェーン中に現れる LLFP 核種の存在量を評価した。また、常陽での照射を模擬した燃焼計算の質量の統計分布から ^{129}I および ^{99}Tc の相対標準偏差を算出した結果、核変換率とサポートファクタの不確定性はどちらも ^{129}I の方が ^{99}Tc より大きく、スペクトルが固くなると不確定性が大きくなることが分かった。

② 令和元年度の実施内容および成果

核変換特性、集合体の健全性を確認するために高速炉を用いて核変換ターゲット集合体 1 体を照射する照射試験計画を策定した。

(1) 照射試験策定の目的

新しい燃料を開発する際には少数の燃料棒や燃料集合体を試験炉で照射した後に、燃料ペレットの健全性の確認や物性の測定、核計算の妥当性などが検証される。LLFP の場合も減速材と混合または複合されたペレットを照射することにより下記項目の確認が必要と考えられる。

- ・ ターゲットの健全性
- ・ 核変換の定量的実証性

本検討はこれらを確認するための照射場を提案するものであり、同時に試験炉にターゲットを装荷することによる炉心への影響（出力ピークの抑制）を評価し炉心の成立性を示すものである。

(2) 照射ターゲット

LLFP 核種の試料は一部の核種で微量の標準サンプル程度の入手は可能[3.10.1-1]であるものの、照射試験で必要とされる量の入手は困難である。そこで、核種の燃焼チェーン中に LLFP 核種を含むパスを用いて原子炉での中性子照射により燃焼を行い、LLFP 核種を生成・消滅させその定量的評価を行うことにより核変換を実証する照射試験を策定することとした。このための LLFP 核種として図 3.10.1-1 に示す ^{135}Cs を選択し、天然 Cs (^{133}Cs) と減速材 (YH_2 または YD_2) との均質な混合物を照射ターゲットとして ^{135}Cs を含む Cs 同位体および同時に生成する Ba 同位体の生成量を評価した。ここで、 ^{135}Cs の生成量が最大となるように中性子スペクトルを調整した。この結果 Cs の化学形態である Cs_2CO_3 と減速材 (YH_2 または YD_2) の体積比は 5 % : 95 % となった。

(3) 照射場解析

照射試験に用いる原子炉は日本原子力研究開発機構の高速実験炉「常陽」[3.10.1-2]とした。炉心は今後起動が想定される MARK-IV 炉心（定格熱出力 100MWth）[3.10-1-3]とし、その反射体領域に照射試験集合体として「C 型照射燃料集合体」1 体を装荷するものとする。Mark-IV 炉心および照射ターゲットの仕様を表 3.10.1-1 に示す。

① 試験集合体と炉内装荷位置

常陽炉心の横方向断面を図 3.10.1-2 に示す。この図は後述する解析における全炉心非均質解析モデルをも表している。照射集合体の装荷位置は図中の Position-1 および Position-2 の 2 か所である。一つは高い中性子束を利用することを目的とし燃料集合体に隣接した位置（Position-1）とした。この位置に装荷される集合体では集合体幅約 8cm という狭い領域で高い核変換率を得るため減速材として水素（YH₂）を用いた。このため、減速された熱領域の中性子が炉心燃料領域に漏洩して核分裂による出力ピークが発生するのを避けるため照射集合体内側最外周に熱中性子遮蔽材としてガドリニア棒を用いた。Position-1 での炉内装荷状況を図 3.10.1-3 および図 3.10.1-4 に示す。二つめは多様な減速材が使用できるようにさらに外側の位置である（Position-2）[3.10.1-4]。この位置では中性子束レベルが低下するため核変換を共鳴領域近傍で行うように照射集合体の周りをアルミの減速材で巻き、且つ照射集合体内の減速材による吸収で中性子束レベルが低下しないように集合体内の減速材は重水（YD₂）とした。Position-2 での炉内装荷状況を図 3.10.1-3 および図 3.10.1-5 に示す。

炉心解析は、3 次元非均質体系で連続エネルギーモンテカルロ法コード MCNP-6.2[3.10.1-5]を用いて有効ヒストリ数 1 千万で行った。核データライブラリは JENDL-4.0[3.10.1-6]である。計算時点は平衡炉心の燃焼初期とし平衡炉心の燃料組成を用いた。MCNP の計算体系の径方向断面を図 3.10.1-2 に示す。

照射試験集合体内のピンの燃焼は、FISPACT-II-3.20[3.10.1-7]で行った。核データライブラリは炉心計算との整合性を図るため同じ JENDL-4.0 を用いた。MCNP 計算から得られたピンの 175 群（VITAMIN-J）[3.10.1-7]の中性子スペクトルおよび中性子束レベルを用いて Cs、Ba の同位体および熱中性子遮蔽材である Gd の燃焼を行った。燃焼により試験集合体内のピンの組成が変化するため燃焼するたびに燃焼後の組成を用いて MCNP により炉心計算を行い試験集合体に隣接する燃料棒の出力ピークを評価した。このため計算は MCNP と FISPACT-II による繰り返し計算となる。この燃焼計算の流れを図 3.10.1-6 に示す。燃焼日数は 1200 EFPDs（Effective Full Power Day：EFPD）〔定格出力で 5 サイクル/年×4 年照射〕である。

③ 炉心の臨界解析結果

試験集合体が装荷されていない炉心を基準炉心とする。燃料集合体数は 75 体であり、制御棒はフルストローク 650 mm に対し炉心下端から 505 mm 引き抜いた位置にあり、制御棒は全ての解析でこの位置に固定した。実効増倍率の計算結果を以下に示す。

基準炉心（LLFP 装荷無し）： $k_{eff} = 1.00100 \pm 0.00008$

LLFP 装荷炉心（Position-1）： $k_{eff} = 0.99847 \pm 0.00008$

LLFP 装荷炉心 (Position-2) : $k_{eff} = 1.00017 \pm 0.00008$

LLFP 集合体を Position-1 に装荷した場合は基準炉心に対し反応度が 0.25 %低下している。しかし、表 3.10.1-1 に示すように炉心の運転余裕が 0.6 %あることから、この反応度低下は運転余裕により吸収できるものである。

④ 燃焼解析結果

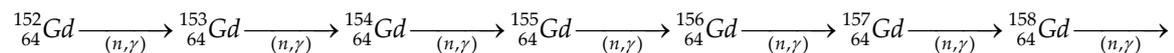
Position-1 における結果：

装荷された照射集合体の詳細を図 3.10.1-7 に示す。照射集合体内には、中心に減速材 YH_2 と Cs_2CO_3 が混合されたピン 1 本、その周りに YH_2 減速材 18 本、最外周にガドリニア (Gd_2O_3) 棒 18 本が装荷されている。ガドリニア棒内の Gd の中性子吸収による空間的自己遮蔽により燃焼に伴い Gd 同位体の原子数密度がピン内で大きく変化するため、ガドリニア棒を等体積 5 分割して燃焼した。また、Gd の燃焼は熱中性子束に依存するため、ガドリニア棒を燃料側、その反対側および側面の 3 つのグループに分けて燃焼計算を行った。さらに、燃焼初期には細かなタイムステップとし、燃焼に伴い大きなタイムステップを取ることで Gd の燃焼を適切に取り扱った。

図 3.10.1-8 に Cs 同位体の照射日数依存性を示す。図から 600 EFPDs 照射後には ^{135}Cs は天然 Cs である初期 ^{133}Cs の量の 1 割程度生成されその後徐々に生成量が増し 1200 EFPDs では残存 ^{133}Cs 量と LLFP である生成された ^{135}Cs 量は同程度となることが分かる。

図 3.10.1-9 に Ba 同位体の照射日数依存性を示す。 ^{134}Cs と ^{135}Cs の反応量評価に利用できる ^{134}Ba 、 ^{135}Ba 、 ^{136}Ba の量が 1 桁程度の差で生成されていることが分かる。

図 3.10.1-10 には、 ^{155}Gd および ^{157}Gd の原子数密度の照射日数依存性を示す。 ^{155}Gd の濃度は約 40 EFPDs で半分となり、1200 EFPDs では 10 分の 1 以下となった。これに対して、 ^{157}Gd の濃度は燃焼初期ではさらに早く約 14 EFPDs で半分となったが、1200 EFPDs では大分残っており、原子数密度の照射日数依存性は小さいことが分かる。これは、以下のように燃焼した ^{155}Gd の捕獲から ^{157}Gd が生成するからである。



このことから Gd による出力ピーク抑制効果は長期間にわたって維持されることが分かる。

燃料棒の出力ピークは照射集合体に隣接する燃料集合体 (JS0085) 内の燃料棒に現れる。このため、出力ピーキング係数はこの集合体に着目して、(燃料集合体ピーキング係数 × 集合体内燃料棒ピーキング係数) × 集合体軸方向ピーキング係数で求めた。このうち括弧内は径方向出力ピーキング係数であり MCNP-FISPACT-II の計算結果から図 3.10.1-11 に示すように照射期間全域にわたり 1.10 以下である。また、集合体の軸方向ピーキング係数は図 3.10.1-12 に示す軸方向出力分布から 1.15 であった。この結果から、照射場 Position-1 に隣接した集合体内の燃料棒の出力ピーキング係数は計算の不確定性として余裕 5 %を取って 1.33 となる。

常陽の燃料集合体は燃料棒が 6 層であるので燃料集合体当たりの燃料棒本数は 127 (本/集合体) となる。Mark-IV 炉心の燃料集合体は 75 体であるので、保守的な評価をするために発生する熱出力は全て内側および外側燃料集合体から生じたものとして炉心平均線出力は、

$$\frac{100(MW) \times 10^6}{127(\text{本/集合体}) \times 75(\text{体}) \times 50(\text{cm})} = 210 \text{ W/cm}$$

となる。これから燃料棒の最大線出力は、 $210 \times 1.33 = 280 \text{ W/cm}$ となり、制限値である 330 W/cm 以下であることから、本照射場は炉心として成立していることが分かる。

図 3.10.1-13 にターゲット ($\text{YH}_2 + \text{Cs}_2\text{CO}_3$) の中性子スペクトルを示す。エネルギー表示の中性子スペクトルは、 0.6 MeV 近傍から約 0.6 eV まで直線的に上昇しており、 0.6 eV 以下では小さな熱中性子のピークが現れていることから中性子は熱領域まで減速されていることが分かる。レサジー表示の中性子スペクトルは緩やかに減少している。これに対し、ガドリニア棒内の中性子スペクトルは図 3.10.1-14 に示すように約 3 keV 近傍から減少し始め、熱領域では大きく減少して熱中性子のピークも現れていない。このことから、ガドリニアが熱中性子遮へい材として効果的に働いていることが分かる。両図より、この遮蔽効果は、中性子エネルギー約 3 KeV 近傍から徐々に効き始めていることが分かるが、これは減速中性子が Gd の分離共鳴エネルギー領域に入り吸収され始めていることを表している。また、中性子エネルギー約 3 KeV には ^{23}Na の共鳴も存在する。

Position-2 における結果：

装荷された照射集合体の詳細を図 3.10.1-15 に示す。照射集合体内には、内部に減速材 YD_2 と Cs_2CO_3 が混合されたピン 37 本が装荷されている。照射集合体の周りには減速材としてアルミのブロックが装荷されている。

図 3.10.1-16 に Cs 同位体の照射日数依存性を示す。図から 600 EFPDs 照射後には ^{135}Cs は天然 Cs である初期 ^{133}Cs の量の約 $1/1000$ 程度生成されその後徐々に生成量が増加するが 1200 EFPDs で約 $1/100$ 程度となっている。図 3.10.1-17 に Ba 同位体の照射日数依存性を示す。Position-1 での生成量である図 3.1.1-9 と比べると生成量は約 $1/10 \sim 1/100$ 程度である。 ^{135}Cs や Ba 同位体の生成量が少ない理由は、Position-1 の照射ターゲットの位置の中性子束は $1.76 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ であるのに対し Position-2 での中性子束は $6.00 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ と 3 倍低いことによると考えられる。

また、照射集合体の装荷位置が燃料集合体から離れていることと、減速材として重水 (YD_2) を用いていることから燃料棒の出力ピークは生じない。

これらの結果から、照射ターゲットの総体積を考慮して重量を求めると、 360 EFPDs 照射後の ^{135}Cs の生成量は、Position-1 では ^{133}Cs の初期装荷量 152.8 mg に対し 7.7 mg 、Position-2 では ^{133}Cs の初期装荷量 14.1 g に対し 12.6 mg となりほぼ同量の約 10 mg 程度が生成されることとなる。照射後試験により Cs および Ba の同位体組成が測定されれば、 $^{134}\text{Cs}(n, \gamma)^{135}\text{Cs}$ 反応や $^{135}\text{Cs}(n, \gamma)^{136}\text{Cs}$ 反応の断面積の妥当性を積分実験として検証することができ、核変換の実証性が示されることになる。

(4) まとめ

LLFP の核変換を実施するにあたっては、照射試験により LLFP ターゲットの健全性や核計算の妥当性を示す必要がある。このため、高速実験炉「常陽」を用いて核的検討を行い、天然 Cs と減

速材 (YH₂, YD₂) からなるターゲットを照射することにより、LLFP 核変換の実証性を示すための照射集合体および照射場を構成することができた。その結果、LLFP 核種である ¹³⁵Cs を含む Cs 同位体およびそれらの中性子吸収と崩壊により生じる Ba 同位体の生成量を評価することができた。照射後試験で同位体組成が測定されれば積分実験として核変換の実証性を定量的に示すことができる。

参考文献

- [3.10.1-1] National Institute of Standards and Technology (NIST) U.S. Department of Commerce, <https://www.nist.gov/>
- [3.10.1-2] JOYO USER'S GUIDE
https://www.jaea.go.jp/04/o-arai/joyo_users_guide/sharing/index.html
- [3.10.1-3] 「常陽」MK-IV炉心の核設計について (案)、日本原子力研究開発機構 大洗研究所 高速実験炉部、平成30年5月.
- [3.10.1-4] T. Aoyama, S. Maeda, Y. Maeda and S. Suzuki, Transmutation of Technetium in the Experimental Fast reactor “JOYO”, Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences, Vol. 6, No. 3, pp.279-282, 2005.
- [3.10.1-5] MCNP® USER'S MANUAL Code Version 6.2 , Los Alamos National Laboratory report LA-UR-17-29981.
- [3.10.1-6] K. Shibata, et al., JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering, Journal of Nuclear Science and Technology, 48[1], pp.1-30 (2011).
- [3.10.1-7] The FISPACT-II User Manual, UKAEA-R(11)11 Issue 8, December 2016.

