

実用化戦略調査研究における
高速炉を用いたLLFP核変換技術の検討
(研究報告)

2002年8月

核燃料サイクル開発機構
大洗工学センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松 4 番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課
電話：029-282-1122（代表）
ファックス：029-282-7980
電子メール：jserv@jnc.go.jp

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184, Japan

© 核燃料サイクル開発機構
(Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2002

実用化戦略調査研究における
高速炉を用いた LLFP 核変換技術の検討
(研究報告)

高木直行*、永沼正行*、水野朋保*

要旨

FBR サイクル実用化戦略調査研究(FS)では、原子力システムの環境負荷を低減する方策の一つとして、発電用高速炉を用いた LLFP 核変換技術を検討している。1999～2000 年度のフェーズ I では、核変換特性、不純物の影響、放射化生成物の有無や廃棄物低減利得等、主として核的な視点から検討を行い、続くフェーズ II の 2001 年度からは LLFP 集合体やそれを装荷した炉心の工学的設計検討に着手した。

核変換の対象とする LLFP は ^{129}I 、 ^{99}Tc 、 ^{135}Cs の 3 種であり、これらの同位体を含む I、Tc、Cs を、元素分離技術によって使用済み燃料や LLFP 集合体から分離・回収し、適切な化学形態に加工した後に中性子減速材を混載する LLFP 集合体に組み上げて、商用大型高速炉(MOX 燃料、Na 冷却)へ繰り返し装荷する核変換法を想定した。

元素分離 Cs 中の ^{135}Cs については、生成量以上の変換量を得ることは極めて困難と評価されたため、2001 年度の工学的設計検討からは Cs を核変換の対象から除外した。Cs の核変換が困難な理由は、 ^{135}Cs の生成量が極めて大きいことに加え、Cs 元素中に安定同位体 ^{133}Cs が存在し、ビルドアップによって新たな ^{135}Cs が生成されるためである。

I と Tc の二元素を対象とした LLFP 装荷炉心の工学的設計検討では、中性子減速材に水素化ジルコニウムを採用した LLFP 集合体を用いることとし、その仕様として隣接炉心燃料のサーマルピークを回避するため外周に Tc 層を設けた炉心領域装荷用 LLFP 集合体、及び径方向ブランケット位置装荷用の LLFP 集合体を設定した。

LLFP 集合体の健全性を評価したところ、水素透過量制限からくる減速材ピン温度制限が最も厳しいことが分かった。LLFP 集合体を十分に冷却するには、1 次系冷却材流量の 6-7%を LLFP 集合体へ配分する必要があり、これを実現するためには炉心流量区分の細分化や炉心出力分布のさらなる平坦化等の炉心設計対応が必要である

* 大洗工学センター システム技術開発部 炉心燃料システムグループ

A Study on LLFP Transmutation using Fast Reactor
in the Feasibility Study on Commercialized Fast Reactor Cycle Systems

Naoyuki TAKAKI*, Masayuki NAGANUMA*, Tomoyasu MIZUNO*

ABSTRACT

In the Feasibility Study on Commercialized Fast Reactor Cycle Systems (FS), transmutation technology of Long-Lived Fission Product (LLFP) using commercial fast reactors has been studied as a measure to reduce the environmental burden of nuclear waste. During phase-I of the FS (1999 – 2000), neutronic studies such as transmutation properties, effect by impurities, etc. had been mainly carried out and in the succeeding phase-II (2001) design studies on the LLFP target assembly and the core had been performed.

The targeted long-lived isotopes for transmutation were ^{129}I , ^{99}Tc and ^{135}Cs . It was assumed that those LLFPs with neutron moderator were recycled into the core of sodium cooled fast reactor after recovering from the spent fuel by element wise separation technology.

Concerning Cs, it was found out that the efficient transmutation was extremely difficult to be achieved due to the existence of considerable amount of stable isotope ^{133}Cs that generates new ^{135}Cs through successive neutron captures, in addition to the large production rate for ^{135}Cs .

In the design study of the core loaded with LLFP assemblies of I and Tc, two types of LLFP assembly with zirconium hydride as neutron moderator were investigated. One was intended for core-region loading and the other was for radial blanket-region loading. The former has Tc layer in the peripheral region of the assembly to avoid thermal peak in the adjacent fuel assemblies.

The integrity evaluation for LLFP assemblies led a conclusion that the most significant design limiting feature was ascribed to the temperature of the moderator pins that determines the dissociated hydrogen penetration rate. To ensure the sufficient cooling for moderator pins, 6-7% of the primary system coolant flow rate had to be distributed to the LLFP assemblies. Design modifications such as subdividing of coolant flow partition and flattening of power distribution were required for the core loaded with LLFP assemblies.

* Fuel and Core System Group, System Engineering and Technology Division, O-arai Engineering Center

目次

1	はじめに	1
2	大型 MOX 炉心における LLFP 核変換の予備的検討	3
2.1	核変換特性解析の方法と範囲	3
2.2	LLFP 化合物の種類や減速材割合が核変換特性に与える影響	3
2.2.1	^{129}I の核変換特性	3
2.2.2	^{99}Tc の核変換特性	4
2.2.3	^{135}Cs の核変換特性	4
2.3	LLFP 装荷による炉心特性への影響	5
2.4	随伴不純物の影響	5
2.5	減速材の種類が核変換特性に与える影響	5
2.6	LLFP 核変換に伴う放射化生成物	6
3	LLFP ターゲットピン成立性の予備的検討	7
3.1	LLFP ターゲットピンの熱特性解析	7
3.2	解析条件	7
3.3	解析結果及び考察	7
3.3.1	Tc 金属	7
3.3.2	NaI	7
3.3.3	CsCl	8
3.3.4	設定物性値(熱伝導度・ギャップコンダクタンス)に関する感度解析	8
3.4	LLFP 変換ターゲットピン(ヨウ素)の被覆管クリープ損傷簡易解析	8
3.4.1	解析条件	9
3.4.2	解析結果と考察	9
4	回収ロスと廃棄物低減効果の相関	10
4.1	LLFP 核変換サイクルの方式と解析方法	10
4.2	マルチサイクル LLFP 核変換時の回収ロスと廃棄物低減効果	11
5	Cs 核変換の可能性検討	13
5.1	元素分離 Cs 照射による ^{135}Cs 核変換の困難性	13
5.2	「照射・冷却繰り返し」核変換法の概念	13
5.3	^{135}Cs 核変換に適した中性子照射条件	14
5.3.1	減速材比率と断面積	14
5.3.2	連続照射時の核変換特性	14
5.3.3	照射冷却繰り返し法を適用した場合の長期核変換特性	15
5.3.4	核変換特性の中性子束依存性	15
5.3.5	核変換特性の減速材依存性	16
5.3.6	^{135}Cs 核変換特性に対する ^{134}Cs 吸収断面積の感度	16

5.3.7	^{135}Cs 核変換の実施可能性	16
5.3.8	まとめ	17
6	高効率核変換集合体による LLFP 核変換	18
6.1	高効率核変換集合体の概念	18
6.2	高効率核変換集合体の仕様	19
6.3	LLFP 核変換検討用炉心	19
6.4	LLFP 装荷炉心の検討方法	19
6.5	解析結果	20
6.6	モンテカルロ計算によるサーマルピークや核変換率の検討	21
6.7	高効率核変換集合体検討のまとめ	21
7	LLFP 核変換技術の工学的設計検討	23
7.1	LLFP 核変換用減速材の選定	23
7.1.1	減速材候補材料の物性検討状況調査	23
7.1.2	減速材化合物の核的検討	24
7.1.3	減速材物質の選定	24
7.2	LLFP 化合物の選定	25
7.2.1	ヨウ素化合物の調査と選定	25
7.2.2	Tc 化合物候補材料の選定	27
7.3	LLFP 集合体構造設計の検討	27
7.3.1	LLFP ピンの設計	27
7.3.2	中性子減速材ピンの設計	27
7.3.3	LLFP 集合体仕様の設定	28
7.3.4	LLFP 集合体仕様の熱的制限の検討	29
7.3.5	LLFP 集合体のガンマ線発熱量の解析	30
7.4	LLFP 集合体を装荷した炉心構成設定と核熱特性の解析	31
7.4.1	自己生成分核変換炉心-1 の特性評価	32
7.4.2	LLFP 集合体のガンマ線発熱	33
7.4.3	熱流動特性解析	33
7.4.4	LLFP ターゲットピンの CDF 評価	34
7.4.5	集合体間出口温度差の評価	34
7.4.6	LLFP 装荷炉心の核熱特性のまとめ	34
7.4.7	LLFP核変換技術の工学的設計検討のまとめ	35
8	おわりに	37
	参考文献	99
	謝辞	100

表リスト

表 1-1 LLFP 核変換の一次成立性評価	39
表 2-1 核変換対象 LLFP の随伴不純物と製造上の特徴	40
表 2-2 再処理に伴う不純物の効果	41
表 3-1 ターゲット溶融限界線出力に対する感度解析結果	42
表 6-1 高効率核変換集合体の仕様	43
表 6-2 高効率核変換集合体の体積割合	43
表 6-3 LLFP 核変換検討炉心の仕様	44
表 6-4 LLFP 核変換検討炉心の燃料仕様	45
表 6-5 ^{129}I 核変換特性解析結果	46
表 6-6 LLFP 集合体装荷による炉心特性への影響	47
表 6-7 モンテカルロ計算による ^{129}I の核変換率	47
表 7-1-1 減速材物質特性のまとめ	48
表 7-2-1 化合物の特性と照射試験結果	49
表 7-3-1 LLFP 集合体の健全性確保に係る項目	49
表 7-3-2 LLFP 集合体の健全性確保に係る項目	49
表 7-3-3 LLFP 集合体仕様	50
表 7-3-4 γ 線発熱量評価対象炉心の特徴	51
表 7-3-5 DOT コードによるガンマ線発熱量の主要評価結果のまとめ	51
表 7-4-1 LLFP 集合体装荷炉心の概要	52
表 7-4-2 自己生成分核変換炉心-1 の制御反応度収支	52
表 7-4-3 自己生成分核変換炉心-1 の LLFP 集合体のガンマ発熱量のまとめ	53
表 7-4-4 検討炉心のガンマ発熱量のまとめ	53
表 7-4-5 LLFP 集合体の被覆管温度制限(自己生成分核変換炉心-1)	54
表 7-4-6 LLFP 集合体の必要最少流量(自己生成分核変換炉心-1)	54
表 7-4-7 LLFP 集合体への流量配分(自己生成分核変換炉心-1)	54
表 7-4-8 燃料集合体必要最少流量(自己生成分核変換炉心-1)	55
表 7-4-9 CuI ピンの CDF 評価条件及び結果(自己生成分核変換炉心-1)	56
表 7-4-10 LLFP 集合体と隣接燃料集合体の冷却材出口温度差	57
(自己生成分核変換炉心、ノミナル値)	
表 7-4-11 主要核特性・核変換特性の比較	58

図リスト

図 2-1 (a) ^{129}I の核変換特性	59
図 2-1 (b) ^{129}I の核変換特性	59
図 2-2 ^{99}Tc の核変換特性	60
図 2-3 ^{135}Cs の核変換特性	60
図 2-4 LLFP ターゲット装荷による燃焼反応度の変化	61
図 2-5 LLFP ターゲット装荷による最大線出力の変化	61
図 2-6 減速材化学形と LLFP 変換特性の関係 (NaI, スミア密度 50%)	62
図 2-7 減速材化学形と燃焼反応度変化の関係 (NaI, スミア密度 50%)	62
図 2-8 減速材化学形と最大線出力変化の関係 (NaI, スミア密度 50%)	63
図 2-9 LLFP 化合物の照射前後の放射能比	64
図 3-1 ターゲット材等熱伝導度の比較	65
図 3-2 LLFP ターゲット融点と線出力の関係	66
図 3-3 スミア密度をパラメータ(50%・60%・70%)としたガス内圧の時間変化	66
図 3-4 スミア密度をパラメータ(50%・60%・70%)としたフープ応力の時間変化	67
図 3-5 スミア密度をパラメータ(50%・60%・70%)とした CDF 時間変化 (St ベース)	67
図 4-1 ワンススルー核変換による LLFP 低減効果	68
図 4-2 マルチリサイクル核変換の物質フロー	68
図 4-3-1 マルチリサイクルによる LLFP 低減効果	69
(LLFP ターゲットは燃料と同様に 4cycle 毎に再処理)	
図 4-3-2 マルチリサイクルによる LLFP 低減効果	69
(LLFP ターゲットは燃料と同様に 4cycle 毎に再処理)	
図 4-4 ^{129}I 集中マルチリサイクル時のサポートファクター	70
図 5-1 照射冷却を適用した場合の Cs 組成の変化	71
図 5-2 Cs 同位体断面積のスペクトル依存性	71
図 5-3 ^{133}Cs , ^{134}Cs 及び ^{135}Cs の断面積比率	72
図 5-4 Cs 同位体断面積比のスペクトル依存性	72
図 5-5 連続照射時の ^{135}Cs 変換率	73
図 5-6 照射冷却を行う場合の ^{135}Cs 変換率	73
図 5-7 長期連続照射による Cs 組成変化	74
図 5-8 照射冷却を行う場合の ^{135}Cs 変換率	74
図 5-9 照射冷却を行う場合の ^{135}Cs 変換量	75
図 5-10 照射冷却法を適用した場合の Cs 組成変化	75
図 5-11 平均核変換率が最大となる照射サイクル長さ	76
図 5-12 平均核変換量が最大となる照射サイクル長さ	76
図 5-13 ^{135}Cs 変換量に対する ^{134}Cs 吸収断面積の感度	77
図 5-14 必要中性子束に対する ^{134}Cs 断面積の感度	77

図 5-15 Cs 装荷量と必要核変換率の関係	78
図 6-1 高効率核変換集合体の構成	79
図 6-2 LLFP 核変換検討炉心	80
図 6-3 径ブラ領域 ZrH(83.3%)&Cs + 炉心中央高効率核変換集合体装荷時の炉心配置(ケース7)	80
図 6-4 LLFP 集合体装荷による炉心特性への影響	81
図 6-5 ^{129}I 核変換特性の比較	81
図 6-6 高効率核変換集合体(HETT)装荷による線出力への影響	82
図 7-1-1 LLFP 核変換用減速材の検討フロー	83
図 7-3-1 LLFP 集合体の健全性評価の概要	84
図 7-3-2 ZrH の 2 相図	85
図 7-3-3 ZrH _{1.6} の水素解離割合の温度依存性	86
図 7-3-4 ZrH _{1.6} 温度と被覆管温度の関係	86
図 7-3-5 炉心領域装荷 Tc ターゲット集合体概念図	87
図 7-3-6 径ブランケット位置装荷 CuI 集合体概念図	87
図 7-3-7 Tc ピンの定格出力時における被覆管内面温度と充填材許容線出力の関係	88
(Tc ターゲット集合体)	
図 7-3-8 CuI ピンの定格出力時における被覆管内面温度と充填材許容線出力の関係	89
(Tc ターゲット集合体)	
図 7-3-9 ZrH ピン定格出力時における被覆管内面温度と充填材許容線出力の関係	90
(He ボンド)	
図 7-3-10 ZrH ピン定格出力時における被覆管内面温度と充填材許容線出力の関係	91
(Na ボンド、ガスプレナム長 10cm)	
図 7-4-1 自己生成成分変換炉心-1 の炉心配置	92
図 7-4-2 自己生成成分変換炉心-2 の炉心配置	93
図 7-4-3 自己生成成分変換炉心-3 の炉心配置	94
図 7-4-4 核変換量最大化炉心-1 の炉心配置	95
図 7-4-5 核変換量最大化炉心-2 の炉心配置	96
図 7-4-6 Tc ターゲット集合体の定格出力時における最大線出力と許容被覆管内面温度の関係	97
(自己生成成分核変換炉心-1)	
図 7-4-7 CuI ターゲット集合体の定格出力時における最大線出力と許容被覆管内面温度の関係	98
(自己生成成分核変換炉心-1)	

1. はじめに

FBR 実用化戦略調査研究(Feasibility Study :FS)では、安全確保を前提とし、経済性、資源の有効利用性、環境負荷軽減および核不拡散性に配慮した高速炉システムの開発を目標としている。このうち、環境負荷軽減については、環境保全や廃棄物対策に対する社会の関心が高まる傾向にある現在および将来において重要性を増す要件と考えられる。

FBR サイクルの経済性を重視している現時点の FS の中で、コスト増の要因となる分離核変換技術(以下、P&T)は、その導入による環境負荷低減効果が大きなものに限定し、FS の開発目標を総合的に満足する必要がある。ここで、放射性廃棄物がもたらす「環境負荷」を定量化する指標として、

- 発生量
- 放射能
- 発熱量 (処分体の体積や充填密度に影響する。さらに処分上設計においては、廃棄物の発熱量の大小により処分ピッチが異なり、廃棄体の発熱が高い場合同量の廃棄物量に対して処分場は大きくなる)
- 放射性毒性
- 化学毒性
- 処分後のリスク(放射性廃棄物処分後、固化体の保持機能や処分施設の隔離機能が失われ、放射性物質が地下水によって移行して人間に与える被曝線量。即ち、廃棄物による長期的顕在化リスク)、等

が考えられる。環境負荷の定義や具体的な負荷軽減方策については必ずしも明確にされていない状況にあるが、長半減期核分裂生成物(LLFP)の中で生成量が多い核種として、 ^{129}I (半減期: 1600 万年)、 ^{99}Tc (21 万年)そして ^{135}Cs (230 万年)等が知られている[1]。

この内 ^{129}I は、揮発性でその殆どがガラス固化体としてでなく TRU 廃棄物として処分される長寿命核種である。ガラス固化 HLW の処分場リスク評価によると、処分後長期の間に廃棄物がもたらす線量の最大値は安全基準($10 \mu\text{Sv/y}$)を大きく下回っているが、TRU 廃棄物に対する安全評価によると、地中での移行性の強い ^{129}I が有意な線量をもたらす、評価誤差を考慮した場合 $10 \mu\text{Sv/y}$ の基準を越える可能性もある。従って、「処分リスク」の観点からは、 ^{129}I を変換することの重要度が高いと考えられる。

^{99}Tc は、 ^{129}I と同等に長半減期であり、LLFP の中では比較的潜在的毒性が高い核種として知られている。共鳴領域の吸収断面積が大きく、核的には早い変換速度の得やすい核種である。

Cs については、半減期約 30 年の ^{137}Cs の存在により、 ^{90}Sr と並んで原子炉取り出し後数十年の廃棄物発熱の支配的核種である。従って、Cs-Sr を廃棄体から除去することにより発熱量を低減でき処分場面積の縮小や処分場建設費を低減できる可能性がある。

FS では、上記の様な背景の下、P&T の対象 FP として I, Tc, Cs, Sr を選定している。なお Sr については、表 1-1 に示した通り、中性子核反応による効果的な核変換処理は不可能であることが明らかであるため、分離技術の適用効果を別途検討するものとして核変換の対象からは除外し、I,

Tc, Cs の LLFP 元素について、Na 冷却 MOX 炉を用いた核変換の可能性やその特性について検討した。

1999 年度、2000 年の FS フェーズ I では、核変換特性、不純物の影響、放射化生成物の有無や廃棄物低減利得等、主として核的な視点から検討を行い、続くフェーズ II の 2001 年度からは、LLFP 集合体や FP 装荷炉心の工学的設計検討に着手した。

2. 大型 MOX 炉心における LLFP 核変換の予備的検討

1999 年度に暫定的に炉心仕様の設定された径方向非均質炉心をベースとして、LLFP の化学形態、減速材割合、スミア密度をパラメータとした LLFP 核変換特性解析を行った[2, 3]。なお、LLFP 生成量は総核分裂数、核分裂当たりの放出エネルギー量、及び核反応による増減分を考慮した収率から算出した暫定値を用いた。

2.1 核変換特性解析の方法と範囲

核変換対象核種の ^{129}I 、 ^{99}Tc 、 ^{135}Cs は元素分離されるものとし、同位体組成については高速炉使用済み燃料中の典型的な組成を仮定した。LLFP は減速材 ($\text{ZrH}_{1.6}$) 付きターゲット集合体により、径方向非均質炉心の径方向ブランケット位置(84 集合体)に各 LLFP をそれぞれ装荷するものとした。なお、ターゲット集合体の仕様は対象炉心ブランケットと同一とした。パラメータとして、LLFP の化学形、減速材割合、LLFP のスミア密度を次の範囲にとり、サーベイ計算を行った。

<パラメータサーベイ範囲>

- LLFP 化学形 ^{129}I : NaI , CeI_3 , NiI_2 , MgI_2 , CuI , AgI , CsI
 ^{99}Tc : TcO_2 , Tc (metal)
 ^{135}Cs : CsCl , Cs_2CrO_4 , CsI
- 減速材割合(減速材/(LLFP+減速材)) = 0~95 vol%
- LLFP スミア密度 = 50~70%

Pu 富化度調整を伴う炉心燃焼解析を PENCIL コード(SLAROM - JOINT - CITATION)を用いた二次元 18 群拡散計算により行った。格子計算は均質モデルとした¹。核データは、JENDL-3.2 に基づく高速炉用炉定数セット「JFS3-J3.2」を使用した。各計算ケースについて、LLFP 核変換特性(変換量、変換率)、燃焼反応度及び最大線出力への影響を調べた。

2.2 LLFP 化合物の種類や減速材割合が核変換特性に与える影響

2.2.1 ^{129}I の核変換特性

減速材割合の増加に伴い中性子スペクトルが軟化することによって ^{129}I の中性子吸収断面積が増加し、変換率は増加する²(図 2-1)。変換量については、変換率の増加と ^{129}I 装荷量の減少との間で打ち消し合いが生じるため、減速材割合 40~60%付近で極値を持つことがわかる。変換量を最大に維持しつつ変換率をなるべく増加させるには、減速材割合 60%程度が適当である。

スミア密度が 50%から 70%に増加すると、変換量の増加及び変換率の減少が生じる。変換率の減少は、装荷量の増加に伴い中性子吸収反応が増加した結果、遮蔽効果により中性子束が減衰

¹ 本計算方法は概略評価を目的としたものであり、LLFP ターゲットにおける非均質効果及び輸送効果が考慮されておらず、核変換特性量は過大評価となっている。

² 変換率はターゲットにおける中性子束の大きさに依存するため、LLFP 及び付随する核種の中性子吸収反応が増加すると、遮蔽効果のため中性子束が減少し変換率を下げる。

したために生じたものと考えられる。化合物形態依存性をみると NaI, CeI_3 , MgI_2 , CuI , NiI_2 については良好な変換特性を示している。それぞれ、減速材割合の増加に伴い変換率が増加し、変換量には減速材割合 40~60%付近に極大値が見られる。

^{129}I の装荷量は、NaI, CuI , CeI_3 , MgI_2 , NiI_2 の順に(相対比率 1.0, 1.2, 1.3, 1.3, 1.5 で)増加する。 ^{129}I 装荷量の多い CeI_3 及び MgI_2 については、上述のスミア密度の増加で見られたのと同様に、変換量の増加及び変換率の減少が生じている。

NiI_2 については変換量及び変換率が双方とも減少し、やや変換特性が悪くなっている。これは、Ni の中性子吸収による影響が他の随伴核種に比べ大きいためと考えられる。 CuI についても、 NiI_2 と同様の随伴核種による変換特性の悪化が若干見られる。

CsI の形態では、 ^{129}I の装荷量が少ないこと(NaI を基準とすると 0.7)、また随伴する Cs による吸収反応のため、NaI, CeI_3 , MgI_2 , CuI に比べ変換率はやや小さく、変換量は半分程度となっている。本化学形は、 ^{129}I だけでなく ^{135}Cs も同時に変換できることから、 ^{135}Cs の変換特性と合わせて善し悪しを判断することが望ましい。

AgI の変換特性は他の化学形と比較すると劣っていることがわかる。AgI の ^{129}I 装荷量は NaI を基準とすると 1.0 であるが、Ag の巨大吸収断面積による変換特性の悪化が顕著であり、AgI では効率的な核変換は期待できない。

2.2.2 ^{99}Tc の核変換特性

^{99}Tc の変換特性解析結果を図 2-2 に示す。変換率は減速材割合の増加に伴い大きくなるが、 ^{129}I のケースに比べその傾向は減速材割合 70%程度以上でより顕著となる。すなわち、 ^{99}Tc は高減速環境で照射することが核変換率の観点で望ましい。

変換量については、減速材割合が 20%-70%の範囲で減速材割合に対する感度が鈍く、変換量はほぼ一定となる。

化学形の違いについては、Tc (metal)は TcO_2 より ^{99}Tc 装荷量が大きく(2.2 倍)、変換量の増加及び変換率の減少が生じている。

^{99}Tc は装荷時の密度を高くでき、かつ共鳴吸収断面積が大きいため、高減速時の核変換量低減が小さい傾向をもつ。よって、核変換量を大きく保ちながら高い核変換率を得やすい LLFP といえる。サーベイの結果、核変換率・変換量双方の観点からは、 TcO_2 については減速材割合約 60%が、Tc (metal)については約 80%が適当な値と考えられる。

2.2.3 ^{135}Cs の核変換特性

^{135}Cs の変換特性解析結果を図 2-3 に示す。 ^{135}Cs 核変換の減速材比依存性は、 ^{129}I や ^{99}Tc と大きく異なり、減速材割合 10~20%をピークとして、それ以上の減速材割合においては変換量及び変換率がともに減少する結果となった。これは、中性子スペクトルの軟化により、 $^{133}\text{Cs} \rightarrow ^{134}\text{Cs} \rightarrow ^{135}\text{Cs}$ による ^{135}Cs の生成が、 ^{135}Cs の消滅量を上回ることが原因である(^{134}Cs は半減期 2.1 年ながら、熱エネルギー領域で 10barn オーダーの大きな中性子吸収断面積を持つ)。なお、変換特性について CsCl と Cs_2CrO_4 の大きな相違はみられなかった。

CsI は、1 種類の FP 化合物製造によって ^{135}Cs と ^{129}I の変換を同時に行えるメリットがあるが、Cs 装荷量が小さいこと(CsCl の約 0.7)、並びに I の中性子吸収による変換率減少によって、変換量は他の化学形に比べて小さくなる。 ^{135}Cs の変換量が最大となる減速材割合 10~20%の場合には、

Cs と I を別々の化学形で減速材割合を最適化した場合とほぼ同量の ^{135}Cs 変換量が得られ、 ^{129}I の変換量も比較的高く (70kg/cycle) とれるが、 ^{129}I の変換率は 2%/cycle と低い。従って、CsI 形態の有効性は、核変換特性のみならず、製造性や二次廃棄物等の観点から総合的に判断することが望ましい。

2.3 LLFP 装荷による炉心特性への影響

燃焼反応度及び最大線出力について LLFP ターゲット装荷による変化の様子を図 2-4 及び図 2-5 に示す。LLFP ターゲット装荷により、燃焼反応度は約 0.5%dk/kk' 増加、最大線出力は約 60W/cm 増加する。

これらには緩やかな減速材割合依存性が見られる。なお、LLFP の種類、化学形、スミア密度の違いは小さく、全ての計算ケースがほぼ同様の振る舞いを示している。

2.4 随伴不純物の影響

分離技術において「回収率」と「純度」はトレードオフ関係にある。従って、核変換による LLFP 廃棄物低減のために回収漏れを小さくしようとする場合、LLFP ターゲットはその分離プロセスに応じた不純物を伴う。ここでは表 2-1 に示した様に、各々の LLFP に随伴すると考えられる不純物を想定し、その除染率をパラメータとして扱って、随伴不純物が核変換特性へ与える影響を検討した (表 2-2)。

Tc に関しては、フッ化物法では不純物量が少ないため、ターゲット中の Tc 装荷量は DF=1 (全不純物随伴) の時でも DF= ∞ (不純物 0%) の場合の 85% を確保でき、核変換量、核変換率への影響は軽微である。一方、白金属不純物が伴う湿式、乾式法の場合は、DF=10 で不純物を除去しても Tc 装荷量は 55% 程度に留まり、核変換量は約 4 割低下する。

Cs に関しては、アルカリ金属不純物が伴う場合 Cs 装荷量は 70% に低下し、Ru 不純物が伴う場合 60% に低下する。しかしながら、不純物の有無によって Cs 消滅量は 23-37kg/cycle、消滅率は 2.6-3.6%/cycle の間で変化する程度であり、その影響は大きくないと判断される。

結果として、LLFP 回収率向上に伴う不純物増加の影響は、Tc を湿式、乾式法でリサイクルする場合に特に留意する必要がある。

2.5 減速材の種類が核変換特性に与える影響

高速炉内で効率的な LLFP 核変換を行う上では減速材を用いることが有効である。LLFP ターゲット仕様を具体化するためには、減速材の種類と LLFP 核変換特性の関係を把握しておく必要がある。

原子炉へ装荷可能な減速材として、 $\text{ZrH}_{1.6}$ 、 CaH_2 、 $^{11}\text{B}_4\text{C}$ を対象として、減速材の種類と LLFP 核変換特性 (変換量、変換率) 及び炉心特性 (燃焼反応度、最大線出力) への影響を検討した。ターゲット集合体は上述の検討と同様に、径方向非均質炉心の径方向ブランケット位置 (84 集合体) に装荷するものとした。LLFP は ^{129}I (元素分離、化学形 NaI、スミア密度 50%) に統一して比較を行った。なお、減速材のスミア密度は 90% とし、減速材割合をパラメータとした。

LLFP 核変換特性 (変換量、変換率) 解析結果を図 2-6 に示す。 $\text{ZrH}_{1.6}$ と CaH_2 の LLFP 変換特性はほぼ等しい。 $^{11}\text{B}_4\text{C}$ は水素を含まず減速能が小さいため、減速材割合増加に伴う LLFP 変換効率向上効果が $\text{ZrH}_{1.6}$ 及び CaH_2 に比べ小さい。

燃焼反応度及び最大線出力の変化の様子を図 2-7 及び図 2-8 に示す。ZrH_{1.6}と CaH₂の変化傾向はほぼ等しく、減速材割合増加に伴い緩やかに悪化する。一方、¹¹B₄C による炉心特性への影響は ZrH_{1.6} 及び CaH₂ に比べ小さい結果が示された。

¹¹B₄C は ZrH_{1.6} 及び CaH₂ に比べ核変換性能は劣るものの、図 2-6 でみた通り、減速材割合が低く核変換率が小さい場合においてその差は小さいため、変換率 6%/cycle 程度以下を狙う場合には、最大線出力への影響を最小限に抑えながら ¹²⁹I 変換を行える可能性がある。

2.6 LLFP 核変換に伴う放射化生成物

LLFP 化合物として複数の候補物質が考えられるが、化合物に含まれる元素によって照射期間中に新たな長寿命放射性物質生成の有無を確認した。

LLFP ターゲットは、減速材 (ZrH_{1.6}) 割合 60%で径方向非均質炉心の径ブランケット領域へ装荷、照射期間は 540 日×4 サイクルとした。なお、同じ LLFP 元素でも化合物に応じて核変換率が異なるため、LLFP の核変換率が同じになるよう中性子束を設定し、等核変換率条件化での放射化物質生成を評価した。検討対象とした化合物は以下の通り。

¹²⁹I: NaI, CeI₃, NiI₂, MgI₂, CuI, AgI, CsI

⁹⁹Tc: TcO₂, Tc (metal)

¹³⁵Cs: CsCl, Cs₂CrO₄, CsI

各々の LLFP 化合物の照射前後の放射能比(核変換後/核変換無し)を図 2-9 に示す。

¹²⁹I の化合物の内、AgI については安定同位体 ¹⁰⁷Ag の放射化で生成された ¹⁰⁸Ag(半減期 418 年)の寄与により、冷却後約 1000 年まで無変換時の放射能レベルを大きく上回ることがわかった。CsI 化合物の場合は ¹³³Cs(安定)から生成した ¹³⁴Cs(半減期 2.1 年)の寄与が見られるが、半減期が短く速やかに減衰する。その他の化学形では Ni や Cu の放射化が見られるものの、増加量は数倍程度であり減衰も早い。

⁹⁹Tc の化合物については核変換による放射能増加は見られなかった。

¹³⁵Cs については、CsCl を用いる場合に長半減期核種の ³⁶Cl(半減期 30 万年)が多く生成され、核変換を行わない場合に比べて長期放射能を数倍に増加させることは分かった。また、¹³⁵Cs の同位体として存在する ¹³³Cs から ¹³⁴Cs が生成し放射能が数十倍増加するが、照射後 10 数年で速やかに減衰し問題とならない。

結果として、LLFP 核変換の候補化合物の内、核変換の実施によって長期放射能を逆に増加させる可能性のある物質として、¹²⁹I に対して AgI、¹³⁵Cs に対して CsCl がある。廃棄物処分の長期性やガラス固化体の健全性維持期間(安全評価では 1,000 年を想定)を考慮すると、特に CsCl については留意が必要である。

3. LLFP ターゲットピン成立性の予備的検討

3.1 LLFP ターゲットピンの熱特性解析

LLFP 変換ターゲットピンは、核変換の際生じるエネルギー(中性子捕獲反応による γ 線・崩壊熱)・炉心からの輸送 γ 線等によりターゲット自体が発熱している。ターゲットピン健全性の観点から、ターゲットは溶融しないことが望ましく、照射中のターゲット温度について特性を理解することが必要である。そのため、対象とする LLFP 元素(Tc・I・Cs)のターゲットピンについて、各化学形態の熱伝導度を調査しターゲット温度について熱解析を行い、線出力の制限値等について簡易的な評価を行った[1]。

3.2 解析条件

対象 LLFP(Tc, I, Cs)化合物の熱伝導度に関して知見が乏しいことから、熱伝導度データを有する Tc(金属)・NaI・CsCl について熱解析を実施した。NaI・CsCl の装荷形態については、それぞれ「粉体」と「ペレット」タイプの 2 ケースを想定し、Tc(金属)・NaI(粉体)・NaI(ペレット)・CsCl(粉体)・CsCl(ペレット)の 5 ケースについて解析を行った。粉体ケースでは、NaI・CsCl とも充填率 50%を想定した。本検討では、空隙部のガスとして、NaI は I の核変換で生じる Xe、CsCl は He を想定した。

3.3 解析結果及び考察

3.3.1 Tc 金属

図 3-1 に示したように Tc(金属)の熱伝導度は(PuU)O₂ の 10~30 倍程度と非常に大きい。そのため、ターゲット内の径方向温度上昇は極めて小さく、ターゲット中心温度は被覆材温度とほぼ同等レベルとなった。ターゲット中心温度の軸方向ピーク値は冷却材温度とほぼ同等で 550°C 近傍であり、Tc(金属)の融点(2250°C)に対し十分余裕があることが分かる。図 3-2 にターゲット中心温度と線出力の関係を示したが、Tc(金属)では高線出力まで低い値を維持しており熱的に問題ないものと考えられる。

3.3.2 NaI

NaI の装荷法として、粉体とペレットタイプを想定した。図 3-1 に示したように NaI の熱伝導度は(PuU)O₂ の 1/8 程度と小さく³、また I の核変換により生成する Xe ガスの熱伝導度は更に小さく(PuU)O₂ の 1/100 以下であり、熱特性に大きく影響を与えるものと考えられる。特に粉体のケースでは、空隙部のガス熱伝導度がターゲット熱伝導度に影響を与えるため、図 3-3 のように NaI 充填率 50%(空隙部 Xe)のケースでは、ターゲット熱伝導度は(PuU)O₂ の 1/20~1/40 と著しく小さくなることが分かる。

熱解析の結果、粉体ケース(NaI 充填率 50%)の径方向温度分布は、熱伝導度が低いためターゲット内の温度上昇が極めて大きく、2W/cm の線出力で既に NaI 融点(661°C)を大きく超えるという結果が得られた(図 3-2)。一方、ペレットケースでは、ターゲット内の温度上昇は粉体ケースの 1/3 程度であるがギャップ部の温度上昇の効果が大きく、粉体ケース同様に熱的に厳しい結果が

³ ここで、NaI 熱伝導度の温度依存性としては、保守的にフォノン伝導のみを考慮し、高温側まで 1/T を外挿した。

得られることが分かった。

図 3-2 には、NaI の他に I 化合物として高融点を有する $\text{NiI}_2 \cdot \text{CeI}_3$ の融点も併せて示した。これらの化学形態について NaI と同等の熱伝導度を仮定した場合でも、熔融限界線出力は若干改善される程度であり、I 化合物ではターゲット熱伝導度を改善するための方策が必要と考えられる。特に、粉体ケースでは必須と推測される。

3.3.3 CsCl

CsCl の装荷法として、粉体とペレットタイプを想定した。図 4.6.2-12 に示したように CsCl の熱伝導度は $(\text{PuU})\text{O}_2$ の 1/10 程度と小さい⁴。粉体のケースでは、空隙部ガスとして He を想定しているが、He の熱伝導度は高温側で CsCl より大きくターゲット熱伝導度を改善するため、CsCl 充填率 50% ケースでは $(\text{PuU})\text{O}_2$ の 1/10～1/7 程度となることが分かる。

熱解析の結果、ターゲット熱伝導度が小さいことから、ターゲット内の温度上昇が大きく、粉体ケース・ペレットケースとも 10W/cm の線出力で既に CsCl 融点(645°C)を超える結果が得られた。両ケースを比較すると、粉体ケースでは空隙部 He の効果によりむしろ熱伝導度が改善されるため、ターゲット内の温度上昇は緩やかである。

粉体・ペレットタイプともに線出力の増加による中心温度の上昇は大きく(図 3-2)、特に高線出力側ではペレットケースで顕著となっている。NaI 同様、熔融回避を条件とした場合の設計成立幅は極めて小さく、両ケースとも線出力は低いレベルで制限され、ピン仕様に影響を与える可能性があることが分かった。

3.3.4 設定物性値(熱伝導度・ギャップコンダクタンス)に関する感度解析

今回の検討では、熱伝導度・ギャップコンダクタンスについて、保守性を確保するよう暫定的な設定をして評価を行った。そのため、ターゲット熱伝導度等物性については、今回の設定値より改善される可能性が考えられる。そこで、熱的に成立性の厳しいことが予想される NaI・CsCl について設定物性値改善の可能性を検討し、熱伝導度・ギャップコンダクタンスについて感度解析を行った。感度解析としては、ターゲット熱伝導度(NaI・CsCl)・ギャップコンダクタンス 2 倍を想定したケースについて、ターゲット熔融限界線出力への影響(増分)の評価を行った。結果を表 3-1 にまとめる。

NaI(粉体)以外のケースでは、特にターゲット熱伝導度に対して感度が大きく、物性改善により熔融限界線出力の値にある程度の改善が期待できる。NaI(粉体)ケースでは、物性改善の効果は小さく熱的に厳しいため、熔融限界線出力は低く制限されるままと考えられる。

3.4 LLFP 変換ターゲットピン(ヨウ素)の被覆管クリープ損傷簡易解析

LLFP 元素の変換量・率に影響を与える照射期間は、ターゲットピンの健全性により制限される。Tc・Cs については「照射量」で制限され、ドライバ燃料と同等の照射量が期待されるが、I については、核変換($^{127}\text{I}(n, \gamma)^{128}\text{I} \rightarrow (\beta^-) \rightarrow ^{128}\text{Xe}$ 、 $^{129}\text{I}(n, \gamma)^{130}\text{I} \rightarrow (\beta^-) \rightarrow ^{130}\text{Xe}$)により Xe ガスが生成されることから、照射期間がガス内圧による被覆管クリープ損傷寿命分数和(以後、CDF(ただし、疲労の影響は小さいので未考慮))で制限される可能性が考えられる。

⁴ ここで、CsCl 熱伝導度の温度依存性としては、保守的にフォノン伝導のみを考慮し、高温側まで 1/T を外挿した。

そこで、ヨウ素ターゲットピンについて Xe ガス内圧履歴を評価し、ターゲットピンの CDF について簡易的に解析を行いその健全性を検討した。(ただし今回の CDF 解析では、ターゲット材による内面腐食に関する知見がないため、内面腐食の効果を考慮していない)

