

令和 2 年 1 月 14 日

報道機関各位

東京工業大学

東北大学

東京都市大学

日本原子力研究開発機構

## 長寿命核分裂生成物の半減時間を 9 年以下に短縮 —高速炉を用いた効率的な核変換法を提案—

### 【要点】

- 高速炉を利用し 4 種類の長寿命核分裂生成物を効率的に短寿命化・減量
- 新しい LLFP ターゲット集合体を考案
- LLFP ターゲットおよび減速材の材料特性、製造性を実験により実証

### 【概要】

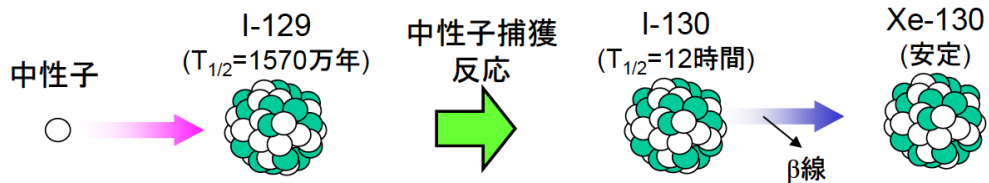
東京工業大学 科学技術創成研究院 先導原子力研究所の千葉敏教授、東北大学の若林利男名誉教授、東京都市大学 工学部 原子力安全工学科の高木直行教授、日本原子力研究開発機構の館義昭博士らは、原子力発電所の放射性廃棄物に含まれる長寿命の核分裂生成物（LLFP、用語 1）であるセレン（ $^{79}\text{Se}$ ）、テクネチウム（ $^{99}\text{Tc}$ ）、パラジウム（ $^{107}\text{Pd}$ ）、ヨウ素（ $^{129}\text{I}$ ）の 4 種について高速炉（用語 2）の炉心周辺に装荷することで、数 10 万年から 1000 年以上の半減期を有するこれらの核種が半分になるのに要する時間を 9 年以下に短縮する方法を見出した。

この新 LLFP ターゲット集合体は、 $\text{YD}_2$  および  $\text{YH}_2$  減速材（用語 3）を組み合わせ、さらに LLFP のテクネチウムを熱中性子フィルター材料として使うことにより、隣接する燃料集合体の熱スパイク（用語 4）を抑制しつつ、効率的な核変換を行うことができる。本方式は LLFP の同位体分離を要さないことも特徴である。

4 核種の新 LLFP ターゲット集合体をナトリウム冷却 MOX 燃料（ウランとプルトニウムの混合酸化物）高速炉のブランケット領域に装荷した場合、サポートレシオ（SR、用語 5）1 以上を確保しつつ、約 8 %/年の高い核変換率が達成できる。また LLFP ターゲット、 $\text{YH}_2$  および  $\text{YD}_2$  減速材の材料特性と製造の実験を通じ LLFP ターゲット集合体の実現性が明らかとなった。さらに、今後の効果的な再処理方法の実現により、これらの核種量を最終的に 1/100 程度まで低減させる可能性が拓かれた。

文部科学省国家課題対応型研究開発推進事業原子力システム研究開発事業により東工大が委託を受けた「高速炉を活用した LLFP 核変換システムの研究開発」の成果で、成果は「Scientific Reports」に 2019 年 12 月 16 日にオンライン掲載された。

## 長寿命核分裂生成物の中性子捕獲反応



### ●背景

高速炉は、余剰中性子を活用することにより、消費した以上の燃料を増殖したり、廃棄物として生成した LLFP やマイナーアクチニド (MA、用語 6) を低減するなど、さまざまな目的に活用できる。MA および LLFP の核変換に関する多くの研究が行われている。LLFP に関しては環境への影響を低減するという観点から重要な 6 核種の核変換研究が実施されている。6 種の LLFP は  $^{79}\text{Se}$ 、 $^{93}\text{Zr}$  (ジルコニウム)、 $^{99}\text{Tc}$ 、 $^{107}\text{Pd}$ 、 $^{129}\text{I}$ 、 $^{135}\text{Cs}$  (セシウム) である。

本研究グループではこれまでにナトリウム冷却酸化物燃料高速炉の炉心周辺に  $\text{YD}_2$  減速材を適切に配置した LLFP ターゲット集合体を装荷することにより、これら 6 種の LLFP を同時に核変換しサポートレシオ (SR) を 1 以上とする方法を明らかにしてきた。

しかしながら、この方法の核変換率は低いため、大量の LLFP を装荷し繰り返し照射のためリサイクルする必要がある。これにより、リサイクル中に LLFP が失われる可能性がある。高い核変換率を達成することは、LLFP ターゲットをリサイクルする際のロス削減に重要である。

