

高速炉を活用した LLFP 核変換システムの研究開発

(受託者) 国立大学法人東京工業大学

(研究代表者) 千葉 敏 東京工業大学科学技術創成研究院先導原子力研究所

(再委託先) 国立大学法人東北大学、学校法人五島育英会東京都市大学、

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

(研究期間) 平成 28 年度～31 年度

1. 研究の背景とねらい

将来の原子力エネルギーシステムには、安全性に優れ、放射性廃棄物による環境負荷を効果的に低減し環境と調和する高い性能が求められる。LLFP核変換は、不確実性を伴う超長期の放射性廃棄物処分リスクを低減し、地層処分の安全性を一般社会にわかり易い形で提示すること、そして原子力の信頼性を取り戻し一層高めるため必要である。長期間に亘って被ばく線量をもたらす主要核種としては、 ^{99}Tc : 21万年、 ^{129}I : 1570万年、 ^{79}Se : 33万年、 ^{93}Zr : 153万年、 ^{107}Pd : 650万年、 ^{135}Cs : 230万年があり、これらに着目し、安定核種に変換する「核変換」が必要と考えられる。

本研究開発では、「もんじゅ」相当の小型高速炉を利用することを念頭に、LLFP として ^{129}I , ^{99}Tc , ^{79}Se , ^{93}Zr , ^{107}Pd , ^{135}Cs を対象として、従来に比べて飛躍的に高い核変換効率を可能とする減速材を用いた核変換ターゲットを開発し、LLFP 核データ評価、核変換特性、小型高速炉での核変換ターゲット集合体の交換法、炉心特性評価、熱特性評価、安全性評価、ターゲットの物性測定評価、製造技術開発、LLFP 回収技術開発、核変換ターゲット集合体の構造検討、照射試験計画策定、社会科学的意義の検討等により、実現性の高い高速炉 LLFP 核変換システムを確立し、放射性廃棄物減容・有害度低減に寄与すること目的とする。本報告は平成 28 年度の成果及び 29 年度の成果の一部を含む。

2. これまでの研究成果

以下に研究開発成果を項目別に述べる。

(1) LLFP 核データの収集・評価 (東京工業大学)

国内で評価された経験のない核分裂収率を独自に評価するため、国際核データ実験データベース EXFOR のサーベイ及び文献収集を行い、 ^{235}U , ^{239}Pu を中心にデータ評価手法の検討を行った。各種理論計算コードと実験データとの比較を行ったが、実用的なレベルでデータを再現できるモデルはなく、断裂点モデルに基づく独自の評価を行うこととし、評価を開始した。

(2) 核変換ターゲットの材質、構造、配置 (再委託先：東北大学)

「もんじゅ」ブランケット領域を想定して、LLFP 又は LLFP 化合物と中性子減速材の混合物の組成・混合割合、及び LLFP ターゲット集合体のターゲットピン内のペレット部高さ及び減速材配置をパラメータにした核特性解析を実施し、核変換率、核変換量とこれらのパラメータの関係を明らかにした。重水素化イットリウムを減速材として用いた場合、LLFP (^{79}Se , ^{93}Zr , ^{99}Tc , ^{107}Pd , ^{129}I , ^{135}Cs) の半減期間は、物理的半減期よりも大幅に低減することが明らかになった(表 1)。また、サポートファクター (SF) も全ての核種において 1 を超える見通しであり、当初の目標を達成している。このほか、水素化イットリウムを用いた場合でも同様の結果を得た(表 2)。核変換量を増やすため、軸ブランケットや径ブランケットに LLFP を装荷することは、サポートファクター (核

変換される LLFP 量を炉心で生成する同種類の LLFP 量で除した値) をどの程度に維持するか (1.0 以上) に依存することが明らかになった⁽¹⁾。

表 1 重水素化イットリウムの場合の核変換率

LLFP	半減期間 (年)	物理的半減期 (年)	核変換率 (%/年)	核変換経路
⁷⁹ Se	16.8	2.95E+5	3.0	⁷⁹ Se+n→ ⁸⁰ Se
⁹⁹ Tc	39.8	2.13E+5	1.3	⁹⁹ Tc+n→ ¹⁰⁰ Ru
¹⁰⁷ Pd	32.5	6.5E+6	1.5	¹⁰⁷ Pd+n→ ¹⁰⁸ Pd
¹²⁹ I	28.4	1.57E+7	1.8	¹²⁹ I+n→ ¹³⁰ Xe
⁹³ Zr	213	1.5E+6	0.2	⁹³ Zr+n→ ⁹⁴ Zr
¹³⁵ Cs	518	2.3E+6	0.1	¹³⁵ Cs+n→ ¹³⁶ Ba

表 2 水素化イットリウムの場合の核変換率

LLFP	半減期間 (年)	物理的半減期 (年)	核変換率 (%/年)
⁷⁹ Se	11.4	2.95E+5	4.4
⁹⁹ Tc	32.6	2.13E+5	1.5
¹⁰⁷ Pd	25.4	6.5E+6	2.0
¹²⁹ I	17.9	1.57E+7	2.8
⁹³ Zr	281	1.5E+6	0.2
¹³⁵ Cs	606	2.3E+6	0.1

