

原子力システム研究開発事業 H28採用課題説明会

高速炉を活用したLLFP核変換システム の研究開発



研究代表者：	千葉 敏（東京工業大学）
再委託先研究代表者：	高橋 信（東北大学）
再委託先研究代表者：	高木 直行（東京都市大学）
再委託先研究代表者：	舘 義昭（日本原子力研究開発機構）

目次

1. 研究の背景
2. 全体計画、目的
 - A) 高速炉でのLLFP核変換スキーム
 - B) 研究の全体像と分担
3. 研究の全体像と分担
 - A) 本事業の流れ
4. 検討結果
 - A) LLFPターゲット材質
 - B) 最終提案1: 3炉心による6LLFP分割照射
 - C) 最終提案2: I, Se, Tcの核変換炉心＋FBR
5. 本事業の成果
 - A) 本事業の進捗と成果
6. 結論

1. 研究の背景

• 使用済み核燃料の処理・処分（地層処分）

1. 原子力の社会受容性に直結する国民的課題
2. MAの核変換は軽水炉、高速炉、ADS等様々なオプションで検討中
→MAの核変換は最終的には核分裂によるためLLFP問題に帰着
3. 7LLFP: ^{79}Se , ^{93}Zr , ^{99}Tc , ^{107}Pd , ^{126}Sn , ^{129}I , ^{135}Cs ; 深地層処分されたHLWガラス固化体からの公衆被ばくの主要原因、かつ長期間に亘る風評被害感情が地層処分場建設を極端に困難なものとしている
4. LLFPについては核変換検討対象が限られていた: ^{99}Tc , ^{129}I
長期被ばくの観点ではIとSeが重要。それ以外は？
5. ImPACT? SCNES? ← 同位体分離・偶奇分離を前提。

• 「もんじゅ」→高速炉

1. エネルギー基本計画：廃棄物減容・有害度低減や核不拡散技術開発の国際的な研究拠点としての位置付け
2. 運営主体に関する規制委勧告→有馬委員会：近い将来の再稼働は期待出来ないが存続の意義は確認：教育機関との連携による人材育成の場としての活用を期待→廃炉が決定
3. 高速炉→原子力発電・核燃サイクル自体の存続問題：高速炉を活用する科学的かつ一般公衆が受け入れうる意義のある計画が必要

2. 全体計画、目的

1. 「もんじゅ」を活用する革新的な核変換システムの概念を構築し、従来に比べて飛躍的に高い効率を有するLLFP核変換システムを開発する。そのために有害度の高い全てのLLFPを含む新規の減速材入りターゲット要素を開発し、それを用いるシステムの核変換率、炉心核熱特性、安全性の評価、ターゲットの物性測定、製造技術、LLFP回収技術、核データの高精度評価手法等の要素技術開発を遂行し、全体システムの最適化、「もんじゅ」での照射試験計画策定を行う。また、実用化段階の大型高速炉に対して、本LLFP核変換システムの適用性を評価する。
2. 「もんじゅ」の廃炉決定を受けて、平成29年度より（「もんじゅ」クラスの小型）高速炉を用いるLLFP核変換システムの研究開発へとテーマを変更。
3. わが国における高速炉技術の継承及び高速炉の社会受容性向上を目的として、長寿命の放射性廃棄物減容及び環境負荷低減の付加価値を実現する核変換システムとして研究を実施中。特に同位体分離や偶奇分離を行わず、サポートファクターに重点を置いた現実的システムの研究開発を実施。
4. 対象LLFPは（中性子断面積が小さすぎる ^{126}Sn を除く） ^{79}Se , ^{93}Zr , ^{99}Tc , ^{107}Pd , ^{129}I , ^{135}Cs

高速炉でのLLFP核変換スキーム

サポートファクター(SF) = $\frac{\text{変換されるLLFP量}}{\text{生成するLLFP量}}$
(またはサポート比 SR)

$$\approx \frac{\sigma_c^{\text{LLFP}}}{\gamma_F^{\text{LLFP}} \sigma_F}$$

核データ

$$\frac{\phi_{\text{Target}}}{\phi_{\text{Core}}}$$

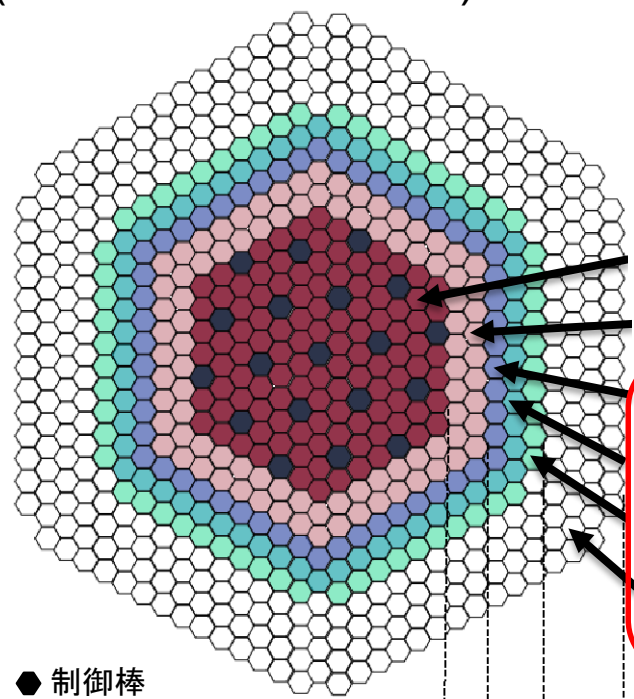
$$\frac{N_{\text{Target}}^{\text{LLFP}}}{N_{\text{Core}}^{\text{Fissile}}}$$

