

平成 28 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

加速器駆動未臨界システムによる
核変換サイクルの工学的課題解決に向けた
研究開発

成果報告書

平成 30 年 3 月

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

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、国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構が実施した平成 25-28 年度「加速器駆動未臨界システムによる核変換サイクルの工学的課題解決に向けた研究開発」の成果を取りまとめたものです。

目次

概略	vi
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	2. 1-1
2.1 全体計画	2. 1-1
2.1.1 ADS 用 MA 分離回収技術の開発	2. 1-1
2.1.2 加速器駆動未臨界システムの開発	2. 1-1
3. 実施内容および成果	3. 1. 1-1
3.1 ADS 用 MA 分離回収技術の開発 (H25~H28)	3. 1. 1-1
3.1.1 MA・Ln 回収プロセスの開発 (H25~H27)	3. 1. 1-1
3.1.2 MA/Ln 分離技術の開発 (H25~H27)	3. 1. 2-1
3.1.3 ADS 用 MA 試料の分離回収 (H26~H28)	3. 1. 3-1
3.2 加速器駆動未臨界システムの開発	3. 2. 1-1
3.2.1 FFAg-KUCA を用いた ADS 模擬炉物理実験 (再委託先: 京都大学)	3. 2. 1-1
3.2.2 工学的成立性の高い ADS プラント技術開発 (H25-H28)	3. 2. 2-1
(1) 信頼性を向上した ADS 用加速器の開発 (H25~H28)	3. 2. 2-1
(2) 未臨界度調整機構の概念設計 (H25-H27)	3. 2. 2-12
(3) 受動的崩壊熱除去システムの概念設計 (H25-H28)	3. 2. 2-15
(4) ADS プラントの概念設計 (H26-H28)	3. 2. 2-18
3.2.3 加速器駆動未臨界システムの開発まとめ	3. 2. 3-1
3.3 研究推進	3. 3-1
4. 結言	4. 1-1
4.1 本研究で得られた成果	4. 1-1
4.2 今後の課題	4. 2-1

表一覽

表 2. 1-1	本研究計画の年度展開	2. 1-3
表 3. 1. 1-1	フローシート試験のフィード液組成	3. 1. 1-2
表 3. 1. 1-2	MA および希土類元素の各フラクションへの移行率とマスバランス	3. 1. 1-2
表 3. 1. 1-3	沈殿の成分分析結果	3. 1. 1-4
表 3. 1. 1-4	沈殿抑制方法の検討に用いた模擬廃液の組成	3. 1. 1-5
表 3. 1. 1-5	移行率およびマスバランス	3. 1. 1-7
表 3. 1. 1-6	ホットセル内フローシート試験条件	3. 1. 1-7
表 3. 1. 2-1	模擬廃液組成	3. 1. 2-5
表 3. 1. 2-2	移行率およびマスバランス	3. 1. 2-5
表 3. 1. 3-1	セル内実高レベル廃液（再処理ラフィネート）組成	3. 1. 3-3
表 3. 1. 3-2	MA・Ln 回収プロセス実廃液試験（MA および Ln(III)の移行率およびマスバランス）	3. 1. 3-4
表 3. 1. 3-3	MA・Ln 回収プロセス実廃液試験（その他 FP の移行率およびマスバランス）	3. 1. 3-4
表 3. 1. 3-4	MA/Ln 分離プロセス実廃液試験（MA および Ln(III)の移行率）	3. 1. 3-4
表 3. 2. 1-1	Al 炉心（Reference 炉心）の余剰反応度における実験と計算の比較	3. 2. 1-11
表 3. 2. 1-2	置換反応度（Al 板から Pb 板への置換）における実験と計算の比較	3. 2. 1-11
表 3. 2. 1-3	置換反応度（Al 板から Bi 板への置換）における実験と計算の比較	3. 2. 1-11
表 3. 2. 1-4	JENDL-4.0 の共分散（107 群）に起因する Pb 置換反応度の不確かさ	3. 2. 1-11
表 3. 2. 1-5	JENDL-4.0 の共分散（107 群）に起因する Bi 置換反応度の不確かさ	3. 2. 1-12
表 3. 2. 1-6	Case I~IV における k_s の実験値および計算値 (MCNP6.1) の比較	3. 2. 1-12
表 3. 2. 1-7	Case I~IV における放射化反応率の実験値と計算値の比較 (C/E 値)	3. 2. 1-12
表 3. 2. 1-8	Case I~IV における In 比の実験値と計算値の比較	3. 2. 1-13
表 3. 2. 1-9	核破砕中性子源を用いたパルス中性子法で得られた即発中性子減衰定数 α	3. 2. 1-13
表 3. 2. 1-10	面積比法および外挿面積比法によるドル単位の未臨界度 ρ_s	3. 2. 1-14
表 3. 2. 1-11	核破砕中性子による $^{209}\text{Bi} (n, xn) ^{210-x}\text{Bi}$ 反応 ($x = 4$ to 8) および 100 MeV 陽子による $^{27}\text{Al} (p, n+3p) ^{24}\text{Na}$ 反応の反応率 (実験値)	3. 2. 1-15
表 3. 2. 1-12	核破砕中性子による $^{115}\text{In} (n, n') ^{115m}\text{In}$ 反応および 100 MeV 陽子による $^{27}\text{Al} (p, n+3p) ^{24}\text{Na}$ 反応の反応率 (実験値)	3. 2. 1-15
表 3. 2. 2-1	二種類の並列化方法における長所および短所のまとめ	3. 2. 2-6
表 3. 2. 2-2	二種類の並列化方法の比較	3. 2. 2-7
表 3. 2. 2-3	各エネルギー領域における超伝導空洞の種類	3. 2. 2-7
表 3. 2. 2-4	平成 16 年度に評価した ADS 用加速器の運転電力 [3. 2. 2(1)-1]	3. 2. 2-7
表 3. 2. 2-5	平成 28 年度に評価した ADS 用加速器の運転電力	3. 2. 2-8
表 3. 2. 2-6	SAR 導入炉心の主要な結果	3. 2. 2-14

表 3.2.2-7	4.7MWt PRACS 型 DHX のサイジング結果.....	3.2.2-16
表 3.2.2-8	ビーム窓検討におけるケース設定	3.2.2-20
表 3.2.2-9	各ケースの座屈圧力（単位：Pa）	3.2.2-20
表 3.2.2-10	ADS プラントの基本設計仕様.....	3.2.2-21

図一覧

図 1-1	ADS 階層型の MA 核変換システムの概念図	1-2
図 3.1.1-1	フローシート試験条件 (実績値)	3.1.1-3
図 3.1.1-2	フローシート試験の状況	3.1.1-3
図 3.1.1-3	第 1 および第 2 ミキサセトラにおける各元素の濃度分布	3.1.1-3
図 3.1.1-4	平成 25 年度ミキサセトラ試験で生成した沈殿	3.1.1-5
図 3.1.1-5	遠心分離後の沈殿	3.1.1-5
図 3.1.1-6	<i>N,N</i> -ジドデシルアミンを用いた沈殿生成、および 2-エチル-1-ヘキサノール添加後の写真	3.1.1-5
図 3.1.1-7	Am(III)、および Ln(III) の分配比と HNO ₃ 濃度との関係	3.1.1-8
図 3.1.1-8	MA トレーサーによるフローシート試験条件	3.1.1-8
図 3.1.1-9	第 1 および第 2 MS における MA および Ln(III) の濃度分布	3.1.1-9
図 3.1.1-10	第 1 および第 2 MS における FP の濃度分布	3.1.1-9
図 3.1.1-11	H ₂ O ₂ 無添加系フローシート試験条件	3.1.1-10
図 3.1.1-12	H ₂ O ₂ 無添加系での第 1 MS における Ln(III) の濃度分布	3.1.1-10
図 3.1.1-13	H ₂ O ₂ 無添加系での第 1 MS における FP の濃度分布	3.1.1-10
図 3.1.2-1	MA/Ln 分離プロセス用候補抽出剤	3.1.2-3
図 3.1.2-2	HONTA による Am(III), Ln(III) および Y(III) の分配比と硝酸濃度の関係	3.1.2-3
図 3.1.2-3	HONTA を用いたフローシート試験条件	3.1.2-6
図 3.1.2-4	第 1 MS における Ln(III) の濃度分布	3.1.2-6
図 3.1.2-5	第 1 MS および第 2 MS における MA の濃度分布	3.1.2-7
図 3.1.3-1	ホットセル内に設置したミキサセトラ	3.1.3-4
図 3.1.3-2	MA・Ln 回収プロセス実廃液試験フローシート試験条件	3.1.3-5
図 3.1.3-3	MA/Ln 分離プロセス実廃液試験フローシート試験条件	3.1.3-6
図 3.2.1-1	KUCA-A 架台における置換反応度実験の体系の平面図	3.2.1-16
図 3.2.1-2	Al から Bi への置換パターン	3.2.1-16
図 3.2.1-3	KUCA-A 架台における反応率実験の体系の平面図 (U-Pb/Bi 炉心)	3.2.1-17
図 3.2.1-4	Case I における (14-13, P-A) 領域における ¹¹⁵ In(<i>n, γ</i>) ^{116m} In 反応率分布の実験値と計算値の比較	3.2.1-17
図 3.2.1-5	Case I~IV における放射化反応率の実験値と計算値の比較 (C/E 値)	3.2.1-18
図 3.2.1-6	Case I における In 比の実験値と計算値の比較	3.2.1-18
図 3.2.1-7	KUCA-A 架台における動特性実験の体系の平面図 (U-Pb 炉心)	3.2.1-19
図 3.2.1-8	核破碎中性子源による照射	3.2.1-20
図 3.2.1-9	MA 箔照射実験に用いた臨界炉心	3.2.1-20
図 3.2.1-10	核破碎中性子源を用いた照射実験における BTB チェンバからの信号	3.2.1-21
図 3.2.1-11	臨界照射で得られた ²³⁷ Np の核分裂反応に伴う BTB チェンバからの波高分布	3.2.1-21

図 3.2.2-1	加速器全体を並列化した ADS 用加速器	3.2.2-8
図 3.2.2-2	未臨界炉上部における機器配置図（側面図）	3.2.2-9
図 3.2.2-3	陽子エネルギーに依存した超伝導空洞の形状。文献 3.3.2(1)-4 の p.13 のスライドより転載。	3.2.2-10
図 3.2.2-4	スポーク型共振空洞の構成図の例	3.2.2-10
図 3.2.2-5	ADS 用加速器 1 系統で発生するビームトリップ頻度の評価値	3.2.2-11
図 3.2.2-6	並列化した ADS 用加速器で発生するビームトリップ頻度の評価値	3.2.2-11
図 3.2.2-7	ADS3D システムの処理概念図（青は解析コード、その他はデータや処理を示す。）	3.2.2-14
図 3.2.2-8	SAR 炉心解析の各ケース	3.2.2-15
図 3.2.2-9	各ケースの燃焼期間中の実効増倍率（左）と陽子ビーム電流値（右）変化	3.2.2-15
図 3.2.2-10	ADS 崩壊熱除去系 系統計画図	3.2.2-17
図 3.2.2-11	PRACS 炉内熱交換器計画図	3.2.2-17
図 3.2.2-12	ADS ビーム窓の構造解析モデル（ID=1, 7, 8）	3.2.2-22
図 3.2.2-13	各ケースのミーゼス応力と設計応力値 S_m との比較	3.2.2-22
図 3.2.2-14	ADS プラント 原子炉構造周り全体鳥瞰図	3.2.2-23

概略

高レベル放射性廃棄物中のマイナーアクチノイド(MA)を分離・回収し、短寿命核種あるいは安定核種に変換する分離変換技術は、高レベル放射性廃棄物処理・処分の負担軽減に寄与し、国土の狭隘な我が国において種々の廃棄物処分方法の組み合わせで構成される廃棄物処分体系をより合理的なものにする技術として期待されている。分離変換技術を導入した MA リサイクルシステム概念として、発電用高速増殖炉サイクルを用いる方法と、発電用核燃料サイクルとは別に小規模の核変換専用サイクルを設けて、その中で加速器駆動核変換システム (ADS) を用いて MA の核変換を行う方法 (ADS 階層型) が考えられている。本研究開発では、ADS 階層型概念の各構成要素の研究開発段階を「基礎研究」から「準工学研究」へ移行するための工学的見通しを得るため、それぞれでボトルネックとなる重要課題に対する技術的見込みを得ることを目的に、ADS 用 MA 分離回収技術の開発、加速器駆動未臨界システムの開発を実施した。

以下にそれぞれの研究項目に対する研究目的、実施内容、主な成果を示す。なお、京都大学臨界集合体を用いた ADS 模擬炉物理実験の一部の実施項目に関しては、平成 29 年度に繰り延べて実施した。

(1) ADS 用 MA 分離回収技術の開発

① MA・Ln 回収プロセスの開発

TDdDGA (テトラドデシルジグリコールアミド) を抽出剤とした MA・Ln (ランタノイド) 回収プロセスについて、再処理ラフィネートからの MA・Ln 回収プロセスを開発することを目的に、MA トレーサーを含む模擬廃液によるフローシート試験を実施し、実廃液試験でのプロセス条件を確定した。

抽出時に生じる沈殿の発生を抑制する効果のある有機相へのオクタノール添加条件において、プロセスの特性を把握し実廃液試験でのプロセス条件を確定した。オクタノールを添加した有機相では、ジルコニウムの抽出の抑制とネプツニウムの価数調整のためフィード液に添加していた化学的に不安定な過酸化水素が不要となることを示し、分離プロセス構築により適していることを明らかにした。

② MA/Ln 分離技術の開発

MA/Ln 分離プロセスについては、複数の候補抽出剤に対するバッチ試験の結果から最適な抽出剤を選択し、選択した抽出剤を使用した MA トレーサーを含む模擬廃液によるフローシート試験を実施して MA の分離性能を確認し、実廃液試験でのプロセス条件を確定した。

新規抽出剤を含む複数の抽出剤に対するバッチ試験の結果に基づき、MA/Ln 分離プロセスに使用する抽出剤として HONTA (ヘキサオクチルニトリロ三酢酸トリアミド) を選択した。HONTA を使用した MA/Ln 分離プロセスについて、トレーサーを添加した模擬溶液による連続抽出試験を実施し、基礎データから予測される分離性能を確認し、実廃液試験のプロセス条件を決定した。

③ ADS 用 MA 試料の分離回収

セル内に保管されている再処理ラフィネート溶液実液をフィード液として、MA・Ln 回収プロセスおよび MA/Ln 相互分離プロセスの実液試験を実施した。

上記①および②において確定したプロセス条件により、日本原子力研究開発機構原子力科学研究所内の NUCEF 施設内に設置された α γ セルにおいて MA・Ln 回収プロセスおよび MA/Ln 相互分離プロセスの実液試験を実施した。実液試験の結果、MA が良好に回収されたことを確認した。

(2) 加速器駆動未臨界システムの開発

① FFAG-KUCA を用いた ADS 模擬炉物理実験（再委託先：京都大学）

ADS の核特性予測精度の向上を目的として、核破碎ターゲットと未臨界炉心を組み合わせた ADS 模擬実験が可能な京都大学臨界集合体(KUCA)において、ADS の核特性解析値の不確かさの主要因である、Pb、Bi、 ^{237}Np 、 ^{241}Am の核データ検証用積分実験を実施した。また、FFAG (Fixed-Field Alternating Gradient) 加速器と未臨界炉心を組み合わせた ADS 模擬実験によって、ADS の動特性パラメータの測定を行った。

Pb および Bi については、Pb と Bi をそれぞれアルミ板に置換した際の反応度変化を測定した。実験値と解析値の比較を行うとともに、感度解析と JENDL-4.0 (Japanese Evaluated Nuclear Data Library) の共分散データを使用した核データ起因する不確かさ解析を実施して、Pb および Bi 同位体に起因する不確かさの全体に占める割合は比較的大きく、この不確かさは主に非弾性散乱に起因するものであることを確認した。 ^{237}Np および ^{241}Am については、核分裂計数管を使用してそれぞれの核分裂反応率を ^{235}U の核分裂反応率との比として測定した。 ^{237}Np については、捕獲反応率の測定にも成功した。これらにより、ADS 炉心中での核変換の挙動が把握できる有益な基礎データが取得できたと考えられる。

動特性パラメータの測定において、外部中性子源が存在するときに中性子世代 A が著しく増加する可能性を示唆し、固有値計算で得られたものよりも大きくなることがわかった。したがって、実機 ADS の動特性解析ならびに未臨界度測定に用いる動特性パラメータでは、外部中性子源を考慮したものが必要であると結論付けることができ、ADS の実現に向けて重要な知見を得ることができた。また、4 つの異なる未臨界体系で反応率測定実験を行い、MCNP6.1 (Monte Carlo N-Particle transport code) を用いた計算値との比較を行い、炉心内に設置した放射化箔の反応率は、未臨界度が大きくなるほど、全ての放射化箔の反応率の C/E 値は大きくなる傾向が見られた。また、スペクトルの疑似的な指標として In 比を新たに定義し、In 比が ADS のスペクトルに関する重要な指標になるとともに、 $^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116\text{m}}\text{In}$ 反応率は実験とよく一致し、計算精度には高い信頼性が確保されていることを確認した。

② 工学的成立性の高い ADS プラント技術開発

1) 信頼性を向上した ADS 用加速器の開発

ビームトリップ頻度を低減させ、信頼性を向上させた ADS 用加速器の開発に資することを目的に、主要な加速器要素に冗長性を持たせる並列化と低エネルギー部を超伝導化する概念設計を実施した。

加速器の並列化方法については、低エネルギー加速領域の機器を並列化した場合と加速器全体を並列化した場合の二種類の並列化方法について、技術的な問題点を抽出した。その結果、現状の技術水準から判断して、低エネルギー加速領域の機器を並列化した場合には、一方が停止した場合の残り半分の高エネルギー領域での加速が極めて困難であるために、加速器全体を並列化す

る方策を選択した。

また、陽子ビームの安定性向上、短尺化を図るために加速エネルギー100MeV 以下の低エネルギー加速領域を超伝導化するための検討を行った。その結果、超伝導空洞としてスポーク型共振空洞を選択し、空洞内の電磁場とビームの連成計算、空洞の構造強度計算を行い、構造的に成立する空洞構造を構築した。これらの結果を総合して、並列化した ADS 用加速器の機器構成・配置、運転電力を取りまとめた。

2) 未臨界度調整機構の概念設計

ADS のビーム窓の運転条件を大幅に緩和することにより、より成立性の高いビーム窓設計を可能とすることを目的に、燃焼反応度を補償して炉心出力を一定に保つために必要な未臨界度調整機構の概念設計を行った。

まず、炉心内に非均質に配置する未臨界度調整機構を備えた炉心の核特性解析を行うために、原子力機構で ADS の炉心核特性解析に使用してきた汎用解析システム MARBLE を基に、未臨界度調整機構を集合体単位で解析するために必要な三次元核特性解析機能を備えた ADS3D コードシステムを整備した。次に、新たに整備した ADS3D を使用して、未臨界度調整機構に必要な反応度価値および炉心内配置を評価し、制御棒および可燃性毒物集合体の概念設計を行った。最後に、核特性評価に基づく未臨界度調整機構（制御棒および可燃性毒物集合体）の概念設計結果を基に、制御棒については、その駆動機構や格納容器上部構造などの概念設計を行った。また両概念について交換方法などの運用方法を検討した。

3) 受動的崩壊熱除去システムの概念設計

ADS は未臨界で運転するために、臨界炉に比べて炉心損傷に至る可能性は極めて低いが、発熱量の高い MA を燃料の主成分とするために、長期間の電源喪失事象時には約 1 日程度で炉心損傷に至る可能性がある。そこで、より安全性の高い ADS 概念を提示することを目的に、長期間の電源喪失を想定した場合にも燃料の崩壊熱を受動的に除去できる装置の概念検討を実施した。

まず、鉛ビスマス冷却 ADS の長時間の電源喪失事象等に対応したプラント動特性解析を実施するために、軽水炉のプラント動特性解析で実績のある Relap5/mod3.2 コードを基に、鉛ビスマスの物性値を基にコード内で使用するデータを整備し、鉛ビスマス冷却 ADS のプラント動特性解析が行えるようにコードを整備した。また、タンク型の構造を持つ ADS を対象として、1 次および 2 次冷却系、崩壊熱除去系等を含んだ解析モデルを作成した。次に、整備したプラント動特性解析コードを使用して除熱源喪失事象の解析を行い、崩壊熱除去系（DHRS）が作動することで適切に除熱が行われ、炉心損傷の可能性がきわめて低いことを示した。

これらの結果を基に、DHRS として、1 次主流路内に熱交換器（DHX）を設置した PRACS（Primary Reactor Auxiliary Cooling System）を対象に崩壊熱除去系の概念検討を実施した。

4) ADS プラントの概念設計

多重化した加速器概念、未臨界度調整機構、崩壊熱除去システムの検討結果を反映して、ADS プラント概念を取りまとめた。

多重化した加速器概念を基に、ビーム出力が 100%から 50%、50%から 0%に変化する場合に

ついて解析を行った。これらの解析結果と過去のビームトリップ頻度評価の結果を踏まえ、加速器 2 台概念のビームトリップ頻度を再評価した結果、加速器 2 台概念であれば許容トリップ頻度をほぼ満足することを示した。

未臨界度調整機構を備えた炉心の核特性評価結果から、未臨界度調整機構の導入によって加速器のピーク電流値が低減される見通しが得られたため、新たな設計条件に対応したビーム窓の概念設計および構造成立性評価を行った。また、崩壊熱除去システムとして、熱交換器を SG 入口部に設置することとし、崩壊熱除去系を含めたプラント概念を取りまとめた。

これらの成果により、従来設計よりも、より安全性・信頼性の優れた ADS プラント概念を提示した。

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物中に含まれる長寿命核種であるマイナーアクチノイド(Minor Actinide: MA)を分離・回収し、短寿命核種あるいは安定核種に変換する分離変換技術は、高レベル放射性廃棄物処理・処分の負担軽減に寄与し、国土の狭隘な我が国において種々の廃棄物処分方法の組み合わせで構成される廃棄物処分体系をより合理的なものにする技術として期待されている。分離変換技術を導入した MA リサイクルシステム概念として、発電用高速増殖炉サイクルを用いる方法と、発電用核燃料サイクルとは別に小規模の核変換専用サイクルを設けて、その中で加速器駆動核変換システム (Accelerator-Driven System: ADS) を用いて MA の核変換を行う方法 (ADS 階層型) が考えられている。図 1-1 に ADS 階層型の MA 核変換システムの概念図を示す。

ADS 階層型概念は、発電用核燃料サイクルと核変換システムを切り離すことで、発電用核燃料サイクルの状況から独立して着実に高レベル放射性廃棄物処分に貢献できることが大きな特徴となる。また、ADS は臨界原子炉に比べて燃料組成に対する許容範囲が広いことや安全性が高いこと、MA を核変換専用サイクルで扱うことで導入時期や規模に柔軟性が高く、その結果、発電サイクルと核変換サイクルをそれぞれ最適化できる等のメリットがある。このために、軽水炉全盛期、高速炉への移行期、高速炉全盛期、原子力利用の終末期等の様々に想定される原子力利用局面において、柔軟に対応できることが期待できる。特に、福島第一原子力発電所の事故を受けて我が国における将来の原子力の動向が不確実性を増す中で、どのような選択肢においても着実に進めなければならない高レベル放射性廃棄物の処理処分の負担軽減を、発電用核燃料サイクルから独立して進めることのできる可能性を保持しておくことは極めて重要である。

このように ADS 階層型概念は、核変換専用システムとして様々な利点を有する可能性があり、我が国では日本原子力研究開発機構（以下、原子力機構）を中心として ADS 階層型概念の研究開発を実施してきた。原子力機構が提案する ADS は、超伝導陽子加速器と高速中性子スペクトル未臨界炉心を組み合わせたタンク型システムで、炉心冷却材および核破砕ターゲットには熔融鉛ビスマス合金を、MA を大量に含む燃料には窒化物を使用する。これまで基礎的な研究開発を実施してきたが、実現には多くの技術課題がある。2009 年に行われた、原子力委員会研究開発専門部会・分離変換技術検討会によるチェックアンドレビュー (C&R) 報告書「分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方」では、ADS 階層型概念は、「フイージビリティ研究」、「基礎研究」、「準工学研究」、「工学研究」の 4 段階のうち、現在は「基礎研究」段階とし、ADS 階層型概念実現のために解決すべき以下の技術課題が具体的に挙げられ、「各課題に対する解あるいは解に対する技術的・経済的見込みを得る活動を着実に推進すべきである。」と指摘された。

- ① 未臨界炉心の制御等の炉物理的課題を高い信頼度で解決
- ② 安全性、信頼性、経済性の高い ADS 用加速器の実現
- ③ ビーム窓の工学的成立性の確証
- ④ 液体鉛ビスマス冷却炉の設計および安全性を高い信頼度で確証
- ⑤ 所定の燃料性能を達成する窒化物燃料の製造を高い信頼度で確証
- ⑥ 窒化物燃料の乾式再処理による燃料サイクルシステムの実用性の提示

また、C&R 報告書では、MA 分離プロセスに関しては、実験室規模での原理実証から工学的プロセ

ス実証に着手するまで解決すべき課題が少なくなく、実験室規模でのホット試験、工学規模でのコールド機器開発、模擬高レベル廃液による試験等による段階的な試験等によって知見を蓄積し、実施可能性を見極めた上で工学規模試験に移行すべきであると指摘された。

本研究開発では、C&R で具体的に指摘された技術的課題のそれぞれでボトルネックとなる重要課題を解決し、ADS 階層型概念を「基礎研究」から「準工学研究」へ移行するための工学的見通しを得ることを目的とする。

具体的には、MA 分離プロセスについては、「軽水炉使用済み燃料実廃液からの MA 回収」を目指し、新たに開発した TDdDGA（テトラドデシルジグリコールアミド）抽出剤およびソフトドナー系抽出剤による分離プロセスを用いて実液による MA 分離回収試験を実施する。これによって、100mg 程度の MA 試料の回収を行い、提案する MA 分離プロセスが実用的な水準を満たすことを示す。

また、ADS に関しては C&R で指摘された①～④の課題のうち、比較的長期間の研究が必要なビーム窓材料等の照射試験を除いた研究開発を実施する。課題①に対しては、ADS 模擬実験が可能な京都大学(以下、京大)臨界実験装置(Kyoto University Critical Assembly: KUCA)において、鉛ビスマス冷却を想定した炉物理実験を実施し、ADS の炉物理特性に関する知見を得るとともに、得られた知見を ADS 設計に反映する。また、C&R 指摘の課題②～③に関しては、加速器の信頼性向上のための構成要素の並列化および並列化に伴う未臨界炉心への影響評価、ビーム窓運転条件緩和のための未臨界度調整機構の設置、安全上の最も重要な課題である長期間の電源喪失事象時の燃料冷却性能確保のための機器設計を実施し、より工学的成立性を見込める ADS 概念を構築する。

なお、KUCA を用いた ADS 模擬炉物理実験の一部の実施項目に関しては、平成 29 年度に繰り延べて実施した。

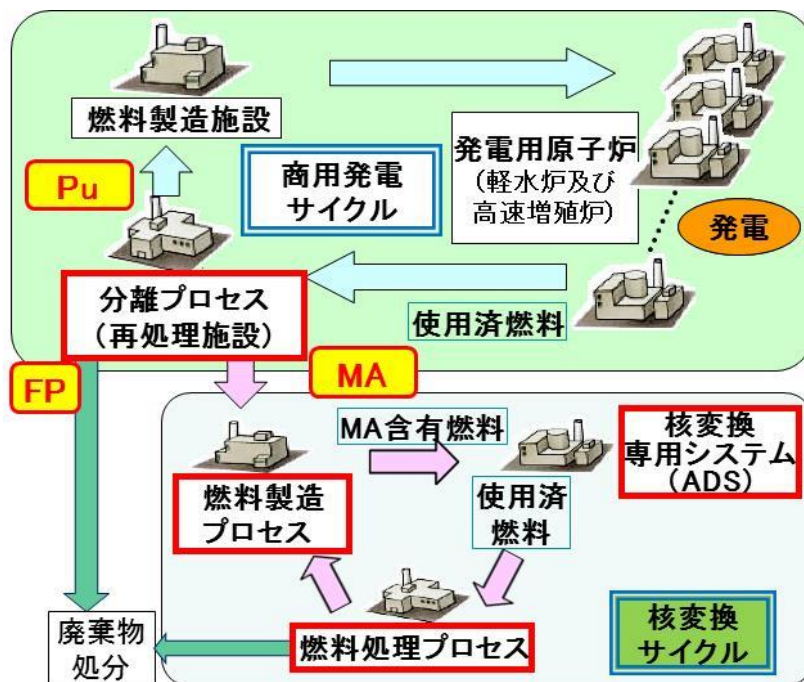


図 1-1 ADS 階層型の MA 核変換システムの概念図

2. 業務計画

2.1 全体計画

2.1.1 ADS 用 MA 分離回収技術の開発

MA 分離に関しては、工学規模試験に移行するための段階的な試験の中で工学的プロセス実証にいたる最初のステップである「実験室規模でのホット試験」を実施する。MA 分離は、MA と化学的性質が似ているランタノイド(Ln)を共抽出する MA・Ln 回収プロセスと MA/Ln 分離プロセスで構成される。これらを組み合わせたプロセスについて、軽水炉使用済み燃料を処理した実廃液を使用した試験を実施する。実廃液は、様々な化学形を有する核種が混在し非常に高い放射能濃度を有することからトレーサー試験では無かった挙動を示す可能性があり、MA 分離の工学的プロセス実証には不可欠である。そこで、MA・Ln 回収については、これまでのトレーサー試験で極めて高い抽出性能 (Am 回収率 99.96%) を示している TDdDGA を用いた実液試験を実施し、工学的プロセス実証に必要とされる除染性能を確認しプロセスを確立する。MA/Ln 分離プロセスについては、開発を進めてきたソフトドナー系抽出剤を用いた分離プロセスを構築し、MA・Ln 回収プロセスの実液試験で得られたプロダクトの分離試験を実施して、そのプロセスを確立するとともに、分離回収した MA 試料をフィードストック MA 原料として燃料製造試験に供給する。これら一連の試験研究により、実廃液から 100mg 程度の MA 試料の回収を行い、提案する MA 分離プロセスが実用的な水準を満たすことを示す。

2.1.2 加速器駆動未臨界システムの開発

C&R 指摘の課題①ADS の炉物理的課題に対しては、核特性予測精度の向上が最大の課題である。現状では、異なる核データを用いた場合の核特性解析値に大きな相違が存在する（例えば実効増倍率に対して約 3%程度）。その主要な要因である MA 核種のうち ^{237}Np 、 ^{241}Am 、および冷却材および核破砕ターゲットの Pb と Bi に対しては核データ検証用の積分データが不足またはほとんど存在しない。そこで、核破砕ターゲットと未臨界炉心を組み合わせた ADS 模擬実験が可能な京都大学臨界集合体(KUCA)において、鉛ビスマス冷却 ADS 模擬体系を構築して炉物理実験を実施して、ADS 核特性解析精度の向上に貢献するために、 ^{237}Np 、 ^{241}Am 、Pb、Bi に関する核データ検証用積分実験データを得る。

C&R 指摘の課題②ADS 用加速器に関しては、信頼性の向上が最も大きな課題である。既存の加速器の運転実績データを基に推定される ADS 用加速器のビームトリップ頻度とビームトリップ時の ADS 機器等に与える熱負荷等から許容されるビームトリップ頻度と比較した場合に、10 秒以上のトリップ頻度を現状推定値の 1/3~1/10 に低減する必要がある。そこで、10 秒以上ビームトリップ頻度を許容値以下に抑制するために、加速器要素を並列化するための方策および必要機器の概念設計を実施し、ADS 用加速器として信頼性の高い加速器仕様を提示する。また、並列化に伴う未臨界炉心への影響を定量的に評価する。

C&R 指摘の課題③ビーム窓に関しては、ビーム窓の運転条件を緩和することが最大の課題の 1 つである。液体鉛ビスマス中での腐食や照射損傷等を考慮した場合の許容温度は約 550°C 以下であるが、現在の設計では上限温度近傍の設計となっている。これは、ADS の燃焼に伴う反応度低下をビーム出力の増加で補うためであり、特に燃焼期間末期で厳しい運転条件となる。そこで、燃焼反応度変化を補償するための未臨界度調整機構の概念設計を行い、ビーム窓の運転条件を大

幅に緩和することにより、より成立性の高いビーム窓設計を可能とする。

C&R 指摘の課題④ADS 安全性に関しては、長期間の電源喪失を想定した場合の冷却性能の維持が安全上の重要な課題である。ADS は未臨界で運転するために、臨界炉に比べて炉心損傷に至る可能性は極めて低い。長期間の電源喪失事象に関しては、崩壊熱除去装置を想定しない場合には約 1 日程度で炉心損傷に至る可能性がある。そこで、長期間の電源喪失事象時にも燃料の崩壊熱を受動的に除去できる装置の概念設計を実施し、より安全性の高い ADS 概念を提示する。

表 2.1-1 本研究計画の年度展開

研究開発項目	平成25年度	平成26年度	平成27年度	平成28年度	
(1) ADS 用 MA 分離回収技術の開発					
①MA・Ln 回収プロセスの開発 (原子力機構)	←→ フローシート検討	←→ トレーサーによるフローシート試験およびプロセス評価	←→ トレーサーによるフローシート試験およびプロセス確定		
②MA/Ln 分離技術の開発					
a. MA/Ln 分離用抽出系の検討 (原子力機構)	←→ 候補抽出系基礎データ取得	←→ 候補絞込、詳細データ取得			
b. MA/Ln 分離プロセスの構築 (原子力機構)		←→ 単純系(MA トレーサー)によるフローシート試験	←→ 模擬溶液によるフローシート試験		
③ADS 用 MA 試料の分離回収 (原子力機構)	←→ セル内装置整備	←→ セル内装置試運転	←→ MA・Ln 回収試験	←→ MA・Ln 回収および MA/Ln 分離試験	
(2) 加速器駆動未臨界システムの開発					
① FFAg-KUCA を用いた ADS 模擬炉物理実験 (京大)		←→ Pb-Bi ゾーン炉心の核特性評価実験準備	←→ KUCA 実験準備	←→ KUCA 実験	
	←→ 炉心臨界性の評価	←→ MA 核種の反応率評価の予備解析	←→ MA 照射実験準備		
②工学的成立性の高い ADS プラント技術開発					
a. 信頼性を向上した ADS 用加速器の開発 (原子力機構)	←→ 並列化のための予備設計	←→ ビーム輸送系の概念設計	←→ 並列化機器の概念設計	←→ 加速器システムの概念設計	
		←→ 超伝導空洞の概念設計			
b. 未臨界度調整機構の検討 (原子力機構)	←→ 三次元炉心解析コード整備	←→ 装置概念設計	←→ 駆動機構概念設計		
c. 受動的崩壊熱除去システム概念設計 (原子力機構)	←→ プラント動特性解析コード整備	←→ プラント動特性解析	←→ 崩壊熱除去システム概念設計		
d. ADS プラントの概念設計 (原子力機構)		←→ パルス運転の影響評価	←→ ビーム窓概念設計	←→ プラント概念設計	

