

# 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

(受託者) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

(研究代表者) 辻本和文

(再委託先) 国立大学法人京都大学

(研究期間) 平成25年度～29年度

## 1. 研究の背景とねらい

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(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システム(ADS)を用いてMAの核変換を行う方法(ADS階層型、図1参照)が考えられている。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。

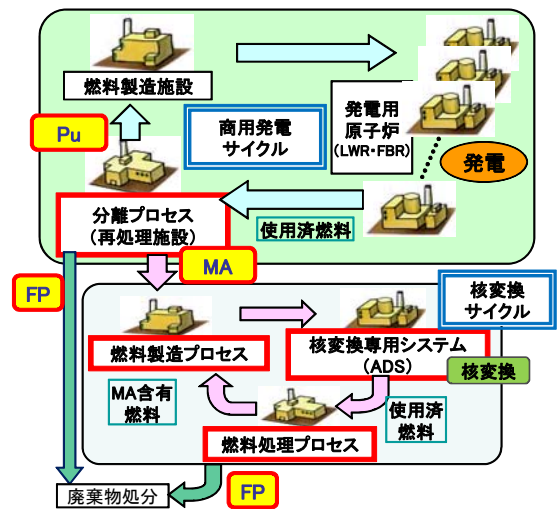


図1 ADS階層型のMA核変換システムの概念

ADS階層型概念は、我が国では日本原子力研究開発機構(以下、原子力機構)を中心として研究開発を実施してきたが<sup>1)</sup>、実現には多くの技術課題がある<sup>2)</sup>。本研究開発プログラムでは、ADS階層型概念の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して研究開発を実施している。

具体的には、MA分離に関しては、工学的プロセス実証にいたる最初のステップである「ベンチスケールホット試験」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、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。また、ADSに関しては、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。ADSの炉物理的課題に対しては、ADS模擬実験が可能な京都大学(以下、京大)臨界実験装置(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する。また、加速器の信頼性向上のための構成要素の並列化及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、より工学的成立性のある見込めるADS概念を構築する。

## 2. これまでの研究成果

### 2. 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

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  $\alpha$   $\gamma$  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 (図 2)。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、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。

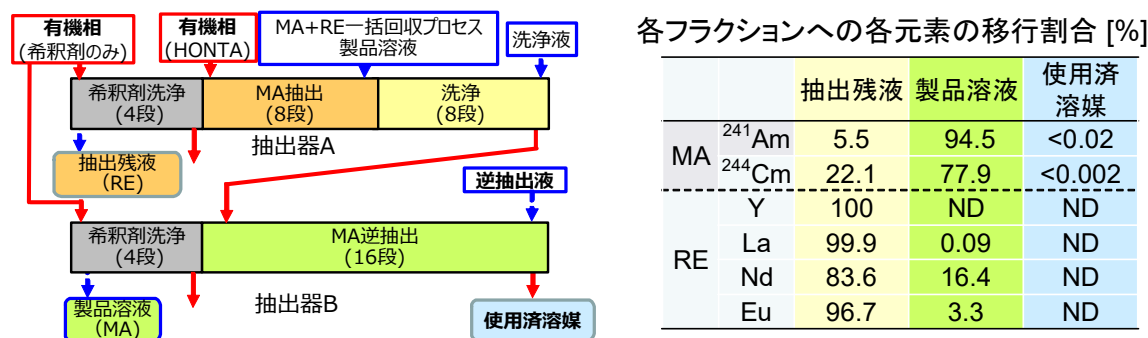


図 2 MA/Ln 分離プロセスの実廃液試験フローシートと各フラクションへの元素移行割合

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。

## 2. 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

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、 $^{237}\text{Np}$ 、 $^{241}\text{Am}$  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。 $^{237}\text{Np}$  および  $^{241}\text{Am}$  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  $^{235}\text{U}$  の核分裂反応率との比として測定した。 $^{237}\text{Np}$  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 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、 $^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116m}\text{In}$  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（図3）を提示した。

### 3. 今後の展望

#### 3.1 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。

#### 3.2 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

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なかった。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。

### 4. 参考文献

- (1) C.H.Pyeon, A.Fujimoto, T.Sugawara, et.al, “Validation of Pb Nuclear Data by Monte Carlo Analyses of Sample Reactivity Experiments at Kyoto University Critical Assembly”, Journal of Nuclear Science and

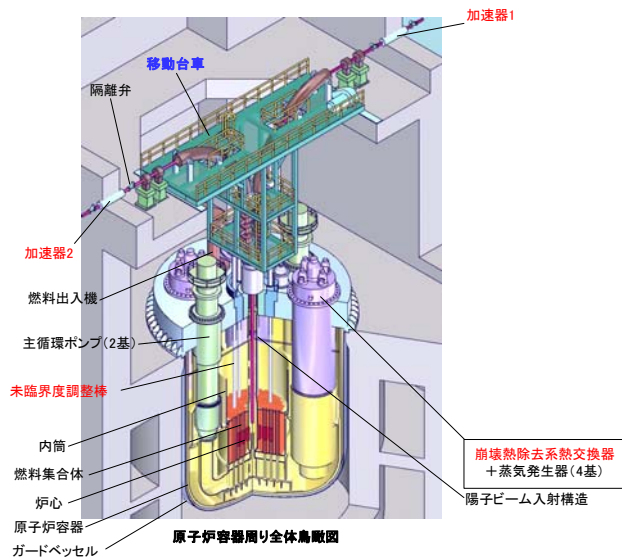


図3 ADSプラント原子炉構造周り概念図

Technology, 54 (4), 602-612 (2016).

- (2) T.Sugawara, K.Nishihara, H.Iwamoto, et.al, “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).
- (3) C.H.Pyeon, A.Fujimoto, T.Sugawara, et.al, “Sensitivity and Uncertainty Analyses of Lead Sample Reactivity Experiments at Kyoto University Critical Assembly”, Nuclear Science and Engineering, 185 (3), 460-472 (2017).
- (4) T.Sugawara, Y.Eguchi, H.Obayashi, et.al, “Conceptual design study of beam window for accelerator-driven system with subcriticality adjustment rod”, Nuclear Engineering and Design, 331, 11-23 (2018).
- (5) T.Sugawara, H. Takei, H.Iwamoto, et.al, “Research and development activities for accelerator-driven system in JAEA”, Prog. Nucl. Enc., 106, 27-33 (2018).
- (6) C.H.Pyeon, T.M.Vu, M.Yamanaka, et.al, “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).
- (7) Y. Ban, H. Suzuki, S. Hotoku, T. Kawasaki, H. Sagawa, N. Tsutsui, T. Matsumura, “Extraction of trivalent rare earths and minor actinides from nitric acid with N,N,N’N’-tetradodecyldiglycolamide (TDdDGA) by using mixer-settler extractors in a hot cell“Solvent Extraction and Ion Exchange, in press.