材料

サポートファクター > 1

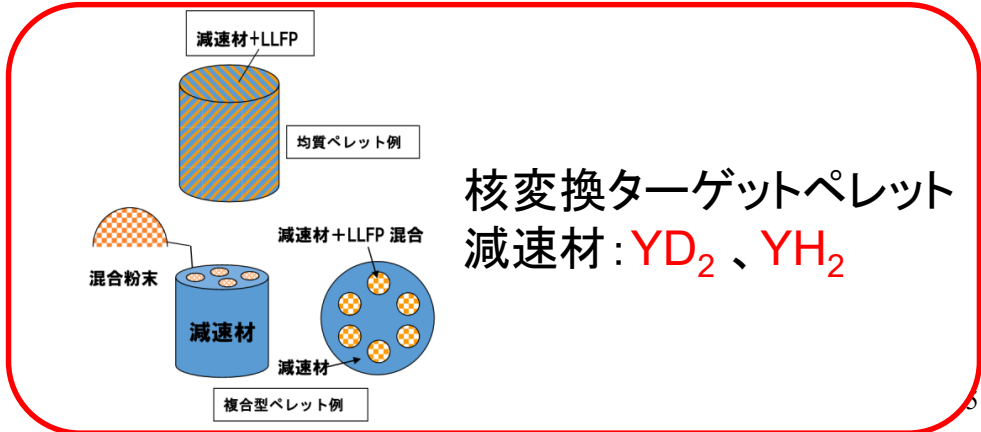
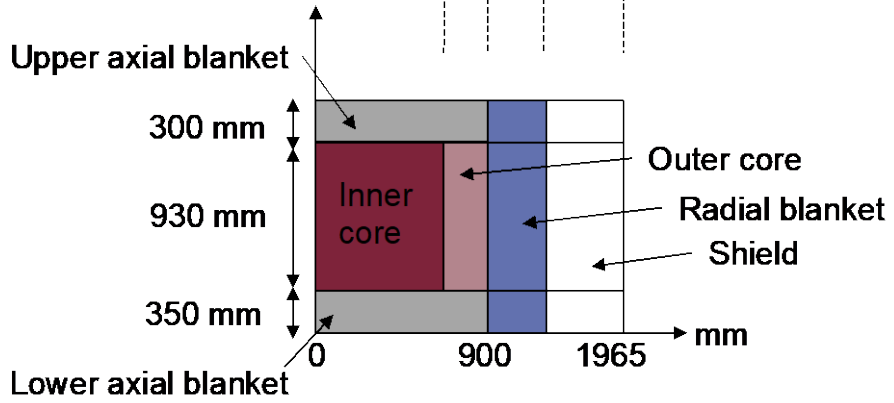
^{79}Se , ^{99}Tc , ^{129}I , ^{107}Pd については1層のみで変換可能

^{93}Zr , ^{135}Cs 核変換用ターゲット集合体は遮蔽体領域まで配置



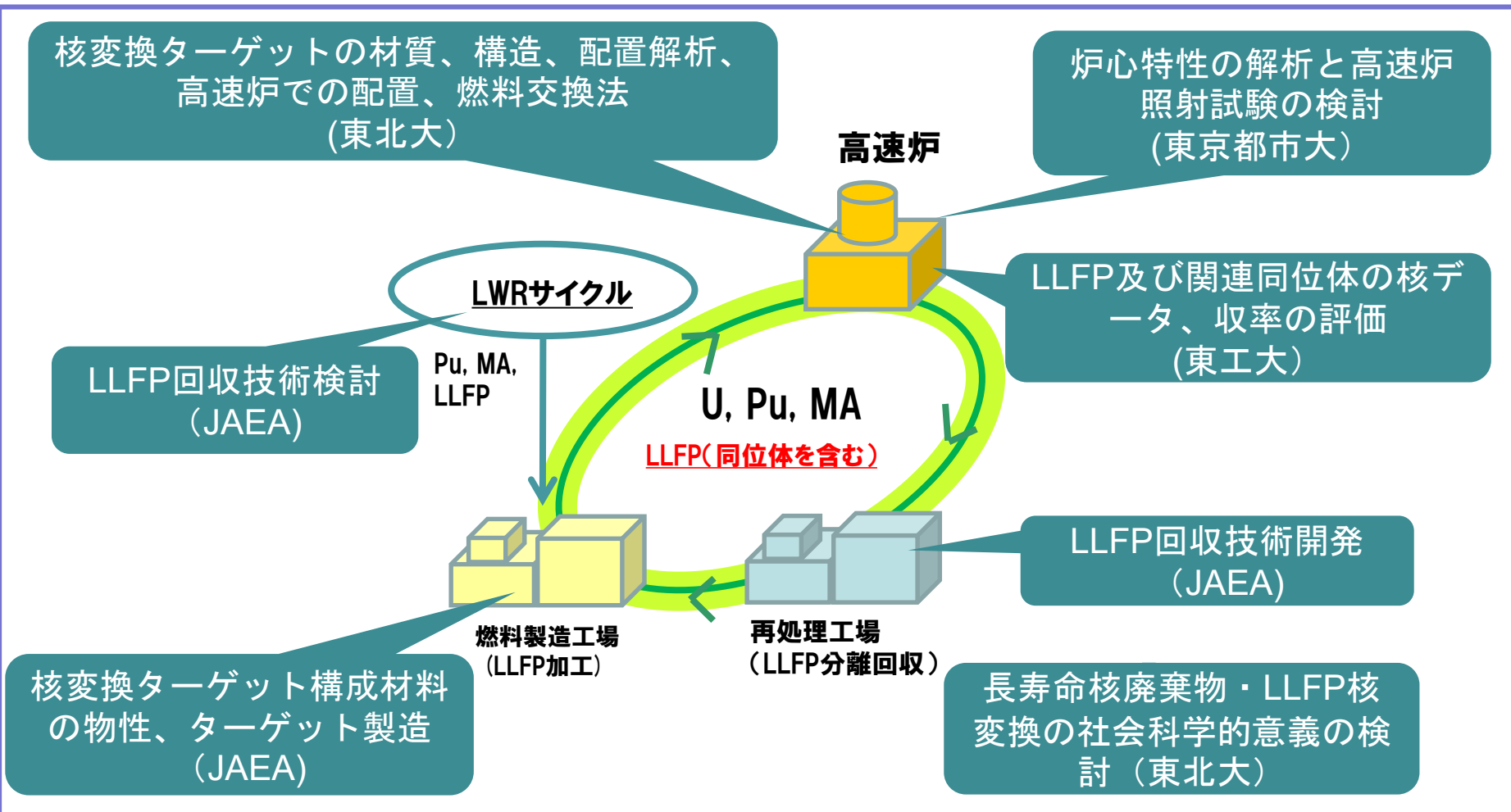
- 内側炉心燃料集合体
- 外側炉心燃料集合体
- LLFPターゲット集合体 第1層(54体)
- LLFPターゲット集合体 第2層(60体)
- LLFPターゲット集合体 第3層(60体)
- 中性子遮蔽体: → LLFPターゲット集合体に置き換え
第4層(72体), 第5層(78体), 第6層(84体), 第7層(90体)