3. 実施内容および成果

3.1 ADS 用 MA 分離回収技術の開発 (H25～H28)

3.1.1 MA・Ln 回収プロセスの開発 (H25～H27)

ジグリコールアミド(DGA)抽出剤は、(1)分子中に炭素、窒素、酸素、水素しか含まず、使用済抽出剤を焼却処分する際に固体となる成分が存在しないことから、2次廃棄物の発生量を極力抑えることが可能である(2)硝酸ドデカンでの分配比が著しく高く、3価のアクチノイド、ランタノイドに高い選択性がある、という点で、以前に利用されていた CMPD、DIDPA などのリン酸系抽出剤と比べて優れた特性を有している。特に、平成 17 年度から 21 年度に実施した「原子力システム研究開発事業 新規抽出剤・吸着剤による TRU・FP 分離の要素技術開発」において開発した、側鎖に直鎖のドデシル基を有するテトラドデシルジグリコールアミド (TDdDGA) は抽出容量が大きく、MA・Ln 回収プロセスに適している。本事業では、TDdDGA 抽出剤を用いた MA・Ln 回収プロセスについて、実高レベル廃液からの MA 試料回収に向けてプロセスを確立するため、プロセス条件の改良を検討し、模擬廃液を用いたフローシート試験を実施した。

(1) フローシート試験 (H25)

① 試験

MA・Ln 回収プロセスの開発は、前述の原子力システム研究開発事業において進められ、その後の独自研究で Am および Np をトレーサーとして加えた模擬廃液を使用したフローシート試験によって検出限界以下まで Am を回収することを達成しているが、Np の回収率は 62% であり改善の必要があり、逆抽出段における Np および Am の逆抽出率については、それぞれ 10% および 91% であったことから、逆抽出率の向上も必要である。これらの改良を目指し、次のように設定した。

- ・Np の回収率を向上させるため、フィード液に過酸化水素を添加する。Np が 4 価に維持されると期待されることから、TDdDGA に抽出が促進され回収率が向上すると考えられる。
- ・逆抽出液を 0.05 M 硝酸とし、より逆抽出が促進される条件とした。

試験で用いたフィード液である模擬廃液の組成を表 3.1.1-1、フローシート条件を図 3.1.1-1 に示した。ミキサセトラは、フード内に設置して運転した。試験の状況を図 3.1.1-2 に示した。ミキサセトラは、1 基 16 段であり 2 基使用した。

② 結果と考察

MA および希土類元素の移行率とマスバランスを表 3.1.1-2 に示した。抽出段の有機相において、白色の沈殿の発生が認められた。図 3.1.1-3 に第 1 ミキサセトラ (1～16 段) および第 2 ミキサセトラ (17～32 段) における Am および Np の濃度分布を示した。Am の水相中濃度が検出限界以下になり回収率は 99.99% 以上となった。しかし、逆抽出率 91% であった。この値は、以前の事業における値と同じであり、逆抽出液の組成を変更する効果が現れなかった。Np の抽出率は 91%、逆抽出率は 48% であった。これは、過酸化水素を添加した効果が現れていると考えられる。

このフローシートの基本的構成によって、実廃液から MA 試料を回収することは可能と考えられるが、抽出段における沈殿の発生と Am 逆抽出が評価とおり進行しない現象が明らかとなった。沈殿については、発生の抑制を図るため、フィード液濃度の検討と沈殿の組成の把握が必要と考えられる。沈殿の分析を行うとともに、フィード液濃度と有機相組成を検討し、沈殿が発生

しない条件を検討することとした。また、Amの逆抽出については、抽出器内部の相分離の問題、有機相組成の調整を含め、検討を進めることとなった。

参考文献

- [3.1.1-1] 文部科学省原子力システム研究開発事業 新規抽出剤・吸着剤による TRU・FP 分離の要素技術開発 平成 17 年度報告書 (2006)
- [3.1.1-2] 文部科学省原子力システム研究開発事業 新規抽出剤・吸着剤による TRU・FP 分離の要素技術開発 平成 18 年度報告書 (2007)
- [3.1.1-3] 文部科学省原子力システム研究開発事業 新規抽出剤・吸着剤による TRU・FP 分離の要素技術開発 平成 19 年度報告書 (2008)
- [3.1.1-4] 文部科学省原子力システム研究開発事業 新規抽出剤・吸着剤による TRU・FP 分離の要素技術開発 平成 20 年度報告書 (2009)
- [3.1.1-5] 文部科学省原子力システム研究開発事業 新規抽出剤・吸着剤による TRU・FP 分離の要素技術開発 平成 21 年度報告書 (2010)
- [3.1.1-6] Y. Morita, T. Kimura, “Development of separation process for transuranium elements and some fission products using new extractants and adsorbents”, Proc. of 11th Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation (IEMPT11), 1-4 November 2010, San Francisco, USA, p. 235 (2012)

表 3.1.1-1 フローシート試験のフィード液組成

元素	濃度 (mM)
Sr	2.48
Y	1.39
Zr	14.39
Mo	9.87
Ru	14.78
Rh	4.41
Pd	11.56
Cs	14.07
Ba	5.87
La	11.70
Nd	20.75
Eu	4.57
Am	トレーサー
Np	トレーサー
HNO ₃	3.0 M

表 3.1.1-2 MA および希土類元素の各フラクションへの移行率とマスバランス

フラクション	移行率 (%)					
	Am	Np	Y	La	Nd	Eu
ラフィネート	<0.01	9.3	1.3	7.9	0.2	0.9
フラクション	109.3	40.5	17.7	32.5	99.2	44.1
使用溶媒	10.4	53.6	27.1	0.0	4.9	43.0
マスバランス	119.7	103.4	46.1	40.4	104.2	88.1

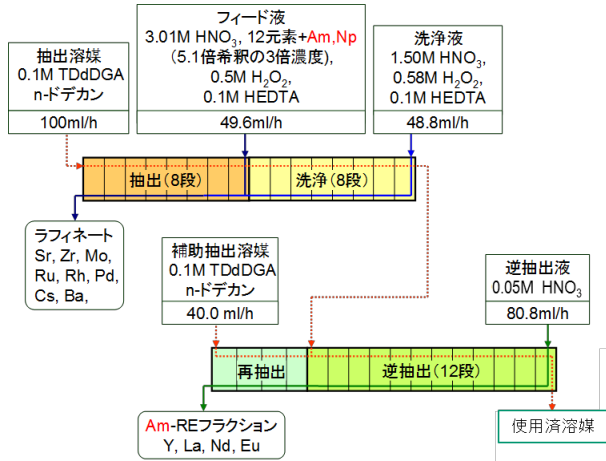
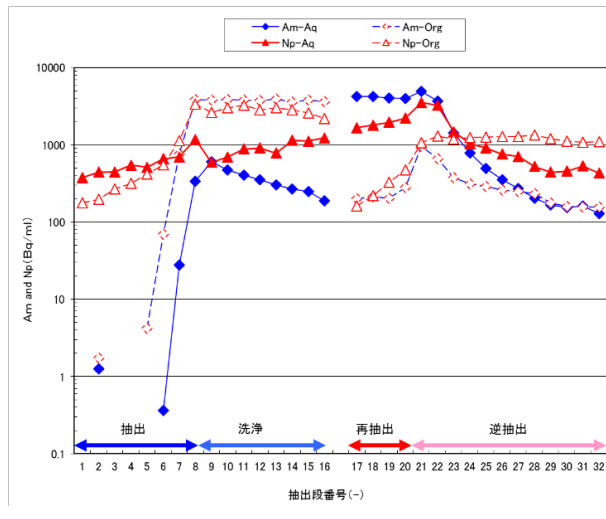


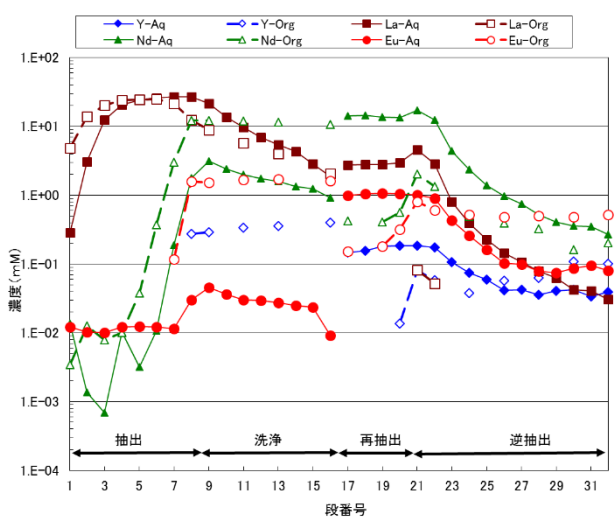
図 3.1.1-1 フローシート試験条件 (実績値)



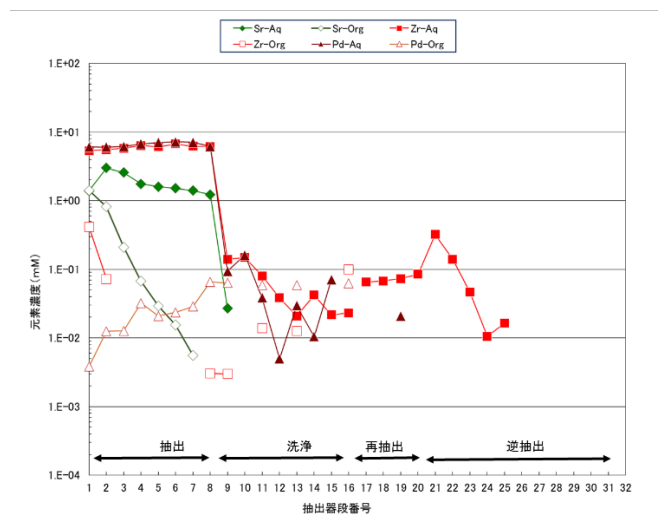
図 3.1.1-2 フローシート試験の状況



(a) Am および Np の濃度分布



(b) 希土類元素の濃度分布



(c) Sr, Zr, Pd の濃度分布

図 3.1.1-3 第1および第2ミキサセトラにおける各元素の濃度分布

(2) フローシート改良試験および確定 (H26~H27)

① 課題

平成 25 年度に実施したミキサセトラ (MS) によるフローシート試験においては、Am(III) 抽出率 99.99% 以上を達成できたが Am(III) の逆抽出率は約 91% であり、有機相中に Am(III) が残る結果となった。また、Np(IV) は、抽出率が 62%、逆抽出率が 10% となり、工程内への分散が確認された。また、MS 内に沈殿が生成したことから、この抑制法を検討する必要がある。

② 沈殿の分析および抑制の検討 (H26)

平成 25 年度 MS 試験において生成した沈殿の分析を行い、その抑制効果について検討した。沈殿の生成状況を図 3.1.1-4、および遠心分離後の沈殿を図 3.1.1-5 に示す。沈殿は、桃白色の粉末状の固体であり、エタノール、濃硝酸には不溶、アセトンには可溶であった。ガスクロマトグラフ質量分析による有機成分、および原子吸光分析による金属成分の分析結果を表 3.1.1-3 に示す。TDdDGA の分解生成物である N,N-ジドデシルホルムアミド、1-イソシアナトドデカン、N,N-ジドデシルアセトアミド、N,N-ジドデシルアミンなどが検出された。この中で、N,N-ジドデシルアミンは存在量が多いことから沈殿の有機化合物主成分であると考えられる。また、金属成分は、Zr(IV)、Ru(II)、Pd(II)、La(III)、Nd(III)、Mo(VI) が含まれていることがわかった。La(III) および Nd(III) は、模擬廃液中の濃度が大きいいため、沈殿洗浄後の残留成分として検出されたものであり、沈殿成分でない可能性が高い。

N,N-ジドデシルアミンを用いて、バッチ法による沈殿生成の再現試験を行った。有機相は n-ドデカンとし、ここに N,N-ジドデシルアミン 2 mM を添加した。水相は、2 M 硝酸、または 12 種類の金属イオンを含む 2 M 硝酸 (模擬廃液) とした。模擬廃液の組成を表 3.1.1-4 に示す。有機相と水相の等量をガラスバイアル瓶内に入れ、振とうした後、遠心分離した結果、いずれも沈殿が生成した。次に、これらに高級アルコールである 2-エチル-1-ヘキサノールを 30 体積パーセント (vol%) 添加したところ、沈殿が消失することを確認できた。写真を図 3.1.1-6 に示す。以上より、フローシート試験において 2-エチル-1-ヘキサノールを 20 vol% 添加した有機相を用いることとした。

表 3.1.1-3 沈殿の成分分析結果

有機化合物 (GC-MS)	93 wt%	低沸点化合物	TDdDGA の分解生成物、またはドデカン、TDdDGA の不純物成分 N,N-ジドデシルアミン N,N-ジドデシルホルムアミド N,N-ジドデシルアセトアミド 1-イソシアナトドデカン					
		高沸点化合物	TDdDGA 等の高分子量の物質 (推定)					
金属元素 (原子吸光)	7 wt%	懸濁物質	含有率 (wt%)					
			Zr	Ru	Pd	La	Nd	Mo
		1	1.9	0.9	1.4	1.2	1.6	-
		2	1.6	0.9	0.7	1.5	1.9	-
		3	2.5	1.2	-	1.9	1.5	-
4	1.7	-	3.6	-	-	0.8		

表 3.1.1-4 沈殿抑制方法の検討に用いた模擬廃液の組成

模擬廃液組成	
元素	濃度
Sr	1.65 mM
Y	0.93 mM
Zr	9.59 mM
Mo	6.58 mM
Ru	9.85 mM
Rh	2.94 mM
Pd	7.71 mM
Cs	9.38 mM
Ba	3.92 mM
La	7.80 mM
Nd	13.8 mM
Eu	3.05 mM
HNO ₃	2.0 M



図 3.1.1-4 平成 25 年度ミキサセトラ試験で生成した沈殿

図 3.1.1-5 遠心分離後の沈殿



i) 2-エチル-1-ヘキサノール添加前

ii) 2-エチル-1-ヘキサノール添加後

図 3.1.1-6 *N,N*-ジドデシルアミンを用いた沈殿生成、および 2-エチル-1-ヘキサノール添加後の写真

① 有機相：2 mM *N,N*-ジドデシルアミン + *n*-ドデカン、水相：2 M HNO₃

② 有機相：2 mM *N,N*-ジドデシルアミン + *n*-ドデカン、水相：12 元素 + 2M HNO₃

③ フローシート試験およびプロセス確定 (H26~H27)

TDdDGA 抽出剤を用いて、プロセス条件を改良した MA・Ln 回収のためのフローシートによる連続抽出試験（フローシート試験）を行い、その試験結果からホットセル内での実廃液を用いたフローシート試験条件を決定した。

1) 検討課題

有機相中への高級アルコールの添加による沈殿抑制効果、および相分離性向上により、Am(III)の抽出率、逆抽出率の向上が期待できるが、Npの原子価調整、Zrの抽出抑制のために添加した過酸化水素（ H_2O_2 ）からの気泡生成によるMS内の送液への影響、および抽出剤の分解促進が懸念される。MAの高効率の回収に加え、分配比の高いY(III)の逆抽出率の向上、および H_2O_2 を添加しない抽出系（ H_2O_2 無添加系）でのフローシート試験条件を検討課題とした。

2) 実施試験

前年度の結果を基に、MAトレーサーを添加した模擬廃液を使用したフローシート試験を行い、試験条件の調整を行った。また、 H_2O_2 無添加系においても、バッチ試験結果からフローシート試験条件を検討し、非放射性元素を溶解した模擬廃液を用いてフローシート試験を実施した。

3) バッチ試験

トレーサー量（約 10 ppb）の放射性金属イオン（Am(III)、Np(IV)）、および非放射性の金属イオンを含む硝酸を水相、抽出剤を含む*n*-ドデカン溶液を有機相として、水相および有機相を等量（容積比）で混合し、25°Cで抽出平衡に達するまで振とうした。その後、遠心分離を行うことによって相分離させた。水相および有機相からそれぞれサンプル溶液を分取し、 γ 線スペクトルをゲルマニウム半導体検出器（GCD-20180X BSI社製）、 α 線スペクトルをシリコン半導体検出器（AMETEK ENS-U450 セイコーEG&G社製）、金属イオン濃度をICP-AES（ICPS-7510 島津製作所社製）、ICP-MS（Agilent 7500cx アジレント・テクノロジー株式会社製）により測定した。

4) フローシート試験（ H_2O_2 添加系）

複数回実施したフローシート試験によって条件を調整した。ここでは、最終的に条件を確定したフローシート試験の結果を示す。MS内溶液の酸平衡、およびセトラ部の界面調整を行った後、MAトレーサーを含むフィード液による5時間のフローシート試験を実施した。使用したMSは前年度までと同じ装置である。本試験では、第1MSは、抽出8段、洗浄8段、第2MSは、逆抽出16段として、水相と有機相を向流接触させた。また、フィード液として用いた模擬廃液は前年度までと同じ組成である。フローシート試験では、1時間ごとにMSから流出するラフィネート、フラクション、有機相を測定試料としてそれぞれ採取した。5時間後、運転停止したMS全段のセトラ部から、有機相および水相の試料を採取した。各試料に対し、電位差滴定により硝酸濃度を求めた。また、有機相および水相中の各金属イオン濃度は、ICP-AESにより測定し、抽出率および逆抽出率を求めた。有機相中および水相中の ^{241}Am および ^{237}Np は、 γ 線、または α 線スペクトルによる放射能測定から濃度を算出した。

5) フローシート試験（ H_2O_2 無添加系）

H_2O_2 無添加系でのフローシート試験は、非放射性元素を溶解した模擬廃液を用いて、3時間の連続抽出を行った。MSおよびその他の試験法はこれまでと同様である。

6) 結果と考察

アルコール添加系でのバッチ試験結果を図 3.1.1-7 に示す。縦軸には、 D_A 、横軸には HNO_3 濃

度を示す。HNO₃ 濃度 0.02 M で D_4 の値が十分に低くなることから、全金属イオンを逆抽出できることがわかった。この結果から、MA トレーサーによるフローシート試験条件を決定した。各溶液の濃度条件は、有機相は 0.1 M TDdDGA、および体積で 20 パーセント (vol%) の 2-エチル-1-ヘキサノールを含む *n*-ドデカン溶液、フィード液は金属イオンを含んだ 0.1 M HEDTA、0.5 M H₂O₂、2.0 M HNO₃、洗浄液は 0.1 M HEDTA、0.5 M H₂O₂、1.5 M HNO₃ とし、逆抽出液は 0.02 M HNO₃ とした。図 3.1.1-8 にフローシート試験条件を示す。

フローシート試験の結果として、第 1 MS および第 2 MS における各金属イオンの濃度分布を図 3.1.1-9、および図 3.1.1-10 に示す。また、MA と Ln の移行率とマスバランスを表 3.1.1-5 に示す。ラフィネート中の Am(III) 濃度は検出限界値以下となり、全量有機相中に抽出された。また、有機相に抽出された Am(III) は、第 2 MS の 4 段目までに全量が逆抽出され、99.99% を回収した。一方、Np(IV) は大部分がラフィネート中に残り、分散を解消できた。Ln(III)、および Y(III) は、抽出率、逆抽出率共に 100% となり、完全に逆抽出できた。製品中には微量の Rh のみが検出されたものの、その他のほとんどの金属イオンはラフィネート中に留めたことを確認した。

H₂O₂ 無添加系のフローシート試験条件を図 3.1.1-11 に示す。結果を図 3.1.1-12 および図 3.1.1-13 に示す。正抽出データとして、第 1 MS における Y(III)、Ln(III) (La(III)、Nd(III)、Eu(III))、および FP の濃度分布を示す。ラフィネート中の Y(III) および Ln(III) の濃度は、検出限界値以下となり全量が有機相中に抽出された。一方、全 FP は、ラフィネート中に留まったことを確認できた。Am(III) および Cm(III) の抽出挙動は Nd(III) とほぼ同等であることから、H₂O₂ 無添加系で本試験条件によって MA 分離・回収できることがわかった。

7) まとめ

フローシート試験の結果から、ホットセルでの実廃液を用いたフローシート試験は、H₂O₂ 無添加系で実施することとして、試験条件を決定した。ホットセル内実廃液フローシート試験条件を表 3.1.1-6 に示す。

表 3.1.1-5 移行率およびマスバランス

	移行率 [%]					
	Am	Np	La	Nd	Eu	Y
ラフィネート	0	100	0	0	0	0
フラクション	100	3.45	102	98.1	102	100
使用溶媒	0	0	0	0	0.250	0
マスバランス	100	104	102	98.1	103	100

表 3.1.1-6 ホットセル内フローシート試験条件

組成および濃度	
有機相	TDdDGA 0.1 M, 2-エチル-1-ヘキサノール 20 vol%, 希釈剤: <i>n</i> -ドデカン
フィード液	各金属イオン, HEDTA 0.1 M, HNO ₃ 2.0 M
洗浄液	HEDTA 0.1 M, HNO ₃ 1.3 M
逆抽出液	HNO ₃ 0.02 M

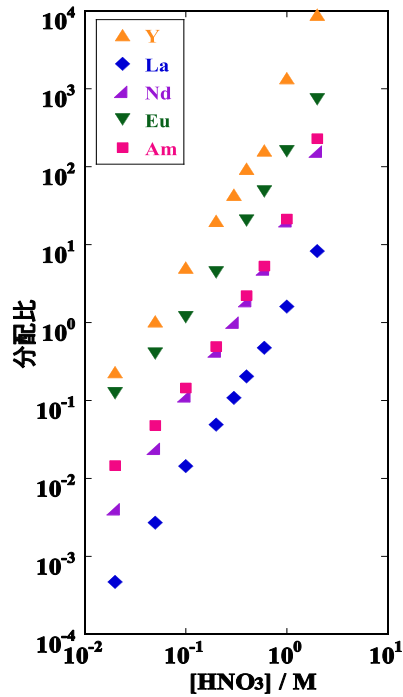


図 3.1.1-7 Am(III)、および Ln(III) の分配比と HNO₃ 濃度との関係
 有機相 : [TDdDGA] = 0.1 M, [2-ethyl-1-hexanol] = 20 vol% / *n*-dodecane
 水相 : [HNO₃] = 0.02 ~ 2 M

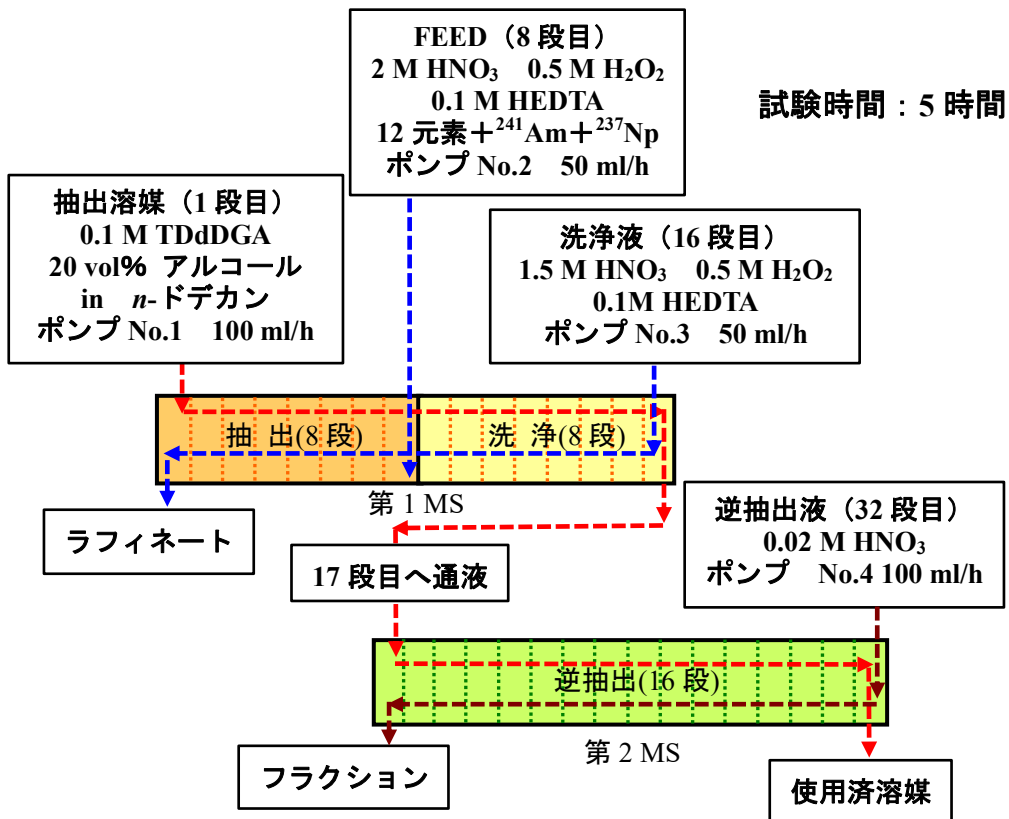


図 3.1.1-8 MA トレーサーによるフローシート試験条件

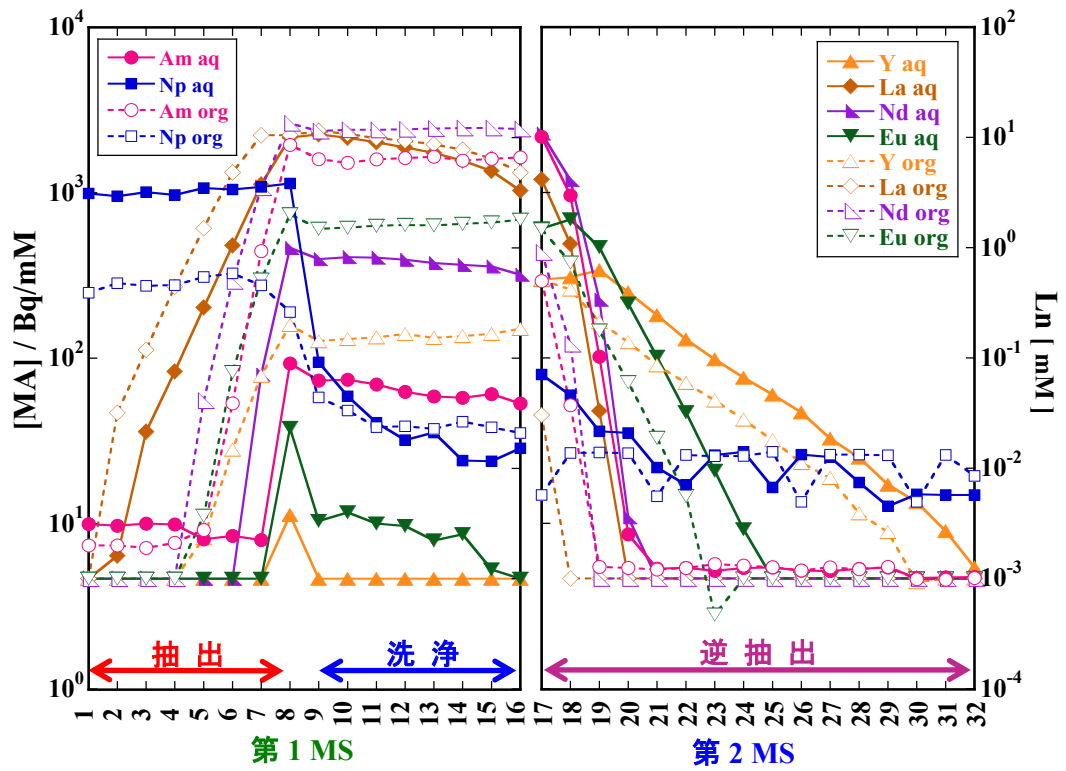


図 3.1.1-9 第1および第2 MS における MA および Ln(III) の濃度分布

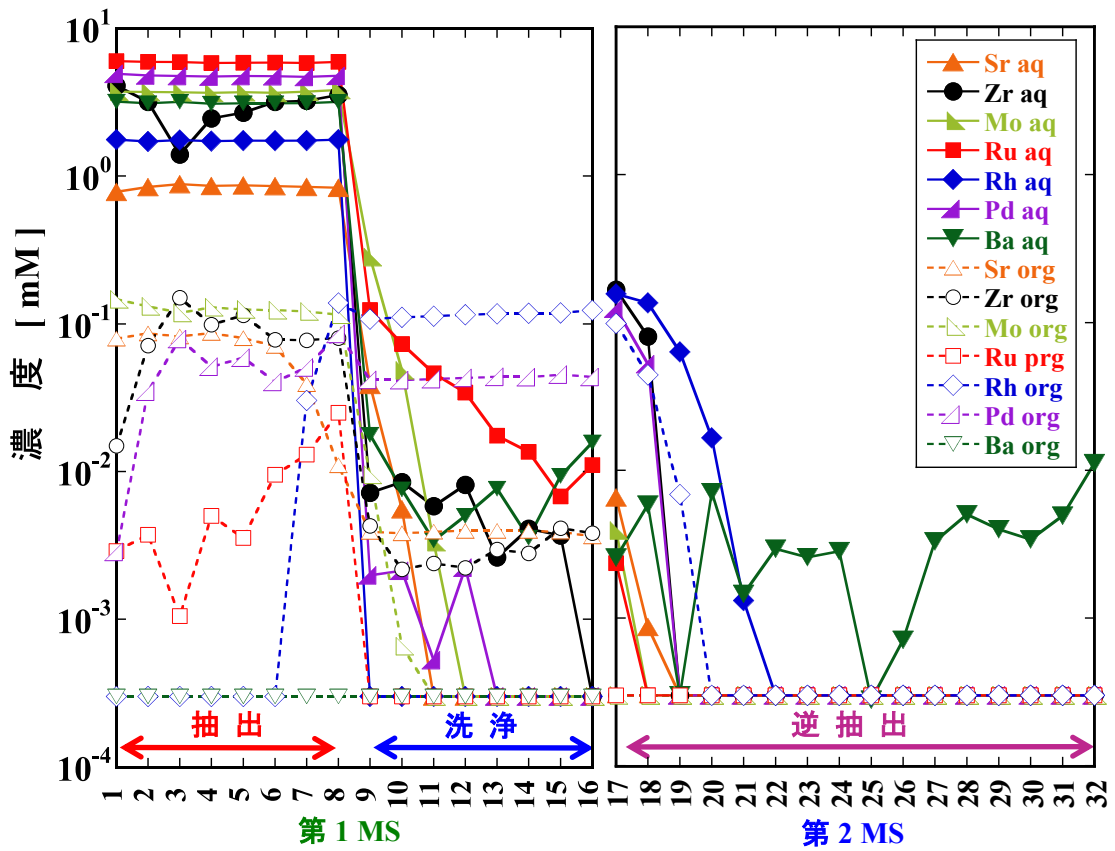


図 3.1.1-10 第1および第2 MS における FP の濃度分布

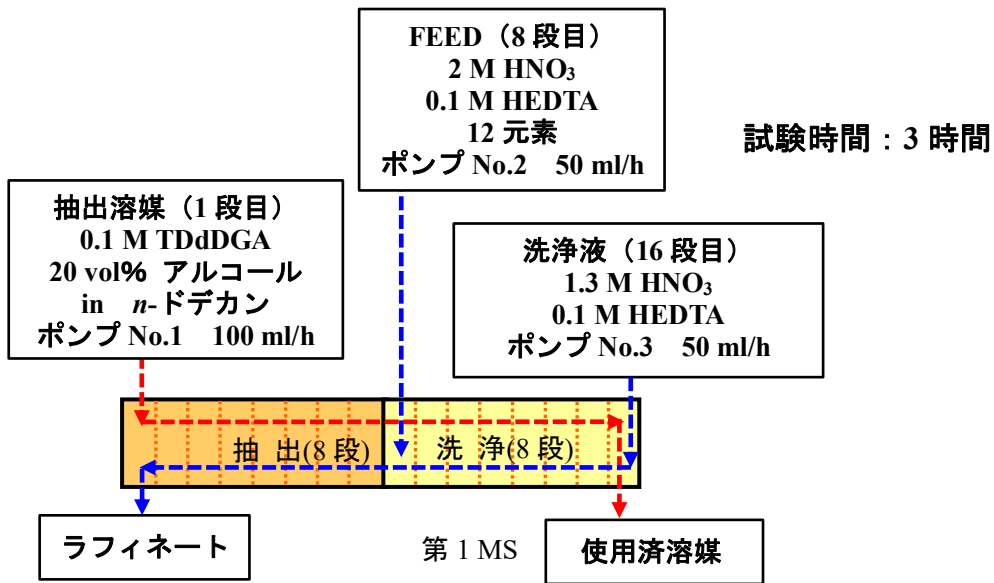


図 3.1.1-11 H₂O₂ 無添加系フローシート試験条件

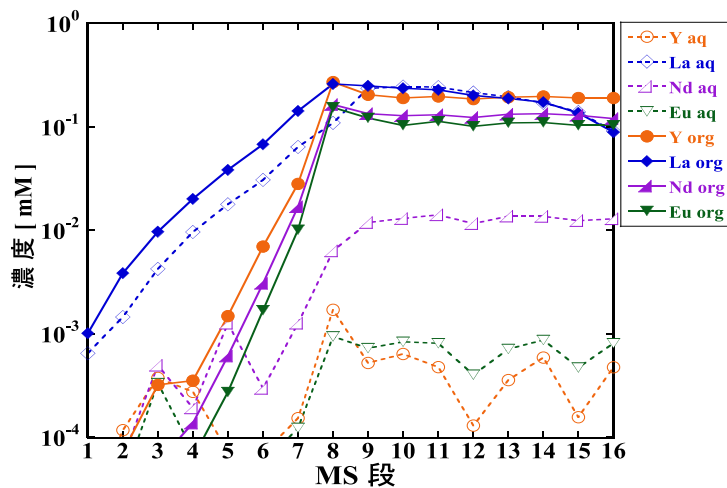


図 3.1.1-12 H₂O₂ 無添加系での第1 MS における Ln(III) の濃度分布

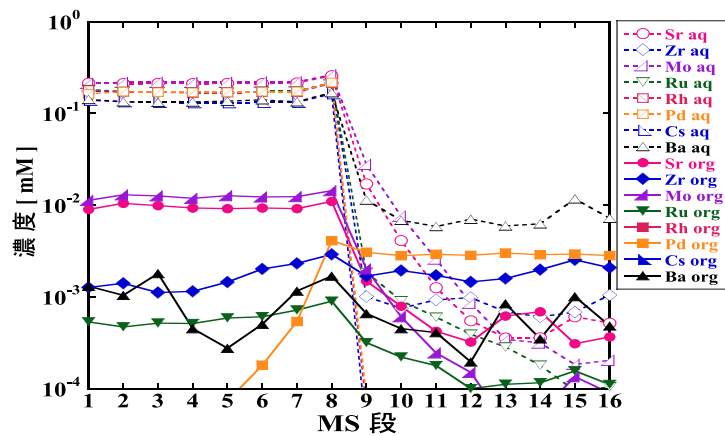


図 3.1.1-13 H₂O₂ 無添加系での第1 MS における FP の濃度分布

3.1.2 MA/Ln 分離技術の開発 (H25~H27)

3 価 MA である Am と Cm は、水溶液中において希土類元素 (Ln) と極めて類似した挙動を示すことから、分離は困難であることが知られている。これまで、MA に選択性を有する水溶性の錯化剤ジエチレントリアミン五酢酸 (DTPA) とジグリコールアミド (DGA) 抽出剤等の組み合わせによる抽出系と、MA を選択的に抽出する能力を持つ新規抽出剤の 2 つのアプローチが試みられてきた。DTPA は、アメリカにおいてプロセス開発が進められていた経緯があることからデータが多いが、処理に適した液性が pH2 程度であることからプロセス条件の安定性確保が難しく、また DTPA を水相に添加する必要があることから廃棄物発生量が多いという欠点がある。一方、MA に選択性のある抽出剤は、3 価 MA が Ln と比べてわずかにソフト性が高いことを利用し、多座配位のソフトドナーを有する抽出剤として選択性を確保することを目指している。しかし、処理に適した液性の問題、抽出剤自体の化学的安定性の問題等、開発課題が多く、本格的なプロセス開発に適用可能な抽出剤は見出されていない。本事業では、候補となる DTPA と TDdDGA 抽出剤の組み合わせとソフトドナーを有する抽出剤について、バッチ実験によって抽出基礎データを取得して絞り込み、MA トレーサーを含む模擬廃液によるフローシート試験を実施した。

