

# 日本原子力研究開発機構における 核変換技術に関する研究開発の現状について — 核分裂生成物の核変換技術 —

---

- はじめに
- 高速炉による核変換
- ADSによる核変換
- 核変換ターゲットの研究開発
- まとめ

平成20年12月19日

日本原子力研究開発機構

# はじめに

## 核変換の対象元素

	元素	特徴
超ウラン元素 (TRU)	マイナーアクチニド ネプツニウム アメリシウム キュリウム プルトニウム	長寿命核種あるいは長寿命核種の親核種で、 $\alpha$ 線を放出するため放射能毒性が高く、もしも体内に取り込まれると比較的影響が大きい。
核分裂生成物	テクネチウム ヨウ素	テクネチウム99及びヨウ素129は長寿命核種であり、地層処分した場合には地下水を介して地層中を移行しやすい。

出典: 原子力委員会バックエンド対策専門委員会『長寿命核種の分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方』(2000年3月)(以下『2000年C&R報告書』とする)

### 長寿命核分裂生成物 (LLFP)

Tc-99(半減期: 約21万年)

( $n, \gamma$ ) 反応の後、 $\beta$ -崩壊して安定核種のRu-100に核変換

I-129(半減期: 約1570万年)

( $n, \gamma$ ) 反応の後、 $\beta$ -崩壊して安定核種のXe-130に核変換

# 高速炉による核変換 (1/3)

## LLFP核変換炉心の設計条件・性能要求

### ● 設計条件

#### » LLFP ターゲット・減速材

- ターゲット核種 :  $^{99}\text{Tc} \cdot ^{129}\text{I}$  (+  $^{127}\text{I}$ )
- 減速材としてZr-H 採用

#### » プラント取合条件

- プラント取合条件は、**基準炉心\***と同様
- 基準炉心から置換可能(集合体数、配列ピッチ、制御棒配置等保存)

### ● 性能要求

#### » 核変換特性

- 各LLFP 核種 ( $^{99}\text{Tc} \cdot ^{129}\text{I}$ ) について、**サポートファクタ (以下、SF)\* > 1.0**

#### » 炉心性能

- 基準炉心と同様の炉心性能を確保 (増殖比 > 1.03、取出平均燃焼度 150 GWd/t等)

### ● 制限条件

#### » LLFP 集合体・ピン (ターゲット・減速材) の健全性上重要な挙動

#### » LLFP ターゲット・減速材

- I の核変換により Xe ガスが生成 → **ピンガス内圧 が上昇**
- Zr-H は高温で解離し、生成された  $\text{H}_2$  ガスは被覆管を透過して放出  
→ **Zr-H 減速材の H/Zr 比低下**
- 隣接するドライバ燃料集合体との熱的条件の相違 → **出口温度差拡大**

#### \* 基準炉心

FSフェーズ II 前期検討の大型 Na 冷却代表炉心を対象

炉心熱出力	3,570 MWth
炉心出入口温度	550 / 395 °C
遮へい体外接円径	6.6 m
運転サイクル長さ	18ヶ月

#### \* サポートファクタ (SF)

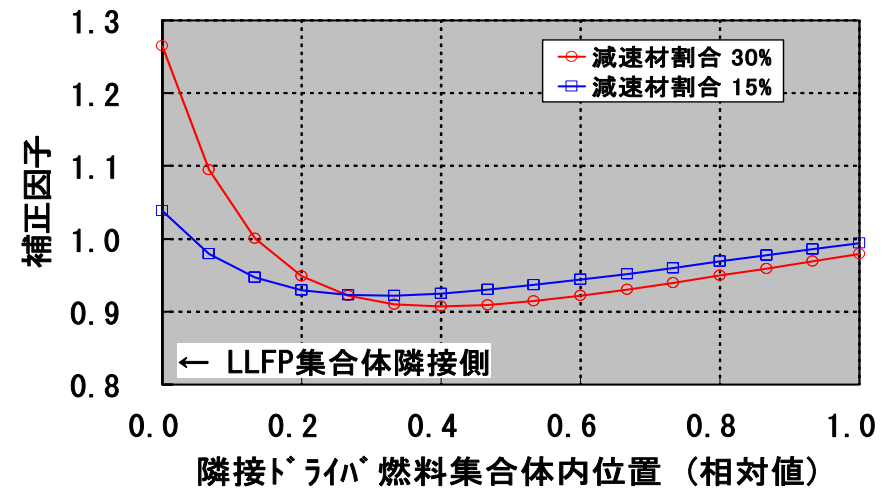
LLFP 核種の変換/生成量の比、SF=1.0は自己生成した量を全て変換できることを意味する

