

ADS サイクルを用いた MA 低減と
Pu-238 生成に関する研究

原子炉工学研究室
小川健斗

北海道大学大学院 工学院
エネルギー環境システム専攻

目次

1	序論.....	3
1.1	研究背景.....	3
1.2	ADS サイクルの特徴.....	3
1.2.1	ADS の概要とその背景.....	3
1.3	Pu-238 の利用例と生成方法.....	6
1.4	研究目的.....	7
2	計算条件.....	8
2.1	コードシステムと解析手法.....	8
2.2	解析体系.....	8
2.3	炉心パラメータ.....	9
3	ADS の基本的な特性.....	12
3.1	ADS 燃料中の MA 核種の燃焼特性.....	12
3.2	ADS 燃料中の MA 核種の毒性.....	15
3.3	ADS の燃焼特性.....	16
4	Cm の分離を利用した MA 低減と Pu-238 生成 ADS サイクルの検討.....	21
4.1	Cm の分離を利用した ADS サイクルの概要.....	21
4.2	Cm の分離を利用した ADS サイクルの解析結果.....	22
4.3	Pu-238 の純度を高めるための ADS サイクル改良の検討.....	25
4.4	改良した ADS サイクルの解析結果.....	27
4.5	まとめ.....	31
5	Np ターゲット燃料集合体を利用した MA 低減と Pu-238 生成 ADS サイクルの検討.....	32
5.1	Np ターゲット燃料集合体を利用した ADS サイクルの概要.....	32
5.2	Np ターゲット燃料集合体を利用した ADS サイクルの解析結果.....	35
5.3	装荷 Np ターゲット燃料集合体を増やす検討.....	41
5.3.1	再処理方法を変更し装荷 Np ターゲット燃料集合体を増やす検討.....	42
5.3.2	設計条件に余裕を持たせて装荷 Np ターゲット燃料集合体を増やす検討.....	44
5.4	まとめ.....	47
6	結論.....	48
	参考文献.....	50

1 序論

1.1 研究背景

現在日本国内には 17,000t もの HLW (High Level Waste、高レベル放射性廃棄物) が保管されている。日本では、使用済燃料を再処理し、U (Uranium、ウラン) や Pu (Plutonium、プルトニウム) を取り出して有効に利用することとしているが、この再処理によって再利用できない高レベルの放射性物質は、液体の形で分離される。その後、この廃液をガラス原料と高温で融かし合わせ、ステンレス製の容器 (キャニスター) の中でゆっくり固め、ガラス固化体としている。このガラス固化体が HLW と呼ばれ、数千年から数万年という長期間に渡り放射線を出し続ける。

HLW の処分方法についてわが国では地層処分という方法が検討されている。地層処分では安定した岩盤の地下 300m 以深の場所にガラス固化体が配置され、長期間外部環境から隔離され保管される。しかし今後増え続ける HLW に対して、地下処分場は有限の体積であるため、その効率的な利用方法が検討されている。こうした背景があり HLW 中の MA (Minor Actinide、マイナーアクチニド) を安定核種や短半減期核種へと核変換させる研究が進んでいる。核変換を実現するシステムとしては FBR (Fast Breeder Reactor、高速増殖炉) や ADS (Accelerator Driven System、加速器駆動システム) が検討されていて、本研究ではこの ADS に着目して研究を行う。


ADS の詳細は後述するが、その燃料組成を観察すると時間の経過と共に Pu-238 の量が増えていくことが分かる。この Pu-238 という同位体は宇宙開発分野の無人探査機や医療分野の心臓ペースメーカーなどのバッテリーとして使用されている。特に宇宙開発においては今後さらに需要拡大が見込まれていてその重要性は高い。

そこで従来の ADS サイクルの MA 低減機能に Pu-238 生成機能を加えた新しい ADS サイクルを考案し、その実現性を検証する研究を行う。

1.2 ADS サイクルの特徴

本節では ADS というシステムについて、その原理や利用目的をより詳細に説明する。

1.2.1 ADS の概要とその背景

ADS とは放射性廃棄物中の MA 核種を安定核種や短半減期核種へと核変換するために考案されたシステムである。MA 核種は原子力発電所から生み出される使用済み燃料中に存在する。一般の原子力発電所 (軽水炉) からの使用済み燃料に含まれる元素の割合を  1.1 に示す。

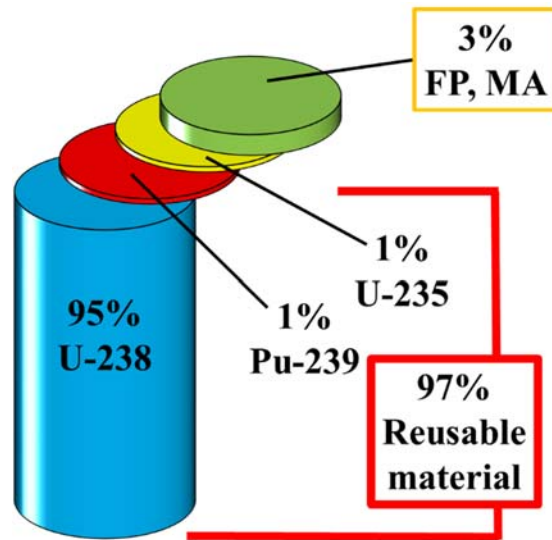


図 1.1 使用済み燃料中の構成元素割合

図 1.1 より使用済み燃料の約 3%が MA や FP (Fission Product、核分裂生成物) であることが分かる。この内 MA に対して ADS を使用し低減することと合わせて、Sr (Strontium、ストロンチウム) や Cs (Cesium、セシウム) を約 130 年冷却し廃棄することで処分場の面積を約 1/4 にすることが出来る。さらに Sr や Cs を約 300 年貯蔵することで処分場の面積を約 1/100 にすることが出来る。その様子を図 1.2 に示す。

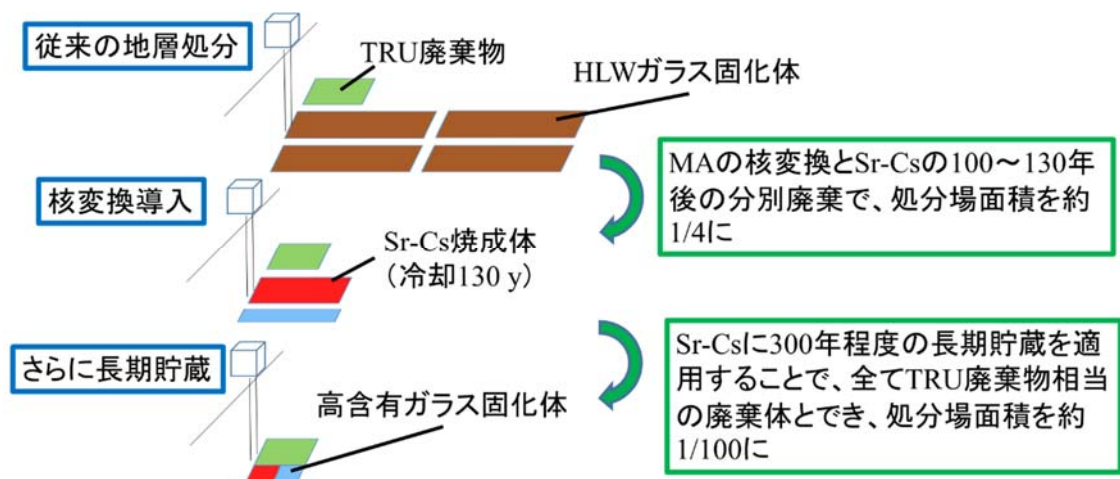


図 1.2 分離変換技術による処分場面積の変化

次に ADS がどのようなシステムで構成されているのか説明していく。ADS の概略を図 1.3 に示す。

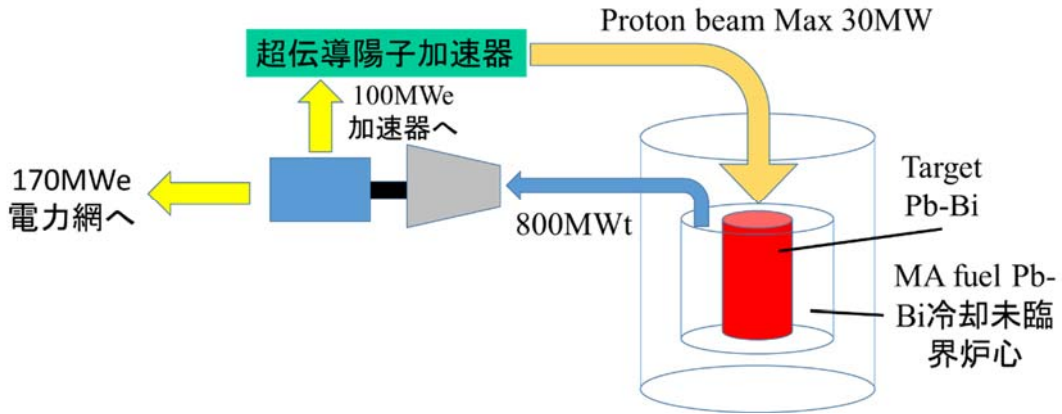


図 1.3 ADS の概略図

まず陽子加速器から陽子ビームが炉心（未臨界炉心）へと打ち出される。炉心では陽子と Pb-Bi（Lead-Bismuth、鉛ビスマス）が核破砕反応と呼ばれる反応を引き起こし、Pb または Bi の原子核が数十個の破砕核となって壊れるとともに、平均 20~30 個の高速中性子（高エネルギーの中性子）を発生する。この高速中性子が燃料中の MA 核種と反応し核変換が起きる。MA 核種が安定核種や短半減期核種へと核変換する様子を図 1.4 に示す。

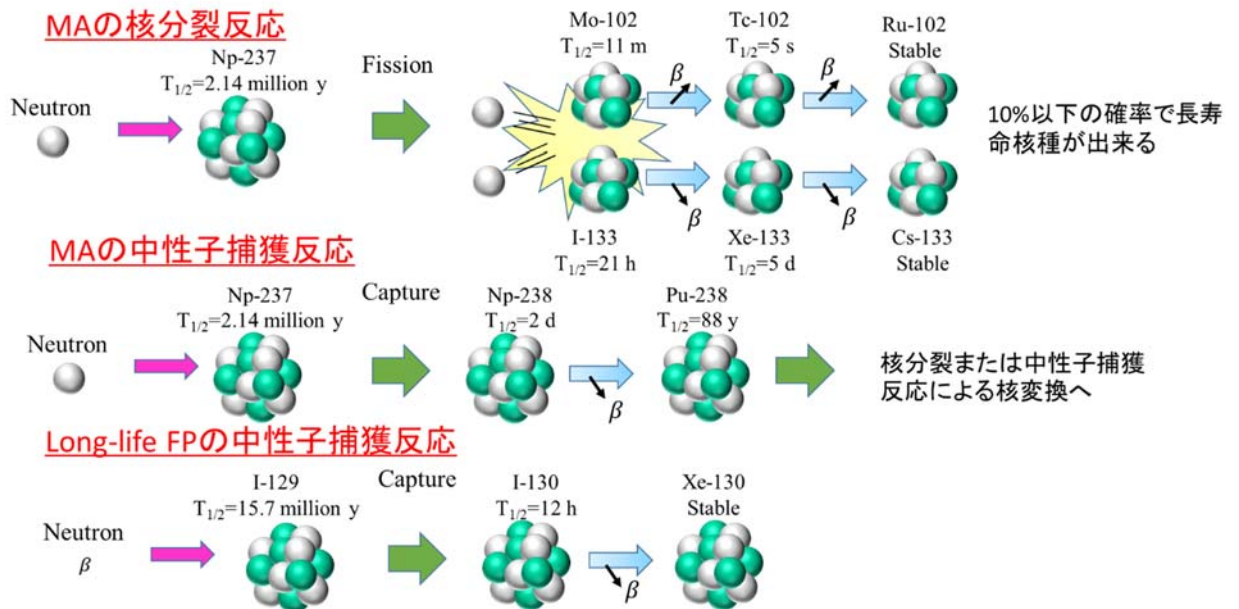


図 1.4 MA 核種が核変換する様子

上図のように MA 核種は核分裂、中性子捕獲反応、さらには生成された LLFP (Long-Lived Fission Product、長寿命核分裂生成物) も中性子捕獲反応を通して最終的には安定核種などに変換される。

1.3 Pu-238 の利用例と生成方法

研究背景の説明で Pu-238 の需要の高さや生成方法について触れたが、ここではさらに詳しくそれらについて説明する。

まず Pu-238 の使われ方について説明する。Pu-238 は以下の二つの分野で利用されている。一つ目が宇宙ミッションで使用される探査機のバッテリーとして、そして二つ目が心臓ペースメーカーのバッテリーとして利用されている。その作動原理は両者に共通しており、Pu-238 が U-234 へと崩壊するとき発生するエネルギーを利用している。それぞれの機器には熱源として Pu-238 が装備されており、この崩壊熱を熱電変換機構がゼーベック効果により電気エネルギーへと変換する。しかし 2017 年現在、ペースメーカーのバッテリーとしてはリチウムイオン電池の性能が向上し Pu-238 の需要は低下してきている。それとは逆に宇宙ミッションでの Pu-238 の需要は高まってきている。既に原子力バッテリーを利用したミッションは Apollo や Pioneer、Voyager、Galileo[1] など数多くの実績がある。そのため Pu-238 の需要があるのは宇宙開発組織であり、そのうち最も Pu-238 を使用しているのが NASA である。NASA は 2013 年時点で 35kg の Pu-238 を保有しており、今後 Pu-238 を 1.1kg/year 生成することに 50 億円を投資するとしている[2]。

次に Pu-238 の生成方法について米国を例に説明する。米国で Pu-238 の製造を NASA から依頼されているのは DOE (Department of Energy、エネルギー省) である。DOE の Pu-238 生成・製造方法を図 1.5 に示す[3]。まずアイダホ研究所で使用済み燃料中から Np-237 が抽出される。次に、抽出された Np-237 はオークリッジ研究所に送られ、チューブに成型される。成型されたチューブは原子炉に装荷され、中性子を吸収して Np-238 になり、さらに Np-238 が Pu-238 へと崩壊する。オークリッジではさらに酸化 Pu の粉が作られ、それをロスアラモス研究所へと送る。最後にそこでバッテリー用のペレットが作られる。

以上のようにして生成・製造される Pu-238 であるがその純度についても制限が存在する。表 1.1 に示したのは Mars Science Laboratory Mission[4] に搭載された Curiosity の原子力バッテリー同位体組成である。原子力バッテリーに用いられる金属 Pu、酸化 Pu の量はその目的や駆動時間により違いはあるが、その同位体組成はあまり変わらず表 1.1 に示すような組成となっている。IAEA の決まりより、Pu-238 の純度が 80% 以下の原子力バッテリーは無い[5]。Pu 中の Pu-238 の純度が 80% を下回る場合査察対象となる。査察対象となると、IAEA の査察員の常駐や監視モニター設置など費用がかかる。そのため査察対象にならないよう Pu-238 の純度を 80% 以上としている。なお、Pu-238 の純度が低いと査察対象となる理由は、Pu-239 や Pu-241 といった核分裂性核種の割合が高いと核兵器へと転用される恐れがあるためである。



図 1.5 米国における原子力バッテリー用 Pu-238 ペレットの製造方法

表 1.1 Curiosity の熱源同位体組成

4.8kg PuO ₂ Percentage	
Pu	83.63
Pu-236	1.10E-06
Pu-238	69.29
Pu-239	12.23
Pu-240	1.74
Pu-241	0.27
Pu-242	0.09

1.4 研究目的

1.3 節までに HLW を低減するために ADS が研究されていることや、需要の拡大する Pu-238 の生成方法などを説明してきた。そこで本研究では以下のように研究目的を設定する。「MA を低減する機能を持つ ADS サイクルに原子力バッテリー用 Pu-238 生成・抽出機能を付け加え、より高性能な ADS サイクルを提案する。」

2 計算条件

2.1 コードシステムと解析手法

本研究では、原子炉工学研究室で開発中の炉物理コードシステム CBZ を用いる。このコードに内蔵されている FRBurnerRZ モジュールを使い炉心体系を二次元円筒状にモデル化し解析を行う。炉心燃料集合体など全ての集合体は内部の非均質構造を無視して取り扱う。つまり、集合体の数密度としては、集合体内の各構造物の数密度を体積重みで平均化した均質数密度を用いる。各領域の実効断面積は 70 群の CBZLIB を用いて計算され、70 群の巨視的断面積をそのまま炉心中性子束分布計算に用いる。炉心中性子束分布は、中性子拡散方程式を数値的に解くことによって得られ、FRBurnerRZ では CBZ の拡散ソルバー PLOS を用いている。FRBurnerRZ の RunADS メソッドでは参考にした ADS の使用済み燃料中の FP を取り除き、その分の MA を LWR から追加するという燃料交換を再現する機能が装備されているが、第 4 章や第 5 章では燃料交換方法の変更を検討する。そのため燃料交換時（再処理時）に Cm を使用済み燃料から分離、または Np で特殊な集合体を作る機能を新たに整備する。また使用済み燃料の崩壊熱を評価する計算では、核分裂性核種毎に、核分裂反応の結果生成する FP を一種類の仮想的なものとして扱う方法ではなく、FP 一つ一つを詳細に扱う。

なお、陽子ビームとターゲットである Pb-Bi の核破砕反応によって生成される中性子源分布の計算は、PHITS（Particle and Heavy Ion Transport code System、粒子・重イオン輸送計算コード）の計算結果を用いる[6]。

2.2 解析体系

本研究では、解析体系として日本原子力研究開発機構（JAEA）で考案された Pb-Bi 冷却 800MWth の ADS を参考にする。その詳細について文献[7]を用いて述べる。

ADS の炉心断面図と炉心構成について図 2.1 に示す。本研究で解析する ADS を構成するのは、LBE（Lead-Bismuth Eutectic、鉛ビスマス共晶混合物）ターゲット、LBE バッファ、内側炉心燃料集合体、外側炉心燃料集合体、LBE 反射体、SS（Stainless Steel、ステンレス鋼）反射体、B₄C（Boron Carbide、ボロンカーバイド）遮蔽体である。

LBE ターゲットは、加速器から打ち込まれる陽子ビームと反応し核破砕反応を引き起こす。それによって高速中性子が生まれ MA 核種が核分裂する。

炉心燃料集合体について、出力分布の平坦化を図るため、内側と外側で燃料の組成が異なり、外側炉心の Pu-239 や Pu-241 といった核分裂性物質の割合を高めている。また同様の理由でバッファ領域を設けている。

