

令和元年度

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

柔軟性の高い MA 回収・核変換技術の開発

成果報告書

令和 2 年 3 月

一般財団法人 電力中央研究所

本報告書は、文部科学省の原子力システム研究開発事業による委託業務として、一般財団法人電力中央研究所が実施した平成 28 年度～2019 年度「柔軟性の高い MA 回収・核変換技術の開発」の成果を取りまとめたものです。

目次

概略	xii
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	
2.1 全体計画	2.1-1
2.2 令和元年度の成果の目標および業務の実施方法	2.2-1
3. 平成28年度～令和元年度の実施内容および成果	
3.1 金属燃料および炉心開発	3.1.1-1
3.1.1 高濃度 MA 含有金属燃料の設計と特性評価	3.1.1-1
3.1.2 MA 含有金属燃料装荷炉心の最適化検討	
(1) MA 含有金属燃料装荷・酸化物燃料炉心の設計 (再委託先：日本原子力研究開発機構)	3.1.2-1
(2) MA 核変換用金属燃料炉心の設計 (再委託先：日本原子力研究開発機構)	3.1.2-3
(3) MA 含有金属燃料装荷炉心の性能向上策の適用性検討 (再委託先：日本原子力研究開発機構)	3.1.2-5
3.2 乾式再処理技術開発	3.2.1-1
3.2.1 液体 Ga 電極を用いたアクチニド／希土類分離回収技術開発	
(1) U および Pu 析出挙動 (再委託先：日本原子力研究開発機構)	3.2.1-1
(2) MOX を対象とした小規模連続プロセス試験 (再委託先：日本原子力研究開発機構)	3.2.1-6
(3) マイナーアクチニド析出挙動把握	3.2.1-38
3.2.2 廃棄物の減容化技術開発	
(1) 液体 Ga 電極への FP 元素析出挙動把握	3.2.2-1
(2) 陽極におけるヨウ素、臭素発生挙動把握と回収方法検討 (再委託先：京都大学)	3.2.2-3
(3) 液体 Ga 電極／固体 Si 電極に回収した FP の処理技術開発	3.2.2-15
3.2.3 乾式再処理機器概念の構築とプロセス設計	
(1) 乾式再処理機器概念の構築	3.2.3-1
(2) 乾式再処理プロセス設計	3.2.3-28
3.3 MA 回収・核変換シナリオと Pu/MA 収支の検討	3.3-1
3.4 研究推進	3.4-1
4. 結言	4-1

5. 本研究の総括	5-1
-----------	-------	-----

表一覧

表 1-1	本研究の目的、解決のための課題と達成目標、実施項目の関係 . . .	1-3
表 2. 1-1	本研究の全体業務計画	2. 1-4
表 3. 1. 1-1	平成 30 年度および令和元年に設計された高濃度 MA 含有金属燃料炉心の燃料仕様および炉心特性解析結果	3. 1. 1-8
表 3. 1. 1-2	装荷燃料のアクチニド組成	3. 1. 1-8
表 3. 1. 2-1	検討した MA 含有金属燃料装荷・酸化物燃料炉心の仕様および特性 . .	3. 1. 2-2
表 3. 1. 2-2	検討した MA 核変換用金属燃料炉心の仕様および特性	3. 1. 2-4
表 3. 1. 2-3	中型金属燃料炉心 Na 冷却高速炉の仕様	3. 1. 2-19
表 3. 1. 2-4	燃料仕様	3. 1. 2-19
表 3. 1. 2-5	計算用燃料組成	3. 1. 2-20
表 3. 1. 2-6	設計制限目安	3. 1. 2-20
表 3. 1. 2-7	工学的安全係数	3. 1. 2-21
表 3. 1. 2-8	平衡期炉心の特性評価	3. 1. 2-22
表 3. 1. 2-9	SiC/SiC 複合材および Zr-H 減速集合体装荷炉心の特性評価	3. 1. 2-23
表 3. 1. 2-10	SiC/SiC 複合材減速集合体分散装荷炉心の燃料組成および FP 含有率による炉心特性への影響評価	3. 1. 2-24
表 3. 1. 2-11	選定した炉心の詳細評価	3. 1. 2-25
表 3. 1. 2-12	選定した MA 核変換用炉心の制御反応度収支	3. 1. 2-26
表 3. 1. 2-13	MA 核変換炉心の流量領域配分の検討 (冷却材出入口温度 485/330°C) .	3. 1. 2-27
表 3. 1. 2-14	各流量領域の CDF 評価結果 (冷却材出入口温度 485/330°C)	3. 1. 2-27
表 3. 1. 2-15	各流量領域の CDF が成立する冷却材流量の検討 (冷却材出入口温度 485/330°C)	3. 1. 2-28
表 3. 1. 2-16	MA 核変換炉心の流量領域配分 (冷却材出入口温度 485/330°C)	3. 1. 2-28
表 3. 2. 1-1	アクチニドを液体 Ga に回収した際の実験係数	3. 2. 1-4
表 3. 2. 1-2	MOX ペレットの仕様	3. 2. 1-19
表 3. 2. 1-3	MOX ペレット粉末、貴金属元素+希土類元素粉末、加圧成形後の重量	3. 2. 1-19
表 3. 2. 1-4	電解還元試験時における設定電流 (および電位)、電解時間、電気量	3. 2. 1-20
表 3. 2. 1-5	調整塩、塩化物試薬の装荷量	3. 2. 1-20
表 3. 2. 1-6	RUN1~3 の試験条件	3. 2. 1-21
表 3. 2. 1-7	電解精製試験時におけるマスバランス評価	3. 2. 1-21
表 3. 2. 1-8	電解精製試験時における浴塩中の各元素濃度	3. 2. 1-21
表 3. 2. 1-9	電解精製試験時における Ga 中の各元素濃度	3. 2. 1-22
表 3. 2. 1-10	アクチニドを液体 Ga に回収した際の実験係数	3. 2. 1-22
表 3. 2. 1-11	電解精製試験開始前の溶融塩中の各元素濃度	3. 2. 1-22
表 3. 2. 2-1	溶融 LiCl-KCl-LiBr (1.0 mol%) -LiI (1.0 mol%) 中における各条件	

	でのヨウ素回収効率、電気量：100 C	3.2.2-7
表 3.2.2-2	溶融 LiCl-KCl-LiBr (1.0 mol%) -LiI (1.0 mol%) 中での I ₂ ガス連続回収 実験における Cu のヨウ化率、電気量：500 C	3.2.2-7
表 3.2.2-3	希土類-Si 合金のガラス転換に関する試験一覧	3.2.2-24
表 3.2.2-4	950°Cでの化合物の標準生成自由エネルギー (ΔG^0_f)	3.2.2-24
表 3.2.2-5	Run 5 で得られた生成物の ICP 発光分光法による組成分析結果	3.2.2-25
表 3.2.2-6	Run 6 で得られた生成物の ICP 発光分光法による組成分析結果	3.2.2-25
表 3.2.3-1	小規模シリサイド形成試験条件	3.2.3-11
表 3.2.3-2	各 RUN 後に採取した溶融塩中の希土類濃度	3.2.3-11
表 3.2.3-3	各 RUN 後に得られたシリサイド中の希土類濃度比 (Ce 基準)	3.2.3-12
表 3.2.3-4	各 RUN 後に得られた希土類の分離係数 (Ce 基準)	3.2.3-12
表 3.2.3-5	各 RUN における理論重量増加、重量増加および電流効率	3.2.3-12
表 3.2.3-6	工学規模シリサイド形成試験結果	3.2.3-13
表 3.2.3-7	MA 含有金属燃料を部分装荷した MOX 炉心仕様の抜粋 (平成 29 年度検討の最終炉心)	3.2.3-35
表 3.2.3-8	MA 含有金属燃料を全炉心に装荷した SiC/SiC 減速集合体分散装荷 炉心仕様の抜粋	3.2.3-35
表 3.2.3-9	MA 含有金属燃料を部分装荷する MOX 炉心に装荷する MA 含有 金属燃料の元素量、組成、および照射後の元素量	3.2.3-36
表 3.2.3-10	MA 含有金属燃料を全炉心に装荷する SiC/SiC 減速集合体分散装荷炉心 に装荷する MA 含有金属燃料の元素量、組成、および照射後の元素量	3.2.3-36
表 3.2.3-11	対象とする使用済 MOX 燃料組成	3.2.3-37
表 3.2.3-12	対象とする高レベル廃液組成	3.2.3-38
表 3.2.3-13	各原子炉システムの初装荷燃料製造に必要な原料量	3.2.3-39
表 3.2.3-14	乾式分離での希土類 FP の除染係数=10 を想定した場合での乾式分離 製品の電解精製後の各元素の想定分布量 (kg/1t-HM の使用済燃料 UO ₂ 燃料から生ずる高レベル廃液)	3.2.3-40
表 3.2.3-15	使用済 MOX の電解還元生成物の電解精製後の存在量 (kg/1t-HM の使用済 MOX 燃料)	3.2.3-41
表 3.2.3-16	乾式分離での希土類 FP の除染を想定しない場合での乾式分離製品の 電解精製後の各元素の想定分布量 (kg/1t-HM の使用済燃料 UO ₂ 燃料 から生ずる高レベル廃液)	3.2.3-42
表 3.2.3-17	MA 含有金属燃料を部分装荷した MOX 炉心高速炉および MA 含有金属燃料 を全炉心に装荷した SiC/SiC 減速集合体分散装荷炉の初期装荷に必要な 原料量並びに MA 含有金属燃料製造に伴って生ずる主な廃棄物量	3.2.3-43
表 3.3-1	各アクチニド同位体の経口年摂取限度 (50mSv) に相当する 放射エネルギー (Bq)	3.3-16
表 3.3-2	高濃度 MA 金属燃料を装荷した炉心による単位出力当たりの	

	潜在毒性指標の変化	3.3-17
表 5-1	本研究の目的、解決のための課題と達成目標、実施項目 . . .	5-8

図一覧

図 1-1	高速炉金属燃料と乾式再処理技術の導入による柔軟性の高い MA 回収・核変換システムの概念	1-3
図 2. 1-1	本研究の実施体制	2. 1-5
図 3. 1. 1-1	61U-19Pu-3Np-2Am-0.5Ce-1.5Nd-10Zr 合金と被覆管材 (68Fe-15Ni-15Cr-2Ti) との高温溶融相の α オートラジオグラフ (図中で白く見える領域に Am が存在する)	3. 1. 1-3
図 3. 1. 1-2	高濃度 MA 含有金属燃料の照射挙動解析に向け調整された AFLUS コード の解析結果の例 (AFC-1B および AFC-1D 試験 (8-9) のガス放出率 に基づき調整)	3. 1. 1-3
図 3. 1. 1-3	平成 30 年度設計炉心の集合体配置図	3. 1. 1-6
図 3. 1. 1-4	令和元年度設計炉心の集合体配置図	3. 1. 1-7
図 3. 1. 1-5	#175 集合体燃料ピンの最大線出力履歴	3. 1. 1-9
図 3. 1. 1-6	#175 集合体燃料ピンの最大中性子束履歴	3. 1. 1-9
図 3. 1. 1-7	#175 集合体燃料の軸方向出力分布	3. 1. 1-10
図 3. 1. 1-8	最大出力時 (706 日照射後) における燃料軸方向温度分布	3. 1. 1-11
図 3. 1. 1-9	照射末期 (2018 日照射後) における燃料軸方向温度分布	3. 1. 1-12
図 3. 1. 1-10	#175 集合体燃料からの FP ガス放出率の照射履歴	3. 1. 1-13
図 3. 1. 1-11	#175 集合体燃料ピンのプレナムガス圧の照射履歴	3. 1. 1-13
図 3. 1. 1-12	#175 集合体燃料ピンの照射による軸伸びの履歴	3. 1. 1-14
図 3. 1. 1-13	E01 における#226 集合体燃料ピンの CDF 値の軸方向分布	3. 1. 1-15
図 3. 1. 1-14	E01 における#175 集合体燃料ピンの外形変形率	3. 1. 1-16
図 3. 1. 1-15	#133 集合体燃料ピンの最大線出力履歴	3. 1. 1-17
図 3. 1. 1-16	#133 集合体燃料ピンの最大中性子束履歴	3. 1. 1-18
図 3. 1. 1-17	#133 集合体燃料の軸方向出力分布	3. 1. 1-18
図 3. 1. 1-18	#177 集合体燃料の最大出力時 (B01:照射開始直後) における軸方向 温度分布	3. 1. 1-19
図 3. 1. 1-19	#133 集合体燃料の E01 (2018 日照射後) における軸方向温度分布	3. 1. 1-20
図 3. 1. 1-20	#221 集合体燃料からの FP ガス放出率の照射履歴	3. 1. 1-21
図 3. 1. 1-21	#221 集合体燃料からのプレナムガス圧の照射履歴	3. 1. 1-21
図 3. 1. 1-22	#177 集合体燃料の照射による軸伸びの履歴	3. 1. 1-22
図 3. 1. 1-23	E01 における#133 集合体燃料ピンの CDF 値の軸方向分布	3. 1. 1-22
図 3. 1. 1-24	E01 における#133 集合体燃料ピンの外形変形率	3. 1. 1-23
図 3. 1. 2-1	検討した MA 含有金属燃料装荷・酸化物燃料炉心の配置図	3. 1. 2-2
図 3. 1. 2-2	検討した MA 核変換用金属燃料炉心の配置図	3. 1. 2-4
図 3. 1. 2-3	想定する再処理・燃料製造	3. 1. 2-30
図 3. 1. 2-4	基準炉心のサーベイ	3. 1. 2-31
図 3. 1. 2-5	SiC/SiC 複合材減速集合体装荷方法のサーベイの炉心配置	3. 1. 2-32

図 3. 1. 2-6	SiC/SiC 複合材および Zr-H 減速集合体装荷炉心の最大線出力分布	3. 1. 2-33
図 3. 1. 2-7	流量領域図	3. 1. 2-34
図 3. 2. 1-1	装置搬入前(左図)および装置搬入後(右図)のグローブボックス(GB) 内観図	3. 2. 1-4
図 3. 2. 1-2	Ga-U 合金(U 濃度 : 1. 029wt%) 析出相の EDX 線分析結果 (倍率 : 20000 倍、 加速電圧 17kV) (U(M α : 3. 164keV)、Ga(L α : 1. 098keV))	3. 2. 1-4
図 3. 2. 1-3	試料の中層部での点分析結果	3. 2. 1-5
図 3. 2. 1-4	Ga 電極の外観および底部の二次電子像、EDX 点分析結果	3. 2. 1-5
図 3. 2. 1-5	MOX ペレット外観図	3. 2. 1-23
図 3. 2. 1-6	スタンプミル外観図(左)、30 分破碎後(中)、1 時間 30 分破碎後(右)	3. 2. 1-23
図 3. 2. 1-7	乳鉢・乳棒設置外観図(左)、分級作業時(中)、分級後外観図(右)	3. 2. 1-23
図 3. 2. 1-8	プレス台へのダイス設置図(左)、加圧後ダイス外観図(中)、 模擬 MOX ペレット外観図(右)	3. 2. 1-24
図 3. 2. 1-9	試験前の LiCl-Li ₂ O 混合塩	3. 2. 1-24
図 3. 2. 1-10	曲げ加工後 Pt 板(左)、Pt 板+Pt 線取り付け部(中)、Pt 電極全体(右)	3. 2. 1-24
図 3. 2. 1-11	Pb-Li 電極の先端外観図	3. 2. 1-25
図 3. 2. 1-12	MOX 電極の外観	3. 2. 1-25
図 3. 2. 1-13	酸化物電極の CV 曲線①	3. 2. 1-26
図 3. 2. 1-14	酸化物電極の変遷 a) 試験前、b) 過大電流対策①、c) 過大電流対策②、 d) 過大電流対策③	3. 2. 1-26
図 3. 2. 1-15	酸化物電極の CV 曲線②	3. 2. 1-27
図 3. 2. 1-16	LiCl-Li ₂ O 熔融塩における W 電極の CV 曲線	3. 2. 1-27
図 3. 2. 1-17	酸化物電極と Pt 電極の分極測定	3. 2. 1-28
図 3. 2. 1-18	電解中の (a) 酸化物電極、(b) Pt 電極電位の変化	3. 2. 1-29
図 3. 2. 1-19	試験後の試験塩、電極の外観	3. 2. 1-30
図 3. 2. 1-20	電解還元後の還元生成物外観	3. 2. 1-30
図 3. 2. 1-21	還元生成物の断面	3. 2. 1-30
図 3. 2. 1-22	模擬 MOX ペレット断面の SEM 像 (還元試験前)	3. 2. 1-31
図 3. 2. 1-23	模擬 MOX ペレット表面の SEM 像 (還元試験後)	3. 2. 1-31
図 3. 2. 1-24	模擬 MOX ペレット内部の SEM 像 (還元試験後)	3. 2. 1-32
図 3. 2. 1-25	バスケット、抑え網、受け皿外観図(左)、還元生成物のバスケット 装荷後外観図(右)	3. 2. 1-32
図 3. 2. 1-26	各試験前後の CV 測定結果(W 電極使用時)	3. 2. 1-33
図 3. 2. 1-27	RUN1 試験前の CV 測定結果(Ga 電極使用時)	3. 2. 1-33
図 3. 2. 1-28	RUN2 試験前の CV 測定結果(Ga 電極使用時)	3. 2. 1-34
図 3. 2. 1-29	RUN3 試験前の CV 測定結果(Ga 電極使用時)	3. 2. 1-34
図 3. 2. 1-30	還元生成物電極を用いた CV 測定結果(RUN1 終了後)	3. 2. 1-35
図 3. 2. 1-31	液体 Ga 電極を用いた定電流電解時の電位経時変化(RUN1)	3. 2. 1-35
図 3. 2. 1-32	液体 Ga 電極を用いた定電流電解時の電位経時変化(RUN2)	3. 2. 1-36

図 3.2.1-33	液体 Ga 電極を用いた定電流電解時の電位経時変化 (RUN3)	3.2.1-36
図 3.2.1-34	電解精製試験後の陽極バスケット解体後の外観図	3.2.1-37
図 3.2.1-35	アクチニドの分離係数 (Ce 基準) と (U の部分電流密度) の関係	3.2.1-39
図 3.2.2-1	本事業で提案した廃棄物減容化のためのプロセス模式図	3.2.2-2
図 3.2.2-2	実験装置図 (Cu メッシュを用いたヨウ素回収)	3.2.2-8
図 3.2.2-3	電解前の実験装置上部の写真	3.2.2-9
図 3.2.2-4	実験装置図 (Cu メッシュを用いたヨウ素の連続回収)	3.2.2-10
図 3.2.2-5	電解終了 30 分後の Cu メッシュ写真	3.2.2-11
図 3.2.2-6	回収した Cu メッシュの XRD パターン	3.2.2-11
図 3.2.2-7	電解終了直後の (a) 実験装置上部、(b) 電解浴の写真 (グラッシーカーボン電極を用いた電解)	3.2.2-12
図 3.2.2-8	電解終了 30 分後の (a) 実験装置上部、(b) 電解浴の写真 (グラッシーカーボン電極を用いた電解)	3.2.2-12
図 3.2.2-9	電解後の電解浴の写真 (Au 電極を用いた電解)	3.2.2-13
図 3.2.2-10	Cu メッシュを詰めたアウトレット接続パイプスチューブ (ヨウ素連続回収実験)	3.2.2-13
図 3.2.2-11	ヨウ素連続回収実験後の 50%エタノール溶液 (アウトレットの先に接続)	3.2.2-14
図 3.2.2-12	本事業で当初想定した廃棄物処理プロセス模式図 (液体 Ga 電極を使用)	3.2.2-26
図 3.2.2-13	新たに提案した廃棄物処理プロセス模式図 (固体 Si 電極を使用)	3.2.2-26
図 3.2.2-14	酸化試験装置全体の (a) 概念図と (b) 写真	3.2.2-27
図 3.2.2-15	CeSi ₂ および LaSi ₂ 試薬	3.2.2-28
図 3.2.2-16	アーク溶解により調製された (a) CeSi ₂ と (b) LaSi ₂ 、および熔融塩電解 により生成した (c) CeSi ₂ の XRD パターン	3.2.2-28
図 3.2.2-17	(a) Na ₂ B ₄ O ₇ および (b) SiO ₂ 試薬の XRD パターン	3.2.2-29
図 3.2.2-18	Run 1 での温度履歴 (熱電対による測定値)	3.2.2-29
図 3.2.2-19	Run 1 終了後の Al ₂ O ₃ タンマン管と生成物、Al ₂ O ₃ 管の様子	3.2.2-30
図 3.2.2-20	Run 2 での温度履歴 (熱電対による測定値)	3.2.2-30
図 3.2.2-21	Run 2 終了後の Al ₂ O ₃ タンマン管と生成物、Al ₂ O ₃ 管の様子	3.2.2-31
図 3.2.2-22	Run 3 終了後の Al ₂ O ₃ タンマン管と生成物、Al ₂ O ₃ 管の様子	3.2.2-31
図 3.2.2-23	Run 4~6 のガラス化試験で使用したマッフル炉	3.2.2-32
図 3.2.2-24	Run 4 終了後の Al ₂ O ₃ タンマン管と生成物、Al ₂ O ₃ 管の様子	3.2.2-32
図 3.2.2-25	Run 5 および Run 6 での希土類-Si 合金の酸化処理 (大気中、1000°C × 2.0 h)	3.2.2-33
図 3.2.2-26	Run 5 での温度履歴 (熱電対による測定値)	3.2.2-33
図 3.2.2-27	Run 5 終了後の Al ₂ O ₃ タンマン管と生成物、Al ₂ O ₃ 管の様子	3.2.2-34
図 3.2.2-28	Run 6 での温度履歴 (熱電対による測定値)	3.2.2-34

図 3.2.2-29	Run 6 終了後の Al_2O_3 タンマン管と生成物、 Al_2O_3 管の様子	3.2.2-35
図 3.2.2-30	ガラス化試験 Run 1~6 の生成物の XRD パターン	3.2.2-36
図 3.2.2-31	1000°C で酸化処理した (a) LaSi_2 - CeSi_2 混合物、(b) LaSi_2 、(c) CeSi_2 (以上はアーク溶解で調製)、(d) CeSi_2 (熔融塩電解で調製) の XRD パターン	3.2.2-37
図 3.2.2-32	Run 5 の生成物の SEM 分析	3.2.2-38
図 3.2.2-33	Run 5 の生成物の SEM-EDX 分析	3.2.2-39
図 3.2.2-34	Run 6 の生成物の SEM 分析	3.2.2-40
図 3.2.2-35	Run 6 の生成物の SEM-EDX 分析	3.2.2-41
図 3.2.3-1	工学規模電解槽に設置した電解浴	3.2.3-14
図 3.2.3-2	液体 Ga 電極アセンブリ	3.2.3-14
図 3.2.3-3	液体 Ga 電極アセンブリで用いた攪拌羽 左：令和元年度試験、右：平成 30 年度試験	3.2.3-15
図 3.2.3-4	対極バスケットアセンブリ(電解試験終了後)	3.2.3-15
図 3.2.3-5	小規模シリサイド形成試験で用いた Si 電極	3.2.3-16
図 3.2.3-6	工学規模シリサイド形成試験で用いた Si 電極ウエハー(左)、 ワニ口クリップで保持している様子(右)	3.2.3-16
図 3.2.3-7	工学規模 Ga 電解槽(熔融 LiCl-KCl-CeCl_3 中)における Mo 線電極を 用いたサイクリックボルタモグラム(走査速度 50 mVs^{-1})	3.2.3-17
図 3.2.3-8	液体 Ga 電極アセンブリの分極曲線	3.2.3-17
図 3.2.3-9	定電流電解時の液体 Ga 電極電位経時変化	3.2.3-18
図 3.2.3-10	定電流電解試験終了後に液体 Ga 電極アセンブリを引き上げた様子(左)、 攪拌羽を液体 Ga 相内から引き上げた様子(右)	3.2.3-18
図 3.2.3-11	熔融 LiCl-KCl 中における Si 電極を用いたサイクリックボルタモグラム (走査速度 50 mVs^{-1})	3.2.3-19
図 3.2.3-12	熔融 LiCl-KCl-RECl_x ($\text{RE} = \text{La, Ce, Pr, Nd, Eu, Sm, Gd}$) 中における Si 電極を用いたサイクリックボルタモグラム (走査速度 50 mVs^{-1})	3.2.3-19
図 3.2.3-13	熔融 LiCl-KCl-RECl_x ($\text{RE} = \text{La, Ce, Pr, Nd, Eu, Sm, Gd}$) 中における 定電流電解時 (-8.3 mAcm^{-2}) の電位経時変化	3.2.3-20
図 3.2.3-14	熔融 LiCl-KCl-RECl_x ($\text{RE} = \text{La, Ce, Pr, Nd, Eu, Sm, Gd}$) 中における 定電流電解後 (-8.3 mAcm^{-2}) に得られた Si 電極外観写真(左)、 附着塩を蒸留水で除去した後の様子(右)	3.2.3-20
図 3.2.3-15	熔融 LiCl-KCl-RECl_x ($\text{RE} = \text{La, Ce, Pr, Nd, Eu, Sm, Gd}$) 中における 定電流電解後 (-8.3 mAcm^{-2}) に得られた Si 電極破断面の SEM 像	3.2.3-21
図 3.2.3-16	熔融 LiCl-KCl-RECl_x ($\text{RE} = \text{La, Ce, Pr, Nd, Eu, Sm, Gd}$) 中における 定電流電解後 (-8.3 mAcm^{-2}) に得られた Si 電極破断面の SEM-EDX 分析結果	3.2.3-21
図 3.2.3-17	熔融 LiCl-KCl-RECl_x ($\text{RE} = \text{La, Ce, Pr, Nd, Eu, Sm, Gd}$) 中における	

	定電流電解時の電位経時変化	3. 2. 3-22
図 3. 2. 3-18	分離係数(Ce 基準)と印加電流密度の関係	3. 2. 3-22
図 3. 2. 3-19	各希土類回収の部分電流密度の印加電流密度依存性	3. 2. 3-23
図 3. 2. 3-20	溶融 LiCl-KCl-RECl _x (RE = La, Ce, Pr, Nd, Eu, Sm, Gd) 中における 定電流電解時の電位経時変化 印加電流密度 : -8.3 mAcm ⁻² (RUN2, RUN8, RUN9) 、-9.1 mAcm ⁻² (RUN7)	3. 2. 3-23
図 3. 2. 3-21	溶融 LiCl-KCl-RECl _x (RE = La, Ce, Pr, Nd, Eu, Sm, Gd) 中における 定電流電解後に得られた Si 電極破断面 SEM 像	3. 2. 3-24
図 3. 2. 3-22	溶融 LiCl-KCl-RECl _x (RE = La, Ce, Pr, Nd, Eu, Sm, Gd) 中における 定電流電解後に得られたシリサイド相厚さの通電量依存性	3. 2. 3-24
図 3. 2. 3-23	溶融 LiCl-KCl-RECl _x (RE = La, Ce, Pr, Nd, Eu, Sm, Gd) 中における 定電流電解後に得られたシリサイド相厚さの印加電流密度依存性	3. 2. 3-25
図 3. 2. 3-24	工学規模シリサイド形成試験における電位経時変化	3. 2. 3-25
図 3. 2. 3-25	工学規模シリサイド形成試験前に実施した分極曲線	3. 2. 3-26
図 3. 2. 3-26	工学規模シリサイド形成試験 2 回目後に得られた Si 電極(左)、 Si 電極から回収したシリサイド(中央)、 シリサイドを剥ぎ取った後の Si 電極(右)	3. 2. 3-26
図 3. 2. 3-27	工学規模シリサイド形成試験終了後の Si 電極断面 SEM-EDX 分析結果	3. 2. 3-27
図 3. 2. 3-28	本研究で提案する柔軟性の高い MA 回収・核変換システムの概念	3. 2. 3-44
図 3. 2. 3-29	従来の U-Pu-Zr 燃料乾式再処理プロセスフローシート	3. 2. 3-44
図 3. 2. 3-30	液体 Ga 陰極を用いた U-Pu-Zr 燃料乾式再処理プロセスフローシート	3. 2. 3-45
図 3. 2. 3-31	溶融 LiCl-KCl 塩/液体 Cd 系におけるアクチニド元素の Ce に対する分離係数	3. 2. 3-45
図 3. 3-1	マテリアルバランス評価で想定した各炉型の設備容量の推移	3. 3-4
図 3. 3-2	高濃度 MA 含有金属燃料装荷・MOX 燃料高速炉の炉心設計結果に基づく 必要再処理設備容量の推移	3. 3-5
図 3. 3-3	高濃度 MA 含有金属燃料装荷・MOX 燃料高速炉の炉心設計結果に基づく Puf および MA 蓄積量の推移	3. 3-6
図 3. 3-4	マテリアルバランス評価で想定した各炉型の設備容量の推移 (2.0GWe/10 年のペースで高速増殖炉を導入する場合)	3. 3-8
図 3. 3-5	高濃度 MA 含有金属燃料を非均質装荷した金属燃料高速炉の炉心設計 結果に基づく必要再処理設備容量の推移 (2.0GWe/10 年のペースで高速増殖炉を導入する場合)	3. 3-9
図 3. 3-6	高濃度 MA 含有金属燃料を非均質装荷した金属燃料高速炉の炉心設計 結果に基づく Puf および MA 蓄積量の推移 (2.0GWe/10 年のペースで高速増殖炉を導入する場合)	3. 3-9
図 3. 3-7	マテリアルバランス評価で想定した各炉型の設備容量の推移 (高速炉の導入ペースを 3.3GWe/10 年に早めたケース)	3. 3-10
図 3. 3-8	高濃度 MA 含有金属燃料を非均質装荷した金属燃料高速炉の炉心設計	

	結果に基づく必要再処理設備容量の推移 （高速炉の導入ペースを3.3GWe/10年に早めたケース）	3.3-10
図 3.3-9	高濃度 MA 含有金属燃料を非均質装荷した金属燃料高速炉の炉心設計 結果に基づく Puf および MA 蓄積量の推移 （高速炉の導入ペースを3.3GWe/10年に早めたケース）	3.3-11
図 3.3-10	マテリアルバランス評価で想定した各炉型の設備容量の推移 （2.0GWe/10年のペースで高速増殖炉を導入する場合）	3.3-12
図 3.3-11	高濃度 MA 含有金属燃料を非均質装荷した金属燃料高速炉の炉心設計 結果に基づく必要再処理設備容量の推移 （2.0GWe/10年のペースで高速増殖炉を導入する場合）	3.3-13
図 3.3-12	高濃度 MA 含有金属燃料を非均質装荷した金属燃料高速炉の炉心設計 結果に基づく Puf および MA 蓄積量の推移 （2.0GWe/10年のペースで高速増殖炉を導入する場合）	3.3-13
図 3.3-13	マテリアルバランス評価で想定した各炉型の設備容量の推移 （3.3GWe/10年のペースで高速増殖炉を導入する場合）	3.3-14
図 3.3-14	高濃度 MA 含有金属燃料を非均質装荷した金属燃料高速炉の炉心設計 結果に基づく必要再処理設備容量の推移 （3.3GWe/10年のペースで高速増殖炉を導入する場合）	3.3-14
図 3.3-15	高濃度 MA 含有金属燃料を非均質装荷した金属燃料高速炉の炉心設計 結果に基づく Puf および MA 蓄積量の推移 （3.3GWe/10年のペースで高速増殖炉を導入する場合）	3.3-15
図 5-1	高速炉金属燃料と乾式再処理技術の導入による柔軟性の高い MA 回収・核変換システムの概念	5-8

略語一覧

ALFUS	: An irradiation behavior analysis code for metallic fast reactor fuels (電中研で開発された金属燃料照射挙動解析コード)
BOC	: Beginning Of Cycle ((炉の運転) サイクル初期)
BOI	: Beginning Of Irradiation ((燃料の) 照射初期)
BWR	: Boiling Water Reactor (沸騰水型原子炉)
CCR	: Coarse Control Rod (粗調整棒)
CDA	: Core Disruptive Accident (炉心損傷事故)
CDF	: Cumulative Damage Fraction (累積損傷和)
C. E.	: Counter Electrode (電気化学測定における対極)
CITATION	: Multi-group neutron diffusion code (オークリッジ国立研究所で開発された多群中性子拡散計算コード)
CV	: Cyclic Voltammetry/Voltammogram (サイクリックボルタンメトリー/ボルタモグラム)
DF	: Decontamination Factor (除染係数)
EDX	: Energy Dispersion X-ray Spectroscopy (エネルギー分散型 X 線分光)
EOC	: End Of Cycle ((炉の運転) サイクル末期)
EOI	: End Of Irradiation ((燃料の) 照射末期)
EPMA	: Electron Probe Micro Analyser (電子線マイクロアナライザ)
FaCT	: Fast Reactor Cycle Technology Development Project (高速増殖炉サイクル実用化研究開発)
FCCI	: Fuel-Cladding Chemical Interaction (燃料-被覆管化学的相互作用)
FCMI	: Fuel-Cladding Mechanical Interaction (燃料-被覆管機械的相互作用)
FP	: Fission Product (核分裂生成物)
GB	: Glove Box (グローブボックス)
G. C.	: Glassy Carbon (グラッシーカーボン)
HM	: Heavy Metal (重金属≡アクチノイド元素)
HSF	: Hot Spot Factor (工学的安全係数)
ICP-AES	: Inductively Coupled Plasma-Atomic Emission Spectrometry (誘導結合プラズマ発光分光)
JAEA	: Japan Atomic Energy Agency (日本原子力研究開発機構)
JENDL	: Japanese Evaluated Nuclear Data Library (日本の汎用標準核データライブラリー)
LWR	: Light Water Reactor (軽水炉)
MA	: Minor Actinide (マイナーアクチニド)
MARBLE	: Multi-purpose Advanced Reactor Physics Analysis System Based on Language of Engineering (日本原子力研究開発機構で整備された汎用炉心解析システム)
MOC	: Middle Of Cycle ((炉の運転) サイクル中期)
MODIF	: 核燃料サイクル開発機構で開発された 3 次元拡散燃焼設計コード

MOI	: Middle Of Irradiation ((燃料の) 照射中期)
MOX	: Mixed Oxide (混合酸化物 (燃料))
ODS	: Oxide dispersion-strengthened (酸化物分散強化合金)
ORIGEN	: ORNL Isotope Generation and Depletion Code (オークリッジ国立研究所で開発された核種生成崩壊計算コード)
PNC	: Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation (動力炉・核燃料開発事業団)
Puf	: 核分裂性 Pu
PUREX	: Plutonium Uranium Redox EXtraction
PWR	: Pressurized Water Reactor (加圧水型原子炉)
RE	: Rear Earth (希土類)
SASS	: Self Actuated Shutdown System (自己作動型炉停止機構)
SEM	: Scanning Electron Microscope (走査型電子顕微鏡)
SLAROM-UF	: 日本原子力研究所、核燃料サイクル開発機構で開発された高速炉用超微細群格子 計算コード
TRU	: Transuranic Element (超ウラン元素)
ULOF	: Unprotected Loss Of Flow (流量喪失事故時スクラム失敗事象)
UOX	: Uranium Oxide (ウラン酸化物燃料)
W. E.	: Working Electrode (電気化学測定における作用極)
XRD	: X - ray diffraction (X 線回折)

概略

軽水炉使用済燃料から Pu とマイナーアクチニド (MA : Np、Am および Cm) を回収して高速炉で核変換させる方法が、国内外で検討されている。本研究は、高速炉燃料サイクルに金属燃料-乾式再処理技術を取り込むことにより、幅広い高速炉導入シナリオや Pu 需給シナリオに柔軟に対応しつつ、廃棄物有害度低減効果を最大化することが可能な MA 回収・核変換システムを構築することを目的としている。この新しい MA 回収・核変換システムの実現性を見通すためには、日米を中心に従来蓄積されてきた金属燃料-乾式再処理に関わる技術基盤に加えて、以下の技術的課題を解決する必要がある。

- ・核変換効率と安全性の観点からの MA 含有金属燃料設計および炉心装荷方法の最適化 (均質／非均質)
- ・MA 含有燃料の多重リサイクルにより効果的に MA 量を低減することを目的とした、核分裂生成物 (FP)、特に希土類 FP の同伴量低減、および超ウラン元素 (TRU : Pu、Np、Am および Cm) の回収率向上

これらの課題を解決するために、下記の研究開発を実施した。

(1) 金属燃料および炉心開発

- (1-1) 高濃度 MA 含有金属燃料の設計と特性評価
- (1-2) MA 含有金属燃料装荷方法の最適化検討

(2) 乾式再処理技術開発

- (2-1) 液体 Ga 電極を用いたアクチニド／希土類分離回収技術開発
- (2-2) 廃棄物の減容化技術開発
- (2-3) 乾式再処理機器概念の構築とプロセス設計

(3) MA 回収・核変換シナリオと Pu/MA 収支の検討

(4) 研究推進

1. はじめに

現在我が国に約 17,000 トンが貯蔵されている使用済燃料は、徐々に進む原子力発電所の再稼働に伴ってさらに蓄積していく見込みである。使用済燃料あるいはその再処理で発生する高レベル廃棄物中には数万年以上の半減期を持つ長寿命核種を含む大量の放射性物質が存在していることから、その処分方策を検討する上で、環境・人体へのリスク（潜在的毒性、被ばく評価量）や処分負担（処分場面積、コスト）を可能な限り低減する方法を今後も引き続き開発し取り込むことが重要である。2014年に閣議決定されたエネルギー基本計画では、「使用済燃料の対策の柱の一つとなり得る」技術として、「将来の幅広い選択肢を確保するため、再処理で発生する高レベル廃棄物の深地層処分の着実な実施および使用済燃料直接処分の検討に加えて、放射性廃棄物の減容化・有害度低減などの技術開発を進める」としている。

放射性廃棄物の長期的な有害度を低減させるために、軽水炉使用済燃料から Pu とマイナーアクチノイド（MA：Np、Am および Cm）を回収して高速炉で燃焼させる方法が、我が国をはじめ、仏、米国、韓国などで検討されており、これを実現することにより高レベル廃棄物の潜在的毒性を数百年後に天然ウラン（U）と同レベルに低下させることが可能と評価されている。高速炉燃料サイクルについては、仏では酸化物燃料を湿式再処理してリサイクルする概念が、米国と韓国では金属燃料を乾式再処理でリサイクルする概念が、それぞれ検討されている。我が国における高速増殖炉サイクル実用化研究開発（FaCT）プロジェクトでは、混合酸化物（MOX）燃料 Na 冷却高速増殖炉、先進湿式法再処理および簡素化ペレット法燃料製造からなる組み合わせを「主概念」、金属燃料—乾式再処理からなる組み合わせを、将来の社会環境によっては主概念よりもその時点の社会に柔軟に適合する可能性がある「副概念」として位置付け、研究開発が進められている。

MA の回収と核変換を効率的に行う観点から見ると、金属燃料—乾式再処理の概念は、酸化物燃料—湿式再処理の概念に対して以下のような技術的な優位性を持っている。

- ・金属燃料炉心の装荷重金属密度および中性子束が高いため MA 核変換効率が高い[1]。
- ・いずれの MA 核変換システムにおいても、高い核変換率を達成するためには炉内装荷・MA 回収・リサイクル燃料製造を繰り返す必要がある。有機溶媒を用いない乾式再処理では熱や放射線による溶媒劣化がなく、燃料の炉外サイクル時間短縮と二次廃棄物低減の観点から、MA 含有燃料の多重リサイクルに適する。
- ・乾式再処理はバッチ式プロセスであるため、小規模でも経済性に優れる可能性がある。
- ・乾式再処理では、特に工程を付加しなくても MA が Pu と共に一括回収される。
- ・遠隔操作性に優れた射出鑄造技術[2]により、比較的容易に MA 含有燃料が製造できる。

一方、軽水炉および高速炉燃料サイクルにおける MA の発生箇所としては、

- (a) 軽水炉燃料湿式再処理で発生する高レベル廃液
- (b) 使用済プルサーマル燃料
- (c) 高速炉の使用済酸化物燃料
- (d) 高速炉の使用済金属燃料

が想定される。乾式再処理技術による MA 回収に関しては、これらのうち、(a)については実廃液を用いた試験[3]により、(b)については商用炉で照射された MOX 燃料を用いた試験[4]により、(d)については照射済 MA 含有金属燃料を用いた試験[5]により、既に成立性が実証されている。

今後、乾式再処理技術による(c)高速炉酸化物燃料からの MA 回収技術が実証され、さらに、燃料製造や炉心特性の観点から MA 添加率の上限とされている約 5wt%[1]を上回る高濃度 MA 含有金属燃料を炉心の一部に装荷した高速炉などの運用方法の見通しとその多重リサイクルによる MA 核変換特性が明らかにされれば、図 1-1 に示すように、様々な高速炉導入シナリオや Pu 需給シナリオに柔軟に対応できる MA 回収・核変換システムを構築できる。

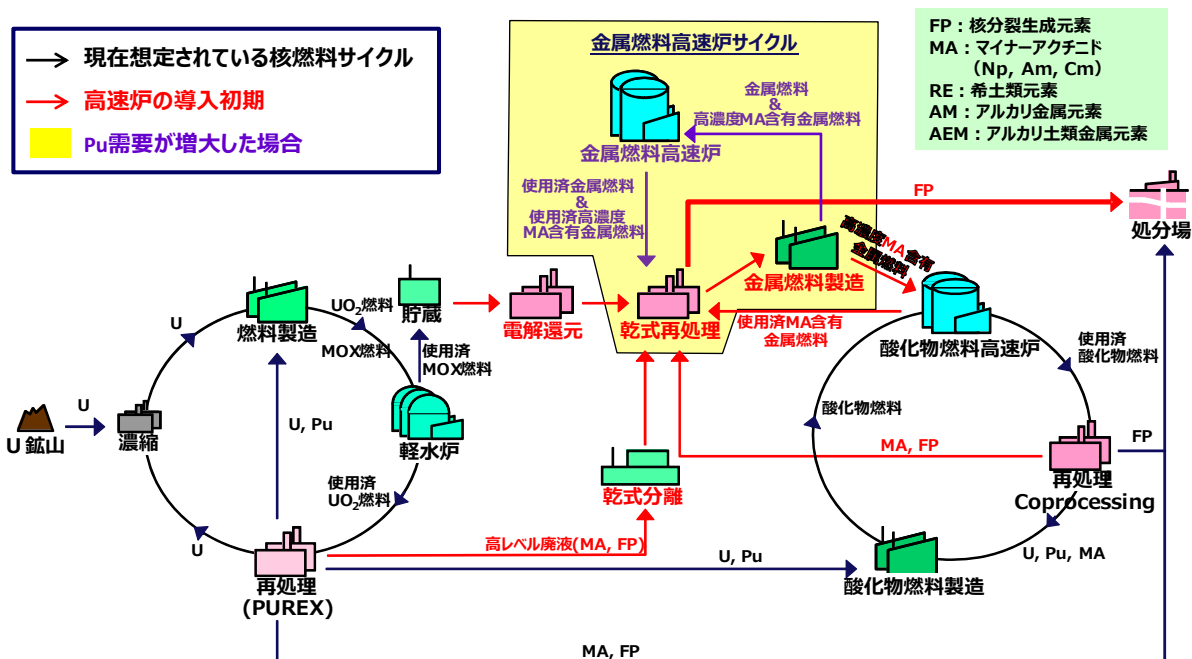
これらの条件を満たすことを本研究の目的とし、表 1-1 に示す通り、分野ごとの技術的課題にブレイクダウンした上で、それぞれに対応する実施項目を設定した。

【1の参考文献】

- [1] T. Yokoo, A. Sasahara, T. Inoue, J. Kang and A. Suzuki, “Core performance of fast reactors for actinide recycling using metal, nitride and oxide fuels”, Nucl. Technol., 116, 173-179 (1996).
- [2] C. E. Stevenson, “The EBR-II Fuel Cycle Story, Chapter 7: Production of Fuel Pins”, ANS, (1987).
- [3] K. Uozumi, M. Iizuka, M. Kurata, T. Inoue, T. Koyama, M. Ougier, R. Malmbeck and J.-P. Glatz, “Recovery of transuranium elements from real high-level liquid waste by pyropartitioning process”, J. Nucl. Sci. Technol., 48, 303-314 (2011).
- [4] T. Kato, T. Murakami, K. Uozumi, T. Koyama, M. Ougier, A. Rodrigues, S. V. Winckel, R. Malmbeck and J.-P. Glatz, “Actinides Recovery from Irradiated MOX fuel by Pyrochemical Reprocessing”, Proc. GLOBAL 2011, Makuhari, Japan, Dec. 11-16, 2011.
- [5] T. Murakami, A. Rodrigues, M. Ougier, M. Iizuka, T. Tsukada and J.-P. Glatz, “Actinides recovery from irradiated metallic fuel in LiCl-KCl melts”, J. Nucl. Mater., 466, 502-508 (2015).

表 1-1 本研究の目的、解決のための課題と達成目標、本研究における実施項目の関係

本提案での目的	技術的課題、達成目標	実施項目
MA添加金属燃料を一部／全部に装荷した高速炉炉心の運用方法見通しを得る	(1) 金属燃料および炉心開発	
	高濃度MA含有金属燃料の成立条件（製造時、運転時）の明確化	(1-1) 高濃度MA含有金属燃料の設計と特性評価
	MA含有金属燃料装荷炉心の安全性とMA核変換性能の両立	(1-2) MA含有金属燃料装荷方法の最適化検討
種々の出発物質からの乾式法によるMA回収技術を実証する	(2) 乾式再処理技術開発	
	燃料製造に適した組成のMA回収	(2-1) 液体Ga電極を用いたアクチノイド／希土類分離回収技術開発
	燃料サイクルで発生する高レベル廃棄物体積の最小化	(2-2) 廃棄物の減容化技術開発
	再処理プロセス実証に向けた設計データ取得	(2-3) 乾式再処理機器概念の構築とプロセス設計
多重リサイクルによるMA核変換特性を明らかにする	(3) MA回収・核変換シナリオと Pu/MA収支の検討	
	MA回収・核変換システム全体の整合と放射毒性低減効果の提示	MA回収・核変換シナリオとPu/MA収支の検討



軽水炉MOXや高速炉酸化物燃料に対しても、乾式によるMA回収技術を実証し、MA含有金属燃料を一部あるいは全部に装荷した高速炉炉心の運用方法の見通しと多重リサイクルによるMA核変換特性を明らかにすれば、様々な高速炉導入シナリオやPu需給シナリオに柔軟に対応できるMA回収・核変換システムを構築可能

図 1-1 高速炉金属燃料と乾式再処理技術の導入による柔軟性の高いMA回収・核変換システムの概念

2. 業務計画

2.1 全体計画

本研究の全体業務計画を表 2.1-1 に、実施体制を図 2.1-1 にそれぞれ示す。

以下に各研究項目における業務計画を示す（項目名右のカッコ内は実施担当機関）。

(1) 金属燃料および炉心開発

(1-1) 高濃度 MA 含有金属燃料の設計と特性評価（電力中央研究所）

国内外で実施されている MA 含有 U-Pu-Zr 金属燃料合金の物性試験結果を取りまとめ、均一性を確保可能な燃料組成範囲を明らかにする。また、研究項目(1-2)①で評価する燃料合金の出力分布評価結果を基に、燃料合金の温度分布や照射スエリング率などの照射挙動を金属燃料照射挙動解析コードによって機構論的に解析する。

(1-2) MA 含有金属燃料装荷炉心の最適化検討

① MA 含有金属燃料装荷・酸化物燃料炉心の設計（日本原子力研究開発機構）

酸化物燃料高速炉に研究項目(1-1)で設計した高濃度 MA 含有金属燃料を非均質装荷した炉心につき、サーベイ計算により最適な装荷方法を検討し、従来からの酸化物燃料炉心における均質装荷方法との得失を明らかにする。また、代表的なケースを選定し、水素化ジルコニウムによる MA 核変換量の向上、乾式再処理で回収される Pu/MA 組成および希土類含有率をパラメータとした炉心特性および MA 核変換特性への影響評価を実施し、(2) 乾式再処理技術開発における除染係数目標の検討、(3) MA 回収・核変換シナリオと Pu/MA 収支の検討に適用する。

② MA 核変換用金属燃料炉心の設計（日本原子力研究開発機構）

炉心サイズ・形状の調整により冷却材ボイド反応度を低減した安全性と MA 核変換性能の両立する MA 核変換金属燃料炉心（均質装荷）を設計する。この炉心を対象として最適な MA 装荷方法を検討し、金属燃料炉心における MA 核変換に有利な炉心概念および装荷方法を明らかにする。①同様、水素化ジルコニウム減速材による MA 核変換量の最適化、回収 Pu/MA 組成および希土類除染係数をパラメータとした炉心特性および MA 核変換特性への影響評価を実施し、(2)および(3)の検討に適用する。

③ MA 含有金属燃料装荷炉心の性能向上策の適用性検討（日本原子力研究開発機構）

②の検討を踏まえ代表炉心を選定し、冷却材ボイド反応度低減に有効な炭化ケイ素構造材等を用いた炉心を設計し、革新技術による炉心特性および MA 核変換量の改善効果を定量評価する。①同様、水素化ジルコニウム減速材による MA 核変換量の最適化、回収 Pu/MA 組成および希土類除染係数をパラメータとした炉心特性および MA 核変換特性への影響評価を実施し、(2)および(3)の検討に適用する。

(2) 乾式再処理技術開発

(2-1) 液体 Ga 電極を用いたアクチニド／希土類分離回収技術開発

① U および Pu 析出挙動（日本原子力研究開発機構）

U を含む熔融塩化物中において液体 Ga 電極を用いた電解試験を行い、得られる合金試料の SEM/EDX 分析結果などから、固相形成を伴う液体 Ga への U 回収挙動を明らかにする。Pu

についても同様の試験・検討を実施する。さらに希土類を加えた熔融塩化物中における電解試験を実施し、アクチニド回収挙動に与える共存希土類 FP の影響、およびアクチニド／希土類分離係数を明らかにする。

② MOX を対象とした小規模連続プロセス試験（日本原子力研究開発機構）

少量の模擬使用済 MOX 燃料(希土類含有 MOX)を出発物質として、電解還元による金属への転換試験、液体 Ga 電極を用いた電解精製試験を連続して実施し、得られる試料の走査型電子顕微鏡 (SEM) /エネルギー分散型 X 線分光 (EDX) 分析結果などから、マスバランスや共存希土類 FP がプロセス全体に与える影響を明らかにする。

③ マイナーアクチニド (MA) 析出挙動把握（電力中央研究所）

アクチニド(U, Pu, Np, Am, Cm)および FP(希土類、アルカリ、アルカリ土類)を含む熔融塩化物中で液体 Ga 電極を用いた電解試験を実施し、得られる合金試料の SEM/EDX 分析結果などから、Np/希土類および Cm/希土類の分離係数を取得する。

(2-2) 廃棄物の減容化技術開発

① 液体 Ga 電極への FP 元素析出挙動把握（電力中央研究所）

ポテンショスタットを導入し、Ce や Dy などの希土類を含む熔融塩中において液体 Ga 電極を用いた電解試験を行い、得られる合金試料の SEM/EDX 分析結果などから、液体 Ga への希土類高濃度回収挙動を明らかにする。また、熔融 LiCl-KCl-CsCl-SrCl₂-BaCl₂ 中で同様の試験を実施し、液体 Ga 電極を用いたアルカリ土類／アルカリ分配挙動を明らかにする。

② 陽極におけるヨウ素、臭素発生挙動把握と回収方法検討（京都大学）

電気化学測定システムを導入し、熔融 LiCl-KCl-LiI (LiBr) 中で不活性電極を用いた電気化学測定を行うことにより、ヨウ素(臭素)の電気化学挙動(酸化還元電位、拡散係数等)やガス発生挙動を明らかにする。発生ガス中のヨウ素を核変換ターゲットに適した化合物とするためのプロセスを提案し成立性を評価する。

③ 液体 Ga 電極／固体 Si 電極に回収した FP の処理技術開発（電力中央研究所）

回収 FP 酸化試験装置を設計・製作し、FP(Ce 等)を析出回収した液体 Ga 電極あるいは固体 Si 中の酸化における希土類酸化物形成挙動を調べ、廃棄体化プロセスを提案し、成立性を評価する。

(2-3) 乾式処理機器概念の構築とプロセス設計

① 乾式再処理機器概念の構築（電力中央研究所）

各種セラミックや金属と液体 Ga との反応性を観察し、坩堝に適する材料を検討する。小規模の液体 Ga 電極を用いて、様々な液体 Ga 電極攪拌・電解条件において電解試験を実施することにより、アクチニド析出・溶出に最適な条件を明らかにする。さらに、これらの成果を反映した工学規模電解槽を製作して電解試験を実施することにより、液体 Ga 電極のハンドリングに必要な機器設計データ、並びにプロセス処理速度および物質収支評価に必要なデータを取得する。固体 Si 電極に関しても機器設計に必要なデータを取得する。

② 乾式再処理プロセス設計（電力中央研究所）

研究項目(2-1)、(2-2)および(2-3)①で得られる知見を反映し、液体 Ga 電極を取り入れた乾式再処理プロセスフロー、必要機器イメージおよびマスバランスを作成する。また、研究項目(3)のシナリオ検討において必要となる、処理対象物の種類、量、元素組成など

の条件を変化させた場合の乾式再処理マスバランスを評価する。

(3) MA 回収・核変換シナリオと Pu/MA 収支の検討(電力中央研究所)

研究項目(1-2)で得られた MA 含有金属燃料の非均質装荷炉心による核変換量や研究項目(2-3)の乾式再処理プロセス設計による評価結果を反映し、サイクル全体のマテリアルバランス解析を行う。その結果から、乾式再処理や金属燃料製造施設の必要導入規模を定量化すると共に、高速炉に装荷される MA 装荷量を評価し、研究項目(1-2)および(2-3)を繰り返すことで、システム全体の整合を図る。これらの結果に基づき、廃棄物に含まれる長期的な放射毒性の低減効果を示す。

(4) 研究推進 (電力中央研究所)

研究代表者の下で各研究項目間の連絡を密にして研究を進める。

表 2. 1-1 本研究の全体業務計画

項目	年度	平成28年度	平成29年度	平成30年度	令和元年度	
(1) 金属燃料及び炉心開発	(1-1) 高濃度MA含有金属燃料の設計と特性評価 (電力中央研究所)	公開データの調査	MA含有率の組成評価	高濃度MA含有燃料の照射挙動評価		
	(1-2) MA含有金属燃料装荷炉心の最適化検討 (原子力機構)					
	① MA含有金属燃料装荷・酸化燃料炉心の設計	計算環境・設計手法整備、設計条件整理、予備解析	炉心設計・特性評価			
	② MA核変換用金属燃料炉心の設計			炉心設計・特性評価		
	③ MA含有金属燃料装荷炉心の性能向上策の適用性検討				炉心設計・特性評価	
	(2) 乾式再処理技術開発	(2-1) 液体Ga電極を用いたアクチニド/希土類分離回収技術開発				
		① U及びPu析出挙動 (原子力機構)	U-Ga固相析出挙動の把握	Pu-Ga固相析出挙動の把握	U, Pu固相/希土類析出分離回収	
		② MOXを対象とした小規模連続プロセス試験 (原子力機構)				小規模連続プロセス試験
		③ マイナーアクチニド析出挙動把握 (電力中央研究所)		MA/希土類分離回収試験		
		(2-2) 廃棄物の減容化技術開発				
① 液体Ga電極へのFP元素析出挙動把握 (電力中央研究所)		希土類固相析出挙動の把握		アルカリ土類析出挙動の把握		
② 陽極におけるヨウ素、臭素発生挙動把握と回収方法検討 (京都大学)		ヨウ素、臭素発生挙動の把握		ヨウ素回収方法検討		
③-1 液体Ga電極に回収したFPの処理技術開発 (電力中央研究所)				回収FP酸化試験装置設計、製作		
③-2 固体Si電極に回収したFPの処理技術開発 (電力中央研究所)					回収FP酸化・廃棄体化試験	
(2-3) 乾式再処理機器概念の構築とプロセス設計 (電力中央研究所)						
① 乾式再処理機器概念の構築	増場材料の検討	小規模電解試験	工学規模装置設計・製作	工学規模電解試験		
② 乾式再処理プロセス設計			乾式再処理プロセス設計・評価			
(3) MA回収・核変換シナリオとPu/MA収支の検討 (電力中央研究所)	燃焼条件によるMA組成評価		非均質装荷によるMA変換特性や乾式プロセス設計を踏まえたマテリアルバランス評価及び廃棄物の毒性低減効果の定量化			
(4) 研究推進	研究推進/報告書作成	研究推進/報告書作成	研究推進/報告書作成	研究推進/報告書作成		
				まとめ・評価		

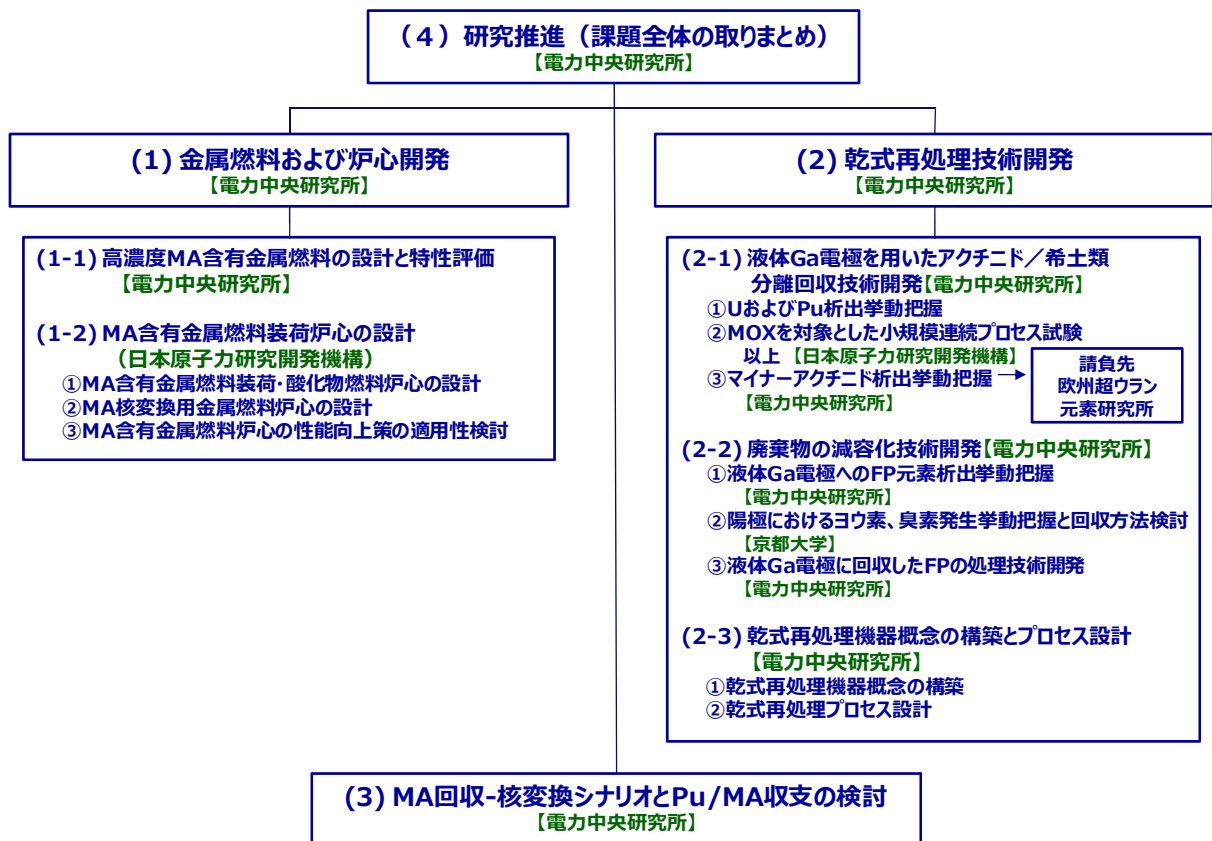


図 2. 1-1 本研究の実施体制

2.2 令和元年度の成果の目標および業務の実施方法

令和元年度における本研究の目標と業務計画および実施方法の概要は以下の通りである（項目名右のカッコ内は実施担当機関。）。

(1) 金属燃料および炉心開発

(1-1) 高濃度 MA 含有金属燃料の設計と特性評価（電力中央研究所）

前年度に実施した炉心設計結果を踏まえた MA 含有金属燃料挙動解析を実施し、照射健全性を明らかにする。また、下記(1-2)にて実施する炉心設計を反映した燃料挙動評価（SiC 被覆管を除く）を実施する。

(1-2) MA 含有金属燃料装荷炉心の最適化検討

① MA 含有金属燃料装荷炉心の性能向上策の適用性検討

（日本原子力研究開発機構）

平成 30 年度に実施した「MA 核変換用金属燃料炉心の設計」の検討を踏まえ代表炉心を選定し、冷却材ボイド反応度低減に有効な炭化ケイ素構造材等を用いた炉心を設計し、革新技术による炉心特性および MA 核変換量の改善効果を定量評価する。水素化ジルコニウム減速材による MA 核変換量の最適化、回収 Pu/MA 組成および希土類除染係数をパラメータとした炉心特性および MA 核変換特性への影響評価を実施し、(2)および(3)の検討に適用する。

(2) 乾式再処理技術開発

(2-1) 液体 Ga 電極を用いたアクチニド／希土類分離回収技術開発

① MOX を対象とした小規模連続プロセス試験（日本原子力研究開発機構）

出発物質が酸化物燃料である場合にも、液体 Ga 電極を用いた乾式再処理プロセスの採用により MA 回収・核変換シナリオ成立に必要な性能を持つことを示すため、少量の模擬使用済 MOX 燃料(希土類含有 MOX)を出発物質として、電解還元による金属への転換試験、液体 Ga 電極を用いた電解精製試験を連続して実施し、得られる試料の SEM/EDX 分析結果などから、マスバランスや共存希土類 FP がプロセス全体に与える影響を明らかにする。

(2-2) 廃棄物の減容化技術開発

① 陽極におけるヨウ素、臭素発生挙動把握と回収方法検討（京都大学）

前年度に陽極挙動を明らかにした電極材料を用いて、熔融 LiCl-KCl-LiBr-LiI 中において電解によるヨウ素回収試験を行う。回収したヨウ素の定量分析により電流効率を明らかにし、核変換ターゲット材としての利用を目指した回収プロセス提案および成立性評価を行う。

② 固体 Si 電極に回収した FP の処理技術開発（電力中央研究所）

Si と模擬希土類 FP 元素からなる合金を高温下で酸化させ、ガラス材料となる各種酸化物を添加することにより、合金をガラスに転換する試験を行い、希土類 FP 元素廃棄体化への適用性を評価する。

(2-3) 乾式処理機器概念の構築とプロセス設計

① 乾式再処理機器概念の構築（電力中央研究所）

Ga 電極工学規模電解試験を実施し、物質収支評価に必要なデータを取得する。また、溶融塩中から希土類を固体 Si 電極に回収する試験を実施し、プロセス設計に必要な工学的データを取得する。

② 乾式再処理プロセス構築（電力中央研究所）

研究項目(2-1)、(2-2)、(2-3)①で得られる知見を取り入れて乾式再処理プロセスフローを更新し、希土類 FP 元素処理プロセスの提案と成立性評価を行うと共に、研究項目(3)で設定するサイクルシナリオに基づくマスバランス計算結果を提示する。

(3) MA 回収・核変換シナリオと Pu/MA 収支の検討（電力中央研究所）

設計する MA 核変換用金属燃料炉心のサイクル諸量を評価し、シナリオ検討に反映する。様々なリサイクルシナリオを考慮したマテリアルバランスを評価し、金属燃料・乾式リサイクルプロセスの導入による柔軟性の高いシナリオの成立性と長期的な放射毒性の低減効果を示す。

(4) 研究推進（電力中央研究所）

研究代表者の下で各研究項目間の連絡を密にして研究を進める。

3. 平成 28 年度-令和元年度の実施内容および成果

3.1 金属燃料および炉心開発

3.1.1 高濃度 MA 含有金属燃料の設計と特性評価【平成 28 年度-令和元年度】

(1) 背景と目的

数万年から数十万年の長期に及ぶ放射性廃棄物による公衆被ばくのリスクを低減しながら、廃棄物の減容や発熱量の低減、さらに核拡散抵抗性を向上させるため、使用済燃料から U や Pu に加え、Np や Am、Cm といった MA 元素も回収して新たな燃料として再利用を図る技術[1]が注目されている。

「金属燃料サイクル技術」は、MA を効率的にリサイクルし、燃焼させる技術として有利な特性を有している。例えば U-Pu-Zr 合金からなる金属燃料は、重金属密度が高く、Pu 富化度を低減できるため、炉内の中性子束が高くなる。また、水素や酸素といった中性子を減速させる軽核が含まれないため、高エネルギー中性子の割合がより多く（＝スペクトルが硬く）なり、MA の高速核分裂反応の増加や高次 Pu などの親物質による中性子捕獲反応の低減によって、無駄なく MA 核変換が実現できる[2]。さらに金属燃料の再処理に適合する乾式再処理法では、Pu の回収過程で MA も同時に回収される。また、溶媒に塩化物溶融塩を用いることから、MA からの高線量放射線による劣化がなく、二次廃棄物の発生量を低減できる。さらに、金属燃料スラグの製造法として開発されている射出鑄造技術は動作原理が単純で遠隔操作性に優れており、高線量かつ高発熱の MA 含有燃料であっても大量生産が比較的容易に実現できると期待される。

これらに加えて、軽水炉使用済燃料の湿式再処理によって発生する高レベル廃液から MA を回収する乾式分離技術も実験を通じて技術的成立の見通しが得られている点も MA 核変換における金属燃料サイクル技術の利点である。

将来、金属燃料高速炉が本格導入され、U、Pu と共に MA も高速炉サイクルで多重リサイクルされる場合には、平衡組成中の MA 含有率は 1wt%にも満たないと評価されている。さらに、軽水炉使用済燃料から、Pu と MA を回収する場合には、新燃料の Pu 富化度に依存して 1.5-2.0wt%程度[3]の低濃度 MA 燃料がリサイクルされる。なお、炉心安全性の観点から金属燃料炉心に均質装荷できる MA 添加率の上限は概ね～5wt%[4] と評価されている。この上限を大幅に上回る高濃度 MA 含有金属燃料を炉心の一部に非均質装荷した炉心の安全特性や、その核変換性能が明らかにされれば、従来にない新たな MA リサイクル手法として、将来の不確実性に対する柔軟な対応策の 1 つに位置付けられる可能性がある。

以上に基づき、これまでに行われた高濃度 MA 含有金属燃料装荷・酸化物燃料炉心および高濃度 MA 含有金属燃料炉心の設計結果[5, 6]に基づき、厳しい照射条件となった複数の代表燃料ピンを対象とする照射挙動解析を行い、燃焼中の燃料健全性を確認することを本節の目的とする。

(2) 平成 28 年度-平成 30 年度の実施内容と成果

従来までに開発対象とされてきた MA 含有燃料における MA 添加率を大幅に上回る高濃度

MA 含有金属燃料および炉心の設計検討を行うため、平成 28 年度には国内外で実施されてきた MA 含有金属燃料の製造および物性試験に関する公開資料を調査し、高速炉用金属燃料として製造可能な MA 含有 U-Pu-Zr 合金の組成範囲について検討を行った[7]。

高濃度の MA を添加した U-Pu-Zr 合金の製造実績は、U-20.0Pu-11.1Zr-6.7Np-4.4Am と U-22.5Pu-12.5Zr-15Np-10Am 合金 (wt%) のみであり、照射試験の実施例は存在しなかった。また、U、Np、Pu、Am(Cm)のアクチニド元素群から任意に組み合わせた 2 元系の混合試験によると、U と Am(Cm)の場合に、相互の混合性が極めて低く、完全に分離してしまうもの、4 価で安定な U や Np と 3 価で安定な Am(Cm)のいずれとも高い混合性を有する Pu が介在することで、十分均質に混合することが分かった。さらに、燃料の均質性の観点から、MA に混入する希土類の混入率は 2wt%以下に抑えることが望ましいと言える。

これらの製造実績と各アクチニド元素の混合性に関する検討の結果、U-Pu-Zr 合金への MA 添加率の上限として、MA 元素によらず Pu 富化度と同程度と暫定した。また、高濃度の MA 添加によって固相線温度と熱伝導率の両方が顕著に低下する予想されることから、Zr 濃度を調整するなど適切な燃料組成を設定し、炉心核・熱設計を行う必要があることが課題として挙げられた[7]。

平成 29 年度には、MA 含有金属燃料と被覆管と共存性などの物性試験に関する調査を行った[8]。その結果、図 3.1.1-1 に示すように MA 含有金属燃料と被覆管材の接触界面の高温溶融相に MA 元素の有意な蓄積は見られず、MA 添加が液相形成温度に及ぼす影響はほとんどないと判断されることから、通常金属燃料と同様に、Pu 濃度が 25at.%以下において、燃料-被覆管境界の温度上限を 650°Cと暫定した。また、これまでに公開されている照射後試験 (AFC シリーズ[8,9]) の調査結果から、高濃度 MA 含有金属燃料では、FP ガスの放出がやや遅れ、FP ガス放出率がやや高い傾向が見られる (図 3.1.1-2 中の AFC-1B、AFC-1D の結果を参照) もの、照射スエリングやガス放出といった照射挙動自体は通常金属燃料と同様の挙動を示すことが確認された[5]。

平成 30 年度には、このような高濃度 MA 含有金属燃料で観察されている照射挙動の特徴を反映するため、図 3.1.1-2 に赤実線で示す挙動を再現するように調整した金属燃料照射挙動解析コード ALFUS[10]を用いて行った[6]、平成 29 年度に実施された MA 含有金属燃料装荷・酸化物燃料炉心の 3 次元核・熱流動設計検討によって、照射温度や燃焼度といった照射条件の厳しい燃料ピンを選定し、高濃度 MA 含有燃料用に調整した ALFUS コードによって照射健全性を評価した。その結果、いずれの条件においても被覆管最大累積損傷和 (CDF) 値は 1.0 を十分に下回ること、および外形変形率が 1.2-1.3%程度と評価されることから、照射期間を通じて・酸化物燃料炉心に非均質装荷された高濃度 MA 含有金属燃料ピンの健全性が確保できる見通しが得られた[6]。

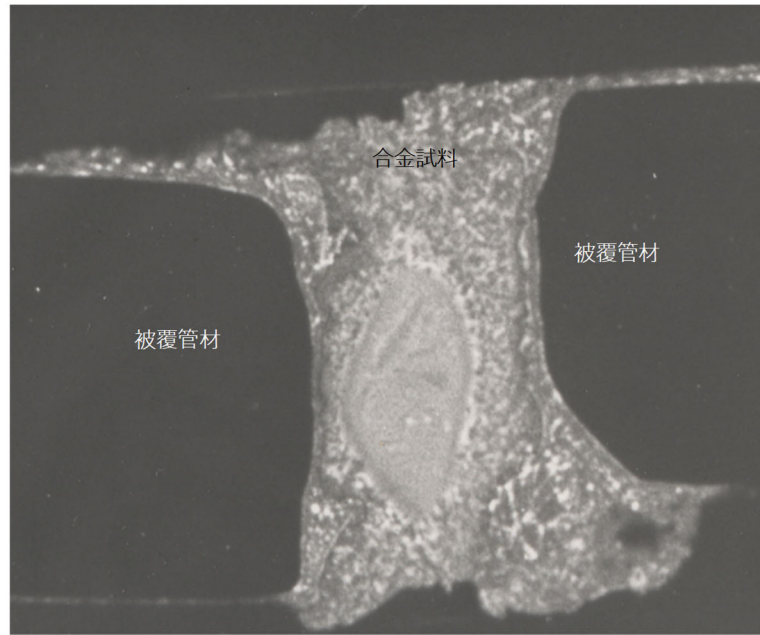


図 3. 1. 1-1 61U-19Pu-3Np-2Am-0.5Ce-1.5Nd-10Zr 合金と被覆管材 (68Fe-15Ni-15Cr-2Ti) との高温溶融相の α オートラジオグラフ (図中で白く見える領域に Am が存在)

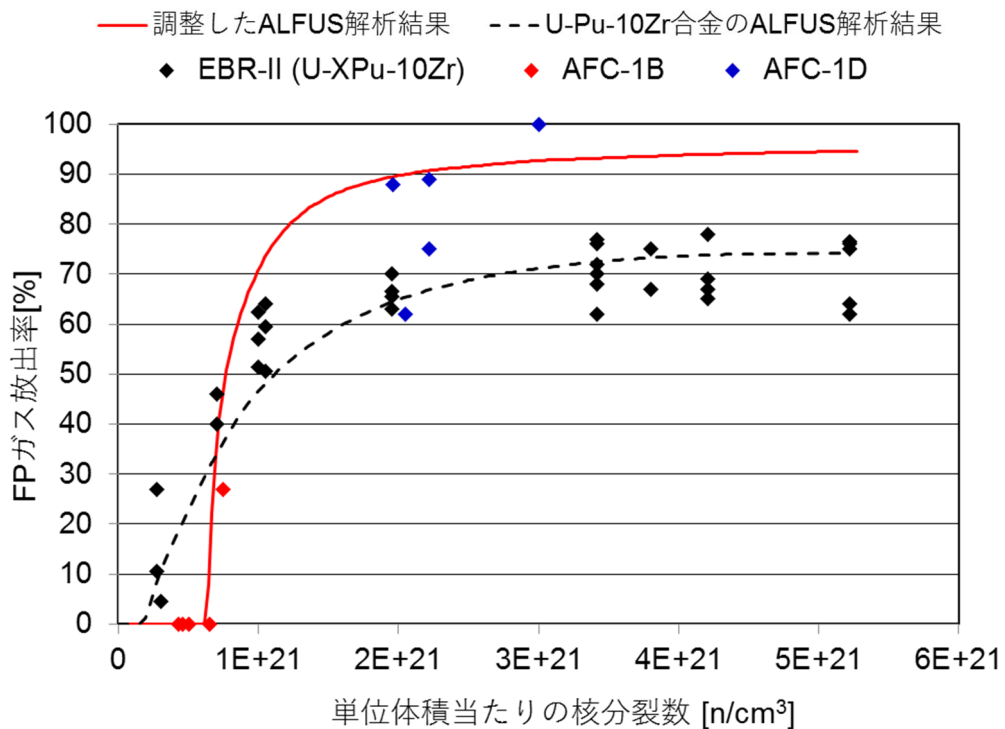


図 3. 1. 1-2 高濃度 MA 含有金属燃料の照射挙動解析に向け調整された AFLUS コードの解析結果の例
(AFC-1B および AFC-1D 試験[8, 9]に基づき調整)

(3) 令和元年度の実施内容と成果

本研究において、平成 30 年度および令和元年度に行った実証炉規模の高濃度 MA 含有金属燃料炉心の設計結果に基づき、燃料照射挙動および照射期間を通じた健全性評価を行った。解析には、平成 30 年度までと同様、あらかじめ高濃度 MA 含有金属燃料用に調整を行った ALFUS コードを用いた。

①解析条件

平成 30 年度および令和元年度の設計炉心の集合体配置図を図 3. 1. 1-3 および図 3. 1. 1-4 にそれぞれ示す。各炉心設計の結果、被覆管温度履歴や取出燃焼度、中性子照射量といった照射条件の観点から、燃料健全性上厳しいと判断された燃料集合体位置を赤丸で示す。平成 30 年度設計炉心では、内側炉心と SiC 反射体に接する外側炉心の第 1 層の集合体（集合体 #175）が、令和元年度設計炉心では、SiC 反射体と 3 方向で接し、内側炉心とも接する外側炉心の第 1 層の集合体（集合体 #133）が照射挙動および健全性評価の対象として選定された。各 MA 含有金属燃料の仕様および出力や燃焼度といった主要な核特性解析結果を表 3. 1. 1-1 にまとめる。

②平成 30 年度設計炉心燃料

平成 30 年度に設計した高濃度 MA 含有金属燃料炉心の燃料ピン外形や被覆管の肉厚は、炉心設計のベースとなった冷却材ボイド反応度の低減を目指した金属燃料実証炉の値に一致させ、8.5mm と太径仕様であり、被覆管肉厚は 0.5mm の設定となっている。本炉心設計では内外炉心燃料集合体で燃料スミヤ密度と Zr 添加率を変えており、外側炉心燃料である集合体#175の燃料スミヤ密度は 75%TD（理論密度）、Zr 添加率は 6wt%である。

燃料スラグ長（=炉心高さ）は 840mm で軸方向上下のブランケット燃料は装荷されていない。また、上部および下部プレナム長は、それぞれ 300mm および 1300mm とした。なお、通常 ALFUS は上部プレナムを想定した温度評価値に基づきプレナムガス圧を計算するが、ここでは、上部プレナムと下部プレナムの温度条件を考慮した各プレナム内圧が一致するように FP ガスが分配されると仮定してプレナムガス圧を評価した。

高濃度 MA 含有燃料では希土類の混入率が高くなることも予想されるが、新たな陰極の開発によって希土類元素の除染係数（DF）が向上することを想定し、0.45wt%と設定されている。核特性解析によって得られた Pu 富化度と MA 添加率は 18.7wt%である。

被覆管材として PNC-ODS 鋼（動力炉・核燃料開発事業団開発された酸化物分散強化合金）を想定した被覆管特性[11, 12]に基づき、照射期間を通じたピーク出力時の被覆管最高温度を通常の金属燃料と同様に 650℃として設計されている。

また、表 3. 1. 1-2 に示すアクチニド組成が仮定されていることから、対象とされる燃料合金の組成は、58.6U-17.5Pu-1.3Np-15.9Am-0.2Cm-6.0Zr-0.45RE（wt%、RE は希土類を表す）となる。しかしながら、ALFUS では MA や希土類の組成を直接入力することはできない。そこで、平成 28 年度に調査した各アクチニドの物性値や燃料と被覆管の反応性[13]を踏まえ、Pu と類似の特徴を有する Np は Pu として扱い、Am や Cm は U と Pu で代替させることとした。また、希土類は非アクチニドの Zr に含めることとし、70.81U-

22.74Pu-6.45Zrとして照射挙動を評価する。また燃料中に占めるNpの割合は、1.2wt%と比較的低く、それを代替するPu富化度(Pu/HM、HMは重金属)も24.3wt%程度に収まることから、燃料合金の融点や熱伝導率への影響はあまり大きくないと予想される。

③令和元年度設計炉心燃料

平成30年度設計炉心に対し、令和元年度に設計した高濃度MA含有金属燃料炉心では、SiC反射体配置の最適化を図りつつ、燃料ピンが7.6mmに細径化され、燃料スラグ長が95cmに長尺化されている。令和元年度の設計炉心においても、燃料挙動評価の対象に選定された#133集合体は、外側炉心燃料であり、燃料スミヤ密度は75%TD、Zr添加率は6wt%である。希土類の混入率は0.43wt%と設定され、核特性解析によって得られたPu富化度とMA添加率は18.8wt%である。また、平成30年度設計の炉心燃料と同様に、被覆管材にはPNC-ODS鋼[11, 12]期間を通じたピーク出力時の被覆管最高温度を650℃として評価を行った。

平成30年度設計炉心に比べ、照射期間は同一であるが、ピーク出力が高く、取り出し最大燃焼度も200GWd/tを大きく上回ると予測されている。

なお、表3.1.1-2に示すアクチニド組成から、本燃料における実際の組成は59.3U-17.6Pu-1.4Np-16.0Am-0.3Cm-6.0Zr-0.43RE(wt%、REは希土類)であるが、上述のようにALFUSはMAや希土類の組成を直接入力することはできないため、71.51U-23.0Pu-6.43Zrとして照射挙動を評価する。Np代替分を含めたPu富化度(Pu/HM)は24.6wt%程度と25wt%を下回ることから、燃料合金の融点や熱伝導率への影響はあまり大きくないと予想される。