(1) バッチ実験 (H25~H26)

① 候補抽出剤

候補となる抽出剤は次の 8 種類である。

- *N, N', N'', N'''*-tetrakis(pyridin-2-ylmethyl)decane-1, 2-diamine (TPDN)
- *N, N', N'', N'''*-tetrakis(pyrazol-1-ylmethyl)-1, 2-diaminoethane (EDTP)
- *N*-octyl-*N'*-(*p*-tolyl)-1, 10-phenanthroline-2-carboxamide (OctTo1PTA)
- 6-(1*H*-benzo[*d*]imidazol-2-yl)-*N*-methyl-*N*-octylpicolinamide (MeOctBIZA)
- エチレンジアミン四酢酸アミド(*n*-オクチル) : EDTA アミド(c8)
- ピリジルメチルドデシルエチレンジアミン : TPTDN
- アルキルジアミドアミン : ADAAM(EH)
- ニトリロ三酢酸トリアミド(*n*-オクチル) : NTA アミド(oct)

これらの新規抽出剤の分子構造を図 3.1.2-1 に示す。

② 実験

バッチ実験は、溶媒抽出において抽出剤の性能を確認するために行われる一般的な手法である。TDdDGA 抽出剤と DTPA 錯化剤による抽出系は、すでに液性条件等が確立していることから、これまでに取得されたデータの再現性を確認する実験を実施した。新規抽出剤については、系統的な Am/Eu 分離データを取得することは初めての試みになる。有機相に使用する希釈剤は、候補となっている新規抽出剤の有機溶媒への溶解性が未確認であることから、溶解性に優れ抽出剤の性能が発揮されやすいニトロベンゼンを使用した。水相には塩析剤として硝酸アンモニウムを 1.0 M 加え、抽出剤として有効な性能を発揮すると予想される液性に近い条件でデータを取得した。以下にバッチ実験の条件をまとめた。

- 有機相 : 希釈剤 *n*-ドデカン、0.1 M TDdDGA あるいは希釈剤 ニトロベンゼン、抽出剤 10mM
- 水相 : 1.0 M NH₄NO₃、²⁴¹Am トレーサー、¹⁵²Eu トレーサー

振とう 有機相 : 水相 = 1 : 1、攪拌時間 : 6h、室温。

データ評価

有機相と水相の濃度比によって分配比、さらにその比によって分離係数を求めた。

③ 結果と考察

各抽出剤等の結果は次のとおり。

- TDdDGA+DTPA による抽出系

水相 pH1.5 以上において Am と Ln の間に良好な分離性能が見出された。抽出器内の水相を pH1.6 ± 0.1 に維持することで Am と Ln を分離可能である。

- TPDN 抽出剤

水相 pH1.0 - 5.0 において、 $SF_{Am/Eu}$ が 40 から 200 を示した。

- PTA 抽出剤

硝酸濃度 0.01 - 1.0 M において、 $SF_{Am/Eu}$ が 20 程度を示した。

- BIZA 抽出剤

水相と接触させたところ沈殿を生じた。溶媒抽出プロセスへの適用は困難。

- EDTP 抽出剤

抽出性能は全く見いだされなかった。

- エチレンジアミン四酢酸アミド(n-オクチル) : EDTA アミド(c8)

[H^+] = 0.03 M において Am(III) と Eu(III) の分離係数($SF_{Am/Eu}$) = 5.5 が得られた。n-ドデカンに対しての溶解性も大きく、第三相を生成しないことがわかった。

- ピリジルメチルドデシルエチレンジアミン : TPTDN

水相 pH 1.0 ~ 5.0 において、 $SF_{Am/Eu}$ = 13.3 ~ 164 を確認できた。

- アルキルジアミドアミン : ADAAM(EH)

硝酸濃度 0.4 ~ 4 M において、 $SF_{Am/Eu} \geq 25$ となり、また Am(III) と Cm(III) に対しても、 $SF_{Am/Cm} \geq 5.5$ が得られた。

- ニトリロ三酢酸トリアミド(n-オクチル) : HONTA

硝酸濃度が 0.1 ~ 0.2 M の範囲において $SF_{Am/Eu} \geq 6.6$ 。実用可能な分離性能を有する。

これらのうち、最も実用的に優れる HONTA について代表的な Ln についてもデータを取得し、その結果を図 3.1.2-2 に示す。

④ まとめ

実績のある TDdDGA+DTPA による抽出系と 8 種類の新規抽出剤について、Am(III)、Eu(III) に対する抽出分離試験を行った結果、HONTA 抽出剤が最もプロセス化に適した特性を有していることから、HONTA 抽出剤をフローシート試験等に採用することとした。

参考文献

- [3.1.2-1] T. Kobayashi, T. Yaita, S. Suzuki, H. Shiwaku, Y. Okamoto, K. Akutsu, Y. Nakano, Y. Fujii, Separation Science and Technology, 45:16, 2431-2436 (2010)
- [3.1.2-2] K. Akutsu, S. Suzuki, T. Kobayashi, H. Shiwaku, Y. Okamoto, T. Yaita, Solvent Extraction Research and development, Japan, Vol.20, 105-114(2013)

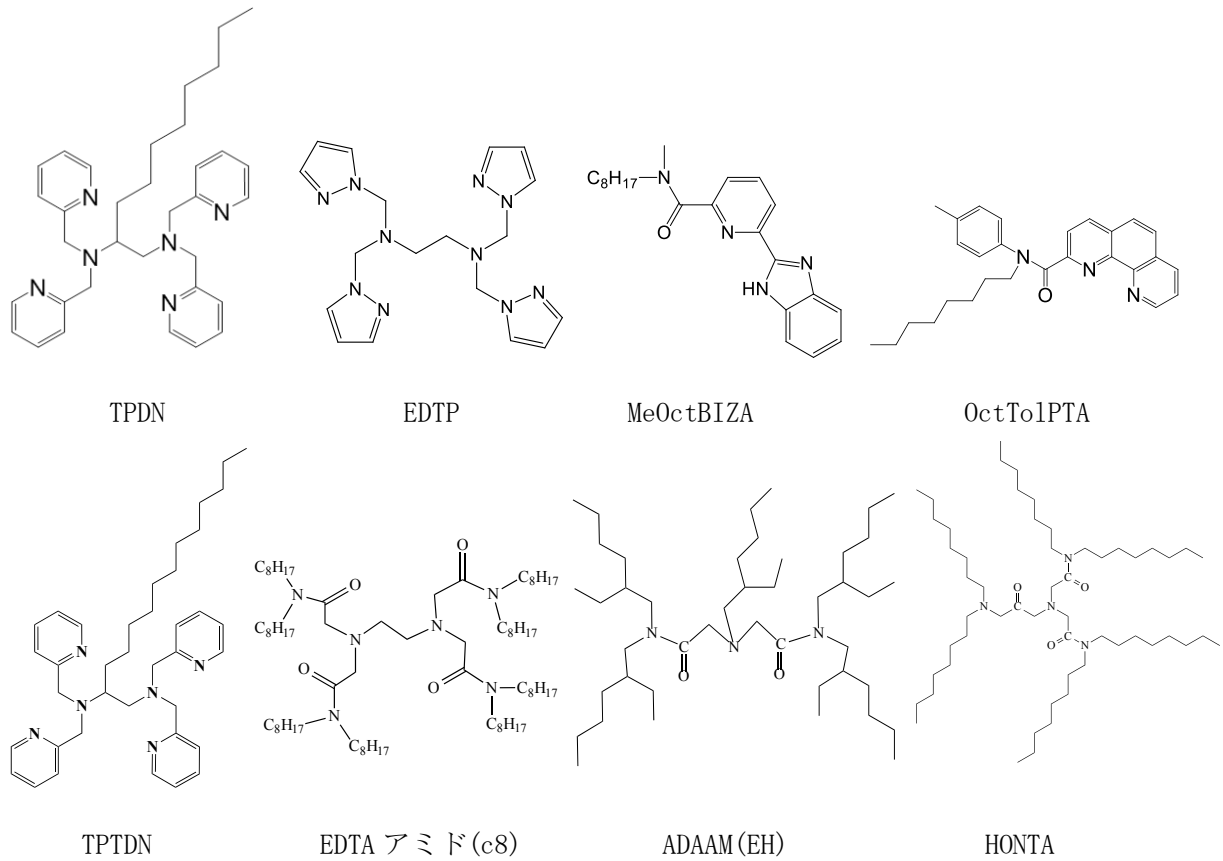


図 3.1.2-1 MA/Ln 分離プロセス用候補抽出剤

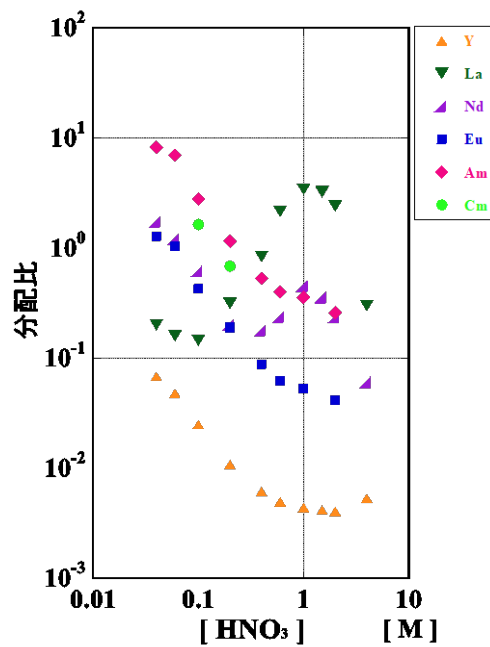


図 3.1.2-2 HONTA による Am(III), Ln(III) および Y(III) の分配比と硝酸濃度の関係
 有機相 : [HONTA] = 0.08 M = 一定 / n-ドデカン
 水 相 : [HNO₃] = 0.04 ~ 4 M

(2) フローシート試験 (H27)

MA/Ln 分離のための抽出剤として選定したヘキサオクチルニトリロ三酢酸トリアミド (HONTA) を用いてフローシート試験を実施した。

① 試験

HONTA を抽出剤として用い、小型、多段のミキサセトラ連続抽出器 (MS) による Am(III)、Cm(III)、Ln(III) および Y(III) 抽出分離試験を実施した。装置は、MA・Ln 回収フローシート試験と同じ装置を使用した。有機相は 0.1 M HONTA を溶解した *n*-ドデカン溶液として、フィード液、および洗浄液は 0.1 M HNO₃、逆抽出は 4.0 M HNO₃ を用いた。表 3.1.2-1 にフィード液として用いた模擬廃液の組成を、図 3.2.2-3 にフローシートを示す。5 時間の連続抽出試験を実施し、各段の金属イオン濃度を測定した。有機相と水相の濃度比によって分配比を算出した。さらに、分配比の比により、分離係数を求めた。

③ 結果

HONTA によるフローシート試験結果の濃度プロファイルを図 3.1.2-4、および図 3.1.2-5 に示す。また、表 3.1.2-2 にフィード液、ラフィネート、廃有機中の各金属イオン濃度、および、マスバランスを示す。フラクションへの Am(III)、および Cm(III) の移行率は 95.7%、および 78.5%、ラフィネートへの Am(III)、および Cm(III) の移行率は 9.96%、および 19.5% となり、また、廃有機中は Am(III)、Cm(III) 共に検出限界以下となった。一方、Y(III)、および La(III) は、ほぼ全量がラフィネート中に留まったものの、Nd(III)、および Eu(III) のフラクションへの移行率は 49.3%、および 78.5%、ラフィネートへの移行率は 55.3%、76.2% となった。また、Y(III)、La(III)、Nd(III)、および Eu(III) の有機相からの逆抽出は 100% となり、完全に逆抽出できることを確認できた。さらに、沈殿生成などは確認されず、MS の運転状況は良好であった。以上のことから、条件検討、最適化によって、MA/Ln 相互分離の可能性を実証できた。

(3) まとめ

向流式 MS を用いた HONTA 抽出剤による MA/Ln 分離プロセスのフローシート試験を実施した。その結果、Nd(III) との相互分離にやや課題を残すものの、MA に対して高い回収率を得ることができた。また、HONTA を用いたフローシート試験では、良好な MS 運転状況が得られ、HONTA の高い実用性を実証できた。今後、HONTA によるフローシート試験条件を検討・最適化することで、MA/Ln 分離性能の向上が期待できる。

表 3.1.2-1 模擬廃液組成

フィード液 組成	
元 素	濃 度
Am	25 MBq / L
Cm	25 MBq / L
Y	0.45 mM
La	3.9 mM
Nd	7.0 mM
Eu	1.6 mM
HNO ₃	0.1 M

表 3.1.2-2 移行率およびマスバランス

元 素	移 行 率 【%】					
	Am	Cm	Y	La	Nd	Eu
フラクシオン	95.7	78.5	0	0.31	49.3	22.4
ラフィネート	9.96	19.5	100	99.3	55.3	76.2
使用済溶媒	0	0	0	0	0	0
マスバランス	106	98.0	100	99.6	105	98.6

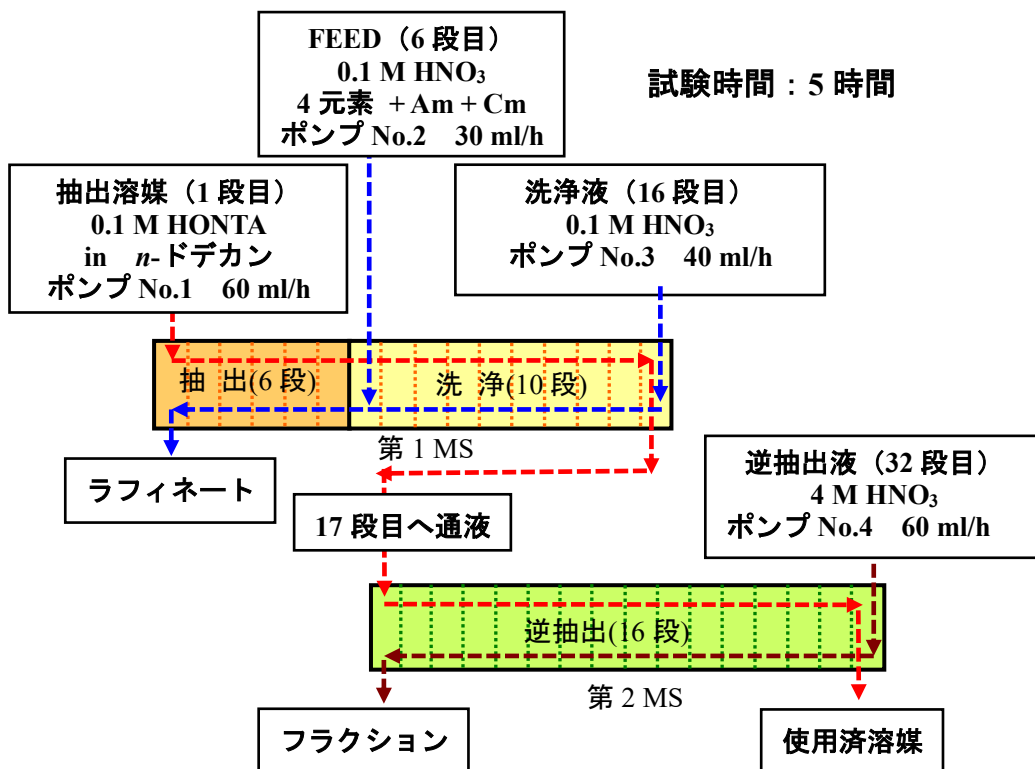


図 3.1.2-3 HONTA を用いたフローシート試験条件

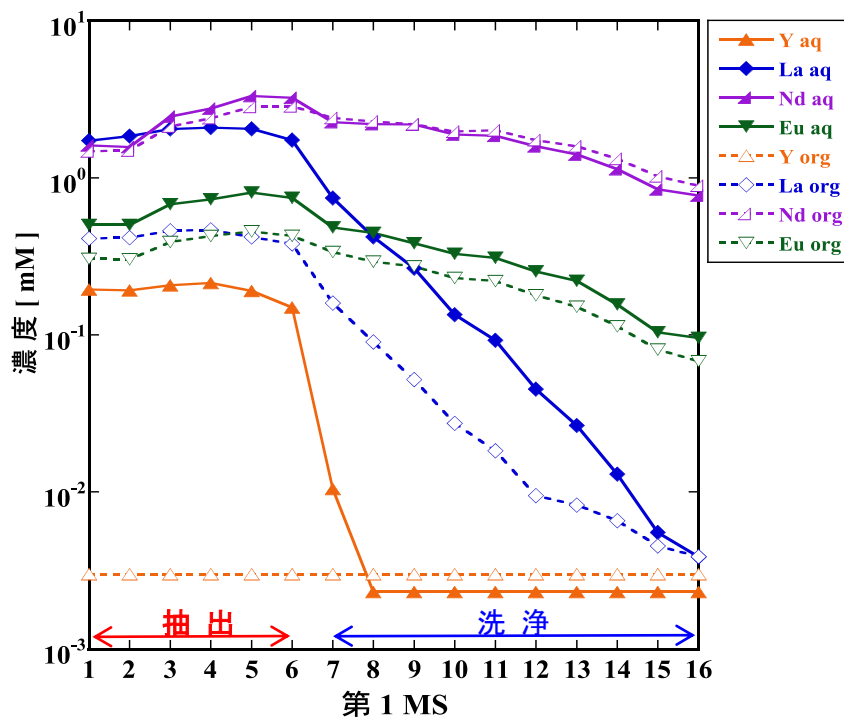


図 3.1.2-4 第 1 MS における Ln(III) の濃度分布

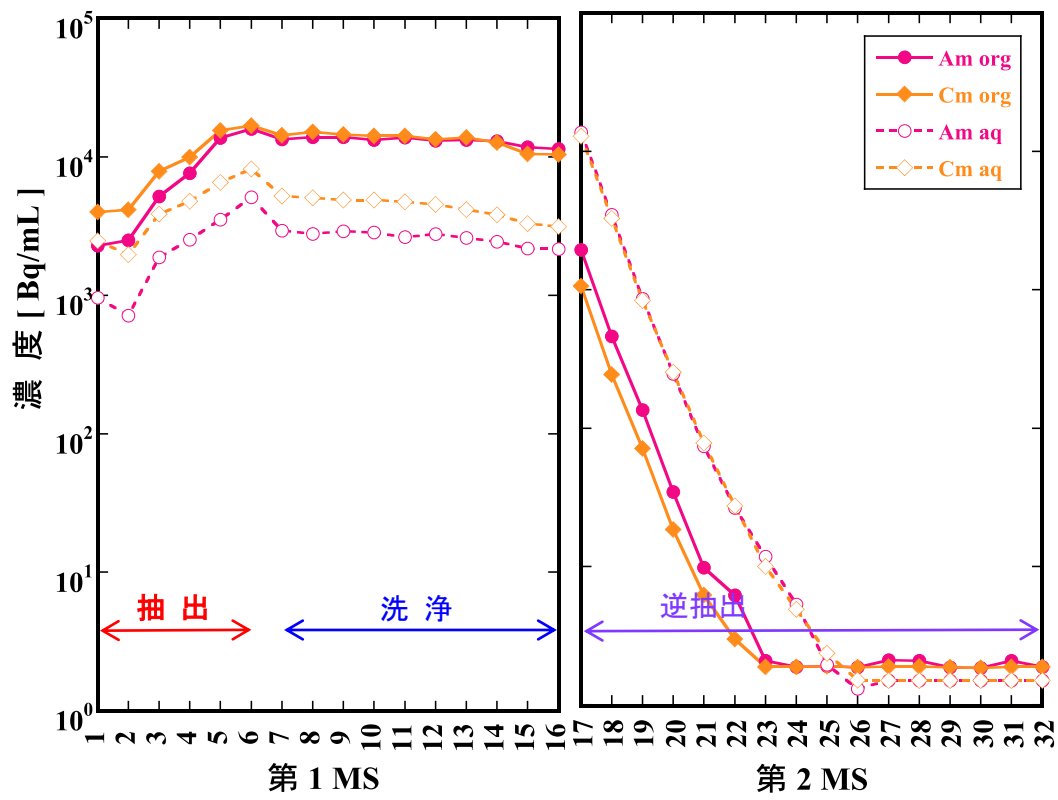


図 3.1.2-5 第1 MS および第2 MS における MA の濃度分布

3.1.3 ADS 用 MA 試料の分離回収 (H26~H28)

平成 26 年度は、セル内に設置されている試験機器について通水試験および動作試験を実施するとともに、遠隔操作による取り扱いの確認を行った。平成 27 年度は、セル内に保管されていた実高レベル廃液（再処理ラフィネート）を使用して MA・Ln 回収プロセスの予備試験を実施し、問題無く試験が可能であることを確認した。平成 28 年度は、以上の試験を踏まえ、MA・Ln 回収プロセスと MA/Ln 分離プロセスの実廃液試験を実施した。

(1) MA・Ln 回収プロセス 実廃液試験 (H28)

① 試薬

試薬は、3.1.1 項における試験と同じものを使用した。

② 試験

セル内のミキサセトラ (MS) の写真を図 3.1.3-1 に示す。本器は、ミキサ部 (7.5 mL) とセトラ部 (25 mL) からなる 20 段の多段連続抽出器で、1 器を抽出段 (第 1 MS)、同型の MS (第 2 MS) を逆抽出段として、2 器を連結した合計 40 段から構成される。素材は透明アクリル製であり、容器内の液-液界面の変動や運転状況を観察できる。フィード液の組成を表 3.1.3-1、フローシート試験条件を図 3.1.3-2 に示す。

溶液の酸平衡、および MS のセトラ部の界面調整を行い、MS の動作安定後、10 時間の連続抽出試験を行った。試験は、1 時間ごとに MS から流出するラフィネート、フラクション、有機相をそれぞれ採取した。10 時間運転後、停止した MS 内の全段のセトラ部から、有機相および水相の試料を採取した。電位差滴定により各試料の HNO_3 濃度を測定した。水相中、および有機相中の各金属イオン濃度は、ICP-AES (ICPS-7510 株式会社 島津製作所社製) により測定した。また、 ^{241}Am 、 ^{244}Cm 、および ^{137}Cs は、 α 線スペクトルをシリコン半導体検出器 (AMETEK ENS-U450 セイコー EG&G 社製)、および γ 線スペクトルをゲルマニウム半導体検出器 (GCD-20180X BSI 社製) による放射能測定から算出した。

③ 結果と考察

表 3.1.3-2 に MA (Am(III)、Cm(III))、La(III)、Nd(III)、Eu(III)、および Y(III)、表 3.1.3-3 にその他の FP の各溶液への移行率とマスバランスをそれぞれ示す。MA のマスバランスは、ほぼ 100% を示し良好な移行率を確認できた。また、Am(III)、Cm(III) 共に、ラフィネート中の濃度は検出限界以下となり、全量が有機相中に抽出され、有機相中に抽出された Am(III) および Cm(III) は、第 2 MS において全量逆抽出されたことを確認できた。また、Ln(III) では La(III)、Nd(III)、Eu(III)、および Y(III) はほぼ全量が有機相中に抽出され、第 2 MS において全量が逆抽出された。しかしながら、La(III) の回収率は 35% となり、MS 段内への蓄積された可能性が考えられる。一方、FP 元素では Zr の約 26% がフラクション中に移行し、約 23% が使用済溶媒中に残る結果となったが、その他 FP は、ラフィネート中に移行したことを確認できた。

MS 内の HNO_3 濃度は、第 2 MS で有機相との最初の接触段において若干 HNO_3 濃度が増加したが、その他では大きな増減は確認されなかった。

(2) MA/Ln 分離プロセス 実廃液試験 (H28)

① 試薬

試薬は、3.1.2 項におけるフローシート試験と同じものを使用した。

② 試験

使用したミキサセトラ (MS) は前項と同じ装置である。フィード液は前項の MA・Ln 回収プロセスの実廃液試験の製品溶液フラクションである。フローシート試験条件を図 3.1.3-3 に示す。ミキサセトラの運転時間は 12.5 時間であり、その他の運転方法と試料採取法および分析法は前項と同じである。

③ 結果と考察

試験は順調に推移し、抽出器内での沈殿等の生成は観察されなかった。表 3.1.3-4 に MA (Am(III)、Cm(III))、La(III)、Nd(III)、Eu(III)、および Y(III) の各溶液への移行率を示す。供給液中の Ln の 90%以上が分離除去され、Am(III)の 95%が回収された。ミキサセトラの運転時間が施設の制限により限られたことから、MA・Ln回収プロセスの製品溶液を全量処理するための技術的成立性を確認できる十分な運転時間とし、100mg 以上の Am(III)回収が可能であることを確認した。Am(III)回収量は約 9 mg であった。

(3) まとめ

TDdDGA 抽出剤を用いた MA・Ln 回収プロセスと HONTA 抽出剤を用いた MA/Ln 分離プロセスを結合した実廃液試験を実施した。前者では、MA はフィード液である高レベル廃液から Am を検出限界以下まで除去することに成功し、後者では Ln の 90%以上を Am から分離除去することができた。

表 3.1.3-1 セル内実高レベル廃液（再処理ラフィネート）組成

フィード液の組成	
元 素	濃 度
Sr	5.9 mM
Y	6.7 mM
Zr	6.8 mM
Ru	5.9 mM
Rh	5.9 mM
Pd	5.8 mM
Ba	4.4 mM
La	3.3 mM
Nd	4.3 mM
Eu	3.1 mM
¹³⁷ Cs	8.5 GBq/L
²⁴¹ Am	1.4 GBq/L
²⁴⁴ Cm	1.0 GBq/L
HNO ₃	2.0 M

表 3.1.3-2 MA・Ln 回収プロセス実廃液試験 (MA および Ln(III)の移行率およびマスバランス)

元 素	移 行 率 【%】					
	Am	Cm	Y	La	Nd	Eu
フラクション	102	101	100	34.3	99.9	105
ラフィネート	0	0	0	0.597	0.486	0
使用済溶媒	0	0	0	0	0	0
マスバランス	102	101	100	34.9	101	105

表 3.1.3-3 MA・Ln 回収プロセス実廃液試験 (その他 FP の移行率およびマスバランス)

元 素	移 行 率 【%】						
	Cs	Sr	Zr	Ru	Rh	Pd	Ba
フラクション	0	0.01	25.3	0.0207	3.63	0.0797	0
ラフィネート	100	100	51.7	96.7	102	101	98.2
使用済溶媒	0	0	22.9	0	0	0	0
マスバランス	100	100	99.9	96.7	106	101	98.2

表 3.1.3-4 MA/Ln 分離プロセス実廃液試験 (MA および Ln(III)の移行率)

元 素	移 行 率 【%】					
	Am	Cm	Y	La	Nd	Eu
フラクション	94.5	77.9	ND	0.09	16.4	3.3
ラフィネート	5.5	22.1	100	99.9	83.6	96.7
使用済溶媒	<0.02	<0.002	ND	ND	ND	ND

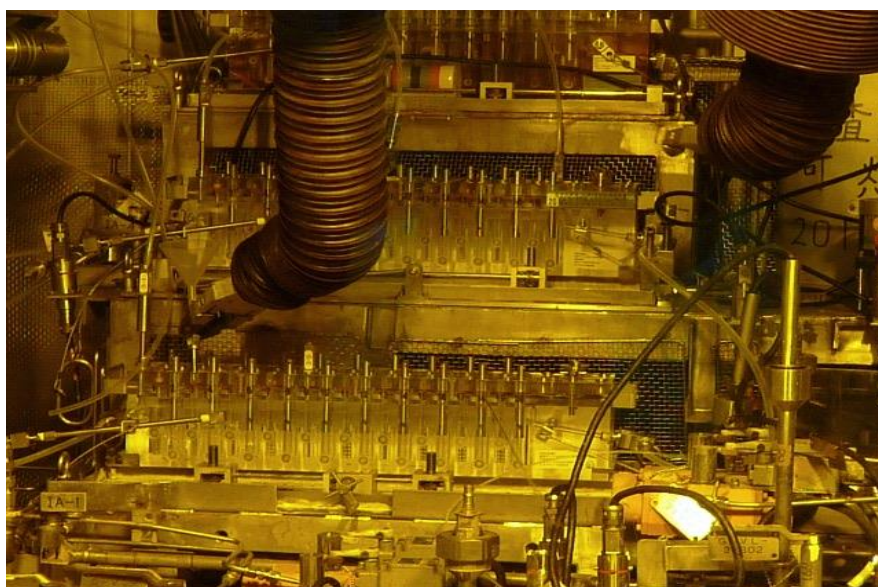


図 3.1.3-1 ホットセル内に設置したミキサセトラ

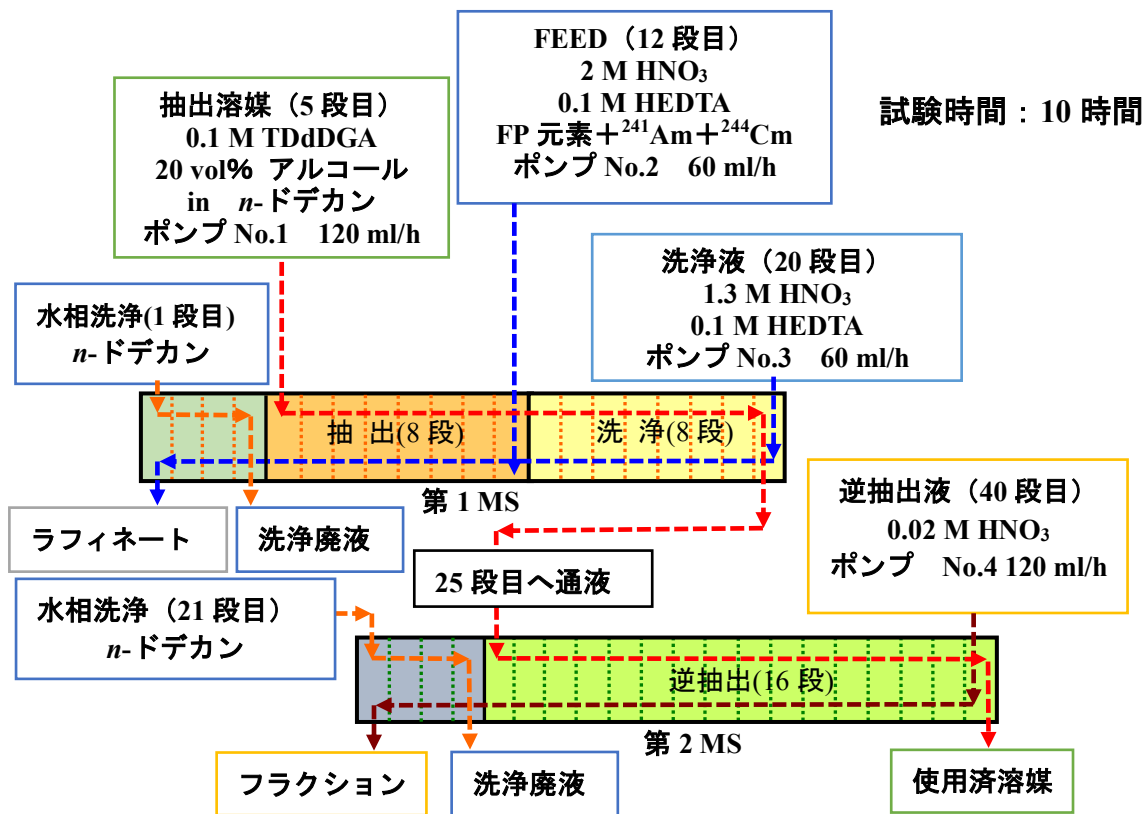


図 3.1.3-2 MA・Ln 回収プロセス実廃液試験フローシート試験条件

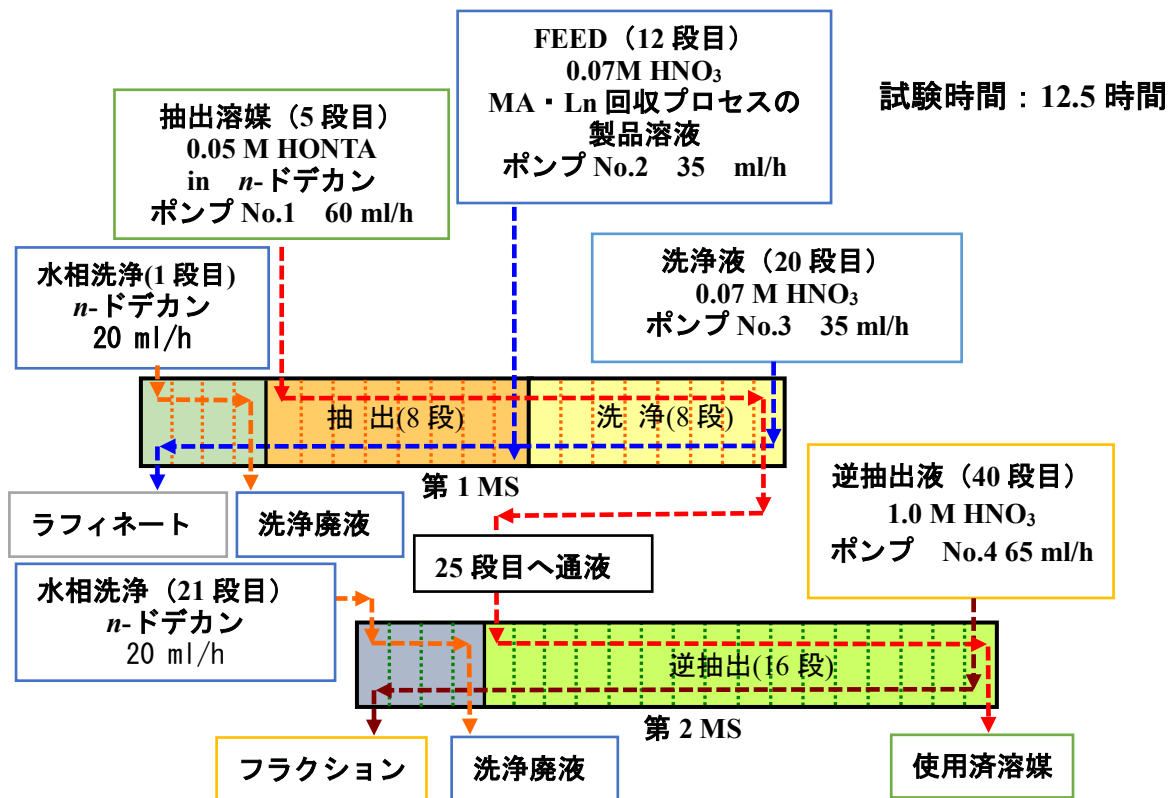


図 3. 1. 3-3 MA/Ln 分離プロセス実廃液試験フローシート試験条件

3.2 加速器駆動未臨界システムの開発

3.2.1 FFAK-KUCA を用いた ADS 模擬炉物理実験（再委託先：京都大学）

ADS の炉物理分野における最大の課題として核特性予測精度の向上があり、現状では異なる核データを用いた場合の核特性解析値に大きな相違が存在する。その主要な要因であるマイナーアクチノイド（Minor Actinide: MA）核種のうち ^{237}Np 、 ^{241}Am 、冷却材および核破砕ターゲットの LBE（鉛ビスマス）に対しては核データ検証用の積分データが不足またはほとんど存在しない。そこで、 ^{237}Np 、 ^{241}Am および LBE に関する核データ検証用積分実験データを得て、ADS 核特性解析精度の向上に貢献することを目的として、核破砕ターゲットと未臨界炉心を組み合わせた ADS 模擬実験が可能な KUCA において、LBE 冷却 ADS 模擬体系を構築して炉物理実験を実施する。