6 種の LLFP すべてについて高い核変換率とサポートレシオ  $>1$  を同時達成することは困難である。特に  $^{135}\text{Cs}$  と  $^{93}\text{Zr}$  は中性子吸収断面積が低いため非常に難しいと考えられている。そのため地層処分上も問題となる  $^{79}\text{Se}$  (半減期 33 万年)、 $^{129}\text{I}$  (同 1570 万年) に加えて  $^{99}\text{Tc}$  (同 21 万年) および  $^{107}\text{Pd}$  (同 650 万年) を高い核変換率を達成する対象核種として選択した。

高い核変換率を達成するためには、LLFP ターゲット内の減速材の割合を増加させることにより、熱中性子の数を増やす必要がある。この目的のために、先行研究で用いられた重水素 (D) に加えて、水素 (H) を適用するシステムを考案した。重水素と水素を組み合わせることにより、LLFP ターゲット集合体に隣接する燃料集合体内の燃料ピン出力増加増大 (熱スパイク) を抑制しつつ、高い核変換率を達成することが必要となる。

今回の研究では、同位体分離を行うことなく 4 種の長寿命核分裂生成物 ( $^{79}\text{Se}$ 、 $^{99}\text{Tc}$ 、 $^{107}\text{Pd}$ 、 $^{129}\text{I}$ ) を高速炉の炉心周辺に装荷して高い核変換率を達成する方法を明らかにした。さらに、LLFP および減速材の材料特性と製造に関する実験により、LLFP 核変換ターゲットの実現可能性も明らかにした。

## ●研究成果

解析にはモンテカルロコードの MVP コードと MVP-burn コード (用語 7) を、核断面ライブラリーは JENDL-4.0 (用語 8) を使用した。図 1 に高速炉における LLFP ターゲット集合体の装荷位置を、表 1 に本手法による放射能半減期間短縮の度合いを示す。

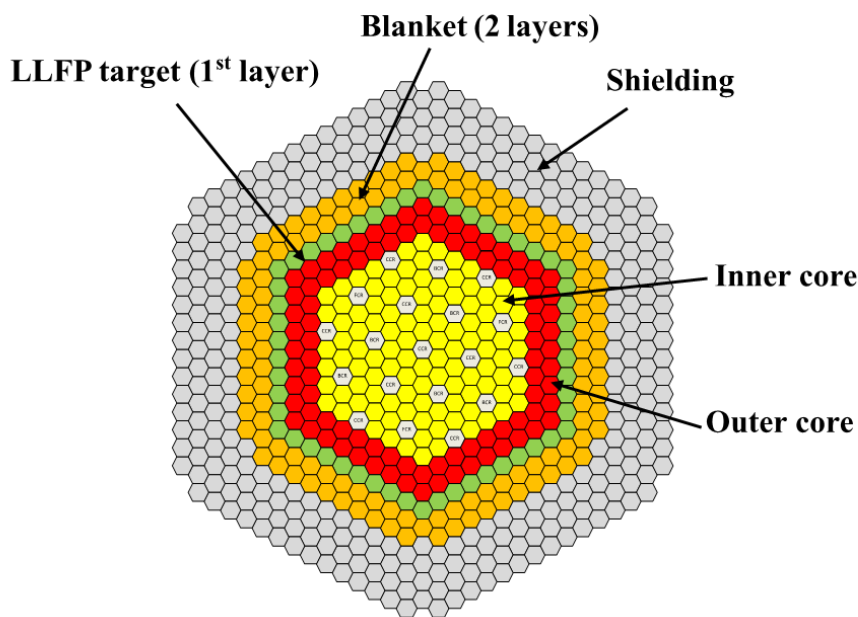


図 1 高速炉における LLFP ターゲット集合体の装荷位置

表 1 高速炉における LLFP の核変換による寿命短縮効果

LLFP 核種	半減期 (年)	核変換率 (%/年)	サポート レシオ SR	核変換による 実効半減期 (年)	核変換による 寿命短縮比
	A			B	B/A
<sup>79</sup> Se	33 万年	10.4	28.2	6.3	1/52,000
<sup>99</sup> Tc	21 万年	7.9	4.3	8.4	1/25,000
<sup>107</sup> Pd	650 万年	8.0	1.8	8.3	1/782,000
<sup>129</sup> I	1,570 万年	7.5	1.5	8.9	1/1,770,000

<sup>79</sup>Se の場合、高い核変換率と隣接する燃料集合体の出力ピークの低減の観点から、ZnSe (セレン化亜鉛) と YD<sub>2</sub> の体積比は 1 : 9 に設定され、核変換率は 10.4 % / 年になった。また、SR は約 28 を達成したことがわかった。

