

氏名	エルウィン Erwin	カスマ Kasma
授与学位	博士（工学）	
学位授与年月日	平成4年9月9日	
学位授与の根拠法規	学位規則第5条第1項	
研究科，専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 （博士）原子核工学専攻	
学位論文題目	アクチニド元素の消滅処理を目的とする溶融 塩炉の核設計の研究	
指導教官	東北大学教授 平川 直弘	
論文審査委員	東北大学教授 平川 直弘	東北大学教授 井上 泰
	東北大学教授 中村 尚司	東北大学助教授 馬場 護

論文内容要旨

本研究では、中性子経済が良く、燃料の成型加工がいらず、しかも燃料の連続装荷が可能であり、かつ燃料に伴う TRU 生成量が少ない $^{232}\text{Th-U}$ 燃料サイクルの溶融塩炉（MSR）をアクチニド元素の消滅処理に用いることを想定して、この炉の核特性を検討した。

MSR は燃料としてフッ化リチウムとフッ化ベリリウムからなる混合溶融塩を利用する液体燃料炉の一種である。この炉は一流体型であり、核分裂性物質と親物質を共に含んだ一種の液体からなる炉である。液体燃料塩自身が炉心の冷却材を兼ねており、炉心外に置かれた熱交換器で熱除去されて炉心に戻ってくるという循環を行う。

MSR においてアクチニド元素の消滅を行うに当たって出てくる大きな問題としては MSR は熱中性子炉であるので中性子スペクトルが硬くなりやすく、従って高速中性子核分裂を利用し難いため、消滅できるアクチニド元素の量に制限があることがある。

また、消滅性能を高くするためには中性子束を高くする必要があるが、その場合、MSR の減速材として使われている黒鉛の寿命が短くなり定期的に交換しなければならなくなり、不経済な作業が避けられない。

そこで、本研究では炉の寿命中黒鉛の交換を行わないという条件の下でアクチニド元素を消滅できるような MSR の核設計をすることとした。

まず、アクチニド元素の消滅処理に使える MSR 用の燃料塩組成及びその黒鉛減速材のセルを決めるために、溶融塩にアクチニド元素が入っていない状態で、可能な限り多くの燃料塩組成の組み

合わせ、及び燃料塩と黒鉛の割合を調整することにより炉心の無限増倍率 K_{inf} を計算した。即ち、 ${}^6\text{LiF}\text{-BeF}_2$ を主成分とする溶融塩に ThF_4 と ${}^{233}\text{UF}_4$ よりなる燃料塩を加え、液相面の温度（以降融点と省略）を 600°C 以下とする範囲を燃料塩中に占める ${}^{233}\text{U}$ の濃度を ThF_4 の濃度の $1/50$ 以下とするという条件の下で検討し、次の結果を得た。

- (1) K_{inf} の値を高くするには ${}^{232}\text{ThF}_4$ の濃度を高くする方がよい。
- (2) 融点を 600°C 以下とするには ${}^{232}\text{ThF}_4$ の濃度を $12\text{mol}\%$ 以下とする必要がある。
- (3) ThF_4 の濃度に関わらず、 BeF_2 の濃度を低くする、或いは LiF の濃度を高くすると融点が高くなると同時に K_{inf} が僅かに高くなる。
- (4) ThF_4 の濃度を上げると全体積中に占める減速材黒鉛の量（G 値）を多くする方が K_{inf} が高くなる。

上記の結果に基づいて、 520°C の融点を持つ、G 値が 0.92 で $\text{LiF}\text{-BeF}_2\text{-ThF}_4\text{-UF}_4$ の組成が $72.76\text{-}15.0\text{-}12.0\text{-}0.24\text{mol}\%$ の場合を選び、これに Pu を含む ${}^{237}\text{Np}$ から ${}^{246}\text{Cm}$ までのアクチニド元素（PUMA 元素）を加えた場合と ${}^{237}\text{Np}$ から ${}^{246}\text{Cm}$ までのアクチニド元素のみ（MA 元素）を加えた場合に対し、 375MWth の炉出力で 30GWd/t の燃焼度を得るまで Once-Through-Then-Out という形で燃焼させた場合を考えて、燃焼計算コード ORIGEN-2 によって燃焼計算を行い、MSR によるアクチニド元素の消滅処理の可能性を検討した。その結果から高い燃焼消滅性能を持ち、かつ K_{inf} の変動の少ない $\text{LiF}\text{-BeF}_2\text{-ThF}_4\text{-} [{}^{233}\text{UF}_4\text{-}(\text{PUMA})\text{F}_3] = 72.76\text{-}15.0\text{-}12.0\text{-} [0.12\text{-}0.12] \text{mol}\%$ （MSR-PUMA）と $\text{LiF}\text{-BeF}_2\text{-} [\text{ThF}_4\text{-}(\text{MA})\text{F}_3]\text{-}\text{UF}_4 = 72.76\text{-}15.0\text{-} [11.91\text{-}0.09]\text{-}0.24\text{mol}\%$ （MSR-MA）両ケースについて、それぞれの燃焼速度を調べるために、ORIGEN-2 コードにより 50 年間の燃焼計算を行った。その結果を Fig. 1 に示す。