# 高速炉による核変換 (2/3)

## LLFP核変換集合体の設計

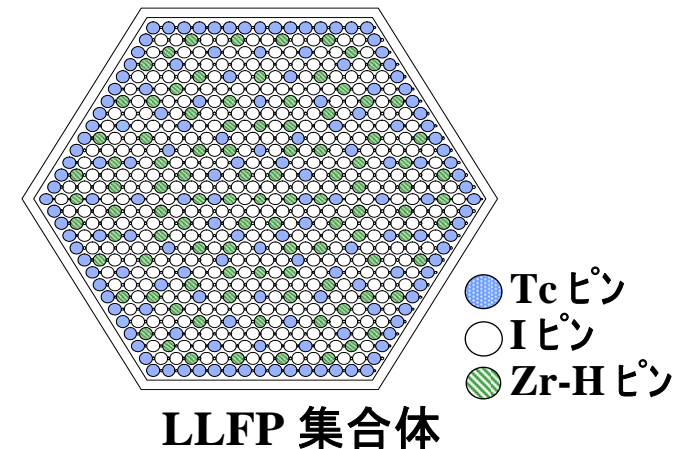
### ● 方針

- » LLFP 核変換炉心の導入ペースに与える影響を防ぐため、LLFP装荷量の少ない**炉内装荷**を選択
- » Iターゲットの溶融回避のため、高融点の **$YI_3$** を暫定的に選定
- » 隣接ドライバ集合体の局所出力ピーク緩和のため、**減速材割合15%**を採用
- » Zr-Hピンに、水素透過係数低減方策を考慮(水素バリア材等)



### ● LLFP 集合体・ピン仕様

項目	Tcピン	Iピン	減速材ピン
化学形態	Tc	<b><math>YI_3</math></b>	$ZrH_{1.65}$
ピン本数割合 (%)	24.4	59.9	<b>15.7</b>
ピン外径 (mm)	5.5	5.5	5.5
スミア密度 (%TD)	80	50	90
ターゲットカラム長 (cm)	80	80	80

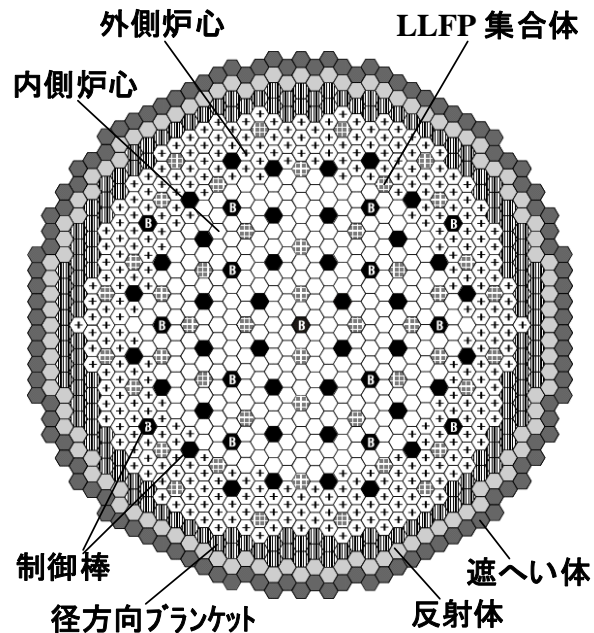


# 高速炉による核変換 (3/3)

## LLFP核変換炉心の設計

### ● 核・熱・核変換特性

- » 1.0 以上の SF を満たすには、LLFP 集合体 46 体が必要
- » 基準炉心と比べ Pu 富化度は 4 wt%、燃焼反応度は 1%  $\Delta k/kk'$  程度増加
- » 必要な1次系冷却材流量は、基準炉心の104.6 %まで増加
- » 必要流量の増加は、主に燃焼反応度増加に伴う燃焼ミスマッチの増加による