全体で498体



3. 研究の全体像と分担

全体とりまとめ：東工大



1. 高速炉平衡サイクルでのLLFPの閉じ込め・減容可能性の検討
2. LWRサイクルで発生した全LLFP核変換・閉じ込め・高速炉平衡サイクルへの移行
3. 同位体分離、偶奇分離はしない(中間評価でのPOコメントにより偶奇分離も検討依頼)

本事業の流れ

核分裂核データの整備

核分裂収率の評価

LLFP中性子捕獲断面積の(精度)評価

照射試験計画

有効なLLFP核変換を実現する集合体配置、減速材の決定(モンテカルロ核計算)

3炉心6核種照射
2核種照射+FBR

6核種単独照射
計算→6核種同
時照射の見積

6核種同時
照射計算

4核種(^{79}Se , ^{99}Tc ,
 ^{107}Pd , ^{129}I)+ ^{135}Cs , ^{93}Zr
単独照射

炉心解析による本計画の
妥当性・安全性の検証

ターゲット構成材の決定

核変換後の回収方法の検討

高温安定性
被覆材との共存性
ターゲット製造法
LWR再処理工程からの回収
照射後形態からの回収

高速炉によるLLFP核変換実現に向けたLLFP低減の社会科学的意義の検討

一般市民 批判的市民 理工系大学(院)生 女性オピニオンリーダー

4. 検討結果：LLFP ターゲット材質

減速材 + LLFP



$\text{BaI}_2 + \text{YH}_2$
一様ペレット

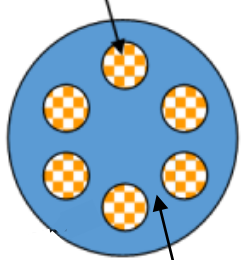


混合粉末



減速材

減速材 + LLFP



混合ペレット

$\text{ZnSe}, \text{Pd}, \text{Tc}, \text{Zr}$
 $\text{Cs}_2\text{CO}_2 (+\text{YD}_2)$

減速材
(YD_2, YH_2)

材質	融点℃	減速材
BaI_2	711	YH_2
ZnSe	1525	YD_2
Cs_2CO_3	610	YD_2
Zr	1850	—
Pd	1550	YD_2
Tc	2170	YH_2