表 3. 10. 1-1 常陽 Mark-IV 炉心および照射ターゲットの主要パラメータ

項目	単位	数値
炉心出力 (炉心 + ブランケット)	MWt	100 *
運転サイクル	日	60 *
年間サイクル数	—	5 *
燃料集合体数 (内側/外側)	体	17/58 *
核分裂性 U/Pu 最大装荷量	kg	約 250 *
初期燃料密度	%TD	94 *
Pu 含有率 (内側/外側)	Wt%	約 22/約 29 *
核分裂性 Pu 富化度 (内側/外側)	Wt%	約 16/約 21 *
Pu 同位体組成比 $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}/^{242}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$	Wt%	1/66/24/4/3/2 *
^{235}U 濃縮度	Wt%	18 *
O/M 比	—	1.97 *
1 次冷却材流量	t/h	1335 *
炉心入口・出口温度	°C	350/456 *
制御棒構成	—	主 : 4 本 / 後備 : 2 本 *
制御棒所要反応度	% $\Delta k/k$	3.5 * 定格最大過剰反応度 2.0 (燃焼 1.4 + 運転余裕 0.6) 温度および出力補償 1.49 (100°C ~ 定格出力)
LLFP 集合体照射期間	年	4 (4 × 5 × 60 = 1200 EFPDs)
LLFP 化学形態 ・天然 Cs	—	CS ₂ CO ₃ (4.24 g/cm ³)
LLFP ペレット含有減速材化学形態	—	YH ₂ または YD ₂
LLFP ペレット減速材体積割合	%	95
LLFP ターゲット棒 (外径/内径)	mm	8.5/7.5
LLFP ターゲット棒被覆管厚さ	mm	0.5
LLFP ターゲット長さ と 本数		
Position-1	—	2.00 cm / 1 本
Position-2	—	5.00 cm / 37 本

* 参考文献[3. 10. 1-3]

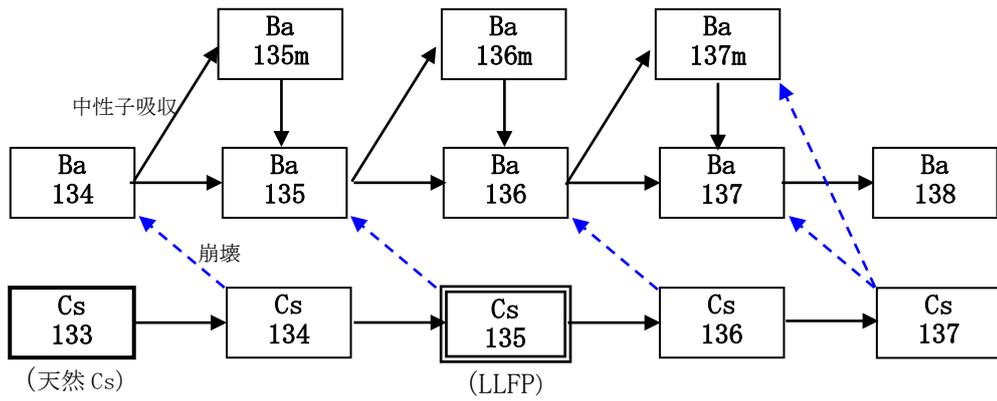


図 3. 10. 1-1 Cs の主な燃焼・崩壊チェーン

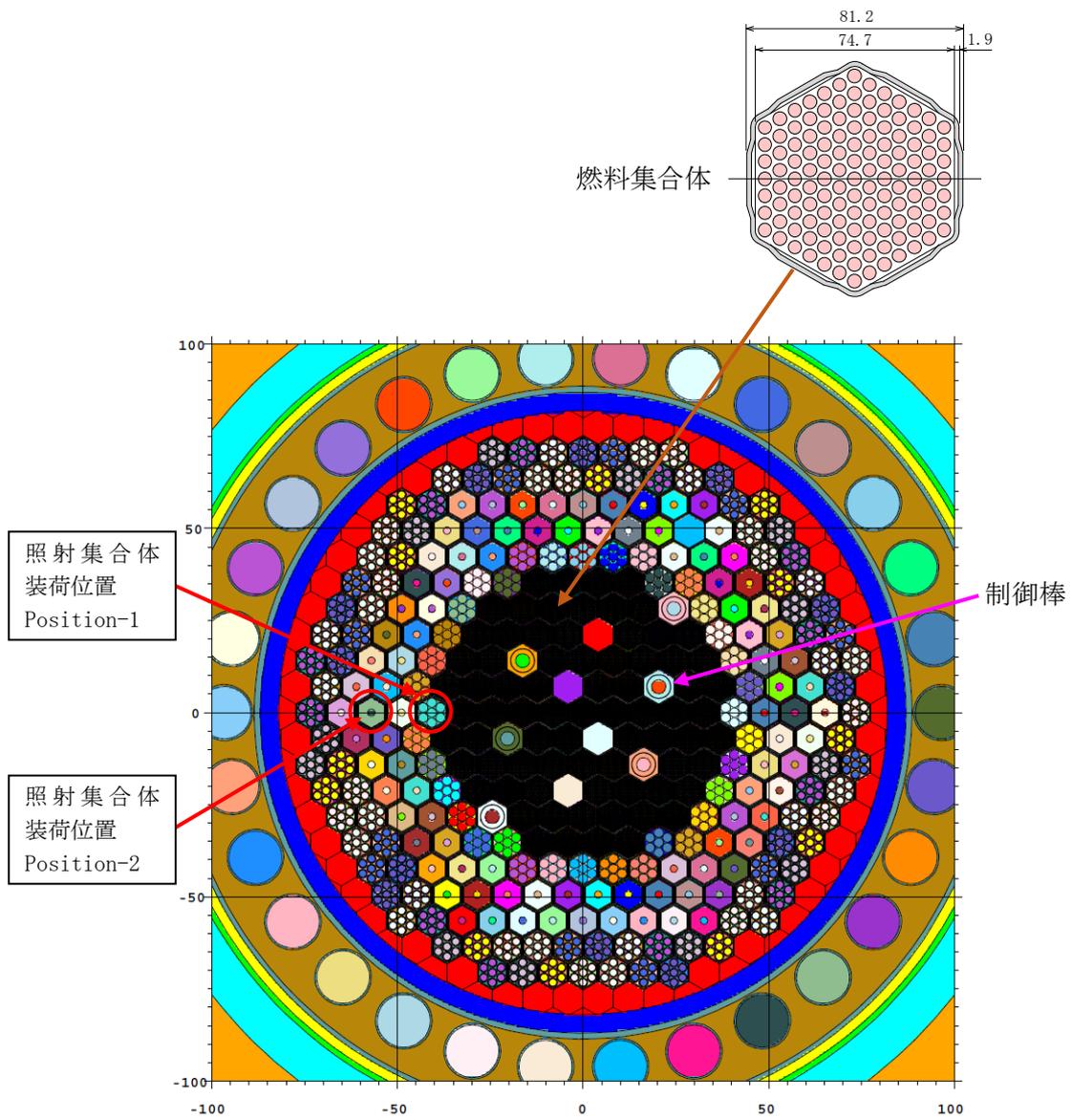


図 3. 10. 1-2 常陽の炉心断面と照射集合体装荷位置

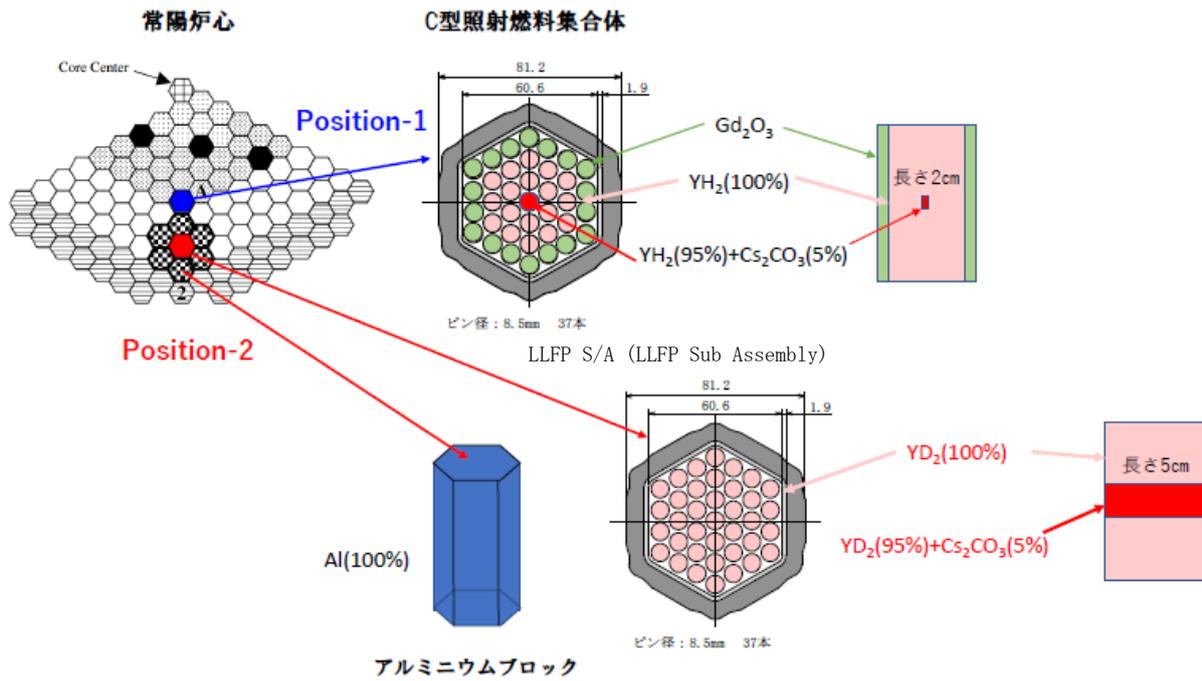


図 3. 10. 1-3 照射集合体と常陽への炉内装荷位置

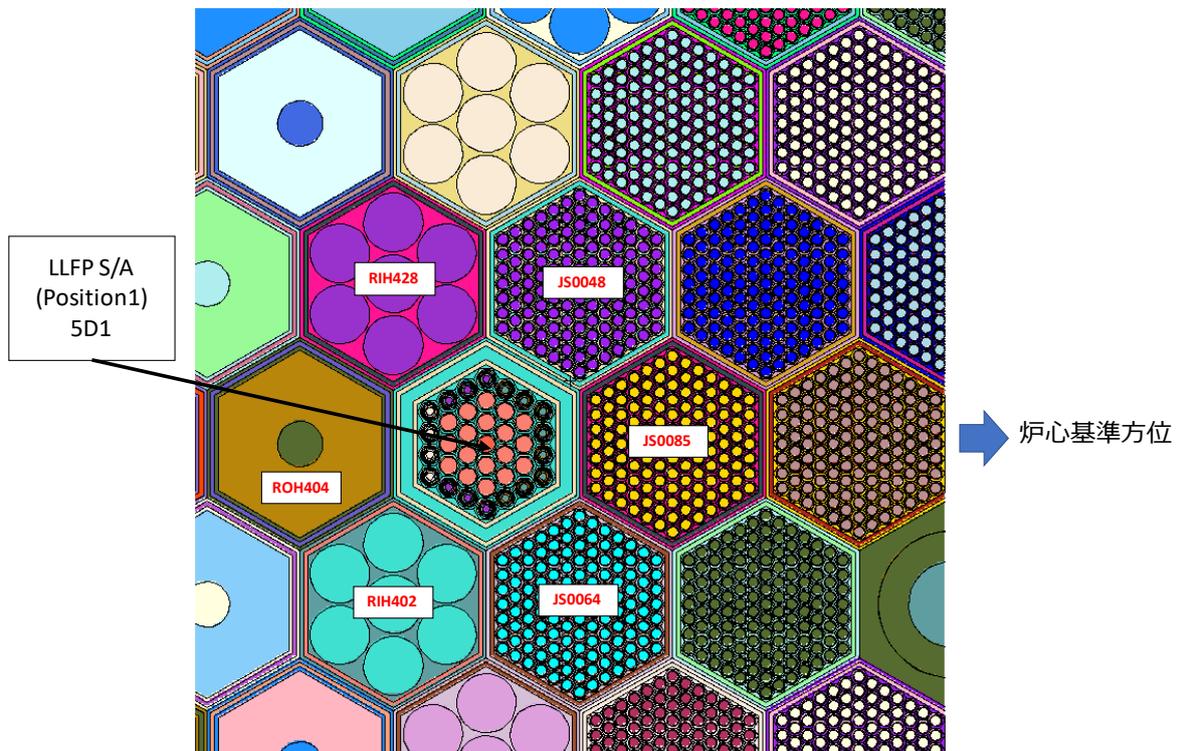


図 3. 10. 1-4 照射集合体装荷位置 (Position-1)