項目		炉内装荷炉心		基準炉心
Pu 富化度 (wt%) (内/外)		25.1/28.0		21.5/24.1
燃焼反応度 (% $\Delta k/kk'$ )		4.1		3.2
増殖比 (-)		1.04		1.16
		<sup>99</sup> Tc	<sup>129</sup> I	-
LLFP集合体数 (体)		46		-
照射期間	(サイクル)	4		-
核変換率	(%/サイクル)	5.1	4.1	-
	(%)	18.7	15.4	-
LLFPインベントリ (kg/GWt)		269	109	-
サポートファクタ (-)		1.01	1.04	-
LLFP集合体流量 (kg/s)		8.5		-
1次系必要冷却材流量 (%)		104.6*		100.0

LLFP (Tc-99、I-129) を核変換対象とした炉心設計検討を行い、基準炉心からの置換で、性能要求 (SF > 1.0、増殖比 1.03等) を満足する炉心を構築可能な見通しを得た。

# ADSによる核変換 (1/5)

## 軽水炉 (1,000 MWe) での核分裂生成物 (Tc、I) 発生量

- 軽水炉で生成されるテクネチウム-99及びヨウ素-129を対象に、加速器駆動システム(ADS)においてマイナーアクチノイド(MA)とともに核変換するシステムを検討

ADS1基で、軽水炉10基程度からのMAとFPを核変換するために必要な性能:

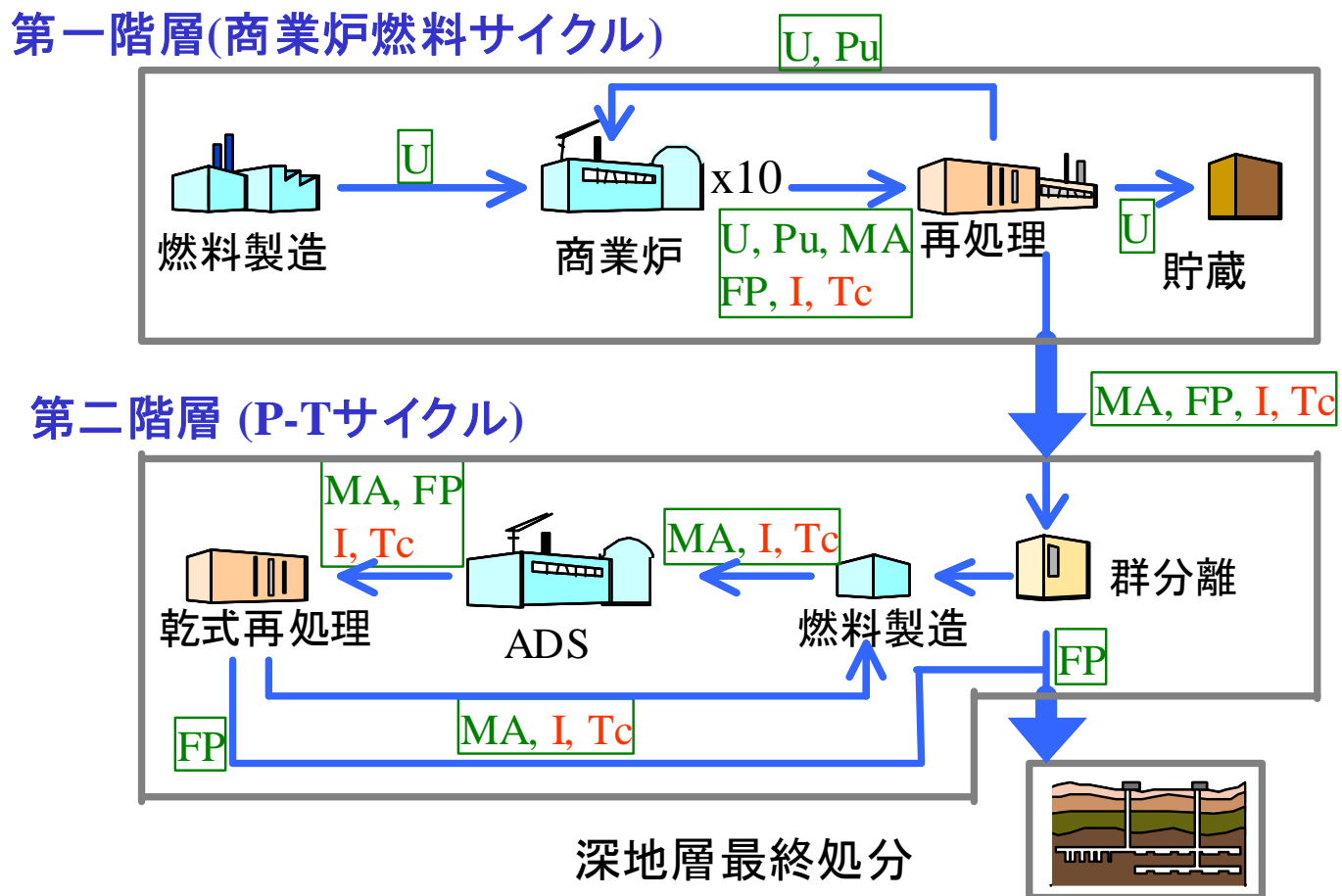
MA:250, I: 56, Tc: 200 (kg/y/ADS)