高温での安定性があり、被覆管材料(SUS316鋼を想定)への影響が無いことから高速炉炉内環境への適用性が高い

最終提案1：3個の炉心による分割照射

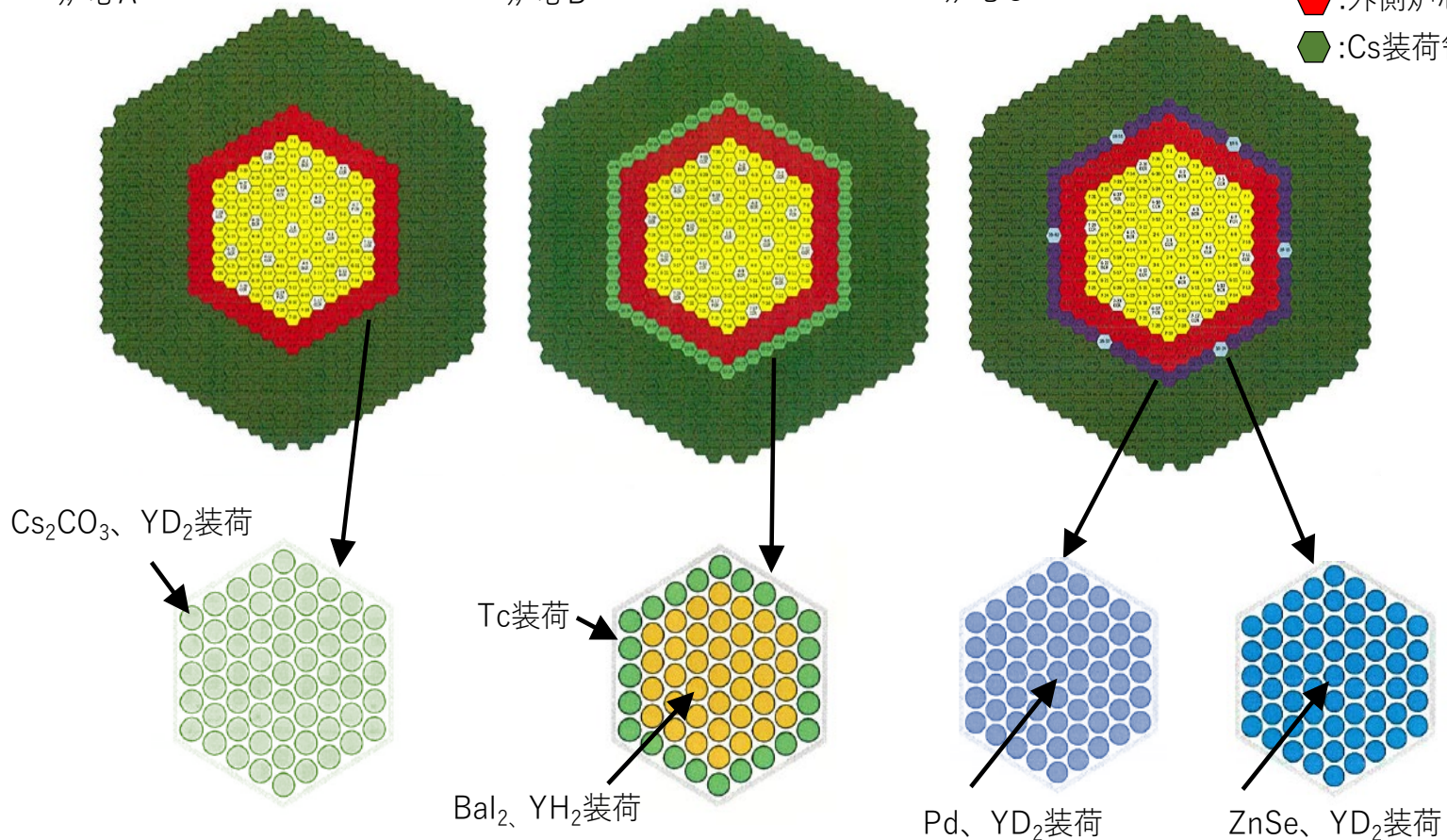
LLFPターゲット装荷炉心の構成

- : 内側炉心
- : 外側炉心
- : Cs装荷領域

炉心A

炉心B

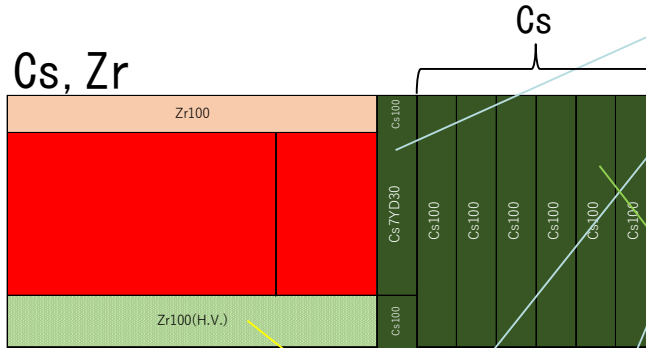
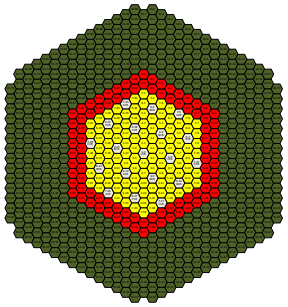
炉心C



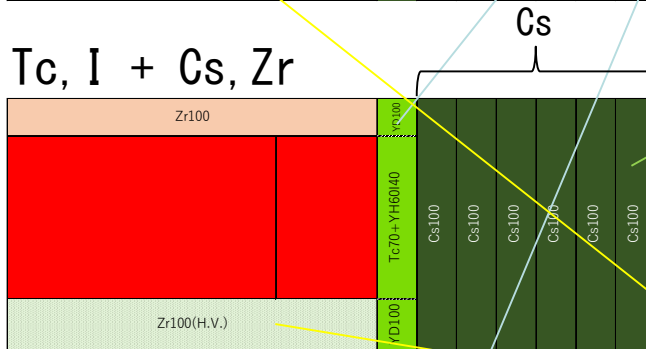
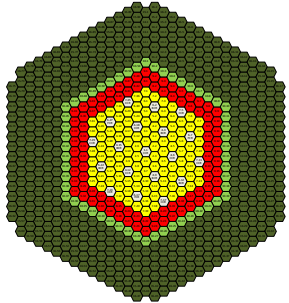
Zrは下部ブランケット領域に装荷
径ブランケット第一層以外はCs₂CO₃のみ装荷

3個の炉心による分割照射

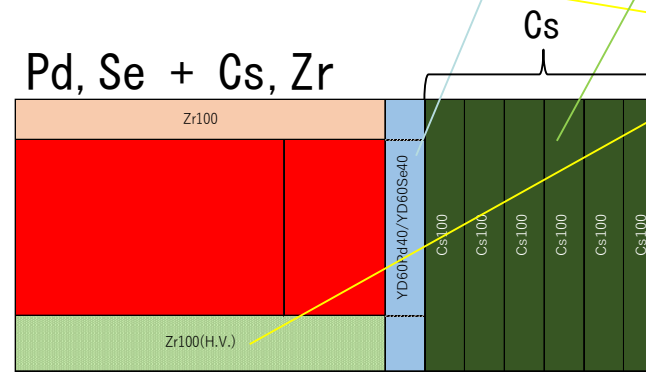
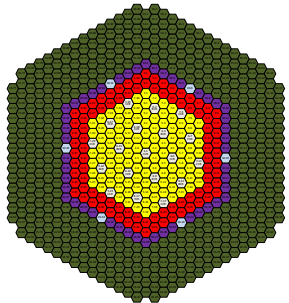
炉心 A



炉心 B

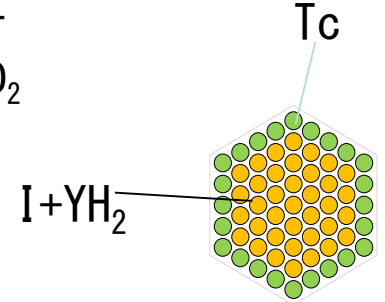


炉心 C



1st layer of radial Blanket :
LLFP target

- LLFP : 減速材
Pd, Se, Cs : YD_2
I : YH_2
Tc外周部

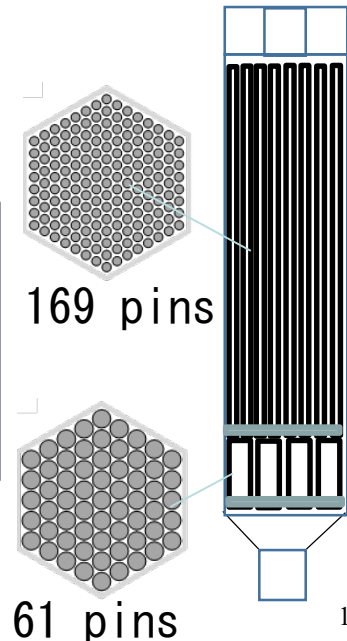


2番目以降の軽方向ブランケット及び軽
方向遮蔽体領域 (Cs層とする)

- Cs-のみのピン (炉心 A, B, C)
ピン径の増加 (11.6→12.15mm)

軸方向ブランケット

- 底部軸方向ブ
ランケット: Zr
含有量を増加さ
せるために太径
ピンを用いる



LLFP ターゲット材質 (ZnSe, Zr, Pd, BaI_2 , Cs_2CO_3)