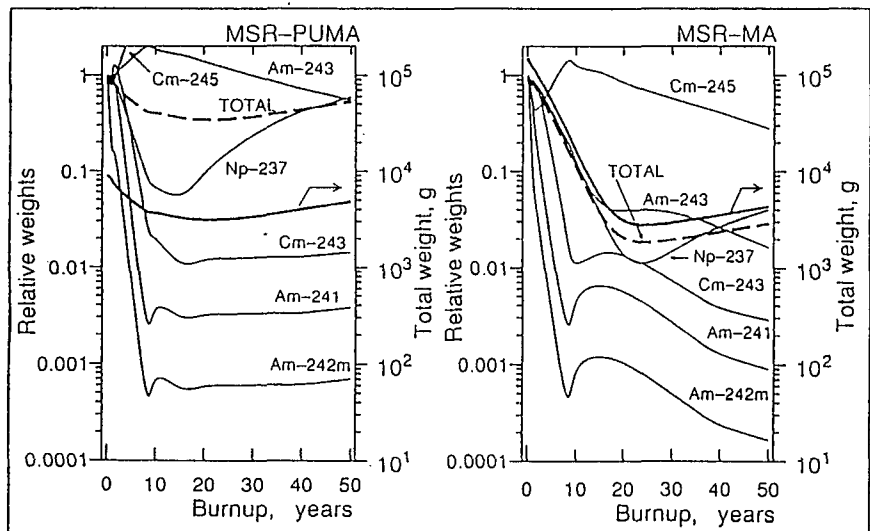


Fig. 1. The rate of minor actinides changes following 50 years of burnup both for MSR-PUMA and MSR-MA.

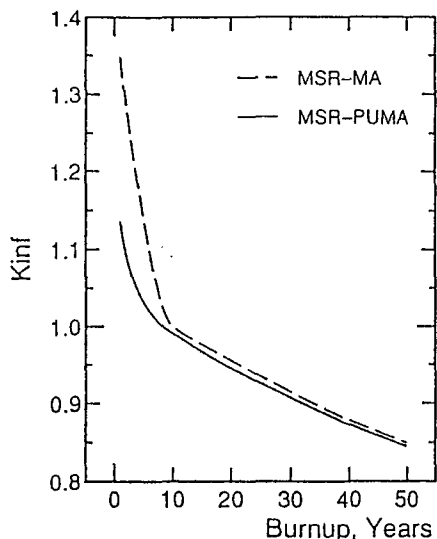


Fig. 2. Kinf changes for MSR-PUMA and MSR-MA.

この結果 MA 元素を1/2まで減少させるまでの期間は MSR-PUMA では6年間, MSR-MA では3年間であり, 一方 MA 元素を1/10にするまでの期間は MSR-MA では10年間であるが MSR-PUMA では10年間以内に ^{237}Np の量が増加に転ずるため1/10にまで減少させることはできなかった。

燃焼に伴う Kinf の変化を Fig. 2 に示す。燃焼開始から50年間ずっと減少し続けることが分かる。

次に MSR-PUMA と MSR-MA を対象に MSR-PUMA には PUMA 元素を, MSR-MA には MA 元素を30年間連続的に装荷した場合の検討を行った。この場合に対して, 拡散計算コード CITATION と燃焼計算コード ORIGEN-2 を組み合わせて, PUMA 元素と MA 元素のそれぞれの装荷量及び装荷期間を, 炉心の臨界を維持すると同時に, Burnup Swing が5% $\delta k/k$ 以下に, しかもアクチニド元素の消費量が多くできるように, 調整していくことにより, 消費できるアクチニド元素の量を調べた。その結果, Kinf 及び Keff の変化を Fig. 3 に, 燃料消費量を Table 1 に示す。

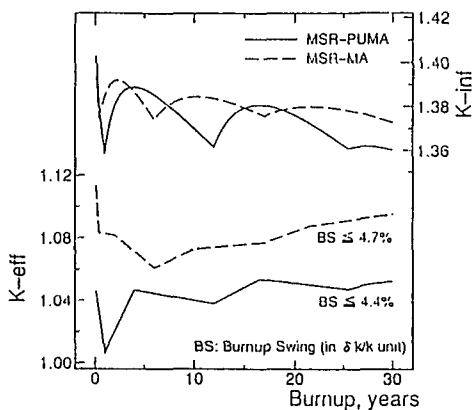


Fig. 3. Changes of K-inf and K-eff following 30 years of burnup in the MSR-TRU.