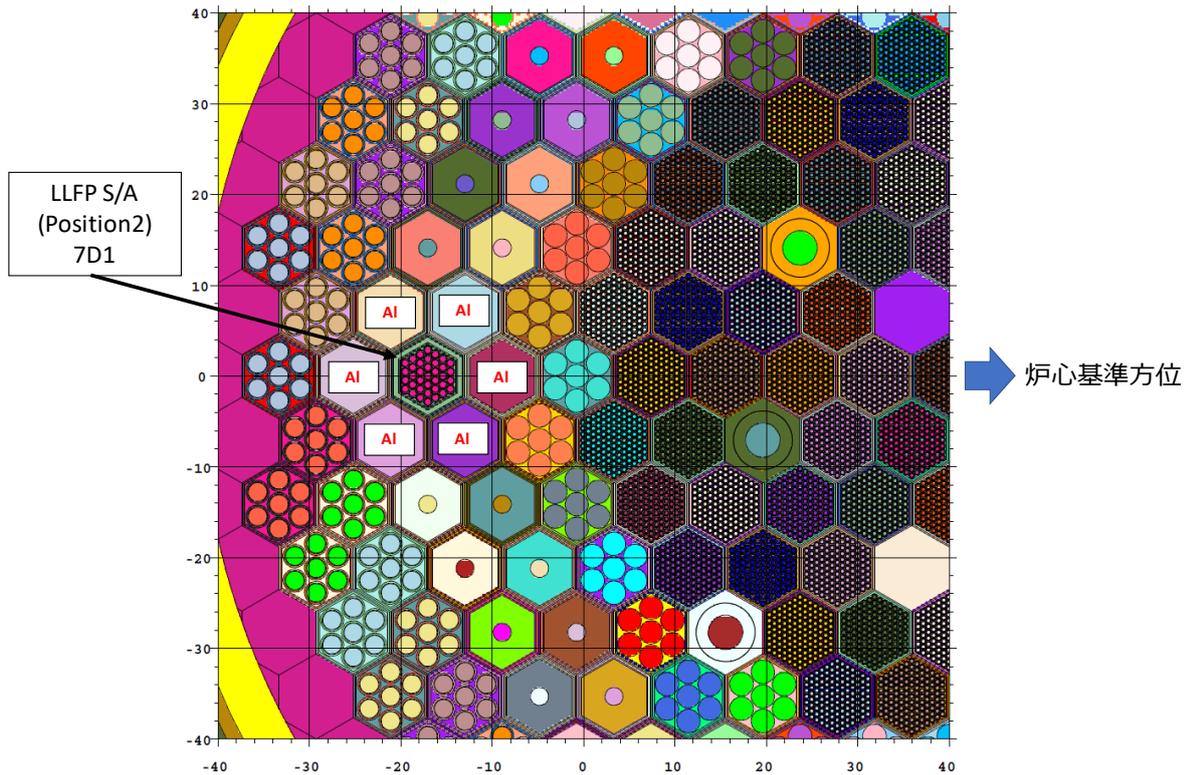


図 3.10.1-5 照射集合体装荷位置 (Position-2)

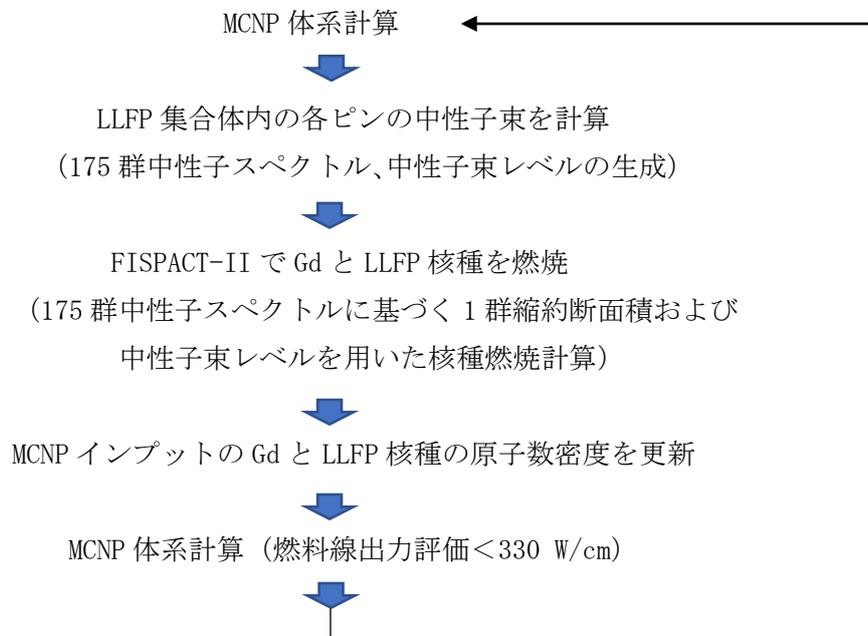


図 3.10.1-6 FISPACT-II による燃焼計算の流れ

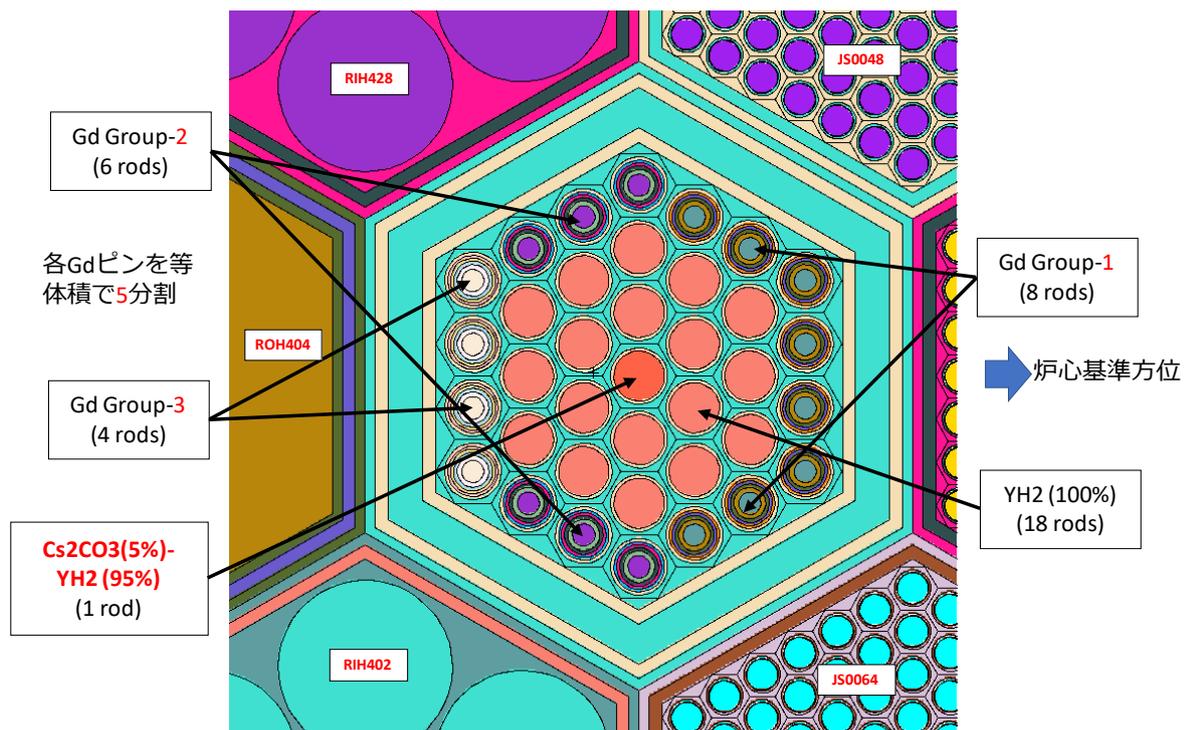


図 3.10.1-7 Position-1 に装荷した照射集合体の燃焼領域

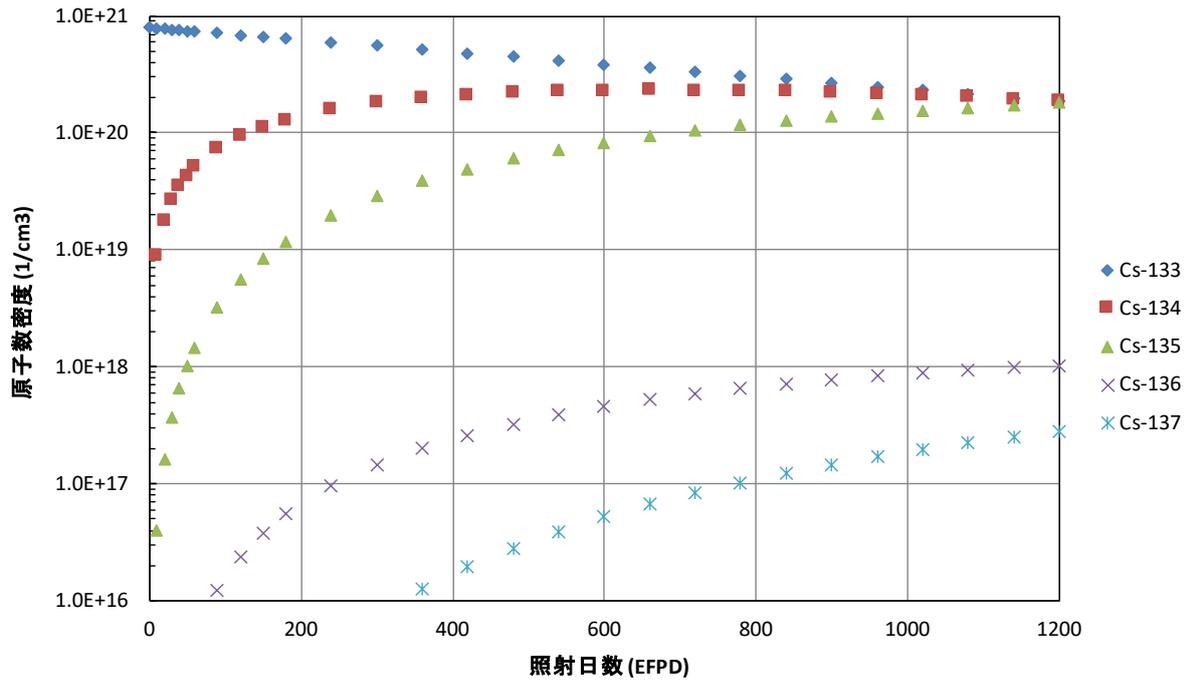


図 3.10.1-8 Position-1 における Cs 同位体の照射日数依存性

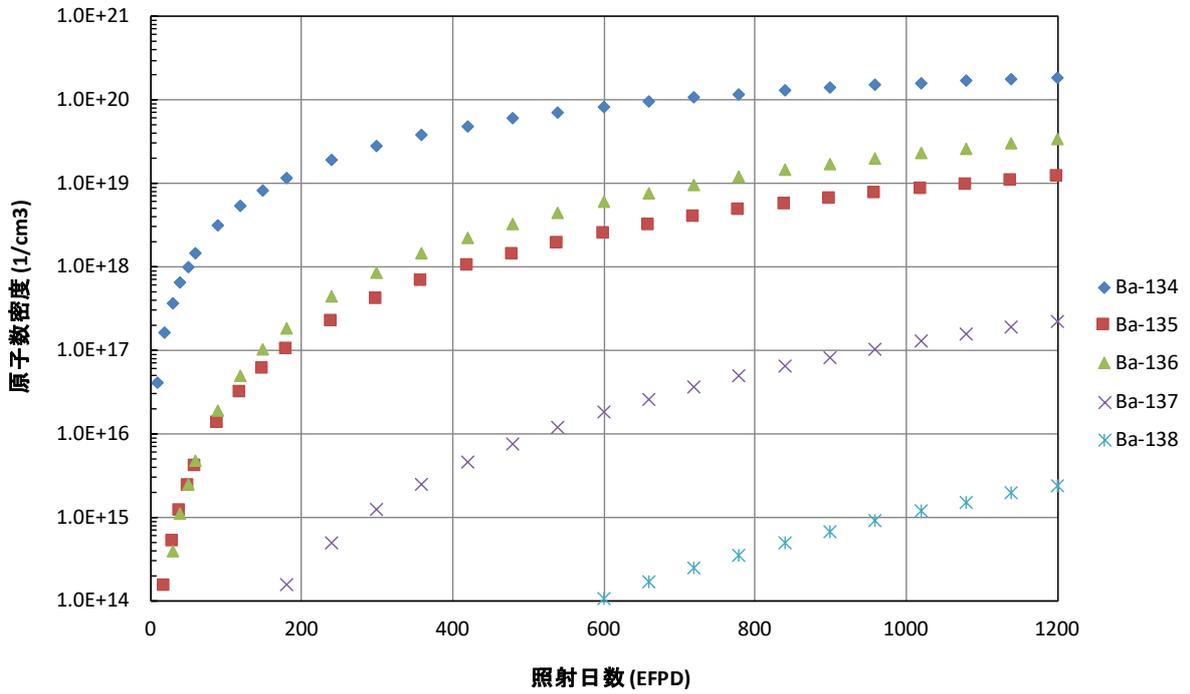
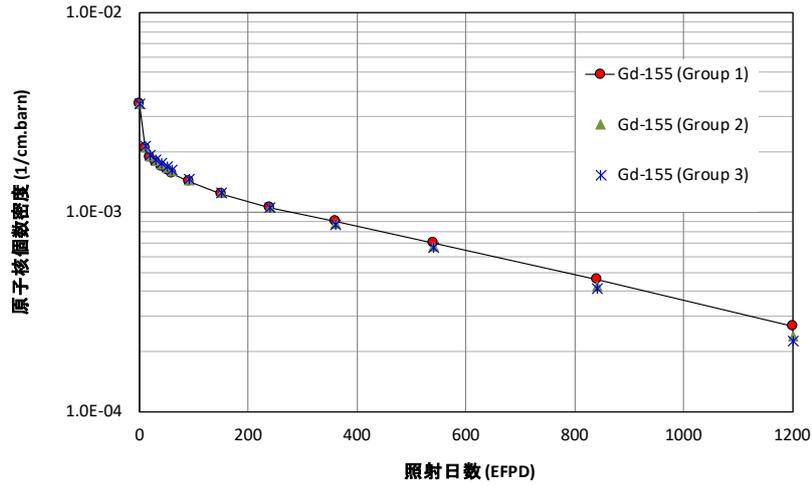
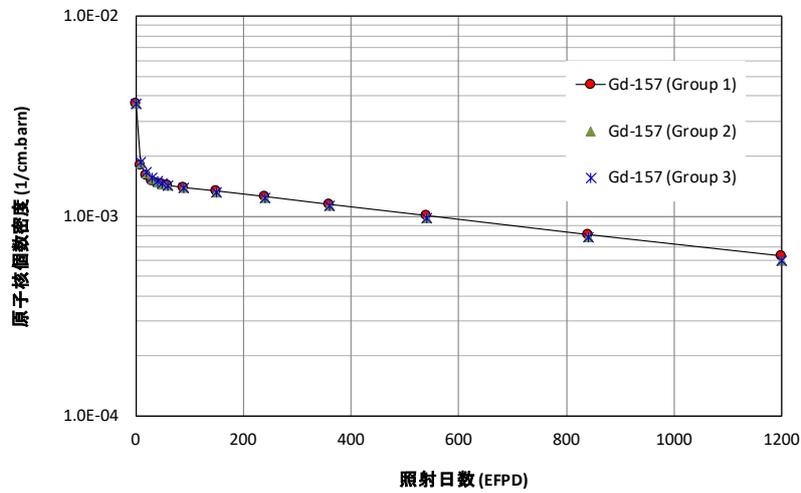


