

プログラム名：核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化

PM名：藤田 玲子

プロジェクト名：核反応データ取得及び新核反応制御法

委 託 研 究 開 発

実 施 状 況 報 告 書 (成 果)

平成 2 7 年 度

研究開発課題名：

新しい核反応制御法の開発

－重水炉と冷中性子を用いた新核変換法－(3)

研究開発機関名：

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

大洗研究開発センター

研究開発責任者

舘 義昭

# I 当該年度における計画と成果

## 1. 当該年度の担当研究開発課題の目標と計画

高レベル放射性廃液中に含まれる長寿命核分裂生成物（Long-lived Fission Products ; LLFP）のうち、Se-79、Zr-93、Pd-107 及び Cs-135 の 4 核種の核変換を効率的に実施するため、最適な形態のターゲットを重水炉内に設置した極低温環境において中性子吸収させることが重要となる。国立研究開発法人日本原子力研究開発機構では、上記の 4 核種の物理化学的特徴を踏まえ、別途実施される重水炉内での核変換特性解析に基づき、最適な核変換ターゲット形態を明らかにする。また、重水炉内に設置することを想定した液体重水素又は液体ヘリウム温度の冷中性子生成装置（中性子源は原子炉であり、中性子束の冷却装置）について、システムの概念検討を行い、実現に向けた開発課題とその対処方策を明らかにする。概念検討では、主に重水炉の照射環境下で極低温が維持可能とするような装置構造と材料選択について重点的に検討する。なお、これらの研究開発活動においては、連携機関（東京都市大学、東北大学）と適宜、情報を共有し、JAEA の検討結果を連携機関の解析作業に反映するなど、効果的に遂行する。

## 2. 当該年度の担当研究開発課題の進捗状況と成果

### 2-1 進捗状況

4 種の LLFP の単体及び酸化物に対して、密度、融点、沸点、吸湿性及び化学的反応性に関するデータまたは情報を熱力学データベースや文献から収集し、それぞれの物理化学的特徴を明らかにした。それに基づき、4 核種を重水炉内の極低温環境で核変換するために最適なターゲット形態を選定した。

また、別途実施された 4 核種を重水炉内で効果的に核変換させるための炉内設置条件の検討結果に基づき、CANDU 炉を想定した重水炉中の中性子を冷中性子に減速させるための冷中性子生成装置の概略形状と寸法を具体化した。具体化した冷中性子生成装置における重水炉装荷中の発熱量とそれを除去するために必要な冷凍能力を概算評価した。

### 2-2 成果

主に熱力学データベースに基づく融点や沸点の調査から、4 核種の単体及び酸化物はいずれも中性子の冷却温度に想定する 20K の極低温では固体状であることが明らかとなった。密度は単体形態では Cs が  $1.93 \text{ g/cm}^3$  と最も小さく、Se、Zr、Pd と大きくなり、Pd で  $12.0 \text{ g/cm}^3$  であった。酸化物についても単体と同じ傾向であるが、Se には複数の価数の酸化物形態があるため  $3.44 \text{ g/cm}^3$  から  $3.95 \text{ g/cm}^3$  の幅を持っている。化学的な特徴として、Se は単体形態では水に不溶であるが、酸化物では易溶となる。Zr は単体及び酸化物のいずれも水に不溶である。Pd は単体に水素吸蔵性があり、酸化物には水素ガスとの反応性がある。Cs はアルカリ金属であり、単体では水と爆発的に反応し、酸化物でも水と著しく反応する。これらの材料情報から 4 核種のターゲット形態を検討すると、物理状態や化学形態に大きな制約がないため、中性子捕獲を最大化するためにもすべて単体形態が最適である。Cs については、CsI の材料情報を収集して検討したが、ヨウ素の中性子吸収断面積が Cs よりも非常に大きいため、Cs の核変換ターゲットの形態としては適さないと判断した。