LBE と SS の反射体は炉心から漏れる中性子を再び炉心に戻す役割を持っていて、中性子をより経済的に活用することが出来る。

B₄C 遮蔽体は、炉心からの中性子線や γ 線を遮蔽し、周囲の構造材を保護する役割を担

っている。

解析条件を表 2.1 に示す。

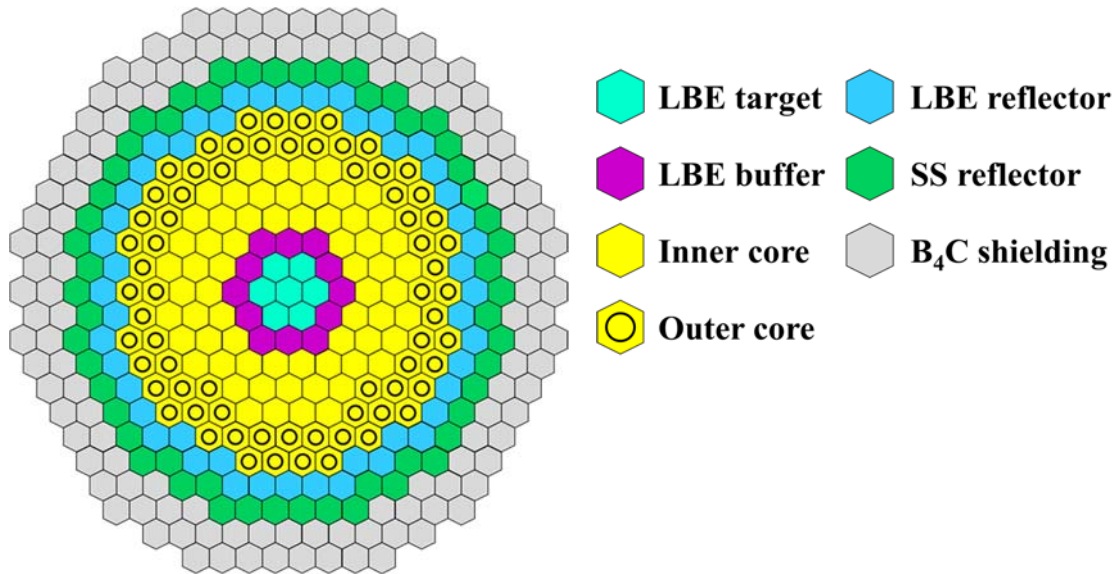


図 2.1 ADS の炉心断面図と炉心構成要素

表 2.1 解析条件

冷却材	Pb-Bi
原子炉熱出力	800[MW]
燃料交換期間	2.5[Years]
燃料ペレット外径	7.5[mm]
燃料要素数(集合体あたり)	169[本]
運転期間	600[Days]
サイクル	10

2.3 炉心パラメータ

本節では、解析の際に評価するパラメータについて説明する。

■ 中性子実効増倍率 k_{eff}

Pu-239 や Pu-241 といった核分裂性物質に中性子を衝突させると、核分裂反応が起こり、その核分裂反応によって発生する 2~3 個の中性子のうち 1 個が核分裂を起こすと核分裂反応が持続できる。これを核分裂連鎖反応という。核分裂連鎖反応を定量的に評価するために用いる概念が中性子増倍率 k である。実際の原子炉では大きさが有限であるため、吸収の他に炉心外へ中性子の漏れを考慮する必要がある。その場合に用いられる増倍率が中性子実効増倍率 k_{eff} である。 k_{eff} は以下の数式で表される。

$$k_{eff} = \frac{\text{中性子発生率}}{\text{中性子消滅率 (吸収率と漏れ率の和)}}$$

$k_{eff}=1$ であれば中性子数は一定に保たれるので、原子炉を出力一定で運転できる。この状態を「臨界」という。 $k_{eff}<1$ であれば中性子数は時間経過とともに減少し、核分裂連鎖反応は減少する。この状態を「未臨界」という。逆に $1<k_{eff}$ であれば中性子数は時間とともに増加し、核分裂連鎖反応は増加する。この状態を「超臨界」という。

ADS では未臨界状態でサイクルが進んでいく。本研究では k_{eff} が 0.97 以下、0.92 以上となるように炉心を設計する。パラメータの制限は文献[7]を参考に設定し、以下に設定する制限の根拠も同様である。

■ 最大出力密度

最大出力密度[W/cm³]は燃料最高温度、燃料棒表面の最大熱流束など、燃料の熱的および機械的健全性を支配する重要な因子であり、炉心の安全性を確保する観点からは小さい方がよい。本研究では、最大出力密度の上限を 460[W/cm³]とする。

■ 燃焼反応度スウィング

燃焼反応度スウィングとは、 k_{eff} の変化の指標である。ADS の出力 P は近似的に k_{eff} と陽子ビームの強度 Q により表される①式右辺の値に比例する。そして ADS の出力は陽子ビームの強度によって制御している。燃焼反応度スウィングが小さければ k_{eff} の変動も小さくなり、出力を一定に保たせるために制御する陽子ビームの調整も小さな値の範囲で済む。つまり制御が容易となる。よって燃焼反応度スウィングは小さいほど望ましい。燃焼反応度スウィングは②式で表される。 k_{eff} の最大と最少が決まっているので、燃焼反応度スウィングは 5.60%が上限となる。

$$P \propto \frac{Q}{1 - k_{eff}} \quad \text{①}$$

$$\text{燃焼反応度スウィング} = \frac{k_{effMAX} - k_{effMIN}}{k_{effMAX}k_{effMIN}} \times 100 \quad \text{②}$$

k_{effMAX} : サイクル中で最大の中性子実効増倍率

k_{effMIN} : サイクル中で最少の中性子実効増倍率

■ 反応度

反応度 ρ は系がどの程度臨界から離れているかを定量的に示したものであり、 k_{eff} を用いて以下のように定義する。

$$\rho = \frac{k_{eff} - 1}{k_{eff}} = 1 - \frac{1}{k_{eff}}$$

臨界である系の反応度は 0 であり、臨界以上の場合は正、臨界未満の場合は負となる。反応度の単位は $[\Delta k/k]$ となる。

次に、ある反応度 ρ_1 の系から、異なる反応度 ρ_2 に変化したときの反応度差は以下の通

りである。

$$\Delta\rho = \rho_2 - \rho_1 = \left(1 - \frac{1}{k_{eff,2}}\right) - \left(1 - \frac{1}{k_{eff,1}}\right) = \frac{1}{k_{eff,1}} - \frac{1}{k_{eff,2}} = \frac{k_{eff,2} - k_{eff,1}}{k_{eff,1}k_{eff,2}}$$

この反応度も反応度と呼ばれることもあり、単位は $[\Delta k/kk']$ である。

また、反応度はドル[\$]単位で示されることがある。ドル単位の反応度は遅発中性子の生成割合 β で $\Delta k/kk'$ 単位の反応度を割った値であり、1 セント[¢]は 1\$ の 1/100 である。

■ 冷却材ボイド反応度

冷却材である LBE 中に気泡が発生する、或いは温度上昇により LBE の密度が低下すると、反応度が炉心に印加される。反応度の正負は、原子炉の自己制御性という観点からも非常に重要なパラメータである。冷却材反応度のメカニズムを以下に 3 点述べる。

- I. 冷却材による中性子の吸収が減少する（正の効果）
- II. 冷却材の密度低下により、中性子の平均自由行程が大きくなり、炉心外へ漏れる確率が増加する（負の効果）
- III. 中性子が冷却材によって散乱される機会が減るため、中性子スペクトルが硬化する（正となる傾向）

本研究では、 $3.98 \times 10^{-2} [dk/kk']$ をボイド反応度の上限とする。

■ 一群断面積

炉心の原子核の吸収反応、核分裂反応の確率を簡易に表す指標として一群断面積がある。本研究における解析では中性子束のエネルギースペクトルを 70 群としているが、中性子束のエネルギー分布を荷重として平均化することによって、一群の断面積を計算することができる。扱う反応断面積、中性子束のエネルギー群数を G 、 g 群の群断面積を σ_g 、中性子束を Φ_g とすることで、一群断面積 $\bar{\sigma}$ は

$$\bar{\sigma} = \frac{\sum_{g=1}^G \sigma_g \phi_g}{\sum_{g=1}^G \phi_g}$$

で定義される。

■ その他

その他に本研究で評価するパラメータとしては、抽出可能 Pu 量[kg]、Pu 中の Pu-238 の純度[%]、LWR（Light Water Reactor、軽水炉）からの受け入れ可能 MA 量[kg]などが挙げられる。

抽出可能 Pu 量については大きければ大きいほど好ましい。

Pu-238 の純度については既に述べたように最低 80% が制限となる。

LWR からの受け入れ可能 MA 量は、重要なパラメータであり、この値が大きければそれだけ ADS として性能が高いと言える。

3 ADS の基本的な特性

3.1 ADS 燃料中の MA 核種の燃焼特性

本章では、参考にした JAEA の ADS を例として、MA 核種の特性や ADS の燃焼特性について説明する。本研究で使用した CBZ では、参考にした JAEA の解析で使用された核データ (JENDL-3.2) を使うことも可能であるが、これは古いデータなので新しいデータ (JENDL-4.0) を使用する。そのため CBZ の計算により設定する基準炉心 (Reference) の Pu 富化度は、JAEA 炉心のそれとは異なっている。解析条件を表 3.1 に示す。解析条件の ZrN とは窒化ジルコニウム (Zirconium Nitride) であり、以下同様に MA と Pu の窒化物を MAN、PuN と表す。ただし PuN 重量比は以下の数式により定義される。

$$\text{PuN 重量比} = \frac{\text{PuN}}{\text{PuN} + \text{MAN}}$$

PuN: 燃料中の窒化 Pu 重量

MAN: 燃料中の窒化 MA 重量

表 3.1 基準炉心の解析条件

燃料ペレットZrN重量比	0.4875[wt%]
内側炉心PuN重量比	0.2610[wt%]
外側炉心PuN重量比	0.4950[wt%]

本節では、U や Pu、MA が炉心で核分裂性核種(Fissile)または親物質(Fertile)どちらの役割を担うかについて評価する。ADS で使用される燃料は PWR の使用済み燃料を想定している。この使用済み燃料は炉心から取り出された後、7年冷却されて MA と Pu が抽出される。その後さらに3年冷却された後 ADS 燃料が製造され ADS へと送られる。この時成型される ADS 燃料の同位体組成を表 3.2 に示す。

各重核種の核分裂断面積と中性子捕獲断面積の比 (f/c) を図 3.1 から図 3.3 に示す。

表 3.2 ADS 燃料中の重核種の重量割合[wt.%]

Isotope	MA	Pu	Isotope	MA	Pu
U-234		0.04	Am-241	32.33	
U-236		0.01	Am-242m	0.06	
Np-237	50.05		Am-243	13.14	
Pu-238		2.4	Cm-243	0.03	
Pu-239		54.84	Cm-244	3.95	
Pu-240		24.94	Cm-245	0.38	
Pu-241		10.83	Cm-246	0.04	
Pu-242		6.92			

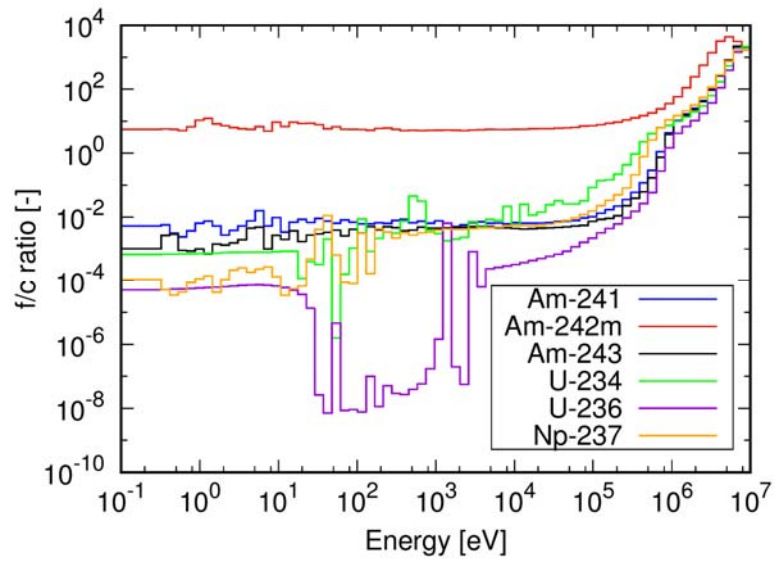


図 3.1 Am、U、Np の核分裂断面積の中性子捕獲断面積に対する比 (f/c ratio)

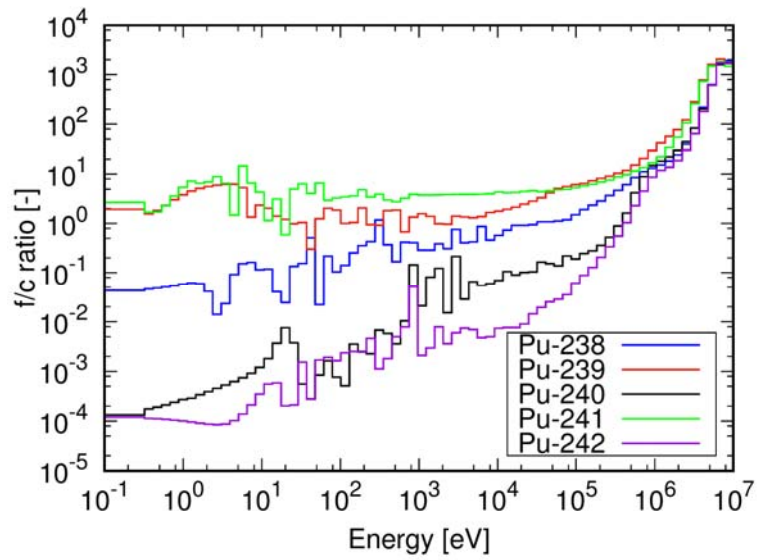


図 3.2 Pu の核分裂断面積の中性子捕獲断面積に対する比 (f/c ratio)

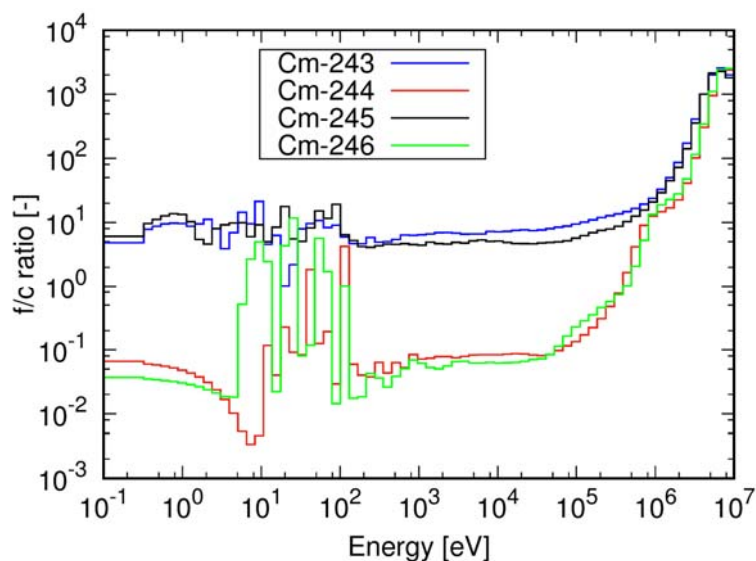


図 3.3 Cm の核分裂断面積の中性子捕獲断面積に対する比 (f/c ratio)

ここで、全エネルギー領域で f/c の値が 1 以上であれば fissile、それ以外は fertile として評価する。重核種の中では Am-242m、Pu-239、Pu-241、Cm-243、Cm-245 が fissile の役割を担う。Pu-238 については、 f/c の値が 1 以上の領域と、1 以下の領域が混在しており、fertile として評価されるが、後述する図 3.9 より核分裂に大きく寄与することが分かる。

また、本研究では炉心から Pu-238 を抽出するため、その分の MA を余分に多く LWR から受け入れることになる。そこで Pu-238 と LWR から受け入れる MA の平均 f/c を比較する。ただし、Pu-238 と MA の f/c は一群断面積を使い計算する。計算の結果、Pu-238 の f/c が MA のそれよりも大きい事が分かる。つまり炉心の Pu-238 が減り、受け入れ可能 MA 量が大きくなると、 k_{eff} が小さくなることが予想される。計算結果を図 3.4 に示す。

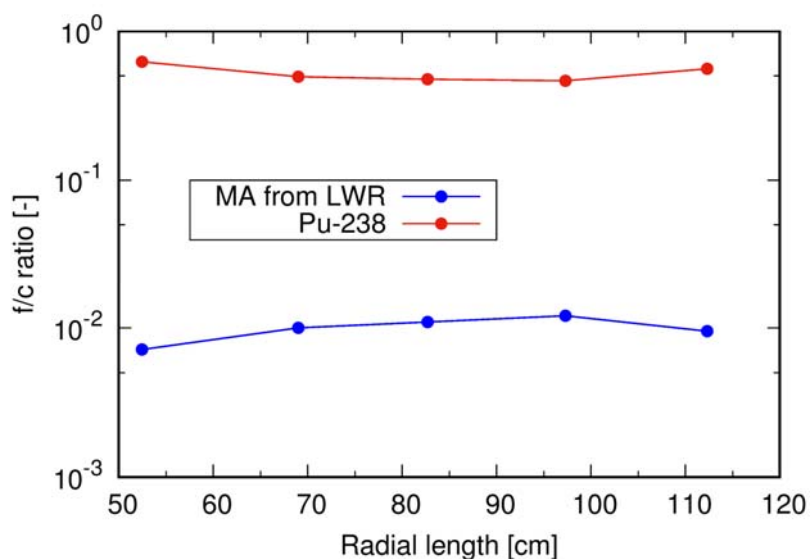


図 3.4 Pu-238 と MA の核分裂断面積の中性子捕獲断面積に対する比 (f/c ratio)