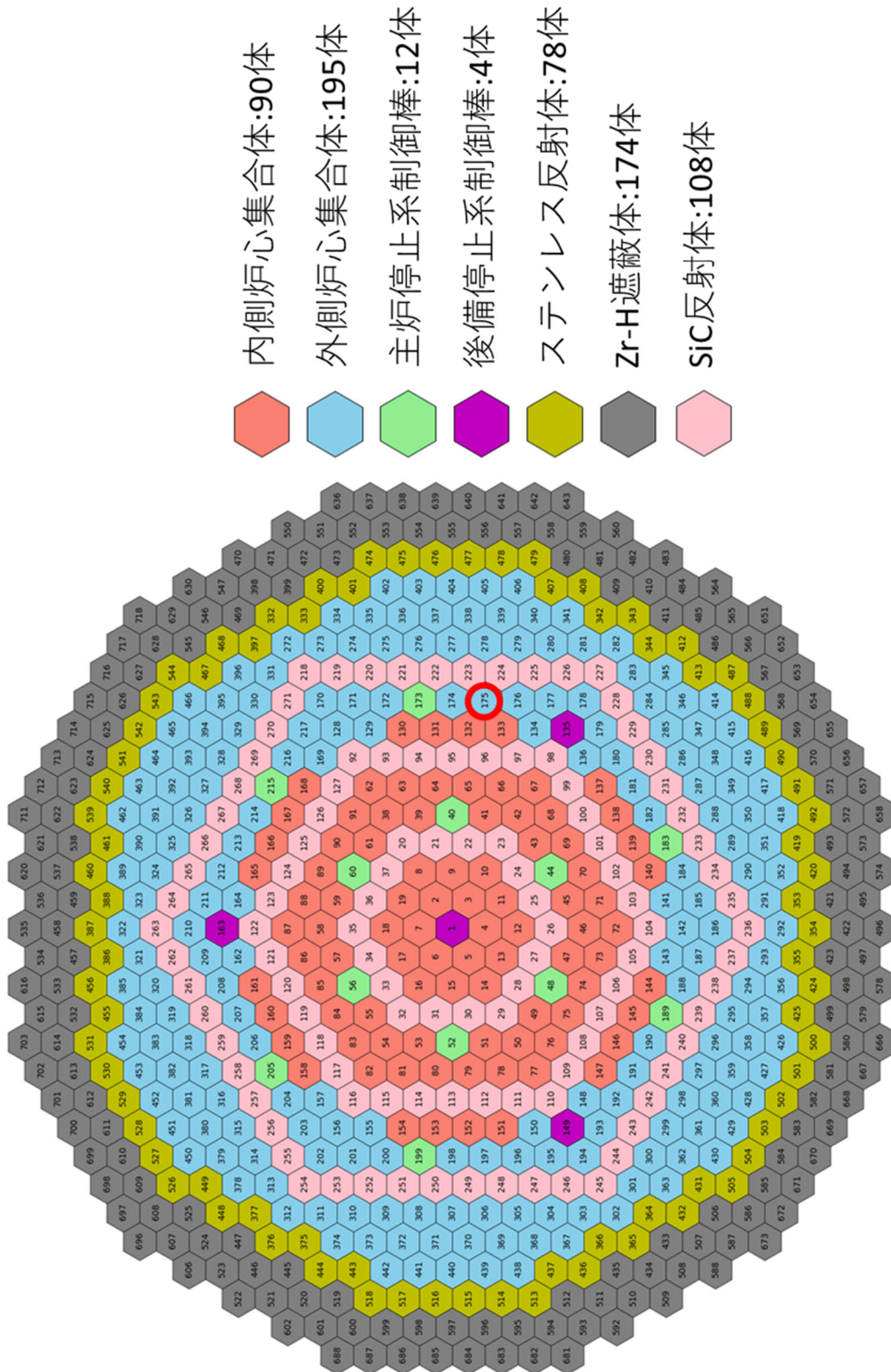


図 3. 1. 1-3 平成 30 年度設計炉心の集合体配置図

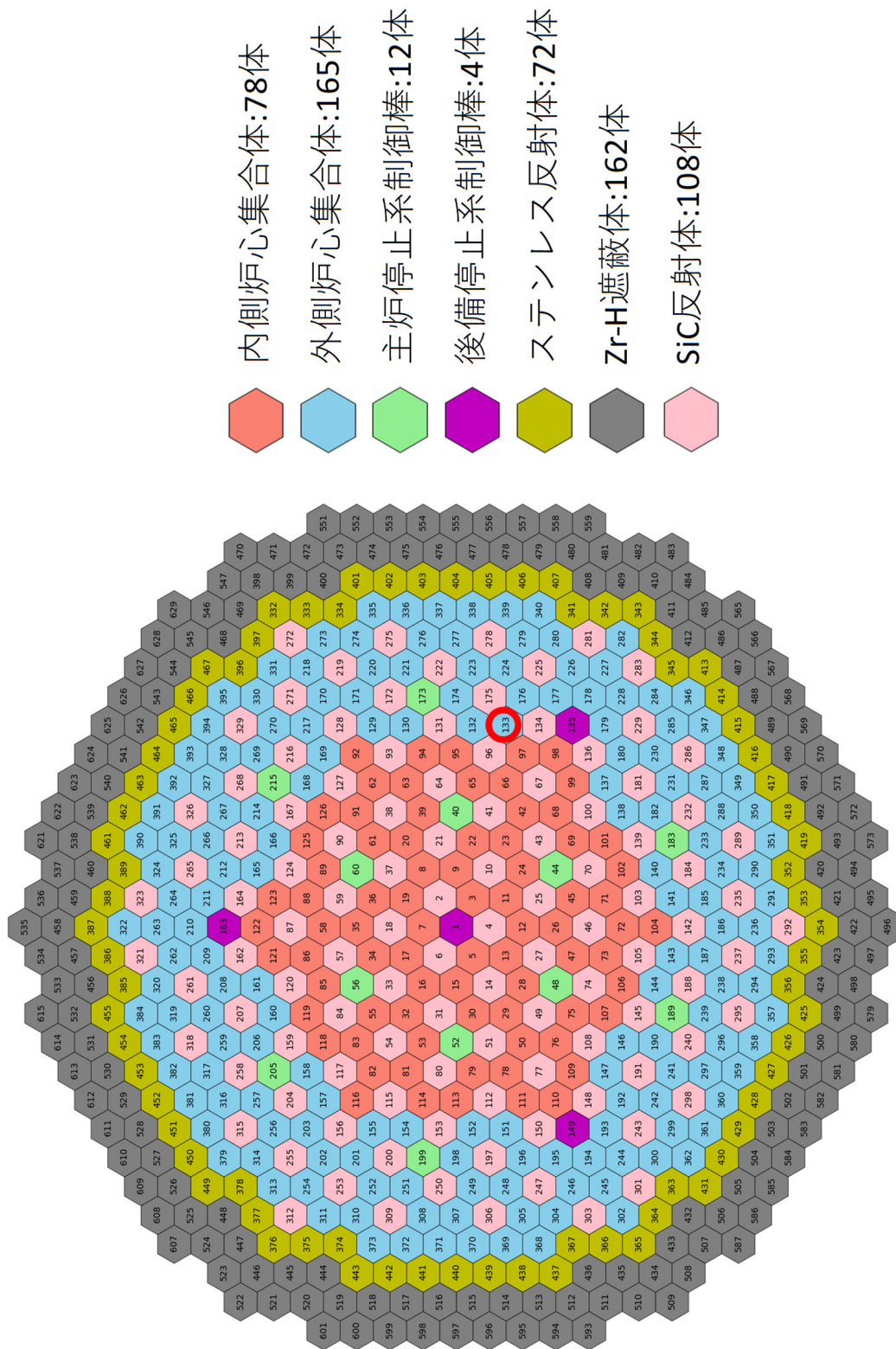


図 3. 1. 1-4 令和元年度設計炉心の集合体配置図

表 3. 1. 1-1 平成 30 年度および令和元年に設計された高濃度 MA 含有金属燃料炉心の
燃料仕様および炉心特性解析結果

		単位	仕様／解析結果	
			平成 30 年度	令和元年度
設定仕様	燃料ピン外形	mm	8.5	7.6
	被覆管肉厚	mm	0.50	0.50
	燃料スラグ径	mm	6.495	5.802
	燃料ピンピッチ	mm	9.5	8.6
	ワイヤ径	mm	1.00	←
	スミヤ密度(内外炉心)	%TD	70/75	←
	燃料スラグ長	mm	840	950
	ブランケット厚(上/下)	mm	0/0	←
	上/下部ガスプレナム長	mm	300/1300	←
	Zr 添加率(内外炉心)	wt%	6/10	←
	希土類混入率	wt%	0.45	0.43
	被覆管材	-	PNC-ODS 鋼	←
	被覆管最高温度	°C	650	650
	冷却材出/入口温度	°C	485/330	485/330
炉心特性 解析結果	Pu 富化度 ¹	wt%	18.7	18.8
	MA 含有率 ²	wt%	18.7	18.8
	最大線出力	W/cm	402	446
	平均燃焼度	GWd/t	181	189
	最大燃焼度	GWd/t	213	230
	照射期間	日	2127	←
	ピークフルエンス	×10 ²³ n/cm ²	4.2	4.6

1 : Pu/HM、2 : MA/HM

表 3. 1. 1-2 装荷燃料のアクチニド組成

元素	組成 [wt%]	
	平成 30 年度設計	令和元年度設計
U	62.6	62.3
Pu	18.7	18.8
Np	1.4	1.4
Am	17.0	17.1
Cm	0.3	0.4

④平成 30 年度設計炉心 #175 集合体燃料

ALFUS 解析の入力とした平成 30 年度設計炉心の#175 集合体燃料ピンの最大線出力および最大中性子束履歴をそれぞれ図 3. 1. 1-5 および図 3. 1. 1-6 に示し、照射初期 (BOI)、中期 (MOI)、末期 (EOI) における出力 (相対値) の軸方向分布を図 3. 1. 1-7 に示す。その結果計算された最高出力時 (第 1 サイクル末期 : 706 日後) および EOI (2018 日後) における被覆管内面 (~燃料スラグ外周) と燃料中心温度の軸方向分布を図 3. 1. 1-8 および図 3. 1. 1-9 に示す。ここで、冷却材入口温度を 330°C とし、被覆管最高温度を設計制限値である 650°C として照射挙動を評価した。

入口温度を 330°C と低温化しているため、最高出力が 402W/cm と比較的高い設定にも拘らず、最高出力時の燃料中心温度は 740°C 以下に抑えられている。また、EOI では最大線出力が 345W/cm に下がるため、被覆管最高温度はおよそ 617°C、燃料中心最高温度がおよそ 706°C まで低下していることが分かる。

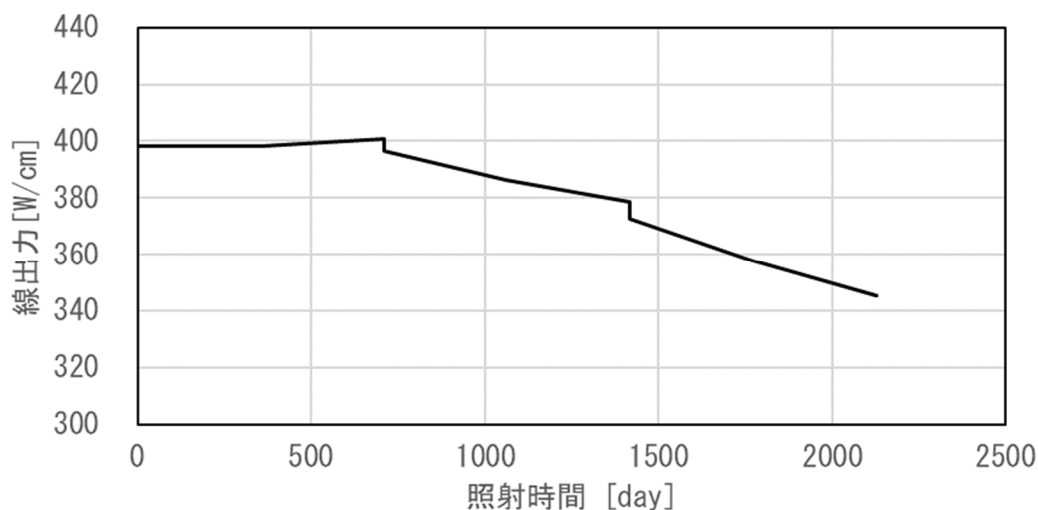


図 3. 1. 1-5 #175 集合体燃料ピンの最大線出力履歴

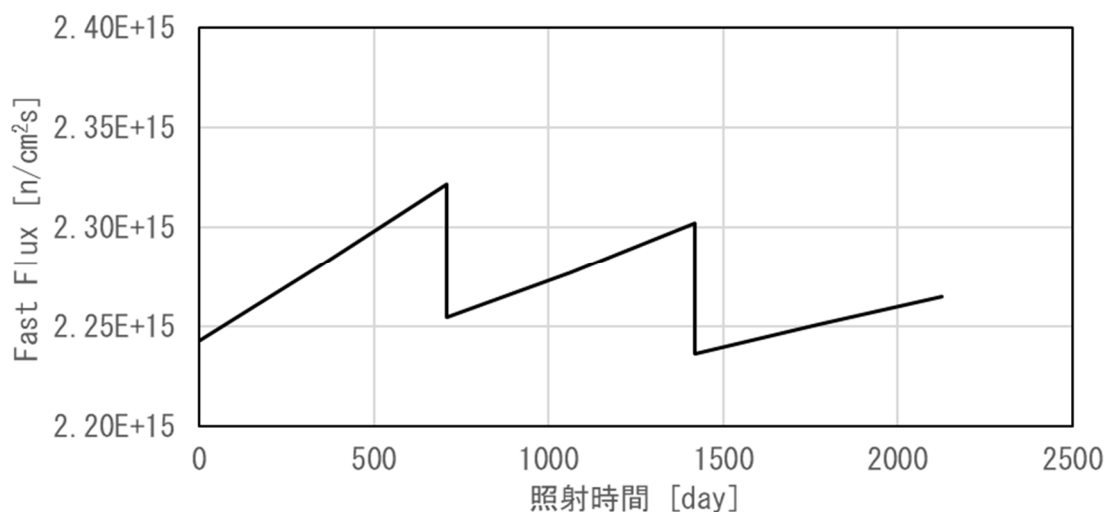


図 3. 1. 1-6 #175 集合体燃料ピンの最大中性子束履歴

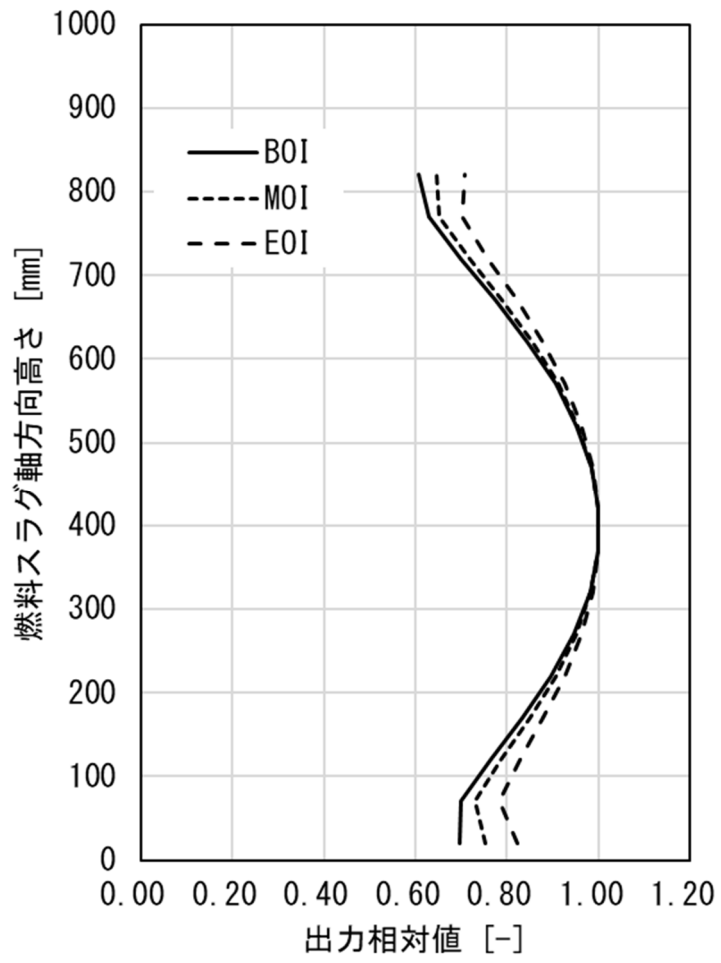


図 3. 1. 1-7 #175 集合体燃料の軸方向出力分布

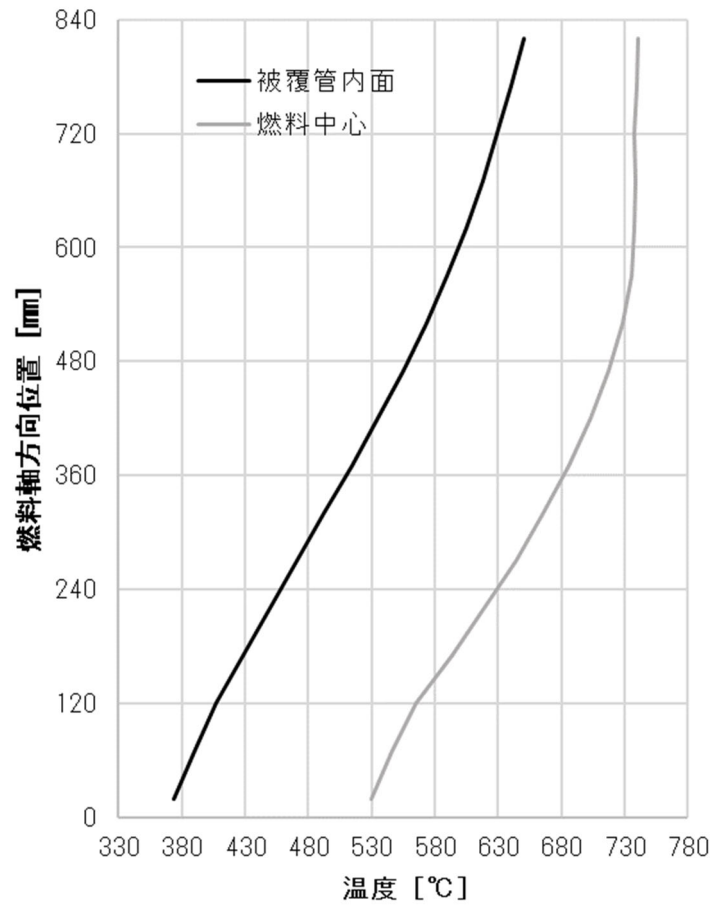


図 3. 1. 1-8 最大出力時（706 日照射後）における燃料軸方向温度分布

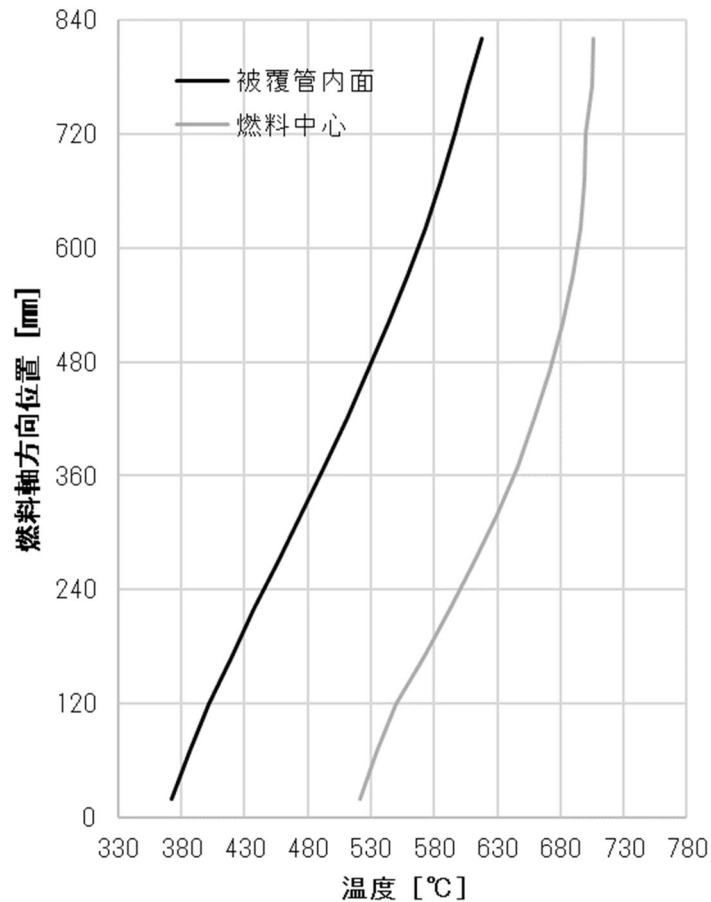


図 3.1.1-9 EOI（2018 日照射後）における燃料軸方向温度分布

照射に伴う FP ガス放出率の変化を図 3.1.1-10 に示す。平成 29 年度に調査した高濃度 MA 合金の照射後試験で観察されている特徴が ALFUS に反映され、照射開始からガス放出が始まるまでの時間遅れが続き、およそ 200 日後から FP ガスが放出され始め、ほぼ 1 サイクル照射された 706 日後に、ガス放出率がほぼ飽和する。その結果、プレナムガス圧は図 3.1.1-11 に示すように増加し、EOI にはおよそ $57\text{kg}/\text{cm}^2$ に達する。

図 3.1.1-12 には、高濃度 MA 含有金属燃料の照射後試験で確認されているように、MA 添加によって燃料スラッグの照射スエリング挙動には大きな変化が生じないと仮定した場合の燃料スラッグの軸方向スエリング（＝軸伸び）の履歴を示している。FP ガス放出が始まるおよそ 200 日後までにおよそ 4.5% まで軸伸びが進み、それ以降は燃料スラッグが被覆管に拘束され、伸びが抑制されることが予測されている。

また EOI における最大 FCMI（燃料-被覆管機械的相互作用）応力は $155\text{kg}/\text{cm}^2$ 、および FCCI（燃料-被覆管化学的相互作用）による被覆管の最大侵食量は $156\ \mu\text{m}$ と評価された。後段で示す被覆管の健全性評価指標である CDF の評価では、FP ガス圧や FCMI 応力および FCCI による被覆管減肉効果を適切に考慮して評価している。

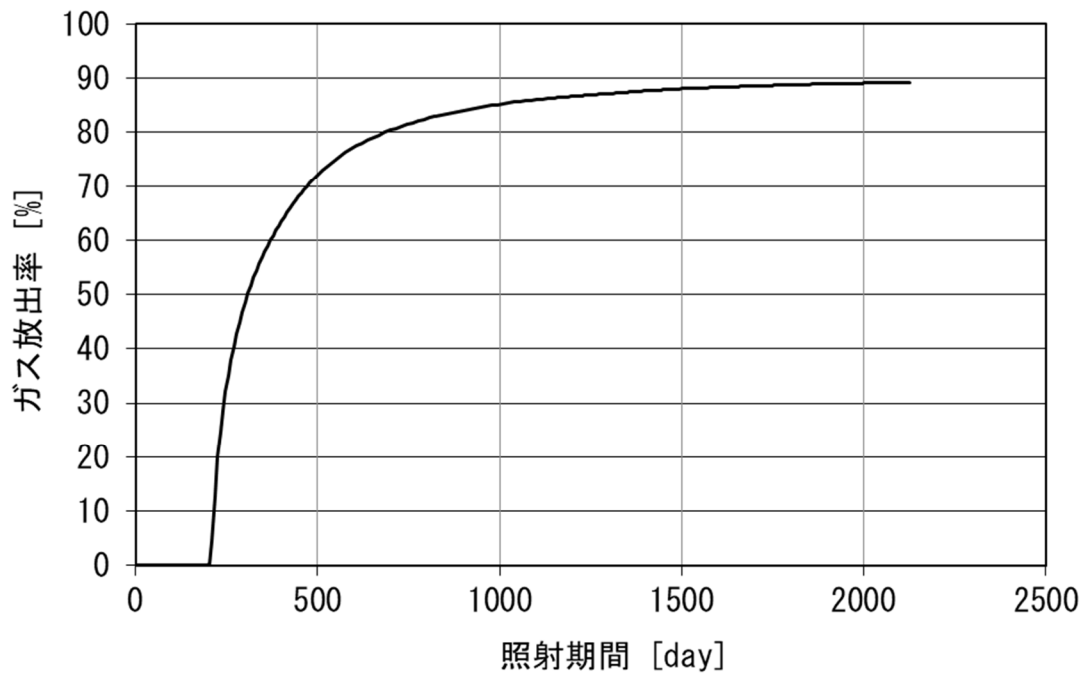


図 3. 1. 1-10 #175 集合体燃料からの FP ガス放出率の照射履歴

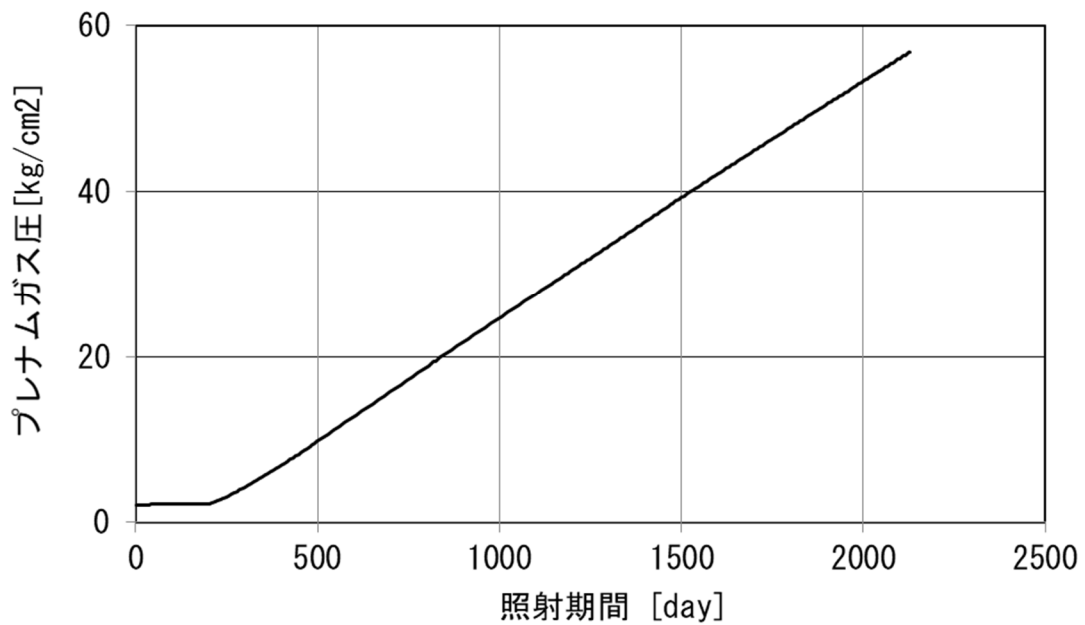


図 3. 1. 1-11 #175 集合体燃料ピンのプレナムガス圧の照射履歴

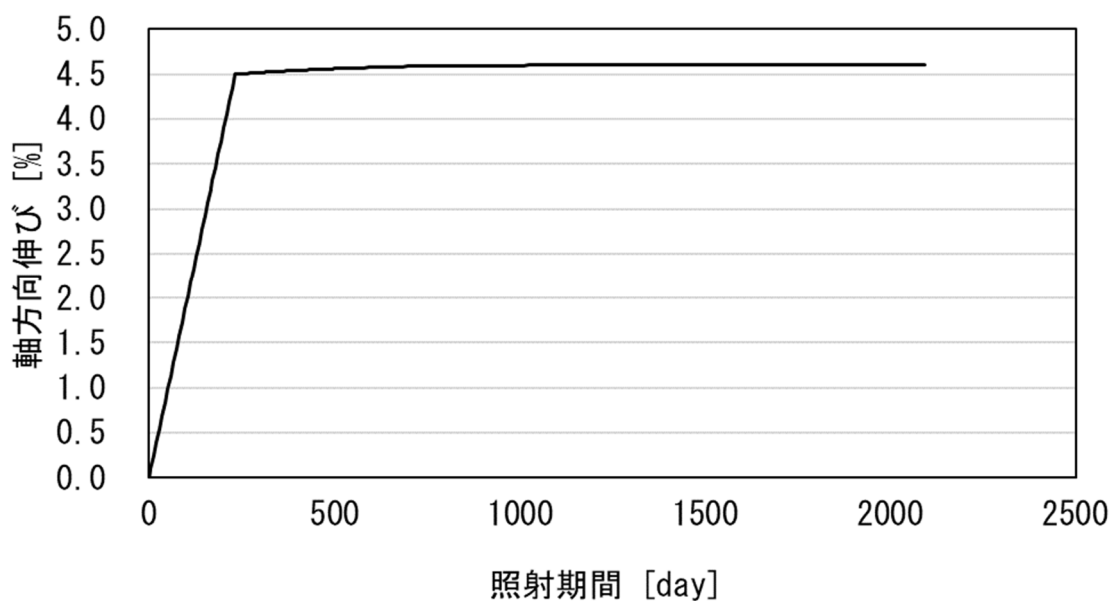
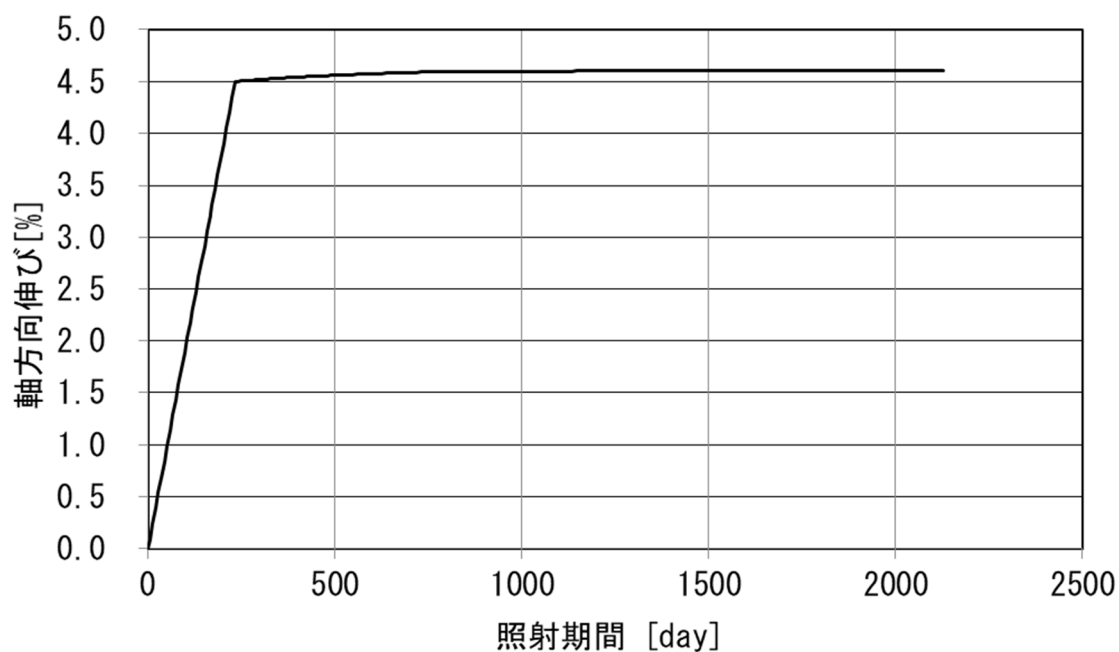


図 3.1.1-12 #175 集合体燃料ピンの照射による軸伸びの履歴

さらに、FCCI による被覆管厚さの減肉とプレナムガス圧や FCMI による被覆管の応力増加に起因した内圧クリープ損傷に関する被覆管 CDF の EOI における軸方向分布を図 3.1.1-13 に示す。被覆管の CDF 値は、FCMI 応力が大きい燃料下部よりも FCCI 減肉が大きい高温の上部で高く、#175 集合体燃料で想定される照射条件下では、照射末期の最大 CDF 値が $1.6E-5$ 程度と評価され、破損限界となる 1.0 を十分下回る結果となった。

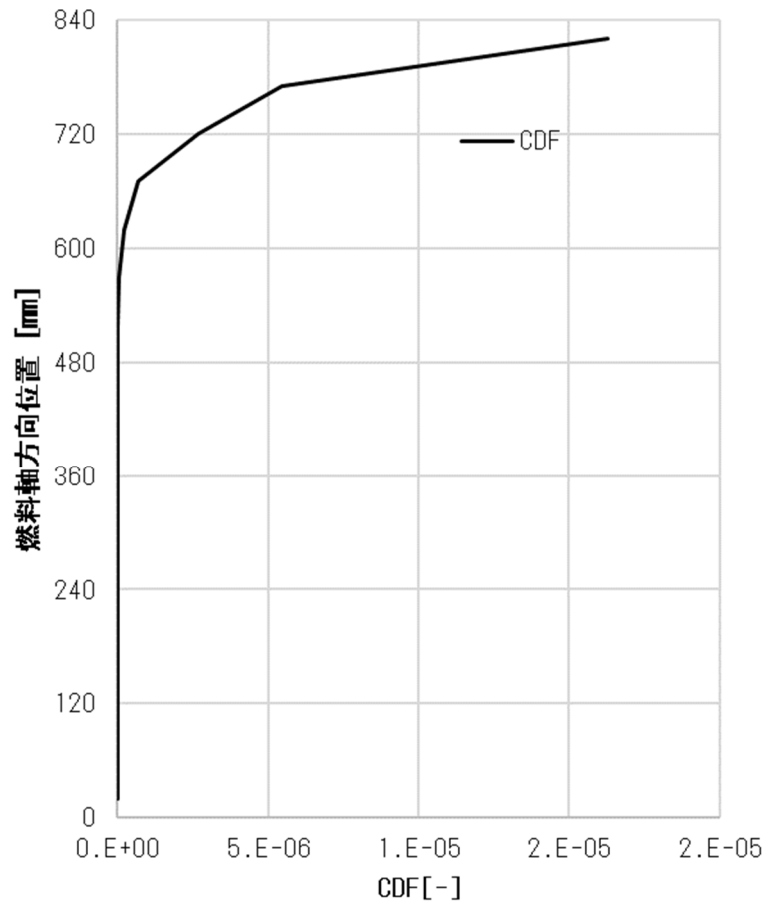


図 3.1.1-13 EOI における#226 集合体燃料ピンの CDF 値の軸方向分布

さらに、EOI における燃料ピンの外形変化率の軸方向分布を図 3.1.1-14 に示す。入口温度を低温化することによって、燃料スラグのクリープ歪速度が低下し、特に下部近傍で被覆管変形が大きくなるものの、燃料ピンの変形率は、最大で 1.8%程度であり、照射期間を通じて、十分に冷却可能な形状が確保される [13] が確認できた。

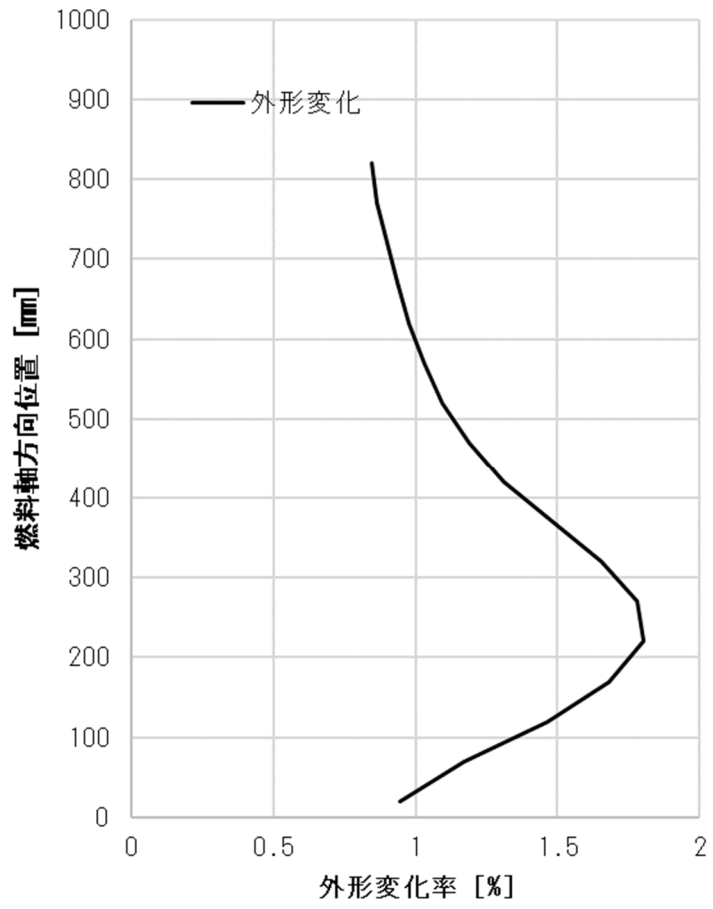


図 3. 1. 1-14 EOI における#175 集合体燃料ピンの外形変形率

⑤令和元年度設計炉心 #133 集合体燃料

同様に、令和元年度に設計された炉心において最も厳しい照射条件となる#133 集合体燃料ピンの照射挙動解析を行った。#133 集合体燃料ピンの最大線出力および中性子束履歴をそれぞれ図 3. 1. 1-15 と図 3. 1. 1-16 に示し、BOI、MOI、EOI における出力（相対値）の軸方向分布を図 3. 1. 1-17 に示す。#133 集合体燃料ピンでは、362～443W/cm の線出力、 $2.38\text{E}+15\sim 2.48\text{E}+15\text{ n/cm}^2\text{s}$ と前述の平成 30 年度設計炉心における#175 集合体燃料に比べ、出力と中性子束が共に高く維持されている。

最高出力となる BOI および EOI における被覆管内面（～燃料スラグ外周）と燃料中心温度の軸方向分布を図 3. 1. 1-18 および図 3. 1. 1-19 に示す。平成 30 年度設計炉心と同様、冷却材入口温度は 330℃であり、被覆管最高温度が設計制限値である 650℃の場合の照射挙動を評価した。

本炉心設計では、入口温度を 330℃と低温化しているため、最高線出力は 443W/cm と高いものの、燃料中心温度は 740℃程度と低く抑えられている。また、照射に伴う出力低下のため、照射末期における最大線出力は 362W/cm に下がり、被覆管最高温度はおよそ 611℃、燃料中心最高温度がおよそ 702℃に低下していることが分かる。

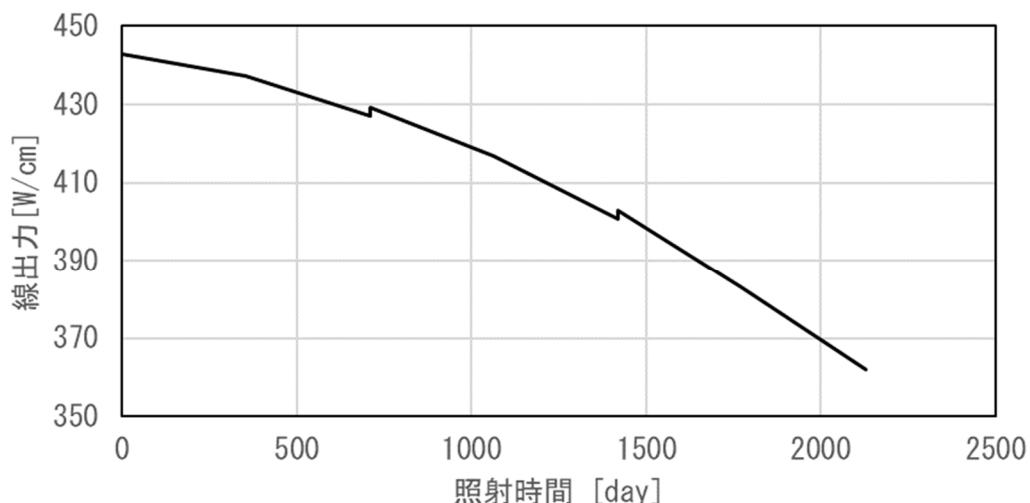


図 3. 1. 1-15 #133 集合体燃料ピンの最大線出力履歴

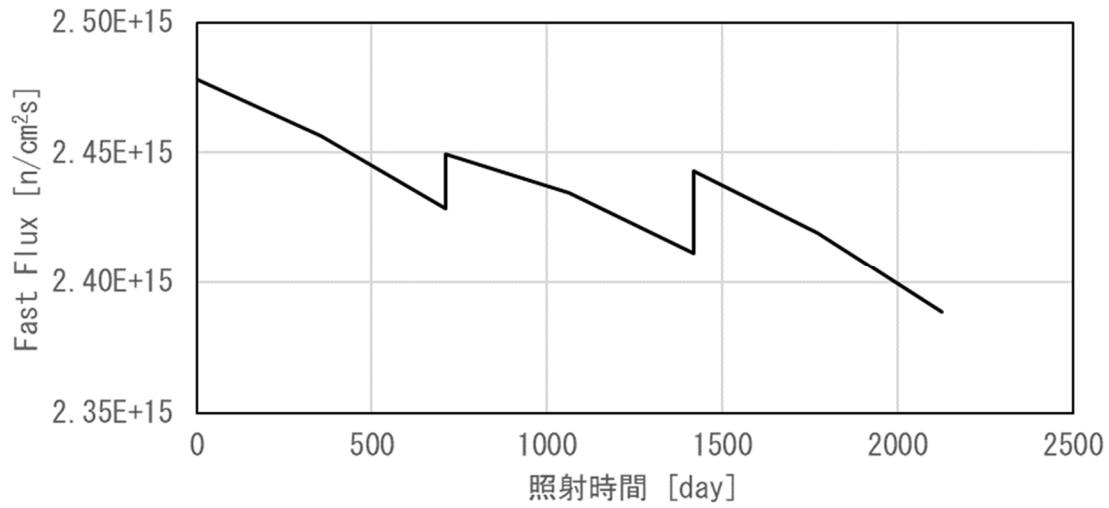


図 3. 1. 1-16 #133 集合体燃料ピンの最大中性子束履歴

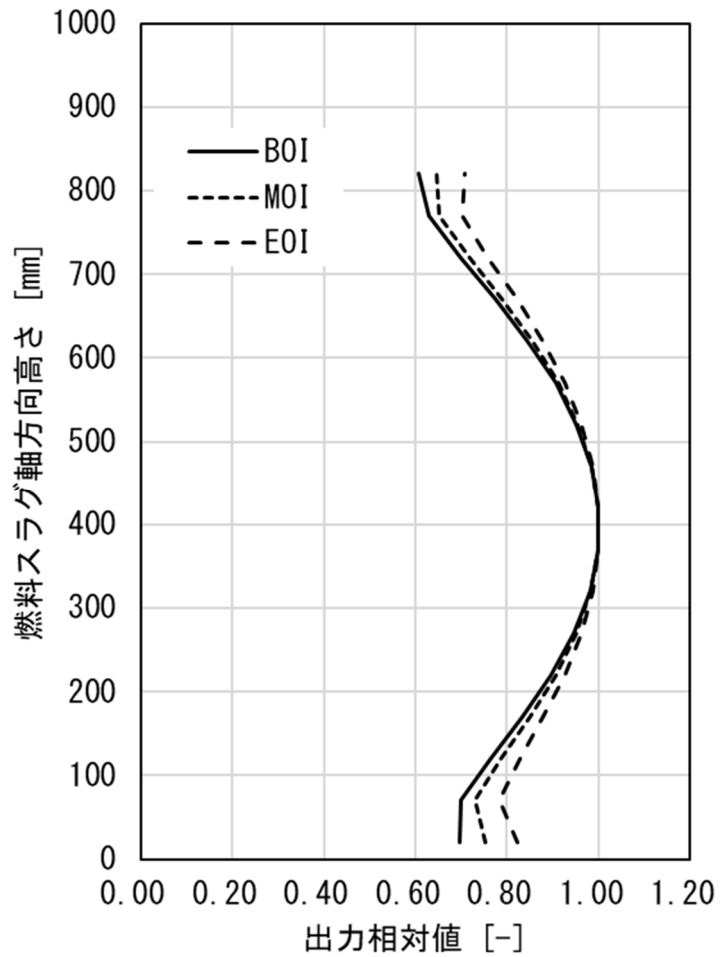


図 3. 1. 1-17 #133 集合体燃料の軸方向出力分布

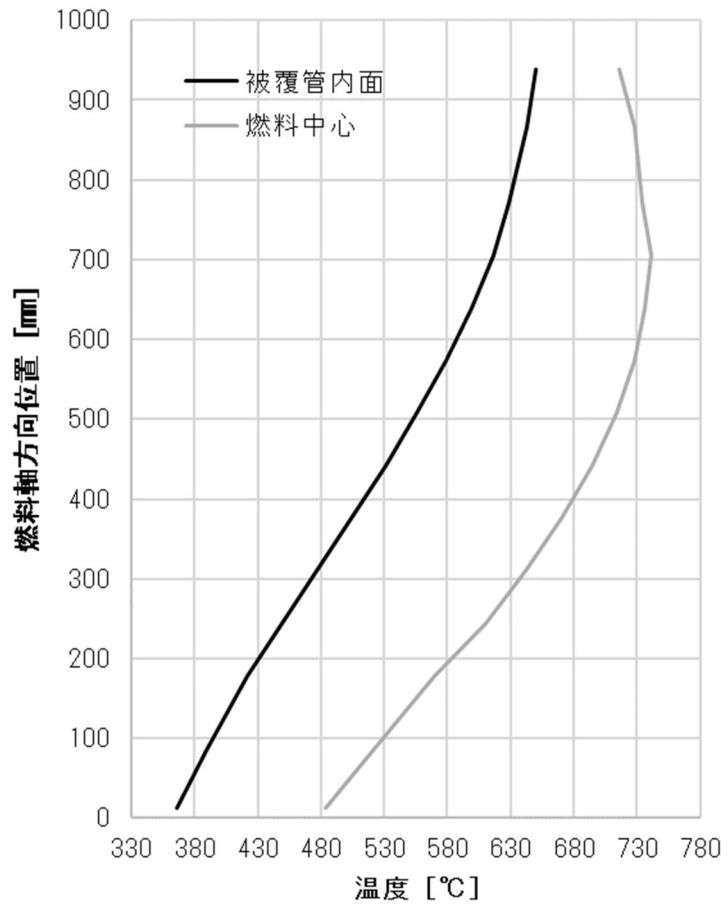


図 3. 1. 1-18 #177 集合体燃料の最大出力時 (B0I:照射開始直後) における軸方向温度分布

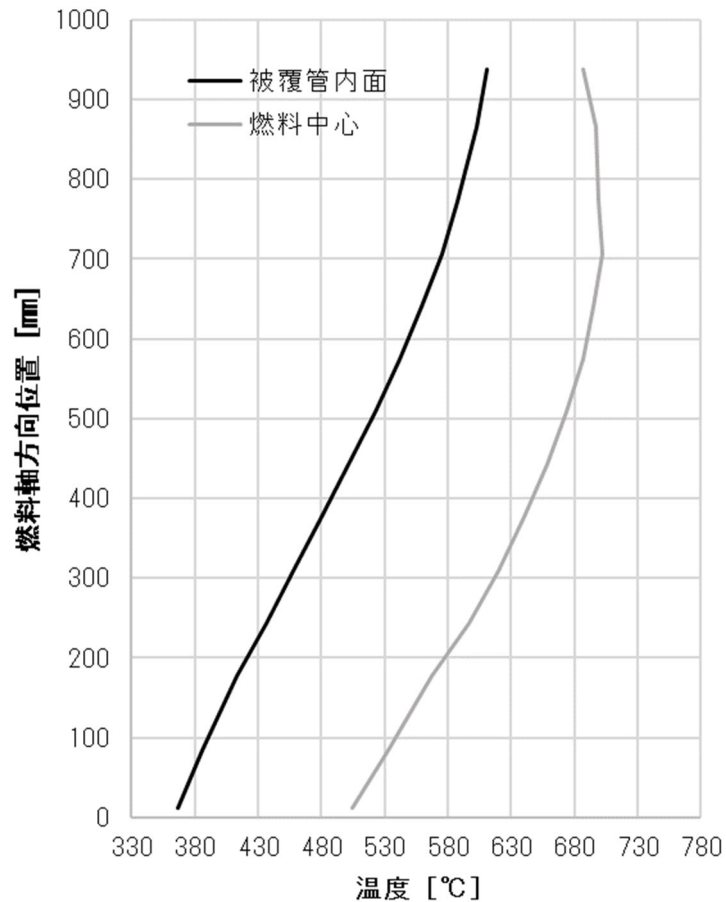


図 3.1.1-19 #133 集合体燃料の EOI（2018 日照射後）における軸方向温度分布

#133 集合体燃料の照射に伴う FP ガス放出率の変化を図 3.1.1-20 にプレナムガス圧の変化を図 3.1.1-21 に示す。およそ 200 日後から FP ガスがプレナムに放出され始め、およそ 1 サイクル照射の間にガス放出率は 85%以上に達し、ほぼ飽和する。EOI における #133 集合体燃料のプレナム圧はおよそ $89\text{kg}/\text{cm}^2$ に達する。

図 3.1.1-22 には、照射による燃料スラグの軸伸びの履歴を示している。先述の平成 30 年度設計炉心における #175 集合体燃料に比べて出力自体は高いものの、ALFUS における軸伸びの評価モデルで重要な径方向クラックの発生による燃料スラグ径の増大パラメータは両燃料ピンで同一であり、軸伸びも同程度となり、FP ガス放出が始まるおよそ 200 日後までにおよそ 4.5%まで軸方向の伸びが進むことが予測されている。

また EOI における最大 FCMI 応力および FCCI による被覆管の最大侵食量は、それぞれ $215\text{kg}/\text{cm}^2$ および $169\ \mu\text{m}$ と評価された。燃焼度が $200\text{GW d}/\text{t}$ を大幅に上回ることから、燃料スミヤ密度を 75%とした場合でも固体 FP の蓄積により空孔が欠乏し、FCMI 応力の増大が顕著となる。

それでも、図 3.1.1-23 に示すように #133 集合体燃料被覆管の CDF 値は、FCMI 減肉が大きい高温の上部で高く、FCMI 応力が支配的となることはない。EOI で最大 CDF 値は

3.8E-03 と評価され、燃料の健全性は確保できる見通しが得られた。

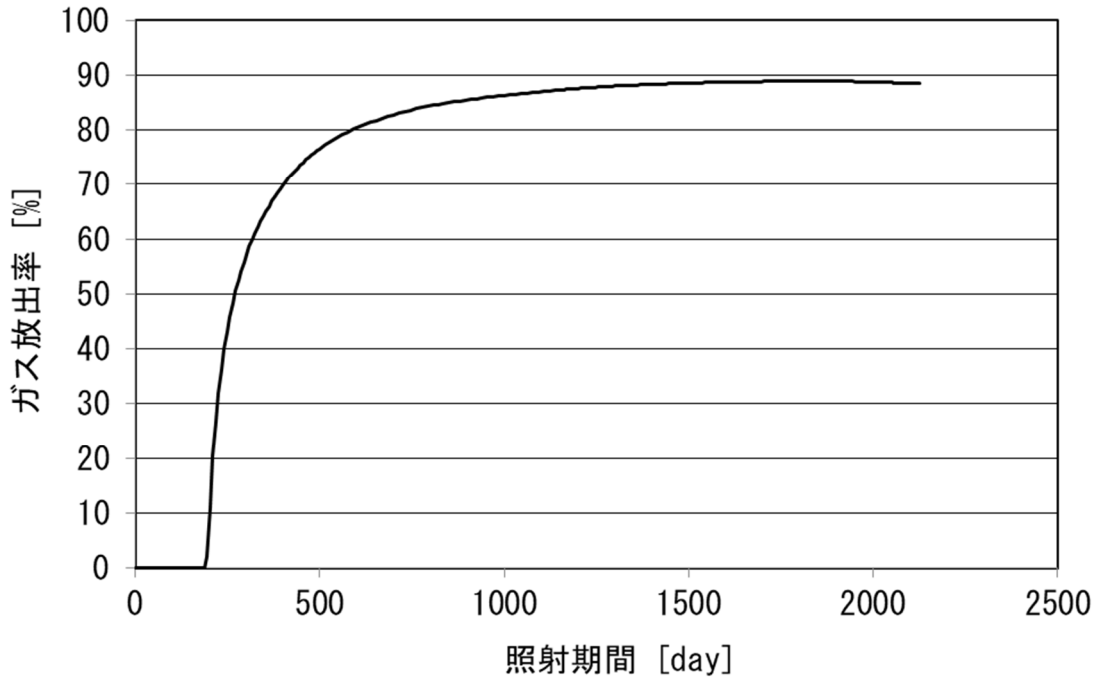


図 3. 1. 1-20 #221 集合体燃料からの FP ガス放出率の照射履歴

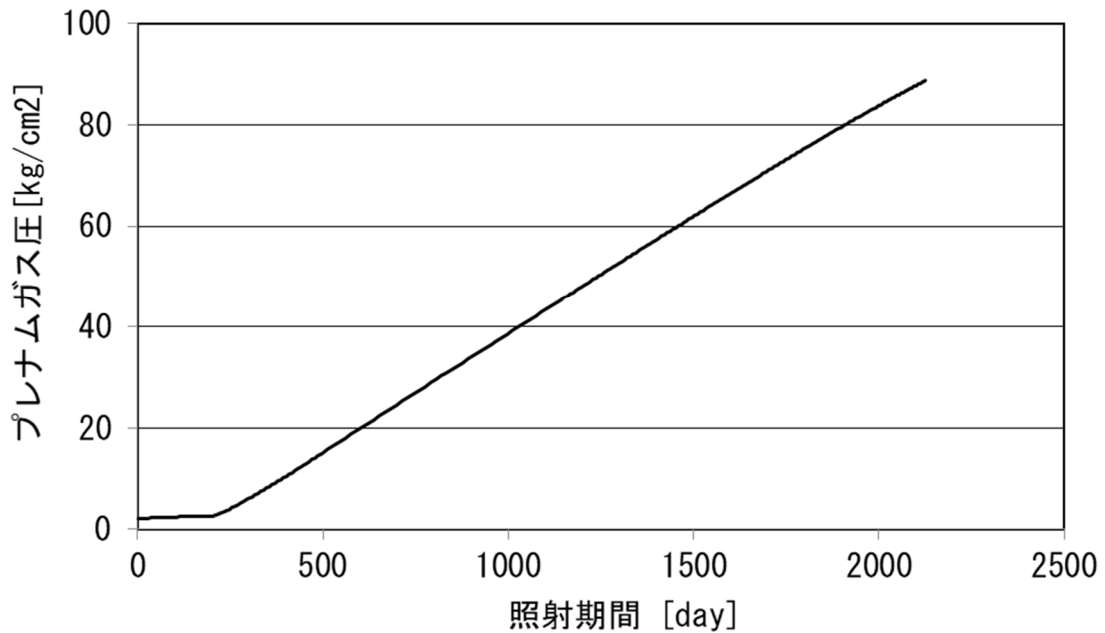


図 3. 1. 1-21 #221 集合体燃料からのプレナムガス圧の照射履歴

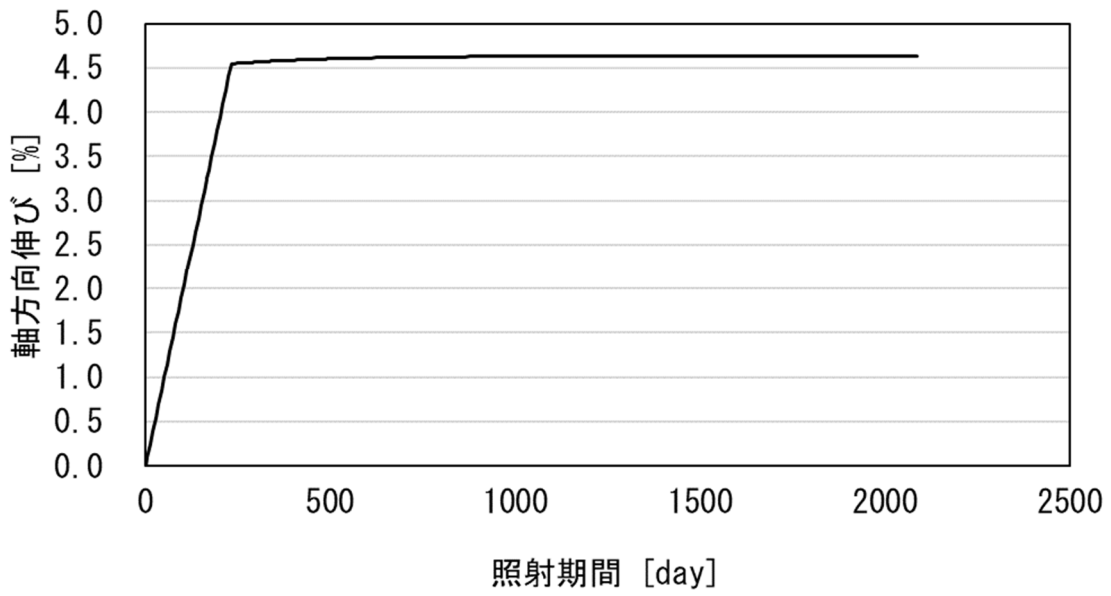


図 3. 1. 1-22 #177 集合体燃料の照射による軸伸びの履歴

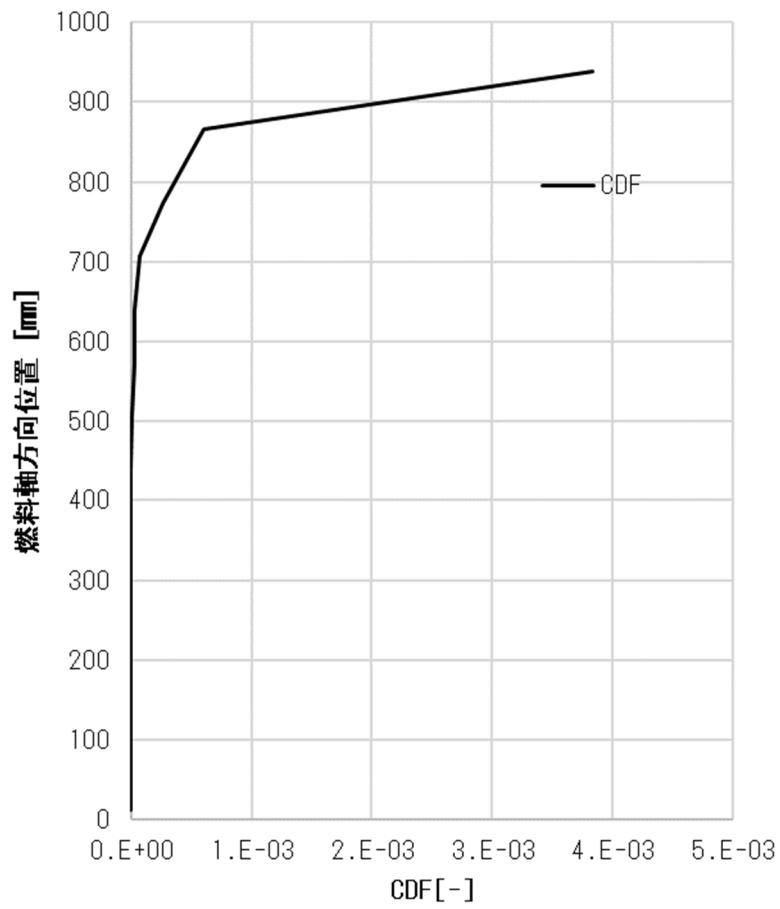


図 3. 1. 1-23 EOI における#133 集合体燃料ピンの CDF 値の軸方向分布

E0I における#133 集合体燃料ピンの外形変化率の軸方向分布を図 3.1.1-24 に示す。燃焼度が高く FCMI 応力の増大も見られていることを反映し、燃料ピンの変形率はおおよそ 2.5%に増大するものの「もんじゅ」設計において冷却可能な形状として想定されている被覆管最大変形率（7%）に比べ小さいことから、照射期間を通じて、十分に冷却可能な形状が確保される[12]と考えられる。

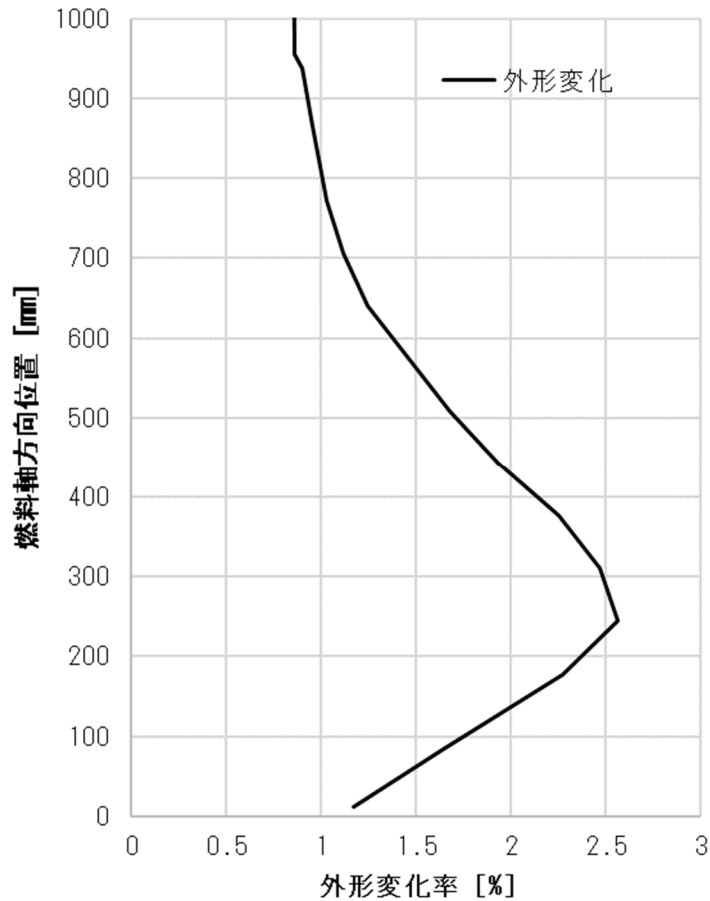


図 3.1.1-24 E0I における#133 集合体燃料ピンの外形変形率

平成 30 年度および令和元年度にそれぞれ設計された高濃度 MA 含有金属燃料炉心において、それぞれ最も厳しい照射条件となる燃料ピンをそれぞれ選定し、高濃度 MA 含有金属燃料の照射挙動解析用に調整を行った ALFUS コードによって照射健全性を評価した。

いずれの条件においても MA 含有金属燃料ピンの被覆管最大 CDF 値は 1.0 を十分に下回り（ $1.6E-5 \sim 3.8E-03$ ）、外形変形も 1.8-2.5%程度と評価されることから、照射期間を通じて高濃度 MA 含有金属燃料ピンの健全性が確保できる見通しが得られた。

(4) 今後の課題

本評価で用いた FCCI による被覆管内面の侵食速度は U-Pu-Zr 合金とスチール製被覆管による評価式に基づくものである。Np や Am、Cm の添加分を Pu 濃縮度の増大によって模擬しているものの、実際に MA（や希土類）を含む燃料合金の場合には、被覆管の侵食速度が大きくなる[13]ことも予想される。したがって、MA や希土類を含有する合金燃料の FCCI 速度データの整備が必要とされる。また、侵食速度が過大となる場合には被覆管の内面のコーティング技術の開発なども必要と考えられる。

高濃度 MA 含有金属燃料の照射試験は、ごく少数の短尺燃料のカプセル照射によるもののみである。実用化に向けては、より多くの照射実績を積むことと実規模の燃料挙動を見通せる長尺燃料ピンの照射試験の実施も望まれる。

(5) まとめ

国内外でこれまでも検討されてきた MA 添加率を大幅に上回る高濃度の MA を含有する金属燃料および炉心の設計検討を行うため、国内外で実施されてきた MA 含有金属燃料の製造および物性試験および照射試験に関する公開資料を調査し、以下のように燃料設計条件を設定し、照射挙動の特徴についてまとめた。

- ・ 製造実績とアクチノイド元素の混合性の観点から、U-Pu-Zr 合金中の MA 添加率の上限は Pu 富化度と同程度と暫定する。
- ・ 希土類の混入率は 2wt%以下に抑える
- ・ MA 添加による燃料-被覆管境界の液相形成温度への影響は顕著ではないことから、被覆管最高温度は、通常の金属燃料と同様に、Pu 富化度 25at.%以下において、650℃と暫定した。
- ・ 高濃度 MA 含有金属燃料では、照射による FP ガスの放出がやや遅れ、FP ガス放出率がやや高い傾向が見られる。
- ・ 照射スエリングやガス放出といった照射挙動自体は通常の金属燃料と同様である。

これらを踏まえて高濃度 MA 含有燃料用に調整した ALFUS コードによって、以下の燃料について照射挙動解析を行った。

- ① 平成 29 年度に設計された酸化物燃料炉心に非均質装荷した高濃度 MA 含有金属燃料
- ② 平成 30 年度に設計された高濃度 MA 含有金属燃料
- ③ 令和元年度に設計された高濃度 MA 含有金属燃料

その結果、いずれの高濃度 MA 含有金属燃料においても被覆管最大 CDF 値は 1.0 を十分に下回り、外形変形も冷却可能な形状が維持される範囲であることから、照射期間を通じて高濃度 MA 含有金属燃料ピンの健全性が確保できる見通しを得た。

【3.1.1の参考文献】

- [1] OECD/NEA, Review of Integral Experiments for Minor Actinide Management, NEA No. 7222, (2015).
- [2] 「分離変換技術総論」一般社団法人日本原子力学会「放射性廃棄物の分離変換」研究専門委員会 2016年9月
- [3] T. YOKOO et al., “The Transuranic Mass Balance During the Introduction of Metal Fuel FBR Cycle,” J. Nucl. Sci. Technol., 36, 761 (1999).
- [4] T. Yokoo et al., “Core Performance of Fast Reactors for Actinide Recycling Using Metal, Nitride, and Oxide Fuels,” Nucl. Technol., 116, 173 (1996).
- [5] 平成29年度 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 「放射性廃棄物減容・有害度低減技術研究開発タイプA」 「柔軟性の高いMA回収・核変換技術の開発」 成果報告書 (2018).
- [6] 平成30年度 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 「放射性廃棄物減容・有害度低減技術研究開発タイプA」 「柔軟性の高いMA回収・核変換技術の開発」 成果報告書 (2019).
- [7] 平成28年度 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 「放射性廃棄物減容・有害度低減技術研究開発タイプA」 「柔軟性の高いMA回収・核変換技術の開発」 成果報告書 (2017).
- [8] Heather J. M. Chichester, et al., ‘Overview of the FUTURIX-FTA Irradiation Experiment in the Phénix Reactor’, INL/CON-14-33976 (2015).
- [9] Heather J. MacLean Chichester, ‘Irradiation and Postirradiation Examination of AFC-1 Transmutation Metallic Fuels for Fast Reactors’ NL/CON-27053
- [10] T. Ogata, et al., ‘Development and validation of ALFUS: An irradiation behavior analysis code for metallic fast reactor fuels,’ Nucl. Technol., 128, 113-123 (1999).
- [11] Ukai, S., et al.: J. Nucl. Sci. Technol., 34, 256 (1997).
- [12] 高速増殖炉もんじゅ発電所原子炉設置許可申請書：添付書類. 昭和55年12月 添付書類八
- [13] T.B.Massliski edit., Binary Alloy Phase Diagrams Second Edition, American society for Metals.
- [14] H. Ohta et al., ‘Design Study on a Fast Reactor Metal Fuel Attaining Very High Burnup’, Nuclear Technology Vol. 187 Aug. 2014.

3.1.2 MA 含有金属燃料装荷炉心の最適化検討（再委託先：日本原子力研究開発機構）

(1) MA 含有金属燃料装荷・酸化物燃料炉心の設計【平成 28 年度-平成 29 年度】

①背景・目的

「柔軟性の高い MA 回収・核変換システム」構築のため、湿式再処理によってリサイクルされた MOX 燃料と乾式再処理によってリサイクルされた高濃度 MA 含有金属燃料の両方を使用できる高濃度 MA 含有金属燃料装荷・MOX 燃料炉心・Na 冷却高速炉を設計した。

②平成 28 年度-平成 29 年度の実施内容と成果

過去の MOX 燃料炉心設計に基づき[1]、MOX 燃料と同じく下部プレナム構造の燃料を採用できる粒子型などの金属燃料[2]を想定した。既往研究[3][4]を踏まえ、本検討では、燃料製造条件として $\text{Pu} \geq \text{MA}$ かつ希土類 FP 重量約 2vol%とした。図 3.1.2-1 の右図のように、外側炉心の外周 1 層 60 体を高濃度 MA 含有金属燃料と置換することにより、MA 均質装荷・MOX 燃料炉心の約 1.6 倍の MA 核変換量を達成できることを確認した(表 3.1.2-1)。また、径方向ブランケット集合体を削除し、炉心流量を確保することにより、従来の Na 冷却 MOX 燃料高速炉の炉心設計に主要な設計変更を加えることなく、同じ冷却材出入口温度を確保できる見込みが得られた。既存 MOX 燃料サイクルインフラの利活用が可能で、かつ、MOX 燃料炉心設計に大きな変更は必要ないため、早期の MA 核変換の実現との観点で優れた特徴を有する。

③まとめ、今後の課題

本設計検討により、MA 均質装荷・MOX 燃料炉心の約 1.6 倍の MA 核変換量を達成できる高濃度 MA 含有金属燃料装荷・MOX 燃料炉心概念が得られた。ただし、熱設計を成立させるために径方向ブランケットを削除しており、増殖比は約 1.00 となった。また、早期 MA 量低減のためには、さらなる MA 核変換性能を有する炉心設計が必要である。

表 3. 1. 2-1 検討した MA 含有金属燃料装荷・酸化燃料炉心の仕様および特性 (脚注 RE は希土類)

項目		単位	MA均質装荷 MOX燃料炉心 *1	高濃度MA含有金属燃料 装荷・MOX燃料炉心 *2	
仕様	炉心出力	MWe/MWt	750/1765	750/1765	
	運転サイクル長さ	日	540	540	
	燃料交換バッチ(炉心/径方向ブランケット/高濃度MA含有金属燃料)	-	6/6/-	6/-/6	
	炉心高さ(炉心/高濃度MA含有金属燃料)	cm	100/100	100/100	
	炉心燃料の軸方向ブランケット(上部/下部)	cm	20/25	20/25	
	集合体配列ピッチ	cm	20.6	20.6	
	体数(内側/外側/径方向ブランケット/高濃度MA含有金属燃料)	体	157/117/66/-	157/57/-/60	
	燃料ピン径(炉心/径方向ブランケット/高濃度MA含有金属燃料)	mm	10.4/11.7/-	10.4/-/10.4	
	燃料ピン本数(炉心/径方向ブランケット/高濃度MA含有金属燃料)	本	255/217/-	255/-/271	
	燃料スミア密度(炉心/径方向ブランケット/高濃度MA含有金属燃料)	%TD	82/90/-	82/-/70	
炉心特性	Pu富化度(内側炉心/外側炉心/高濃度MA含有金属燃料)*3	wt%	18.6/24.6/-	18.7/24.8/18.5	
	MA含有率(内側炉心/外側炉心/高濃度MA含有金属燃料)*4	wt%	3.0/3.0/-	1.4/1.9/16.0	
	Pu-fissile富化度(内側/外側/高濃度MA含有金属燃料)*5	wt%	11.2/14.9/-	11.3/14.9/11.2	
	制御棒挿入深度	CCR(BOC/MOC/EOC)*6,7	cm	45.0/27.5/27.5	50.0/32.5/32.5
		FCR(BOC/MOC/EOC)*6,7	cm	20.0/20.0/20.0	17.5/17.5/17.5
	燃焼欠損反応度	%Δk/kk'	1.34	1.56	
	増殖比*8	炉心/軸方向ブランケット/径方向ブランケット/高濃度MA含有金属燃料.	-	0.786/0.216/0.120/- 合計(1.12)	0.713/0.198/-/0.086 合計(1.00)
		最大高速中性子束(E>0.1MeV)	×10 ¹⁵ n/cm ² s	2.0	2.0
	最大高速中性子照射量(E>0.1MeV)	×10 ²³ n/cm ²	5.4	5.3	
	最大線出力	内側炉心/外側炉心/高濃度MA含有金属燃料	W/cm	408/406/-	407/406/366
	取り出し 平均燃焼度	炉心/軸方向ブランケット/径方向ブランケット/高濃度MA含有金属燃料.	GWd/t	150.7/21.1/9.5/-	162.0/25.3/-/110.1
		全炉心	GWd/t	84.0	115.6
	出力分担率*8	炉心/軸方向ブランケット/径方向ブランケット/高濃度MA含有金属燃料.	%	91.0/6.3/2.7/-	76.5/5.9/-/17.6
	初装荷Pu-fissile重量		t/GWe	6.0	6.1
	実効遅発中性子割合		-	3.19E-03	3.12E-03
	冷却材Naボイド反応度(平衡末期)*9		\$	6.0	6.0
	ドップラ (平衡末期)*10	ドップラ反応度(MOX燃料/高濃度MA含有金属燃料/ 全炉心)	%Δk/kk'	-1.4E-01/- -1.4E-01	-1.3E-03/-9.0E-05 -1.4E-03
		ドップラ係数	Tdk/dT	-4.6E-03	-4.4E-03
	MA装荷量		kg/バッチ	175.2	352.5
	MA核変換率		%	37.1	30.9
単位発電量当たりのMA変換量 ()内は稼働率*11を考慮した時の値		kg/GWe-y	57.7 (53.3)	96.7 (89.4)	

*1 40年冷却したLWR-UOX 45-49GWd/t使用済燃料を先進湿式再処理でU-Pu-Np回収後、MA上限3wt%でAmおよびCmを3%まで添加した組成。
 *2 MOX燃料として、上記のLWR使用済燃料を先進湿式再処理でU-Pu-Np回収後、MA上限3wt%でAmおよびCmを3%まで添加した組成。
 高濃度MA含有金属燃料として、上記のLWR使用済燃料を乾式再処理する際に、先進湿式回収MA(Am, Cm)を添加しTRU一括回収した組成。
 *3 内側および外側炉心燃料はPu/HM、高濃度MA含有金属燃料はPu/(HM+随伴RE+Zr)。
 *4 内側および外側炉心燃料はMA/HM、高濃度MA含有金属燃料はMA/(HM+随伴RE+Zr)。
 *5 内側および外側炉心燃料はPu-f/HM、高濃度MA含有金属燃料はPu-f/(HM+随伴RE+Zr)。
 *6 CCR:主炉停止系制御棒・粗調整棒、FCR:主炉停止系制御棒・微調整棒。
 *7 BOC:運転サイクル初期、MOC:運転サイクル中期、EOC:運転サイクル末期。
 *8 サイクル平均。
 *9 MOX燃料および高濃度MA含有金属燃料領域のバンドル部の冷却材ナトリウムのみボイド化(MOX燃料の内部ダクト内Naはボイド化しない)。
 *10 MOX燃料および高濃度MA含有金属燃料領域のみ+500℃で計算。*11 定検期間45日を考慮 *12 高濃度MA含有金属燃料の希土類元素含有率は1wt%。

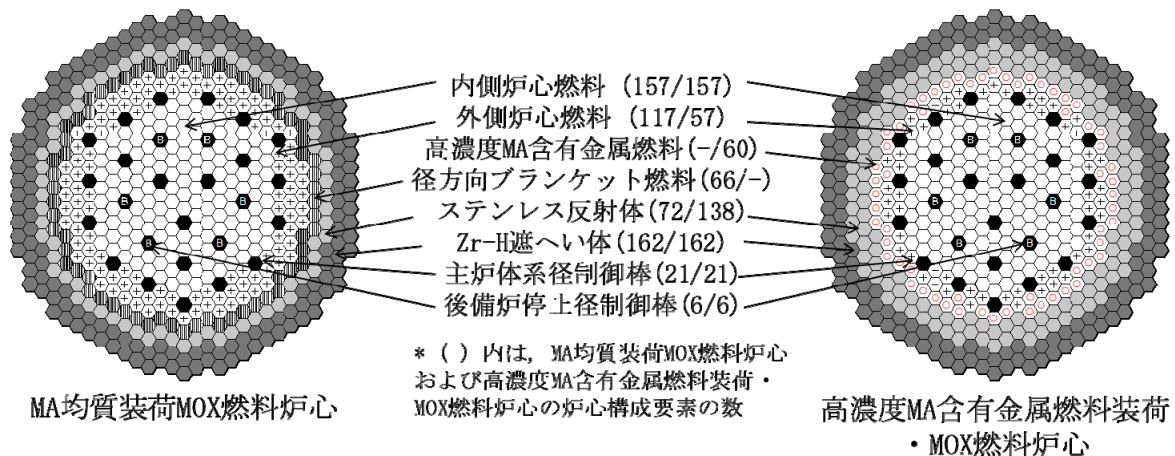


図 3. 1. 2-1 検討した MA 含有金属燃料装荷・酸化燃料炉心の配置図

(2) MA 核変換用金属燃料炉心の設計【平成 30 年度】

①背景・目的

平成 29 年度までに得られた高濃度 MA 含有金属燃料装荷・混合酸化物(MOX)燃料炉心は、早期 MA 核変換実現性に優れるが、径方向ブランケットを削除しているため、増殖比は約 1.00 となっており、将来の高速炉増設需要への対処との観点で課題がある。

そこで、高速炉 MOX 燃料サイクルおよび軽水炉サイクルからの MA を金属燃料炉心・サイクルにおいて核変換することを想定する。この金属燃料サイクルで MA 核変換を担えば、MOX 燃料炉心を MA 核変換ではなく、高速炉増設に必要な燃料増殖に使用できる。また、将来、金属燃料サイクルへの移行を想定する場合に、金属燃料サイクルにおいて、MA 核変換と共に金属燃料高速炉の増設に必要な燃料の増殖ができる。このようなサイクルの実現のためには、MA 核変換用金属燃料炉心が必要である。

また、早期に MA を減少するとの観点で、平成 29 年度までに設計した高濃度 MA 含有金属燃料装荷・MOX 燃料炉心よりもさらに MA 核変換性能に優れる金属燃料炉心の設計は重要である。このような優れた MA 核変換性能を有する炉心として、高濃度 MA 含有金属燃料を全炉心に装荷した金属燃料炉心概念があり得る。

②平成 30 年度の実施内容と成果

既往金属燃料炉心設計[5]を踏まえ、平成 29 年度に検討した高濃度 MA 含有金属燃料を全炉心に装荷した金属燃料炉心の設計検討を実施した。表 3.1.2-2 に検討した MA 核変換用金属燃料炉心の仕様および特性結果を示す。SiC/SiC 複合材ラップ管を使用し、かつ、図 3.1.2-2 の SiC/SiC 複合材および減速集合体を装荷することで冷却材ボイド反応度およびドップラ係数を大幅に改善し、全炉心に高濃度 MA 含有金属燃料を装荷する炉心を構築した。この結果、平成 29 年度までに検討した炉心の約 5 倍の MA 核変換量を達成できた。既往の 750MWe の Na 冷却高速炉のプラント設計条件を踏まえ、同炉心の熱的検討を行い、冷却材出入口温度 330℃とすることで燃料健全性を確保できる見込みが得られた。

③まとめ、今後の課題

軽水炉(LWR)の使用済のウラン酸化物燃料(UOX)から回収された燃料組成のみを対象として設計を実施したため、今後、サイクル上想定される多様な組成における成立性を確認する必要がある。より Pu 高次化が進んだ LWR-MOX 回収組成や、逆に、フィッサイル率が高く、MA をほとんど含まない高速炉平衡期の組成などを考慮して炉心成立性を確認する必要がある。また、より優れた SiC/SiC 複合材減速集合体の配置検討が必要である。

表3.1.2-2 検討したMA核変換用金属燃料炉心の仕様および特性

項目	単位	Case1 基準 金属燃料炉心	Case2 SiC/SiC複合材 ラップ管使用	Case3 SiC/SiC複合材ラップ管 および減速集合体使用
炉心出力	MWe/MWt	750/1765	750/1765	750/1765
運転サイクル長さ	日	709	709	709
燃料交換バッチ	-	3	3	3
炉心高さ	cm	84	84	84
燃料組成	-	LWR使用済燃料 回収TRU ^{*1}	LWR使用済燃料 回収TRU ^{*1}	LWR使用済燃料回収TRU +先進湿式回収MA ^{*2}
燃料ピン径 / ピン本数	-	8.5mm/271本	8.5mm/271本	7.6mm/331本
ラップ管	-	ステンレス鋼	SiC/SiC複合材	SiC/SiC複合材
燃料スミア密度(内側炉心/外側炉心)	%TD	70/75	70/75	75/75
Pu富化度(内側炉心/外側炉心) ^{*3}	wt%	13.9/13.9	13.7/13.7	18.6/18.6
MA含有率(内側炉心/外側炉心) ^{*4}	wt%	3.3/3.3	3.3/3.3	18.6/18.6
Pu-fissile富化度(内側炉心/外側炉心) ^{*5}	wt%	8.4/8.4	8.3/8.3	11.2/11.2
燃焼反応度	%Δk/k'	0.3	-0.3	0.1
増殖比 ^{*4}	-	1.02	1.056	0.762
最大高速中性子照射量(E>0.1MeV)	×10 ²³ n/cm ²	5.0	4.6	5.2
最大線出力(内側炉心/外側炉心)	W/cm	291/337	293/340	411/408
取り出し平均燃焼度	GWd/t	92	92	129
出力分担率(内側炉心/外側炉心) ^{*6}	%	42.9/57.1	43.0/57.0	36.9/63.1
初装荷Pu-fissile重量	t/GWe	4.5	4.5	4.4
実効遅発中性子割合 ^{*9}	-	3.42E-03	3.43E-03	2.57E-03
冷却材Naボイド反応度 ^{*7,9}	\$	7.0	6.3	6.4
ドップラ係数 ^{*8,9}	T dk/dT	-2.5E-03	-3.5E-03	-2.8E-03
冷却材Naボイド反応度/ドップラ係数 比 ^{*9}	\$/10 ⁻³ Tdk/dT	2.8	1.8	2.3
MA装荷量	kg/Batch	451	446	1826
MA核変換率	%	32.0	32.7	39.1
単位発電量当たりのMA変換量 ()内は稼働率 ^{*9} を考慮した時の値	kg/GWe-y	99(93)	100(94)	490(461)

*1 40年冷却したLWR-UOX 45-49GWd/t使用済燃料を乾式再処理にてTRU一括回収した組成。

*2 40年冷却したLWR-UOX 45-49GWd/t使用済燃料を乾式再処理する際に、先進湿式回収MA(Am, Cm)を添加しTRU一括回収した組成。

*3 Pu/HM. *4 MA/HM. *5 Pu-f/HM. *6 サイクル平均。

*7 金属燃料および高濃度MA含有金属燃料領域のバンドル部の冷却材ナトリウムのみボイド化。

*8 金属燃料および高濃度MA含有金属燃料領域+500℃で計算。*9 平衡炉心の初期、中期および末期の最も保守的な評価結果。

*10 定検期間45日を考慮。*11 3次元拡散計算、制御棒全引抜状態での炉心特性評価結果。

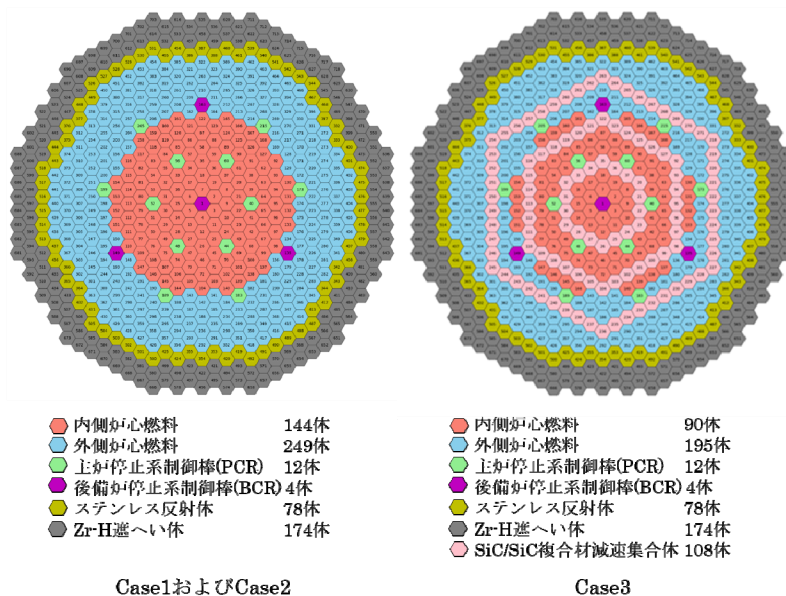


図3.1.2-2 検討したMA核変換用金属燃料炉心の配置図

(3) MA 含有金属燃料装荷炉心の性能向上策の最適化検討【令和元年度】

①背景・目的

平成 30 年度検討では、LWR の UOX から回収された燃料組成のみを対象とした MA 核変換用金属燃料炉心を検討した。今後、サイクル上想定される多様な組成における成立性を確認する必要がある。より Pu の高次化が進んだ LWR の使用済 MOX 燃料から回収した TRU 組成や、逆に、フィッサイル率が高く、MA をほとんど含まない高速炉平衡期の組成などで炉心成立性の確認が必要である。また、平成 30 年度検討では、SiC/SiC 複合材減速集合体をリング状に装荷しているが、今後、装荷方法や配置の最適化検討によってさらなる性能向上の検討も必要である。

②令和元年度の実施内容と目的

高速炉導入当初は、高速炉サイクル以外で発生した LWR 由来の MA の核変換を行うため、核変換量が高い炉心が必要となる。このような時期には、高濃度 MA 含有金属燃料装荷に伴う炉心安全特性への影響を改善するために、炉心への SiC/SiC 複合材減速集合体を装荷する必要がある。