なお、KUCA の新規規制基準への適合性確認に対して、当初計画していた以上の時間を要したために、KUCA を用いた ADS 炉物理実験のうち、サンプル反応度価値の測定の一部実験以外は、平成 29 年度に繰り延べて実施した。

(1) 背景

日本原子力研究開発機構（Japan Atomic Energy Agency : JAEA）[3.2.1-1][3.2.1-2]では、Pu に MA を混合して窒化物燃料とし、冷却材に LBE を用いた未臨界の炉心に陽子加速器を組み合わせた ADS の研究開発が行われ、商業炉規模の ADS の基本的な設計まで検討が進められてきた [3.2.1-3] [3.2.1-4]。一方、JAEA が提案する商業炉級 ADS 体系について、実効増倍率などの炉物理パラメータを JENDL-3.3[3.2.1-5]および JENDL-4.0[3.2.1-6]を用いて解析したとき、ライブラリ間で大きな差異が生じることがわかっている。この原因の 1 つとして、Pb 同位体の非弾性散乱断面積のライブラリ間の差異が挙げられている [3.2.1-7]。

本公募事業の研究計画を実行するに当たって、KUCA [3.2.1-8]-[3.2.1-10]の A 架台において行われた Pb および Bi の置換反応度測定実験を用いて、置換反応度に対する Pb および Bi の断面積に対する不確かさ解析について決定論的手法を用いて行い、積分実験を通した Pb および Bi の断面積の感度解析および不確かさ解析による解析精度の検証を行った。

KUCA において、FFAG（Fixed-Field Alternating Gradient）加速器による 100 MeV の陽子を未臨界炉（A 架台）の内側に位置する LBE ターゲットに照射し、静特性および動特性パラメータの測定実験を実施した。未臨界炉心に鉛ビスマスが存在する実際の ADS（核破砕ターゲットおよび冷却材として使用される。）を実証するため、本研究では LBE を用いた燃料領域を作成し、未臨界の炉心に照射したケースにおいて、反応率分布、Cd 比および ADS のスペクトルを示す新たな中性子スペクトルの指標に関する考察を行う。次に、Pb 装荷 ADS 炉心を用いた炉物理実験において、ADS における動特性パラメータの未臨界度ならびに外部中性子源の依存性について検討した。

核破砕中性子源を核計算で取り扱う際には、中性子スペクトル、中性子収量および中性子の発生方向について注意払う必要がある。そこで、100 MeV 陽子を LBE ターゲットに照射して核破砕中性子を発生させ、中性子の収量および高エネルギー中性子のスペクトルについて検討した。また、核破砕中性子源と ADS の高速スペクトルを模擬した硬いスペクトル中に BTB チェンバを設置して、MA 箔 (^{237}Np および ^{241}Am) に対して照射実験を行い、同時に参照核物質となる ^{235}U の核分裂反応率との比を求め、さらに、照射後の ^{237}Np 箔のガンマ線計測によって捕獲反応の反応率を収

得することとした。

(2) Pb および Bi 置換反応度実験 (H25 および H29)

① Pb および Bi サンプル反応度実験の不確かさ解析

KUCA-A 架台における Pb および Bi の置換反応度測定実験の炉心図を図 3.2.1-1、燃料体の置換パターンについて図 3.2.1-2 に示す。このとき、置換反応度の感度解析は中性子拡散理論に基づく決定論的手法によって行った。ここでは、JENDL-4.0 の共分散データに起因する置換反応度の不確かさを定量的に評価し、置換反応度の不確かさの低減効果を評価した。

② 解析条件

本解析で使用した計算コードについて示す。モンテカルロ法による固有値計算は MCNP6.1 を用いて行った。感度計算には一般化摂動論に基づく感度解析コード SAGEP[3.2.1-11]を使用した。不確かさ解析には原子力機構で整備されている高速炉用炉心解析システム MARBLE[3.2.1-12]コードシステムに内蔵されている UNCERTAINTY[3.2.1-13]を使用した。一連の解析は 107 群で行い、核データライブラリには JENDL-4.0 を使用した。また、断面積の共分散データは JENDL-4.0 に収録されているものを NJOY99 によって 107 群に処理したものを使用した。

③ 結果と考察

1) MCNP6.1 を用いた固有値計算

計算は総ヒストリー数 5×10^{10} ($2.5 \times 10^7 \times 2000$ サイクル) で行い、核データライブラリは JENDL-4.0 を用いた。A1_05 炉心の余剰反応度、A1_05 炉心から Pb or Bi_03X 炉心、Pb or Bi_03Y 炉心、Pb or Bi_04 炉心および Pb or Bi_05 炉心にそれぞれ置換したときの反応度の結果を、計算値と実験値で比較 (C/E 値) (表 3.2.1-1~表 3.2.1-3) した。MCNP6.1 による A1_05 炉心の余剰反応度は、実験値と計算値の誤差が 10%以内であり、両者は非常によく一致した。一方、A1 板から Pb 板または Bi 板に置換したときの計算値は、10%前後の相対誤差で実験値を再現しているものがあるが、置換反応度そのものの絶対値が非常に小さい Bi_03X については実験値を十分な精度で再現することができなかった。

2) SAGEPによる感度解析

SAGEP コードを用いてビスマス同位体核データに対する置換反応度の感度解析を実施した。感度解析の対象とする核種は Pb 同位体および ^{209}Bi であり、反応は非弾性散乱、弾性散乱および中性子捕獲の 3 つとした。

平成 27 年度での Pb 板サンプルワース実験の解析でも言及したとおり、解析対象の KUCA 炉心は熱炉であることを十分に考慮する必要があると考えられる。以下、KUCA 炉心を構成する燃料板 (U-A1 合金) および燃料鞘管 (A1 製) が ^{27}Al から成っていることから、Pb 同位体および ^{209}Bi の感度解析には ^{27}Al のそれと対比させて議論することにする。

感度解析を反応別で比較した結果、最も感度が大きいのは非弾性散乱反応であり、次いで、弾性散乱反応の順番である。中性子捕獲反応に対する感度は主に負であり、これは中性子捕獲断面積が大きくなると、置換反応度の解析値は逆に小さくなることを意味している。

3) UNCERTAINTYによる不確かさ解析

置換反応度の不確かさ解析は、NJOY99 によって処理した JENDL-4.0 の 107 群共分散データを用いて行った。なお、JENDL-4.0 には ^{27}Al 、 ^{12}C および ^1H の共分散データが収録されていないため、不確かさ解析の対象とする核種は U、Pb および Bi 同位体とした。また、 ^{209}Bi の共分散データは JENDL-4.0 には非弾性散乱のみ収録されているため、対象とする反応は非弾性散乱のみとした。解析結果を表 3.2.1-4 および表 3.2.1-5 に示す。核データに起因する置換反応度の不確かさ Pb 板 (5 体置換) および Bi 板 (5 体置換) への置換で、それぞれ 33.1 および 24.4 pcm であった。これは実験値の不確かさ約 8 pcm と比較して大きな値である。核種別では ^{235}U に起因する不確かさが最も大きく、これは主に核分裂反応断面積の不確かさに起因している。一方、Pb および Bi 同位体に起因する不確かさの全体に占める割合はいずれも比較的大きく、この不確かさは主に非弾性散乱によるものであることがわかる。Pb 板および Bi 板の置換反応度解析で導入した炉定数調整法による不確かさ低減については、不確かさが大幅に低減され、実験値と計算値の比較を示した C/E 値もほぼ 1 に近い値を示すことが確認された。

(3) U-Pb/Bi 炉心における静特性実験 (H29)

① 炉心配置図

反応率測定実験は KUCA-A 架台を用いて、未臨界度の異なる 4 つのケース (2483, 4812, 9895 および 11556 pcm) で実施した。KUCA-A 架台の炉心は、通常の燃料体 (F) と、LBE 領域を設けた燃料体 (f) と、半装燃料体 (16) およびポリエチレン反射体 (p) で構成されている。

② 実験条件

KUCA-A 架台における反応率測定実験では幅広いエネルギー領域をカバーするため、 ^{197}Au 、 ^{56}Fe 、 ^{27}Al 、 ^{115}In および ^{58}Ni を放射化箔として選定し、比較的硬い中性子スペクトルの燃料体 (15, M) の背面側に設置した。 $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ 反応により核破砕中性子生成に関する情報を得るため、In 箔は図 3.2.1-3 の (15, L) の位置に設置した。中性子束の情報は In ワイヤ (直径 1 mm、長さ 68 cm) の $^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116\text{m}}\text{In}$ 反応により取得した。In ワイヤは (A, B) 面から -1.5 cm の位置を始点とし、LBE 領域と通常の燃料領域の境界 (13, 14) ラインに沿って設置した (図 3.2.1-3)。In ワイヤおよび (15, M) に設置した箔の反応率はターゲットにおける In 箔の $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ 反応の反応率を用いて規格化される。核破砕中性子は、LBE ターゲットへ FFAG 加速器からの陽子ビームを衝突させることによる核破砕反応により生成した。陽子ビームのエネルギーは 100 MeV、電流は 1.0 nA、パルス周波数は 20 Hz、100 ns とし、ビームの直径を 50 mm とした。なお、ビーム直径は Pb-Bi ターゲット位置でガフクロミックフィルムを用いて測定した結果である。

③ 結果および考察

1) 数値シミュレーション

MCNP6.1 の計算精度を確認するため、MCNP6 のバージョン 1.0 を用いて未臨界度の異なる 4 つの炉心において固有値計算を行い、 k_{eff} を計算した。ライブラリには JENDL-4.0 を使用した。ヒ

ストリ数は1億ヒストリとし、このときの統計誤差は0.00008であった。

FFAG 加速器から 100 MeV の陽子によって生成された核破砕中性子の照射を伴う ADS の反応率計算では、ライブラリとして高エネルギー陽子による核破砕過程に JENDL/HE-2007、輸送計算に JENDL-4.0 および 4 つの異なる未臨界度における反応率計算に JENDL/D-99 を使用した。外部から未臨界炉の中心(15, L)に位置する LBE ターゲットに照射する 100 MeV の陽子源は、直径 50 mm の円形の面からのソースとして模擬した。本研究における反応率は、放射化箔および In ワイヤの volume タリーを用いた評価により得られ、反応率計算の統計誤差は5%以内であった。

2) 反応率分布

熱中性子領域における $^{15}\text{In}(n, \gamma)^{116\text{m}}\text{In}$ と $^{235}\text{U}(n, f)$ の断面積の比例関係を仮定すると、熱中性子束に関する情報はインジウムによる $^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116\text{m}}\text{In}$ 反応を用いて取得されることがわかっている。未臨界状態における反応率計算の精度を確認するため、y 方向に沿った In ワイヤの反応率を未臨界度の異なる 4 つの炉心において測定した。Case I (未臨界度 2483 pcm) における $^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116\text{m}}\text{In}$ 反応の反応率の実験と MCNP6.1 を用いた計算の比較を図 3.2.1-4 に示す。 $^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116\text{m}}\text{In}$ 反応の反応率の実験と計算はよく一致しており、KUCA-A 架台での未臨界状態における反応率の解析に高い信頼性があることが確認できる。この結果を用いて未臨界増倍率 k_s を求めると、表 3.2.1-6 の結果より、ソースタームが k_s に大きく寄与しないことがわかる。

3) 中性子スペクトル

放射化法により測定した Au (裸)、Au (Cd)、Fe、Al、In および Ni 箔の反応率の実験および計算による反応率の比較を (C/E 値) を表 3.2.1-7 および図 3.2.1-5 に示す。未臨界度が 2483 pcm (Case I) では、非閾値エネルギーおよび低エネルギーの閾値反応における反応率の C/E 値は、ほとんどで相対誤差がおよそ 15%以内と、実験値と計算値は非常に良い一致を示している。Al および Fe 箔の高エネルギーの閾値反応の反応率では、反応率の計算値は約 50%および 30%程度の大きな過小評価であることがわかる。他方、未臨界度の増加に伴って (Case II から IV)、未臨界度が大きくなるほど、C/E 値は小さくなることがわかる。これは、中性子スペクトルに依存する反応率解析が明らかに未臨界度に依存していることを示している。

④ スペクトルインデックス (In 比)

^{235}U の核分裂反応は熱中性子によるものと仮定することによって、 ^{235}U の核分裂反応断面積は ^{115}In の (n, γ) 反応の断面積に比例すると考えられる。このとき、MCNP6.1 を用いた計算において、 ^{235}U のワイヤから置換することにより、同じ中性子束において ^{235}U の核分裂および ^{115}In の (n, γ) 反応の反応率を計算することができる。

これらの結果から、熱および高速エネルギー中性子による ^{235}U の核分裂反応の反応率の比は、 ^{115}In の (n, γ) 反応および (n, n') 反応の反応率の比として表すことができる。つまり、熱中性子/高速中性子の比を表す疑似的な中性子スペクトルの指標とみなすことが可能である。本研究では、この疑似的な比を In 比と定義し、MCNP6.1 の計算により求めた熱および高速中性子エネルギー領域における ^{235}U の核分裂反応の反応率からフィッティングした In 比と、計算値および Case I から IV における In 比の実験値との比較を表 3.2.1-8 および図 3.2.1-6 に示す。表 3.2.1-8 の

結果から、 ^{235}U 比と In 比を比較すると相対誤差で 10%程度の違いが見られた。また、In 比の実験値および計算値を比較すると、Case I から IV ではいずれも 5%以内の精度で両者はよく一致した。

(4) U-Pb 炉心における動特性実験 (H29)

① 実験体系

ADS 実験では、LBE ターゲットへの 100 MeV 陽子の照射で発生する核破砕中性子を用いることで動特性パラメータの外部中性子源依存性を検討した。図 3.2.1-7 に示す Pb 装荷 ADS 炉心では、高濃縮ウランおよび Pb 板から構成される燃料体”f”を中央に配置することで高速炉体系を模擬し、その周囲を高濃縮ウランおよびポリエチレン減速材による燃料体”F”で囲み、さらにその周囲をポリエチレン反射体で囲むことで炉心が構成されている。100 MeV の陽子はビームスポット約 10 mm の直径で、10 pA の電流値、20 Hz のパルス周期、および 100 ns のパルス幅で発生させ、図 3.2.1-7 の「は 15」のポリエチレン減速材に貼り付けられた直径 50 mm、厚さ 16 mm の LBE ターゲット上に入射させることで核破砕中性子を発生させた。

ここで、本実験の未臨界度測定は、実機 ADS において炉心内部に検出器を設置できないことから炉心外周に設置された BF_3 検出器を用いて中性子の時系列応答を取得した。未臨界度は、図 3.2.1-7 の基本炉心において制御棒の挿入パターンを変化させることに加え、燃料体をポリエチレン反射体に置換することで約 0.6 $\$$ から 9.0 $\$$ まで変化させた。

② 実験解析

ADS 実験に先駆けて図 3.2.1-7 に示す基本炉心において臨界実験を実施し、基本炉心の余剰反応度および制御棒値を正ペリオド法および落下法の積分法でそれぞれ測定した。測定の結果、余剰反応度は $0.045 \pm 0.008 \% \Delta k/k$ 、C1、C2 および C3 制御棒の値はそれぞれ $0.835 \pm 0.029 \% \Delta k/k$ 、 $0.645 \pm 0.022 \% \Delta k/k$ ならびに $0.256 \pm 0.009 \% \Delta k/k$ であった。臨界実験で得られた反応度は基本炉心の制御棒挿入で得られる未臨界度の参照値を求めるために利用した。

③ 結果と考察

表 3.2.1-9 に Pb 装荷 ADS 実験における未臨界度測定で得られた α 値の変化を示す。参照値は MCNP6.1 と ENDF/B-VII.1 を用いて得られた動特性パラメータおよび測定 (Case I) または計算 (Case II から VII) で得られた未臨界度を用いて求めた。外部中性子源があるときの α 値は Case I から III までは参照値とほとんど一致するが、Case IV から VII まで未臨界度が深くなるにつれて差異が大きくなる傾向が見られた。検出器の位置の依存性については、 $\text{BF}_3\#4$ のみが大きな値を示した。これは検出器が中性子源に近いために核分裂由来の中性子ではなく、中性子源由来の中性子が空間的に広がる時間変化が観察されたと考えられる。

表 3.2.1-10 にドル単位の未臨界度の結果を示す。基本体系の Case I では外部中性子源の有無にかかわらず同等の値を示しており、また、今回の実験において最も深い未臨界度 9 $\$$ まで大きく外れる結果は得られなかった。測定手法間の差異では、面積比法よりも外挿面積比法の方が参照値と良好な一致を示した。検出器の位置依存性では $\text{BF}_3\#2$ が最も良い精度を示しており、中性子束分布に高次モードが励起しても炉心対角方向は高次モードの影響を受けにくいという過去

の知見を再現する結果となった。反対に、BF₃#4 は未臨界度を大幅に過大評価したが、これは α の測定と同様に中性子源の位置に近すぎることが原因であると考えられる。

α の測定では、未臨界度が深くなるにつれ測定は参照値を過小評価したが、ドル単位の未臨界度は測定と参照値がほぼ一致しており、外部中性子源が存在するときに中性子世代 A が著しく増加する可能性を示唆した。未臨界度測定を通して、 β_{eff} の値は外部中性子源が存在する場合においてもほとんど変化しないが、動特性パラメータの A は、固有値計算で得られたものよりも大きくなることが強調される。したがって、実機 ADS の動特性解析ならびに未臨界度測定に用いる動特性パラメータでは外部中性子源を考慮したものが必要であると結論付けることができ、ADS の実現に向けて重要な知見を得ることができた。

(5) 中性子発生量測定実験 (H29)

① 実験体系

陽子ビームのプロファイルは、陽子の通過量に比例して色が変化するガフクロミックフィルムをビームダクト照射で発生する核破砕中性子を用いることで取得した。陽子ビームのプロファイルを測定するために、100 MeV 陽子ビームをパルス周期 20 Hz、ビーム電流値約 30 nA およびビーム幅約 50 ns で 1 分間照射した。照射の結果、ガフクロミックフィルムにより得られた陽子ビームプロファイルは幅 10 mm のひし形上に分布していることがわかり、フランジの直径内でプロファイルが集中していることを把握した。

核破砕中性子のスペクトルは Bi 箔(直径 10 mm、厚さ 3 mm)の $^{209}\text{Bi} (n, xn) ^{210-x}\text{Bi}$ 反応($x=4$ to 8)により推定した。この反応はしきい値反応であり x の値によりエネルギーのしきい値が変化する。Bi のしきい値反応を規格化するために Al 箔(直径 $10 \times$ 厚さ 1 mm)の $^{27}\text{Al} (p, n+3p) ^{24}\text{Na}$ 反応を利用して陽子ビームの収率を取得した。核破砕ターゲットからの中性子収量は In 箔の $^{115}\text{In} (n, n') ^{115m}\text{In}$ 反応を利用して反応率を測定した。中性子スペクトル取得時と同様に、反応率の規格化のために、フランジ終端に Al 箔を貼り付けて $^{27}\text{Al} (p, n+3p) ^{24}\text{Na}$ 反応による反応率を取得した。100 MeV 陽子はパルス周期 20 Hz、ビーム電流値約 65 pA およびビーム幅約 50 ns で 4 時間照射した。

② 結果と考察

Bi 箔を用いた 100 MeV 陽子の LBE ターゲットへの入射で発生した核破砕中性子源スペクトルの測定結果を表 3.2.1-11 に示す。中性子スペクトルの測定実験より少なくとも約 54 MeV までの核破砕中性子が発生することを確かめることができた。また、反応率はしきい値が大きくなるに従って減少していることから、収率は約 23 MeV から減少傾向にあることがわかった。ここで、1700 keV を超える γ 線により得られた反応率は低エネルギーのものとは比べて大きくなる傾向にある。これは、 γ 線を測定した高純度ゲルマニウム検出器において 1300 keV を超える標準線源を用意できなかったために、校正曲線が実際にはドリフトしていることが起因していると考えられる。なお、ターゲットに Bi 箔と重ねて張り付けた Al 箔では、 $^{27}\text{Al} (n, \alpha) ^{24}\text{Na}$ 反応の反応率は検出限界以下であり観測できなかった。そのため、照射後にフランジ部に貼り付けた Al 箔から放出される 1368 keV の γ 線によって推定された反応率は、陽子との反応のみで得られたものであると考えられる。

100 MeV 陽子の照射によって得られた $^{27}\text{Al}(p, n+3p)^{24}\text{Na}$ 反応率と核破砕中性子の照射によって得られた $^{115}\text{In}(n, n')^{115\text{m}}\text{In}$ 反応率の実験値を表 3.2.1-12 に示す。これらの実験結果から、100 MeV 陽子および核破砕中性子の発生量のモニタリングが可能であることが示された。

(6) マイナーアクチノイド照射実験 (H29)

① 実験条件

1) 核破砕中性子源による照射実験

100 MeV 陽子と LBE ターゲットによる照射実験は KUCA の A 架台で実施した。実験体系を図 3.2.1-8 に示す。MA 箔は BTB チェンバ (直径 40 mm、高さ 42 mm) 内に一度の実験で ^{237}Np または ^{241}Am のどちらかの MA 箔と ^{235}U 箔 (10 μg) を貼り付け、図 3.2.1-8 の「の 15」ビーム中心位置に設置した。箔の照射に BTB チェンバを用いる特長として、箔を背中合わせに設置しているため同一の中性子束の下で照射されていると仮定でき、計数の比がサンプルの反応数の比となる。また、照射後のガンマ線測定による反応率の測定における検出効率の精度を考慮しなくても良く、精度の高い測定となると考えられる。 ^{237}Np および ^{241}Am の核分裂反応率測定の精度を高めるために、核データの精度が両核種よりも高いと考えられる ^{235}U の核分裂反応率を規格化に用いた。

照射実験に先駆けて、BTB チェンバの健全性を確認するために高電圧 (300 V) をかけた状態にし、オシロスコープを用いて電圧の変化により検出信号が確認した。中性子の照射前であり波高も低い ^{237}Np 箔から発する α 線であると考えられ、同様に ^{235}U 箔についても α 線放出を確認することで BTB チェンバ内に MA 箔および ^{235}U 箔の設置が妥当であることがわかった。100 MeV 陽子を用いた照射実験では、陽子加速器を周期 20 Hz、ビーム幅約 100 ns および電流 47 pA の条件で 3 時間運転し BTB チェンバからの波高分布を取得するとともに、Au 箔 (直径 3 mm 厚さ 0.05 mm 2 枚) を BTB チェンバ後方に貼り付けた。

2) 臨界炉心を用いた照射実験

本実験では、核破砕中性子だけでなく KUCA において高速炉を模擬した炉心の高濃縮ウラン-鉛炉心 (HEU-Pb 炉心) においても MA 箔の照射実験を実施した。照射実験に用いた臨界炉心を図 3.2.1-9 に示す。炉心は、1/16" 厚の高濃縮ウラン板 2 枚と 1/8" 厚のポリエチレン減速板の組み合わせを 1 セルとし、60 セル繰り返して上下をポリエチレン反射体で挟んだ燃料体 "F"、燃料体 F の中央 40 セル分にポリエチレン減速材の代わりに鉛が装荷された鉛装荷燃料体 "f"、その周囲に制御棒およびポリエチレン反射体を配置した。

BTB チェンバは「そ 15」に設置し、BTB チェンバを挿入した鞘管に直径 8 mm 厚み 0.05 mm の金箔を貼り付けた。炉心は制御棒 C1 を用いて臨界状態を約 1 時間保ち、出力は 3.5 W であった。図 3.2.1-9 に示す燃料体 f 中央の照射スポット (HEU-Pb zone) では、JAEA で提唱されている炉心のスペクトルと比較すると、熱中性子がわずかに存在しているがスペクトルのピーク値は JAEA のものよりも硬いことがわかる。

② 結果および考察

図 3.2.1-10 に示す波高分布において、 ^{237}Np 箔では 20 チャンネル、 ^{241}Am 箔では 40 チャンネル付近で γ 線の計数が無くなっており、通常の臨界炉心ではそれらを超えるカウントが核分裂反

応に起因する計数と考えられる。しかし、 ^{237}Np 箔では核分裂反応に起因する波高では見られない 220 チャンネルでピークが見られ、さらにチャンネルの増加に従い計数も増加していた。これは、100 MeV 陽子が LBE ターゲットに衝突して発生する γ 線が BTB チェンバ内に入射し、作動ガスを電離させたことによる誤計数となっている可能性が実験結果から考察される。 ^{241}Am 箔については、計数がチャンネル全体にわたって一定であるために核分裂反応を検出できた可能性は低いことが考えられる。一方、照射実験終了後、BTB チェンバから ^{237}Np 箔を取り出し、当該箔から放出される γ 線を高純度ゲルマニウム検出器で計数したところ、68 時間の計測で 213 カウントを得た。このカウントを捕獲反応率に換算すると ^{237}Np の捕獲反応率は $(1.21 \pm 0.97) \times 10^7$ $1/\text{cm}^3/\text{s}$ 、 ^{197}Au の捕獲反応率: $(1.34 \pm 0.11) \times 10^8$ $1/\text{cm}^3/\text{s}$ という結果が得られ、 ^{237}Np の捕獲反応は十分な精度で測定ができたと考えられる。以上の結果から、 ^{237}Np 箔および ^{241}Am 箔の核分裂反応および捕獲反応の測定では、核破砕反応に起因する γ 線の影響を低減することで、より精度の高い計数が可能ではないかと考えられる。

図 3.2.1-11 に示すように、 ^{237}Np 箔において ^{235}U 箔と同様に波高分布において 2 つのピークが見られたため、 ^{237}Np の核分裂を計数できたと考えられる。 ^{241}Am についても同様の結果を得ることができた。これらの箔を用いた反応率比は、 $^{237}\text{Np}/^{235}\text{U}$ および $^{241}\text{Am}/^{235}\text{U}$ でそれぞれ 0.07078 および 0.04451 であった。また、 ^{237}Np および ^{197}Au の捕獲反応率はそれぞれ $(1.01 \pm 0.13) \times 10^8$ $1/\text{cm}^3/\text{s}$ および $(9.86 \pm 0.88) \times 10^7$ $1/\text{cm}^3/\text{s}$ であることから、 ^{237}Np の捕獲断面積を 100 MeV 陽子を用いた場合と比較すると、100 MeV 陽子による照射においても γ 線の影響を低減させて照射時間をおよそ 8 倍にすれば、臨界炉心と同程度の精度で実験が可能であると結論付けることができる。

(7) まとめ

KUCA-A 架台で実施された Pb および Bi の置換反応度測定実験を行い、置換反応度の感度解析と JENDL-4.0 の共分散に起因する置換反応度の不確かさ解析について、以下のような知見を得ることができた。不確かさ解析では、Pb および Bi 同位体に起因する不確かさの全体に占める割合は比較的大きく、この不確かさは主に非弾性散乱に起因するものであった。ただし、KUCA の固体減速架台では炉心構造物で U-Al 合金の燃料板や Al 製の燃料鞘管を構成する ^{27}Al の感度は、感度解析の対象とした非弾性散乱反応、弾性散乱反応および捕獲反応のいずれの反応においても大きいことがわかった。

KUCA において 100 MeV 陽子を用いた ADS 体系において反応率測定実験を行い、4 つの異なる未臨界体系において MCNP6.1 を用いた計算精度を評価した。実験および MCNP6.1 を用いた計算との比較を行い、 $^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116\text{m}}\text{In}$ 反応率は実験とよく一致し、計算精度には高い信頼性が確保されていることを確認した。実験と ADS の炉心内に設置した放射化箔の反応率は、未臨界度が大きくなるほど、全ての放射化箔の反応率の C/E 値は大きくなる傾向が見られた。また、スペクトルの疑似的な指標として In 比を新たに定義し、In 比が ADS のスペクトルに関する重要な指標になることを示した。

動特性パラメータの測定において、外部中性子源が存在するときに中性子世代 A が著しく増加する可能性を示唆し、固有値計算で得られたものよりも大きくなることがわかった。したがって、実機 ADS の動特性解析ならびに未臨界度測定に用いる動特性パラメータでは、外部中性子源

を考慮したものが必要であると結論付けることができ、ADS の実現に向けて重要な知見を得ることができた。Bi 箔および In 箔を用いた一連の照射実験によって、中性子源のスペクトルならびに収率を実験的に取得することができた。これらの基礎データは、Pb および Bi と陽子の核反応を収録する核データライブラリの精度向上に貢献できると考えられる。

ADS の設計精度向上のために核的パラメータの不確かさの主要因である ^{237}Np および ^{241}Am の核分裂反応率を ^{235}U の核分裂反応率との比として、また、捕獲反応率を照射実験後の γ 線測定により取得した。100 MeV の陽子を LBE ターゲットに入射することで得られた核破砕中性子を用いた照射実験では、核分裂反応率の有効な波高を得ることができなかったが、照射後の ^{237}Np 箔の γ 線計測によって捕獲反応率という貴重なデータを取得することができた。さらに、高速炉を模した臨界炉心の硬い中性子スペクトル中における MA の照射では、3.5 W まで炉心出力を上げることで核分裂反応に起因する有意な計数を得ることができ、加えて、照射後に ^{237}Np の捕獲反応率を取得することに成功した。このことにより、ADS 実機において炉心中での核変換の挙動が把握できる有益な基礎データが取得できたと考えられる。また、臨界照射において得られた捕獲反応率を核破砕中性子源によるものと比較すると、核破砕中性子源を用いた照射でも、核破砕反応で発生する γ 線のチェンバ内への入射を少なくし照射時間を増加させることができれば、核分裂反応率が得られることが裏付けられた。今後、核破砕中性子源を用いた MA の核データの精度検討が加速的に進むものと考えられる。

参考文献

- [3.2.1-1] K. Nishihara, K. Iwanaga, K. Tsujimoto et al., “Neutronics Design of Accelerator-Driven System for Power Flattening and Beam Current Reduction,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **45**, 812 (2008).
- [3.2.1-2] T. Sugawara, K. Nishihara, K. Tsujimoto et al., “Analytical Validation of Uncertainty in Reactor Physics Parameters for Nuclear Transmutation Systems,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **47**, 521 (2010).
- [3.2.1-3] K. Tsujimoto, T. Sasa, K. Nishihara, H. Oigawa et al., “Neutronics design for lead-bismuth cooled accelerator-driven system for transmutation of minor actinide,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **41**, 21 (2004).
- [3.2.1-4] H. Oigawa, K. Tsujimoto, K. Kikuchi, Y. Kurata et al., “Design study around beam window of ADS,” *Proc. 4th Int. Workshop on the Utilisation and Reliability of High Power Proton Accelerators (HPPA4)*, Daejeon, Korea, May 16-19, 2004 (2004).
- [3.2.1-5] K. Shibata, T. Kawano, T. Nakagawa et al., “Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 3 Revision-3: JENDL-3.3,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **39**, 1125 (2002).
- [3.2.1-6] K. Shibata, O. Iwamoto, T. Nakagawa et al., “JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **48**, 1 (2011).
- [3.2.1-7] H. Iwamoto, K. Nishihara, T. Sugawara et al., “Sensitivity and Uncertainty Analysis for an Accelerator-Driven System with JENDL-4.0,” *J. Nucl. Sci.*

- Technol.*, **50**, 856 (2013).
- [3.2.1-8] C. H. Pyeon, T. Misawa, J. Y. Lim et al., “First Injection of Spallation Neutrons Generated by High-Energy Protons into the Kyoto University Critical Assembly,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, **46**, 1091 (2009).
- [3.2.1-9] C. H. Pyeon, T. Azuma, Y. Takemoto et al., “Experimental Analyses of External Neutron Source Generated by 100 MeV Protons at the Kyoto University Critical Assembly,” *Nucl. Eng. Technol.*, **45**, 81 (2013).
- [3.2.1-10] C. H. Pyeon, H. Nakano, M. Yamanaka et al., “Neutron Characteristics of Solid Targets in Accelerator-Driven System with 100 MeV Protons at Kyoto University Critical Assembly,” *Nucl. Technol.*, **192**, 181 (2015).
- [3.2.1-11] A. Hara, T. Takeda and Y. Kikuchi, “SAGEP” : Two-Dimensional Sensitivity Analysis Code Based on Generalized Perturbation Theory,” JAERI-M 84-027 (1984).
- [3.2.1-12] K. Yokoyama, T. Hazama, K. Numata, *et al.*, “Development of Comprehensive and Versatile Framework for Reactor Analysis, MARBLE,” *Ann. Nucl. Energy*, **66**, 51 (2014).
- [3.2.1-13] K Yokoyama, 「工学系モデリング言語としての次世代解析システムの開発(VI) —炉定数調整・核設計精度評価ソルバーの開発—」, JAEA-Data/Code 2007-023 (2008).