3.2 ADS 燃料中の MA 核種の毒性

次に各重核種が持つ毒性を定量的に評価し、具体的にどの核種を集中的に消滅することが有効なのかについて考える。図 3.5 に時間 0 での原子核 1 個あたりの経口線量 (Ingestion dose) と吸入線量 (Inhalation dose) を示す。ただし、毒性 (線量) は以下の式により計算する。

$$\text{線量(Sv)} = \text{放射能(Bq)} \times \text{線量換算係数(Sv/Bq)}$$

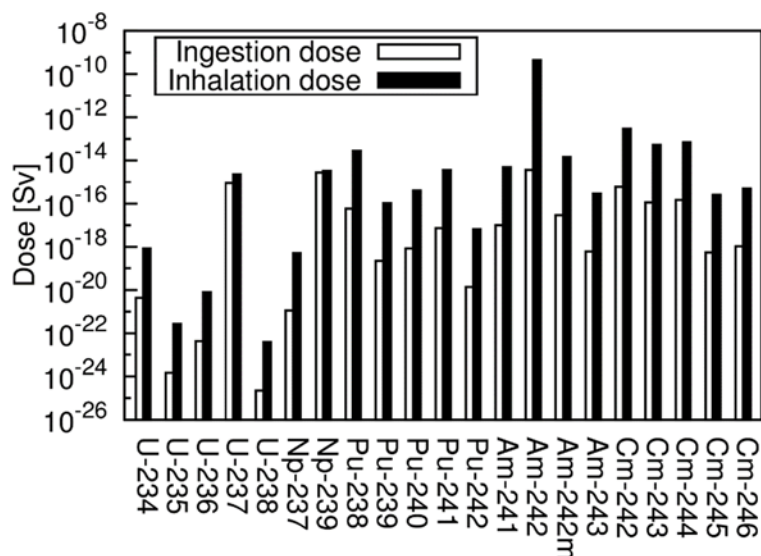


図 3.5 原子核 1 個あたりの線量

図 3.5 より Am-242 や Pu-238、Cm-242 といった核種が大きな線量を持つことが分かる。しかし、この結果より Am-242 や Pu-238 の毒性が使用済み燃料の毒性で大きな割合を占めているとは言えない。なぜなら、放射性核種は崩壊し娘核種、孫核種などの新たな核種になり、異なる線量を持つからである。つまり毒性が大きい核種でも崩壊してできる核種の毒性が小さい場合、その核種は使用済み燃料の毒性に対して影響が小さいということになる。そこで次に示す方法で核種の毒性を評価する。ADS の燃料として使用される PWR の使用済み燃料を 7 年冷却してから特定の核種を取り除き、線量の低下量を時間経過と共に観察し毒性の大きさを評価する。ただしここで解析する使用済み燃料は、再処理を想定しウランとプルトニウムが取り除かれたものとする。図 3.6 に、各核種を取り除いたときの使用済み燃料の線量と、各元素を取り除いたときの使用済み燃料の線量を示す。

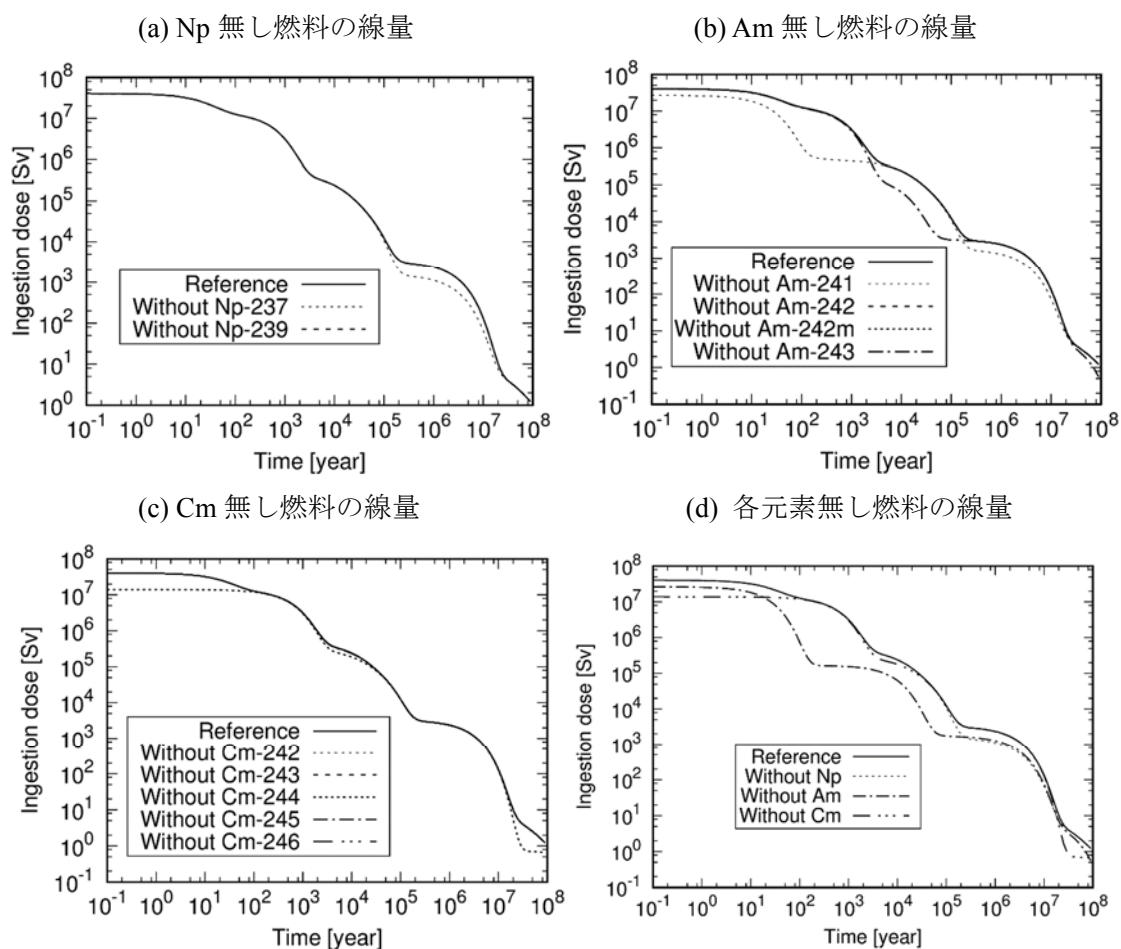


図 3.6 各同位体、各元素を取り除いたときの使用済み燃料の線量の推移

吸入線量と経口線量は同じような挙動を示したため、吸入線量のみ載せる。Np であれば Np-237 を使用済み燃料中から取り除くと、10 万年あたりから、線量が小さくなる。Am では Am-241 を取り除くと 1000 年から 10 万年まで以外のところで線量が小さくなるが、これは Am-241 が存在した場合崩壊してできる Np-237 や Pa-233 などが無くなったためである。また、Am-243 を取り除くと 1000 年から 10 万年までで線量が小さくなることが分かる。Cm は Cm-244 を取り除くと線量が低下するが、他の核種では差が見られなかった。また Np、Am、Cm の元素ごと取り除いた場合は、Am を取り除いたとき最も線量を小さくすることが分かる。以上より、Np-237 や Am-241、Am-243、Cm-244 といった核種を消滅させることで、使用済み燃料の毒性を小さくすることが出来ることが分かる。また、ある特定の核種、元素を消滅させても使用済み燃料の毒性を効果的に小さくすることは出来ず、満遍なく MA を消滅させることが毒性低減に有効であるということも分かる。

3.3 ADS の燃焼特性

ADS では燃焼が進むにつれて k_{eff} が大きくなっていくという特徴を持っているため、燃

焼反応度スウィングが大きくなる。そこで JAEA の設計では、ADS の最初のサイクルでは Pu が燃料に加えられ、初期サイクルの k_{eff} を大きくし、焼反応度スウィングを小さくする方法が採られている。また、ADS 燃料は焼サイクル終了後に FP が取り除かれ、その分の MA が加えられ次の焼サイクルへと送られる。サイクル間は 2.5 年という期間が設定されている。その内訳は燃料取り出しに 3 ヶ月、冷却期間に 1.5 年 (18 ヶ月)、燃料再成型に 6 ヶ月、燃料再装荷に 3 ヶ月という期間がそれぞれ設定されている。ADS サイクルの概略を図 3.7 に示す。

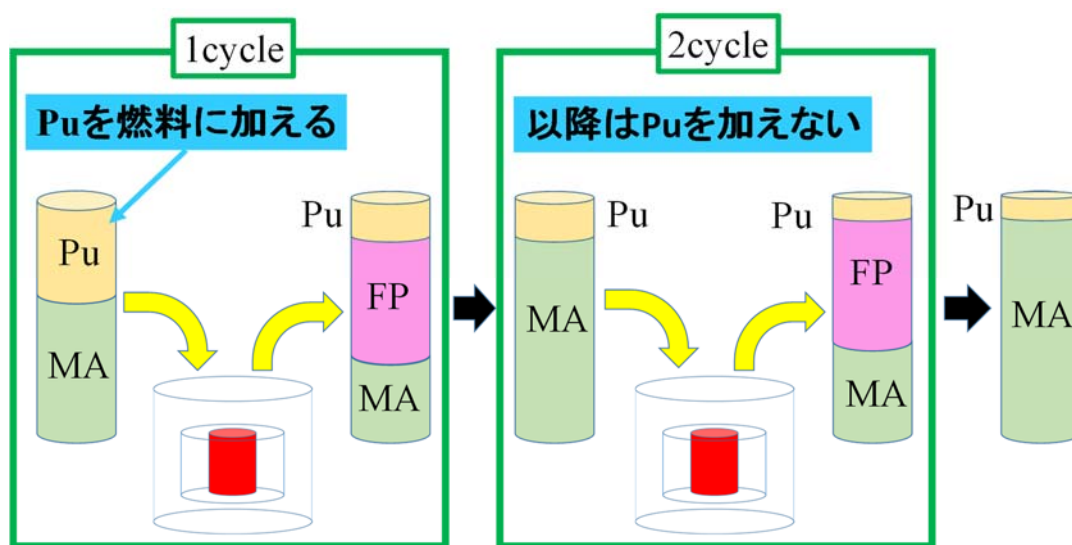


図 3.7 ADS 燃料サイクルの概略図

次に炉心全体で約 3.9t ある重核種のサイクル経過に伴う重量の増減を観察する。各サイクル初期の各重核種の重量を図 3.8 に示す。

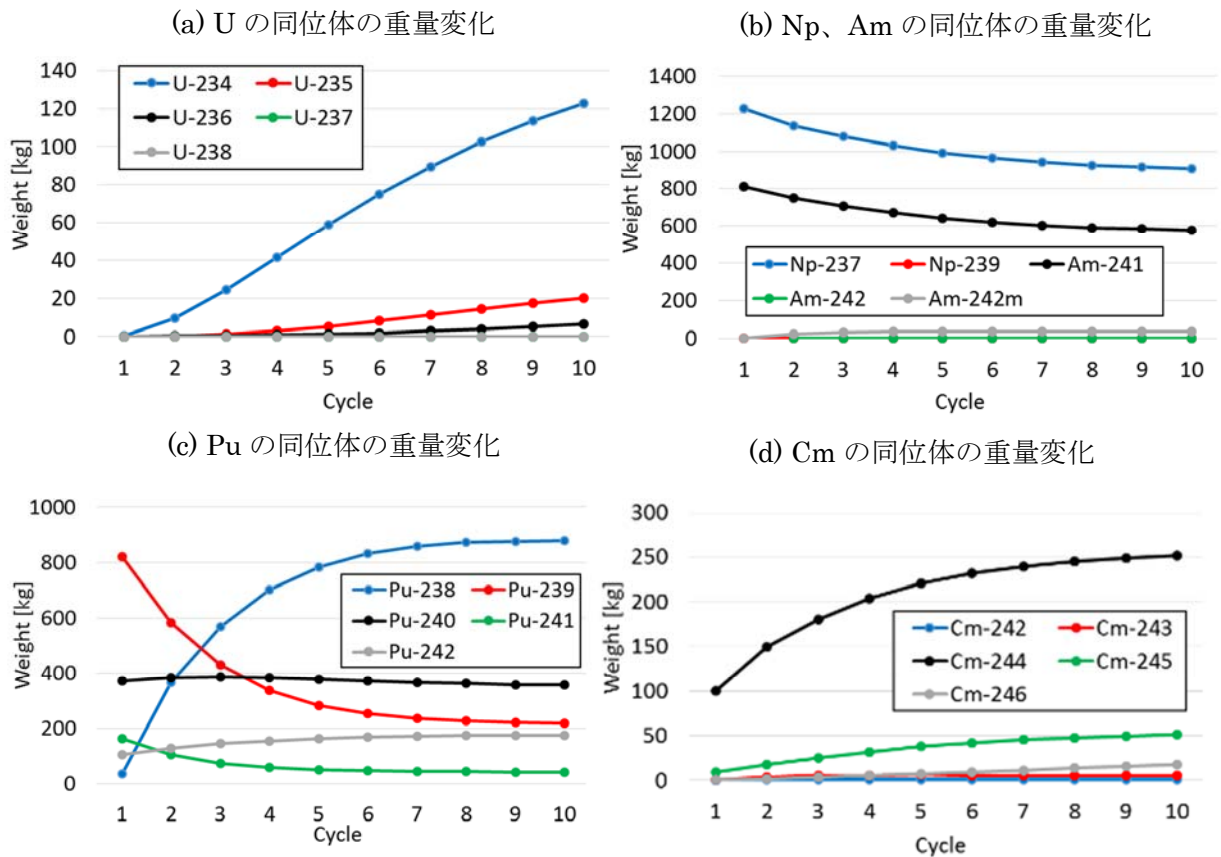
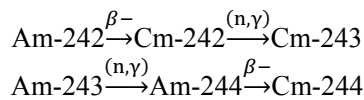


図 3.8 各同位体の重量変化

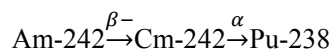
図から分かるように Cm-242 の重量は小さい。その理由は α 崩壊により Pu-238 に壊変するためである。また Cm-243 と Cm-244 の生成経路を以下の式に示す。



上の式から分かるように、Cm-244 は Cm-243 が中性子を捕獲し生成されるのではなく主に Am-243 からの崩壊によって生成されている。

また時間経過と共に、燃料中で割合を増していく Pu-238 が α 崩壊して U-234 が溜まっていくことが分かる。

Pu-239 はサイクル初期の k_{eff} を増加させるために燃焼前半で核分裂により消費されるため、時間とともにその重量が減少していく。また、以下の式に示す反応により Pu-238 の重量は時間とともに増加する。



ここからは核分裂する核分裂性核種の割合がどのように変化するかを考えていく。全核分裂反応に対する各核分裂性核種の割合を計算した結果を図 3.9 に示す。なお解析はサイクル 10 まで行ったが、サイクル後期になると核分裂割合に大きな変化が見られなかつ

たため、図にはサイクル9までの結果を載せている。

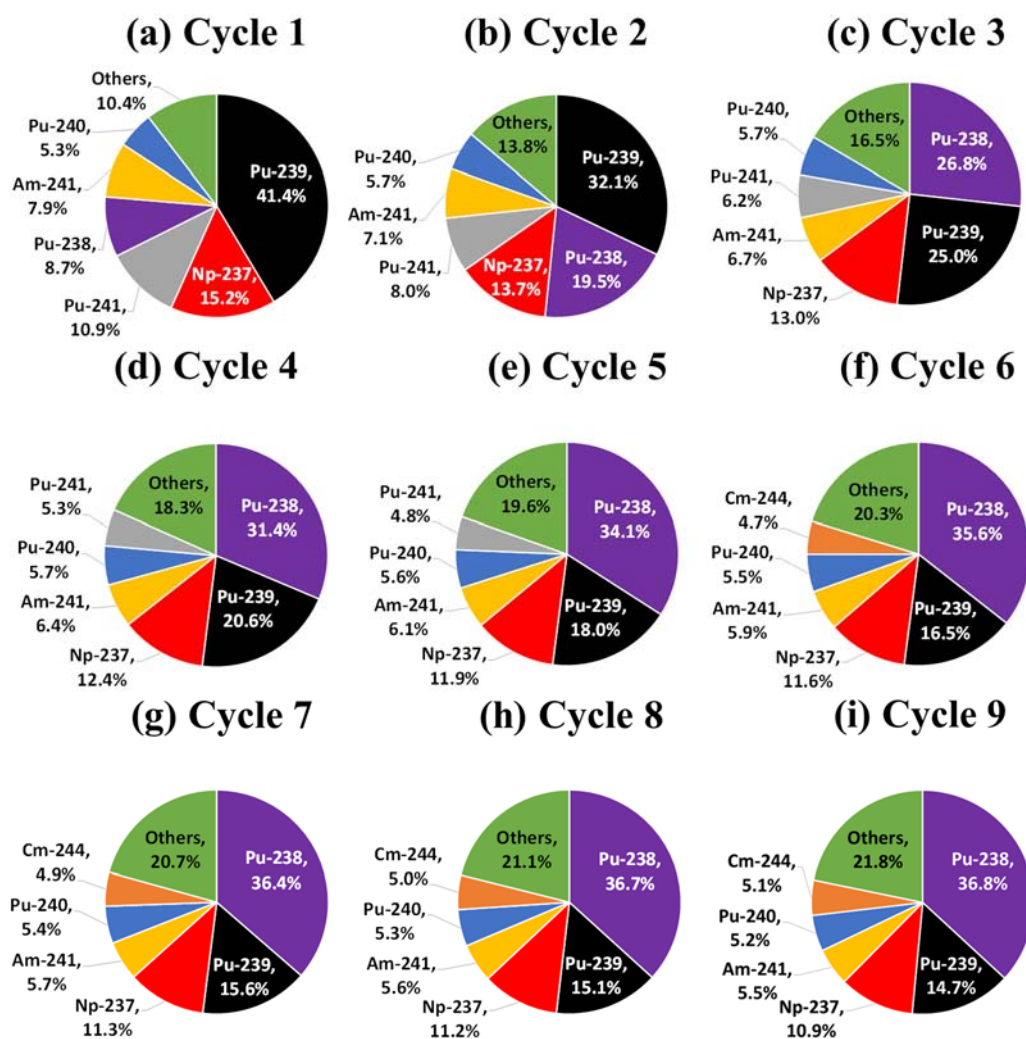


図 3.9 サイクル9までの核分裂する核分裂性核種の割合

この結果よりサイクル6以降では核分裂に寄与する核分裂性核種の割合がほぼ変わらないことが分かった。初期のサイクルでは Pu-239 が主に核分裂しているが、それ以降は Pu-238 が主に核分裂していることが分かる。また Pu-241 の核分裂割合はサイクル経過と伴に減少し、代わって Cm-244 の核分裂割合が増加してくる。

keffについての時間変化を図 3.10 に示す。このとき keff はサイクル2で最大値を取っている。これはサイクル2以降、燃料領域が1領域となっているためであると考えられる。図 3.11 に燃料領域が1領域の炉心と2領域の炉心の keff を示す。この結果より、燃料領域を1領域とすると keff が大きくなるので、サイクル2で keff が大きくなった。ただしこの解析は1サイクル目で、炉心重核種の重量が変わらないように Pu 富化度を調整した炉心を「1 region ADS」としている。