一方、将来、高速炉導入が進み、高速炉燃料を繰り返しリサイクルする状況では、ほとんど MA を含まず、比較的核分裂性 Pu (Pu_f) 率が高い平衡組成(炉心の増殖比が比較的低くなる組成)に収束していく。このような高速炉平衡期においては、高速炉サイクル維持のために、1.00 を超える増殖比が要求される。したがって、SiC/SiC 複合材減速集合体を装荷せず、比較的良好的な増殖比が得られる炉心形状とする必要がある。なお、平成 30 年度に検討した SiC/SiC 複合材減速集合体を装荷した炉心は、増殖比が 0.8 未満であり、他サイクルからの TRU 供給を前提とするため、高速炉平衡期には適さない。

そこで、令和元年度の検討では、平成 30 年度に実施した「MA 核変換用金属燃料炉心の設計」で検討した炉心を基に、冷却材ボイド反応度低減に有効な SiC/SiC 複合材等を用いた炉心を設計すると共に、前年度炉心の仕様を調整することで、1 つの炉心において、MA 核変換のみならず、高速炉平衡期にも持続的に運転可能とできるように、核的な観点での検討を実施した。具体的には、SiC/SiC 複合材減速集合体の装荷・脱荷により高速炉導入当初の MA 核変換および高速炉平衡期に想定される幅広い燃料組成にも柔軟に対処できる炉心概念を検討した。

はじめに、MA をほとんど含まない高速炉平衡期組成で、炉心形状調整により、増殖比 1.00 を超える金属燃料炉心を検討した(「高速炉平衡期炉心」)。次に、検討した炉心仕様を基に、高濃度 MA 含有金属燃料および SiC/SiC 複合材減速集合体を装荷した炉心(「MA 核変換炉心」)を設計し、SiC/SiC 複合材減速集合体配置や組成による炉心特性影響を評価した。

③計算条件および方法

1) 計算条件

a) 炉心仕様

高速炉平衡期炉心の検討のための基準炉心として、既往検討で設計された 750MWe の金属燃料炉心[5]を参考に仕様を設定した。同炉心は、冷却材 Na ボイド反応度低減による炉心安全性向上のため、扁平化した炉心である。

また、MA 核変換炉心の検討には、平成 30 年度検討の SiC/SiC 複合材ラップ管および減速集合体を装荷した炉心を基準炉心とした。ここでは、表 3.1.2-3 に示すこれらの炉心の仕様を踏まえ、設計検討を実施した。

b) 燃料仕様

高速炉平衡期炉心・基準炉心は、燃焼に伴う出力分布の変化を抑制するため、炉内のすべての領域の局所内部転換比が約 1.0 となるように、炉心の Pu 富化度を単一とした炉心としている。すなわち、内側および外側炉心に装荷される燃料の Pu 富化度は同じとし、U-Pu-Zr 合金燃料のスミア密度および Zr 含有率(合金密度)を変えることで、炉心の径方向出力分布の平坦化を図っている。この炉心では、燃料製造実績を考慮し、8.5mm の燃料ピンを使用している。また、高速炉平衡期炉心・基準炉心を基に設計した MA 核変換炉心・基準炉心は、393 体の燃料集合体のうち 108 体を SiC/SiC 複合材減速集合体に置換しており、燃料の最大線出力が高くなるため、基準炉心と異なる 7.6mm の燃料ピン 331 本から構成される燃料集合体を使用している。また、SiC/SiC 複合材ラップ管を使用している。これら燃料仕様を表 3.1.2-4 に示す。

既往検討ではスラグ状燃料を使用していたが、本検討では、平成 30 年度までの検討を踏まえ、粒子型燃料など[2]の Na ボンド材を要しない金属燃料概念を採用することとし、燃料要素の下部に気体状の FP による被覆管内圧上昇を緩和するためのガスプレナムを持つ構造とした[6]。なお、下部にガスプレナム設置することで、流量喪失事故時スクラム失敗事象(ULOF)における自己作動型炉停止機構(SASS)[7]を使用した受動的安全性確保に有利になることが知られており[8,9]、安全性向上に資する。また、既往金属燃料炉心検討を踏まえ、下部軸方向ブランケットを排除し、炉心損傷事故(CDA)時の再臨界回避対策としている[10,11]。

c) 燃料組成

高速炉では、多様な LWR 使用済燃料から回収した TRU を燃料として使用することから、これらの多様な組成における炉心成立性を確認する必要がある。これまでの検討では、MOX 燃料炉心の最新の検討を踏まえ、典型的な高速炉設計用の燃料組成を収集した[12,13]。以上に加え、LWR-MOX 燃料使用済燃料組成[6]、また、金属燃料高速炉の平衡期炉心の組成を収集した[14]。以上を表 3.1.2-5 にまとめる。

高速炉平衡期炉心の検討においては、高速炉平衡期の組成である組成 5 にて計算を実施した。MA 核変換炉心の検討においては、炉心成立性上重要となる反応度特性に着目した評価を行う観点から、MA 含有量が多く、Pu も高次化しており、反応度特性が厳しくなると考えられる組成 1 の LWR 使用済燃料を以下に述べるサイクル条

件で処理した燃料を想定し、MA 核変換炉心の核的設計が成立することを確認した。また、LWR-MOX 組成を基にした燃料組成でも成立することを確認する必要があるため、組成 4 も検討に使用した。

d) サイクル条件

炉心検討では、図 3.1.2-3 に示すサイクル条件により、MA 核変換炉心の高濃度 MA 含有金属燃料を製造することを想定した。組成 1 の LWR 使用済燃料を乾式再処理する際に、Np を共回収する湿式再処理プロセスにおいて回収される MA (Am および Cm) を添加した高濃度 MA 含有金属燃料を MA 核変換炉心の燃料組成とした。高濃度 MA 含有金属燃料の製造においては、MA を U と混合させるためには一定割合の Pu の添加が必要である[4]。ここでは、既往知見を踏まえ、 $Pu/MA \geq 1.0$ の条件で燃料を製造することを想定した[4]。また、金属燃料中の MA と希土類の析出相形成[15]を回避するため、希土類含有量を 1wt% (2vol%) に制限するものと想定した。

2) 設計制限目安値および検討の進め方

炉心の成立性を判断するため、金属燃料炉心の設計検討経験を踏まえつつ、表 3.1.2-6 のように、炉心安全性と燃料健全性の目安を設定した。

冷却材 Na ボイド反応度は、既往の金属燃料炉心における安全研究[16]を踏まえ、8%程度を制限目安とした。また、日本独自設計による実用 Na 冷却高速炉 (JSFR) の炉心では、受動的安全性確保の観点から、SASS の適用を想定している。金属燃料炉心の既往設計検討において、下部プレナム型の炉心において、ULOF における SASS による炉停止の成立性検討が実施されている[8]。この ULOF-SASS 事象の既往検討を踏まえ、SASS による炉停止成立性確保のための暫定指標を検討した。ここでは、過去の ULOF-SASS 解析において成立性見込みが得られた炉心につき、過渡挙動上重要となる冷却材 Na ボイド反応度およびドップラ係数の絶対値の比を取って、暫定的な安全性の成立目安を設定した。

燃料健全性確保の観点から、最大線出力制限値については、既往検討を踏まえ 500W/cm とした[17]。中性子照射量は、ODS 鋼燃料を使用した炉心の既往検討を踏まえ、 $5.5 \times 10^{23} \text{n/cm}^2$ 、 $E_n > 0.1 \text{ MeV}$ を超えないことを目安とした[10]。また、金属燃料においては、燃料と被覆管の液相形成回避の観点から、被覆管内面温度を制限する必要がある。これまでの知見を踏まえ、被覆管内面温度制限値を 650°C とした[19, 20]。CDF については、0.5 以下とした[18]。

MA 核変換量には設計制限目安値は設定しないが、上記の設計制限目安値を満たす範囲で、優れた性能を目指した。

3) 核および熱流力設計方法

a) 核設計

本検討では、日本原子力研究開発機構においてこれまでの核設計で使用してきた

いる以下の計算手法[21, 22]を使用した。

最新核データライブラリ JENDL-4.0[23]に基づく炉定数[24]を使用した。格子計算コード SLAROM-UF[25]による1次元非均質格子計算により得られた70群実効断面積を用い、CITATIONコード[26]による3次元拡散計算を実施した。この3次元計算の中性子スペクトルにより、70群実効断面積を縮約して、7群断面積を得た。この7群実効断面積を用いて、3次元拡散燃焼計算を実施し、平衡炉心の燃焼組成を得た。計算には、3次元拡散燃焼計算コード MODIF[27]および汎用炉心解析システム MARBLE を使用した[28]。また、燃焼組成を用いて、各平衡炉心の冷却材 Na ボイド反応度やドップラ係数を計算した。計算は、SLAROM-UF コードにより70群実効断面積を作成し、同断面積を使用した CITATION コードによる70群3次元拡散計算により実施した。

拡散燃焼計算では、燃焼中に臨界性を確保することを確認し、Pu 富化度を設定した。出力規格化のための炉心熱出力は、中型炉で 1765MWt (750MWe 相当)とした。3バッチ燃料交換炉心である 750MWe 炉心につき、6サイクルまで拡散燃焼計算を実施し、後の3サイクル(4~6サイクル)を平衡炉心とみなした。冷却材 Na ボイド反応度およびドップラ係数は、炉心安全上重要となるこれらの比(以下、V/|D|比)は、平衡炉心の初期、中期および末期のうち、最も厳しくなるタイミングで計算した。なお、一般に、これらの特性は、MA 装荷量が少ない高速炉平衡期炉心では平衡末期で、一方、大量の MA を装荷・燃焼する MA 核変換炉心では平衡初期で厳しい結果となる。冷却材 Na ボイド反応度の計算においては、内側炉心燃料、外側炉心燃料および高濃度 MA 含有金属燃料の燃料集合体バンドル内の冷却材 Na がボイド化することを想定した。また、ドップラ係数の計算では、燃料核種の温度が 500°C 上昇する条件を想定した。以上の条件で、格子計算および拡散計算を実施し、冷却材 Na ボイド反応度およびドップラ係数を得た。

炉心特性の計算は、制御棒全抜の状態を実施した。その上で、最終的に優れた特性を有する炉心を選定した。選定した炉心については、制御棒挿入状態における拡散燃焼計算、制御反応度収支の評価、以下に述べる熱流力設計を実施した。

b) 熱流力設計

最終的に選定した炉心を対象とし、3次元核計算から得られた各燃料集合体装荷位置の出力を用い、熱流力設計を実施した。

はじめに被覆管温度制限を満たすために必要な冷却材流量を各燃料集合体につき計算した。Na 冷却材の熱容量[29]、熱伝達率式[30, 31]、被覆管熱伝導式[32]を用い、工学的安全係数(以下、HSF)を考慮して被覆管温度を計算した。この温度が被覆管内面温度の制限値である 650°C を超えないように、各燃料集合体の必要冷却材流量を計算した。HSF は、既往研究[10]を踏まえ、表 3.1.2-7 のように設定した。燃料要素発熱の最大値が発生する位置の周辺流れ効果として、燃料集合体で 1.11 を考慮した[33]。

次に、上記で計算した各燃料集合体の必要冷却材流量を踏まえ、流量を合理的に配分できる最適な流量領域区分を設定した。ここでは、既往研究にならい、内側炉心 4 領域および外側炉心 7 領域とした[10]。

上記の流量領域において、CDF が最も厳しくなる集合体を選定し、CDF を計算し、制限目安とする 0.5 を上回らないことを確認した。被覆管温度履歴は、核設計で得られた燃料ピンの出力履歴を基に計算した。また、燃焼に伴う FP および He ガス生成による内圧増加、被覆管の内面および外面腐食による減肉を考慮して周方向応力を計算した。

FP ガスおよび He ガス生成率は、燃焼計算コード ORIGEN2.2[34, 35]を使用し、JENDL-4.0 に基づく ORIGEN 用ライブラリ[36]を使用して計算した。ここでは保守的に燃料からの FP および He ガス放出率は 100%とした。

燃焼に伴う、被覆管温度および周方向応力の履歴から、被覆管のクリープ強度式により、保持時間 t_R (h)を得た。 t_R (h)と照射履歴から、CDF を計算し 0.5 未満となることを確認した。なお、以上は、被覆管材として想定している 9Cr-ODS フェライト鋼(以下、ODS 鋼)被覆管材の外面腐食式、クリープ強度式[32]を用いて計算した。計算においては、既往研究を踏まえ、燃料寸法、燃料密度、被覆管厚さ、被覆管温度計算などの不確かさを考慮した[37]。燃焼度予測の不確かさを考慮するため、核計算で得られた燃焼度に 1.03 を乗じてノミナル値の計算を行っている[10]。

高濃度 MA 含有金属燃料の CDF は、FCCI による内面減肉の抑制のためのバリア材を適用することを想定して計算した。数 $10\ \mu\text{m}$ のバリア材を使用した FCCI 抑制に関する既往研究[38]を踏まえ、ここでは、 $50\ \mu\text{m}$ 程度のバリア材を被覆管内面に適用することを想定した。このバリア材層は被覆管減肉として扱った。したがって、高濃度 MA 含有金属燃料では、燃焼初期から被覆管厚が $50\ \mu\text{m}$ 薄いが、FCCI による減肉は生じないとの条件とした。

本検討では、MA 核変換に特化した炉心の検討を行っているため、熱設計における成立性確保のためには、冷却材出入口温度の変更を可とした。上記の被覆管最高温度および CDF の条件を踏まえ、 9000kg/s の炉心流量(冷却材出入口温度差 155°C)としつつ、CDF の制限値を満たす冷却材出入口温度を計算した。

④炉心核および熱流力設計

1) 基準炉心

a) 狙い

高速炉平衡期において、高速炉サイクルを維持できる増殖比を確保できる炉心概念を検討した。サイクルにおけるロスなども踏まえ、平衡期の増殖比目標は 1.03 とした(ここでは炉心燃料のみで増殖比 1.03 を達成できる炉心を構築し、軸方向ブランケット燃料を追加することで増殖も可能とする仕様を想定した)。

b) 内容

既往検討により、SiC/SiC 複合材ラップ管は、冷却材 Na ボイド反応度やドップラ係数の改善のみならず、増殖比や高速中性子照射量の改善にも効果があることが分かっている[39][40][41]。そこで、高速炉平衡期炉心にも SiC/SiC 複合材ラップ管を使用することとした。その上で、炉心形状を調整することによる増殖比改善を行った。SiC/SiC 複合材の密度は製造方法等によって異なるが、ここでは既往研究を踏まえ 3.0g/cm^3 とした[42]。

なお、本検討の目標である MA 核変換および増殖比は、炉心形状に対して相反する要求となる。高い MA 核変換量達成のためには中性子が漏れやすい扁平化した炉心形状とすることで、MA による冷却材 Na ボイド反応度の悪化を改善する必要がある。一方、中性子が漏れやすい扁平化炉心では増殖性が悪化する。ただし、本炉心概念では、SiC/SiC 複合材減速集合体により冷却材 Na ボイド反応度およびドップラ係数を大幅に改善できることから、高速炉平衡期の増殖比目標を達成できる炉心形状を優先することとした。

高速炉平衡期炉心の基準炉心としている表 3.1.2-3 の炉心は、冷却材 Na ボイド反応度を低減するため、扁平な炉心としているため、高速炉平衡期においては目標とする増殖比を確保できない。サーベイ計算により、同炉心において、高速炉平衡期の燃料組成で増殖比目標 1.03 を確保できる炉心形状を検討した。

c) 結果

表 3.1.2-8 に、平衡期組成で計算した炉心の特性を示す。Case1-1-1～Case1-1-3 は、炉心に装荷する燃料の物量を保存しつつ、炉心形状を変えている。また、これらのケースには SiC/SiC 複合材ラップ管を採用している。同表には、参考として、SiC/SiC 複合材ラップ管を使用しない高速炉平衡期炉心の基準炉心(表の基準炉心)の特性も示している。Case1-1-1 では、革新技術である SiC/SiC 複合材ラップ管を使用することで、基準炉心に比較して、増殖比を 3%、また、高速中性子照射量を約 10%改善できることを確認した。

Case1-1-1～Case1-1-3 では、炉心高さを 84～95cm において、増殖比をサーベイした。高さを 95cm とすることで、目標とする増殖比を達成できた。

Case1-1-3 は従来の金属燃料の高速中性子照射量($5.4 \times 10^{23}\text{n/cm}^2$) [10]に比較して、余裕があるため、さらに運転サイクルを延長できる可能性がある。Case1-2 にて、上記の既往検討における照射量および増殖比目標を満たす範囲で、約 10%運転サイクル長さを延長できることが分かった。なお、Case1-2 は、燃料の取り出し平均燃焼度が増加するが、燃料照射試験実績がある範囲である。

以降は、上述の 95cm 高さの炉心を対象として検討を実施する。同炉心の配置図は図 3.1.2-4 に示す通りである。

2) 装荷方法の検討

a) 狙い

95cm の高さの炉心の寸法・形状における MA 核変換炉心としての成立性を確認するため、基準炉心に高濃度 MA 含有金属燃料および SiC/SiC 複合材減速集合体を装荷した炉心の特性を評価した。

また、優れた SiC/SiC 複合材減速集合体の配置を検討するため、平成 30 年度に検討した MA 核変換炉心で採用したリング状装荷 (Case2-1) と炉内に分散して装荷する方法 (Case2-2) につき、炉心特性への影響を比較した。

さらに、優れた特性を示した炉心において、少数体の Zr-H 減速集合体を炉内に装荷した時の炉心特性を計算し、影響を評価した。

b) 内容

装荷方法を比較するにあたり、装荷方法以外による炉心特性への影響を可能な限り排除するため、全炉心に同数の SiC/SiC 複合材減速集合体を装荷した。配置図を図 3.1.2-5 に示す。

リング状装荷および分散装荷は、いずれも高濃度 MA 含有金属燃料のほとんどが SiC/SiC 複合材減速集合体に隣接することから、中性子減速によるドップラ係数等の炉心特性影響は同等となると期待される。一方、分散装荷は、燃料や SiC/SiC 複合材減速集合体を均質に配置していることから、局所的な出力ピークの回避の観点で優れると考えられる。

また、上記で優れた特徴を示した分散装荷炉心を対象として、MA 核変換量の最適化のため、Zr-H 減速集合体を炉内に装荷した時の炉心特性を計算し、影響を評価した。

c) 結果

表 3.1.2-9 に、SiC/SiC 複合材減速集合体をリング状装荷および分散装荷した炉心の特性を示す。いずれの炉心も安全上の制限目安である冷却材 Na ボイド反応度および $V/|D|$ は成立している。なお、本結果では、分散装荷よりもリング状装荷の方が $V/|D|$ 比を低く抑えることができているが、これは炉心特性への影響が大きい内側炉心領域への装荷体数の違いによると考えられる。分散装荷は、図 3.1.2-5 のように一定間隔を取って SiC/SiC 複合材減速集合体を装荷しているため、炉心特性への影響が比較的大きい内側炉心領域への装荷体数がリング状装荷に比較して少なくなっている。

最大線出力は、分散装荷炉心の方が低く抑えることができた。リング状装荷では制限値を超過してしまっている。最大線出力分布を図 3.1.2-6 に示す。リング状装荷では、炉心中心付近および外側炉心と内側炉心の境界領域 (SiC/SiC 複合材減速集合体に隣接する領域) で最大線出力が高い領域が生じてしまっている。一方、分散

装荷では、炉心中心付近、内側および外側炉心領域の境界などの領域での局所的なピークの発生を抑制できている。リング状装荷に比較し、分散装荷では、最大線出力を約 20%、また、高速最大中性子照射量を約 30%低減できた。

以上を踏まえると、最大線出力および高速最大中性子照射量の低減の観点から、分散装荷方法が有利であると考えられる。

ここで、分散装荷 (Case2-2) の内側炉心領域の集合体 9 体を SiC/SiC 複合材減速集合体から Zr-H 減速集合体に置換した炉心 (Case2-3) の特性を計算し、影響を評価した。

Case2-3 は、Case2-2 に比較し、冷却材 Na ボイド反応度の改善の効果はあるが、ドップラ係数は悪化した。受動的安全性上重要となる両者の比で比較すると、SiC/SiC 複合材減速集合体の方が有利との結果を確認した。また、最大線出力が過大となってしまうている。Zr-H 減速集合体は、隣接する燃料の最大線出力の増加が顕著であるが、SiC/SiC 複合材減速集合体は大きな出力の増加は生じていない。したがって、受動的安全性および出力分布を成立させ、高い MA 核変換量を確保する観点で、SiC/SiC 複合材は Zr-H に比較して優れていることを確認した。

3) 燃料組成および除染係数に関するサーベイ

a) 狙い

これまでの検討は、LWR-UOX 使用済燃料を乾式再処理する際に、MA を添加した高濃度 MA 含有金属燃料組成を想定した計算を実施してきた。また、希土類 FP 含有量は、2vol%(1wt%)と想定してきた。しかし、上記と異なるサイクル条件も想定されるため、他の燃料組成、希土類 FP 含有量でも炉心を柔軟に運用できることを確認する必要がある。

そこで、本検討では、3.2 乾式再処理技術開発および 3.3 MA 回収・核変換シナリオと Pu/MA 収支の検討に資するため、回収 Pu/MA 組成および希土類除染係数をパラメータとした炉心特性および MA 核変換特性への影響評価を実施した。ここでは、LWR-MOX 使用済燃料に MA を添加した高濃度 MA 含有金属燃料組成を装荷した時の炉心特性を計算した。また、希土類 FP 含有量が増加した時の炉心特性を計算し、影響を評価した。

b) 内容

Case2-2 の SiC/SiC 複合材減速集合体を分散装荷した炉心を対象とし、燃料組成、希土類 FP 含有量が増加した時の炉心特性を計算し、影響を評価した。燃料組成として、LWR-MOX 使用済燃料に MA を添加した高濃度 MA 含有金属燃料組成を装荷した時の炉心特性を計算した (Case3-1-1 および Case3-1-2)。また、希土類 FP 含有量は、2vol%(1wt%)と想定してきた。この含有量を 0vol%および 4vol%とした時の炉心特性を計算した (Case3-2-1 および Case3-1-2)。

c) 結果

表 3.1.2-10 に、LWR-MOX 使用済燃料回収 TRU に MA を添加した組成の炉心の特性を示す。MA:Pu=1:1 とした組成を用いた Case3-1-1 では、受動的安全性の制限目安を満たすことができないとの結果となった。そこで、制限目安を満たす範囲までに MA 添加量を制限した。Case3-1-2 では、MA/Pu=0.90 とすることで受動的安全性の制限目安を満たすことを確認した。なお、Case3-1-2 および Case2-2 の単位出力当たりの MA 核変換量は約 450 および 460kg/GWe-y (稼働率考慮) であり、LWR-MOX 使用済燃料起源の高濃度 MA 含有金属燃料を装荷した場合でも、炉心が成立すると共に MA 核変換量への大きな影響はないことを確認できた。

サイクル上、LWR-MOX 使用済燃料やさらなる高燃焼度の燃料など、Pu の高次化した組成を使用するケースが想定される。その場合、乾式再処理する際に添加する MA 量を炉心安全性の制限目安を満たす範囲で調整することで柔軟に運用できることを確認した。

希土類 FP 含有量を 0vol% および 4vol% とした時の炉心特性影響を表 3.1.2-10 に Case3-2-1 および Case3-2-2 として示す。希土類 FP 含有量が増加するに従って、増殖比低下、冷却材 Na ボイド反応度増大、ドップラ係数絶対値低下などの特性悪化が生じた。希土類 FP 含有量が 4vol% 増加により $V/|D|$ 比が約 10% 悪化した。炉心性能改善の観点で希土類 FP 含有量低減が重要であることを確認した。炉心性能の観点ではなるべく希土類 FP 含有量が少ない方が望ましいが、再処理プロセスへの負荷とのバランスで検討する必要がある。

4) 選定した炉心概念の詳細評価

a) 狙い

高速炉導入初期における高い MA 核変換と高速炉平衡期におけるサイクルを維持できる増殖比を同一形状の炉心において達成できることを確認するための計算を行ってきた。ここでは、さらに、詳細に成立性を確認するため、制御棒挿入時の炉心特性、制御反応度収支および燃料健全性評価を実施した。

b) 内容

これまでの検討で得られた 95cm の炉心高さの平衡期炉心 (Case1-2) および MA 核変換炉心 (Case2-2) につき、制御棒挿入時の炉心特性 (最大線出力、制御反応度収支の成立性確認) を計算した。また、高濃度の MA を含有し、燃料挙動が厳しくなる Case2-2 につき、熱流力設計を実施した。

c) 結果

表 3.1.2-11 に、選定炉心 (Case1-2 および Case2-2) の制御棒挿入時の炉心特性の評価結果を示す。最大線出力、また、最大高速中性子照射量は、制御棒挿入状態においても制限目安を満たすことを確認した。他の特性は、制御棒全抜状態で評価し

た表 3.1.2-8 および表 3.1.2-9 の結果と大きな差はない。

制御反応度収支を評価した結果を表 3.1.2-12 に示す。Case1-2 および Case2-2 の炉心のいずれも制御反応度収支が成立することを確認した。

制御棒挿入状態で評価した出力分布を用い、燃料挙動が厳しくなる Case2-2 につき、熱流設計を実施した。冷却材入口温度を 330℃とし、被覆管最高温度制限を満たすように、各集合体の必要流量を評価し、流量領域配分を決定した。結果を表 3.1.2-13 に示す。次に、各領域について、累積損傷和の計算を行った。結果は、表 3.1.2-14 に示す通りであり、成立しない。そこで、表 3.1.2-15 の通り、CDF が成立するように各流量領域の流量を増加させた。この時の流量は表 3.1.2-16 に示す通り、全炉心流量 9000kg/s に対して約 90%であり、余裕がある。ただし、領域流量が最も高くなる外側炉心第一流量領域は、約 47kg/s の流量となり、従来に比較して高流量となり、ループ型炉の圧力損失制限を超過してしまうと考えられる。ただし、既往検討では、プール型炉では流量が 50kg/s、圧力損失 0.4MPa 程度の設計例もある[43]。そこで、ループ型プラントを前提とした 330℃の入口温度の炉心を想定し、上記流量配分設計を採用した。

以上のように、選定炉心の成立性を確認した。選定炉心は、表 3.1.2-11 に示す通り、稼働率を考慮した MA 核変換量は約 460kg/GWe-y であり、参考とした MA 均質装荷 MOX 燃料炉心(約 50 kg/GWe-y)に比較して約 8 倍以上、平成 28-平成 29 年度に検討した高濃度 MA 含有金属燃料非均質装荷・MOX 燃料炉心(約 90 kg/GWe-y)に比較して約 5 倍の MA 核変換量を達成できることを確認した。

5) 課題

以上のように、高速炉平衡期炉心および MA 核変換炉心の検討を実施してきたが、次のような将来課題があると考えている。

核設計においては、さらなる精緻な計算が必要と考えている。本研究では、決定論の 7 群拡散燃焼計算、反応度特性については 70 群拡散計算を実施した。反応度、中性子減速による局所熱出力の増加などの影響については、連続エネルギーモンテカルロ法などを適用することで、減速効果につきより精緻な結果が得られると考えられる。熱設計についてもサブチャンネル解析適用により、精緻な結果が得られると考えられる。また、受動的安全性の成立性につき、既往検討を踏まえた暫定的な指標により成立性見込みの判断をしているが、過渡解析による確認が必要である。

設計以外に、検討した炉心の実現のためには、He ボンド・下部プレナム燃料、SiC/SiC 複合材のラップ管および減速集合体の開発などが必要である。SiC/SiC 複合材については、Na 中浸漬試験データの拡充、ラップ管や減速要素の製造技術、SiC/SiC 複合材ラップ管と他部材(ハンドリングヘッドおよびエントランスノズル)の接合技術、設計用技術類の整備、照射試験などが必要と考えられる。なお、Na 中浸漬試験については、過去に例があり、大きな材料強度低下や過大な Na への溶出は生じないことは確認されているが[44, 45, 46]、試験温度や供試材の種類拡充な

ど、設計に必要な知見の拡充が必要と考えられる。また、MA核変換炉心から高速炉平衡期炉心に変更する際には、流量が少ないSiC/SiC複合材減速集合体の装荷位置に燃料集合体を装荷することになるため、炉心流量を柔軟に調節するための技術も必要と考えられる。

⑤ 結論

平成30年度に実施した「MA核変換用金属燃料炉心の設計」で検討した炉心を基に、冷却材ボイド反応度低減に有効なSiC/SiC複合材等を用いた炉心を設計した。令和元年度の炉心設計においては、平成30年度炉心の仕様を調整することで、1つの炉心において、MA核変換のみならず、高速炉平衡期にも持続的に運転可能とできるように、核的な観点での検討を実施した。その上で選定した炉心において、革新技術による炉心特性およびMA核変換量の改善効果を定量評価した。

高速炉平衡期においては、革新技術であるSiC/SiC複合材ラップ管を使用することとした。この革新技術採用により、ステンレス鋼ラップ管の炉心に比較し、増殖比を約3%向上、高速中性子照射量の約10%低減が可能となった。また、高速中性子照射量が低減される分、運転サイクルを延長可能(10%)となった。

同炉心仕様にて、LWR-UOXを乾式再処理する際に湿式再処理回収MAを添加して製造した高濃度MA含有金属燃料を全炉心に装荷したMA核変換炉心の最適化について検討を行った。SiC/SiC複合材減速集合体をリング状または分散装荷することで、高いMA核変換量を達成しつつ、受動的安全性を確保できる炉心を構築できる見込みが得られた。また、装荷方法の比較により、分散装荷方法は、リング状装荷方法に比較し、最大線出力を約20%低減できることが分かった。分散装荷方法を適用することで、設計上の制限目安を満たす炉心を設計することができた。以上の結果、MA均質装荷MOX燃料炉心に比較して約8倍以上、高濃度MA含有金属燃料非均質装荷・MOX燃料炉心に比較して約5倍のMA核変換量を達成できることが分かった。

3.2 乾式再処理技術開発および3.3 MA回収・核変換シナリオとPu/MA収支の検討に資するため、上記のMA核変換炉心を対象として、水素化ジルコニウム減速材によるMA核変換量の最適化、回収Pu/MA組成および希土類除染係数をパラメータとした炉心特性およびMA核変換特性への影響評価を実施した。水素化ジルコニウムを使用した減速集合体を炉内に装荷した炉心の特性を計算し、冷却材Naボイド反応度の改善の効果があることを確認した。しかし、最大線出力等が悪化することから、MA核変換量の最適化の観点ではSiC/SiC複合材の減速集合体の方が優れることを確認した。また、異なる燃料組成としてLWR-MOXに湿式再処理回収MAを添加して製造した高濃度MA含有金属燃料を装荷した場合でも、MA含有量を調整することで、安全上の制限値を満たす炉心を構築できることを確認した。さらに、希土類FP元素有率による炉心特性影響を評価し、希土類FP重量割合が増加すると、増殖比、燃焼反応度、冷却材Naボイド反応度、ドップラ係数等の悪化を招くため、希土類FP低減は本炉心の成立性上重要であることを確認した。

以上で得られた高速炉平衡期炉心および MA 核変換炉心につき、制御反応度収支の成立性を確認した。また、燃料挙動が厳しくなる MA 核変換炉心につき、流量配分設計、燃料健全性評価を実施した。プール型プラントにて、出入口温度 330/485℃、冷却材流量を約 50kg/s 程度とすることで本研究で設計した炉心を運用できる見通しが得られた。

【3.1.2の参考文献】

- [1] K. Ohgama et al., “Comparison and Sensitivity Analysis of the Core Characteristics of a Sodium-cooled Fast Breeder Reactor with 750 MWe Output Evaluated by JENDL- 4.0 and ADJ2000R”, J. Nucl. Sci. Technol., 51, 558-567 (2014).
- [2] T. Ogata, T. Mizuno, “Directions of metal fuel development for fast reactors”, Proc. Global 2009, September 6-11, Paris, (2009).
- [3] H. Ohta, T. Ogata, D. Papaioannou, M. Kurata, T. Koyama, J. P. Glatz, V. Rondinella, “Development of fast reactor metal fuels containing minor actinides”, J. Nucl. Sci. Technol., 48, 654-661 (2011).
- [4] 倉田正輝他, 「長半減期核種の消滅処理技術の開発-超ウラン元素含有合金の製造とその特性把握-」, 電力中央研究所 研究報告T92005 (2008年10月).
- [5] K. Ohgama et al., “Design study of a 750 MWe Japan sodium-cooled fast reactor with metal fuel”, Proc. ICAPP2017, April 24-28, Fukui and Kyoto (2017).
- [6] 平成27年度 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 「放射性廃棄物減容・有害度低減技術研究開発タイプA」 「柔軟性の高いMA回収・核変換技術の開発」 成果報告書 (2017年3月).
- [7] S. Nakanishi et al., “Development of passive shutdown system for SFR”, Nuclear Technology, 170(1), 181-188, (2010).
- [8] 岡野靖他, 「金属燃料の特性を活かした魅力的な高速炉炉心の検討 (3) 下部ガスプレナム型金属燃料炉心の炉心特性及び流量過渡特性に関する検討」, 日本原子力学会2010年春の年会, H37 (2010年3月).
- [9] 植松真理マリアンヌ他, 「金属燃料高速炉の炉心・燃料設計に関する研究(4), (5)及び(6) 2009-2012年共同研究報告書」, JAEA-Research 2012-041, (2013年2月).
- [10] 大木繁夫他, 「ナトリウム冷却炉の炉心・燃料設計検討(金属燃料炉心)-2005年度報告-」, JAEA-Research 2006-077 (2006年11月).
- [11] T. Mizuno, H. Niwa, “Advanced MOX Core Design Study of Sodium-cooled Reactors in Current Feasibility Study on Commercialized Fast Reactor Cycle System in Japan”, Nucl. Technol. 146, 155-163, (2004).
- [12] S. Maruyama et al., “Correlations among FBR core characteristics for various fuel compositions”, J. Nucl. Sci. Technol., 49, 640-654 (2012).
- [13] T. Kan et al., “Core design of the next-generation sodium-cooled fast reactor in Japan”, Proc. ICAPP2017, April 24-28, Fukui and Kyoto (2017).
- [14] 太田宏一他, 「共同研究報告書 金属燃料高速炉の炉心燃料設計に関する研究(平成12年度)」, JNC TY9400 2001-015, (2001).
- [15] H. Ohta et al., “Development of fast reactor metal fuels containing minor actinides”, J. Nucl. Sci. Technol., 48, 654-661 (2011).
- [16] 植田伸幸, 「金属燃料FBRの炉心損傷解析コードの開発と冷却材ボイド反応度制限の評

- 価」，電力中央研究所 研究報告T01002 (2001年6月).
- [17] 尾形孝成他，「金属燃料要素の溶融線出力の評価」，電力中央研究所 研究報告L08001 (2008年7月).
- [18] 「高速増殖炉サイクルの実用化戦略調査研究 フェーズII技術検討書-(1)原子炉プラントシステム-」，JAEA-Research 2006-042, (2006年6月).
- [19] A. B. Cohen et al., “Fuel/cladding compatibility in U-19Pu-10Zr/HT9-clad fuel at elevated temperatures”, J. Nucl. Mater, 204, 244-251 (1993).
- [20] K. Nakamura, et al., “Reactions of Uranium-Plutonium alloys with Iron”, J. Nucl. Sci. Technol, 38, 112-119 (2001).
- [21] 大木繁夫他，「次世代高速炉の炉心設計手法(1)炉心設計手法の概要」，日本原子力学会，2012年春の年会，F13 (2012年3月).
- [22] K. Ohgama et al., “Model verification and validation procedure for a neutronics design methodology of next generation fast reactors”, Proc. ICAPP2017, April 24-28, Fukui and Kyoto (2017).
- [23] K. Shibata et al., “JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering”, J. Nucl. Sci. Technol., 48, 1-30 (2011).
- [24] 杉野和輝他，「JENDL-4.0に基づく高速炉用炉定数UFLIB, J40及びJFS-3-J4.0の作成」，JAEA-Data/Code 2011-017 (2012年1月).
- [25] T. Hazama et al., “Development of a Fine and Ultra-fine Group Cell Calculation Code SLAROM-UF for Fast Reactor Analyses”, J. Nucl. Sci. Technol., 43, 908-918 (2006).
- [26] T. B. Fowler, D. R. Vondy, G. R. Cunningham, Nuclear Reactor Core Analysis Code: CITATION, ORNL-TM-2496, Rev.2, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge (TN), USA (1971).
- [27] 宇佐美晋他，「3次元拡散燃焼設計コードMODIFの整備と検証(1)」，日本原子力学会2002年春の年会，(2002年3月).
- [28] 横山賢治他，「汎用炉心解析システムMARBLE2の開発」，JAEA-Data/Code 2015-009 (2015年7月).
- [29] Thermophysical properties of sodium, ANL-7323 (1967).
- [30] O. E. Dwyer, At. Energy Rev. 4, 3 (1966)
- [31] R. N. Lyon, Chem. Eng. Progr. 47, 75 (1951).
- [32] 皆藤威二，「ODSフェライト鋼被覆管の材料強度基準(暫定案)」，JNC TN9400 2005-015 (2005年2月).
- [33] 永沼正行他，「ナトリウム冷却炉の炉心・燃料設計検討(MOXおよび金属燃料炉心)-2004年度報告-(研究報告)」，JNC TN9400 2005-051, (2005年9月).
- [34] S.B. Ludwig and A.G. Croff, “Revision to ORIGEN2 - Version 2.2”, Transmittal memo of CCC-0371/17, Oak Ridge National Laboratory (2002).
- [35] 須山賢也，「ORIGEN2.2 コードの核分裂収率を取り扱うルーチンの問題」，核データニュー

- ス, No. 83 (2006年2月)
- [36] 奥村啓介他, 「JENDL-4.0に基づくORIGEN2用断面積ライブラリセット: ORLIBJ40」, JAEA-Data/Code 2012-032 (2013年3月).
- [37] 永沼正行他, 「ナトリウム冷却炉の炉心・燃料設計検討(MOX燃料炉心)-2003年度報告-(研究報告)」, JNC TN9400 2004-039 (2004年6月).
- [38] H. J. Ryu et al., “Performance of FCCI barrier foils for U-Zr-X metallic fuel,” J, Nucl. Mater., 392, 206-212 (2009)
- [39] 小林登他, 「SiC減速材を用いた金属燃料高出口温度型炉心の検討」, 日本原子力学会2007年秋の大会, D37 (2007年9月).
- [40] 小川隆他, 「SiC減速材を用いた金属燃料高出口温度型炉心の検討2 SiCを構造材に用いた炉心の検討」, 日本原子力学会2008年春の年会, K39 (2008年3月).
- [41] 平成30年度 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 「放射性廃棄物減容・有害度低減技術研究開発タイプA」 「柔軟性の高いMA回収・核変換技術の開発」 成果報告書 (2019年3月).
- [42] 平成17年度 文部科学省 革新的原子力システム技術開発公募事業 「高効率・環境調和型超高温ガス冷却高速炉炉心構造体の先進材料システム開発」 成果報告書 京都大学 (平成18年3月).
- [43] N. E. Stauff, K. Ohgama, G. Aliberti, S. Oki, T. K. Kim, “Tradeoff analysis of metal-fueled fast reactor design concepts”, Proceedings of ICAPP 2017, (2017).
- [44] 舘義昭, 「高温液体ナトリウムによる各種セラミックスの腐食特性」, PNC-TN9410-93-106, (1993).
- [45] 林和範他, 「高温ナトリウムによるセラミックス曲げ強度変化」, PNC-TN9410-98-021, (1998).
- [46] 吉田英一, 「材料分野におけるナトリウム技術報告-高温ナトリウム環境中の材料腐食・強度特性等について-」, JAEA-Review 2013-026, (2013).
- [47] M. Salvatores, et al., “Uncertainty and target accuracy assessment for innovative systems using recent covariance data evaluations”, NEA/WPEC-26, OECD/NEA (2008).

表3.1.2-3 中型金属燃料炉心Na冷却高速炉の仕様

項目	単位	平衡期	MA核変換用
炉心熱出力/電気出力 ^{*1}	MW	1765/750	1765/750
運転サイクル長さ	日	709	709
燃料交換バッチ	-	3	3
炉心高さ	mm	840	840
炉心燃料体数	体	144/249	90/195
制御棒本数(主炉停止系/後備炉停止系)	本	12/4	12/4
径方向反射体(ステンレス鋼)/遮蔽体(Zr-H)	体	78/174	78/174
SiC/SiC複合材減速集合体	体	0	108
集合体配列ピッチ	mm	174.2	174.2
炉心等価直径/遮蔽体外接円径	m	3.70/4.70	3.70/4.70

^{*1} 冷却材出入口温度 395/550℃とした場合の電気出力。本検討では出入口温度を調整するため、最終的に評価した炉心の電気出力は、基準炉心と異なる。

表3.1.2-4 燃料仕様

項目	平衡期炉心用	MA核変換炉心用
燃料集合体		
集合体配列ピッチ (mm)	174.2	174.2
集合体間ギャップ (mm)	4.8	4.8
ラップ管材	SiC/SiC複合材	SiC/SiC複合材
ラップ管外対面 / 内体面間距離 (mm)	169.4 / 159.4	169.4 / 159.4
ラップ管肉厚 (mm)	5.0	5.0
炉心燃料要素		
炉心燃料要素本数 (本)	271	331
炉心燃料高さ (mm)	840.0~950.0 ^{*1}	840.0~950.0 ^{*1}
軸方向ブランケット厚さ[上/下] (mm)	0 [0/0]	0 [0/0]
被覆管材	ODS鋼 ^{*2}	ODS鋼 ^{*2}
被覆管外径 / 内径 (mm)	8.50 / 7.50	7.60 / 6.70
肉厚 (mm)	0.50	0.45
上部 / 下部ガスプレナム長さ(mm)	300.0~190.0 / 1300.0 (暫定) ^{*3}	300.0~190.0 / 1300.0 (暫定) ^{*3}
ワイヤスペーサ径 (mm)	1.00	1.00
ワイヤスペーサ巻付ピッチ (mm)	200.0	200.0
燃料		
形状	粒子型 or 中空スラグ ^{*4}	粒子型 or 中空スラグ ^{*4}
材質	U-TRU-Zr合金 ^{*5}	U-TRU-Zr合金 ^{*5}
燃料スミア密度[炉心/軸方向ブランケット] (%TD)	70/75	75/75
Zr含有率(wt%)	10/6	10/6

^{*1} 燃料スエリング8%を考慮して所定の高さとなるように、新燃料の高さを調整。炉心高さはサーベイパラメータ。

^{*2} 酸化物分散強化型(ODS)フェライト鋼。

^{*3} 熱設計検討用に、平成29-30年度の金属燃料と同じ上下部のプレナム長さを暫定。84.0cm以上の炉心高さのケースでも燃料全長を変えず、炉心高さを長くした分、上部プレナムを削減することを想定。

^{*4} 粒子型燃料などのボンドNaを使用しない燃料概念を想定。

^{*5} Pu富化度は内側および外側炉心燃料で同じ。各炉心において条件を満たすように調整。

表 3.1.2-5 計算用燃料組成

核種	組成 1 * ¹	組成 2 * ²	組成 3 * ³	組成 4 * ⁴	組成 5 * ⁵
Pu-238	1.7	2.3	2.0	1.8	1.1
Pu-239	46.7	46.3	54.0	37.5	66.0
Pu-240	23.6	23.1	28.0	31.1	25.2
Pu-241	2.0	11.6	7.0	3.8	2.4
Pu-242	6.7	6.7	8.0	9.0	2.4
Np-237	6.2	5.8	-	0.7	0.4
Am-241	11.5	2.3	1.0	13.5	1.6
Am-242m	0.0	0.0	-	0.0	0
Am-243	1.4	1.4	-	2.2	0.5
Cm-244	0.2	0.5	-	0.3	0.4
Cm-245	0.0	0.0	-	0.1	0.1
合計	100.0	100.0	100.0	100.0	100
Puf/Pu	0.60	0.64	0.61	0.50	0.70
MA/TRU	0.19	0.10	0.01	0.17	0.03

*¹ PWR 使用済 UOX 燃料(49Gwd/t)および BWR 使用済 UOX 燃料(45Gwd/t)を平均(以下、LWR 使用済燃料平均組成)し、低除染 TRU 一括回収再処理・炉外時間 40 年想定[12, 13].

*² LWR 使用済燃料平均組成を 6 年冷却、高除染再処理後 2 年を想定 [12].

*³ LWR 使用済燃料平均組成を 15 年冷却、高除染再処理後 2 年を想定 [12, 13].

*⁴ LWR-MOX 使用済燃料(33Gwd/t)を 30 年冷却、乾式再処理を想定 [6].

*⁵ 高速炉平衡期の多重リサイクル組成 [14].

表 3.1.2-6 設計制限目安

項目		基準
炉心	冷却材ナトリウムボイド反応度	約 8%
	受動的安全性	冷却材 Na ボイドとドップラ係数絶対値の比が $2.4\%/10^{-3}\text{Tdk/dT}$ を大きく超えない. * ¹
燃料	最大線出力	500W/cm 以下
	被覆管最高温度 * ¹	650°C * ²
	累積損傷和	0.5 未満
	最大高速中性子照射量	約 $5.5 \times 10^{23}\text{n/cm}^2$ ($E_n > 0.1\text{MeV}$)

*¹ 保守性を考慮し、既往研究[8]における上部プレナム構造の炉心の ULOF-SASS を踏まえ暫定。下部プレナムの本炉心ではさらに安全上の余裕がある。

*² 工学的安全係数を考慮した被覆管温度。

表 3.1.2-7 工学的安全係数

処理方法	項目	金属燃料		
		ΔT_{Na}	ΔT_{film}	ΔT_{clad}
乗算項 *1	出力分布誤差	1.05	1.05	1.05
	炉心熱出力較正誤差		1.02	1.02
	流路変形効果	1.026		
	流量配分誤差	1.04		
	原子炉出入口温度誤差	1.01		
	ワイヤコンタクト効果		1.50	
統計項 *2	炉内流量配分誤差	1.026		
	物性値誤差	1.02	1.30	1.03
	各部製造公差	1.035	1.07	1.08
	ペレット/スラグ偏心効果		1.04	1.08

*1 既往研究[10]で設定した乗算項を適用(ただし、既往研究で考慮した出力分布誤差の合理化は考慮しない)。

*2 既往研究[10]で設定した統計項を適用。

*3 以上から乗算項を合計して 1.14、乗算項および統計項を合計して 1.20 との工学的安全係数を
得て設計検討に使用した。

表 3.1.2-8 平衡期炉心の特性評価

項目	単位	炉心高さ検討			運転サイクル延長	ステンレス鋼ラップ管		
		Case1-1-1	Case1-1-2	Case1-1-3	Case1-2	参考		
炉心基本仕様	炉心熱出力	MWt	1765	1765	1765	1765	1765	
	運転サイクル長さ	d	709	709	709	780	709	
	燃交バッチ数	-	3	3	3	3	3	
	炉心高さ	cm	84.0	90.0	95.0	95.0	84.0	
	軸方向ブランケット厚さ(上/下)	cm	-	-	-	-	-	
	炉心燃料体数(内側/外側)	体	144/249	120/243	120/231	120/231	144/249	
	制御棒本数(PCR/BCR) *1	本	12/4	12/4	12/4	12/4	12/4	
	径方向遮へい体数 (ステンレス鋼/Zr-H)	体	78/174	72/162	72/162	72/162	78/174	
	SiC/SiC複合材減速集合体数	体	0	0	0	0	0	
	炉心等価直径	m	3.70	3.56	3.50	3.50	3.70	
	遮へい体外接円直径	m	4.70	4.53	4.48	4.48	4.70	
	燃料仕様	集合体配列ピッチ ラップ管材 ピン径/ピン本数 スマリア密度(内/外)	mm - - %TD	174.2 SiC/SiC複合材 8.5mm/271本 70/75	174.2 SiC/SiC複合材 8.5mm/271本 70/75	174.2 SiC/SiC複合材 8.5mm/271本 70/75	174.2 SiC/SiC複合材 8.5mm/271本 70/75	174.2 ステンレス鋼 8.5mm/271本 70/75
	燃料組成	組成 MA/Pu	- -	高速炉多重リサイクル -	高速炉多重リサイクル -	高速炉多重リサイクル -	高速炉多重リサイクル -	
炉心特性	Pu富化度*2	内側炉心燃料 外側炉心燃料	wt% wt%	13.3 13.3	12.7 12.7	12.3 12.3	12.5 12.5	13.5 13.5
	MA含有率*3	内側炉心燃料 外側炉心燃料	wt% wt%	0.4 0.4	0.4 0.4	0.4 0.4	0.4 0.4	0.4 0.4
	Pu-fissile富化度 (内側/外側) *4		wt%	9.3 9.0	9.0 9.0	8.7 8.7	8.8 8.8	9.5 9.5
	制御棒挿入深度 PCR(BOC/MOC/EOC) *1,5		cm	全抜き	全抜き	全抜き	全抜き	全抜き
	燃焼欠損反応度		%Δk/kk'	1.16	0.75	0.32	0.67	1.81
	増殖比 *6		-	1.00	1.03	1.05	1.04	0.97
	最大高速中性子束(E>0.1MeV)		×10 ¹⁵ n/cm ² s	2.5	2.6	2.7	2.7	2.7
	最大高速中性子照射量(E>0.1MeV)		×10 ²³ n/cm ²	4.6	4.8	5.0	5.4	5.0
	最大線出力	内側炉心燃料 外側炉心燃料	W/cm W/cm	288 337	300 342	308 340	306 339	289 340
	取り出し平均燃焼度(炉心平均)		GWd/t	92	93	91	100	92
	出力分担率(内側炉心/外側炉心) *6		%	42.7/57.3	39.4/60.6	41.5/58.5	41.3/58.7	42.6/57.4
	炉心部平均比出力(炉心平均)		kW/kg	43.3	43.5	42.7	42.7	43.3
	初装荷Pu-fissile重量		t/GWe	5.07	4.86	4.79	4.85	5.17
	実効遅発中性子割合 *7		-	3.63E-03	3.65E-03	3.66E-03	3.65E-03	3.59E-03
	冷却材Naボイド反応度 *7,8		\$	5.2	5.4	5.6	5.7	5.9
	ドップラ係数 *7,9		T dk/dT	-4.59E-03	-4.65E-03	-4.76E-03	-4.61E-03	-3.26E-03
	V/D比 *7,10		×10 ³ \$/T dk/dT	1.14	1.17	1.18	1.23	1.81
	MA装荷量		kg/Batch	56	53	53	53	57
	MA核変換率		%	-5.3	-5.9	-6.5	-6.7	-4.3
単位発電量当たりのMA変換量 ()内は稼働率*11を考慮した時の値		kg/GWe-y	-2 (-2)	-2 (-2)	-2 (-2)	-2 (-2)	-2 (-2)	

*1 PCR: 主炉停止系制御棒、BCR: 後備炉停止系制御棒 *2 Pu/HM. *3 MA/HM. *4 Pu-f/HM. *5 BOC: 運転サイクル初期、MOC: 運転サイクル中期、EOC: 運転サイクル末期。

*6 サイクル平均、*7 平衡炉心サイクルの初期、中期および末期の最も保守的な評価結果、*8 燃料バンドル部の冷却材Naのみボイド化、*9 燃料温度を+500K昇温して計算。

*10 冷却材Naボイド反応度とドップラ係数絶対値の比、*11 定期点検期間45日を考慮。

表 3. 1. 2-9 SiC/SiC 複合材および Zr-H 減速集合体装荷炉心の特性評価

項目		単位	リング状装荷 Case2-1	分散装荷 Case2-2	Zr-H少数体装荷 Case2-3	
炉心 基本 仕様	炉心熱出力	MWt	1765	1765	1765	
	運転サイクル長さ	d	709	709	709	
	燃交バッチ数	-	3	3	3	
	炉心高さ	cm	95.0	95.0	95.0	
	軸方向ブランケット厚さ(上/下)	cm	-	-	-	
	炉心燃料体数(内側/外側)	体	78/165	78/165	78/165	
	制御棒本数(PCR/BCR) *1	本	12/4	12/4	12/4	
	径方向遮へい体数(ステンレス鋼/Zr-H)	体	72/162	72/162	72/162	
	SiC/SiC複合材減速集合体数	体	108	108	99 / 9	
	炉心等価直径	m	3.50	3.50	3.50	
	遮へい体外接円直径	m	4.48	4.48	4.48	
	燃料仕様	集合体配列ピッチ	mm	174.2	174.2	174.2
		ラッパ管材	-	SiC/SiC複合材	SiC/SiC複合材	SiC/SiC複合材
		ピン径/ピン本数	-	7.6mm/331本	7.6mm/331本	7.6mm/331本
スミア密度(内/外)		%TD	75/75	75/75	75/75	
燃料組成	組成	-	組成1+先進湿式回収MA	組成1+先進湿式回収MA	組成1+先進湿式回収MA	
	MA/Pu	-	MA/Pu=1.00	MA/Pu=1.00	MA/Pu=1.00	
炉心 特性	Pu富化度*2	内側炉心燃料	wt%	18.4	18.8	20.5
		外側炉心燃料	wt%	18.4	18.8	20.5
	MA含有率*3	内側炉心燃料	wt%	18.4	18.8	20.5
		外側炉心燃料	wt%	18.4	18.8	20.5
	Pu-fissile富化度(内側/外側) *4	wt%	11.1	11.3	12.4	
	制御棒挿入深度 PCR(BOC/MOC/EOC) *1.5	cm	全抜き	全抜き	全抜き	
	燃焼欠損反応度	%Δk/k'	0.42	-0.24	0.96	
	増殖比 *6	-	0.79	0.78	0.68	
	最大高速中性子束(E>0.1MeV)	×10 ¹⁵ n/cm ² s	3.8	2.3	2.5	
	最大高速中性子照射量(E>0.1MeV)	×10 ²⁵ n/cm ²	6.3	4.2	4.4	
	最大線出力	内側炉心燃料	W/cm	534	377	587
		外側炉心燃料	W/cm	467	412	434
	取り出し平均燃焼度(炉心平均)	GWd/t	133	133	133	
	出力分担率(内側炉心/外側炉心) *6	%	37.3/62.7	38.8/61.2	28.5/71.5	
	炉心部平均比出力(炉心平均)	kW/kg	62.4	62.7	62.7	
	初装荷Pu-fissile重量	t/GWe	4.22	4.26	4.65	
	実効遅発中性子割合 *7	-	2.59E-03	2.52E-03	2.48E-03	
	冷却材Naボイド反応度 *7,8	\$	6.7	6.6	-	
	ドップラ係数 *7,9	T dk/dT	-3.19E-03	-2.94E-03	-	
	V/D 比 *7,10	×10 ³ \$/T dk/dT	2.08	2.24	-	
	MA装荷量	kg/Batch	1747	1765	1925	
	MA核変換率	%	40.0	40.4	38.6	
単位発電量当たりのMA変換量	kg/GWe-y	480	490	510		
()内は稼働率*11を考慮した時の値		(452)	(461)	(479)		

*1 PCR:主炉停止系制御棒、BCR:後備炉停止系制御棒。 *2 Pu/HM。 *3 MA/HM。 *4 Pu-f/HM。

*5 BOC:運転サイクル初期、MOC:運転サイクル中期、EOC:運転サイクル末期。 *6 サイクル平均。

*7 平衡炉心サイクルの初期、中期および末期の最も保守的な評価結果。 *8 燃料バンドル部の冷却材Naのみボイド化。

*9 燃料温度を+500K昇温して計算。 *10 冷却材Naボイド反応度とドップラ係数絶対値の比。 *11 定期点検期間45日を考慮。

表 3.1.2-10 SiC/SiC 複合材減速集合体分散装荷炉心の燃料組成およびFP含有率による炉心特性への影響評価

項目		単位	LWR-MOX+先進湿式回収MA組成		FP含有率 0vol%	FP含有率 4vol%	参考 FP含有率 2vol%	
			Case3-1-1	Case3-1-2	Case3-2-1	Case3-2-2	Case2-2	
炉心基本仕様	炉心熱出力	MWt	1765	1765	1765	1765	1765	
	運転サイクル長さ	d	709	709	709	709	709	
	燃交バッチ数	-	3	3	3	3	3	
	炉心高さ	cm	95.0	95.0	95.0	95.0	95.0	
	軸方向ブランケット厚さ(上/下)	cm	-	-	-	-	-	
	炉心燃料体数(内側/外側)	体	78/165	78/165	78/165	78/165	78/165	
	制御棒本数(PCR/BCR) ^{*1}	本	12/4	12/4	12/4	12/4	12/4	
	径方向遮へい体数(ステンレス鋼/Zr-H)	体	72/162	72/162	72/162	72/162	72/162	
	SiC/SiC複合材減速集合体数	体	108	108	108	108	108	
	炉心等価直径	m	3.50	3.50	3.50	3.50	3.50	
	遮へい体外接円直径	m	4.48	4.48	4.48	4.48	4.48	
	燃料仕様	集合体配列ピッチ	mm	174.2	174.2	174.2	174.2	174.2
		ラップ管材	-	SiC/SiC複合材	SiC/SiC複合材	SiC/SiC複合材	SiC/SiC複合材	SiC/SiC複合材
		ピン径/ピン本数	-	7.6mm/331本	7.6mm/331本	7.6mm/331本	7.6mm/331本	7.6mm/331本
スミア密度(内/外)		%TD	75/75	75/75	75/75	75/75	75/75	
燃料組成	組成	-	LWR-MOX+先進湿式回収MA	LWR-MOX+先進湿式回収MA	組成1+先進湿式回収MA	組成1+先進湿式回収MA	組成1+先進湿式回収MA	
	MA/Pu	-	MA/Pu=1.00	MA/Pu=0.90	MA/Pu=1.00	MA/Pu=1.00	MA/Pu=1.00	
炉心特性	Pu富化度 ^{*2}	内側炉心燃料	wt%	21.1	21.4	18.5	19.7	18.8
		外側炉心燃料	wt%	21.1	21.4	18.5	19.7	18.8
	MA含有率 ^{*3}	内側炉心燃料	wt%	21.1	19.3	18.5	19.7	18.8
		外側炉心燃料	wt%	21.1	19.3	18.5	19.7	18.8
	Pu-fissile富化度(内側/外側) ^{*4}	wt%	10.5	10.6	11.2	11.9	11.3	
	制御棒挿入深度 PCR(BOC/MOC/EOC) ^{*1,5}	cm	全抜き	全抜き	全抜き	全抜き	全抜き	
	燃焼欠損反応度	%Δk/kk'	-0.77	-0.44	-0.41	0.05	-0.24	
	増殖比 ^{*6}	-	0.80	0.81	0.79	0.75	0.78	
	最大高速中性子束(E>0.1Mev)	×10 ¹⁵ n/cm ² s	2.3	2.3	2.3	2.3	2.3	
	最大高速中性子照射量(E>0.1Mev)	×10 ²³ n/cm ²	4.1	4.1	4.1	4.1	4.2	
	最大線出力	内側炉心燃料	W/cm	382	381	380	377	377
		外側炉心燃料	W/cm	417	414	413	413	412
	取り出し平均燃焼度(炉心平均)	GWd/t	133	133	131	136	133	
	出力分担率(内側炉心/外側炉心) ^{*6}	%	39.1/60.9	39.1/60.9	39.2/60.8	38.7/61.3	38.8/61.2	
	炉心部平均比出力(炉心平均)	kW/kg	62.7	62.7	61.5	64.0	62.7	
	初装荷Pu-fissile重量	t/GWe	3.93	3.99	4.29	4.37	4.26	
	実効遅発中性子割合 ^{*7}	-	2.41E-03	2.49E-03	2.54E-03	2.47E-03	2.52E-03	
	冷却材Naボイド反応度 ^{*7,8}	\$	7.3	6.8	6.4	6.8	6.6	
	ドブプラ係数 ^{*7,9}	T dk/dT	-2.65E-03	-2.93E-03	-2.97E-03	-2.74E-03	-2.94E-03	
	V/D比 ^{*7,10}	×10 ³ \$/T dk/dT	2.76	2.34	2.17	2.46	2.24	
MA装荷量	kg/Batch	1980	1807	1776	1810	1765		
MA核変換率	%	38.2	38.5	40.3	40.3	40.4		
単位発電量当たりのMA変換量 ()内は稼働率 ^{*11} を考慮した時の値	kg/GWe-y	519 (488)	477 (448)	491 (462)	501 (471)	490 (461)		

*1 PCR: 主炉停止系制御棒、BCR: 備後炉停止系制御棒。 *2 Pu/HM。 *3 MA/HM。 *4 Pu-f/HM。 *5 BOC: 運転サイクル初期、MOC: 運転サイクル中期、EOC: 運転サイクル末期。

*6 サイクル平均。 *7 平衡炉心サイクルの初期、中期および末期の最も保守的な評価結果。 *8 燃料バンドル部の冷却材Naのみボイド化。 *9 燃料温度を+500K昇温して計算。

*10 冷却材Naボイド反応度とドブプラ係数絶対値の比。 *11 定期点検期間45日を考慮。

表 3. 1. 2-11 選定した炉心の詳細評価

項目		単位	平衡期炉心 Case4-1	MA核変換炉心 Case4-2	
炉心基本仕様	炉心熱出力	MWt	1765	1765	
	運転サイクル長さ	d	780	709	
	燃交バッチ数	-	3	3	
	炉心高さ	cm	95.0	95.0	
	軸方向ブランケット厚さ(上/下)	cm	-	-	
	炉心燃料体数(内側/外側)	体	120/231	78/165	
	制御棒本数(PCR/BCR) *1	本	12/4	12/4	
	径方向遮へい体数(ステンレス鋼/Zr-H)	体	72/162	72/162	
	SiC/SiC複合材減速集集体数	体	0	108(分散装荷)	
	炉心等価直径	m	3.50	3.50	
	遮へい体外接円直径	m	4.48	4.48	
	燃料仕様	集集体配列ピッチ	mm	174.2	174.2
		ラッパ管材	-	SiC/SiC複合材	SiC/SiC複合材
ピン径/ピン本数		-	8.5mm/271本	7.6mm/331本	
スミア密度(内/外)		%TD	70/75	75/75	
燃料組成	組成	-	高速炉多重リサイクル	組成1+先進湿式回収MA	
	MA/Pu	-	-	MA/Pu=1.0	
炉心特性	Pu富化度*2	内側炉心燃料	wt%	12.5	18.9
		外側炉心燃料	wt%	12.5	18.9
	MA含有率*3	内側炉心燃料	wt%	0.4	18.9
		外側炉心燃料	wt%	0.4	18.9
	Pu-fissile富化度(内側/外側) *4	wt%	8.8	11.4	
	制御棒挿入深度 PCR(BOC/MOC/EOC) *1,5	cm	40.0/37.5/30.0	42.5/45.0/42.5	
	燃焼欠損反応度	%Δk/kk'	0.73	-0.15	
	増殖比 *6	-	1.035	0.772	
	最大高速中性子束(E>0.1MeV)	$\times 10^{15}$ n/cm ² s	2.7	2.6	
	最大高速中性子照射量(E>0.1MeV)	$\times 10^{23}$ n/cm ²	5.4	4.6	
	最大線出力	内側炉心燃料	W/cm	298	396
		外側炉心燃料	W/cm	352	446
	取り出し平均燃焼度(炉心平均)	GWd/t	100.0	133.4	
	出力分担率(内側炉心/外側炉心) *6	%	39.5/60.5	35.8/64.2	
	炉心部平均比出力(炉心平均)	kW/kg	42.71	62.70	
	初装荷Pu-fissile重量	t/GWe	4.86	4.27	
	衰効遅発中性子割合 *7	-	3.65E-03	2.52E-03	
	冷却材Naボイド反応度 *7,8	\$	5.7	6.6	
	ドップラ係数 *7,9	T dk/dT	-4.65E-03	-2.91E-03	
	V/D 比 *7,10	$\times 10^3$ \$/T dk/dT	1.22	2.28	
MA装荷量	kg/Batch	53	1769		
MA核変換率	%	-6.6	40.2		
単位発電量当たりのMA変換量 ()内は稼働率*11を考慮した時の値	kg/GWe-y	-2 (-2)	488 (459)		

*1 PCR:主炉停止系制御棒、BCR:後備炉停止系制御棒、*2 Pu/HM、*3 MA/HM、*4 Pu-f/HM。

*5 BOC:運転サイクル初期、MOC:運転サイクル中期、EOC:運転サイクル末期、*6 サイクル平均。

*7 平衡炉心サイクルの初期、中期および末期の最も保守的な評価結果、*8 燃料バンドル部の冷却材Naのみボイド化。

*9 燃料温度を+500K昇温して計算、*10 冷却材Naボイド反応度とドップラ係数絶対値の比、*11 定期点検期間45日を考慮。

表 3.1.2-12 選定した MA 核変換用炉心の制御反応度収支

制御反応度収支(高速炉平衡期炉心 Case4-1) [単位: %Δk/kk']

項 目	主炉停止系 [ワレット [*] スタック]	後備炉停止系	
		[全数挿入]	[ワレット [*] スタック]
I. 計画余剰反応度 ^{*1}	2.4	0.5	0.4
(1)出力補償 ^{*2}	[0.49]	[0.49]	[0.35]
(2)燃焼補償 ^{*3}	[1.25]		
(3)運転余裕 ^{*2}	[0.20]		
(4)燃料スエリング補償 ^{*4}	[0.40]		
II. 余剰反応度不確かさ(2σ:統計処理) ^{*1}	1.0	0.1	0.1
(1)臨界性予測誤差 ^{*5}	[0.60]		
(2)出力補償予測誤差 ^{*5}	[0.07]	[0.07]	[0.05]
(3)燃焼補償予測誤差 ^{*5}	[0.60]		
(4)燃料製作公差 ^{*2}	[0.46]		
(5)燃料交換余裕 ^{*2}	[0.20]		
III. 事故時投入反応度 ^{*6}	-	0.24	0.24
IV. 必要制御反応度(I+II+III)	3.40	0.84	0.74
V. 制御棒価値 ^{*7}	4.40	1.41	0.86
VI. 反応度停止余裕(V-IV)	1.00	0.57	0.12

制御反応度収支(MA核変換炉心 Case4-2) [単位: %Δk/kk']

項 目	主炉停止系 [ワレット [*] スタック]	後備炉停止系	
		[全数挿入]	[ワレット [*] スタック]
I. 計画余剰反応度 ^{*1}	1.5	0.5	0.4
(1)出力補償 ^{*2}	[0.49]	[0.49]	[0.35]
(2)燃焼補償 ^{*3}	[0.36]		
(3)運転余裕 ^{*2}	[0.20]		
(4)燃料スエリング補償 ^{*4}	[0.40]		
II. 余剰反応度不確かさ(2σ:統計処理) ^{*1}	1.0	0.1	0.1
(1)臨界性予測誤差 ^{*5}	[0.60]		
(2)出力補償予測誤差 ^{*5}	[0.07]	[0.07]	[0.05]
(3)燃焼補償予測誤差 ^{*5}	[0.60]		
(4)燃料製作公差 ^{*2}	[0.46]		
(5)燃料交換余裕 ^{*2}	[0.20]		
III. 事故時投入反応度 ^{*6}	-	0.18	0.18
IV. 必要制御反応度(I+II+III)	2.50	0.78	0.68
V. 制御棒価値 ^{*7}	2.64	1.19	0.81
VI. 反応度停止余裕(V-IV)	0.14	0.41	0.13

*1 少数点以下1桁に切り上げ.

*2 過去の金属燃料炉心設計における評価[10]を考慮.

*3 燃焼反応度に運転サイクル長さ補償(余剰反応度不確かさ 2σの50%)を考慮.

*4 過去の金属燃料炉心設計(3バッチ燃料交換の中型炉で0.37%) [10]を踏まえて設定.

*5 高速炉における予測目標精度(実効増倍率300pcm、反応度係数不確かさ1σ7%、燃焼欠損反応度300pcm) [47]を踏まえて2σ考慮.

*6 平衡炉心における臨界状態から最も価値の高いCCR1本が誤引抜された際に投入される反応度.

*7 不確かさ3σ(9%) [41]を考慮した値. 小数点以下1桁に切り下げ.

表 3. 1. 2-13 MA 核変換炉心の流量領域配分の検討(冷却材出入口温度 485/330℃)

炉心領域	流量領域	領域流量 (kg/s)	集合体数 (体)	領域合計流量 (kg/s)	割合 ^{*1} -
内側炉心	第1	35.9	18	646.2	7.2%
	第2	32.3	9	290.7	3.2%
	第3	31.7	24	760.8	8.5%
	第4	30.2	27	815.4	9.1%
	小計		78	2513.1	27.9%
外側炉心	第1	39.9	18	718.2	8.0%
	第2	37.6	24	902.4	10.0%
	第3	33.7	27	909.9	10.1%
	第4	31.3	18	563.4	6.3%
	第5	27.4	24	657.6	7.3%
	第6	23.8	15	357.0	4.0%
	第7	21.7	39	846.3	9.4%
小計		165	4954.8	55.1%	
合計			243	7467.9	83.0%

*1 一次系冷却材流量9000kg/sに対する割合。

表 3. 1. 2-14 各流量領域の CDF 評価結果(冷却材出入口温度 485/330℃)

炉心領域	流量領域	領域流量 (kg/s)	選定理由			燃料 集合体 No	CDF St ミナル値 (-)	CDF St 不確かさ考慮 (-)
			燃料ピン 平均出力	被覆管 最高温度	サイクル末期 被覆管温度			
内側	1	35.9	✓		✓	98	4.37E-01	4.89E+00
				✓		99	3.87E-01	4.33E+00
	2	32.3	✓			95	2.00E-01	2.23E+00
				✓		101	2.06E-01	2.31E+00
					✓	65	2.01E-01	2.25E+00
	3	31.7	✓	✓	✓	69 ^{*2}	3.25E-01	3.63E+00
			(✓)	(✓)		62 ^{*2}	7.41E-02	8.29E-01
					(✓)	3 ^{*2}	6.55E-02	7.32E-01
	4	30.2	✓			102	1.17E-01	1.31E+00
				✓		9	5.41E-02	6.05E-01
					✓	8	6.30E-02	7.04E-01
外側	1	39.9	✓			137	7.85E-01	8.78E+00
				✓		180	7.13E-01	7.97E+00
					✓	133	8.95E-01	1.00E+01
	2	37.6	✓		✓	138	8.12E-01	9.07E+00
				✓		178	1.53E-01	1.71E+00
	3	33.7	✓		✓	174	8.15E-01	9.10E+00
				✓		223	2.72E-01	3.03E+00
	4	31.3	✓	✓		285	1.64E-01	1.83E+00
					✓	171	1.36E-01	1.52E+00
	5	27.4	✓		✓	277	7.10E-02	7.94E-01
				✓	✓	287	7.27E-02	8.12E-01
	6	23.8	✓	✓		347	1.73E-02	1.93E-01
					✓	218	5.77E-03	6.45E-02
	7	21.7	✓			290	6.42E-03	7.18E-02
			✓		340	3.17E-03	3.54E-02	
				✓	274	1.02E-02	1.14E-01	

*1 外側炉心第一流量領域の133燃料集合体につき、不確かさを考慮して評価。

他の燃料は、ノミナル値に、燃料集合体133の"不確かさ考慮したCDF/CDFノミナル値"を乗じて評価。

*2 内側炉心第3流量領域の燃料集合体69のCDFが高いため、この燃料は第2流量領域とした。

次にCDFが厳しいと考えられる燃料集合体62および3を対象として評価。

表 3. 1. 2-15 各流量領域の CDF が成立する冷却材流量の検討(冷却材出入口温度 485/330℃)

炉心領域	流量領域	流量増加 (%)	領域流量 (kg/s)	選定理由			燃料集合体 No	CDF St ノミナル値 (-)	CDF St 不確かさ考慮 (-)
				燃料ピン 平均出力	被覆管 最高温度	サイクル末期 被覆管温度			
内側	1	11	39.8	✓		✓	98	5.52E-02	4.88E-01
	2	8	34.9		✓		101	4.12E-02	3.64E-01
	3	2	32.3	(✓)	(✓)		62	5.01E-02	4.43E-01
	4	5	31.7	✓			102	4.17E-02	3.69E-01
外側	1	17	46.7			✓	133	4.54E-02	4.01E-01
	2	15	43.2	✓		✓	138	5.41E-02	4.78E-01
	3	15	38.8	✓		✓	174	4.57E-02	4.04E-01
	4	6	33.2	✓	✓		285	4.71E-02	4.16E-01
	5	2	27.9		✓	✓	287	4.85E-02	4.29E-01
	6	-	23.8	✓	✓		347	1.73E-02	1.53E-01
	7	-	21.7		✓	✓	274	1.02E-02	9.00E-02

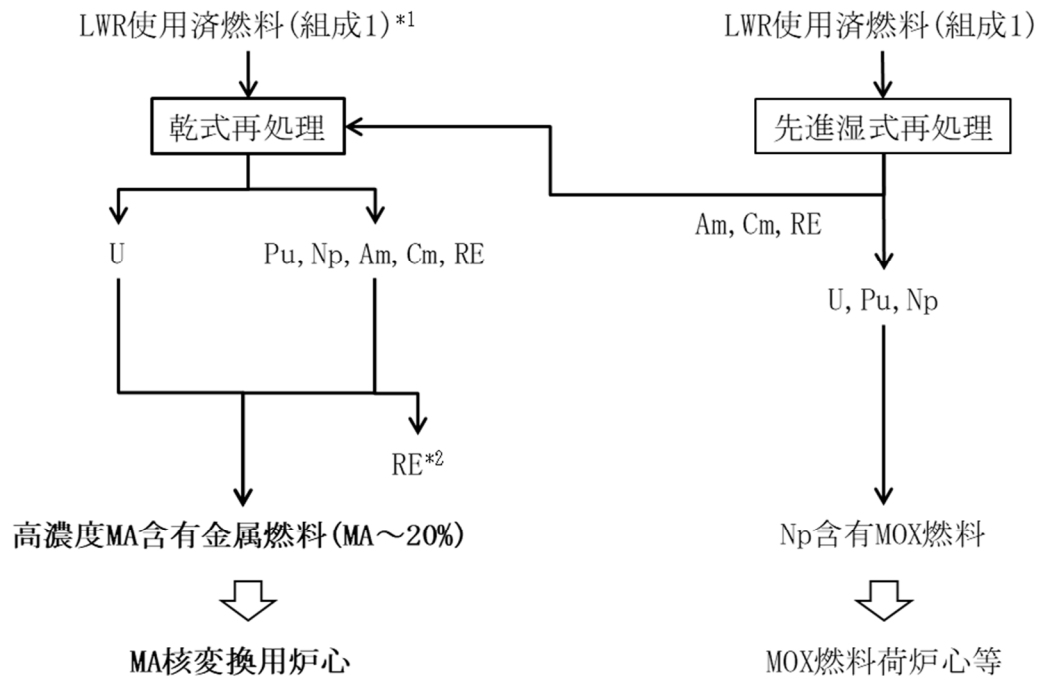
*1 外側炉心第一流量領域の燃料集合体133につき、不確かさを考慮して評価。
他の燃料は、ノミナル値に燃料集合体133の“不確かさ考慮したCDF/CDFノミナル値”を乗じて評価。

表 3. 1. 2-16 MA 核変換炉心の流量領域配分(冷却材出入口温度 485/330℃)

炉心領域	流量領域	領域流量 (kg/s)	集合体数 (体)	領域合計流量 (kg/s)	割合 *1 -
内側炉心	第1	39.8	18	717.3	8.0%
	第2	34.9	9	314.0	3.5%
	第3	32.3	24	776.0	8.6%
	第4	31.7	27	856.2	9.5%
	小計		78	2663.4	29.6%
外側炉心	第1	46.7	18	840.3	9.3%
	第2 *2	43.2	24	1037.8	11.5%
	第3 *2	38.8	27	1046.4	11.6%
	第4	33.2	18	597.2	6.6%
	第5	27.9	24	670.8	7.5%
	第6	23.8	15	357.0	4.0%
	第7	21.7	39	846.3	9.4%
小計		165	5395.7	60.0%	
合計			243	8059.1	89.5%

*1 一次系冷却材流量9000kg/sに対する割合。

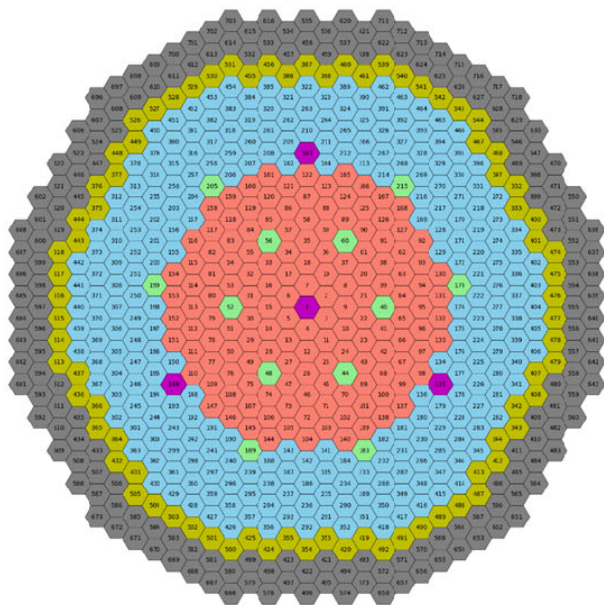
*2 第3領域の燃料集合体69を第2領域に移行。



*1 Case3-1-1およびCase3-1-2では組成4を想定.

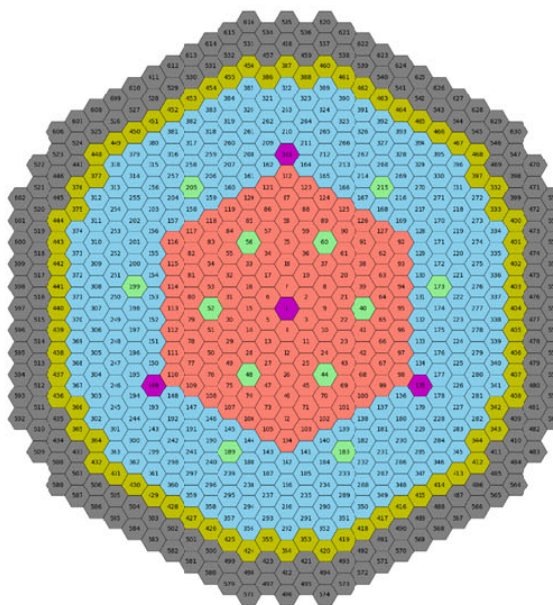
*2 金属燃料への希土類(RE)含有量は2vol%と想定. 他REは乾式再処理で回収, 処分.