炉型	PWR-UO <sub>2</sub>	PWR-UO <sub>2</sub>
燃焼度 (GW-day)	33	60
冷却年数 (y)	5	5
MA (kg/y/plant)	22.20	26.30
<sup>127</sup> I+ <sup>129</sup> I (kg/y/plant) *	5.66	5.54
<sup>99</sup> Tc (kg/y/plant)	20.7	19.5

- 核分裂生成物のテクネチウムとしては、Tc-99以外の同位体はほとんど無視できる量である。
- 核分裂生成物のヨウ素としては、短半減期のI-131などを除くと、I-129のほかに安定核種のI-127があり、I-129は80数%である。

# ADSによる核変換 (2/5)

## FP核変換を含んだ階層型燃料サイクル

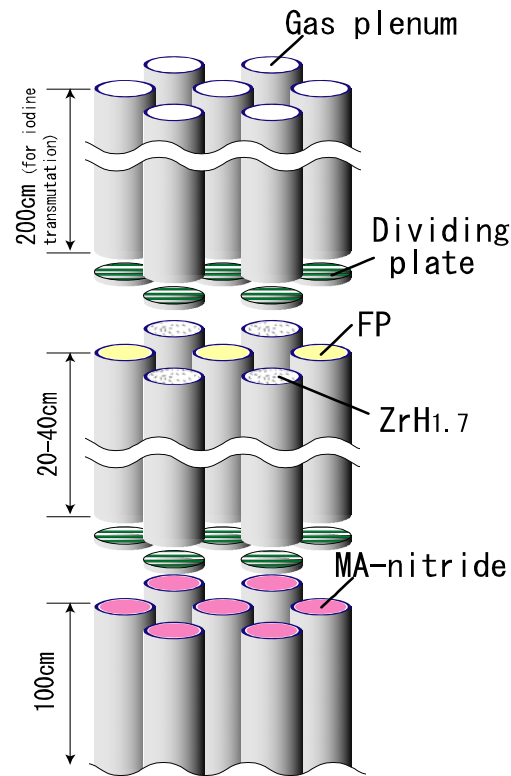


従来設計のADSの周辺に、FPをブランケットとして配した設計を用い、MAとヨウ素、あるいはMAとテクネチウムを同時に核変換する。

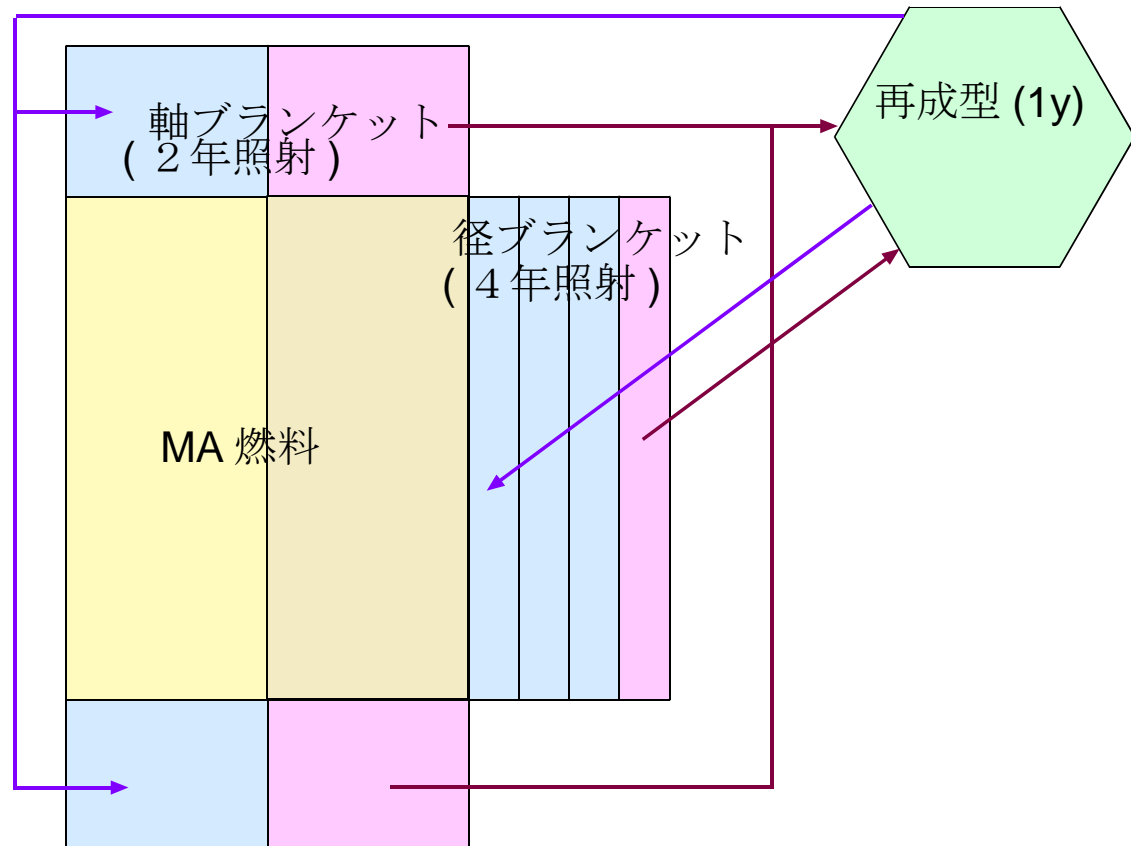
# ADSによる核変換 (3/5)

## FP装荷位置と照射期間

### MA燃料と軸ブランケット



中性子の減速に用いる  
ZrH<sub>1.7</sub> はFPとは別のピンに封じる。



軸ブランケットはMA燃料と同時に取り出される。  