FR3基による6核種核変換システムの核特性

LLFP	装荷量 (g)	核変換量(g/y)	核変換率	生成量(g/y)	SF	実効半減期(年)
79Se	7.93E+03	2.30E+02	2.90%	3.88E+01	5.92	24
93Zr	2.68E+06	1.23E+04	0.46%	3.82E+03	3.22	151
99Tc	8.21E+05	2.03E+04	2.47%	5.42E+03	3.75	28
107Pd	3.98E+05	9.39E+03	2.36%	2.95E+03	3.18	29
129I	1.55E+05	5.29E+03	3.41%	1.63E+03	3.25	20
135Cs	2.31E+07	3.17E+04	0.14%	1.05E+04	3.02	505

本3基組高速炉システムで6LLFP核種でそれぞれSF>3を達成
(3基のセットとしてSF>1を達成可能)

→システム自身が発生するLLFP以上の量を核変換させることが可能
ただし再処理時のロスにより、装荷量の1/10までの減容が可能

	核変換率 (%/y)	装荷元素量 (kg)	装荷同位 体量(kg)	60年装荷 量 (kg)	60年消滅 量(kg)	60年ロス (kg)	60年システ ム発生量 (kg)	消滅量/ 生成量	消滅量/装荷 量(60年)
129I	3.41	201.5	153.3	330.4	302.8	27.6	293	1.033447	0.916

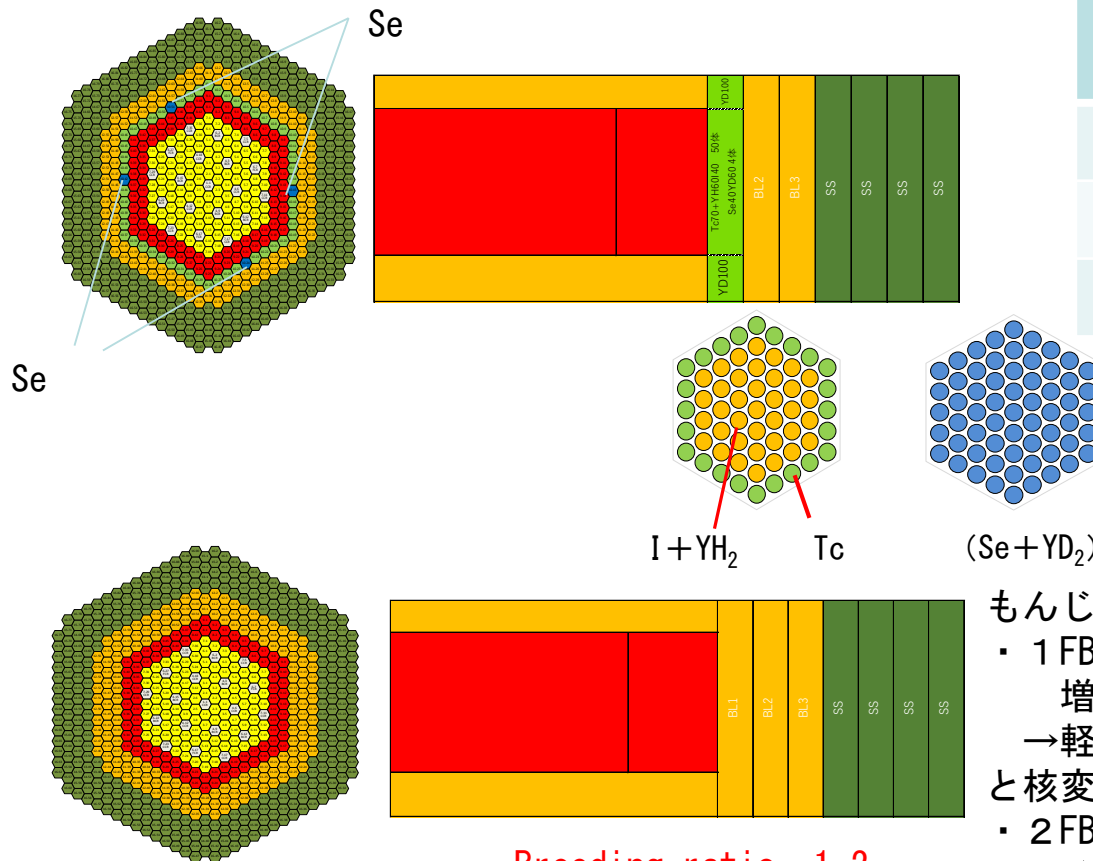
最終提案2:2 LLFP (Se, I) の核変換とFBRの組み合わせ

- 最終結論1のCore Bをベースとする
 - I:YH₂=40:60+Tcを50個の集合体に装荷
(TcはI+YH₂集合体の周辺部に配置し、サーマルスパイクを抑制する)
 - Se:YD₂=40:60を4個の集合体に装荷
 - 2層目と3層目の径方向ブランケットを復活