図 3.10.1-9 Position-1 における Ba 同位体の照射日数依存性



(a) ^{155}Gd の原子数密度の照射日数依存性



(b) ^{157}Gd の原子数密度の照射日数依存性

図 3. 10. 1-10 ^{155}Gd および ^{157}Gd の原子数密度の照射日数依存性

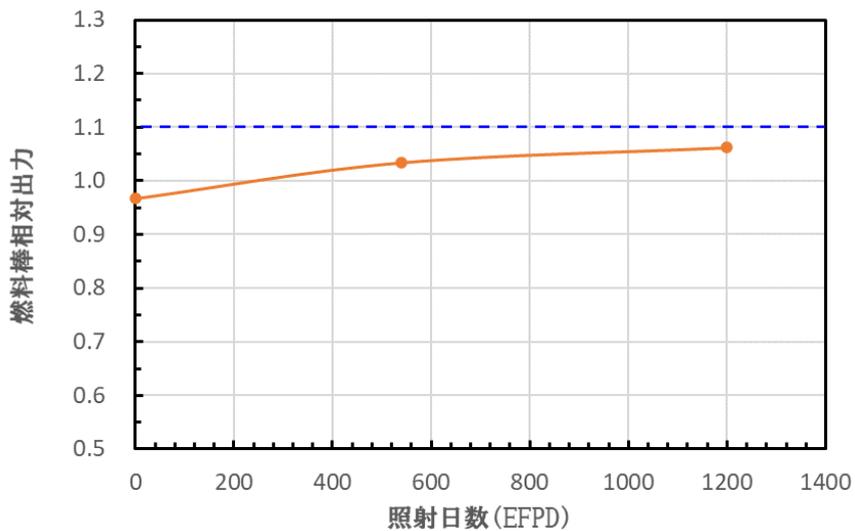


図 3. 10. 1-11 照射集合体に隣接する燃料棒の径方向出力ピーキング係数の照射日数依存性
〔照射集合体 (Position-1) に接する燃料集合体 (JS0085) 内の燃料棒の径方向出力ピーク〕

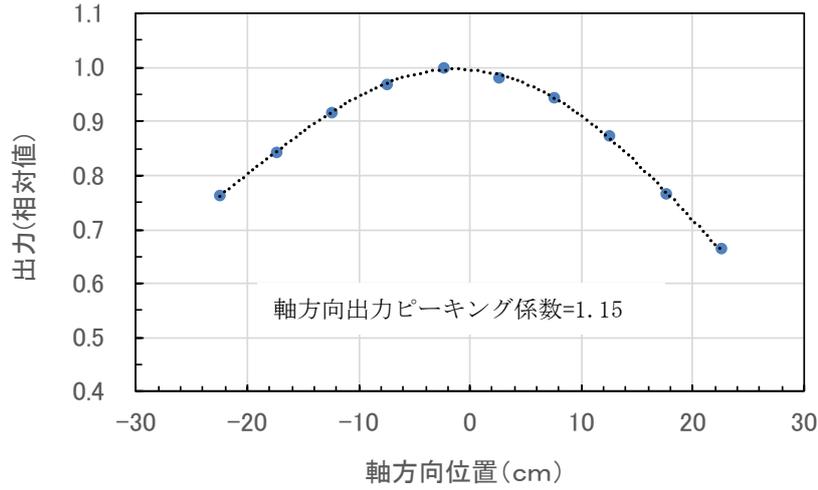


図 3. 10. 1-12 照射集合体に隣接する燃料棒の軸方向出力ピーキング係数

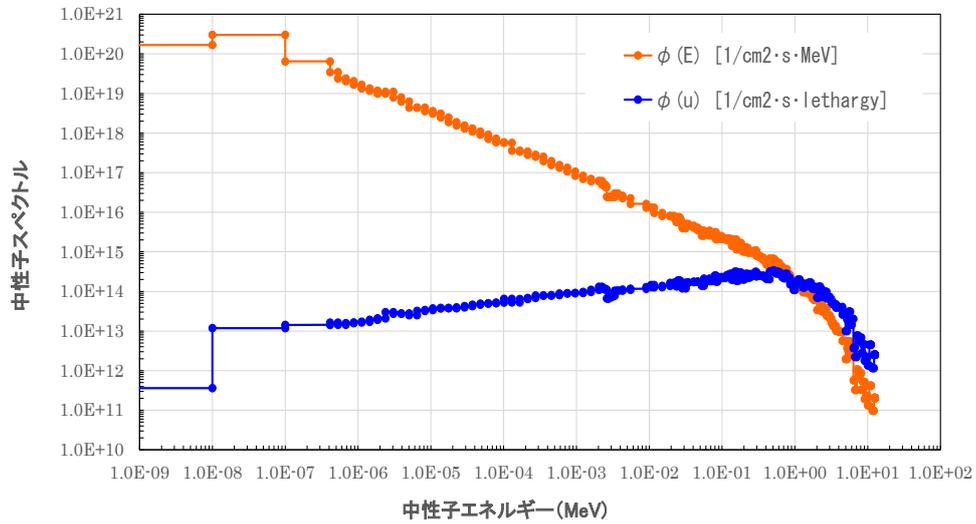


図 3. 10. 1-13 ターゲット (YH₂+Cs₂CO₃) の中性子スペクトル

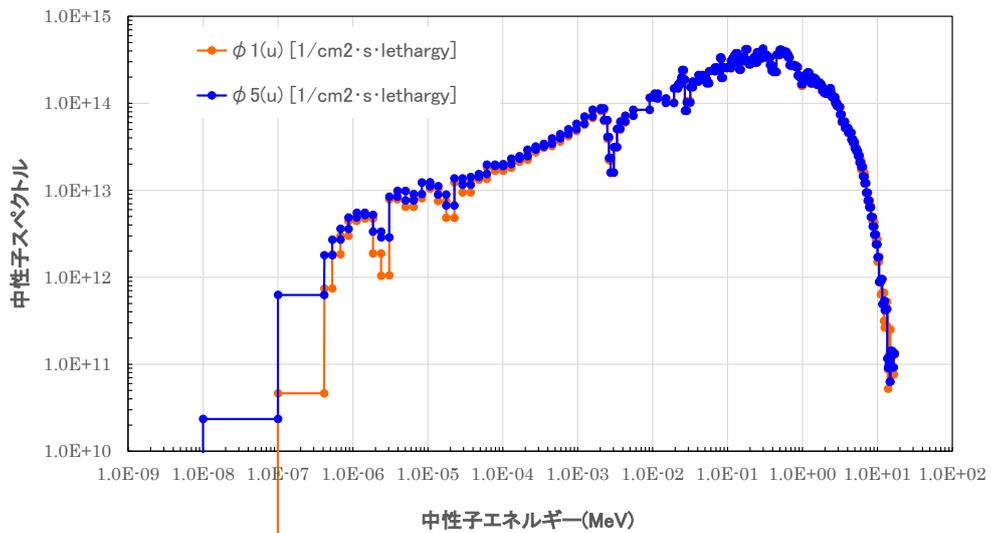


図 3. 10. 1-14 ガドリニア棒(Group-1) の中性子スペクトル
(ガドリニア棒の内側から外側へ向かって中性子束をΦ1 からΦ5 とした)