Table 1. 30年間の MSR-PUMA と MSR-MA の燃料消費量

	需要量 (kg)			EOLでの 残存量 (kg)	差 (残存量- 総合量)
	初期	30年間連続装荷	総合		
MSR-PUMA Pu	159	9629	9788	6042	-3746
MA	10	577	587	773	+ 186
U-233	230	-	230	242	+ 12
MSR-MA Pu	-	-	-	543	+ 543
MA	150	1066	1216	520	- 696
U-233	585	3414	3999	972	-3027

この Table 1 から MSR-PUMA は MA 元素を消滅させることができず、むしろ Pu 元素を大量に消滅する Pu Burner であることが分かった。一方、MSR-MA は年間23kgの MA を消滅できるが、これは3410MWh 型 LWR 1年間の運転から生ずる MA の量に相当し、消滅処理炉としては必ずしも有利でないという結果を得た。

そこで、両者の炉心のそれぞれの性能を生かす目的で、3基の MSR-PUMA と1基の MSR-MA からなる複合システムを考え、初期30年間とそれに引続く30年間にわたる燃焼計算を行った。その結果、この複合システムは MA 元素を最初の30年間に約3000kg、次の30年間で138kg消滅させることができることを示した。しかし、このシステムの成立のためには約300kgの ^{233}U を別の MSBR から補給することが必要である。

これらの原子炉概念の成立性を検討するため核的固有特性、即ちボイド反応度係数、温度係数及び実効遅発中性子寄与率 β_{eff} を計算した。最初に、ボイド反応度係数の計算は、ボイドが発生する場所は最も正の反応度に大きく影響する炉心の CORE 領域の中央であると仮定し、ボイド率を10%と20%と変化させて実効増倍率 K_{eff} を計算することにより行った。その結果 MSR-MA の BOL (Beginning Of Life; 炉寿命初期) で10%ボイドという場合を除き、ボイド係数は正であった。次に、温度係数の計算を、燃料塩及び黒鉛の温度としてそれぞれ600, 900, 1200K という3点を取って K_{eff} を計算することにより行った。燃料塩の温度係数は全ての場合について負であったが、黒鉛の温度係数は全ての場合に対して正であり、しかも BOL と EOL (End Of Life; 炉寿命末期) とでは温度係数の変動が大きいことが明らかとなった。

MSR では遅発中性子先行核が燃料と共に炉外へ流出するので実効遅発中性子寄与率 β_{eff} が小さくなり、安全上問題となるので検討する事が重要である。BETAC コードを改良した BETACX コードにより、 β_{eff} は燃料塩の流動によって、燃料塩が静止している場合より35~40%減少するが、その β_{eff} の減少率は各炉心における炉外での塩の保有量の割合と直接の関係がないことが明らかになった。

以上の核的固有特性の計算結果を以前の他の MSR (即ち、MSBR と FUJI-II) の計算結果と比較して Table 2 にまとめて示す。この表から、ここで対象としている MSR は正のボイド反応度係

Table 2. Calculation result of nuclear characteristics of MSR-TRU.

PARAMETER	MSR-PUMA		MSR-MA		MSBR	FUJI-II
	BOL	EOL	BOL	EOL		
① 平均温度係数 ($\delta k/k/K$) x E-05						
燃料塩	- 2.00	-4.44	-3.58	-2.66	-3.28	-3.76
黒鉛減速材	+10.75	+1.39	+0.71	+5.09	+2.35	+2.31
② ボイド係数						
10%ボイド率	+	+	-	+	NA*)	-/+ **)
20%ボイド率	+	+	+	+	NA	-/+
③ β_{eff} (x E-03)						
燃料状態: 停止	2.87	3.13	2.81	2.99	3.34	3.36
流動	1.86	1.87	1.83	1.79	1.60	2.00
β_{eff} 減少率	35%	40%	35%	40%	52%	40%

*) Not Available. **) (core 1)/(core 2).