径ブランケットは長期間照射する。



# ADSによる核変換 (4/5)

## テクネチウムの核変換性能

	軸	径	全体
ブランケット厚さ (cm)	20	13.5	
ZrH <sub>1.7</sub> 体積比 (%)	80	90	
Tc初期装荷量 (kg)	904	645	1549
Tc捕獲断面積 (b)	2.80	4.51	
平均中性子束 (/cm <sup>2</sup> /sec)	6.1E+14	2.7E+14	
核変換量 (kg/y)	40.0	20.5	60.5
核変換率 (%/yr)	4.42	3.18	3.91

- 余剰中性子が不足する為、200kg/y/ADSの核変換は達成不可能
- テクネチウムのみを核変換する場合、75kg/y/ADS程度が上限

# ADSによる核変換 (5/5)

## ヨウ素の核変換性能

	軸	径	全体
ブランケット厚さ (cm)	36.8	17.5	
ZrH <sub>1.7</sub> 体積比(%)	64	40	
ヨウ素初期装荷量 (kg)	1089	894	1983
I-129 捕獲断面積 (b)	2.15	3.06	
I-127 捕獲断面積 (b)	3.44	3.51	
平均中性子束 (/cm <sup>2</sup> /sec)	5.4E+14	2.9E+14	
核変換量 (kg/y)	36.5	20.7	57.2
核変換比 (%/y)	3.35	2.32	2.88
ガスプレナム長 (cm)	200	190	