3.4.1 解析条件

対象ターゲットピン： 径方向ブランケット置換ターゲットピン(減速材 $ZrH_{1.6}$ 割合 80%、ピン仕様は、1999 年度検討径方向非均質炉心の径ブランケットピン仕様と同一でピン径 15.64mm、被覆管肉厚 0.4mm)

ヨウ素化学形態： NaI (ヨウ素数密度： $1.47 \times 10^{22} / \text{cm}^3$ 、スミア密度：50%、60%、70%)

ヨウ素変換率： 5.8%/cycle を 540 日以上に外挿し使用

Xe ガス放出率： 100%想定

被覆材： ODS 鋼

被覆管最高温度履歴： 照射初期から末期まで 550°C で一定(炉心出口温度程度想定、580°C、600°C についても検討)

被覆管外面腐食： 考慮 (ODS 鋼 Na 腐食暫定評価式)

被覆管内面腐食： 未考慮 (現状知見なし、今後検討する必要あり)

3.4.2 解析結果と考察

図 3-3 より、ヨウ素ターゲットピンのガス内圧が取出平均燃焼度 15 万 MWd/t のドライバ燃料のピークピン(燃焼度 20 万 MWd/t 相当)の照射末期ガス内圧を越えるのは、8 サイクル以降であることが分かる。

一方、ターゲットピンのフープ応力は、ブランケット仕様を想定しピン径/肉厚比が大きいことから、図 3-4 のように 5 サイクル以前の早い時期にドライバ燃料ピン値を超えている。

CDF 値は、被覆管最高温度が低い(550°C)ため非常に小さく、図 3-5 のように 5 サイクルでも 10^{-5} 以下であり、スミア密度 70%を想定しても CDF > 1.0 となるのは 17 サイクル(25 年)以降と長期の照射期間を要するという結果が得られた。

被覆管最高温度履歴についてパラメータ解析(550°C・580°C・600°C)行った結果、被覆管最高温度の CDF 値に対する感度は大きいものの、600°Cを想定した場合でも CDF > 1.0 となるのは 12 サイクル以降となることが分かった。

以上のことから、被覆管内面腐食等の影響が小さい場合には、ヨウ素ターゲットピンにおいても照射期間はガス内圧による CDF で制限されることはないものと推測される。今回の検討では被覆管の CDF にのみ着目したが、現仕様のようにフープ応力が大きくなるケースでは被覆管の短時間強度についても過渡時を含め評価する必要があると考えられる。

4. 回収ロスと廃棄物低減効果の相関

核変換の目的は、最終的に廃棄される長寿命核種量を低減することにあるが、P&T プロセスに伴う再処理、分離、ターゲット製造等における回収ロスは避けることができない。回収ロスが大きい場合には、分離・核変換プロセスを繰り返して行っても廃棄される(または環境へ放出される)長寿命核種量を実質的に低減できなくなるため、回収ロスと廃棄物低減効果の関係を把握しておくことは重要である[2]。

4.1 LLFP 核変換サイクルの方式と解析方法

まず、LLFP 核変換サイクルの方式として、以下の方式が考えられる。

- 自己ワンスルー： 使用済み燃料から核変換対象 LLFP を分離、加工して 1 回のみ元の炉へ戻して核変換
- 集中ワンスルー： 複数の炉心から生成された LLFP を分離、加工して 1 回のみ特定の一つの炉へ集中的に装荷して核変換
- 自己マルチリサイクル： 一つの炉心から生成された LLFP を分離、加工し、元の炉へリサイクルするプロセスを繰り返し継続
- 集中マルチリサイクル： 複数の炉心から生成された LLFP を分離、加工し、特定の一つの炉へリサイクルするプロセスを繰り返し継続

ここで、ワンスルー核変換の場合は、使用済み燃料から LLFP を分離回収しターゲットに加工するまでのトータルロスと、一度の核変換で燃え残った量の和が廃棄物総量となる。これは、自己ワンスルー、集中ワンスルーともに共通である。使用済み燃料から LLFP を分離回収する際の回収ロスを小さくすれば、廃棄される LLFP 廃棄物量は核変換率分を差し引いた量に漸近するが(図 4-1)、廃棄物低減率は 1 回照射による核変換率で最大となるため、ワンスルーの核変換では有意な廃棄物低減効果は得られない。従って、核変換技術の適用によって廃棄物量の大幅(例えば数十分の一以下)低減を目指す場合には、マルチリサイクルが必然と考えられる。

マルチリサイクル核変換の物質フローを図 4-2 に示す。マルチリサイクルを行う場合、燃え残りの LLFP は炉心へ戻されるので LLFP 炉内インベントリが増大する。このため、ワンスルーサイクルに比べて回収ロスと同じでもロスの絶対量が増大する傾向となる。こうした関係を定量的に調べるために用いた自己マルチリサイクルにおける物量バランス式を下に示す。

$$\text{炉心: } \frac{dn_c}{dc} = p - \frac{n_c}{b} \quad (1)$$

$$\text{ターゲット: } \frac{dn_t}{dc} = (s+1)(1-l_c)\frac{n_c}{b} - (t_r + \frac{l_t}{br})n_t \quad (2)$$

$$\text{回収漏れ廃棄物: } \frac{dn_w}{dc} = (s+1) \frac{l_c}{b} n_c + \frac{l_t}{br} n_t \quad (3)$$

ここで、

P : 炉心での LLFP 生成量 [kg/cycle]

b : 炉心バッチ数[-]

s : サポートファクタ (=核変換を行わない炉の基数/核変換を行う炉の基数)

l_c : 炉心燃料再処理時の回収ロス [/cycle]

l_t : 炉心燃料再処理時の回収ロス [/cycle]

t_r : 核変換率 [/cycle]

r : LLFP ターゲット滞在時間比率 (=LLFP ターゲット滞在時間/炉心燃料滞時間)

ここで、 $s=0$ の場合が自己マルチリサイクル、 $s>1$ の場合が集中マルチリサイクルを表す。なお、本解析では簡単のため LLFP ターゲット滞在時間比率は 1、バッチ数は 4 とした。また、LLFP ターゲット再処理では、扱う物質の種類が限定されていたり、LLFP 専用の分離工程であるため、燃料再処理時よりも小さいロスとなることが期待されるが、ここでは使用済み燃料再処理時の LLFP 回収ロスと LLFP ターゲット再処理時は同じ値として保守的評価を行った。

4.2 マルチサイクル LLFP 核変換時の回収ロスと廃棄物低減効果

解析結果を図 4-3-1 及び図 4-3-2 に示すとともに、結論を以下にまとめる。LLFP をマルチサイクルして核変換する平衡サイクルにおいて、

- 核変換率が 10%/cycle 程度の場合、廃棄物量を 1/10 にするには、回収ロスは 3%/cycle 程度以下にする必要がある。
- 回収ロス 1%/cycle 以下を達成することが不可能な場合、炉心側で核変換率向上を図っても、廃棄物量を 1%以下に低減することはできない。
- 廃棄物量を 1/100 以下にするためには、回収ロス<0.5%が必要。

また、径方向非均質炉心で ^{129}I 核変換を行う場合(径ブランケット領域 84 集合体、化合物: NaI)の減速材割合と ^{129}I 核変換率の関係を用いて、サポートファクター(1 基の高速炉で何基分の ^{129}I を核変換できるかの能力を示す値)と回収ロスの関係について考察した。

マルチリサイクルを行う LLFP ターゲットは、炉心から取り出した後に、核変換(及び回収ロス)による低減分を新たに付加して再装荷を行う。その際の追装荷量は、核変換効率が向上するにつれ大きくなるが、一方で減速材割合が多くなると装荷できる絶対量が減少するため、本検討条件においてサポートファクターは ^{129}I の核変換率 5%/cycle 当りでピークを持ち、約 6 基分の ^{129}I を変換可能となる(図 4-4)。回収ロスを考慮する場合、核変換量(kg/cycle)やサポートファクターを大きくするよりも、可能な限り核変換率(%/cycle)を高めることが廃棄物量低減に効果的であるが、自己生成分の LLFP 量を上回る核変換量を得ようとする場合、ターゲットへの減速材装荷量が制

限されることにより核変換率には上限値が存在する。具体的には、径方向非均質炉心の径ブラ領域へ ^{129}I を装荷する本解析条件の場合、核変換率を 15%/cycle 程度以上に高めることはできない。

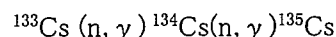
なお、LLFP を大量に処理する要求のある時期においては、核変換の絶対量を大きくするために核変換率を下げて対応することが考えられるが、廃棄物量を増大させないためには、トレードオフ関係にある回収率を低減する必要がある。

5. Cs 核変換の可能性検討

5.1 元素分離 Cs 照射による ^{135}Cs 核変換の困難性

FS で核変換の対象とされている ^{135}Cs は下記の理由で核変換が容易でない[2]。

- ① Cs 元素には安定な ^{133}Cs が ^{135}Cs と同程度含まれ、 $^{133}\text{Cs}(n, \gamma)^{134}\text{Cs}(n, \gamma)^{135}\text{Cs}$ のチェーンにより新たな ^{135}Cs が生成される。 $(^{133}\text{Cs}$ は ^{135}Cs に比べ中性子断面積が大きく、中性子減速による断面積増大効果も大きい。また ^{134}Cs の断面積はさらに大きく、半減期が短いながらも、その中性子捕獲による ^{135}Cs 生成の効果は無視できない)



- ② 高速スペクトル下での ^{135}Cs の中性子捕獲断面積は 0.2barn 程度と小さい。
- ③ 減速材利用による核変換速度の改善が顕著でない。
- ④ 生成量(核分裂収率)が多く、1500MWe 出力の MOX 高速炉で約 87kg/cycle 生成される。

径方向非均質炉の径ブランケット領域へ LLFP ターゲットを装荷した初段階検討(2.2.3 章)からは、減速材を用いた場合でも核変換量は高々 30kg/cycle 程度であり生成量の 1/3 程度しか変換できない結果を得ている。従って Cs 核変換に関しては、特別な取り扱いが必要であり、その一つの方策として「照射冷却繰り返し法」による核変換率改善方策について検討した。

5.2 「照射・冷却繰り返し」核変換法の概念

元素分離 Cs に含まれる ^{135}Cs の核変換が困難な理由として、安定同位元素 ^{133}Cs からの新たな ^{135}Cs 生成があるが、両核種の核変換チェーンの間には半減期 2.1 年の ^{134}Cs が存在する。 ^{135}Cs の新たな生成はこの短半減期核種 ^{134}Cs を必ず経由するため、 ^{133}Cs の照射である程度 ^{134}Cs が蓄積した段階で、LLFP ターゲット集合体を炉外へ取り出し、 ^{134}Cs を自然崩壊させることによって、 ^{135}Cs の生成を抑制することが考えられる。

なお、Cs 集合体を炉内装荷分より多く準備しておくことにより、 ^{134}Cs の冷却と照射を同時進行的に行いながら効率的な核変換を行うことが可能である。

本方式の効果を簡単に見積もるために、Na 冷却大型炉の径ブラ位置の集合体 78 体分(Cs 元素 1.66ton)を長期間連続照射するケースと、1cycle(600 日)照射後に 3cycle(1800 日)の冷却するサイクルを繰り返すケースについて解析を行った。ここで、 ^{133}Cs を早期に変換すること及び ^{135}Cs の核変換率を高めるには中性子スペクトルを大きく熱化することが有効と考えられたため、高効率核変換を BWR と同等に熱化された中性子スペクトルで照射するものとした。

結果として、生成速度と同等の早さで ^{135}Cs を核変換するためには、 2.3×10^{15} [n/cm² sec]の中性子束と、1cycle(600 日)照射後に 3cycle(1800 日)の冷却するサイクルを 4 回繰り返すことが必要であることが示された(図 5-1)。本方式は連続照射方式に比べて核変換率・核変換量を 10%程度増大させ、且つ 1kg の ^{135}Cs を核変換するのに消費する中性子数を 4~13%低減する効果があるが、必要な中性子束レベルを商用高速炉で得ることは困難である。

5.3 ^{135}Cs 核変換に適した中性子照射条件

5.3.1 減速材比率と断面積

元素分離 Cs の核変換に適した中性子スペクトル条件を検討するため、減速材割合をパラメータとした Cs 同位体の断面積を整理した。LLFP 集合体の減速材比を 0～95%の範囲で変化させた場合の Cs 同位体(Cs-133 , Cs-134 , ^{135}Cs)の吸収断面積を図 5-2 に示す。(尚、参考のため、酸化物燃料 Na 冷却 FBR 炉心の平均断面積、及び BWR の炉心平均断面積も併記した)。いずれの同位体も ZrH 体積比が増えて中性子スペクトルが軟化するにつれ、吸収断面積は大きくなっている。

図 5-3 には図 5-2 の表示方法を変えた各同位体の断面積比率を示す。ZrH 増に伴い、各々の同位体の断面積比率が変化していることが分かる。 ^{135}Cs を効率的に核変換するためには、Cs 同位体中に占める ^{135}Cs の断面積比が大きく、その先行核となる他の同位体の断面積比は小さいことが望ましい。この意味においては ZrH0%が好ましいと思われるが、図 5-2 は断面積の大きさ自体を考慮していないものである。

そこで、 ^{135}Cs と ^{133}Cs の吸収断面積比(A)、 ^{135}Cs と ^{134}Cs の吸収断面積比(B)⁵に、 ^{135}Cs の断面積を乗じた量を定義し、図 5-4 の太線に示した。この量が大きいスペクトル下では、新たな、 ^{135}Cs 生成を抑えながら早い速度での核変換が期待できる。図 5-4 からは ZrH 体積比 10%が適していることが分かる。

但し、この量は断面積の大きさまたは比率のみしか考慮しておらず、各同位体の装荷量、燃焼に伴う組成変化、燃焼期間の長さ等の効果は含まれていないため、実際には燃焼解析を行い適切な照射条件を判断する必要がある。

5.3.2 連続照射時の核変換特性

^{135}Cs の核変換では、安定同位 ^{133}Cs の存在により、高い中性子束での 1 サイクル～数サイクルの短期照射では ^{135}Cs が逆に増加する場合がある。従って、ある程度の長期間照射での核変換特性をみることが重要である。

Cs 元素装荷量は、LLFP 集合体 84 体分、ZrH の体積割合が 0%時で 4339kg、Cs 同位体組成は Cs-133/134/135/137 それぞれ 31.8/0.6/37.4/30.2(高速炉使用済み燃料組成)とした。

図 5-5 には、12 サイクル(600 日×12 サイクル=7200 日=19.73 年)の長期間にわたって元素 Cs を連続照射した場合のサイクル平均核変換率を、ZrH 体積比をパラメータとして示す。中性子束は 7×10^{14} [n/cm² sec]を想定している。

ZrH 比が 0%の場合には、照射期間を長くするにつれて平均核変換率は低下するが、それ以外のケースでは 3 サイクル以降で変換率が増加する傾向にある。また減速材比が多い程、変換率が大きくなっている。

一方、サイクル平均核変換量(図 5-6)は、ZrH 体積比が増大するにつれ核変換率は増大するものの、Cs 装荷量自体が減少するため、ZrH 体積比 10%～20%で最大値を示した。また、変換量が最大となる時期は 11 サイクル当たりであり、 7×10^{14} [n/cm² sec]のフラックスで連続照射を行う場合には 18 年近く照射を継続することが望ましい結果を得た。ZrH 体積比 20%で連続照射した場合の、Cs 同位体組成の変化を図 5-7 に示した。

⁵ A, B は Cs-135 へのビルドアップのしにくさを示す指標

しかしながら、この計算ケースでは、生成量(87kg/cycle)以上の ^{135}Cs 変換量を達成できていないため、次のステップとして「照射冷却繰り返し法」を適用した場合の核変換特性を調べた。

5.3.3 照射冷却繰り返し法を適用した場合の長期核変換特性

中性子束レベル 7×10^{14} [$\text{n}/\text{cm}^2 \text{ sec}$]で Cs 元素を 1cycle(600 日)照射した後に、3cycle(1800 日)の期間冷却し ^{134}Cs の減衰を促す「照射冷却法」を適用した場合の長期核変換特性を調べた。核変換率の計算結果を図 5-8 に、核変換量の結果を図 5-9 に示した。(尚、図 5-7、5-8 の横軸のサイクル数は、原子炉内で照射を行った正味の照射サイクル数であり、冷却サイクル数は含んでいない。)

前節で示した連続照射時と同様に、ZrH 比が 0%の場合には照射を継続するにつれサイクル平均核変換率は低下する。しかしそれ以外のケースでは 6~7 サイクルをピークとして変換率が增大している。照射冷却を行う場合には、連続照射に比べ最大変換率を与える照射サイクル数が短縮されていることが分かる。

図 5-9 の変換量をみると、ZrH 体積比 10%で変換量は最大となり、生成量 87kg/cycle を僅かに上回っている。すなわち、照射冷却サイクルを 6 回繰り返すことにより、中性子束レベル 7×10^{14} [$\text{n}/\text{cm}^2 \text{ sec}$]でも元素分離 Cs を核変換できる可能性がある。これに要する期間は、照射 600 日が 6 回、その照射の合間の冷却 1800 日が 5 回故に 12,600 日(約 34.5 年)となる。

変換量が最大となった ZrH 体積比 10%の場合の、Cs 同位体組成変化の様子を図 5-10 に示す。照射期間中に生成された ^{134}Cs は、1800 日(約 5 年)の冷却期間中に 1/10 程度まで減少している。これにより、次照射サイクルでの ^{135}Cs の新たな生成が抑制され、階段状に ^{135}Cs が減少する様子が示されている。またこの図より、 ^{135}Cs の実効半減期は ^{137}Cs の半減期 30 年とほぼ同等となっていることが分かる。

5.3.4 核変換特性の中性子束依存性

前節では、中性子束レベルを 7×10^{14} [$\text{n}/\text{cm}^2 \text{ sec}$]と想定して中性子スペクトルや照射サイクル長さの核変換特性への影響をみた。ここでは、中性子束依存性を調べるため、中性子束レベルを 1×10^{15} 、 2.3×10^{15} [$\text{n}/\text{cm}^2 \text{ sec}$]と高めた場合のサーベイ計算を行った。

前節でみたように、核変換率や変換量はある照射サイクル長さで最大値をとる。そこで、最大の核変換率を与える照射サイクル長さを、各々の中性子束レベル及び減速材割合に対してプロットした図を図 5-11 に示した。中性子束が高い場合、または減速材比が高い場合には、変換率が高くなるとともに、最大変換率を与える照射サイクル長さも短くなる。また、中性子束が 7×10^{14} [$\text{n}/\text{cm}^2 \text{ sec}$]と低い場合でも、照射冷却を行うことにより、変換率がやや高くなるとともに、照射サイクル長さも短くなる。図 5-11 中の破線円に示されている。但しその際のサイクル長さと変換率の相関(曲線の形)は、連続照射ケースと大きく異なっている。

同様に、各々の中性子束について、核変換量と照射サイクル長さの関係を図 5-12 に示した。減速材比が 10~20%と低く、かつ中性子束が高い場合に、大きな変換量が得られている。中性子束が 7×10^{14} [$\text{n}/\text{cm}^2 \text{ sec}$]の場合でも、照射冷却を行うことにより、生成を上回る変換量が得られ、照射サイクル長さも短くなる。図中の破線円に示されている。

5.3.5 核変換特性の減速材依存性

水素よりも質量数が大きく減速能の小さいホウ素を含む $^{11}\text{B}_4\text{C}$ 減速材は、ZrH に比べ、先行核である ^{133}Cs からのビルドアップを抑制する傾向を有するため、Cs 変換に適した減速材との期待があり、その変換特性を調べた。

ZrH を用いる場合には 4 サイクル程度以上の長期燃焼時に ^{135}Cs の変換率・量が改善するのに対し、 $^{11}\text{B}_4\text{C}$ では照射初期に高い変換率・量が得られその後徐々に減少する傾向となる。減速材割合は 40%程度で好ましい核変換特性を示した。

総合的には、 $^{11}\text{B}_4\text{C}$ 減速材を用いることで ^{135}Cs の新たな生成は抑制されるものの、 ^{135}Cs 断面積の改善効果が十分でないため、生成量以上の ^{135}Cs 変換量を得るためには ZrH の場合よりも 2 倍程度高い中性子束が必要となる結果を得た。

5.3.6 ^{135}Cs 核変換特性に対する ^{134}Cs 吸収断面積の感度

^{135}Cs の先行核種である ^{134}Cs は半減期が 2.1 年と短く天然に存在しない核種であり、実験から求められた断面積は熱中性子断面積しか存在しないため、その核データの精度は高くないと考えられる。

そこで、 ^{135}Cs の核変換特性に対する ^{134}Cs の中性子吸収断面積の感度解析を行い、 ^{134}Cs の吸収断面積の不確かさと ^{135}Cs 変換特性の相関を調べた。 ^{134}Cs の一群縮約断面積に 0.1~5.0 までの係数を乗じて断面積を変化させる直説法で ^{135}Cs の核変換量、必要中性子束等を検討した。

^{134}Cs の中性子吸収断面積は、 ^{135}Cs の核変換率・量に対して負の感度を有する。具体的には、 ^{134}Cs の断面積が現在より 50%小さくなると、 ^{135}Cs 変換量は 18kg 増加、または必要集合体数が約 20 体減少する。その感度は、断面積の小さい側で大きい(図 5-13)。 ^{134}Cs の断面積に乗じた係数 1~1.5 の範囲では、-0.15 [kg/%d σ]であるのに対し、0.5~1 の範囲での ^{135}Cs 変換量の感度は約-0.3 [kg/%d σ]と大きい(照射冷却ケース)。

また、 ^{134}Cs の中性子吸収断面積は、必要中性子束レベルに対して正の感度を有し、断面積が小さくなるにつれ、生成と変換をバランスさせる中性子束は低くなる(図 5-14)。 ^{134}Cs の断面積を 1/10 程度に小さく見積もると、生成量以上の変換量を得るために必要な中性子束は 4×10^{14} [n/cm² sec] 程度まで低減する。

5.3.7 ^{135}Cs 核変換の実施可能性

FS フェーズ I 及び 2001 年度において ^{135}Cs 変換の可能性検討を行ってきたが、核的観点からだけでもその成立性を見通せる結果は得られていない。

図 5-15 に生成量と同等の変換量を得るために必要な ^{135}Cs の核変換率と Cs 元素装荷量の関係を示した。

Na 大型参照炉心での体系計算から得られた核変換率は、いずれの装荷量(減速材割合)に対しても必要核変換率の 1/2 以下であり、実際の変換率と必要な変換率には大きな開きがあることが分かる。商用炉の場合、炉心仕様の変更は諸特性への影響を最小にする範囲に抑制されるため、図に示される変換率の不足を解消することは極めて困難と考えられる。

東工大を中心に行われている自ら整合性を有する原子力システム(SCNES: Self Consistent Nuclear Energy System)での Cs 核変換検討[5]においては、発電用高速炉での Cs 核変換の可能性が示されているが、これは炉心の径ブランケット外側の反射体や遮蔽体の領域に大量の Cs (Cs

集合体数 200~300 体、Cs インベントリ 15ton 程度以上)を装荷し、変換率は極めて低いながらも装荷絶対量を増やすことによって生成量以上の変換量を得る概念である(図 5-15 内右下)。この場合には、炉容器径の増大を伴いプラント全体への影響が大きいこと、プラント寿命に匹敵する Cs 集合体の長期貯蔵が必要となること等の課題があり、現時点の FS の設計要求に適合する炉心設計となり得ない。また回収ロス考慮時の Cs 低減利得の観点でも、核変換率の低い本方式では適切でないと判断される。

よって、商用高速炉に大きな変更を加えることなく ^{135}Cs を核変換することは現時点で極めて困難と判断せざるを得ず、今後の研究において ^{134}Cs の核データ精度の確認等、基礎的分野の進展があった場合に、必要に応じて再度検討することが適切と考える。

5.3.8 まとめ

^{135}Cs の変換には弱減速スペクトルが適している。ZrH 減速材比としては 10vol%程度、 $^{11}\text{B}_4\text{C}$ であれば 40-60vol%程度に相当する。

Cs 元素照射によって ^{134}Cs (半減期 2.1 年)がある程度蓄積した段階で Cs ターゲット集合体を炉外へ取り出し、 ^{134}Cs を自然崩壊させることによって ^{135}Cs の新たな生成を抑制する「照射冷却繰り返し法」の運用法を検討した。1 サイクル照射の後、3 サイクル冷却させるサイクルを 6 回実施する場合(正味の照射期間約 10 年、冷却含む総時間約 35 年)に核変換効率が最大化する。

「照射冷却繰り返し法」を適用しても、径ブラ領域(84 集合体)に必要な最低中性子束は $7 \times 10^{14}[\text{n}/\text{cm}^2\text{sec}]$ 程度(ZrH10vol%時)。これは実際に得られるフラックス($4.8 \times 10^{14}[\text{n}/\text{cm}^2\text{sec}]$)の約 1.5 倍高い値であり、達成は容易でない。

^{135}Cs の先行核種である ^{134}Cs の断面積の感度解析を行った結果、 ^{134}Cs の一群縮約断面積が半分程度になると、 ^{135}Cs 変換に必要な中性子束は 3 割程度低減する。ここで ^{134}Cs は天然に存在しない核種であり、現時点において実験から求められた断面積は熱中性子断面積しかないため、評価済み核データの精度は高くないと考えられる[6]。 ^{135}Cs 変換の実施可能性を見極めるには今後 ^{134}Cs の核データ精度の確認が重要と考えられる。

以上より、商用高速炉に大きな変更を加えることなく ^{135}Cs を核変換することは困難と判断される。

6. 高効率核変換集合体による LLFP 核変換

LLFP を核変換するためには、照射後に燃え残った LLFP を回収して再装荷するプロセスを繰り返す必要がある。この場合の回収ロスを考慮すると、多くの LLFP を装荷して核変換量を大きくすることよりも、核変換率を向上させることが重要であることが第 4 章の検討で示されている。よって、核変換率を改善する方策として、中性子束の高い炉心内部へも装荷可能な減速材含有 LLFP 集合体(高効率核変換集合体, High Efficiency Transmutation Target : HETT)を検討した [2]。

6.1 高効率核変換集合体の概念

図 6-1 に高効率核変換集合体の概念を示す。集合体は二重のダクト構造をしており、集合体周辺に減損 U (または SUS) 領域、中央部に減速材+LLFP 領域を持つ。

LLFP 化合物 (NaI, CsI, Tc 金属等) を充填する LLFP ターゲットピンは、ピン表面の自己遮蔽効果による核変換効率低下を避けるため、細めの径として減速材ピンの間に配置する。減速材ピン径と FP ピン径の調整により、適切な減速材割合に設計することができる。また、減速材と LLFP を混合せず別ピン構成とすることで、LLFP のマルチサイクルに必要な LLFP 集合体の再処理性、加工性、LLFP の回収性に配慮した。

この高効率核変換集合体は、炉心周辺の径ブランケット位置への装荷のみならず、中性子束の高い炉内へも装荷することを想定し、集合体周辺(外側ダクト領域)は減損 U (または SUS) ピンで囲み、内側ダクトの減速材によって減速された中性子による燃料集合体境界でのサーマルピーク緩和を図る構成とした。また外側ダクト領域に減損 U を配置するケースでは、内側ダクト領域から供給される熱化中性子により ^{238}U の σ_c/σ_f 比が改善され、Pu 生産が効率的になる効果が期待される。これにより、内側ダクト領域に LLFP を装荷することによる ^{238}U 装荷量減少(ひいては Pu 生成量減少)を、ある程度回復できる可能性がある。

また内側ダクト領域で熱化された中性子の寄与により、外側ダクト領域の U から生成される Pu の組成は、熱中性子炉で生成される Pu 組成に近いものとなる。従って、核分裂性 Pu の比率は、高速炉のブランケットで通常生成される Pu に比べて低く、核不拡散上有利となる可能性がある。

なお今後検討を進める中で、外側ダクトの減損ウラン領域におけるサーマルピークが厳しい場合には、ウランピンの代わりに SUS ピンを置くこととする。さらに、装荷位置によってはサーマルピークが問題にならないこともあるが、その場合には外側ダクト構造を無くし、減速材と LLFP 化合物から成る一重ダクトの集合体とすることも考えられる。

本集合体の特徴を箇条書きにまとめる。

- LLFP 核変換効率の向上
 - 減速材混合による中性子の減速で LLFP の吸収断面積を増大させる
 - 細径 FP ピンにより自己遮蔽効果を抑制する
 - サーマルピーク緩和のため、FP 装荷領域を減損 U または SUS ピン領域で囲む二重ダクト構造とし、中性子束の高い炉内へ装荷可能とする
- LLFP 集合体の再処理性・加工性

- ▶ LLFPとZrHを混合せず別ピン構成とし、再処理・加工時の取り扱いを容易にする
- Pu増殖性能への配慮
 - ▶ 集合体周辺を減損Uで囲む二重ダクト構造としPuを生成し、FP装荷による増殖性能劣化を抑制する
- 生成Puの組成劣化による核拡散抵抗性への配慮
 - ▶ 外側ダクトの減損U領域で生成されるPuの組成は、熱化された中性子の寄与により、核分裂性比率の小さい組成とする

6.2 高効率核変換集合体の仕様

高効率核変換集合体の仕様と、各領域の体積割合をそれぞれ表6-1、表6-2に示す。集合体周辺には、ピン径11.2mmの減損ウランピンを2層、102本装荷し、内側ダクト内にはピン径9.7mmのZrH減速材ピンを8層、169本装荷した。減速材ピンの間にはピン径3.3mmのLLFPピンを294本配置した。本解析では、LLFP化合物としてヨウ化セシウム(CsI)を想定し、Cs、及びIの同位体組成比はFBR平衡サイクルの値を用いた。

集合体中の減損ウラン体積比は約21%、減速材が25%、LLFPが約5%程度であり、内側ダクト内の減速材体積割合(減速材/(減速材+LLFP))は83.3%と、核変換率が大きくなるよう設定した。

なお本検討は、核変換効率や炉心特性へのインパクトの第一次評価に主眼にあり、今回設定した集合体仕様は工学的成立性を考慮しない暫定仕様である。

6.3 LLFP核変換検討用炉心

LLFP核変換検討用炉心として、LLFP集合体装荷による炉心特性悪化を予め見込み、設計に余裕を持たせた1500MWe出力Na冷却MOX燃料炉心を新たに設定した。炉心・燃料の仕様を表6-3と表6-4に、炉心配置図を図6-2に示す。

運転サイクル長さは510日、燃料交換4バッチのPu富化度2領域均質炉心で、径方向に1層のブランケットと上下に45cmの軸ブランケットを持つ。燃料集合体数は内側炉心、外側炉心、ブランケットそれぞれ150体、222体、78体である。燃焼反応度は3.46%dk/kk'、増殖比はEOCで1.188で最大線出力は346.7W/cmとやや低めとし、LLFP集合体による径ブランケットや炉心燃料の置き換えによる線出力増大への余裕を持たせている。

6.4 LLFP装荷炉心の検討方法

二次元RZ計算により、高効率核変換集合体を用いたLLFP核変換特性や炉心特性への影響を評価した。

LLFP集合体の種類は3通りとし、CsIのみを径ブランケットと同様なピン仕様で装荷したCsI(100%)集合体、減速材とLLFPをZrH83.3%、CsIを16.7%の比率でブランケット仕様ピンにおさめたZrH(83.3%)&CsI集合体、そして前述した減損ウランを外側ダクトに持つ高効率核変換集合体を想定した。

装荷するLLFP集合体の構成や装荷位置の影響をみるため、下記10ケースの解析を実施した。ケース1)は参照炉心、ケース2)~4)は径ブラ位置へのLLFP集合体装荷、ケース5)~10)

は径ブラ位置及び炉心中央位置へ LLFP 集合体を装荷する炉心構成である。

- ケース 1) 参照炉心
- ケース 2) CsI(100%)径ブラ領域装荷
- ケース 3) ZrH(83.3%)&CsI 径ブラ領域装荷
- ケース 4) 高効率核変換集合体径ブラ領域装荷
- ケース 5) ケース 3)+CsI(100%)炉心中央装荷
- ケース 6) ケース 3)+ZrH(83.3%)&CsI 炉心中央装荷
- ケース 7) ケース 3)+高効率核変換集合体炉心中央装荷
- ケース 8) ケース 4)+CsI(100%)炉心中央装荷
- ケース 9) ケース 4)+ZrH(83.3%)&CsI 炉心中央装荷
- ケース 10) ケース 4)+高効率核変換集合体炉心中央装荷

図 6-3 にケース 7)の炉心配置図を示す。LLFP 集合体の装荷位置はケース 5)~10)で共通であり、径ブラ位置に 78 体の LLFP 集合体、炉心中央に 6 体の LLFP 集合体を配置している。

6.5 解析結果

表 6-5、表 6-6 に核変換特性及び、LLFP 集合体装荷による炉心特性への影響をまとめた。

参照炉心は 1cycle(510 日)で 15.2kg の ^{129}I を生成するため、核変換量はこれ以上でなければ実質的な核変換にならない。径ブラ領域のみに LLFP 集合体を装荷したケース 2)~4)では、おおむね生成量と同等の変換量を得ているが、減速材を持たないケース 2)では 1300kg もの ^{129}I を装荷しており核変換率は 1.2%/cycle と小さいため、回収ロスを考慮すると効果的な方法とは考えにくい。

減速材を含んだケース 3)とさらに減損ウランを含むケース 4)の核変換率はそれぞれ 8.2%/cycle、9.6%/cycle と比較的高い値を示した。ここでケース 3)は相対的に燃焼反応度への影響が大きい(7%悪化)ため、径ブラ位置へ装荷する場合には減速材と減損ウランを含んだ高効率核変換集合体を用いるケース 4)が好ましいと考えられる。主要ケースの炉心特性影響と ^{129}I 核変換特性を図 6-4、図 6-5 に示した。

続いて、径ブラ位置へ高効率核変換集合体を装荷しながら、炉心中央部へ 6 体の LLFP 集合体を装荷したケース 8)~10)についてみる。炉心中央部は、径ブラ領域に比べて高い中性子束を得やすく核変換効率の改善が期待されるが、ケース 8)の炉心中央装荷 CsI(100%)集合体での核変換率は高々 3.3%/cycle とさほど高くなっていない。減速材を含有したケース 9)では、炉心中央での核変換率は 19.7%/cycle に向上している。高効率核変換集合体を装荷したケース 10)ではさらに高く、22.5%/cycle に達している。ケース 9)と 10)では、増殖比へのインパクトはほぼ同等(約 8%)ながら、燃焼反応度への影響はケース 9)が 14%とケース 10)の 11%に比べてやや大きい。従って、炉心中央部へ LLFP 集合体を装荷する場合でも、減損ウランを有した高効率核変換集合体が僅かながら優れる性能を示した。

高効率核変換集合体で減損ウランを外側領域においた理由として、隣り合う燃料集合体との境

⁶ 減損ウランを含む FP 集合体での Pu 生成量は、ケース 9)で 30.24kg、ケース 10)で 34.32kg とケース 10)でやや大きい。この差は炉内に装荷された 6 体の FP 集合体で生成された Pu 4kg 分による。

界でのサーマルスパイクの軽減があるが、二次元 RZ の解析では最大線出力を発生するようなサーマルスパイクは見られなかった。但しこれは、メッシュの切り方や拡散計算手法に起因していることも考えられるため、次節のモンテカルロ計算で検討を深めた。

なお、 ^{135}Cs に関しては、高効率核変換集合体を用いたいずれのケースでも有効な核変換はできていない。

6.6 モンテカルロ計算によるサーマルピークや核変換率の検討

CITATION より求められた燃焼後の原子数密度を用いて、連続エネルギーモンテカルロコード MVP によりサーマルピークを求めた。このとき、HETT 及び隣接する燃料集合体を非均質、他の集合体は均質でモデル化した。

次に、MVP により求められた LLFP ターゲットの中性子束と断面積を用いて、一点炉近似燃焼計算コード ORIGEN2 により LLFP の燃焼計算を行い、LLFP 核変換率を求めた。

高効率核変換集合体の装荷による隣接燃料領域に発生するサーマルピークの燃焼期間中の変化を図 6-6 に示す。LLFP ターゲット集合体に高効率核変換集合体を用いることで隣接する燃料領域におけるサーマルピークの発生を抑制できる。しかし、高効率核変換集合体の外側ダクト領域を減損ウランとした場合は、Pu の蓄積に伴うサーマルピークが発生するため、炉心中央部に 1cycle 以上装荷することができない。なお、外側ダクト領域を SUS ピンとすれば炉心中央部への装荷は可能である。

^{129}I 変換特性を表 6-7 に示す。径ブラ装荷時では、燃料仕様と同じ LLFP 集合体に比べ高効率核変換集合体を用いることで約 1.2 倍の変換率が得られている。さらに、炉心内部へ装荷した場合、径方向ブランケット位置装荷に比べて約 2 倍の 15%/cycle の変換率が得られた。

前節の拡散計算では、径ブラ装荷時で約 10%/cycle、炉中心装荷で約 20%/cycle の変換率であったのに対し、連続エネルギーモンテカルロ計算ではそれぞれ 6%/cycle、15%/cycle と 3~4 割小さい値になっている。なお、対象炉心からの ^{129}I 生成量は約 15kg/cycle であり、本解析の仕様の高効率核変換集合体では炉心からの ^{129}I 生成量を上回る核変換量は得られていない。

6.7 高効率核変換集合体検討のまとめ

発電用高速炉での LLFP 核変換効率向上を目的として、LLFP 集合体の構成や装荷位置と核変換特性の関係を調べるとともに、集合体外側領域を減損 U で囲み中央部に減速材含有 LLFP 領域を有した「高効率核変換集合体」を検討した。ここで、LLFP 集合体を装荷することを想定した大型 Na 基準炉心を新たに設定し、核変換特性評価に用いた。

径ブラ領域へ減速材を含む LLFP 集合体を装荷する場合、増殖比は約 7-8%低減するが、炉心特性への影響を比較的小さく抑えながら、生成量とほぼ同等の ^{129}I を核変換できる。しかしながら、減速材含有 CsI 集合体(減速材比 83.3%)や高効率核変換集合体の場合でも、核変換率は 6-7%/cycle と小さい。

中性子束の高い炉内へ減速材を含む LLFP 集合体を装荷する場合、減速材含有 CsI 集合体の ^{129}I 変換率は拡散計算ベースで約 20%/cycle に向上するが、基準炉心に比べて燃焼反応度が 14%増、増殖比が 8.5%減と、特に燃焼反応度への影響が大きい。

一方、減損ウラン領域を持つ高効率核変換集合体の場合は、燃焼反応度 11%増、増殖比 8%減

とややインパクトが小さいながら、 ^{129}I 変換率は拡散計算で 22.5%/cycle、モンテカルロ計算で約 15%/cycle が得られた。但し、今回の検討で炉心部へ装荷した LLFP 集合体は 6 体と少なく、炉内装荷の LLFP 集合体分のみでは ^{129}I 生成量の 1/6 程度の変換量しか得られていない。

以上の高効率核変換集合体の検討より、1) 減速材の利用、2) 熱ピーク回避構造の採用、3) 炉内装荷、4) 細径ピンの採用が LLFP の核変換効率改善に有効となる可能性が示された。

一方で、本概念は減損 U 領域での Pu 生産による線出力制限や集合体構成の複雑さという課題を有している。今後は、本検討で示された核変換率改善の方策を取り入れつつ、核・熱・構造の観点も踏まえた LLFP 集合体の工学的設計が重要である。

7. LLFP核変換技術の工学的設計検討

発電用高速炉の諸特性へのインパクトを抑制しながら効果的な核変換を行うための、LLFP 集合体概念を具体化するための工学的設計検討に着手した。ここでは対象 LLFP として I と Tc に着目し、主としてこれらの核変換効率を高める観点から、仕様具体化に必要な核熱特性、熱流力特性及び材料健全性全体についてのサーベイ解析を行い、工学的成立性が見通せる LLFP 集合体、およびそれを装荷した炉心仕様を検討した。なお、LLFP 生成量は前章までと同様に、総核分裂数、核分裂当たりの放出エネルギー量、及び核反応による増減分を考慮した収率から算出した暫定値で検討を進めたが、後の段階で収率データ等の見直しを行い LLFP 生成量を改訂した。具体的には、 ^{129}I については変更無く、 ^{99}Tc の生成量を 28kg/cycle から 44kg/cycle と約 1.6 倍に修正した。本章では修正後の値で成果をまとめた。