Core performance

LLFP	SF	Effective T _{1/2} (y)
⁷⁹ Se	3.57	15.6
⁹⁹ Tc	3.55	27.4
¹²⁹ I	3.22	19.0

転換比 : 0.84



Breeding ratio ~ 1.2

もんじゅと同等のFBRとの組み合わせ使用

- 1 FBR

増殖比 ~ 1, SF > 2

→ 軽水炉サイクルから排出されるSe, I, Tcの受け入れと核変換が可能

- 2 FBR

増殖比 ~ 1.08, SF > 1

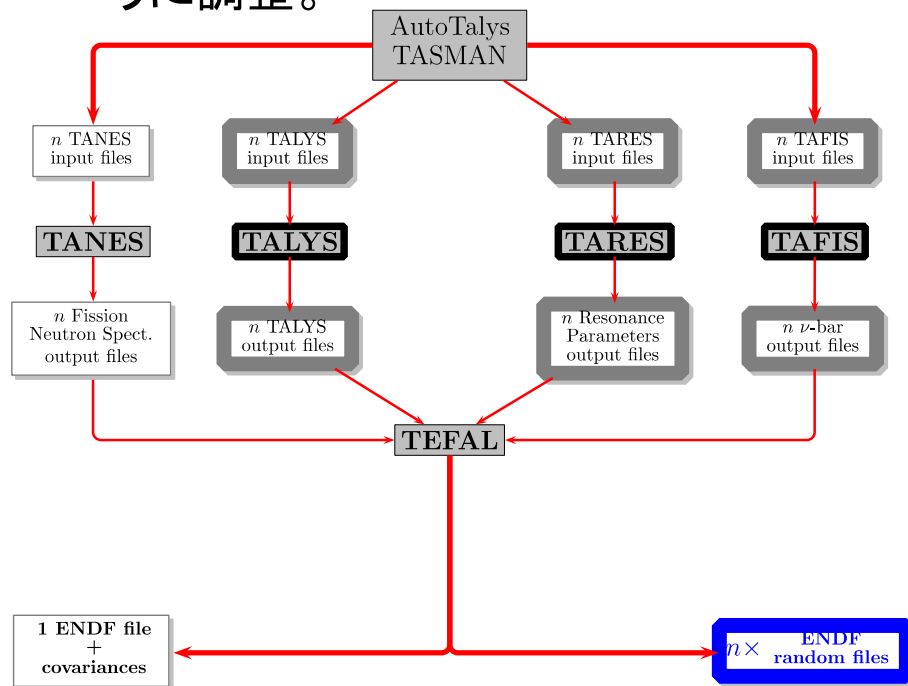
→ 増殖とI, Se, Tcの有効な核変換が可能

LLFP中性子核データの評価検討

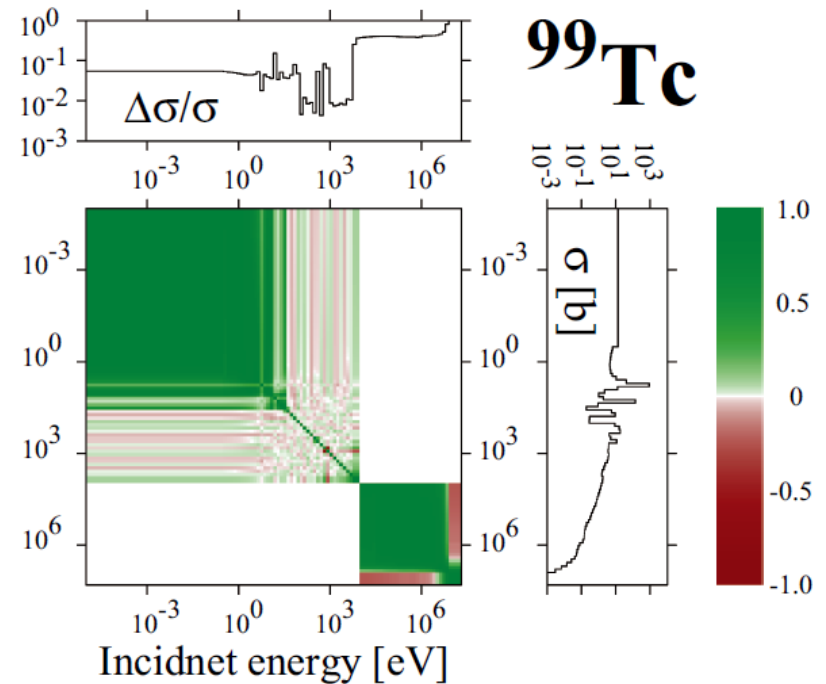
LLFP核種断面積の共分散ファイルの作成及び核変換率の不確かさ推定
→LLFP核種断面積の共分散ファイルの作成

核データ評価コードT6を導入・改良し, LLFP 6核種の共分散(断面積誤差)を推定。

1. T6でJENDL-4.0のLLFP核種の断面積を再現。
2. 各種モデルパラメータをランダムに振り, 1,000個のランダムファイルを作成。
3. ランダムファイルの分散より, LLFP核種の断面積誤差を推定。
4. 熱エネルギー領域では実験誤差が分かっているので, 断面積誤差を再現するように調整。