<sup>99</sup>Tc の場合、隣接する燃料集合体の出力ピークを抑制するために、減速材として YH<sub>2</sub> と YD<sub>2</sub> を混合する手段を取った。YH<sub>2</sub> と YD<sub>2</sub> の体積比を 6 : 4 に変更し、<sup>99</sup>Tc と減速材 (YH<sub>2</sub> + YD<sub>2</sub>) の体積比を 1 : 9 に変更すると、変換率は 7.9 % / 年だった。SR は 4.3 で、SR > 1 を満たしている。

$^{107}\text{Pd}$  の場合、Pd と  $\text{YD}_2$  の体積比を 1 : 9 に設定することにより、変換率は 8.0 % / 年だった。これは、高い変換率と隣接する燃料集合体の出力ピークの低減の観点からである。SR は 1.8 を達成することも分かった。

$^{129}\text{I}$  については、熱中性子フィルターを備えた新しい  $^{129}\text{I}$  ターゲット集合体（図 2 参照）を発明し、隣接する燃料集合体の出力ピークを抑制した。熱中性子フィルターとして、 $^{129}\text{I}$  ターゲット集合体の外層が Tc に置き換えられた。Tc ピンの Tc の体積比を 40 % に変更し、 $\text{BaI}_2$  と  $\text{YH}_2$  の体積比を 1 : 9 に変更することにより、変換率は 7.5 % / 年、SR は 1.5 だった。

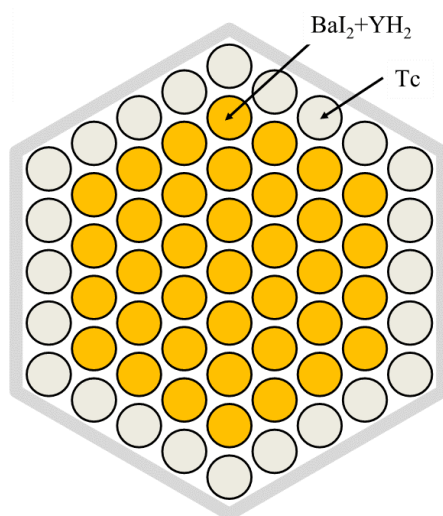


図 2 LLFP ターゲット集合体の  $^{129}\text{I}$  ピンと  $^{99}\text{Tc}$  ピンの配置

LLFP 核変換ターゲットの実現可能性は、LLFP ターゲット、 $\text{YH}_2$  および  $\text{YD}_2$  減速材の材料特性と製造に関する実験を通じて明らかにした。

これらの結果、LLFP を同位体分離を行うことなく高速炉の「ブランケット」領域に装荷することにより、表 1 のように  $^{79}\text{Se}$  は 7 年、 $^{99}\text{Tc}$ 、 $^{107}\text{Pd}$ 、 $^{129}\text{I}$  を 9 年以下の照射時間で半分に減量可能であることが示された。これは放射能半減に要する時間を、約 1/2 万から 1/200 万に短縮できることを意味する。また、照射した LLFP ターゲットの再処理方法を効率化することにより最終的な廃棄物量として 1/100 まで低減可能となることが分った。これにより地層処分の負担となる長寿命の放射性廃棄物処理に対する重要な進展が得られた。

## ●今後の展開

今後は LLFP のリサイクルを考慮した核変換システム全体の研究が必要である

と考える。LLFP 核変換ターゲットの分離と回収のロス率を考慮し長寿命核分裂生成物を 1/100 まで低減する高速炉 LLFP 核変換システムの構築を目指す。また、軽水炉の使用済み燃料に含まれる LLFP を処理するシステムの研究も進めていく予定である。