(3) 「もんじゅ」炉心特性評価 (再委託先：東京都市大学)

「もんじゅ」炉心に LLFP 集合体を配置した炉心の核特性を求めるため、まず「もんじゅ」炉心の仕様の調査を行い解析に必要なデータを整備した⁽²⁾。次に、その仕様に基づき「もんじゅ」炉心を 3 次元非均質体系でモデル化し連続エネルギーモンテカルロコード (MVP)⁽³⁾と日本の最新の核データライブラリ (JENDL-4.0)⁽⁴⁾を用いて解析を行った。得られた炉心特性パラメータを設置許可申請書記載データ等と比較することにより解析の妥当性を確認した。これらのデータおよび解析手法を用いて、「もんじゅ」のブランケット領域に核変換ターゲット集合体 (減速材は重水素化イットリウム) を装荷した炉心の核変換特性を解析し、LLFP 同時照射時にサポートファクターが 1 以上となる可能性があることを示した。

また、LLFP 集合体内の減速材により減速された中性子が隣接する燃料棒に与える影響を評価するために出力分布を求めた。ブランケット領域第一層 (9 列目) に LLFP 集合体 (重水素化イットリウム減速材/テクネチウム体積割合：30%/70%) を配置した場合の径方向集合体出力分布を図 1 に、燃料集合体内径方向ピーキング係数を図 2 に示す。これらの図より重水素化イットリウム減速材を用いることにより燃料棒出力にピークが生じないことが確認された。

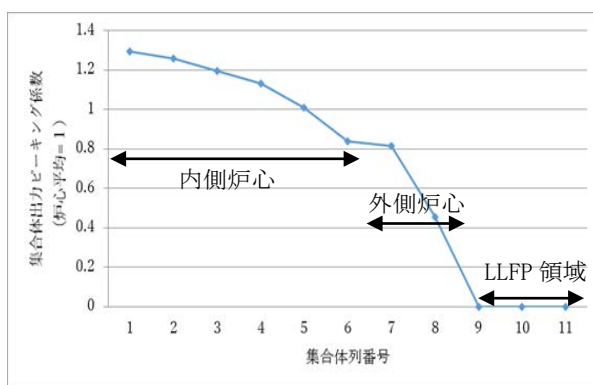


図 1 径方向集合体出力分布

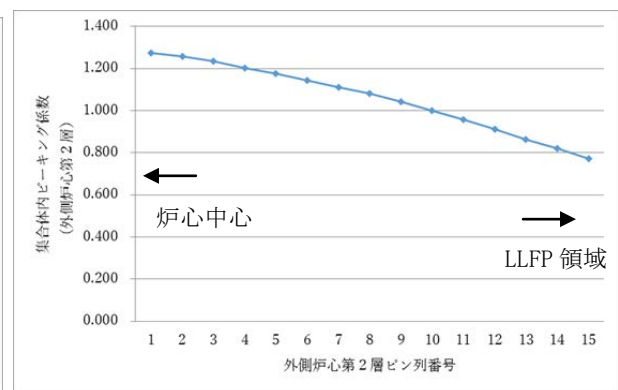


図 2 燃料集合体内ピーキング係数

(4) 核変換ターゲット構造材料の物性 (再委託先：原子力機構)

6 種の LLFP 核種について高速炉の炉内温度条件を基に安定に装荷可能な形態を選定するための

物性や化学的特性、高温での安定性を調査した。その結果、Zr、Tc、Pdについては単体形態が安定であることが明らかになった。また、Iについても先行研究の成果からBaI₂が高温安定性に問題の無いことが知られている。一方、Se及びCsについては単体及び酸化物のいずれにおいても200°Cから500°Cの温度域において著しい重量減少が発生し、高温安定性に課題のあることが明らかとなった。これらの結果から、⁹³Zr、⁹⁹Tc及び¹⁰⁷Pdについては単体形態を、¹²⁹IについてはBaI₂をそれぞれ候補材として選出した。Se及びCsについては主に融点に着目し、⁷⁹SeについてはZnSe、¹³⁷CsについてはCs₂CO₃を候補材として抽出した。さらに、今後実施予定のリサイクル性の評価に資するため、Se、Zr、Pd及びCsについて酸(HNO₃)、アルカリ(NaOH)に対する可溶性について試験を行い調査した。試験結果よりSeとCsについては酸及びアルカリの双方に可溶であるが、Zr、Pdについては酸及びアルカリのいずれにも不溶であることが明らかとなった。