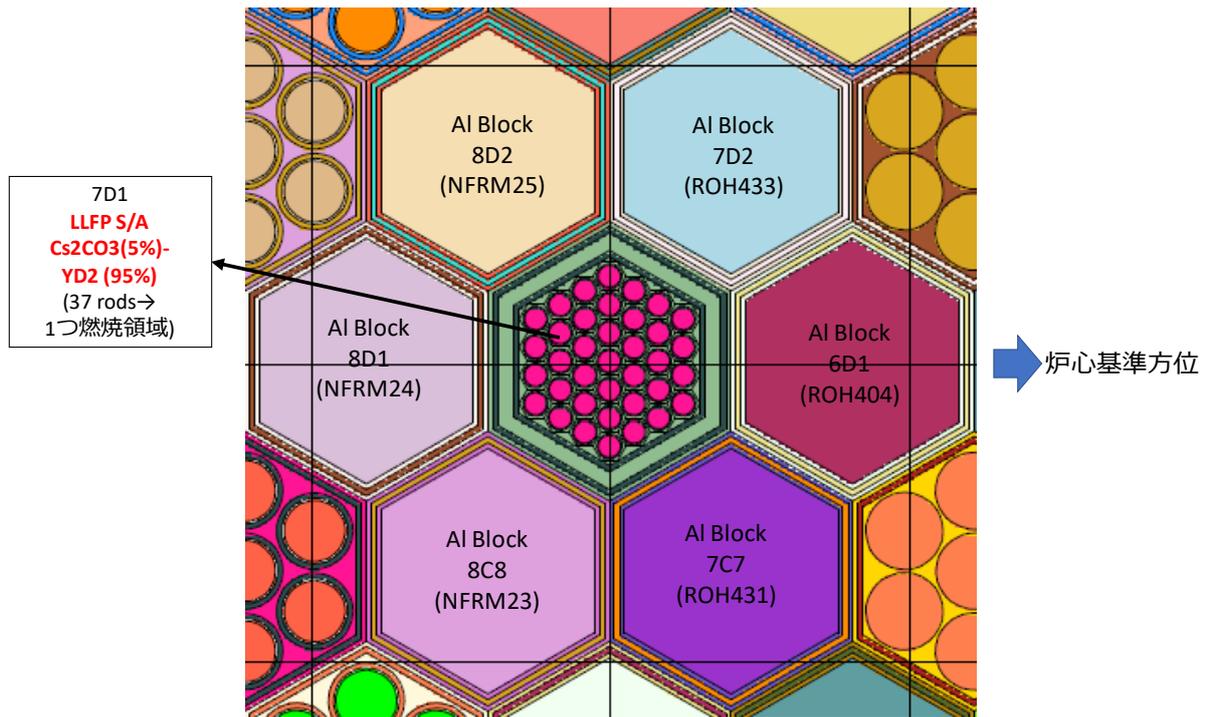


図 3. 10. 1-15 Position-2 に装荷した照射集合体の燃焼領域

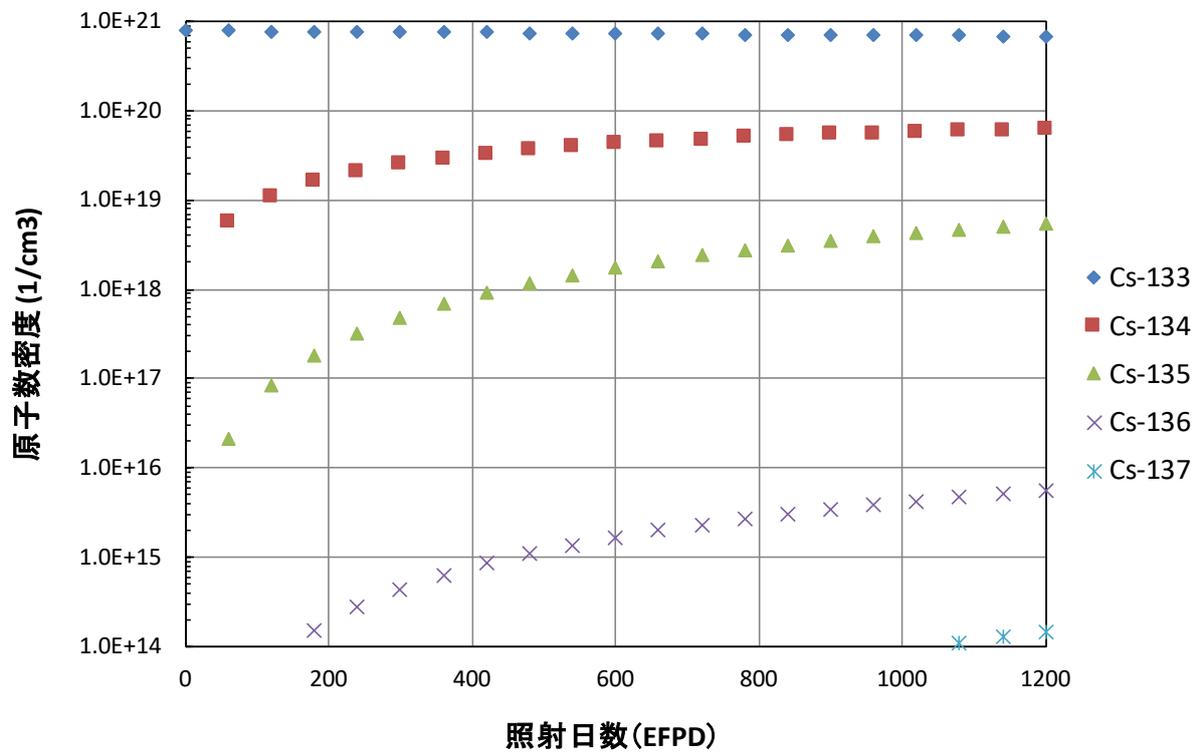


図 3. 10. 1-16 Position-2 における Cs 同位体の照射日数依存性

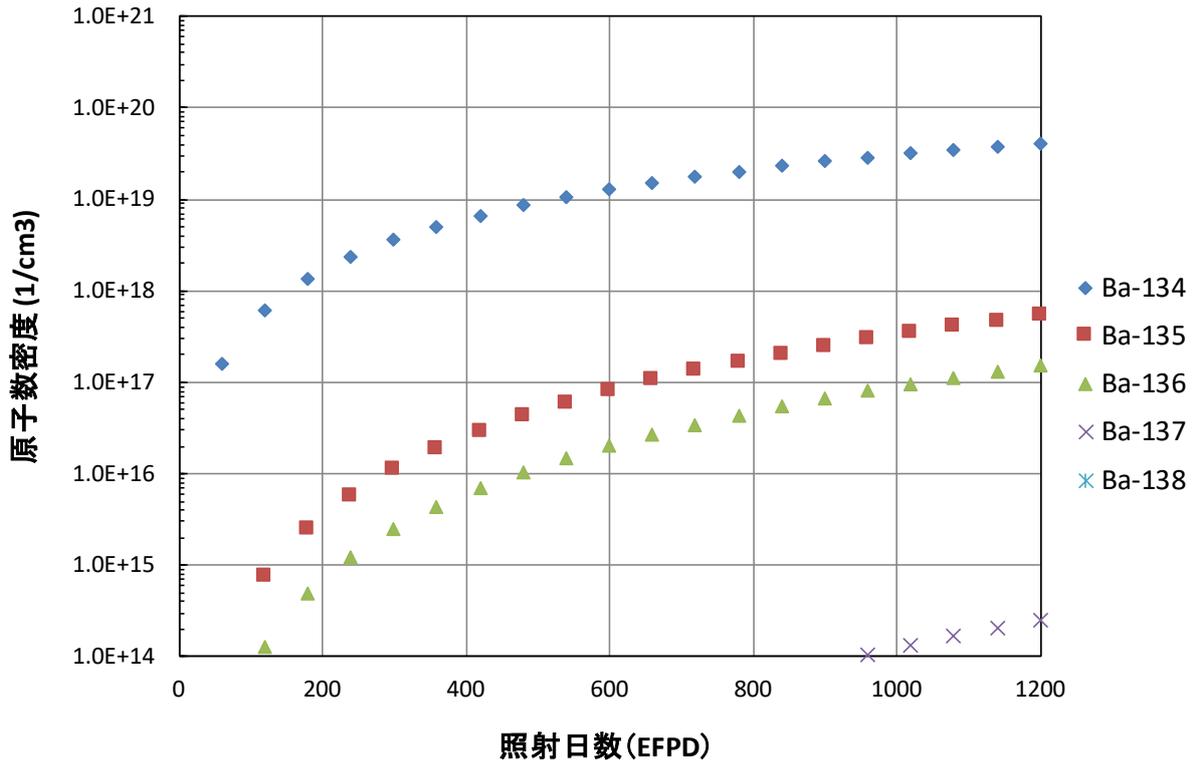


図 3.10.1-17 Position-2 における Ba 同位体の照射日数依存性

3.11 社会科学の意義（再委託先：東北大学）【H28-R1】

3.11.1 調査・分析・まとめ【H28-R1】

（１）はじめに

現代社会では、科学技術に対する社会的意思決定は、市民参加方式を重視するトレンドが支配的になっている。このため、新しい技術の開発にあたっては、研究プロジェクト着手後の早い段階から、その技術の概要、価値、成立可能性、リスクなどに関して、専門家ではない一般市民に対してわかりやすく説明するとともに、様々な不安や懸念に対して的確に回答できる能力が強く要求されている。

LLFP 核変換による長寿命核種の短半減期化技術（以下では LLFP 核変換技術と略記）というアプローチは、我が国のエネルギー政策、原子力政策上、重要な技術である高レベル放射性廃棄物の地層処分で避けることのできない「何万年にもわたる安全性の確保」という社会的要求に伴う困難を格段に低減できる可能性を有している。一方で、LLFP 核変換技術の社会的受容を高めるためには、LLFP 核変換技術を専門とする研究者集団が、前述したように技術の概要、価値、成立可能性、リスクなどに関してについて、様々な信念体系を持つ市民に対して、わかりやすく、明快に説明できることが必要である。

このような説明を効果的に行うに際しては、多くの課題が解消される必要がある。この課題を大まかに分類すれば、(1) LLFP 核変換技術そのものが内包する多様な技術的課題とその解決策を説明することに伴う難しさと、(2) 説明対象の市民の中に、原子力政策や核燃料サイクル路線そのものについて批判的な市民から、原子力については強い批判を持っていないが高レベル放射性廃棄物を地下深くに埋設してしまうやり方に批判的な市民まで、様々な意見のスペクトルを持つ対象者が存在することによる難しさの、双方が存在する。**課題（１）**は、説明すべき技術コンテンツの複雑さに起因する困難、**課題（２）**は説明を提供すべき相手の見解や信念の多様性に起因する困難ということができよう。

上記のような問題意識を踏まえて、これまでに実施してきた研究の概要を以下に示す。

（２）特に強い属性を持たない一般市民を対象とした調査(Web)の実施【H28】

平成 28 年度は、課題（１）に力点を置いて、原子力に関してあまり強い推進／反対のような意見を持たない市民を対象として、Web ベースの調査を実施し、1459 名からの回答を得て分析を行なった。なおこの段階では「LLFP 核変換」と言わず、「分離・変換技術」という呼び方をしていた。得られた知見は以下のように要約できる。

- 一般市民にとって分離・変換技術の理解は困難であるが、放射性廃棄物の処分の負荷の低減に対する基本的な有効性の認識はある程度得られた。
- しかしながら、我が国の原子力エネルギー利用と不可分な地層処分の問題に対して否定的意見が多かったことには注意する必要がある。分離・変換技術に関しても今後、より具体的な問題として認識されるにつれて、否定的な意見が増える可能性もあると推測される。
- 分離・変換技術だけでなく、地層処分問題についてもその技術的内容だけでなく、その倫理的・社会的妥当性に関して的確な説明ができる能力の涵養が必要である。

(3) 原子力に明確に反対している市民を対象とした対話のあり方【H29】

平成 29 年度は、先行して実施されている実践的研究からの知見を参照しつつ検討を進めた。意見の隔たりが大きい市民との討論に際しては、性急な説得や合意は求めることはできない。このような場合には、真摯な対話を通じて、ある程度まで信頼関係を確立したのちに、それぞれの意見内容を「事実」と「それ以外の価値判断や推測」に分けて、両論を対比した形でまとめた「両論並記資料」を作成するという、共考・協働アプローチが有効と考えられる。このアプローチは、リスク心理学の権威で実践経験も豊富な木下富雄氏（京都大学名誉教授）も推奨されており、経験的にも学術的にも一定の合理性を持つ方策と考えている。得られた主な知見は以下の通りである。

- 「事実」を重視しつつ対話を進めることに関しては原子力に関する立ち位置を超えて合意が得られた。
- 「事実」の中にも「科学的または技術的に定説とされている事実」「論文等に報告が述べられているが評価は定まっていない事実」「権威者の談話」「法律や規則」などがあり、区別する必要があるという気づきを得られた。
- 意見の対立があった場合に、「事実」ベースの対立か「信念」ベースの対立か、目を配る習慣が生まれた。
- 資料作成の過程で、原子力に関する意見の違いを超えて、相互の信頼は徐々に高まった。

(4) 理工系大学院学生を対象とした LLFP 核変換技術説明会【H30】

平成 30 年度では、科学技術に関しては少なくとも肯定的な見解を有していると期待できる、理工系大学院学生(9名)を対象とした LLFP 核変換技術説明会を実施した。説明を受けて学生たちの発話記録をコミュニケーション過程のモデルを参照し発話分析して、以下の知見を得ている。

- 説明者（LLFP 核変換研究者）側が感じた困難の内容を分析して、テーマに関する「科学的、技術的知識の説明力不足に由来する問題点」と、より一般的な「コミュニケーション上のスキル不足に由来する問題点」に大別することができた。
- それぞれの問題点について、その改良方策、ならびにその改良方策のカテゴリー化を行い、比較的少数のコミュニケーション指針を導出することができた。
- これらの指針を活用しつつ、科学技術にある程度の共感性を有している市民と積極的に対話することを通じて、LLFP 核変換技術の社会的受容が進展することが期待される。

上記のコミュニケーション指針を表 3.11.4-1 に示す。

表 3.11.4-1 平成 30 年度の段階で導いている「コミュニケーション指針」

指針番号	指針の内容
1.	関連する科学的、技術的知識を必要な詳細さで理解できていること
2.	理解している知識を、情報の受け手のニーズに適合させて説明できること
3.	科学技術開発のプロセスに関する知識を理解し説明できること
4.	「高レベル放射性廃棄物処分」に関する歴史的経緯も理解し説明できること
5.	「安全」を説明するための論理的方策を理解して説明できること
6.	事実ベースの説明を心がけること
7.	傾聴を重視して、回答を急がない
8.	「市民向け説明」に特化した工夫をすること
	この指針 8 は、さらに複数のサブ指針によって構成されている。
8-1	専門語、業界用語の無自覚な使用は避ける。完全には避けられないが、その際には「用語集」のような資料を配布する。
8-2	定量的な説明用の図面は、専門家向け資料を流用せず、市民向けに作る。 なお、定量的な説明に際しては根拠や出典の明示が要求される可能性が高い
8-3	説明は、簡潔から詳細へ段階的に進める。
8-4	説明は、平板に羅列することを避け、できるだけ構造化する。
8-5	有効性が事前確認されていない「たとえ」を使うことは避ける

(5) 女性オピニオンリーダー層を対象とした LLFP 核変換技術説明会 (R1)

令和元年度は、原子力について理解のある女性オピニオンリーダー層を対象として、説明会を開催し、コメントを受けた。対象者は WIN (Women in Nuclear)-JAPAN で中心的な活動をされている 7 名である。原子力や核燃料サイクルに関しては、基本的理解を有している参加者であるが、それだけに内容的にこれまでの説明会などでは経験しなかったような厳しい指摘も多数提示されている。

参加者から得られた意見・指摘等の要約を、表 3.11.5-1 に示す。これらの意見・指摘等のうち、上記の指針を遵守または多少の修正することを通じて対応できる場合には、その指針番号を明示し必要な場合には修正内容を明示した。付録に説明に用いた資料を示す。

表 3.11.5-1 令和元年度のインタビューを通じて得られた知見と「指針」との関係

意見番号		意見要旨（必要に応じ回答例も示す） Q:質問、C:コメント、A:回答 ただし、趣旨の類似したQ、Cは同じ意見番号の中に併記した。	対応する指針番号 または、追加すべき指針要旨
1.		C1:分離変換について物質としてのゴミの量は変わらないと書いてあるが、処分場の面積を100の1にできると言っている。 <u>100分の1の根拠が分からない</u> C2:先程も100分の1の表現の話があったが、聞いている方はきちんとした数値が重要なのではなくて、 <u>半分になるとか大まかな表現</u> で良いのではないかと思う	指針 8-2 に対応している。定量的説明のあり方に注意。
2.		Q:実現可能性のところで費用についての記述がないが、どの程度かかるのか A:一般の人はそういう経済的事よりも長く置いておくことへの不安感があるのでお金の換えられないものがある Q:でも処分費が百倍になったら A:そこまではかからない	指針 8-2 と関連。 費用の問題は、研究者は当面は関心外としがち。対社会説明として避けて通れない。概算でも目安と根拠とを明示したい。(出来ない場合には言及しない)
3.		Q: 廃棄物の危険性がなくなるまでの時間というのはどういうことか A: 天然ウランのレベルを意味している C: だったらそう書くべき。何を危険と思うのかは人によっ	指針 5、8-2 と関連。 安全を説明する際には、定義を明らかにすることに加えて、その定義の合理性を示せること

		て違う	
4.		<p>Q:分離変換技術があるなら、開発まで待って地上保管すれば良いと言われたときにどのように答えれば良いのか？</p> <p>A:本研究は地層処分の負担軽減を目的としており地層処分を代替することを考えていない。</p> <p>Q:数百年で危険性がなくなるなら、地層処分ではなく地上で保管という考えも出てくる。</p> <p>A:全部の核種で核種変換により地層処分が不要になる訳ではない。</p> <p>C:だとしたら、数百年で危険性がなくなるというこの書き方はミスリードになる</p>	<p>指針 1, 4, 5 に関連。</p> <p>特定課題についての解決・負担軽減と、地層処分技術全体との関係付け、さらに対外的説明の詳細度に関する配慮が必要</p>
5.		<p>C:プルサーマルという言葉がいきなり出るのはどうか。再処理で作った燃料とか説明があるのではないか</p>	<p>指針 8-1 に対応。原子力専門家は普通に使っても自明の言葉として使うことは避けたい</p>
6.		<p>C1: 持続時間（半減期）とあるが、持続時間と半減期との違いが不明確。</p> <p>C2: 「バックエンド」という言葉が出てくるが一般的ではない</p> <p>C3: 実効半減期やサポートレシオという用語の理解が難しい</p> <p>C4: 原子力の廃棄物の問題（バックエンド問題）とあるが、バックエンドと言わなく</p>	<p>指針 8-1 に対応。これらの用語を全く使わずに説明することは容易ではないが、例えば、初めて聞く人、多少知識のある人、かなり詳しい人、のように、違う属性の相手向けに専門用語の利用を調整した説明資料は用意しておきたい。なお、サポ</p>

		<p>てもいいのではないか</p> <p>C5: 反応度の基礎特性云々は専門的すぎる C6: 「原子炉の性能が落ちる」という言葉の意味が分からない。落ちるとどうなるのか、危険になるのか</p> <p>C7: マイナーアクチノイド、同位体、ブランケット等の意味も分かりにくい</p>	<p>ートレシオについては、理解困難という意見が繰り返し表明された。原子力発電についての基本知識がある受け手でも理解は困難と考えるべき</p>
7.		<p>C1: 燃えないゴミ、燃やせるゴミ、燃えるゴミ、等の言葉があったが（中略）意思を持った言葉として「燃やすゴミ」「燃やさないゴミ」という表現の方が適切と感じた</p>	<p>指針 8-1 に対応。燃えない、燃えるという<u>自然特性を表す表現</u>と、燃やす、燃やさないという技術者の<u>意思を反映した表現</u>を混用しないこと</p>
8.		<p>C1: 分離変換がなぜ必要なのかということが出てくるのが遅いが、長寿命の核種が重要であることを早い時期に示す必要であろう</p>	<p>説明の論理構成についての工夫も試みられるべき</p>
9.		<p>Q1: この変換特性はどの高速炉でも同じか？」</p> <p>A1: これはもんじゅを想定しているが、どちらかという<small>と</small>小型炉の方が効率的に変換できると考えている</p>	<p>「計算結果から言えること」と「本質的・一般的に言えること」を意識した説明方策が必要</p>
10.		<p>Q1: 表にある 6 核種について説明されたが、なぜこの 6 核種なのか</p> <p>A1: ヨウ素とセレンは公衆への被曝の観点から重要；セシウムはもともとそれ自体の線量自体が問題；(中略) 最初に対象にしたのは 7 核種でスズも含んでいたが、スズは断</p>	<p>当初、7 核種を対象とされていたが、本研究では 4 核種だけに絞っていて、それでも有効であるという主張と、初めの段階で説明された、処分場の面積が <u>100 分の 1</u>になるとか、廃</p>