数・正の黒鉛温度係数を持つことが分かる。従って、MSRの炉としての成立性を議論するために何らかの原因による反応度挿入のあった場合の炉心動特性を解析して、その安全性を確認することが必要である。そこで、ステップ状の反応度入力という反応度事故を考えた。反応度の大きさとしては約1\$を選んだ。これは原子炉の制御における通常の目的には1\$以下の反応度変化しか与えないように設計した制御系で十分対応できるといわれているからである。そして、反応度の入る炉心の初期状態は出力状態即ち出力が定常時の値で、熱除去が行われている状態であるとした。また、ここでは制御系が機能することを全く考慮していない。この計算にはKIN-1Dという一定熱除去モデルを採用した1次元時間依存拡散方程式に基づく計算コードを開発して使用した。その結果、黒鉛の正の温度係数の低いMSR-PUMA (EOL) 及びMSR-MA (BOL) に対しては過渡状態の後、出力は元の値に制定されるが高い正の黒鉛温度係数を持つ、MSR-PUMA (BOL) とMSR-MA (EOL) では遅延性変動が起こり、出力は上昇し続けた。従って、これらの場合には黒鉛の正の温度係数を抑制するための工夫或いは信頼性のある制御系が必要とされることとなる。

以上の結果から熔融塩炉を専焼炉としてアクチニド元素の消滅処理に用いることは必ずしも有利ではないが、熔融塩炉としてエネルギー利用を図りつつMA元素の消滅処理を行うことが可能であることを示すことができた。

審査結果の要旨

最近、原子核燃料の燃焼に伴って生成する超ウラン元素（TRU）を原子炉において放射能毒性の低い元素に核変換させる（消滅処理）という提案がなされ、種々の検討が行なわれている。本論文は中性子経済が良く、燃料の成型加工を必要とせず、連続燃料装荷が可能な上、それ自身によるTRUの生成が少ないTh-²³³Uサイクルの溶融塩炉に着目し、これを消滅処理炉として用いることを目的としてその核的特性を検討したもので、全編8章より成る。

第1章は序論であり、溶融塩炉の特徴について述べている。

第2章では本研究において使用した計算コードと核データについて説明している。

第3章でLiF-BeF₂を主成分とする溶融塩にThF₄と²³³UF₄よりなる燃料塩を、(a)融点を600℃以下とする、(b)燃料塩中の²³³Uの濃度をThの1/50以下とする、という条件の下に添加し、高い無限増倍率を得るための溶融塩の組成および炉心中の黒鉛減速材が全体積に占める割合を検討している。

第4章では第3章の結果に基づいて選んだ最適組成の塩にPuを含む²³⁷Npから²⁴⁶Cmまでのアクチニド元素（PUMA）を添加した溶融塩炉（MSR-PUMA）と、上記からPuを除いたアクチニド元素（MA）を添加した溶融塩炉（MSR-MA）について、Once Through Then Out方式で30GWd/tまで燃焼させたときのMAの消滅速度を検討し、MAをMSR-MAでは3年間で1/2、10年間で1/10にできるのに対し、MSR-PUMAでは1/2にするのに6年を要し、10年目以降に²³⁷Npが増加に転ずるため、1/10とするのが不可能なことを示している。

第5章ではMSR-PUMAにPUMAを、MSR-MAにMAを、それぞれ反応度の変動を5%以下に抑えるという条件の下に連続的に追加しつつ燃焼させた場合を解析し、MSR-PUMAのみでは長期的にはMAを消滅させ得ず、一方MSR-MAのみでは少量のMAを消滅できるが、MAの専焼炉としては有利でないことを示している。そして両者の特性を活かすものとして3基のMSR-PUMAと1基のMSR-MAからなる複合システムを提案し、初めの30年間で約3000kg、次の30年間で138kgのMAを消滅し得ることを示している。

第6章ではこれらの原子炉概念の成立にとって重要なボイド係数、温度係数、実効遅発中性子生成率の解析を行なっている。

第7章では第6章で求めたパラメータと本研究で新たに開発した計算コードを用いて、1ドルのステップ状反応度挿入に対する原子炉動特性の解析を行ない、黒鉛の正の温度係数の大きい場合には信頼性の高い制御系が必要なることを指摘している。

第8章は総括である。

以上要するに本論文は、Th-²³³Uサイクルを用いる溶融塩炉をTRUの消滅処理に用いることの可能性を核的特性の面から検討し、それを可能とするシステムの提案を行なったもので、原子核工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。