図 3. 1. 2-3 想定する再処理・燃料製造



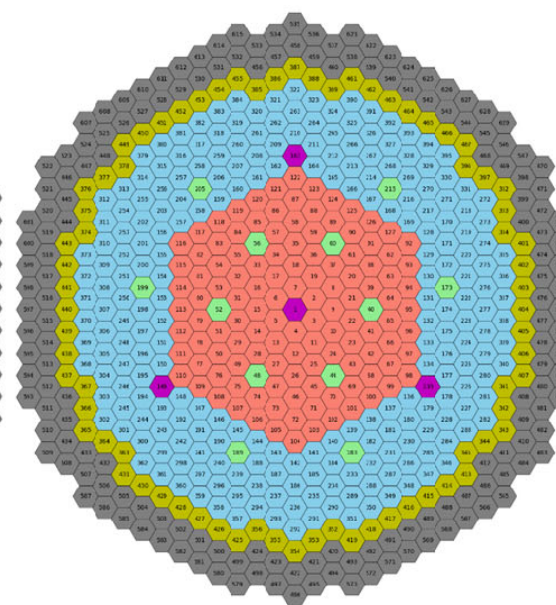
- 内側炉心燃料 144体
- 外側炉心燃料 249体
- 上炉停止系制御棒(PCR) 12体
- 後備炉停止系制御棒(BCR) 4体
- ステンレス反射体 78体
- Zr-H遮へい体 174体

Case1-1-1 (炉心高さ84cm)



- 内側炉心燃料 120体
- 外側炉心燃料 248体
- 上炉停止系制御棒(PCR) 12体
- 後備炉停止系制御棒(BCR) 4体
- ステンレス反射体 72体
- Zr-H遮へい体 162体

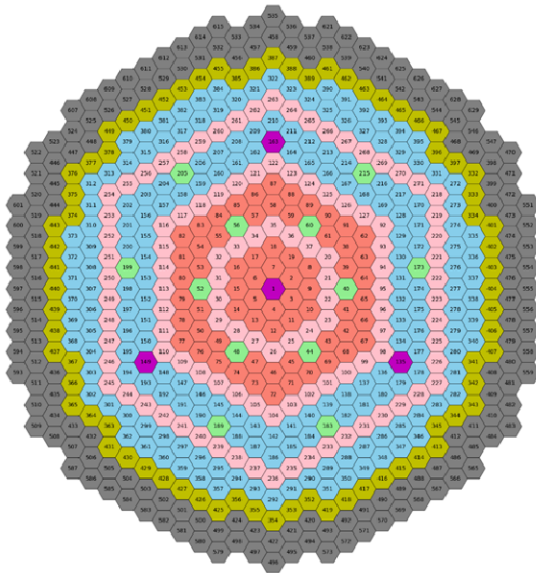
Case1-1-2 (炉心高さ90cm)



- 内側炉心燃料 120体
- 外側炉心燃料 231体
- 上炉停止系制御棒(PCR) 12体
- 後備炉停止系制御棒(BCR) 4体
- ステンレス反射体 72体
- Zr-H遮へい体 162体

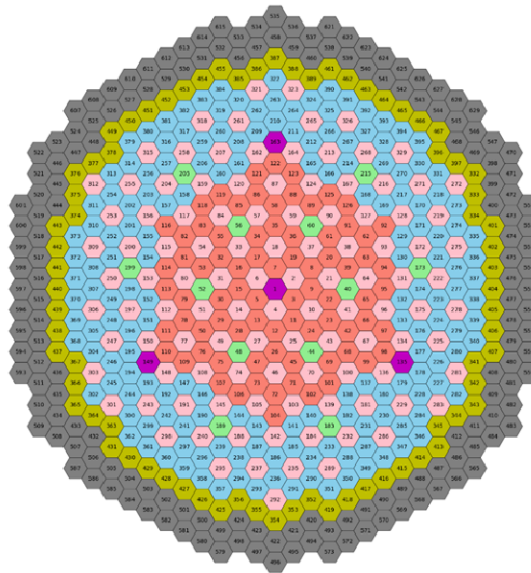
Case1-1-3 および1-2 (炉心高さ95cm)

図 3. 1. 2-4 基準炉心のサーベイ



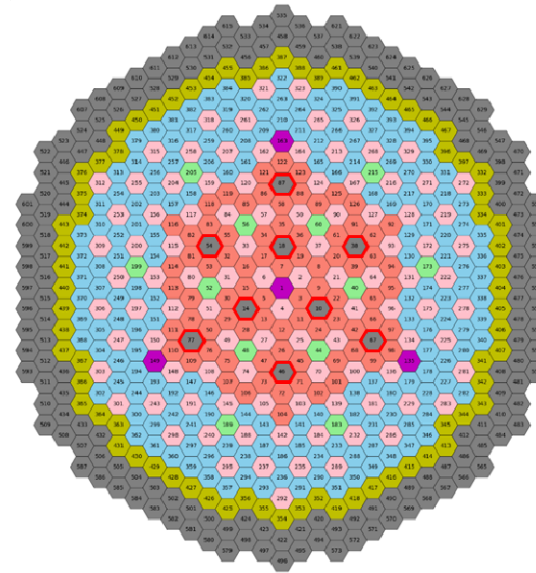
- 内側炉心燃料 66体
- 外側炉心燃料 177体
- 主炉停止系制御棒(PCR) 12体
- 後備炉停止系制御棒(BCR) 4体
- ステンレス反射体 72体
- Zr-H遮へい体 162体
- SiC/SiC複合材減速集合体 108体

Case2-1
SiC/SiC複合材減速集合体
リング状装荷



- 内側炉心燃料 78体
- 外側炉心燃料 165体
- 主炉停止系制御棒(PCR) 12体
- 後備炉停止系制御棒(BCR) 4体
- ステンレス反射体 72体
- Zr-H遮へい体 162体
- SiC/SiC複合材減速集合体 108体

Case2-2
SiC/SiC複合材減速集合体
分散装荷



- 内側炉心燃料 78体
- 外側炉心燃料 165体
- 主炉停止系制御棒(PCR) 12体
- 後備炉停止系制御棒(BCR) 4体
- ステンレス反射体 72体
- Zr-H遮へい体 162体
- SiC/SiC複合材減速集合体 99体
- Zr-H減速集合体 9体

Case2-3
SiC/SiC複合材およびZr-H減速集合体装荷

図 3.1.2-5 SiC/SiC 複合材減速集合体装荷方法のサーベイの炉心配置

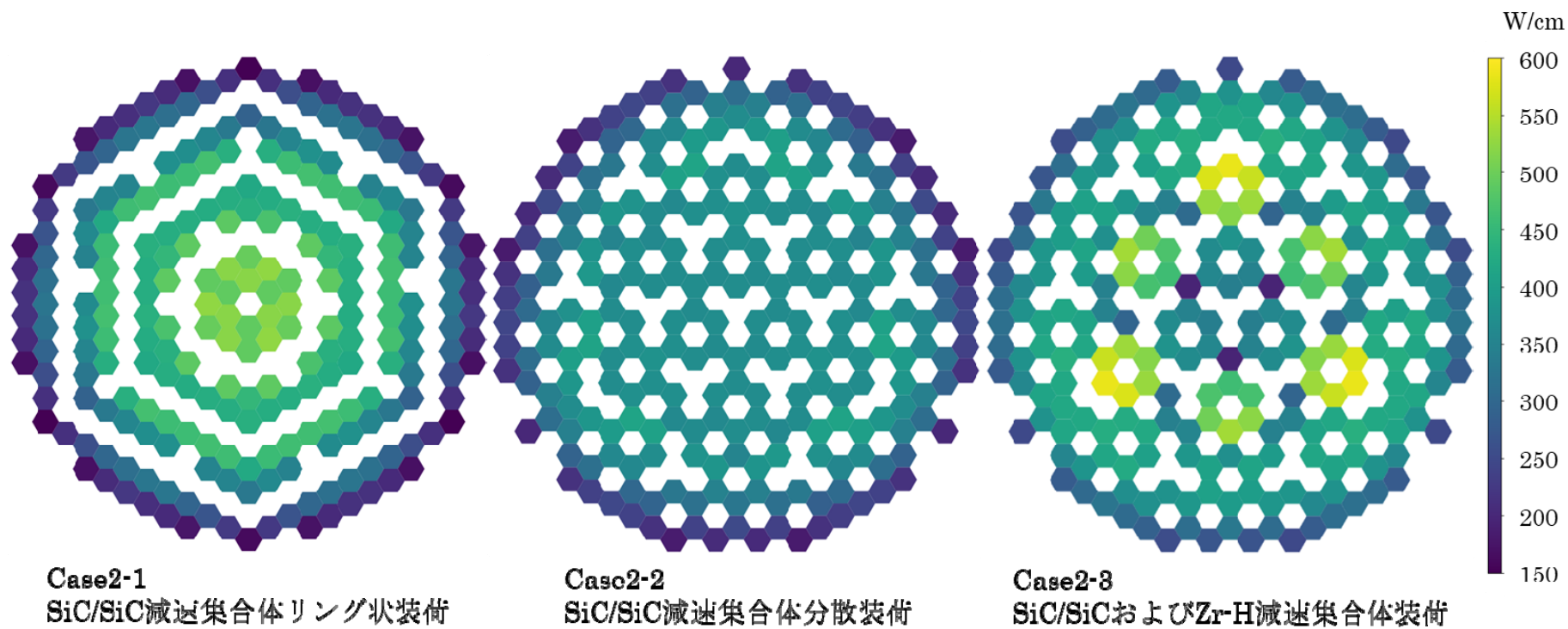


図 3. 1. 2-6 SiC/SiC 複合材および Zr-H 減速集合体装荷炉心の最大線出力分布

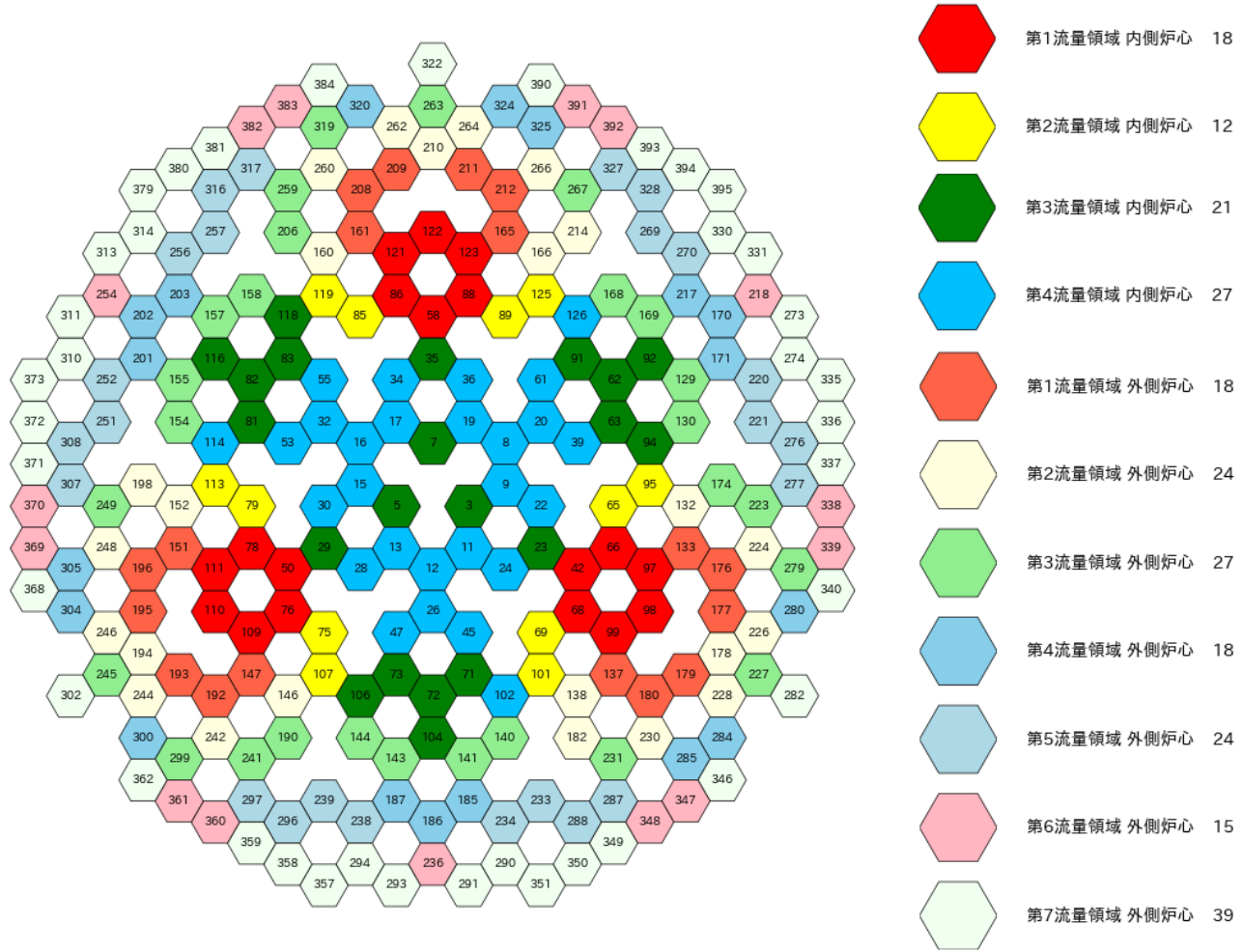


图 3.1.2-7 流量領域图

3.2 乾式再処理技術開発

3.2.1 液体 Ga 電極を用いたアクチニド／希土類分離回収技術開発

(1) U および Pu 析出挙動（再委託先：日本原子力研究開発機構）

【平成 28 年度-平成 30 年度】

①背景、目的

幅広い高速炉導入シナリオや Pu 需給シナリオに柔軟に対応しつつ、廃棄物有害度低減効果を最大化することが可能な MA 回収-核変換システムを構築することを目的として、高速炉燃料サイクルに金属燃料-乾式再処理技術を採用するための研究が行われている。従来の乾式再処理では、熔融塩電解精製工程において、すべての TRU が U と共に液体 Cd 陰極に一括回収される。しかし、希土類 FP と TRU の間の分離性能が高くないことから、高濃度の希土類を含有する高レベル廃液等を原料として、上記のプロセスで提案している高 MA 含有燃料を製造すると、リサイクル燃料中の希土類存在量が増加してしまう。これにより、燃料合金の均質性低下や、FCCI 進行などの影響が懸念される。

そこで、希土類除染性能を向上する MA 回収方法として、前述の Cd の代わりに Ga を用いる分離プロセスの適用性に関する検討が進められている。過去に実施した基礎的な分離係数測定試験結果によれば、Cd と比較して十倍程度高いアクチニド／希土類間分離性能が示唆されており、既存技術と比較して除染性能の大幅な向上が期待され、革新的な MA 回収方法が実現できる可能性がある。しかしながら、液体 Ga は Cd と比較し、液体金属中における U および Pu の飽和溶解度が非常に低いことが知られており、アクチニドを回収し始める早期の段階から、液体 Ga 中のアクチニドが飽和溶解度に達し、液体 Ga 中にアクチニドの析出相が形成されると予想される。このため、本公募で提案する液体 Ga を用いた回収プロセスでは、アクチニドの回収量が少ない時から飽和溶解度に達し、液体 Ga にアクチニドの析出相が形成されると予想される。この析出相が、電極表面に堆積するといった析出挙動を示せば、回収プロセスを見直す必要がある。

そこで、平成 28 年度から平成 30 年度の研究では、液体 Ga を用いた電極が実機規模および実条件において十分なアクチニド／希土類分離性能を発揮できることを実証するため、液体 Ga 中へアクチニド元素を飽和溶解度以上に回収し、その結果と Cd を利用した試験結果を比較することで、本プロセスの有効性を確認した。また、その時の電極の断面を SEM/EDX 分析し、析出相の形態を明らかにすることで、液体 Ga 電極中のアクチニド析出挙動が回収プロセスを阻害するような形態でないことを明らかにした。

②平成 28 年度-平成 30 年度の実施内容と成果

1) 平成 28 年度の実施内容および成果

平成 29 年度以降の研究で、液体 Ga を用いた電極が実機規模および実条件において十分な性能を発揮できることを実証するため、U、Pu 回収試験によって得られる Ga 合金の観察・分析を、走査型電子顕微鏡／エネルギー分散型 X 線分光装置 (SEM/EDX) を用いて実施することを計画した。このため、平成 28 年度では、Ga 合金を観察するための SEM/EDX を、実試料の取扱いが可能なホット試験環境を有したグローブボックス内へ導入した。また、装置の動作確認を兼ね、U を含有した Ga 合金試料の表面分析を

実施した。導入した装置としては、グローブボックス内に搬入および設置可能な構造を有していること、元素分析可能な対象元素に U、Pu が含まれること、放射線環境下での使用実績があることを考慮した結果、テクネックス工房社製の卓上型走査電子顕微鏡 TINY SEM Mighty-8DX (エネルギー分散型 X 線分光装置 (Tiny-EDXS (LE)) 付属) を選定した。図 3.2.1-1 に、SEM/EDX を設置した前後のグローブボックス内の内観図を示す。また、過去の実験において得られた Ga-U 合金 (U 濃度 : 1.029wt%) を使用し、設置した SEM/EDX にて観察・分析を行った。図 3.2.1-2 には、Ga-U 合金の析出相を示した二次電子像と、EDX 分析の線分析結果を示す。確認の結果、析出相には U が多く含まれていることが観察されたことから、本装置は Ga 合金に含まれる析出物の分析に有効であることが分かった。

2) 平成 29 年度の実施内容および成果

平成 29 年度の研究では、液体 Ga 中に析出した U、Pu が回収プロセスに与える影響を調査するため、液体 Ga 中に U および Pu を飽和濃度以上に回収する電解試験を実施した。試験では、U もしくは Pu のみを含んだ LiCl-KCl 熔融塩中から、液体 Ga 中へ U もしくは Pu を飽和濃度以上に回収した。回収した Ga 電極を SEM/EDX 分析し、U および Pu の液体 Ga 中での析出挙動を調査した。

液体 Ga 中に U を 0.22wt% 程回収した試験では、飽和溶解度 (0.11wt%) 以上となる条件であった。しかし、SEM/EDX 分析では明確な析出相は観察されなかったため、飽和溶解度の 2 倍程度の回収量であれば、回収を阻害するような析出相は生成しない可能性が示唆された。一方、液体 Ga 中に Pu を 0.48wt% 程回収した試験では、図 3.2.1-3 に示す通り、液体 Ga 内部に Pu を多く含んだ $1\mu\text{m}$ 程度の粒子状の析出相が観察された。本試料では、図に示す通り、この一点のみの点分析であるが、同図の二次電子像に示される通り、同様の形状の析出相が多数観察された。このことから、液体 Ga 中の Pu 濃度が飽和溶解度 (0.58wt%) 付近に到達すると、液体 Ga 電極内部に粒子状の析出相が一様に分布する可能性が示唆された。また、Pu を 1.01wt% まで回収した条件で得られた液体 Ga 電極内部の SEM 観察を実施した結果、Ga 相とは異なる同様の形状の析出相を観察した。このことから、Pu は液体 Ga の飽和溶解度を超えると電極全体に微小の粒状の固相を析出する挙動を示すが、Pu の回収量が 1.01wt% までであれば、電極表面での固相蓄積による電解精製プロセスの阻害が生じない事を確認した。

3) 平成 30 年度の実施内容および成果

平成 30 年度には、より実環境に近い条件での電解精製試験を実施した。LiCl-KCl 熔融塩中にアクチニド (U、Pu、Am) と希土類 (Ce、Nd、La、Gd) を混合し、液体 Ga 電極中へ U および Pu を飽和溶解度以上に回収する電解精製試験を実施した。試験前後の熔融塩および液体 Ga 中の各元素濃度を誘導結合プラズマ発行分光 (ICP-AES) 装置にて測定し、電解におけるアクチニド/希土類分離係数を求めた。また、回収した Ga 電極について、その断面を SEM/EDX 装置にて観察し、U および Pu の液体 Ga 中での析出挙動を調査した。

表 3.2.1-1 には、平成 30 年度に実施した液体 Ga 電極中へ飽和溶解度以上にアクチニド元素を回収した試験結果から得られた分離係数と、飽和溶解度未満にアクチニド元素を回収した際の実験結果から得られた分離係数を示す。本結果より、アクチニド元素を Ga 電極へ飽和溶解度以上に回収しても分離係数は低下せず、回収時における電極中の析出挙動は分離係数に悪影響を及ぼさないことが分かった。また、図 3.2.1-4 は Ga 電極の断面写真および坩堝との接触面の Ga 電極底部の二次電子像および EDX 点分析結果を示しており、Pu を多く含んだ粒状の相が電極の底部に堆積している様子が観察された。また、Pu を飽和溶解度の 2 倍程度まで回収した条件で得られた Ga 電極内部では、1~10 μm 程度の Pu を多く含んだ粒子状の析出相が観察された。このことから、Ga 電極の飽和溶解度を上回り Pu が増加していくと、電極中の析出相が成長することが分かる。この時、析出相が一定の重量に到達すると、Ga と比較して比重の重い Pu を含んだ固相は沈降し、電極底部に堆積する挙動を示すことが示唆された。このため、Pu 析出相の生成量が増加しても、液体電極内部に沈降する析出挙動を示すだけであり、電極表面を覆うように成長して回収プロセスを阻害するような析出挙動ではないことが分かった。

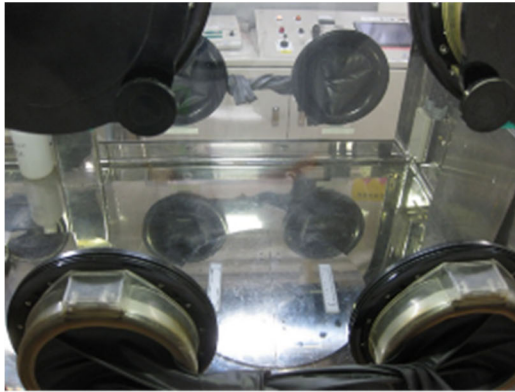
③平成 28~30 年度の成果のまとめ、令和元年度の課題

平成 28~30 年度の結果より、アクチニドと希土類を含んだ熔融塩からアクチニド元素を液体 Ga 電極へ飽和溶解度以上に回収する場合において、アクチニド/希土類分離係数は、液体電極中のアクチニド濃度を飽和溶解度未満に回収した条件での分離係数と同等の性能を示し、電極中へのアクチニド(特にPu)の固相析出は分離係数に悪影響を及ぼさないことが明らかとなった。また、液体 Ga 電極中のアクチニド濃度が飽和溶解度以上である場合、電極内部に析出した粒子状の固相は、徐々に成長し、最終的には電極底部に沈降していく可能性が示唆された。このことから、電極表面で成長して以降の回収プロセスを阻害するような析出挙動となる可能性は極めて低いことが明らかとなった。

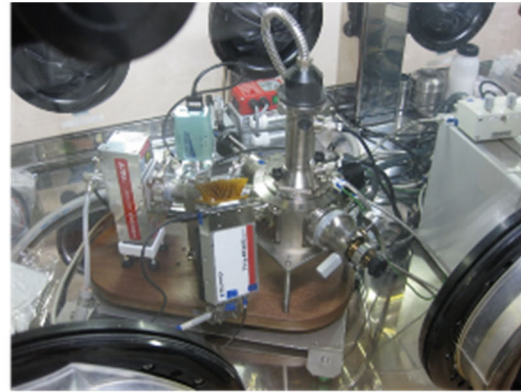
以上の結果より、液体 Ga 電極を用いたアクチニド回収技術は液体 Cd 電極を用いた場合よりも優れた分離性能を示し、懸念された電解中の固相析出による分離係数への影響は限定的であることが分かった。本研究で提案している MA 回収・核変換システムの概念における処理対象の 1 つである使用済 MOX 燃料に対する適用性を証明するためには、使用済 MOX 燃料から金属への還元プロセスから電解精製までを通じた連続プロセスにおいて上記の性能が成り立つことを示す必要がある。このため、最終年度である令和元年度には、模擬使用済 MOX 燃料を使用した電解還元、電解精製に関わる一連の試験を連続的に実施し、液体 Ga 金属を利用した回収プロセス全体の有用性を評価する。

表 3.2.1-1 アクチニドを液体 Ga に回収した際の分離係数

	SF (U)	SF (Pu)	SF (Am)	SF (Ce)	SF (NSF)	SF (GSF)	SF (La)
飽和溶解度以上	5.48 $\times 10^2$	2.28 $\times 10^2$	1.11 $\times 10^2$	1.00 $\times 10^0$	6.13 $\times 10^{-1}$	1.20 $\times 10^{-1}$	1.32 $\times 10^{-1}$
飽和溶解度未満	(4.48 $\times 10^2$)	(2.15 $\times 10^2$)	(1.40 $\times 10^2$)	(1.00 $\times 10^0$)	(5.97 $\times 10^{-1}$)	(8.95 $\times 10^{-2}$)	(1.29 $\times 10^{-1}$)



装置搬入前



装置搬入後

図 3.2.1-1 装置搬入前(左図)および装置搬入後(右図)のグローブボックス内観図

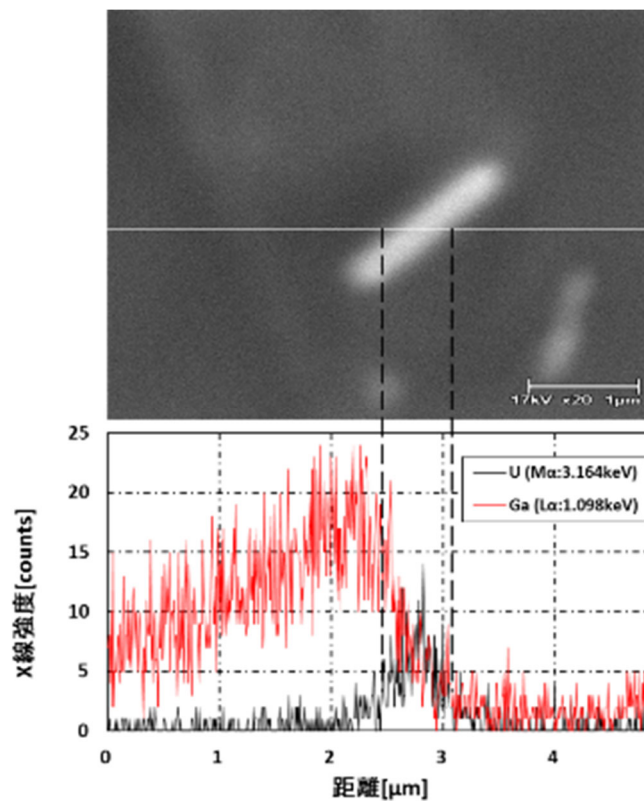


図 3.2.1-2 Ga-U 合金(U 濃度 : 1.029wt%) 析出相の EDX 線分析結果
(倍率 : 20000 倍、加速電圧 17kV) (U(M α : 3.164keV)、Ga(L α : 1.098keV))

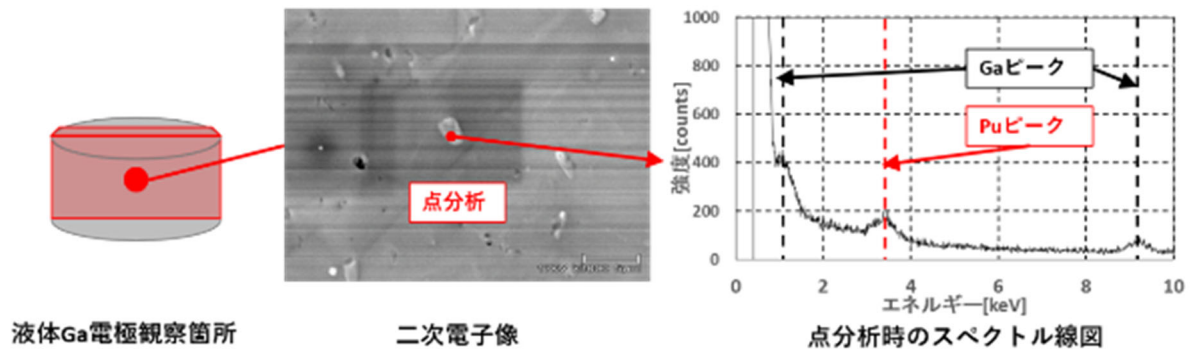


図 3. 2. 1-3 試料の中層部での点分析結果

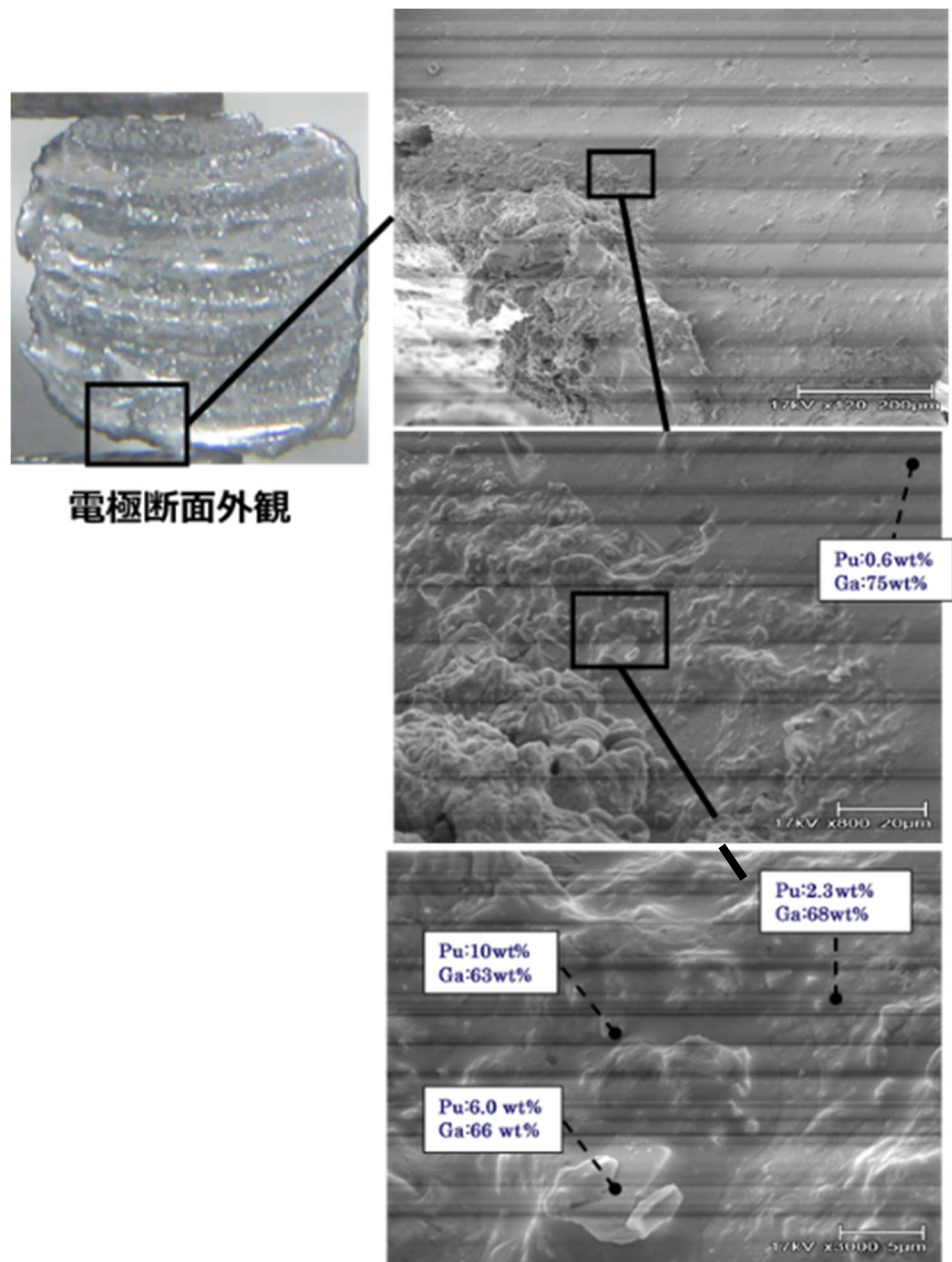


図 3. 2. 1-4 Ga 電極の外観および底部の二次電子像、EDX 点分析結果

(2) MOX を対象とした小規模連続プロセス試験（再委託先：日本原子力研究開発機構）

【令和元年度】

①背景

平成 28～30 年度に実施した各試験において、液体 Ga を用いた処理プロセスは電解精製工程において、従来の液体 Cd を用いた処理プロセスよりも優れたアクチニド／希土類分離性能を示し、有効性の高い処理プロセスであることを立証した。また、液体 Ga 電極の懸案事項であるアクチニドに対する飽和溶解度の低さに伴う、電解精製時における液体電極内部への固相析出については、電解効率等に対するその影響は限定的であることを、電極の表面分析により確認した。しかしながら、使用済燃料の再処理を考慮した場合、電解還元と電解精製を一貫した処理が必要である。使用済燃料を想定したペレットを試験対象とした電解還元、電解精製試験を実施することで、液体 Ga 電極を利用した処理プロセスの有効性を実証するための研究を行う。

②令和元年度の実施内容と目的

令和元年度は、模擬使用済 MOX 燃料(希土類, Am 含有 MOX)を出発物質として、電解還元による金属への転換試験(以下、電解還元試験)、液体 Ga 電極への U、Pu の回収試験(以下、電解精製試験)を連続して実施し、得られる試料の SEM/EDX 分析結果などから、マスバランスや共存希土類 FP がプロセス全体に与える影響を明らかにする。

令和元年度の試験では、ペレット状の模擬使用済 MOX 燃料(以下、模擬ペレット)を試験試料とし、①電解還元試験および②電解精製試験を連続して実施する。なお、模擬ペレットには、MOX ペレットと試薬ペレットをそれぞれ破碎し、混合した後、加圧成型した物を供した。なお、試薬ペレットには、酸化物形態の希土類元素 (Eu₂O₃、CeO₃、Nd₂O₃、La₂O₃、Gd₂O₃) および金属形態の貴金属元素 (NM(Mo、Pd、Ru)) 試薬を、混合・加圧成型した後、焼結したものを使用した。

本試験では、模擬ペレットとして、焼結体ではなくプレスした成形体を使用した。MOX 燃料の焼結体は、硝酸への難溶性が課題となるが、本試験のような電気化学的溶解において焼結しているかどうかは問題とならない。試料の導電性に関しては、本試験では MOX ペレットを粉碎した試料に希土類酸化物の粉末や貴金属粉末を添加して成形することを考えており、導電性のない PuO₂ や UO₂、希土類酸化物が表面を覆うように偏析する場面は考えにくく、焼結体と同様に試料全体に均一に元素が分布していると考えられることから、電気化学的な挙動に差はないと考えられる。また、試料の電解還元時においては、試料内部に塩が浸透することが最も重要な課題である。焼結体は、理論密度に対し約 85%の密度であり多少の空隙を有している。焼結体を還元する際は、この空隙を通して塩が浸透する。これに対し、本試料は破碎した粉末を押し固めたものであることから、粉末と粉末の間の空隙から塩が容易に内部まで浸透すると考えられ、焼結体と同様に内部まで還元可能である。以上より、本試験で使用する試料は、焼結体の模擬物質として十分に適切であると考えられる。

電解還元試験後の還元生成物および電解精製試験後の液体 Ga 電極の重量測定及び ICP-AES 分析からマスバランス及び分離係数を評価し、また、還元生成物や U-Pu-Ga 合

金の一部について SEM/EDX 分析を実施し、模擬ペレット中の希土類、貴金属の化合物形態を評価する。

③模擬 MOX ペレットの作製

本試験に使用した模擬ペレットの作製手順を以下に示す。

1) MOX ペレットの破碎、分級作業

MOX ペレットは、U 濃度：59.33wt%、Pu 濃度：27.54wt%、Am 濃度：39,500ppm (Pu 濃度に対して) の組成の物を使用した。図 3.2.1-5 に使用した MOX ペレットの外観を、表 3.2.1-2 に MOX ペレットの仕様を示す。

MOX ペレット 6 個を秤量し、スタンプミルを用いて MOX ペレットを粗砕し、得られた破砕片について乳鉢と乳棒を用いて粉末化を試みた。

図 3.2.1-6 に、スタンプミルにて破碎中の外観図、30 分破碎作業をした後の MOX ペレットの状態、1 時間 30 分破碎作業を実施した後の MOX ペレットの状態を示した。この図にある通り、破碎中は粉末が飛散しないように、スタンプミルを PVC バッグおよびビニール袋で覆った状態で破碎作業を実施した。30 分経過後に 1~2mm 程度の粒子が残っていたが、1 時間 30 分経過後では、目視で確認できる程の大きさの粒子は見られなかったため破碎作業を終了とした。

上記の処理で得られた破砕片を集積し、乳鉢と乳棒を用いて破砕片の粉末化処理を約 3 時間実施した。図 3.2.1-7 に示す通り、本処理も、作業中に粉末が飛散しないように乳鉢と乳棒をビニール袋で覆った状態で実施した。

回収した粉末は、篩（目開き：100 μ m）にて分級を行った。図 3.2.1-7 に分級中の様子を示した写真も示している。同図には分級後の外観図も示しているが、外観監察上では、乳鉢等を利用した粉末化処理後も、スタンプミルにて 1 時間 30 分破碎した後の外観とも大きな変化は認められなかった。粉末化した試料を粒径別にガラスバイアルに収納し、各粒径ごとに秤量した。

2) 希土類元素+貴金属元素ペレットの破碎

焼結済の希土類(Eu₂O₃、CeO₃、Nd₂O₃、La₂O₃、Gd₂O₃)+貴金属(Mo、Pd、Ru)ペレットを約 2(g)分取し、1)と同様に破碎、粉末化作業を行った。なお、作業後に回収した粉末は、篩（目開き：100）にて分級を行い、破碎に供したペレット全量の粒径が 100 μ m 以下になるように破碎を行った。

3) MOX ペレット、希土類+貴金属ペレット破碎後の混合

破碎が終了した MOX ペレットと希土類+貴金属ペレットを所定量分取しガラスバイアル瓶に収納した。表 3.2.1-3 に、各ペレットの重量値と組成を示す。ガラスバイアル瓶に収納後、手振りにて混合した。なお、混合時間は 5~10 分程度とした。

4) 混合物の加圧成型

3)で混合した粉末を量り取りダイスに装荷した後、プレス機にて加圧成型した。成

型圧力は 30kN とし、加圧時間は 2 分間とした。成型物の形状は $\phi 10 \text{ mm} \times$ 高さ 2.6 mm となり、ピンセットでハンドリングできる程度の硬さを有していた。また、図 3. 2. 1-8(右)に示す通り、欠け割れ等の外観上の異状は見られなかった。

④電解還元試験

1) 試験準備

以下に示す試験塩、電極を準備し、電解槽に設置した。

a) 試験塩

還元試験に供する試験塩は、LiCl を約 896g、 Li_2O を約 4g 混合した LiCl-Li₂O 混合塩（塩重量：約 900g、 Li_2O 濃度：約 0.5wt%）を使用した。図 3. 2. 1-9 に、混合塩を SUS 坩堝（外径 124 mm \times 内径 118 mm \times 高さ 85 mm）に装荷した直後の外観図を示す。

b) Pt 電極

対極として、図 3. 2. 1-10 に示す通り、曲げ加工を施した Pt 板に Pt 線をリード線として取り付けたものを Pt 電極とした使用した。また絶縁管には、MgO 管を使用した。

c) Pb-Li 電極

参照極として、図 3. 2. 1-11 に示す通り、外径 6mm ϕ 程度の MgO 型閉じ管（先端から 10mm の位置に 1mm ϕ のピンホールを設けたもの）に Pb-Li 合金（Li 濃度：32mol%）を装荷し、Ta 線をリード線として挿入したものをを用いた。

d) MOX 電極およびサイクリックボルタモグラム (CV) 測定

作用極として、図 3. 2. 1-12 に示す通り、まず加圧成型にて準備した模擬 MOX ペレット（ペレット No. 2）を Ta 製金網（40mesh、線径：0.20mm）にて包み、両端に電位測定用リード線および電流供給用リード線を取り付けたものをを用いた。しかしながら、図 3. 2. 1-13 に示す通り、作用極を MOX 電極、参照極を Pb-Li 電極、対極を Pt 電極（厚さ 3 mm の Pt 板）にして CV 測定を実施したところ、MOX CV (a)-①の曲線のように過大電流を検知し CV 曲線を得られなかった。これは、作用極に使用している MOX 電極が対極に使用している Pt 電極の表面積よりも大きいため過大電流を検出したと考え、模擬 MOX ペレットを接続している 2 本の Ta リード線を 1 本に接続し直し、再度 CV 測定を実施した。しかし MOX CV (a)-②の曲線から分かる通り、過大電流への対策としてはほとんど効果がなかった。このため、MOX 電極の表面積が過大になっている要因は、Ta 製のリード線ではなく、模擬 MOX ペレットを包んでいる Ta 製の金網であると考え、MOX 電極に使用している Ta 製金網の表面積を小さくする対策を行った。図 3. 2. 1-14 に示す通り、a) 試験前の模擬 MOX ペレット

を Ta 製金網で過剰に覆っている状態から、金網の両サイドを切り取った状態に加工し、再度 CV 測定を実施した(図 3.2.1-14 の(b)では 2 本のリード線が接続されているが、実際は 1 本のリード線のみであった。)。しかしながら、図 3.2.1-13 の MOX CV (b)の曲線に示す通り、過大電流の検出を減らすための対策としては不十分だった。そのため、さらに図 3.2.1-14 の c)過大電流対策②に示す通り、Ta 製金網を中心の部分(幅 3, 4 mm)だけ残して加工し、再び CV 測定を実施した。その結果、MOX CV (c)-①、②の曲線に示す通り、過大電流を大幅に減らすことができた。この後、再度 CV 測定を実施したところ、MOX CV (c)-③の曲線を得られた。この曲線は、MOX CV (c)-①、②の曲線と比較すると、卑側に走査した際のピークがほとんど検出されなかった。そのため模擬 MOX ペレットを取り上げ確認したところ、図 3.2.1-14(c)過大電流対策②として作製した幅 3, 4 mmの Ta 製金網には模擬 MOX ペレットが保持されておらず、熔融塩中に落下してしまったことが分かった(ペレット No.2)。このため、MOX CV (c)-③の曲線は、模擬 MOX ペレットが装荷されておらず、Ta 製金網のみの条件での CV 線図となってしまったため、模擬 MOX ペレットに起因する還元ピークが検出されなくなったと考えられる。つまり、MOX CV (c)-①、②は、c)過大電流対策②に示す通り、MOX ペレットが保持されている状態での CV 曲線、MOX CV (c)-③は、c)過大電流対策②の状態から模擬 MOX ペレットが落下し Ta 製金網のみとなってしまった際の CV 曲線を示していると考えられる。このことから、図 3.2.1-14 の c)過大電流対策②は、過大電流の対策としては有効だったが、ペレットを保持するには不十分であることが分かった。そのため、Ta 製金網を用いた MOX 電極では満足に試験を実施できないと判断し、図 3.2.1-14 の d)過大電流対策③に示す通り、Ta 製ワイヤーでペレットを保持して試験を実施することとした(ペレット No.1)。この際、模擬 MOX ペレットは、数分熔融塩に浸漬することで熔融塩が付着し、かなりの硬度となることが分かっていたため、ワイヤーを巻き付ける際にペレットが欠けたり割れたりするといったことはなかった。

図 3.2.1-15 には、c)過大電流対策②を実施した MOX ペレットが保持されている状態での CV 曲線(MOX CV (c)-①)、d)過大電流対策③を実施した Ta 製ワイヤーで保持した状態の CV 曲線(MOX CV (d))、還元試験中に適宜取得した CV 曲線(MOX CV (e)-①、②、ペレット No.1)を示している。Ta 製ワイヤーで保持した状態の CV 曲線(MOX CV (d))では、過大電流は検出されていないことが分かる。これらの曲線では、-0.3V、-0.45V 付近に小さなピークが検出されている。これは、電極に使用した Ta の脱酸と、模擬 MOX ペレットの還元起因するピークだと考えられる。水素電極を基準とした標準酸化還元電位では、U、Pu の標準酸化還元電位は、Ta の電位よりも卑側に位置している。このことから、-0.3(V)は Ta 脱酸、-0.45(V)は MOX の還元を示していると考えられる。還元試験の初期は MOX CV (e)-①、還元試験の後半は MOX CV (e)-②の曲線が得られた。還元試験前の CV 曲線(MOX CV (d))と比較すると、還元試験が進行するにつれ、-0.55(V)付近から還元電流が増加している。特に、試験後半の MOX CV (e)-②の曲線では、-0.4(V)付近から還元電流が徐々に増加し、-0.55(V)付近から急激に増加している様子が分かる。これは電極表面に Li が

析出したためと考えられる。加えて、模擬 MOX ペレット表面の酸化物が金属に還元されることで電極表面が増加したことも原因の 1 つだと考えられる。これは、ワイヤーよりも電極表面積の多い Ta 製のメッシュで MOX ペレットを保持した時に得られた CV 曲線(MOX CV (c)-①)と、還元がある程度進みペレット表面の金属部分が増加したと考えられる時に得られた CV 曲線(MOX CV (e)-①)の、-0.45(V)より卑側の挙動が同じことから推察できる。さらに還元が進むと、ペレットの金属部がより増加することで MOX CV (e)-②に示すような過大電流となったと考えられる。また、-0.3(V)付近で見られるピークの電流量は、還元試験が進行するに従い小さくなっていることが分かる。これは、電極に使用している Ta の脱酸が試験の経過と共に進行したためと考えられる。

e) W 線電極を用いた CV 測定

1mmφ-タングステン (W) 線、外径 6mm のアルミナ保護管を用いて作製したものを作用極、Pb-Li 電極を参照極、Pt 電極を対極として用い、CV 測定を実施した。図 3.2.1-16 に示す通り、W CV ①、W CV ②、W CV ③、W CV ④の CV 曲線では、いずれも Li 析出電位が約-0.56V であった。この時、①は熔融塩中への模擬 MOX ペレット落下前、②は模擬 MOX ペレット落下後(および電解還元試験開始前)、③、④は電解試験中に適宜取得した結果となる。本結果から、熔融塩中に模擬 MOX ペレット落下前後や、模擬 MOX ペレットの還元が進行した後でも Li の析出電位に影響を及ぼさないと分かった。また、模擬ペレット落下前後の CV 線図では、Li の析出電位以外に還元電流のピークは観察されなかったため、落下したペレット中の U や Pu といった元素が熔融塩中に溶解していないことが分かる。このことから、ペレット落下による還元試験への影響はないと考えられる。試験経過後に適宜取得した CV 線図では、試験開始前に取得した CV 線図と同様に、Li 析出電位以外に還元電流の増加は見られなかった。これは試験が経過しても熔融塩中に U や Pu が存在していないことを示しており、還元試験中に模擬 MOX ペレット中の U や Pu が熔融塩中に溶解していないことが分かる。

f) 分極測定

陰極に MOX 電極、陽極に Pt 電極、参照極に Pb-Li 電極を使用し、初期電流を-50mA に設定した条件にて電解を行い、この時の MOX、Pt 電極の電位を読み取った。さらに初期電流から電流を増加させ、その都度、各々の電極電位を読み取った。その結果得られた I-V 曲線から、Li 析出電位および O₂ 発生電位を明らかにし、試験中の設定電流の検討を行った。図 3.2.1-17 に、電解還元試験前と電解試験の途中経過時の分極測定結果を示す。この結果から、Li 析出電位は-0.56V 付近から急激に立ち上がり、O₂ 発生電位は 2.06V 付近から急激に立ち上がっている様子が分かる。また、試験が進行すると、Li 析出電位と O₂ 発生電位は、どちらもより速い電流値から立ち上がっていることが分かる。本結果を踏まえて、MOX 電極・Pt 電極の電位を監視し、電流値を調整しながら、試験を実施することとした。

2) 電解還元試験

650°Cに加熱した試験塩に各電極を挿入した後、CV測定、分極測定の結果を基に電流を設定し、ペレットNo.1を陰極とし電解還元を行った。MOX電極電位が定常的にLi析出電位に達した際は、電解を一旦停止し、暫く静置した。また、表3.2.1-4に今回実施した電解試験時の詳細な設定電流（および電位）、電解時間、電気量を示す。表3.2.1-4から分かる通り、本試験で流した電気量は合計で5239Cとなった。これはペレットNo.1をすべて還元するのに必要な電気量(2232C)の2倍以上となる。必要な電気量は下記の電気化学反応式に基づいて計算した。

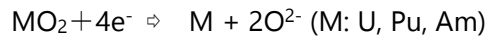


図3.2.1-18に電解試験中の模擬MOXペレット電極およびPt電極の電位経時変化を示す。当初は、分極測定の結果から、100mA以上の電流値からMOXの電位が急激に増加していることが分かる。これは、100mA以上の電流を流すと電極表面に大量にLiが析出するためと考えられる。電極表面全体がLiに覆われてしまうとそれ以上の還元が進行しなくなるため、まず50mAにて還元試験を開始した。しかしLi析出電位に近づいた後(-0.56V)、電解を一旦停止し静置することで、電極に付着したLiが剥がれ、陰極の電位は徐々に貴側にシフトし10分程度で初期電位近くの値を示した(-0.3~-0.2V)。以上より、電流値を増加させても、静置時間を多く取ることで還元試験を継続することが可能と判断した。静置後、還元試験を再開すると、電位が卑に変化する。これが図3.2.1-18で示すところの黒の点線部であり、スパイクとして示される。

図3.2.1-18の(a)に示す通り、50mAにて還元試験を開始した直後、電位がLi析出電位(-0.56V)よりも卑を示した。その後Li析出電位よりも貴に電位がシフトしている。この電位の挙動は、スパイク直後に電極に析出したLiが剥がれ落ち、MOX還元とTa脱酸が支配的になったためであると考えられる。次に、100、150、200、300mAと電流値を上げて還元試験を実施したところ、100mAで電解開始直後は、Li析出電位よりも卑側に電位がシフトしている。その後150、200mAとLi析出電位よりも貴側に電位がシフトし、300mAで電位が安定している。この安定した電位を示している際は、MOX還元とTa脱酸が支配的であることを示していると考えられる。300mAでの還元試験での最後では、Li析出電位に達したため電解を一旦停止し、静置した。その後、400mAで還元試験を継続したが、還元開始直後からLi析出電位を示し、300、200、100mAと電流値を下げて還元を実施しても同様であったことから、模擬MOXペレット内部に析出したLiが少ない静置時間では剥がれていないためと考え、この日の還元試験を終了した。一晚静置し、100mA、150mA、200mAで還元試験を実施したところ、100mA、150mAのスパイク直後ではLi析出電位よりも卑側の電位を示しているが、その後徐々にLi析出電位を示し、200mAで還元を開始した直後、Li析出電位よりも貴側の電位となり、MOX還元が行われている様子が分かる。その後すぐにLi析出電位へシフトし、その後はどれほど静置してもスパイク直後にLi析出電位を示し、電位が貴

側にシフトする様子がなかったことから、これ以上還元試験を実施しても、模擬 MOX ペレット電極では Li が析出するのみとなり、MOX 還元はこれ以上進行しないものと判断し、還元試験を終了した。図 3.2.1-18 の (b) Pt 電極電位の変化から分かる通り、電解還元時の初期の段階から、 O_2 発生電位を超えており、試験初期から供給され続けている酸素は模擬 MOX ペレット内にあるアクチニドや希土類元素と化合していた酸素であると考えられ、この結果からも電解還元が順調に進行していると分かる。

図 3.2.1-19 に、電解試験終了直後に引き上げた際の、Pb-Li 参照極、Pt 電極の外観図を示す。この外観図からも分かる通り、参照極、Pt 電極に用いた MgO 管の一部がオレンジ色に変色していることが分かる。これは、CV 測定時の過大電流検出時に Pt 電極にて Cl_2 ガスが発生したために変色したと考えられる。

図 3.2.1-20 に電解還元後の還元生成物外観、図 3.2.1-21 にその還元生成物を 2 つに割った断面図を示す。図 3.2.1-20、21 に示す通り、還元物表面が全体的に黒色を呈していることが分かる。これは、析出した Li 金属と引き上げた際にペレット表面に付着した塩だと考えられる。断面図では、還元物中央部では茶色を呈していた。試験後の還元物(ペレット No. 1)の重量は、1.308g であった。これは図 3.2.1-20 の (c)、(d) に示す通り、Ta 製ワイヤーを除去し、Li 金属および塩が付着した状態で測定した重量となる。ここで、還元生成物のみの重量を求めるため、SEM 観察用の試料のために分取し、塩が付着したままの試料の重量を計測し、その後洗浄することで水溶成分(付着塩)を除去して乾燥させた後の重量と比較すると、付着塩と還元生成物の割合は 22.4%と 77.6%であった。ここから、還元直後に回収した、還元生成物のみの重量を求めると、約 1.017g であった。試験前の重量は、1.631g であり、ペレット中の酸化物がすべて還元された際の重量は計算上約 1.424g であることを考えると、重量の観点からは十分還元は進行している可能性が高い。しかし、重量が予想よりも大幅に減少しているのは還元の進行以外の理由だと考えられる。重量が大幅に減少した理由は、本節にて後述する。

図 3.2.1-22 に還元試験前の模擬 MOX ペレットの SEM 観察結果を、図 3.2.1-23 に還元試験後の模擬 MOX ペレットの表面の SEM 観察結果を、図 3.2.1-24 に還元試験後の模擬 MOX ペレット内部の SEM 観察結果を示す。

図 3.2.1-22 に示す通り、粉末化された MOX 焼結体が一様に分布している様子が分かる。粒子の大きさは $1\sim 100\ \mu\text{m}$ 程度とばらつきがあったが、粒径に差があるためか、より密に充填されていることが分かる。また、図 3.2.1-22 から分かる通り、還元前のペレットには、大きい粒子と小さい粒子の間には隙間があり、熔融塩がペレット内部に浸透する隙間は十分あることが分かる。さらに、倍率を上げていくと、 $20\ \mu\text{m}$ 程度の粒子の中にクラックが入っている様子が観察された。これは、MOX 焼結体をスタンプミルおよび乳鉢・乳棒にて粉末化した際に生じたものだと考えられる。このように、粒子のサイズに差があることでペレット内部の粉末は最密に充填されているが、塩が浸透するスペースは十分確保されていることが分かる。

図 3.2.1-23 には、電解還元試験後の模擬 MOX ペレット表面の SEM 観察結果を示す。高倍率～低倍率のすべての像で、表面全体に不定形の白い付着物が観察された。本画

像は取得する際に十分に明度を下げて取得したため判別しにくい、この不定形の白い付着物は強くハレーションしていた。

図 3.2.1-24 では、電解還元試験後の模擬 MOX ペレット内部の SEM 観察結果を示している。高倍率の SEM 像では、図 3.2.1-22 に観察されたようなクラックの入った粒子が観察された。このように微細な範囲では、還元前後で粒子の形状が変化するという事はなかった。しかしながら、低倍率の SEM 像では、図 3.2.1-23 で観察されたように、粒子の表面に不定形の付着物が観察された。また、倍率を上げて観察した際、粒子の表面にも小さな不定形の付着物が観察された。これらの付着物も、図 3.2.1-24 で見られたものと同様に、強くハレーションしていた。このように、還元後の模擬 MOX ペレットでは、還元前の模擬 MOX ペレット(図 3.2.1-22)では見られなかった不定形の付着物が、ペレット表面および内部に観察された。還元前では見られなかったものであること、強いハレーションが起きること、不定形の付着物であることを考慮すると、ペレット全体に見られる付着物は、洗浄されずに残った LiCl 溶融塩であると考えられる。SEM 観察結果が示す通り、溶融塩はペレット表面全体に付着しており、内部まで浸透していることが分かる。本観察結果より、ペレットの電解還元は内部まで十分に行われたと考えられる。しかしながら、本試料のハンドリング時に、かなりペレットが脆いことが分かった。また、1~2週間経過すると、ほとんどすべてが粉末化してしまった。当初の予想では、還元された酸化物は凝集して1つの金属バルクになりかなりの硬度を有すると考えており、凝集の様子を EDX 分析にて解析しようとしたが、EDX 分析ではペレットの線量が高く、スペクトル取得の際に試料のγ線に起因すると考えられるノイズが混入し、スペクトルによる凝集の判別は困難だった。しかしながら、還元後の試料はほとんどすべてが粉末化してしまったこと、還元後の粒子の形状は変化していないことを考慮すると、還元中に金属同士が凝集している可能性は低いと考えられる。このため、還元後に予想よりも大幅に重量が減少した原因は、還元中の金属同士の凝集が行われなかったことにより、ペレットの粉末が一部、浴塩に脱落したためと考えられる。

3) 電解精製試験

a) 試験塩

電解精製試験に供する試験塩には、LiCl - KCl 共晶塩を約 161g、U、Pu 濃度調整塩を約 73g、UCl₃ 混合塩および各希土類塩化物を混合したものを使用した。表 3.2.1-5 に調整塩および塩化物試薬の装荷量を記す。浴塩中の U の量が多いと、液体 Ga 電極中へ U のみが回収されてしまうため、浴塩中の U の量を Pu に対して十分少なくした。混合後の最終的な浴塩中の Pu 濃度は 0.7wt%、U 濃度は 0.08wt%である。試験は溶融塩を 773K に昇温して実施した。

b) 還元生成物電極

電解精製試験の陽極として、図 3.2.1-21 に示す還元生成物を使用した。図 3.2.1-25 に示す通り、Ta 製メッシュを φ10×H10mm のバスケットに加工し、その

中に還元生成物を装荷、その上に Ta 製メッシュで作製した抑え網をかぶせた。Ta 製のバスケットの下部には、精製後の還元生成物が浴塩中に脱落しないようにアルミナ製の受け皿を設置した。また、抑え網を押さえ付けるように Ta 製のロッドを差し込み、陽極とした。

c) 液体 Ga 電極

作用極には、W 線(1 mm φ、純度 99.95%、ニラコ製)電極および液体 Ga 電極を用いた。液体 Ga 電極は、Ga 金属(約 2g、純度 99.9999%、ニラコ製)をアルミナ坩堝(内径 9mm、SSA-S、ニッカトー製)に装荷し、Ta 線(1 mm φ)でリードを取った構造である。Ta 線リードは液体 Ga に接触し溶融塩には接触しないようにアルミナ絶縁管(SSA-S、ニッカトー製)で覆った。

d) 参照極

参照極には、Ag/AgCl 参照極を用いた。これは、Pyrex 管(先端薄吹き)内に LiCl-KCl-AgCl(1wt%AgCl、純度 99.9%、APL 製)を装荷し、Ag 線(0.5 mm φ、純度 99.99%、ニラコ製)でリードを取った構造である。

e) 試験条件および CV 測定

CV 測定は、参照極を Ag/AgCl、対極を還元生成物、作用極を W 電極としたものを試験前後に実施した。また、作用極を Ga 電極としたものをそれぞれ試験前に実施した。表 3.2.1-6 に本試験の試験条件を示す。図 3.2.1-26 に W 電極を作用極とした際の、RUN1~3 の試験前後の CV 測定結果を示す。溶融塩中の U の還元に伴う還元反応に起因するピークが -1.3V 付近に見られる。このピークの強度は浴塩中の U 濃度に依存するが、試験全体を通して、浴塩中の U 濃度に大きな変化は見られなかった。これは、Ga 中に回収された分、陽極から U が溶出したためと考えられる。また、Pu の還元反応に起因する還元電流が -1.6V 付近に確認できた。-1.9V 付近に観察された還元電流の増加および酸化電流ピークは、希土類金属(La、Ce、Nd、Gd、Eu)析出およびその溶出に起因すると考えられる。試験全体を通して、CV 線図に大きな変化がないことから浴塩の状態が著しく変化していないことを確認した。各試験の電解前に、Ga 電極を作用極として測定した CV 測定結果を図 3.2.1-27~29 に示す。いずれの測定結果も -0.85V 付近から還元電流が流れることが確認できた。また、-0.95V 付近に見られるピークは、U および Pu の還元反応に起因するものだと考えられる。

RUN1 試験後、還元生成物電極を作用極とし、参照極を Ag/AgCl、対極を Ga 電極として CV 測定を実施した。図 3.2.1-30 にその結果を示す。この図では、還元電流のピークの立ち上がりが -1.3V、-1.4V、-1.7V 付近に見られた。溶融塩中に混合している元素から考えると、U、Pu、希土類の析出に起因する電流の増加だと考えられる。これに対応した酸化電流ピークの立ち上がりは、-1.7V、-1.4V、-1.2V 付近に見られるものだと考えられ、それぞれ希土類 E、Pu、U の溶出に起因する酸化電

流の増加だと考えられる。

f) 電解精製試験

図 3.2.1 - 31 に、RUN1 の試験時における Ga 電極および還元生成物電極の電位の経時変化を示す。陰極である Ga 電極の電位は、試験中一定して-1.05V 付近を維持している。前述の CV 測定結果と併せて考えれば、液体 Ga 電極中に主に回収されているのが U および Pu であることが分かる。また、昨年度実施した電解精製試験では、-5mA で定電流電解を実施した際、安定して-1.1V の値を示した。この時、希土類元素は十分に分離された結果を示したことから、希土類の酸化還元電位は-1.1V よりも卑側に位置すると考えられる。本試験では、試験時の電位は-1.05V を安定して推移しており、-1.1V よりも貴側であることから、希土類元素はほとんど回収されていないと考えられ、表 3.2.1-10 に示す、ICP-AES の分析結果に基づく分離係数結果からもそれが裏付けられた。一方、陽極である還元生成物の電位は、試験開始直後から急激にシフトし、-0.7V よりも貴側の電位を示した。電位は安定することなく、さらに貴側にシフトし続けた。図 3.2.1-30 の還元生成物を電極とした CV 線図を考慮すると、-1.2~-0.6V の範囲では、U の溶出に起因する酸化電流ピーク以外は観察されなかった。Ta の溶出電位は、U よりも貴側に位置していることから、-0.6V よりも貴側にあると考えられる。このため、電解精製時に還元生成物の電位が-0.7V よりもさらに貴側にシフトすることは、Ta の溶出電位に到達する挙動であったと考えられる。そのため、直ちに電解を停止し、陽極の Ta 製のロッドを上下してから電解試験を開始した。その結果、電位の立ち上がりは抑えられ、-0.85V 付近で安定した電位を示した。これは、陽極のバスケットに還元生成物を装荷した時点で還元生成物と電極との接触が不安定だったため、還元生成物に電流が流れず、Ta 製のロッドおよびバスケットにのみ電流が流れてしまったためだと考えられる。このため、抑え網越しにロッドを押し付け、還元生成物とバスケットとの接触面積を増やすことで還元生成物に十分電流が流れたと考えられる。還元生成物電極の電位が-0.85V を示しているということは、U、Pu、希土類は溶融塩中に溶出しているが、Ta および Ta よりもさらに貴側に酸化還元電位が位置する貴金属(Pd、Mo)は塩中に溶出していないことを示している。このことから、電解精製の進行に伴い、還元生成物中の U、Pu、希土類は溶融塩中に溶出し、貴金属はバスケット中に残留または坩堝底部へ脱落すると考えられる。

図 3.2.1 - 32、33 に RUN2,3 の試験時における Ga 電極および還元生成物電極の電位の経時変化を示す。本試験では上記に示したように MOX 電極電位が急激に貴側にシフトするようなことはなく、安定した電位を示した。また、Ga 電極電位に関しても安定して-1.0~-1.05V 付近を示しており、CV 線図の結果から併せて考えれば Ga 中には U、Pu が主に回収されていると考えられる。

図 3.2.1 - 34 には、RUN1~3 の試験がすべて終了した後、取り出した陽極バスケットを解体した外観図を示す。図から分かる通り、陽極バスケット内に残留した物質のほとんどは付着塩であるが、一部、陽極の残渣が観察された。図 3.2.1 - 31~

33 の還元生成物電極電位変化では、RUN1～RUN3 まで安定して U、Pu の溶出電位を示した。通常、MOX ペレット中に溶出する U、Pu 元素がなくなれば、直ちに Ta の溶出電位へ推移する。この挙動が試験中に見られなかったことから、図 3.2.1-33 で見られる残渣は、熔融塩中へ溶出し切れなかった還元生成物であると考えられる。この還元生成物の洗浄後の重量が 0.113g であったのに対し、装荷前の還元生成物の重量は 0.570g であった。装荷前の還元生成物には熔融塩が付着しており、塩が付着した状態での重量は 0.790g であった。塩を洗浄してしまうと表面が GB 内雰囲気露出してしまい酸化してしまう可能性があったため、電解精製試験の陽極として装荷する時まで塩が付着していたことから、直接秤量できなかつたが、SEM 観察用に分取した還元生成物を洗浄した際の秤量値から塩の付着量を秤量し、装荷前の還元生成物の重量を計算した。この還元生成物中の U、Pu、希土類の重量を表 3.2.1-7 に示す。精製試験に装荷前の還元生成物および精製試験後の陽極に残った残渣中の U および Pu は、表 3.2.1-2 に示す U および Pu の濃度に基づき計算した。陽極残渣の重量は、精製試験後に洗浄後濾過し、濾紙に残ったものを秤量した値である。また、ICP-AES 装置にて、Ga 中へ移行した U および Pu、並びに希土類元素量を測定した。この時、Ga 中へは、本試験で実施した電位の経時変化(図 3.2.1-31～33)と Ga 電極を用いた CV 線図(図 3.2.1-27～29)にて示す通り、U と Pu が主に回収され、希土類は殆ど Ga 中へ移行していないことが分かる。表 3.2.1-7 には、電解精製試験前の陽極重量、電解精製試験後の陽極重量、電解精製試験後の陰極(液体 Ga)重量を示し、陽極中の元素重量はその重量から各元素重量を計算した。また、各分析結果に基づき、熔融塩中に溶出したと考えられる各元素重量の推定値を示した。RUN1 の試験後に得られた Ga 電極の重量増加は、Ga 中へ移行した量を電気量から計算した重量増加量に対して 94%となり、良い一致を示した。一方、RUN2,3 の試験後の Ga 重量増加は、電気量から計算した理論重量増加量に対し 57、52%程小さかった。これは、RUN2,3 の回収量が飽和溶解度の 2 倍、0.8 倍と非常に少なかったため、試験後に洗浄した際の作業上の試料の損失が相対的に大きくなったためと考えられる。これは、RUN2、3 が、RUN1 と同様に電解精製試験時の電位変化が-1.05V よりも卑側に推移することはなかったこと、並びに濃度分析結果からも分かる通り、希土類が主に回収されたことが原因で、Ga 電極の増加量が理論値よりも小さくなったわけではない。電解還元物の重量減少量は電気量から求めた電解還元物の理論減少量よりも大きい。これは、電解精製中に電解還元物が浴塩中へ脱落してしまったためと考えられる。電解精製の陽極へ装荷するまでは、還元生成物の周りには LiCl と Li 金属が付着していたため形状を保持していたが、浴塩に装荷することで付着物が剥がれ、電解精製が進行すると共に、陽極を保持しているバスケットから一部脱落していったと考えられる。これは、還元生成物の SEM 観察を実施するために、試料の付着塩を洗浄した際、ほとんどが粉末となってしまったことから分かる通り、還元後にペレットの金属等が凝集することで形状が保持されるといったことはないと考えられる。より効率的な回収を目指すためには、陽極内における還元生成物の保持方法について今後さらに検討する必要がある。また、表 3.2.1-8 に塩

中の各元素の濃度分析結果を、表 3.2.1-9 に Ga 中の各元素の濃度分析結果を、表 3.2.1-10 に表 3.2.1-8 及び表 3.2.1-9 の濃度分析結果から求めた分離係数を示す。表 3.2.1-8 からわかる通り、アクチニド及び希土類が塩中へ溶出していることがわかる。また、表 3.2.1-9 からわかる通り、アクチニドは Ga 中に回収され、希土類は非常に微量ではあるが Ga 中に存在していることを確認した。Ru に関しては、ICP 分析結果からピークが観察されなかったため、塩中に溶出せず、Ga 中へ回収されなかったと考えられる。Mo に関しては Ce のピークとの判別が困難であり、また、Pd に関しては La とのピークの判別が困難であった。このため、この 2 つの元素については試料の化学分析結果から挙動を評価することはできないが、いずれも溶解電位が非常に高く、陽極電位は電解精製試験を通じてその電位に達しなかったため、塩中には溶出せず、Ga 電極にも回収されなかったと判断した。表 3.2.1-1 に示した H30 年度の Ga を飽和溶解度以上に回収した分離係数と表 3.2.1-10 を比較すると、RUN1 については、昨年度と同じく、アクチニド／希土類間分離性能は十分高いことが分かる。RUN2,3 については、特に Pu、Am の分離性能が低くなった。RUN2,3 の Ga 重量は、電気量から計算した理論重量増加量に対し、それぞれ 57、52%低い値を示したことから分かる通り、試験後の作業におけるハンドリング時の試料損失が大きくなったためと考えられる。今回、分離係数を評価するため、取得した Ga 試料は全量溶解し、濃度分析を実施した。この時、各液体 Ga 電極を 4 つほどに分割し、それぞれを全て溶解し、濃度分析を実施したが、同一試料にも関わらず U、Pu の濃度にばらつきがあった。このことから、Ga 電極にてアクチニドを回収すると、電極内部でアクチニドが偏析する可能性が高い事が明らかとなった。このため、RUN2,3 のようにアクチニドの回収量が少ないと、作業時の試料の損失部分に偏析したアクチニド量が大きく影響し、分離係数にもばらつきが出てしまったと考えられる。一方、RUN1 では、アクチニドを飽和溶解度の 4 倍以上回収した為、試料の損失部分に偏析したアクチニド量が相対的に小さくなり、分離係数への影響が少なかったと考えられる。その結果、実際の Ga 電極の増加量は、電気量から計算した理論重量増加量の 94%と良い一致を示すこととなり、正確な分離係数が得られたと考えられる。そのため、RUN1 の分離係数は、H30 年度の結果と比較しても、同等以上の良い値を示している。本試験で得られた U の分離係数は、RUN1~3 の全てにおいて、昨年度得られた分離係数と比較すると 100 倍以上高くなっている。これは、表 3.2.1-11 に示す通り、精製試験開始前の熔融塩中の U 濃度が想定の 10 倍以上高かったため、Ga 中に U が支配的に回収され、U の分離係数が高くなってしまったと考えられる。

4) まとめ

模擬 MOX ペレットを出発物質として電解還元、電解精製試験を実施した還元試験では、SEM 観察結果より熔融塩が内部まで浸透していること、還元試験終了間際には電流を流すと速やかに Li 析出電位まで推移すること、試験前後の重量変化よりほとんどすべて還元されている可能性が高いこと、還元生成物を陽極とした電解精製プロセス

スでは、精製試験時の電位の挙動及び ICP-AES 分析結果より、液体 Ga 中へ U 及び Pu が主に回収されていることを確認できたことから、本プロセスは実現可能であることが明らかになった。また、本試験では精製試験時に電位が-1.05V を安定して示し、平成 30 年度の電解精製結果及び本試験後の濃度分析結果と照らし合わせると、希土類が支配的に回収される電位は-1.1V よりも卑側であることが分かった。また、ICP-AES 分析結果より、液体 Ga 中へ希土類元素はほとんど回収されず、高い分離係数を示したことから分離性能を担保していると考えられる。この時のマスバランスの評価では、液体 Ga 中へ移行するアクチニド元素と熔融塩中へ移行するアクチニド元素があることが分かった。Ga 中への移行を著しく阻害する挙動はなかったことから、本プロセスが実現可能であることが明らかとなったが、電解精製時の陽極の保持方法については改良する余地があることが分かった。

表 3.2.1-2 MOX ペレットの仕様

項目	数値
バッチ番号	S06A1C02
Pu 濃度	27.54wt%
U 濃度	59.33wt%
Am 濃度	3.95% of Pu
密度	85%TD
外径	5mm φ
高さ	8 mm
重量	1.84g
個数	6 個

表 3.2.1-3 MOX ペレット粉末、貴金属元素+希土類元素粉末、加圧成形後の重量

粉末名称		ペレット No. 1 (g)	ペレット No. 2 (g)
MOX ペレット重量(秤量値)		1.575	1.589
各元素重量	U	0.934	0.943
	Pu	0.434	0.438
貴金属元素 +希土類元素 重量(秤量値)		0.056	0.057*
各元素重量	Mo	0.008	0.008*
	Pd	0.008	0.008*
	Ru	0.008	0.008*
	Eu ₂ O ₃	0.004	0.004*
	CeO ₂	0.008	0.008*
	Nd ₂ O ₃	0.012	0.012*
	La ₂ O ₃	0.004	0.004*
	Gd ₂ O ₃	0.004	0.004*
合計(加圧成型後)		1.631	1.646

※小数点下 4 桁以下の値により No. 2 の秤量値とのずれあり

表 3.2.1-4 電解還元試験時における設定電流（および電位）、電解時間、電気量

実施日	電解時の設定電流値 または設定電位	電解時間 (sec)	電気量 (C)
12/11	-50 (mA)	2200	109.9
	-100 (mA)	1800	179.9
	-150 (mA)	1000	149.6
12/12	-200 (mA)	3000	598.9
	-300 (mA)	4200	1258.2
	-400 (mA)	960	386.3
	-300 (mA)	1108	334.0
	-200 (mA)	1500	299.5
	-100 (mA)	2000	199.3
12/13	-100 (mA)	400	39.9
	-150 (mA)	2600	389.7
	-200 (mA)	2500	499.5
	-300 (mA)	800	239.8
	-200 (mA)	1200	240.0
	-100 (mA)	700	69.9
	-0.55 (V)	5002	245.5
合計		30970	5239.9

表 3.2.1-5 調整塩、塩化物試薬の装荷量

	装荷量 (g)
LiCl-KCl 共晶塩	161.276
U, Pu 濃度調製塩 (U:0.004wt%, Pu:2.345wt%)	73.493
UCl ₃ 混合塩 (U:42.077wt%)	0.453
CeCl ₃	3.590
NdCl ₃	3.664
GdCl ₃	3.936
LaCl ₃	4.192
EuCl ₂ -LiCl-KCl (Eu:10wt%)	7.563

表 3.2.1-6 RUN1～3 の試験条件

RUN No.	Ga 金属 装荷量(g)	電流値 (mA)	電気量 (C)
RUN1	2.648	-5	103.67
RUN2	2.837	-10, -5	51.16
RUN3	3.172	-5	22.48
合計	—	—	177.31

表 3.2.1-7 電解精製試験時におけるマスバランス評価

	正味量(g)	各正味量における元素重量									
		U(g)	Pu(g)	Ce(g)	Nd(g)	Gd(g)	La(g)	Eu(g)	Mo(g)	Pd(g)	Ru(g)
精製試験前 還元生成物	5.70×10^{-1}	3.75×10^{-1}	1.74×10^{-1}	2.62×10^{-3}	4.13×10^{-3}	1.39×10^{-3}	1.37×10^{-3}	1.39×10^{-3}	3.21×10^{-3}	3.21×10^{-3}	3.21×10^{-3}
精製試験後 陽極残渣	1.13×10^{-1}	7.44×10^{-2}	3.46×10^{-2}	5.19×10^{-4}	8.19×10^{-4}	2.76×10^{-4}	2.72×10^{-4}	2.75×10^{-4}	6.37×10^{-4}	6.37×10^{-4}	6.37×10^{-4}
精製後 Ga (RUN1)	2.73×10^0	7.28×10^{-2}	7.45×10^{-4}	1.75×10^{-6}	1.40×10^{-6}	5.25×10^{-7}	7.00×10^{-7}	1.23×10^{-7}	—*	—*	—
精製後 Ga (RUN2)	2.86×10^0	3.91×10^{-2}	1.97×10^{-4}	1.38×10^{-6}	3.44×10^{-7}	6.88×10^{-7}	1.38×10^{-7}	1.03×10^{-7}	—*	—*	—
精製後 Ga (RUN3)	3.18×10^0	1.61×10^{-2}	6.94×10^{-5}	7.02×10^{-7}	5.27×10^{-7}	5.27×10^{-7}	3.51×10^{-7}	8.78×10^{-8}	—*	—*	—
浴塩への 移行量	4.57×10^{-1}	3.01×10^{-1}	1.40×10^{-1}	2.10×10^{-3}	3.31×10^{-3}	1.12×10^{-3}	1.10×10^{-3}	1.11×10^{-3}	2.58×10^{-3}	2.58×10^{-3}	2.58×10^{-3}
浴塩への 溶解量	1.29×10^{-1}	1.28×10^{-1}	1.01×10^{-3}	3.83×10^{-6}	2.27×10^{-6}	1.74×10^{-6}	1.19×10^{-6}	3.14×10^{-7}	—*	—*	—
浴塩への 脱落量	3.28×10^{-1}	1.73×10^{-1}	1.39×10^{-1}	2.09×10^{-3}	3.31×10^{-3}	1.12×10^{-3}	1.10×10^{-3}	1.11×10^{-3}	2.58×10^{-3}	2.58×10^{-3}	2.58×10^{-3}

※他元素とのピーク判別が困難であるが、陽極電位がこれらの元素の溶解電位に達しなかったことから、元素の移行無しとした。

表 3.2.1-8 電解精製試験時における浴塩中の各元素濃度

	各正味量における元素重量 [wt%]										
	U	Pu	Am	Ce	Nd	Gd	La	Eu	Mo	Pd	Ru
試験前	3.88×10^{-1}	7.29×10^{-1}	3.33×10^{-2}	7.99×10^{-1}	8.82×10^{-1}	9.11×10^{-1}	9.32×10^{-1}	2.19×10^{-1}	—*	—*	—
RUN1 後	4.52×10^{-1}	7.89×10^{-1}	4.32×10^{-2}	8.00×10^{-1}	8.70×10^{-1}	9.24×10^{-1}	9.31×10^{-1}	2.22×10^{-1}	—*	—*	—
RUN2 後	4.72×10^{-1}	7.89×10^{-1}	3.80×10^{-2}	8.15×10^{-1}	8.81×10^{-1}	9.38×10^{-1}	9.27×10^{-1}	2.28×10^{-1}	—*	—*	—
RUN3 後	4.87×10^{-1}	7.92×10^{-1}	3.91×10^{-2}	8.07×10^{-1}	8.71×10^{-1}	9.23×10^{-1}	9.38×10^{-1}	2.28×10^{-1}	—*	—*	—

※他元素とのピーク判別が困難であるが、陽極電位がこれらの元素の溶解電位に達しなかったことから、元素の移行無しとした。

表 3.2.1-9 電解精製試験時における Ga 中の各元素濃度

各正味量における元素重量[wt%]											
	U	Pu	Am	Ce	Nd	Gd	La	Eu	Mo	Pd	Ru
RUN1	2.75×10^0	2.81×10^{-2}	9.73×10^{-4}	6.61×10^{-5}	5.29×10^{-5}	1.98×10^{-5}	2.64×10^{-5}	4.63×10^{-6}	—*	—*	—
RUN2	1.41×10^0	7.14×10^{-3}	1.32×10^{-4}	4.98×10^{-5}	1.25×10^{-5}	2.49×10^{-5}	4.98×10^{-6}	3.74×10^{-6}	—*	—*	—
RUN3	5.14×10^{-1}	2.22×10^{-3}	4.66×10^{-5}	2.25×10^{-5}	1.69×10^{-5}	1.69×10^{-5}	1.12×10^{-5}	2.81×10^{-6}	—*	—*	—

※他元素とのピーク判別が困難であるが、陽極電位がこれらの元素の溶解電位に達しなかったことから、元素の移行無しとした。

表 3.2.1-10 アクチニドを液体 Ga に回収した際の分離係数

	SF(U)	SF(Pu)	SF(Am)	SF(Ce)	SF(Nd)	SF(Gd)	SF(La)	SF(Eu)
RUN1	7.36×10^4	4.31×10^2	2.72×10^2	1.00×10^0	7.36×10^{-1}	2.60×10^{-1}	3.44×10^{-1}	2.52×10^{-1}
RUN2	4.90×10^4	1.48×10^2	5.67×10^1	1.00×10^0	2.31×10^{-1}	4.34×10^{-1}	8.79×10^{-2}	2.69×10^{-1}
RUN3	3.79×10^4	1.01×10^2	4.27×10^1	1.00×10^0	6.95×10^{-1}	6.55×10^{-1}	4.30×10^{-2}	4.41×10^{-1}

表 3.2.1-11 電解精製試験開始前の溶融塩中の各元素濃度

	濃度 (wt%)
U	4.44×10^{-1}
Pu	7.01×10^{-1}
Am	3.81×10^{-2}
Ce	7.90×10^{-1}
Nd	8.16×10^{-1}
Gd	9.09×10^{-1}
La	9.19×10^{-1}
Eu	2.93×10^{-1}

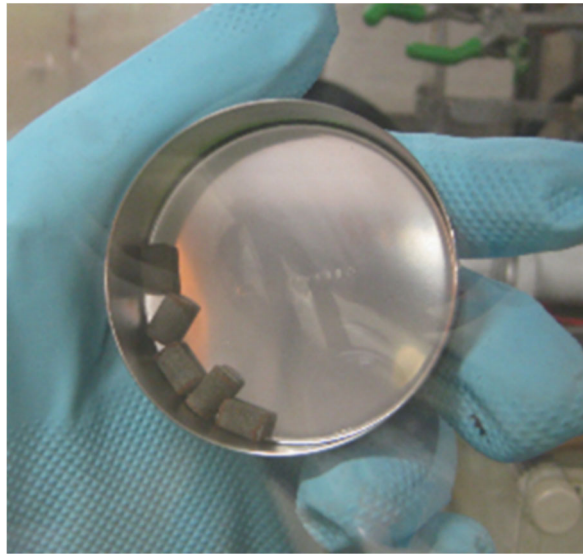


図 3.2.1-5 MOX ペレット外観図

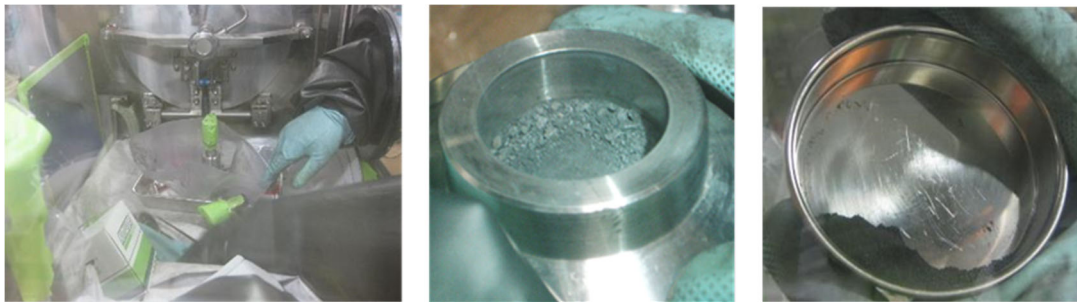


図 3.2.1-6 スタンプミル外観図(左)、30分破碎後(中)、1時間30分破碎後(右)



図 3.2.1-7 乳鉢・乳棒設置外観図(左)、分級作業時(中)、分級後外観図(右)



図 3.2.1-8 プレス台へのダイス設置図(左)、加圧後ダイス外観図(中)、模擬 MOX ペレット外観図(右)

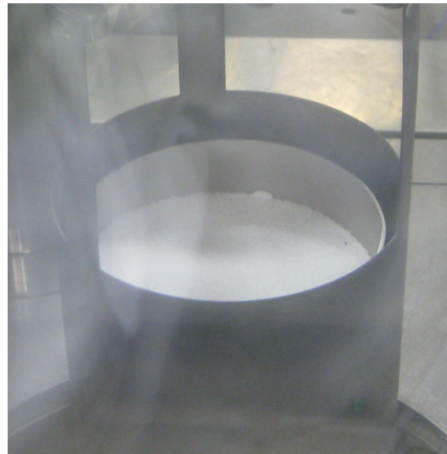


図 3.2.1-9 試験前の LiCl-Li₂O 混合塩



図 3.2.1-10 曲げ加工後 Pt 板(左)、Pt 板+Pt 線取り付け部(中)、Pt 電極全体(右)