※ヨウ素形態CuI、理論密度80%

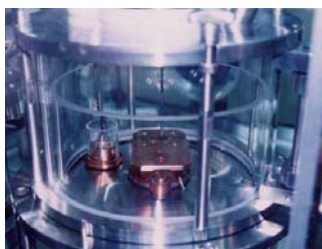
- ヨウ素のみを核変換する場合、目標となる56kg/y/ADSの核変換が達成可能

# 核変換ターゲットの研究開発 (1/2)

## テクネチウムの核変換ターゲット

- 金属テクネチウムは核変換ターゲットの候補材
  - ▶ テクネチウムの融点は $2430 \pm 30$  K
  - ▶ 欧州の共同研究において金属テクネチウム棒の照射試験
    - 結晶学的異方性(六方晶)による照射成長が懸念されていたが、ほとんど生じず
  - ▶ 核変換するとテクネチウム-ルテニウム合金
- 金属テクネチウムとテクネチウム-ルテニウム合金の調製と特性評価
  - ▶ 格子定数、熱膨張、比熱容量、熱拡散率、熱伝導率

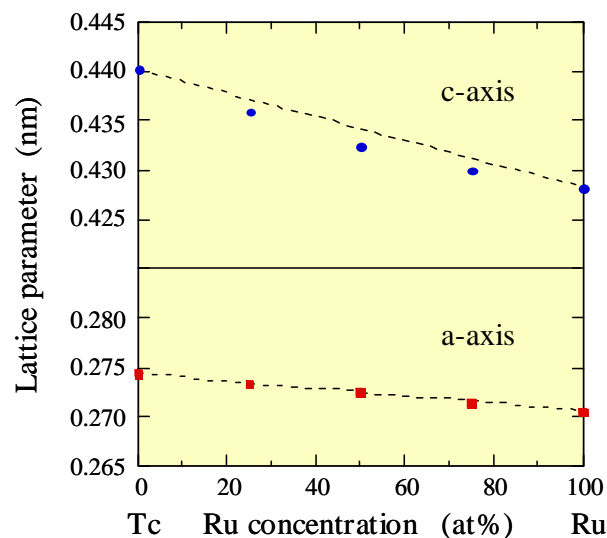
試料調製装置  
(グローブボックス内)



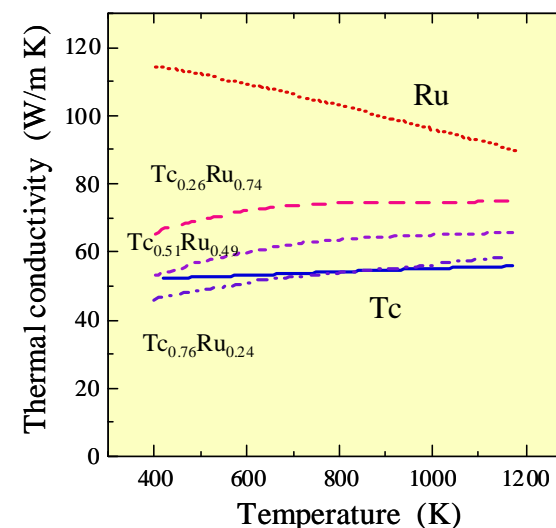
直径4 mm

直径5 mm

アーク溶解-鋳造法による試料調製



格子定数の組成依存性

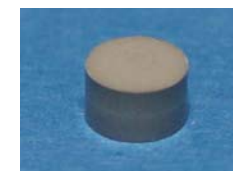


熱伝導率の温度依存性

# 核変換ターゲットの研究開発 (2/2)

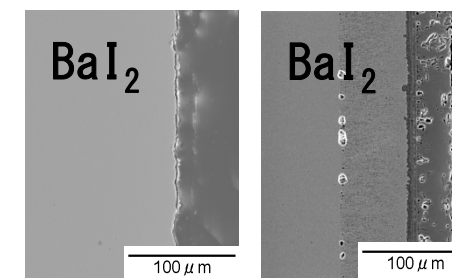
## ヨウ素の核変換ターゲット

- ヨウ素 $I_2$ の融点は386.6 K、沸点は457.4K
  - » このままの化学形では核変換ターゲットとして用いるのは困難
  - » 核変換生成物(Xe)は気体
  - » ターゲット材に適切なヨウ素化合物の選定が必要
    - 融点、中性子捕獲断面積、長寿命核種生成の有無、潮解性・吸湿性の有無、被覆管材との両立性など
- ターゲット候補材の特性評価 (安定核種のヨウ素-127を使用)
  - » 被覆管材との両立性、熱伝導率等を測定評価
    - 適切な候補材を選定中