		面積が小さすぎて変換されない。まずは4核種に関してなるべく早く減らすことを考えて検討した例である	棄物の危険性がなくなるまでの時間が短くなるという効用の主張との関係が分かりにくい
11.		Q1: この技術自体の実現可能性が100%に対して今は何%程度の段階なのか、いつ頃が目途なのか、いつ頃ジャッジされるのか、そこからへんを聞かせてもらいたい A1: 今の位置付けは基礎的な研究の段階で、それがいけるかどうかを判断し、次の段階で小規模な照射試験で実証、次から実際に設計する	このようなロードマップ型の説明は避けて通れない。基本的(科学的)な実現可能性評価から、技術的実現可能性評価へ、さらに産業技術としての実現可能性評価へ、と進む方式は、技術開発の基本シナリオだが、社会的に共有されている訳ではない
12.		C1: 計算結果は表よりも図で示した方が良い C2: 高レベル放射性廃棄物の地層処分がなくなるという言葉は基本的に使わず負担が低減できるというべき C3: 原子力反対/推進の人ではなく中間層を訴求対象として考えるべき	いずれも妥当な指摘である。原子力専門家はコミュニケーション実践に際して、強い反対意見の持ち主を想定しがちであるが、 <u>基本的には中間層を想定すべき</u> である

説明会全体を通して、定量的表現の適切さについては厳しい指摘がなされた。特に「処分場の面積が100分の1になる」「放射線の危険が数百年で無くなる」などの言い方に対しては、条件の明示が強く求められた。また、研究プロジェクト全体のロードマップ的表現の必要性も指摘された。用語に関しては、サポートシナリオ、実効半減期などに関して、分かりにくいという指摘が繰り返さされている。これらの用語を用いた説明が避けて通れないのか、代替の説明方策としてはどのようなやり方があるのか、今後の検討課題と考える。

(6) 考察

ここまでの検討は、既に述べたように課題(1)すなわち、説明すべき技術コンテンツの複

雑さに起因する困難と、**課題（2）**すなわち、説明を提供すべき相手の見解や信念の多様性に起因する困難に主として着目し、**対話実践ベースの検討**を行なってきた。実際には、これらの実践ベース検討からの知見に加えて、社会心理学、リスク心理学、科学技術コミュニケーション論などの分野で蓄積されている学術知も的確に適合化し反映することが望ましい。そのような観点からの検討結果を以下に要約した。

ノンテクニカルスキルとしての対話能力

最近のヒューマンファクター研究の分野では、技術の安全性を高めるための必要条件として、技術そのものに関する能力（テクニカルスキル）と技術の運用や管理をより効果的に行うための非技術的能力（ノンテクニカルスキル）の両方が重要であるという考え方が主流となりつつある。航空機運航の例で言えば、航空機を安全に操縦して出発地から目的地まで確実に移動させるために必要な技術的能力がテクニカルスキルである。一方、運航途中で航空管制官や乗務員達との間で、状況や課題、さらに解決すべき課題に関する優先順位などについて認識を共有する、エラーを起こしにくいコミュニケーションを実行する、役割分担を適切に調整するなど、テクニカルスキルとは質的に異なるが欠かせない能力がノンテクニカルスキルである。

この考え方を技術開発者と市民との関係マネジメントに適用すれば、LLFP 核変換研究を的確に推進できる研究者としての能力はテクニカルスキル、その研究内容について、市民側の懸念を的確に受け止めて、過不足ない形で回答を提示できる能力が、ノンテクニカルスキル、と位置づけることが可能であろう。LLFP 核変換技術の社会的受容性向上を目指す本報告は、技術研究者が上記の意味でノンテクニカルスキルを向上させるための実践的知見を提示しようとした試みと考えていただければ幸いである。

論点限定方式の内包する困難性

LLFP 核変換技術が実用化できれば、その技術的・社会的効用は大きいことから、原子力発電や核燃料サイクル論よりも、もっと LLFP 核変換技術に的を絞って、社会的受容が進むための研究をすべきではないか、という意見も主として原子力関係者の中にあることは承知している。しかし現実の対話では、理工系大学院生を対象とした場合でさえ、そのような論点限定的な設計をすることに対しては批判の声が高い。このような場をあえて設けたとしても、論点限定への反発が強く建設的な討論が期待できないなど、場の運用上の困難が大きいことが容易に想定される。地層処分や核燃料サイクルに関する討論も視野に含めた形で LLFP 核変換技術に関する対話を行う、という方式でないと対話は入り口で頓挫する、という状況が一般的である。このように考えるのが本研究の立場であることを付記する。

（7） まとめ

LLFP 核変換の社会的受容性向上について、説明方法の検討、一般の人へのアンケート調査、理工学学生および原子力について理解のある女性オピニオンリーダーへの説明会と意見聴取により検討した。本報告では、課題（1）、説明すべき技術コンテンツの複雑さに起因する困難と、課題

(2)、説明を提供すべき相手の見解や信念の多様性に起因する困難との両面に着目して実践的に検討を進めた結果を示している。課題(1)に関しては、表3.11.4-1の「コミュニケーション指針」を基本としつつ、必要に応じて、表3.11.5-1に示した具体的な留意点まで目配りすることで困難の低減は可能と考える。課題(2)に関しても、表3.11.4-1、表3.11.5-1は活用可能である。なお、原子力に関する基本的姿勢の対立から対話が困難な市民に対しては、平成29年度の報告で提示した共考・協働アプローチによる信頼の段階的獲得を図ることが合理的と考える次第である。

長寿命放射性廃棄物の分離変換について

2020年1月22日

東北大学

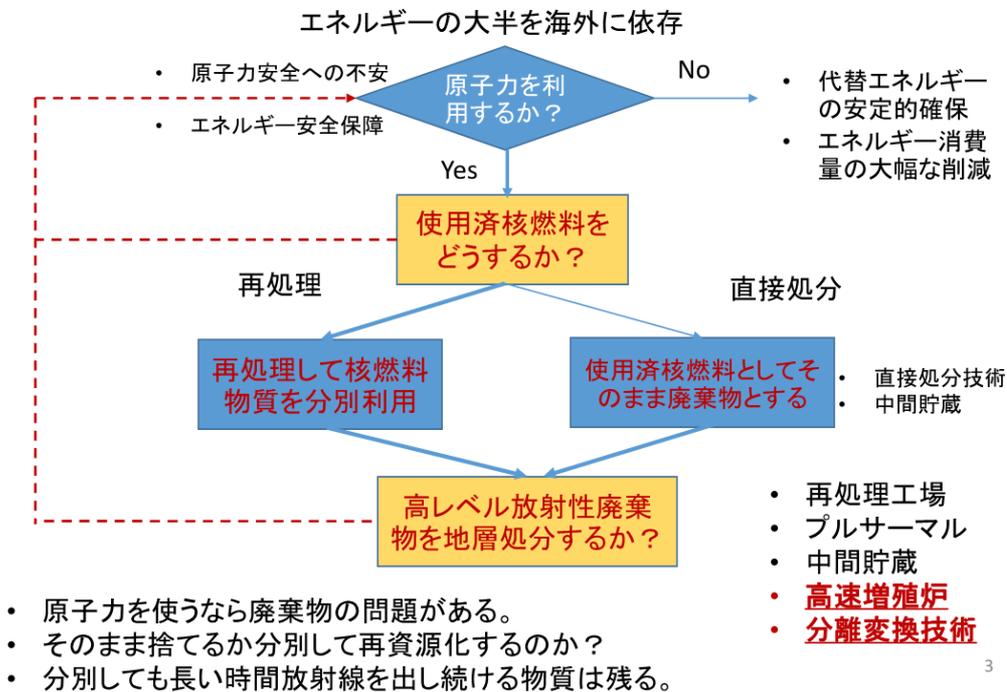
1

内容

- ・原子力の廃棄物の問題（バックエンド問題）
- ・分離変換について
- ・分離変換に期待される効用
- ・分離変換技術開発上の課題
- ・分離変換技術の研究開発状況

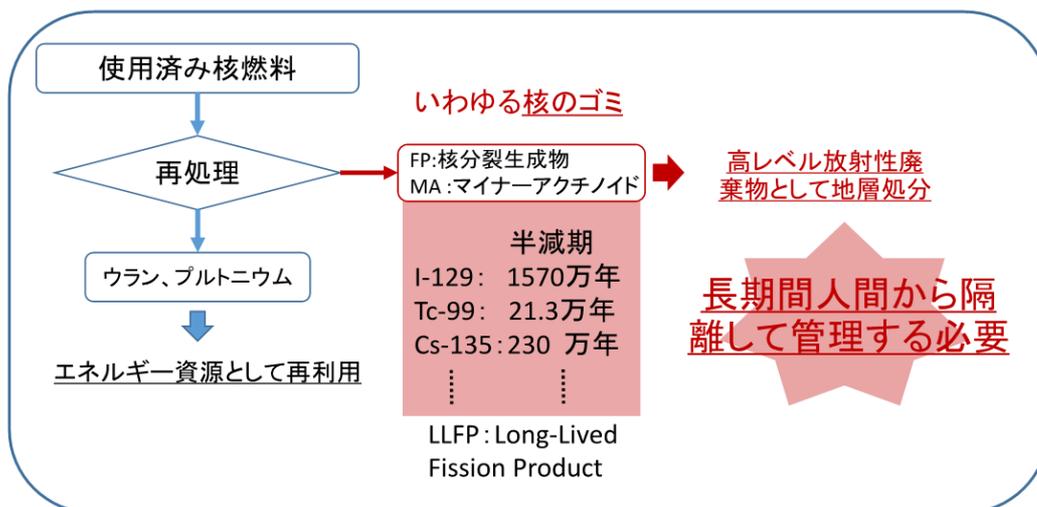
2

原子力の廃棄物の問題(バックエンド問題)



分離変換について (1)

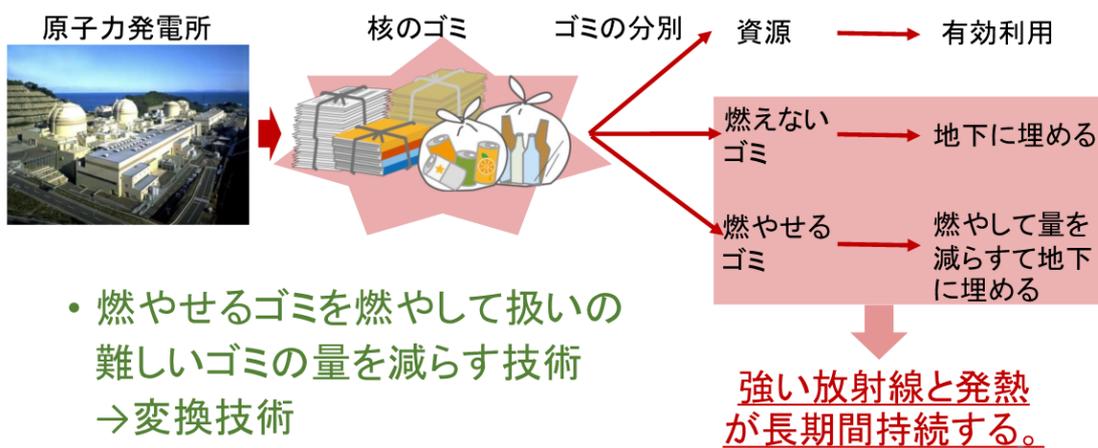
- 原子力発電を行った後の使用済み核燃料には、長期間に渡り放射線を出し続ける物質が含まれている。



半減期:放射能が半分になるまでの時間 4

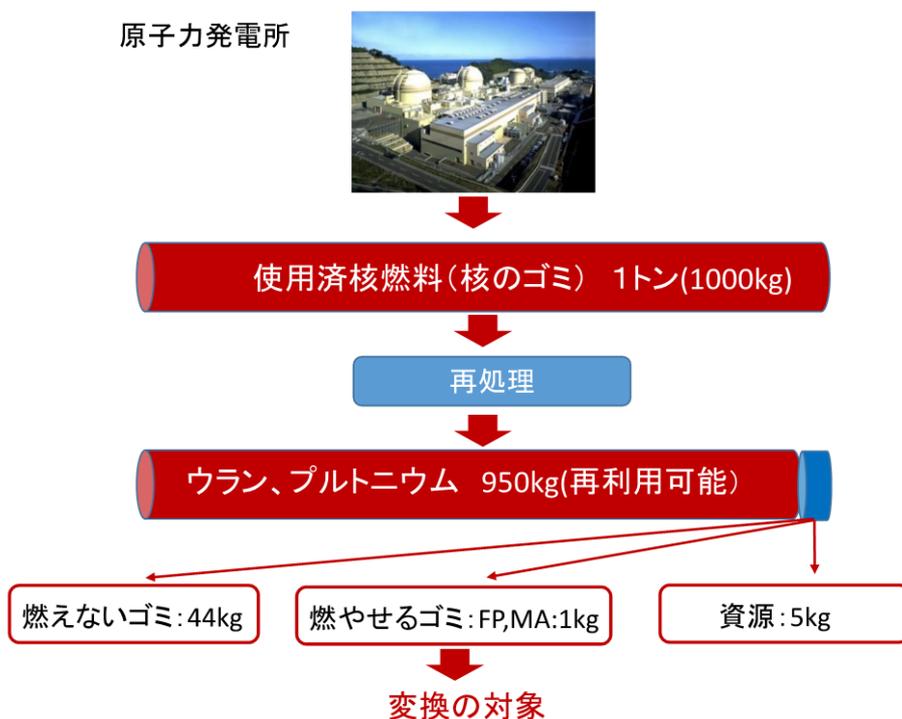
分離変換について（2）

- 核のゴミには化学的に異なる性質を持つ物質が含まれているので、最初にゴミの分別を行う。
- この過程を**分離**と言う。



- 燃やせるゴミを燃やして扱いの難しいゴミの量を減らす技術 → 変換技術

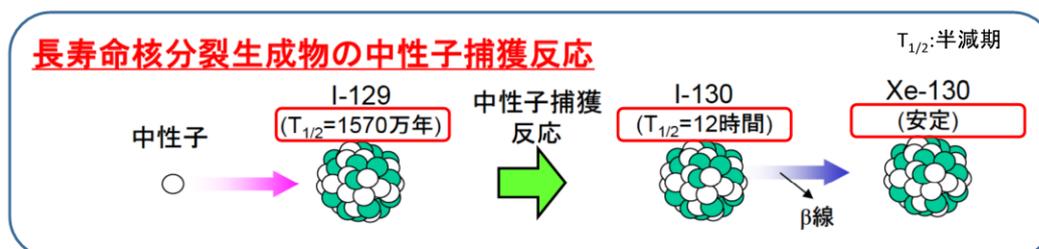
分離変換について（3）



6

分離変換について（４）

- ・ 長期間放射線を出し続ける燃やせるゴミは、原子炉や加速器を使った「中性子」を照射することで、半減期が短い、または放射線を出さない物質に変換することができる（ゴミを燃やす）。