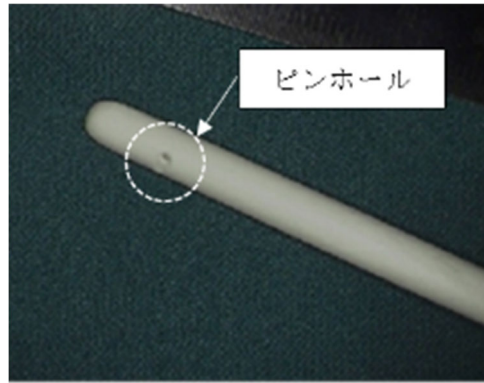


図 3.2.1-11 Pb-Li 電極の先端外観図



図 3.2.1-12 MOX 電極の外観

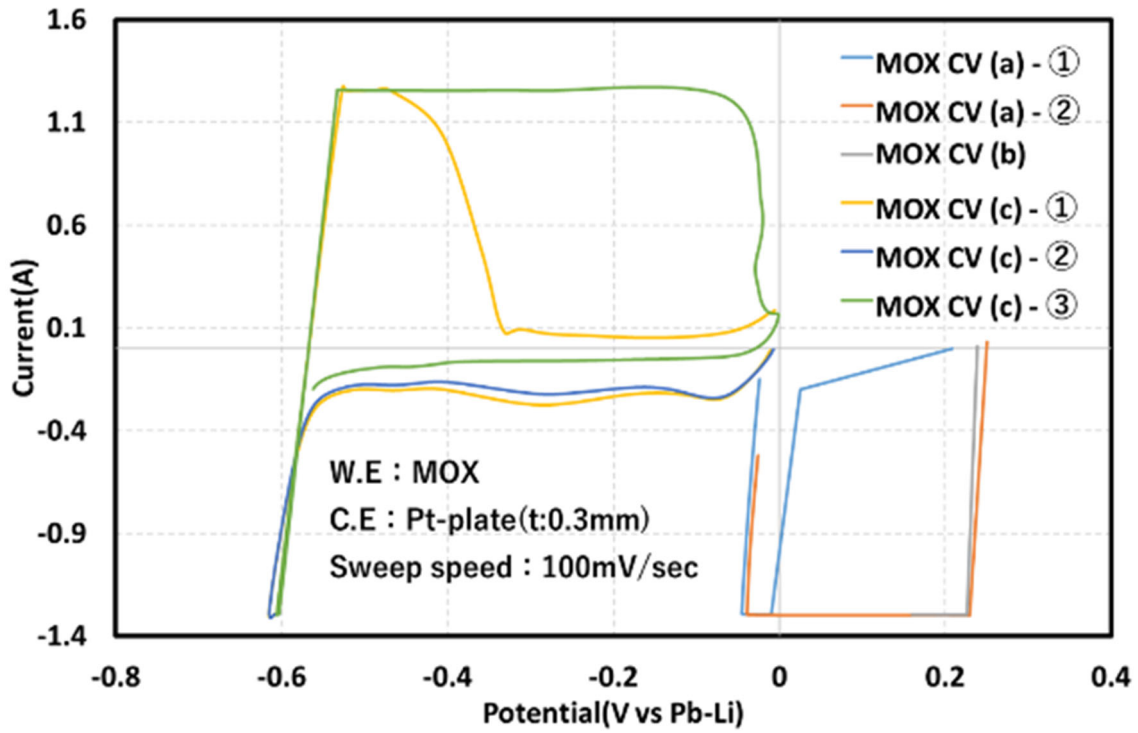


図 3. 2. 1-13 酸化物電極の CV 曲線①

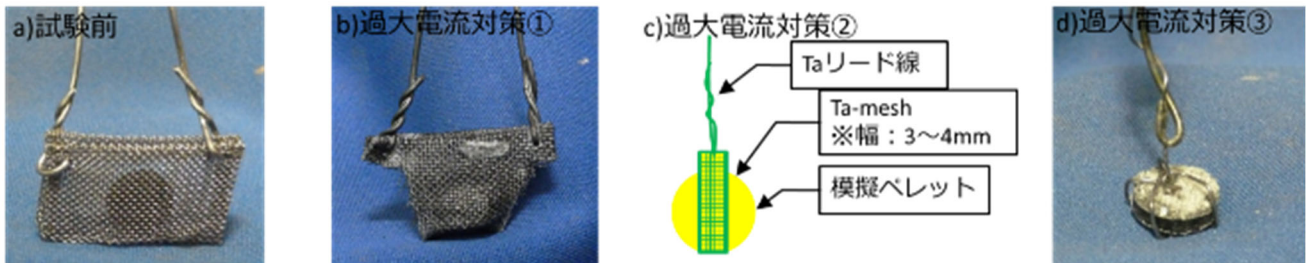


図 3. 2. 1-14 酸化物電極の変遷

a) 試験前、b) 過大電流対策①、c) 過大電流対策②、d) 過大電流対策③

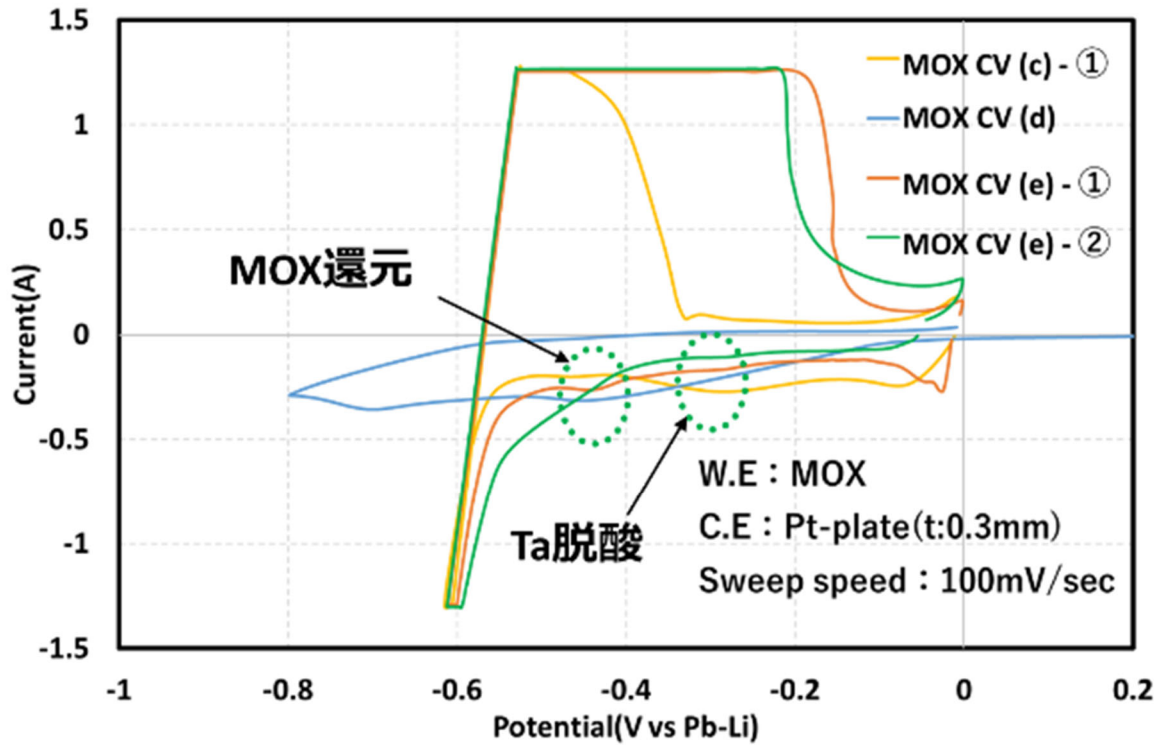


図 3. 2. 1-15 酸化物電極の CV 曲線②

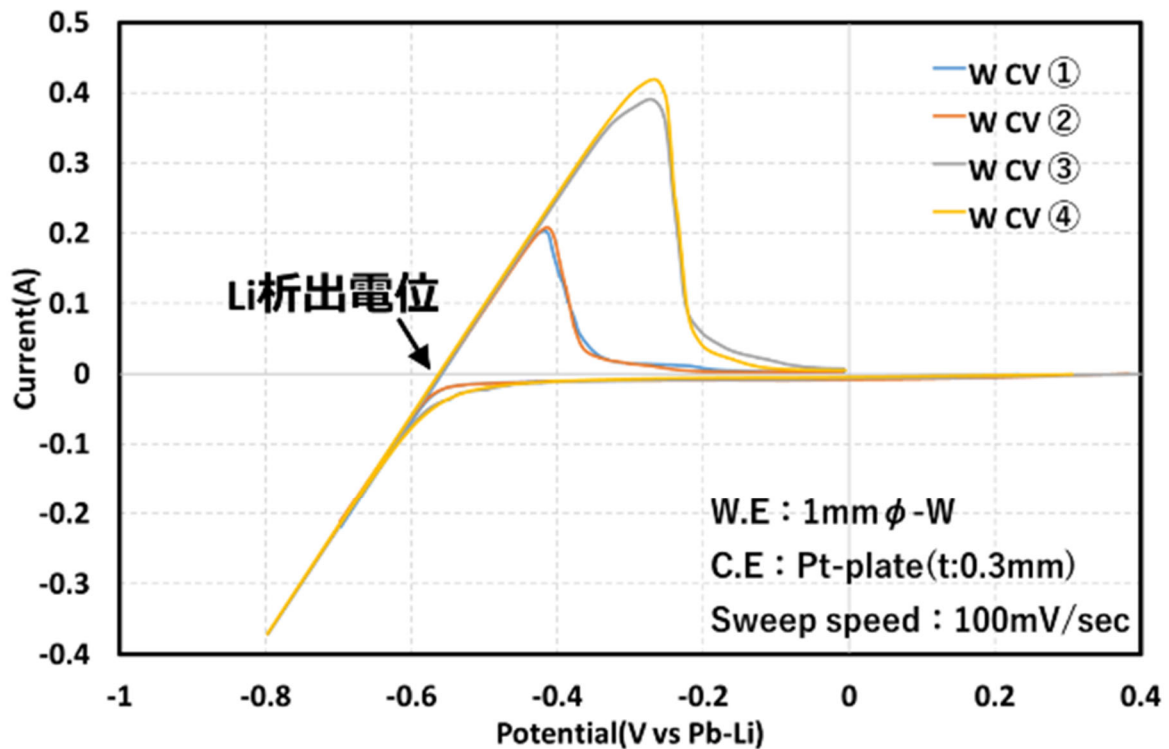


図 3. 2. 1-16 LiCl-Li₂O 溶融塩における W 電極の CV 曲線

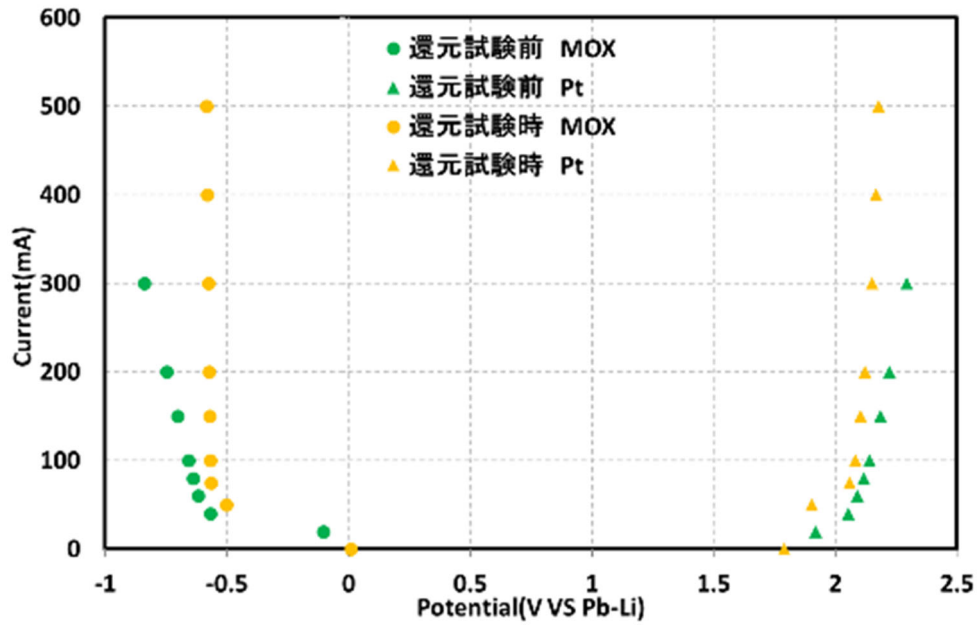
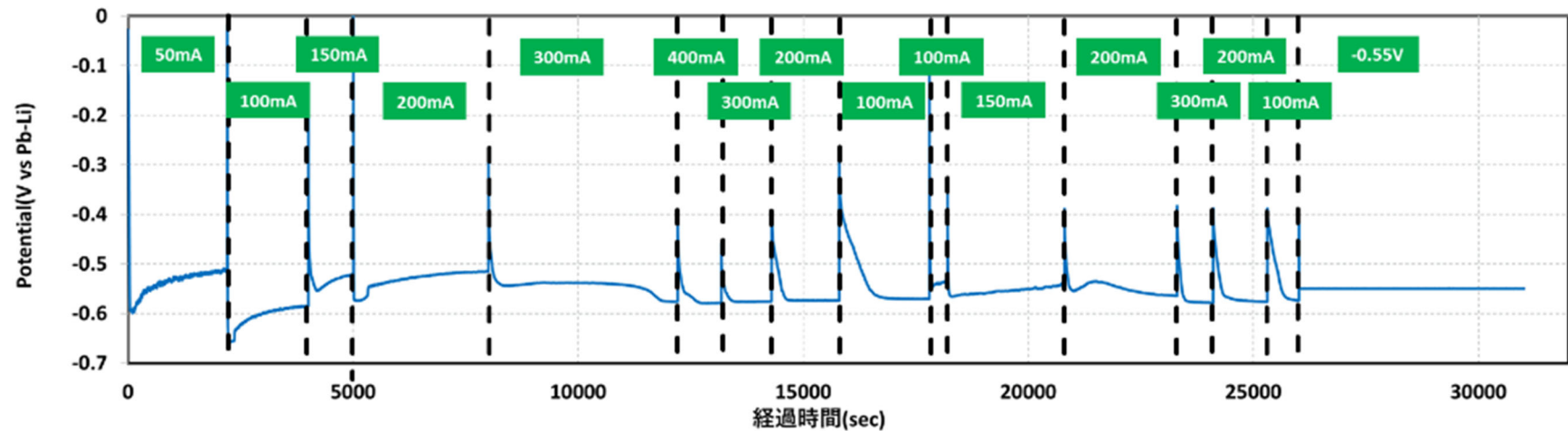
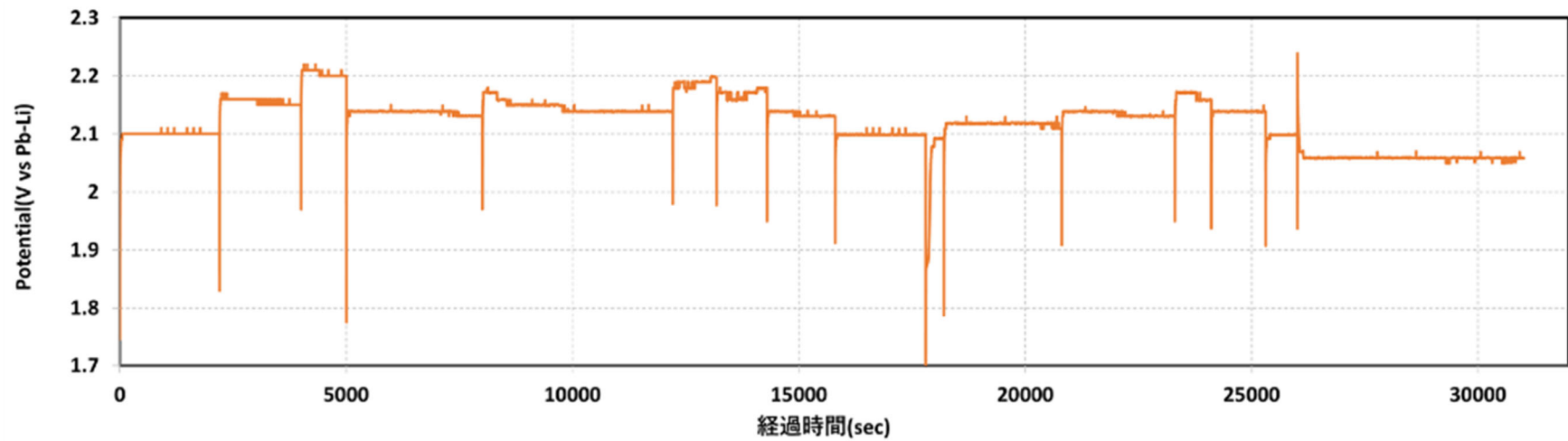


図 3.2.1-17 酸化物電極と Pt 電極の分極測定



a) 酸化物電極電位の変化



b) Pt電極電位の変化

図 3. 2. 1-18 電解中の(a)酸化物電極、(b)Pt 電極電位の変化

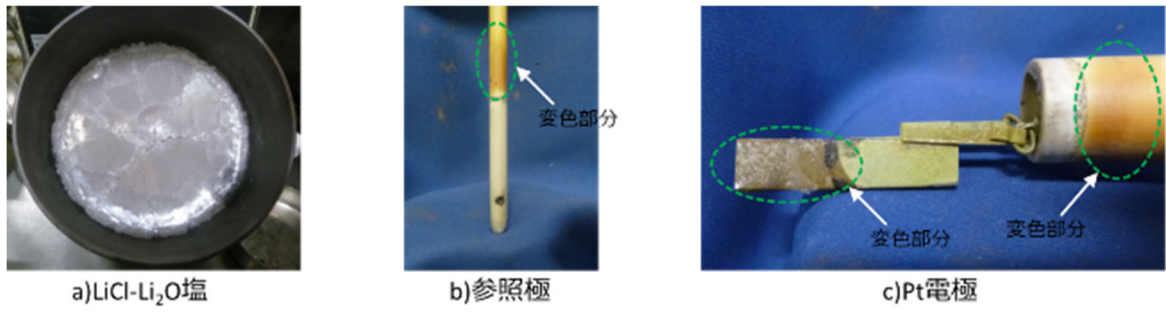


図 3.2.1-19 試験後の試験塩、電極の外観

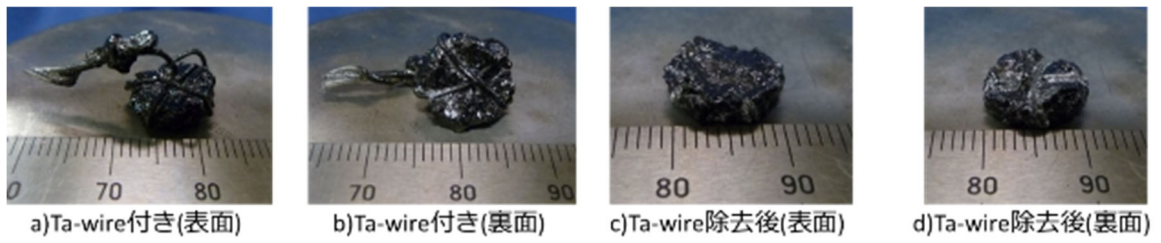


図 3.2.1-20 電解還元後の還元生成物外観

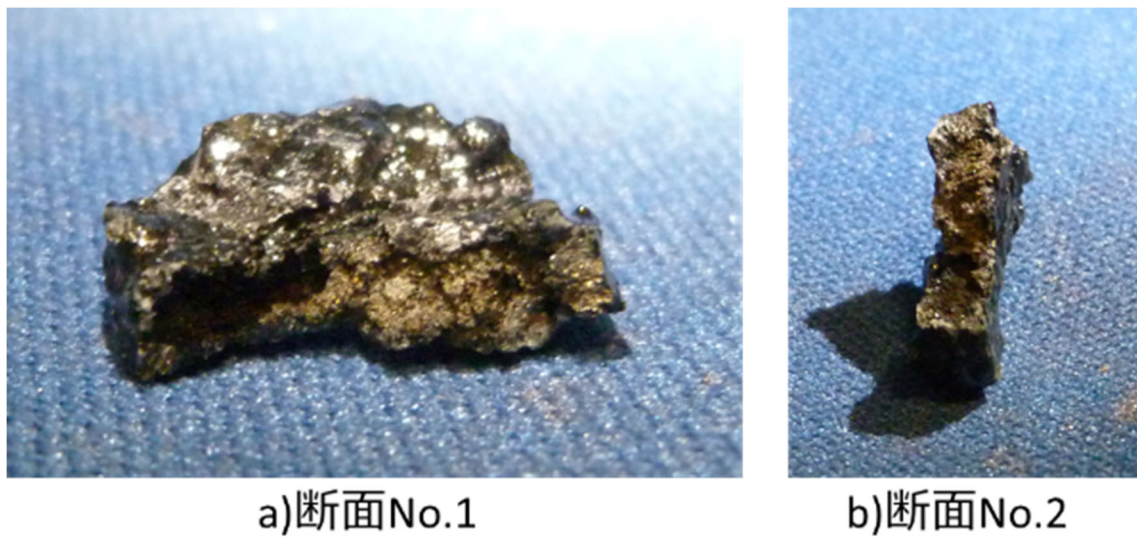


図 3.2.1-21 還元生成物の断面

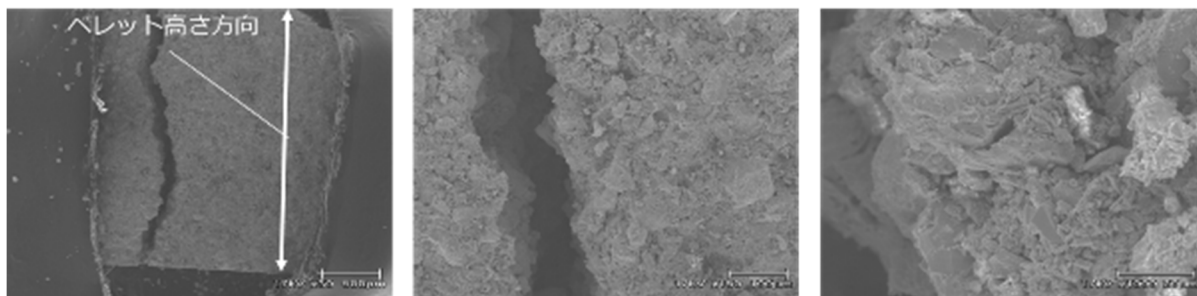


図 3. 2. 1-22 模擬 MOX ペレット断面の SEM 像 (還元試験前)

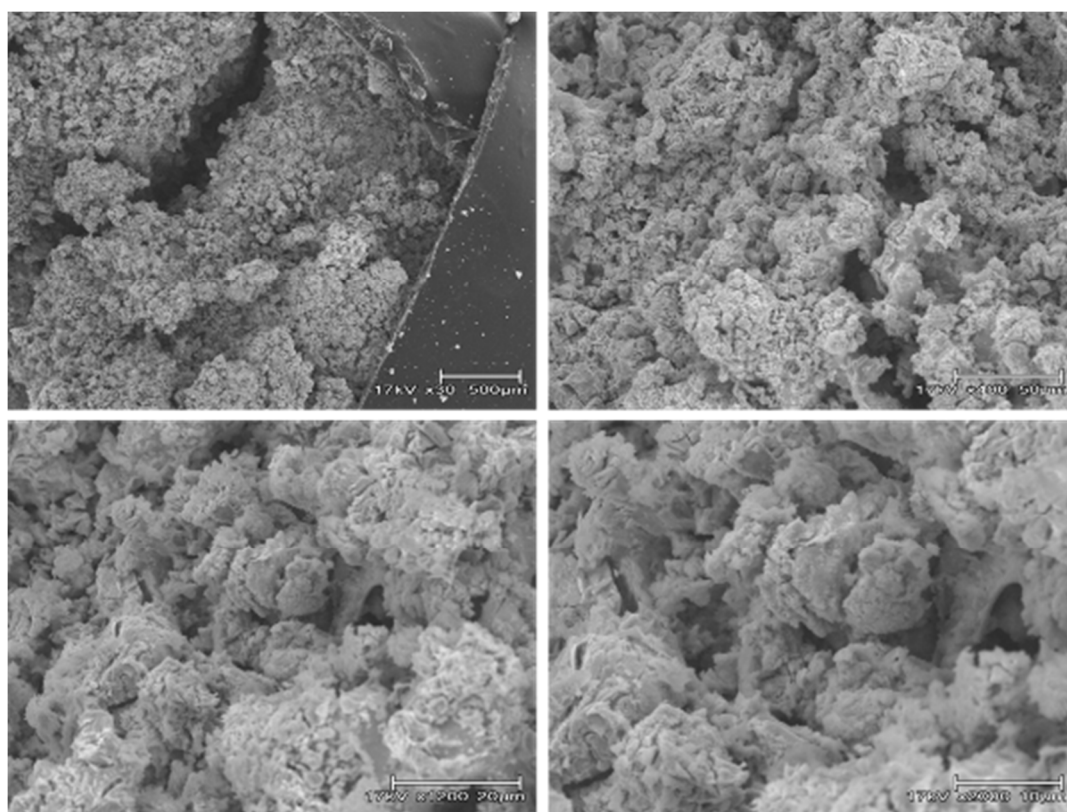


図 3. 2. 1-23 模擬 MOX ペレット表面の SEM 像 (還元試験後)

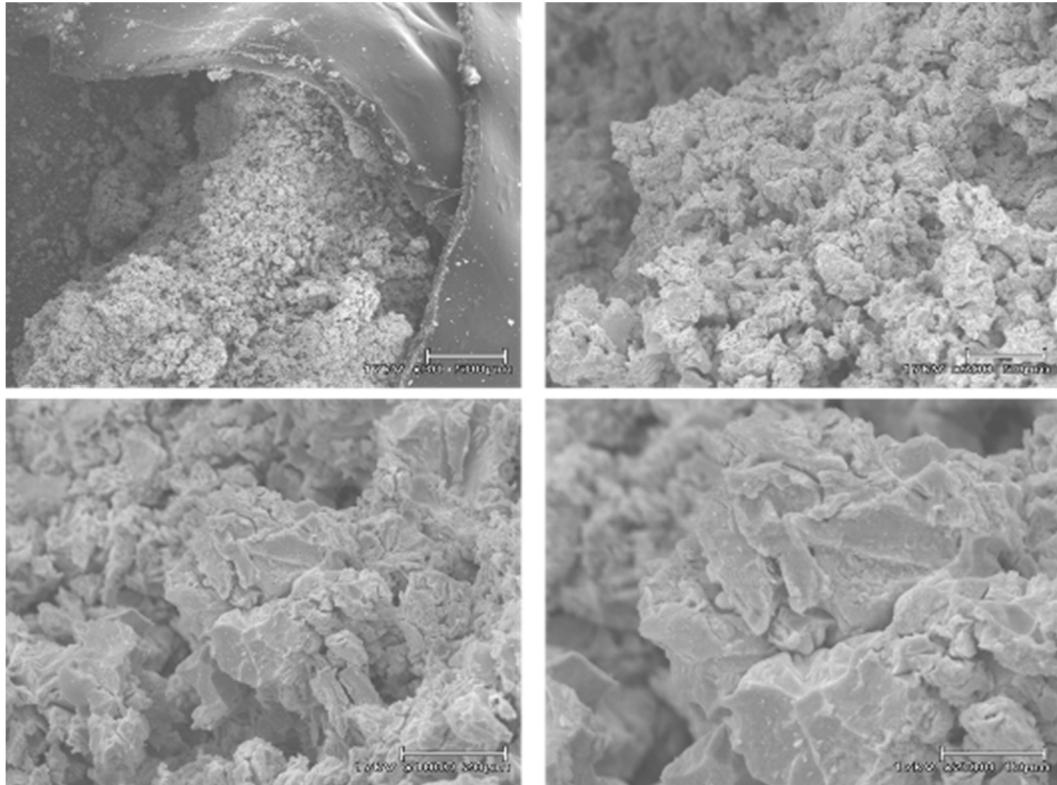


図 3.2.1-24 模擬 MOX ペレット内部の SEM 像 (還元試験後)

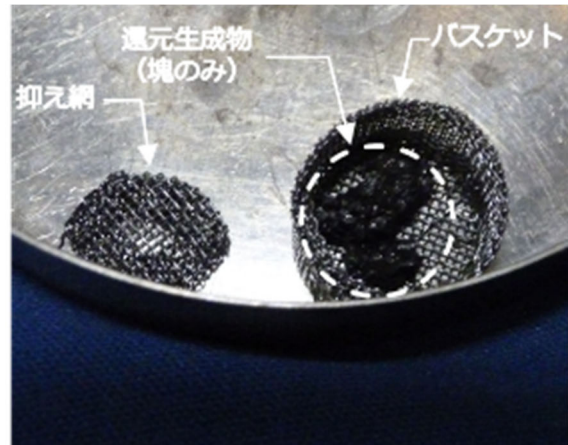
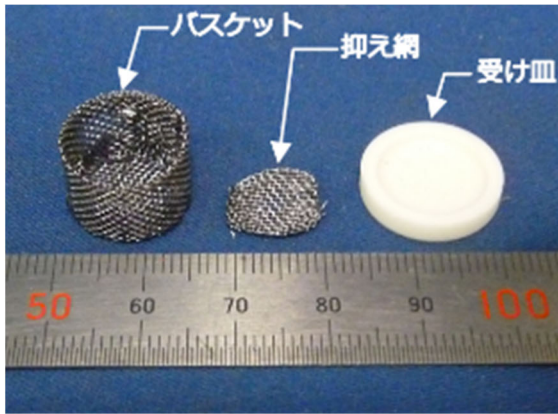


図 3.2.1-25 バスケット、抑え網、受け皿外観図(左)、還元生成物のバスケット装荷後外観図(右)

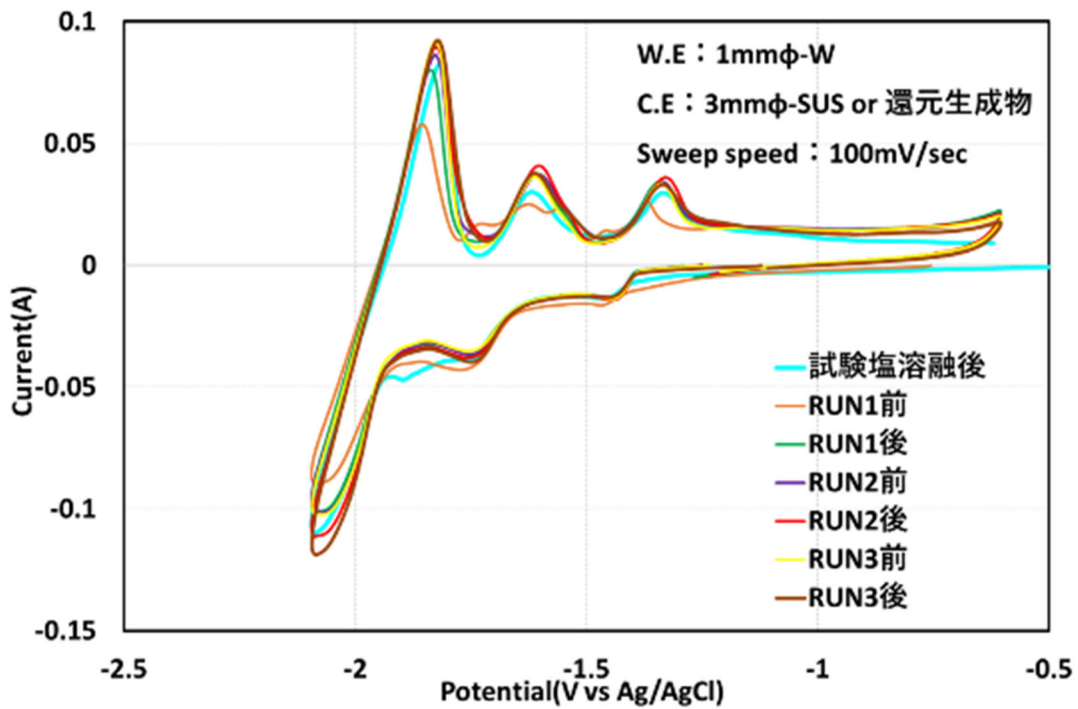


図 3. 2. 1-26 各試験前後の CV 測定結果 (W 電極使用時)

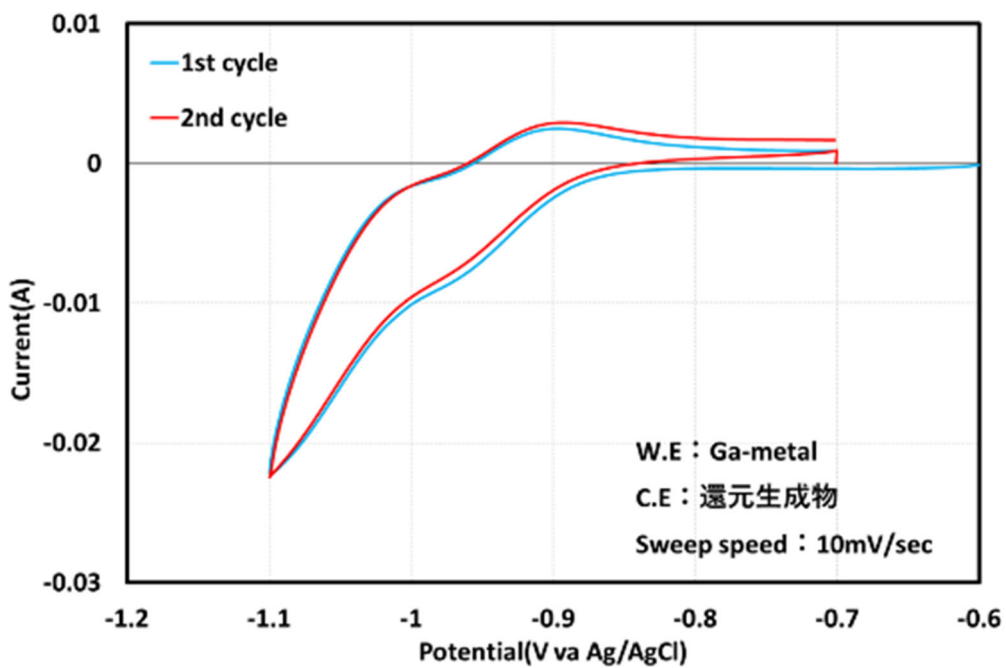


図 3. 2. 1-27 RUN1 試験前の CV 測定結果 (Ga 電極使用時)

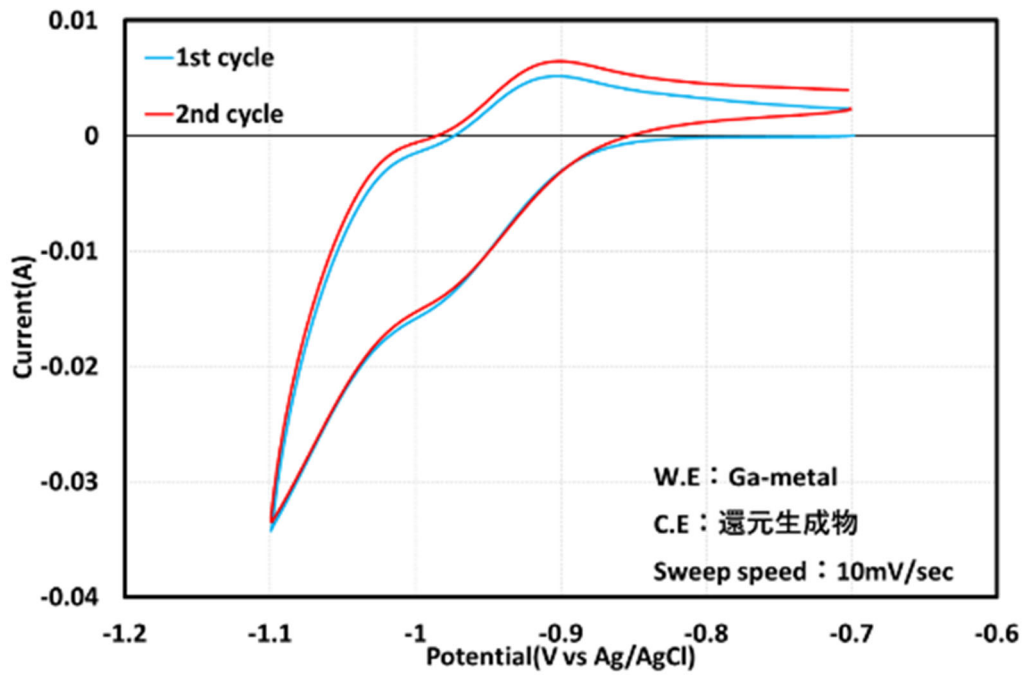


図 3. 2. 1-28 RUN2 試験前の CV 測定結果 (Ga 電極使用時)

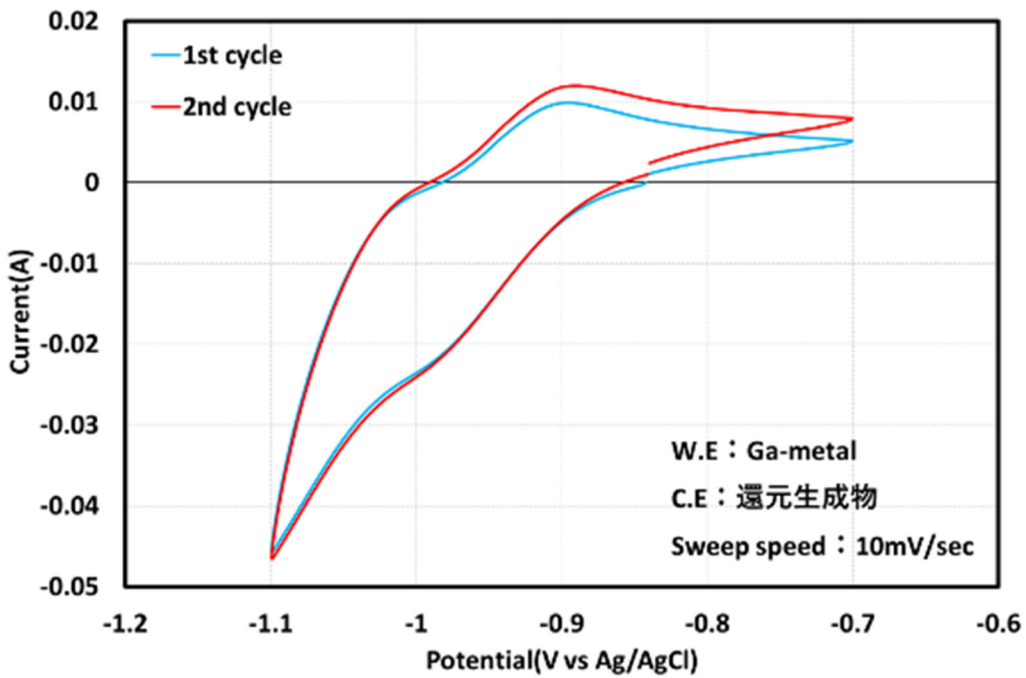


図 3. 2. 1-29 RUN3 試験前の CV 測定結果 (Ga 電極使用時)

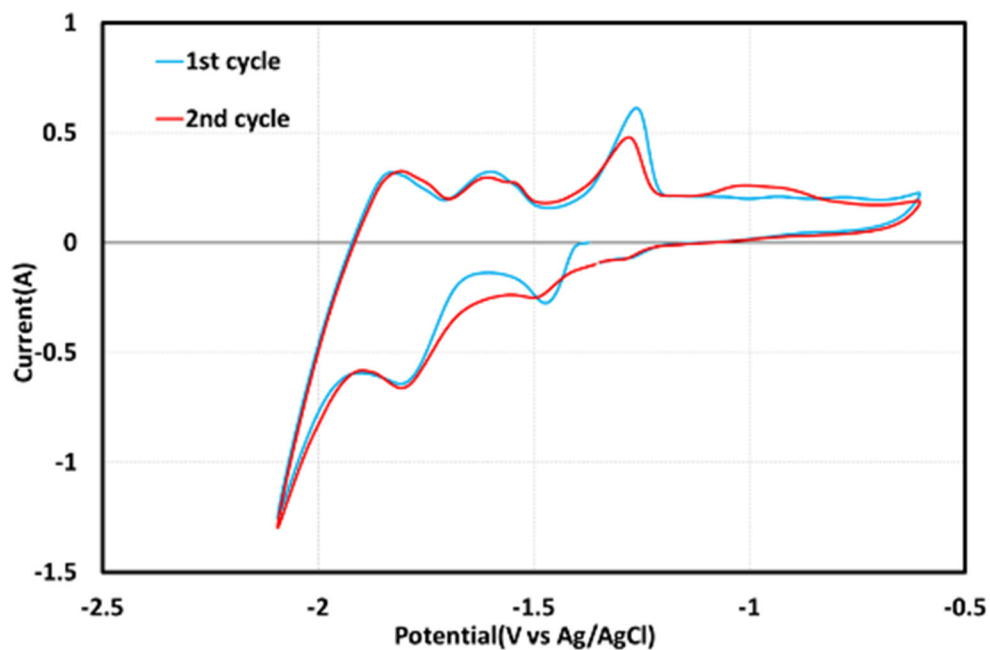


図 3. 2. 1-30 還元生成物電極を用いた CV 測定結果 (RUN1 終了後)

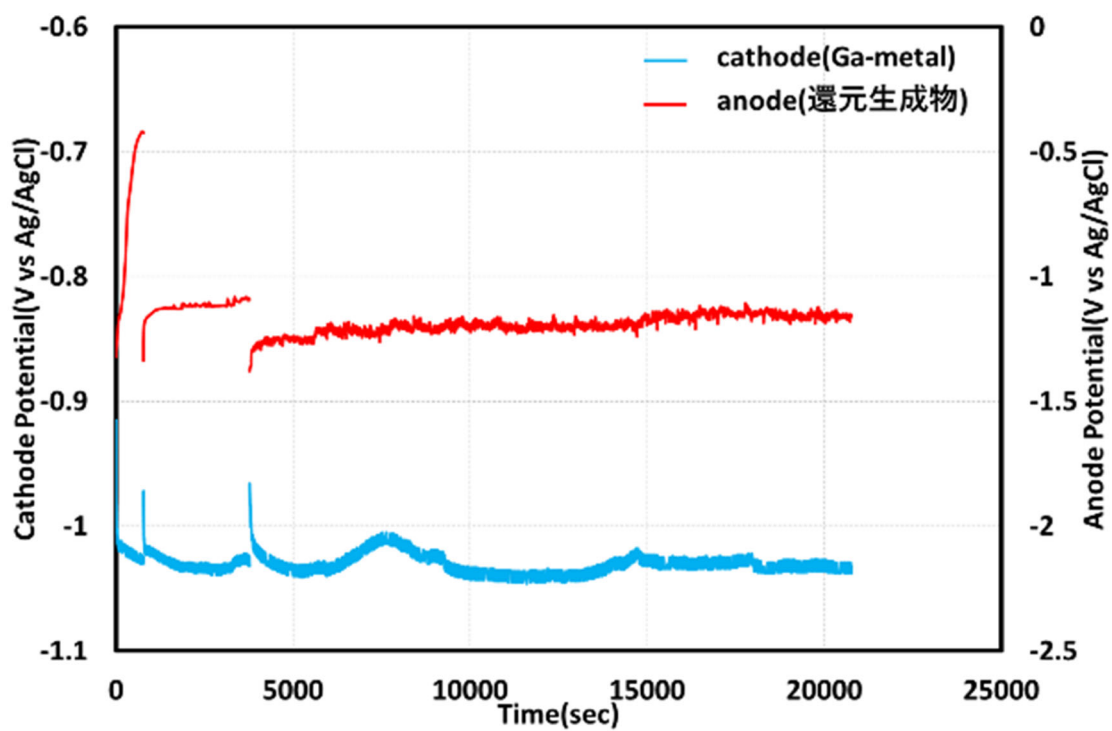


図 3. 2. 1-31 液体 Ga 電極を用いた定電流電解時の電位経時変化 (RUN1)

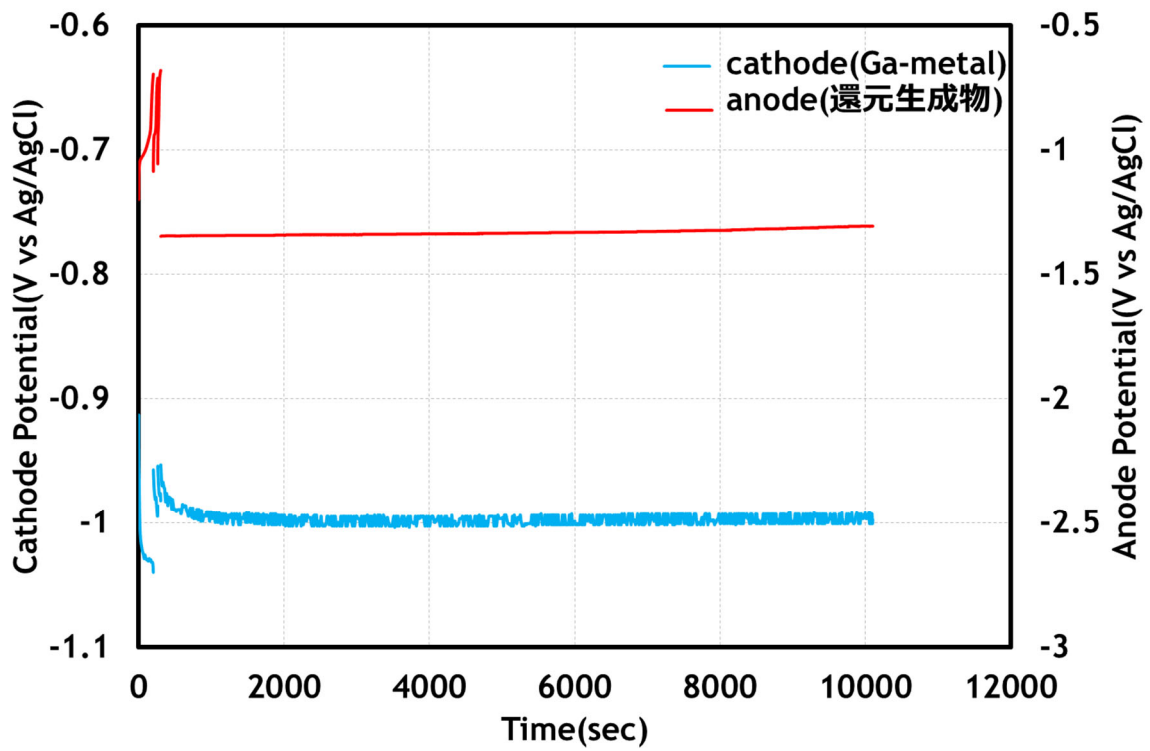


図 3. 2. 1-32 液体 Ga 電極を用いた定電流電解時の電位経時変化 (RUN2)

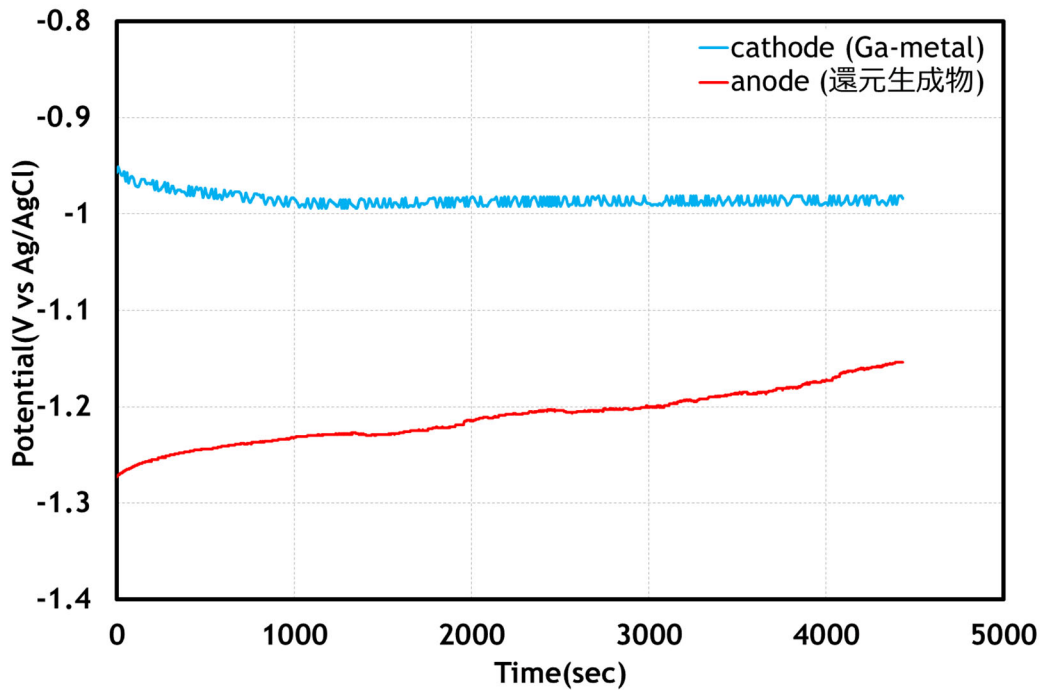


図 3. 2. 1-33 液体 Ga 電極を用いた定電流電解時の電位経時変化 (RUN3)

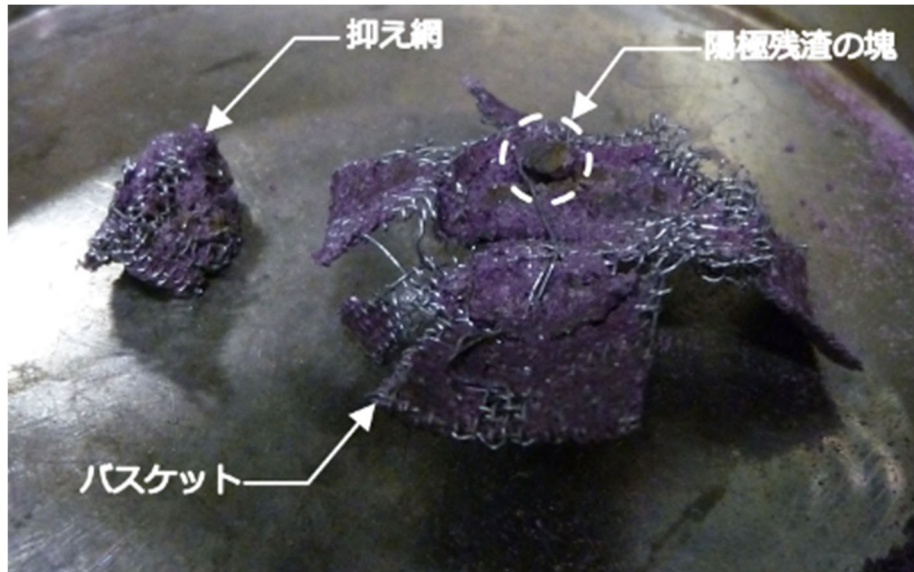


図 3.2.1-34 電解精製試験後の陽極バスケット解体後の外観図

(3) MA 析出挙動把握【平成 29-平成 30 年度】

従来の乾式再処理では、熔融塩電解精製工程において、TRU (Pu, Am, Np, Cm) 元素がUと共に液体Cd陰極に一括回収される。しかし、希土類核FPとTRU元素との間の分離性能が高くないことから、高MA含有燃料を製造する場合や、高レベル廃液など希土類FP濃度が高い原料を用いる場合には、リサイクル燃料中希土類存在量が増加するため、燃料合金の均質性低下や燃料-被覆管化学的相互作用進行などの懸念がある。本研究では、液体Cdの代わりに液体Gaを用いることで、アクチニド/希土類除染性能を大幅に向上した革新的なMA回収方法の技術開発を行っており、本研究項目においては、これまでに報告されていないMA (NpおよびCm) の分離性能を取得することを目的とした。

アクチニド(U, Pu, Am, Np, Cm)塩化物およびFP(希土類、アルカリ、アルカリ土類)塩化物を含む熔融LiCl-KCl中(773 K)において、液体Ga電極を用いて様々な印加電流密度において定電流電解を実施した。得られたGa合金サンプルおよび浴塩サンプルのICP-MS分析の結果、本試験条件において、これまでに報告されていないNpおよびCmの分離係数(SF_M、Ce基準、3.2.1-1式)が得られた。

$$SF_M = (X_{Ce \text{ in melts}}) / (X_M \text{ in melts}) / (X_{Ce \text{ in Ga}}) \times (X_M \text{ in Ga}) \quad (3.2.1-1)$$

ここで、 $X_{M \text{ in melts}}$ は浴塩中元素Mの濃度を、 $X_{M \text{ in Ga}}$ はGa合金中元素Mの濃度を表す。アクチニドの分離係数にはU>Np>Pu>Am>Cmの順に大きくなる傾向が見られた。また、U部分電流密度の絶対値が小さいほど分離係数が大きくなる傾向も見られた(図3.2.1-35)。Uの部分電流密度が小さいことは、ある印加電流密度において浴塩中U濃度が低いこと、あるいは、ある浴塩中U濃度において印加電流密度が小さいことに対応する。ただし、印加電流密度を小さくすることはMAの回収速度が遅くなることを意味するため、実用上は高いMA/希土類分離性能を得るために、浴塩中U濃度が低い条件で電解精製を実施することが必要であると示唆された。

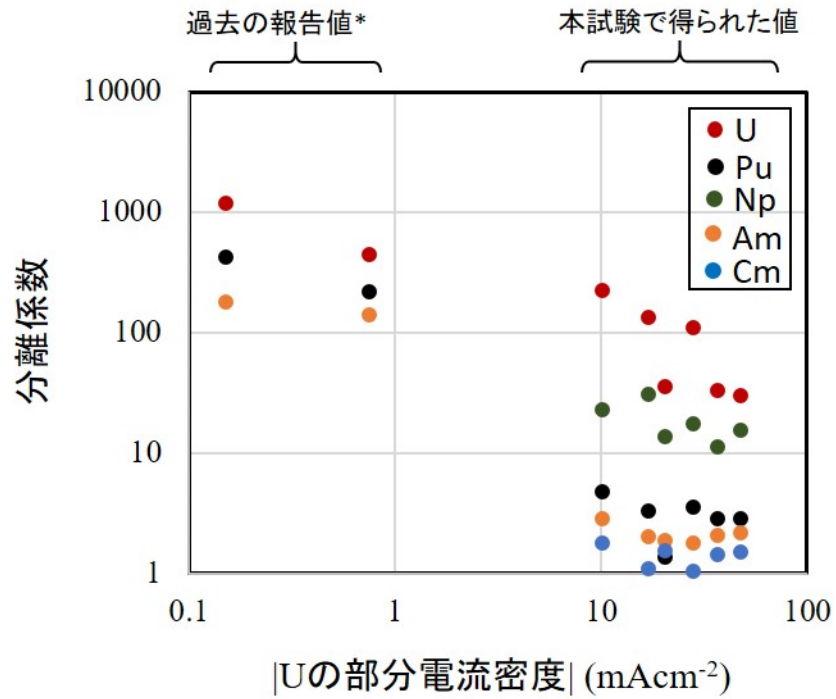


図3. 2. 1-35 アクチニドの分離係数(Ce基準)と(|Uの部分電流密度|)の関係
 *平成26年度 文部科学省 原子力システム研究開発事業「マイナーアクチニド/希土類
 分離性能の高い乾式処理プロセスの開発」成果報告書(2015).

3.2.2 廃棄物の減容化技術開発

(1) 液体 Ga 電極への FP 元素析出挙動把握【平成 28 年度-平成 30 年度】

従来の乾式再処理プロセスにおけるFPの廃棄体(ガラス結合ソーダライト)では、取り込まれるFPの濃度は4 %程度である。これは、ガラス固化体中での値(10 %以上)よりも低く、単位発電量あたりに発生する高レベル廃棄物の体積を小さくすることは乾式再処理プロセスの重要な課題である。

本研究では、FPのうち希土類、アルカリ土類を電解により液体Ga中に回収した後、酸素ガス吹き込み等により酸化物に転換し、固液分離してガラスに含有(10% 以上)させる独創的な方法で安定化することを提案している(図3.2.2-1)。これにより乾式再処理で発生する廃棄物量を従来のプロセスに比べて大幅に減容することが可能になると期待される。この提案プロセスを評価するためには、希土類やアルカリ土類の液体Ga中への回収挙動および、酸化物転換によるガラス中への含有挙動を明らかにする必要がある。

平成28および29年度では、希土類FPの中で量の多いCeおよびNdについて、それらの液体Ga中への電解回収挙動を検討した[1, 2]。その結果、CeまたはNdの電解回収について、電解析出速度に対して液体Ga電極表面から液体Gaバルクへの拡散が遅く、液体Ga最表面でCeやNd濃度が飽和に達した時点で(液体Gaバルク中濃度が飽和に達する前から)液体Ga表面に固相Ce-Ga合金やNd-Ga合金の形成が進行することが分かった。次に、CeおよびNdの同時高濃度電解回収試験を実施した。その結果、印加電流が大きいほど液体Ga中にCeおよびNdが多く回収されることが確認された。また、液体Ga相中および固相膜中のNd/Ce分離係数は電解条件に依存することが示唆された。

平成30年度はアルカリ土類FPとして存在量が多いSrおよびBaについて、それら液体Ga中への電解回収挙動を検討した[3]。熔融LiCl-KCl-SrCl₂中または熔融LiCl-KCl-BaCl₂中において液体Ga電極を用いた種々の電気化学測定を行い、液体Ga中へのSrまたはBa電解回収挙動を検討した。CV測定の結果から、-1.4 Vよりも卑な電位領域において液体Ga中にLiと共にSrやBaも電析することが示唆された。印加電流密度を様々に変えて定電流電解を実施し、得られたGa合金を定量分析した結果、液体Ga中にLiと共にSrやBaが回収されたことを確認した。ただし、SrやBa電解回収に対する電流効率は低い(2~3%)ことが分かった。また、これまでに報告のないLi基準でのSrおよびBaの分離係数を求めた。電流効率や分離係数には印加電流密度依存性がないことも示された。

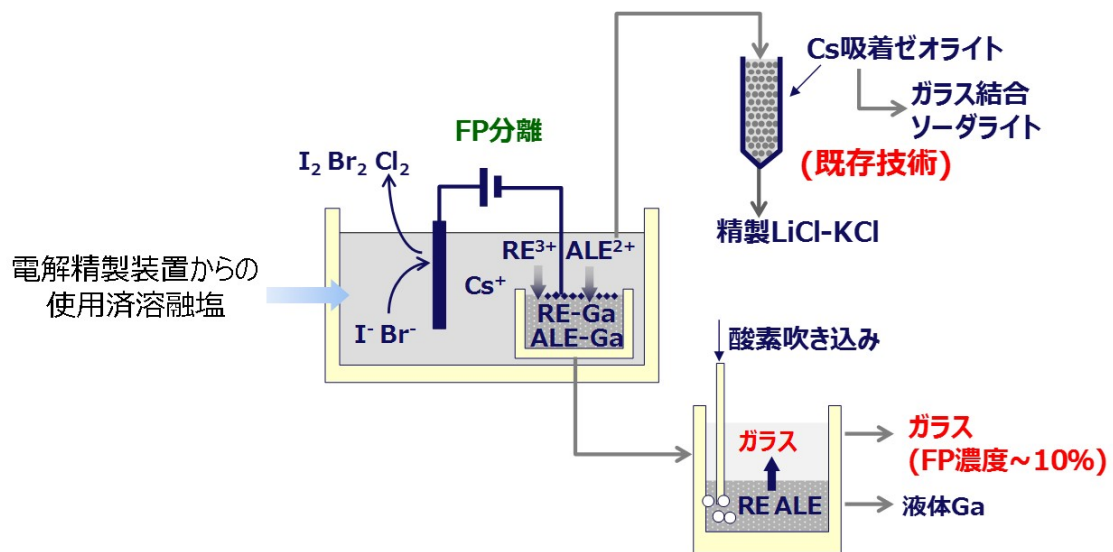


図 3. 2. 2-1 本研究で提案した廃棄物減容化のためのプロセス模式図
(RE : 希土類元素 FP、ALE : アルカリ土類元素 FP)

(2) 陽極におけるヨウ素、臭素発生挙動把握と回収方法検討（再委託先：京都大学）

【平成28年度-令和元年度】

①背景、目的

3.2.2(1)で述べたように、本研究では、FPのうち希土類、アルカリ土類を電解により液体Ga中に回収した後、酸素ガス吹き込み等により酸化物に転換し、固液分離してガラスに含有させる独創的な方法で安定化する。これにより乾式再処理で発生する廃棄物量の大幅減容が可能になる。また、これまでにない試みとして、電解精製浴塩の処理で発生するガス中から、ヨウ素を他のFPから分離して安定な化学形態で回収する研究も実施する。この技術により、長寿命放射性核種である¹²⁹Iの回収・核変換による有害度低減策検討および放射性廃棄物処分の柔軟性向上への寄与が期待できる。具体的には、不活性陽極上でのヨウ素、臭素発生挙動を明らかにすることを目的としている。また、ヨウ素核変換ターゲット用化合物調製を含めた回収プロセスの成立性評価も目的である。

②平成28年度－平成30年度の実施内容と成果

平成28年度は、熔融LiCl-KCl-LiI中におけるグラッシーカーボン（G.C.）電極を用いた電気化学測定により、ヨウ化物イオン(I⁻)の拡散定数を明らかにした[1]。また、I₂/I⁻の標準酸化還元電位の指標となる可逆半波電位($E_{1/2}$)が3.355 V (vs. Li⁺/Li)であることを明らかにした。平成29年度は、熔融LiCl-KClにLiBrおよびLiIを添加した系において、WおよびG.C.電極を用いた電気化学測定および窓付電気炉による直接観察を行い、電解電位を3.2～3.5 V (vs. Li⁺/Li)に設定することで、I⁻をI₂として回収できることが示された[2]。しかし、W電極では電極の消耗、G.C.電極ではI₃⁻イオンの発生に伴うと考えられる黄色の霞状物質の生成が確認された。そこで、平成30年度は、新たな電極材料として白金および金について、熔融LiCl-KClにLiBrおよびLiIを添加した系において電気化学測定を行った。その結果、ヨウ素ガスを発生させる新たな電極として金が有望であることが分かった[3]。実際に金電極を用い3.2 V (vs. Li⁺/Li)でのヨウ素ガス発生および回収実験を行った。流れた電気量のうち、76.5%にあたる0.0746 gのヨウ素の回収に成功した[3]。しかし、金電極の一部がアノード溶解することが示された。

③令和元年度の実施内容と目的

上述のように、熔融LiCl-KClにLiBrおよびLiIを添加した系において、金電極を用いた3.2 Vの定電位電解によりヨウ素ガス発生および回収に成功したが、金電極も若干溶出することが示された。そこで、令和元年度は、金電極を用いての電解に加え、G.C.電極を用いた電解を検討した。また、発生させたヨウ素ガスを銅(主にCuメッシュ)と直接反応させることで、核変換ターゲット材として有望なCuIを生成させる検討も行った。ここでは、電流効率や数種類の回収方法の検討を行い、回収プロセスの成立性を評価した。

④実験方法

1) Cuメッシュを用いたヨウ素回収の検討(Arフローなし)

図3.2.2-2に実験に用いた装置図を示す。電極および熔融塩の様子を直接観察するために、窓付電気炉を用い、さらに、アウターホルダーおよび熔融塩を入れるビーカーをどちらもピレックスガラス製とした。熔融塩は、共晶組成のLiCl-KCl (LiCl:KCl = 58.8:41.2 mol%, 100 g)を用い、実験温度は450°Cとした。I⁻イオン源として無水LiI(99.9%、高純度化学)を用いた。Br⁻イオン源として無水LiBr(99.9%、高純度化学)を用いた。作用極には、Au板(5 × 25 × 0.1[±] mm、ニラコ)、もしくはG.C.棒(直径3 mm、東海カーボン)を使用した。対極にはAl線(直径1 mm、ニラコ)を、参照極にはあらかじめ浴中で電気化学的に作製したAl-Li合金電極を用いた[4]。なお、電位はNi線(直径1 mm、ニラコ)上に電気化学的に析出させた金属Liが示すLi⁺/Li電位を基準に校正した。発生したI₂をCuIとして回収するために、装置上部にCuメッシュ(100 mesh、3 × 0.5 cmもしくは6 × 0.5 cm、ニラコ)をMo線(直径1 mm、ニラコ)に吊るして設置した(図3.2.2-3)。

2) Cuメッシュを用いたヨウ素の連続回収(Arフローあり)

図3.2.2-4にヨウ素の連続回収実験に用いた装置図を示す。実験条件は、上記1)と概ね同じである。作用極は、G.C.(直径3 mm)を用いた。アウトレットに接続するガラスチューブの先端部分にCuメッシュを詰めることで、Arガス中のI₂ガスをCuメッシュと反応させて回収した。Arガスの流量は50 ml min⁻¹で一定とした。未回収のヨウ素の有無を確認するために、50%エタノール溶液が100 mL入った洗气瓶を電解セルのアウトレットに接続した。アウトレットのチューブにはPFE製のものを用いた。

⑤結果

1) Cuメッシュを用いたヨウ素回収の検討(Arフローなし)

まず、初期的な検討として、LiIおよびLiBrを0.3 mol%添加した浴において、Cuメッシュを用いたヨウ素回収実験を行った。作用極としてAu板電極を用い、3.2 V (vs. Li⁺/Li)で1時間電解を行った。装置上部に設置したCuメッシュは、I₂ガスと十分に反応させるため、電解終了50分後に取り出した。取り出したCuメッシュの写真(図3.2.2-5)から、Cuメッシュの大部分が白色になっていることが分かる。さらに、この白色部分についてX線回折(XRD)測定を行った結果を図3.2.2-6に示す。得られたXRDパターンはヨウ化銅(CuI)に帰属され、CuメッシュがI₂ガスと反応し、CuIとなることが分かった。



CuメッシュとAu板電極の重量変化から計算すると、総電気量(89.5 C)のうち63%に相当するヨウ素がCuIとして回収されたことが分かった。また、総電気量の16%がAu電極の溶出に使用されており、残りの21%はI₂ガスの回収ロス(例えば系内のほかの金属との反応)、もしくは浴中にI₃⁻として溶解したことによるロスであると考えられる。

電解によって発生したI₂ガスをCuIとして回収可能であることが分かったため、次

に電極および電解電位による影響を調べた。電解は、LiIおよびLiBrを1.0 mol%添加した浴中で、Au板電極もしくは、G.C. 電極を作用極に用いて行った。電解電位はAu電極では3.2 V、G.C. 電極では3.2 Vおよび3.3 Vとし、電気量が100 Cとなったところで電解を終了した。電気量から計算したI₂ガスの理論発生量は0.1315 gとなる。電解終了30分後にCuメッシュを取り出し、電解前後での重量変化を測定した。図3.2.2-7には電解が終了した直後の(a)装置上部と(b)電解浴の写真を示す。電解が終了した直後にはI₂ガスと思われる赤紫色のガスが装置内に充満していることが分かる。また、浴も黄色に呈色しており、一部のヨウ素がI₃⁻となって浴中に溶解していることが推測される。図3.2.2-8には電解後30分経過後の(a)装置上部と(b)電解浴の写真を示す。装置上部と電解浴のどちらも無色透明になっており、30分の間に発生したI₂ガスがすべて銅メッシュに回収されたと考えられる。表3.2.2-1に各条件で電解を行った際の、Cuメッシュの重量増加と電気量から計算される回収効率を示す。まず、G.C. 電極における回収効率は、3.2 Vで63.9%、3.3 Vで86.5%であった。平成30年度までの検討において、G.C. 電極を用いるとI₃⁻が発生しやすいことを報告しており、G.C. 電極を用いた場合、以下の反応がカソードおよびアノードにおいて一部進行していると考えられる。



上記のような反応により電流効率が低下することは「シャトル効果」と呼ばれる。また、3.3 Vに比べて3.2 Vの方が電流効率が低かったのは、I₂ガス発生電流に対するI₃⁻発生電流の割合が大きく、シャトル効果が大きくなったためと考えられる。また、Au電極を用いた場合、回収効率が92.9%と今回実施した実験の中では最も高い効率となっていた。この結果は、Au電極上ではI₃⁻発生が起こりにくいというこれまでの報告と矛盾しない。しかし、今回も0.0085 gのAu電極の溶出が見られた。加えて、図3.2.2-9の電解後の写真からも分かるように、Auイオンの存在に由来すると考えられる浴の呈色が見られた。これまでの検討から、I₂ガス発生効率のみを考えた際にはAu電極は有望な電極であったものの、電極自身が溶出してしまうことから、G.C. 電極を比較的貴な電位で用いることが、実用上最も有望であることが分かった。

2) Cuメッシュを用いたヨウ素の連続回収(Arフローあり)

次に、発生したI₂ガスのCuによる連続的な回収を確認するため、Arフローを行った系での回収実験を行った。図3.2.2-10に示すように、アウトレットに接続するパイプの先端部分にCuメッシュを詰めてヨウ素の回収を行った。Cuメッシュは、約3 × 0.5 cmのものを6枚、約3 × 1 cmのものを2枚、それぞれ丸めてパイプ内側に詰め、セルの内部側(ヨウ素が反応する側)から①～⑧の番号を付けた。電解はG.C. 電極を用い、3.3 V (vs. Li⁺/Li)で電気量が500 Cに達するまで行った。電気量から計算されるI₂ガスの理論発生量は0.6575 gとなる。また、電解中の電流値は約120 mAで

あった。Arフローは50 ml min⁻¹で行い、Arインレットを電解浴に漬けてバブリングを行った。電解終了後2時間Arフローを続け、系内のI₂ガスを十分に排出した後、チューブ内のCuの重量変化を測定した。電解後のArフローにおいて、最初の1時間30分は浴内バブリングを続け、最後の30分はArインレットをセル上部に移動させた。重量測定の結果を表3.2.2-2に示す。セル内部側に近いサンプル番号①～③については重量増加が認められたものの、④以降については重量増加がほとんど見られなかった。また、アウトレット出口に接続した50%エタノール溶液においては、ヨウ素溶解を示す呈色は見られなかった(図3.2.2-11)。以上のことから、電解によって発生したI₂ガスはすべてチューブ内のCuメッシュ(①～③)によって回収されたことが分かった。ただし、すべてのサンプルにおける重量増加の合計値が0.1151 gと理論I₂ガス発生量よりも小さな値であった。この重量増加から計算されるヨウ素回収効率は17.5%であり、設置した全Cuメッシュに対するヨウ化率は24.6%である。なお、サンプル①のAセルに近い側において、CuIと思われる白色粉末の存在が観察された。このことから、サンプル①ではヨウ化反応の進行に伴い、かなりの部分が粉末状のCuIになって浴中に落下したと考えられ、これが各効率が低い要因の1つと思われる。

⑥まとめ

平成29、30年度の結果を受け、ヨウ素発生用の電極として有望であると考えられたAu電極を用いて電解を行い、装置上部にCuメッシュを設置することで発生したヨウ素の回収を試みた。その結果、CuメッシュがI₂ガスと反応しCuIとなることで、ヨウ素の回収が可能であることが分かった。しかし、Au電極を用いると電極自身が一部溶出する可能性が示されたため、Au電極(3.2 V)に加え、G.C.電極(3.2 V、3.3 V)を用いて回収効率の検討を行った。その結果、G.C.電極では、電位が貴な3.3 Vの場合に86.5%と比較的高い回収効率が達成され、Au電極では92.9%の高い回収効率が達成された。このような回収効率の違いは、シャトル効果の起こりやすさが電極材料および電解電位に依存するためと考えられる。Au電極では高い回収効率が達成できたものの、Auの溶出が避けられなかったため、G.C.電極をより貴な電位で用いることが実用上最も良いと結論付けられる。また、Arフロー下でガスアウトレットにCuメッシュを連続的に複数個設置することにより高い効率でCuIを連続して回収する方法を提案し、G.C.電極を用いたArフロー下での電解試験においてその成立定と効果を確認した。なお、Cuメッシュのヨウ化反応は十分速く進行するため、後段のCuメッシュはヨウ化されないことも示された。このことから、電解によりI₂ガスを発生させながら、高い回収効率でCuIのみを連続して回収することが期待できる。以上より、本方法は、ヨウ素核変換ターゲット用化合物調製を含めた回収プロセスとして成立すると考えられる。

表 3.2.2-1 溶融 LiCl-KCl-LiBr (1.0 mol%)-LiI (1.0 mol%) 中における
各条件でのヨウ素回収効率、電気量：100 C

サンプル 番号	電極	電解電位 (V vs. Li ⁺ /Li)	平均電流 (mA)	Cu メッシュ 電解前 (g)	Cu メッシュ 電解後 (g)	増加量 (g)	ヨウ素回 収効率 (%)
①	G.C.	3.2	31	0.3179	0.4019	0.0840	63.9
②	G.C.	3.3	145	0.3292	0.4429	0.1137	86.5
③	Au	3.2	83	0.3232	0.4454	0.1222	92.9

表 3.2.2-2 溶融 LiCl-KCl-LiBr (1.0 mol%)-LiI (1.0 mol%) 中での I₂ ガス連続回収実験における
Cu のヨウ化率、電気量：500 C

サンプル 番号	Cu メッシュ 電解前 (g)	Cu メッシュ 電解後 (g)	増加量 (g)	Cu のヨウ化 率 (%)
①	0.1778	0.2653	0.0875	24.6
②	0.1606	0.1847	0.0241	7.5
③	0.1578	0.1595	0.0017	0.5
④	0.1512	0.1514	0.0002	0.1
⑤	0.1483	0.1488	0.0005	0.2
⑥	0.1677	0.1681	0.0004	0.1
⑦	0.3353	0.3355	0.0002	0.0
⑧	0.3244	0.3249	0.0005	0.1
計	—	—	0.1151	—

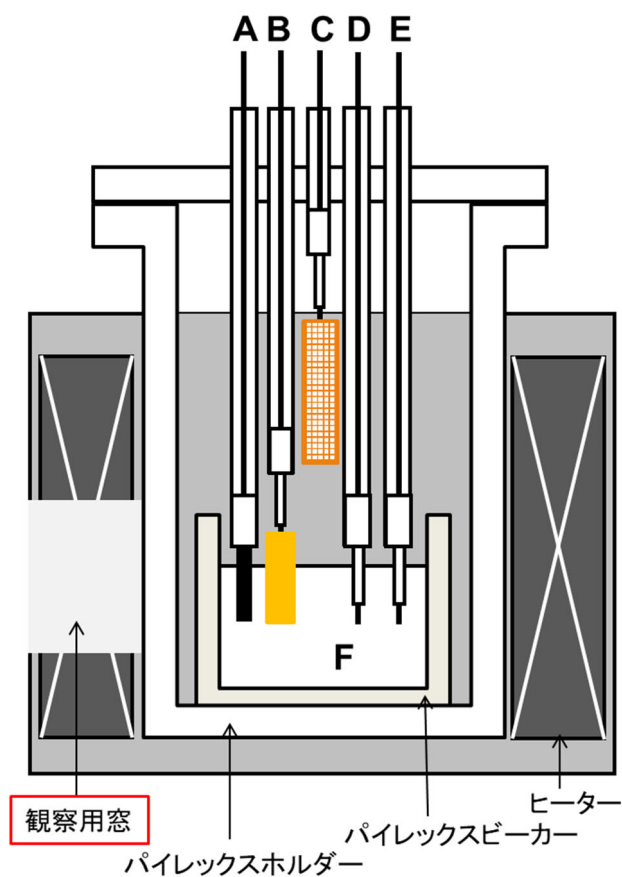
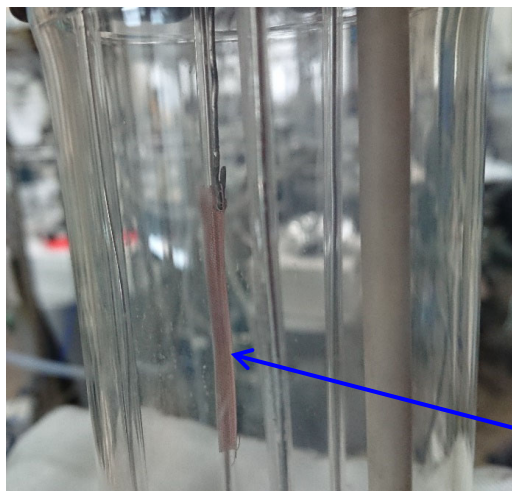


図 3.2.2-2 実験装置図(Cu メッシュを用いたヨウ素回収)

- (A) 作用極: G.C., (B) 作用極: Au, (C) Cu メッシュ, (D) 参照極: Al-Li(Li⁺/Li 電位で較正), (E) 対極: Al, (F) 熔融 LiCl-KCl (100 g, LiCl:KCl = 58.8:41.2 mol%, LiI 添加: 0.3 or 1.0 mol%, LiBr 添加: 0.3 or 1.0 mol%, 浴温: 450°C)



Cu メッシュ

図 3.2.2-3 電解前の実験装置上部の写真

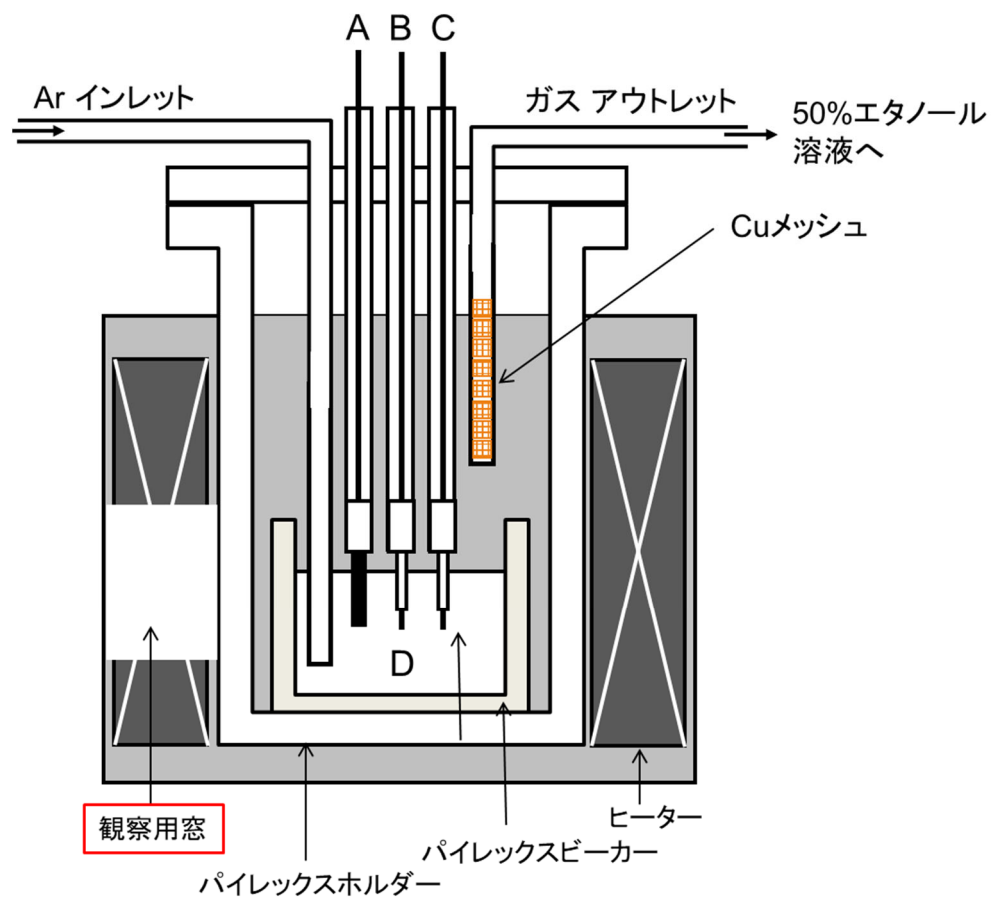


図 3.2.2-4 実験装置図(Cu メッシュを用いたヨウ素の連続回収)

- (A) 作用極: G.C., (B) 参照極: Al-Li (Li⁺/Li 電位で較正), (C) 対極: Al,
 (D) 熔融 LiCl-KCl (100 g, LiCl:KCl = 58.8:41.2 mol%,
 LiI 添加: 1.0 mol%, LiBr 添加: 1.0 mol%, 浴温: 450°C)

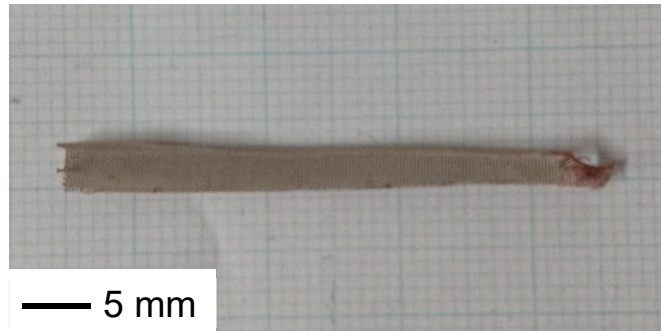


図 3. 2. 2-5 電解終了 30 分後の Cu メッシュ写真

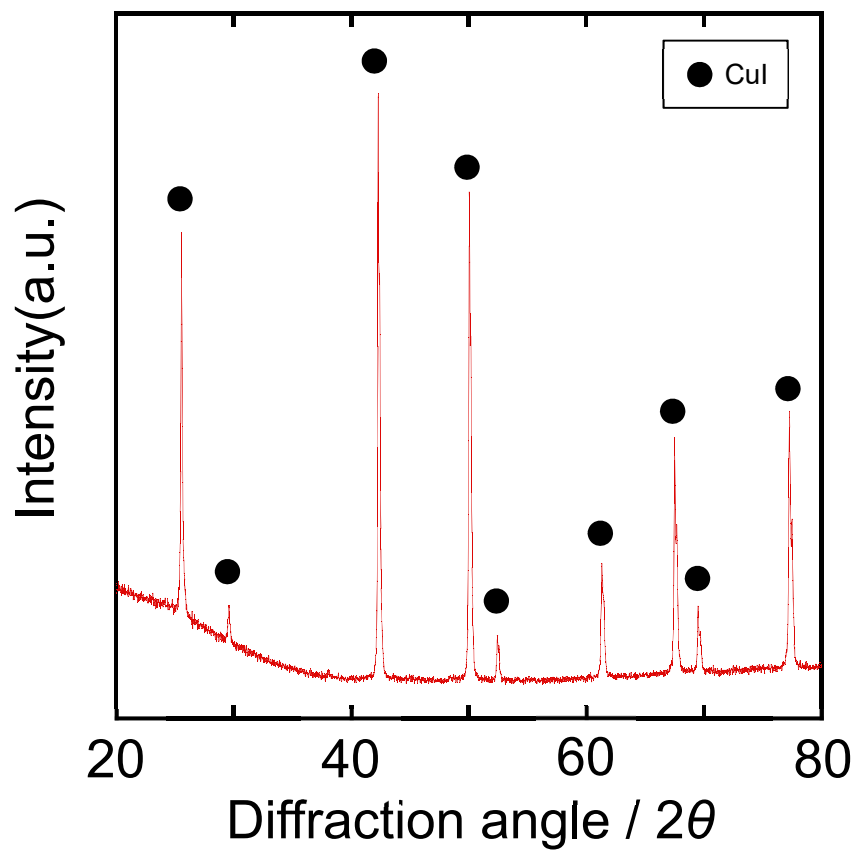


図 3. 2. 2-6 回収した Cu メッシュの XRD パターン

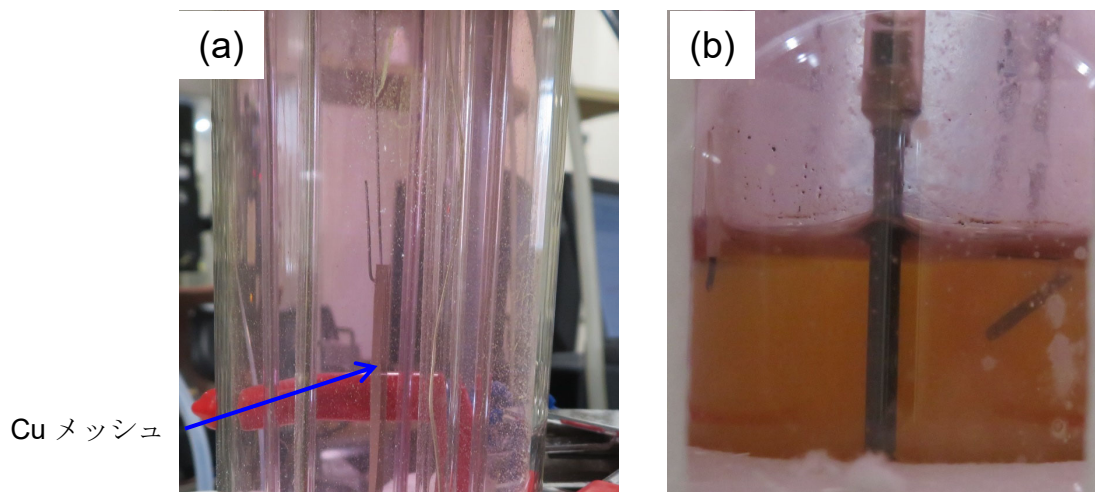


図 3.2.2-7 電解終了直後の(a)実験装置上部、(b)電解浴の写真
(G.C. 電極を用いた電解)

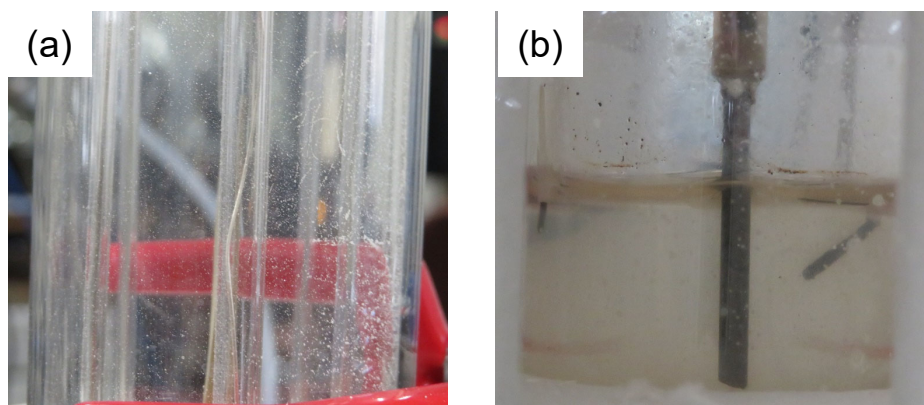
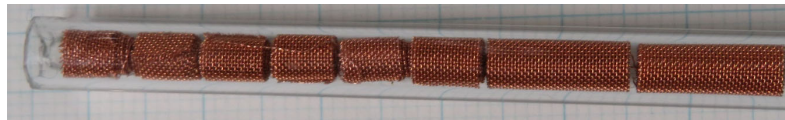