CuI試料

化合物	融点(K)	金属の融点(K)	長寿命核種の生成	化学的安定性	両立性
BaI <sub>2</sub>	984	1002	<sup>133</sup> Ba: 10.5 y	潮解性	課題あり
YI <sub>3</sub>	1270	1799	なし	潮解性	課題あり
MgI <sub>2</sub>	907	922	なし	潮解性	課題あり
CaI <sub>2</sub>	1052	1112	<sup>41</sup> Ca: 1.03 x 10 <sup>5</sup> y	潮解性	課題あり
CuI	868	1358	<sup>63</sup> Ni: 100.1 y	大気中安定	課題あり



SUS316鋼 (反応なし)      ODS鋼 (反応あり)

両立性試験  
(600°C × 3000h)

# まとめ

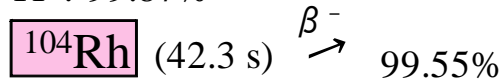
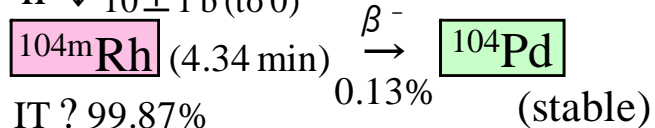
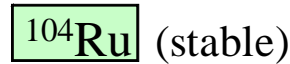
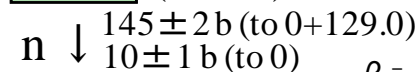
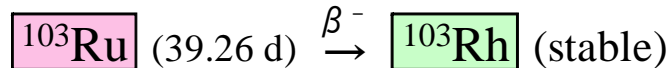
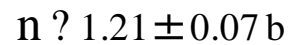
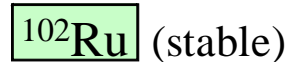
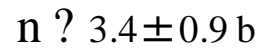
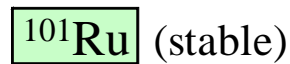
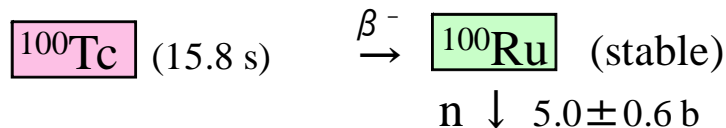
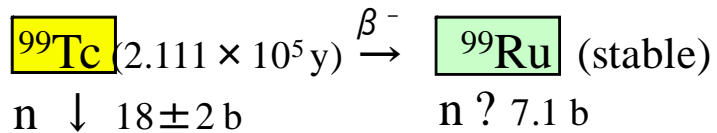
---

- 高速炉によるTc-99とI-129を核変換対象とした炉心設計検討では、基準炉心からの置換で、性能要求（SF>1.0、増殖比 1.03等）を満足する炉心を構築可能な見通しを得た。
- 加速器駆動システム(ADS)によるTc-99とI-129を核変換対象とした炉心設計検討では、ADS1基で、軽水炉10基程度からのTc-99とI-129ならびにマイナーアクチノイドを核変換するために必要な性能を満足する炉心を構築できなかった。核変換対象をI-129ならびにマイナーアクチノイドに絞れば、ADS1基で、軽水炉10基程度をサポートする炉心を構築できる見通しである。
- 金属テクネチウムは、核変換ターゲットの有望な候補材である。ただし、リサイクル技術の研究開発は今後の課題である。
- ヨウ素の核変換ターゲットとして適切な化合物等の選定は、今後の課題である。