- ・ 中性子を照射する方法として原子炉（現在使用されている熱中性子炉ではなく高速炉）を使う方法と、加速器を使う方法がある。
- ・ 物質としての量（ゴミの量）は変わらないが、放射線を出す力（放射能）と持続時間（半減期）を格段に低減できる。

7

分離変換に期待される効用

- ・ 放射性廃棄物処分の技術的困難を大幅に減らすことができる。
 - ・ 高い放射能を持つ物質を減らすことができる。
 - ・ 長い半減期を持つ物質を減らすことができる。
 - ・ 批判論の大きな拠り所である「10万年、100万年先までの安全性を保障することなどできるわけがない」への効果的な反論が可能になる。
 - ・ 地層処分場の面積も100分の1にできる可能性

< 廃棄物の危険性がなくなるまでの時間の比較 >

- ・ ゴミの弁別をしない場合 → 約10万年
- ・ ゴミの分別だけを行う場合 → 数千年
- ・ 弁別して燃やせるゴミを燃やした場合 → 数百年

8

分離変換技術の開発上の課題

- そもそも、実効性のある分離技術、核変換技術が開発できるか疑問。
- 分別した後の燃やせるゴミを「どのようにして燃やすか」が課題。
 - 原子炉の中に入れて「燃やす」必要があるが、別の物質になっても安定で短寿命でなければならない。
 - 原子炉で燃やすために原子炉の性能が落ちる。
- 燃やすための原子炉として予定していた「高速増殖炉もんじゅ」が廃炉となり使えない状況
- 分離変換処理は新たなコストとなり処分費用が増大する。
- まだ技術的に未確立な部分が多く、実現に向けては不確実性が大きい。そんな技術の開発に膨大な国費を投入することは誤り。

9

分離変換技術の研究開発状況（1）

高速炉を用い、6つの長寿命核分裂生成物（LLFP:セレン-79,ジルコニウム-93,テクネチウム-99,パラジウム-107,ヨウ素-129,セシウム-135）を短寿命（または安定）に効率的に変換するシステムを構築する。そのために、反応の基礎データ、変換特性、熱特性、集合体設計、LLFP材料特性、LLFP製造、LLFP回収技術、照射試験計画、社会的の意義等、総合的な検討を行っている。

2016年度から2019年度末まで、東工大、東北大、東京都市大学、日本原子力研究開発機構の共同研究で実施

10

分離変換技術の研究開発状況（2）

成果：高速炉による6核種の変換特性

LLFP	物理的半減期	実効半減期 (年)	サポートレシオ
セレン-79	29万5千年	16.8	78.4
ジルコニウム-93	150万年	39.8	4.8
テクネチウム-99	21万3千年	32.5	2.8
パラジウム-107	650万年	28.4	4.2
ヨウ素-129	1570万年	213	3.2
セシウム-135	230万年	518	1.6

実効半減期: 装荷LLFPが核変換により半分となるまでの期間

サポートレシオ: 変換LLFP / 生成LLFP

11

LLFP	物理的半減期	実効半減期 (年)	サポートレシオ
セレン-79	29万5千年	6.3	28.2
テクネチウム-99	21万3千年	8.4	4.3
パラジウム-107	650万年	8.3	1.8
ヨウ素-129	1570万年	8.9	1.5

実効半減期: 装荷LLFPが核変換により半分となるまでの期間

サポートレシオ: 変換LLFP / 生成LLFP

2020年1月14日、4機関でプレス発表

12

3.12 研究推進

3.12.1 プロジェクトの総合推進【H28-R1】

本プロジェクト全体を適切に遂行するために、再委託者との連絡を緊密に取り、さらに定期的な会合を開催することで進捗状況を把握し事業を滞りなく進めるための調整を実施した。プロジェクトの成果については随時電子メールで情報共有を行い、問題点や課題、進捗状況を共有、議論した。

平成28年度には2016年10月17日/2016年12月19日/2017年3月3日の日程で合計3回の会合を開催した。平成29年度には2017年5月9日/2017年7月5日/2017年9月8日/2017年10月30日/2017年11月10日/2017年11月27日/2017年12月25日/2018年1月12日/2018年1月26日/2018年3月15日の日程で合計10回の会合を開催した。平成30年度には2018年5月10日/2018年6月8日/2018年7月30日/2018年8月30日/2018年10月5日/2018年11月9日/2018年12月25日/2019年1月29日/2019年3月4日の日程で合計9回の会合を開催した。

令和元年度は以下の日程で全8回にわたり、再委託先を含めた全体会合を実施した。

● 第1回全体会合：

日時：2019年4月26日(金) 13:30 - 17:10

場所：東京工業大学先端原子力研究所北1号館1階会議室

参加者：若林（東北大）、田原（東京都市大）、舘（JAEA）、
千葉、吉田、山野、望月、石塚、稲倉、椿原（東工大）

オブザーバー：坪井（東芝）、藤又、藤村、湊田（日立GE）

- 議題：
1. 全体概況の共有
 2. 今年度各機関の達成目標確認および契約状況の確認
 3. 各機関における進捗報告・今年度計画報告
 4. 最終年度としての今年度の進め方について
 5. 次回会合の開催日時および議題の確認

● 第2回全体会合：

日時：2019年6月24日(月) 13:00 - 17:15

場所：東京工業大学先端原子力研究所北1号館1階会議室

参加者：若林（東北大）、田原（東京都市大）、舘（JAEA）、
千葉、山野、望月、石塚、稲倉、椿原（東工大）

オブザーバー：坪井（東芝）、藤村、湊田（日立GE）

- 議題：
1. 全体概況の共有
 2. 各機関における進捗状況
 3. LLFP サイクルおよび核変換炉心の設計についての議論
 4. 次回会合の開催日時および議題の確認

● 第3回全体会合：

日時：2019年7月30日(月) 13:30 - 16:45

場所：東京工業大学先端原子力研究所北1号館1階会議室

参加者：若林（東北大）、高木、田原（東京都市大）、

千葉、山野、吉田、望月、稲倉、椿原（東工大）

オブザーバー：坪井（東芝）、藤村、藤又、湊田（日立GE）、朝野（RWMC）

- 議題：
1. 全体概況の共有
 2. H30年度業務計画書・委託業務完了届・成果報告書の整合性確認
 3. 各機関における進捗状況
 4. 次回会合の開催日時および議題の確認

● 第4回全体会合：

日時：2019年8月29日（木）13:30 - 17:25

場所：東京工業大学先端原子力研究所北2号館5階523講義室

参加者：若林（東北大）、高木、田原（東京都市大）、

千葉、山野、吉田、望月、稲倉（東工大）

オブザーバー：坪井（東芝）、藤又、湊田（日立GE）、朝野（RWMC）

- 議題：
1. 議題全体概況の共有
 2. 各機関の進捗報告
 3. LLFPターゲット装荷炉心の核特性解析の今年度指針についての議論
 4. 地層処分の観点からのLLFP核変換についての検討
 5. 次回会合の開催日時および議題の確認

● 第5回全体会合：

日時：2019年10月10日（木）10:00 - 13:00

場所：東京工業大学大岡山北2号館5階523講義室

参加者：若林（東北大）、高木、田原（東京都市大）、

千葉、望月、石塚、稲倉（東工大）

オブザーバー：坪井（東芝）、藤又、藤村、湊田（日立GE）

- 議題：
1. 全体概況の共有
 2. 各機関の進捗報告
 3. 常陽での照射試験についての議論
 4. P0フォローに向けての準備
 5. 春の原子力学会でのシリーズ講演に関する議論

● 第6回全体会合：

日時：2019年12月6日（金）13:30 - 17:00

場所：東京工業大学先端原子力研究所北1号館1階会議室

参加者：若林（東北大）、高木、田原（東京都市大）、館（JAEA）、

千葉、望月、山野、吉田、石塚、稲倉（東工大）

オブザーバー：坪井（東芝）、藤又、藤村、湊田（日立GE）、朝野（RWMC）

- 議題： 1. 全体概況の共有
2. 令和元年度 P0 フォローについての報告
3. 春の原子力学会シリーズ発表での内容確認
4. 各機関の進捗報告
5. 今後の方向性についての議論
6. 次回会合の開催日時および議題の確認

● 第7回全体会合：

日時：2019年1月20日（月） 13:30 - 17:30

場所：東京工業大学先端原子力研究所北1号館1階会議室

参加者：若林（東北大）、高木、田原（東京都市大）、舘（JAEA）、
千葉、吉田、山野、石塚、稲倉（東工大）

オブザーバー：坪井（東芝）、藤又、藤村、湊田（日立GE）、大木（JAEA）、朝野（RWMC）

- 議題： 1. 全体概況の共有
2. 投稿論文、特許、プレスリリースについての報告
3. 高速炉開発の状況についての解説
4. 各機関の進捗報告
5. 成果報告書原案についての議論
6. 次回会合の開催日時および議題の確認

● 第8回全体会合：

日時：2020年2月25日（火） 13:30 - 17:10

場所：東京都市大学世田谷キャンパス 3号館4階メモリアルホールB

参加者：若林（東北大）、高木、田原（東京都市大）、舘（JAEA）、
千葉、吉田、山野、稲倉、（東工大）

オブザーバー：坪井（東芝）、藤又、藤村、湊田（日立GE）

- 議題： 1. 全体概況の共有
2. 各機関の進捗報告
3. 各機関の達成度確認
4. 成果報告書のまとめ方についての議論

3.12-2 全体まとめ【H28-R1】

平成 28 年度から平成 30 年度においては、各年度の成果のまとめを行い、成果報告書のとりまとめを行った。最終年度は令和元年度における成果のまとめを行い、次期計画策定への反映と最終年度報告書の作成と取りまとめを行った。

4. 結言

研究課題「高速炉を活用したLLFP核変換システムの研究開発」に関して、4ヶ年計画の最終年である令和元年度の主要な成果を以下にまとめる。

(1) LLFP 中性子核データの評価検討

LLFP 核種断面積の共分散ファイルの作成および核変換率の誤差推定を行った。LLFP の 6 核種 ^{129}I 、 ^{99}Tc 、 ^{79}Se 、 ^{107}Pd 、 ^{135}Cs 、 ^{93}Zr の共分散ファイルを作成し、本業務で構築した Total Monte Carlo 法を用いて3つの炉心を組み合わせた6核種核変換システムにおける中性子断面積誤差に起因する核変換率の誤差を求め、サポートファクター(SF)の誤差を推定した。ノミナル値としてはすべての核種で当初想定していたシステム全体として $\text{SF} > 1$ を達成できているものの、 ^{93}Zr 、 ^{107}Pd と ^{135}Cs については1標準偏差以内で1以下となる可能性、 ^{79}Se 、 ^{99}Tc 、 ^{129}I については2標準偏差以内で1以下となる可能性があることが分かった。また、全く実験データの存在しない ^{79}Se の SF の誤差が 40%にも達することが分かった。従ってこのような核変換システムを構成する場合、核データの誤差を定量的に評価することと核データの精度をさらに高めることが必要性であることが分かった。

(2) 高速炉での核変換ターゲット集合体の配置、交換法（再委託先：東北大学）

①配置、交換法の検討

LLFP 核種のターゲット集合体（減速材含む）を、高速炉のブランケット領域および遮蔽体領域に装荷する場合の配置、交換法を検討し、炉心核特性解析を実施し、核変換特性、サポートファクター等との関係を明らかにした。これにより、優れた核変換特性を持つ核変換ターゲット集合体の配置、交換法をまとめた。

LLFP の元素分離での再処理の適合性の点で I、Tc、Se、Pd を別に扱うことを考えて3つの炉心を組み合わせた6核種核変換システムを検討した。6核種全て $\text{SF} > 3$ （システム全体として $\text{SF} > 1$ ）となるシステムを構築でき、且つ ^{129}I 、 ^{99}Tc 、 ^{79}Se 、 ^{107}Pd は 3%程度の高い核変換率とすることができた。

6核種の3基炉心から ^{135}Cs と ^{93}Zr を除く4核種とすると $\text{SF} > 3$ で且つ増殖比1を確保する持続性のある高速炉核変換システムを構築することができた。

I と Se は地層処分での被ばくの支配核種であることを鑑み、Pd を除く I、Tc、Se の3核種に対し1炉心で3核種それぞれ $\text{SF} > 3$ となる炉心を設定した。本炉心にブランケット有炉心と組み合わせ2基組で増殖比を1程度、あるいはブランケット有炉心2基と組み合わせLLFPを減量しつつ増殖比を1以上とできる持続性のある高速炉核変換システムを構築できた。