図 3.2.2-8 電解終了 30 分後の(a)実験装置上部、(b)電解浴の写真
(G.C. 電極を用いた電解)



図 3.2.2-9 電解後の電解浴の写真 (Au 電極を用いた電解)

電解前



電解後

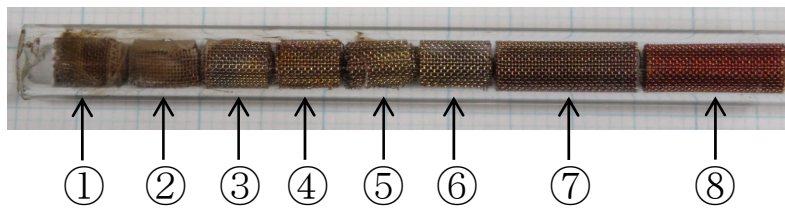


図 3.2.2-10 Cu メッシュを詰めたアウトレット接続パイレックスチューブ
(ヨウ素連続回収実験)



図 3.2.2-11 ヨウ素連続回収実験後の 50%エタノール溶液(アウトレットの先に接続)

(3) 液体 Ga 電極／固体 Si 電極に回収した FP の処理技術開発【平成 30 年度－令和元年度】

① 背景と目的

従来の乾式再処理プロセスにおける核分裂生成物 (FP) の廃棄体 (ガラス結合ソーダライト) では、取り込まれる FP の濃度は 4 %程度である。これは、ガラス固化体中での値 (10 %以上) よりも低く、単位発電量当たりが発生する高レベル廃棄物の体積を小さくすることは乾式再処理プロセスの重要な課題である。本研究における廃棄物の減容化技術開発では、熔融塩中に溶解している化学的に活性な FP 元素を、まず電解により金属に還元して回収する。そして、回収した FP 元素を O_2 ガスと反応させることにより酸化物に転換し、さらに SiO_2 、 B_2O_3 などのガラス材料と混合してガラス固化体を製造することを目的とする。こうしてできるだけ多くの FP 元素をガラスとして固化すれば、従来のガラス結合ソーダライト固化体 (ガラス相には FP 元素がほとんど含まれておらず、ソーダライト相中の FP 含有量も少ない) を製造する方法と比較して廃棄物量を減容することが可能となる。

本技術開発では当初、液体 Ga 電極に FP 元素 (アルカリ、アルカリ土類、希土類) を回収するプロセス (図 3.2.2-12) を想定した試験を行った。しかし、希土類は比較的容易に液体 Ga 電極に回収されるが、アルカリ土類とアルカリは、溶媒塩である $LiCl-KCl$ から選択的に分離・回収することが難しいことが分かった。さらに、Ga は酸素ガスよりも酸化力の小さい炭酸塩と反応し容易に酸化されることが示唆された。このことから、図 3.2.2-12 に示すプロセスでは酸化してガラス中へ溶解する Ga 量が相当量となり、廃棄物発生量低減を妨げる懸念が大きいと判断した。そこで平成 30 年度に、液体 Ga 電極に替えて Si 電極を用いることを新たに提案した (図 3.2.2-13)。固体 Si 電極を用いる場合、希土類 FP 元素がシリサイドの形態で回収される。次に FP シリサイドを酸素ガス等の酸化剤により酸化し、ガラスマトリクス (ホウケイ酸ガラス等) 中に溶解させるが、酸化された FP シリサイド中の Si 成分は、ガラスマトリクス構成元素として使用できるため、得られた FP シリサイドを分解することなくそのまま酸化しガラスマトリクス中に溶解しても廃棄物発生量の増加につながらない利点がある。

② 平成 30 年度の実施内容と成果

1) 固体 Si 電極における希土類元素回収挙動の把握

熔融 $LiCl-KCl$ 中に模擬 FP 元素として Nd、Gd、Sm または Eu の塩化物を添加した浴塩中において、Si 電極を用いた種々の電気化学測定を行い、これら希土類のシリサイド形成に関する基礎的な検討を行った。

Nd および Gd に関しては、CV 測定の結果から -1.2 V よりも卑な電位領域においてシリサイド形成が進行することが示唆され、それぞれ -1.5 V および -1.6 V における定電位電解によりシリサイド ($NdSi_{2-x}$ および $GdSi_{2-x}$) の形成が確認された。電解前後の電極の重量変化からシリサイド形成の電流効率は約 100 %であることが示された。形成したシリサイドは Si 基板上に緻密に成長することが分かった。またこの緻密なシリサイド相と Si 基板との間にスポンジ状の相が存在しており、ピンセットなどで表面を引っ掻くことでシリサイドが Si 基板から容易に剥がれることが分かった。ただし、

重量増加から求めた電流効率が 100 %であったことから分かるように、電解中にシリサイドが Si 基板から剥がれることはない。このことは、熔融塩中の希土類 FP をシリサイドとして電解回収するプロセスを利用した新規な廃棄体形成プロセスの工学化を検討する上で重要な情報である。

Sm では、CV 測定の結果から -1.5 V よりも卑な電位領域においてシリサイド形成が進行することが示唆され、-1.75 V における定電位電解により SmSi_2 および Sm_3Si_5 の形成が確認された。重量増加から求めた電流効率が非常に高いこと (103 %) が示された。柱状の Sm シリサイドが Si 基板に垂直に成長し、柱状 Sm シリサイドと Si 基板の間にスポンジ状の相が存在することが分かった。

Eu では、CV 測定の結果から -1.9 V よりも卑な電位領域においてシリサイド形成が進行することが示唆され、-2.05 V における定電位電解により金色の EuSi_2 の形成が確認された。Si 基板上に緻密な Eu シリサイド相の形成が確認されたものの、膜厚は薄く (約 1.5 μm)、合金形成速度は Nd、Gd や Sm と比べて非常に遅いことが分かった。

以上の検討により、希土類元素単元系のシリサイド形成に関する基礎的な知見が得られ、元素により異なる挙動を示すことが分かった。

2) 液体 Ga 電極／固体 Si 電極に回収した FP の酸化試験装置の設計・製作

液体 Ga 電極に回収された FP 元素を酸化物に転換して Ga から分離するための試験装置を設計・製作した。この試験装置は、液体 Ga 電極に限らず、Si 電極その他、FP 元素を回収する様々な電極を対象として試験を行うことも可能である。

図 3.2.2-14 に装置全体の概念図と写真を示した。 Al_2O_3 タンマン管に FP 元素を含む合金を入れ、高温に加熱して Ar- O_2 混合ガスを吹き込む。酸化反応の進行は、混合ガス流量および O_2 ガス分圧をパラメータとして調節する。また、ガラスを構成する成分である SiO_2 、 B_2O_3 、 Na_2O 、 Al_2O_3 等の酸化物をあらかじめフラックスとして添加し、酸化・ガラス化を促進することも可能である。

③ 令和元年度の実施内容

令和元年度は、希土類-Si 合金のガラス転換を実証するための研究を行った。表 3.2.2-3 に実施した試験の一覧を示す。まず、代表的な希土類として La と Ce を選択し、市販の LaSi_2 と CeSi_2 を出発物質として、ガラス化手順を確立するための予備試験を行った。なお、Si 電極に La と Ce を析出させると、それぞれ LaSi_2 と CeSi_2 を形成することが分かっている [5]。そして、実際に熔融塩電解で作製した CeSi_2 を用いた本試験を行った。

1) 試験

a) 試薬

予備試験に用いた LaSi_2 および CeSi_2 は、Si と La および Si と Ce をアーク溶解により反応させて調製された (図 3.2.2-15a, b、レアメタリック社)。これらの調製において、Ce と La に対して Si は 2.0 倍よりも 0.5% だけ多めに添加されたが、ICP 発光分光法による組成分析値は Si/La モル比 = 2.06 と Si/Ce モル比 = 2.05 であっ

た。図 3.2.2-16a, b には XRD パターンを示したが、 LaSi_2 と CeSi_2 以外のピークは存在していない。

本試験で用いた熔融塩電解で調製した CeSi_2 を図 3.2.2-15c に示す。これは、 450°C の LiCl-KCl-CeCl_3 熔融塩中で、Si 板 (Si ウェハ: n-type, $\langle 110 \rangle$, $0.2 \Omega\text{cm}$) を陰極として定電流電解を行い、Si 表面に生成した CeSi_2 を回収したものである (3.2.3(1)参照)。なお、付着していた LiCl-KCl-CeCl_3 塩は、純水で洗浄して除去している。この CeSi_2 を ICP 発光分光法で分析したところ、 $\text{Ce}=71.8\text{wt}\%$ 、 $\text{Si}=26.1\text{wt}\%$ で、組成モル比は $\text{Si}/\text{Ce}=1.81$ であった。図 3.2.2-16c に XRD パターンを示したが、アーク溶解により調製された CeSi_2 とピークが基本的に一致している。なお $2\theta=47.3^\circ$ にそれらと異なるピークが存在しているが、これは他の希土類を Si 電極上に熔融塩電解で析出させた場合にも観測されたことがあり、Ce には関係しない物質によるものと考えられる。

ガラス材料には、 $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ (富士フィルム和光)、 SiO_2 (富士フィルム和光、試薬特級)、 Li_2O (フルウチ化学、純度 99.9%)、 CaO (Aldrich-APL、純度 99.99%) を用いた。 $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ と SiO_2 の XRD パターンを図 3.2.2-17 に示す。 SiO_2 では $2\theta=26.6^\circ$ に非常に強度の高いピークが存在する。

b) 試験手順

(i) Run 1 / 予備試験

図 3.2.2-15a, b の粒状 LaSi_2 と CeSi_2 は、高純度アルゴンガス雰囲気グローブボックス内にてメノウ乳鉢で粉砕し、試験の出発物質とした。その LaSi_2 粉末 0.995 g と CeSi_2 粉末 0.997 g、 $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ 試薬 18.154 g を Al_2O_3 タンマン管 (ニッカトール SSA-S、 $\phi 30 \times \phi 24 \times 100$ mm) に装荷して混合し、図 3.2.2-14 で示したインコネル炉心管内に配置した。そして、 $\text{Ar-20}\%_2$ ガスを流量 0.5 l/min で流しながら、電気炉温度を 10°C/min で 1000°C まで昇温した。その後、 1000°C で 2.0 h 保持し、電気炉を止めて自然冷却した。なお、 $\text{Ar-20}\%_2$ ガスは Al_2O_3 管 (ニッカトール SSA-S、 $\phi 6 \times \phi 4$) から供給したが、 Al_2O_3 管は先端が試料の上方となるように設置した。図 3.2.2-18 に温度履歴を示す。温度は、 Al_2O_3 片閉管 (ニッカトール SSA-S、 $\phi 6 \times \phi 4$) で被覆した K 熱電対で測定した。この Al_2O_3 片閉管は先端を試料直上に配置したが、試料に短時間挿入して試料内の温度を測定したところ 960°C であった。図 3.2.2-19 は試験終了後の Al_2O_3 タンマン管と生成物、 Al_2O_3 管で、 Al_2O_3 タンマン管をハンマーで破壊して生成物を取り出した。生成物は黒色のガラス質であった。

(ii) Run 2 / 予備試験

LaSi_2 粉末 1.005 g と CeSi_2 粉末 0.996 g、 $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ 試薬 18.029 g を Al_2O_3 タンマン管 ($\phi 30 \times \phi 24 \times 100$ mm) に装荷して混合し、インコネル炉心管内で $\text{Ar-20}\%_2$ ガスを流量 0.5 l/min で流しながら、電気炉温度を 10°C/min で 1000°C まで昇温した。Run 2 では、 1000°C に到達後はガス供給用 $\phi 6\text{-Al}_2\text{O}_3$ 管を試料内に挿入し、

Ar-20%O₂ガスで内部をバブリングした。そして、1000℃で2.0 h 保持した後に電気炉を止めて自然冷却した。図 3.2.2-20 に温度履歴を示す。試料中の温度は、ガスバブリング中が 947℃、ガスバブリングを停止すると 960℃に上昇した。また、試料上方は 930℃であった。図 3.2.2-21 は試験終了後の Al₂O₃ タンマン管と生成物、Al₂O₃ 管で、ガス供給用 Al₂O₃ 管は、Al₂O₃ タンマン管内壁に固着していた。この Al₂O₃ 管は減肉しており、Al₂O₃ がガラス中に溶解したことが分かる。一方、熱電対用の Al₂O₃ 管はほとんど腐食していない。生成物は Run 1 と同様に黒色のガラス質であった。

(iii) Run 3 /予備試験

LaSi₂粉末 0.996 g と CeSi₂粉末 0.998 g を Al₂O₃ タンマン管 (φ 30×φ 24×100 mm) に装荷して混合し、インコネル炉心管内で Ar-5%O₂ガスを流量 0.2 l/min で流しながら電気炉温度を 10℃/min で 1000℃まで昇温した。1000℃では Ar-10~20%O₂ガスを流量 0.2~0.5 l/min で流して 2.0 h の加熱処理を行った後、自然冷却した。この酸化処理により得られた生成物の重量は 2.517 g であった。

次に、生成物の一部を XRD 分析用に採取した後 (採取後の生成物重量 2.505 g)、18.014 g の Na₂B₄O₇を加えて Al₂O₃ タンマン管内で混合し、インコネル炉心管内で Ar-20%O₂ガスを流量 0.25 l/min で流しながら電気炉温度を 10℃/min で 1000℃まで昇温した。そして、1000℃で 3.0 h 保持した後に自然冷却した。ここでは、1000℃において間欠的に Al₂O₃ 管を試料内に挿入し、Ar-20%O₂ ガスで内部をバブリングした (5 分間×4 回)。図 3.2.2-22 は試験終了後の Al₂O₃ タンマン管と生成物、Al₂O₃ 管で、Run 1 や Run 2 と同様に生成物は黒色のガラス質であった。

(iv) Run 4 /予備試験

Run 3 のガラス化生成物には希土類ホウ化物が含まれていたため、追加のガラス化処理を実施した。Run 3 ガラス化生成物の一部を粉砕したもの 1.598 g と SiO₂= 1.897 g、CaO= 0.302 g を Al₂O₃ タンマン管 (φ 16×φ 12×105 mm) 内で混合し、大気雰囲気のマッフル炉内で (図 3.2.2-23) まず 900℃まで 1.0 h で昇温した。そして、900℃で 1.0 h 保持 (間欠的に内部を Al₂O₃ 管で攪拌)、1050℃に 0.5 h で昇温、1050℃で 1.0 h 保持 (間欠的に内部を Al₂O₃ 管で攪拌)した後、電気炉を止めて自然冷却した。なお、攪拌に用いた Al₂O₃ 片閉管は (ニッカトー SSA-S、φ 5×φ 3)、R 熱電対の保護管としてマッフル炉内に挿入していたものを利用した。図 3.2.2-24 は試験終了後の Al₂O₃ タンマン管と生成物、Al₂O₃ 管で、生成物は黒色のガラス質であった。

(v) Run 5 /予備試験

軽水炉燃料の再処理工場で製造されるガラス固化体の組成を参考に、ガラス : SiO₂-B₂O₃-Na₂O-Li₂O-CaO-Al₂O₃-RE₂O₃ において (RE は希土類を示す)、

SiO₂= 54 wt%、B₂O₃= 20 wt%、Na₂O= 9 wt%、Li₂O= 4 wt%、CaO= 8 wt%、RE₂O₃=

5 wt%

となるように試薬添加量を決定した。Al₂O₃については、容器や熱電対保護管としてアルミナ材を使用するため、試薬としては添加しないこととした。

図 3.2.2-25a に示したように、LaSi₂粉末 0.1506 g と CeSi₂粉末 0.1492 g をそれぞれ Al₂O₃ ボートに装荷し、大気雰囲気のマッフル炉内にて 1000°C で 2.0 h 加熱・酸化した。室温に冷却後に測定した生成物の重量は、LaSi₂ 酸化生成物= 0.1850 g と CeSi₂ 酸化生成物= 0.1931 g であった。

次に、LaSi₂ 酸化生成物= 0.1840 g と CeSi₂ 酸化生成物= 0.1917 g、SiO₂= 2.5207 g、Na₂B₄O₇= 1.4531 g、Li₂O= 0.201 g、CaO= 0.411 g を Al₂O₃ タンマン管 (φ 16×φ 12×105 mm) 内で混合し、図 3.2.2-26 に温度履歴を示したように、大気雰囲気のマッフル炉内でまず 950°C まで 1.5 h で昇温した。そして、950°C で 1.0 h 保持 (間欠的に内部を φ 5- Al₂O₃ 管で攪拌)、1100°C に 0.5 h で昇温、1100°C で 1.0 h 保持 (間欠的に内部を φ 5- Al₂O₃ 管で攪拌) の後、炉内で自然冷却した。図 3.2.2-27 は、試験終了後の Al₂O₃ タンマン管と生成物、Al₂O₃ 管である。生成物は、最上部が無色透明で、その下部は黒色のガラス質であった。また、Al₂O₃ タンマン管を破壊することにより、生成物を容易に取り出すことができた。攪拌に用いた Al₂O₃ 管の表面には、無色透明のガラス膜が付着していた。

(vi) Run 6 /本試験

Run 6 は溶融塩電解で調製した CeSi₂ を用いて、Run 5 と同様の試薬量や試験手順で実施した。

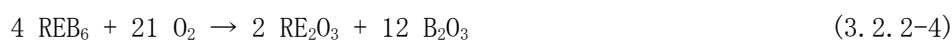
まず、溶融塩電解で調製した CeSi₂ (図 3.2.2-15c) を乳鉢でさらに粉体化し、図 3.2.2-25b で示したように、Al₂O₃ ボートに 0.3002 g を装荷して、大気雰囲気のマッフル炉内にて 1000°C で 2.0 h 加熱・酸化した。冷却後に測定した生成物量は、0.3938 g であった。

次に、Run 5 と同様の組成比となるように、CeSi₂ 酸化生成物= 0.3846 g、SiO₂= 2.5191 g、Na₂B₄O₇= 1.4645 g、Li₂O= 0.200 g、CaO= 0.404 g を Al₂O₃ タンマン管 (φ 16×φ 12×105 mm) 内で混合し、図 3.2.2-28 に温度履歴を示したように、大気雰囲気のマッフル炉内でまず 950°C まで 1.5 h で昇温した。そして、950°C で 1.0 h 保持 (間欠的に内部を φ 5- Al₂O₃ 管で攪拌)、1100°C に 0.5 h で昇温、1100°C で 1.0 h 保持 (間欠的に内部を φ 5- Al₂O₃ 管で攪拌) の後、炉内で自然冷却した。図 3.2.2-29 は、試験終了後の Al₂O₃ タンマン管と生成物、Al₂O₃ 管である。生成物は最上部が無色透明で、その下部は黒色のガラス質であった。また、Al₂O₃ タンマン管を破壊することにより、生成物を容易に取り出すことができた。攪拌に用いた Al₂O₃ 管の表面には、無色透明のガラス膜が付着していた。

2) 結果と考察

Run 1 生成物 (図 3.2.2-19) の XRD パターンを図 3.2.2-30a に示す。La と Ce のホウ化物のピークが明瞭に見られ、ガラス質のマトリックス中にホウ化物が分散してい

る状態と考えられる。表 3.2.2-4 に関連する化合物の 950°Cでの標準生成自由エネルギー (ΔG_f^0) [6] を示す。酸化物について右欄の 1 mol-O 当たりの ΔG_f^0 を比較すると、 $B < Si < Ce, La$ の順に酸化物が安定であることが分かる。したがって、 $Na_2B_4O_7 + RE Si_2$ (RE: La, Ce) において、B が Si や RE により還元され、比較的安定な REB_6 が生成したと推定される。ただし、Run 1 は Ar-20% O_2 ガス雰囲気下で加熱しており、熱力学的には



の反応が容易に進行する (Ce の場合、式(3.2.2-4)の $\Delta G^0(950^\circ C) = -13302$ kJ/mol)。

そこで、 O_2 を含むガスが試料全体に行き渡るように、熔融したガラス試料中にガスをバブリングしながら Run 2 を実施した。Run 2 の生成物 (図 3.2.2-21) の XRD パターンを図 3.2.2-30b に示す。ここではホウ酸塩の $LaBO_3$ や $CeBO_3$ の明瞭なピークが見られるが、ホウ化物 (REB_6) のピークも存在することが分かる。この試験結果より、 $Na_2B_4O_7$ を主成分とするガラス中には $LaBO_3$ や $CeBO_3$ は溶解しづらいこと、 O_2 を含むガスをバブリングした条件においても REB_6 が完全には酸化されないことが示された。

Run 3 では、 $LaSi_2$ と $CeSi_2$ をまず Ar-20% O_2 ガス雰囲気下で 1000°C に加熱して酸化物に転換しておき、Run 1 や Run 2 と同様の方法でガラス化することとした。図 3.2.2-31 は酸化処理後の生成物の XRD パターンで、(a) $LaSi_2$ と $CeSi_2$ を混合したもの (Run 3)、(b) $LaSi_2$ (Run 5)、(c) $CeSi_2$ (Run 5) の測定結果である。なお、Run 5 では大気中で 1000°C に加熱した。これらを図 3.2.2-16 と比較すると、酸化処理後の XRD パターンでは、処理前の $LaSi_2$ と $CeSi_2$ に帰属するピークがすべて消滅していることが分かる。そして、酸化処理後の $LaSi_2$ では La_2O_3 や $La_{10}(SiO_4)_6O_3$ に対応するピークが見られ、酸化処理後の $CeSi_2$ では CeO_2 に対応するピークが見られる。ここで、酸化処理前後の重量変化は、

$$LaSi_2 : 0.1506 \rightarrow 0.1850 \text{ g (酸化後の理論重量 } 0.2185 \text{ g)}$$

$$CeSi_2 : 0.1492 \rightarrow 0.1931 \text{ g (酸化後の理論重量 } 0.2222 \text{ g)}$$

であり、 $LaSi_2 + 11/2 O_2 \rightarrow 1/2 La_2O_3 + 2 SiO_2$ 、および $CeSi_2 + 6 O_2 \rightarrow CeO_2 + 2 SiO_2$ の反応が完全に進行した場合の理論重量に比較して、増加量がかなり少ない。その理由としては、Si が SiO_2 に完全に酸化されていない可能性が考えられる。なお、Si のすべての XRD ピークは CeO_2 のピークと一致しているため、Si が残留していても XRD 分析で検知することは困難である。Run 3 の酸化処理後の $LaSi_2 + CeSi_2$ 混合物の XRD パターンは、Run 5 での酸化処理後の $LaSi_2$ と $CeSi_2$ の XRD パターンを重ね合わせたものに概ね一致している。重量変化は $1.9940 \rightarrow 2.5170$ g であり、理論重量の 2.9314 g と比較してやはり少ない。

Run 3 のガラス化生成物 (図 3.2.2-22) の XRD パターンを図 3.2.2-30c に示す。 REB_6 に帰属するピークが、Run 1 と比較すると小さいながら存在している。重量変化

から推定されたように Si が完全には酸化されていないとすれば、Si により希土類と B の酸化物が還元されて REB_6 を生成したと考えられる。例えば “ $\text{CeO}_2 + 3 \text{B}_2\text{O}_3 + 11/2 \text{Si} \rightarrow \text{CeB}_6 + 11/2 \text{SiO}_2$ ” の ΔG_0 (950°C) = -364.5 kJ/mol であり、反応が進行し得る。

そこで Run 4 では、Run 3 の生成物 ($\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ を主成分とするガラス中に REB_6 が分散したもの) にガラス材料の SiO_2 と CaO を加えて、大気雰囲気下で 1050°C まで温度を上げた。Run 4 のガラス化生成物 (図 3.2.2-24) の XRD パターンを図 3.2.2-30d に示す。 $2\theta = 26.6^\circ$ に小さく鋭いピークが存在するが、これは SiO_2 の最大ピークに一致している。よって、Run 4 の生成物はごく少量の SiO_2 を除いてガラスに転換されていることが示された。

Run 1~4 の知見に基づいて、Run 5 では酸化処理した LaSi_2 と CeSi_2 (図 3.2.2-25a) にガラス材料の $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ と SiO_2 、 CaO 、 Li_2O をガラス固化体の組成を参考に適量加えて大気雰囲気下で 1100°C まで加熱した。Run 5 の生成物は (図 3.2.2-27) 大部分が黒色のガラス質で、最上部は無色のガラス質であった。両者の XRD パターンを図 3.2.2-30(e-1) と (e-2) に示す。最上部の無色の生成物には小さな SiO_2 ピークが存在するが、黒色の生成物にはピークは存在しておらずガラス化していることが示された。黒色の生成物は Al_2O_3 タンマン管から取り出す時に垂直方向で 2 つに割れたため、無色の生成物を上部、黒色生成物の上側を中部、下側を底部として、表 3.2.2-5 に示したように化学分析を行った。上部には Al が多く含まれているため、その他元素の組成が一樣に少なくなっているものの、全体として一樣な生成物が得られたと言える。Al の供給源は容器材料であり、気相と接しているガラスの最上部で Al_2O_3 容器の溶解が進行しやすいことが示唆された。図 3.2.2-32, 33 は、生成物の断面を SEM-EDX で観察した結果である。微視的には、細かい白色の相が集合したスポットがガラスのマトリックス中に点在しており、この白色部分では (図 3.2.2-33 の Spot 1 と 3) 希土類元素、特に Ce の濃度が高いことが分かる。以上、Run 5 の試験条件で希土類-Si 合金をガラスに転換できることが示された。

Run 6 では、まず熔融塩電解で調製した CeSi_2 を酸化処理した (図 3.2.2-25b)。重量変化は 0.3002 → 0.3938 g で理論重量の 0.4470 g よりもやはり少ない。また、図 3.2.2-31d の XRD パターンは、図 3.2.2-31c の XRD パターンと一致している。次に、ガラス材料の $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ と SiO_2 、 CaO 、 Li_2O を適量加えて大気雰囲気下で 1100°C まで加熱した。Run 6 の生成物は (図 3.2.2-29) Run 5 の生成物と外観が似ているが、最上部の無色透明な部分がやや多い。無色部分と黒色部分の XRD パターンを図 3.2.2-30(f-1) と (f-2) に示す。小さな SiO_2 ピークが両者に存在するが、全体としてガラス化していることが示された。表 3.2.2-6 の化学分析結果では、Run 5 と同様に、上部には Al が多く含まれているものの、全体として一樣な生成物が得られたと言える。図 3.2.2-34, 35 は生成物の断面を SEM-EDX で観察した結果である。微視的には、細かい白色の相が集合したスポットがガラスのマトリックス中に点在しており、この部分は Ce 濃度が高い。このスポットは、図 3.2.2-34 より、底部に近いほど多く存在している。また、ガラスのマトリックスよりも暗く見える相は Si 以外の金属元素濃度が低く、

SiO₂相であることが推定される（図 3.2.2-35b の Spot 3）。一方、CeO₂と推定される析出物が上部に 1 か所だけ観察された（図 3.2.2-34c の Top および図 3.2.2-35a 参照）。以上、Run 6 において、熔融塩電解で調製した CeSi₂をガラスに転換できることが実証された。

④ まとめ

予備試験では、アーク溶解で調製した LaSi₂と CeSi₂を出発物質としてガラス化の手順を確立した。LaSi₂や CeSi₂はガラス材料のホウ酸を還元して準安定な希土類ホウ化物（REB₆、RE は希土類を示す）を形成しやすいため、LaSi₂や CeSi₂をあらかじめ高温で酸化させておく方が好ましい。ただし、Si は完全には酸化されないことも重量変化から示唆された。あらかじめ酸化させた LaSi₂や CeSi₂にガラス材料の Na₂B₄O₇と SiO₂、CaO、Li₂Oをガラス固化体の組成を考慮して適量混合し、大気雰囲気下で 1100°Cまで加熱した結果、ガラスに転換されたことが XRD 分析により確認された。なお、容器には Al₂O₃ タンマン管を用いたが、ガラス中に少量の Al₂O₃ が溶解していた。生成したガラスの断面を SEM-EDX で観察したところ、微視的には、細かい白色の相が集合したスポットがガラスのマトリックス中に点在しており、この白色部分では希土類元素、特に Ce の濃度が高いことが分かった。本試験では、熔融塩電解で調製した CeSi₂を用いたが、予備試験と同様の手順でガラス化されることが示された。

以上の結果から、Si 電極を利用した新規な廃棄物処理プロセスの基本的な成立性が示された。そこで、新規廃棄物処理プロセスから発生する廃棄物体積を以下のプロセス条件において評価した結果、従来の廃棄物処理プロセスと比較して、廃棄物体積が約 17 % 減容することが明らかとなった。

- ・使用済塩中のすべての希土類 FP をシリサイドとして回収
- ・シリサイドをガラス化した希土類濃度 10 wt%のガラスと、アルカリ・アルカリ土類 FP を吸着させたゼオライトを混合し、ガラス結合ソーダライトを作製

また、3.2.3 節に述べるように、新規廃棄物処理プロセスの工学化に関しては、形成したシリサイドを Si 電極基板から分離回収するための工学装置開発が必要であるものの、新規廃棄物処理プロセスの主要工程である Si 電極による希土類回収及び回収した希土類シリサイドのガラス化には、解決が困難な課題は見出されなかった。

【3.2.2の参考文献】

- [1] 平成28年度 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「柔軟性の高いMA回収・核変換技術の開発」成果報告書 (2017)
- [2] 平成29年度 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「柔軟性の高いMA回収・核変換技術の開発」成果報告書 (2018)
- [3] 平成30年度 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「柔軟性の高いMA回収・核変換技術の開発」成果報告書 (2019)
- [4] K. Amezawa, Y. Tomii, Y. Ito, J. Electrochem. Soc., 141, 3096-3103 (1994).
- [5] 村上毅、坂村義治、飯塚政利、「LiCl-KCl 共晶塩中における Si 電極上での希土類シリサイド形成」、第 51 回溶融塩化学討論会講演要旨集 2A08、2019 年 10 月 25 日、北海道大学
- [6] 「熱力学データベース MALT-II」、科学技術社 (1992).

表 3. 2. 2-3 希土類-Si 合金のガラス転換に関する試験一覧

試験	原料	ガラス添加材	ガス	温度(°C)	備考	
予備試験	Run 1	LaSi ₂ , CeSi ₂	Na ₂ B ₄ O ₇	Ar-20%O ₂	1000	
	Run 2	LaSi ₂ , CeSi ₂	Na ₂ B ₄ O ₇	Ar-20%O ₂	1000	試料内をAr-20%O ₂ ガスでバブリング
	Run 3	LaSi ₂ +CeSi ₂ (酸化処理済)	Na ₂ B ₄ O ₇	Ar-20%O ₂	1000	試料内をAr-20%O ₂ ガスで間欠的にバブリング
	Run 4	Run 3の生成物	SiO ₂ , CaO	大気	1050	試料内をアルミナ管で間欠的に攪拌
	Run 5	LaSi ₂ (酸化処理済), CeSi ₂ (酸化処理済)	Na ₂ B ₄ O ₇ , SiO ₂ , CaO, Li ₂ O	大気	1100	試料内をアルミナ管で間欠的に攪拌
本試験	Run 6	熔融塩電解CeSi ₂ (酸化処理済)	Na ₂ B ₄ O ₇ , SiO ₂ , CaO, Li ₂ O	大気	1100	試料内をアルミナ管で間欠的に攪拌

表 3. 2. 2-4 950°Cでの化合物の標準生成自由エネルギー (ΔG_f^0)

化合物	ΔG_f^0 (kJ/mol)	ΔG_f^0 (kJ/mol-O)
La ₂ O ₃	-1446.0	-482.0
Ce ₂ O ₃	-1429.6	-476.5
CeO ₂	-831.7	-415.8
B ₂ O ₃	-968.3	-322.8
SiO ₂	-692.2	-346.1
CeB ₆	-294.2	
CeSi ₂	-175.8	

表 3.2.2-5 Run 5 で得られた生成物の ICP 発光分光法による組成分析結果

試料	Li	B	Na	Al	Si	Ca	La	Ce	SUM
	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)
上部*	1.6	5.6	5.2	7.5	21.8	5.0	1.7	1.7	50.2
中部*	1.9	6.2	5.5	3.8	24.0	5.3	1.9	1.9	50.4
底部*	1.8	6.1	5.5	4.1	23.7	5.2	1.9	1.9	50.3
試料装荷量 から計算**	1.9	6.3	6.7	-	25.5	5.9	2.2	2.1	50.6

**O含有量=49.4 wt%

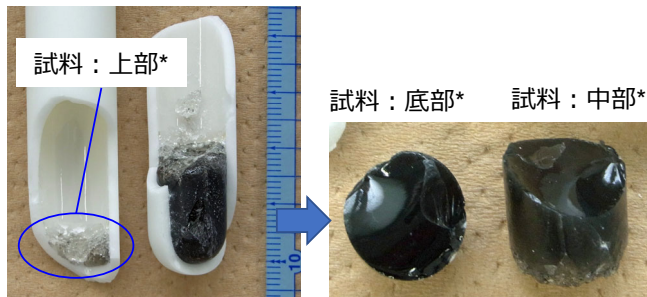
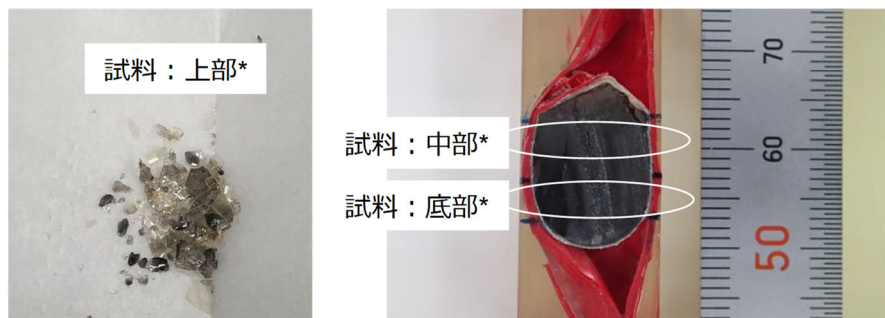


表 3.2.2-6 Run 6 で得られた生成物の ICP 発光分光法による組成分析結果

試料	Li	B	Na	Al	Si	Ca	Ce	SUM
	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)
上部*	1.7	5.5	5.8	6.6	22.5	5.0	3.6	50.6
中部*	1.9	5.8	6.2	3.7	23.7	5.8	3.7	50.8
底部*	1.9	5.8	6.2	3.0	23.3	5.7	3.3	49.2
試料装荷量 から計算**	1.9	6.3	6.7	-	25.4	5.8	4.2	50.3

**O含有量=49.7 wt%



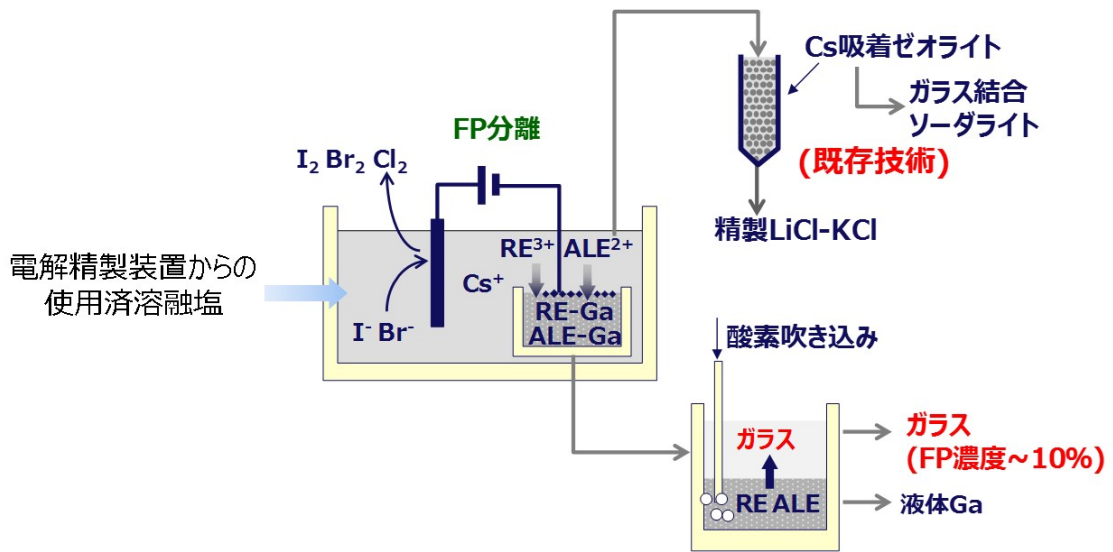


図 3.2.2-12 本研究で当初想定した廃棄物処理プロセス模式図
(液体 Ga 電極を使用、RE : 希土類、ALE : アルカリ土類)

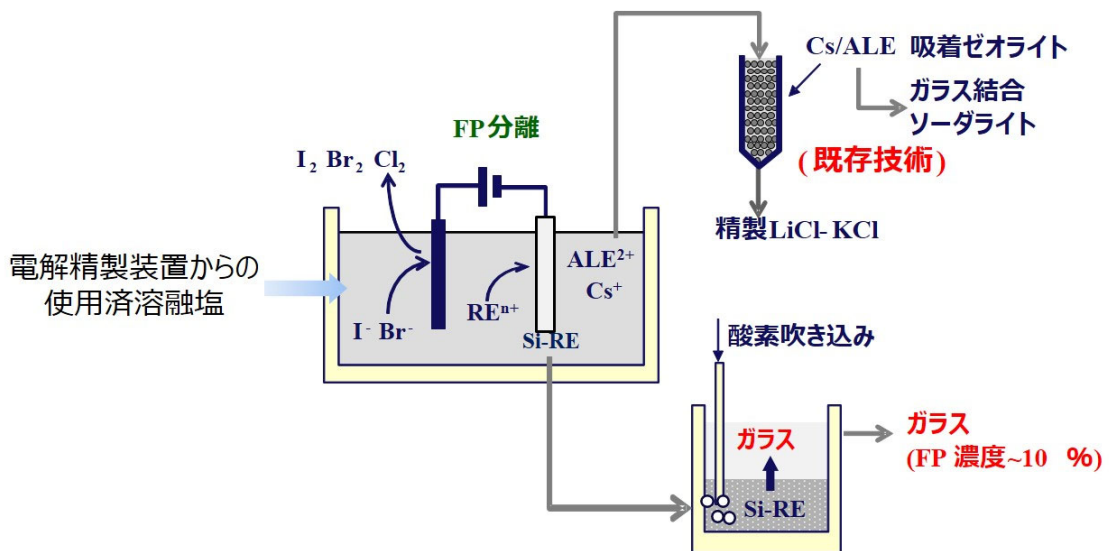
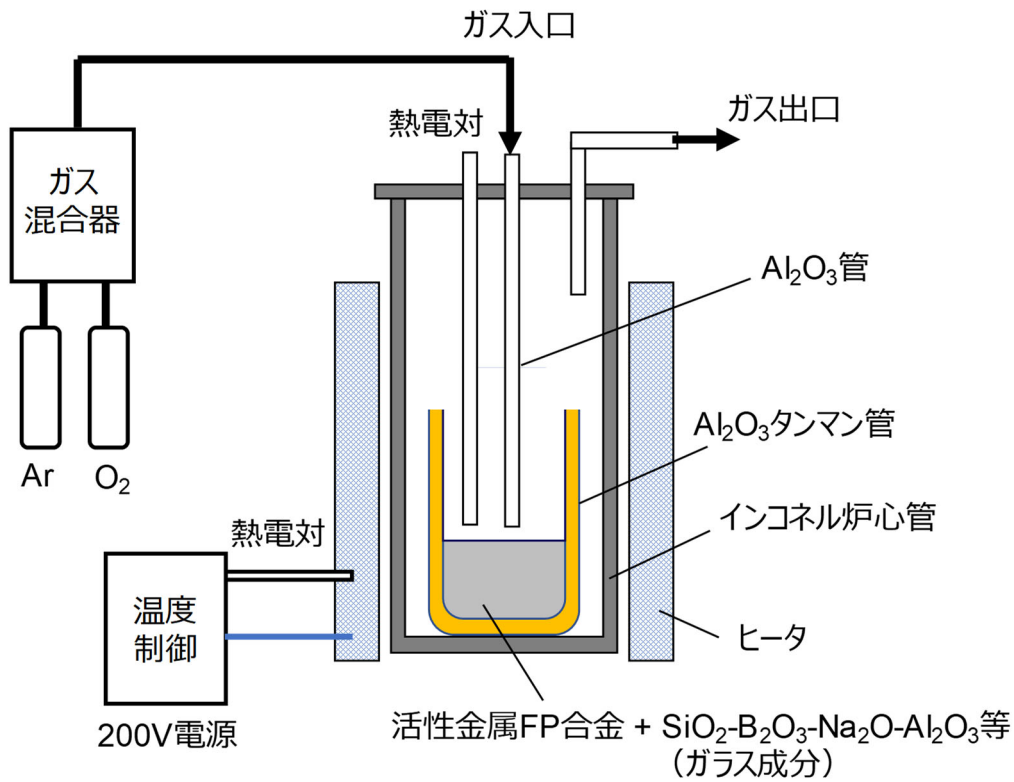
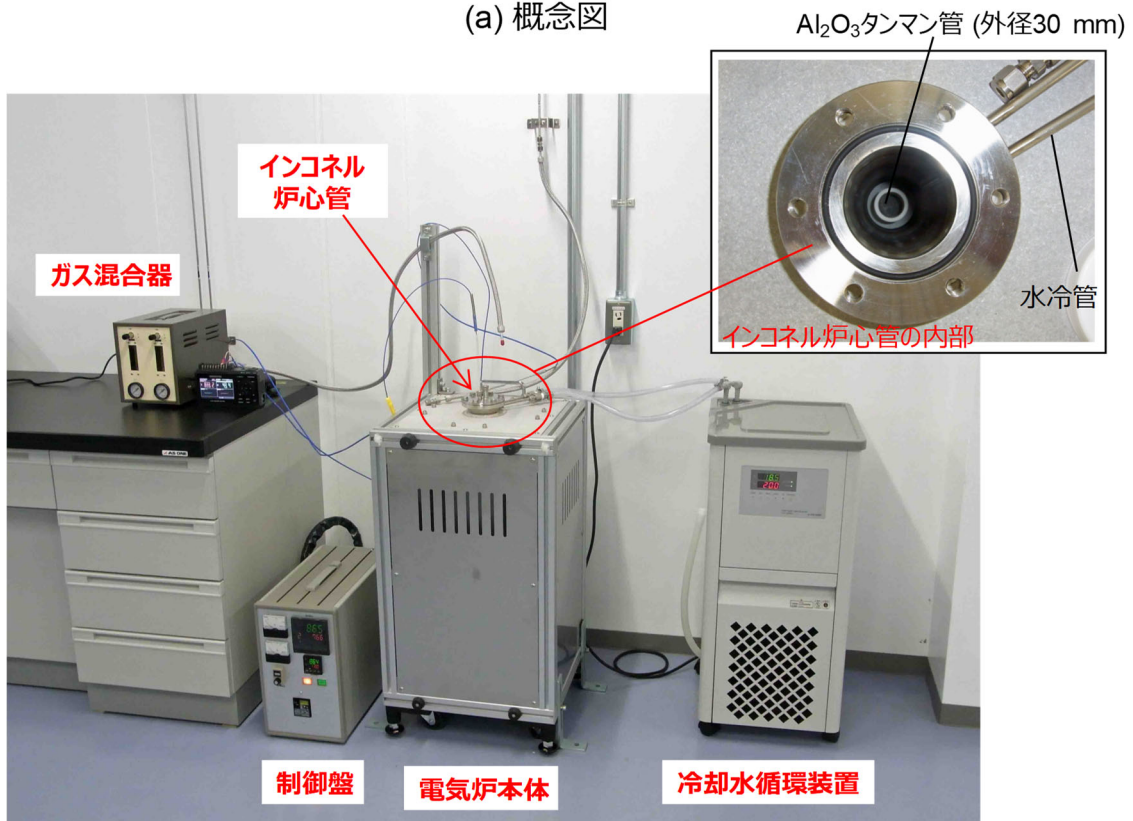


図 3.2.2-13 新たに提案した廃棄物処理プロセス模式図
(固体 Si 電極を使用、RE : 希土類、ALE : アルカリ土類)



(a) 概念図



(b) 全体写真

図 3. 2. 2-14 酸化試験装置全体の (a) 概念図と (b) 写真



図 3. 2. 2-15 CeSi₂ および LaSi₂ 試薬

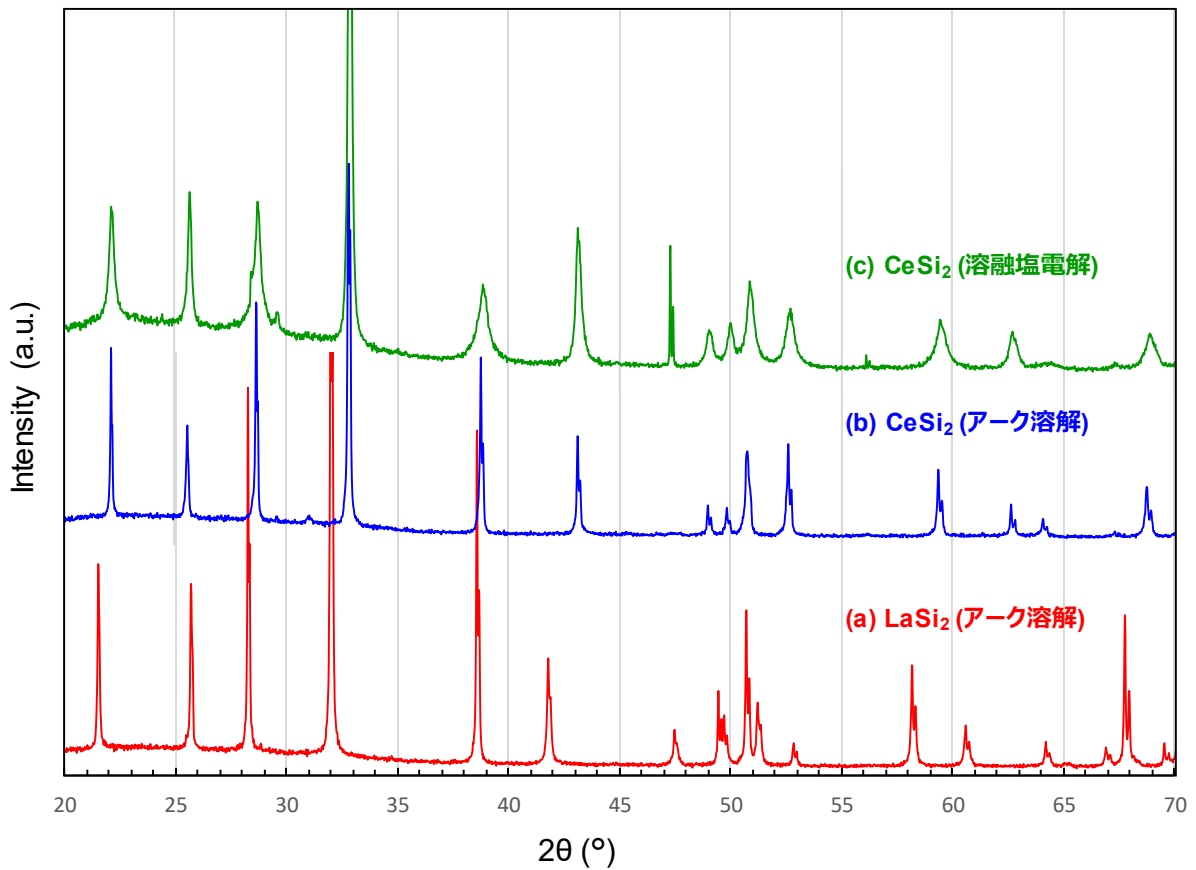


図 3. 2. 2-16 アーク溶解により調製された (a) CeSi₂ と (b) LaSi₂、
および溶融塩電解により生成した (c) CeSi₂ の XRD パターン

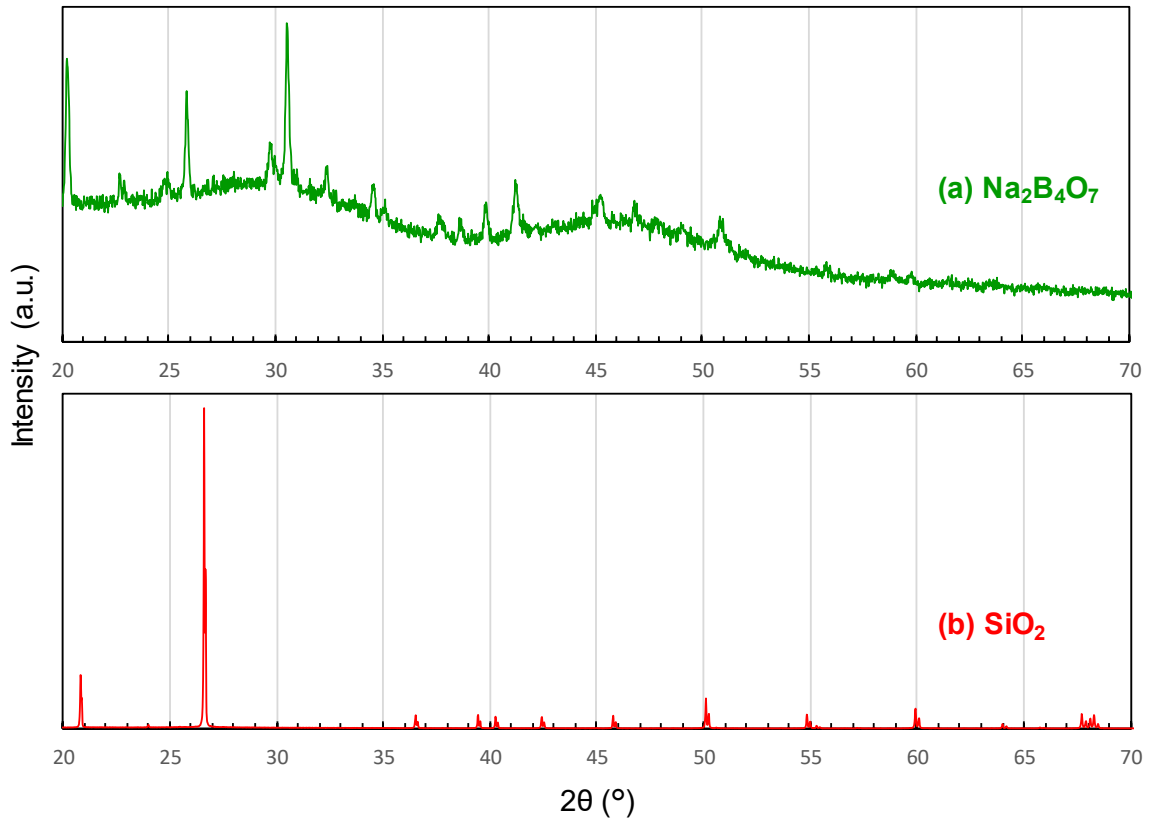


図 3. 2. 2-17 (a) $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ および (b) SiO_2 試薬の XRD パターン

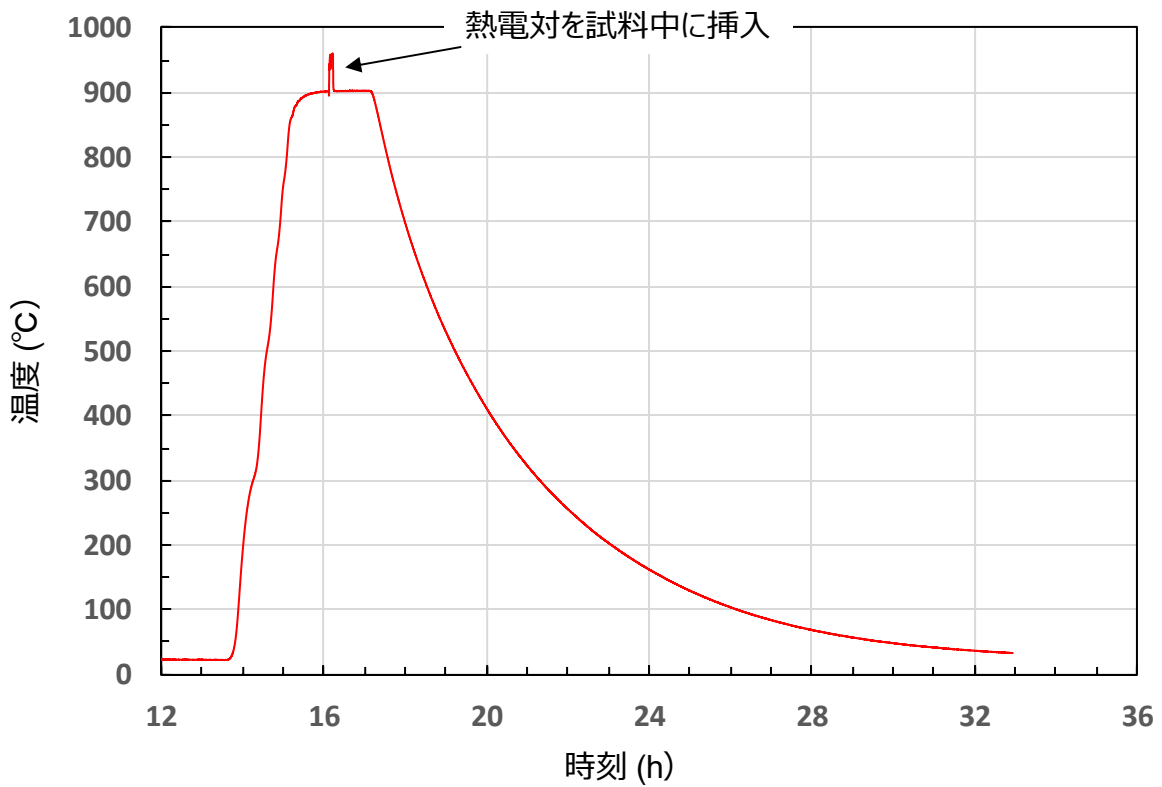


図 3. 2. 2-18 Run 1 での温度履歴 (熱電対による測定値)

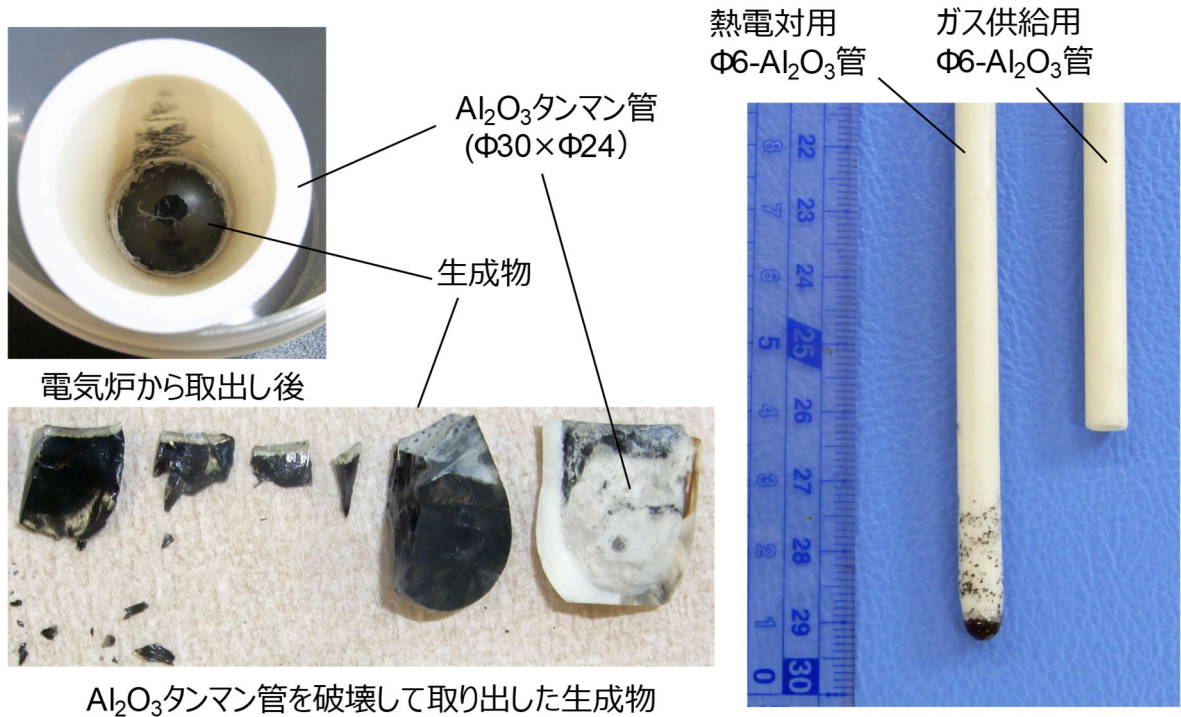


図 3. 2. 2-19 Run 1 終了後の Al₂O₃ タンマン管と生成物、Al₂O₃ 管の様子

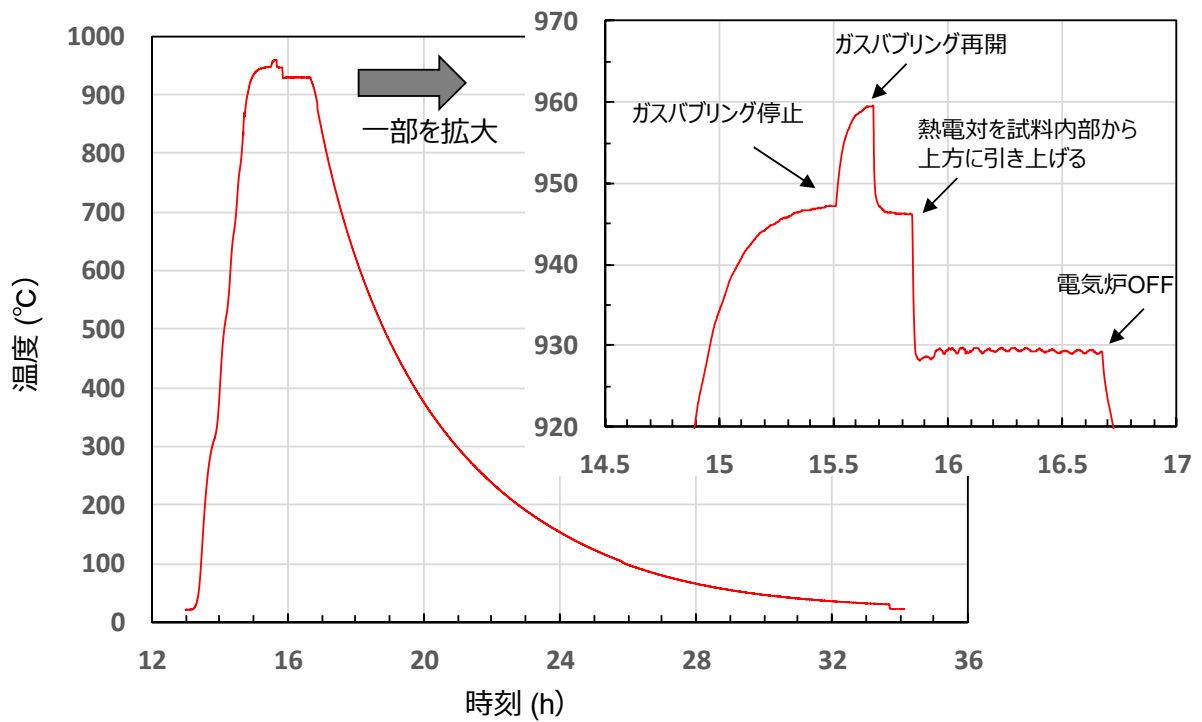


図 3. 2. 2-20 Run 2 での温度履歴 (熱電対による測定値)



図 3. 2. 2-21 Run 2 終了後の Al₂O₃ タンマン管と生成物、Al₂O₃ 管の様子

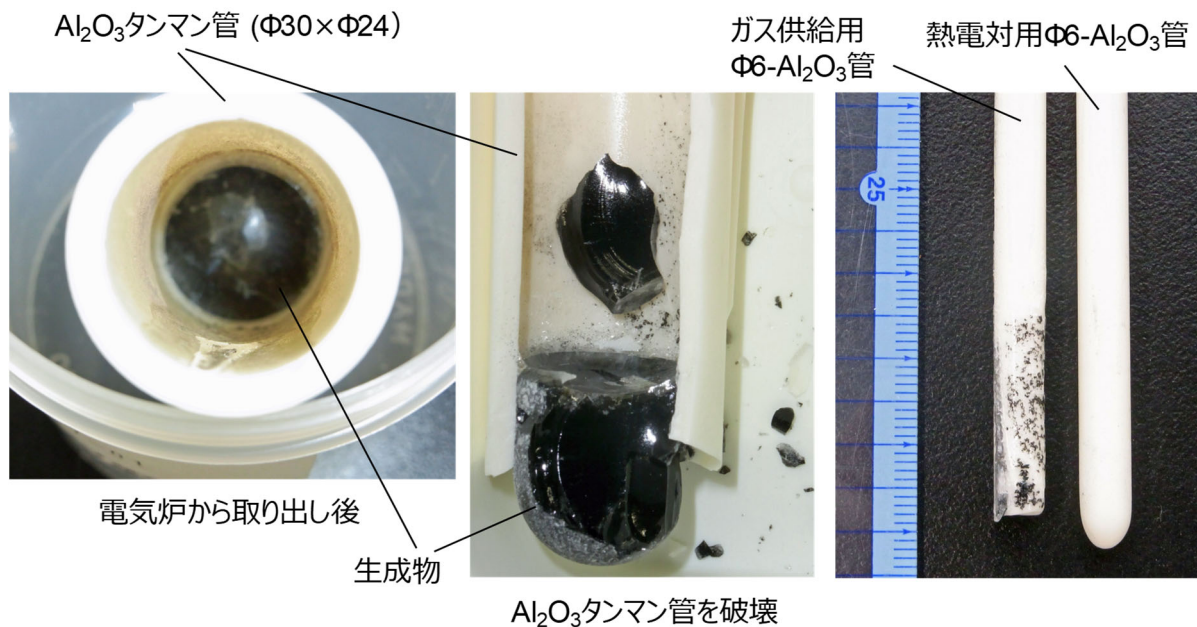


図 3. 2. 2-22 Run 3 終了後の Al₂O₃ タンマン管と生成物、Al₂O₃ 管の様子

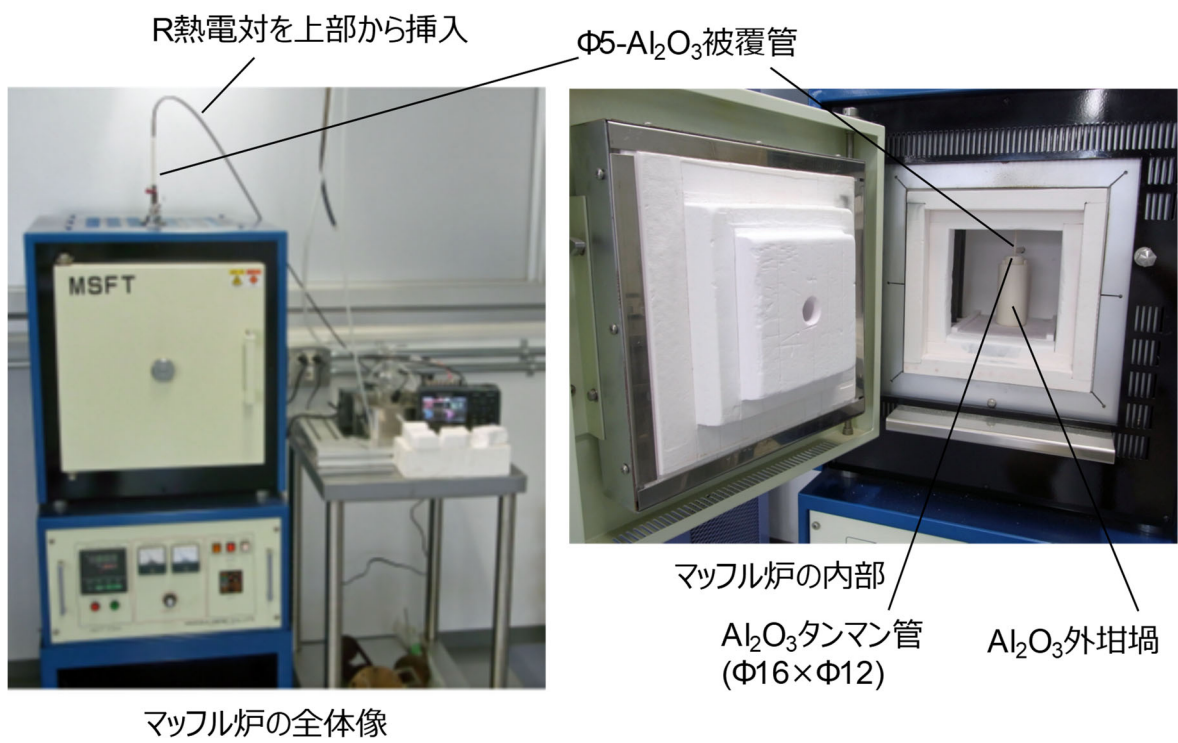


図 3. 2. 2-23 Run 4～6 のガラス化試験で使用したマッフル炉

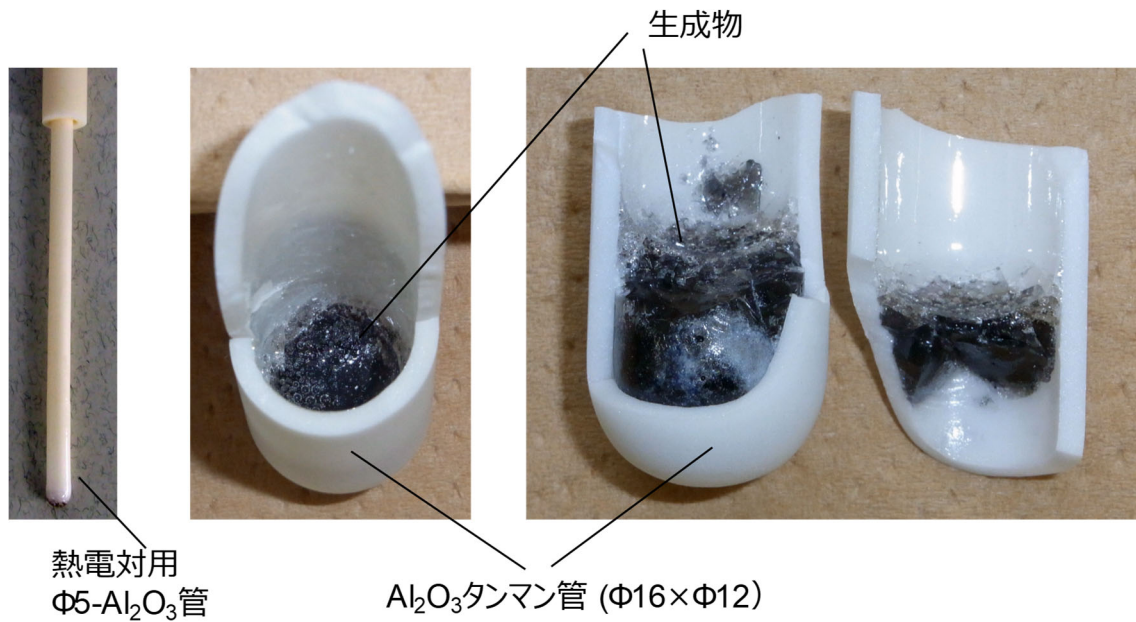
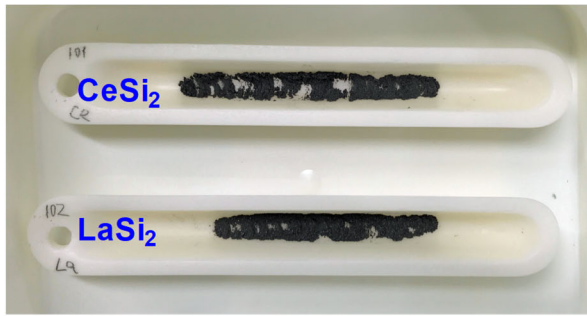


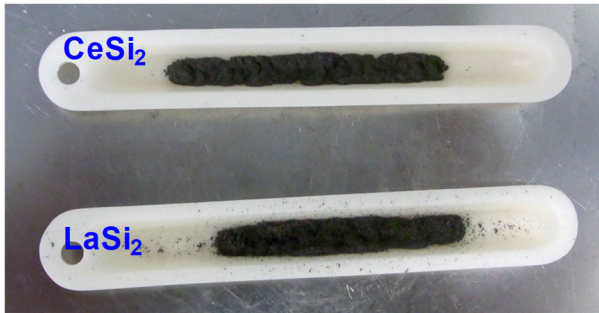
図 3. 2. 2-24 Run 4 終了後の Al₂O₃ タンマン管 (破壊後) と生成物、Al₂O₃ 管の様子



酸化処理前



1000°C×2.0 h



酸化処理後

(a) Run 5 : CeSi₂とLaSi₂(レアメタリック)



酸化処理前



1000°C×2.0 h



酸化処理後

(b) Run 6 : CeSi₂(熔融塩電解)

図 3. 2. 2-25 Run 5 および Run 6 での希土類-Si 合金の酸化処理 (大気中、1000°C×2.0 h)

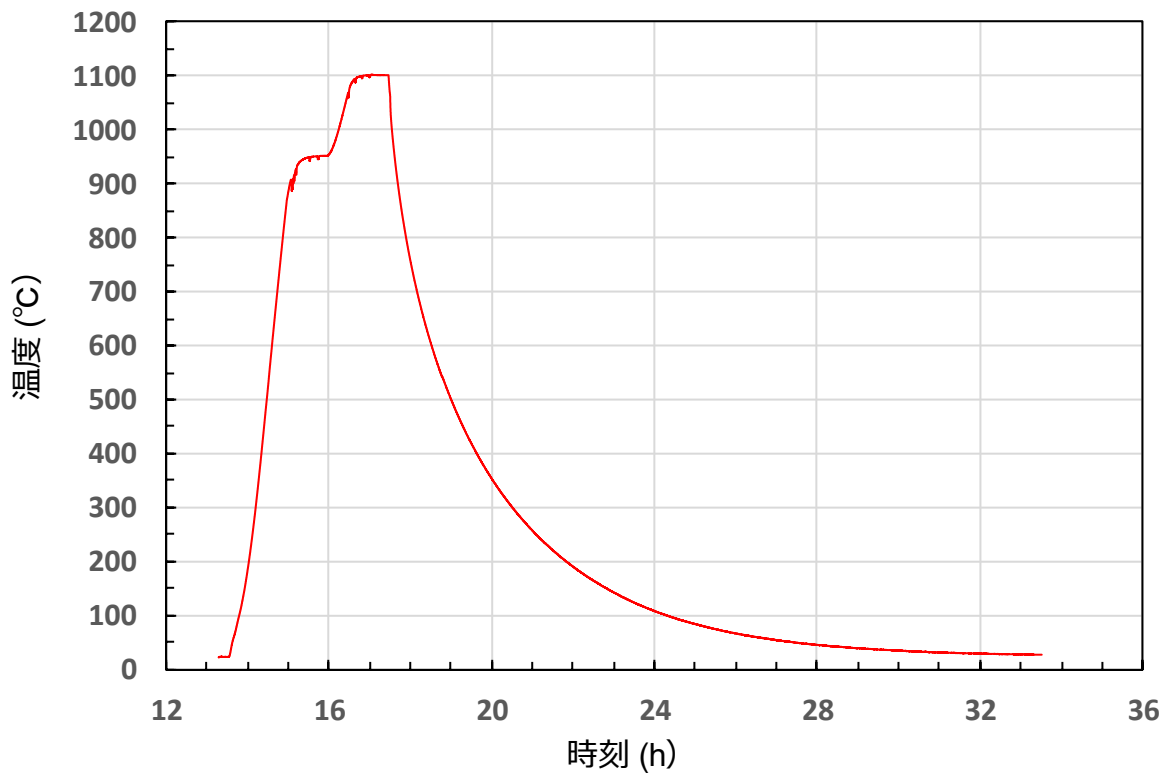


図 3. 2. 2-26 Run 5 での温度履歴 (熱電対による測定値)

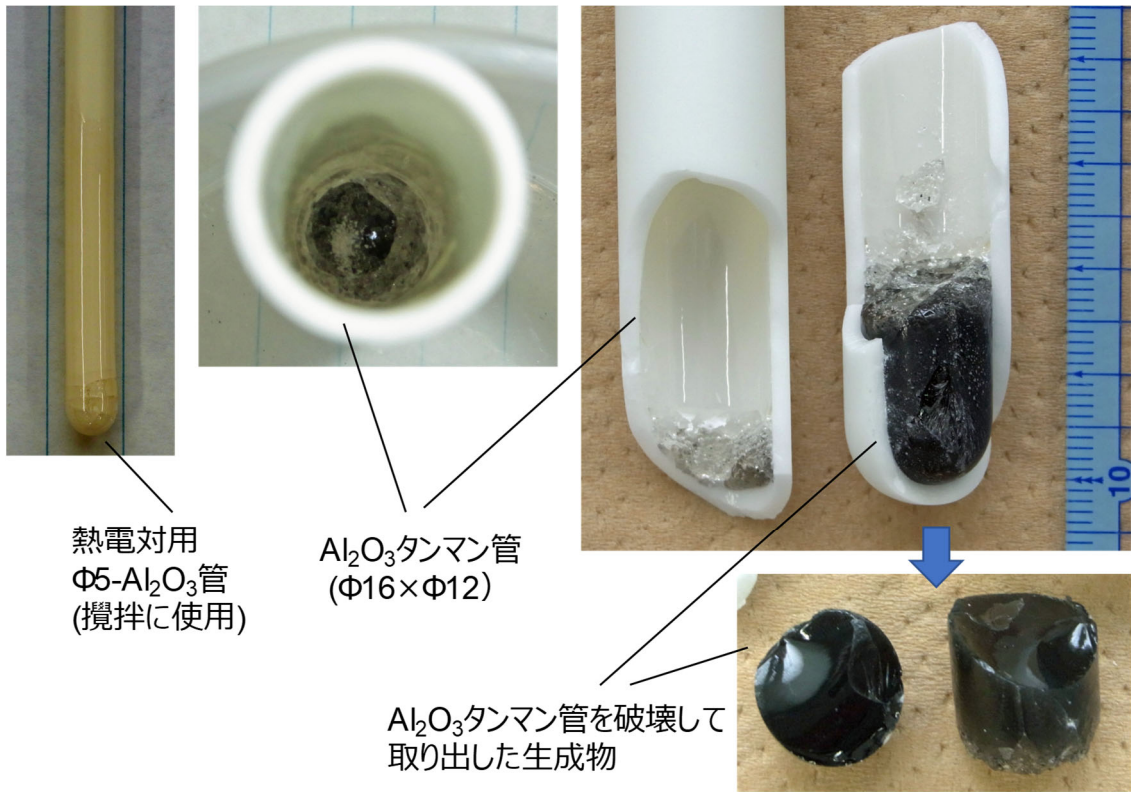


図 3. 2. 2-27 Run 5 終了後の Al₂O₃ タンマン管と生成物、Al₂O₃ 管の様子

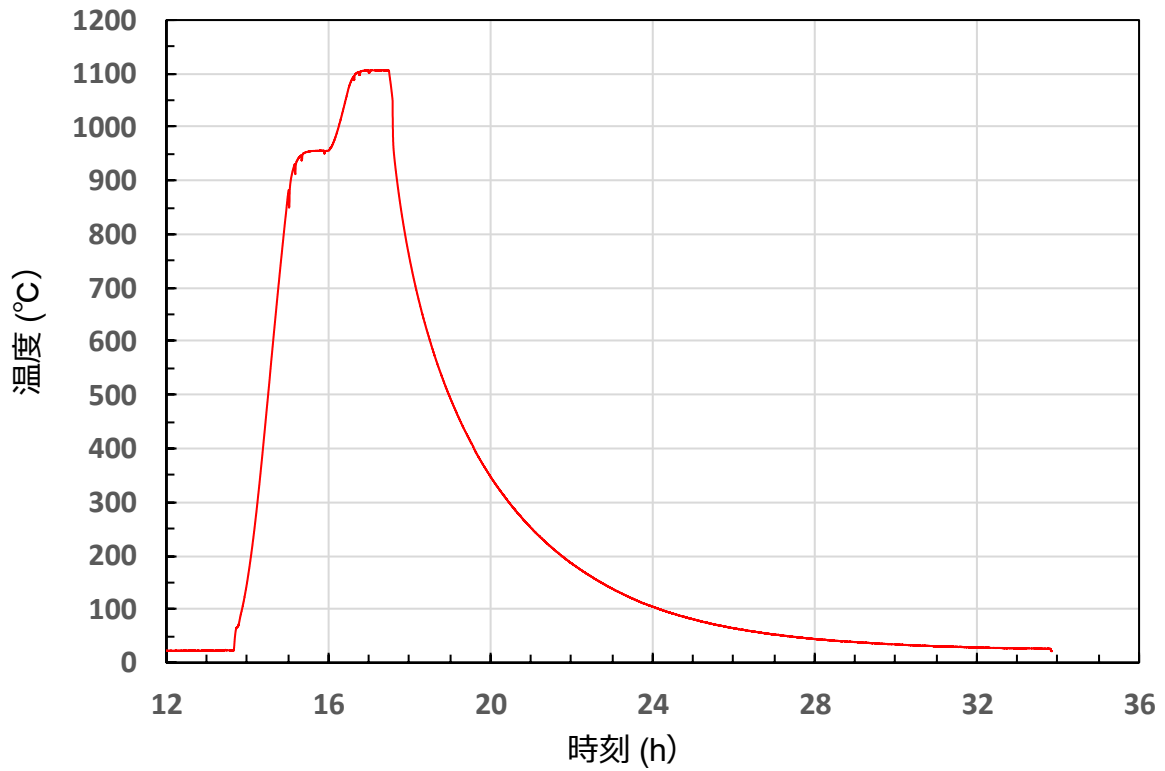


図 3. 2. 2-28 Run 6 での温度履歴 (熱電対による測定値)