---

## 參考資料

# テクネチウム-99の核変換の経路

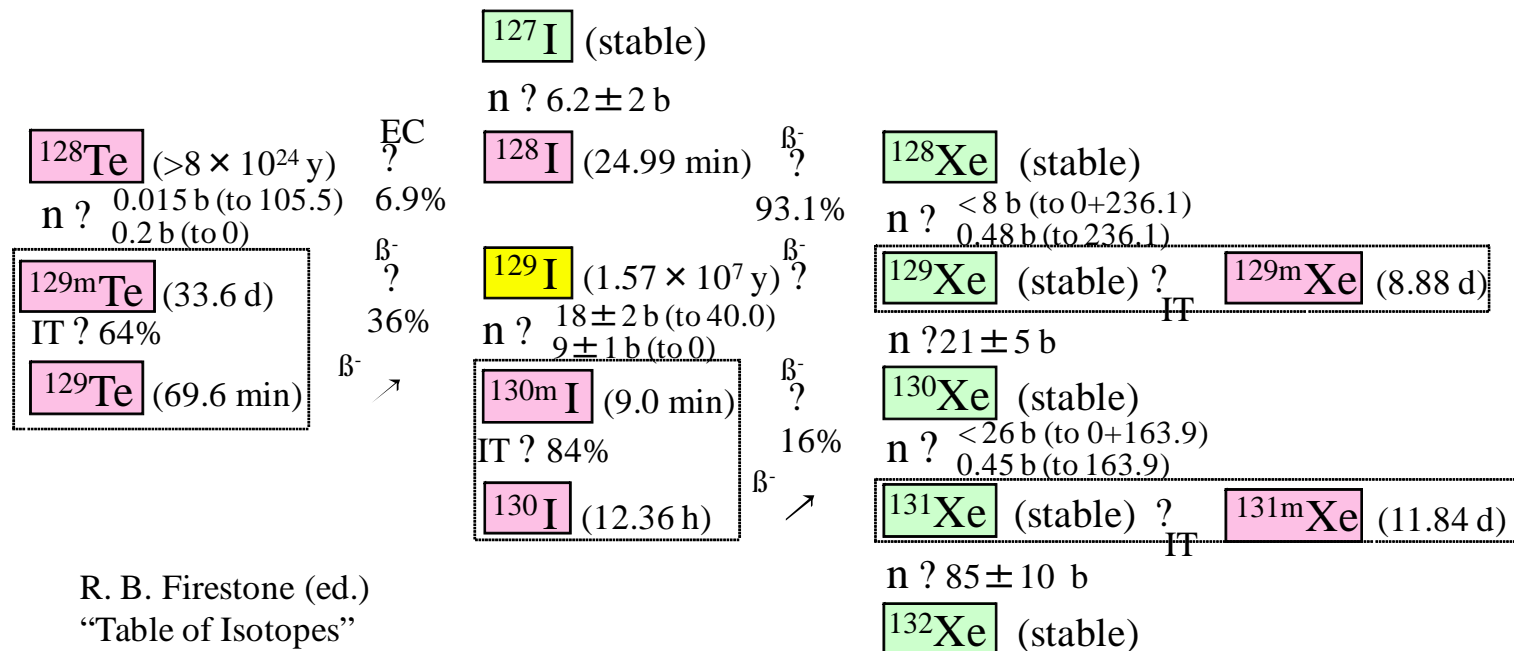


- Tc-99は、(n, γ)反応により半減期 15.8 s のTc-100になった後に、β<sup>-</sup>崩壊して安定核種であるRu-100に核変換される。
- 生成されたRu-100が次々と(n, γ)反応を起こしても、Ru-101、Ru-102と安定核種を生じる。
- Ru-103は放射性であるが、半減期 39.26 d で安定核種のRh-103になり、長半減期核種は生成されない。

R. B. Firestone (ed.)  
 "Table of Isotopes"  
 8th edition (1996)

# ヨウ素-129(及びヨウ素-127)の核変換の経路

- I-129は、(n,  $\gamma$ ) 反応により半減期9.0 m のI-130mまたは12.36hのI-130になった後に、 $\beta^-$ 崩壊して安定核種であるXe-130に核変換される。
- 生成されたXe-130が次々と(n,  $\gamma$ ) 反応を起こしても、安定核種(Xe-131、Xe-132)または短半減期核種(Xe-131m、Xe-133、Xe-133m)しか生じない。
- I-127は中性子照射されても、I-129の場合と同様に、安定核種(Xe-128、Xe-129)または短半減期核種(Xe-129mなど)しか生じないこと、及び反応断面積は約6.2 bとI-129の場合よりも小さいことから、I-127とI-129が混合したものをターゲットとする。



R. B. Firestone (ed.)  
 "Table of Isotopes"  
 8th edition (1996)