表 3.2.1-1 Al 炉心 (Reference 炉心) の余剰反応度における実験と計算の比較

Core	Experiment [pcm]	Calculation [pcm]	C/E
Al_05 (Pb core)	92 ± 5	98 ± 1	1.07 ± 0.06
Al_05 (Bi core)	87 ± 1	88 ± 1	1.01 ± 0.06

表 3.2.1-2 置換反応度 (Al 板から Pb 板への置換) における実験と計算の比較

Core	Calculation [pcm]	Experiment [pcm]	C/E
Pb_03X	87 ± 3	94 ± 7	0.93 ± 0.11
Pb_03Y	94 ± 3	110 ± 6	0.85 ± 0.09
Pb_04	141 ± 3	145 ± 6	0.97 ± 0.07
Pb_05	147 ± 3	156 ± 7	0.94 ± 0.06

表 3.2.1-3 置換反応度 (Al 板から Bi 板への置換) における実験と計算の比較

Core	Calculation [pcm]	Experiment [pcm]	C/E
Bi_03X	41 ± 8	56 ± 3	0.73 ± 0.15
Bi_03Y	76 ± 8	78 ± 3	0.97 ± 0.11
Bi_04	68 ± 8	76 ± 3	0.89 ± 0.11
Bi_05	78 ± 8	84 ± 5	0.93 ± 0.11

表 3.2.1-4 JENDL-4.0 の共分散 (107 群) に起因する Pb 置換反応度の不確かさ

Isotopes	Reactions					Total
	Capture	Elastic	Inelastic	Fission	(n, 2n)	
²³⁵ U	19.4	1.9	4.1	9.7	0.1	22.2
²³⁸ U	2.6	0.0	0.3	0.1	0.0	2.6
²⁰⁴ Pb	0.1	-0.4	1.6	/	0.0	1.7
²⁰⁶ Pb	-1.0	-4.9	20.0	/	-0.8	19.4
²⁰⁷ Pb	0.9	-2.6	9.0	/	1.5	8.8
²⁰⁸ Pb	-0.6	2.2	11.3	/	3.1	11.9
					Total	33.1

表 3.2.1-5 JENDL-4.0 の共分散 (107 群) に起因する Bi 置換反応度の不確かさ

Isotopes	Reactions					Total
	Capture	Elastic	Inelastic	Fission	(<i>n</i> , 2 <i>n</i>)	
²³⁵ U	19.4	1.9	4.1	9.7	0.1	22.2
²³⁸ U	2.6	0.0	0.3	0.1	0.0	2.6
²⁰⁹ Bi	-	-	10.0		-	10.0
					Total	24.4

表 3.2.1-6 Case I~IV における k_s の実験値および計算値 (MCNP6.1) の比較

Case	Calculation	Experiment
I	0.9989 ± 0.0005	0.9996 ± 0.0008
II	0.9997 ± 0.0005	0.9991 ± 0.0009
III	0.9990 ± 0.0005	0.9991 ± 0.0009
IV	0.9985 ± 0.0005	0.9989 ± 0.0005

表 3.2.1-7 Case I~IV における放射化反応率の実験値と計算値の比較 (C/E 値)

Reaction	Case I	Case II	Case III	Case IV
¹⁹⁷ Au(<i>n</i> , γ) ¹⁹⁸ Au (bare)	1.14 ± 0.09	0.96 ± 0.06	0.90 ± 0.06	0.75 ± 0.07
¹⁹⁷ Au(<i>n</i> , γ) ¹⁹⁸ Au (Cd)	1.10 ± 0.09	0.81 ± 0.05	0.80 ± 0.06	0.71 ± 0.07
¹¹⁵ In(<i>n</i> , <i>n'</i>) ^{115m} In (Core)	0.86 ± 0.02	0.69 ± 0.04	0.52 ± 0.01	0.47 ± 0.02
⁵⁸ Ni(<i>n</i> , <i>p</i>) ⁵⁸ Co	0.99 ± 0.04	0.74 ± 0.03	0.59 ± 0.03	0.67 ± 0.04
⁵⁶ Fe(<i>n</i> , <i>p</i>) ⁵⁶ Mn	0.60 ± 0.03	0.54 ± 0.03	0.47 ± 0.02	0.40 ± 0.02
²⁷ Al(<i>n</i> , α) ²⁴ Na	0.47 ± 0.01	0.26 ± 0.02	0.19 ± 0.01	0.22 ± 0.02

表 3.2.1-8 Case I~IV における In 比の実験値と計算値の比較

Case	²³⁵ U fission ratio in Eq. (8)		In ratio in Eq. (11)	
	Calculation	Calculation	Experiment	C/E
I	$(5.16 \pm 0.08) \times 10^{-3}$	$(4.62 \pm 0.08) \times 10^{-3}$	$(4.52 \pm 0.10) \times 10^{-3}$	1.02 ± 0.03
II	$(2.21 \pm 0.10) \times 10^{-3}$	$(2.15 \pm 0.10) \times 10^{-3}$	$(2.17 \pm 0.10) \times 10^{-3}$	0.99 ± 0.07
III	$(1.79 \pm 0.07) \times 10^{-3}$	$(1.60 \pm 0.07) \times 10^{-3}$	$(1.57 \pm 0.11) \times 10^{-3}$	1.02 ± 0.08
IV	$(1.70 \pm 0.09) \times 10^{-3}$	$(1.54 \pm 0.09) \times 10^{-3}$	$(1.48 \pm 0.10) \times 10^{-3}$	1.04 ± 0.10

表 3.2.1-9 核破碎中性子源を用いたパルス中性子法で得られた即発中性子減衰定数 α

Case (参照値)	Neutron decay constants α [1/s] by fitting method			
	BF ₃ #1 (わ 15)	BF ₃ #2 (か 19)	BF ₃ #3 (な 20)	BF ₃ #4 (み 20)
I-1 (478±9)	479.3 ± 3.1	481.7 ± 3.3	484.3 ± 1.6	516.7 ± 4.9
I-2 (555±10)	539.5 ± 10.2	548.9 ± 5.9	557.8 ± 2.7	645.4 ± 10.3
I-3 (749±12)	775.7 ± 6.0	791.6 ± 6.7	803.1 ± 3.1	868.3 ± 11.13
I-4 (632±10)	615.5 ± 1.6	612.9 ± 4.7	621.5 ± 2.3	704.5 ± 9.5
I-5 (884 ± 13)	901.6 ± 2.8	894.9 ± 14.4	911.2 ± 6.5	1041.8 ± 29.3
II (397±11)	378.9 ± 2.3	375.3 ± 2.1	377.5 ± 1.1	377.5 ± 3.5
III (754±12)	697.6 ± 5.3	692.0 ± 5.0	699.7 ± 2.8	706.4 ± 8.9
IV (1156±15)	1047.4 ± 10.1	1036.2 ± 10.3	1035.2 ± 5.5	1046.5 ± 19.9
V (1279±15)	1142.7 ± 11.0	1143.4 ± 10.7	1167.8 ± 7.5	2179.8 ± 535.3
VI (1359±15)	1214.7 ± 5.1	1227.6 ± 4.7	1162.7 ± 13.5	1616.9 ± 23.5
VII (1932±15)	1615.9 ± 10.3	1664.0 ± 9.5	1675.1 ± 7.4	2546.6 ± 43.4

表 3.2.1-10 面積比法および外挿面積比法によるドル単位の未臨界度 ρ_s

Case (参照値)	Subcriticality in dollar unit ρ_s [\$]			
	by area ratio method and (extrapolated area ratio method)			
	BF ₃ #1 (わ 15)	BF ₃ #2 (か 19)	BF ₃ #3 (な 20)	BF ₃ #4 (み 20)
I-1 (0.996±0.039)	0.895±0.001 (0.907±0.002)	0.968±0.006 (1.081±0.007)	0.970±0.004 (1.057±0.004)	0.884±0.001 (0.898±0.003)
I-2 (1.319±0.041)	1.310±0.007 (1.363±0.012)	1.212±0.024 (1.353±0.032)	1.208±0.009 (1.341±0.020)	1.336±0.003 (1.432±0.015)
I-3 (2.131±0.051)	1.834±0.004 (1.864±0.008)	1.949±0.018 (2.349±0.026)	2.048±0.012 (2.394±0.016)	1.801±0.005 (1.873±0.0141)
I-4 (1.641±0.043)	1.398±0.006 (1.525 ±0.008)	1.464±0.025 (1.664±0.031)	1.456±0.008 (1.639±0.011)	1.623±0.003 (1.746±0.011)
I-5 (2.694±0.057)	2.343±0.013 (2.689±0.019)	2.181±0.087 (2.649±0.119)	2.414±0.038 (2.854±0.050)	2.909±0.016 (3.177±0.059)
II (0.673±0.011)	0.638±0.003 (0.836±0.006)	0.637±0.002 (0.699±0.002)	0.647±0.002 (0.694±0.002)	1.399±0.006 (0.700±0.002)
III (2.209±0.028)	2.043±0.012 (3.318±0.033)	2.029±0.010 (2.460±0.013)	2.128±0.007 (2.446±0.008)	8.132±0.072 (2.504±0.014)
IV (4.079±0.051)	3.693±0.024 (4.890±0.055)	3.661±0.021 (4.765±0.037)	3.921±0.014 (4.692±0.021)	27.699±0.317 (4.921±0.059)
V (5.104±0.063)	4.858±0.137 (5.441±0.174)	4.834±0.067 (5.332±0.092)	5.008±0.049 (5.388±0.066)	- -
VI (5.826±0.073)	5.306±0.061 (6.025±0.079)	5.354±0.030 (6.023±0.043)	5.556±0.022 (5.973±0.030)	7.888±0.010 (8.108±0.144)
VII (9.000±0.110)	8.718±0.167 (9.542±0.209)	8.364±0.076 (9.003±0.111)	8.932±0.058 (8.849±0.080)	15.485±0.029 (17.614±0.575)

表 3.2.1-11 核破砕中性子による $^{209}\text{Bi} (n, xn) ^{210-x}\text{Bi}$ 反応 ($x = 4$ to 8) および 100 MeV 陽子による $^{27}\text{Al} (p, n+3p) ^{24}\text{Na}$ 反応の反応率 (実験値)

Reaction	Threshold energy [MeV]	Half-life	γ -ray energy [keV] (emission rate)	Reaction rate [1/cm ³ /s]
$^{209}\text{Bi} (n, 4n) ^{206}\text{Bi}$	22.52	6.24 d	803.1 (0.990)	$(2.84 \pm 0.05) \times 10^3$
			881.1 (0.662)	$(2.95 \pm 0.15) \times 10^3$
			1718.7 (0.319)	$(3.19 \pm 0.27) \times 10^3$
$^{209}\text{Bi} (n, 5n) ^{205}\text{Bi}$	29.62	15.31 d	703.5 (0.310)	$(1.31 \pm 0.29) \times 10^3$
			1764.3 (0.325)	$(5.27 \pm 0.78) \times 10^3$
$^{209}\text{Bi} (n, 6n) ^{204}\text{Bi}$	38.13	11.22 h	374.8 (0.820)	$(5.61 \pm 0.20) \times 10^2$
			899.15 (0.990)	$(4.97 \pm 0.58) \times 10^2$
			983.98 (0.590)	$(4.97 \pm 0.71) \times 10^2$
$^{209}\text{Bi} (n, 7n) ^{203}\text{Bi}$	45.37	11.76 h	822.7 (0.448)	$(1.87 \pm 0.24) \times 10^2$
			896.9 (0.132)	Not available
			1847.3 (0.116)	$(2.44 \pm 0.78) \times 10^2$
$^{209}\text{Bi} (n, 8n) ^{202}\text{Bi}$	54.24	1.67 h	422.1 (0.840)	$(2.37 \pm 0.27) \times 10^1$
			657.5 (0.606)	$(1.56 \pm 0.32) \times 10^1$
			960.7 (1.070)	$(1.33 \pm 0.43) \times 10^1$
$^{27}\text{Al} (p, n+3p) ^{24}\text{Na}$	-	15.00 h	1368.6 (0.999)	$(2.56 \pm 0.01) \times 10^5$

表 3.2.1-12 核破砕中性子による $^{115}\text{In} (n, n') ^{115\text{m}}\text{In}$ 反応および 100 MeV 陽子による $^{27}\text{Al} (p, n+3p) ^{24}\text{Na}$ 反応の反応率 (実験値)

Reaction	Threshold energy [MeV]	Half-life	γ -ray energy [keV] (emission rate)	Reaction rate [1/cm ³ /s]
$^{27}\text{Al} (p, n+3p) ^{24}\text{Na}$	-	15.00 h	1368.6 (0.999)	$(1.16 \pm 0.01) \times 10^5$
			2754.0 (0.999)	$(1.05 \pm 0.01) \times 10^5$
$^{115}\text{In} (n, n') ^{115\text{m}}\text{In}$	0.32	4.49 h	336.24 (0.459)	$(1.38 \pm 0.03) \times 10^4$

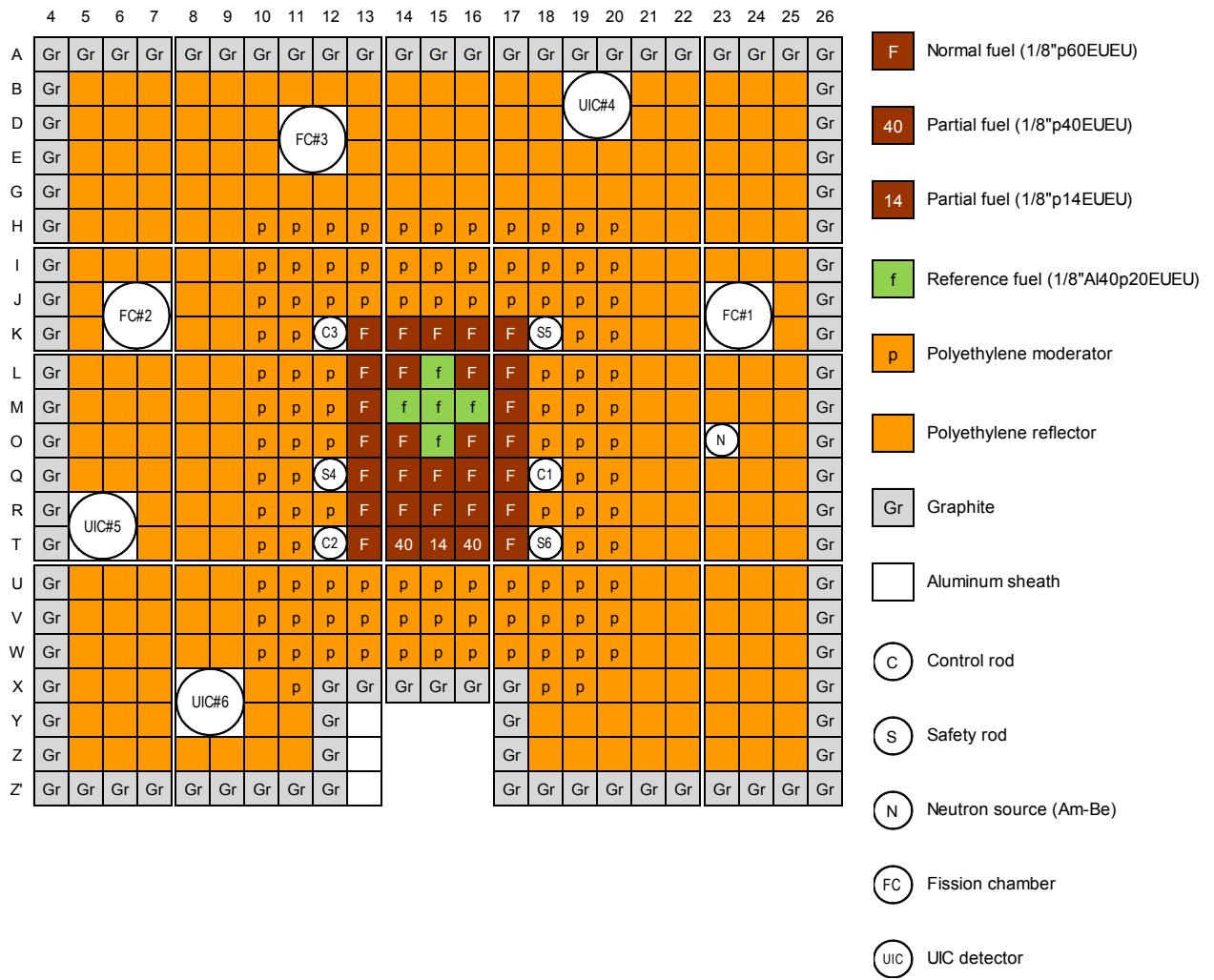


図 3.2.1-1 KUCA-A 架台における置換反応度実験の体系の平面図

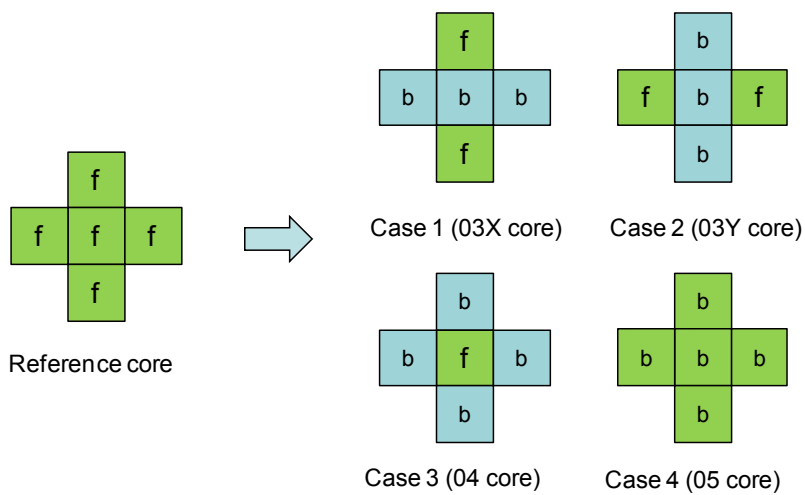


図 3.2.1-2 Al から Bi への置換パターン

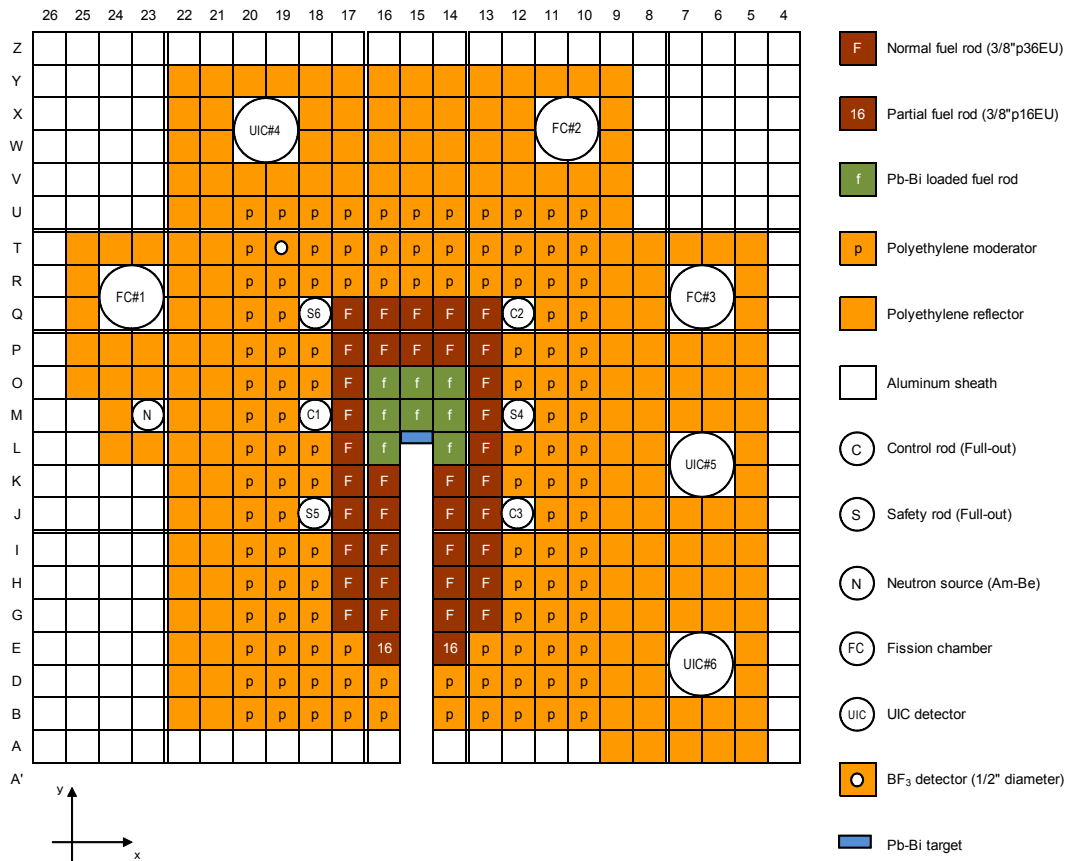


図 3.2.1-3 KUCA-A 架台における反応率実験の体系の平面図 (U-Pb/Bi 炉心)

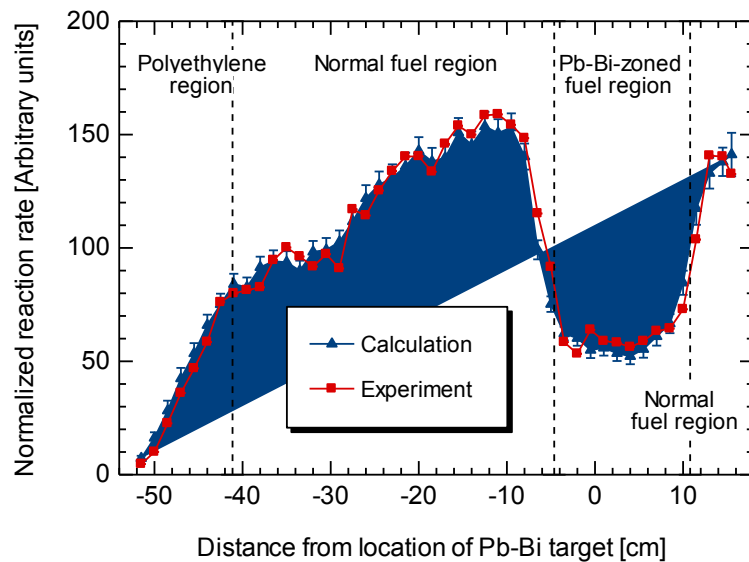


図 3.2.1-4 Case I における (14-13, P-A) 領域における $^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116\text{m}}\text{In}$ 反応率分布の実験値と計算値の比較

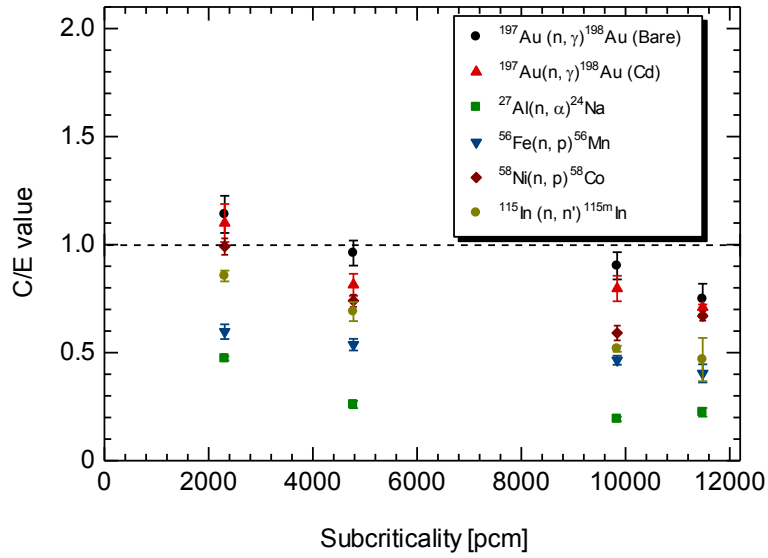


図 3.2.1-5 Case I~IV における放射化反応率の実験値と計算値の比較 (C/E 値)

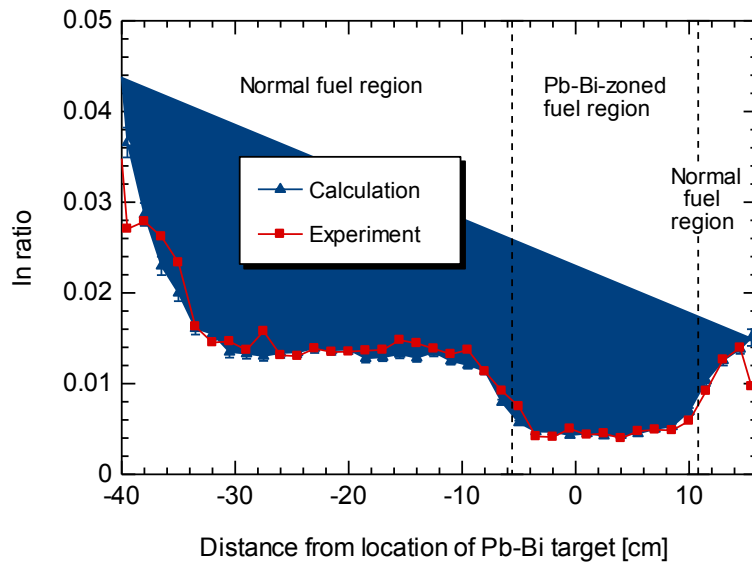
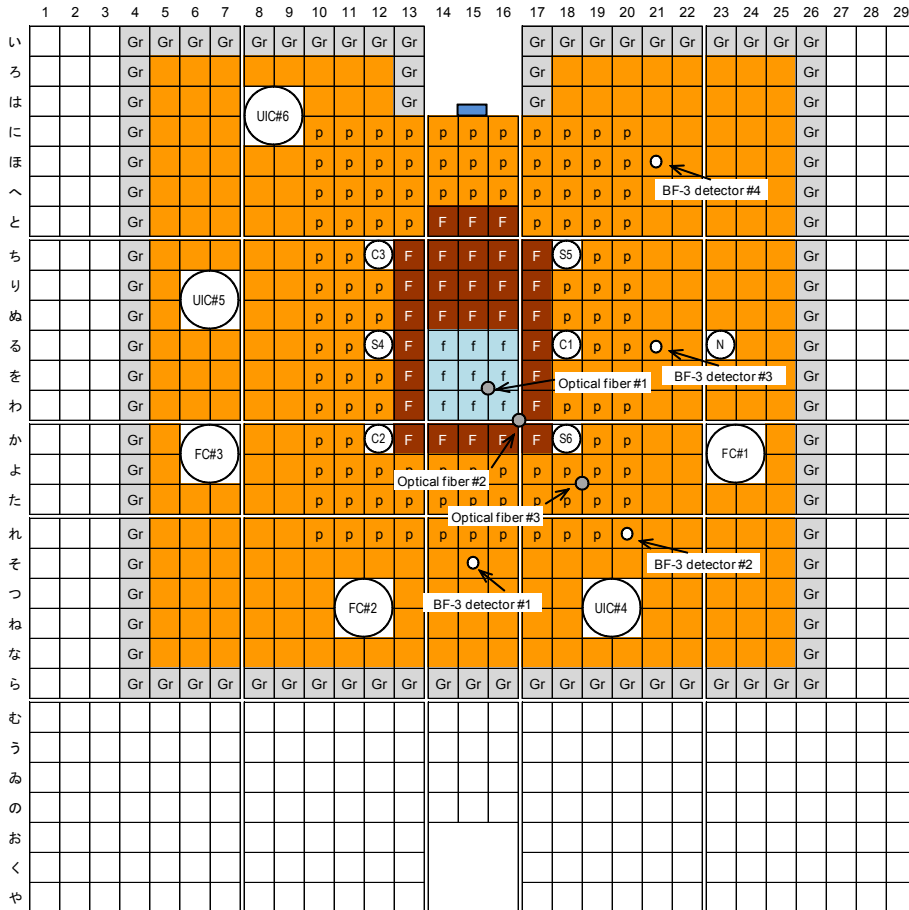
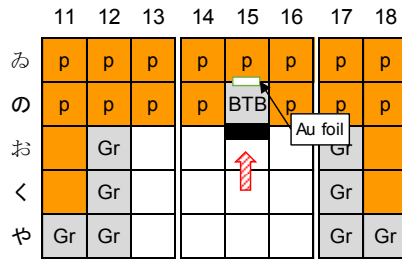


図 3.2.1-6 Case I における In 比の実験値と計算値の比較



- | | |
|--|------------------------|
| Normal fuel (1/8"p60EUEU) | Control rod |
| Special fuel (1/8"Pb40p20EUEU)
1/8"p10EUEU<1/8"Pb40EUEU>1/8"10pEUEU | Safety rod |
| Polyethylene moderator | Neutron source (Am-Be) |
| Polyethylene reflector | Fission chamber |
| Graphite | UIC detector |
| Aluminum sheath | Pb-Bi target |
| 1/2" BF-3 detector | |
| Optical fiber | |

図 3.2.1-7 KUCA-A 架台における動特性実験の体系の平面図 (U-Pb 炉心)









-  Proton beams
-  Lead-bismuth target
-  New polyethylene reflector
-  Polyethylene reflector
-  Aluminum void sheath
-  Graphite

図 3.2.1-8 核破碎中性子源による照射

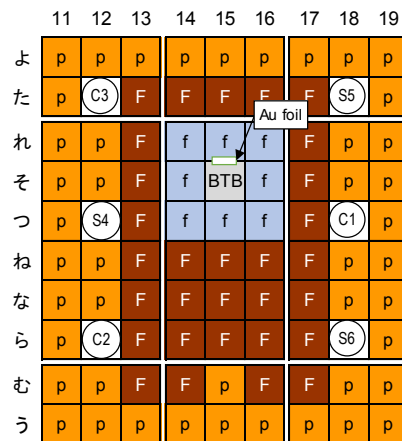


図 3.2.1-9 MA 箔照射実験に用いた臨界炉心

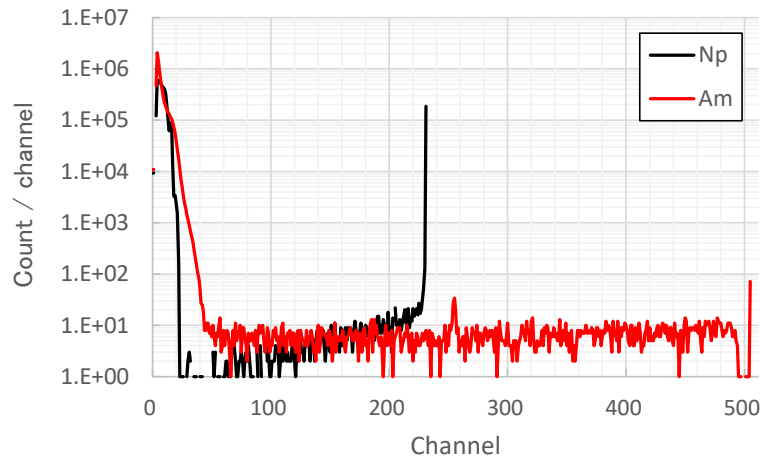


図 3.2.1-10 核破砕中性子源を用いた照射実験における BTB チェンバからの信号

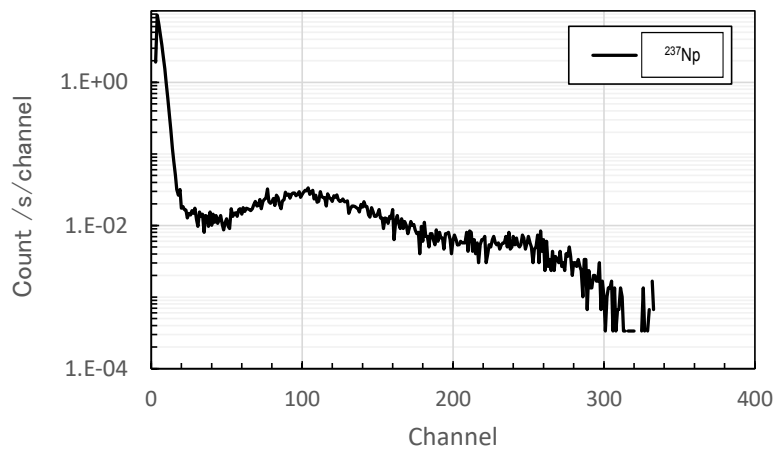


図 3.2.1-11 臨界照射で得られた ^{237}Np の核分裂反応に伴う BTB チェンバからの波高分布

3.2.2 工学的成立性の高いADS プラント技術開発 (H25-H28)

(1) 信頼性を向上した ADS 用加速器の開発 (H25~H28)