7.1 LLFP 核変換用減速材の選定

FS では「LLFP 核変換要素の開発」の一環として、減速材要素の設計評価に必要な減速材候補材料物質の物性値取得(炉外試験)を実施していく予定である。これを実施する上で、優先的に検討対象とする減速材物質を選定する必要があるため、過去の物性検討例の調査を実施するとともに、LLFP 核変換を効率化する減速材の核的性質等の観点から検討を行った。

7.1.1 減速材候補材料の物性検討状況調査

(1) 化合物系のグルーピング

CAPRA セミナー、PHYSOR96、Global'99 等の資料を調査したところ、減速材の候補材料は下記の3群に分類することができた。

第1群＝金属水素化物： ZrH_x 、 CaH_2 、 YH_x 、 $\text{ZrV}_2\text{H}_{4.8}$ 、 $\text{PrH}_{2.8}$ 、 $\text{LaH}_{2.76}$ 、 TiH_2 、 SrH_2

第2群＝制御棒双子材料： $^{11}\text{B}_4\text{C}$ (制御棒とは逆に ^{11}B を濃縮)

第3群＝新規物質： BeO 、 Al_2O_3 、 SiC

(2) 物性値の取得/整備状況：第1群＝金属水素化物(表 7-1-1 参照)

ZrH_x の物性値は、KNK-II で豊富な照射実績があり、取得/整備状況は他の水素化物に比べて豊富である。

PCT 特性(圧力-組成-温度の関係:Pressure-Composition-Temperature)は、 ZrH_x 、 CaH_2 、 YH_x 、 TiH_2 の 4 化合物が比較的良好に整備されている。しかし、減速材要素の熱設計に必須の熱伝導度については、 ZrH_x を除くと非常に乏しい。特記すべきことに、CEA は CaH_2 利用に積極的だが、現時点までのサーベイでは、熱伝導度の報告例が見当たらない。

1989 年には、高性能遮蔽材としての金属水素化物について PNC(現 JNC)で調査が実施されている[4]。この調査では、高温においても低い水素解離圧を有する金属、及び中性子吸収能力の大きい金属の中から Ti, Zr, Sr, Ba, Ta, Eu, Ca, Hf, Ta, Gd, La, Y の 12 の候補材料が選択され検討が行われた。その結果、Eu は原料費が高すぎ、Ca, Sr, Ba, Ce, La は融点が低い、Ta は水素吸蔵量が劣るため、遮蔽材として、Zr, Gd, Hf, Y, Ti が有望と評価された。ここで、Gd, Hf は Zr に比して 20 倍以上大きな中性子捕獲断面積を有するため、LLFP 核変換目的の減速材としては不適である。この調査より、融点、水素吸蔵性能、核的性質、コスト等の観点から Zr, Y, Ti は有望と考えられる。

なお、この三候補は上記(1)での調査対象に含まれている。

(3) 物性値の取得/整備状況:第2群=制御棒双子材料

B_4C の物性値は極めて詳しく整備されている。しかし、 ^{129}I 核変換のための減速材としての効果は水素化物に劣る。 ^{99}Tc については共鳴断面積が大きく、中性子減速によって熱中性子の割合を大きくすることの効果が ^{129}I ほどに大きくないため、H より質量数の大きい B も有効な減速材物質になる可能性がある。

(4) 物性値の取得/整備状況:第3群=新規物質

3種類の物性は一般によく知られている。しかし、 ^{129}I 核変換のための減速材としての効果は水素化物に劣る。第2群の B_4C と同様の理由により、 BeO 等は共鳴吸収の大きい Tc には有望な減速材となる可能性がある。

7.1.2 減速材化合物の核的検討

LLFP の核変換には概して減速材の利用が有効であり、 ^{129}I の核変換を中性子減速により効率化するためには、第2群の B や第3群の Be といった物質より、水素化物を用いることが有効である。よって以降では種々の水素化物について検討を深めた。

7.1.1 でリストアップされた減速水素化物は、Pr, Ti, La, Zr&V, Sr, Y, Ca, Zr の順で中性子寄生吸収が小さくなる。但しその差は核変換特性を左右するほどに大きくはなく、減速材選定の大きな決定因子になり得ない。また減速能に関してはいずれの水素化物も大差なく、 $ZrV_2H_{4.8}$ 、 SrH_2 の変換量がやや少ないものの、大きな差はみられない[6]。

従って、水素化物形態は核変換効率の観点からではなく、物性特性を主眼としながら、放射化生成物の有無に配慮して選択することが好ましいと考えられる。

放射化生成物に関して、最も知見の豊富な ZrH_x は、LLFP として知られる ^{93}Zr (半減期 150 万年) を生成するが、その生成量は ^{129}I 核変換量の 1/50 程度であり、P&T による LLFP 低減目標 (reduction gain) の設定次第では問題の無いレベルとなり得る。従って、 ZrH_x は有力な減速材候補と考えられる。

水素化物の内、 CaH_2 には安定同位体 ^{40}Ca が 97% の比率で存在し、これは中性子捕獲反応により半減期 10 万年の ^{41}Ca を生成する ($Ca-40(n, \gamma)Ca-41$)。予備評価によると ^{41}Ca の生成量は、 ^{129}I 変換量の 1/10 にもなるため、LLFP 核変換により LLFP 低減利得 1/10 以下を目指す場合には、 CaH_2 は不適と判断される。

その他の水素化物に関しては、長寿命放射化物の生成は Zr より相対的に少ない程度、または全く無いため、放射化物の観点からは問題ないと考えられる。

7.1.3 減速材物質の選定

LLFP 核変換用減速材の選定フローを図 7-1-1 に示した。

物性的に最も知見の豊富な ZrH_x は、核的性能面を含め総合的に有望な物質と考えられるため、最初に取り組む検討対象として適切である。また ZrH_x は「水素化ジルコニウム遮蔽体の検討」からの評価ニーズもあり、効率的な研究実施が可能である。さらに、既存の公開文献データの再確認、精度向上による安全裕度の合理化の観点から、実際に ZrH_x の物性値取得をする重要度は高いと考えられる。但し ZrH_x は、僅かではあるが長半減期の ^{93}Zr を生成し、核変換実施による LLFP 低減利得に制限を与えることから、二次廃棄物の無い別の水素化物にも着目し、比較の対象として検討

することが好ましい。

ZrV₂H_{4.8} は、近年東北大のグループによって検討が進められ[6]、主として解離温度の高さ(1200℃)からその優位性が指摘されているが、下記の相不安定性と経済性の理由から除外するものとする。

- ・ 低温から高温(250℃から 600℃)において繰返しの温度変動を受けるため、単相分離(Zr と V の水素解離挙動には極端な差があり、照射による相不安定性の誘起が懸念される)による悪影響の可能性がある。
- ・ 長所として述べられている水素解離温度の高さに関して、裏付けデータが不十分である。
- ・ 原材料費の面から経済性に問題が出る可能性が高い。
- ・ ZrV₂ は金属間化合物であり、製造性が心配である。

PrH_{2.8}、LaH_{2.76}、TiH₂、SrH₂ の内、La、Sr は融点が低いこと、PrH_{2.8}、TiH₂ は候補物質の中で相対的に中性子吸収が大きいこと及びこれまでの知見が少ないこと、また TiH₂ は解離温度も低いことから、対象外とする。

YH_x は、高価故に原材料費の面から経済性に問題が出る可能性があるが、2元系金属水素化物のなかで ZrH_x を上回る化学的な安定性(2元系では最も優秀と言ってもよいレベル)がある。同時に、放射化で二次廃棄物を生じる可能性が無いため、ZrH_x の比較対象として平行検討することが望ましい。なお、核変換用減速材はリサイクル使用することも考えられ、その技術的可能性を追求することによりコスト面の不利性をどの程度低減できるかの評価対象として YH_x を選択することは適切である。

CaH₂ は二次廃棄物をより生成しやすいこと、及び化学的安定性が低い(ペレットを一晩曝すと粉化)様であり、物性値取得の難易度が高いと推定される。但し、比較的知見が豊富であり、CEA が CaH₂ 利用に積極的であるため、第三番目の対象として位置づけ、動向調査を継続する。

7.2 LLFP 化合物の選定

LLFP 集合体やそれを装荷した炉心の工学的検討を行うため、ターゲットとして装荷する I 及び Tc の化合物形態を、論文等を参考にしながら現在の知見に基づき暫定的に設定した。

7.2.1 ヨウ素化合物の調査と選定

FS のフェーズ I では、NaI、CeI₃、NiI₂、MgI₂、CuI、AgI、CsI の候補材について、核変換特性等を評価した。これら化合物の融点は NiI₂(1070K) > CeI₃(1033K) > NaI(933K) > MgI₂(907K) > CuI(868K) の順に高い。これらの内、¹²⁹I の核変換率は、大きな差ではないものの NaI が最大値をとった。AgI は中性子吸収による核変換率低下と二次廃棄物の観点から不相当と判断される。

NRG は、Petten の HFR(High Flux Reactor)において NaI、CeI₃、PbI₂ の照射試験が実施し、1997 年の時点で NaI を有望候補とする報告を行っている [7]。

その後 NRG は、東電と連名の Global2001 論文[8]において、化学的安定性、核特性及び密度の観点より、5種類の金属ヨウ化物 MgI₂、CaI₂、CuI、NiI₂、NaI が候補材とし、更に、被覆材との共存性試験の結果、NiI₂を除く4化合物の照射試験を実施し、照射後試験の結果を報告している。

その照射試験では、粉末状の化合物からペレット状に加工された状態で約 271EFPD 照射され、I

(^{127}I)の核変換率はいずれの化合物でも約7%であった。いずれの照射用カプセル(AISI 316L steel)においてもカプセルとヨウ素化合物ペレットとの間のギャップ(直径ギャップ約0.3mm:カプセルの内径5.33mm、ペレットの直径約5.03mm)はペレットのスエリングによって照射取出し時には閉じていた。直径のスエリング量は約6%であった。軸方向のスエリングも併せた体積変化は化合物によって異なり14%~26.5%であった。照射によるペレットの半径方向の密度分布変化も認められている(CuI、 MgI_2 :顕著、NaI:小さい)。CuIペレットを対象に、ペレットとカプセル間のギャップ量と、ギャップのガスの組成(He+Xe)をパラメータとして、ペレットの径方向温度分布も評価された。表7-2-1に各化合物の特性と照射試験結果の概要を示す。被覆材と化合物の化学的相互作用の観察結果に基づき、これらの化合物中ではCuIが相対的に共存性低とされている。

FP化合物を選ぶ上で着目すべき項目として、化学的安定性(照射環境温度でガス化せず被覆管との共存性が良いこと)、核的特性、製造性(製造時に気体を発生せず沈殿として回収可能なこと)、リサイクルのしやすさ等が挙げられる。

熱的安定性については、冷却材の炉心出口温度が550℃程度であることを勘案し、融点が600℃以上であることが望ましいと考えられる。また、ヨウ素化合物を内封するLLFPターゲットピンの形状維持(熱的安定性、構造材との共存性)、ヨウ素の核変換効率、長半減期核種の生成、製造性に着目して候補化合物を調査検討し、下記の整理を行った。

- 融点の観点から優れている化合物: YI_3 、 NiI_2 、 CeI_3 、 CaI_2
- 留意すべき化学的性質
 - ◇ 日光分解: KI、
 - ◇ 潮解性: CaI_2 、 FeI_2 、NaI
 - ◇ 吸湿性: CeI_3 、 NiI_2
 - ◇ 空気中で分解: MgI_2
- 構造材との共存性
 - ◇ HFR照射試験結果を引用→良好: CeI_3 、NaI
 - ◇ 仏国オーステナイト鋼被覆管(15-15Ti)との腐食: PbI_2Ce はNiと共晶反応
- 核変換効率(マクロ断面積を用いた概略評価)
 - ◇ NiI_2 、 FeI_2 、 CeI_3 、 MgI_2 、 YI_3 が相対的に有利。

以上の検討結果に基づき NiI_2 、 CeI_3 がヨウ素の核変換の観点から有望と判断して大型FBRに装荷する核変換用LLFP集合体概念を設定している。ヨウ素化合物の形態は粉末とし、スミヤ密度を70%としている。また、ヨウ素化合物を充填する要素の仕様は炉心燃料集合体と同一とし、炉心領域に CeI_3 を装荷した場合の最大発熱密度は $15\text{W}/\text{cm}^3$ 、ヨウ素充填要素の最大線出力は $7\text{W}/\text{cm}$ 程度と推定している。 CeI_3 の熱伝導度等の物性値が無いため、温度評価は実施していない。また、 NiI_2 を径方向ブランケット領域に装荷する場合を対象にCDF評価を実施し、制限値を燃料集合体と同様の0.5とする場合のLLFPターゲットピン寿命は約100ヶ月(5サイクル、8.3年)と評価している。

以上調査の結果、ヨウ素化合物については、各々の化合物の物性が十分に理解されている状況ではなく現時点の知見で最適な化合物を選定することは困難であることが分かった。一方、LLFP集合体や炉心の工学的設計検討を行うにあたっては、なんらかの化合物を想定する必要があるため、

ここでは NRG 論文に熱伝導度の値が示されている CuI をヨウ素化合物として暫定し以下の検討を行った。

なお、CuI を用いた場合のヨウ素の核変換性能はほぼ NaI と同等であり、二次生成物による放射能の影響も小さいが、CuI の融点は 605°C と他の化合物に比べて低く熱的な制限が厳しい。また、CuI と被覆材の共存性が相対的に低、HFR の照射試験ではスエリングが大との課題が報告されていることに留意を要する。

7.2.2 Tc 化合物候補材料の選定

FS のフェーズ I 検討では、 TcO_2 、Tc(金属)を候補材としていた[1]。同一減速材割合では Tc 装荷量が TcO_2 の方が Tc(金属)に比べ少ないため、 ^{99}Tc 核変換率は TcO_2 の方が2倍程大きくなっている。逆に核変換量は Tc(金属)の方が大きい。また Tc(金属)は Petten の HFR での照射試験からも物性上の問題は生じない結果が示されている。以上より、本検討においては Tc(金属)を選定した。

7.3 LLFP 集合体構造設計の検討

LLFP 集合体の構造設計としては、LLFP 化合物として融点の低い CuI を使うこと等から健全性を確保することが重要である。図 7-3-1 に LLFP 集合体の健全性評価の概要を示す。以下では、この図に基づき、LLFP ピンと中性子減速材($ZrH_{1.6}$)ピンに対する健全性評価の概要を記す。また健全性を確保するための設計基準を表 7-3-1 に示した。

7.3.1 LLFP ピンの設計

LLFP ピンの健全性評価では、

- ・ LLFP 化合物(Tc:金属、I:CuI 化合物)の熔融防止
- ・ CDF が過大な値とならない

ことが条件である。LLFP 化合物の熔融防止の観点からは、ギャップコンダクタンス、熱伝導度、過出力係数、不確かさを考慮して流量を設定し LLFP 化合物の最高温度を評価した。この最高温度が化合物の融点より低いことが健全性確保の条件となる。なお、CuI のギャップコンダクタンスの評価では、ヨウ素の核変換で生成する Xe の熱伝導率が He と比較して小さいので、核変換末期におけるガス組成を用いて評価する必要がある。

CDF 評価に関しては、Tc は核変換によりガスを放出しないため評価する必要はない。一方、CuI ターゲットでは、Xe ガスの生成により LLFP ピンの内圧が上昇するため、被覆管温度、腐食データ、強度低下データに基づき CDF 評価を実施し健全性が確保されていることを確認する必要がある。

7.3.2 中性子減速材ピンの設計

中性子減速材ピンの健全性評価では、

- ・ $ZrH_{1.6}$ の δ 相の熱的安定性確保
- ・ $ZrH_{1.6}$ の δ 相の確保(被覆管からの水素透過による相変化防止)

ことが条件となる。

水素の解離により被覆管内圧が上昇するが、本研究の対象とする炉心の使用条件下における水素平衡解離圧力は小さく、被覆管応力への影響は無視し得るため CDF 評価は実施しないものとした。

熱的安定性に関しては、LLFP ピンと同様に最高温度により健全性を評価した。中性子減速材 ($ZrH_{1.6}$)ピンの温度制限値は、 $ZrH_{1.6}$ の熔融防止および水素解離・透過率抑制の観点から設定した。金属 Zr の融点は $1854^{\circ}C$ であるが、 δ 相は $900^{\circ}C$ 以下^[3]で安定なため最高温度制限を $900^{\circ}C$ とした。

水素解離・透過の概要中性子減速材ピンからの水素透過の主要プロセスは、 $ZrH_{1.6}$ の温度上昇による水素解離に伴う中性子減速材ピンの水素分圧上昇 ($ZrH_{1.6}$ の温度に依存)と、水素分圧上昇による被覆管からの水素透過 (被覆管の温度に依存)である。

1) 水素透過率の制限

$ZrH_{1.6}$ の水素解離・透過の観点からの健全性確保の条件は、 $ZrH_{1.6}$ と被覆管の温度で決定できる。図 7-3-2 に ZrH の 2 相図を示す[11]。ターゲットを炉内に装荷後、取り出す迄に想定される温度範囲内 (下限 $200^{\circ}C$) で相変化に伴う体積変化を防止するためには、炉内滞在サイクル中における水素の透過率を 4% 以下にする必要がある。

2) $ZrH_{1.6}$ と被覆管の温度制限

水素透過率が 4% 以下の条件を満たす $ZrH_{1.6}$ と被覆管温度の関係を求めるため、後述する LLFP 集合体仕様に基づく評価を行った。評価に用いた式を表 7-3-2 に示す。被覆管内の水素分圧は常に平衡解離圧と等しいと仮定し、表中の No.1 式を用いて計算した。ここで温度 T は $ZrH_{1.6}$ ピンの平均温度である。H/Zr 比 C は サイクル中一定とした。また、被覆管内の解離水素が被覆管を透過する速度は、左記の水素分圧、被覆管の温度のみで決まる水素透過係数及び被覆管の幾何形状(肉厚、内/外側表面積)を用いて計算した。

$ZrH_{1.6}$ の水素解離割合の温度依存性を図 7-3-3 に示す。 $ZrH_{1.6}$ の平均温度が $500^{\circ}C$ を超えると、水素解離割合が急激に大きくなるため、中性子減速材ピン内の水素濃度が上昇し被覆管からの水素透過が起こる。次に、被覆管平均温度を軸方向の最高被覆管温度部における平均温度として、ピン径 8.6mm と 5.5mm それぞれについての水素透過速度と被覆管平均温度の関係を調べた。 $ZrH_{1.6}$ 平均温度と被覆管平均温度の関係を、図 7-3-4 に整理した。ピン径 8.6mm の方が高い $ZrH_{1.6}$ 温度を許容できるのは、被覆管肉厚が厚いためである。

7.3.3 LLFP 集合体仕様の設定

前節の FP ピンや減速材ピンの温度制限等に関する検討を基に、LLFP 集合体の仕様を設定した(表 7-3-3)。LLFP 集合体は、製造性や燃料集合体との整合性を考慮し、ピンバンドル部以外は燃料集合体と同一とした。水素透過を抑制する観点からはフェライト系よりもオーステナイト系材が適しているため、減速材ピンには燃料ピンの ODS 鋼でなく、PNC1520 を用いた。ピンバンドル内のターゲットピンと減速材ピンの構成は、核変換率や核変換量、そして隣接する燃料集合体でのサーマルピークを回避する観点から適正な構成および体積比率となるよう設定した。

Tc ターゲットピンは、前節の設計基準に対して余裕があると考えられるため、炉心燃料と同一のピン径 8.6mm、スミア密度 80%、本数 271 本とした(図 7-3-5)。炉心内部への装荷を想定し隣接炉心燃料のサーマルピークを回避するため、集合体最外層に Tc ピン層(54 本)を設けた。その内側の領域については、変換量が最大となる様 ZrH ピン割合を 60%とし、集合体全体の ZrH ピン本数を 130 本、Tc ピンは最外層 54 本+内側 87 本の計 141 本構成とした。

一方、設計基準(溶融防止)に対して厳しい結果となることが予想される CuI ターゲット集合体については、径ブラ領域に装荷するものとし、CuI のスミア密度を 50%、ピン径を 5.5mm と細くしてピン本数を 631 本とした(図 7-3-6)。このピン本数は、ピン径を常陽において実績のある 5.5mm 程度以上とすることを条件として設定できる最大本数である。径ブラ領域装荷故に隣接燃料でのサーマルピークは問題とならないため、CuI ピン 252 本と減速材である ZrH を充填した ZrH ピン 379 本を集合体全体で混合した構成とした。なお、CuI ピンの設計成立範囲を拡張するために、初期封入 He ガスの圧力を 2MPa と高くして CuI 許容線出力を高めた。

7.3.4 LLFP 集合体仕様の熱的制限の検討

LLFP 集合体の仕様を基に、ターゲット及び減速材ピンの定格出力時における充填材の許容線出力について検討を行った。

ターゲット及び減速材ピンの充填材出力の不確かさは、中性子束分布の不確かさを炉心及び径方向ブランケット燃料集合体の出力分布誤差(8%及び 15%)とし、ガンマ発熱解析の不確かさとして 15%([「もんじゅ」設計)、炉心熱出力較正誤差として 2%(実証炉最適化研究)を考慮した以下の値とした。なお、中性子束分布とガンマ発熱の不確かさは両者独立と判断し統計処理とした。

ターゲット材の熱的評価を実施する際に考慮する過出力係数として、大型 Na 冷却 MOX 燃料炉の 1.19 を用いた。その一方で、過出力係数導入の根拠となる過渡事象のプラント寿命中の発生頻度は低いと考えられるため、ターゲット集合体の炉内装荷時間に関する積分量である $ZrH_{1.6}$ の水素透過量評価の際には、過出力係数を考慮しない。

前節の FP ピンや減速材ピンの温度制限等に関する検討を基に、LLFP 集合体の仕様を設定した(表 7-3-3)。LLFP 集合体は、製造性や燃料集合体との整合性を考慮し、ピンバンドル部以外は燃料集合体と同一とした。ピンバンドル内のターゲットピンと減速材ピンの構成は、核変換率や核変換量、そして隣接する燃料集合体でのサーマルピークを回避する観点から適正な構成および体積比率となるよう設定した。

充填材と被覆管のギャップコンダクタンスは以下の式を用いて求めた。

$$hg = Kgm/Rg$$

ここで、

hg : ギャップコンダクタンス

Kgm : ギャップ部ガスの熱伝導度

Rg : 充填材と被覆管のギャップ幅(半径)

なお、ギャップコンダクタンス計算に用いるギャップ幅は、Tc 及び ZrH ピンについては製造時の値とし、CuI ピンについては、MOX 及び UO_2 原料粉末の平均粒度である $3\mu m$ をギャップ幅とした。

このような条件の下で計算した Tc、CuI 及び ZrH ピンの定格出力時における最大発熱部の被覆管内面温度と充填材許容線出力の関係を図 7-3-7、図 7-3-8 及び図 7-3-9 に示す。ここで、ターゲット及び減速材ピンの定格出力時における最大発熱部の被覆管温度が原子炉入口温度未満となる場合には設計が成立しない。最大発熱部の被覆管内面温度を原子炉入口温度以上とすることを目安とする際、定格出力時における各々のピンの充填材許容線出力は以下のとおりとなる。

Tc ピン:	< 約 400W/cm
CuI ピン(初期封入 He ガス圧=2MPa):	< 約 6 W/cm
CuI ピン(初期封入 He ガス圧=0.5MPa):	< 約 4 W/cm
CuI ピン(初期封入 He ガス圧=0.1MPa):	< 約 3 W/cm
ZrH ピン(φ 8.6mm、Tc ターゲット用):	< 約 20 W/cm
ZrH ピン(φ 5.5mm、Tc ターゲット用):	< 約 8 W/cm

ここで ZrH ピンについては、ロシアの BOR-60 の制御棒集合体において、Na ボンド型要素として使用された実績がある[12]。また、水素解離によるわずかの上昇を除いて被覆管の内圧は増加しないので、ガスプレナム長を大幅に短縮出来る可能性がある。

そこで、設計成立範囲を拡張するためボンド材を Na とし、あわせて上部のガスプレナム長の短縮により水素透過面積減少をはかった場合の、定格出力時における最大発熱部の被覆管内面温度と充填材許容線出力の関係を図 7-3-10 に示す。この図より、Tc ターゲット集合体の Na ボンド ZrH ピンの定格出力時における充填材の許容最大線出力は下記のように高い値となる結果を得た。

ZrH ピン(φ 8.6mm、Na ボンド):	< 約 360 W/cm
ZrH ピン(φ 5.5mm、Na ボンド):	< 約 200W/cm

すなわち、ZrH ピンに He ボンド材を用いる場合、ZrH ピンの許容最大線出力は融点の低い CuI ピンと同等であるが、Na ボンドとすれば大幅に熱的制限は緩和できる可能性がある。

7.3.5 LLFP 集合体のガンマ線発熱量の解析

高速炉における LLFP 核変換においては、LLFP と減速材を混合して対象核種の非常に強い共鳴吸収反応を利用しているため、その反応の際生成されるガンマ線やベータ線による発熱が懸念された。そこで、これらの放射線によるターゲット集合体の発熱量の評価を実施した。

核変換対象核種を収納するターゲット集合体の装荷位置に応じて下記の3炉心(単純化炉心)を評価の対象とした。これらの3炉心の特徴を表 7-3-4 に示す。

- LLFP 炉心領域装荷炉心(ケース1)
- LLFP 炉心中心及び RB 位置装荷炉心 A(ケース2)
- LLFP 炉心中心及び RB 位置装荷炉心 B(ケース3)

発熱量評価の対象とした放射線はガンマ線と崩壊ベータ線である。そのうちガンマ線についてはその発生メカニズムによって以下の成分に分けて発熱量を評価した。

- ターゲット集合体外捕獲ガンマ線:
核分裂の即発ガンマ線等の中性子の捕獲によって生成されたガンマ線で、ターゲット集合体外で発生し、ターゲット集合体に流入した成分。
- ターゲット集合体内捕獲ガンマ線:
ターゲット集合体を構成する物質の中性子の捕獲によって生成されたガンマ線で、ターゲット集合体内で吸収された成分。
- 崩壊ガンマ線:
中性子の捕獲反応(核分裂、誘導放射化 等)によって生成された核種(FP、放射化生成物等)からの崩壊ガンマ線(ターゲット集合体内/外については分離していない)。

上記にケースについて 2 次元 Sn 法輸送計算コード DOT3.5 を用いて原子炉本体体系2次元計算を実施した。輸送計算パラメータに関し、非等方散乱近似については断面積ライブラリーの上限である P₅ 近似を用いた。解析結果を表 7-3-5 にまとめる。

ケース1のターゲットピンの最大線出力は、Tc ピン;33~50(W/cm) ; CuI ピン;16~17(W/cm)となった。ここで、主要なガンマ線は、炉心中心ターゲット集合体ではターゲット集合体内捕獲ガンマ線であるが、炉心の外側に移動するにつれてターゲット集合体外捕獲ガンマ線の寄与が高くなる。また、崩壊熱のうちの崩壊ベータ線の寄与が比較的高く、1/7~1/3 程度を占める。ターゲット集合体を構成する元素の放射化反応で生成される主要な核種は FP 元素の中性子捕獲で生成される半減期の短い ¹⁰⁰Tc (15.8s), ¹²⁸I (24.99m), ¹³⁰I (12.3h)である。これらの存在により放射能濃度が高くなり、また崩壊時のベータ線のエネルギーが比較的高い(¹⁰⁰Tc (max 3.38MeV), ¹²⁸I (max 2.12MeV), ¹³⁰I (max 1.7MeV))ため崩壊熱が高くなることが考えられる。

径ブラ領域に CuI ピンを装荷するケース2では、CuI ピンの発熱は 1.7(W/cm)と炉内装荷 Tc ピンの約~1/25 程度となった。

炉内に CuI ピン、そして Tc ピンを炉内および径ブラ領域を装荷するケース3では、CuI ピンで 21(W/cm)、Tc ピンで 48、14 (W/cm)となり、CuI の炉内装荷については許容線出力を越えるため成立困難な見通しを得た。

7.4 LLFP 集合体を装荷した炉心構成設定と核熱特性の解析

FS フェーズIIの大型Na冷却プラントのレファレンス炉心である、電気出力 1500MWe のアドバンス・ループ型炉の炉心[13]を基本として、炉心構成要素のみの変更によって LLFP 核変換炉心へ移行可能な炉心構成を検討した。

1. プラント仕様

- 原子炉出力(電気/熱):1500MWe/3570MWt
- 原子炉出/入口温度:550/395℃
- 1次冷却系流量:1.83×10⁴kg/s
- バンドル部圧損 ≤0.2MPa
- 遮蔽体外接円径:641cm
- 制御棒本数(主系/後備系):40/15

2. 炉心燃料設計制限

- 最大線出力 430W/cm
- 被覆管最高温度 700°C
- CDF \leq 0.5
- ボイド反応度 \leq 約6%
- 増殖比 $>$ 1.0

3. LLFP 集合体ピッチ：炉心燃料集合体と同じ。

4. 制御棒駆動機構設置位置：「アドバンスド・ループ型炉」炉心と同じ(総計 55 体)。

5. LLFP 集合体の装荷可能位置：レファレンス炉心の炉心燃料集合体、或いは径方向ブランケット燃料集合体位置(各集合体と LLFP ターゲット集合体を置換)。但し LLFP 集合体には低流量での流量配分が可能であることを前提とする。

上記の条件に従い、LLFP 集合体の種類、装荷体数、装荷位置等に応じ炉心構成を見直し、自己生成成分の LLFP(I と Tc)を核変換する炉心(自己生成成分核変換炉心)を三通り、増殖比 1 以上で可能な限り大量の LLFP を核変換する炉心(核変換量最大化炉心)を二通り、計五通りの LLFP 装荷炉心を設定した。それら炉心の概要を表 7-4-1 に、炉心配置図を図 7-4-1~7-4-5 に示した。

7.4.1 自己生成成分核変換炉心-1 の特性評価

五通りの LLFP 装荷炉心の内、自己生成成分核変換炉心-1 については3次元解析を含む核熱解析を実施し、炉心燃料集合体及び LLFP 集合体の健全性評価を行い工学的な成立性を検討した。

炉心領域に Tc 集合体 8 体、径方向ブランケット領域に CuI 集合体 58 体を装荷した本炉心-1 は、燃焼反応度が約 3.5% $\Delta k/k'$ (レファレンス炉心:約 2.8% $\Delta k/k'$)、増殖比は約 1.06(レファレンス炉心:1.17)と燃焼特性がやや悪化するものの、最大線出力は内側炉心が 424W/cm、外側炉心が 411W/cm であり、制限条件の 430W/cm 以下を満足している(表 7-4-11)。

炉心部ドップラー係数は、炉心領域(燃料、構造材及び冷却材)温度を定格時より 300°C 上昇させた場合の反応度係数を求め、この値に対し非均質効果補正として 5%(暫定;実証炉最適化設計研究)及び炉定数効果として 13.7%を増加させ、 $-6.8 \times 10^{-3} [Tdk/dT]$ の評価値を得た。ボイド反応度は、炉心部をボイド化(ラッパ管内)させた場合の反応度変化を求め、この値に対し非均質効果補正として 10%(暫定;実証炉最適化設計研究)を減じて、6.0%の値を得た。これは制限の 6%以下を満足している。

核変換特性は ^{99}Tc が 8.5%/cycle(1.1 基分)、 ^{129}I が 4.5%/cycle(1.0 基分)であり、自己生成成分の ^{99}Tc と ^{129}I の核変換が可能である。

表 7-4-2 に自己生成成分核変換炉心-1 の制御反応度収支を示す。主炉停止系は 0.4% $\Delta k/kk'$ の反応度停止余裕がある。また、後備停止系の反応度停止余裕は 1 ロッドスタックの場合が 0.2% $\Delta k/kk'$ 、全数挿入の場合が 0.3% $\Delta k/kk'$ であり、制御反応度収支は成立する。

Tc 集合体(炉心領域)と CuI 集合体(RB 位置)の炉内 4 サイクル照射後の最大高速中性子照射量 ($> 0.1\text{MeV}$) を評価した。Tc 集合体の Tc ピンは $2.3 \times 10^{23}(\text{n/cm}^2)$ 、ZrH ピンは $1.8 \times 10^{23}(\text{n/cm}^2)$ 、CuI 集合体の CuI ピンは $6.4 \times 10^{22}(\text{n/cm}^2)$ 、ZrH ピンは $4.7 \times 10^{22}(\text{n/cm}^2)$ となり、

特に径方向ブランケット領域に装荷した CuI 集合体は照射制限に対し大きな余裕があることが分かった。

7.4.2 LLFP 集合体のガンマ線発熱

前記 7.3.5 節において DOT コード(2次元 RZ 単純化炉心)により解析した LLFP 集合体のガンマ線発熱量に基づき、自己生成分核変換炉心-1 の LLFP 集合体のガンマ線発熱量を 3次元 Hex-Z 拡散計算結果を用いて評価した。また、他の炉心についても、上記結果と DOT コードによる解析結果を参照して概略評価した。

自己生成分核変換炉心-1 の LLFP 集合体のガンマ線発熱量の評価結果をまとめて表 7-4-3 に示す。本表の値は 3次元 Hex-Z 拡散計算結果を用いたピーク発熱量位置の LLFP 集合体(以下、ピーク発熱 LLFP 集合体と略記)の評価値(燃焼初期と末期での最大値)であり、対象の Tc 集合体と CuI 集合体位置での全中性子束は、各々 $2.02 \times 10^{15}(1/\text{cm}^2\text{s})$ 、 $1.17 \times 10^{15}(1/\text{cm}^2\text{s})$ である。なお、LLFP 集合体間の全中性子束の周方向ピーキング係数(燃焼初期)は、Tc 集合体で 1.07、CuI 集合体で 1.62 であり、Tc 集合体装荷による炉心内中性子束歪みが大きいため径ブラ位置の CuI 集合体でピーキング係数が大きくなっている。今後、ターゲット配置の最適化により、CuI 集合体の出力ピーキング改善の余地があると考えられる。

各炉心における LLFP 集合体のガンマ線発熱量の評価結果を表 7-4-4 に示す。ここでの概略見積りから、熱的に厳しいと予想された CuI ピンも径ブラ領域装荷であれば最大線出力は許容線出力以下となり、成立する可能性があることが示唆された。今後詳細評価により工学的成立性を確認する必要がある。

7.4.3 熱流動特性解析

自己生成分核変換炉心-1について、LLFP 集合体への流量配分検討を行うとともに、炉心の流量領域区分及び炉心流量配分を設定し、熱流力特性を評価した。

表 7-4-5 に Tc 及び CuI ターゲット集合体のターゲット及び減速材ピンの定格出力時における充填材最大線出力と許容被覆管内面温度を示し、図 7-4-6 及び図 7-4-7 には、Tc 及び CuI ターゲット集合体のターゲットピンと減速材ピンの充填材最大線出力と許容被覆管内面温度の関係を示す。

ここで、Tc ターゲット集合体の ZrH ピンの最大線出力 $25.4\text{W}/\text{cm}$ は、前記 7.3.4 節に示した線出力制限値 $20\text{W}/\text{cm}$ (ボンド材 He 時)を上回っている。そこで、Tc 及び CuI ターゲット集合体のいずれの ZrH ピンもボンド材を Na とし、併せて 10cm に短縮したガスプレナムを想定している。

表 7-4-5 に示すとおり、Tc ターゲット集合体の最大発熱部の被覆管内面温度制限は、Tc ピンが 2056°C 、ZrH ピンが 451°C であることから、厳しい側にある ZrH ピンの被覆管内面温度制限 (451°C 以下)を Tc ターゲット集合体に対する制限とした。また、CuI ターゲット集合体の CuI ピンの被覆管内面温度制限は、最大発熱部が 427°C 、最高温度部が 492°C であり、ZrH ピンの被覆管内面温度制限は 429°C である。このことから、厳しい側にある ZrH ピンの被覆管内面温度制限 (429°C 以下)を CuI ターゲット集合体に対する制限とした。

表 7-4-6 に、Tc 及び CuI ターゲット集合体の必要最少流量と熱流力特性を示し、表 7-4-7 に Tc 及び CuI ターゲット集合体への流量配分を示す。Tc 及び CuI ターゲット集合体の必要最少流

量は 33.9kg/s 及び 16.0kg/s である。また、Tc 及び CuI ターゲット集合体への流量配分は 1199kg/s であり、1次系流量の 6.6%に相当する。

続いて、3次元拡散・燃焼計算で求めた出力分布に基づき、炉心の流量領域区分の設定、各流量領域の最大出力燃料ピンを含む集合体を対象とした温度評価を行い、被覆管最高温度制限(700°C以下)を満足する炉心流量配分を設定した。

表 7-4-8 に、燃料ピン出力区分毎の最大燃料ピン出力を基に求めた集合体必要最少流量を示す。燃料集合体の必要流量合計は 16901kg/s であり、燃料集合体に配分可能な流量 16360kg/s を約 540kg/s 超過している。従って、熱設計成立のためには、LLFP 集合体の ZrH ピンの被覆管温度制限の合理化、CuI 集合体の装荷位置の見直しによる集合体発熱量ピーキングの低減、集合体の発熱量に応じた流量配分設定等の対策が必要と考えられる。このうち、ZrH ピンの被覆管温度制限については、被覆管の軸方向温度分布を反映した解析による水素透過量の減少や水素の減損を考慮した平衡解離圧評価による水素分圧の低下、及び ZrH ピンの被覆管肉厚増加や太径化による水素内包量に対する被覆管表面積の減少等により合理化の余地がある。

7.4.4 LLFP ターゲットピンの CDF 評価

LLFP 集合体を構成するターゲットピンのうち Tc ピンは核変換に伴いガスを生成することがなく照射により内圧が上昇することはない。また、減速材ピン(ZrH)においては、水素の解離により圧力が上昇するが、本炉心の使用条件下における水素平衡解離圧力は 0.005MPa 程度以下であり、被覆管応力への影響は微少である。このことから、核変換に伴いガスが生成され内圧が上昇する CuI ピンを対象として CDF の評価を行った。

表 7-4-9 に、CuI ターゲット集合体を構成する CuI ピンの CDF 評価条件を評価結果と併せて示す。ここで、被覆管の寸法は、実証炉で設定された寸法公差を参考として、被覆管応力が厳しい側の結果となるように設定したものである。

CuI ピンの CDF は、0.00 であり、制限条件(0.5 以下)を満足している。なお、寿命末期における被覆管応力は約 130MPa となるが、設計応力強さ(約 290MPa)に対して十分な余裕がある。

7.4.5 集合体間出口温度差の評価

燃料集合体及び LLFP 集合体の出力分布と炉心流量配分結果を基に、LLFP 集合体と隣接燃料集合体の冷却材出口温度差を評価した。ここで、評価対象とした CuI ターゲット集合体は、隣接燃料集合体との P/F の差の大きな集合体である。

表 7-4-10 に LLFP 集合体と隣接燃料集合体の冷却材出口温度差(ノミナル値)を示す。LLFP 集合体と隣接燃料集合体の冷却材出口温度差は最大 176°C であり、実証炉設計における制限目安(150°C以下)を 26°C 超過している。

このことから、レファレンス炉心における集合体間出口温度差制限を明確にするとともに、LLFP 集合体出口温度高温化方策の検討が必要と考えられる。

7.4.6 LLFP 装荷炉心の核熱特性のまとめ

3つの自己生成成分核変換炉心及び2つの核変換量最大化炉心の主要核特性、核変換特性をまとめて、表 7-4-11 に示す。

自己生成成分核変換炉心では、LLFP 集合体の装荷位置(炉心領域、径ブランケット領域)に關らず、増殖比は 1.1 弱と同程度である。炉心領域に LLFP 集合体を装荷する場合には、炉心高さを高くすることにより、設計条件(最大線出力、ボイド反応度等)を満足する見通しである。但し、炉内の出力歪みが大きくなるので、流量領域を増加させる等の設計対応が必要である。1 基の高速炉で何基分の LLFP を変換できるかを示すサポートファクターについては、 ^{129}I に関してはサポートファクター 1.0 を得ているものの、生成量の見直しを行った ^{99}Tc は自己生成成分変換炉心で 0.6 程度なった。炉心領域装荷時のサイクル当り核変換率は、径ブランケット領域装荷に比べ、 ^{99}Tc で約 4 倍、 ^{129}I で約 2 倍大きく、LLFP 集合体の装荷体数も少なくなるため、廃棄物量低減の観点で優れている。