重水炉装荷用冷中性子生成装置について、概略構造と発熱量を評価するために当該装置に必要な機能として、①核分裂中性子の減速機能、②重水炉に装荷可能な形状・構造、③LLFP ターゲットの交換機能が必要となることを明らかにした。それぞれの機能について具体的な設計案を検討した結果、核分裂中性子の減速機能については LLFP ターゲットに入射する中性子を 20K に冷却(減速)させるために LLFP ターゲットの周りに重水氷を設置し、これらを 20K に冷却することとした。ここで中性子の減速材として重水氷を用いたのは、原子数密度が高いことと当該装置に冷却異常が発生した場合でも急激な大量のガス発生がなく、原子炉内の設置に対する安全性が高いためである。重水炉に設置可能な形状・構造としては、重水炉の燃料装荷部からの中性子を有効利用するため、通常燃料が配置されるカランドリア管部に長尺円筒型の装置を設置することを想定した。また、約 70°C の重水温度から断熱するため、構造は多層構造とし、LLFP を含む重水氷を装置中心部に配置し、その外側に液体ヘリウム又は低温ヘリウムガス層を設け、さらに外側に多層断熱膜を含む真空断熱層を設置する 3 重管構造とした。装置の構成材料には中性子捕獲断面積の小さいジルコニウム合金(ジルカロイ)を想定した。LLFP ターゲットの交換機能としては、重水氷内に設置した LLFP ターゲットを重水氷とともに取り出す構造とすると、再装荷時に重水氷を再生するために多大な時間を要するため、重水氷はカランドリア管部に常設し、LLFP ターゲットのみを交換可能な構造とすることとした。そのため、LLFP ターゲットは鞘管内に寒剤とともに設置する構造とした。これらを模式化した装置構造を図 1 に示す。

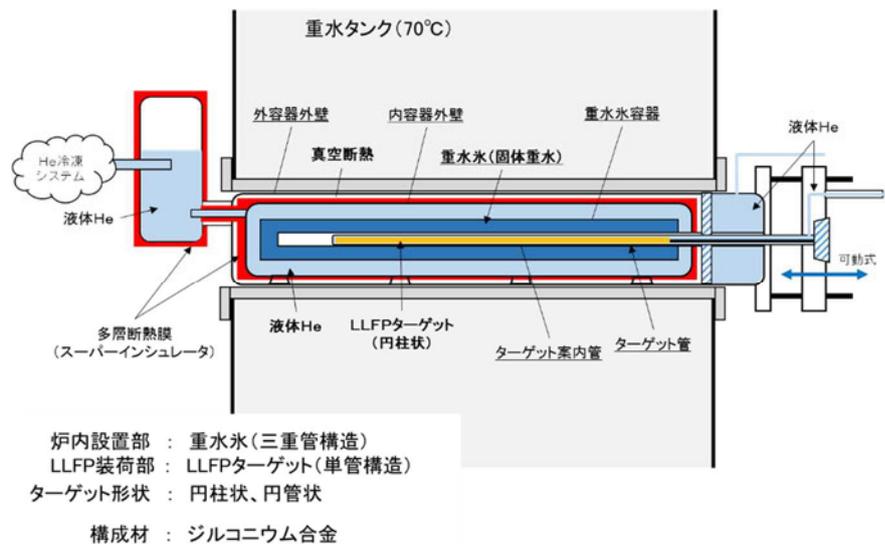


図 1 重水炉装荷用冷中性子生成装置のイメージ図

東京都市大学が実施した核変換特性の解析結果より、Zr-93、Pd-107 及び Cs-135 は冷中性子生成装置への装荷量が多いため、ターゲット形状を円管状にすることによって核変換率が向上することが示された。そのため、図 1 に示す構造の冷中性子生成装置を炉内に設置した場合の発熱量を概算するため、当該装置の重水タンク内に配置される部位について寸法を設定し、その容積と重量を算出した。寸法の設定は、重水タンク内の中性子を核変換に有効に利用するため、LLFP ターゲットの全長を重水タンク幅(5990mm)の 8 割となる 4950mm とし、それを寒剤とともに鞘管(ターゲット管)内に配置し、重水氷中に配置するための寸法を設定した。その後、円管状の LLFP ターゲットを想定した重水氷中にターゲットを挿入する部分となるターゲット挿入管、重水氷を設置する中間筒②、重水氷と LLFP ターゲッ