① 目的

既報[3.2.2(1)-1]において、ADS 用加速器として、大電流の陽子 ($1.5 \text{ GeV} \times 20 \text{ mA} = 30 \text{ MW}$) を連続ビームで効率良く加速できる超伝導線型加速器を候補とした。この加速器を選定した理由として、サイクロトロン等の円形加速器を用いた場合、その出力が 10 MW 程度が上限となり、線型加速器より低いからである。また、超伝導加速空洞を用いることで、加速器のエネルギー効率を向上できるからである。現在のところ、この超伝導線型加速器によって、100 MW 程度の給電で 30 MW の陽子ビームを加速できる見込みである。

ADS 用加速器に求められる要件に信頼性がある。超伝導線型加速器では、通常の加速器と同様に頻繁に高電圧部の放電等によるビームの不意の停止（以下、「ビームトリップ事象」と記す。）を起こしては、その都度、未臨界炉の出力が下がるため、未臨界炉の構成機器が熱サイクル疲労で損傷する可能性がある。また、5 分を超えるような加速器の停止時には発電系までも含めて再起動が必要となり、ADS プラント稼働率が極端に悪くなる可能性がある。

そこで、ビームトリップ頻度を低減させ、信頼性を向上させた ADS 用加速器を開発するため、主要な加速器要素に冗長性を持たせる並列化を検討する。また、陽子ビームの安定性を向上させ、短尺化を図るため、低エネルギー加速部、特にビームエネルギーが 100MeV より低い領域における空洞を超伝導化するために必要な検討を行う。これらの検討により、ADS 用加速器の仕様を提示する。

② ビームトリップ頻度を低減させる並列化の方法 (H25~H27)

ビームトリップ頻度を低減させるためには、ビームトリップ事象を発生させる主要な設備に適度な冗長性を持たせることが必要になる。今回、次項に示す考えに基づき、加速器に適度な冗長性を持たせる並列化を検討した。ここで、「低エネルギー加速部」は、ビームエネルギー 100 MeV 以下の加速器の構成部分を示し、具体的には、イオン源、RFQ (Radio Frequency Quadrupole)、DTL (Drift Tube Linac) などが該当する。また「高エネルギー加速部」は、ビームエネルギーが 100 MeV から 1.5 GeV までの加速器の構成部分を示し、具体的には超伝導加速空洞を用いた部分とする。

- 1) 高エネルギー加速部の途中で複数のビームを合流させることは、ビーム輸送やビーム制御の観点から困難である。このため、並列化方法として、低エネルギー加速部を並列化し、高エネルギー加速部の直前でビームを合流させた場合と、加速器全体を並列化し、未臨界炉心の直前でビームを合流させた場合の二種類を候補概念とする。すなわち、前者では、低エネルギー加速部で加速されたエネルギー 100 MeV 程度のビームを DC 偏向電磁石で曲げ、RF キッカーで高エネルギー加速部に入射させる並列化である。また、後者では、各高エネルギー加速部（加速器）の出口から出射したビームを未臨界炉上に設置した DC 偏向電磁石で鉛直下方に曲げ、ビーム窓まで輸送する並列化である（図 3.2.2-1 および図 3.2.2-2 参照）。ただし、高エネルギー加速部（加速器）の出口からビーム窓までのビームライン（以下、「最終ビームライン」と記す。）の途中で、お互いのビーム軌道を合流させる。
- 2) 加速器の建設費や運転維持費などを抑えるため、並列化の多重度を 2 とする。

- 3) 加速器に冗長性を持たせる方法として、待機系を構築する方法がある。待機系における待機の仕方として、待機している機器を常に動作状態にしておくホットスタンバイ（熱予備）、待機している機器に予め動作に必要なエネルギーの一部を供給しておき、運転へ切り換えるときに全エネルギーを与えるウォームスタンバイ（温予備）、そして、運転へ切り換えるときまで完全に停止させておくコールドスタンバイ（冷予備）の三種類が考えられる。今回の検討では、ウォームスタンバイおよびコールドスタンバイは運転へ切り換えるときの信頼性を評価できるデータが無いため除外し、ホットスタンバイを選択する。
- 4) ホットスタンバイの並列化として、並列化した各々のビームラインでは、常時ビームが輸送されていると仮定する。例えば、多重度を2とする並列化した加速器の場合、各ビームラインには未臨界炉へ入射するビーム電流の半分のビームが輸送されている。

次に、低エネルギー加速部の機器を並列化した場合（以下、「低エネルギー加速部を並列化」と記す。）と加速器全体を並列化した場合（以下、「加速器出口までを並列化」と記す）の二種類について、技術的な面から見た長所および短所を抽出し、表 3.2.2-1 にまとめる。また、同表で抽出した問題点（短所）を現状の技術水準で解決する困難さを評価し、表 3.2.2-2 にまとめる。

表 3.2.2-2 より、低エネルギー加速部を並列化した場合、片方の加速部のみでビームトリップ事象が発生したときの高エネルギー加速部でのビーム加速が非常に困難であること、RFキッカーを実用化するためには研究開発が必要になることがわかった。一方、加速器全体を並列化する場合には、建設費用が増加する問題はあるものの、機器の信頼性が非常に高いこと、ビーム品質が非常に良いことがわかった。これらの事項を現状の技術水準から総合的に判断し、並列化方法として加速器全体を並列化する方法を選択することが妥当である。

ところで、今後の技術の進捗により、次に示す課題が克服できる場合には低エネルギー加速部を並列化する場合を選択することも可能である。

- ・ RF キッカーの開発
- ・ 加速管におけるビームトリップ頻度の低減
- ・ 超伝導加速空洞におけるビームトリップ時のビームローディングの問題

③ 低エネルギー加速部空洞の超伝導化（H26～H27）

超伝導空洞は世界各国の加速器研究機関において開発が進められている。超伝導空洞を開発する背景として、世界における陽子（または重水素）加速器開発の目的が高エネルギー化から高出力化へと変化し、0.1 MW 級施設から 10 MW 級施設へと発展しているためである。その際、超伝導空洞は総電力の削減に必須であり、特に連続（CW）モードで陽子ビームを加速する施設にとって最も現実的な加速手段として今後世界的な基準となる見通しである。

超伝導空洞は表 3.2.2-3 に示した種類があり、用途に応じて超伝導空洞の種類が混在している（図 3.2.2-3 参照）。一般に、ビームエネルギーが低くなるほど、スポーク型共振空洞（図 3.2.2-4）では加速効率が低くなり、超伝導空洞として 1/2 波長型共振空洞（Half wave Cavity；HW）、1/4 波長型共振空洞（Quarter Wave Cavity；QW）が適していると言われている。一方、JAEA で提案している ADS 用加速器の低エネルギー加速部には周波数 324 MHz の高周波を印加す

ることを想定している。この周波数の場合、図 3.2.2-3 に示すように全てのビームエネルギーに対してスポーク型共振空洞が適しているとも考えられる。

そこで、ビームエネルギーが 3MeV から 100MeV の領域に対してスポーク型共振空洞を用いた場合の超伝導空洞の電磁場特性を解析し、スポーク型共振空洞の高周波特性（加速効率）を評価した。次に、ビームエネルギーが最も低い値（3MeV）に対して、1/2 波長型共振空洞および 1/4 波長型共振空洞の高周波特性（加速効率）を評価し、スポーク型共振空洞の高周波特性との比較を行った。その結果、スポーク型共振空洞が 1/2 波長型共振空洞および 1/4 波長型共振空洞より加速効率が高くなった。このため、超伝導空洞としてスポーク型共振空洞を選択し、その空洞が構造的に成立することを確認した。

加速器全体を並列化した ADS 用加速器について、加速器内（低エネルギー加速部、高エネルギー加速部）および最終ビームラインにおけるビーム軌道のシミュレーションを実施した。特に、このシミュレーションでは、低エネルギー加速部として超伝導空洞を初めて用いた。その結果、超伝導空洞に陽子ビームを衝突させること無く、陽子ビームをビーム窓まで輸送できることを確認し、最終ビームラインにおける電磁石等の形状などの仕様、固定方法を明らかにした。

④ 機器配置 (H28)

既報[3.2.2(1)-1]で検討した ADS 用加速器の機器配置の考えに基づき、下記の点を留意しながら低エネルギー加速部の機器配置を検討した。

- ・超伝導スポーク型共振空洞および 3 連四重極電磁石の配置は、③項で実施したビーム軌道計算に基づくものとする。
- ・1 台のクライオモジュールに 2 台以上の超伝導スポーク型共振空洞を収めた実績が無いため、1 台のクライオモジュールに 1 台の超伝導スポーク型共振空洞を収める。
- ・ビーム位置モニター (BPM) などのビームモニター機器は四重極電磁石間に配置する。
- ・位相モニターは超伝導加速空洞を収めたクライオモジュールごとに配置する。
- ・各クライオモジュールの前後に真空排気系を配置する。
- ・概ね 3 台のクライオモジュールに 1 台の割合でステアリング電磁石を配置する。
- ・ビーム電流モニター (CT) およびワイヤースキャナーは β セクションごとに配置する。

この考えに従って機器配置ブロック図を作成し、ソレノイドコイル、クライオポンプなどの主要構成機器の台数をまとめた。この結果、低エネルギー加速部の全長は約 174 m となった。一方、高エネルギー加速部および最終ビームラインの全長は各々 472 m [3.2.2(1)-1]、43.4 m [3.2.2(1)-2]であるから、加速器の全長は約 690 m となる。

また、配置検討上の課題として、1 台のクライオモジュールに収める超伝導スポーク型共振空洞の台数を最適化する必要がある。すなわち、陽子ビームの径方向を収束させるために、1 つの超伝導スポーク型共振空洞の隣りに一組の 3 連四重極電磁石を設置している。しかし、クライオモジュールの冷却効率の向上や超伝導線形加速器の短縮化を考えると、1 台のクライオモジュールに複数の超伝導スポーク型共振空洞を収めるとともに、3 連四重極電磁石を適正に配置する必要がある。このような考えに基づき、ビーム軌道計算を実施し、複数の超伝導スポーク型共振空洞と四重極電磁石の配置を再検討することが望ましい。

⑤ ADS 用加速器の運転電力の算出 (H28)

既報[3.2.2(1)-1]では、低エネルギー加速部として常伝導加速空洞を用いた場合の ADS 用加速器の運転電力を 106.2 MW と評価していた (表 3.2.2-4 参照)。ここで、低エネルギー加速部の常伝導加速空洞における運転電力は経験則から算出した。今回、低エネルギー加速部として超伝導加速空洞 (超伝導スポーク型共振空洞) を用いた場合の運転電力を既報[3.2.2(1)-1]に示した手段で算出し、表 3.2.2-5 にまとめる。ここで、表に示した運転電力は並列化された加速器の 1 系統の値であり、ADS 用加速器全体の運転電力は表に示した値の 2 倍、すなわち 95.4 MW となる。

また、並列化等によるビーム電流の減少により、高エネルギー加速部で用いるクライストロンの定格出力が既報の約 40%以下に低減することが可能となった。このことは ADS 用加速器のメンテナンス費用の低減に結びつく結果となる。

⑥ 超伝導化かつ並列化した ADS 用加速器におけるビームトリップ頻度の算出 (H28)

平成 25 年度に、既存の加速器の運転データより算出される ADS 用加速器のビームトリップ頻度と未臨界炉の設計上許容できるビームトリップ頻度を比較し、ADS 用加速器として満足しなければならないビームトリップ頻度を求めた[3.2.2(1)-2]。ここで、運転データとして、J-PARC リニアック (ビームエネルギー 180 MeV、常伝導加速器、パルスモード運転) における 2010 年 10 月 16 日から 2011 年 3 月 11 日までの供用運転期間 (104.3 日間) の運転データを用いた。また、ADS 用加速器におけるビームトリップ時間やビームトリップ間隔は、運転データより算出したビームトリップ事象に関する確率密度関数などを用いて、モンテカルロ法により算出した。

さらに、今までの検討結果を踏まえ、ADS 用加速器のビームトリップ頻度を再評価した。すなわち、平成 25 年度に評価した ADS 用加速器に 1 台の RFQ (Radio Frequency Quadrupole Linac : 高周波四重極型リニアック) および 62 台のクライストロン (低エネルギー加速部) を加え、1 台のイオン源、1 台の RFQ、低エネルギー加速部として 62 台のクライストロン、および高エネルギー加速部として 89 台のクライストロンが直列に並ぶと仮定した。また、一般にビームトリップ頻度はクライストロンの高周波出力や加速する陽子ビームのピーク電流に依存するが、保守的に ADS 用加速器のビームトリップ頻度を評価するため、これらに依存しないと仮定した。

まず、図 3.2.2-5 に ADS 用加速器 1 系統で発生するビームトリップ頻度をビームトリップ時間の関数として表す。図より、既報と比較して、ビームトリップ回数は全体として 2 倍の、1 年間 12000 回 (ビームトリップ時間の合計 : 690 時間) となり、ビームトリップ事象 1 回あたりのビームトリップ時間は平均 210 秒となった。また、ビームトリップ時間が 10 秒～5 分までのビームトリップ頻度は既報の 2.0 倍、ビームトリップ時間が 5 分を超えるビームトリップ頻度は既報の 2.1 倍になった。この図に、ビーム電流が 100 % から 0 % へ変化した場合の許容ビームトリップ頻度を実線で表す[3.2.2(1)-2]。両者を比較すると、ビームトリップ時間が 10 秒以下のビームトリップ頻度は許容値以下となるが、他方、ビームトリップ時間が 10 秒を超えるビームトリップ頻度は許容値を 5～24 倍上回っていることがわかった。

次に、この加速器を 2 系統に並列化した場合に発生するビームトリップ頻度を図 3.2.2-6 に表す。図は、ADS 用加速器から未臨界炉に陽子ビームが全く供給されていないビームトリップ事象に対して、その回数および時間の合計は各々 1 年間 2300 回および 66 時間、ビームトリップ事象

1 回あたりのビームトリップ時間は平均 105 秒となり、並列化しない場合よりも減少した。ビームトリップ時間が 10 秒～5 分までのビームトリップ頻度は 1 年間 2100 回、ビームトリップ時間が 5 分を超えるビームトリップ頻度は 1 年間 48 回となった。

陽子ビームが未臨界炉に全く供給されないビームトリップ事象の大部分は、どちらかの系統の加速器でビームトリップ事象が発生している間に、他方の系統の加速器でビームトリップ事象が発生する場合である。（2 系統の加速器でビームトリップ事象が同時に発生するおそれはほとんど無い。）このため、既報で示した許容ビームトリップ頻度も変更となる。すなわち、ビーム出力が 50% ⇒ 0% ⇒ 50% と変化した場合の許容ビームトリップ頻度を再評価したところ、図 3.2.2-6 の赤線となった [3.2.2(1)-3]。図 3.2.2-6 の並列化した ADS 用加速器のビームトリップ頻度と赤線の許容ビームトリップ頻度を比較すると、ビームトリップ時間が 5 分以下のビームトリップ頻度は許容値以下となるが、ビームトリップ時間が 5 分を超えるビームトリップ頻度は許容値を若干上回っていることがわかった。この点を解決するには、例えば、低エネルギー加速部のクライストロン数を減らすため、④項で述べた検討条件（1 台のクライストロンで 1 台の超伝導スポーク型共振空洞に高周波を供給すること。）を見直す必要がある。

⑦ まとめ

ビームトリップ頻度を低減させ、信頼性を向上させた ADS 用加速器を開発するため、加速器要素に冗長性を持たせる並列化を検討した結果、建設費用が増加する問題はあるものの、加速器全体を並列化する方法を選択し、並列化するために必要な検討を行った。また、陽子ビームの安定性を向上させ、短尺化を図るため、低エネルギー加速部、特にビームエネルギーが 100MeV より低い領域における空洞を超伝導化するために必要な検討を行ったところ、超伝導空洞としてスポーク型共振空洞を選択し、その空洞が構造的に成立することを確認した。さらに、ADS 用加速器の運転電力、機器の構成や配置などを検討し、ADS 用加速器の具体的な仕様や今後検討すべき事項を提示することができた。

参考文献

- [3.2.2(1)-1] 平成 14～16 年度 文部科学省 革新的原子力システム技術開発公募事業「加速器駆動核変換システムの技術開発等」成果報告書（平成 17 年 3 月、日本原子力研究所）
- [3.2.2(1)-2] 平成 25 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「加速器駆動未臨界システムによる核変換サイクルの工学的課題に向けた研究開発」成果報告書（平成 26 年 3 月、日本原子力研究開発機構）
- [3.2.2(1)-3] T. Sugawara et al., Current Activities for Research and Development on Accelerator-Driven System in JAEA, Proceedings of International Nuclear Fuel Cycle Conference (Global 2015), Sep. 20-24, 2015, Paris, France.
- [3.2.2(1)-4] H. Padamsee, “Cavity Design & Ancillaries I, II”, Lectures given at the CAS course “Superconductivity for Accelerators”, 24 April - 4 May 2013, Erice, Italy.

表 3.2.2-1 二種類の並列化方法における長所および短所のまとめ

方法 項目	低エネルギー加速部を並列化	加速器出口までを並列化
長所	<p>①最終ビームラインについては従来と比べ変更が無い。同様にビーム窓についても変更が無い。</p>	<p>① それぞれの加速器を CW モードで運転できる。また、最終ビームラインの電磁石を直流で稼働でき、機器の信頼性が高い。</p> <p>② 片方の加速器でビームトリップが発生したときでも、他方の加速器は通常どおり運転が可能であり、未臨界炉にビーム電流が半分のビームを供給できる。</p> <p>③ ビーム窓上でビーム中心を2つにすることができるので、ビーム窓における単位面積あたりの入射電流密度を低減できる。</p>
短所	<p>① 片方の低エネルギー加速部でビームトリップが発生したとき、高エネルギー加速部の空洞におけるビームローディングが突然半分になる。ビームローディングを適切な値に調整するまでの間（超伝導加速空洞の場合、数ミリ秒間）、空洞の電場が上昇するため、他方のビームを正しく加速することができない。</p> <p>② 100MeV のビームをキックする RF キッカーを実用化するためには、研究開発が必要になる。特に、キック後のビーム品質を悪化させないようにすることが困難である。</p> <p>③ ミクロバンチされたビームを 972 MHz の位相を合わせて加速する必要があり、3 台の加速器の周波数、位相調整が複雑になる。</p>	<p>① 最終ビームラインが別々となるので、未臨界炉直上のビームダクトおよびビーム窓が従来と比べ大きくなる。それに伴い放射線を遮蔽が難しくなる。</p>

表 3.2.2-2 二種類の並列化方法の比較

評価項目	方法	
	低エネルギー加速部を並列化	加速器出口までを並列化
機器の信頼性	低い △	非常に高い ◎
ビーム品質	良い ○	非常に良い ◎
保守性	高い ○	非常に高い ◎
建設費用	少ない ◎	多い ○
施設面積	小さい ◎	大きい ○
研究開発要素	多い △	非常に少ない ◎
ビームトリップ事象 の低減効果	少ない △	非常に大きい ◎

表 3.2.2-3 各エネルギー領域における超伝導空洞の種類

空洞名	エネルギー領域	用途
1/4 波長空洞 (Quarter-Wave Resonators; QWR)	超低エネルギー領域 ($0 < \beta < 0.15$)	重イオン加速
1/2 波長空洞 (Half-Wave Resonators; HWR)	低エネルギー領域 ($0.05 < \beta < 0.25$)	重陽子加速
スポーク型共振空洞 (Spoke cavity)	低・中エネルギー領域 ($0.1 < \beta < 0.55$)	CW 陽子加速
楕円空洞 (Elliptical cavity)	高エネルギー領域 ($0.5 < \beta$)	電子、パルス陽子加速。

表 3.2.2-4 平成 16 年度に評価した ADS 用加速器の運転電力 [3.2.2(1)-1]

機器名	電力 [MW]
超伝導空洞用 RF 源	69.6
四極電磁石電源	0.4
ヘリウム冷凍機	16.5
100 MeV 加速器	10.0
ユーティリティ	9.7
合計	106.2

表 3.2.2-5 平成 28 年度に評価した ADS 用加速器の運転電力
(並列化した加速器 1 系統あたりの運転電力)

機 器 名	電 力 [MW]
低エネルギー加速部	
超伝導空洞用 RF 源	1.59
電磁石電源	0.45
ヘリウム冷凍機	4.36
高エネルギー加速部	
超伝導空洞用 RF 源	19.93
電磁石電源	0.447
ヘリウム冷凍機	16.35
ユーティリティ	4.3
最終ビームライン (電磁石類)	0.237
合 計	47.7

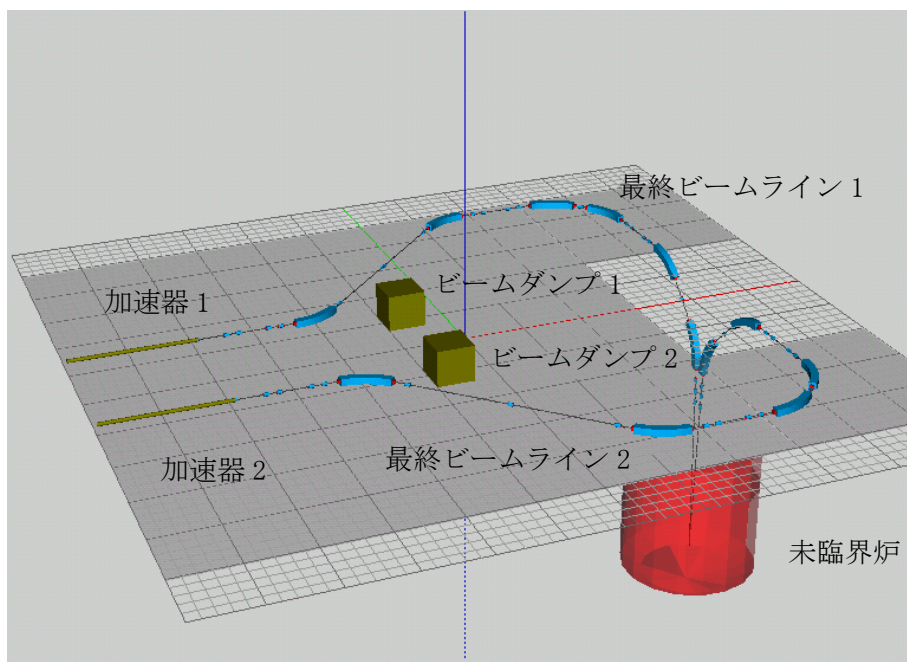


図 3.2.2-1 加速器全体を並列化した ADS 用加速器
主に、加速器出口から未臨界炉までの最終ビームラインを表す。

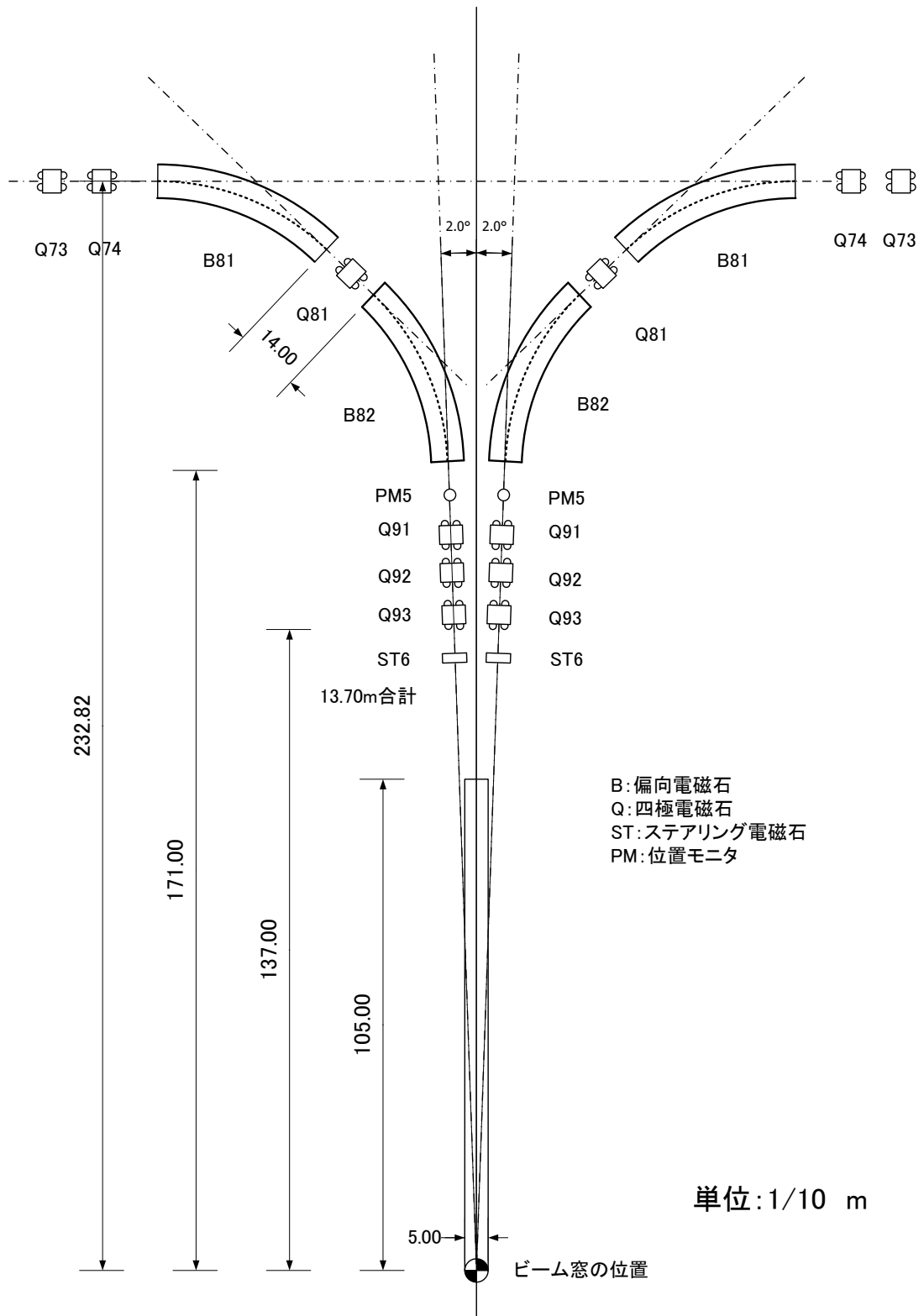


図 3.2.2-2 未臨界炉上部における機器配置図 (側面図)

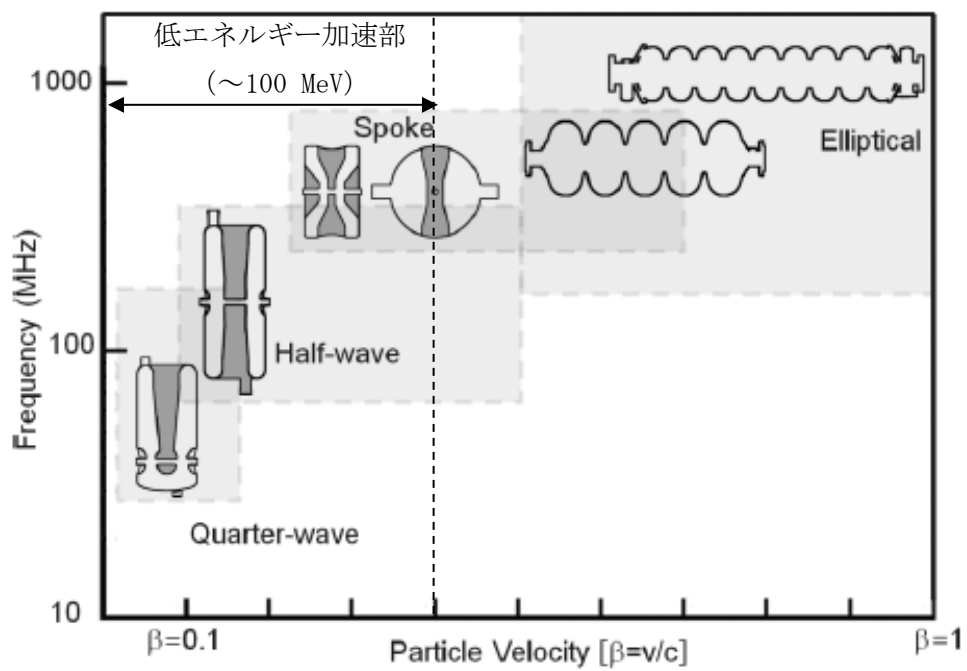


図 3.2.2-3 陽子エネルギーに依存した超伝導空洞の形状。文献 3.3.2(1)-4 の p.13 のスライドより転載。

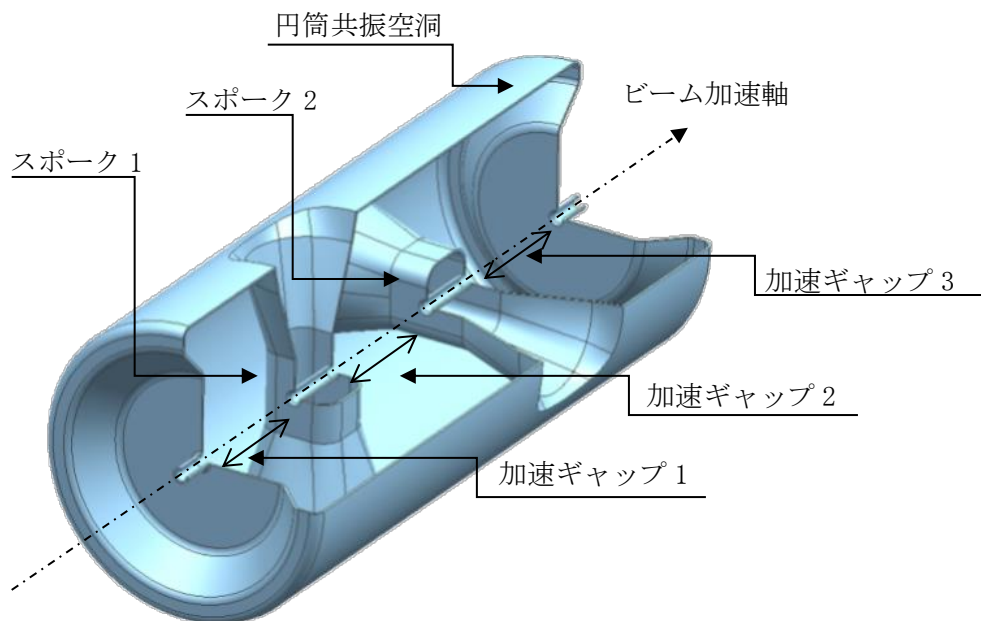


図 3.2.2-4 スポーク型共振空洞の構成図の例

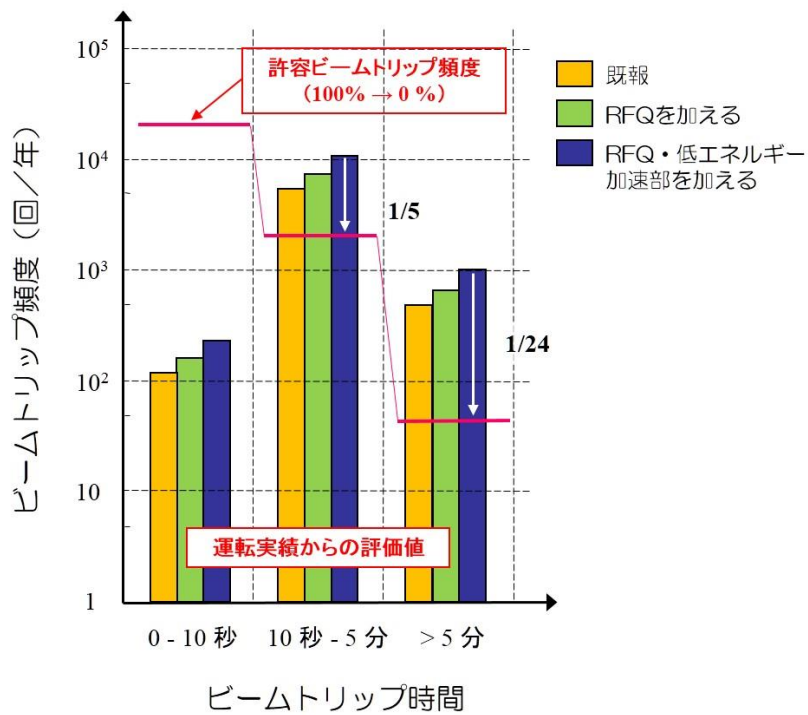


図 3.2.2-5 ADS 用加速器 1 系統で発生するビームトリップ頻度の評価値

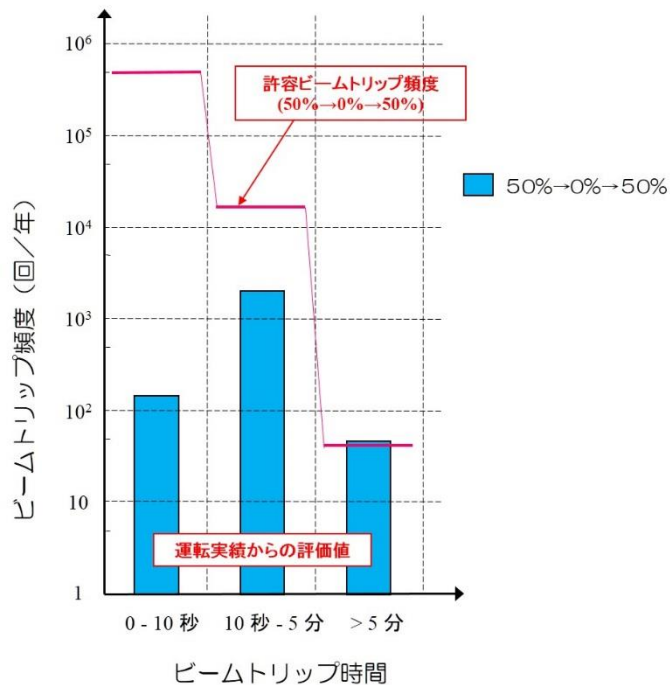


図 3.2.2-6 並列化した ADS 用加速器で発生するビームトリップ頻度の評価値

(2) 未臨界度調整機構の概念設計 (H25-H27)