但し、ブランケット領域装荷 LLFP 集合体の場合には、全中性子束が低いことに加えて LLFP 集合体の中性子減速材割合が大きいので、被覆材料等への高速中性子照射量制限が緩和される。よって、ブランケット領域装荷 LLFP 集合体の方が滞在時間を延長でき、取出し時の核変換率を同程度、或はより高くできる可能性がある。

一方、核変換量最大化炉心では、自己生成成分の ^{99}Tc 及び ^{129}I の核変換に加えて、同出力規模の原子炉約 0.2 基分から生成する ^{129}I または ^{99}Tc の核変換ができる程度、すなわちサポートファクターは最大で 1.2 という結果を得た。

自己生成成分核変換炉心-1 について、3次元解析で求めた出力分布に基づく熱流力特性を評価した結果、炉心燃料と LLFP 集合体の健全性を確保するには、ZrH ピンの被覆管温度制限の合理化、CuI 集合体の装荷位置見直しによる集合体出力ピーキング低減等の設計対策が必要であることが分かった。

自己生成成分核変換炉心-2 及び核変換量最大化炉心-1、-2 について、2次元 RZ 計算で求めた出力分布に基づく概略評価を実施した。自己生成成分核変換炉心-1 と同じ流量区分に基づき、Tc 集合体、CuI 集合体毎の流量を同じとする流量配分設定によると、自己生成成分核変換炉心-1 よりも更に1次系流量の不足分が最大で 4%程度増加する。熱的に成立する炉心を設定するためには、LLFP 集合体の必要流量の合理化や、流配区分の細分化、及び LLFP 集合体装荷位置の最適化等の設計対策による必要流量の大幅な削減が必要である。

7.4.7 LLFP核変換技術の工学的設計検討のまとめ

I と Tc の化学形態について既往の知見を整理し、核変換特性、化学的安定性、製造性、二次廃棄物生成の有無、物性データの有無等の観点から、I の化学形態として CuI を、Tc については金属 Tc を選定した。また、LLFP の核変換効率を向上するために使用する中性子減速材には $\text{ZrH}_{1.6}$ を選定した。

LLFP 集合体設定の考え方を整理するとともに、主として核変換効率を高める観点から核特性サーベイ解析を実施した。それらの結果に基づき、炉心燃料領域に装荷する Tc 核変換用の LLFP 集合体として、隣接炉心燃料のサーマルピークを回避するために外周に Tc 層を設ける集合体仕様を設定した。I 核変換用の LLFP 集合体としては、既往研究の知見から CuI の溶融防止が厳しいと予想されるため、LLFP 集合体を構成する CuI と ZrH_{1.6} ピンを「常陽」において実績のある 5.5mm 迄細径化し、CuI のスミア密度を 50%TD とする集合体仕様を設定した。

本検討では、(a)自己生成成分の Tc、I 核変換と増殖比 1.1 以上の高い増殖性を旨とした炉心(自己生成成分核変換炉心)と、(b)増殖比は 1.0 程度とし、核変換量の最大化を旨とした炉心(核

変換量最大化炉心)を設定した。これらの炉心での ^{129}I と ^{99}Tc の核変換率は、炉心装荷で 8～10%/cycle、径ブランケット位置装荷で 2～5%/cycle となった。

詳細検討の対象炉心として、炉心領域に Tc 集合体を 8 体、径ブランケット位置に CuI 集合体を 58 体装荷する炉心(自己生成核変換炉心-1)について、3次元核特性解析で得た出力分布に基づく炉心の熱特性解析を実施した。なお、LLFP ピンの最大線出力等は中性子・ガンマ線発熱 2 次元輸送計算コード DOT3.5 で評価したガンマ線発熱分布から計算した。

CuI と Tc の熔融回避や $\text{ZrH}_{1.6}$ の水素解離・被覆管透過に着目して LLFP 集合体の健全性を評価したところ、水素透過量制限からくる減速材ピン温度制限が最も厳しいことが分かった。LLFP 集合体を十分に冷却するには、1 次系冷却材流量の 6-7%を LLFP 集合体へ配分する必要があり、これを実現するためには炉心流量区分の細分化や炉心出力分布のさらなる平坦化等の炉心設計対応が必要である。

自己生成核変換炉心-1 以外の炉心概念については、2次元RZ体系を用いる核特性解析に基づき、主要核特性についての設計制限を満足することを確認するとともに、熱流力特性の概略評価を行った。

以上の検討に基づき、LLFP 集合体装荷炉心の設計上の今後の R&D 課題をまとめた。

- (1) ZrH ピンの水素透過量低減方策 (YH_x の使用、ピン内面をコーティングするための水素バリアー材等)の開発
- (2) LLFP ターゲット材の内面腐食データ、照射データ、物性データ(不確かさ)等の取得
- (3) 工学的設計の観点からの、ヨウ素化合物(高融点化合物)の再選定
- (4) ヨウ素化合物の熔融を許容した設計の可否
- (5) 非均質かつ減速材を有する LLFP 集合体の炉心解析手法の開発
- (6) LLFP 集合体のガンマ線発熱量の精度評価
 - ◇ LLFP の捕獲ガンマ線生成断面積の整備、中性子減速領域での高精度計算法
- (7) 製造性、健全性、再処理性、変換特性等に配慮した、総合的観点からの LLFP 集合体設計の検討

また、本検討での炉心設計上の課題として以下が挙げられ、今後検討を深める必要がある。

- (1) ZrH ピンの被覆管温度制限の合理化
 - ◇ 被覆管の軸方向温度分布を反映した、水素透過量の評価
 - ◇ 水素の減損を考慮した平衡解離圧の評価
 - ◇ ZrH ピンの肉厚増加、直径増加
- (2) 多数ピン(631 本)集合体の製造性の確認
- (3) ターゲット配置最適化による出力ピーキング改善(炉心及びターゲット)
- (4) LLFP と ZrH 混在集合体でのサブチャンネル解析
- (5) CuI の熔融回避策(He 加圧ピン、細径ピン、中空ペレット)の検討
- (6) 炉心装荷 CuI 集合体の熱的成立性の検討(細径、低スミア密度)
- (7) ガンマ発熱解析の中性子減速領域における計算の不確かさの検討
- (8) 3次元拡散計算の多群化による解析精度向上

8. おわりに

FBR サイクル実用化戦略調査研究(FS)の一環として 1999 年度から 2001 年度に行ってきた「高速炉を用いた LLFP 核変換技術の検討」の成果をまとめた。1999～2000 年度のフェーズ I では、主として、核的観点からの予備的検討を行い、フェーズ II の 2001 年度には、LLFP 核変換を行う炉心の工学的設計検討に着手した。

FS では、当初 I, Tc, Cs, Sr の 4 元素を分離・核変換技術の対象 FP と位置づけ、この内 Sr は分離技術のみの適用を考えていたが、本検討を通じて発電炉での元素分離 Cs 中の ^{135}Cs 核変換も極めて困難と評価されたため、2001 年度の工学的設計検討からは核変換の対象から Cs も除外し、I および Tc の二元素について検討を行った。Cs の核変換が極めて困難な理由は、Cs 元素中に安定同位体である ^{133}Cs が含まれ中性子の照射によって ^{135}Cs が新たに生成されることや、 ^{135}Cs の生成量が極めて大きいことなどが挙げられる。

I と Tc の二元素を対象とした LLFP 集合体設計検討及びそれを装荷した炉心の工学的設計検討に必要な諸データは十分に整備されていないため、現知見の範囲で物性値、制限条件等を暫定して解析検討を行った。FP 化合物については、既往研究を調査し、材料的成立性や設計に必要な物性値の整備状況を判断基準に、CuI, Tc(金属)を本検討における化学形態と暫定した。これらを粉体・ペレットまたは金属スラグ形態に加工し、ステンレス鋼製の被覆管に内封して「LLFP ターゲットピン」とし、減速材である「ZrH ピン」と適切な配置・割合にてラップ管内に収納して、LLFP 集合体を構成した。

具体的には、炉心燃料領域に装荷する Tc 核変換用の LLFP 集合体として隣接炉心燃料のサーマルピークを回避するために外周に Tc 層を設ける集合体仕様を設定した。I 核変換用の LLFP 集合体としては、既往研究の知見から CuI の熔融防止が厳しいと予想されるため、LLFP 集合体を構成する CuI と $\text{ZrH}_{1.6}$ ピンを「常陽」において実績のある 5.5mm 迄細径化し、CuI のスミア密度を 50%TD とする集合体仕様を設定した。

これらの LLFP 集合体を装荷する炉心として、自己生成分の Tc, I を核変換しつつ増殖比約 1.1 程度を目指した炉心(自己生成分核変換炉心)、及び増殖比は 1.0 程度とし核変換量最大化を目指した炉心(核変換量最大化炉心)の核熱特性や成立性を検討した。ガンマ線による LLFP ピンの発熱については、中性子・ガンマ線発熱 2 次元輸送計算から評価した。これらの炉心での ^{129}I と ^{99}Tc の核変換率は、炉心装荷で 8～10%/cycle、径ブランケット位置装荷で 2～5%/cycle となった。1 基の高速炉で何基分の LLFP を変換できるかを示すサポートファクターについては、核変換量最大化炉心でも高々 1.2 程度であり、増殖性能を維持しながらサポートファクターを 2 以上とすることは困難な見通しを得た。

CuI と Tc の熔融回避や $\text{ZrH}_{1.6}$ の水素解離・被覆管透過に着目して LLFP 集合体の健全性を評価したところ、水素透過量制限からくる減速材ピン温度制限が最も厳しいことが分かった。LLFP 集合体を十分に冷却するには、1 次系冷却材流量の 6-7%を LLFP 集合体へ配分する必要があり、これを実現するためには炉心流量区分の細分化や炉心出力分布のさらなる平坦化等の炉心設計対応が必要である。

今後の FS では、I, Tc を対象 LLFP として、製造性、健全性、再処理性、変換特性等に配慮した総合的観点からの LLFP 集合体設計検討や、核熱・熱流力・材料健全性の観点からの LLFP 装荷炉心の詳細設計検討を継続し、FS の中間評価が行われる 2003 年度までに、LLFP 装荷炉心の工学的成立性見通しを得ていく予定である。

表 1-1 LLFP 核変換の一次成立性評価

対象 LLFP	半減期 [年]	消滅半減 期* [年]	LLFP 同位体の 核変換による 寿命短縮度**	大型 Na-MOX 炉 ブランケット領域 での変換/生成量 比***	核変換の核的成立性
I-129	16,000,000	20~30	数十万分の一 以下に短縮	3.9 (=55kg/14kg)	可能性あり
Tc-99	210,000	10~20	数万分の一 以下に短縮	4.3 (=120kg/28kg)	可能性あり
Cs-135	2,300,000	40~60	数十万分の一 以下に短縮	0.24 (=20kg/82kg)	同位体分離無し&径ブラ領域への装荷 では困難。照射環境、装荷位置等の工 夫が必要。
Sr-90	29	1,200 ~ 17,000	短縮しない	-	原子炉の中性子核反応では不可能

* 原子炉内での平均的変換速度から算出した、核反応による減少半減期

** 対象 LLFP 同位体の自然崩壊半減期/消滅半減期

*** 対象 LLFP 元素を Na 冷却 MOX 燃料径方向非均質炉心の径ブランケット一層に装荷した場合の変換量、及び LLFP 生成量の暫定値を用いて算出

表 2-1 核変換対象 LLFP の随伴不純物と製造上の特徴

対象元素	化学形態	融点 (°C)	LLFP 元素の数密度 (e+22n/cc)	想定する随伴不純物	製造・加工性の特徴
I	NaI	651	1.47	無し (純度 100%を仮定)	<ul style="list-style-type: none"> 再処理において、ヨウ素はオフガス処理系の銀系吸着材で吸着固定。ヨウ素回収率は>99%が見込める。 AgI を高純度回収する場合、回収率は>90%に。 AgI は比較的安定な化学形態であるが、他の化合物への転換は比較的容易。但し反応プロセスが付加され純度、回収率ともに低下傾向になる。
	CeI ₃	766	1.97		
	NiI ₂	797	2.25		
	CsI	621	1.05		
	CuI	605	1.78		
	AgI	552	1.45		
	MgI ₂	633	1.94		
	Tc	Tc(金属) TcO ₂	2172		
Cs	CsCl	645	1.43	湿式法: アルカリ金属(Rb)、アルカリ土類金属(Sr, Ba)(DF=1~10) 乾式法(揮発回収): Ru(DF=1~10) 乾式法(無機イオン交換体回収): アルカリ金属(Rb)、アルカリ土類金属(Sr, Ba)(DF=1~10)	湿式法: Cs の高純度回収は極めて困難。回収率は 90%程度? 乾式法: 脱被覆工程で温度を上げて揮発回収。形態は Cs。回収率は 90%以上、純度は比較的良いが Ru が混入する。使用済み溶融塩から回収する場合の回収率、純度はさらに良くない。形態は CsCl。
	Cs ₂ CrO ₄	950-1000	0.668		
	CsI	621	1.05		

表 2-2 再処理に伴う不純物の効果

LLFP	再処理法	不純物含有率 (重量比)	DF*=∞時に比べた LLFP 核変換特性	
			核変換量(比)	核変換率(比)
⁹⁹ Tc (metal)**	湿式法 熔融塩電解法	Ru/Tc = 3.9 Rh/Tc = 1.2 Pd/Tc = 3.3 Se/Tc = 0.1 Te/Tc = 0.8	0.63 (DF=10) 0.15 (DF=1)	1.08 (DF=10) 1.25 (DF=1)
	フッ化物揮発法	Sb/Tc = 0.04 Np/Tc = 0.24	0.95 (DF=10) 0.69 (DF=1)	0.96 (DF=10) 0.79 (DF=1)
¹³⁵ Cs (CsCl)***	湿式法 乾式-無機イオン 交換体回収法	Rb/Cs = 0.05 Sr/Cs = 0.17 Ba/Cs = 0.68	1.00 (DF=10) 0.85 (DF=1)	1.04 (DF=10) 1.23 (DF=1)
	乾式-揮発回収法	Ru/Cs = 1.2	0.62 (DF=1)	1.08 (DF=1)

* DF: 除染率 (再処理前のある元素の重量/再処理後のある元素の重量).

** 減速材体積比=60%, スミア密度=50%.

*** 減速材体積比=10%, スミア密度=50%.

表 3-1 ターゲット溶融限界線出力に対する感度解析結果

LLFP 化合物 (化学形態)	融点	溶融限界線出力 (フェーズ I 設定の 物性値ベース)	設定物性値が改善される可能性	設定物性値を変更した場合の感度	
				$k_{target} \times 2$ 倍	hg $\times 2$ 倍
NaI(粉体)	661°C	1.9 W/cm	<ul style="list-style-type: none"> •NaI 熱伝導度モデルについて、高温側でフォトン・電子伝導の寄与により改善される可能性が考えられる。 •粉体の熱伝導度評価式モデルについて、放射の寄与等により改善される可能性が考えられる。 •ギャップコンダクタンスモデルについて、固体接触の寄与を考慮すれば改善が期待できる。 •核変換により Xe と共に金属単体(Na)も生じるため、固体部の熱伝導度が改善される可能性が考えられる。 	+ 0.4 W/cm (1.2 倍)	+ 0.0 W/cm (1.0 倍)
NaI(ペレット)	661°C	6.2 W/cm	<ul style="list-style-type: none"> •NaI 熱伝導度モデルについて、高温側でフォトン・電子伝導の寄与により改善される可能性が考えられる。 •核変換により Xe と共に金属単体(Na)も生じるため、固体部の熱伝導度が改善される可能性が考えられる。 	+ 3.6 W/cm (1.6 倍)	+ 1.2 W/cm (1.2 倍)
CsCl(粉体)	645°C	6.1 W/cm	<ul style="list-style-type: none"> •CsCl 熱伝導度モデルについて、高温側でフォトン・電子伝導の寄与により改善される可能性が考えられる。 •粉体の熱伝導度評価式モデルについて、放射の寄与等により改善される可能性が考えられる。 •ギャップコンダクタンスモデルについて、固体接触の寄与を考慮すれば改善が期待できる。 	+ 3.0 W/cm (1.5 倍)	+ 0.0 W/cm (1.0 倍)
CsCl(ペレット)	645°C	6.1 W/cm	<ul style="list-style-type: none"> •CsCl 熱伝導度モデルについて、高温側でフォトン・電子伝導の寄与により改善される可能性が考えられる。 	+ 5.8 W/cm (2.0 倍)	+ 0.0 W/cm (1.0 倍)

表 6-1 高効率核変換集合体の仕様(暫定)

外側ダクトの仕様		内側ダクトの仕様	
外側ラップ管外体面距離(mm)	215.40	内側ラップ管外体面距離(mm)	158.73
外側ラップ管肉厚(mm)	5.40	内側ラップ管肉厚(mm)	3.98
集合体配列ピッチ(mm)	219.10		
ピン外径(mm)	11.24	減速材ピン外径(mm)	9.72
被覆管肉厚(mm)	0.46	減速材ピン肉厚(mm)	0.40
ピンの配列ピッチ(mm)	12.29	減速材ピンの配列ピッチ(mm)	11.37
ブランケットピン層数	2	ピン層数	8
ブランケットピン数	102	減速材ピン数	169
		LLFPピン外径(mm)	3.30
		LLFPピン肉厚(mm)	0.14
		LLFPピン数	294

表 6-2 高効率核変換集合体の体積割合

体積比(外側ダクト領域のみ)		体積比(内側ダクト領域のみ)	
燃料割合(ピン内体積割合)	43.19	構造材割合	20.61
構造材割合	28.34	減速材割合	48.45
冷却材割合	28.46	LLFP 割合	9.72
Total	100	冷却材割合	21.22
		Total	100
		減速材/(LLFP+減速材)体積比	83.29
外側ダクト体積割合	47.51		
内側ダクト体積割合	52.49		
Total	100		

表 6-3 LLFP 核変換検討炉心の仕様

	項目	仕様	備考
基本条件・炉心構成	熱出力(MWth)	3570	
	電気出力(MWe)	1500	
	運転サイクル長さ(日)	510	
	燃料交換バッチ (炉心/径ブランケット)	4/4	
	炉心型式	Pu 富化度2領域均質炉心	
	炉心高さ(cm)	80	
	軸ブランケット厚さ(cm)(上部/下部)	45/45	
	炉心等価直径(cm)(炉心/径ブランケット)	465.3/507.7	
	遮蔽体外接円径(cm)	591.5	
	燃料集合体数(体) (内側炉心/外側炉心/径ブランケット)	150/222/78	
	制御棒本数(本)(主系/後備系)	24/12	
	径方向遮蔽体数(体) (SUS 遮蔽体/ZrH遮蔽体)	12	
炉心燃料仕様	燃料材料	混合酸化物燃料	
	炉心材料(被覆管/ラップ管)	FMS(ODS)/PNC-FMS	
	燃料ピン外径(mm)	8.3	
	被覆管肉厚(mm)	0.6	
	燃料スミヤ密度(%TD)	82	
	ワイヤ径(mm)	1.0	
	燃料ピンピッチ/燃料ピン外径(P/D)	9.35/8.3(=1.13)	
	集合体当たり燃料ピン本数(本)	469	
	ラップ管外対面間距離(mm)	215.4	
	ラップ管肉厚(mm)	5.4	
	集合体配列ピッチ(mm)	219.1	
炉心主要特性	Pu 富化度(wt%)(内側炉心/外側炉心)*1	21.91/23.79	*1) FP 混入率 2vol% Pu 組成は脚注
	炉心部取出平均燃焼度(MWd/t)	143,500	
	燃焼反応度(%Δk/k')	3.46	
	最大線出力密度(W/cm)	346.7	
	炉心部平均線出力密度(W/cm)(平衡中期)	235	
	炉心部平均出力密度(W/cc)(平衡中期)	240	
	ピーク高速中性子束($\times 10^{15}$ n/cm ² sec)		
	ピーク高速中性子フルエンス($\times 10^{23}$ n/cm ²)		
	増殖比(平衡中期)	1.180	
	炉心部ドップラ係数($\times 10^{-3}$ Tdk/dT)		
炉心ナトリウムボイド反応度(\$)			

Pu 組成比: $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}/^{242}\text{Pu}/^{237}\text{Np}/^{241}\text{Am}/^{243}\text{Am}/^{244}\text{Cm} = 1.1/54.1/32.1/4.3/3.9/0.5/2.0/1.0/1.0$

表 6-4 LLFP 核変換検討炉心の燃料仕様

		炉心	径ブランケット
燃料材料		酸化物燃料	←
炉心材料(被覆管/ラッパ管)		ODS/FMS	←
燃料要素	全長(mm)	2540	←
	燃料部スタック長(mm)	800	←
	軸ブランケット厚さ(mm; 上/下)	450/450	-
	ガスプレナム長(mm; 上/下)	300/450	←
	端栓(mm; 上/中/下)	20/30/40	←
	被覆管外径(mm)	8.3	11.2
	被覆管内径(mm)	7.17	10.32
	被覆管肉厚(mm)	0.57	0.46
	燃料スミア密度(%TD)	82.0	90.0
集合体	全長(mm)		←
	燃料ピン本数(本)	469	271
	燃料ピンピッチ/燃料ピン外径(P/D)	1.13	1.09
	ラッパ管肉厚(mm)	5.4	←
	ラッパ管外対面距離(mm)	215.4	←
	集合体間ギャップ(mm)	3.7	←
	集合体配列ピッチ(mm)	219.1	←
	ワイヤ径(mm)	1.0	←
	ワイヤ巻付ピッチ(mm)	200	←
	燃料体積割合(%)	45.5 (37.4)	54.5 (49.1)
	構造材体積割合(%)	25.8	20
	冷却材体積割合(%)	28.6	25.5

表 6-5 ^{129}I の核変換特性解析結果

	LLFP 集合体 数 [体]	I-129		
		平衡初期装荷 量 [kg]	変換量 [kg/cycle]	核変換率 [%/cycle]
1) 参照炉心	0	-	-15.2	-
2) CsI(100%) 径ブラ領域装荷	78	1300.6	15.5	1.2
3) ZrH(83.3%)&CsI 径ブラ領域装荷	78	217.2	17.8	8.2
4) 高効率核変換集合体 径ブラ領域 装荷	78	146.4	14.1	9.6
5) 3)+CsI(100%)炉心中央装荷	84	317.25	21.7	6.8
(径ブラ領域のみ)	78	217.2	18.3	8.4
(炉心中央領域のみ)	6	100.05	3.4	3.4
6) 3)+ZrH(83.3%)&CsI 炉心中央装荷	84	233.9	22	9.4
(径ブラ領域のみ)	78	217.2	18.6	8.6
(炉心中央領域のみ)	6	16.7	3.4	20.4
7) 3)+高効率核変換集合体炉心中央 装荷	84	228.5	21.1	9.2
(径ブラ領域のみ)	78	217.2	18.5	8.5
(炉心中央領域のみ)	6	11.3	2.6	23.0
8) 4)+CsI(100%)炉心中央装荷	84	246.45	17.73	7.2
(径ブラ領域のみ)	78	146.4	14.4	9.8
(炉心中央領域のみ)	6	100.05	3.33	3.3
9) 4)+ZrH(83.3%)&CsI 炉心中央装荷	84	163.11	17.96	11.0
(径ブラ領域のみ)	78	146.4	14.67	10.0
(炉心中央領域のみ)	6	16.71	3.29	19.7
10) 4)+高効率核変換集合体炉心中央 装荷	84	157.66	17.1	10.8
(径ブラ領域のみ)	78	146.4	14.57	10.0
(炉心中央領域のみ)	6	11.26	2.53	22.5

表 6-6 LLFP 集合体装荷による炉心特性への影響

	TRU 富化度* (内側/外側)[%]	燃焼反応度 [%dk/kk']	最大線出力 [W/cm]	増殖比 (EOC)
1) 参照炉心	21.32/23.79	3.46	346.7	1.188
2) CsI(100%) 径ブラ領域装荷	20.92/23.55	3.4	355.4	1.113
3) ZrH(83.3%)+CsI 径ブラ領域装荷	21.20/24.06	3.67	365	1.096
4) 高効率核変換集合体 径ブラ領域装荷	20.97/23.62	3.41	359.3	1.109
5) 3)+CsI(100%)炉心中央装荷	22.01/24.30	4.03	377.6	1.082
6) 3)+ZrH(83.3%)&CsI 炉心中央装荷	22.45/24.45	4.23	381.5	1.072
7) 3)+高効率核変換集合体炉心中央装荷	22.31/24.37	4.13	380.3	1.076
8) 4)+CsI(100%)炉心中央装荷	21.77/23.84	3.75	371.9	1.095
9) 4)+ZrH(83.3%)&CsI 炉心中央装荷	22.18/23.99	3.94	374.9	1.086
10) 4)+高効率核変換集合体炉心中央装荷	22.03/23.91	3.84	373.7	1.09

*EOC での k_{eff} が 0.994、かつ BOC での内外炉心の線出力比が mismatch ファクターを考慮した上でほぼ 1.0 になるように富化度を決定した。

表 6-7 モンテカルロ計算による ^{129}I の核変換率
(LLFP 化学形=CsI, 減速材=ZrH_{1.6}, 減速材割合=83%, 1cycle=510 日)

装荷位置	通常 LLFP ターゲット		高効率核変換集合体	
	径方向ブラ	径方向ブラ	径方向ブラ	炉心内部
集合体数	78	78	78	6
I-129 装荷量 [kg]	217.2	146.5	146.5	11.3
変換率 [%/cycle]	5.2	6.3	6.3	15.1
変換量 [kg/cycle]	11.2	9.2	9.2	1.7

(炉心からの I-129 生成量は約 15kg/cycle)

表 7-1-1 減速材物質特性のまとめ

解離温度 (安定性) T/1atm °C	融点 °C	相 (安定性)	Na共存性 (安定性)	水系濃度 (核特性) ×10 ⁻²² 個/cc	密度 (γ放射) g/cc	熱伝導度 測定実績	原料金属価格 (経済性) RareMetallic社 カタログ	(取り扱い上の注意*)	放射化 (長寿命核種生成)
TiH ₂	631	- 面心立方晶CaF ₂	- (調査継続中)	9.05	3.752	- (調査継続中)	中 TiSpongesN 約110円/g	(可燃性の注記)	無し
ZrH _{1.65}	-	δ 単相 >900°C 面心立方晶CaF ₂	問題なし	6.0	5.7	あり (オーステナイト鋼並)	低 (粉末物質) ZrSpongesN 約30円/g	(可燃性の注記)	僅かにあり Zr-93 1.5e+6y
ZrH ₂	878	- ε→δ (温度不詳)	-	7.25	5.610	-	-	-	-
CaH ₂	1062	α→β @780°C 解方晶PbCl ₂ →面心立方晶CaF ₂	(調査継続中)	5.47	1.913	- (調査継続中)	中 CaGranule2N5 約28円/g CaCrystalLine4N 約280円/g	(水反応可燃性の注記)	ややあり Ca-41 1.0e+5y
YH ₂	1367	- 単相 (状態図不詳) 面心立方晶CaF ₂	- (調査継続中)	5.68	4.293	あり (調査継続中) (オーステナイト鋼並)	高 (粉末物質) YIngot3N 約280円/g	-	無し
YH ₃	-	- 単相 (状態図不詳) 稠密六方晶hcp	-	7.78	3.958	-	-	-	-
ZrY ₂ H _{4.8}	1200*	-	-	4.4	3*	-	高 (粉末物質) VLump3N	-	僅かにあり Zr-93 1.5e+6y
PrH _{2.8}	1149	-	-	6.5	5.6	-	-	-	無し
LaH _{2.76}	1124	-	-	6.2	5.3	-	-	-	極値かあり Cs-135, La-137 2e+6y 6e+5y
SrH ₂	1040	-	-	4.4	3.3	-	-	-	極値かあり Kr-61 2.4e+5y

* 消防法別表において「金属の水素化物」は危険物第三類に分類されている

表 7.2.1 化合物の特性と照射試験結果^[8]

	融点 (°C)	Log ₁₀ (蒸気 圧 [bar])	I 密度 (g/cm ³)	変換率 (at%)	スフィンク 体積変化 (%)			被覆材と の共存性	発熱 (%/cm ³)
					長さ	径	体積		
MgI ₂	633	-3.2	3.92	6.6	4.1	6.0	17.0	+/-	47.0
CaI ₂	783	-8.0	3.19	6.7	1.7	5.9	14.0	+	42.5
CuI	605	-3.9	3.36	6.7	12.5	6.0	26.5	-	56.2
NaI	581	-4.7	2.86	7.3	5.2	6.1	18.5	+	38.9

表 7-3-1 LLFP 集合体の健全性確保に係る項目

項目	物性値からの制限温度(°C)	水素解離・透過	CDF
Tc ピン	2250(融点) ¹⁾	—	—
CuI ピン	605(融点)	—	0.5
ZrH _{1.6} ピン	900(δ 相の安定性) ²⁾	4%以下	—

- 1) 被覆管材の開発目標温度 700°Cが制限となる
- 2) ZrH_{1.6}の制限温度は δ 相の安定性と水素解離・透過の厳しい方の条件より決定

表 7-3-2 LLFP 集合体の健全性確保に係る項目

No	物性	物性式	出典
1	平衡解離圧	$\ln P = 2 \ln C / (2-C) + 8.01 + 5.21C - 2.07 \times 10^4 / T$ P: 平衡解離圧 (atm) C: H/Zr比 T: 温度 (K)	W. Wang and D. Olander, "Thermodynamics of the Zr-H System", Journal of the American Ceramic Society, 78[12]3323-28(1995)-eq(13)
2	水素透過係数	$P_m = 1.80 \times 10^{-7} \exp(-64030/RT)$ P _m : 水素透過係数 (mol/m/sec/Pa ^{1/2}) R: 気体定数 8.31696 (J/mol/K) T: 温度 (K)	K. S. FORCEY et. al, "HYDROGEN TRANSPORT AND SOLUBILITY IN 316L AND 1.4914 STEELS FOR FUSION REACTOR APPLICATIONS", Journal of the Nuclear Materials 160 (1988)117-124 -eq(11) Commercial 316L オーステナイト鋼用式
3	水素透過速度	$H_p = P_m / t \times P_1^{1/2} (A_2 - A_1) / \ln(A_2 / A_1)$ P _m : 水素透過係数 (mol/m/sec/Pa ^{1/2}) t: 被覆管肉厚 (m) P ₁ : 被覆管内の水素分圧 (Pa) A ₁ , A ₂ : 被覆管内/外側の表面積 (m ²)	

表 7-3-3 LLFP 集合体仕様

項 目		単 位	Tcターゲット集合体		CuIターゲット集合体		
			Tc ピン	ZrH ピン	CuI ピン	ZrH ピン	
充填材	材料	—	Tc	ZrH	CuI	ZrH	
	形態	—	スラグ	ペレット	粉体	ペレット	
	外径	mm	6.78	7.19	—	4.59	
	理論密度比	%TD	100.0	←	←	←	
被覆管	材料	—	PNC1520 鋼	←	←	←	
	外 径	mm	8.60	←	5.50	←	
	内 径	mm	7.58	←	4.84	←	
	肉 厚	mm	0.51	←	0.33	←	
ピン	全長	mm	2905	←	←	←	
	被覆管-充填材キャップ [直径]	mm	0.80	0.39	—	0.25	
	充填材スタック長さ	mm	850	←	←	←	
	ガスペナム	上部	mm	610	←	610	←
	長さ	下部	mm	—	—	1345.00	—
		種類	—	He	←	←	←
	初期封入ガス	圧力	MPa	0.1	←	2.0	0.1
充填材スミア密度		%	80.0	90.0	50.0	89.9	
スペーサ	材料	—	PNC1520 鋼	←	←	←	
	型式	—	ワイヤ	←	←	←	
	スペーサワイヤ径	mm	1.39	←	1.06	←	
ラップ管	材料	-	PNC-FMS 鋼	←	←	←	
	外対面幅	mm	177.9	←	←	←	
	内対面幅	mm	167.9	←	←	←	
	肉 厚	mm	5.0	←	←	←	
集合体	燃料ピン本数	—	271	←	631	←	
	燃料ピンピッチ	mm	10.0	←	6.6	←	
	集合体間キャップ	mm	4.0	←	←	←	
	集合体配列ピッチ	mm	181.9	←	←	←	

表 7-3-4 γ 線発熱量評価対象炉心の特徴

ケース	ターゲット装荷位置			炉心高さ
	炉心中心	炉心リング	径ブランケット	(cm)
ケース1	Tc(非均質)* 【8.6mm,48%】**	CuI/Tc(均質) 【8.6mm,16%】 Tc(均質) 【8.6mm,48%】	-	90
ケース2	Tc(均質) 【8.6mm,48%】	-	CuI(均質) 【5.5mm,60%】	80
ケース3	CuI/Tc(均質) 【8.6mm,16%】	-	Tc(均質) 【8.6mm,60%】	80

*内層;Tc/ZrH, 外層;Tc, 最外層;ラップ管/Naの3領域

**ターゲット集合体仕様【ピン外径、減速材ピン割合】

表 7-3-5 DOTコードによるガンマ線発熱量の主要評価結果のまとめ

ケース	集合体	集合体 積算出力 (MW)	全中性子束 (ターゲット領域) (1/cm ² ・s)	最大線出力	
				LLFPピン	(W/cm)
ケース1	燃料中心 Tc 集合体	0.702	1.13E+15	Tc ZrH	32.9 13.4
ケース2	燃料中心 Tc 集合体	0.955	1.80E+15	Tc ZrH	46.3 19.5
	径ブランケット CuI 集合体	0.155	3.78E+14	Tc ZrH	1.7 2.3
ケース3	燃料中心 CuI/Tc 集合体	0.775	2.44E+15	CuI Tc ZrH	20.8 47.9 20.2
	径ブランケット Tc 集合体	0.152	2.53E+14	Tc ZrH	14.4 5.0

表 7-4-1 LLFP 集合体装荷炉心の概要

検討炉心	炉心高さ (cm)	LLFP 集合体(体数)		解析手法	検討内容
		炉心領域	RB 位置		
(1)自己生成分核 変換炉心-1	85	Tc(8)	CuI(58)	2次元 RZ 3次元	核熱特性 健全性評価
(2)自己生成分核 変換炉心-2	80		Tc(38) CuI(58)	2次元 RZ	核特性 熱特性概略評価
(3)自己生成分核 変換炉心-3	90	Tc(4) CuI(12)		2次元 RZ	核特性
(4)核変換量 最大化炉心-1	90	Tc(12)	CuI(58)	2次元 RZ	核特性
(5)核変換量 最大化炉心-2	85	Tc(8)	Tc(38) CuI(58)	2次元 RZ	熱特性概略評価

表 7-4-2 自己生成分核変換炉心-1 の制御反応度収支

[単位:%Δk/k']

項 目	主炉停止系 (1ロット'スタック)	後備炉停止系	
		1ロット'スタック	全数挿入
(1) 計画余剰反応度	6.3	0.9	1.3
a. 出力補償	(1.3)	(0.9)	(1.3)
b. 燃焼補償 *	(4.8)	—	—
c. 運転余裕	(0.2)	—	—
(2) 余剰反応度の不確かさ(2σ)	0.5	0.2	0.3
a. 臨界性予測誤差	(0)	—	-
b. 出力補償予測誤差	—	(0.19)	(0.26)
c. 燃料製作公差	(0.39)	—	—
d. 燃料交換余裕	(0.20)	—	—
(3) 事故時投入反応度	—	1.0	1.0
(4) 必要制御反応度[(1)+(2)+(3)]	6.8	2.1	2.6
(5) 制御棒価値	7.2	2.3	2.9
(6) 反応度停止余裕[(5)-(4)]	0.4	0.2	0.3

* 燃料組成等の違いを考慮した値

表 7-4-3 自己生成成分核変換炉心-1の LLFP 集合体のガンマ発熱量のまとめ

		炉心 Tc 集合体			径ブランケット CuI 集合体		
ピーク集合体出力(MW)*		1.26 (1.07)			0.48 (0.36)		
線出力 (W/cm)	軸方向位置(cm)	Tcピン	ZrHピン	被覆管	CuIピン	ZrHピン	被覆管
	80.75	37.8	14.9	6.0	3.2	4.3	1.7
	72.25	46.1	18.8	7.4	3.8	5.3	2.1
	63.75	53.4	21.9	8.5	4.3	5.9	2.3
	55.25	59.3	24.2	9.5	4.7	6.4	2.5
	48.17	61.9	25.2	9.9	4.9	6.6	2.6
	42.50	62.6	25.4	10.0	4.9	6.7	2.6
	36.83	61.9	25.1	9.9	4.9	6.6	2.6
	29.75	59.3	24.1	9.5	4.7	6.4	2.5
	21.25	53.4	21.8	8.5	4.4	5.9	2.3
12.75	46.1	18.8	7.4	3.8	5.3	2.1	
4.25	37.8	14.9	6.0	3.2	4.3	1.7	

* () 内の値はラッパ管の発熱量を除いた値

表 7-4-4 検討炉心のガンマ発熱量のまとめ

検討炉心	炉心高さ (cm)	ターゲット (本数)	最大集合体 出力(MW)**	LLFP ピン (径 8.6mm)	最大線出力 (W/cm)
(1)自己生成成分 核変換炉心-1*	85	炉心 Tc (8)	1.26 (1.07)	Tc	62.6
				ZrH	25.4
		径ブラ CuI (58)	0.48 (0.36)	CuI(5.5mm)	4.9
				ZrH(5.5mm)	6.7
(2)自己生成成分 核変換炉心-2	80	径ブラ CuI (58)	0.48 (0.36)	CuI(5.5mm)	5.2
				ZrH(5.5mm)	7.1
		径ブラ Tc (38)	0.47 (0.39)	Tc	44.6
				ZrH	15.6
(3)自己生成成分 核変換炉心-3 (核計算のみ)	90	炉心 Tc (4)	1.26 (1.07)	Tc	59.1
				ZrH	24.0
		炉心 CuI/Tc (12)	0.87 (0.71)	CuI	20.8
				Tc	47.9
		ZrH	20.2		
(4)核変換量 最大化炉心-1	90	炉心 Tc (12)	1.26 (1.07)	Tc	59.1
				ZrH	24.0
		径ブラ CuI (58)	0.48 (0.36)	CuI(5.5mm)	4.6
				ZrH(5.5mm)	6.3
(5)核変換量 最大化炉心-2	85	炉心 Tc (8)	1.26 (1.07)	Tc	62.6
				ZrH	25.4
		径ブラ CuI (58)	0.48 (0.36)	CuI(5.5mm)	4.9
				ZrH(5.5mm)	6.7
	径ブラ Tc (38)	0.47 (0.39)	Tc	41.9	
			ZrH	14.7	

* 3次元拡散計算値(ピーク発熱 LLFP 集合体)に基づく評価

他炉心は(1)炉心の結果を参照して、2次元拡散計算値による概略評価

** () 内の値はラッパ管の発熱量を除いた値

表 7-4-5 LLFP 集合体の被覆管温度制限(自己生成分核変換炉心-1)

集合体	ピン	初期封入 He ガス圧 (MPa)	最大線出 力 [充填材] (W/cm)	被覆管内面 最高温度制限 (°C)	
				最大発熱部	最高温度部
Tc ターゲット	Tc	0.1	62.6	2056 *1	700 *2
	ZrH	0.1	25.4	451	451
CuI ターゲット	CuI	2.0	4.9 (3.2 *3)	427	492
	ZrH	0.1	6.7	429	429

*1 熔融防止

*2 被覆管材開発目標温度

*3 最高温度部線出力

表 7-4-6 LLFP 集合体の必要最少流量(自己生成分核変換炉心-1)