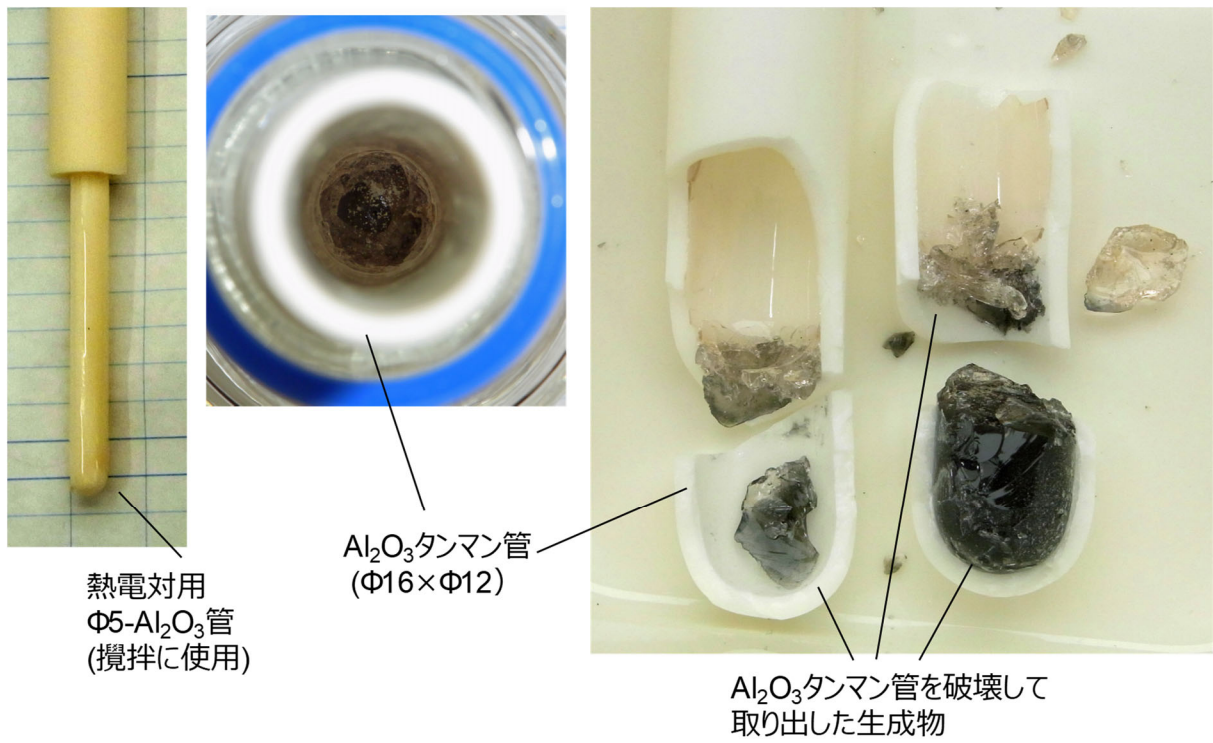


図 3. 2. 2-29 Run 6 終了後の Al_2O_3 タンマン管と生成物、 Al_2O_3 管の様子

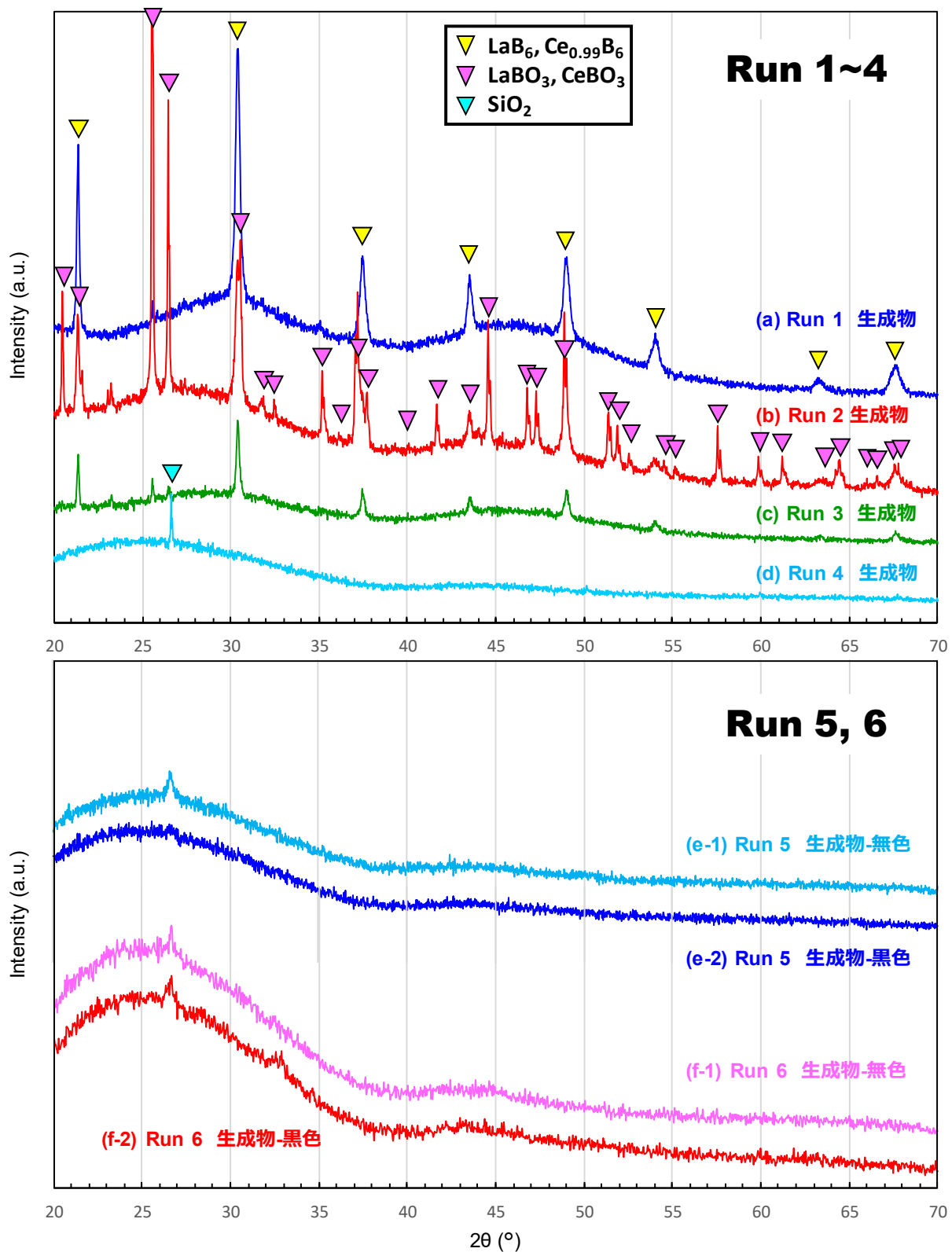


図 3. 2. 2-30 ガラス化試験 Run 1~6 の生成物の XRD パターン

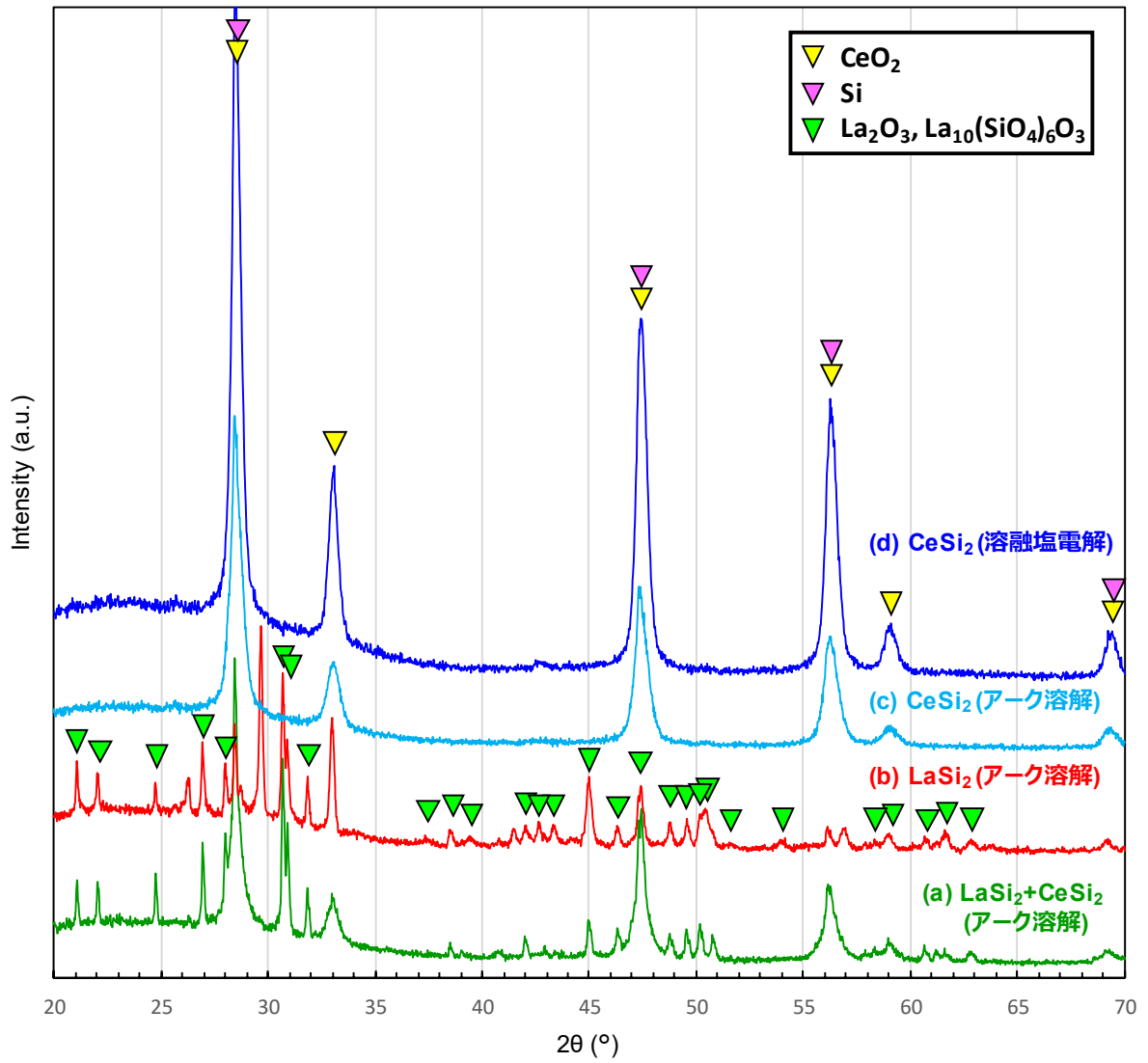
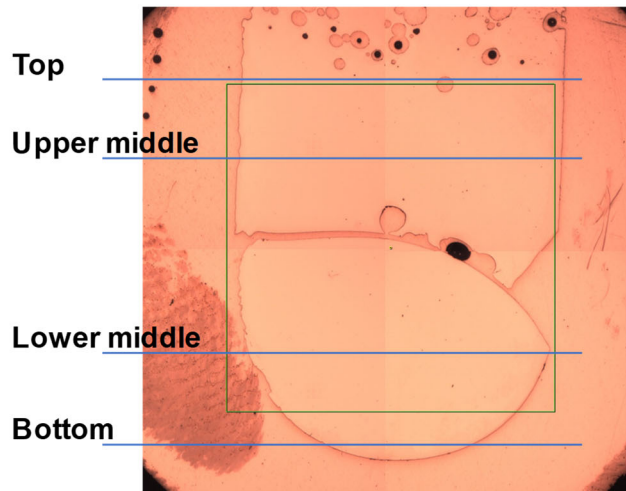


図 3. 2. 2-31 1000°Cで酸化処理した(a) LaSi_2 - CeSi_2 混合物、(b) LaSi_2 、(c) CeSi_2 (以上はアーク溶解で調製)、(d) CeSi_2 (溶融塩電解で調製) の XRD パターン

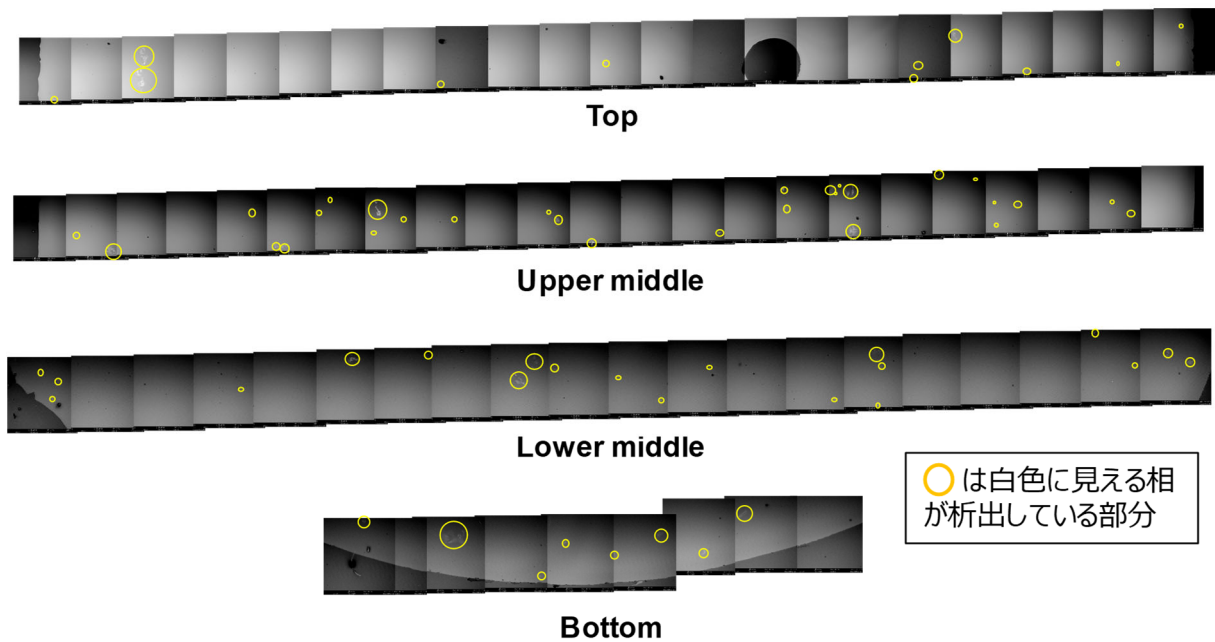


(a) Run 5 の生成物



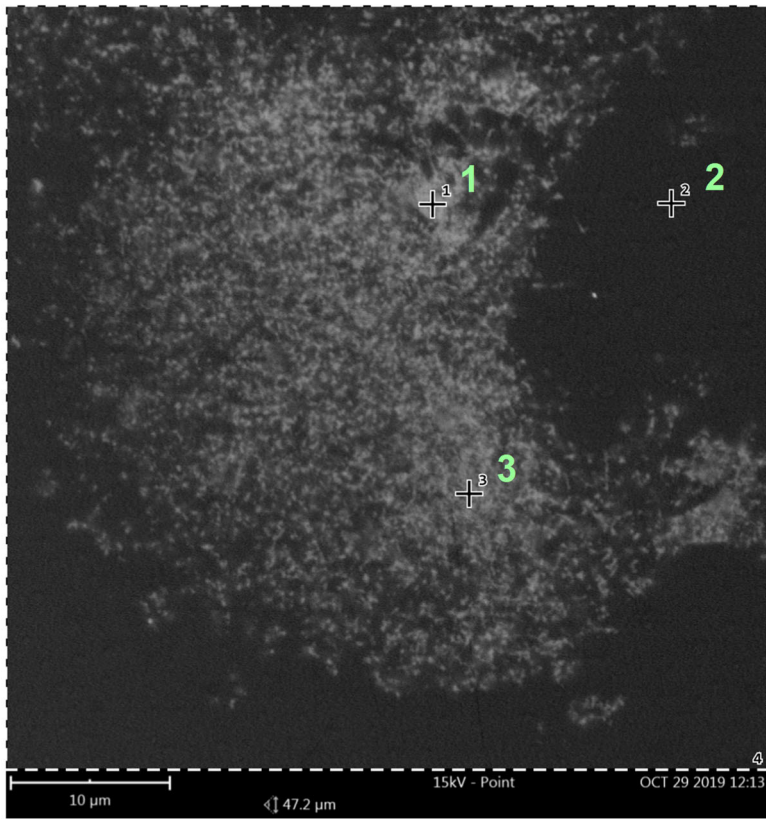
(b) Run 5 の断面SEM全体像

※ Al_2O_3 タンマン管からの取り外し時に生成物は2つに割れたが、両者を合わせて樹脂に埋めた。



(c) Run 5 の断面SEM像 : Top, Upper middle, Lower middle, Bottomを拡大して観察

図 3. 2. 2-32 Run 5 の生成物の SEM 分析



Spot 1

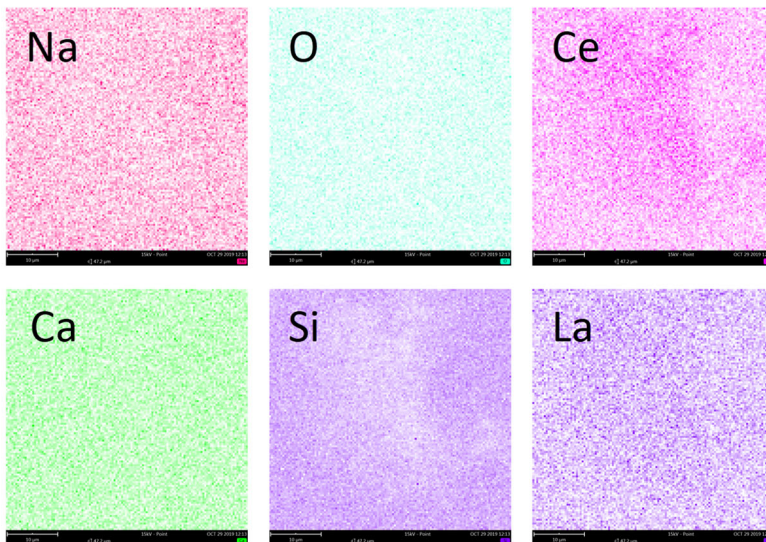
Element Symbol	Atomic Concentration
Si	39.6
Ce	32.9
Ca	4.8
La	5.9
Al	5.1
Na	6.7
O	4.9

Spot 2

Element Symbol	Atomic Concentration
Si	40.4
O	39.8
Al	5.7
Ca	5.1
Na	7.6
La	0.7
Ce	0.7

Spot 3

Element Symbol	Atomic Concentration
Si	46.3
Ce	16.9
Ca	5.7
Al	7.3
La	4.4
O	11.6
Na	7.9



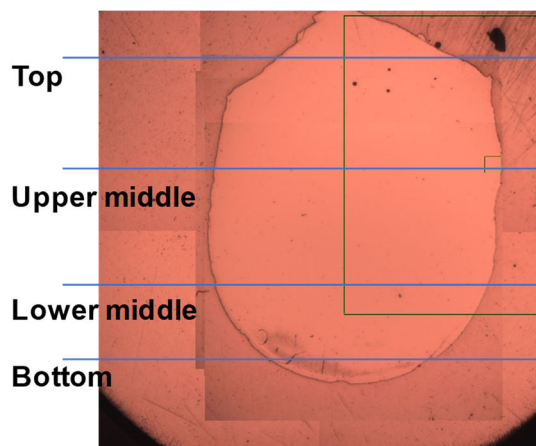
※白色に見える相に
LaとCeが濃縮

図 3. 2. 2-33 Run 5 の生成物の SEM-EDX 分析

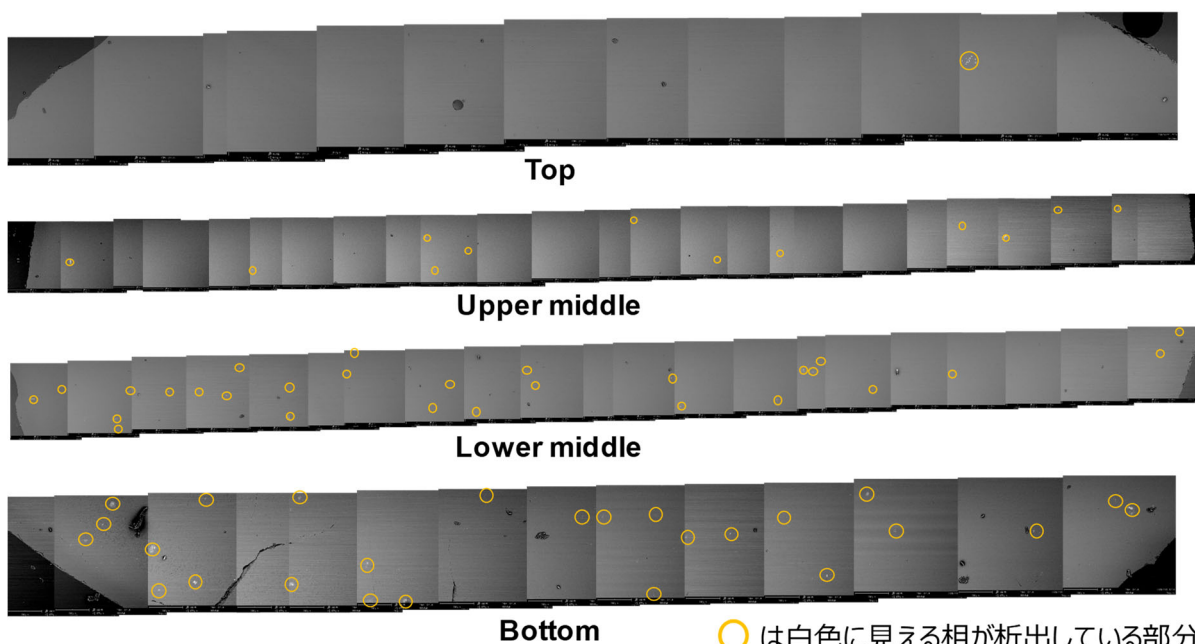


Al₂O₃タンマン管 生成物

(a) Run 6 の生成物



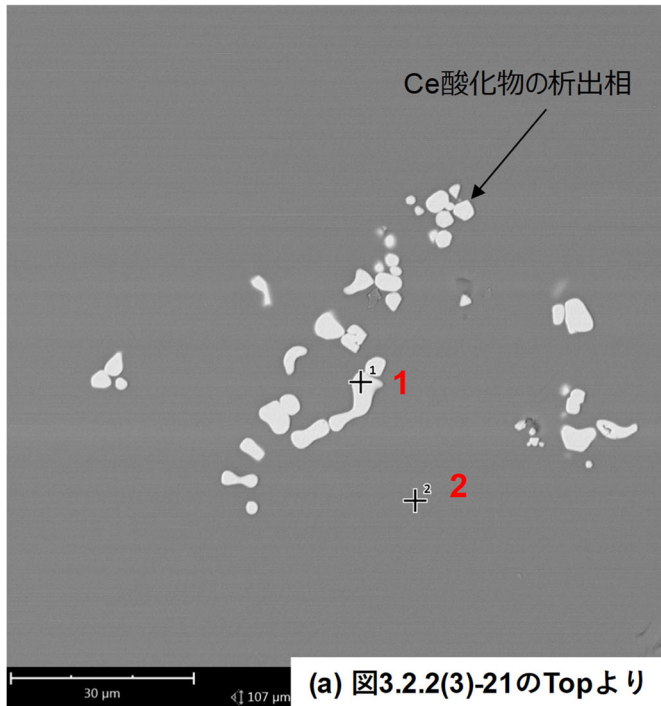
(b) Run 6 の断面SEM全体像



○ は白色に見える相が析出している部分

(c) Run 6 の断面SEM像 : Top, Upper middle, Lower middle, Bottomを拡大して観察

図 3. 2. 2-34 Run 6 の生成物の SEM 分析



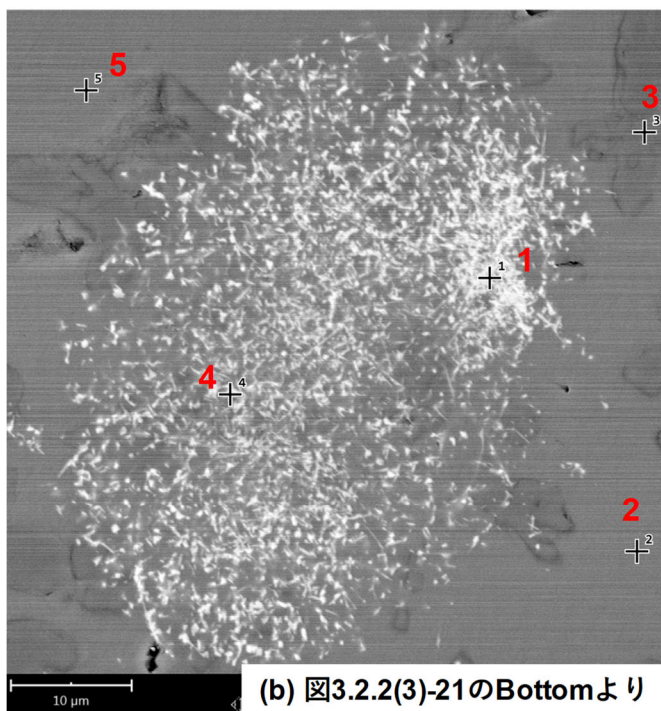
Spot 1

Element Symbol	Atomic Concentration
Ce	20.0
O	27.6
Si	1.7
C	10.2
Au	40.5

Spot 2

Element Symbol	Atomic Concentration
Si	9.4
O	31.2
Al	2.3
Ca	1.6
Na	2.1
C	11.6
Ce	0.3
Au	41.5

(a) 図3.2.2(3)-21のTopより



Spot 1

Element Symbol	Atomic Concentration
Si	8.4
Ce	7.4
O	23.7
Ca	3.2
Na	2.6
Au	54.7

Spot 4

Element Symbol	Atomic Concentration
Si	12.2
O	33.9
Ca	3.6
Ce	4.9
Na	3.2
Au	42.2

Spot 2

Element Symbol	Atomic Concentration
Si	14.7
O	43.1
Ca	3.1
Na	3.3
Ce	0.9
Au	34.9

Spot 5

Element Symbol	Atomic Concentration
Si	16.1
O	41.5
Ca	3.5
Na	3.3
Ce	1.0
Au	34.6

Spot 3

Element Symbol	Atomic Concentration
Si	18.5
O	39.9
C	6.9
N	3.8
Au	30.8

※白色の相はCeが濃縮、暗灰色の相はSiとOが主でCeは含まれない

(b) 図3.2.2(3)-21のBottomより

図 3. 2. 2-35 Run 6 の生成物の SEM-EDX 分析

3.2.3 乾式再処理機器概念の構築とプロセス設計

(1) 乾式再処理機器概念の構築【平成28年度-令和元年度】

①目的と概要

本研究では、液体Gaを電極材料に用いた乾式再処理プロセスにより、従来よりもアクチニド/希土類除染性能を大幅に向上した革新的なMA回収方法の開発を行う。本研究項目では、液体Ga電極が実機規模および条件において十分な性能を発揮できることを実証することを目的とする。具体的には、工学規模液体Ga電極を設計・製作し、これを用いた試験により、実用液体Ga電極を設計するために必要な、容器材料や攪拌方法などに関するデータを取得する。

平成28年度は、液体Gaに対して安定な材料について検討し[1]、その結果、 Al_2O_3 、 MgO 、 W の安定性が確認された。工学規模Ga電極には、非常に大きな坩堝(例えば直径30 cm以上)が求められる。 W ではこのような坩堝の作製は困難であると考えられることから、液体Gaの坩堝材料としては Al_2O_3 または MgO が適することが分かった。また、坩堝以外に、液体Ga電極の構成要素で液体Gaに接触するものとしては、電極リードおよび液体Ga攪拌のための攪拌羽が挙げられる。これらには、電気抵抗が比較的 low、高い機械強度を持つ W が適することが分かった。

高温熔融塩中での電気化学反応では、反応種や生成物種の拡散が律速過程となることが多いことから、液体Ga電極へのアクチニド回収速度が攪拌により向上することが期待される。そこで、平成29年度には液体Ga中へのCe(アクチニド模擬)回収反応について攪拌が与える影響について検討した[2]。その結果、液体Ga中へのCe析出反応および液体Ga中Ceの溶出反応の分極特性は、液体Ga相を攪拌することにより向上することが確認された。一方、熔融塩相の攪拌では、液体Ga中へのCe析出反応の分極特性は向上しなかった。これらのことから、液体Ga中へのCe析出反応の律速過程は液体Ga表面で析出したCeの液体Ga中の拡散であることが示唆された。また、平成28年度に得られた知見と共に工学規模の液体Ga電解装置を設計・製作した。

平成30年度は、平成29年度に製作した工学規模液体Ga電解装置を用いてCe(アクチニド模擬)の電解回収試験を実施した[3]。液体Ga電極アセンブリの分極測定結果から、回収速度に与える攪拌の効果が高いことを確認した。また、 -1 A (約 $5 \times 10^{-4}\text{ g-Ce/s}$ に相当)定電流電解によるデモンストレーション試験を実施し、液体Ga中Ce濃度が溶解度以下においては安定にCeが回収されると共に、定電流電解試験後の工学規模液体Ga電解装置に腐食や割れなどはないことを確認した。

令和元年度は、工学規模液体Ga電解装置を用いて、平成30年度よりも長時間の電解回収試験を実施し、物質収支評価に必要なデータ(長時間電解における回収速度や小規模試験で観察されている固相形成挙動)を取得することを目的とした。ここでは、平成30年度試験と同様に、アクチニドの模擬物質としてCeを選択し、液体Ga中へのCe回収反応(3.2.3-1式)を検討した。



また本研究では、平成30年度に得られた希土類シリサイド(単元系)の基礎的な形成挙動の成果を基にして、Siを電極材に用いた新規な廃塩処理プロセスを提案した[3]。令和元年度は、新規な廃塩処理プロセス概念設計に必要なデータを取得することを目的として、より現実に近い多元系でのシリサイド形成試験および工学規模シリサイド形成試験を実施した。

②実験方法

活性の高い金属や吸湿性のある塩化物を使用するため、試験はアルゴン雰囲気グローブボックス内で実施した。グローブボックス内の酸素および水分濃度は常に数 ppm 以下に制御されている。工学規模液体 Ga 電解試験およびシリサイド形成試験について、それぞれ試験装置の詳細を以下に述べる。

1) 工学規模液体 Ga 電解試験

a) 電解浴

平成 30 年度に調整した以下の電解浴を使用した。共晶組成 LiCl-KCl (6533.2 g、LiCl : KCl = 58.8 : 41.2 mol、純度 99.9 %、融点 625 K、APL 製)に、CeCl₃ (300.5 g、1.03 mol%、純度 99.99 %、APL 製)を添加したものをアルミナ坩堝(SSA-S、内径 24 cm、高さ 12 cm、ニッカトー製)に装荷し、これを工学規模電解槽に設置した(図 3.2.3-1)。LiCl-KCl の密度を 1.6 gcm⁻³ とすると熔融後の浴塩高さは約 9 cm となる。坩堝中央から坩堝壁に向かって、また坩堝底から浴塩表面に向かって温度が高くなる傾向があるが、大きな温度勾配はないことを平成 30 年度に確認している。

b) 液体 Ga 電極アセンブリ(図 3.2.3-2)

Ga 金属(2061 g、純度 99.9999 %、レアメタリック製)を内径 11.2 cm、高さ 5 cm のアルミナ坩堝に装荷した。アルミナ坩堝内径から計算した見かけの液体 Ga 表面積は約 98 cm² である。平成 29 年度の試験結果[2]より、液体 Ga 相の攪拌により分極特性が向上することが明らかとなったことから、液体 Ga 相を攪拌するための機構(0~100 rpm 可変)を設けている。平成 28 年度の試験[1]より、攪拌軸および攪拌羽(図 3.2.4-3)の材質は液体 Ga と反応しない W とした。攪拌羽は 3 枚とし、攪拌軸に対して角度を付けた構造とした(平成 30 年度の試験では、2 枚の攪拌羽を攪拌軸に対して平行に付けた構造(図 3.2.3-3))。この攪拌軸は液体 Ga 電極の電極リードも兼ねている。

c) 対極バスケットアセンブリ(図 3.2.3-4)

Ce 金属棒(φ12.7 mm、約 100 g、純度 99.9 %、ニラコ製)2本を SUS 製、円筒状のメッシュバスケット(外径 4 cm、高さ 9 cm)に装荷した。液体 Ga 電極アセンブリの分極測定、定電流電解試験および Mo 線電極(1 mm φ、浴塩中への浸漬深さ 5 mm)を用いた CV 測定において対極として使用した。バスケット自体が回転する機構(0~100 rpm 可変)を備えている。液体 Ga 電極への Ce 析出(3.2.3-1 式)が進行する際

に、対極バスケットアセンブリ上で期待される反応は Ce 金属の溶出(3.2.3-2 式)であるため、液体 Ga 電極アセンブリの分極測定や定電流電解試験中に浴塩中 CeCl_3 濃度は大きく変化しないと期待される。



d) 参照極

参照極には、Ag/AgCl 参照極を用いた。これは、パイレックス管内に LiCl-KCl-1wt%AgCl(純度 99.9 %、APL 製)を装荷し、Ag 線(1 mm ϕ 、純度 99.99 %、ニラコ製)でリードを取った構造である。

e) 分析

電解終了後、Ga 合金が溶融している状態でその一部を採取した。これを conc. HNO_3 中に溶解し、サンプル中の Ce 濃度を ICP-AES により測定した。

重量物である工学規模電解槽、液体 Ga 電極アセンブリ、対極バスケットアセンブリを安全に移動させるために、グローブボックス内にあるクレーン(チェーンブロック)を利用した。平成 28~29 年度に実施した液体 Ga 電極の基礎的な電気化学挙動を検討するための実験室規模試験[1, 2]においては、約 100 g の LiCl-KCl 中において、2~4 g の Ga を用いていた。本工学規模試験では、実験室規模試験に比べて、浴塩重量約 65 倍、Ga 重量約 515~1030 倍の試験規模である。

2) 小規模シリサイド形成試験

a) 電解浴

共晶組成 LiCl-KCl(LiCl : KCl = 58.8 : 41.2 mol、純度 99.9 %、融点 625 K、APL 製)に、各希土類塩化物を添加したものをアルミナ坩堝(SSA-S、ニッカトー製)に装荷し、723 K で溶融して使用した。 Ce^{3+} イオン源として CeCl_3 (純度 99.99 %、APL 製)を、 Pr^{3+} イオン源として PrCl_3 (純度 99.99 %、APL 製)を、 Nd^{3+} イオン源として NdCl_3 (純度 99.9 %、APL 製)を、 La^{3+} イオン源として LaCl_3 (純度 99.99 %、APL 製)を、 Gd^{3+} イオン源として GdCl_3 (純度 99.9 %、APL 製)を添加した。Eu および Sm は溶融 LiCl-KCl 中で 2 価および 3 価イオンとして安定に存在することが知られている。ただし、 $\text{Eu}^{3+}/\text{Eu}^{2+}$ および $\text{Sm}^{3+}/\text{Sm}^{2+}$ の酸化還元電位($\text{Eu}^{3+} + \text{e}^- = \text{Eu}^{2+}$ 、 $\text{Sm}^{3+} + \text{e}^- = \text{Sm}^{2+}$)は、アクチニドの陽極溶解電位($\text{An} \rightarrow \text{An}^{3+} + 3\text{e}^-$ 、An はアクチニドを表す)よりも貴である[4, 5]。よって、使用済金属燃料の電解精製工程において使用済燃料中から溶出した Eu や Sm はほぼすべて Eu^{2+} および Sm^{2+} として溶融塩中に存在すると考えられる。そこで、本試験では、下記の方法で調整した LiCl-KCl-EuCl₂ および LiCl-KCl-SmCl₂ をそれぞれ Eu^{2+} イオン源および Sm^{2+} イオン源として浴中に添加した。

b) LiCl-KCl-EuCl₂ および LiCl-KCl-SmCl₂ の調整

共晶組成 LiCl-KCl および EuCl₃ をアルミナ坩堝中で熔融し、そこに Eu 金属を浸漬することで、下記反応を進行させ、LiCl-KCl 中に EuCl₂ を生成した。



同様に LiCl-KCl-SmCl₂ を調整した ($2\text{SmCl}_3 + \text{Sm} \rightarrow 3\text{SmCl}_2$)。ICP-AES 分析結果から、調整した浴塩中の EuCl₂ および SmCl₂ 濃度は共に 2.7 mol% であった。

c) 電気化学測定

三電極方式で行った。作用極には、Si 電極を用いた。これは、Si ウエハー (n-type、〈110〉、厚さ約 0.5 mm、0.02 Ω cm、(有)植木工作所) を短冊状に切断し Ta 線 (φ 0.2 mm、純度 99.95 %、ニラコ) を巻き付けてリードとした構造である (図 3.2.3-5)。対極にはグラッシカーボン電極を用いた。また、参照極には Ag/AgCl 参照極を用いた。これは、パイレックス管内に LiCl-KCl-1wt%AgCl (純度 99.9 %、APL 製) を装荷し、Ag 線 (1 mm φ、純度 99.99 %、ニラコ製) でリードを取った構造である。

d) 分析

電解後に得られた希土類シリサイドの破断面を SEM-EDX サンプルの一部は、それぞれ 1N HNO₃ 中または (conc. HNO₃+HF) 中に溶解し、サンプル中の希土類濃度を ICP-AES により測定した。希土類シリサイドサンプル表面に付着塩がある場合には、酸溶解の前に蒸留水により十分に洗浄しこれを除去した。

定電流電解による小規模シリサイド形成試験の試験条件 (熔融塩浴中希土類濃度、Si 電極重量、印加電流密度および通電量) を表 3.2.3-1 にまとめる。

3) 工学規模シリサイド形成試験

a) 電解浴

工学規模液体 Ga 電解試験に用いたものと同じ電解浴を使用した。

b) 電気化学測定

三電極方式で行った。作用極には、Si 電極を用いた。これは、Si ウエハー (n-type、〈110〉、厚さ約 0.5 mm、0.02 Ω cm、(有)植木工作所) を Ta 線リードを括り付けたワニ口クリップで挟む構造である (図 3.2.3-6)。対極には、工学規模液体 Ga 電解試験に用いた対極バスケットアセンブリ (図 3.2.3-4) を用いた。また、参照極には Ag/AgCl 参照極を用いた。これは、パイレックス管内に LiCl-KCl-1wt%AgCl (純度 99.9 %、APL 製) を装荷し、Ag 線 (1 mm φ、純度 99.99 %、ニラコ製) でリードを取った構造である。

③結果および考察

1) 工学規模 Ga 電極電解試験

電解浴の状態を確認するために Mo 線を用いた CV 測定を実施した(図 3.2.3-7)。-2.0 V(vs. Ag/AgCl)付近に還元電流ピークおよびこれに対応する酸化電流ピークが観測された。これらは、Ce 金属析出(3.2.3-4 式)およびその溶出(3.2.4-2 式)に起因する。



図 3.2.3-7 の CV には、上記の Ce 金属析出およびその溶出に起因する酸化還元ピーク以外に明確な酸化還元電流は見られていないことから、熔融塩中に存在する不純物濃度(水分や酸素)は無視できるほど低いことが確認された。

次に、この浴塩中で液体 Ga 電極アセンブリの分極測定を実施した。液体 Ga 相の攪拌あり(100 rpm)または攪拌なしの条件において、-50~-1400 mA で定電流電解(10 秒間)を行った。対極バスケットアセンブリによる攪拌は行っていない。この時、定電流電解試験を続けると液体 Ga 中 Ce 濃度が増加するため、各定電流電解開始時の初期条件が変わってしまう。そこで、適時、-0.6 V 定電位電解を実施し液体 Ga 中 Ce を溶出(3.2.3-5 式)させ、開回路電位が前回とほぼ等しくなったことを確認してから次の定電流電解を開始した。



図 3.2.3-8 には一定電流を印加し 10 秒後に示した液体 Ga 電極電位をプロットしている。印加電流に対して電位が直線的に卑に変化しており、測定範囲において副反応である液体 Ga 中への Li 析出(3.2.3-6 式)は進行せず、液体 Ga 中への Ce 析出(3.2.3-1 式)のみが進行していると考えられる。



平成 29 年度の結果から液体 Ga 中への Ce 析出の律速過程は液体 Ga 表面に析出した Ce の液体 Ga バルク中への拡散であることが示唆されている[2]。本試験においても同様に、液体 Ga 相の攪拌により分極特性が大きく向上していることが確認された。一方、令和元年度試験では、平成 30 年度から攪拌羽の枚数を増やし(2 枚→3 枚)、軸に対する角度を変えたが(平行→角度付き)(図 3.2.3-3)、分極特性の向上に対して大きな効果はなかった。

平成 30 年度の工学規模液体 Ga 電極の性能確認試験では、液体 Ga 中 Ce 濃度が溶解度以下(通電量 2000 C(0.026 at%-Ce に相当))となるように短時間の電解を実施し、安定に液体 Ga 中に Ce が回収されたことを確認した。令和元年度は、より長時間電解を継続した場合の挙動を明らかにすることを目的として、定電流電解試験を実施した。液体 Ga 相を 100 rpm で攪拌し、対極バスケットアセンブリも 50 rpm で回転させた。

図 3.2.3-9 に定電流電解中の液体 Ga 電極アセンブリの電位経時変化を示す。印加電流-1 A で試験を開始したところ、液体 Ga 電極電位が徐々に卑にシフトする挙動が見られた。これは、電解により液体 Ga 中 Ce 濃度が増加したためであると考えられる。分極測定結果(図 3.2.3-8)から-1.41 V 付近までは液体 Ga 中への Ce 析出(3.2.3-1 式)のみが進行することが示唆されたが、これよりも卑な電位領域においては副反応(3.2.3-6 式)も同時に進行することが懸念される。そこで、液体 Ga 電極電位が約-1.42 V に達した時点で定電流電解を中断し、印加電流を-0.75 A に減少して再開した。-0.75 A 定電流電解においても、液体 Ga 電極電位が徐々に卑にシフトし、約-1.42 V に達したため電解を中断した。次に、-0.5 A で定電流電解中を再開したところ、液体 Ga 電極電位が徐々に貴にシフトした。その後、-1.31 V 付近で液体 Ga 電極電位が一定となったところで電解試験を終了した。電解終了後の液体 Ga 電極アセンブリや対極バスケットアセンブリの外観に顕著な腐食等は見られなかった。トータルの通電量は 23185 C、電解時間は 29625 秒であった。平成 28 年度および平成 29 年度の小規模液体 Ga 電極試験結果より、液体 Ga 表面に固相合金が形成した場合には、定電流電解中の電位の貴へのシフトや定電位電解中の電流値の増加が観察されることが分かっている[1, 2]。このことから、-0.5 A 定電流電解において観察された液体 Ga 電極電位の貴へのシフトは、液体 Ga 表面での固相合金形成による電極面積増加を、-1.31 V 付近で電位が一定になったことは、液体 Ga 表面がすべて固相合金により覆われたことを示唆すると考えられる。実際に、電解試験終了後に液体 Ga 電極アセンブリを引き上げた際に液体 Ga 表面を観察したところ(図 3.2.3-10)、表面がすべて固相合金で覆われていたことを確認した。ここで、液体 Ga 中の Ce 溶解度(723 K)が 0.24 at%[6]であるとすると、本試験条件において液体 Ga (2061 g)中で Ce 濃度が飽和に達する通電量は 20536 C (電解時間は 24865 秒)である。これは、液体 Ga 電極電位が貴にシフトし始めた通電量約 19500 C (電解時間 22500 秒付近)に近く、溶解度の約 95 %までは液体 Ga 表面に固相が形成することなく Ce を回収できたことを示唆する(平均回収速度約 4.2×10^{-4} g-Ce s^{-1} 、電極表面積あたり約 4.3×10^{-6} g-Ce $s^{-1} cm^{-1}$)。また、電解試験後の液体 Ga 相部分をサンプリングし ICP-AES により液体 Ga 中の Ce 濃度を求めたところ、溶解度に近い値(約 0.20 at%)であることを確認した。平成 28 年度および平成 29 年度の液体 Ga 相を攪拌しなかった小規模試験においては、溶解度の約 70 %または約 55 %までは固相を形成せずに Ce または Nd が液体 Ga 中に回収された。これらのことから、液体 Ga 相攪拌の効果により、液体 Ga 中に溶解度付近まで回収することができたと考えられる。

2) 希土類シリサイド形成試験

図 3.2.3-11 に熔融 LiCl-KCl 中における Si 電極のサイクリックボルタモグラムを示す。-2.1 V 付近に還元電流の立ち上がりとこれに対応する酸化電流ピークが観測された。これは、Si-Li 合金形成と Si-Li 合金からの Li 溶出に起因する[7]。





次に希土類塩化物を添加した熔融LiCl-KCl中においてCV測定を実施した(図3.2.3-12)。その結果、-1.3 V付近から還元電流の増加および1.0 V付近に酸化電流ピークが観測された。これらは、希土類塩化物を添加していない場合には見られなかった電流であり、希土類シリサイド形成(3.2.3-9式)およびシリサイドからの希土類溶出(3.2.3-10式)に起因すると考えられる。



(REは希土類を表わしており、

RE: La, Ce, Pr, Nd, Gdの時n=3、RE: Sm, Euの時n=2)

サイクリックボルタンメトリーの結果に基づき、定電流電解を行い、形成するシリサイド相の構造や組成について検討した。図3.2.3-13は印加電流密度-8.3 mAcm⁻²における定電流電解時の電位経時変化(RUN2)である。RUN2終了後のSi電極写真を図3.2.3-14に示すように、熔融塩浴中に浸漬していた部分で表面形状が変化していた。また、このSi電極断面SEM像(図3.2.3-15)から、もともとのSi電極基板の外側に緻密なシリサイド相が、内側にポーラス相が形成したことが分かった。これは、シリサイド相中のSiの拡散が希土類の拡散よりも早いために、基板内部のSiが外側に供給されたためと考えられる。さらに、EDX分析結果から、シリサイド相内に希土類の分布に偏りが無いことが示された(図3.2.3-16)。

回収される希土類の濃度の印加電流密度依存性を調べるために、通電量を一定(60 C)として印加電流密度を変化させて定電流電解を実施した(RUN1~6)。図3.2.3-17に定電流電解時の電位変化を示す。印加電流密度-66.7 mAcm⁻²の場合(RUN5)のみ電位がすぐにLiSi_x形成電位までシフトしたため、通電量37.7 Cで電解を終了した。各電解後に採取した熔融塩浴サンプルおよびシリサイド相の一部をICP-AESで分析した結果を表3.2.3-2および表3.2.3-3に示す。シリサイド相中のEu濃度はICP-AESの検出下限以下であった。熔融塩浴中およびシリサイド中の各希土類濃度から下式で定義するCe基準の分離係数を求めた(表3.2.3-4)。

$$E_{\text{Ce}}^0 - E_{\text{RE}}^0 = \frac{RT}{3F} \ln \frac{\gamma_{\text{Ce}} \gamma_{\text{RECl}_3}}{\gamma_{\text{CeCl}_3} \gamma_{\text{RE}}} + \frac{RT}{3F} \ln \frac{C_{\text{Ce}} C_{\text{RECl}_3}}{C_{\text{CeCl}_3} C_{\text{RE}}} = \frac{RT}{3F} \ln \frac{\gamma_{\text{Ce}} \gamma_{\text{RECl}_3}}{\gamma_{\text{CeCl}_3} \gamma_{\text{RE}}} + \frac{RT}{3F} \ln SF_{\text{RE}}$$

$$E_{\text{Ce}}^0 - E_{\text{Sm}}^0 = \frac{RT}{2F} \ln \frac{\gamma_{\text{Ce}}^{\frac{2}{3}} \gamma_{\text{SmCl}_2}}{\gamma_{\text{CeCl}_3}^{\frac{2}{3}} \gamma_{\text{Sm}}} + \frac{RT}{2F} \ln \frac{C_{\text{Ce}}^{\frac{2}{3}} C_{\text{SmCl}_2}}{C_{\text{CeCl}_3}^{\frac{2}{3}} C_{\text{Sm}}} = \frac{RT}{2F} \ln \frac{\gamma_{\text{Ce}}^{\frac{2}{3}} \gamma_{\text{SmCl}_2}}{\gamma_{\text{CeCl}_3}^{\frac{2}{3}} \gamma_{\text{Sm}}} + \frac{RT}{2F} \ln SF_{\text{Sm}}$$

(3.3.3-11)

ここで、 C_{REClx} は、溶融塩中の希土類濃度を、 C_{RE} はシリサイド中の希土類濃度を意味する。 E_{Ce}^0 、 E_{RE}^0 および E_{Sm}^0 は、Ce、希土類および Sm の標準酸化還元電位を、 γ_{CeCl_3} 、 γ_{RECl_3} および γ_{SmCl_2} は、溶融塩中の $CeCl_3$ 活量係数、希土類塩化物活量係数および Sm Cl_2 活量係数を、 γ_{Ce} 、 γ_{RE} および γ_{Sm} はシリサイド中の Ce 活量係数、希土類活量係数および Sm 活量係数を表す。得られた分離係数を印加電流密度に対してプロットした(図 3.2.3-18)。その結果、Nd および Pr の分離係数は印加電流密度依存性が見られず、La、Gd および Sm では印加電流密度が増加するに従い分離係数が小さくなる、つまりシリサイドとして回収されやすくなる傾向が見られた。また、ICP-AES の分析結果および各 RUN 後に測定した Si 電極重量増加量(w)から下式に従いシリサイド形成の電流効率(η)を求めた。電流効率を求めるにあたり、各希土類の電流効率は等しく、副反応は $LiSi_x$ 形成であると仮定した。

$$\eta = (w - Q/F * M_{Li}) / (w_{th} - Q/F * M_{Li}) * 100 \quad (3.2.3-12)$$

ここで、Q は通電量、F はファラデー定数、 M_{Li} は Li の原子量、 w_{th} は ICP-AES 分析結果から得られたシリサイド中希土類濃度比における電流効率 100 %とした場合の理論重量増加量である。表 3.2.3-5 に示すように、RUN5 以外では電流効率は約 100 %と高いことが確認された。RUN5 では電解後に付着塩を除去するために蒸留水で洗浄した際に合金相が剥がれ落ちたが、剥がれ落ちた合金相をすべて回収できなかったため、電流効率が過少に評価されている。ただし、RUN5 では電解中の電位が-2.1 V よりも卑な領域を推移していた。このことは、CV 測定(図 3.2.3-11)の結果から、RUN5 では希土類シリサイド形成と共に $LiSi_x$ 形成(3.2.3-7 式)も同時に進行していたことを示唆する。そのため、RUN5 では他の RUN よりも電流効率が低かったと推察される。電流効率およびシリサイド中の希土類濃度比から求めた各希土類回収の部分電流密度の印加電流密度依存性を図 3.2.3-19 に示す。RUN5 を除き、印加電流密度の増加と共に各希土類の回収速度が増加することが確認された。

電解の経過につれてシリサイド相がどのように成長するかを検討するために、印加電流密度を一定(-8.3 mAcm⁻² または -9.1 mAcm⁻²)として電解時間を変化させて定電流電解を実施した(RUN2, 7~9)。図 3.2.3-20 に各電解中の電位経時変化を示す。電解後の Si 電極断面 SEM 像(図 3.2.3-21)から緻密相厚さおよびポーラス相厚さを求め、これらを通電量(C cm⁻²)に対してプロットしたところ(図 3.2.3-22)、緻密相、ポーラス相共に通電量に比例して厚さが増加することが確認された。また、図 3.2.3-23 に通電量一定(RUN2~4)の時の緻密相およびポーラス相厚さの印加電流密度依存性を示すように、緻密相、ポーラス相共に厚さに電流密度依存性は見られなかった。このことから、本電解条件の範囲内においては、同一のメカニズムにおいてシリサイド形成が進行することが示された。シリサイド形成メカニズムに関しては、緻密相及びポーラス相が、それぞれ Si 電極基板の外側及び内側に形成していることから、次のように考えられる。基板中から Si が拡散し、基板の外側に緻密なシリサイド相を形成しながら、基板内には Si が抜けたことによりポーラス相が形成する。これはシリサイド

中の Si の拡散が希土類の拡散よりも早いことを示唆すると考えられる。

平成 30 年度および上記の小規模シリサイド形成試験結果を基に工学規模シリサイド形成試験を実施した。小規模シリサイド形成試験では約 0.1~0.2g の Si 電極を用いたが、工学規模シリサイド形成試験では 3.150 g の Si 電極(図 3.2.3-6)を用いた。平成 30 年度に実施した定電位電解による希土類シリサイド形成試験[3]においては、電解中の電流値が電解時間と共に減少した。このことは、シリサイド相厚さが増加するに従ってシリサイド形成速度が減少することを示唆する。そこで、工学規模試験においては次のステップを繰り返すことで高いシリサイド形成速度を維持しながら長時間の電解を試みた。

- (1) 定電流電解による Ce シリサイド相形成($Ce^{3+} + 2Si + 3e^{-} \rightarrow CeSi_2$)
- (2) 約 1000 C 通電したところで電解を中断
- (3) 電解後の Si 電極を蒸留水で洗浄し、形成した Ce シリサイド相を Si 基板から剥ぎ取る
- (4) Ce シリサイド相を剥ぎ取った後の Si 電極を用いて(1)~(3)を 2 回繰り返す。

図 3.2.3-24 に定電流電解中の電位経時変化を示す。形成した Ce シリサイド相を剥ぎ取った後の Si 電極を用いた場合でも同様にシリサイド形成を継続できることが確認された。また、1 回目、2 回目および 3 回目の電解開始前の Si 電極の分極曲線を図 3.2.3-25 に示す。2 回目および 3 回目の電解開始前の分極曲線では、1 回目と比べて開回路電位が卑にシフトしていた。これは、剥ぎ取り切れなかった Ce シリサイドが Si 電極表面に残っていたためと考えられる。1 回目と 3 回目の分極曲線の傾きはほぼ等しく、形成した Ce シリサイドを剥ぎ取った後でも電極抵抗に大きな違いはないと考えられる。2 回目の分極曲線は電極抵抗が他よりも高いことを示唆するが、リード線を取り付けたワニ口クリップが Si 電極を強く挟んでいなかったためと考えている。ワニ口クリップのバネは高温下で弱くなることが考えられ、Si 電極とリード線の接触抵抗を小さく一定に出来るような電極構造の設計が工学装置開発における課題の一つであることが分かった。電解後の Si 電極外観写真を図 3.2.4-26 に示す。熔融塩浴中に浸漬していた部分で反応が一様に進行した様子が観察された。各電解後に Si 電極を蒸留水を入れたビーカーに浸すと、Ce シリサイド相が Si 基板から自動的に剥がれ落ちた。剥ぎ取った Ce シリサイドを XRD により分析したところ、 $CeSi_2$ が形成したことが確認された(図 3.2.2.16-c)。各電解後の Si 電極の重量増加量から電流効率を求めたところ、約 100 %と高い値であることが確認された(表 3.2.3-6)。

$$(\text{電流効率}\%) = (\text{重量増加}) / (Q/F/3/M_{Ce}) * 100 \quad (3.2.3-13)$$

ここで、Q は通電量、F はファラデー定数、 M_{Ce} は Ce の原子量である。試験終了後の Si 電極断面を SEM-EDX(図 3.2.3-27)で分析したところ、剥ぎ取り切れなかった厚さ 2 μm 程度のポーラス相が Si 電極表面に残留していることが確認された。一方、剥ぎ取り操作により回収した Ce シリサイド重量は、通電量から求まる理論 Ce シリサイド重量

の 1.1 倍であった。これは、剥ぎ取り操作により Si 基板の一部も一緒に剥がれ落ちていたことを意味する。

④ まとめ

平成 28 年度に実施した液体 Ga との各種材料試験結果に基づいて、平成 29 年度に工学規模 Ga 電解装置を設計・製作した。Ce をアクチニドの模擬として、Ce の電解回収試験を実施した結果、本電解装置により溶解度付近まで液体 Ga 中に回収可能(平均回収速度約 4.2×10^{-4} g-Ce s⁻¹、電極表面積あたり約 4.3×10^{-6} g-Ce s⁻¹ cm⁻¹)であることが示された。

小規模シリサイド形成試験結果より、希土類がシリサイドとして熔融塩中から高電流効率で回収可能であることが示された。また、各希土類の回収挙動(分離係数)の印加電流依存性や合金相成長挙動を明らかにした。

小規模シリサイド形成試験の結果に基づき、工学規模においてシリサイド形成試験を実施した。その結果、形成したシリサイドを剥ぎ取った後の Si 電極を繰り返し用いることが可能であり、これにより高い形成速度(電流密度)を維持しながらシリサイド形成を継続できることが明らかとなった。実プロセスにおいては、電解槽中に Si 電極を複数配置することで、電解槽当たりの希土類シリサイド回収速度を増大可能であると考えられる。今後は、電解槽中の Si 電極と陽極の配置の最適化が求められる。さらに、実プロセスで蒸留水を使用した工程は採用できないことから、付着塩の除去と共にシリサイド相を Si 電極から分離回収する手法を新たに開発する必要がある。具体的には、付着塩の除去には、金属燃料の乾式再処理において開発された固体陰極析出物の付着塩を蒸留分離する技術をそのまま適用可能であると考えられる。一方、Si 電極からのシリサイド相の分離回収には、付着塩を蒸留分離した後のシリサイドの性状に応じた、機械的な分離回収法の開発が求められる。

表3. 2. 3-1 小規模シリサイド形成試験条件

	LaCl ₃ (mol%)	CeCl ₃ (mol%)	PrCl ₃ (mol%)	NdCl ₃ (mol%)	SmCl ₂ (mol%)	EuCl ₂ (mol%)	GdCl ₃ (mol%)	Si (g)	電流 密度 (mA cm ⁻²)	通電量(C) [C cm ⁻²]
RUN1	0.30	0.59	0.29	0.96	0.28	0.03	0.03	0.130	-3.8	60[46.2]
RUN2								0.128	-8.3	60[50]
RUN3								0.150	-16.7	60[50]
RUN4								0.133	-33.3	60[50]
RUN5								0.119	-66.7	37.7[31.4]
RUN6								0.139	-40.0	60[40]
RUN7	0.36	0.64	0.29	1.06	0.31	0.03	0.03	0.202	-9.1	21.5[19.5]
RUN8								0.116	-8.3	31[25.8]
RUN9								0.141	-8.3	100[83.3]

表3. 2. 3-2 各RUN後に採取した熔融塩中の希土類濃度

塩中濃度 mol%	La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd
RUN1	0.23	0.43	0.26	0.69	0.23	0.03	0.02
RUN2	0.24	0.47	0.28	0.76	0.24	0.03	0.03
RUN3	0.23	0.45	0.27	0.70	0.22	0.03	0.02
RUN4	0.24	0.45	0.27	0.72	0.23	0.03	0.03
RUN5	0.28	0.55	0.32	0.88	0.24	0.03	0.03
RUN6	0.29	0.58	0.32	0.91	0.24	0.03	0.03

表3. 2. 3-3 各RUN後に得られたシリサイド中の希土類濃度比 (Ce基準)

シリサイド 中mol比 (Ce基準)	La	Pr	Ce	Nd	Sm	Eu	Gd
RUN1	0.15	0.38	1	1.26	0.02	-	0.02
RUN2	0.19	0.38	1	1.23	0.02	-	0.02
RUN3	0.21	0.39	1	1.22	0.02	-	0.02
RUN4	0.26	0.38	1	1.20	0.02	-	0.02
RUN5	0.32	0.36	1	1.17	0.07	-	0.03
RUN6	0.26	0.37	1	1.23	0.02	-	0.02

表3. 2. 3-4 各RUN後に得られた希土類の分離係数 (Ce基準)

分離係数 (Ce基準)	La	Pr	Ce	Nd	Sm	Gd
RUN1	3.47	1.60	1	1.26	94.04	3.24
RUN2	2.72	1.56	1	1.31	69.31	3.67
RUN3	2.41	1.54	1	1.29	79.40	3.39
RUN4	2.01	1.60	1	1.31	66.34	2.80
RUN5	1.60	1.63	1	1.37	21.58	1.81
RUN6	1.98	1.54	1	1.28	59.46	2.53

表3. 2. 3-5 各RUNにおける理論重量増加、重量増加および電流効率*

	理論重量 増加 (g)	重量増加 (g)	電流効率 (%)
RUN1	0.0296	0.032	110
RUN2	0.0295	0.030	102
RUN3	0.0295	0.030	102
RUN4	0.0296	0.030	102
RUN5	0.0187	0.003	1.8
RUN6	0.0296	0.030	102

*蒸留水で洗浄した際に剥がれ落ちた合金相をすべて回収できなかったため、電流効率が過少に評価されている。ただし、電解中の電位が-2.1 Vよりも卑な領域を推移していたことから、希土類シリサイド形成と共にLiSi_x形成も同時に進行していたと考えられ、RUN5では他のRUNよりも電流効率が低いと推察される。

表3.2.3-6 工学規模シリサイド形成試験結果

	電解開始前 Si重量 (g)	電解終了後 Si重量 (g)	剥ぎ取ったシリ サイド重量 (g)	通電量 (C)	電流効率 (%)
1回目	3.15	2.812	0.852	1060	100
2回目	2.812	2.637	0.616	920	99
3回目	2.637	2.286	0.833	1000	100



図3. 2. 3-1 工学規模電解槽に設置した電解浴

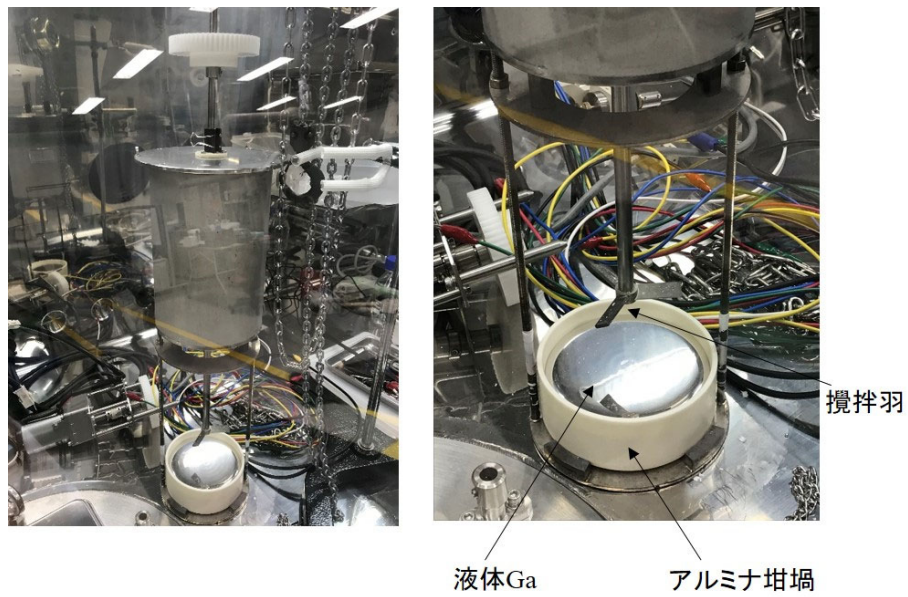


図3. 2. 3-2 液体Ga電極アセンブリ



図 3.2.3-3 液体 Ga 電極アセンブリで用いた攪拌羽
左：令和元年度試験、右：平成 30 年度試験



図 3.2.3-4 対極バスケットアセンブリ (電解試験終了後)

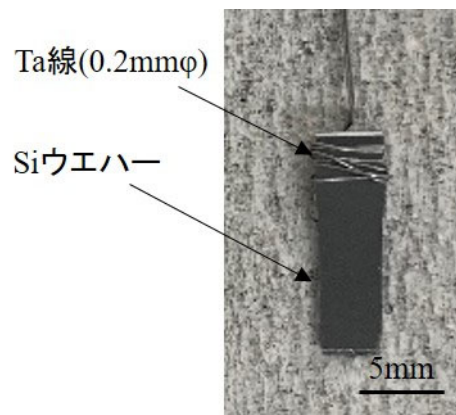


図 3.2.3-5 小規模シリサイド形成試験で用いた Si 電極

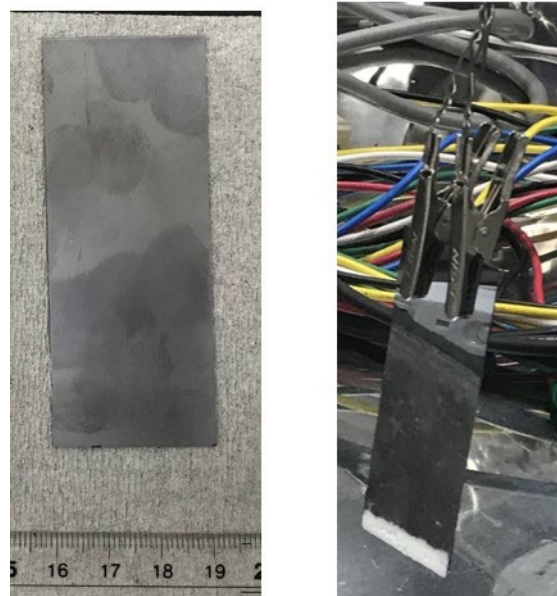


図 3.2.3-6 工学規模シリサイド形成試験で用いた Si 電極ウエハー(左)、
ワニロクリップで保持している様子(右)

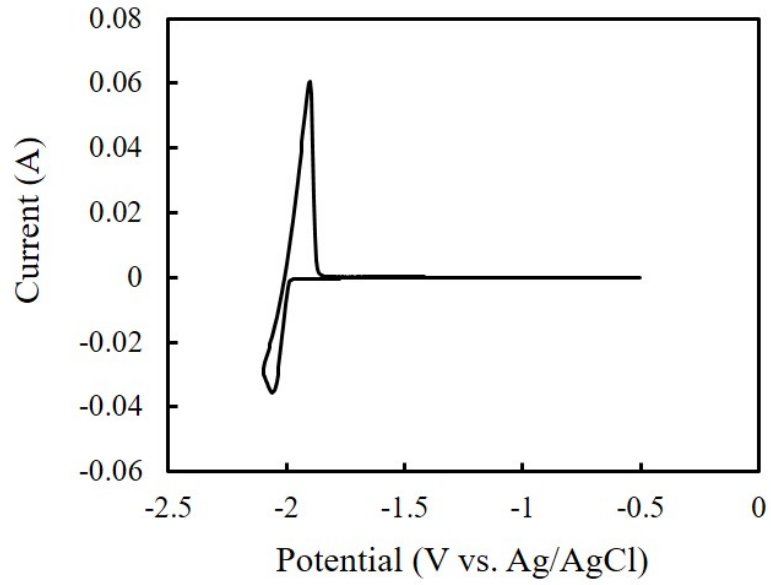


図 3.2.3-7 工学規模 Ga 電解槽 (溶融 LiCl-KCl-CeCl₃ 中)における Mo 線電極を用いたサイクリックボルタモグラム (走査速度 50 mVs⁻¹)

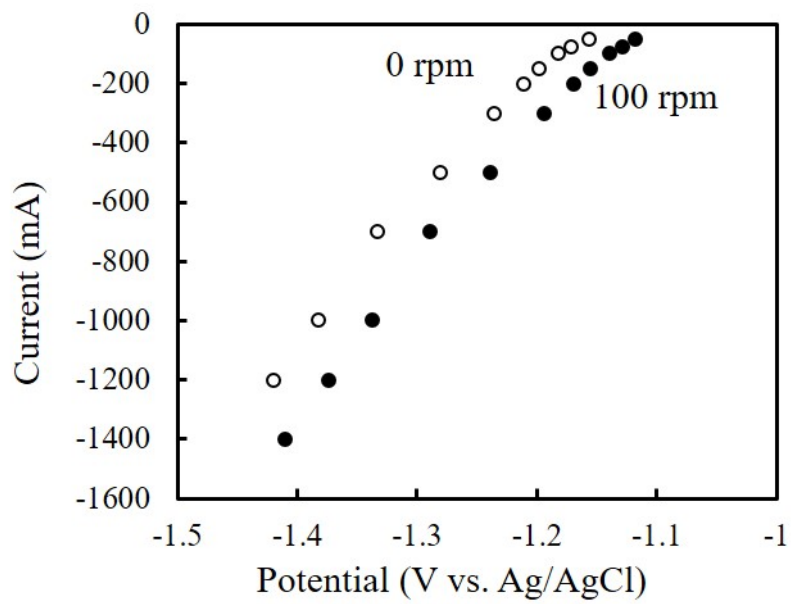


図 3.2.3-8 液体 Ga 電極アセンブリの分極曲線
○: 攪拌なし、●: 攪拌あり (100 rpm)

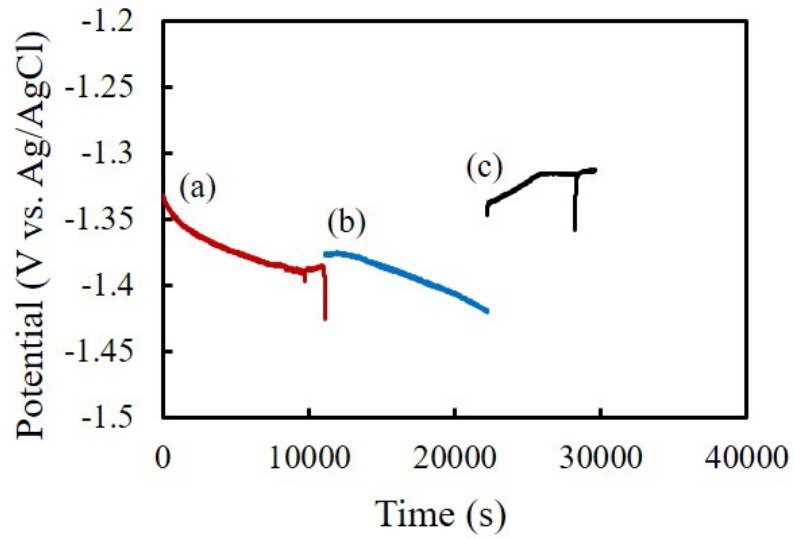


図 3. 2. 3-9 定電流電解時の液体 Ga 電極電位経時変化
印加電流値(a) -1 A、(b)-0.75 A、(c)-0.5 A。



液体Ga表面すべてが固相で覆われている

攪拌羽を引き上げた際に固相が液体Ga表面から剥がれた様子

図 3. 2. 3-10 定電流電解試験終了後に液体 Ga 電極アセンブリを引き上げた様子(左)、
攪拌羽を液体 Ga 相内から引き上げた様子(右)

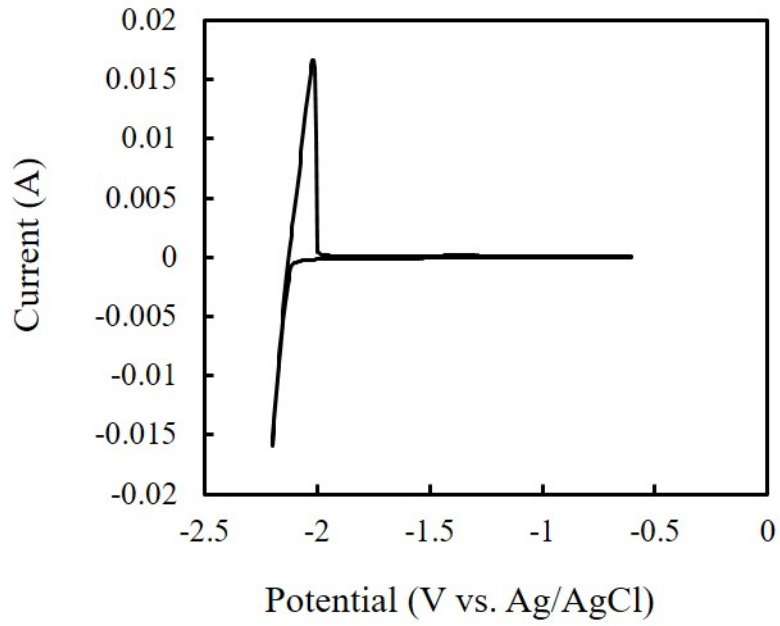


図 3.2.3-11 熔融 LiCl-KCl 中における Si 電極を用いたサイクリックボルタモグラム (走査速度 50 mVs^{-1})

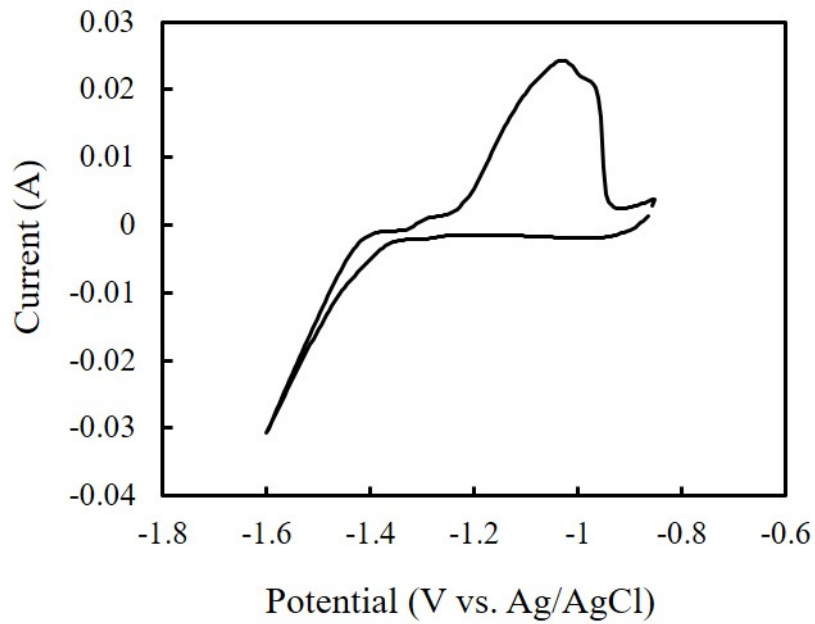


図 3.2.3-12 熔融 LiCl-KCl-RECl_x (RE = La, Ce, Pr, Nd, Eu, Sm, Gd) 中における Si 電極を用いたサイクリックボルタモグラム (走査速度 50 mVs^{-1})

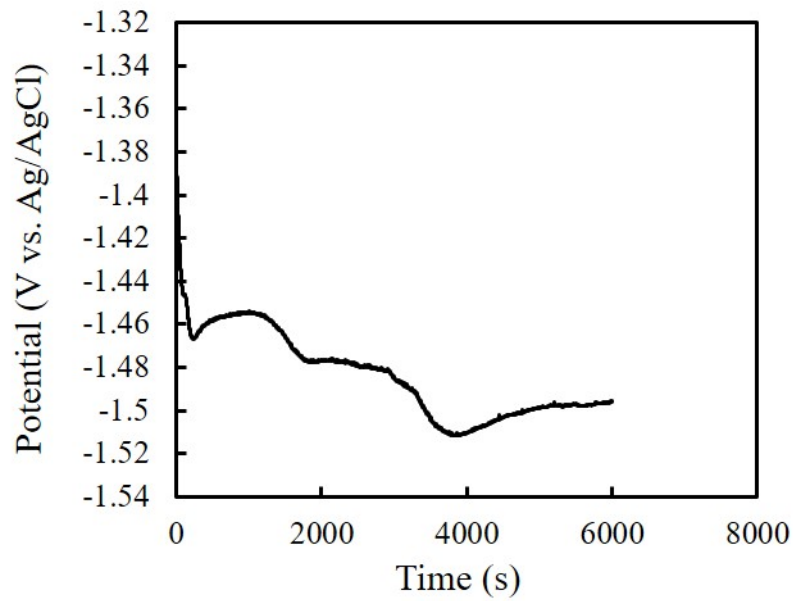


図 3.2.3-13 熔融 LiCl-KCl-RECl_x (RE = La, Ce, Pr, Nd, Eu, Sm, Gd) 中における定電流電解時 (-8.3 mAcm⁻²) の電位経時変化

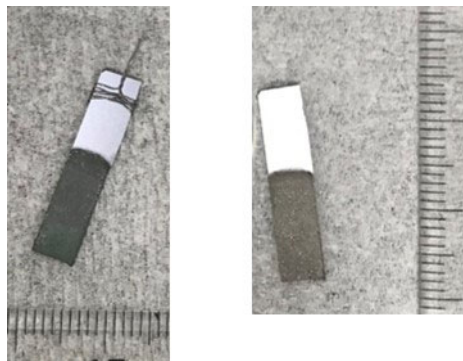


図 3.2.4-14 熔融 LiCl-KCl-RECl_x (RE = La, Ce, Pr, Nd, Eu, Sm, Gd) 中における定電流電解後 (-8.3 mAcm⁻²) に得られた Si 電極外観写真(左)、付着塩を蒸留水で除去した後の様子(右)

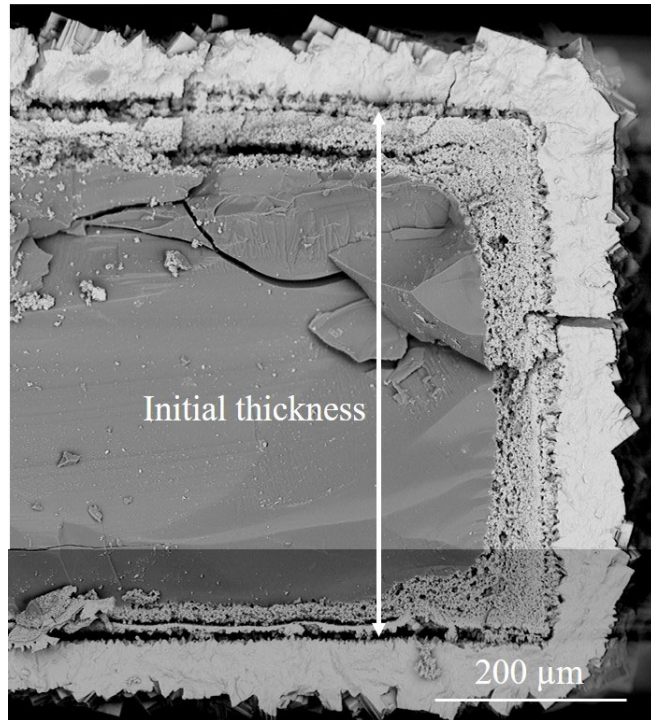


図 3.2.3-15 熔融 LiCl-KCl-RECl_x (RE = La, Ce, Pr, Nd, Eu, Sm, Gd) 中における定電流電解後 (-8.3 mAcm^{-2}) に得られた Si 電極破断面の SEM 像

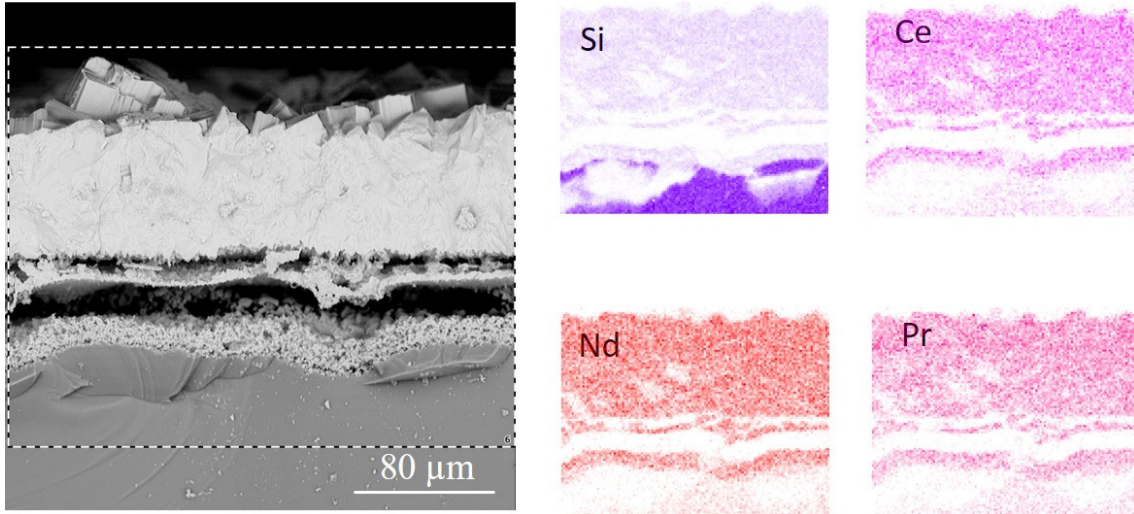


図 3.2.3-16 熔融 LiCl-KCl-RECl_x (RE = La, Ce, Pr, Nd, Eu, Sm, Gd) 中における定電流電解後 (-8.3 mAcm^{-2}) に得られた Si 電極破断面の SEM-EDX 分析結果

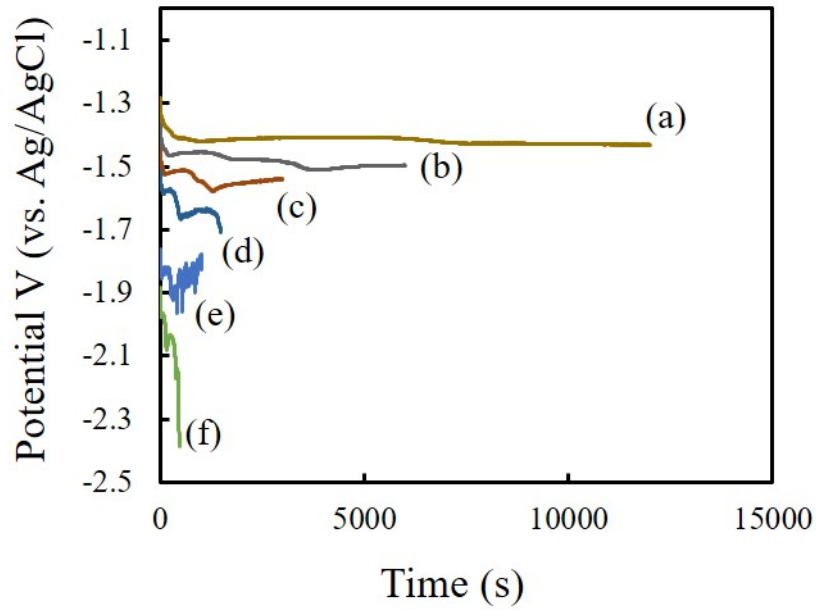


図 3.2.3-17 溶融 LiCl-KCl-RECl_x ($\text{RE} = \text{La, Ce, Pr, Nd, Eu, Sm, Gd}$) 中における定電流電解時の電位経時変化

(a) RUN1, -3.8 mAcm^{-2} 、(b) RUN2, -8.3 mAcm^{-2} 、(c) RUN3, -16.7 mAcm^{-2} 、
 (d) RUN4, -33.3 mAcm^{-2} 、(e) RUN6, -40.0 mAcm^{-2} 、(f) RUN5, -66.7 mAcm^{-2}

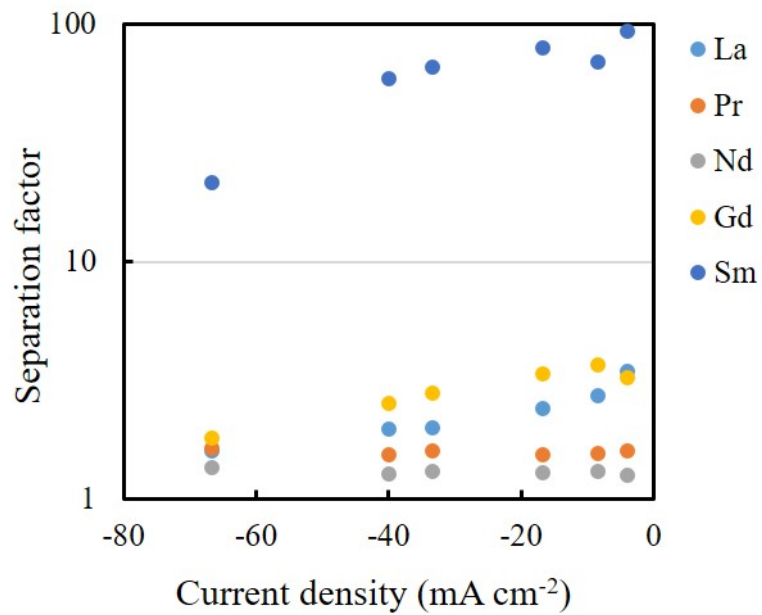


図 3.2.3-18 分離係数 (Ce 基準) と印加電流密度の関係

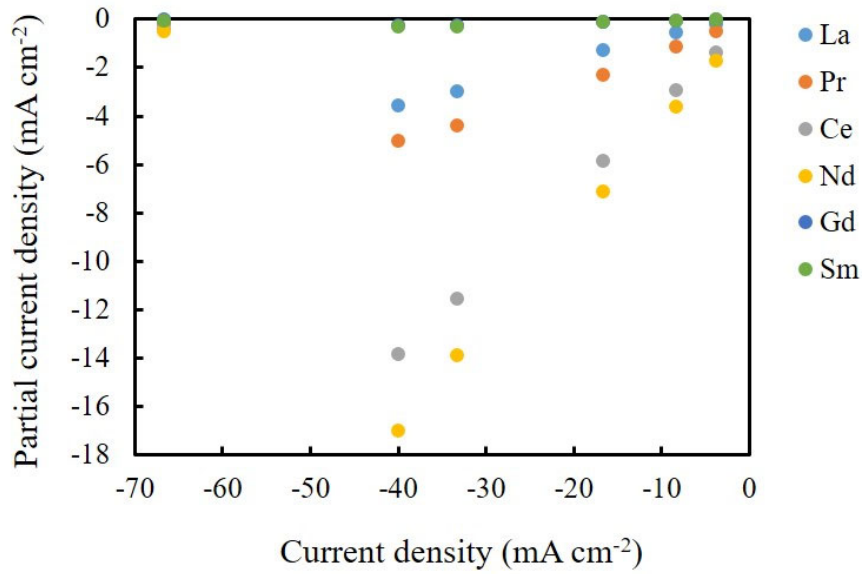


図 3. 2. 3-19 各希土類回収の部分電流密度の印加電流密度依存性

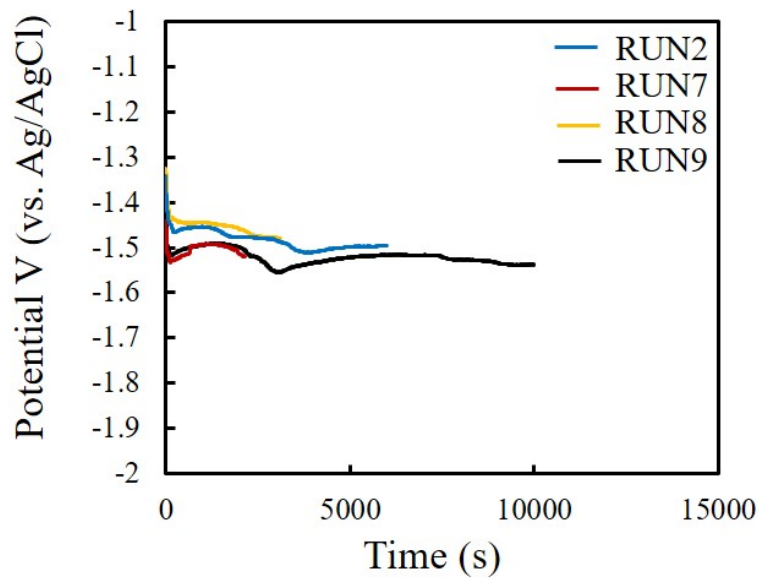


図 3. 2. 3-20 熔融 LiCl-KCl-RECl_x (RE = La, Ce, Pr, Nd, Eu, Sm, Gd) 中における定電流電解時の電位経時変化

印加電流密度 : -8.3 mAcm⁻² (RUN2, RUN8, RUN9) 、 -9.1 mAcm⁻² (RUN7)