本研究で構築された炉心システム概念を将来の社会情勢に応じて適宜取捨選択することでLLFPを系外に放出しない高速炉システムを構築でき、原子力が広く社会から受容されうるエネルギー源として選択される可能性を拓くことができた。また、SFに余裕のある場合には軽水炉サイクルで発生したLLFPを高速炉システムで変換することも可能となるため、軽水炉の負の遺産を解消する役割を高速炉が果たせることを示すことができた。

(3) LLFP ターゲットを含む炉心特性

①炉心特性（再委託先：東京都市大学）

LLFP 核変換の最適化炉心について炉心特性解析評価を行った。

LLFP6核種の核変換を目的とする3種類の炉心A、B、Cの炉心特性を評価した。その結果、燃焼

反応度と最大線出力は炉心 B が最も高くなったため、代表として炉心 B を対象に炉停止余裕と出力分布、出力ピーキングの評価を行った。炉心 B はもんじゅ炉心と同等の炉停止余裕を有することを確認したが、ブランケットが削除されたため最大線出力は制限値 360 W/cm を超過した。このため、燃料溶融を防止する観点から対策をまとめ、実施が現実的と考えられる燃料ペレットの高密度化と中空化の効果について検討した。その結果、中空径 1 mm、燃料ペレットの製造密度を 90%TD とすることで過出力状態を考慮しても燃料溶融を防止できる見込みが得られた。

②熱特性

LLFP 核変換炉体系における冷却材流量配分を決定し LLFP ターゲットの熱的健全性を評価した。

LLFP 集合体の配置が適切になったことによって、炉心入口流動抵抗を変更することなくブランケットを LLFP 集合体で置き換えて照射しても駆動炉心の健全性には問題を生じないことが明確になった。一方、第 9 リングに装荷される $\text{YH}_2\text{-BaI}_2$ のピンは、ペレット中心温度がギャップ部のガス組成に左右される。初期に 2MPa で封入した He (100 モル%) が、照射で発生した Xe ガスで薄まって約 20% に減少するまでは温度制限値以内で照射できる。このペレットに最大 1.8 mm の中心孔を設けた場合には、より大きな余裕をもって照射が行える結果になった。

③安全性 (再委託先：東京都市大学)

最適化炉心についてターゲット集合体ピンの破損を想定し安全性の評価を行った。また、ターゲットピンの破損検出方法概念を検討、提案した。

最適化炉心を対象に安全性に影響を与えると考えられる 3 項目 (LLFP ピン内のペレット移動によるサーマルスパイク、減速材による流路閉塞、炉心部への水素・重水素混入) について評価を実施した結果、いずれの事象も燃料ピンの出力は過出力係数 (116 %) 以下であり燃料ピンの健全性は維持されることを確認した。

また、もんじゅの破損燃料検出系と常陽に導入が検討されている RIMS (Resonance Ionization Mass Spectrometry: レーザー共鳴イオン化質量分析法) を調査し、LLFP ターゲットピンの破損検出方法について検討した。その結果、タグガスの充填範囲を LLFP ターゲット集合体まで拡張し、CG 法 FFD (Cover Gas, Failed Fuel Detection: カバーガス法破損燃料検出装置) とタギング法 FFDL (Failed Fuel Detection and, Location: 破損燃料位置検出装置) または RIMS の組み合わせを用いることにより、LLFP ターゲットピンの破損を検知できる見通しが得られた。

(4) 核変換ターゲット集合体の構造設計 (再委託先：東北大学)

①集合体設計

(2) で検討した結果を基にして、LLFP 核種のピン構成、集合体構造の最適化を行った。また、LLFP 核種を装荷したピンの温度評価、ピン圧力評価を行い、健全性を確認した。

それぞれの LLFP 元素をいれたペレットを装荷した集合体について、ブランケット燃料と同一とするが、複数の炉心を組み合わせた核変換システムで燃料集合体下部ブランケット部と Cs を装荷した集合体は Zr 装荷量を増やすために太径ピンに形状を調整した。また、Xe の発生による内圧の上昇、さらに発熱が大きい上にギャップコンダクタンスの低下による温度上昇が発生する BaI_2 ピンに対して温度、内圧、CDF (Cumulative Damage Function: 累積損傷関数) の評価を行った。その結果、初期 He 封入圧を大きくして Xe によるギャップコンダクタンス低下を緩和することで、3 年の燃焼では燃料温度は制限値以下にすることができた。また内圧は 3 年で $100\text{kg}/\text{cm}^2$ 以下であり、CDF も制限目安を十分下回ることから健全性を確認した。

(5) 大型高速炉での適用性評価（再委託先：東北大学）

①大型炉への適用解析

大型高速炉に対して、今まで検討してきた LLFP 変換手法を適用し、核特性、炉心特性、安全性を解析し、大型高速炉での適用性を評価した。

原型炉クラスの高速炉での評価に基づき、 $Tc + (BaI_2 + YH_2)$ の LLFP 集合体を装荷した炉心进行评估した。その結果、増殖比 > 1 、SF > 1 であることを確認した。

安全性にかかる反応度係数は、ボイド反応度、ドップラー係数とも LLFP を径ブランケット第 1 層に装荷しても殆ど影響がないことが確認でき、安全性は LLFP 集合体を装荷しない場合と同等であると考えられることが分った。

(6) 核変換ターゲット構造材料の物性（再委託先：原子力機構）

①強度特性への影響評価試験

SUS316 鋼と Tc を除く 5 種類の LLFP 候補化合物の共存性試験前後の状態において引張試験を実施し、LLFP 核変換ターゲットの候補形態が被覆管材料の強度特性に及ぼす影響を評価した。5 種類の LLFP 候補化合物のうち ZnSe、Zr、Pd と共存性試験を行った試験片には変色が認められたものの強度特性に大きな変化は無かった。また、 BaI_2 、 Cs_2CO_3 と共存性試験を行った試験片では、変色とともに試験片表面の変質が認められ、一様伸びや全伸びがやや低下したが、引張強度や 0.2%耐力には大きな低下は認められなかった。これらの結果から、各 LLFP 候補化合物が被覆管材料の強度特性に及ぼす影響は大きくないことが明らかとなった。

(7) 核変換ターゲットの製造（再委託先：原子力機構）

①模擬回収 LLFP 製造試験

ヨウ素およびセシウムについて、再処理工程を模擬したプロセスから回収しそれぞれを用いて核変換ターゲット用の候補化合物 (BaI_2 、 Cs_2CO_3) を製造した。各候補化合物の構造解析と不純物分析を行い、それら候補化合物の特性を明らかにした。また、重水素化合物を減速材とし非放射性的の LLFP 元素からなる模擬 LLFP ターゲットを試作し、製造性を明らかにした。試作する模擬 LLFP ターゲットは平成 30 年度までに検討した粉末混合焼結型と混合複合体型の 2 種類とした。

Ag 系吸着剤からの回収ヨウ素を用いた BaI_2 製造からは、主に Al、Si が不純物として随伴するとともに、ヨウ化水素製作過程が BaI_2 の製造上で重要なポイントになることが明らかになった。一方、模擬放射性廃液から抽出したセシウムを用いた Cs_2CO_3 製造では、主に Ba が不純物として随伴するが、これは Cs 抽出や Cs_2CO_3 合成に用いた試薬に由来するものと推測された。

また、粉末状と細孔付ペレット状のイットリウムを重水素化し、 BaI_2 および Cs_2CO_3 に対して混合粉末焼結型と混合複合型の LLFP ターゲットが製造可能であることを確認した。重水素化イットリウムと BaI_2 の混合粉末焼結ではそれぞれの粒径調節により従来困難であった混合比でも焼結できる見通しが得られた。これにより、いずれの型でのターゲットについても製造に見通しが得られた。

(8) LLFP 回収技術の検討（再委託先：原子力機構）

①再処理回収ロス率の評価

先行研究や文献の調査により 6 種の LLFP の再処理工程からの分離回収におけるロス率を評価した。一部、模擬元素を用いた溶媒抽出実験を実施し、ロス率を実験的に評価した。

また、LLFP サイクルに関するマテリアルフローを調査・検討し、再処理工程での分離回収、高速炉による核変換、その後のリサイクルにおけるマテリアルバランスを評価した。

6種のLLFPのうち、Tc、Pd、Csについては過去の群分離研究の成果から1~2%程度のロス率と推定された。Se、Zr、Iについては移行挙動や除去率、吸着率の研究成果等からロス率は1%程度と推測された。Tcを模擬したReとPdの模擬廃液からの溶媒抽出実験からは、それぞれのロス率は約30%および約10%と見積もられた。これらのロス率の改善のためには抽出条件の最適化や抽出方法の多段化が必要となることが明らかとなった。

LLFP サイクルにおけるマテリアルバランスとして、 ^{93}Zr 、 ^{99}Tc 、 ^{129}I および ^{135}Cs は一定期間の照射後のリサイクル処理により持続的なサイクルを維持できることが明らかとなった。一方、 ^{79}Se と ^{107}Pd は同位体が多く元素分離のリサイクル処理ができないが、一定期間炉内装荷することで最大90%近くまで変換できる見通しが得られた。

(9) 照射試験計画（再委託先：東京都市大学）

①照射試験計画の策定

核変換特性、集合体の健全性を確認するために高速炉を用いて核変換ターゲット集合体1体を照射する照射試験計画を策定した。

日本原子力研究開発機構の高速実験炉「常陽」を用いて、天然Csと減速材（ YH_2 または YD_2 ）からなるターゲット集合体1体を照射する核的検討を行うことにより、LLFP核変換の実証性を示すための照射集合体および照射場を構成することができた。その結果、照射により生成されるLLFP核種である ^{135}Cs を含むCs同位体およびそれらの中性子吸収と崩壊により生じるBa同位体の生成量を評価することができた。これらにより、照射後試験で同位体組成が測定されれば積分実験として核変換の実証性を定量的に示すことができる。

(10) 社会科学的意義（再委託先：東北大学）

①調査・分析・まとめ

LLFP核変換の社会的受容性に関する説明方法、理解度調査のまとめを行った。

原子力について理解のある女性オピニオンリーダー7名を対象として、説明会を開催し、コメントを受け、それを反映した説明方法をまとめた。

(11) 研究推進

①研究の総合推進

本業務全体を適切に遂行するために再委託者との連絡を緊密に取り、さらに定期的な会合を開催することで進捗状況を把握し業務を滞りなく進めた。また定期的な会合を開催し再委託先との連絡を緊密に取り、各機関における研究の進捗状況の把握および連携の効率化を図り、成果の出版[1-6]およびプレスリリース[7-10]、特許申請[11]を適宜実施し事業を滞りなく進めた。これらは業務期間の4年間における主要な成果である。

4件のプレスリリースのうち、高速炉技術を利用した核変換システムを利用した長寿命核分裂生成物に短寿命化に関するプレスリリース[7, 10]は特に大きな注目を集め、日本経済新聞をはじめとする国内外の多くのメディアで取り上げられた。その結果、衆・参議員会館内にて、政・財・官・学・民によるエネルギー・環境問題に関する国家的課題について検討する政策シンクタンク「時代を刷新する会」にて本研究内容について講演する機会にも恵まれた[11]。また本業

務で構築した核分裂収率ライブラリ[6]は、次期 JENDL に採用されることが決まっている。以上のように、本事業では多岐にわたり重要な成果をあげることができた。

②全体まとめ

平成 28 年度から令和元年度における成果のまとめを行い、報告書類の作成を行った。

本業務における研究活動を総括し、結論をまとめ成果報告書の作成を行った。未出版の成果については引き続き論文作成を行っていくこととした。

以上、4 ヶ年計画の最終年である本年度の業務項目全てを実施し、全ての項目について計画目標を達成した。

【参考文献】

- [1] S.Chiba, T.Wakabayashi, Y.Tachi, N.Takaki, A.Terashima, S.Okumura and T.Yoshida, “Method to Reduce Long-lived Fission Products by Nuclear Transmutations with Fast Spectrum Reactors”, Scientific Reports 7, 13961(2017).
- [2] M.D.Usang, F.A.Ivanyuk, C.Ishizuka and S.Chiba, “Correlated transitions in TKE and mass distributions of fission fragments described by 4-D Langevin equation”, Scientific Reports 9, 1525(2019).
- [3] T.Wakabayashi, M.Takahashi, S.Chiba, N.Takaki, Y.Tachi and Y.Tahara, “Core concept of simultaneous transmutation of six LLFP nuclides using a fast reactor”, Nucl. Eng. Design 352, 110208(2019).
- [4] T.Wakabayashi, Y.Tachi, M.Takahashi, S.Chiba and N.Takaki, “Study on method to achieve high transmutation of LLFP using fast reactor”, Scientific Reports 9, 19156(2019).
- [5] C.Ishizuka, X.Zhang, M.D.Usang, F.A. Ivanyuk and S.Chiba, “Effect of the doubly magic shell closures in ^{132}Sn and ^{208}Pb on the mass distributions of fission fragments of superheavy nuclei”, Phys. Rev. C 101, 011601(R), Rapid Communication.
- [6] K.Tsubakihara, S.Okumura, C.Ishizuka, T.Yoshida, F.Minato and S.Chiba, “Systematic Evaluation of Independent Yields Based on Nuclear Shell Correction and Boltzmann Weight” (to be submitted to J.N.S.T.)
- [7] 東工大プレスリリース『長寿命核分裂生成物を飛躍的に短寿命化する高速炉技術を利用した核変換システムを提案』、<https://www.titech.ac.jp/news/2017/039840.html>
- [8] 東工大プレスリリース『核分裂生成物の二つの転移機構を同時に説明可能な理論構築』、<https://www.titech.ac.jp/news/2019/043509.html>
- [9] 東工大プレスリリース『長寿命核分裂生成物の半減時間を 9 年以下に短縮』、<https://www.titech.ac.jp/news/2020/046068.html>
- [10] 東工大プレスリリース『超重原子核の新たな核分裂機構を解明』、<https://www.titech.ac.jp/news/2020/046173.html>
- [11] 高木直行、『原子炉での核変換を応用した核廃棄物処理および希少元素製造技術』、政策シンクタンク「時代を刷新する会、環境技術 環境技術委員会 委員会、2018/6/14, 衆議院

第二議員会館第8会議室)

[12] 特許申請 (東京都市大学) (2020年3月17日、特願2020-046979)