集合体	ピン	ピン出力 (kW)	集合体流量 (kg/s)	熱流特性				
				被覆管内面最高温度 (°C)		ハント*ル部 圧損 (MPa)	周辺流れ 効果係数	
				最大発熱部 (HSF)	最高温度部 (HSF)			
Tcターゲット	Tc	5.21	33.9	433 (1.43)	451 (1.38)	0.192	1.12	
	ZrH	2.59	15.8	430 (1.39)	451 (1.37)	0.048	1.12	
CuIターゲット	CuI	0.58	13.1	415 (1.42)	429 (1.41)	0.038	1.07	
	ZrH	0.71	16.0	415 (1.42)	429 (1.41)	0.055	1.07	

被覆管温度制限

Tc+ZrH集合体 451 (°C)

CuI+ZrH集合体

最大発熱部 427 (°C)

最高温度部 429 (°C)

表 7-4-7 LLFP 集合体への流量配分(自己生成分核変換炉心-1)

集合体	集合体 体数	集合体 必要最少流量 (kg/s)	流量配分 (kg/s)
Tc ターゲット [炉心領域装荷]	8	33.9	271.2
CuI ターゲット [径ブランケット領域装荷]	58	16.0	928
合計 (1次系流量に対する割合*)	66	—	1199.2 (6.6%)

* 1次系流量

18300 (kg/s)

表 7-4-8 燃料集合体必要最少流量(自己生成分核変換炉心-1)

領域	ピン出力区分		出力		必要最少流量 (kg/s)	
	No.	燃料 体数	集合体 (MW)	最大ピン (kW)	集合体	領域
内側炉心	1	28	8.76	32.75	33.4	935.2
	2	112	8.65	32.00	32.5	3641.1
	3	106	8.02	29.99	30.7	3256.3
	4	46	7.35	27.83	28.4	1308.2
	5	18	6.77	25.99	26.2	471.6
外側炉心	6	32	8.26	31.24	31.9	1020.5
	7	60	7.32	28.65	29.1	1746.0
	8	20	6.60	25.52	25.8	515.6
	9	62	6.16	23.95	24.3	1506.6
	10	44	6.07	21.91	22.1	973.3
	11	38	5.02	19.99	20.2	766.5
	12	20	4.23	16.83	16.8	335.5
径フランケット	13	18	2.74	25.67	13.8	249.1
	14	20	1.65	16.30	8.8	175.3
合計	—	624	4367.26	—	—	16900.8

(注記)

燃料集合体に配分可能な流量 16360 (kg/s) [燃料以外への流量配分: 10.6%]
 被覆管最高温度制限 700 (°C)

表 7-4-9 CuI ピンの CDF 評価条件及び結果(自己生成分核変換炉心-1)

項 目			単 位		使用値	備 考	
計算条件	ピン仕様	被覆管	材料	—	PNC1520 鋼		
			外径	mm	5.480	最大内径+肉厚	
			内径	mm	4.856	公差最大	
			肉厚	mm	0.312	公差最少	
		ターゲット材 [CuI]	スミア密度	%	50.0		
			スタック長	mm	850		
		ガスプレナム体積 [下部]			cm ³	24.7	
	使用条件	寿命			ヵ月	76.5	
		被覆管温度			℃	429	寿命中一定
冷却材酸素濃度			ppm	3.0			
計算結果	ピン内圧			MPa (kg/cm ²)	15.3 (156.4)	寿命末期	
	被覆管応力			MPa (kg/mm ²)	128.7 (13.1)	寿命末期	
	被覆管設計応力強さ			MPa (kg/mm ²)	287.3 (29.3)	450℃	
	CDF			—	0.00	寿命末期	

表 7-4-10 LLFP 集合体と隣接燃料集合体の冷却材出口温度差
(自己生成分核変換炉心、ノミナル値)

時期	LLFP集合体 *1		発熱量(MW)	集合体出口温度(°C)		出口温度差(°C) *2
				LLFP集合体	隣接燃料(最高)	
平衡サイクル初期	Tcターゲット集合体	T1	1.01	418	570	152
		T2	1.03	419	572	154
		T3	1.02	418	595	176(最大)
		T4	0.84	414	576	162
	CuIターゲット集合体	C1	0.35	412	572	159
		C2	0.24	407	555	148
		C3	0.35	412	568	156
		C4	0.48	418	577	159
		C5	0.26	408	562	154
平衡サイクル末期	Tcターゲット集合体	T1	1.23	423	593	170
		T2	1.26	424	600	175
		T3	0.95	417	577	160
		T4	1.01	418	592	173
	CuIターゲット集合体	C1	0.30	410	533	124
		C2	0.21	405	519	114
		C3	0.30	409	533	123
		C4	0.42	416	546	130
		C5	0.28	408	565	156

*1 LLFP集合体 (T1~T4, C1~C5) の炉心装荷位置は図4.3.2.1.3-8を参照。

*2 集合体間出口温度差制限目安 ≤ 150°C (実証炉設計)

表 7-4-11 主要核特性・核変換特性の比較

項目	単位	自己生成分核変換炉心			核変換量最大化炉心			レファレンス炉心
		1	2	3	1	2	3	
熱出力	MW	3570	←	←	←	←	←	←
電気出力	MW	1500	←	←	←	←	←	←
運転サイクル長さ	日	582	547	608	608	582	547	547
炉心型式	-	HOC+LLFPターケット裝荷						HOC
炉心高さ	cm	85	80	90	90	85	80	80
軸ブランク厚さ(上部/下部)	cm	32.5/32.5	35/35	30/30	30/30	32.5/32.5	35/35	35/35
集合体数	体	310/276/38	316/278/-	302/276/96	306/276/38	310/276/-	316/278/96	316/278/96
燃料:内側/外側/径ブランク		Tc8/Cu158/66	-/Tc38,Cu158/96	Tc4,Cu112/-	Tc12/Cu158/70	Tc8/Tc38,Cu158/104	-	-
LLFPターケット:炉心領域/RB領域/合計		23.4/25.6	22.5/26.1	23.9/25.1	24.4/25.6	24.0/26.4	21.0/23.6	21.0/23.6
Pu富化度(内側/外側)	wt%	154	154	149	155	158	152	152
炉心部取出平均燃焼度	GWd/t	3.5	3.1	3.7	3.9	3.9	2.8	2.8
燃焼反応度	%Δk/kk'	424	417	410	376	418	423	423
最大線出力	W/cm	1.06	1.08	1.08	1.01	1.02	1.17	1.17
増殖比(平衡中期)	-	-6.8	-6.1	-6.7	-6.4	-6.5	-5.1	-5.1
炉心部トッパラ係数*1)(平衡末期)	10 ⁻³ Tdk/dT	2.06	2.08	2.03	1.92	2.01	2.20	2.20
炉心ナトリウムボイド反応度*2)(平衡末期)	%Δk/kk'	6.0	6.1	5.9	5.6	5.8	6.4	6.4
核変換特性	サポートブランクター*4)	Tc-99 0.7 / I-129 1.0	Tc-99 0.6 / I-129 1.0	Tc-99 0.6 / I-129 1.2	Tc-99 1.1 / I-129 1.2	Tc-99 1.2 / I-129 1.0	-	-
	核変換率	Tc-99 8.5 / I-129 4.5	Tc-99 2.0 / I-129 4.5	Tc-99 8.2 / I-129 8.2	Tc-99 9.9 / I-129 5.3	Tc-99 4.2 / I-129 4.5	-	-

*1)非均質効果(1.05)、炉定数効果(1.137)を考慮

*2)非均質効果(0.9)を考慮

*3)β_{eff}=0.344%

*4)Tc-99の生成量44kg/cycle、I-129生成量14kg/cycleを用いて算出

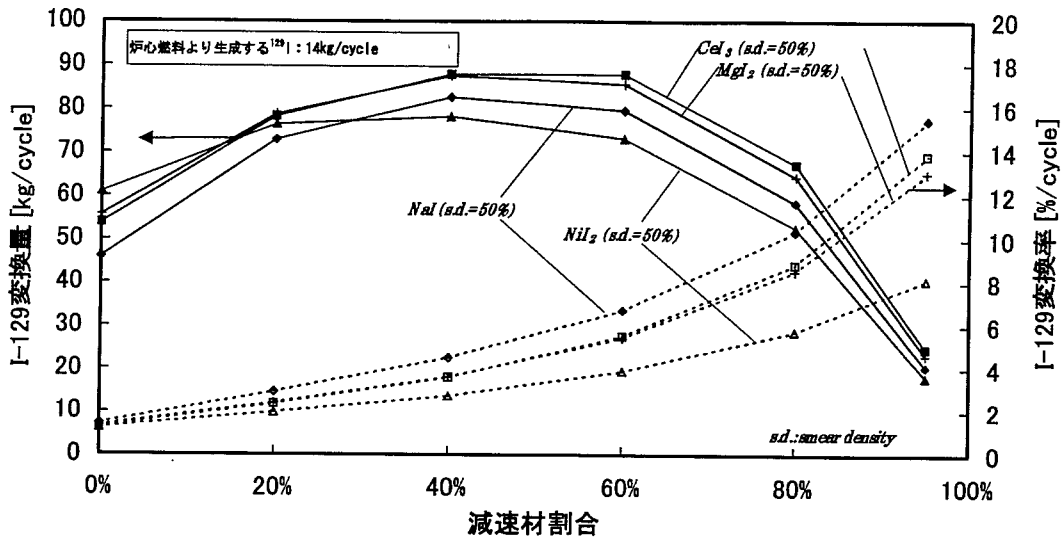


図 2-1 (a) ¹²⁹I の核変換特性
(参考文献[3] JNC TN9400 2001-098 より引用)

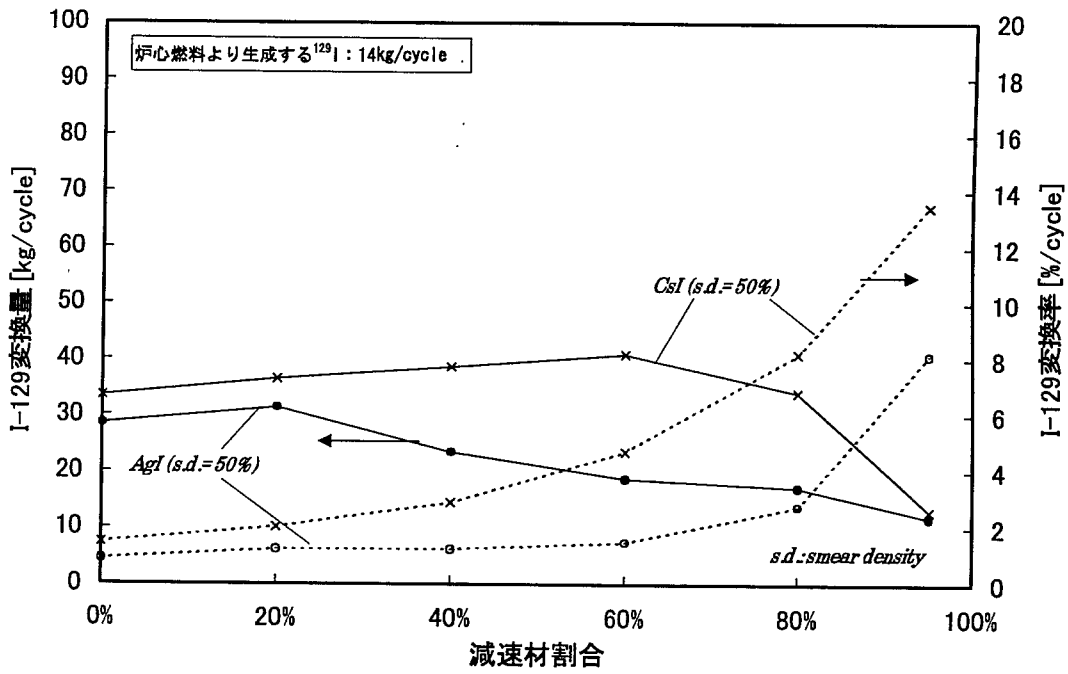


図 2-1 (b) ¹²⁹I の核変換特性
(参考文献[3] JNC TN9400 2001-098 より引用)

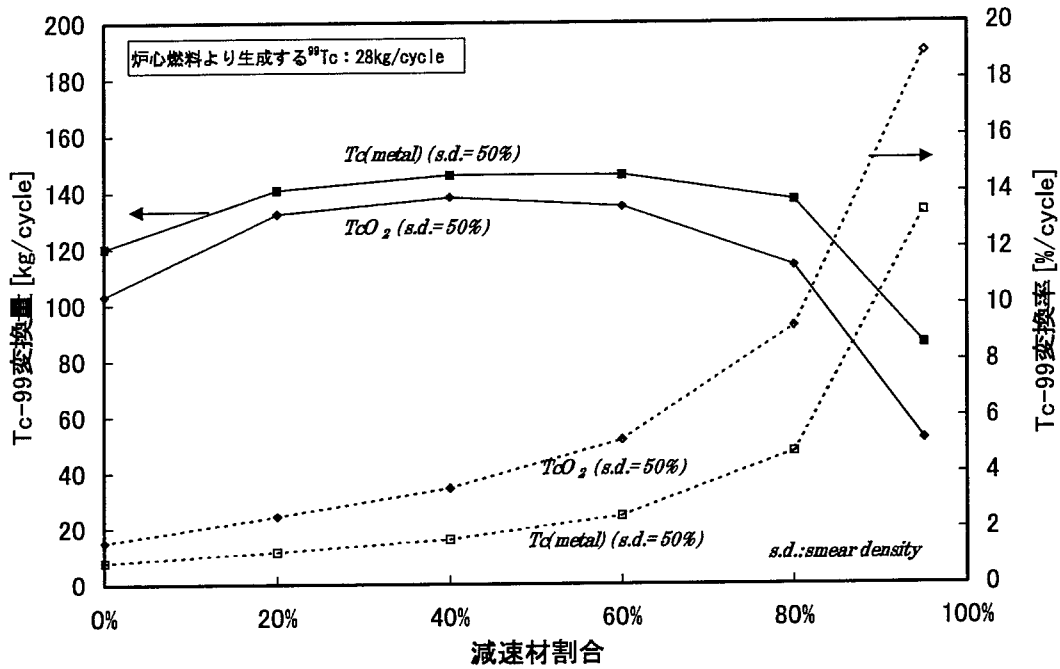


図 2-2 ⁹⁹Tc の核変換特性
(参考文献[3] JNC TN9400 2001-098 より引用)

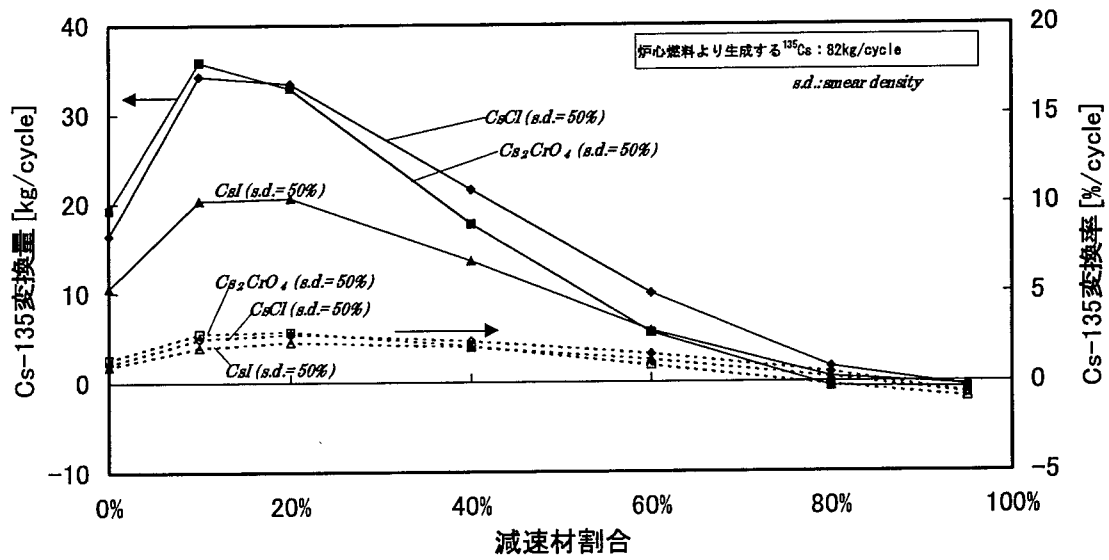


図 2-3 ¹³⁵Cs の核変換特性
(参考文献[3] JNC TN9400 2001-098 より引用)

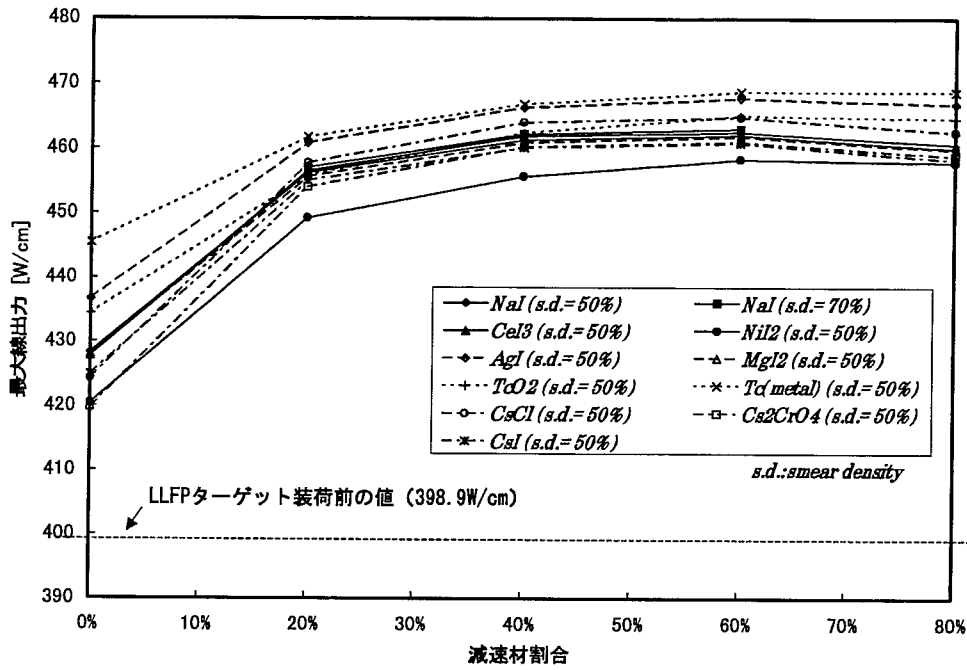


図 2-4 LLFP ターゲット装荷による燃焼反応度の変化
(参考文献[3] JNC TN9400 2001-098 より引用)

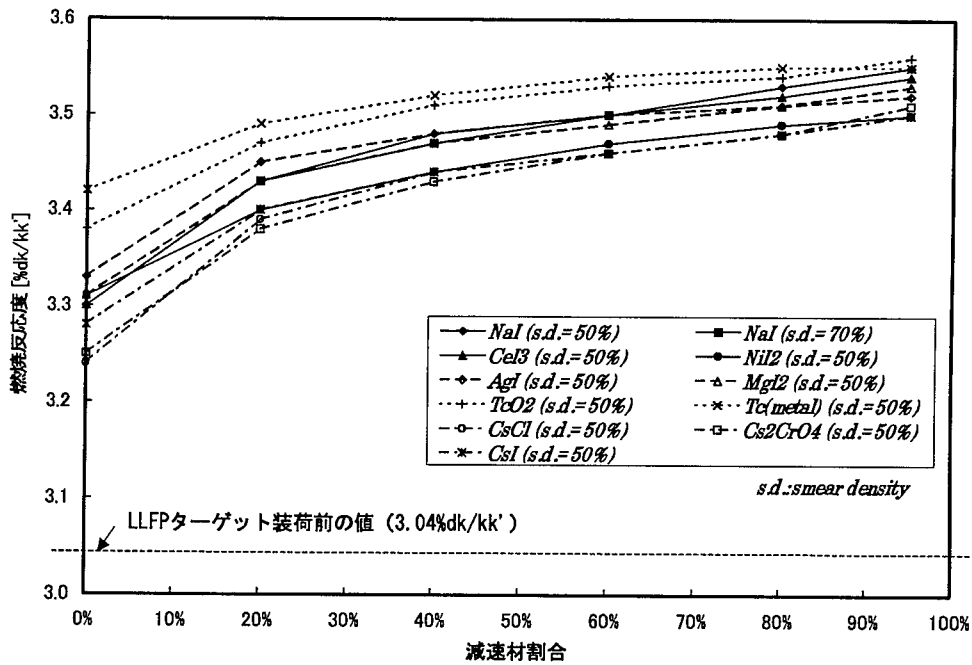


図 2-5 LLFP ターゲット装荷による最大線出力の変化
(参考文献[3] JNC TN9400 2001-098 より引用)

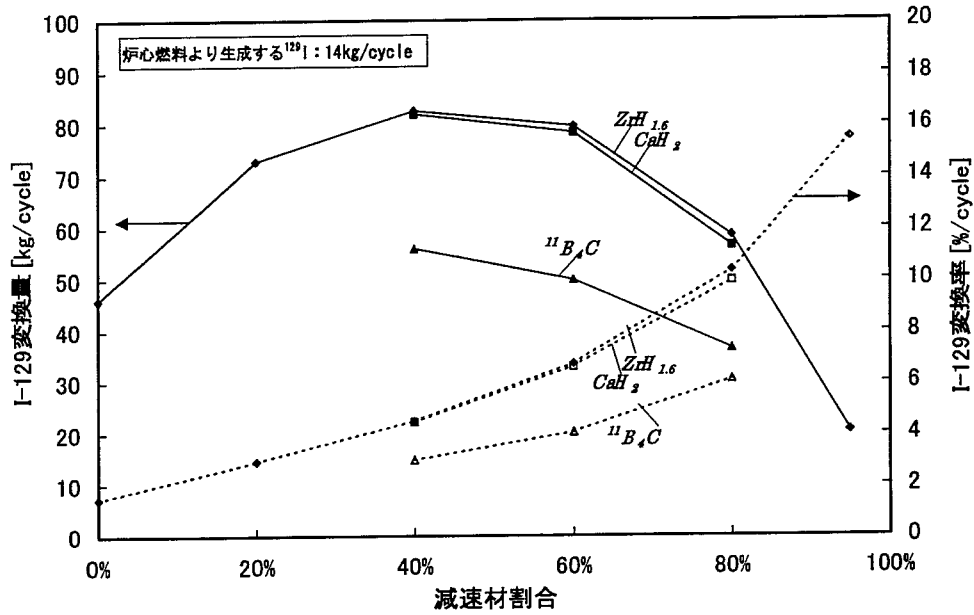


図 2-6 減速材化学形と LLFP 変換特性の関係 (NaI, スミア密度 50%)
(参考文献[3] JNC TN9400 2001-098 より引用)

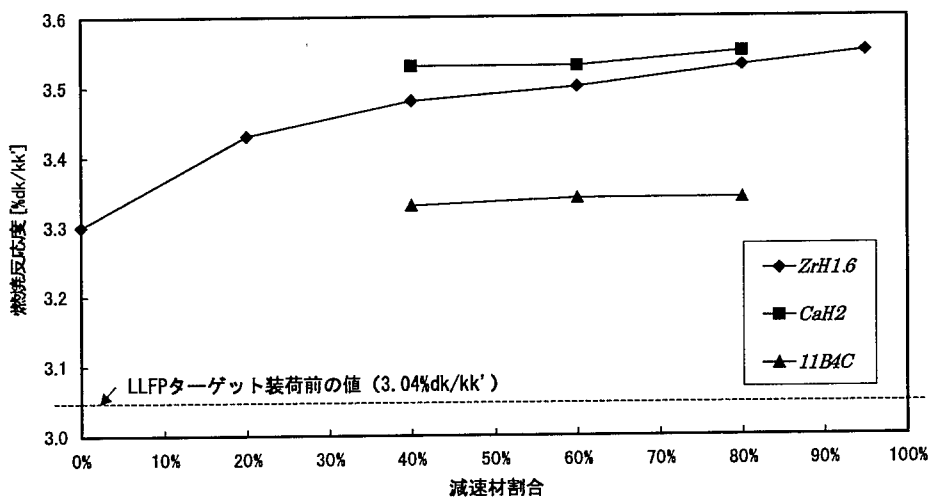


図 2-7 減速材化学形と燃焼反応度変化の関係 (NaI, スミア密度 50%)
(参考文献[3] JNC TN9400 2001-098 より引用)

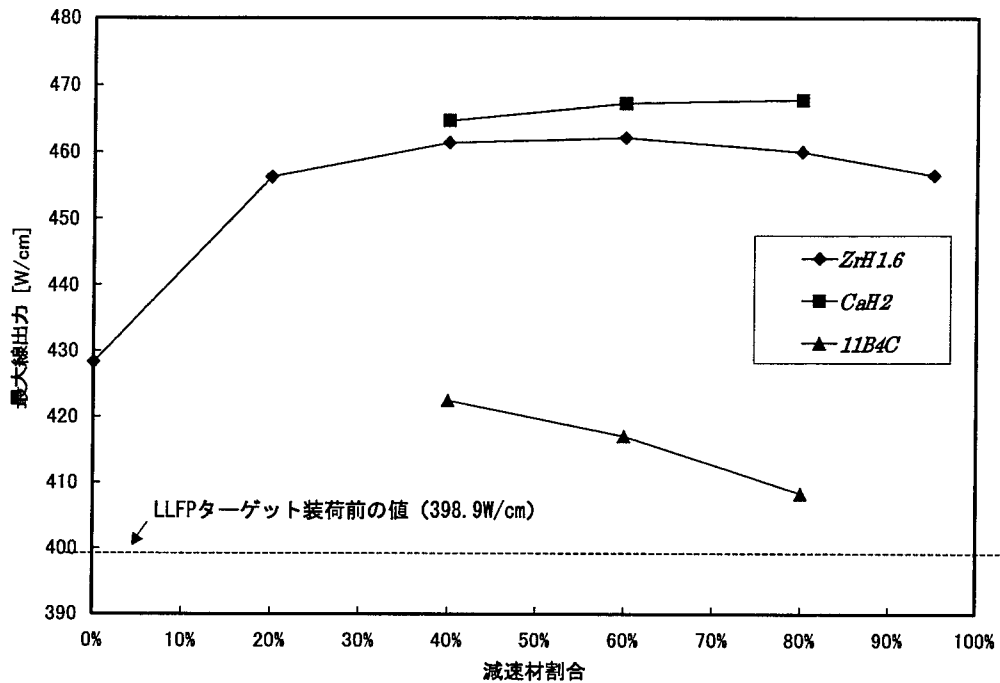
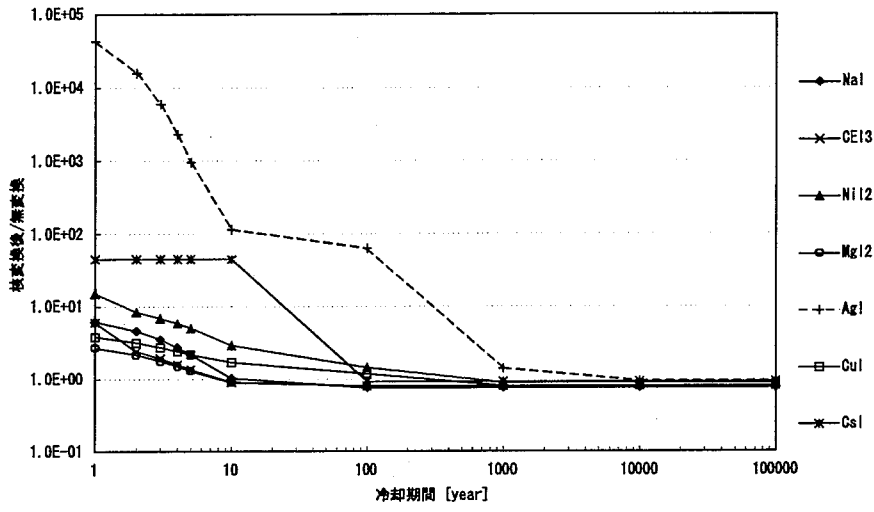
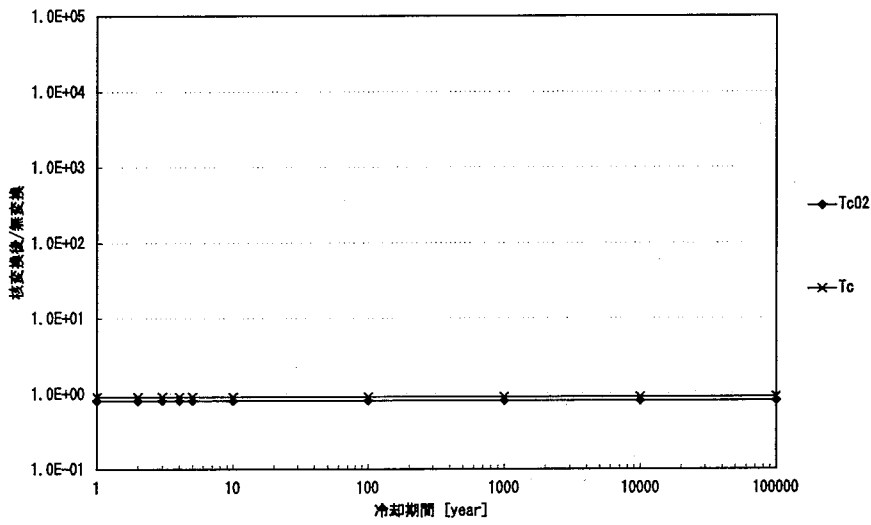


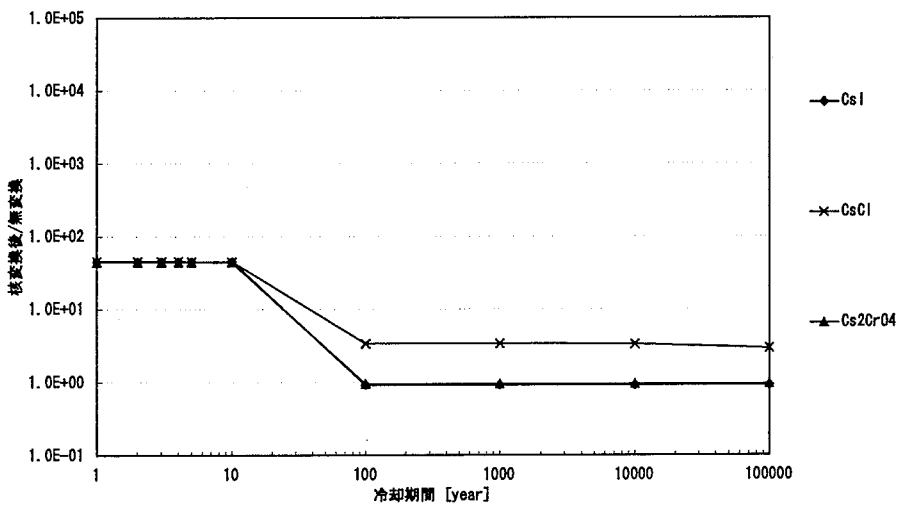
図 2-8 減速材化学形と最大線出力変化の関係 (NaI, スミア密度 50%)
 (参考文献[3] JNC TN9400 2001-098 より引用)



I-129



Tc-99



Cs-135

図 2-9 LLFP 化合物の照射前後の放射能比
(参考文献[3] JNC TN9400 2001-098 より引用)

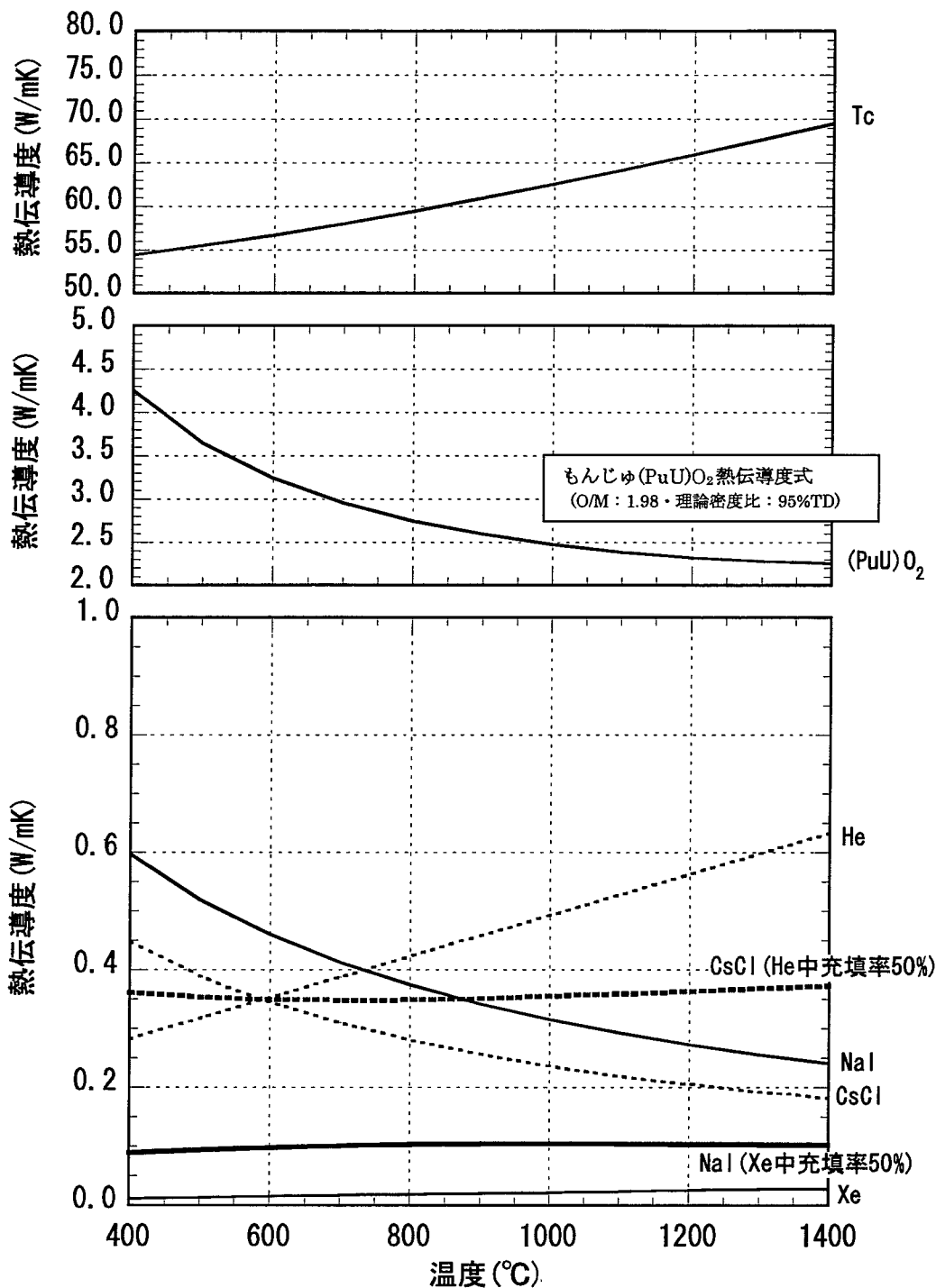


図 3-1 ターゲット材等熱伝導度の比較

(上段から Tc、(PuU)O₂、NaI・CsCl・Xe・He)

(注: NaI、CsCl 熱伝導度の温度依存性としては保守的にフォノン伝導のみを考慮し、高温側まで 1/T を外挿した)