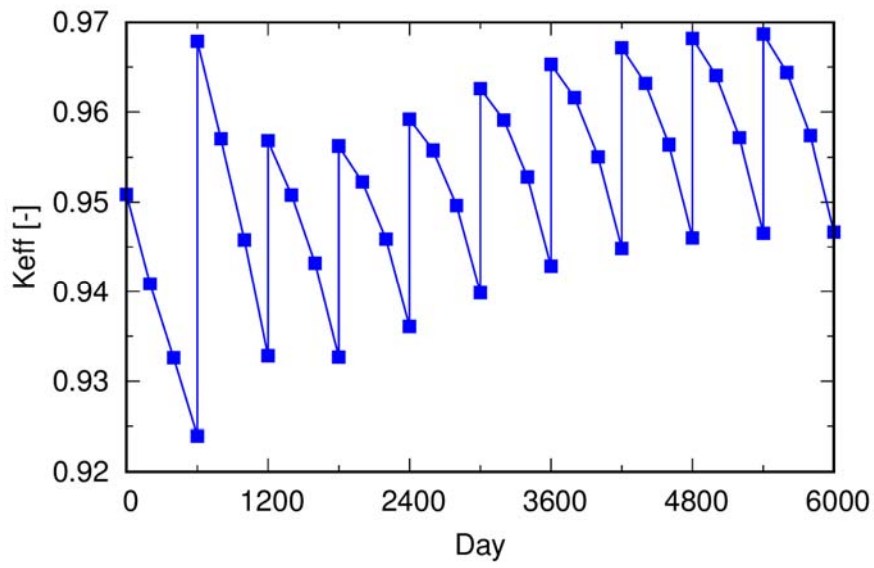


図 3.10 keff の時間変化

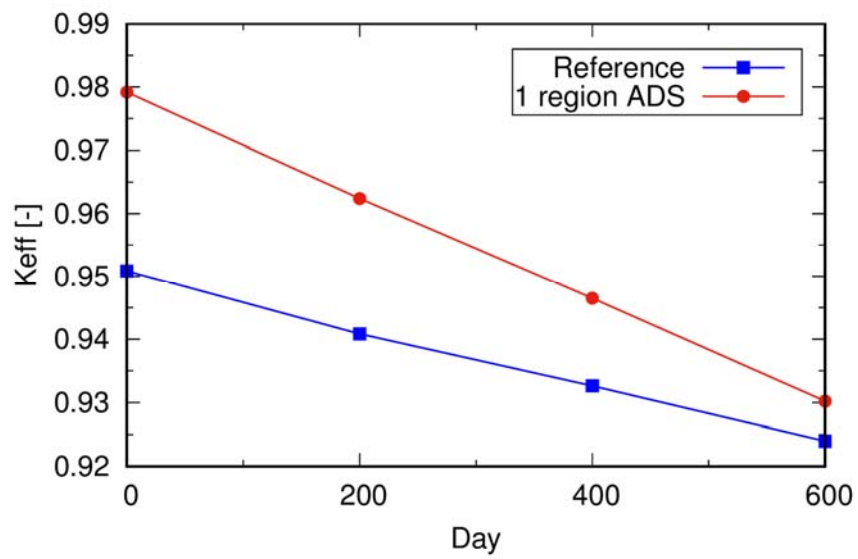


図 3.11 燃料領域が 1 領域炉心と 2 領域炉心の keff

4 Cm を利用した MA 低減と Pu-238 生成が可能な ADS サイクル

の検討

4.1 Cm を利用した ADS サイクルの概要

本章では Cm を利用し、MA 低減と Pu-238 生成が可能な ADS サイクルの実現性を検討する。まずその方法の概略を図 4.1 に示す。この方法は燃焼サイクルの間の燃料交換期間に適用される。まず燃料は炉心から取り出され、y1 の期間冷却される。その後 Cm・Am とそれ以外に分離され、y2 の期間冷却される。理想的には Cm 単体で分離することが望ましいが、現在の技術ではそれが出来ないため、Cm と Am を合わせて分離している。y2 の期間で Cm の同位体が Pu の同位体へと崩壊する。最後に y3 の期間で Cm 中から Pu が分離され、残った Cm と Am は次のサイクルで使用される燃料へと戻される。

この方法では Cm 同位体の半減期の違いを利用し、高純度の Pu-238 抽出を図った。ADS 燃料中の各 Cm 同位体の半減期を表 4.1 に示す。表 4.1 より Cm-242 から Pu-238 への半減期が 163days と他のものより小さく、y2 の期間冷却した際により多くの Pu-238 が生成されることが期待できる。

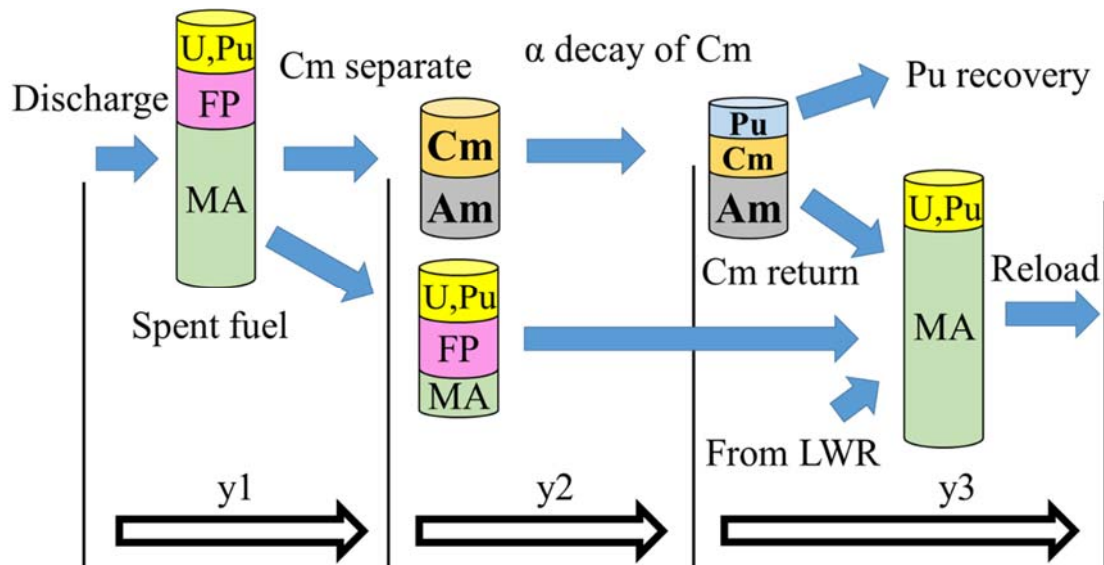


図 4.1 Cm を利用した Pu-238 生成・抽出方法の概略図

表 4.1 ADS 燃料中の Cm 同位体の半減期

Cm-242	→ Pu-238	163d
Cm-243	→ Pu-239	29.1y
Cm-244	→ Pu-240	18.1y
Cm-245	→ Pu-241	8500y
Cm-246	→ Pu-242	4760y

4.2 Cm を利用した ADS サイクルの解析結果

本節では具体的に Pu-238 生成・抽出機能を加えた際の ADS の抽出 Pu 量や Pu-238 純度、炉心パラメータの変化を観察する。このときの解析条件を表 4.2 に、解析結果を図 4.2 から図 4.6 に示す。なお、表 4.2 に示す解析条件の燃料組成は基準炉心（Reference）と同じである。

解析の結果、抽出できる Pu 量は約 5kg で、Pu-238 純度は最大でも約 40%であった。keff の変化量は 0.4%以下、最大出力密度・ボイド反応度の変化量は最大でも約 1%以下となり大きな変化は確認されなかった。図 4.7 に各サイクル初期の核分裂性核種変化量を示す。図 4.7 について変化量とは、Cm 分離方法を適用していない炉心からの変化量である。これから分かるように、Pu-238 を含む Pu を取り出したことにより、核分裂性核種の合計量が減って keff は小さくなり、最大出力密度は大きくなった。keff が小さくなった理由は核分裂性核種の減少だけではなく、図 3.4 の結果より f/c が大きい Pu-238 が減り、f/c が小さい MA が増えたことによる影響も考えられる。燃焼反応度スウィングは 4.99%から 4.88%へ変化した。受け入れ可能 MA 量は、Pu を抽出したその分の MA を LWR から新たに受け入れることが出来るため、約 1%程度大きくなっている。予想していた Pu-238 の純度よりも小さくなった原因を以下のように考察した。まず図 3.7 から分かるように Cm 同位体のうち Cm-244 の量が圧倒的に多い。そのため Cm-242 に比べ半減期は長い生成される Pu-240 の量も多くなり、Pu-238 の純度が高くならなかった。

表 4.2 燃料組成の解析条件

燃料ペレットZrN重量比		0.4875[wt%]
内側炉心PuN重量比		0.2610[wt%]
外側炉心PuN重量比		0.4950[wt%]
	y1	1.75[years]
燃料交換期間	y2	0.50[years]
	y3	0.25[years]

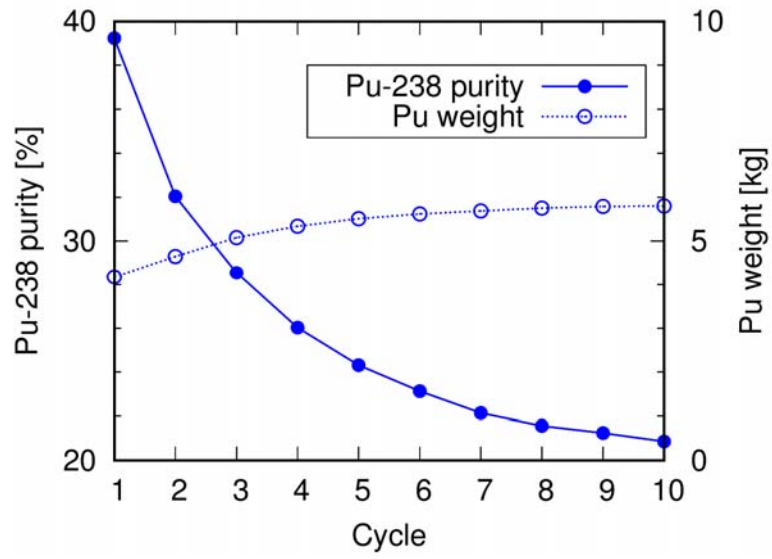


図 4.2 Pu-238 を抽出したときの Pu-238 純度と Pu 量

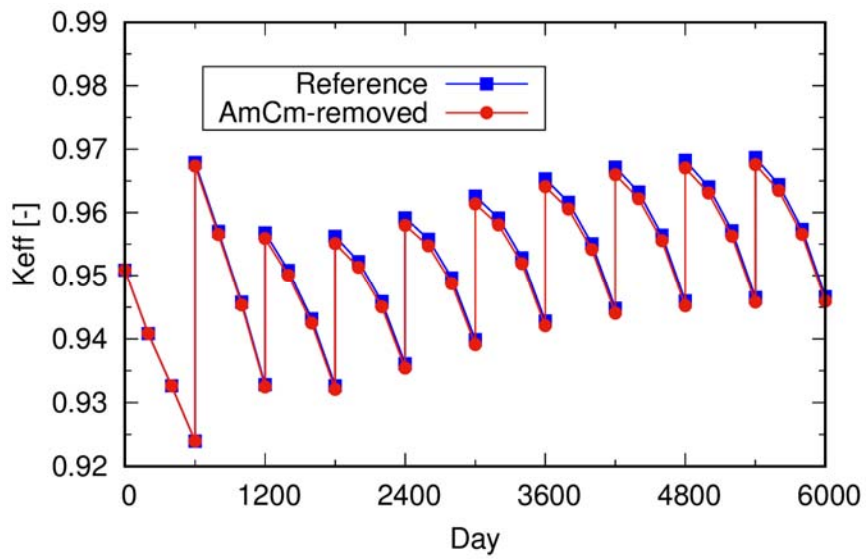


図 4.3 Pu を抽出したときの keff

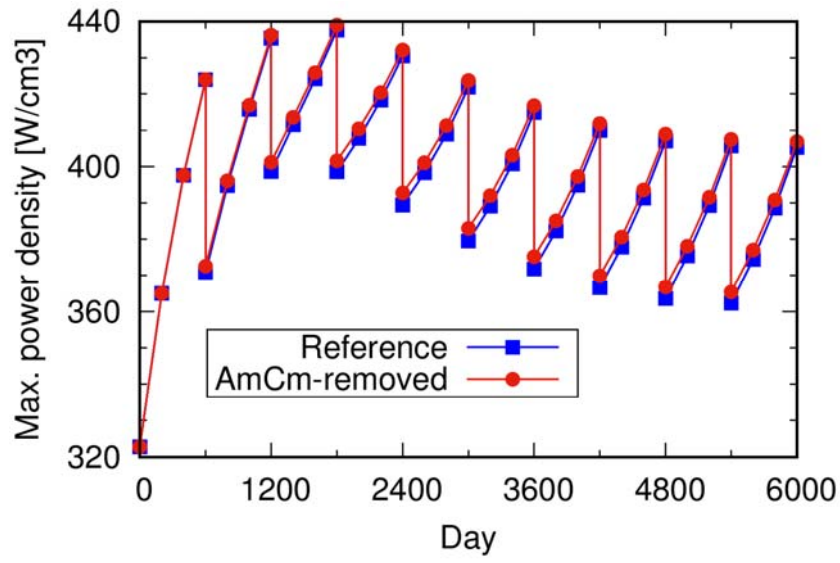


図 4.4 Pu を抽出したときの最大出力密度

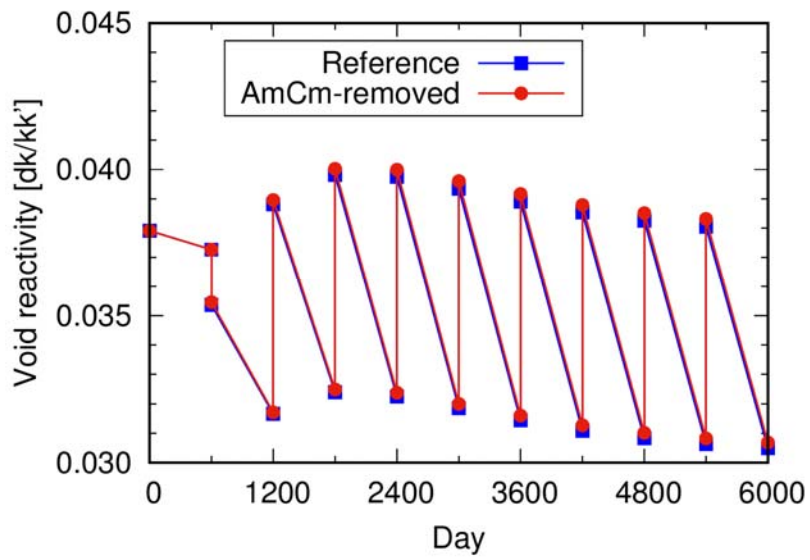


図 4.5 Pu を抽出したときのボイド反応度

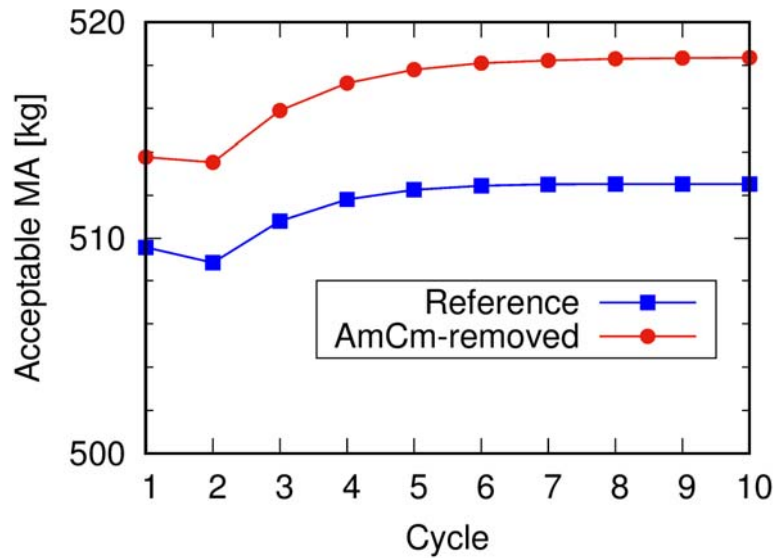


図 4.6 Pu を抽出したときの受け入れ可能 MA 量

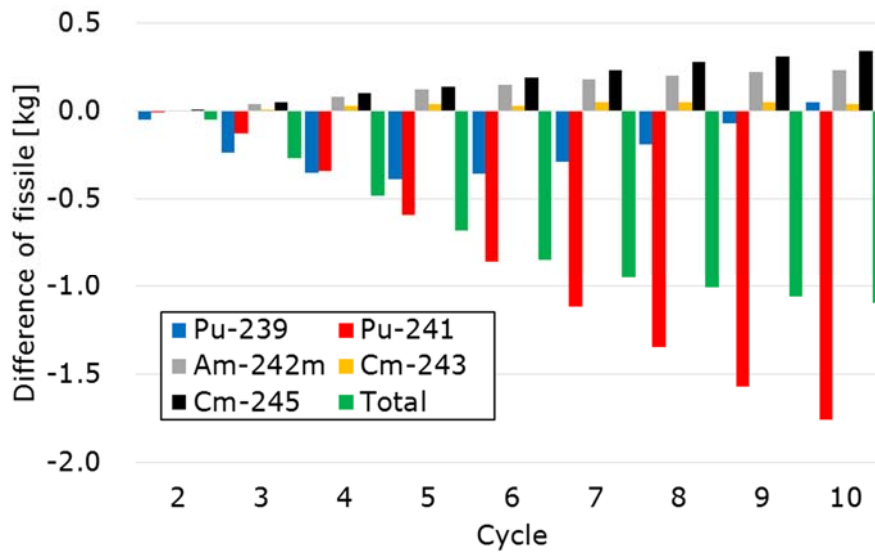


図 4.7 Pu-238 を抽出したときの核分裂性核種の変化量

4.3 Pu-238 の純度を高めるための ADS サイクル改良の検討

4.2 節の解析結果より、ADS サイクルに改良を施す必要があることが判明した。そのため燃料交換期間 y_1 、 y_2 、 y_3 を調整するという改良を施した。まず、それぞれの値が Pu-238 純度にどのように影響するのかを図 4.8 から図 4.10 に示す。図 4.8 から図 4.10 の見方を図 4.8 を例に説明する。図 4.8 では y_1 に焦点を当て解析を行っており、「Decrease y_1 」では y_1 を半分の値にしている。また「Decrease y_1 increase y_2 」では y_1 を半分にし、 y_1 、 y_2 、 y_3 の合計した値が 2.5 となるように y_2 を増やす調整をしている。「Decrease y_1 increase y_3 」も同様である。こうすることで、Pu-238 純度の変化について y_1 が小さくなった影響

なのか、 y_1 、 y_2 、 y_3 の和である燃料交換期間が小さくなった影響なのかを評価することが出来る。この結果より、 y_1 、 y_2 については小さく、 y_3 については大きくすると、抽出できる Pu-238 純度も高くなることが分かる。

y_1 について、この値を小さくすると y_1 の期間で Cm-242 から Pu-238 へと崩壊する量が小さくなり、 y_2 開始時点で Am と Cm を分離した中の Cm-242 の量が大きくなり、Pu-238 の純度が高くなる。

y_2 について、この値を小さくすると半減期の差が影響し Pu-238 の純度を悪くする原因である Cm-244 の崩壊数が Cm-242 の崩壊数に比べより小さくなり、Pu-238 の純度が高くなる。

y_3 について、この値を大きくするとこの期間での Cm-244 の Pu-240 へと崩壊する量が大きくなる。そして次の燃料交換期間で Am と Cm を分離した際に含まれる Cm-244 の量が小さくなり、それに伴い抽出される Pu 中の Pu-240 も減り Pu-238 の純度が高くなる。