T6コードシステムの構成



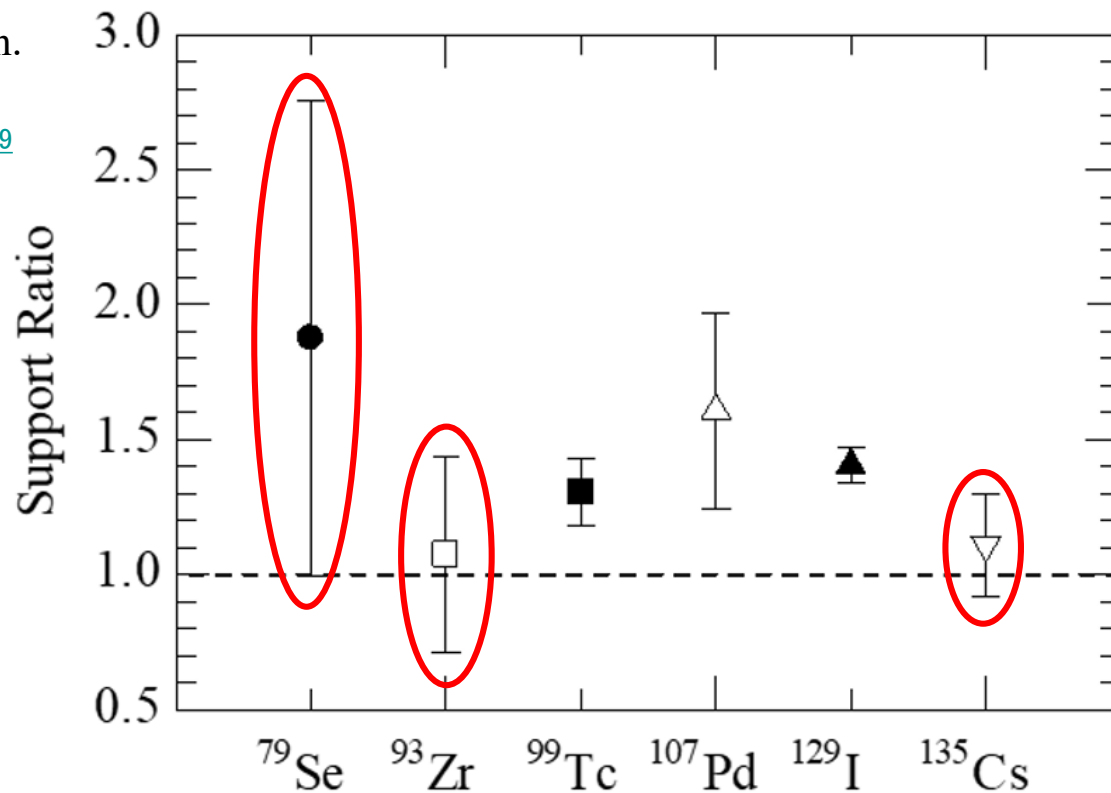
^{99}Tc の捕獲断面積の相対標準偏差と相関行列

核データに起因するサポート比の不確かさ

- システムサポート比のノミナル値は全て1以上であるが、 ^{79}Se 、 ^{93}Zr 、 ^{135}Cs については 1σ 内で1を切る可能性がある
- ^{79}Se のサポート比は容易に改善可能であるが、 ^{93}Zr と ^{135}Cs についてはすでに相当量を装荷してあるためこれ以上の改善は困難
- 核データの不確かさ（共分散）を考慮することで核データの精度に関する要求や核変換戦略について重要な方針（転換）の必要性が示唆

N. Yamano et al, J. Nucl. Sci. Tech.
(published online)

<https://doi.org/10.1080/00223131.2020.1845839>



安全性の検討

安全性：

最適化炉心を対象に詳細検討が必要な以下の3項目について安全性評価を実施し、いずれの場合も燃料棒の出力は過出力条件(116%)以下であり健全性が保たれることを確認した。

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

LLFP破損検出法：

タグガスの充填範囲をLLFPターゲット集合体まで拡張し、CG法FFDとタギング法FFDLまたはRIMSの組み合わせを用いることにより、LLFPターゲットピンの破損を検知できる見通しが得られた。またタグガスより安価なガスを用いて SHIPPING で検知できる可能性もある。

社会科学の意義の検討：女性オピニオンリーダー層を対象としたLLFP核変換技術説明会の概要

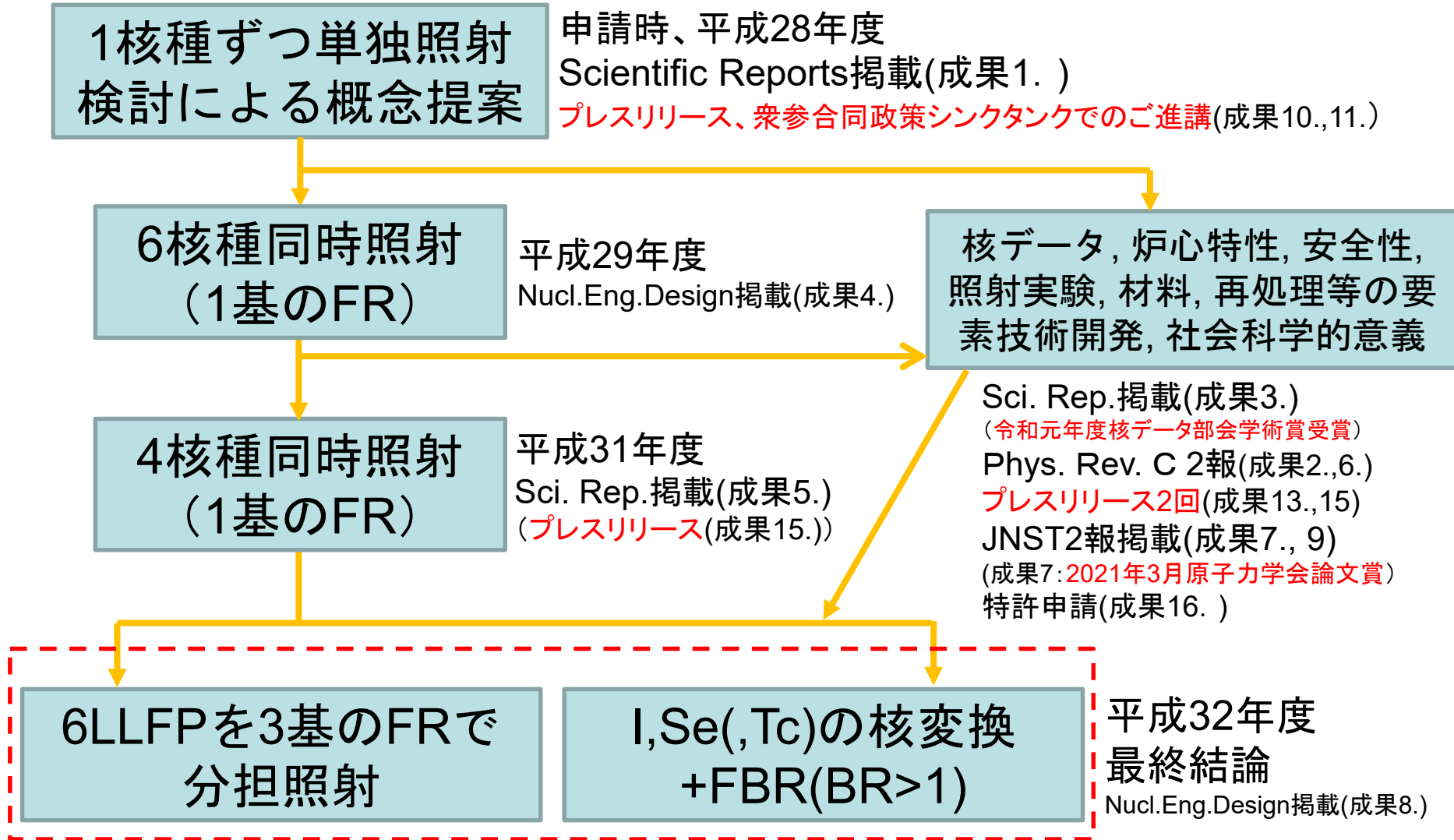
(2020年1月22日、13:30～16:00、東北大学東京分室)