① 目的

現在検討している ADS は、800MW 熱出力で 600 日間の運転を行う。この間、未臨界炉心の実効増倍率は 0.97 から 0.95 程度まで減少し、これを補償するため、陽子ビームの出力を運転開始時の 15MW から 30MW 程度まで約 2 倍に増やす必要がある。加速器と未臨界炉の境界を成すビーム窓の設計では、発熱条件を緩和するために、燃焼期間中の実効増倍率の減少を抑え、陽子ビーム出力の増加を抑えることが求められている。これを実現させるための案の 1 つとして、制御棒や可燃性毒物などの未臨界度調整機構の導入が考えられる。

これまでの ADS 検討では、可能な限りシンプルなシステムを目指すことを念頭に、制御棒などは用いず、陽子ビーム加速器の出力のみで未臨界炉の出力を制御するとしてきた。一方で、ビーム窓の概念検討においては、運転期間中の健全性が確保できる概念が提示されているもの [3.2.2(2)-1]、より現実的で成立性が見込まれるビーム窓概念を提示することが求められている。そこで本事業では、ビーム窓の設計条件を緩和するため、未臨界度調整機構を導入した新たな ADS 概念について検討を行った。

② 解析システムの整備

未臨界度調整機構の概念設計を行う場合、中性子吸収材を非均質に配置することになるため、二次元の計算体系でこのような計算を扱うのは難しく、三次元体系を扱うことが可能な核解析コードシステムが必要となる。これまでの ADS の核設計においては、多くの解析は二次元 RZ 体系で行われており、三次元体系を対象とした燃焼解析および複数サイクルにまたがる解析は、適切な解析コードシステムが整備されていないことから、ほとんど実施されてこなかった。モンテカルロコードの利用も考えられるが、パラメトリックサーベイを行う場合、その計算コストが問題となる。このような現状を踏まえ、未臨界度調整機構を導入した ADS の燃焼解析に資するための、三次元炉心解析コードシステム ADS3D [3.2.2(2)-2]の整備を実施した。

ADS3D は、原子力機構で高速炉開発のために整備されている汎用炉心解析システム MARBLE[3.2.2(2)-3]をベースとし、MARBLE で提供される各種のコンポーネントを組み合わせ、機能を追加することで構築した。MARBLE をベースにすることにより、最新の核データライブラリ・コードへの迅速なアクセス、継続的なメンテナンスによる高信頼性、感度解析コードに代表される多様なツール群の利用、等の利点を享受することができる。ただし、MARBLE は高速炉の解析のために整備されているため、ADS の解析に対応するために、外部中性子源取り込み、燃料交換、燃料調整の各機能を追加した。図 3.2.2-7 に ADS3D システムの処理概念図を示す。

③ 未臨界度調整機構を導入した ADS 炉心の核設計

1) 解析条件

参照炉心となる ADS 炉心としては、過去の検討結果 [3.2.2(2)-4]をベースとして検討を進めた。未臨界度調整棒 (Subcriticality Adjustment Rod。以下、SAR とする。) には B_4C 制御棒 (B は天然組成) を採用した。

SAR を導入する上での境界条件は以下のとおりとした。

- SAR の反応度値 (全引き抜き) を 1.5%dk 以下とする

- 配置の都合上、SAR は第 4 層にのみ設置可能とする
- 基本的な ADS 設計条件（被覆管温度 $<550^{\circ}\text{C}$ 、初期実効増倍率 $=0.97$ ）を満足する

SAR の配置については、燃料領域を中心から第 1~4 層とした場合、第 1~3 層に SAR を設置した場合には、ビーム設備と干渉する可能性があるため、SAR は第 4 層（再外周）のみに設置可能となる。これを踏まえ設定した解析ケースを図 3.2.2-8 に示す。燃料領域第 4 層に SAR を 2、3、4、6 本導入したケースを対象とした。解析における SAR の扱いは、燃焼初期において全挿入の状態とし、100 日ごとに 20cm ずつ全ての SAR を引き抜くとして扱った。

2) 解析結果

解析結果を表 3.2.2-6 にまとめる。また各ケースの燃焼期間中における実効増倍率、陽子ビーム電流値を図 3.2.2-9 に示す。表 3.2.2-6 から、case2 と case4 については、SAR の位置が他ケースよりも中心に近いこと、1 本当当たりの制御棒価値が高いことがわかる。制限値である 1.5%dk を満たすため、今回は case6 を採用することとした。

case6 では、陽子ビーム電流値が 17mA、被覆管表面最大温度が 520°C となったが、わずかに SAR 価値が 1.5%dk を超えていた。そこで、SAR 価値を 1.5%dk 以下にし、さらに陽子ビーム電流値を低減するため、Pu 富化度および ZrN 割合の調整を行った。その結果、Pu 富化度を 27.3 wt% にすることで、最大陽子ビーム電流値を最大 13.5mA、被覆管表面最大温度を 500°C とする炉心概念を得た (case6-opt)。図 3.2.2-9 を見ると、実効増倍率が徐々に増えて減少する結果となっているが、これは計算上、SAR を 100 日ごとに 20cm 引き抜く操作をしているためであり、実際には既存の原子力発電所で用いられているように mm/sec オーダーで位置を制御できるため、燃焼期間中 0.97 に保たれる。これにより陽子ビーム電流値も、燃焼期間中 13.5mA に保たれる。

参考文献

- [3.2.2(2)-1] T. Sugawara, et al., “Conceptual Design Study of Beam Window for Accelerator-Driven System”, J. Nucl. Sci. and Technol., 47, 10, pp.953-962, (2010).
- [3.2.2(2)-2] T. Sugawara, et al., “Development of three-dimensional reactor analysis code for accelerator-driven system, ADS3D and its application with subcriticality adjustment mechanism”, J. Nucl. Sci. Technol., 52, 12, 2018-2027, (2016).
- [3.2.2(2)-3] 横山賢治、他、「次世代炉心解析システム MARBLE の開発」、JAEA-Data/Code 2010-030、日本原子力研究開発機構、(2011).
- [3.2.2(2)-4] K. Tsujimoto, et al., “Neutronics design for lead-bismuth cooled accelerator-driven system for transmutation of minor actinide”, J. Nucl. Sci. Technol., 41, 1, 21-36, (2004).

表 3.2.2-6 SAR 導入炉心の主要な結果

	Base	case2	case3	case4	case6	case6-opt
PuN ratio*1	28.82	29.71	29.26	31.01	29.96	27.31
ZrN ratio*2 (In) *3	39.03	←	←	←	←	37.24
ZrN ratio (Out) *4	32.61	←	←	←	←	28.51
SAR worth [%dk] *5	n/a	0.90	0.69	2.19	1.55	1.50
I_p^{\max} [mA] *6	21.2	19.0	19.0	16.3	16.8	13.5
T_{clad}^{\max} [°C] *7	574	531	529	521	520	500

- *1: PuN / (MAN+PuN) [wt%]
- *2: ZrN / (MAN+PuN+ZrN) [wt%]
- *3: 内側炉心 (燃料領域第 1, 2 層)
- *4: 外側炉心 (燃料領域第 3, 4 層)
- *5: 全 SAR の制御棒価値
- *6: 燃焼期間中の最大陽子ビーム電流値
- *7: 燃焼期間中の最大被覆管表面温度

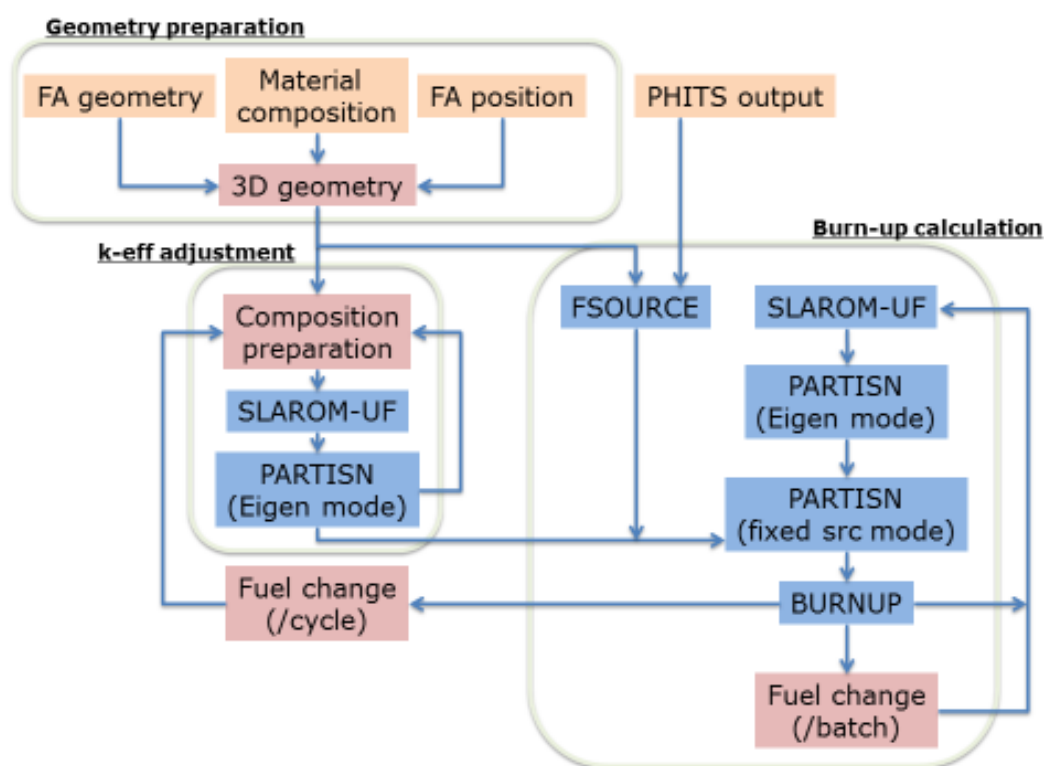


図 3.2.2-7 ADS3D システムの処理概念図 (青は解析コード、その他はデータや処理を示す。)

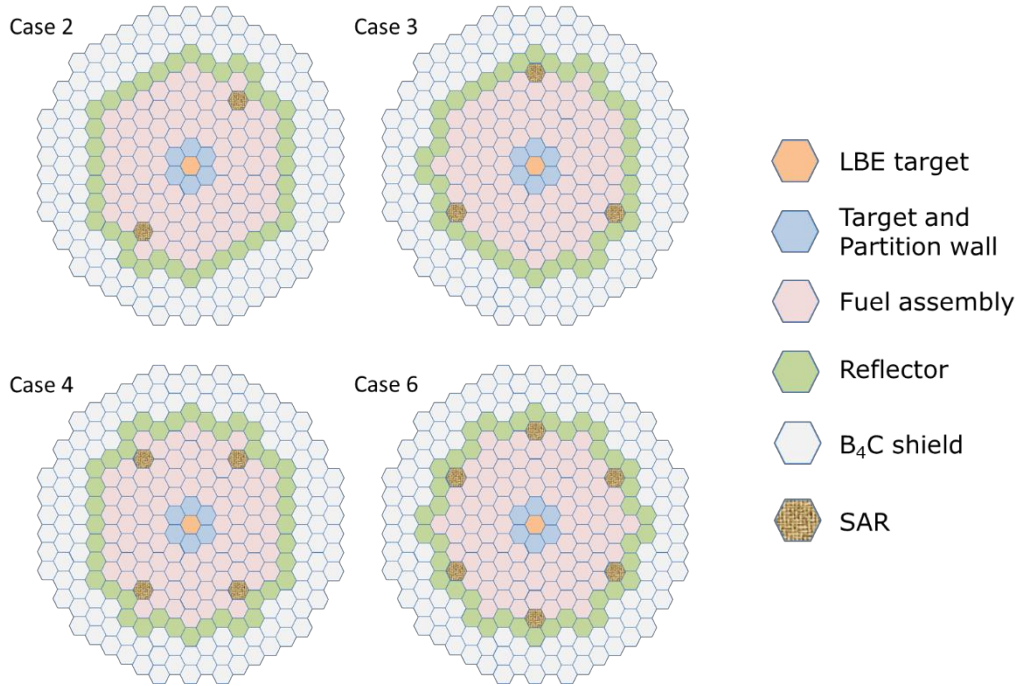


図 3.2.2-8 SAR 炉心解析の各ケース

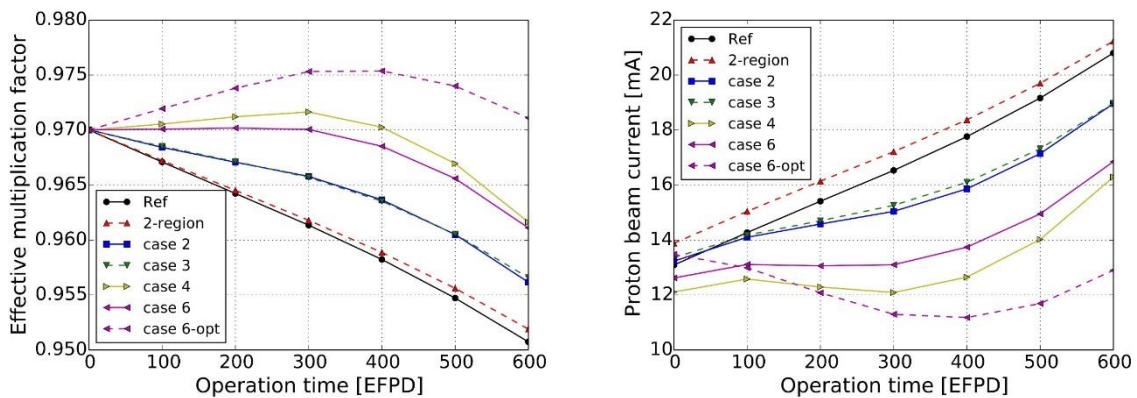


図 3.2.2-9 各ケースの燃焼期間中の実効増倍率（左）と陽子ビーム電流値（右）変化

(3) 受動的崩壊熱除去システムの概念設計 (H25-H28)

① 目的

ADS は未臨界状態で陽子加速器により運転されることから、運転停止が容易で、一般的な臨界炉に比べて臨界事故の可能性が低く安全性が高いと考えられていた。しかし、運転停止に成功した場合であっても、熱交換器に代表される除熱源を喪失した場合には炉心損傷に至る可能性がある。この除熱源喪失事象 (PLOHS: Protected Loss of Heat Sink) に起因する炉心損傷を防ぐには、信頼性の高い崩壊熱除去システムを備えることが必要である。そこで本事業では、崩壊熱除去システム (PRACS: Primary Reactor Auxiliary Cooling System) の概念設計を行った。

② PRACS の概念検討

ADS プラントは、タンク型のシステムとなっており、タンク型高速炉との類似性から、1 次系

の主流路に炉内熱交換器 (Direct Heat Exchanger: DHX) を設置する場合、蒸気発生器 (Steam Generator: SG) に設置することが最適と考えられる。したがって、本検討では DHX を SG の 1 次 LBE 入口部に設置する方針で検討を行った。この場合、SG の数が 4 基であることから、PRACS の DHX の基数も 4 基となる。これまでの設計では、交換熱量 7MWt の DRACS (Direct Reactor Auxiliary Cooling System) 3 基のうち、2 基の起動 (除熱量 14MWt) で起動成功としていた。ここでは 4 基のうち 1 基の故障を考慮して、3 基で起動成功、すなわち 1 基の除熱量を $14\text{MW}/3 = 4.7\text{MW}$ に減少させて、DHX の小型化に着目した概念検討を行った。

図 3.2.2-10 に PRACS の系統計画図を示す。また図 3.2.2-11 には、SG と一体型の DHX 概念図を示す。DHX の設置により、SG はデッキ上部が 1.2m 上方へ、伝熱管束部以下が 1.2m 下方に延長することとなる。この寸法増加により原子炉容器に SG 下端が近接するが、従来構造図からは寸法に余裕があると考えられるため、原子炉容器への影響は無いものと推定される。この DHX 概念の主要なパラメータを表 3.2.2-7 にまとめた。

PRACS の DHX を SG 内部に設置することとしたため、SG のデッキ貫通部に給水および主蒸気のヘッダ・管板および伝熱管が配置される複雑な構造となるが、整合性のとれる配置を提示した。

表 3.2.2-7 4.7MWt PRACS 型 DHX のサイジング結果

項目	単位	主要目
交換熱量	MWt	4.7
1 次入口／出口温度	℃	541.3/400
2 次入口／出口温度	℃	350/450
1 次側流量	kg/hr	8.39×10^5
2 次側流量	kg/hr	1.18×10^6
伝熱管外径	mm	54.0
伝熱管肉厚	mm	2.3
径方向配列ピッチ	mm	79
上下方向配列ピッチ	mm	79
伝熱管本数	—	65
伝熱管長さ	m	7.74
伝熱面積	m ²	85.4
内部シュラウド外径	m	1.659
外部シュラウド内径	m	2.449
1 次側圧力損失	kPa	0.03
2 次側圧力損失	kPa	3.03
管束高さ	m	1.22
管束層数	—	5
管内流速	m/s	0.262
胴側伝熱管隙間流速	m/s	0.029

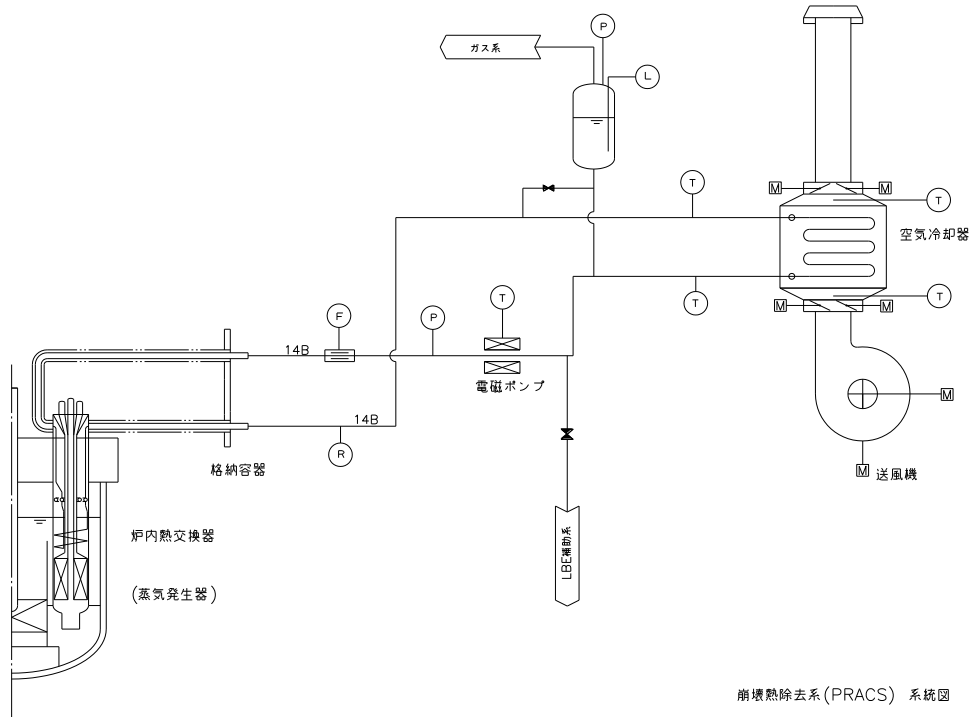


図 3.2.2-10 ADS 崩壊熱除去系 系統計画図

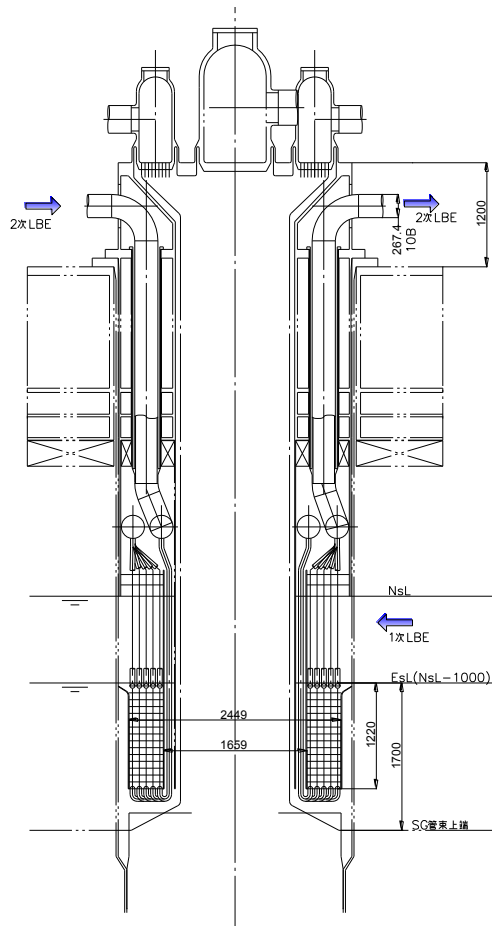


図 3.2.2-11 PRACS 炉内熱交換器計画図

(4) ADS プラントの概念設計 (H26-H28)

① 目的

未臨界面度調整棒 (SAR) を導入した ADS 概念の検討を行った結果、最大陽子ビーム電流値を従来の 20mA から 13.5mA に低減できる可能性を示した。この結果に基づき、成立性の高いビーム窓概念の検討を実施する。また、本事業で行った未臨界面度調整機構、崩壊熱除去システム、ビーム窓そして多重化加速器概念の検討結果を反映した工学的成立性の高い ADS 概念を提示する。

② ビーム窓概念設計

1) 解析条件

SAR を導入した場合、最大陽子ビーム電流値を 13.5mA に低減できることを示した。この結果に基づき、粒子輸送、熱流動、構造の連成解析を実施し、より成立性の高いビーム窓概念を提示する。陽子、中性子の輸送計算には PHITS コード[3.2.2(4)-1]を、熱流動解析には STAR-CCM+コード[3.2.2(4)-2]を、構造解析には ANSYS v17.2[3.2.2(4)-3]を使用した。これまでの窓概念[3.2.2(4)-4]は、座屈への耐性を向上させるため 2 つの半球を組み合わせた長円型の概念であったが、今回発熱条件が緩和されたことを受けて、製作性の点から、より単純な半球形状を用いることとした。検討ではビーム窓外半径、陽子ビーム幅、陽子ビームエネルギーをパラメータとして解析を行った。表 3.2.2-8 に各解析ケースをまとめる。また典型的な解析モデルとして、外半径 235 mm (ID=1、7、8) のビーム窓モデルを図 3.2.2-12 に示す。

2) 解析結果

解析の結果、ID=5、6 は外半径が小さく、ビーム電流密度が高くなり、ビーム窓の温度が材料データの存在しない 650°C 以上となったため、この 2 ケースは構造解析を実施しなかった。その他のケースについて、ビーム窓先端位置のミーゼス応力と設計応力値 S_m を比較した結果を図 3.2.2-13 に示す。この図では、ビーム窓内面の値を in、外面の値を out としている。熱応力を考慮したミーゼス応力 (1 次+2 次応力) が $3S_m$ より小さければ、弾性挙動を示し、制限を満足する。この図から、温度が上昇 (ビーム窓厚が上昇) し、600°C 近くなった場合でも、全てのケースで $3S_m$ より値が小さいことが確認された。以上の結果から、熱応力の点からは、全ての結果が制限値を満足することがわかった。

表 3.2.2-9 には、非線形座屈解析により求めた各ケースの座屈圧力をまとめた。文献[3.2.2(4)-4]では、設計圧力 1MPa に安全率 3 を考慮した 3MPa を、座屈圧力に対する制限値として採用しており、本検討でもこの値を基に評価を行った。表 3.2.2-9 では、制限値 3MPa を超える座屈圧力を赤字、制限値 3MPa を超えかつ最大温度が 550°C 以下のものを青字で示した。すなわち青字で示した結果が、全ての設計条件を満足するものである。その結果、ID=1、2、3、4、7 でこれらの条件を満足する結果を得た。今回は実現可能性の高さを念頭に、最も座屈に対する耐力が高い概念を選ぶこととする。すなわち、ビーム窓外半径 235mm、ビーム窓厚さ 3.5mm、半球形状のもので、座屈圧力は 9.0MPa となる。

③ 工学的成立性の高い ADS 概念

1) 反映項目

これまでの ADS 概念に対し、未臨界度調整機構、崩壊熱除去システム、ビーム窓そして多重化加速器概念の検討結果を反映する。以下に各項目の概要をまとめる。

a) 未臨界度調整機構

前節で検討したとおり、SAR と炉心上部構造の干渉を避けるため SAR 6 本を燃料領域第 4 層に配置する案を採用した。それに伴い、プラグを回転プラグ+固定プラグに変更し、制御棒駆動機構 (CRD) を 6 基追加する。

b) 崩壊熱除去システム

崩壊熱除去システムとして、1 次系の主流路内に DHX を設置した PRACS (Primary Reactor Auxiliary Cooling System) について機器概念の検討を実施した。その結果、崩壊熱除去システムとして、熱交換器を SG 入口部に設置する案を採用した。このため、SG (4 基) の形状を変更し、過去の設計では原子炉容器内に設置されていた崩壊熱除去系熱交換器 (3 基) を削除する。

c) ビーム窓

前節の検討のとおり、SAR を導入した ADS 概念の燃焼計算を実施し、新たな陽子ビーム電流値として 13.5mA を採用した。この結果を踏まえ、粒子輸送、熱流動、構造の連成解析を実施し、より成立性の高いビーム窓概念の検討を行った。その結果、従来の長円型、外半径 235mm、先端厚さ 2mm の概念に対し、半球型、外半径 235mm、先端厚さ 3.5mm の概念が提示され、これにより座屈に対する耐力が、従来設計に対して 2.2 倍向上することが示された。

d) 多重化加速器概念

加速器のビームトリップ頻度を低減するため、平成 25 年度から平成 27 年度にかけて多重化加速器概念について検討を行い、加速器全体を並列化する案を選択した。そのため、炉上部の加速器配置を変更した。

2) 更新結果

原子炉構造周り全体鳥瞰図を図 3.2.2-14 に、また ADS プラントの基本設計仕様を表 3.2.2-10 に示す。

参考文献

- [3.2.2(4)-1] T. Sato, K. Niita, N. Matsuda, et al, “Particle and Heavy Ion Transport Code System PHITS, Version 2.52”, J. Nucl. Sci. Technol. 50, 9, 913-923 (2013).
- [3.2.2(4)-2] STAR-CCM+ homepage, <http://www.cd-adapco.co.jp/ja>
- [3.2.2(4)-3] ANSYS homepage, <http://www.ansys.com/ja-JP>
- [3.2.2(4)-4] T. Sugawara, et al., “Conceptual Design Study of Beam Window for Accelerator-Driven System”, J. Nucl. Sci. Technol., 47, 10, 953-962, (2010).

表 3.2.2-8 ビーム窓検討におけるケース設定

ID	ビーム窓外径 [mm]	1 σ [mm]	陽子ビームエネルギー [GeV]	電流値 / 出力 [mA/MW]
1	235	104	1.5	13.5 / 20.25
2	220	97	1.5	13.5 / 20.25
3	200	88	1.5	13.5 / 20.25
4	180	80	1.5	13.5 / 20.25
5	160	70	1.5	13.5 / 20.25
6	140	61	1.5	13.5 / 20.25
7	235	104	1.0	20.25 / 20.25
8	235	104	0.8	25.31 / 20.25

表 3.2.2-9 各ケースの座屈圧力 (単位 : Pa)

ID	1	2	3	4	7	8	
R[mm]	235	220	200	180	235	235	
ビーム窓厚 [mm]	1	1.48E+06	1.64E+06	1.84E+06	2.03E+06	1.32E+06	1.22E+06
	1.5	3.05E+06	3.24E+06	3.54E+06	3.80E+06	2.69E+06	2.52E+06
	2	4.58E+06	4.81E+06	5.20E+06	5.57E+06	4.04E+06	3.55E+06
	2.5	6.13E+06	6.34E+06	6.87E+06	6.92E+06	5.32E+06	
	3	7.59E+06	7.83E+06	8.27E+06			
	3.5	8.95E+06	9.13E+06				
	4	1.02E+07					

* : 赤字は座屈圧力に対する制限値 3MPa 以上を満たすもの。青字は赤字の条件を満たし、かつ最高温度が 550℃以下のもの。

表 3.2.2-10 ADS プラントの基本設計仕様

項目	仕様
1. 原子炉熱出力	800MW
2. 陽子ビーム入射系	
①陽子エネルギー/電流	1.5GeV/13.5mA (20.25MW)
②ビーム径/入射条件	ガウス分布 $1\sigma=104\text{mm}$ 、垂直方向、中心軸入射
③ビーム窓材質	T91 鋼 (Mod.9Cr-1Mo 鋼)
3. 核破砕ターゲット	
①材質	液体 LBE
②ターゲット径	$\phi 450\text{mm}$ (ビームダクト・窓内径相当)
4. 燃料	
①燃料種類	窒化物 TRU 燃料
②燃料形状	ペレット燃料
③希釈材	ZrN 粒子
④サブアセンブリ形状	ピンバンドル・ダクトレス型
⑤被覆管材質	T91 鋼
⑥燃料有効長	1000mm
⑦炉心槽内径	$\phi 4200\text{mm}$
5. TRU 燃焼量	約 250kg/y
6. 核変換システム	
①原子炉容器	タンク型
・形状	下部鏡板付き堅型円筒容器
・材質	T91 鋼 (または 2.25Cr-1Mo 鋼)
②原子炉容器上部構造	ルーフスラブ方式
③漏洩時冷却材保持対策	ガードベッセル設置
7. 原子炉冷却方式	
①除熱量	820MW
②主要機器	
・蒸気発生器	ヘリカルコイル型伝熱管方式
・主循環ポンプ	機械式回転ポンプ
8. 水・蒸気系および発電系	
①発電量	270MW
②主要系統・機器	
・水・蒸気系	再循環方式・蒸気ドラム設置
・タービン	高圧/低圧タービン
9. 崩壊熱除去システム	LBE 自然循環除熱方式 (PRACS)

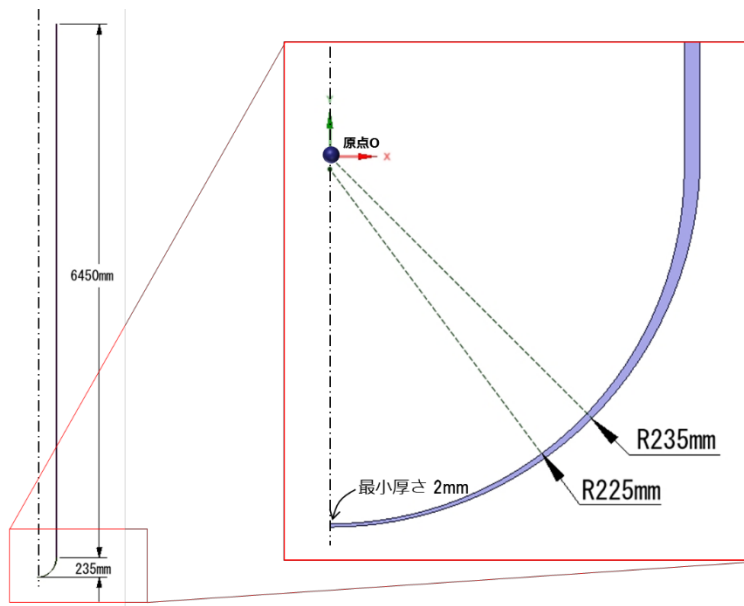


図 3.2.2-12 ADS ビーム窓の構造解析モデル (ID=1, 7, 8)