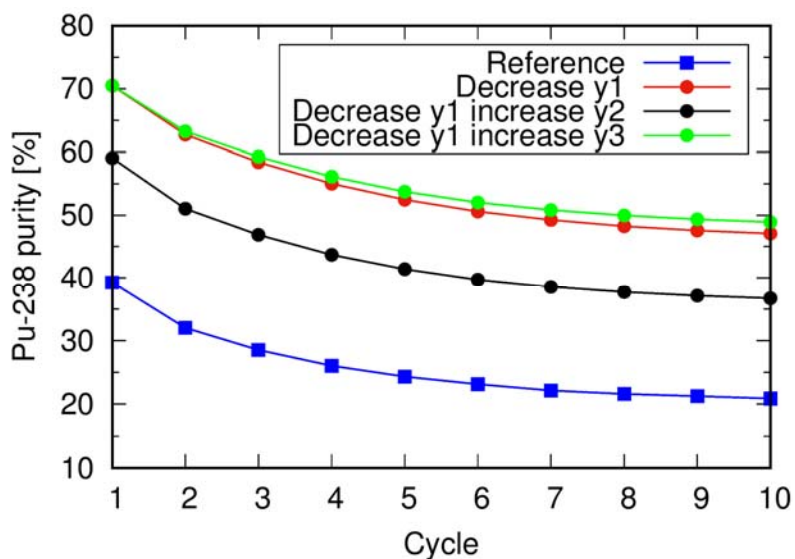


図 4.8 y_1 と Pu-238 純度の関係

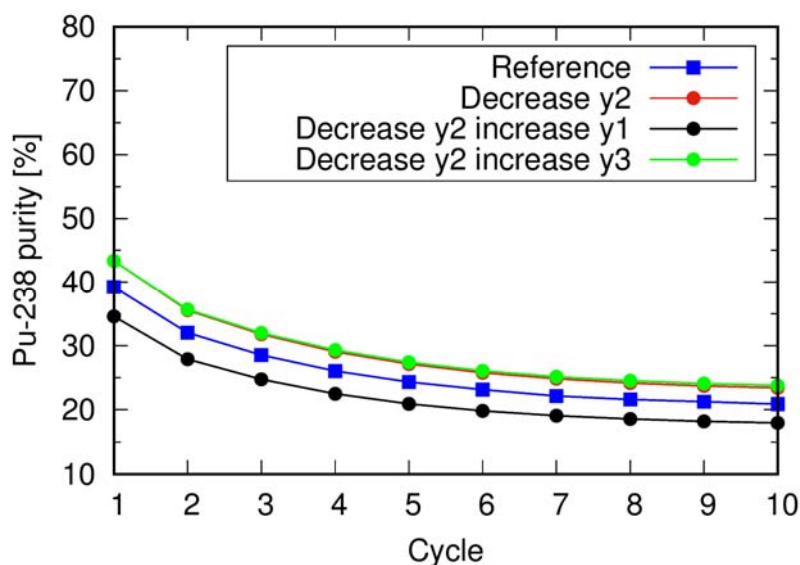


図 4.9 y2 と Pu-238 純度の関係

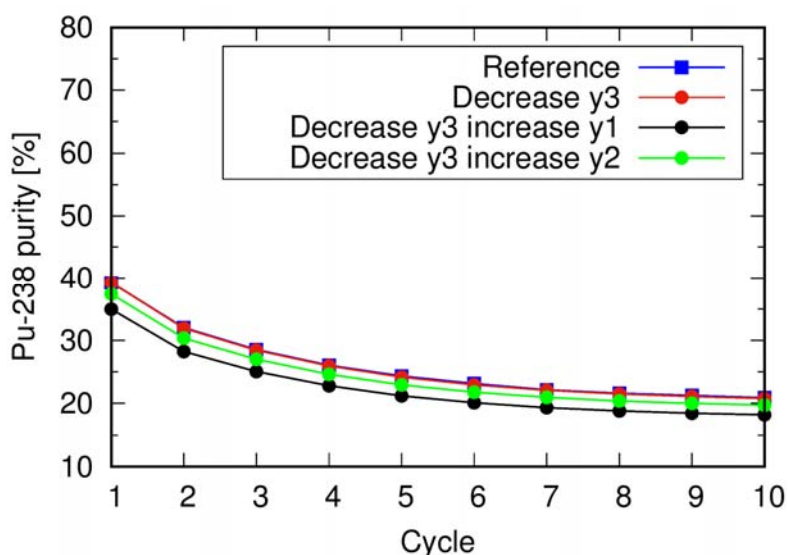


図 4.10 y3 と Pu-238 の関係

4.4 改良した ADS サイクルの解析結果

4.3 節からの考察より、1 サイクル目で抽出できる Pu-238 の純度が 80%を超えるように y1、y2、y3 を調整した。改良を施した ADS サイクルについて解析条件を表 4.3 に、解析結果を図 4.11 から図 4.14 に示す。抽出できる Pu 量は、サイクル初期では約 4kg、サイクル後期では 6kg となった。改良を加える前からの keff、最大出力密度、ポイド反応度、燃焼反応度スウィングの変化量は 0.1%以下で大きな変化は確認されなかった。受け入れ可能 MA 量は、Pu の抽出量に相関してサイクル初期では改良前よりも多くなり、サイクル後期ではそれよりも小さくなった。

Pu-238 の純度について、y1、y2、y3 をさらに調整することで純度は高まるが、それらを大幅に変化させたところ純度の上昇量は僅かであった。また解析条件に示した y1、y2、y3 が Pu-238 の純度 80% を僅かに超える組み合わせであるが、このとき再処理に関して問題があることが判明した。当初は y1 について 1.75years と設定していたが、これは燃料の崩壊熱が再処理可能となるまでに必要な冷却期間である[8]。そのため y1 を半分以下の 0.65years とすると、再処理前の燃料崩壊熱が大きくなり現実的に再処理が出来なくなるおそれがある。解析した再処理前の燃料崩壊熱を図 4.16 に示す。これより崩壊熱が約 3 倍の値となっていることが分かる。Pu-238 の純度については、y1 を変化させずに y2 と y3 だけの調整では 80% を超えることは出来ない。そのため今回採用した Cm を分離する方法は実現困難と言える。

表 4.3 改良 ADS の解析条件

燃料ペレットZrN重量比	0.4875[wt%]
内側炉心PuN重量比	0.2610[wt%]
外側炉心PuN重量比	0.4950[wt%]
燃料交換期間 y1	0.65[years]
燃料交換期間 y2	0.20[years]
燃料交換期間 y3	1.50[years]

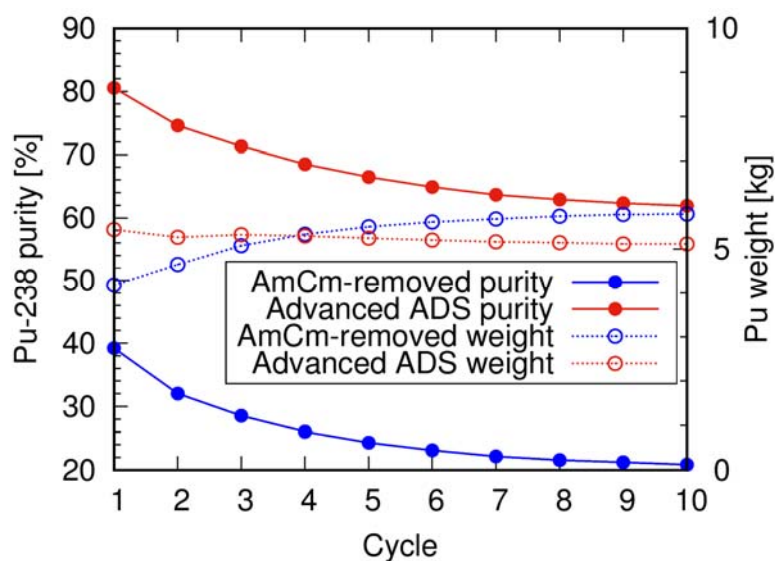


図 4.11 改良 ADS の Pu-238 純度と Pu 量

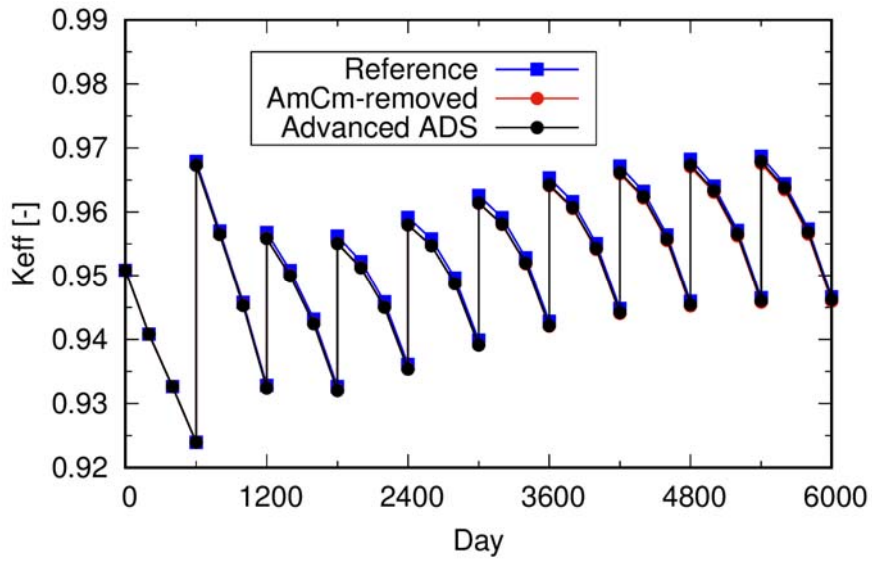


図 4.12 改良 ADS の k_{eff}

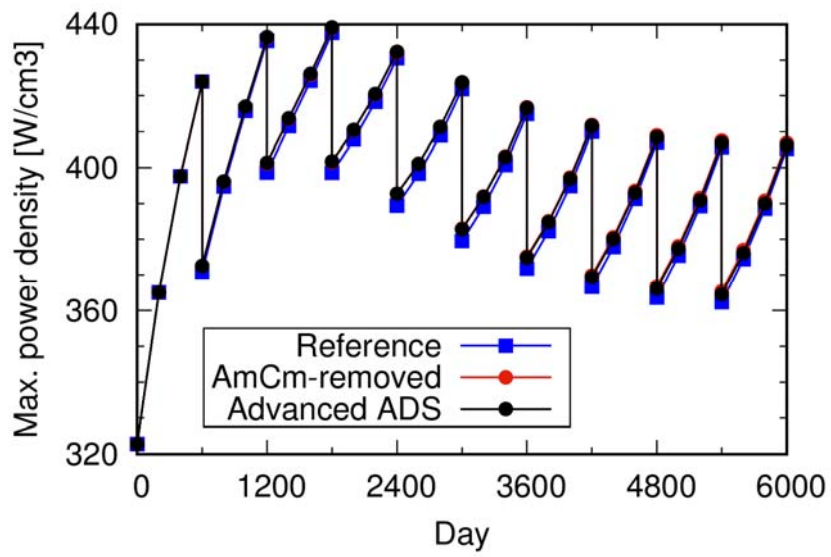


図 4.13 改良 ADS の最大出力密度

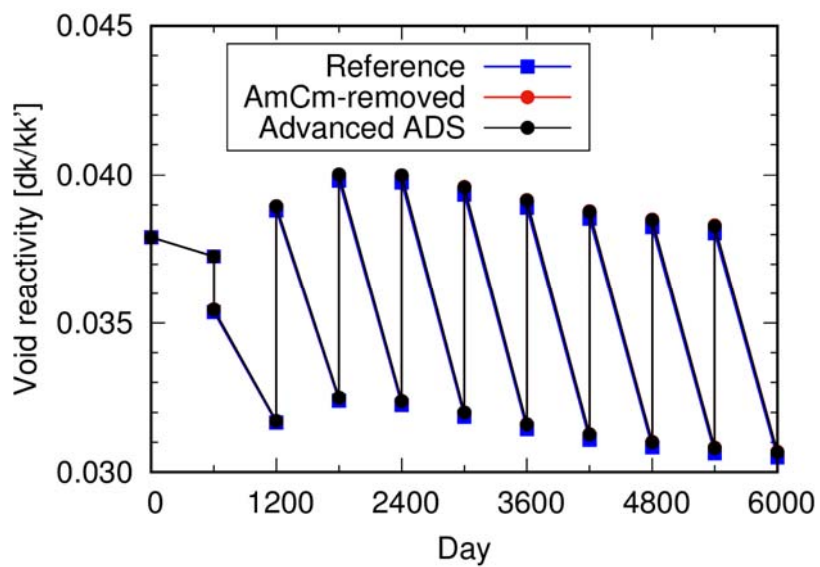


図 4.14 改良 ADS のボイド反応度

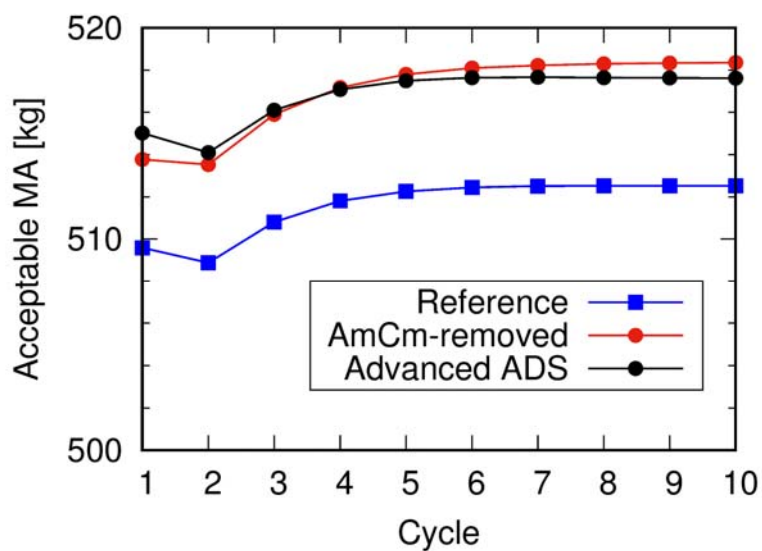


図 4.15 改良 ADS の受け入れ可能 MA 量

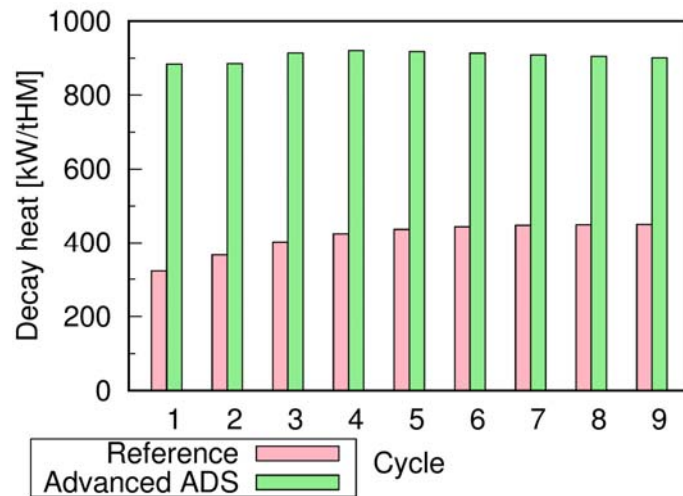


図 4.16 改良 ADS の崩壊熱

4.5 まとめ

第 4 章では、Cm の分離を利用した MA 低減と Pu-238 生成が可能な ADS サイクルの実現性を検討した。Cm 分離方法を、参考にした基準の ADS サイクルに付け加えたところ、Pu-238 の純度が目標とした 80% に届かなかった。そこでサイクル 1 で Pu-238 純度が 80% を超えるように、燃料交換期間 y_1 、 y_2 、 y_3 を調整する改良を加えた。その結果、サイクル 1 で Pu-238 純度 80% の Pu が約 4kg 抽出できた。このとき y_1 を適切な値まで小さくしたが、 y_1 を小さくすることで燃料再処理の際の燃料崩壊熱が従来から約 3 倍の値になり、再処理が困難になる問題が生じた。そのため、この Cm の分離を利用した方法は実現困難であるという結論に至った。

5 Np ターゲット燃料を利用した MA 低減と Pu-238 生成が可能な

ADS サイクルの検討

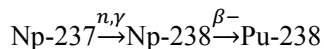
5.1 Np ターゲット燃料を利用した ADS サイクルの概要

本章では、中性子減速ターゲットと呼ばれる特殊な集合体を炉心に装荷する方法を参考にし、5.1 節では中性子減速ターゲットの概要について説明する。

既に FP の核変換を目的とする中性子減速ターゲットの研究が行われている。その一例として、HYPER (HYbrid Power Extraction Reactor) について説明する。HYPER は、KAERI (Korea Atomic Energy Research Institute) で I-129 (Iodine、ヨウ素) や Tc-99

(Technetium、テクネチウム) といった FP を核変換するために開発された ADS である [9]。図 5.1、5.2 に HYPER の炉心構成と燃料棒構成を示す。高速中性子を利用し MA を核分裂させている ADS だが、中性子減速ターゲットを用いることで任意の空間の中性子を減速し、FP の核変換や炉心出力分布の平坦化など様々なことが可能となる。

図 5.3 に Np-237 の各反応断面積を示す。これから分かるように、捕獲断面積が低いエネルギー領域で大きくなっている。中性子減速ターゲットを使い中性子のエネルギーを小さくし、以下の反応を利用して Pu-238 生成を試みる。



これは図 1.5 に示した DOE が行っている方法と原理は一緒で、ADS の燃料サイクルで行うという点が異なっている。本研究では、減速材を導入せずに Np 燃料を用いて MA 低減と Pu-238 生成が可能な ADS サイクルの実現性を検討する。

Np ターゲット燃料集合体を構成する Np は、ADS サイクルの燃料交換期間中に行われる再処理時に確保する。図 3.1 に示された燃焼後に炉心から取り出され、再処理前の燃料中の MA の中から、ターゲット燃料集合体用の Np を確保する。そのため、この方法は第 1 サイクルには適用できず、第 2 サイクルからの導入となる。図 5.4 には基準炉心

(Reference) の、図 5.5 には Np ターゲット燃料集合体を外側に 7 体装荷したときの各サイクル末期の燃料組成を示す。Np ターゲット燃料集合体を装荷しても利用できる Np は少なくならないため、少なくとも 650kg 程度の Np が利用可能である事が分かる。