- 原子力について理解のある女性オピニオンリーダー層を対象として説明会を開催し、コメントを受けた。対象者はWIN(Women in Nuclear)-JAPANで中心的な活動をされている7名である。原子力や核燃料サイクルに関しては、基本的理解を有している参加者であるが、それだけに内容的に非専門家向けの説明会では経験しなかったような厳しい指摘も多数提示された。
- 説明会全体を通して、**定量的表現の適切さについては厳しい指摘がなされた**。特に「処分場の面積が100分の1になる」「放射線の危険が数百年で無くなる」などの言い方に対しては、条件の明示が強く求められた（これはプロジェクトとしての総意ではなく、当日の説明がそのようにされた模様）。また、研究プロジェクト全体のロードマップ的表現の必要性も指摘された。
- 用語に関しては、**サポート比、実効半減期などに関して、分かりにくいという指摘が繰り返されている**。これらの用語を用いた説明が避けて通れないのか、代替の説明方策としてはどのようなやり方がありうるのか、今後の検討課題と考える。
- 今回、社会科学の検討は東北大学の専門家を中心に遂行したが、**一般の技術者が社会科学の意義の重要性を十分に意識することの必要性が認識された**。

5. 本事業の成果

1. S.Chiba, T.Wakabayashi, Y.Tachi, N.Takaki, A.Terashima, S.Okumura and T.Yoshida, “Method to Reduce Long-lived Fission Products by Nuclear Transmutations with Fast Spectrum Reactors”, Scientific Reports 7, 13961(2017).
2. T.Yoshida, T.Tachibana, S.Okumura and S.Chiba, “Spectral anomaly of reactor antineutrinos based on theoretical energy spectra”, Phys. Rev. C 98, 041303(R)(2018).
3. M.D.Usang, F.A.Ivanyuk, C.Ishizuka and S.Chiba, “Correlated transitions in TKE and mass distributions of fission fragments described by 4-D Langevin equation”, Scientific Reports 9, 1525(2019).
4. T.Wakabayashi, M.Takahashi, S.Chiba, N.Takaki, Y.Tachi and Y.Tahara, “Core concept of simultaneous transmutation of six LLFP nuclides using a fast reactor”, Nucl. Eng. Design 352, 110208(2019).
5. T.Wakabayashi, Y.Tachi, M.Takahashi, S.Chiba and N.Takaki, “Study on method to achieve high transmutation of LLFP using fast reactor”, Scientific Reports 9, 19156(2019).
6. C.Ishizuka, X.Zhang, M.D.Usang, F.A. Ivanyuk and S.Chiba, “Effect of the doubly magic shell closures in ^{132}Sn and ^{208}Pb on the mass distributions of fission fragments of superheavy nuclei”, Phys. Rev. C 101, 011601(R), (2020).
7. K.Tsubakihara, S.Okumura, C.Ishizuka, T.Yoshida, F.Minato and S.Chiba, “Systematic Evaluation of Independent Yields Based on Nuclear Shell Correction and Boltzmann Weight”, J. Nucl. Sci. Tech. 58, 151-165 (2021). **日本原子力学会論文賞(2021年3月受賞予定：受賞番号:5302)**
8. Toshio Wakabayashi, Makoto Takahashi, Satoshi Chiba, Naoyuki Takaki and Yoshiaki Tachi, "A fast reactor transmutation system for 6 LLFP nuclides" , Nuclear Engineering and Design 363 (2020) 110667
9. N.Yamano, T.Inakura, C.Ishizuka and S.Chiba, " Estimation of uncertainty in transmutation rates of LLFPs in a fast reactor transmutation system via an estimation of the cross-section covariances" , J. Nucl. Sci. Tech. (published online) (<https://doi.org/10.1080/00223131.2020.1845839>)
10. Y.Tahara, P.H.Liem, N.Takaki and S.Chiba, “Irradiation Fields of Natural Cesium using the Fast Reactor Joyo for LLFP Transmutation Study”, Annals of Nuclear Energy (査読中)
11. 高木直行、『原子炉での核変換を応用した核廃棄物処理および希少元素製造技術』、政策シンクタンク「時代を刷新する会、環境技術 環境技術委員会、2018/6/14, 衆議院第二議員会館第8会議室)
12. プレスリリース『長寿命核分裂生成物を飛躍的に短寿命化する高速炉技術を利用した核変換システムを提案』、
<https://www.titech.ac.jp/news/2017/039840.html>
13. プレスリリース『核分裂生成物の二つの転移機構を同時に説明可能な理論構築』、
<https://www.titech.ac.jp/news/2019/043509.html>
14. プレスリリース『長寿命核分裂生成物の半減時間を9年以下に短縮』、<https://www.titech.ac.jp/news/2020/046068.html>
15. プレスリリース『超重原子核の新たな核分裂機構を解明』、<https://www.titech.ac.jp/news/2020/046173.html>
16. 特許申請（東京都市大学）「核変換集合体」（2020年3月17日、特願2020-046979）
17. 国内・国際会議での発表多数

本事業の進捗と成果



6. まとめ

- 一般公衆には地層処分、特に10万年程度の長時間後の被ばく可能性が後世の人類に与える影響に対する根強いアレルギー感があり、それが原子力そのものの存在意義を左右する要因となっている
- 地層処分後地表に対する被ばく量を与える可能性のある ^{129}I , ^{79}Se の核変換を中心に、 ^{99}Tc , ^{107}Pd , また ^{93}Zr , ^{135}Cs の核変換を含めた2炉心及び3炉心を組み合わせることにより $\text{SF}>1$ 以上を達成するシステム、または ^{129}I , ^{79}Se , ^{99}Tc の $\text{SF}>1$ と $\text{BR}>1$ を両立するシステムを構築可能であることを示した
- それに伴う核データ、炉物理、システム安全性、熱的問題、材料、再処理等に関して検討を進め、上記システムの成立性または成立のための要件を検討した
- 最終的な核変換率は90%程度である。これはLLFPターゲットの再処理時に発生する化学的なロスが主要因となっている。 I , Tc , Se についてはさらに高めることが可能である。一方、 Zr , Cs については核データの不確かさを考慮するとさらなる効率化が必要であることが分った
- 一般公衆の理解を得てゼロカーボンエネルギー源としての原子力を推進するために、蓄積 Pu の処理の問題を含めてこのような活動を継続し、原子力分野が抱える問題を自ら解決する方策を一般公衆に提示することが重要である