### 【用語説明】

- (1) **核分裂生成物 (LLFP)** : Long Lived Fission Products の略。使用済み核燃料に含まれる核分裂生成物のうち、特に半減期の長いセレン ( $^{79}\text{Se}$ 、半減期 33 万年)、ジルコニウム ( $^{93}\text{Zr}$ 、同 153 万年)、テクネチウム ( $^{99}\text{Tc}$ 、同 21 万年)、パラジウム ( $^{107}\text{Pd}$ 、同 650 万年)、スズ ( $^{126}\text{Sn}$ 、同 23 万年)、ヨウ素 ( $^{129}\text{I}$ 、同 1570 万年)、セシウム ( $^{135}\text{Cs}$ 、同 230 万年) の 7 核種を示す。本研究では、このうち  $^{135}\text{Cs}$ 、 $^{126}\text{Sn}$ 、 $^{93}\text{Zr}$  を除く 4 核種を短半減期 (または安定核種) に高核変換するシステムを提案した。
- (2) **高速炉** : 核分裂で発生する中性子を減速させることなく次の核分裂に利用する原子炉。特にプルトニウムにおいて、核分裂の起きる中性子のエネルギーが高いほど吸収された中性子あたりに発生する中性子が多く、また燃料以外への中性子吸収が減少する。その分、原子炉の運転維持以外に利用できる余剰中性子が増し、核燃料の増殖や不要核種の変換に回すことが可能である。
- (3) **減速材** : 核分裂で発生する中性子と衝突して中性子のエネルギーを減らすために用いられる物質。一般に中性子捕獲断面積や核分裂断面積は核分裂で発生する中性子の持つエネルギーより低いエネルギーで大きいため、中性子エネルギーの調整のために用いられる。 $\text{YH}_2$  は水素化イットリウム、 $\text{YD}_2$  は重水素化イットリウム。
- (4) **熱スパイク** : 高速炉では核分裂中性子を減速せずに使用するのが通常だが、今回の研究のように炉心に減速材を入れるとそれによってエネルギーの低い中性子が増える。熱スパイクはそれに伴う核分裂の増加によって局所的に発熱量が増える現象。熱スパイクがあると原子炉全体の出力が制限を受け、発電量や核変換量に悪い影響を及ぼす。
- (5) **サポートレシオ (SR)** : サポートレシオは、原子炉内で同じ期間に核燃料で生成された LLFP の量に対する変換された LLFP の量の比として定義される。これが 1 以上であれば当該物質を減少させることが可能。
- (6) **マイナーアクチニド (MA)** : プルトニウム以外の超ウラン元素の総称。ネプツニウム、アメリシウム、キュリウムなどがあり、半減期が数万年以上のものが存在する。これらは使用済み核燃料に多く含まれ、これら放射性廃棄物の処理が課題となっている。
- (7) **モンテカルロコードの MVP コードと MVP-burn コード** : 国内で開発され

た原子炉内での中性子及び光子の空間及びエネルギー分布を計算するためのコード (MVP)、及び中性子と炉内物質との相互作用によって起きる核変換を計算するためのコード (MVN-burn)。

(8) **JENDL-4.0** : 原子力開発用の核データ (中性子と様々な原子核の相互作用確率や放射性原子核の崩壊確率等の総称) を特定の書式でまとめた日本の数値データライブラリーの最新版。

### 【論文情報】

掲載誌 : *Scientific Reports*

論文タイトル : Study on method to achieve high transmutation of LLFP using fast reactor

著者 : Toshio Wakabayashi, Yoshiaki Tachi, Makoto Takahashi, Satoshi Chiba & Naoyuki Takaki

DOI : 10.1038/s41598-019-55489-w

### 【問い合わせ先】

東京工業大学 科学技術創成研究院 先導原子力研究所 教授

千葉 敏

Email: [chiba.satoshi@iir.lane.titech.ac.jp](mailto:chiba.satoshi@iir.lane.titech.ac.jp)

TEL: 03-5734-3066 FAX: 03-5734-2959

東北大学 名誉教授

若林 利男

Email: [toshio.wakabayashi.c1@tohoku.ac.jp](mailto:toshio.wakabayashi.c1@tohoku.ac.jp)

TEL: 022-795-7921

東京都市大学 工学部 原子力安全工学科 教授

高木 直行

Email: [ntakaki@tcu.ac.jp](mailto:ntakaki@tcu.ac.jp)

TEL: 03-5707-0104

日本原子力研究開発機構 高速炉・新型炉研究開発部門 大洗研究所

高速炉サイクル研究開発センター 燃料材料開発部 材料試験課長

舘 義昭

Tel : 029-267-1919 (5580)

E-mail: [tachi.yoshiaki@jaea.go.jp](mailto:tachi.yoshiaki@jaea.go.jp)

### 【取材申し込み先】

東京工業大学 広報・社会連携本部 広報・地域連携部門

Email: [media@jim.titech.ac.jp](mailto:media@jim.titech.ac.jp)

TEL: 03-5734-2975 FAX: 03-5734-3661

東北大学 総務企画部広報室

Email: [koho@grp.tohoku.ac.jp](mailto:koho@grp.tohoku.ac.jp)

TEL: 022-217-4816

東京都市大学 企画・広報室

Email: [toshidai-pr@tcu.ac.jp](mailto:toshidai-pr@tcu.ac.jp)

TEL: 03-5707-0104 (代)

日本原子力研究開発機構 広報部報道課

E-mail: [ono.norihisa@jaea.go.jp](mailto:ono.norihisa@jaea.go.jp)

TEL: 03-3592-2346 FAX: 03-5157-1950