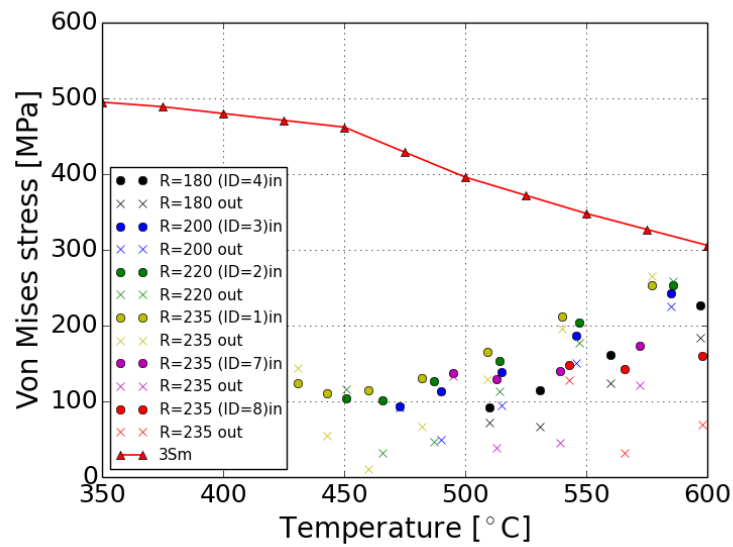


図 3.2.2-13 各ケースのミーゼス応力と設計応力値 S_m との比較

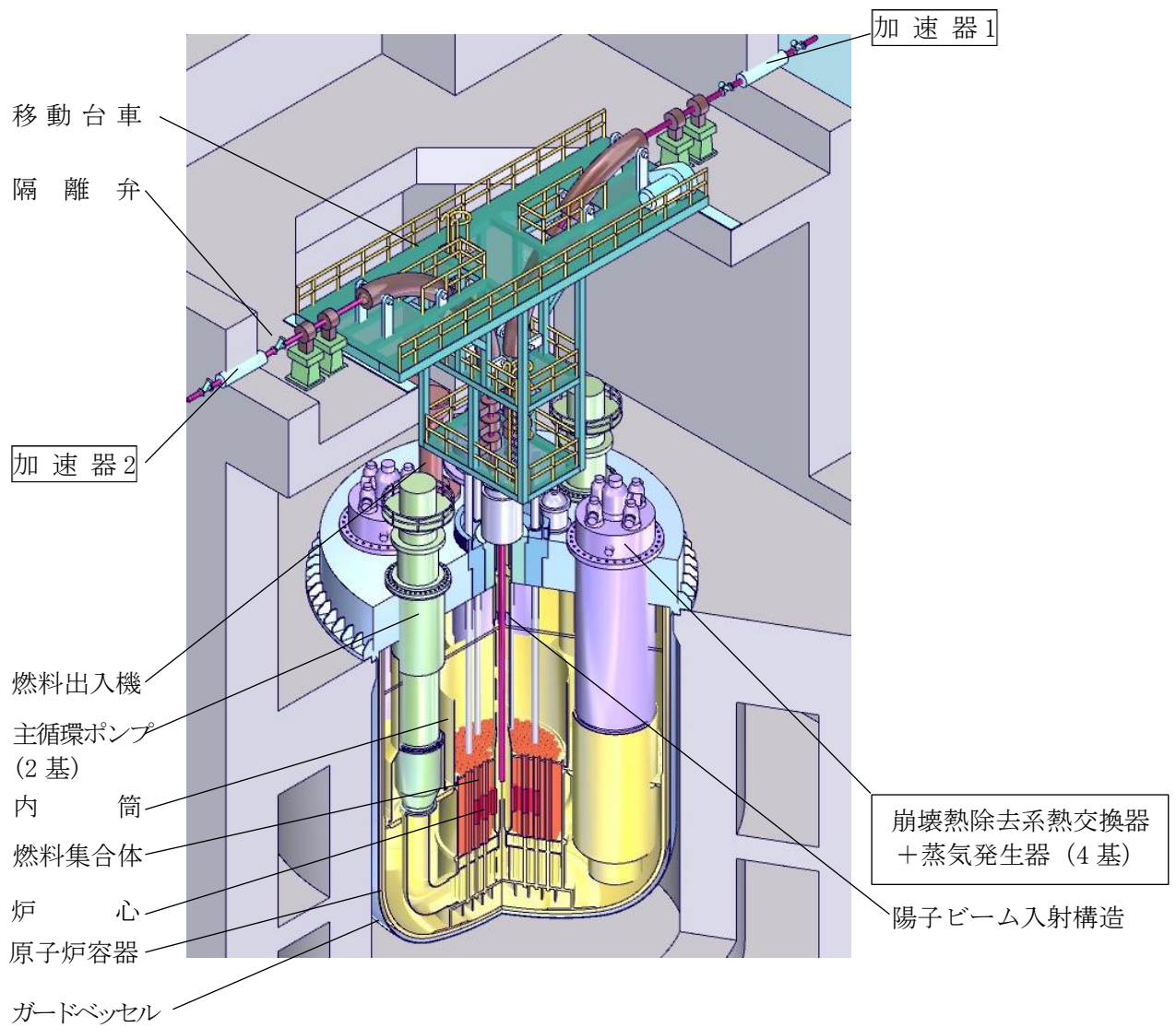


図 3.2.2-14 ADS プラント 原子炉構造周り全体鳥瞰図

3.2.3 加速器駆動未臨界システムの開発まとめ

ADS 開発のために、炉物理的課題と工学的成立性に関する課題に取り組んだ。

炉物理的課題については、核破碎ターゲットと未臨界炉心を組み合わせた ADS 模擬実験が可能な京都大学臨界集合体 (KUCA) において、ADS の核特性解析値の不確かさの主要因である、Pb、Bi、 ^{237}Np 、 ^{241}Am の核データ検証用積分実験を実施した。また、FFAG と未臨界炉心を組み合わせた ADS 模擬実験によって、ADS の動特性パラメータの測定を行った。Pb および Bi については、Pb と Bi をそれぞれアルミ板に置換した際の反応度変化を測定した。実験値と解析値の比較を行うとともに、感度解析と JENDL-4.0 の共分散データを使用した核データ起因する不確かさ解析を実施して、Pb および Bi 同位体に起因する不確かさの全体に占める割合は比較的大きく、この不確かさは主に非弾性散乱に起因するものであることを確認した。熱中性子体系の KUCA を用いた実験データを使用しても、鉛およびビスマスを扱った様々な種類の実験を組み合わせて解析することにより、高速中性子体系の実用規模 ADS の核特性解析の不確かさを合理的に低減できることを示した。 ^{237}Np および ^{241}Am については、核分裂計数管を使用してそれぞれの核分裂反応率を ^{235}U の核分裂反応率との比として測定した。 ^{237}Np については、捕獲反応率の測定にも成功した。動特性パラメータの測定において、外部中性子源が存在するときに中性子世代 A が著しく増加する可能性を示唆し、固有値計算で得られたものよりも大きくなることがわかった。したがって、実機 ADS の動特性解析ならびに未臨界度測定に用いる動特性パラメータでは、外部中性子源を考慮したものが必要であると結論付けることができた。また、4 つの異なる未臨界体系で反応率測定実験を行い、MCNP6.1 を用いた計算値との比較を行い、炉心内に設置した放射化箔の反応率は、未臨界度が大きくなるほど、全ての放射化箔の反応率の C/E 値は大きくなる傾向が見られた。

加速器については、主要な加速器要素に冗長性を持たせる並列化と低エネルギー部を超伝導化する概念設計を実施した。加速器の並列化方法については、現状の技術水準から評価した場合には極めて困難であるために、加速器全体を並列化する方策を選択した。また、陽子ビームの安定性向上、短尺化を図るために加速エネルギー 100MeV 以下の低エネルギー加速領域を超伝導化するための検討を行った。その結果、超伝導空洞としてスポーク型共振空洞を選択し、空洞内の電磁場とビームの連成計算、空洞の構造強度計算を行い、構造的に成立する空洞構造を構築した。これらの結果を総合して、並列化した ADS 用加速器の機器構成・配置、運転電力を取りまとめた。

ADS のビーム窓の運転条件を大幅に緩和することにより、より成立性の高いビーム窓設計を可能とすることを目的に、燃焼反応度を補償して炉心出力を一定に保つために必要な未臨界度調整機構の概念設計を行った。炉心内に非均質に配置する未臨界度調整機構を備えた炉心の核特性解析を行うための三次元核特性解析機能を備えた ADS3D コードシステムを整備し、未臨界度調整機構に必要な反応度値および炉心内配置を評価した。核特性評価に基づく未臨界度調整機構（制御棒および可燃性毒物集合体）の概念設計結果を基に、制御棒については、その駆動機構や格納容器上部構造などの概念設計を行った。また両概念について交換方法などの運用方法を検討し、未臨界度調整に制御棒を使用する場合では、6 体の制御棒を炉心に装荷した炉心で、800MW の炉心熱出力を維持するために必要な最大陽子ビーム電流は、従来の 20mA から約 13mA に低減可能であることを示した。

より安全性の高い ADS 概念を提示することを目的に、長期間の電源喪失を想定した場合にも燃料の崩壊熱を受動的に除去できる装置の概念検討を実施した。鉛ビスマス冷却 ADS の長時間の電源喪失事象等に対応したプラント動特性解析を実施するために、軽水炉のプラント動特性解析で実績のある Relap5/mod3.2 コードを基に、鉛ビスマスの物性値を基にコード内で使用するデータ

を整備し、鉛ビスマス冷却 ADS のプラント動特性解析が行えるようにコードを整備した。整備したプラント動特性解析コードを使用して除熱源喪失事象の解析を行い、崩壊熱除去系（DHRS）が作動することで適切に除熱が行われ、炉心損傷の可能性が極めて低いことを示した。これらの結果を基に、1 次主流路内に DHX を設置する場合には、崩壊熱除去系の熱交換器を蒸気発生器に設置することが最適であると判断し、蒸気発生器の LBE 入口部に熱交換器を設置した PRACS（Primary Reactor Auxiliary Cooling System）を採用することとし、PRACS 全体の概念結果を取りまとめた。

多重化した加速器概念、未臨界度調整機構、崩壊熱除去システムの検討結果を反映して、ADS プラント概念を取りまとめた。多重化した加速器概念を基にしたビームトリップ頻度を再評価した結果、加速器 2 台概念であれば許容トリップ頻度を満足することを示した。また、未臨界度調整機構を備えた炉心の核特性評価結果から、未臨界度調整機構の導入によって加速器のピーク電流値が低減される見通しが得られたため、新たな設計条件に対応したビーム窓の概念設計および構造成立性評価を行った。その結果、従来の長円型、外半径 235mm、先端厚さ 2mm の概念に対して、半球型、外半径 235mm、先端厚さ 3.5mm の概念を提示することができ、これにより座屈に対する耐力が従来設計より 2.2 倍に向上することを示した。これらの成果により、従来設計よりも、より安全性・信頼性の優れた ADS プラント概念を提示した。

3.3 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるため、毎年、参加研究者全員が参加する全体委員会を開催した（平成 28 年 7 月 19 日、平成 29 年 5 月 19 日）。委員会においては、それぞれの研究課題の進め方や最終目標を参加者全体で確認するとともに、各年度の研究計画について議論した。また、研究代表者は、適宜、再委託先の京都大学を訪問し、研究分担研究者と実験の準備状況及び研究内容について協議し、各年度の実施項目が計画どおり進捗していることを確認した。さらに、本研究開発課題で実施している研究開発課題について、外部有識者から意見を聞く会を開催し、今後の研究開発等に対する貴重な助言等を得た。

4. 結言

4.1 本研究で得られた成果

本研究で得られた成果を研究項目ごとに以下に示す。

(1) ADS 用 MA 分離回収技術の開発

① MA・Ln 回収プロセスの開発

TDdDGA を抽出剤とした MA・Ln 回収プロセスについて、MA・Ln 回収のためのフローシートによる連続抽出試験（フローシート試験）を実施し、試験結果の検討を行い、ホットセル内での実廃液を用いた連続抽出試験条件を決定することを目的とした。平成 26 年度に実施したフローシート試験では、ネプツニウムの原子価調整およびジルコニウムの抽出抑制のために添加した過酸化水素 (H_2O_2) からの気泡生成による影響の可能性が示唆された。そこで、平成 27 年度には沈殿発生を抑制する効果のある有機相へのオクタノール添加条件において、MA の高回収に加えて酸化水素を添加しない抽出系でのフローシート試験条件を検討した。模擬廃液を用いたフローシート試験を H_2O_2 添加系および無添加系で実施した結果、化学的に不安定な過酸化水素を添加しなくても MA を高回収率で分離・回収できるプロセスを構築することができた。これらの結果より、実廃液試験でのプロセス条件を確定することができた。

② MA/Ln 分離技術の開発

MA/Ln 分離プロセスについては、使用する抽出剤を絞り込むために、水溶性の錯化剤ジエチルトリアミン (DTPA) とジグリコールアミド (DGA) 抽出剤の組み合わせによる抽出系とソフトドナー系新規抽出剤についてバッチ試験による抽出基礎データを取得した。バッチ試験結果から、MA/Ln 分離プロセス使用する抽出剤として、6 本の n-オクチル基を有するヘキサオクチルニトリロ三酢酸トリアミド (HONTA) が最もプロセス化に適した特性を有していると判断した。HONTA を使用した MA/Ln 分離プロセスについて、バッチ法による抽出分離試験によりフローシート試験条件を決定し、向流式ミキサセトラを用いたフローシート試験を実施した。その結果、Nd(III) との相互分離にやや課題を残すものの、Am および Cm に対しては高い回収率を得ることができ、実廃液試験に向けて HONTA の高い実用性を実証した。

③ ADS 用 MA 試料の分離回収

上記①および②において確定したプロセス条件により、日本原子力研究開発機構原子力科学研究所内の NUCEF 施設内に設置された α γ セルにおいてセル内に保管されている再処理ラフィネート溶液実液をフィード液として、MA・Ln 回収プロセスおよび MA/Ln 分離プロセスの実廃液試験を実施した。その結果、目的とする Am、Cm のほぼ全量回収を達成することができた。

実廃液試験における MA・Ln 回収プロセスでの Am と Cm の回収率はほぼ 100%を示し、良好な回収率を確認した。Ln に関しては、La、Nd、Eu、Y はほぼ全量が有機相中に抽出され、第 2 ミキサセトラにおいて全量が逆抽出されたことを確認した。しかしながら、La の回収率は 35%となり、ミキサセトラ段内へ蓄積した可能性が考えられる。MA/Ln 分離プロセスについては、Am と Cm の回収率はそれぞれ約 95%、約 78%で、約 9mg の Am を回収することができた。Ln に関しては、全 Ln の 90.9%を分離除去した。Ln 元素のうち La、Eu、Y は、ほぼ全量が分離除去されたが、Nd

に関しては製品中に約 16%が残る結果となった。ミキサセトラの運転時間が施設の制限により限られたために、MA の回収量は当初の目標であった約 100mg の 10 分の 1 であったが、MA 回収プロセスの技術的成立性を確認できる十分な成果を得ることができた。

(2) 加速器駆動未臨界システムの開発

① FFAG-KUCA を用いた ADS 模擬炉物理実験（再委託先：京都大学）

ADS の核特性予測精度の向上を目的として、核破砕ターゲットと未臨界炉心を組み合わせた ADS 模擬実験が可能な京都大学臨界集合体(KUCA)において、ADS の核特性解析値の不確かさの主要因である、Pb、Bi、²³⁷Np、²⁴¹Am の核データ検証用積分実験を実施した。また、FFAG と未臨界炉心を組み合わせた ADS 模擬実験によって、ADS の動特性パラメータの測定を行った。

Pb および Bi については、Pb と Bi をそれぞれアルミ板に置換した際の反応度変化を測定した。実験値と解析値の比較を行うとともに、感度解析と JENDL-4.0 の共分散データを使用した核データ起因する不確かさ解析を実施して、Pb および Bi 同位体に起因する不確かさの全体に占める割合は比較的大きく、この不確かさは主に非弾性散乱に起因するものであることを確認した。²³⁷Np および ²⁴¹Am については、核分裂計数管を使用してそれぞれの核分裂反応率を ²³⁵U の核分裂反応率との比として測定した。²³⁷Np については、捕獲反応率の測定にも成功した。これらにより、ADS 炉心中での核変換の挙動が把握できる有益な基礎データが取得できたと考えられる。

動特性パラメータの測定において、外部中性子源が存在するときに中性子世代 A が著しく増加する可能性を示唆し、固有値計算で得られたものよりも大きくなることがわかった。したがって、実機 ADS の動特性解析ならびに未臨界度測定に用いる動特性パラメータでは、外部中性子源を考慮したものが必要であると結論付けることができ、ADS の実現に向けて重要な知見を得ることができた。また、4 つの異なる未臨界体系で反応率測定実験を行い、MCNP6.1 を用いた計算値との比較を行い、炉心内に設置した放射化箱の反応率は、未臨界度が大きくなるほど、全ての放射化箱の反応率の C/E 値は大きくなる傾向が見られた。また、スペクトルの疑似的な指標として In 比を新たに定義し、In 比が ADS のスペクトルに関する重要な指標になるとともに、¹¹⁵In(n, γ)^{116m}In 反応率は実験とよく一致し、計算精度には高い信頼性が確保されていることを確認した。

② 工学的成立性の高い ADS プラント技術開発

1) 信頼性を向上した ADS 用加速器の開発

信頼性を向上させた ADS 用加速器の提案を目的に、加速器全体を並列化しビームトリップ頻度を低減した ADS 用加速器概念の検討を行った。

加速器の並列化方法については、低エネルギー加速領域の機器を並列化した場合と加速器全体を並列化した場合の二種類の並列化方法について技術的な問題点を抽出した。その結果、現状の技術水準から判断して、低エネルギー加速領域の機器を並列化した場合には、一方が停止した場合の残り半分の高エネルギー領域での加速が極めて困難であるために、加速器全体を並列化する方策を選択した。また、陽子ビームの軌道安定性を向上させて加速器の短尺化を図ることを目的とし、加速エネルギー100MeV 以下の低エネルギー加速部の空洞を超伝導化するために必要な超伝導空洞の形状検討を行った。スポーク型、1/4 波長型、1/2 波長型のそれぞれの超伝導空洞に対して、空洞内の電磁場を評価し、設計指標の 1 つである電極表面での電場強度の最大値 (E_p)

と加速電場強度の最大値 (E_{acc}) の比 (E_p/E_{acc}) を比較検討した。その結果、想定している共振周波数 324MHz では、スポーク型が最も E_p/E_{acc} の値が小さく加速効率が高いことがわかった。最も加速効率が良いスポーク型空洞を対象に構造解析を実施し、室温から超伝導状態になるまで冷却することにより生じる変位量と熱応力を評価し、構造的成立性が見込める形状概念であることを確認した。これらの結果を総合して、並列化した ADS 用加速器の機器構成・配置、運転電力を取りまとめた。

2) 未臨界度調整機構の概念設計

ADS の燃焼反応度を補償して炉心出力を一定に保つために必要な未臨界度調整機構の概念設計を行うことを目的に、未臨界度調整機構を導入した ADS 概念の検討を行った。

炉心内に非均質に配置する未臨界度調整機構を備えた炉心の核特性解析を行うために、原子力機構で ADS の炉心核特性解析に使用してきた汎用解析システム MARBLE を基に、未臨界度調整機構を集合体単位で解析するために必要な三次元核特性解析機能を備えた ADS3D コードシステムを整備した。MARBLE システムの本来の機能に加えて、ADS3D では三次元核特性解析機能の他に、実効増倍率調整機能、外部中性子源取り込み機構、燃料交換機能を整備した。新たに整備した ADS3D を使用して、未臨界度調整機構に必要な反応度値および炉心内配置を評価し、制御棒および可燃性毒物集合体の概念設計を行った。核特性評価に基づく未臨界度調整機構（制御棒および可燃性毒物集合体）の概念設計結果を基に、制御棒については、その駆動機構や格納容器上部構造などの概念設計を行った。また両概念について交換方法などの運用方法を検討した。

その結果、未臨界度調整に制御棒を使用する場合に、制御棒配置をパラメータにした制御棒駆動機構と炉上部機器との干渉度の調査を通して、炉上部の機器配置を検討した。また運用の面から、制御棒導入による燃料交換システムへの影響を調査し、制御棒の配置と回転プラグの扱いの点から、回転プラグを常時搭載する方式が作業規模の観点から現実的であることを示した。一方で、この方式を採用するためには、制御棒を燃料領域外周に配置する必要があることがわかった。そのため、最終的に炉心と反射体の境界付近に 6 体の制御棒を装荷することとし、800MW の炉心熱出力を維持するために必要な最大陽子ビーム電流は、従来の 20mA から約 13mA に低減可能であることを示した。また、全制御棒引き抜き時にも炉心を未臨界状態を保つために、全制御棒引き抜き反応度は $1.5\% \Delta k$ 以下であることを示した。

3) 受動的崩壊熱除去システムの概念設計

より安全性の高い ADS 概念を提示することを目的に、長期間の電源喪失を想定した場合にも燃料の崩壊熱を受動的に除去できる装置の概念検討を実施した。

鉛ビスマス冷却 ADS の長時間の電源喪失事象等に対応したプラント動特性解析を実施するために、軽水炉のプラント動特性解析で実績のある Relap5/mod3.2 コードを基に、鉛ビスマスの物性値を基にコード内で使用するデータを整備し、鉛ビスマス冷却 ADS のプラント動特性解析が行えるようにコードを整備した。タンク型の構造を持つ ADS を対象として、1 次および 2 次冷却系、崩壊熱除去系等を含んだ解析モデルを作成し、冷却性能を確保するために必要な崩壊熱除去システムの仕様を検討した。その結果を基に、崩壊熱除去システムとして、1 次主流路内に熱交換器を設置した PRACS (Primary Reactor Auxiliary Cooling System) を対象に崩壊熱除去系の概念

検討を実施した。Na 冷却型タンク型炉の知見を基に、ADS プラントでは、1 次主流路内に熱交換器を設置する場合には、崩壊熱除去系の熱交換器を蒸気発生器に設置することが最適であると判断し、蒸気発生器の LBE 入口部に熱交換器を設置した PRACS を採用することとした。熱バランス等の検討結果から、蒸気発生器の主蒸気および給水のヘッダ等の取り付け位置を従来の配置よりも約 1.2m 上方に移動させた配管配置とした熱交換器付蒸気発生器概念を構築し、これを基に PRACS 全体の概念結果を取りまとめた。

4) ADS プラントの概念設計

多重化した加速器概念、未臨界面度調整機構、崩壊熱除去システムの検討結果を反映して、ADS プラント概念を取りまとめた。

多重化した加速器概念を基に、ビーム出力が 100%から 50%、50%から 0%に変化する場合についてビームトリップ頻度を再評価し、その結果、加速器 2 台概念であれば、ビームトリップ時間が 5 分を超えるビームトリップ頻度は許容値をわずかに上回るものの、5 分以下のビームトリップ頻度は許容値を満足することを示した。未臨界面度調整機構を備えた炉心の核特性評価結果から、未臨界面度調整機構の導入によって加速器のピーク電流値が低減される見通しが得られたため、新たな設計条件に対応したビーム窓の概念設計および構造成立性評価を行った。その結果、従来の長円型、外半径 235mm、先端厚さ 2mm の概念に対して、半球型、外半径 235mm、先端厚さ 3.5mm の概念を提示することができ、これにより座屈に対する耐力が従来設計より 2.2 倍に向上することを示した。崩壊熱除去システムとして、熱交換器を SG 入口部に設置することとし、崩壊熱除去系を含めたプラント概念を取りまとめた。

これらの成果により、従来設計よりも、より安全性・信頼性の優れた ADS プラント概念を提示した。

(3) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるため、毎年、参加研究者全員が参加する全体委員会を開催した。委員会においては、それぞれの研究課題の進め方や最終目標を参加者全体で確認するとともに、各年度の研究計画について議論した。また、研究代表者は、適宜、再委託先の京都大学を訪問し、研究分担研究者と実験の準備状況および研究内容について協議し、各年度の実施項目が計画どおり進捗していることを確認した。さらに、本研究開発課題で実施している研究開発課題について、外部有識者から意見を聞く会を開催し、今後の研究開発等に対する貴重な助言等を得た。

以下に、本研究における学会等の発表実績を示す。

【論文発表】

- C.H.Pyeon, A.Fujimoto, T.Sugawara, T.Yagi, H.Iwamoto, K.Nishihara, K.Nakajima, and K.Tsujimoto, “Validation of Pb Nuclear Data by Monte Carlo Analyses of Sample Reactivity Experiments at Kyoto University Critical Assembly”, Journal of Nuclear Science and Technology, 54 (4), 602–612 (2016).
- T.Sugawara, K.Nishihara, H.Iwamoto, A.Ohizumi, and K.Tsujimoto, “Development of

three-dimensional reactor analysis code system for accelerator-driven system, ADS3D and its application with subcriticality adjustment mechanism”, J. Nucl. Sci. Technol. 53(12), p.2018 - 2027 (2016).

- C.H.Pyeon, A.Fujimoto, T.Sugawara, H.Iwamoto, K.Nishihara, Y.Takahashi, K.Nakajima, and K.Tsujimoto, “Sensitivity and Uncertainty Analyses of Lead Sample Reactivity Experiments at Kyoto University Critical Assembly”, Nuclear Science and Engineering, 185 (3), 460-472 (2017).
- T.Sugawara, Y.Eguchi, H.Obayashi, H.Iwamoto, and K.Tsujimoto, “Conceptual design study of beam window for accelerator-driven system with subcriticality adjustment rod”, Nuclear Engineering and Design, 331, 11-23 (2018).
- T.Sugawara, H. Takei, H.Iwamoto, A.Oizumi, K.Nishihara and K.Tsujimoto, “Research and development activities for accelerator-driven system in JAEA”, Prog. Nucl. Ene., 106, 27-33 (2018).
- C.H.Pyeon, T.M.Vu, M.Yamanaka, T.Sugawara, H.Iwamoto, K.Nishihara, S.H.Kim, Y.Takahashi, K.Nakajima and K.Tsujimoto, “Reaction Rate Analyses of Accelerator-Driven System Experiments with 100 MeV Protons at Kyoto University Critical Assembly,” J. Nucl. Sci. Technol., 55 (2), 190-198 (2018).

【口頭発表】

- 松村達郎、津幡靖宏、卜部峻一 市村誠次、萩谷弘通、辻本和文、“ADS による核変換サイクルの確立を目指した MA 分離プロセスの開発(1) 計画の概要”、日本原子力学会「2014 年春の年会」、東京都市大学、2014 年 3 月 26 日～3 月 28 日
- 松村達郎、津幡靖宏、卜部峻一、柴田光敦、市村誠次、萩谷弘通、辻本和文、“ADS による核変換サイクルの確立を目指した MA 分離プロセスの開発 (2) MA/Ln 分離プロセス抽出系に関する検討”、日本原子力学会「2014 年秋の大会」、京都大学、2014 年 9 月 8 日～2014 年 9 月 10 日
- T.Matsumura and Y.Tsubata, “Development of Separation Process for Minor Actinides using TDdDGA and New Extractants”, The 13th OECD/NEA International meeting on Minor Actinide and Fission Products Partitioning and Transmutation, 23-26 Sept. 2014, Seoul, Korea
- K.Tsujimoto, K.Nishihara, H.Takei, T.Sugawara, H.Iwamoto, and T.Sasa, “Design Study of Accelerator-Driven System for Minor Actinide Transmutation in JAEA”, Poster presentation, The 13th OECD/NEA International meeting on Minor Actinide and Fission Products Partitioning and Transmutation, 23-26 Sept. 2014, Seoul, Korea
- T.Yagi, C.H.Pyeon, Y.Takahashi and K.Nakajima, “Preparation of Minor Actinides Irradiation in Accelerator-Driven System with 100 MeV Protons at Kyoto University Critical Assembly,” Poster presentation, The 13th OECD/NEA International meeting on Minor Actinide and Fission Products Partitioning and Transmutation, 23-26 Sept. 2014, Seoul, Korea

- ・藤本敦士、卞哲浩、八木貴宏、三澤毅、“置換反応度実験における鉛の核データライブラリの比較”、日本原子力学会「2015年春の年会」、茨城大学、2015年3月20日～3月22日
- ・菅原隆徳、平井康志、西原健司、岩元大樹、Odmaa Sambuu、牛尾直史、“加速器駆動核変換システム用三次元炉心解析コード ADS3D の整備”、日本原子力学会「2015年春の年会」、茨城大学、2015年3月20日～3月22日
- ・ト部峻一、津幡靖宏、鈴木英哉、柴田光敦、黒澤達也、川崎倫弘、松村達郎、“ADSによる核変換サイクルの確立を目指した MA 分離プロセスの開発(3) ミキサセトラ抽出器による MA・Ln 分離回収試験”、日本原子力学会「2015年春の年会」、茨城大学、2015年3月20日～3月22日
- ・鈴木英哉、津幡靖宏、部峻一、柴田光敦、黒澤達也、川崎倫弘、松村達郎、“ADSによる核変換サイクルの確立を目指した MA 分離プロセスの開発(4) MA/Ln 分離のための新規抽出剤の検討”、日本原子力学会「2015年春の年会」、茨城大学、2015年3月20日～3月22日
- ・辻本和文、西原健司、武井早憲、菅原隆徳、岩元大樹、大泉昭人、佐々敏信、“MA 核変換を目的とした加速器駆動未臨界システムの概念検討(1)全体概要”、日本原子力学会「2015年秋の大会」、静岡大学、2015年9月9日～9月11日
- ・武井早憲、“MA 核変換を目的とした加速器駆動未臨界システムの概念検討(2)ADS用加速器の概念検討”、日本原子力学会「2015年秋の大会」、静岡大学、2015年9月9日～9月11日
- ・大泉昭人、岩元大樹、菅原隆徳、西原健司、辻本和文、“MA 核変換を目的とした加速器駆動未臨界システムの概念検討(3)未臨界度調整機構の検討”、日本原子力学会「2015年秋の大会」、静岡大学、2015年9月9日～9月11日
- ・菅原隆徳、西原健司、“MA 核変換を目的とした加速器駆動未臨界システムの概念検討(4)受動的崩壊熱除去システムの検討”、日本原子力学会「2015年秋の大会」、静岡大学、2015年9月9日～9月11日
- ・鈴木英哉、津幡靖宏、柴田光敦、黒澤達也、川崎倫弘、佐川浩、松村達郎、“ADSによる核変換サイクルの確立を目指した MA 分離プロセスの開発(5) MA/Ln 分離のための新規抽出剤の検討”、日本原子力学会「2015年秋の大会」、静岡大学、2015年9月9日～9月11日
- ・藤本敦士、卞哲浩、三澤毅、北村康則、“置換反応度実験における鉛の核データライブラリの比較(2)”、日本原子力学会「2015年秋の大会」、静岡大学、2015年9月9日～9月11日
- ・T. Sugawara, K. Nishihara, H. Takei, H. Iwamoto, A. Ohizumi, T. Sasa, and K. Tsujimoto, “Current Activities for Research and Development on Accelerator-Driven System in JAEA”, Global2015, Paris, France, Sep. 21-24 2015
- ・T. Sugawara, K. Nishihara, H. Iwamoto, A. Ohizumi, and K. Tsujimoto, “Neutronics Design for LBE cooled Accelerator-Driven System with Subcriticality Adjustment Mechanism”, MAXSIMA/SEARCH workshop, Jukkasjärvi, Sweden, Feb 23-26 2016
- ・松村達郎、鈴木英哉、津幡靖宏、柴田光敦、黒澤達也、川崎倫弘、佐川浩、“ADSによる核変換サイクルの確立を目指した MA 分離プロセスの開発(6) TDdDGA 抽出剤による MA・RE 一括回収プロセスの開発ープロセス条件の確定”、日本原子力学会「2016年春の年会」、東北大学、2016年3月26日～3月28日
- ・鈴木英哉、津幡靖宏、柴田光敦、黒澤達也、川崎倫弘、佐川浩、松村達郎、“ADSによる核

変換サイクルの確立を目指した MA 分離プロセスの開発(7) MA 分離のための新規抽出剤の検討”、日本原子力学会「2016年春の年会」、東北大学、2016年3月26日～3月28日

- A.Fujimoto, C.H.Pheon, T.Misawa, and Y.Kitamura, “Validation of Pb Nuclear Data by Sample Reactivity Experiments at Kyoto University Critical Assembly”, Reactor Physics Asia 2015 (RPHA15) Conference, Jeju, Korea, Sept. 16 - 18, 2015
- T.Matsumura, H.Suzuki, Y.Tsubata, “Recent progress on R&D of minor actinide separation process with innovative extractants in JAEA”, ATALANTE 2016 - Nuclear Chemistry for Sustainable Fuel Cycles, Le Corum, Montpellier, FRANCE, June 5 - 10, 2016
- T.Ohizumi, et. al, “Investigation for sub-criticality adjustment mechanism of LBE cooled Accelerator-Driven System”, Third International Workshop on Technology and Components of Accelerator-Driven Systems (TCADS-3), 6-9 Sep. 2016, Mito, Japan
- 鈴木英哉、津幡靖宏、柴田光敦、川崎倫弘、松村達郎、 “ADS による核変換サイクルの確立を目指した MA 分離プロセスの開発(8) MA/RE 分離のための新規抽出剤の検討”、日本原子力学会「2016年秋の大会」、久留米シティプラザ、2016年9月7日～9月9日
- T.Sugawara, et.al., “Investigation of Beam Window Structure for Accelerator-Driven System with Subcriticality Adjustment Rod”, 14th Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation (IEMPT14), 17-20 Oct. 2016, San Diego, USA
- T.Matsumura, et.al., “Recent progress on R&D of separation process for minor actinides using new extractants”, 14th Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation (IEMPT14), 17-20 Oct. 2016, San Diego, USA
- T.Matsumura, Y.Ban, H.Suzuki, Y.Tsubata, S.Houtoku, N.Tsutsui, A.Suzuki, “Recent progress on R&D of reprocessing and minor actinide separation process with innovative extractants in CHON principle”, Int. Conf. Asian Nuclear Prospects 2016 (ANUP 2016), 24-27 Oct. 2016, Sendai, Japan
- 松村達郎、伴康俊、鈴木英哉、津幡靖宏、樋川智洋、筒井菜緒、宝徳忍、鈴木明日香、 “原子力機構における MA 分離プロセス開発の現状”、日本溶媒抽出学会「第 35 回溶媒抽出討論会」、産業総合技術研究所、つくば市、2016年11月28日～11月29日
- T.Sugawara, “Recent Progress of R&D on Accelerator-Driven System in JAEA”, Int. Conf. Asian Nuclear Prospects 2016 (ANUP2016), 24-27 Oct. 2016, Sendai, Japan
- T.Tsujimoto, “Current status of R&D of Accelerator-Driven System for minor actinide transmutation in JAEA”, 2nd Int. Conf. on Fusion-Fission Sub-Critical Systems for Waste Management and Safety (FUNFI2), 26-28 Oct. 2016, Roma, Italy
- 大泉昭人、 ” 階層型分離変換サイクルにおける核変換システムの概念検討”、ポスター発表、再処理・リサイクル部会セミナー、東京工業大学蔵前会館
- 鈴木英哉、伴康俊、柴田光敦、川崎倫弘、松村達郎、 “ADS による核変換サイクルの確立を目指した MA 分離プロセスの開発(9) MA/RE 相互分離のための新規抽出剤の検討”、日本原子力

学会「2017年春の年会」、東海大学、2017年3月27日～29日

- T. Matsumura, et.al., “Current status of R&D on minor actinide separation process with CHON Extractants in JAEA”, ACTINIDES2017, 9-14 July. 2017, Sendai, Japan

4.2 今後の課題

本研究では、当初計画していた研究は全て終了し、当初の目的を達成することができたが、ADS 階層型概念の実現に向けて今後解決すべき課題も抽出された。

(1) ADS 用 MA 分離回収技術の開発

本研究では、使用済燃料の再処理後の廃液から MA を回収する新たなプロセスを提案し、実際の軽水炉使用済燃料の廃液から約 90%以上の回収率で約 9mg の Am を回収することができた。今後は、提案したプロセスの準工学規模試験のグラムスケールの MA 回収試験に向けて課題解決が必要となる。例えば、取扱量が増加した場合には、抽出剤の放射線分解の影響が懸念されるため、使用する抽出剤の放射線分解挙動等の把握が課題となる。

(2) 加速器駆動未臨界システムの開発

① FFAg-KUCA を用いた ADS 模擬炉物理実験（再委託先：京都大学）

FFAG と未臨界体系を組み合わせた ADS 模擬体系を構築可能な京都大学原子炉実験所の臨界実験装置(KUCA)を用いた炉物理実験を実施した。KUCA の新規制基準への適合性確認が予想よりも時間を有したために、当初計画の実験は実施できたものの、実験結果を踏まえた再実験等を実施する時間的な余裕が無かった。今後は、本研究で得られた成果を基に、実験条件の再検討等を行い、さらに精度の良い実験結果を得るとともに、実験結果を実用規模 ADS の検討に十分に反映させることが必要となる。

②工学的成立性の高い ADS プラント技術開発

本研究で従来よりも安全性・信頼性の高い ADS 概念を構築した。今後は、本研究成果を基に、さらに詳細な設計検討を行う必要がある。例えば、並列化した加速器からのビームを炉心に導入するために炉心上部に配置した電磁石等の機器については、燃料交換やメンテナンスを考慮した実用的な配置検討が必要となる。また、反応度調整用の制御棒については、鉛ビスマス中での駆動機構や交換時の作業工程を考慮する必要がある。また、ビーム窓、燃料集合体、1 次系・2 次系等での鉛ビスマスの流動状況の詳細解析や、炉内での LBE 中酸素濃度分布等の検討が必要である。