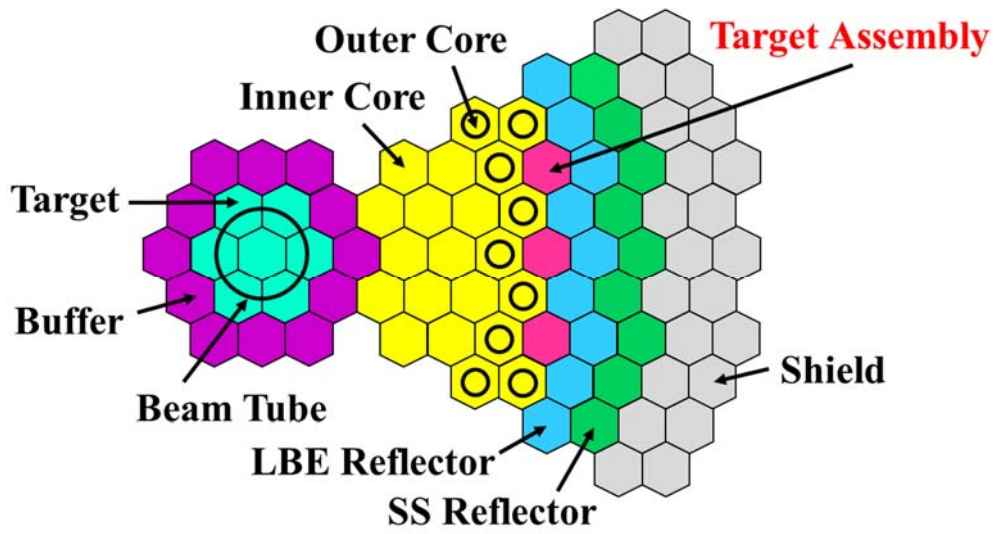


図 5.1 HYPER の炉心構成

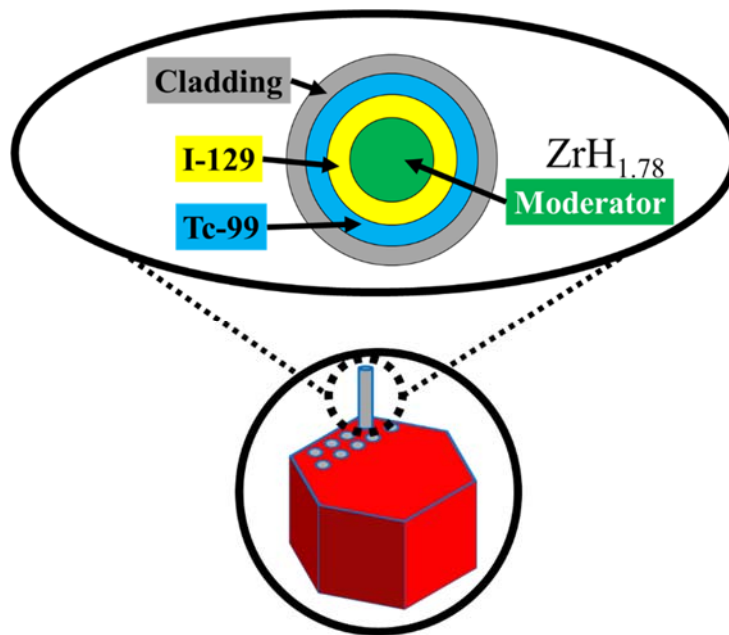


図 5.2 HYPER の燃料棒構成

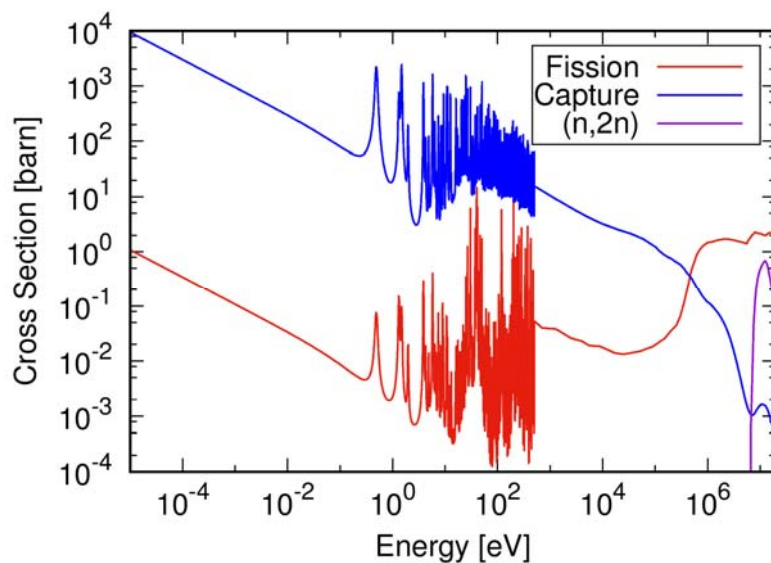


図 5.3 Np-237 の各反応断面積

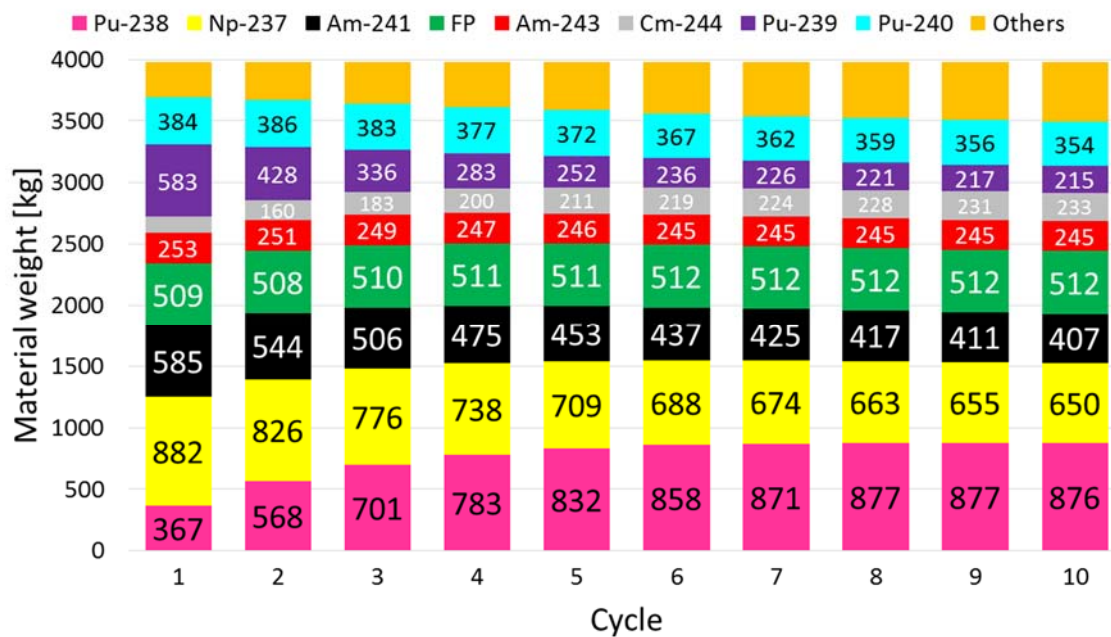


図 5.4 基準炉心 (Reference) の各サイクル末期の燃料組成

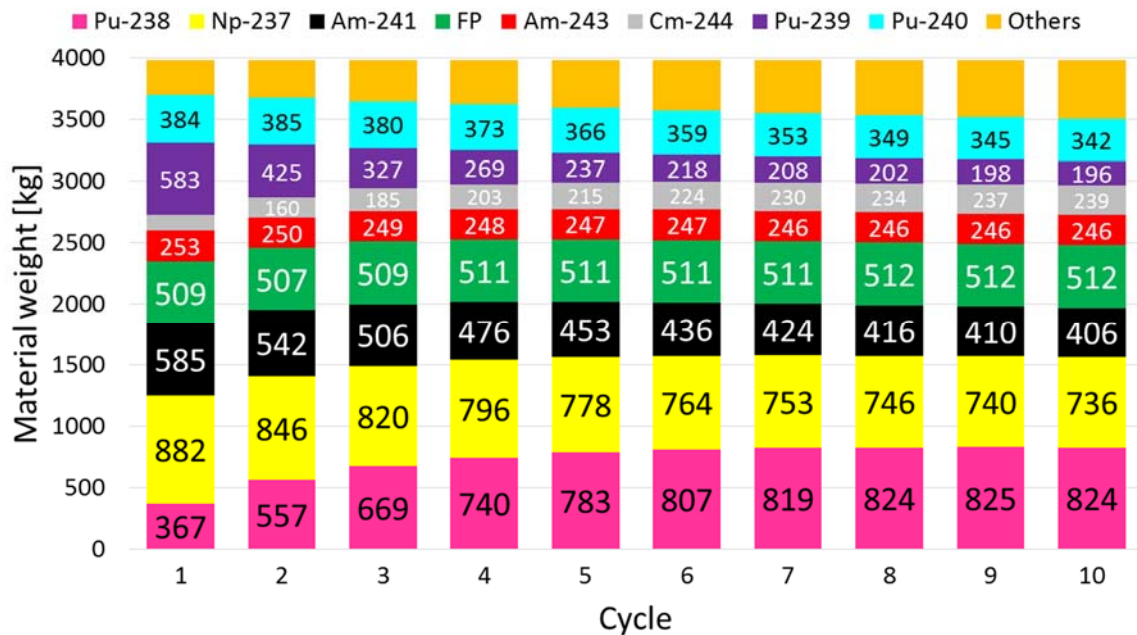


図 5.5 Np ターゲット燃料集合体を外側に 7 体装荷したときの各サイクル末期の燃料組成

5.2 Np ターゲット燃料を利用した ADS サイクルの解析結果

本研究で対象とした炉心には燃焼集合体が 132 体装荷されている。本節では効率的なターゲットの装荷方法について検討する。

図 5.6 には中性子束と Np-237 の一群捕獲断面積の炉心半径方向分布を示す。なお各値は炉心高さ方向の値を平均して計算していて、中性子束はエネルギー積分した中性子束である。この図より、IC (Inner Core、内側炉心) の最も内側の層に Np ターゲット燃料集合体を装荷すると効率的に Pu-238 が生成されることが分かる。

そこで IC の最も内側の層に Np ターゲット燃料集合体を 18 体装荷し、解析を行った。解析の結果、抽出できる Pu 量は約 230kg、Pu-238 純度は最大で 72% となり、 k_{eff} は約 0.57 まで小さくなった。 k_{eff} が小さくなった原因は、核破碎反応によって生まれた高速中性子を Np ターゲット燃料集合体が吸収、または減速し MA 燃料が核分裂を起こしにくくなったためである。IC に装荷するのは好ましくないことが分かったため、最も外側の層に装荷することにした。IC の最も内側の層と OC (Outer Core、外側炉心) の最も外側の層に 18 体装荷したときの解析結果を図 5.7、5.8 に示す。OC に装荷する場合、抽出できる Pu 量は 50kg、Pu-238 純度は約 97%、燃焼反応度スウィングは IC に装荷する場合よりも小さくなった。

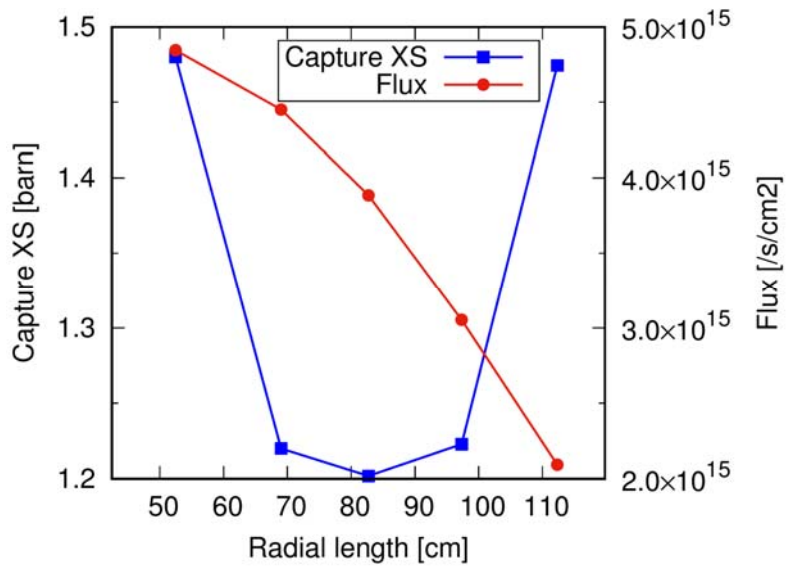


図 5.6 中性子束と Np-237 の一群捕獲断面積の炉心半径方向分布

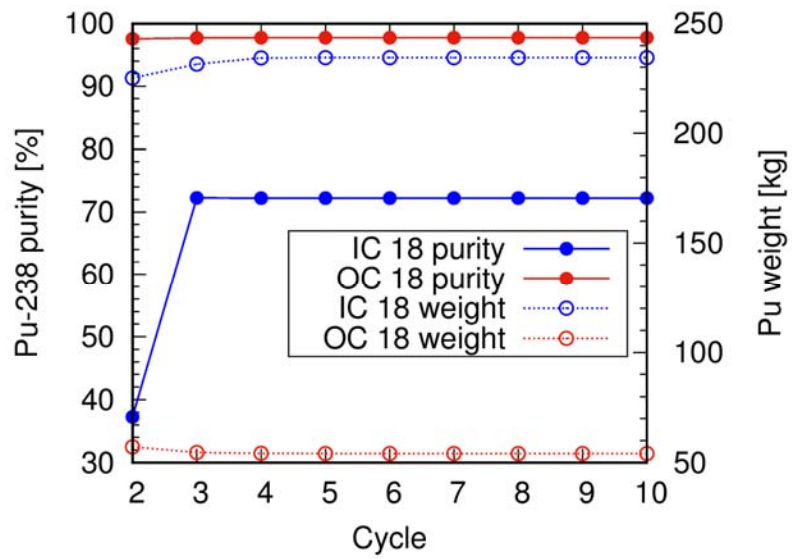


図 5.7 Np ターゲット燃料集合体を内側と外側にそれぞれ 18 体装荷したときの Pu 量と Pu-238 純度

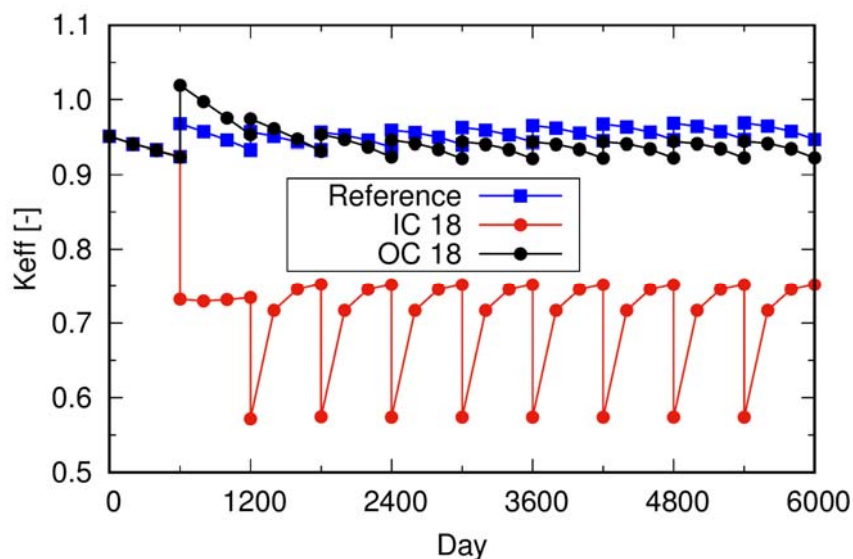


図 5.8 Np ターゲット燃料集合体を内側と外側にそれぞれ 18 体装荷したときの keff

図 5.8 より OC に 18 体装荷すると keff が 0.97 を超えるので、装荷体数を減らし制約条件を満たす装荷体数を探した。装荷体数を 1、3、5、7 体としたときの keff の結果を図 5.9 に示す。これより keff について、Np ターゲット燃料集合体を装荷すると次のように変化することが分かる。Np ターゲット燃料集合体が多いと初期サイクルでは keff がより大きくなり、後期サイクルでは keff がより小さくなる。

Np ターゲット燃料集合体が多いほど、fissile は炉心中央に集められる。そのため核分裂により生まれた中性子が次の fissile に衝突し易くなり、初期サイクルの keff が大きくなった。この様子を図 5.10 に示す。後期サイクルでは逆に装荷体数が多いほど keff が小さくなっている。この原因は、装荷体数が多いとサイクルの進行とともに fissile の減少量も多くなるためである。fissile の減少量が多くなるのは、fertile である Np が炉心外周に配置され、転換が起きにくくなったためである。各サイクル初期の燃料中 fissile の減少量を解析した結果を図 5.11 に示す。ただし図 5.11 の解析は fissile の合計量で解析を行い、サイクル 1、2 のときの変化量は無いいためサイクル 3 から 10 までを載せている。

keff について、最小装荷体数である 1 体であってもサイクル 2 で 0.97 を超えた。そこでサイクル 1 以外で最も keff が小さいサイクル 3 から Np ターゲット燃料集合体を装荷し、解析を行った。