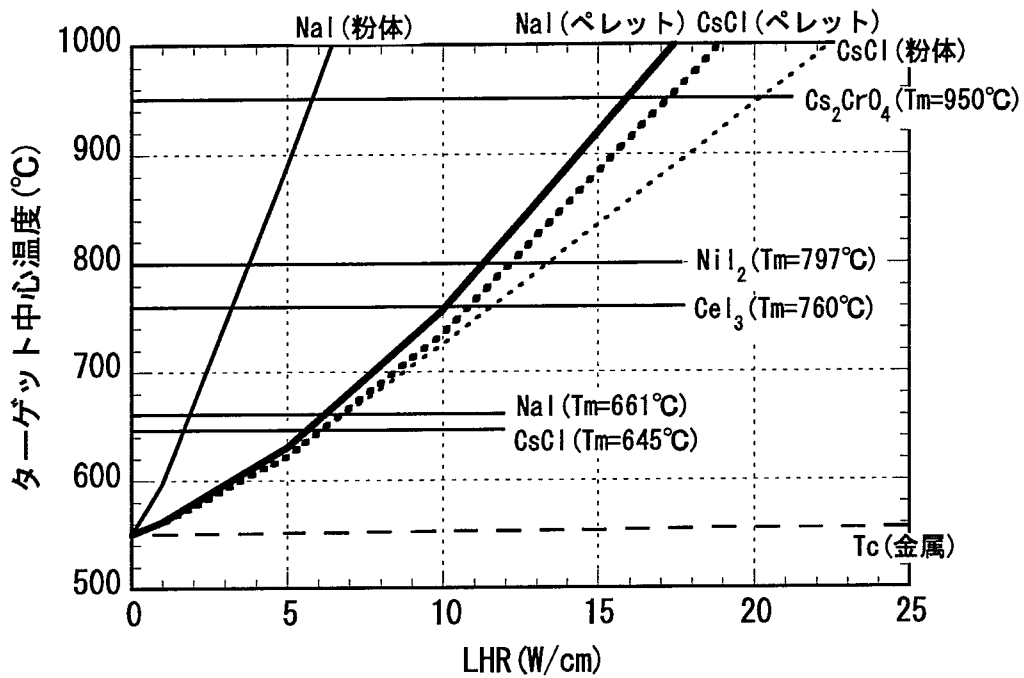


図 3-2 LLFP ターゲット融点と線出力の関係

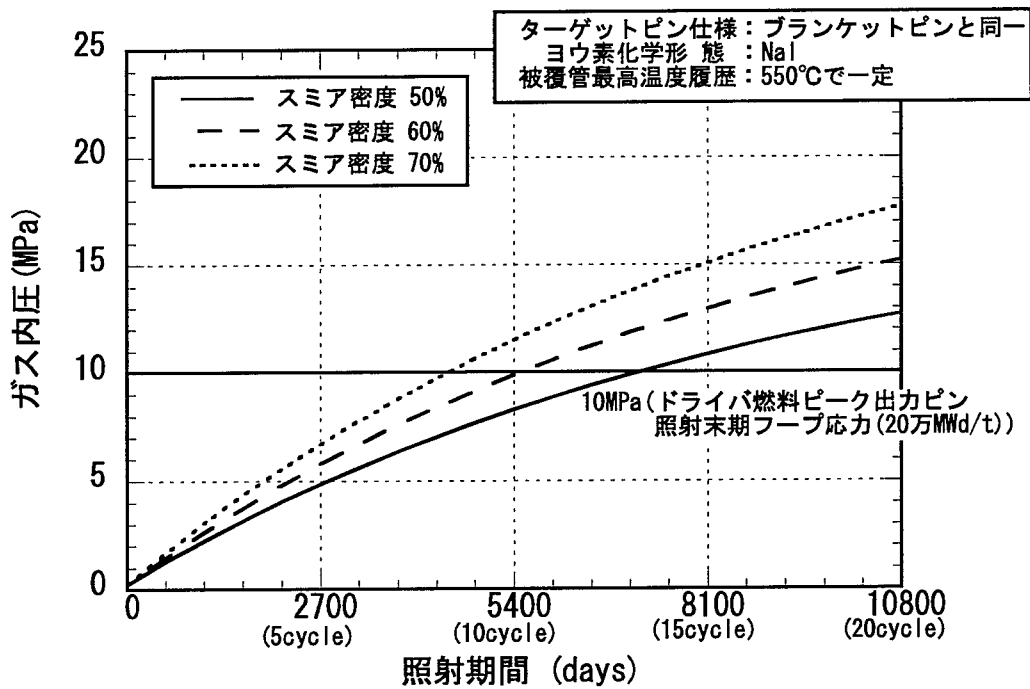


図 3-3 スミア密度をパラメータ(50%・60%・70%)とした
ガス内圧の時間変化

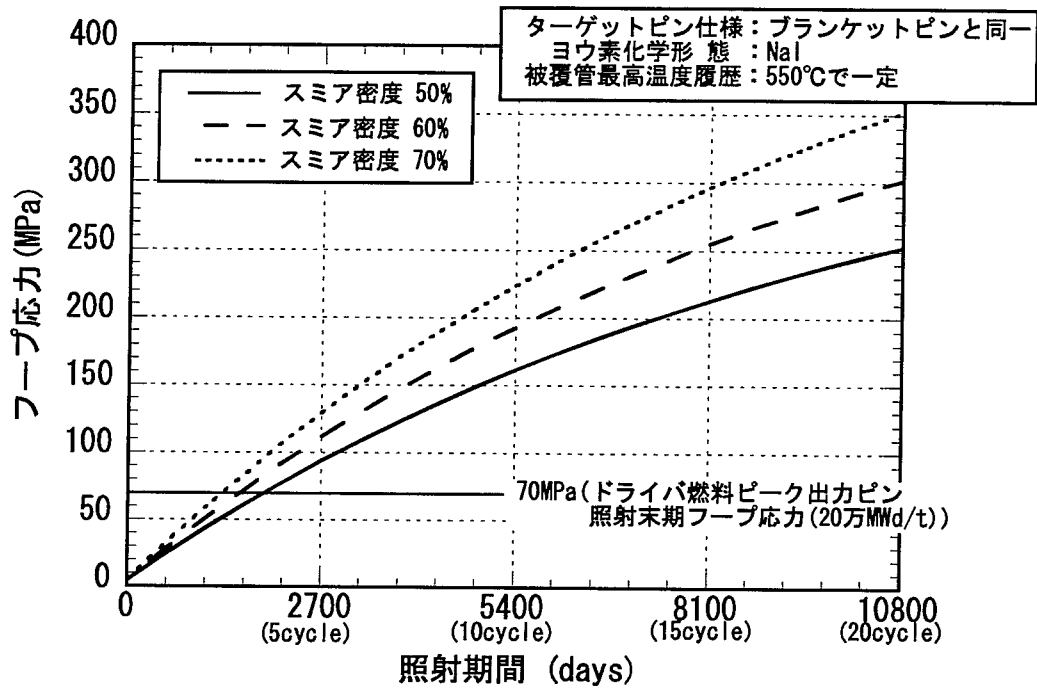


図 3-4 スミア密度をパラメータ(50%・60%・70%)とした
 フープ応力の時間変化

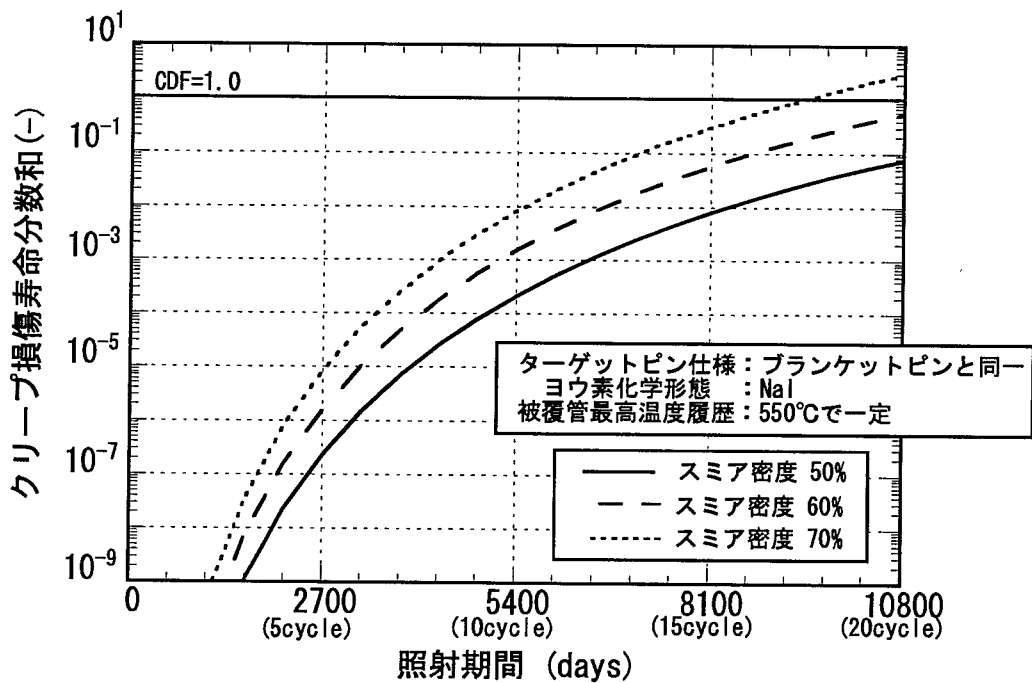


図 3-5 スミア密度をパラメータ(50%・60%・70%)とした
 CDF 時間変化(St ベース)

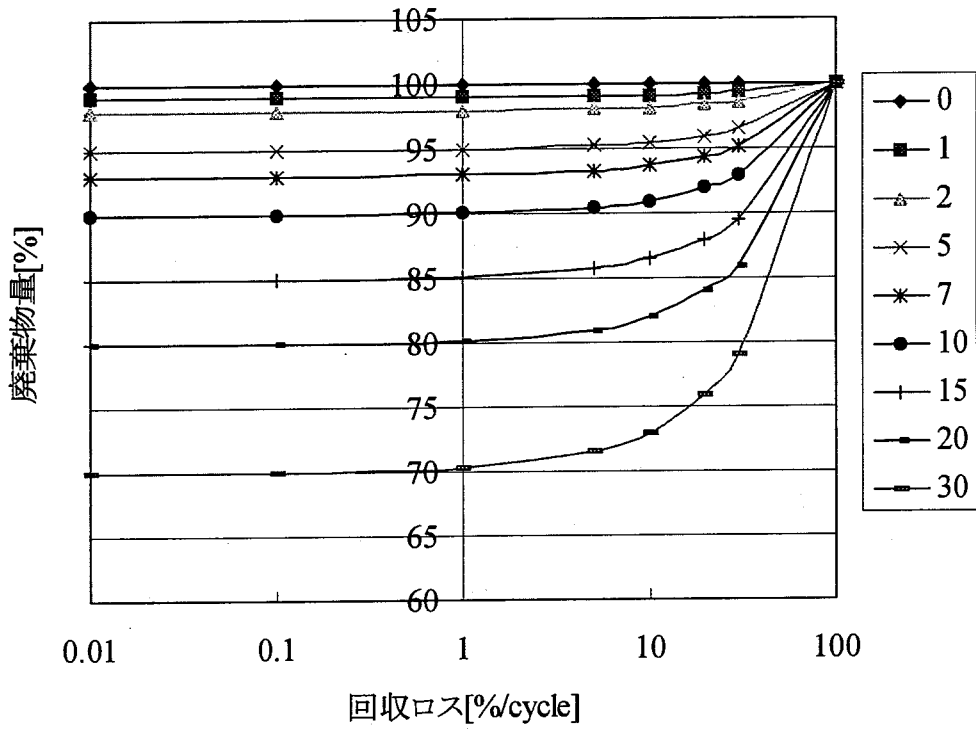


図 4-1 ワンススルー核変換による LLFP 低減効果
(図内数値は核変換率[%/cycle])

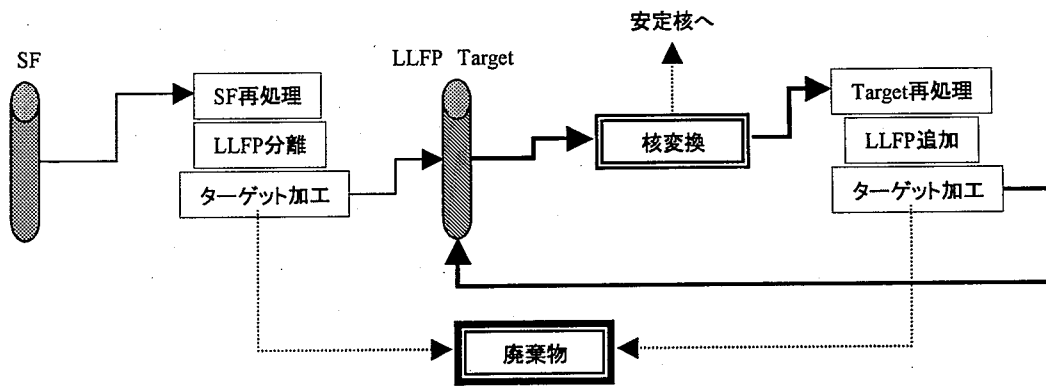


図 4-2 マルチリサイクル核変換の物質フロー

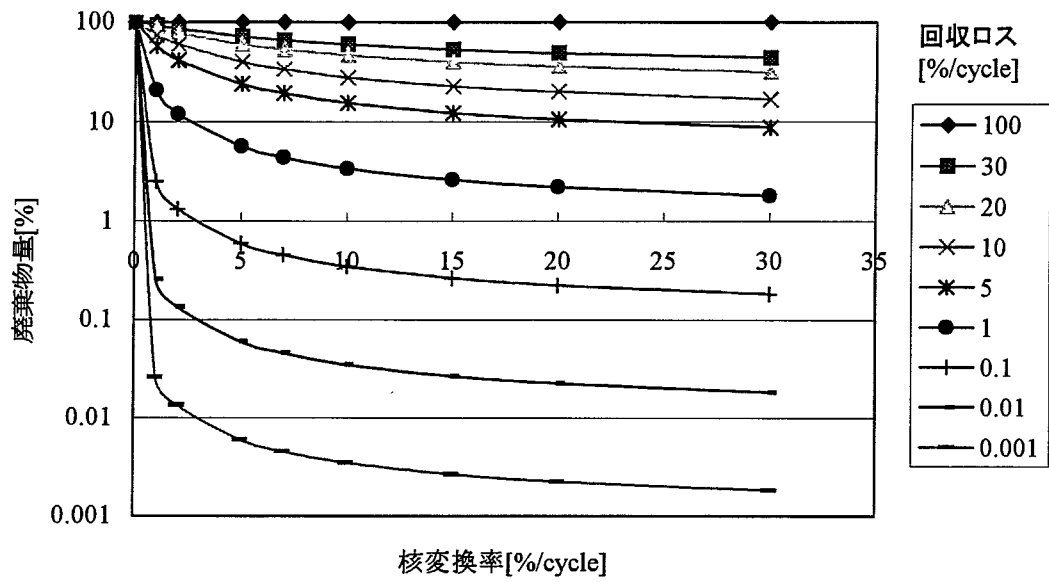


図 4-3-1 マルチリサイクルによる LLFP 低減効果
(LLFP ターゲットは燃料と同様に 4cycle 毎に再処理)

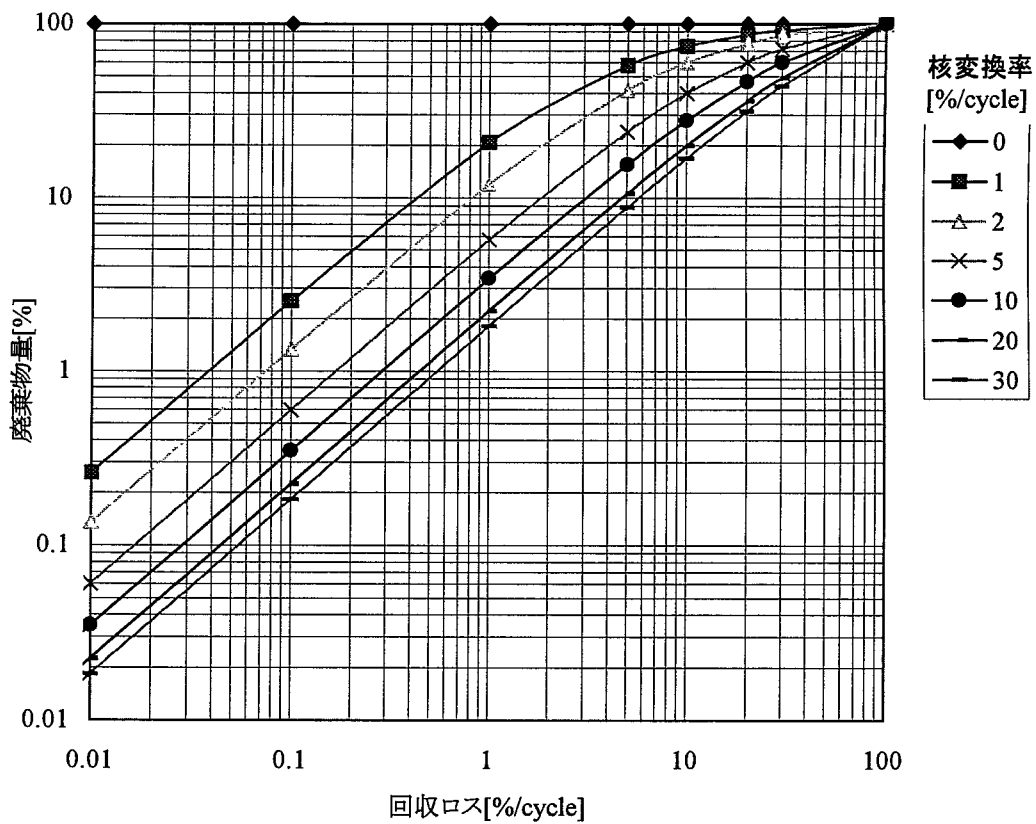


図 4-3-2 マルチリサイクルによる LLFP 低減効果
(LLFP ターゲットは燃料と同様に 4cycle 毎に再処理)

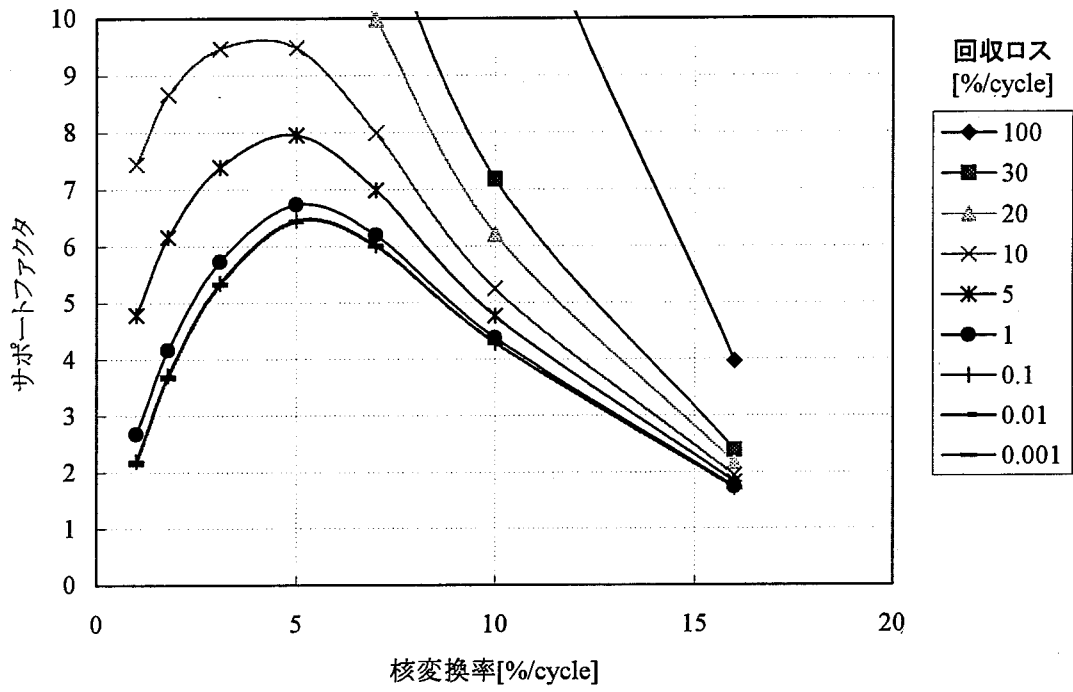


図 4-4 ^{129}I 集中マルチリサイクル時のサポートファクター

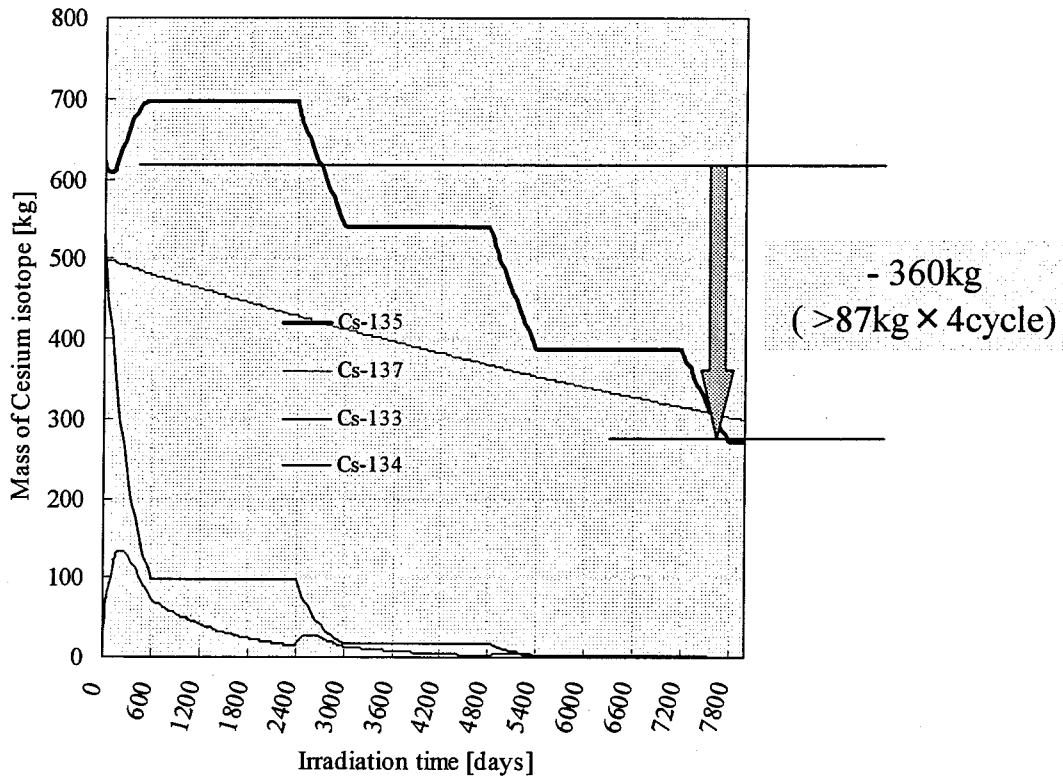


図 5-1 照射冷却を適用した場合の Cs 組成の変化
(BWR スペクトル、 $\phi=2.3 \times 10^{15}$ での照射)

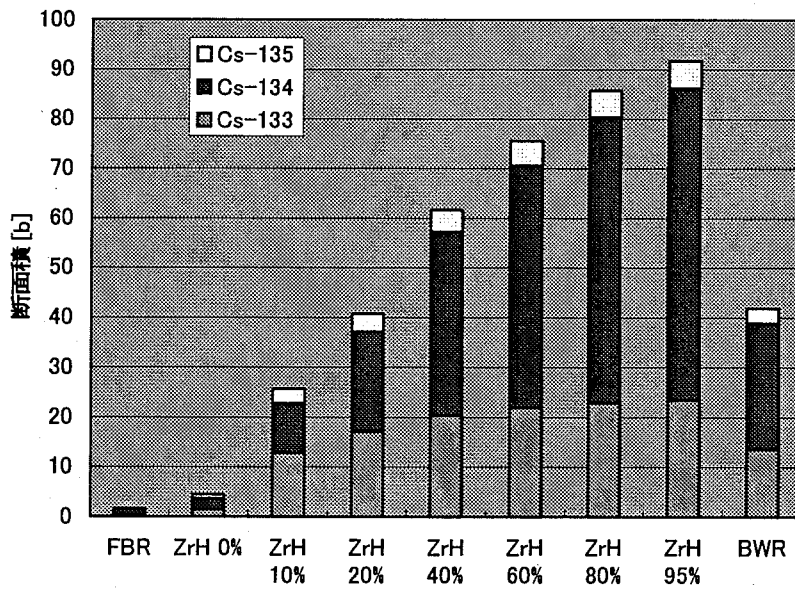


図 5-2 Cs 同位体断面面積のスペクトル依存性

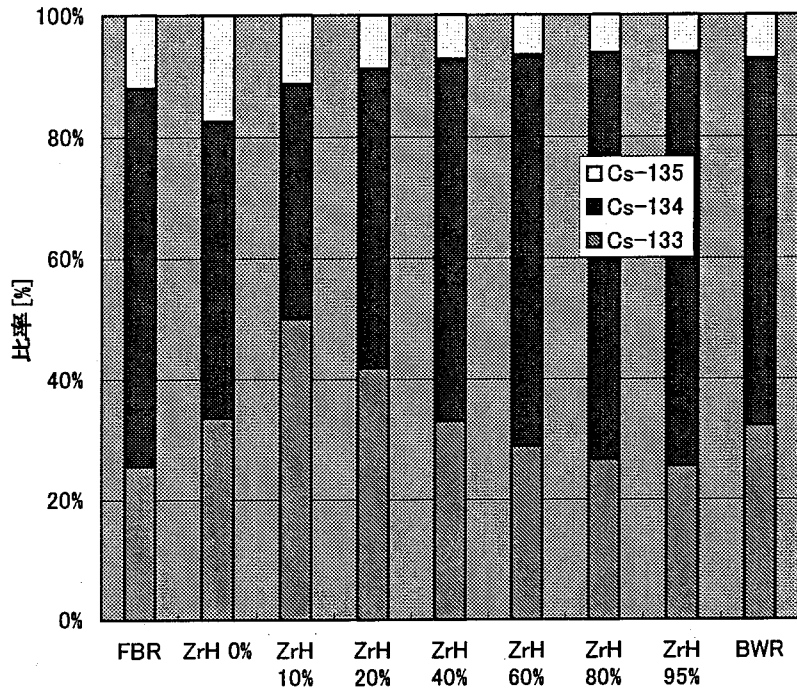


図 5-3 ^{133}Cs , ^{134}Cs 及び ^{135}Cs の断面積比率

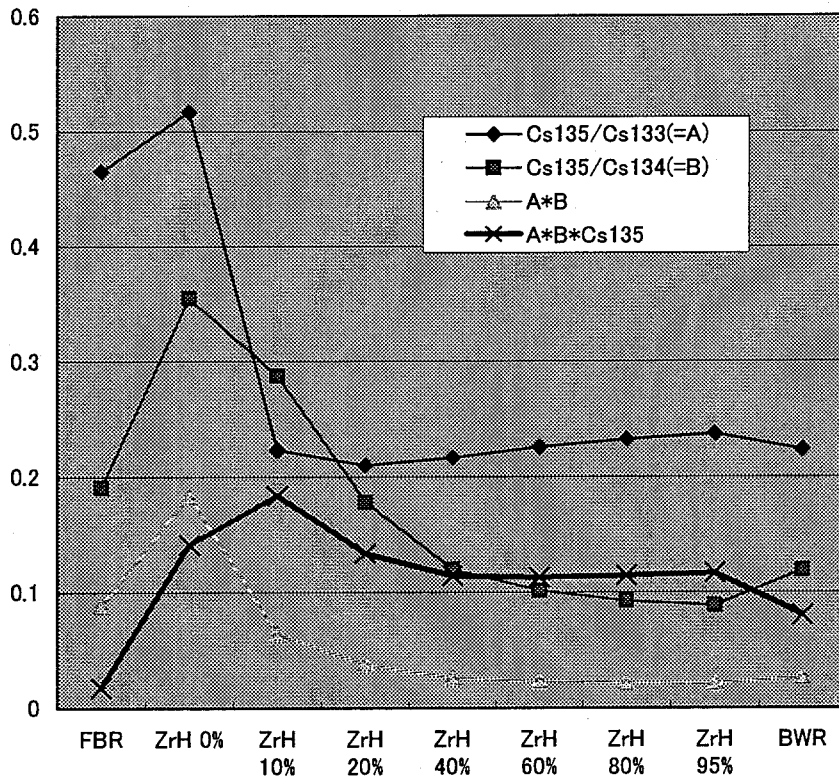


図 5-4 Cs 同位体断面積比のスペクトル依存性

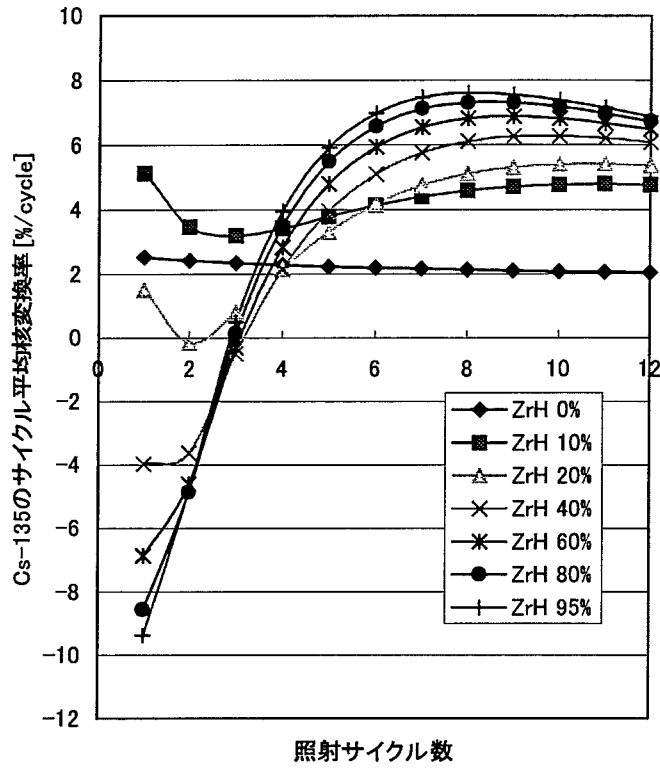


図 5-5 連続照射時の ¹³⁵Cs 変換率
(中性子束=7.0e+14 [n/cm2sec])

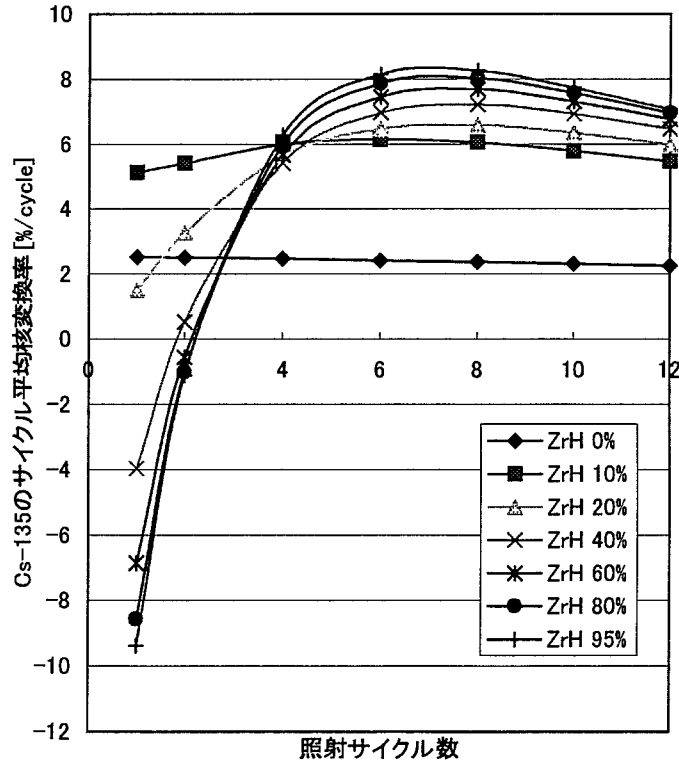


図 5-6 照射冷却を行う場合の ¹³⁵Cs 変換率
(中性子束=7.0e+14 [n/cm2sec])

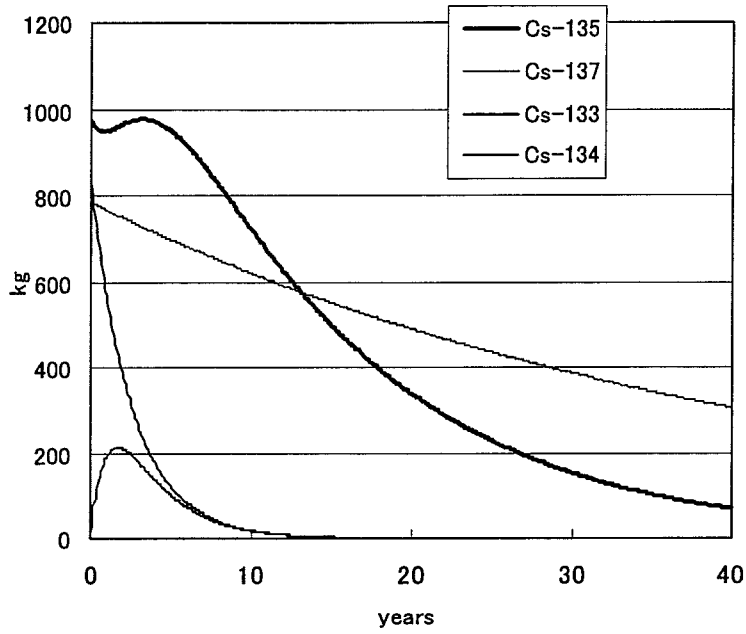


図 5-7 長期連続照射による Cs 組成変化
(ZrH20%, $\phi=7.0e+14$ [n/cm2sec])

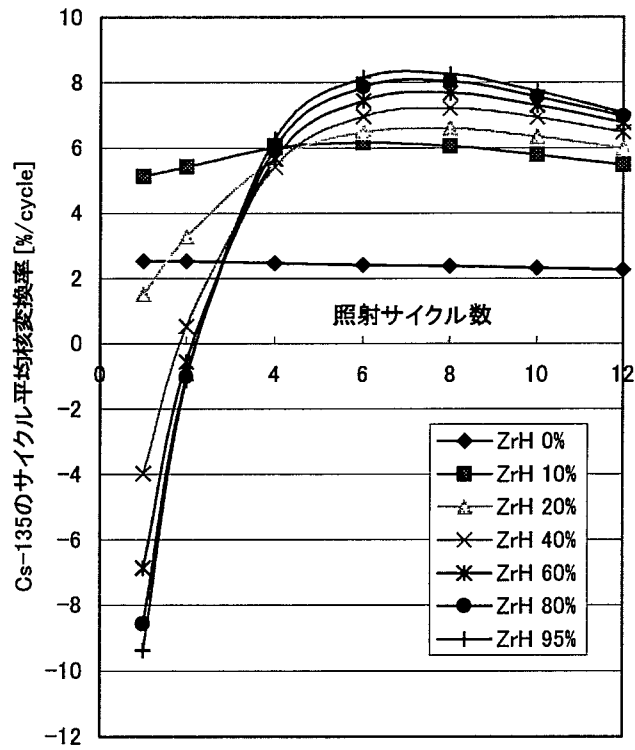


図 5-8 照射冷却を行う場合の ^{135}Cs 変換率
(中性子束= $7.0e+14$ [n/cm2sec])

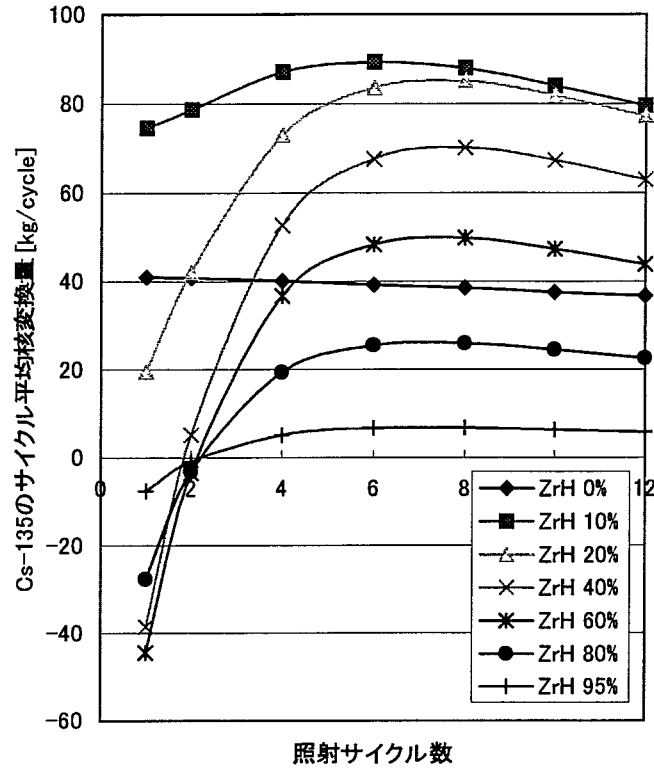


図 5-9 照射冷却を行う場合の ^{135}Cs 変換量
(中性子束= $7.0\text{e}+14$ [n/cm²sec])

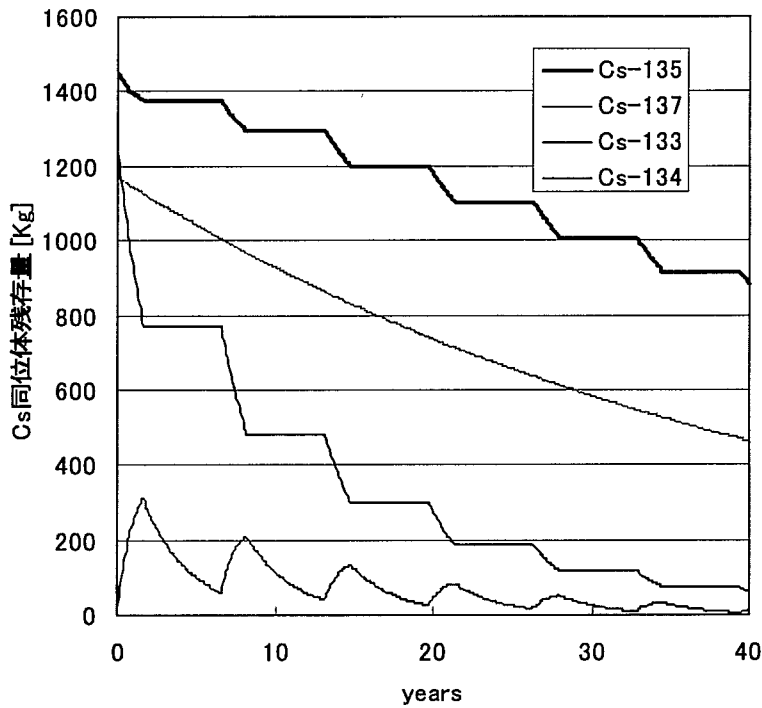


図 5-10 照射冷却法を適用した場合の Cs 組成変化
(ZrH10%, $\phi=7.0\text{e}+14$ [n/cm²sec])

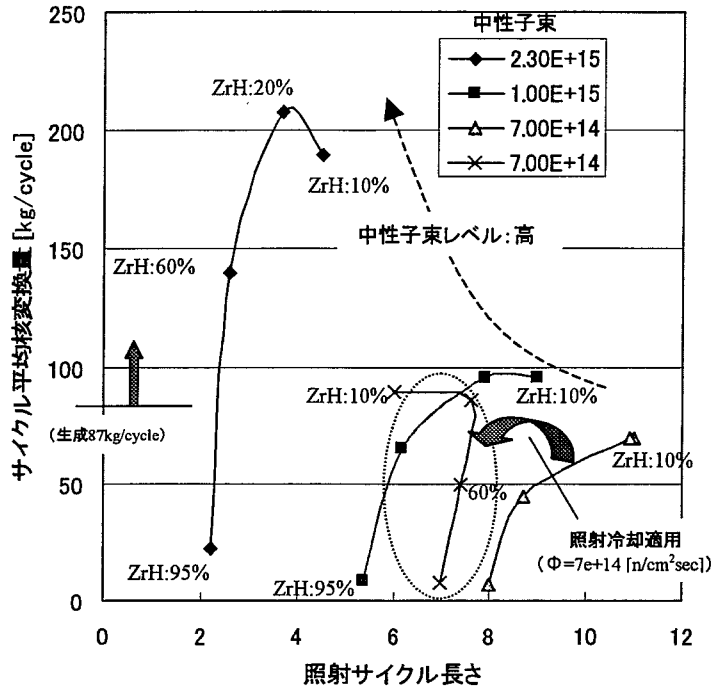


図 5-11 平均核変換率が最大となる照射サイクル長さ

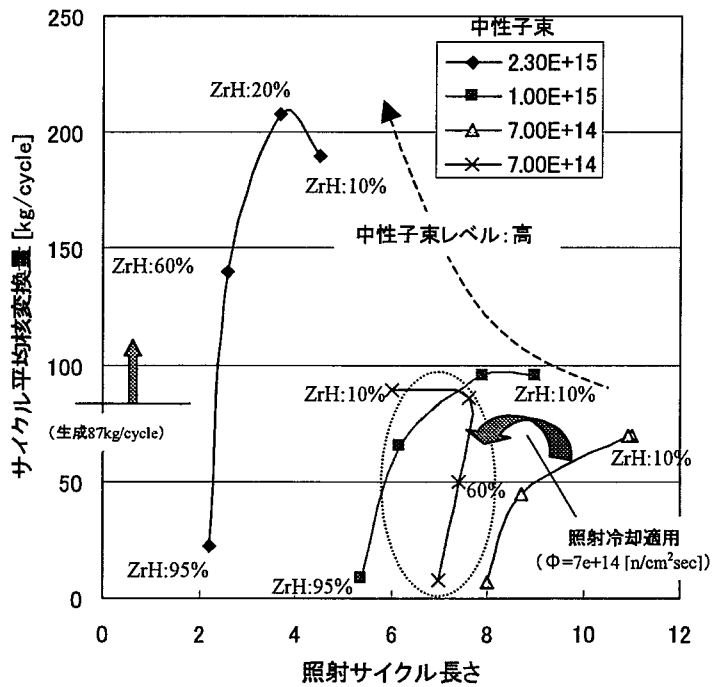


図 5-12 平均核変換量が最大となる照射サイクル長さ

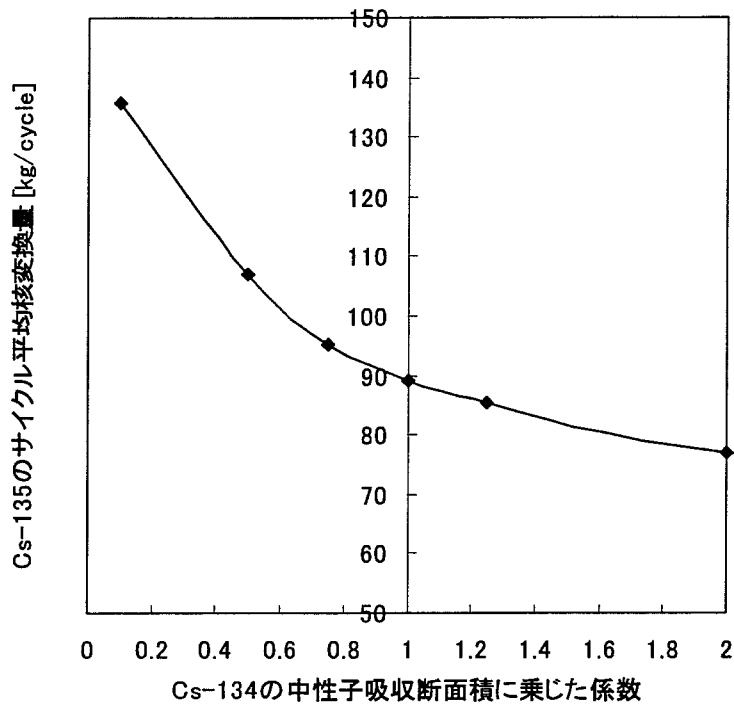


図 5-13 ^{135}Cs 変換量に対する ^{134}Cs 吸収断面積の感度
(ZrH:10%, $\phi=7\text{e}+14$, 照射冷却あり)