トを冷却するための低温ヘリウムガスを導入する中間筒①及び真空断熱層の外筒の寸法を順次設定した。各部の構成材料の厚さは同じジルコニウム合金が使用されている軽水炉の燃料棒被覆管やチャンネルボックスの厚さを参考として、1.0mm から 3.0mm の範囲で設定した。その結果、冷中性子生成装置の重水タンク内部の容積は、構成材料部で  $4.65 \times 10^4 \text{cm}^3$ 、重水氷部で  $3.26 \times 10^5 \text{cm}^3$ 、LLFP ターゲット部で  $3.79 \times 10^1 \sim 4.51 \times 10^4 \text{cm}^3$  となり、冷中性子生成装置 1 基当たりの重量は 750~770kg となった。

このような冷中性子生成装置の重水炉内での発熱量を評価するため、中性子線及び $\gamma$ 線の分布を簡易モデルで評価したところ図2に示すようになり、冷中性子生成装置内の LLFP ターゲット位置において即発及び二次 $\gamma$ 線の放出率が高くなった。これは LLFP ターゲット部における中性子捕集に起因する二次 $\gamma$ 線と推定された。さらに、この $\gamma$ 線による冷中性子生成装置の発熱量を評価するため、初期燃料時の重水炉内の $\gamma$ 線分布を MVP で求め、それに LLFP、構成材料（ジルカロイ）及び重水氷のエネルギー吸収係数を乗じて発熱量を算出した。LLFP 核種の偶奇分離の有無毎に当該装置での発熱量の概算結果を表1に示す。偶奇分離した Pd の核変換の場合の発熱量が 2590kW と最も高くなった。これは、Pd は装荷量が多く、かつ偶奇分離により変換率が高くなるため中性子捕獲による二次 $\gamma$ 線の発生量も多くなり、発熱量が高くなったと考えられる。この発熱量を除去するためには、20%の余裕率を考慮して、約 3100kW の冷凍能力が必要となることが明らかとなった。

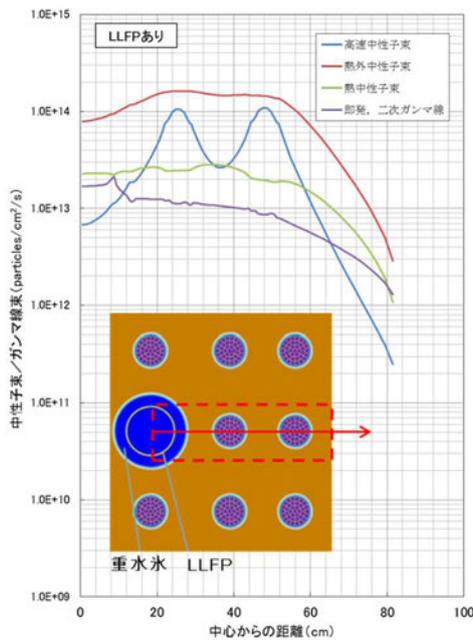


図2 中性子線及び $\gamma$ 線の分布

表1 LLFP 核種ごとの冷中性子生成装置での発熱量

	LLFP	発熱量			
		ターゲット (W)	構成材料 (W)	重水氷 (W)	合計 (kW)
偶奇分離無し	Se	1.86.E+04	1.63.E+06	3.46.E+05	2.00.E+03
	Zr	5.65.E+05	1.28.E+06	3.16.E+05	2.16.E+03
	Pd	5.64.E+05	1.51.E+06	4.55.E+05	2.53.E+03
	Cs	6.49.E+05	1.10.E+06	3.18.E+05	2.07.E+03
偶奇分離有り	Se	3.68.E+03	1.63.E+06	3.45.E+05	1.98.E+03
	Zr	3.56.E+05	1.44.E+06	3.62.E+05	2.16.E+03
	Pd	3.74.E+05	1.68.E+06	5.09.E+05	2.56.E+03

### 2-3 新たな課題など

今回の研究結果より、重水炉に冷中性子生成装置により極低温領域を創生し、4核種の核変換を冷中性子を用いて実施する場合には、核変換中での生成装置における発熱を除去するために非常に大きな冷凍能力を必要することが明らかとなった。本技術の実用に向けては、冷中性子生成装置の詳細設計を進め、発熱量をより詳細に評価し、必要な冷凍能力を実現するためのシステムをより具体化させていく必要がある。

3. アウトリーチ活動報告  
なし。