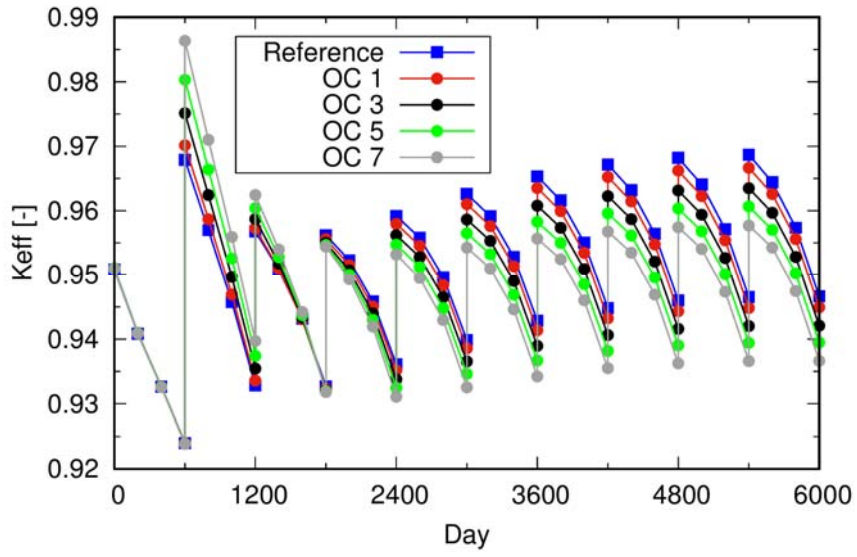


図 5.9 Np ターゲット燃料集合体を外側に 1、3、5、7 体装荷したときの keff

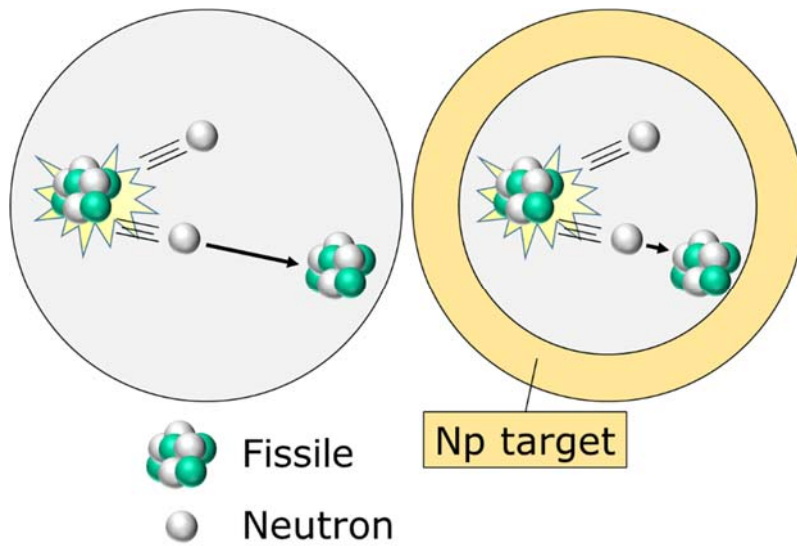


図 5.10 Np ターゲット燃料集合体装荷による炉心の変化

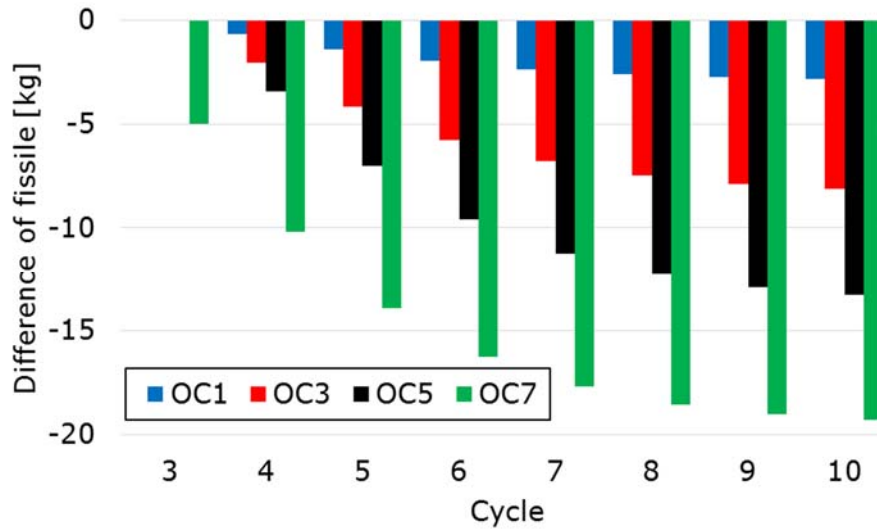


図 5.11 Np ターゲット燃料集合体を外側に 1、3、5、7 体装荷したときの核分裂性核種の変化量

サイクル 3 から Np ターゲット燃料集合体を 1、3、5、7 体装荷したときの k_{eff} の解析結果を図 5.12 に示す。このことから Np ターゲット燃料集合体装荷体数を 5 体以下にすれば、 k_{eff} が 0.97 を超えないことが分かった。その他の解析結果を図 5.13 から図 5.16 に示す。Np ターゲット燃料集合体を 5 体装荷した場合、抽出される Pu 量は約 22kg、Pu-238 純度は 96% で、燃焼反応度スウィングは 4.91%、最大出力密度やボイド反応度などのパラメータは制限を超えるものは無いことから MA 低減と Pu-238 生成が可能であることが分かった。

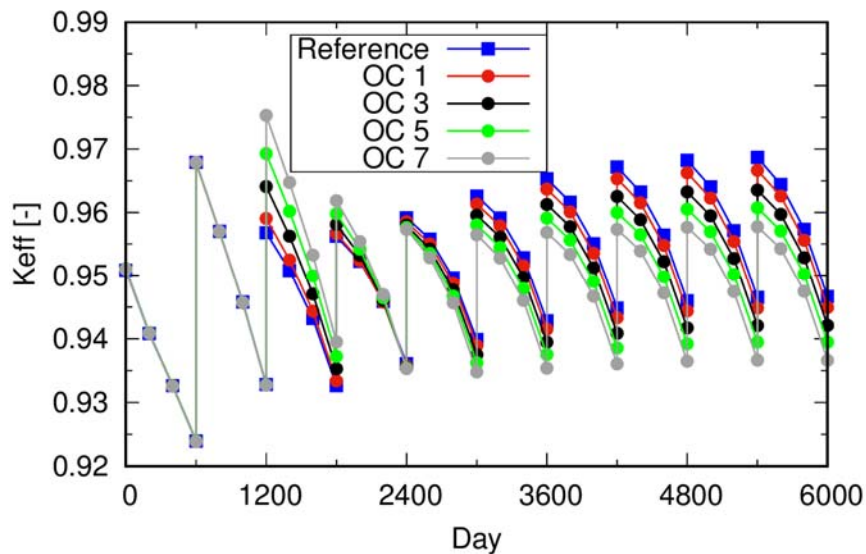


図 5.12 Np ターゲット燃料集合体を外側に 1、3、5、7 体装荷したときの k_{eff}

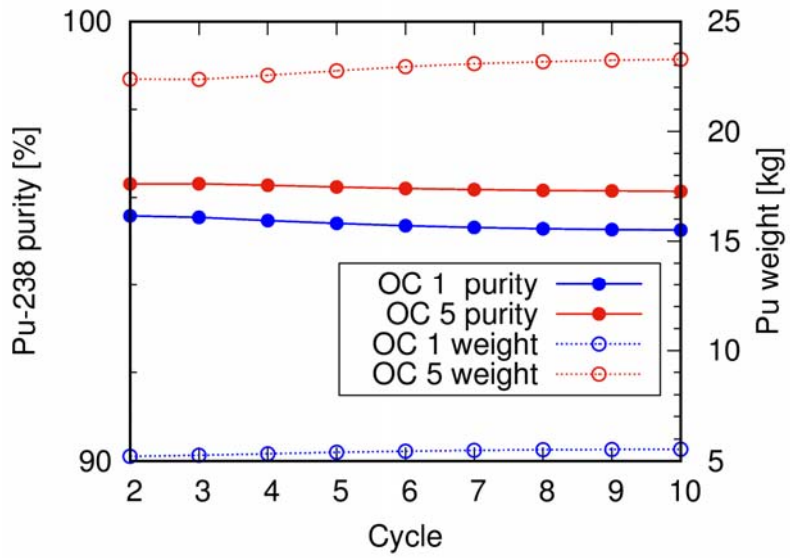


図 5.13 Np ターゲット燃料集合体を外側に 1、5 体装荷したときの Pu-238 純度と Pu 量

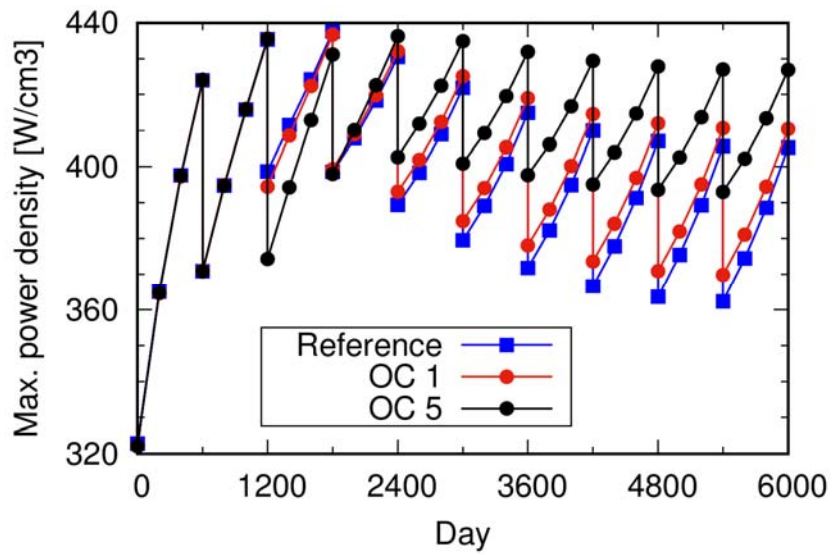


図 5.14 Np ターゲット燃料集合体を外側に 1、5 体装荷したときの最大出力密度

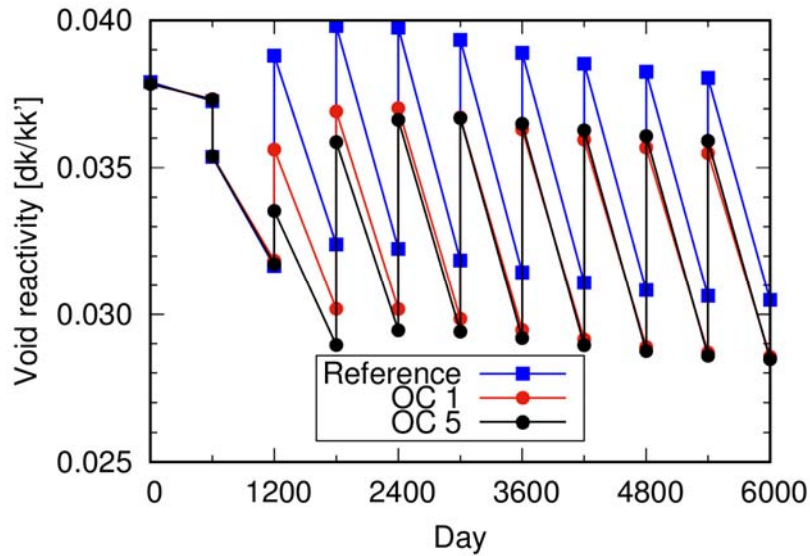


図 5.15 Np ターゲット燃料集合体を外側に 1、5 体装荷したときのボイド反応度

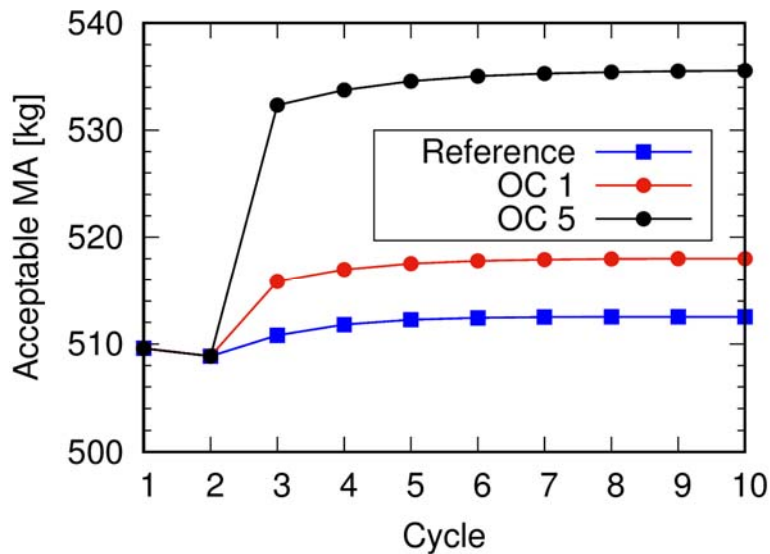


図 5.16 Np ターゲット燃料集合体を外側に 1、5 体装荷したときの受け入れ可能 MA 量

5.3 装荷 Np ターゲット燃料集合体を増やす検討

本節では Pu-238 の量を増やすために Np ターゲット燃料集合体の装荷体数を増やす検討を行う。

また現在の解析では、対象とする ADS の 3 次元体系とモデル化した体系が大きく乖離している。CBZ の FRBurnerRZ モジュールは炉心体系を円筒体系へとモデル化し解析を行う。そこで次のような問題が出てきた。図 5.17 を使い問題点を説明する。図 5.17 の黄色の集合体が Np ターゲット燃料集合体を表す。この例は Np ターゲット燃料集合体 3 体を最も外側の層に装荷する場合である。パターン 1 とパターン 2 では配置の仕方が異なってい

るが、円筒体系に直すと同じ体系として扱われる。またパターン1とパターン2両者とも炉心中心をリング状に囲う配置とはなっていないが、円筒体系に直すと炉心中心をリング状に囲う同心円状の体系となる。このままではモデル化が妥当ではない可能性がある。そのため、モデル化された円筒体系に近づけるためにも、 N_p ターゲット燃料集合体装荷体数を増やすことが望ましい。

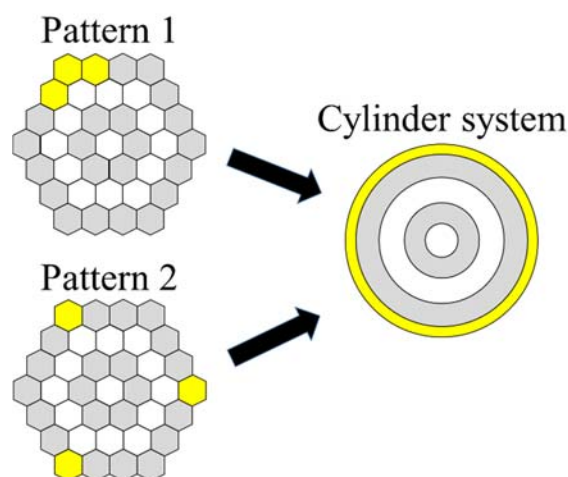


図 5.17 FRBurnerRZ による炉心のモデル化

5.3.1 再処理方法を変更し装荷 N_p ターゲット燃料集合体を増やす検討

ここまでの解析で OC の最も外側の層に 5 体以下の N_p ターゲット燃料集合体を装荷した場合、MA 低減と Pu-238 生成が可能な ADS サイクルの実現性を確認した。しかし文献 [7]によると、再処理を IC と OC で独立して行うと、サイクル 2 や 3 での k_{eff} が小さくなるのが分かる。これまでの再処理方法は IC と OC の使用済み燃料を区別せずに行っていたため、2 サイクル目以降の燃料組成は IC と OC で同じものになっていた。これに対して、IC と OC の 2 領域で再処理を行うと、2 サイクル目以降も IC と OC の燃料組成が異なることになる。また今までの解析から、サイクル 2 や 3 での k_{eff} が小さくなれば N_p ターゲット燃料集合体装荷体数を増やせることが分かっているため、再処理方法を変更し装荷体数を増やす検討を行った。

再処理方法を変更したときの k_{eff} の変化を図 5.18 に示す。2 領域で再処理を行うことで、初期サイクルの k_{eff} が小さくなった。次に N_p 燃料集合体を何体装荷できるのか調べた。解析結果を図 5.19 に示す。図 5.19 の結果より、2 体装荷した場合、 k_{eff} が 0.97 を超えた。 k_{eff} について、1 領域で再処理を行う場合と異なり、2 領域の場合は N_p 燃料集合体を装荷すると後期サイクルで k_{eff} が大きくなった。

そこで燃料組成を調整し、2 領域で再処理を行う場合の k_{eff} (後期サイクル) を小さくし、装荷できる N_p ターゲット燃料集合体が増えるようにした。その結果を図 5.20 と図 5.21 に、調整した燃料組成を表 5.1 に示す。図 5.21 の結果、 N_p 燃料集合体を 4 体装荷した

とき keff が 0.97 を超えたため、装荷可能体数は 3 体となった。このとき Pu-238 純度 96% の Pu を 14kg 抽出できた。

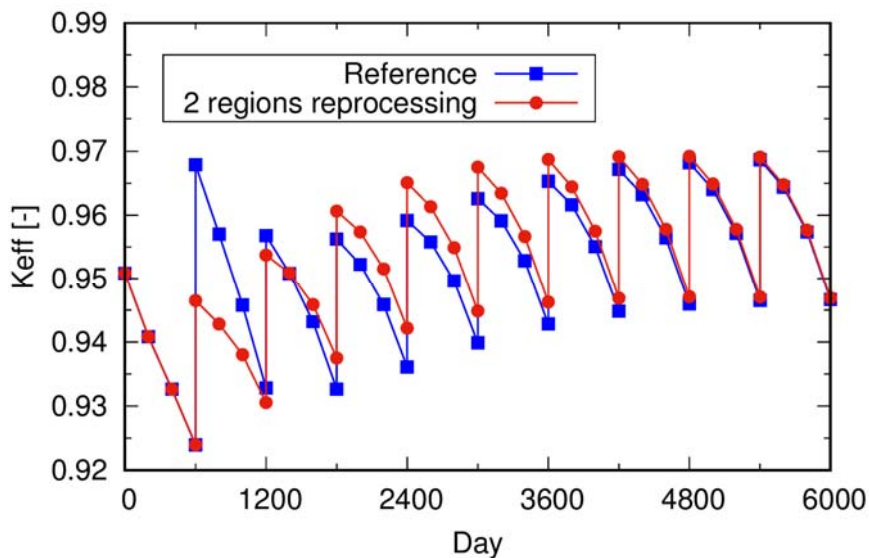


図 5.18 2 領域で再処理を行ったときの keff

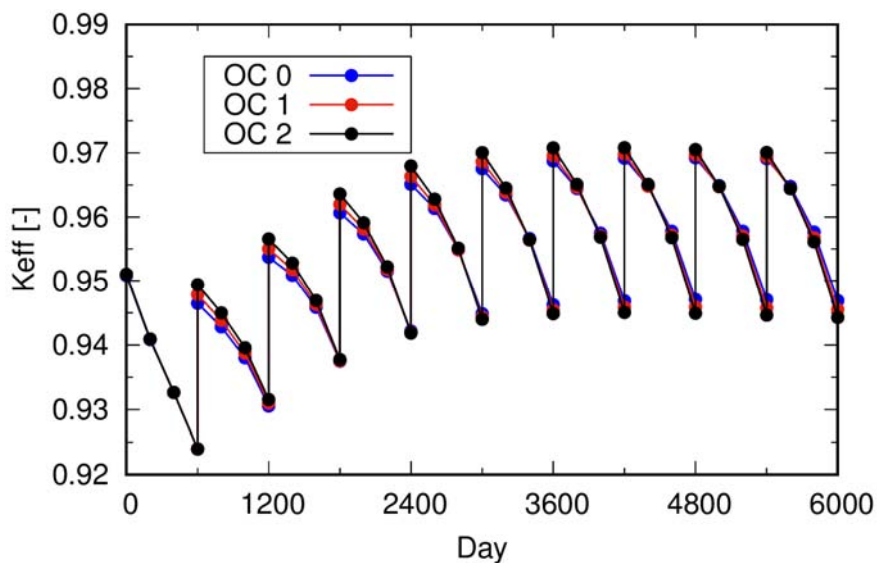


図 5.19 Np ターゲット燃料集合体を外側に 1、2 体装荷した keff

表 5.1 調整した各燃料組成

燃料ペレットZrN重量比	0.489[wt%]
内側炉心PuN重量比	0.320[wt%]
外側炉心PuN重量比	0.461[wt%]