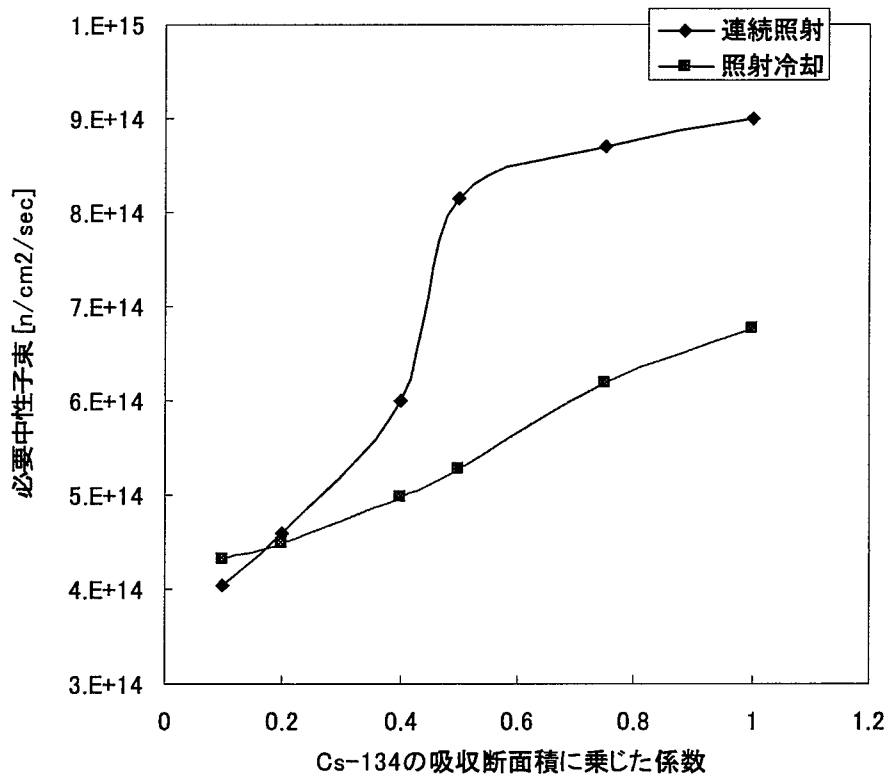


図 5-14 必要中性子束に対する ^{134}Cs 断面積の感度

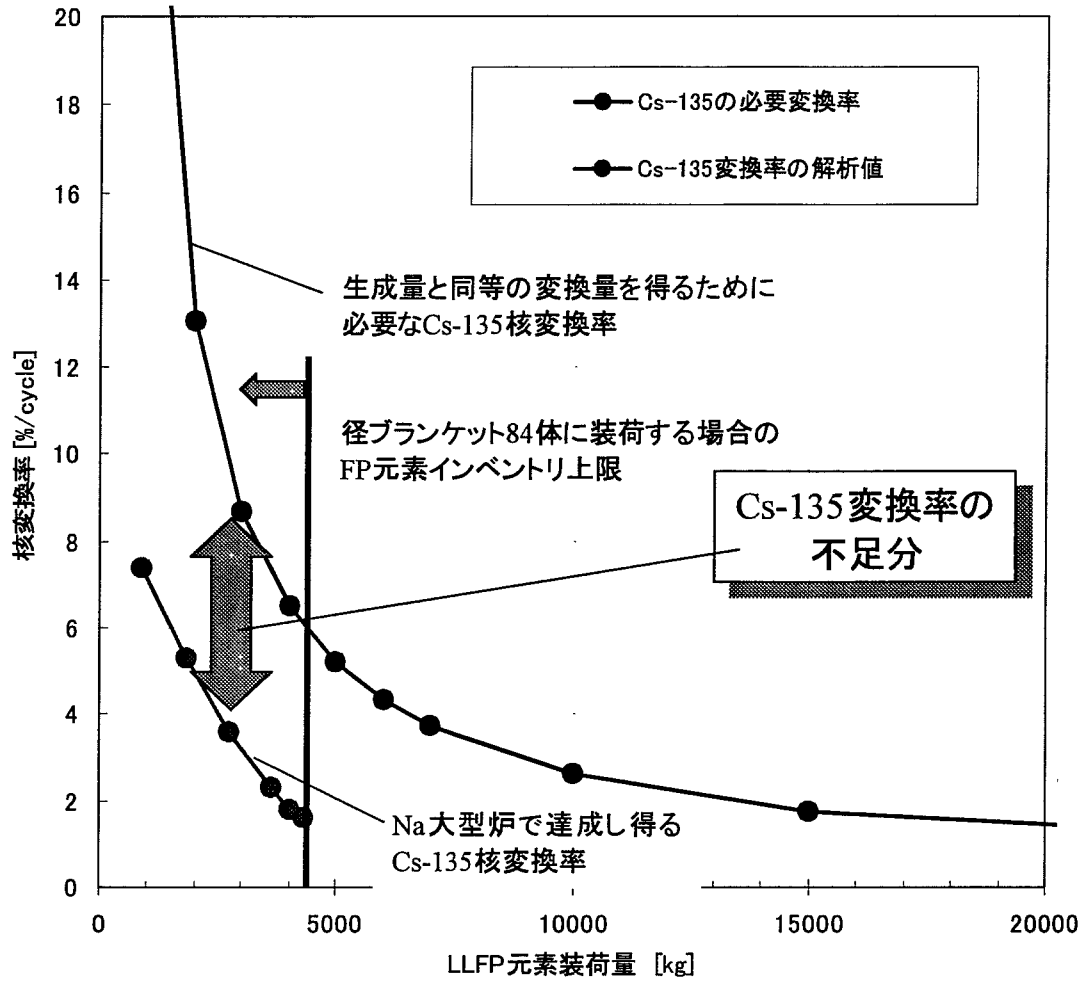


図 5-15 Cs 装荷量と必要核変換率の関係

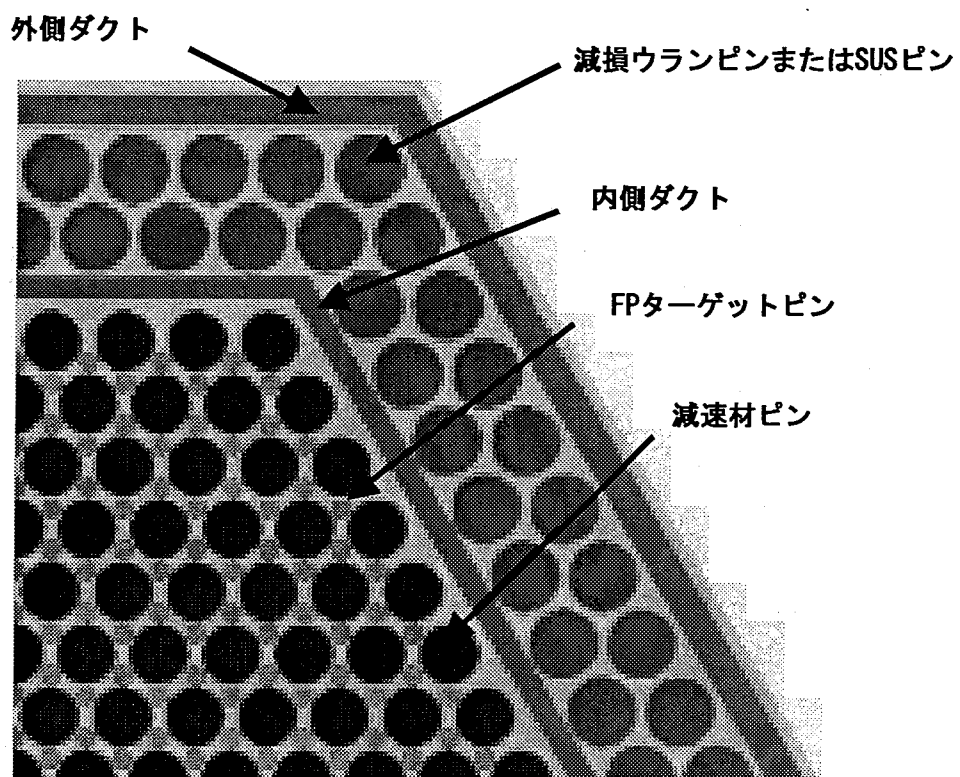
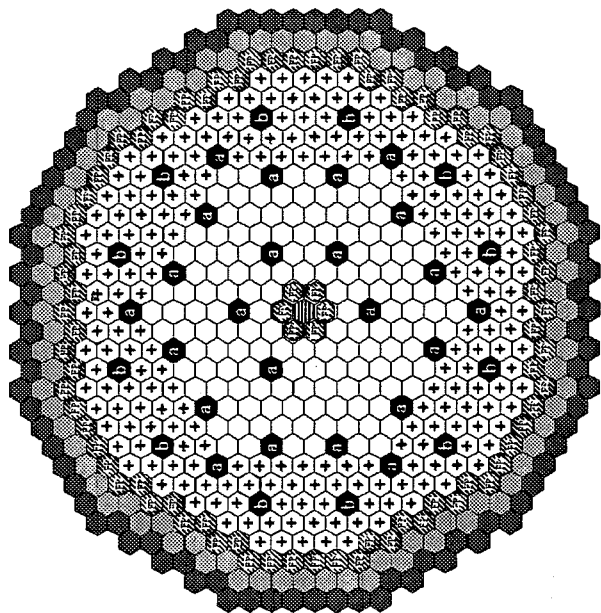
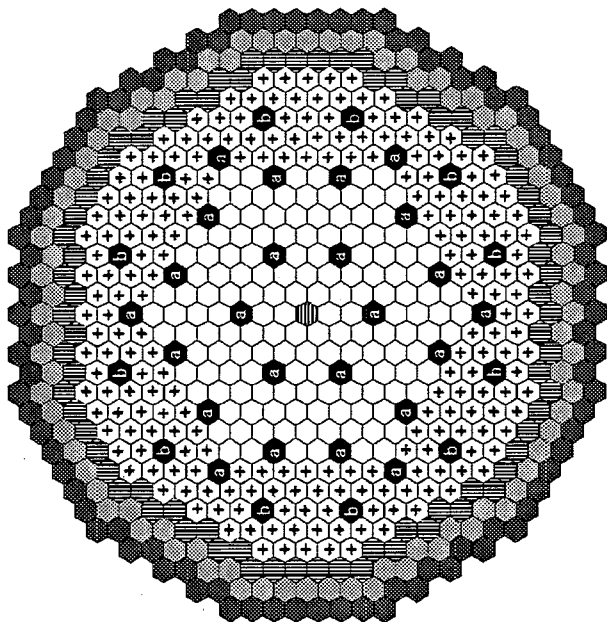


図 6-1 高効率核変換集合体の構成



○	内側炉心燃料集合体	144体
⊕	外側炉心燃料集合体	222体
▨	高効率核変換集合体	6体
▩	Moderator+LLFP	78体
▧	SUS集合体	1体
▦	SUS遮蔽体	84体
▥	B/C遮蔽体	90体
⬢	A系統制御棒	24体
⬣	B系統制御棒	12体
合 計		661体



○	内側炉心燃料集合体	150体
⊕	外側炉心燃料集合体	222体
▨	径方向ブランケット	78体
▩	SUS集合体	1体
▧	SUS遮蔽体	94体
▦	B/C遮蔽体	90体
⬢	A系統制御棒	24体
⬣	B系統制御棒	12体
合 計		661体

図 6-3 径プラ領域 ZrH(83.3%)&CsI
+ 炉心中央高効率核変換集合体装荷時の炉心配置(ケース7)

図 6-2 LLFP 核変換検討炉心

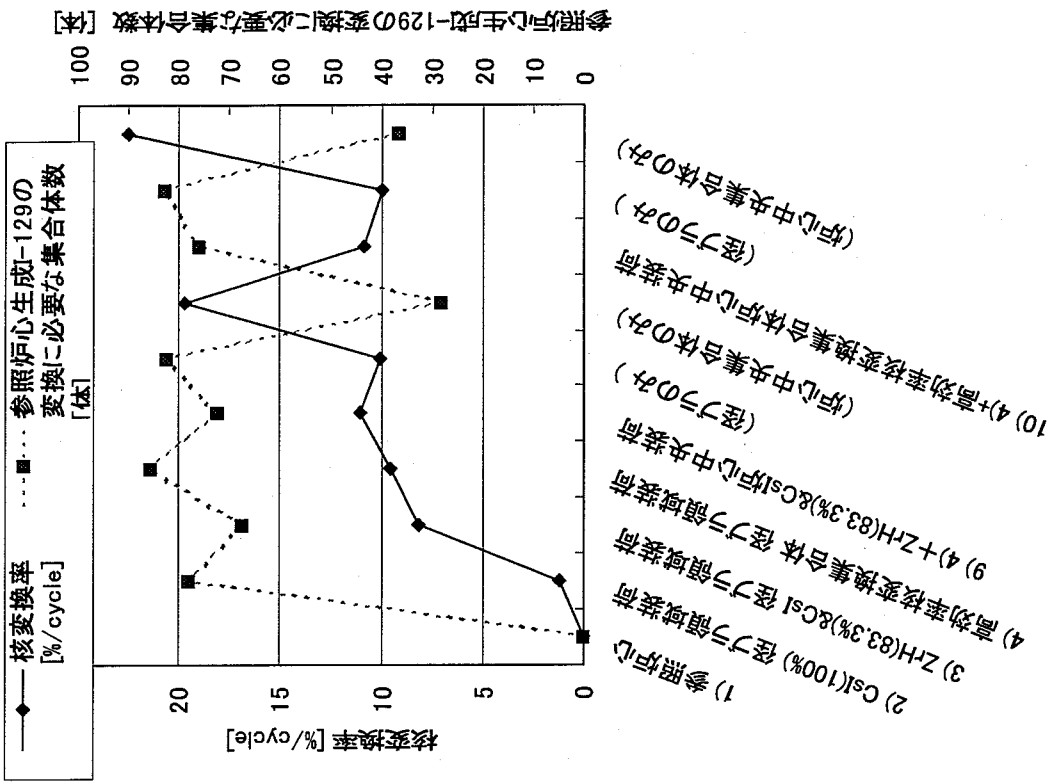


図 6-5 ^{129}I 核変換特性の比較(抜粋ケースのみ)

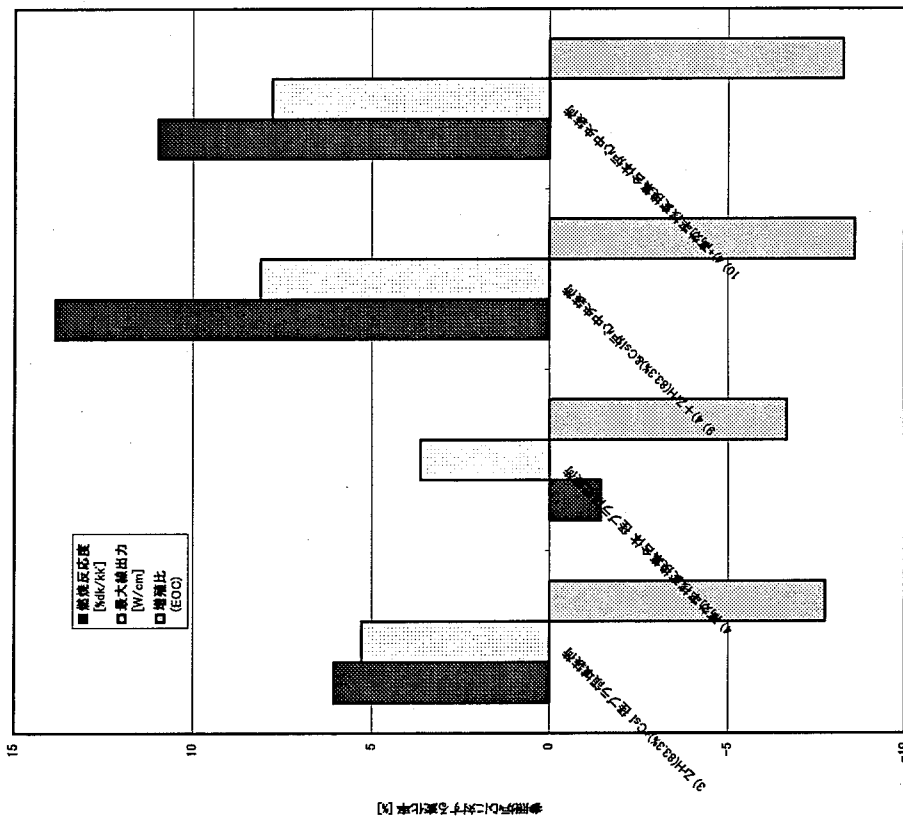


図 6-4 LLLFP 集合体装荷による炉心特性への影響 (参照炉心に対する変化率、抜粋ケースのみ)

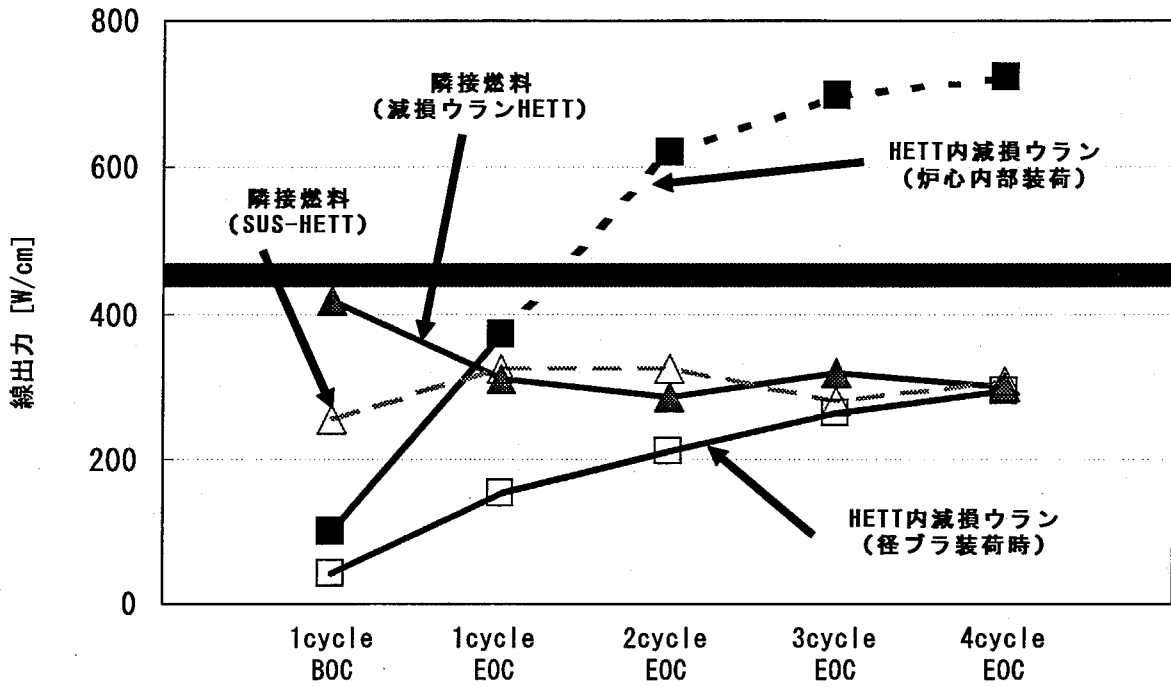


図 6-6 高効率核変換集合体(HETT)装荷による線出力への影響

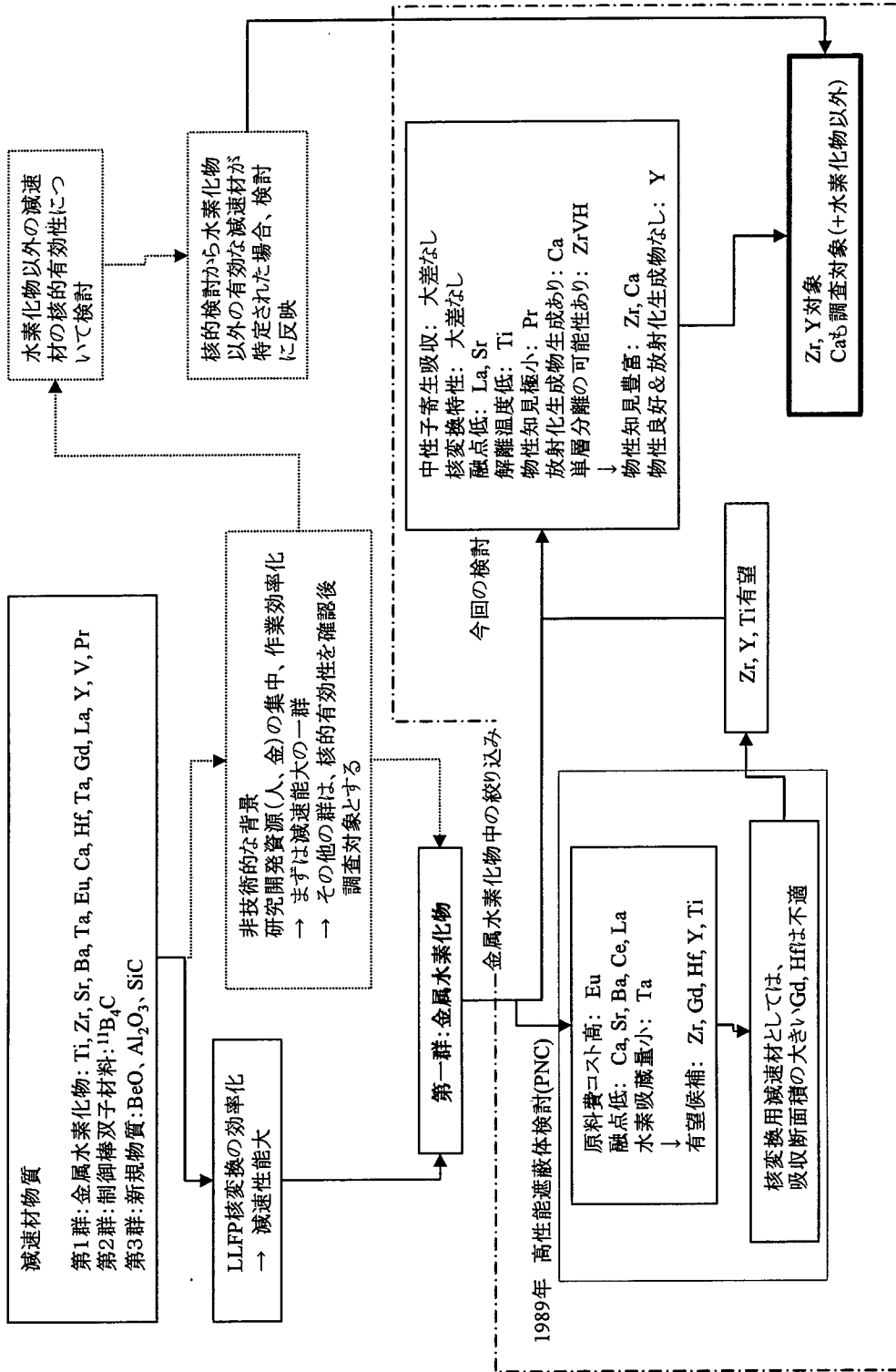


図 7-1-1 LLFP 核変換用減速材の検討フロー

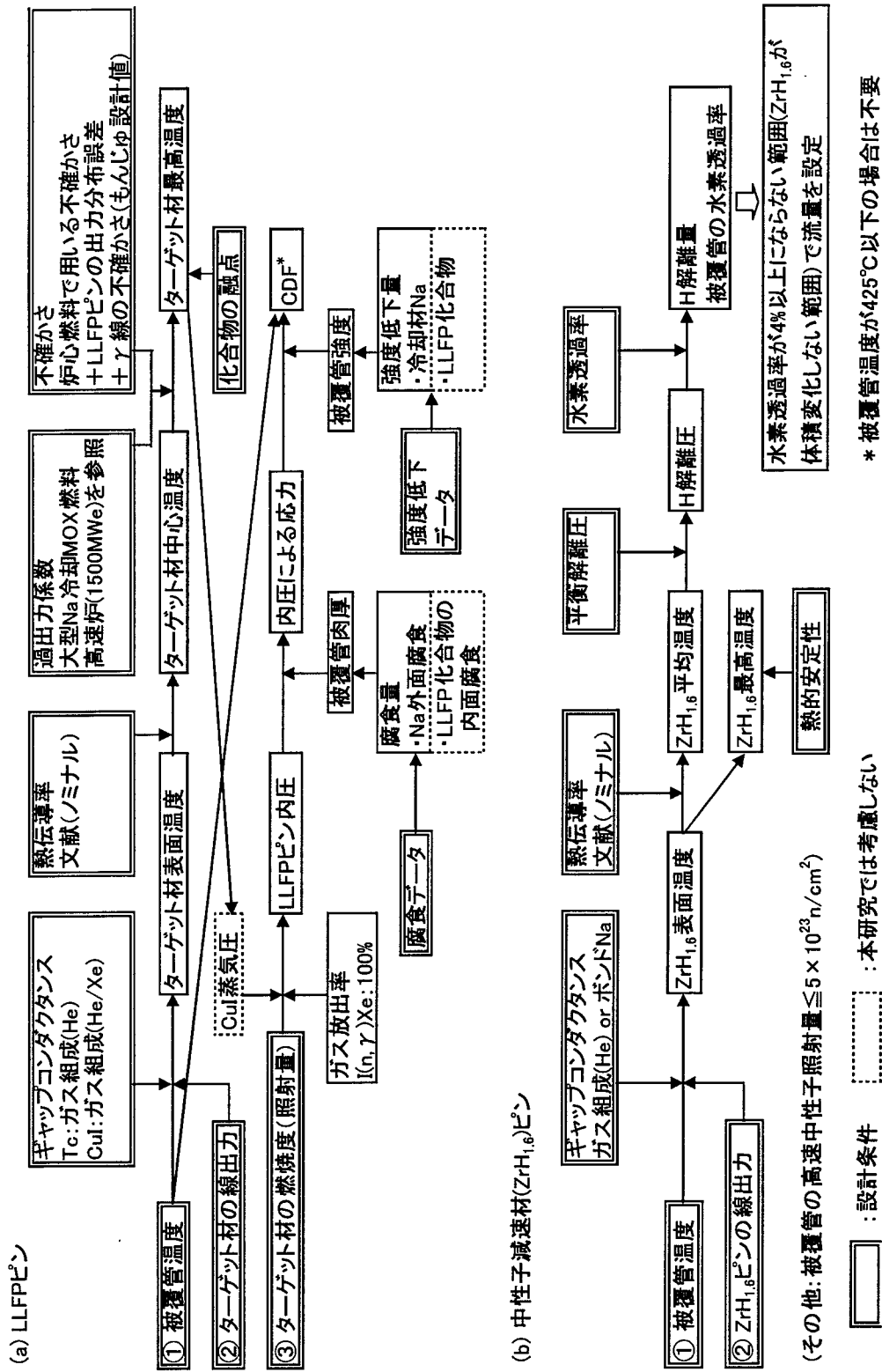


図 7-3-1 LLLFP 集合体の健全性評価の概要

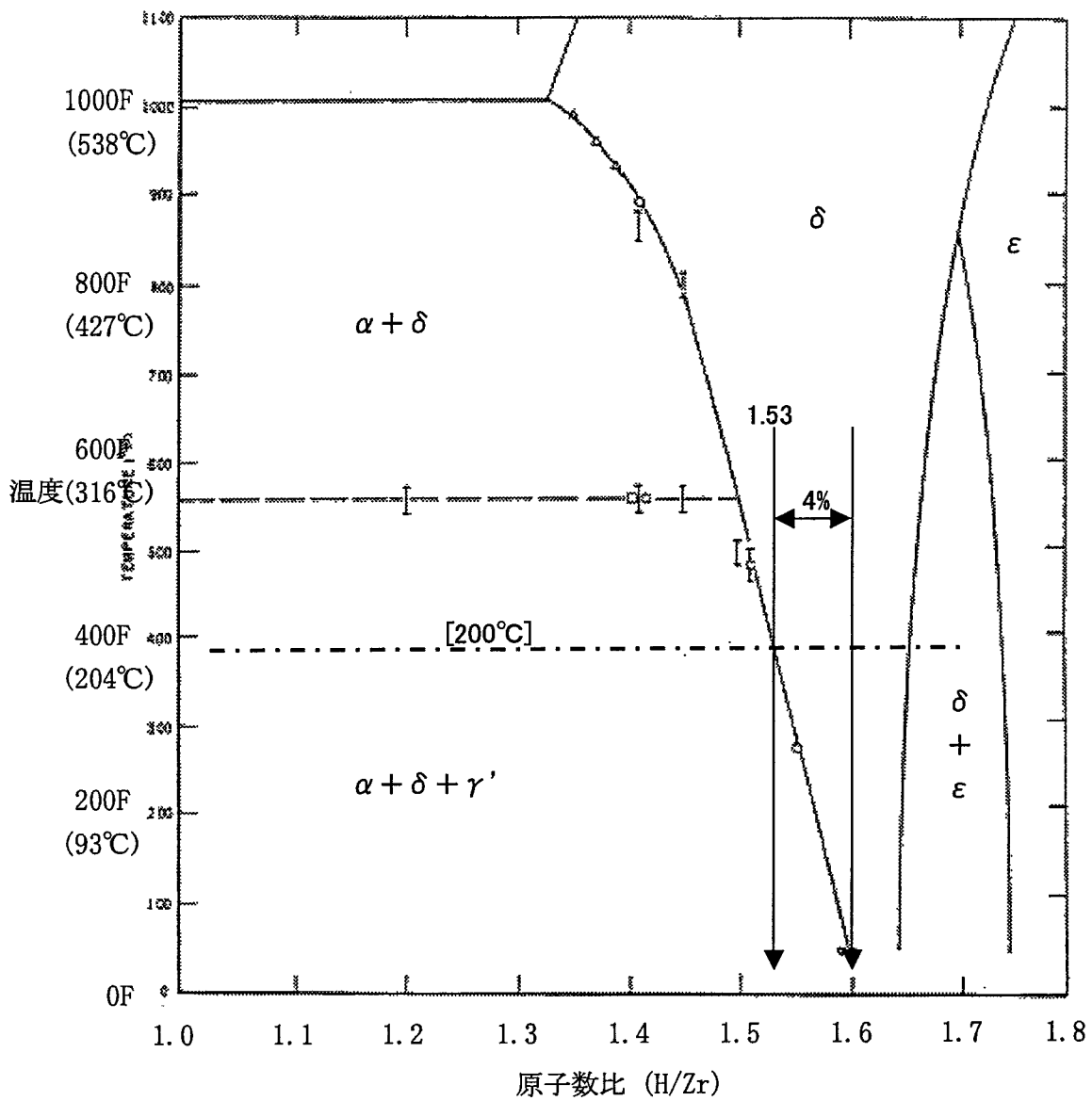


図7-3-2 ZrH₂の2相図

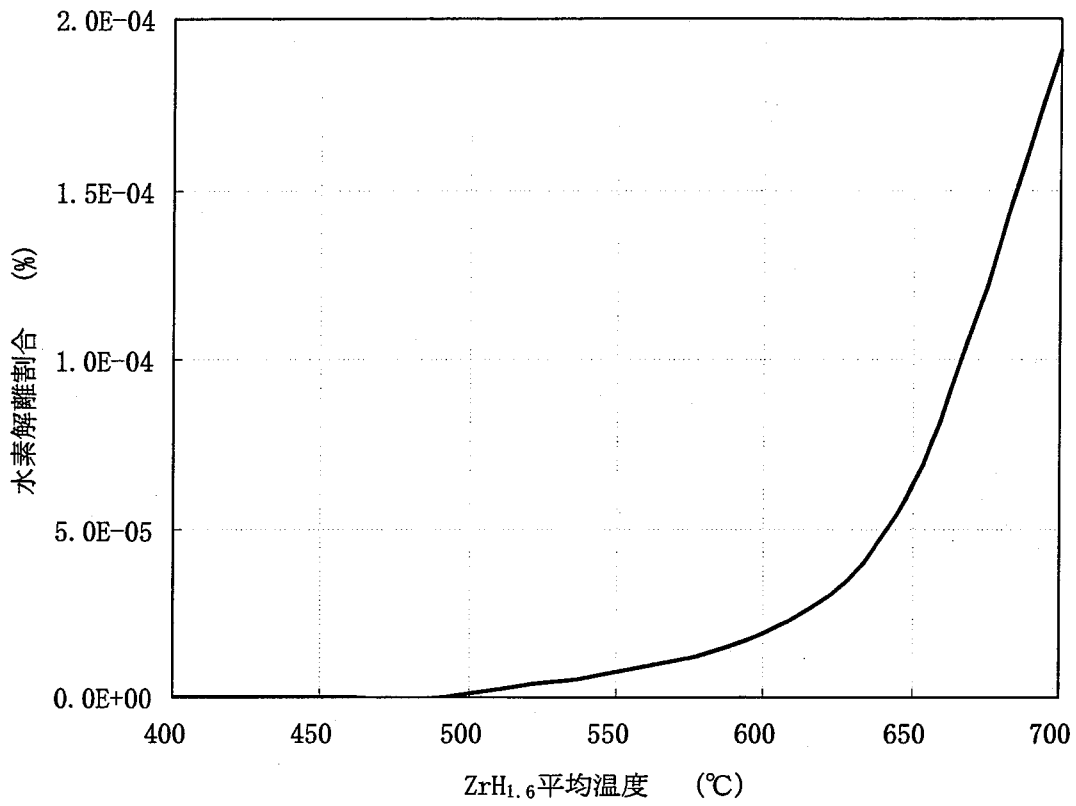


図 7-3-3 ZrH_{1.6}の水素解離割合の温度依存性

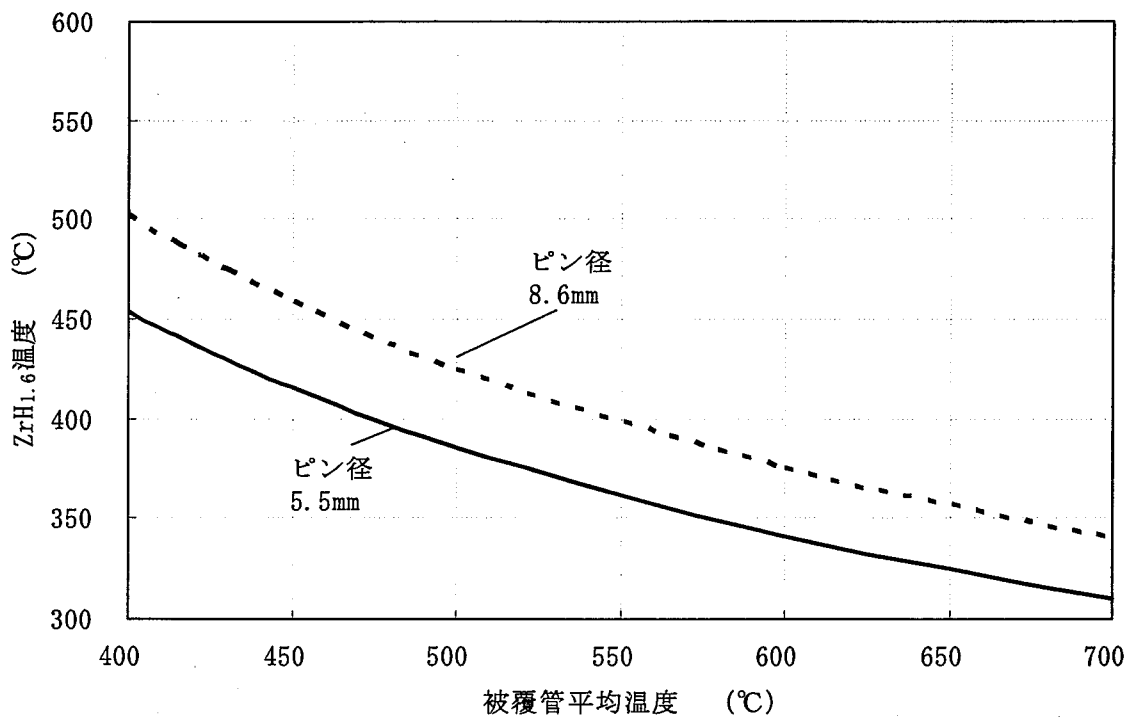


図 7-3-4 ZrH_{1.6} 温度と被覆管温度の関係

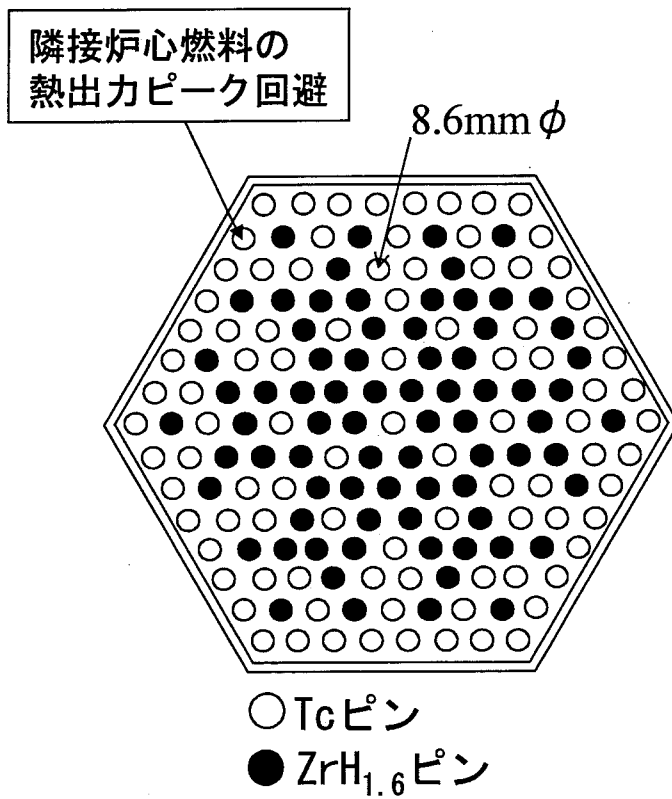


図 7-3-5 炉心領域装荷 Tc ターゲット集合体概念図

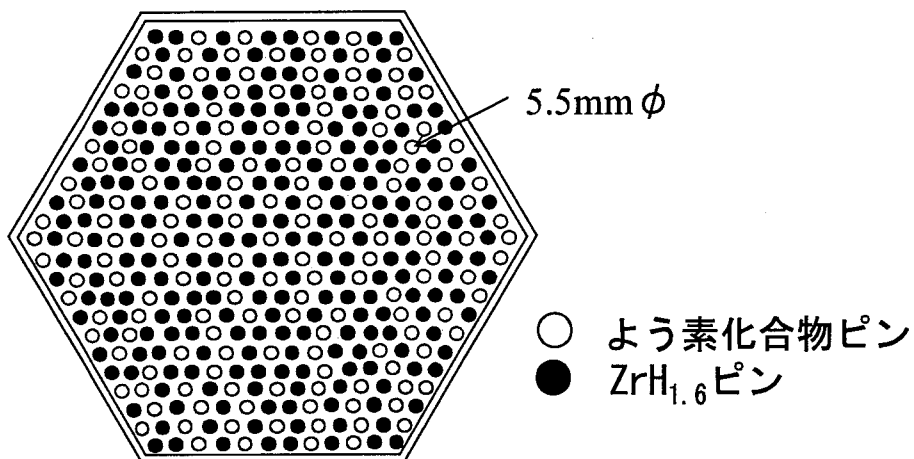


図 7-3-6 径ブランケット位置装荷 CuI 集合体概念図

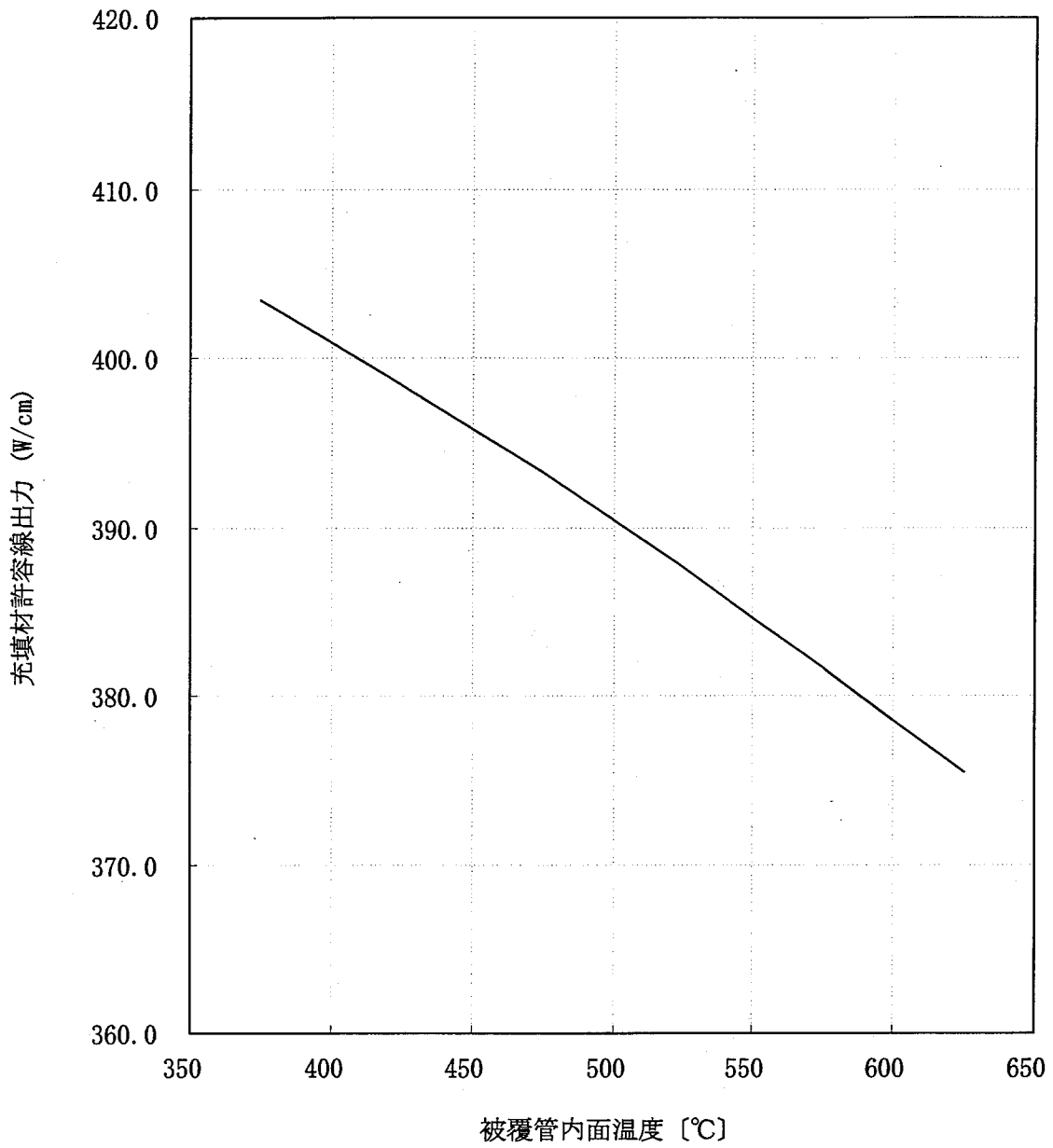


図7-3-7 Tcピンの定格出力時における被覆管内面温度と
充填材許容線出力の関係 (Tcターゲット集合体)