(5) LLFP回収技術の検討（再委託先：原子力機構）

LLFP回収技術の検討の一環として、照射後ターゲットからの未変換LLFPの回収方法について検討した。核変換ターゲットとして炉内に装荷されたLLFPは一定期間照射された後、変換生成核種と混合した状態にあるため、未変換LLFPを分離して回収することが必要となる。6種のLLFPのうち、分離手法に目途が立っているTcとIを除いたSe、Zr、Pd及びCsについて、Se-Br系、Zr-Mo系、Pd-Ag系及びCs-Ba系を照射後の基本的な混合成分系と想定し、溶媒を用いた固液分離手法による分離特性を試験調査した。溶媒としては個々の成分元素の溶解特性に基づき、Se-Br系とCs-Ba系ではC₂H₅OH（エタノール）を、Zr-Mo系とPd-Ag系ではHNO₃を用いた。分離試験は各溶媒にそれぞれの成分元素を添加し、攪拌し静置した後にろ過する方法で実施した。ろ過により得られた残渣とろ液の成分分析により成分元素の分離特性を評価した。試験の結果、Zr-Mo系及びCs-Ag系ではそれぞれの成分元素の分離が可能な見通しが得られたが、Se-Br系及びPd-Ag系では反応生成物の形成により溶解特性が変化するため成分元素の分離が困難であることが明らかとなった。

(6) 社会科学的意義の検討（再委託先：東北大学）

環境負荷低減の社会的受容性のアンケート調査のための予備検討を行った。それに基づいてアンケートの質問項目、対象者等について明確にした。予備調査では一般市民にとって分離・変換技術の理解は困難であるが、放射性廃棄物の処分の負荷の低減に対する基本的な有効性の認識はある程度は可能であるという結果となった。

(7) 研究推進

プロジェクトの円滑な進行を実現するために定期的に会合を開催し、進捗状況の確認と問題点の議論を行った。また、本プロジェクトの提案骨子に関する学会発表を行い、さらに論文を投稿し、Springer-Nature社のScientific Reports(IF=5)に掲載された⁵⁾。その成果をプレスリリースし、参加各機関のHP、日本経済新聞電子版及び科学新聞、258の海外メディアで紹介された。

3. 今後の研究

(1) LLFP核データの収集・評価（東京工業大学）

評価した核分裂収率データの検証を進めるとともに、さらに多くの核種についての評価を行う。

(2) 核変換ターゲットの材質、構造、配置、交換法等（再委託先：東北大学）

LLFP 核変換効率の向上を目ざし核変換ターゲットの材質、構造、配置、交換法の検討を継続して行う。

(3) 炉心特性・熱特性の評価（再委託先：東京都市大学）

LLFP 装荷炉心の炉心特性を明らかにするために炉心の反応度係数、LLFP 集合体出力評価、燃料棒出力ピーキングの評価を行う。また、LLFP 集合体の最適配置の検討さらに流量配分設定などを行うための熱解析を行う。

(4) 核変換ターゲット構成材料の物性（再委託先：原子力機構）

Se と Cs の候補化合物である ZnSe と Cs_2CO_3 について、熱重量示差熱分析法 (TG-DTA) により高温安定性を明らかにする。また、LLFP 化合物と中性子減速材の母相成分である Y 又は Zr や被覆管材料 (SUS316 鋼) との反応性を確認し、LLFP ターゲット集合体の設計に反映する。さらに、中性子吸収材の装荷方法の検討に資するため、 YD_2 及び ZrD_2 について比表面積と水素保持性能の関係を調査する。

(5) LLFP 回収技術の検討（再委託先：原子力機構）

リサイクル性の検討が進んでいる I について、再処理工程での存在状態からの回収手法を検討し、試験的に回収率を評価する。また、それ以外の LLFP 元素については、照射後ターゲットからの分離回収手法の試験的検討と再処理工程からの回収手法に関する調査・検討を進めていく。

(6) 社会科学的意思の検討（再委託先：東北大学）

高速炉を活用した LLFP 核変換の社会的受容性の検討の一貫として、先行事例としての地層処分理解促進の説明の分析、及び、LLFP 核変換の説明のありかた方について検討する。

(7) 研究推進

本年度の成果をまとめ、学会等で発表するとともに報告書を作成する。

4. 参考文献

- (1) Wakabayashi, T., Chiba, S., Takahashi, M., Takaki, N. and Tachi, Y., Proceeding of GLOBAL 2017, "STUDY ON TRANSMUTATION OF SE-79, TC-99, PD-107, I-129, ZR-93 AND CS-135 BY FAST REACTOR", Proceeding of GLOBAL 2017, September 24-29, 2017, Seoul (Korea), Paper A-357.
- (2) 動力炉・核燃料開発事業団, 高速増殖炉もんじゅ発電所原子炉設置許可申請書本文及び添付書類 (一~十一), 1980.
- (3) Mori, T. & Nakagawa, M. MVP/GMVP: general purpose Monte Carlo codes for neutron and photon transport calculations based on continuous energy and multigroup methods (1994). JAERI-Data/Code-94-007.
- (4) Shibata, K. et al. JENDL-4.0: a new library for nuclear science and engineering. J. Nucl. Sci. Technol. 48, 1-30 (2011).
- (5) Chiba, S., Wakabayashi, T., Tachi, Y., Takaki, T., Terashima, A., Okumura, S. and Yoshida, T., "Method to Reduce Long-lived Fission Products by Nuclear Transmutations with Fast Spectrum Reactors", Scientific Reports 7, 13961-1-10 (2017).