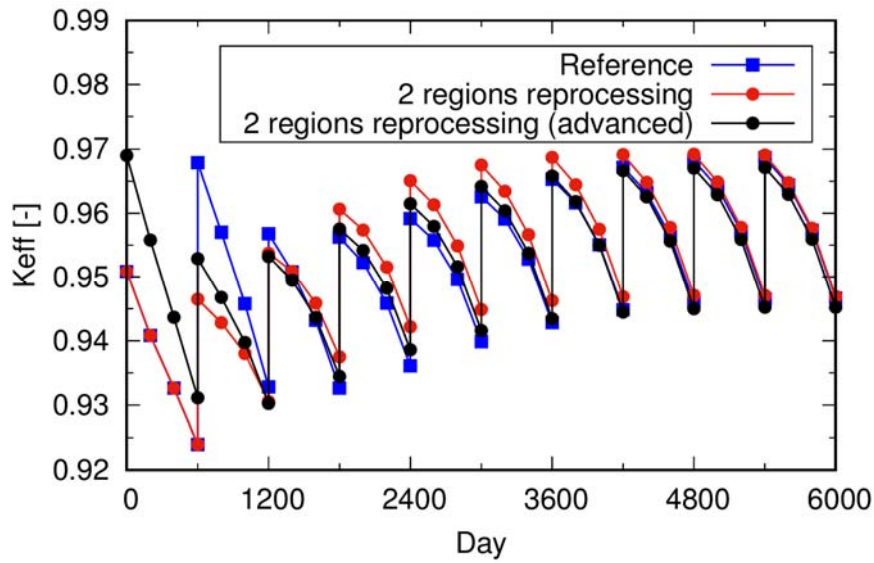


図 5.20 燃焼組成を調整した 2 領域で再処理する ADS の keff

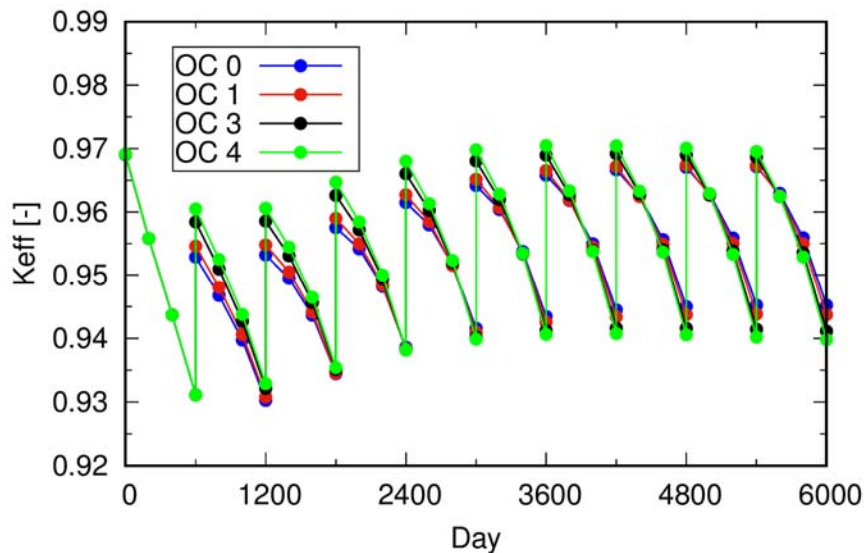


図 5.21 Np ターゲット燃料集合体を外側に 1、3、4 体装荷した keff

5.3.2 設計条件に余裕を持たせて装荷 Np ターゲット燃料集合体を増やす検討

ここからは設計条件に余裕を持たせ、Np ターゲット燃料集合体装荷体数を増やすことを検討する。緩和した設計条件は、最少の keff を 0.90 まで許容する（最大の keff は 0.97 のままとしているため、燃焼反応度スウィングの上限は 8.02% となる）。また最少の keff の許容範囲を広げたことにより、他のパラメータも変化するが、これが制限値を超えた場合も許容している。このとき、最も Np ターゲット燃料集合体を多く装荷できたのは 12 体で、2 領域で再処理を行い、燃料組成を調整した炉心である。調整した燃料組成を表 5.2 に、各パラメータの解析結果を図 5.22 から図 5.26 に示す。この結果より Np ターゲッ

ト燃料集合体を 12 体装荷するためには、最少の k_{eff} を 0.90、最大出力密度を $510[\text{W}/\text{cm}^3]$ まで許容する必要がある。また抽出される Pu 量は、Np ターゲット燃料集合体を装荷後は 44~45kg で Pu-238 純度は約 97%となった。この Pu 抽出量は、Np ターゲット燃料集合体を 5 体装荷する場合から約 91.3%大きな値であり、それに伴い受け入れ可能 MA 量も約 4%増加した。

表 5.2 調整した各燃料組成

燃料ペレットZrN重量比	0.504[wt%]
内側炉心PuN重量比	0.320[wt%]
外側炉心PuN重量比	0.461[wt%]

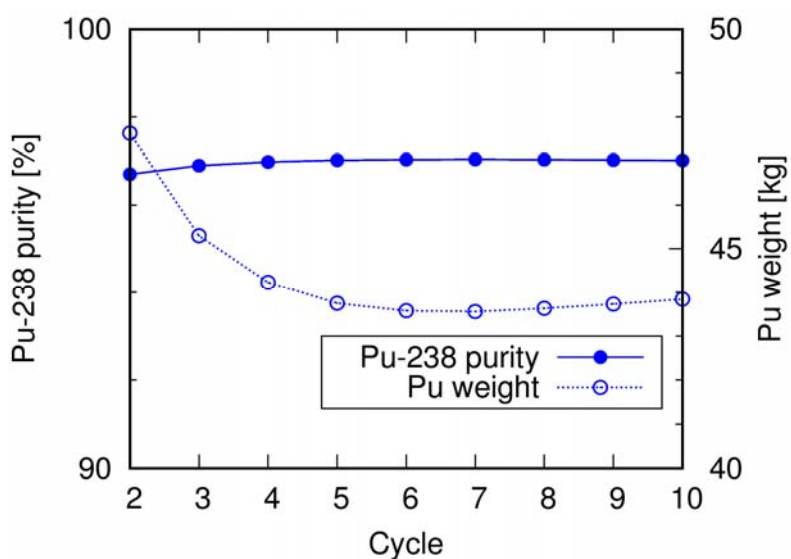


図 5.22 Np ターゲット燃料集合体を外側に 12 体装荷した Pu-238 純度と Pu 量

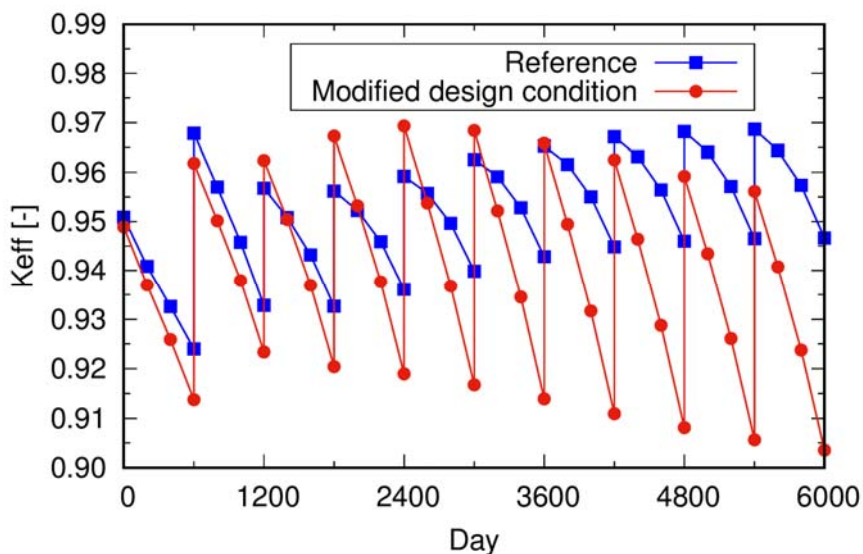


図 5.23 Np ターゲット燃料集合体を外側に 12 体装荷した keff

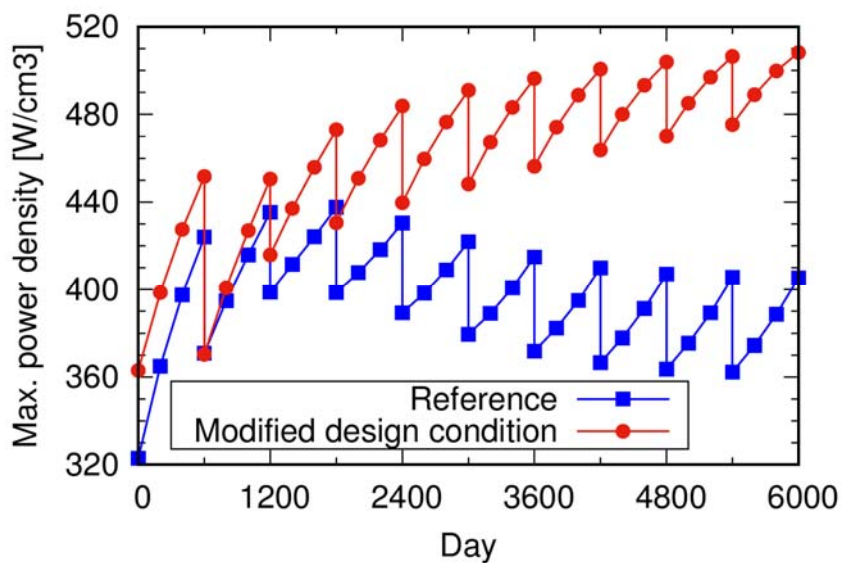


図 5.24 Np ターゲット燃料集合体を外側に 12 体装荷した最大出力密度

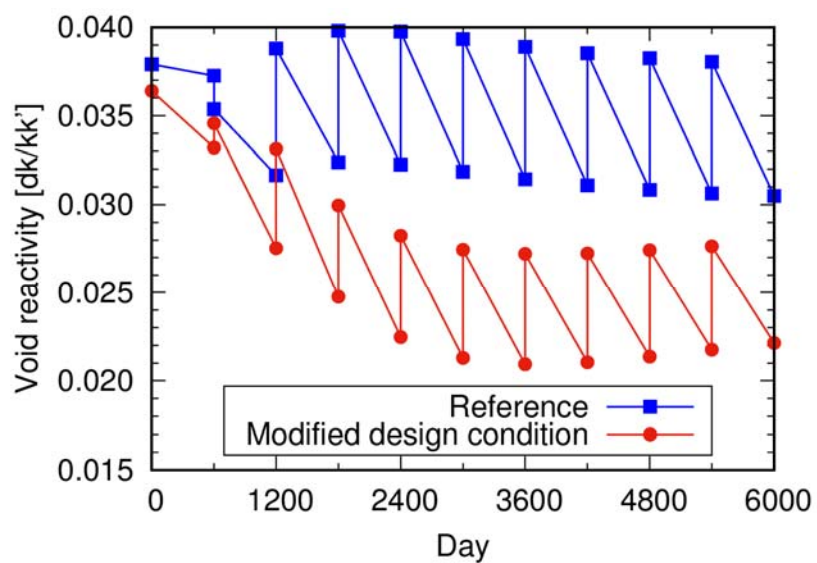


図 5.25 Np ターゲット燃料集合体を外側に 12 体装荷したボイド反応度

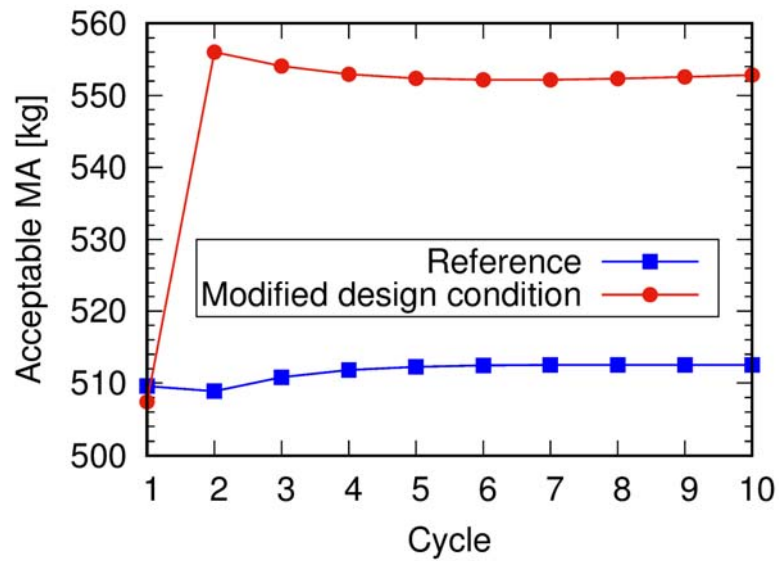


図 5.26 Np ターゲット燃料集合体を外側に 12 体装荷した受け入れ可能 MA 量

5.4 まとめ

第 5 章では ADS 炉心に Np ターゲット燃料集合体を装荷し MA 低減と Pu-238 生成が可能な ADS サイクルの実現性を検討した。解析の結果、燃料集合体領域の最も外側の層に Np ターゲット燃料集合体 5 体以下をサイクル 3 以降に装荷した場合、MA 低減と Pu-238 生成可能 ADS サイクルが成立することを確認した。また Np ターゲット燃料集合体装荷体数を増やすため、再処理方法を変更したが、増やすことは出来なかった。

設計条件に余裕を持たせて Np ターゲット燃料集合体を増やす解析も行い、最少の k_{eff} を 0.90、最大出力密度を $510[\text{W}/\text{cm}^3]$ まで許容すると Np ターゲット燃料集合体を 12 体装荷することが出来た。

6 結論

本研究では、JAEA で考案された Pb-Bi、800MWth の ADS サイクルに Pu-238 生成機能を新たに加え、その実現性を検討した。

第 2 章では使用したコードや、計算した体系、そして成立条件を評価するパラメータについて説明した。

第 3 章では JAEA で設計された ADS をもとに、ADS 燃料中の MA 核種の特性や、ADS の燃焼特性について説明した。

第 4 章では Cm の分離を利用し、Pu-238 の生成および抽出を試みたが、80%以下の Pu-238 純度の Pu が約 5kg 抽出された。そこで ADS サイクルの燃料交換期間を調整し、Pu-238 の純度を高める改良を加えた。しかし改良を加えたことにより再処理前の冷却期間を短くしたため、燃料を再処理する際の崩壊熱が大きくなり、再処理が出来なくなる問題が発生した。そのため Cm の分離を利用した方法は、実現不可能という結論に至った。

第 5 章では Np ターゲット燃料集合体を利用し、Pu-238 の生成および抽出を試みた。解析の結果、装荷体数 5 体以下をサイクル 3 以降に装荷することで、Pu-238 純度 96%の Pu が約 22kg 抽出できた。Pu を毎サイクル 22kg 抽出可能ということは、ADS の燃焼サイクルが 600 日であることから 13.5kg/year 抽出できることになる。これは NASA が計画する 1.1kg/year の約 12 倍の量に匹敵し、十分な量であることが分かる。さらに keff などの他のパラメータも設計条件を満たし、MA 低減と Pu-238 生成が可能な ADS サイクルの実現性を確認した。また Np ターゲット燃料集合体を増やすため、設計条件に余裕を持たせて解析したところ、装荷体数を 12 体まで増やすことができ、Pu-238 純度 97%の Pu が約 45kg 抽出された。

以上より、Np ターゲット燃料集合体を利用すれば MA 低減と Pu-238 生成が可能な ADS サイクルが成立すると考えられる。

今後の検討課題としては、Np ターゲット燃料集合体に減速材を導入しより中性子捕獲反応を促進させることや、2次元 R-Z 円筒体系での解析ではモデル化による誤差が大きい可能性があるため、ADS3D[10]のような 3次元解析の必要性が挙げられる。

謝辞

本研究において、研究室長としてご指導を頂いた奈良林教授に厚く感謝申し上げます。また、実質的な研究指導、CBZ コードその他に関する多大な技術的指導を頂いた千葉准教授に対しても深く感謝いたします。

技術補佐員の平井さん、勝山さんには、いつも励みの言葉を頂き救われました。

同期の正部川くん初め研究室の M1、B4 の学生の皆様のおかげで楽しい学生生活を送ることができました。

皆様のおかげで無事に修士論文を完成させることができたことを深く感謝いたします。

参考文献

- [1] G. H. Rinehart, “FABRICATION OF RADIOISOTOPE HEAT SOURCES FOR SPACE MISSIONS” Progress in Nuclear Energy, Vol 39, p.305-319, (2001).
- [2] A. Witze, “Nuclear power: Desperately seeking plutonium” Nature News, Vol 515, (2014).
- [3] D. T. Rankin, W. R. Kanne, Jr., M. R. Louthan, Jr., D F. Bickford, J. W. Condon, “Production of Pu-238 Oxide Fuel for Space Exploration” Nuclear Materials, Vol. 465, p179-186, (2015).
- [4] National Aeronautics and Space Administration, “Final Environmental Impact Statement for the Mars Science Laboratory Mission” Vol 1, (2006).
- [5] D. Buden, “Space Nuclear Propulsion and Power”, Polaris Books, (2011).
- [6] T. Sato, K. Niita, N. Matuda, S. Hashimoto, Y. Iwamoto, S. Noda, T. Ogawa, H. Iwase, H. Nakashima, T. Fukahori, K. Okumura, T. Kai, S. Chiba, T. Furuta, L. Sihver, “Particle and Heavy Ion Transport Code System PHITS” Version 2.52, J. Nucl. Sci. Technol. Vol 50[9], p913-923 (2013).
- [7] K. Tsujimoto, T. Sasa, K. Nishihara, H. Oigawa, H. Takano, “Neutronics Design for Lead-Bismuth Cooled Accelerator-Driven System for Transmutation of Minor Actinide” J. Nucl. Sci. Technol. Vol. 41, No. 1, (2003).
- [8] Y. Inagaki, T. Iwasaki, S. Sato, T. Ohe, K. Kato, S. Torikai, Y. Nibori, S. Nagasaki, K. Kitayama, “LWR High Burn-Up Operation and MOX Introduction; Fuel Cycle Performance from the Viewpoint of Waste Management” J. Nucl. Sci. Technol. Vol 46[7], 677-689 (2009).
- [9] T. Y. Song, Y. Kim, B. O. Lee, C. H. Cho, “Design and analysis of HYPER” Ann. Nucl. Energy, (2007).
- [10] T. Sugawara, Y. Hirai, K. Nishihara, H. Iwamoto, O. Sambuu, T. Ushio, “加速器駆動変換システム用三次元炉心解析コード ADS3D の整備” JAEA-Research 2014-024, (2014).