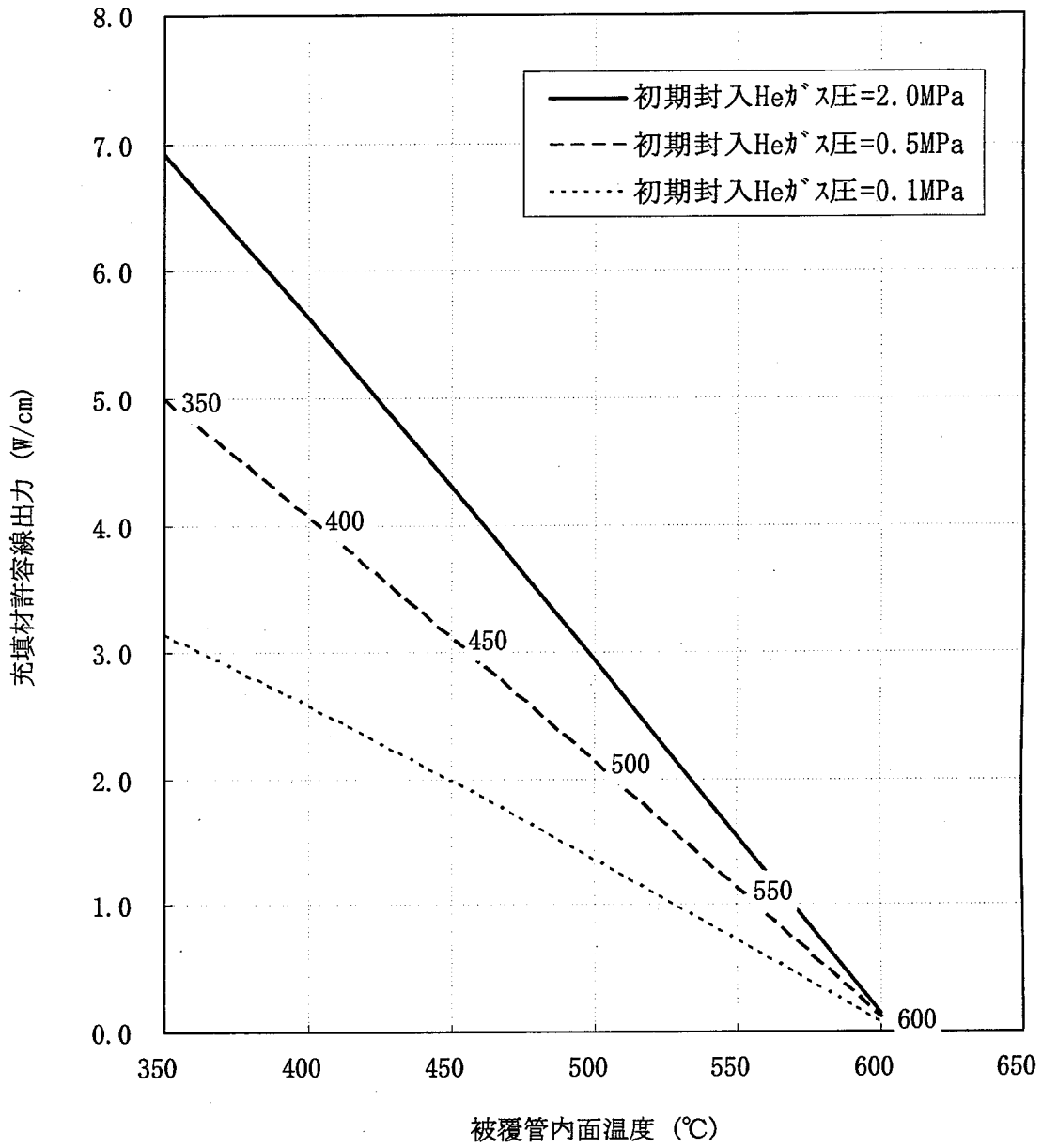


図 7-3-8 Cu10%Irの定格出力時における被覆管内面温度と
充填材許容線出力の関係 (CuIターゲット集合体)

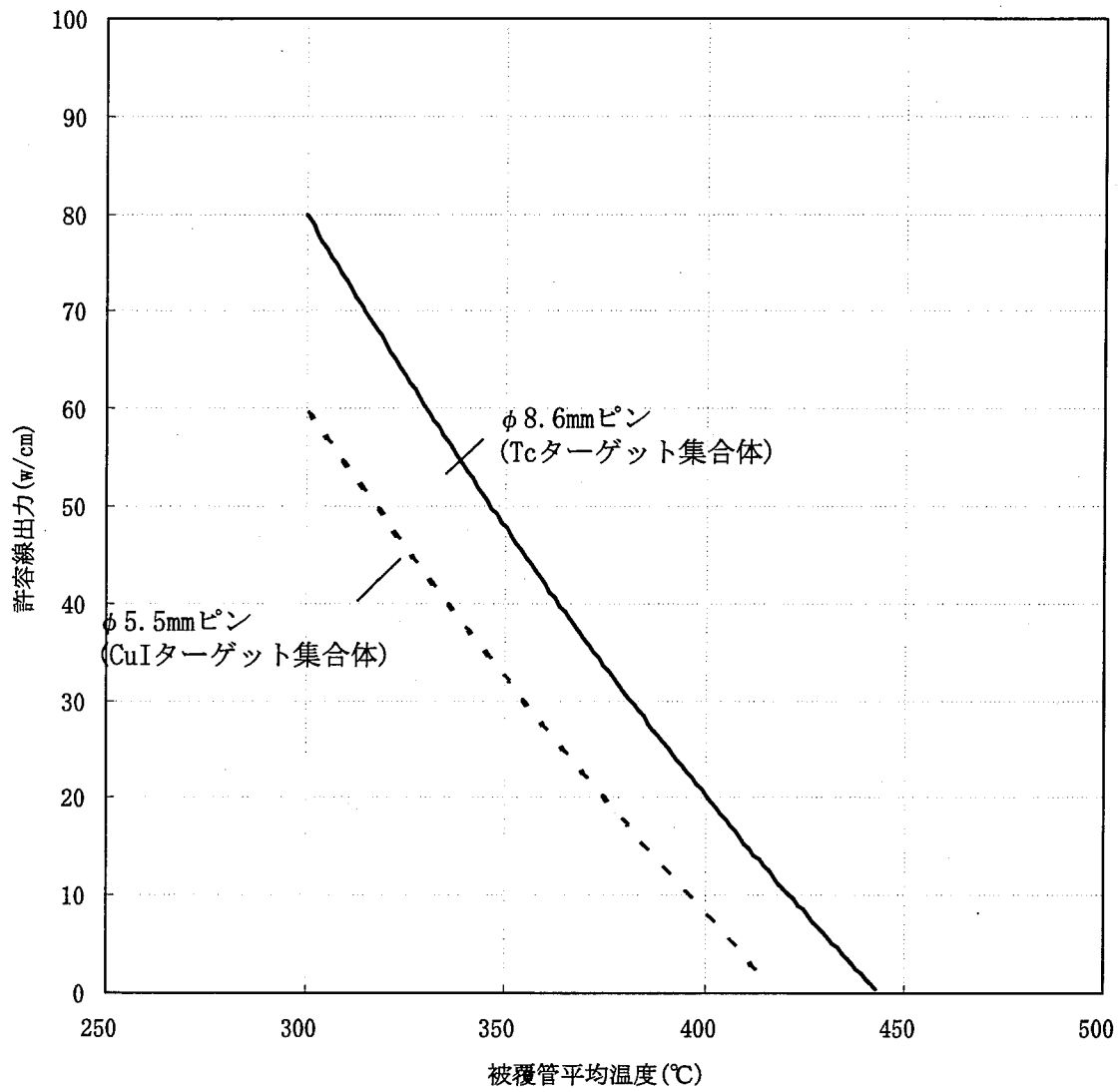


図7-3-9 ZrHt°ンの定格出力時における被覆管内面温度と
充填材許容線出力の関係 (Heボンド)

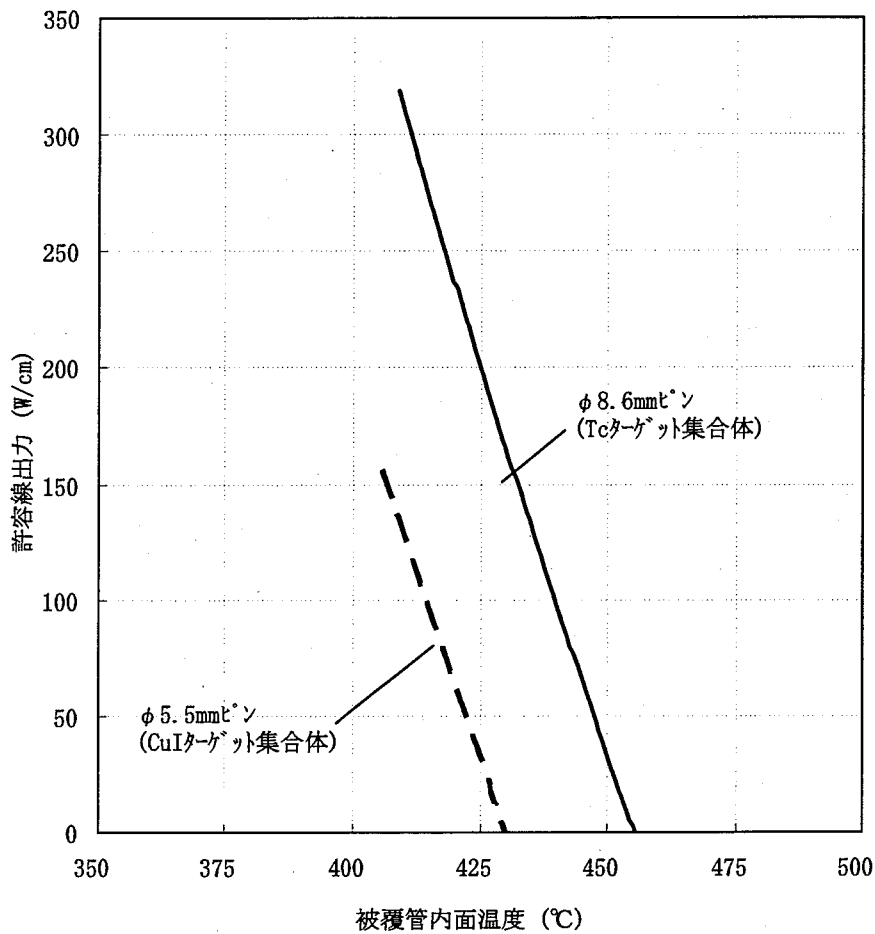
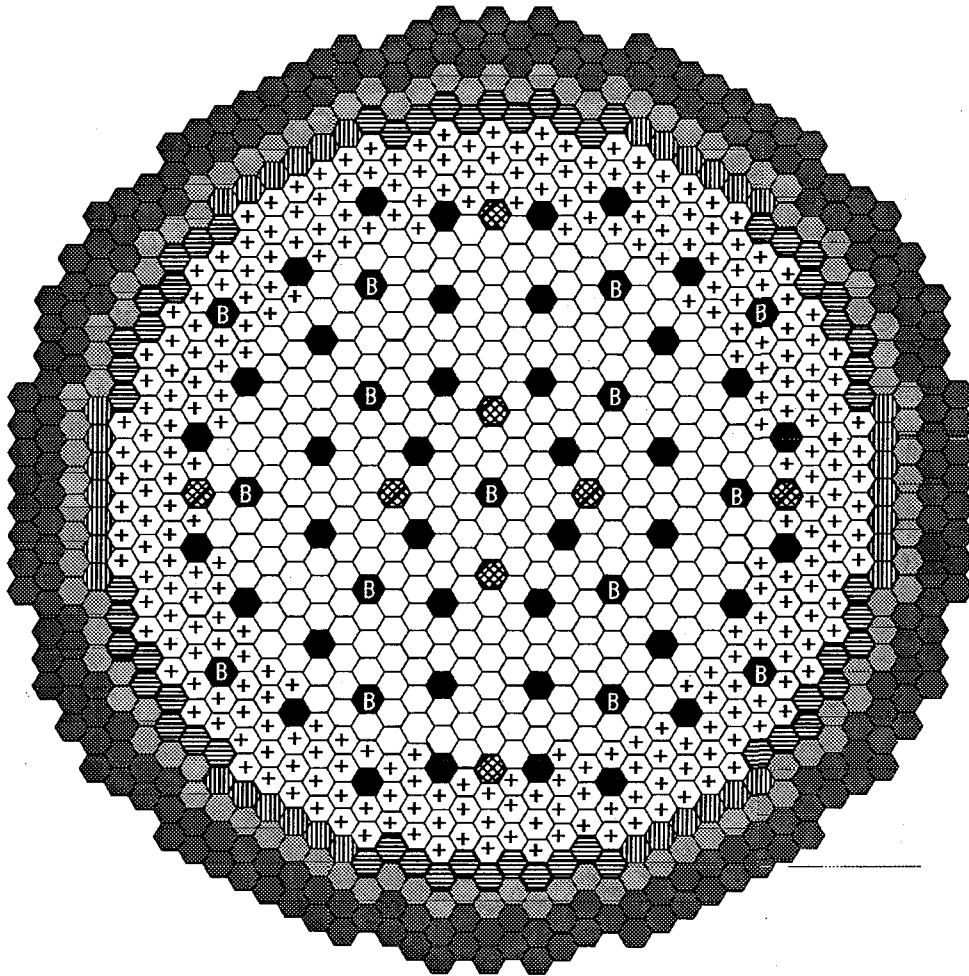
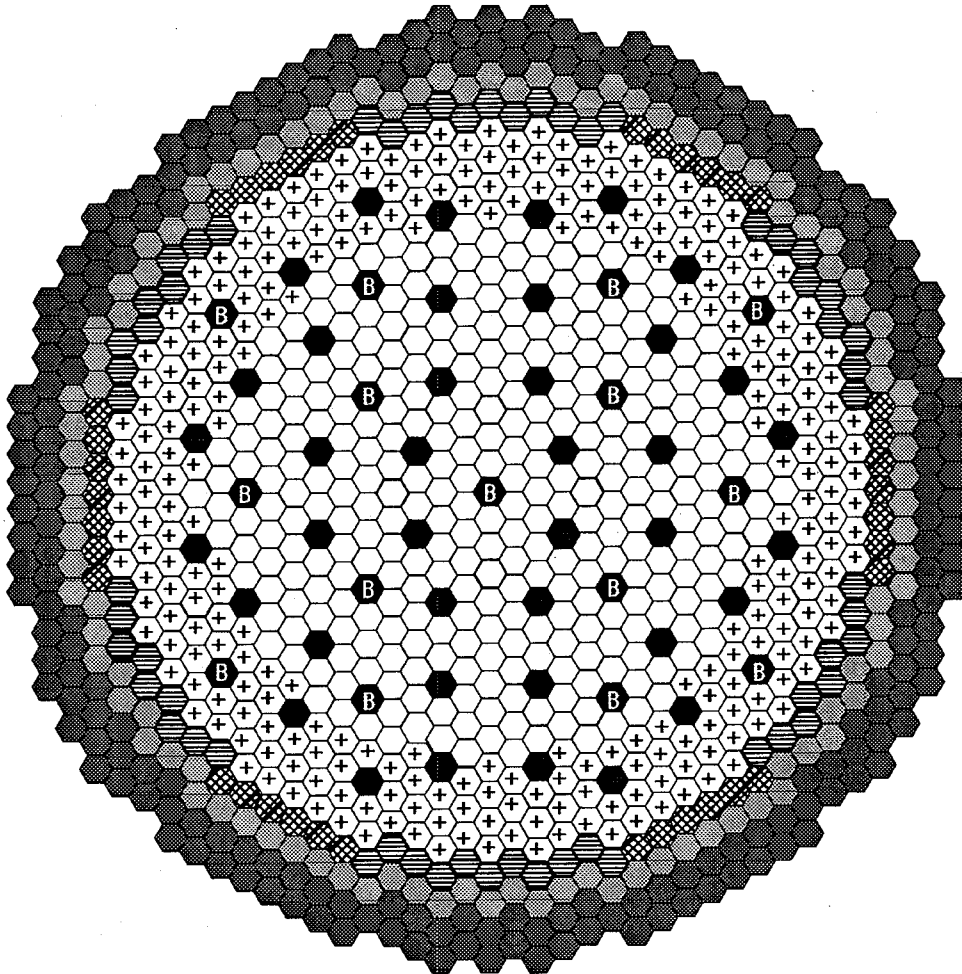


図7-3-10 ZrHf[°]の定格出力時における被覆管内面温度と
 充填材許容線出力の関係 (Naボンド, ガスバブル長10cm)



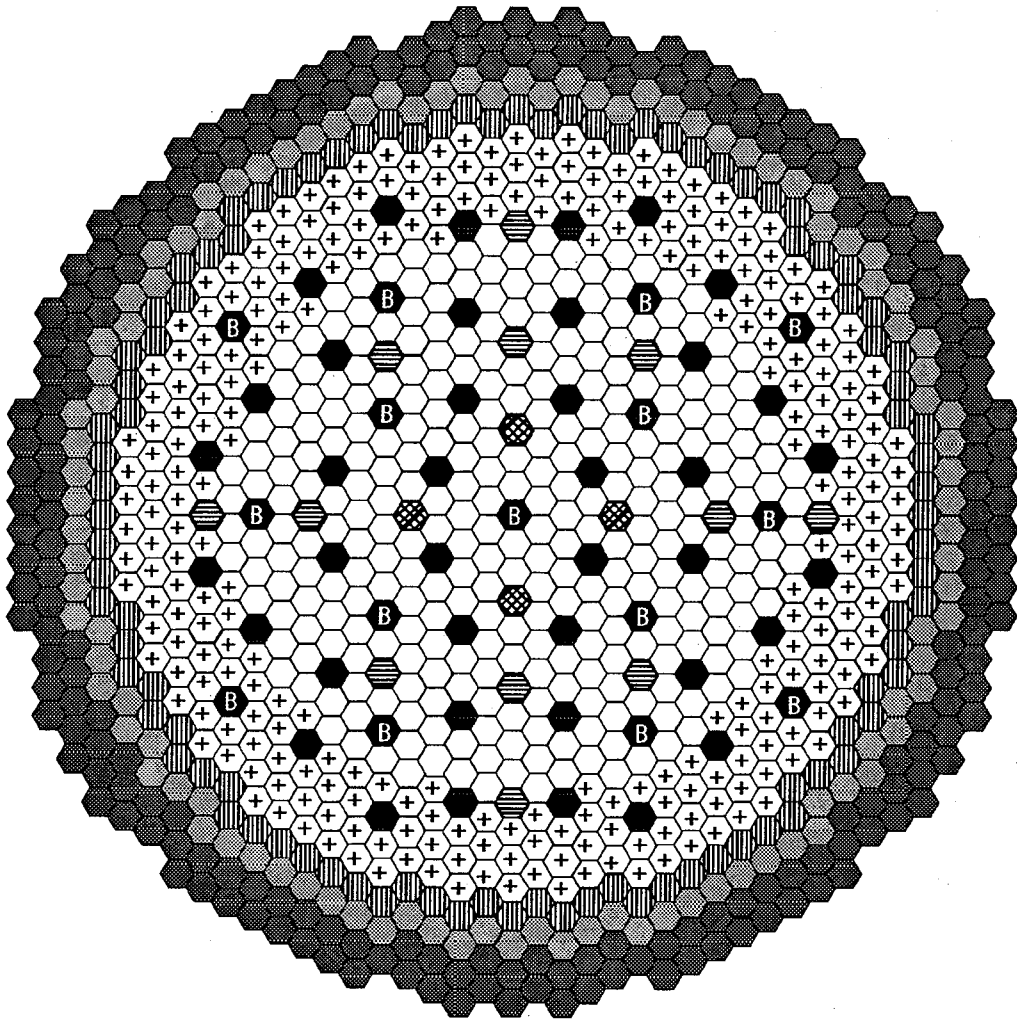
○	内側炉心燃料集合体	310体
+	外側炉心燃料集合体	276体
⊗	Tcターゲット集合体	8体
⊚	CuIターゲット集合体	58体
▨	径方向ブランケット	38体
●	SUS遮蔽体	102体
●	ZrH遮蔽体	210体
●	主系制御棒	40体
ⓑ	後備系制御棒	15体
合 計		1057体

図 7-4-1 自己生成変換炉心-1 の炉心配置



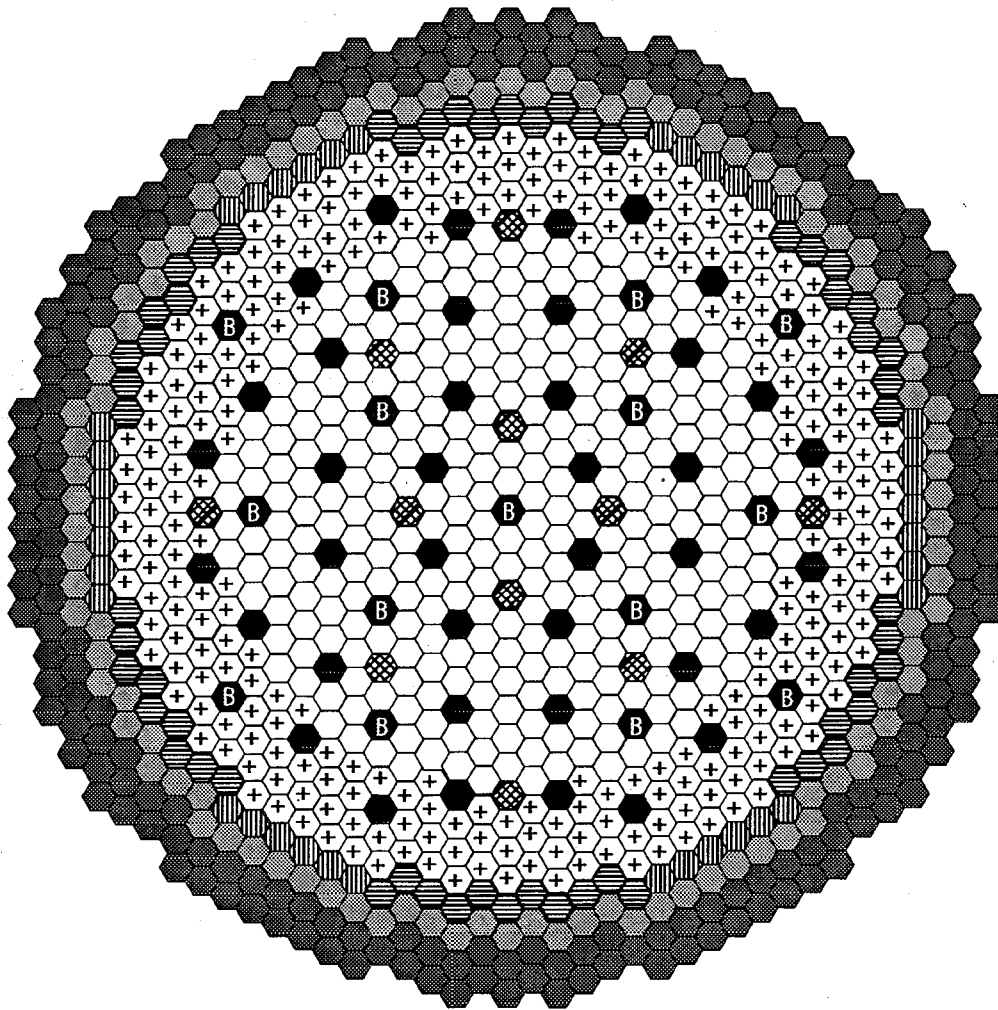
○	内側炉心燃料集合体	316体
+	外側炉心燃料集合体	278体
⊗	Tcターゲット集合体	38体
⊚	CuIターゲット集合体	58体
●	SUS遮蔽体	102体
●	ZrH遮蔽体	210体
●	主系制御棒	40体
ⓑ	後備系制御棒	15体
合 計		1057体

図 7-4-2 自己生成成分変換炉心-2 の炉心配置



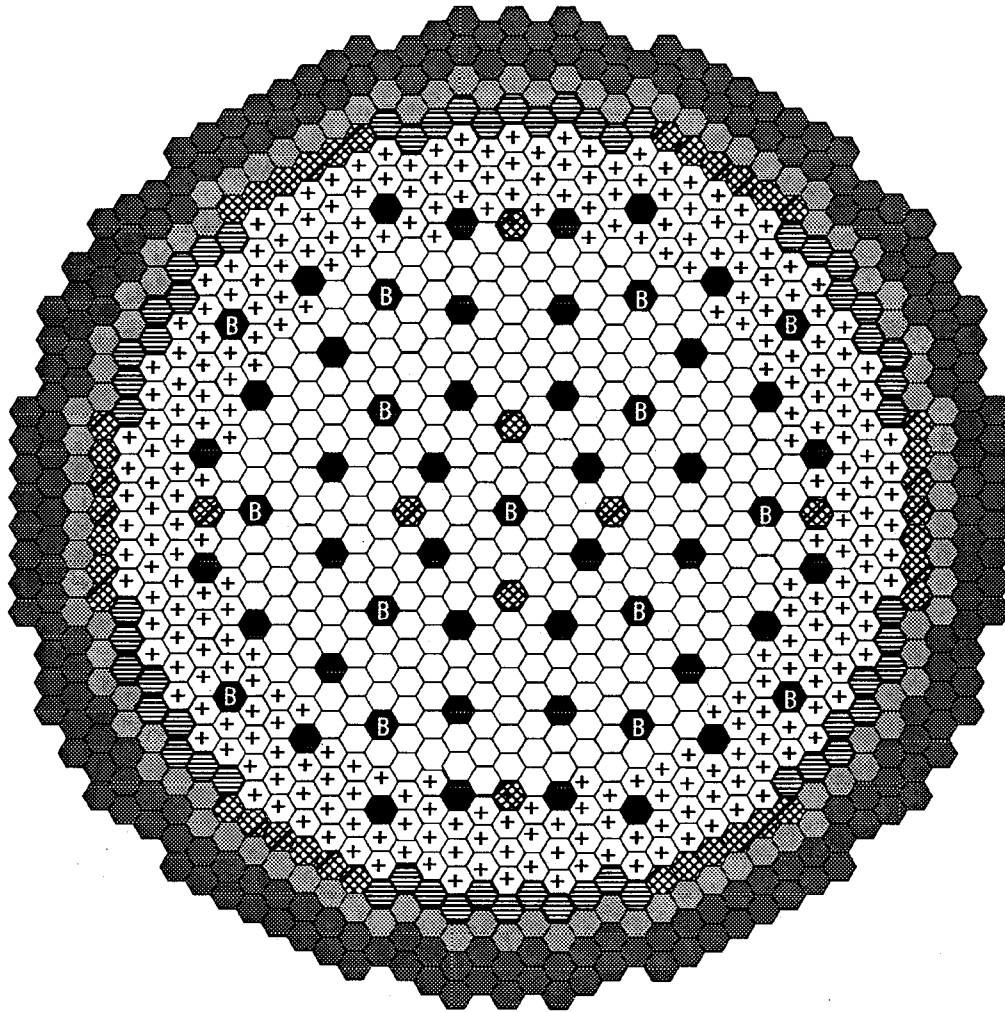
○	内側炉心燃料集合体	302体
+	外側炉心燃料集合体	276体
⊗	Tcターゲット集合体	4体
≡	Cdターゲット集合体	12体
	径方向ブランケット	96体
●	SUS遮蔽体	102体
●	ZrH遮蔽体	210体
●	主系制御棒	40体
B	後備系制御棒	15体
合 計		1057体

図 7-4-3 自己生成成分変換炉心-3 の炉心配置



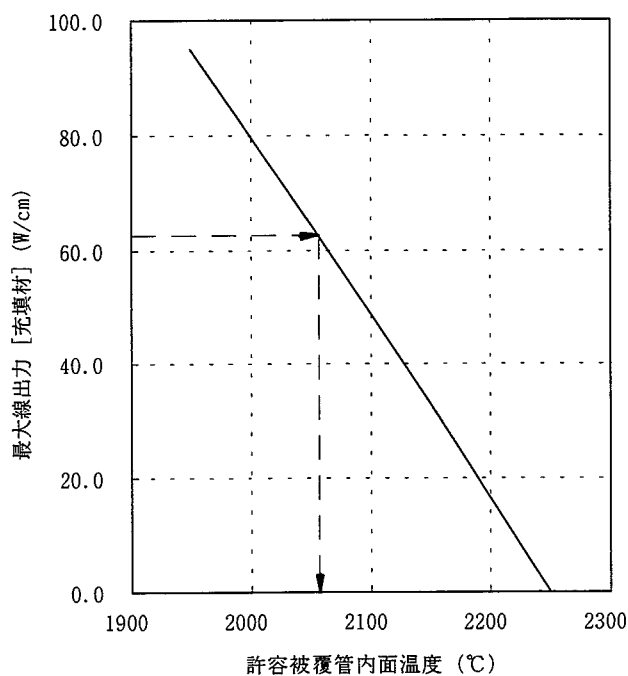
○	内側炉心燃料集合体	306体
+	外側炉心燃料集合体	276体
⊗	Tcターゲット集合体	12体
⊕	CuIターゲット集合体	58体
▨	径方向ブランケット	38体
⊙	SUS遮蔽体	102体
●	ZrH遮蔽体	210体
●	主系制御棒	40体
B	後備系制御棒	15体
合 計		1057体

図 7-4-4 核変換量最大化炉心-1の炉心配置

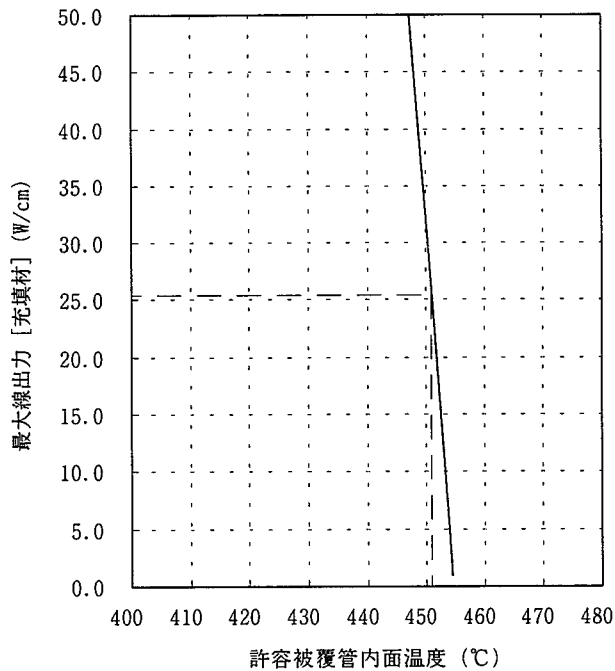


○	内側炉心燃料集合体	310体
+	外側炉心燃料集合体	276体
⊗	Tcターゲット集合体	46体 (炉内8体、RB位置38体)
≡	Cuターゲット集合体	58体
⊙	SUS遮蔽体	102体
●	ZrH遮蔽体	210体
●	主系制御棒	40体
ⓑ	後備系制御棒	15体
合 計		1057体

図 7-4-5 核変換量最大化炉心-2 の炉心配置

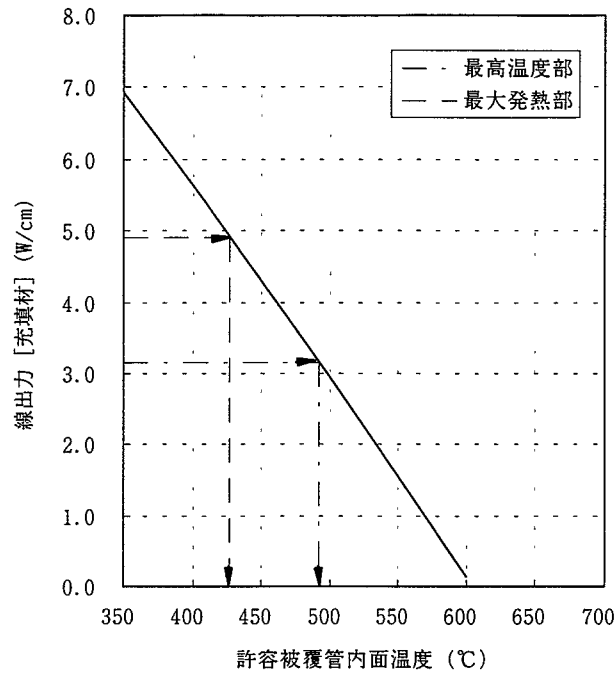


a. Tc ビン

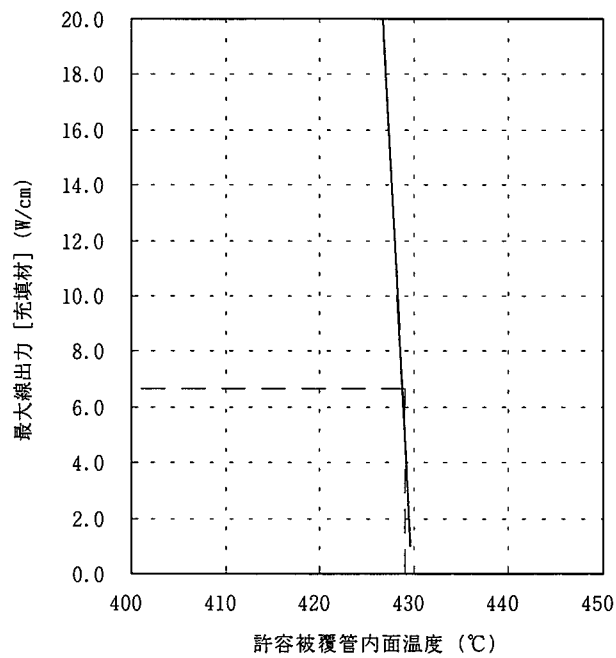


b. ZrHf ビン

図 7-4-6 Tc ターゲット集合体の定格出力時における最大線出力と許容被覆管内面温度の関係
(自己生成分核変換炉心-1)



a. CuIターゲット



b. ZrHターゲット

図 7-4-7 CuI ターゲット集合体の定格出力時における最大線出力と許容被覆管内面温度の関係
(自己生成成分核変換炉心-1)

参考文献:

- [1] 池上哲雄、他:”炉心・燃料(燃料形態)の技術検討書 実用化戦略調査研究(フェーズ I)成果報告-”, JNC TY9400 2001-011 (2001)
- [2] N. Takaki et.al. ”Feasibility and Challenges of LLFP Transmutation in Fast Reactor” Proceedings of Global2001, Paris (2001)
- [3] 大木繁夫、他:”高速炉における LLFP 核変換の検討”, JNC TN9400 2001-098 (2001)
- [4] 立辺和明、他:”高速炉用高性能中性子遮蔽材としての金属水素化物の評価(I)”, PNC ZN9410 89-163 (1989)
- [5] K. Arie, et.al., “Long-Lived FP Burning Based on the Actinide Recycle Metal Fuel Core”, Proceedings of GENES-2, Tsuruga (1996)
- [6] T. Iwasaki, et.al., “A Study of Transmutation of Long-Lived Nuclides in Fast Reactor Using New Hydride Material with High Dissociation Temperature”, Proceedings of Global2001, Paris (2001)
- [7] R.J.M.KONINGS et al. : ”Transmutation Of Technetium and Iodine-Irradiation Tests in the Frame of the EFTTRA Cooperation”, Nucl.Technol. VOL.117, 293 (1997)
- [8] R.P.C.Schram et al: “Irradiation Experiment of Metal Iodide Targets for Iodine Transmutation Studies”, Proceedings of Global2001, No.244 (2001/9)
- [9] 市村他:”長半減期放射性ヨウ素核変換の最適化検討(1)—ヨウ化物のスクリーニング— “、日本原子力学会「2000年秋の大会」, H25
- [10] 平成 10 年度高速増殖炉利用システム開発調査報告書(FBR新技術フェージビリティ調査)、p196、(財)エネルギー総合工学研究所(平成 11 年 3 月)
- [11] M.T.SIMNAD, “The U-ZrHx Alloy : “Its Properties and Use In TRIGA Fuel”, Nuclear Engineering and Design”, Vol 64, pp403-422 (1981)
- [12] V.B. Ponomarenko, et al.,: “Experience in Development, Operating and Material Investigation of the BOR-60 Reactor Control and Safety Rods, Absorber materials, control rods and designs of shutdown systems for advanced liquid metal fast reactors”, IAEA-TECDOC-884, 195-203 (1995)
- [13] 山舘恵、他:”ナトリウム冷却炉の炉心・燃料設計検討 酸化物燃料炉心-”, JNC TY9400 2002-065 (2002)

謝辞:

第2章「大型 MOX 炉心における LLFP 核変換の予備的検討」では、その解析や考察の全てのプロセスにおいて中性子工学グループの大木 繁夫氏にご協力いただきました。また第6章「高効率核変換集合体による LLFP 核変換」でのモンテカルロ計算及び検討は、原子力システム(株)の神 智之氏に行っていただきました。両氏に感謝申し上げます。

さらに、第7章「LLFP 核変換技術の工学的設計検討」での「LLFP 核変換用減速材の選定」に関しては、核燃料工学グループの井上 賢紀氏より多くの技術的なご指導をいただきました。ここに謝意を表します。