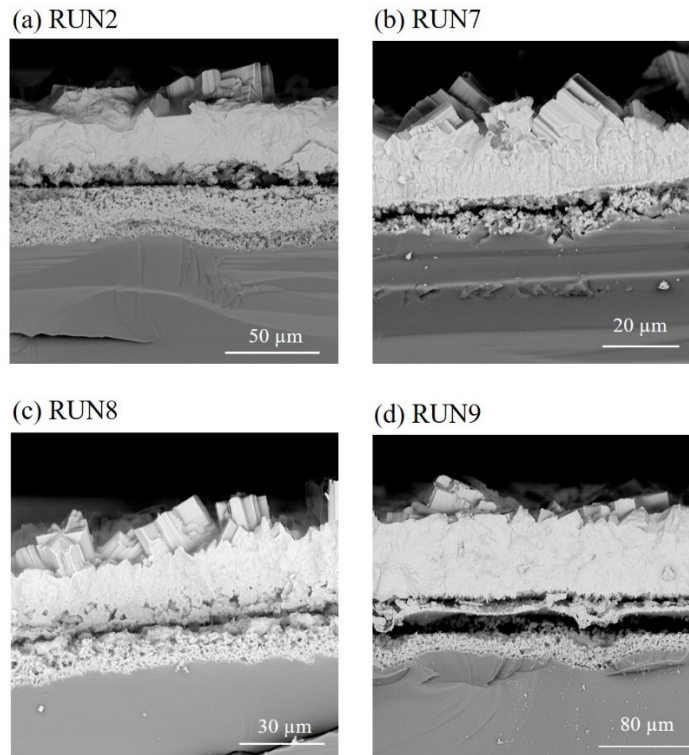


図 3.2.3-21 溶融 LiCl-KCl-RECl_x (RE = La, Ce, Pr, Nd, Eu, Sm, Gd) 中における定電流電解後に得られた Si 電極破断面 SEM 像

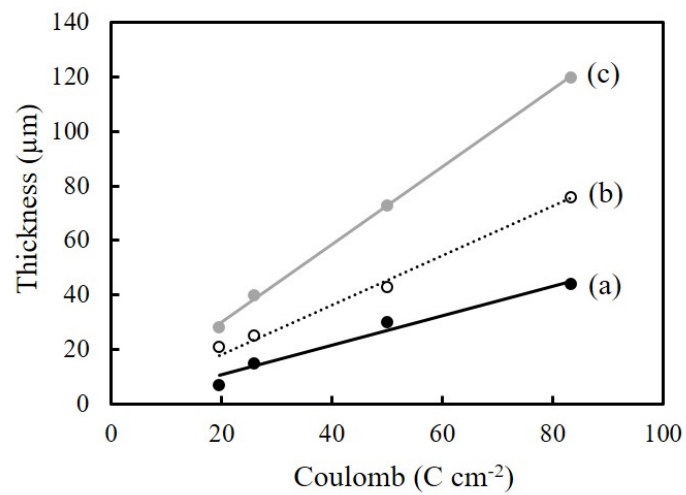


図 3.2.3-22 溶融 LiCl-KCl-RECl_x (RE = La, Ce, Pr, Nd, Eu, Sm, Gd) 中における定電流電解後に得られたシリサイド相厚さの通電量依存性
(a) ポーラス相厚さ、(b) 緻密相厚さ、(c) トータル厚さ

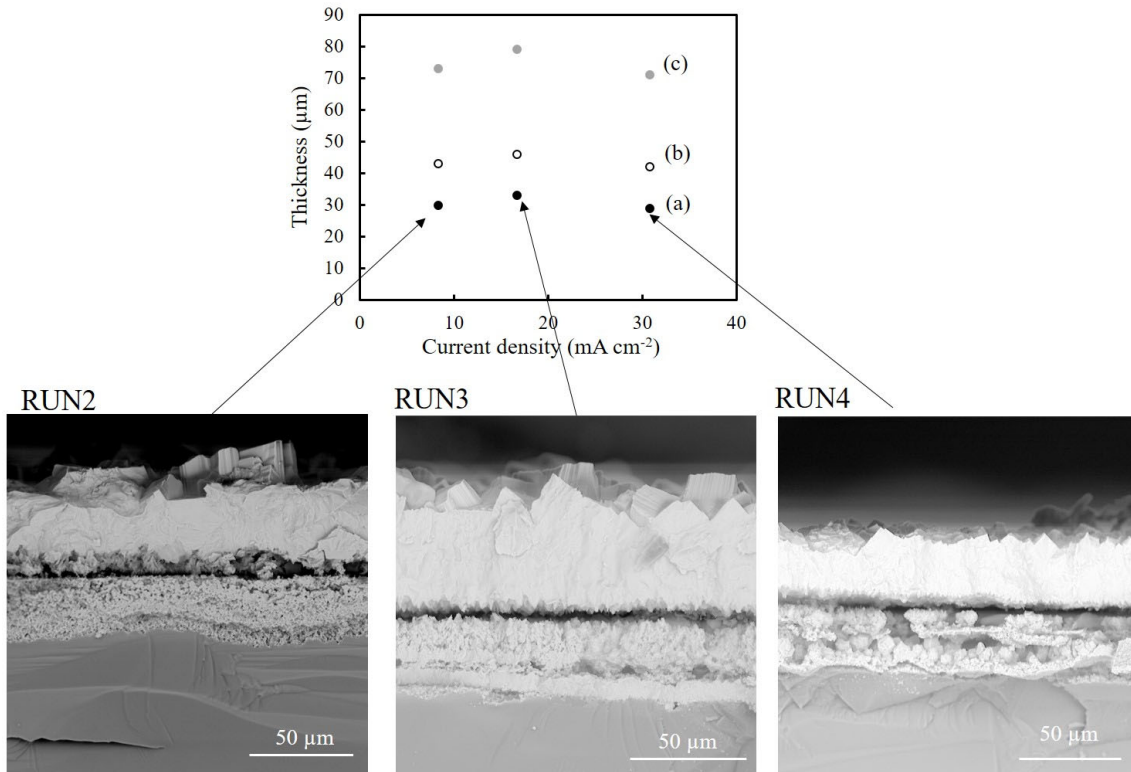


図 3.2.3-23 溶融 LiCl-KCl-RECl_x ($\text{RE} = \text{La, Ce, Pr, Nd, Eu, Sm, Gd}$) 中における定電流電解後に得られたシリサイド相厚さの印加電流密度依存性
(a) ポーラス相厚さ、(b) 緻密相厚さ、(c) トータル厚さ

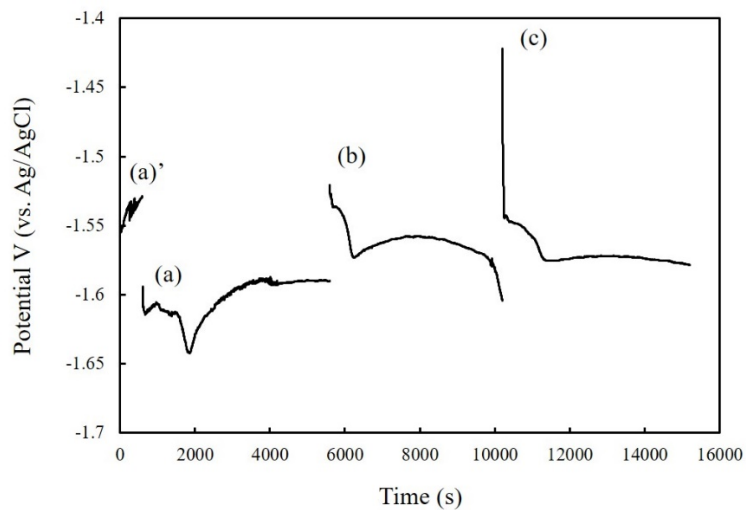


図 3.2.3-24 工学規模シリサイド形成試験における電位経時変化
(a) 1 回目、(b) 2 回目、(c) 3 回目
印加電流: -100 mA ((a)')、 -200 mA ((a), (b), (c))

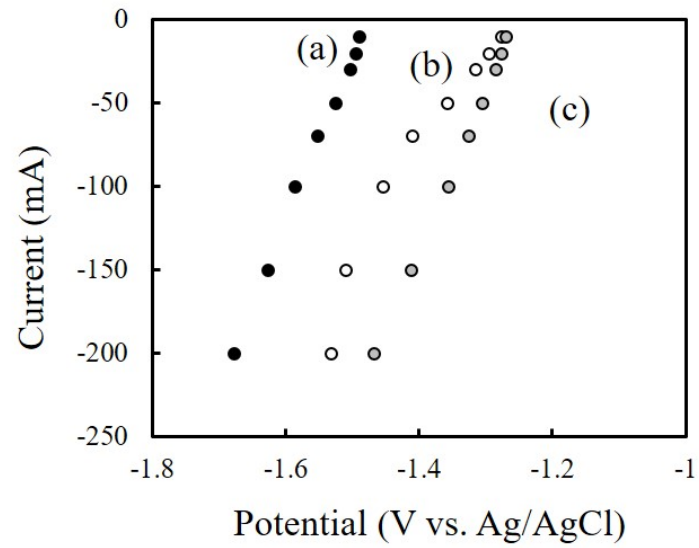


図 3. 2. 3-25 工学規模シリサイド形成試験前に実施した分極曲線
(a) 1 回目、(b) 2 回目、(c) 3 回目

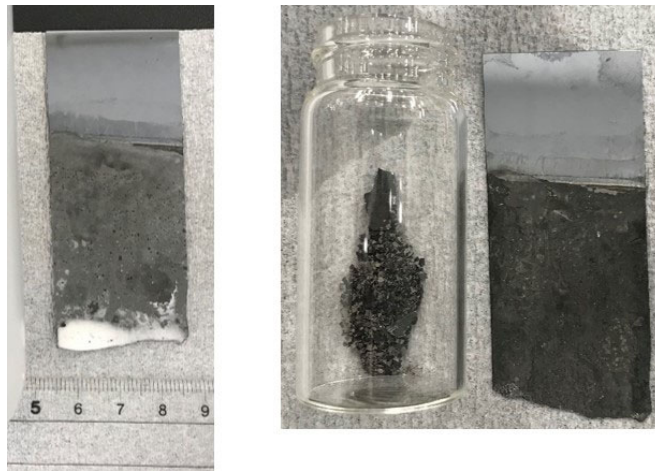


図 3. 2. 3-26 工学規模シリサイド形成試験 2 回目後に得られた Si 電極(左)、
Si 電極から回収したシリサイド(中央)、シリサイドを剥ぎ取った後の Si 電極(右)

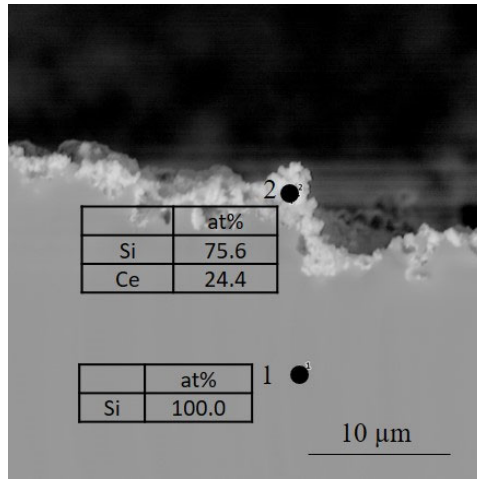


図 3. 2. 3-27 工学規模シリサイド形成試験終了後の Si 電極断面 SEM-EDX 分析結果

(2) 乾式再処理プロセス設計【平成 29 年度-令和元年度】

①背景、目的

既存の、並びに今後発生する長半減期 MA を高速炉で核変換して放射性廃棄物の長期的有害度を低減させるためには、軽水炉から高速炉までを含めた核燃料サイクルの様々な箇所から MA を含む物質を回収し、FP などの不純物を除去して燃料原料とするプロセスが必要となる。本研究では燃料原料を得るための分離システムとして乾式再処理プロセスを選択し、効率の高い MA 核変換システムである金属燃料を部分的あるいは全部に装荷した高速炉とを組み合わせた核燃料サイクル概念を提案している（図 3.2.3-28）。

現在から将来にわたる我が国の核燃料サイクル全体を見渡すと、核変換すべき MA を含む回収対象物質として、

- (a) 使用済軽水炉燃料の湿式再処理で発生する高レベル廃液
- (b) 使用済軽水炉（含プルサーマル）燃料
- (c) 高速炉使用済酸化燃料の再処理における MA 未回収物
- (d) 高速炉使用済金属燃料

が想定される。このうち、(a)については実廃液を用いた小規模試験により、含有 MA を低いロス率で塩化物を経て液体 Cd に溶解した金属の形態にまで転換できることが実証されている[8]。(b)については商用炉で照射された MOX 燃料を用いた小規模電解還元試験により、含有アクチニドの金属への転換および後続の電解精製による全アクチニド回収が可能であることが実証されている[9]。(c)については高速炉照射後の Np 核変換試験用酸化燃料を用いた小規模電解還元試験により、高速炉使用済酸化燃料中のアクチニドが金属に転換できることが示されている[9, 10]。一方、(d)については照射済 MA 含有高速炉金属燃料を用いた試験により成立性が実証されている[11]。

②平成 29 年度－平成 30 年度の実施内容と成果

平成 29 年度は上記の(a)～(b)に共通するプロセスである熔融塩電解精製工程にて、本研究で研究開発を進めている液体 Ga 電極によるアクチニド回収やヨウ素発生電解を採用した場合におけるアクチニド回収、廃棄物減容化技術の特徴、想定される生成物や中間回収物の組成・性状などを考慮した金属燃料乾式再処理プロセスフロー案を提示し、前後の工程との調整やマテリアルバランスを計算するために今後必要な基礎データや知見および評価・検討事項を整理した。また、核燃料サイクルに存在する様々な MA 含有物質を液体 Ga 電極を用いて処理する場合の MA/希土類 FP 間分離性能に関する検討例についての調査を行い、様々な核燃料サイクルシナリオへの対応可能性を検討するために今後実施すべき研究項目を整理した。

続いて平成 30 年度は、核変換すべき MA を含む回収対象物質として挙げられる、

- (a) 使用済軽水炉燃料の湿式再処理で発生する高レベル廃液
- (b) 使用済軽水炉（含プルサーマル）燃料

を受け入れて金属燃料を製造する場合のプロセスフローを構築し、受け入れ原料組成の範囲や分離プロセスの必要性を評価すると共に、マテリアルバランスを検討する上での課題を抽出した。

③令和元年度の実施内容と目的

以上を踏まえ、令和元年度は使用済 UO_2 燃料の湿式再処理に伴って生成する高レベル廃液中の MA を最大限燃焼させるため、高レベル廃液を乾式法で受け入れ可能な形態である塩化物に転換した上で軽水炉使用済 MOX 燃料の電解還元物と共に電解精製工程に導入し、これらから製造した MA 含有金属燃料をこれまでに本研究にて検討されてきた MA 消滅用の 2 種類の炉システムに装荷することで MA の消滅を図る場合について、電解精製における Pu や MA 回収に際してこれまで検討されてきた液体 Cd 陰極に代えて液体 Ga 陰極を用いる改良されたプロセスフローを含め、各炉心の初期装荷に必要な高レベル廃液量および軽水炉 MOX 量を算出すると共に、乾式法による MA 含有金属燃料製造に伴って生成する主要な廃棄物量も試算した。これにより、これらの原子炉システムにより MA 消滅を目指す場合における各種物量を評価する。

④検討結果

1) MA 消滅用炉システムの設定

これまでに本研究にて検討された MA 消滅用の 2 つの炉システム、すなわち、平成 30 年度に検討した MA 含有金属燃料を部分装荷した MOX 炉心高速炉、および令和元年度に検討した MA 含有金属燃料を全炉心に装荷した SiC/SiC 減速集合体分散装荷炉心の概要を表 3.2.3-7[3]、3.2.3-8 に示す。また、これらの炉心に装荷する MA 含有金属燃料の組成に基づく必要な核物質量を表 3.2.3-9[3]、3.2.3-10 に示す。

2) 各炉心の初期装荷に必要な原料量

表 3.2.3-9、3.2.3-10 に示す核物質量に基づき、これらの Pu、MA を確保するために必要な使用済 MOX 量および高レベル廃液量（ただし、再処理前の使用済 UO_2 燃料換算）を算出した。ここで、原料となる使用済 MOX および高レベル廃液の元素組成はそれぞれ表 3.2.3-11[12]、3.2.3-12[13]に示す。使用済 MOX は PWR あるいは BWR で燃焼度：33GWd/t まで使用した 1t-HM の MOX の 10 年冷却後の組成を ORIGEN2 により算出したものであり、PWR と BWR とで使用済燃料組成に大きな差はないことから、ここでは両者の平均値を用いた。一方、高レベル廃液の組成として、ORIGEN2 により算出した燃焼度：48GWd/t、1t-HM の高燃焼度 PWR- UO_2 燃料を 4 年冷却後に PUREX 法により再処理し、U と Pu の 99.5%を回収した後の高レベル廃液（約 400 リットル）に腐食性生物である Fe および溶媒のアルカリ洗浄廃液起源の Na を加えたものとした。なお、Np の大半を燃料側に回収する先進湿式法については検討していない。

次に、平成 30 年度に報告した前処理（電解還元、乾式分離）および電解精製プロセス[3]により、使用済 MOX および高レベル廃液量から MA 含有金属燃料を製造する工程について検討した。なお、現在想定されてる高レベル廃液の乾式分離では、アクチノイド元素や希土類 FP 等を塩化物に転換した後に、アクチノイド元素に随伴する希土類 FP の量を 1/10 に減らす、すなわち、除染係数=10 で希土類 FP を分離することを想定している[13]が、今回の検討では希土類 FP の分離を行わずに全量がアクチノイド元

素と共に電解精製槽に持ち込まれる場合についても検討した。また、使用済 MOX の電解還元では一部の FP が LiCl 塩浴に溶出するものの、溶出した FP は還元物への付着塩として最終的には後段の電解精製槽に持ち込まれると想定されている [8] ことから、電解還元に伴う FP の除染は想定していない。

これらの前処理済の原料を用いて製品となる MA 含有金属燃料の成分を回収する電解精製工程では、従来の液体 Cd 陰極に代えて Pu や MA と希土類 FP 元素との高い分離性能を期待できる液体 Ga 陰極を用いる希土類 FP 元素処理プロセスを採用した場合についても検討した。なお、液体 Ga 陰極を用いない従来のプロセスフローを図 3.2.3-29 に、液体 Ga 陰極を採用した新たなプロセスフローを図 3.2.3-30 に示す。この際、図 3.2.3-31 に示すように、液体 Ga 陰極を用いた場合のアクチノイド元素の希土類に対する分離係数は、U の部分電流が大きくなると、すなわち、塩中の U 濃度が高いと低下することが分かっている [3]。このため、液体 Ga 陰極で上記の高い分離性を確保するために塩中の Pu/U 比を 10 程度まで上げる必要があるものの、そもそも液体 Cd 陰極を使用する場合にも塩中の Pu/U 比を 3 程度まで上げる必要がある [15] ことから、電解精製の運転方法が大きく変わる訳ではない。

以上により算出した、表 3.2.3-9、3.2.3-10 に示す核物質質量を確保するために必要な使用済 MOX 量および高レベル廃液量（但し、再処理前の使用済 UO₂ 燃料換算）を表 3.2.3-13 に示す。なお、ここでは 2 つの原子炉システムに対し、乾式分離での希土類 FP 除染の有無、および電解精製時に使用する液体金属（Cd あるいは Ga）で場合分け、それぞれ 4 通りについて算出した。ここで、*~***の注釈を付したものは、高レベル廃液に含まれる希土類 FP の除染が不十分なために MA 含有金属燃料中の希土類濃度が制限値である 2.0wt.% に達したことにより、製品燃料中の MA 濃度を目標組成まで上げられないものである。特に、乾式分離で希土類 FP の除染を行わずに電解精製で液体 Cd 陰極を使用する場合には MA 装荷量が目標の 20% 程度にしかならないことから、MA の消滅を図る本来の目的に合致しない。逆に、電解精製で液体 Ga 陰極を用いる場合にはここでの希土類 FP の除染性能が十分に高いことから、乾式分離工程で無理に希土類 FP を除去する必要がなくなる。このことから、液体 Ga 陰極を用いる希土類 FP 元素処理プロセスを採用した場合には、乾式分離による希土類 FP 除去プロセスを削除した場合においても、受け入れ可能な高レベル廃液量を最大限に保つことができることが示された。

以上を踏まえ、MA 装荷量が目標に対して低すぎる 2 ケースおよび液体 Ga 陰極の使用により乾式分離工程での希土類除去が不要となる 2 ケースを除いた 4 ケースについて引き続き物質質量評価を行うこととした。なお、物質質量評価を行う 4 ケースについては、表 3.2.3-13 の右端に A~D の番号を付した。

3) 初期装荷に必要な原料処理に伴う物質収支

電解還元、乾式分離、および金属燃料の乾式再処理における各元素の物質収支予測は既に報告されている [14、16、17]。そこで、これらを基に 1t-HM の使用済 MOX 燃料を電解還元後に電解精製した場合、並びに 1t-HM の使用済 UO₂ 燃料の湿式再処理に伴

う高レベル廃液を乾式分離後に電解精製した場合における各元素の物質収支を乾式分離における希土類 FP 除染の有無も勘案して表 3.2.3-14~3.2.3-16 に示すよう想定した。ここで、TRU 廃棄物とは蒸留や燃料の射出鑄造時につぼやモールドに塗布するコーティング剤 (Y_2O_3 や ZrO_2) に起因する廃棄物であり、ドロス処理後に塩のフィルターろ過等により分離・回収された後に、セメント固化されるものである。このため、TRU 廃棄物の量は電解精製工程に持ち込まれる FP 量ではなく、製造される燃料成分中のアクチニド量に比例するものとして、金属燃料の電解精製で製造されるリサイクル燃料と TRU 廃棄物量の割合を基に算出した。このため、MOX の電解還元物を電解精製する場合では電解精製槽に持ち込まれる FP 量に対してアクチニド量が大いことから、TRU 廃棄物の発生量も FP 量に比べて大きくなる。また、電解精製工程で生ずるガラス結合ソーダライト固化体および乾式分離で生ずるガラス固化体については、その想定される FP 含有率および密度から各固化体の想定体積を算出し、表の下に記載した。

次に、この想定値に表 3.2.3-13 に示す必要な原料量を乗じて積算したものが表 3.2.3-17 である。基本的に MA 含有金属燃料を部分装荷した MOX 炉心高速炉 (A、B) に比べて MA 含有金属燃料を全炉心に装荷した SiC/SiC 減速集合体分散装荷炉 (C、D) の方が必要な核物質量が 4 倍程度多いため、ほぼすべての物量は後者の方が 4 倍程度に増えている。ただし、表 3.2.3-13 に記したように MA の消滅量は 4 倍少々多いことから、MA の消滅に関して両者で一見優劣はつけ難い。しかしながら、原子炉システムの運転サイクル長さと燃料交換バッチ数より、装荷した燃料の炉内での滞在期間は MA 含有金属燃料を部分装荷した MOX 炉心高速炉では 9 年、MA 含有金属燃料を全炉心に装荷した SiC/SiC 減速集合体分散装荷炉では 6 年となることから、MA の消滅速度に関しては SiC/SiC 減速集合体分散装荷炉の方が 1.5 倍速いと言える。一方、原料の調達に関しては、六ヶ所再処理工場の処理能力 (通常の UO_2 燃料で 800t-HM/年) を勘案すると、SiC/SiC 減速集合体分散装荷炉の初期装荷に必要な高レベル廃液を確保するためには六ヶ所再処理工場がフル稼働しても 5 年以上かかる。

また、発生する廃棄物の体積に着目すると、電解精製で Ga 陰極を使用した場合の方がガラス結合ソーダライト固化体体積と乾式分離ガラス固化体体積の和は大きくなる。これは、電解精製工程より排出される使用済塩の最終的な固化形態であるガラス結合ソーダライト固化体中の FP 含有率がガラス固化体に比べて小さいためである。このため、Ga 陰極の利用には乾式分離工程を削除できる可能性があるというメリットを有するものの、廃棄物の形態により固化体体積が変化することを念頭に置く必要がある。なお、ガラス結合型ソーダライト固化体の発生量低減と FP 含有率の向上は、今回検討した MA 消滅用の金属燃料製造に限らず、乾式プロセスで発生する廃棄物体積削減のために解決すべき重要な課題の 1 つである。

⑤まとめ

核変換すべき MA を含む回収対象物質として挙げられる、

- (a) 使用済軽水炉燃料の湿式再処理で発生する高レベル廃液

(b) 使用済軽水炉（含プルサーマル）燃料

を受け入れて金属燃料を製造する場合のプロセスフローを構築し、受け入れ原料組成の範囲や分離プロセスの必要性を評価した。さらに、MA 消滅を目指した2種類の原子炉システムに MA 含有金属燃料を装荷する際のマテリアルバランスを評価した。

なお、今回は以下に挙げる事項を詳細に検討していないことから、上記の手段で MA 消滅を図るにあたっては、これらについて更なる検討が必要である。

- 乾式分離工程の詳細：乾式分離工程では脱硝や塩素化の際に一部の FP が揮発すると思われる。今回の検討では揮発物はガラス固化体に転換されるものとして物質収支を求めたが、実際に揮発物がガラス固化体に転嫁できるかを確認する必要がある。
- 液体 Ga 陰極の実現可能性：液体 Ga 中のアクチニド元素の溶解度は非常に低く、例えば Pu は 0.58wt.% と報告されている[3]。溶解度以上にアクチニドを回収した際の分離挙動が不明であり、溶解度以下でアクチニドを回収する必要がある場合には溶媒となる Ga の必要量が増大する。また、高レベル廃液の乾式分離に際して希土類 FP の除染を行わない場合、Pu や MA に対して希土類が 10 倍近く多く存在する熔融塩中で電解を行う必要があるが、このような高濃度希土類の系で液体 Ga 陰極が期待通りの分離性能を発揮できるかは確認されていない。
- 余剰 U の対処法：MA 含有金属燃料は Pu と MA がそれぞれ 20wt.% 程度含まれることから、元の使用済 MOX 燃料および高レベル廃液中の U の 80~90% が余剰となる。このため、固体陰極で回収した大部分の U の処遇を検討する必要がある。
- ヨウ素の挙動：使用済 UO_2 燃料起源の高レベル廃棄液に関しては、PUREX 再処理に際してヨウ素の大部分が除去されていると思われる。また、使用済 MOX 中のヨウ素については、電解還元で先立つ脱被覆やペレット化の際に除去されるものと思われる。このため、今回の物質収支評価ではヨウ素の挙動は扱っていないが、仮に一部が電解精製槽に持ち込まれた場合には、使用済塩中の塩素と同様にガラス結合ソーダライトに転換されるものと思われる。なお、本事業による試験で明らかにされたように、ヨウ素を含む熔融塩の電解によりヨウ素を選択的に I_2 ガスとして発生させた後に、Cu との化合物として回収できる見込みが得られた。このように、ゼオライト処理前の使用済塩の電解によりヨウ素を選択的に回収し、核変換することも期待される。
- 乾式分離製品の電解精製工程への導入手段：乾式分離工程ではアクチニドを回収した液体金属（Bi など）が製品となり、これを後段の電解精製工程にて陽極として使用すると思われるが、本プロセスについては装置概念を含めて検討がなされていない。
- ガラス結合ソーダライト固化体中の FP 含有率が小さいため、使用済塩処理に伴って発生する廃棄物固化体体積が増大することが乾式プロセスの課題として挙げられている。このため、使用済塩中の FP の一部を FP 含有率が相対的に大きいガラス固化体に転換するなどの手法により、廃棄物の減容を目指す取り組みが必要である。

【3.2.3の参考文献】

- [1] 平成28年度 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「柔軟性の高いMA回収・核変換技術の開発」成果報告書 (2017)
- [2] 平成29年度 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「柔軟性の高いMA回収・核変換技術の開発」成果報告書 (2018)
- [3] 平成30年度 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「柔軟性の高いMA回収・核変換技術の開発」成果報告書 (2019)
- [4] M. R. Bermejo, F. de la Rosa, E. Barrado, Y. Castrillejo, J. Electroanal. Chem., 603 (2007) 81-95.
- [5] G. Cordoba and C. Caravaca, J. Electroanal. Chem., 572 (2004) 145.
- [6] 平成26年度 文部科学省 原子力システム研究開発事業「マイナーアクチニド/希土類分離性能の高い乾式処理プロセスの開発」成果報告書 (2015).
- [7] K. Amezawa, N. Yamamoto, Y. Tomii, Y. Ito, J. Electrochem. Soc., 145 (1998) 1986.
- [8] K. Uozumi, M. Iizuka, M. Kurata, T. Inoue, T. Koyama, M. Ougier, R. Malmbeck, and J.-P. Glatz, "Recovery of transuranium elements from real high-level liquid waste by pyropartitioning process," J. Nucl. Sci. Technol., 48, 303-314 (2011).
- [9] T. Kato, T. Murakami, K. Uozumi, T. Koyama, M. Ougier, A. Rodrigues, S. Van Winckel, R. Malmbeck, and J.-P. Glatz, "Actinides recovery from irradiated MOX fuel by pyrochemical reprocessing," Proc. Int. Conf. Global 2011, Paper No. 391320, December 11-16, Chiba, Japan (2011).
- [10] 魚住 浩一, 井上 正, M. Ougier, S. Van Winckel, J.-P. Glatz, 「高速炉照射済みMOX燃料の電解還元試験」, 日本原子力学会 2008 年秋の大会, P10, 高知工科大学 (香美), 2008 年 9 月 4 日.
- [11] M. Iizuka, T. Murakami, T. Kato, T. Koyama, A. Rodrigues, M. Ougier, and J.-P. Glatz, "Demonstration of Minor Actinide Recycle with Metal Fuel V. Recovery of Minor Actinides from Irradiated Metal Fuels by Pyrometallurgical Process," Proc. Global 2015, Paris, France, Sep. 20-24, 2015.
- [12] 安藤 良平, 高野 秀機, 「使用済軽水炉燃料の核種組成評価」, 日本原子力研究所 JAEA-Research, 99-004 (1999 年 2 月).
- [13] 井上 正, 倉田 正輝, 坂村 義治, 土方 孝敏, 木下 賢介, 魚住 浩一, 加藤 徹也, 「超ウラン元素の乾式分離技術の開発 -分離プロセスの改良と実証-」, 電力中央研究所 総合報告, T57 (1998 年 10 月).
- [14] 平成 20 年度 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, 「電解還元法を適用した酸化物燃料の乾式再処理に関する技術開発」 成果報告書, 電力中央研究所 (2009 年 3 月) .
- [15] K. Uozumi, M. Iizuka, T. Kato, T. Inoue, O. Shirai, T. Iwai, and Y. Arai, "Electrochemical behaviors of uranium and plutonium at simultaneous recoveries into liquid cadmium cathodes," J. Nucl. Mater., 325, 34-43 (2004).

- [16] 魚住 浩一、飯塚 政利、倉田 正輝、M. Ougier、R. Malmbeck、S. Van Winckel、「実高レベル廃液による脱硝・塩素化技術の実証」、電力中央研究所 研究報告、L07011 (2008年6月).
- [17] 木下 賢介、小山 正史、小林 嗣幸、尾形 孝成、飯塚 政利、土方 孝敏、坂村 義治、魚住 浩一、村上 毅、「金属燃料乾式再処理プロセスのマスバランス評価とプラント概念設計」、電力中央研究所 研究報告、L11009 (2012年7月).

表 3.2.3-7 MA 含有金属燃料を部分装荷した MOX 炉心仕様の抜粋
(平成 29 年度検討の最終炉心) [3]

項目		単位	基準炉心
炉心熱出力		MWt	1765
電気出力		MWe	750
運転サイクル長さ		ヶ月	18.0
燃料交換バッチ数	炉心	—	6
	径方向ブランケット	—	—
炉心高さ		mm	1000
軸方向ブランケット厚さ (上部/下部)		mm	200 / 250
炉心燃料体数	内側炉心	体	157
	外側炉心	体	57
	高濃度 MA 含有金属燃料	体	60
	合計	体	274

表 3.2.3-8 MA 含有金属燃料を全炉心に装荷した SiC/SiC 減速集合体分散装荷炉心仕様の抜粋

項目		単位	基準炉心
炉心熱出力		MWt	1765
運転サイクル長さ		日	709
燃料交換バッチ数 (炉心)		—	3
炉心高さ		mm	950
軸方向ブランケット厚さ (上部/下部)		mm	—
炉心燃料体数	内側炉心	体	78
	外側炉心	体	165

表 3.2.3-9 MA 含有金属燃料を部分装荷する MOX 炉心に装荷する
MA 含有金属燃料の元素量、組成、および照射後の元素量[3]

	装荷燃料		取り出し時の元素量	30 年冷却後の元素量	30 年冷却後の装荷時に対する変化	
	装荷量	濃度 (FP Zr を考慮)			増減量	増減率
単位	kg/炉心	重量分率	kg/炉心	kg/炉心	kg/炉心	—
U	5146	48.8%	4700	4780	-367	-7.1%
Np	547	5.2%	344	381	-166	-30.3%
Pu	2067	19.6%	2088	2036	-31	-1.5%
Am	1492	14.1%	945	960	-532	-35.7%
Cm	28	0.3%	78	24	-4	-14.6%
MA 合計	2067	19.6%	1367	1365	-702	-33.9%
FP	211	2.0%	—	—	—	—

表 3.2.3-10 MA 含有金属燃料を全炉心に装荷する SiC/SiC 減速集合体分散装荷炉心に
装荷する MA 含有金属燃料の元素量、組成、および照射後の元素量

	装荷燃料		取り出し時の元素量	30 年冷却後の元素量	30 年冷却後の装荷時に対する変化	
	装荷量	濃度 (FP Zr を考慮)			増減量	増減率
単位	kg/炉心	重量分率	kg/炉心	kg/炉心	kg/炉心	—
U	22975	52.7%	20394	20717	-2258	-9.8%
Np	1797	4.1%	948	1058	-740	-41.2%
Pu	8307	19.1%	8523	8193	-113	-1.4%
Am	5163	11.9%	2850	3017	-2146	-41.6%
Cm	100	0.2%	404	123	23	23.0%
MA 合計	7061	16.2%	4203	4198	-2863	-40.5%
FP	871	2.0%	—	—	—	—

表 3. 2. 3-11 対象とする使用済 MOX 燃料組成[12]

元素群 (元素群の合計重量分率)	元素	使用済燃料中の元素存在量 (g/1t-HM 新燃料)			使用済燃料中の 元素重量分率
		PWR-MOX	BWR-MOX	PWR、BWR 平均	PWR、BWR 平均
ウラン	U	923438	930835	927136	92.7%
超ウラン元素 (3.94wt.%)	Np	154.2	143.5	148.8	0.01%
	Pu	38402	31797	35100	3.51%
	Am	4168	3465	3817	0.38%
	Cm	352.2	285.6	318.9	0.03%
アルカリ金属 FP (0.30wt.%)	Rb	184.0	184.1	184.1	0.02%
	Cs	2848	2828	2838	0.28%
アルカリ土類 FP (0.20wt.%)	Sr	383.0	380.2	381.6	0.04%
	Ba	1654	1670	1662	0.17%
希土類 FP (0.93wt.%)	Y	222.1	221.9	222.0	0.02%
	La	1108	1107	1108	0.11%
	Ce	2163	2160	2161	0.22%
	Pr	1011	1011	1011	0.10%
	Nd	3491	3501	3496	0.35%
	Pm	14.3	12.9	13.6	0.00%
	Sm	956.6	950.6	953.6	0.10%
	Eu	163.7	163.1	163.4	0.02%
貴金属・遷移金属 FP (1.29wt.%)	Gd	151.2	164.8	158.0	0.02%
	Zr	2546	2543	2544	0.25%
	Mo	3074	3066	3070	0.31%
	Tc	782.3	779.6	781.0	0.08%
	Ru	2655	2653	2654	0.27%
	Rh	759.7	735.8	747.7	0.07%
	Pd	2601	2633	2617	0.26%
	Ag	199.9	199.0	199.5	0.02%
ハロゲン FP (0.03wt.%)	Cd	210.8	213.3	212.1	0.02%
	Sn	83.8	82.7	83.2	0.01%
その他の FP (0.06wt.%)	Br	16.3	16.1	16.2	0.00%
	I	289.9	286.0	288.0	0.03%
その他の FP (0.06wt.%)	Se	40.0	39.7	39.9	0.00%
	Sb	12.9	12.6	12.7	0.00%
	Te	522.3	518.2	520.2	0.05%

表 3. 2. 3-12 対象とする高レベル廃液組成[13]

元素群 (元素群の合計重量分率)	元素	mol	元素重量 (g)	元素重量分率
ウラン	U	19. 73	4694	7. 44%
超ウラン元素 (2. 30wt. %)	Np	3. 02	715. 5	1. 13%
	Pu	0. 22	52. 1	0. 08%
	Am	2. 41	583. 6	0. 93%
	Cm	0. 41	100. 1	0. 16%
アルカリ金属 FP (6. 53wt. %)	Rb	5. 48	473. 7	0. 75%
	Cs	27. 01	3646	5. 78%
アルカリ土類 FP (4. 93wt. %)	Sr	12. 56	1119	1. 17%
	Ba	17. 25	2370	3. 76%
希土類 FP (23. 4wt. %)	Y	6. 94	617. 7	0. 98%
	La	12. 49	1736	2. 75%
	Ce	24. 08	3393	5. 38%
	Pr	11. 20	1579	2. 50%
	Nd	39. 81	5770	9. 15%
	Pm	0. 32	46. 3	0. 07%
	Sm	7. 78	1163	1. 84%
	Eu	1. 51	231. 0	0. 37%
貴金属・遷移金属 FP (27. 9wt. %)	Gd	1. 57	244. 5	0. 39%
	Zr	53. 37	4976	7. 89%
	Mo	49. 13	4795	7. 60%
	Tc	10. 61	1050	1. 67%
	Ru	32. 78	3346	5. 31%
	Rh	5. 59	575. 3	0. 91%
	Pd	22. 45	2376	3. 77%
	Ag	1. 08	117. 5	0. 19%
	Cd	1. 81	202. 9	0. 32%
その他の FP (1. 27wt. %)	Sn	1. 13	137. 0	0. 22%
	Se	0. 98	78. 9	0. 13%
Te	5. 53	715. 8	1. 14%	
Fe (腐食生成物)	Fe	62. 67	3500	5. 55%
Na (溶媒洗浄廃液)	Na	550. 24	12650	20. 06%

表 3.2.3-13 各原子炉システムの初装荷燃料製造に必要な原料量

炉心	装荷 Pu 量 (kg)	目標装荷 MA 量 (kg)	乾式分離の有無	液体金属陰極材料	必要な軽水炉使用済 MOX 量 (t-HM)	必要な高レベル廃液を得るための軽水炉使用済 UO ₂ 燃料量 (t-HM)	取り出し後 30 年冷却後に想定される MA 減少量 (kg)	マスバランス検討における番号
MA 含有金属燃料部分装荷 MOX 炉心	2067	2067	あり	Cd	57	1099*	605	A
			あり	Ga	57	1299	699	
			なし	Cd	59	106**	135	
			なし	Ga	57	1299	699	B
MA 含有金属燃料炉心 (SiC 減速)	8307	7061	あり	Cd	230	4329	2852	C
			あり	Ga	230	4329	2852	
			なし	Cd	236	425***	650	
			なし	Ga	230	4329	2852	D

*：希土類不純物の制限値のため、MA 濃度は目標の 19.6wt.% に対し 16.9wt.% にしかならず

**：希土類不純物の制限値のため、MA 濃度は目標の 19.6wt.% に対し 3.8wt.% にしかならず

***：希土類不純物の制限値のため、MA 濃度は目標の 16.2wt.% に対し 3.7wt.% にしかならず

表 3.2.3-14 乾式分離での希土類 FP の除染係数=10 を想定した場合での
乾式分離製品の電解精製後の各元素の想定分布量
(kg/1t-HM の使用済燃料 UO₂ 燃料から生ずる高レベル廃液)

元素 (群)	製品側	保管	廃棄物側			
	リサイクル 燃料	ヒール・ス クラップの 一部	金属廃棄物	ガラス結合 ソーダライ ト固化体	TRU 廃棄物	乾式分離で の廃棄物
U	4.20	0.34	0.00	0.01	0.00	0.14
TRU	1.32	0.08	0.00	0.00	0.00	0.05
アルカリ 金属 FP	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	4.12
アルカリ 土類 FP	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	3.49
希土類 FP-1 (Y, Eu, Sm)	0.00	0.00	0.00	0.20	0.01	1.81
希土類 FP-2 (Ce, Pr, Nd, Pm)	0.09	0.01	0.00	0.96	0.00	9.73
希土類 FP-3 (La, Gd)	0.00	0.00	0.00	0.19	0.00	1.79
貴金属&遷 移金属 FP (Zr 以外)	0.00	0.14	1.27	0.00	0.00	8.81
Zr	0.48	0.02	1.99	0.00	0.12	2.49
カルコゲン FP	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.72
上記合計	6.10	0.59	3.26	1.36*	0.13	33.14**

* : ガラス結合ソーダライト固化体の体積は 11.9 リットル
(FP 濃度=5.7wt.%, 密度=2.0 を想定)

** : 乾式分離で生ずるガラス固化体の体積は 165.7 リットル
(FP 濃度=10.0wt.%, 密度=2.0 を想定)

表 3.2.3-15 使用済 MOX の電解還元生成物の電解精製後の存在量
(kg/1t-HM の使用済 MOX 燃料)

元素 (群)	製品側	保管	廃棄物側		
	リサイクル燃料	ヒール・スクラップの一部	金属廃棄物	ガラス結合ソーダライト固化体	TRU 廃棄物
U	854.69	70.17	0.46	1.57	0.00
TRU	37.03	2.27	0.00	0.09	0.00
アルカリ金属 FP	0.00	0.00	0.00	3.02	0.00
アルカリ土類 FP	0.00	0.00	0.00	2.04	0.00
希土類 FP-1 (Y, Eu, Sm)	0.00	0.00	0.00	1.34	1.72
希土類 FP-2 (Ce, Pr, Nd, Pm)	0.56	0.03	0.00	6.08	0.00
希土類 FP-3 (La, Gd)	0.03	0.00	0.00	1.24	0.00
貴金属&遷移金属 FP (Zr 以外)	9.33	1.03	0.00	0.00	0.04
Zr	77.77	3.28	0.00	0.00	19.25
カルコゲン FP	0.00	0.00	0.00	0.57	0.00
上記合計	979.42	76.78	0.46	15.95*	21.01

* : ガラス結合ソーダライト固化体の体積は 136.3 リットル
(FP 濃度=5.7wt.%, 密度=2.0 を想定)

表 3.2.3-16 乾式分離での希土類 FP の除染を想定しない場合での
乾式分離製品の電解精製後の各元素の想定分布量
(kg/1t-HM の使用済燃料 UO₂ 燃料から生ずる高レベル廃液)

元素 (群)	製品側	保管	廃棄物側			
	リサイクル 燃料	ヒール・ス クラップの 一部	金属廃棄物	ガラス結合 ソーダライ ト固化体	TRU 廃棄物	乾式分離で の廃棄物
U	4.20	0.34	0.00	0.01	0.00	0.14
TRU	1.32	0.08	0.00	0.00	0.00	0.05
アルカリ 金属 FP	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	4.12
アルカリ 土類 FP	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	3.49
希土類 FP-1 (Y, Eu, Sm)	0.00	0.00	0.00	1.97	0.01	0.04
希土類 FP-2 (Ce, Pr, Nd, Pm)	0.89	0.05	0.00	9.62	0.00	0.22
希土類 FP-3 (La, Gd)	0.05	0.00	0.00	1.89	0.00	0.04
貴金属 & 遷 移金属 FP (Zr 以外)	0.00	0.14	1.27	0.00	0.00	8.81
Zr	0.48	0.02	1.99	0.00	0.12	2.49
カルコゲン FP	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.72
上記合計	6.94	0.64	3.26	13.50*	0.13	20.11**

* : ガラス結合ソーダライト固化体の体積は 118.4 リットル
(FP 濃度=5.7wt.%, 密度=2.0 を想定)

** : 乾式分離で生ずるガラス固化体の体積は 100.5 リットル
(FP 濃度=10.0wt.%, 密度=2.0 を想定)

表 3. 2. 3-17 MA 含有金属燃料を部分装荷した MOX 炉心高速炉および MA 含有金属燃料を全炉心に装荷した SiC/SiC 減速集合体分散装荷炉の
初期装荷に必要な原料量並びに MA 含有金属燃料製造に伴って生ずる主な廃棄物量

ケース	MOX 量 (t-HM)	HLLW 量 (t-HM の UO ₂ 燃 料再処理 に伴う廃 液)	乾式分離 での希土 類の DF	電解精製 の液体金 属陰極	リサイク ル燃料 (t)	ヒール・ スクラッ プの一部 (t)	金属廃棄 物 (t)	ソーダラ イト固化 体 (t)	TRU 廃棄物 (t)	乾式分離 での廃棄 物 (t)	ガラス結 合ソーダ ライト固 化体体積 (m ³)	乾式分離 ガラス固 化体体積 (m ³)
A	57	1099	10	Cd	62.5	5.0	3.6	2.4	1.3	37.6	21.1	182.1
B	57	1299	1	Ga	64.8	5.2	4.3	18.4	1.4	26.1	161.6	130.6
C	230	4329	10	Cd	251.7	20.2	14.2	9.6	5.4	148.3	83.8	717.4
D	230	4329	1	Ga	255.3	20.4	14.2	62.1	5.4	87.0	544.8	435.2

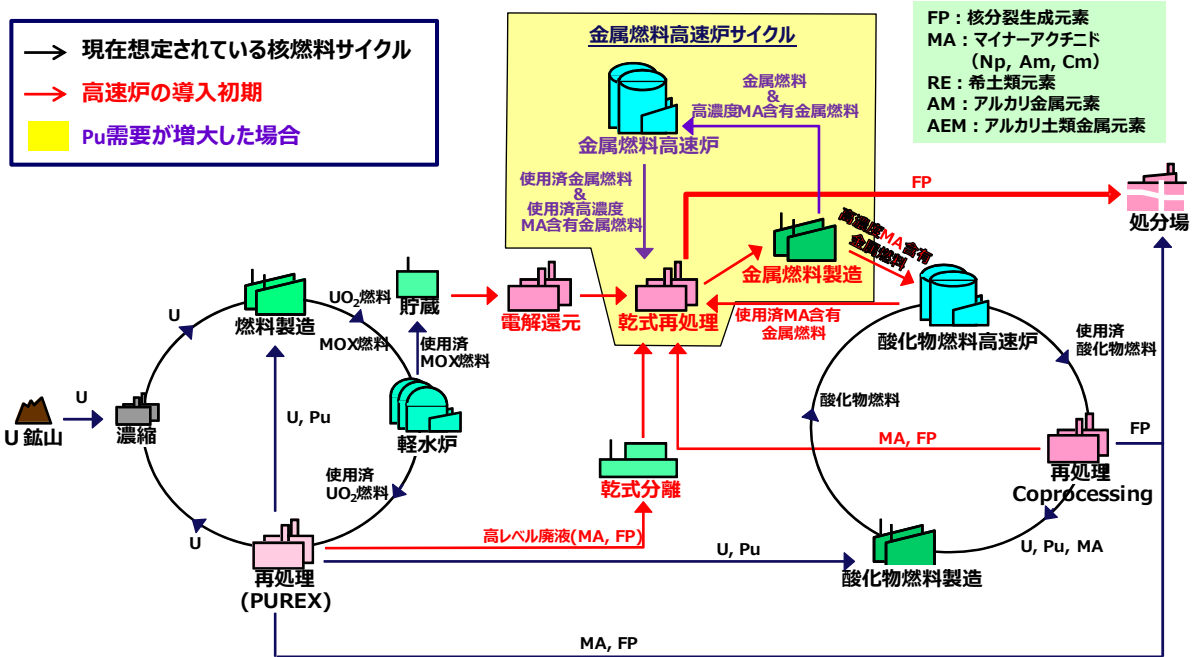


図 3. 2. 3-28 本研究で提案する柔軟性の高い MA 回収・核変換システム の概念

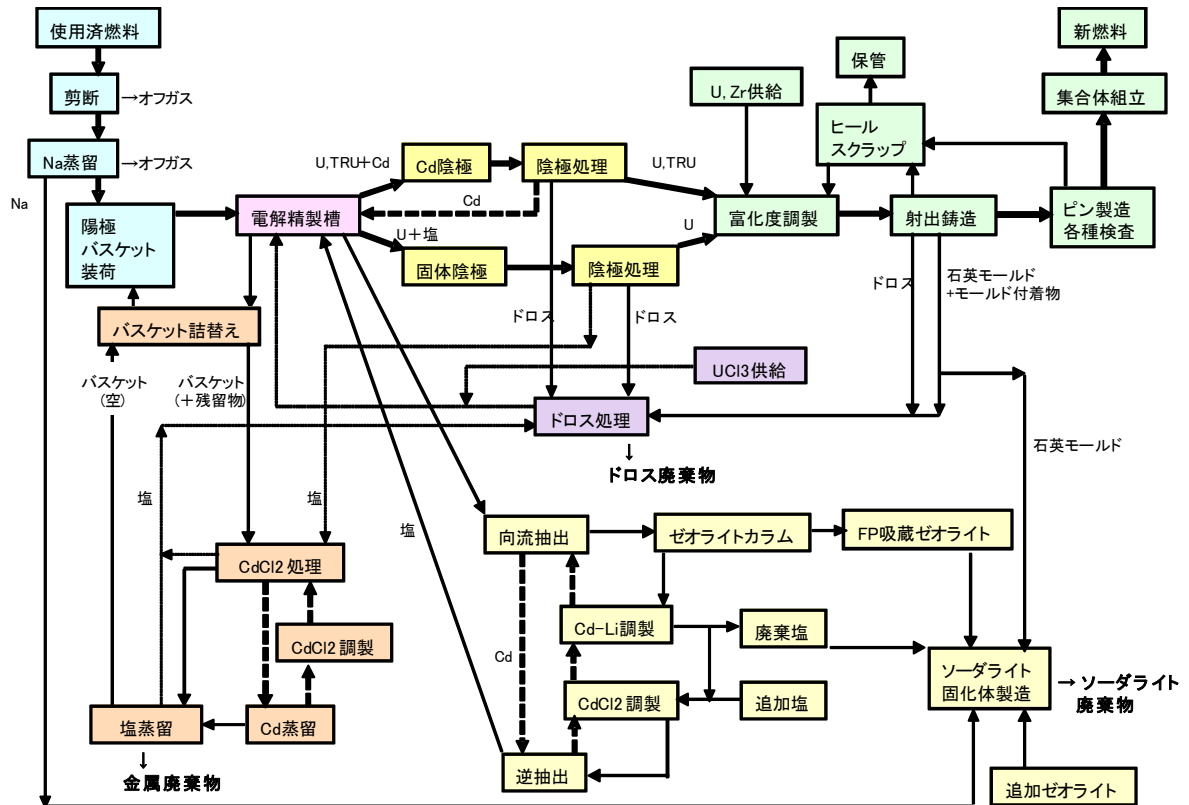


図 3. 2. 3-29 従来の U-Pu-Zr 燃料乾式再処理プロセスフローシート

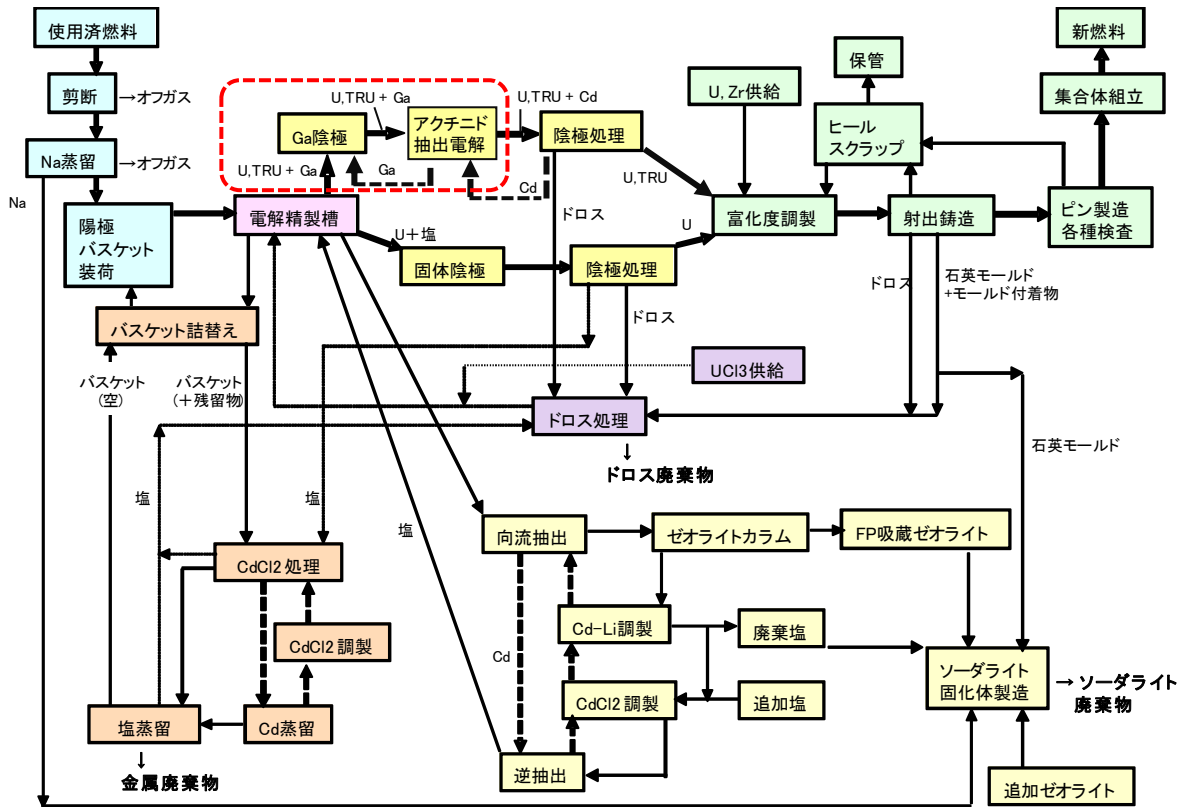


図 3.2.3-30 液体 Ga 陰極を用いた U-Pu-Zr 燃料乾式再処理プロセスフローシート
(赤破線部分を更新している)

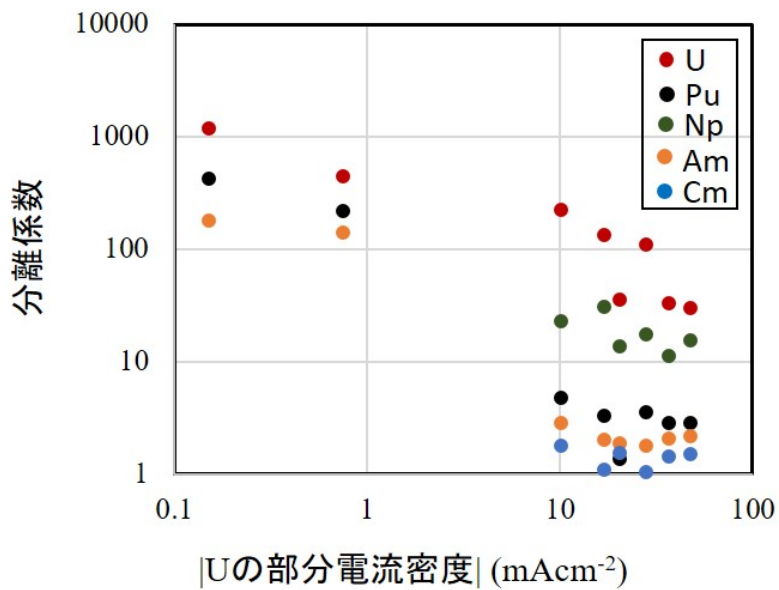


図 3.2.3-31 溶融 LiCl-KCl 塩/液体 Ga 系におけるアクチニド元素の Ce に対する分離係数[6]

3.3 MA回収・核変換シナリオとPu/MA収支の検討【平成28年度-令和元年度】

3.3.1 背景、目的

我が国では、現在から将来の核燃料サイクルとして、軽水炉によるUO₂燃料の利用を主とし、一部でMOX燃料の利用も進めながら、酸化燃料高速炉および湿式再処理を導入の導入を図ることで、Puマネジメントを図りながら高速炉サイクルへ移行することを基本とする検討がなされてきた[1]。一方で、核燃料サイクルを取り巻く状況はその時々で変化し、社会情勢や技術開発の進捗度、国際動向などの影響によって求められるリサイクル性能は変化を続けている。例えば、最終処分場に与える空間的、時間的な負担を軽減しながら核拡散抵抗性を向上させることを目的とするMAマネジメント技術[2]に世界的な注目が集まった結果、将来の核燃料サイクルでは、MAをリサイクルすることが必須の特性となり、現在ではUやPuだけでなくMAも核燃料サイクルで取り扱われるべき物質に加えられている。さらに近年、これまでなだらかな上昇または維持を続けてきた軽水炉による発電容量が大きく変化している。また、本研究開始後には、高速増殖原型炉「もんじゅ」の廃炉が決定されるなど、高速炉や再処理施設の導入時期や導入ペースもこれまで以上に不透明感を増している。

金属燃料高速炉サイクルは、優れた炉心特性や経済的な小型再処理施設の成立性といった特長により、将来の情勢変化に対する対応性に高いポテンシャルを有すると評価されているものの[1]、これまでの金属燃料サイクルの検討では、酸化燃料高速炉など他の炉概念とは切り離して、金属燃料高速炉のみが本格導入されることを前提とした検討が中心とされてきた。一方で、これまで以上に不確実性が高まっている将来の核燃料サイクルの検討にあたっては、高速炉燃料サイクルが本格導入された平衡期だけでなく、軽水炉からの移行期または並存期に想定される様々な不確実性にも対応することが重要となる。その対策の1つとして、本研究ではこれまで燃料製造や炉心の安全特性の観点からMA添加率の上限とされてきたおよそ5wt%[3]を大幅に上回る高濃度MA含有金属燃料による新たなMAリサイクル手法について検討を行っている。このような高濃度MA含有金属燃料を高速炉の炉心の一部または全部に装荷する場合のMA核変換特性と炉心安全特性が明らかにされれば、高速炉導入期に予想される燃料形態の不確かさや高速炉の導入規模、さらにMA核変換技術の実用化時期といった不確定要素に対し、より柔軟に対応可能なMAリサイクルシステムが構築できると考えられる。

ここでは、将来想定される酸化燃料高速炉や金属燃料高速炉の導入シナリオに対し、本研究で提案している高濃度MA含有金属燃料による新たなMAリサイクル手法の成立性を定量的に示すことを目的に、別項目(3.1および3.2)で実施されたMA回収性能や核変換量を踏まえたPuおよびMAの物質収支評価を行うことを目的とする。

3.3.2 平成28年度-平成30年度の実施内容と成果

平成28年度には、様々な核燃料サイクルシナリオにおけるマテリアルバランスを評価する際に必要とされる既存軽水炉や将来導入が予測される酸化燃料高速炉および金属燃料高速炉の運転条件や燃料組成、燃焼度、装荷量および取り出し量に関する公開情報を調査し、取りまとめた。また、今後取り扱われるべきPuやMAの蓄積量評価に必要な国内軽水炉の設置状況や使用済燃料貯蔵量の最新データも整理した。

平成 29 年度には、国内における燃料サイクルシナリオの検討例を調査した。その結果、福島第一原子力発電所の事故後の原子力発電を取り巻く状況を踏まえ、原子力発電容量が大幅に低減された場合であっても、

- ・ 高速炉の導入によって使用済燃料をリサイクルすることで、U の累積需要量を大幅に削減できる。
- ・ Pu や MA 元素の蓄積量も低減し、放射性廃棄物の減容化や有害度の低減、処分場面積の縮小など廃棄物処分の負担軽減の効果がある。

と評価されていることが明らかとなった。これらの検討結果や 2015 年 7 月に経済産業省が公表した「長期エネルギー需給見通し」を踏まえ、本研究においても原子力発電の設備容量として、上記の事故以前に比べ 3 分の 2 程度に低減された 32GWe（稼働率 75%と想定）に相当する「減原子力シナリオ」について検討を行うこととした。

高速炉燃料サイクルでは、多様な燃料を受け入れることが求められることから、湿式再処理プロセスおよび使用済燃料組成などのサイクル条件の違いによる炉心特性への影響やマルチリサイクルを想定した炉心特性評価を行った。その結果、湿式再処理条件として、六ヶ所再処理を想定した場合には、MOX 燃料中に Np が含まれないため、高濃度 MA 含有金属燃料を装荷した MOX 燃料炉心による MA 核変換量は約 40%低下するが、冷却材ナトリウムボイド反応度などの炉心特性が改善する等のメリットがあり、炉心成立性の観点で問題はない。また、高濃度 MA 含有金属燃料に、使用済軽水炉 MOX 燃料の再処理回収組成や多重リサイクル組成などを使用した場合の炉心特性への影響を評価し、大きな影響はないことを確認した。高濃度 MA 含有金属燃料をリサイクルすると Pu-238 の蓄積によって崩壊熱が増加していくが、Cm-244 や Am-241 による崩壊熱のリサイクルごとの変化は大きくはなく、多重リサイクルを想定した場合でも初期燃料の 2 倍程度に抑えられることが確認された。なお、炉心燃焼特性の観点だけでなく、多重リサイクルにおける湿式再処理による MA 回収条件の変動を考慮しても、崩壊熱の変化に過大な影響は生じないことを平成 30 年度に確認した。また、同燃料による炉心特性への影響も顕著ではなく、成立性のある炉心が構築できるなど、幅広い想定条件の受入れ燃料に対して、高濃度 MA 含有金属燃料装荷・MOX 燃料炉心が成立することを確認できた。

平成 30 年度には、軽水炉や高速炉の運転条件、燃料組成、装荷量等に関する公開情報の調査結果および高濃度 MA 含有金属燃料装荷・MOX 燃料炉心の 3 次元燃焼解析結果に基づき、原子力発電容量が 2030 年度時点における総発電量の 20-22%（～32GWe）を、その後も維持されるシナリオにおいて、高濃度 MA 含有金属燃料装荷・MOX 燃料高速炉を導入する際の Pu および MA のマテリアルバランス評価を行った。その結果、六ヶ所再処理工場並みの 800t/年規模の湿式再処理によって回収される Puf 量とバランスする高速増殖炉の導入規模はおおよそ 11.6GWe であり、10 年ごとに 2.0GWe～3.3GWe のペースで増設・導入する場合、導入完了までにおおよそ 60 年～40 年を要する（図 3.3-1(a), (b)）。また、このペースで増設・導入する MOX 燃料高速炉に装荷する高濃度 MA 含有金属燃料の Puf を調達するには、18.7t/年～30.9tHM/年規模で使用済軽水炉 MOX 燃料を処理する乾式再処理プラントを 10 年ごとに導入

し、最終的にはおよそ 93.7tHM/年規模が必要となる（図 3.3-2(a), (b)）。また、10 年ごとに 2.0GWe のペースで高速炉を導入する場合、高速炉の立ち上げに備えて蓄積される Puf および MA 量はそれぞれ最大で 11.9t および 34.2t と評価され、すべての MA を高速炉サイクルに移行するまでに 80 年を要する（図 3.3-3(a)）。一方、10 年ごとに 3.3GWe のペースで高速炉を導入する場合、あらかじめ蓄積される回収 Puf は最大で 19.7t に達するが、MA の消費は加速され、およそ 40 年ですべての MA が高速炉サイクルに移行でき、その間の最大の蓄積量は 23.6t に減少する（図 3.3-3(b)）ことが明らかとなった。ここで、Puf 蓄積量の増大は、10 年間の導入ペースを平準化することで低減可能である。

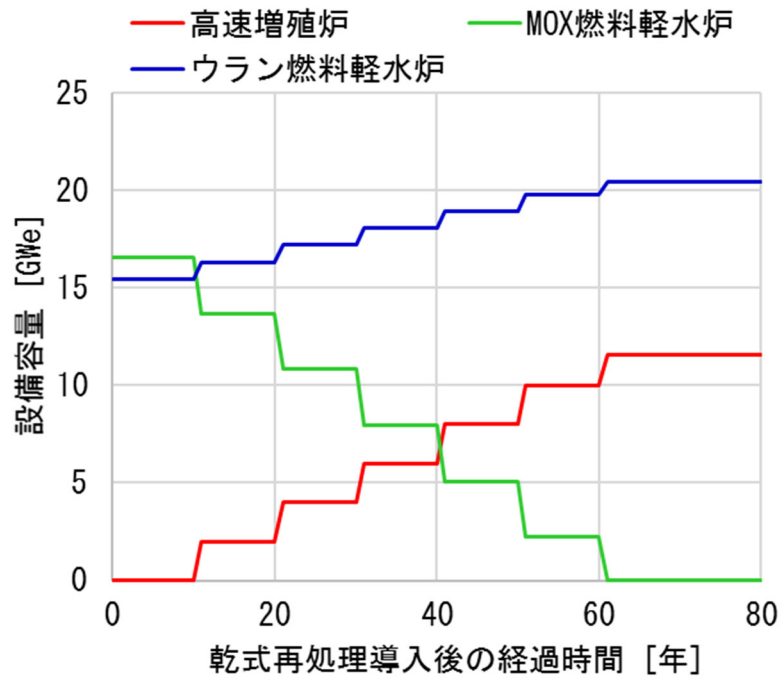


図 3.3-1(a) マテリアルバランス評価で想定した各炉型の設備容量の推移
(2.0GWe/10年のペースで高速増殖炉を導入する場合)

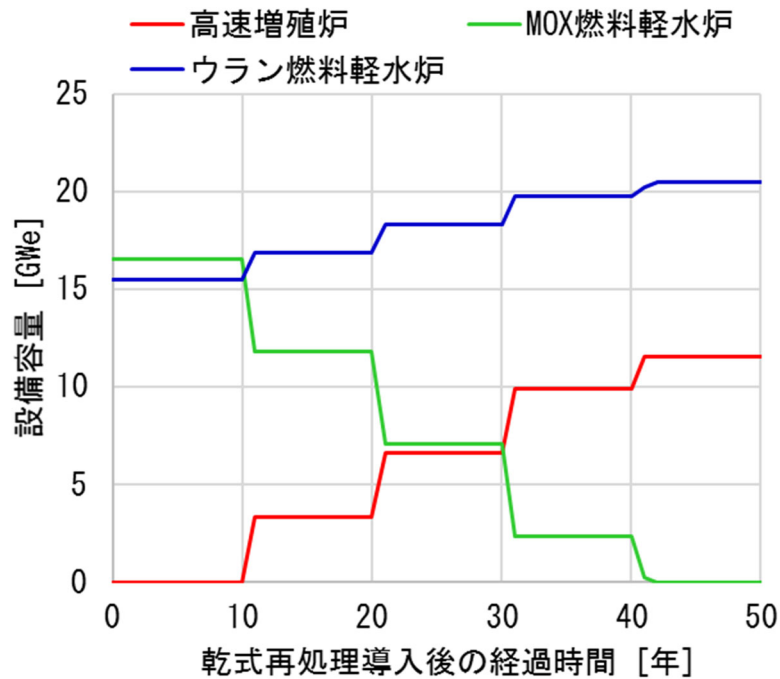


図 3.3-1(b) マテリアルバランス評価で想定した各炉型の設備容量の推移
(3.3GWe/10年のペースで高速増殖炉を導入する場合)

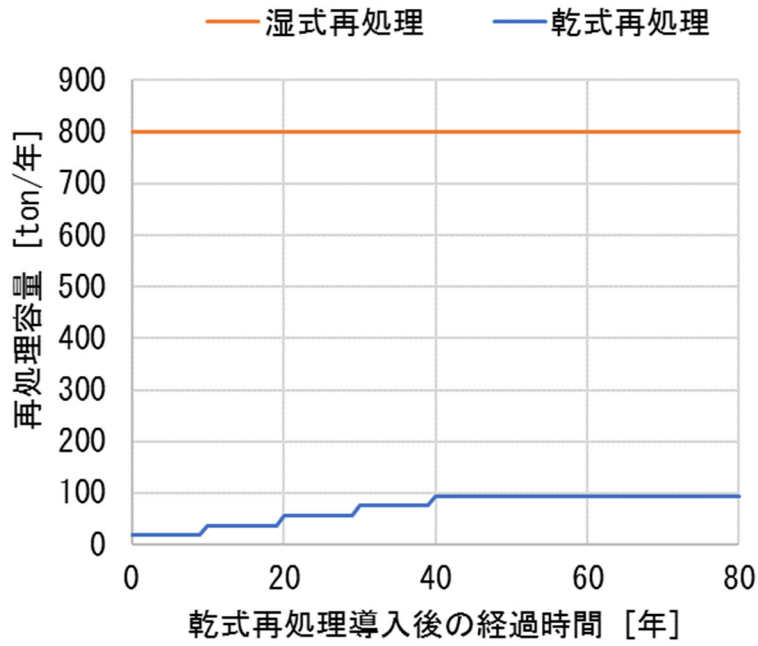


図 3.3-2(a) 高濃度 MA 含有金属燃料装荷・MOX 燃料高速炉の炉心設計結果に基づく
必要再処理設備容量の推移
(2.0GWe/10年のペースで高速増殖炉を導入する場合)

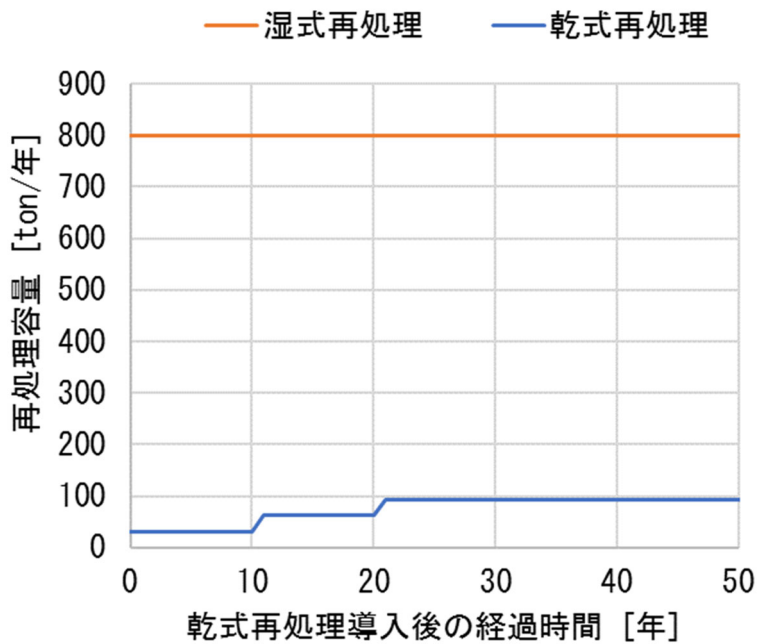


図 3.3-2(b) 高濃度 MA 含有金属燃料装荷・MOX 燃料高速炉の炉心設計結果に基づく
必要再処理設備容量の推移
(3.3GWe/10年のペースで高速増殖炉を導入する場合)

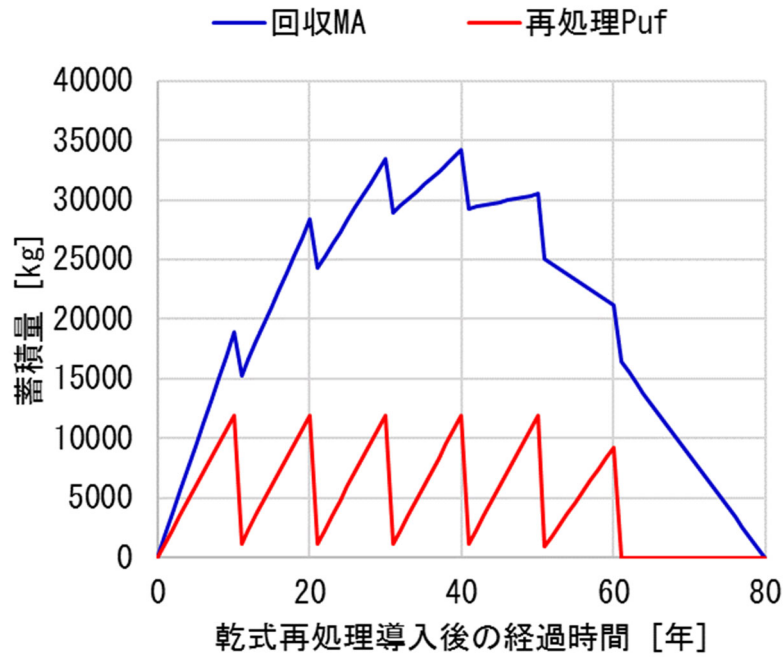


図 3.3-3(a) 高濃度 MA 含有金属燃料装荷・MOX 燃料高速炉の炉心設計結果に基づく Puf および MA 蓄積量の推移 (2.0GWe/10年のペースで高速増殖炉を導入する場合)

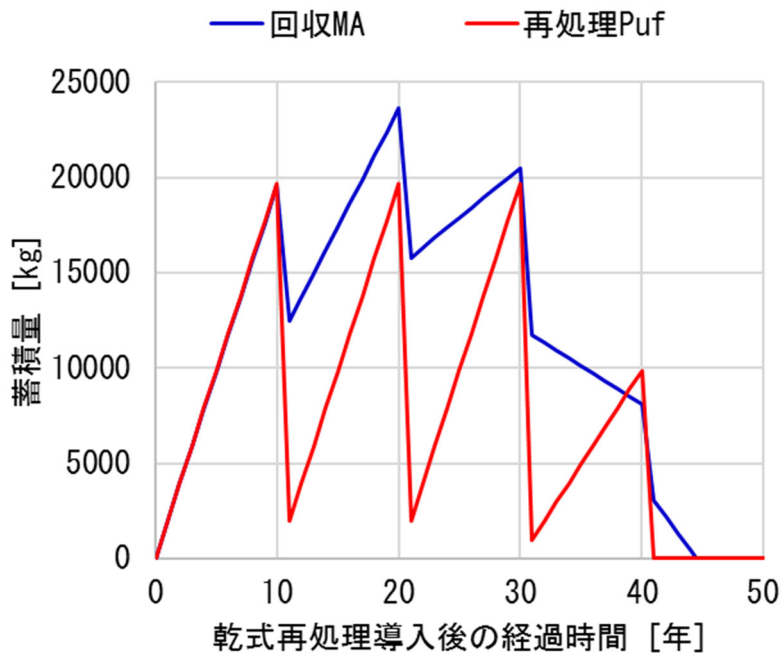


図 3.3-3(b) 高濃度 MA 含有金属燃料装荷・MOX 燃料高速炉の炉心設計結果に基づく Puf および MA 蓄積量の推移 (3.3GWe/10年のペースで高速増殖炉を導入する場合)

3.3.3 令和元年度の実施内容と目的

平成 30 年度および令和元年度には、高濃度 MA 含有金属燃料を装荷した金属燃料炉心の設計検討が行われている。そこで、これらの炉心設計検討結果に基づき、高濃度 MA 含有金属燃料を装荷した金属燃料炉心の導入を導入する際の Pu および MA のマテリアルバランス評価を行った。

①高濃度 MA 含有金属燃料を非均質装荷した金属燃料高速炉の導入時マテリアルバランス評価

既存の軽水炉や将来導入が予測される高速炉の運転条件、燃料組成、燃焼度、装荷量等に関する公開情報[1]および平成 30 年度に設計された、高濃度 MA 含有金属燃料が部分的に装荷された金属燃料炉心の燃焼解析結果[2]に基づき、原子力発電容量が 2030 年度時点における総発電量の 20-22% (～32GWe) を、その後も維持されるシナリオ条件において高濃度 MA 含有金属燃料を非均質装荷した金属燃料高速炉を導入する際の Pu および MA のマテリアルバランスの概略評価を行った。

ここでは、平成 30 年度に実施したマテリアルバランス評価と同様、湿式再処理プラントのリプレースを繰り返すことで 800t/年規模の処理容量を維持し、使用済軽水炉 UO₂ 燃料からの回収 Pu を利用した MOX 燃料軽水炉と通常の UO₂ 燃料軽水炉が共存している状態を初期条件とした。基本的な物質フローの考え方は、平成 29 年度の評価と同様とした。すなわち、ベースとなる金属燃料高速炉を導入するため、湿式再処理によって回収される Pu を蓄積し、高濃度 MA 含有金属燃料の製造に供する Pu および MA を回収するため、使用済 MOX 燃料の乾式再処理施設の導入を図るものとする。高速炉の導入ペースは、比較的緩やかな 2GWe/10 年を暫定し、Pu 回収量がバランスするように乾式再処理プラントを 10 年ごとに増設することとした。また、高速炉の導入によって Pu が消費される分、MOX 燃料軽水炉の容量を減らし、一部を UO₂ 軽水炉として運用することで、トータルの設備容量 (32GWe) を維持する。

平成 30 年度のマテリアルバランス評価で想定した高濃度 MA 含有金属燃料装荷・MOX 燃料炉心に比べ、高濃度 MA 含有金属燃料の Puf 装荷量は 13.6%低減している一方で、MA 装荷量は 24.7%増加し、MA 変換率は 26.1%増加している。

乾式再処理プラントの導入後の炉型ごとの設備容量、再処理プラント導入規模、再処理 Puf および回収 MA の蓄積量の推移を図 3.3-4～図 3.3-6 にそれぞれ示す。想定した炉型ごとの設備容量の推移は、図 3.3-1(a)と同様であり、800t/年の湿式再処理によって回収される Puf 量とバランスする高速増殖炉の導入規模は、およそ 11.6GWe である。

2GWe/10 年のペースで増設される高速増殖炉に装荷する高濃度 MA 含有金属燃料の Puf を調達するのに必要とされる使用済 MOX 燃料の乾式再処理プラントの導入規模は、平成 30 年度の評価結果 18.7t/年 (図 3.3-2(a)) から 16.5t/年に減少し、それらを 10 年ごとにおよそ 60 年かけて導入し、最終的にはおよそ 82.6tHM/年規模となった。

高速炉の立ち上げに備えて蓄積される Puf 量は最大で 10.5t と評価された。また、高濃度 MA 含有金属燃料装荷・MOX 燃料炉心の場合 (図 3.3-3(a)) に比べ、MA リサイクルが加速されるため、最大蓄積量が 34.2t から 27.2t に低減され、すべての MA を高速炉サイクルに移行するまでに要する期間も 80 年から 60 年に短縮されることが分かる。

同様に、高速炉の導入ペースを 3.3GWe/10 年と増加させた場合の結果を、図 3.3-7～図 3.3-9 に示す。このケースの炉型ごとの設備容量の推移は、図 3.3-1(b)と同様である。3.3GWe/10 年のペースで増設される高速増殖炉に装荷する高濃度 MA 含有金属燃料の Puf を確保するには、およそ 27.2tHM/年規模で使用済 MOX 燃料を処理する乾式再処理プラントを 10 年ごとに増設する必要がある（平成 30 年度評価では 30.9tHM/年）。

このケースでは、10 年ごとにまとめて 3.3GWe の高速炉を立ち上げることを想定しているため、あらかじめ蓄積される回収 Puf が最大で 19.1t に達するが、10 年間の導入ペースを平準化（例：1GWe/3 年）することによって、Puf の蓄積量は低減できる。

高速炉の導入ペースが 2GWe/10 年から 3.3GWe/10 年に加速されることで MA の消費がさらに加速され、およそ 32 年ですべての MA が高速炉サイクルに移行でき、その間の最大の蓄積量は 20.0t に減少する。

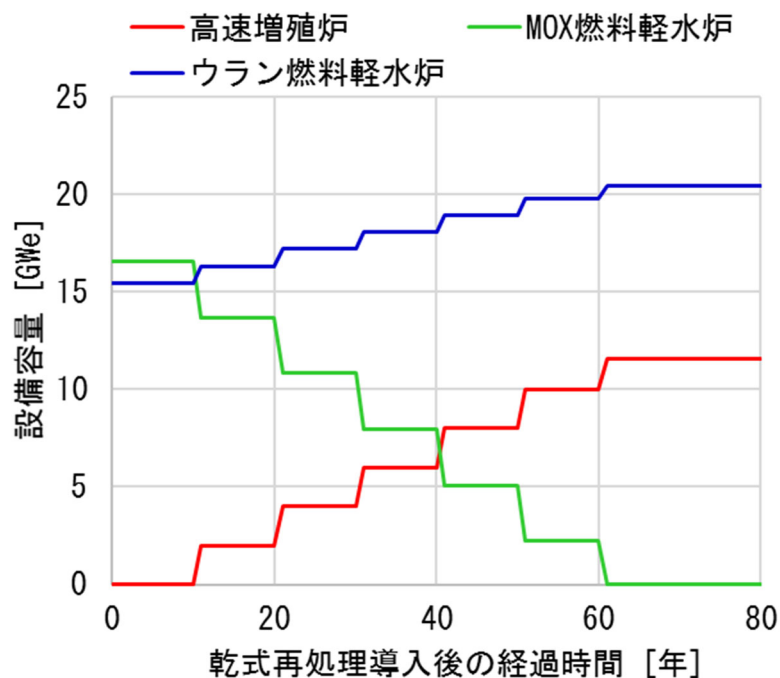


図 3.3-4 マテリアルバランス評価で想定した各炉型の設備容量の推移
(2.0GWe/10 年のペースで高速増殖炉を導入する場合、図 3.3-1(a)と同様)

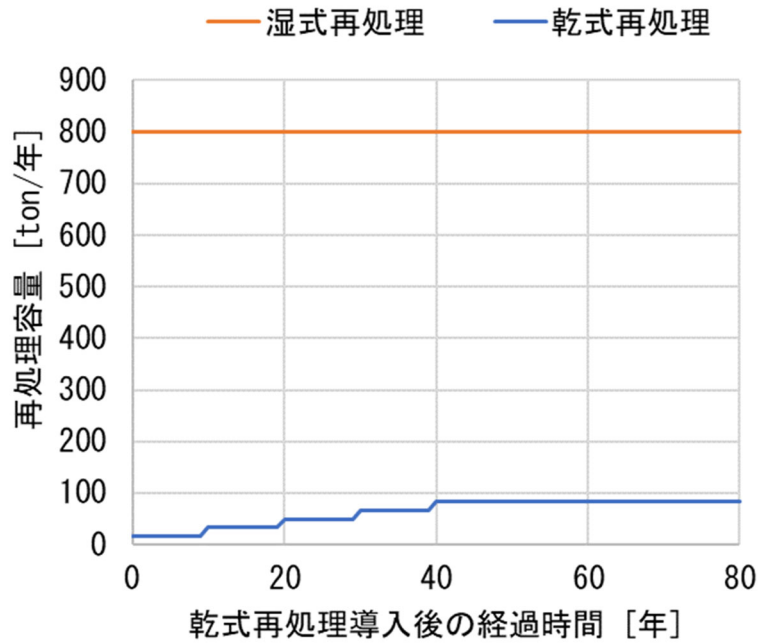


図 3.3-5 高濃度 MA 含有金属燃料を非均質装荷した金属燃料高速炉の炉心設計結果に基づく必要再処理設備容量の推移
(2.0GWe/10年のペースで高速増殖炉を導入する場合)

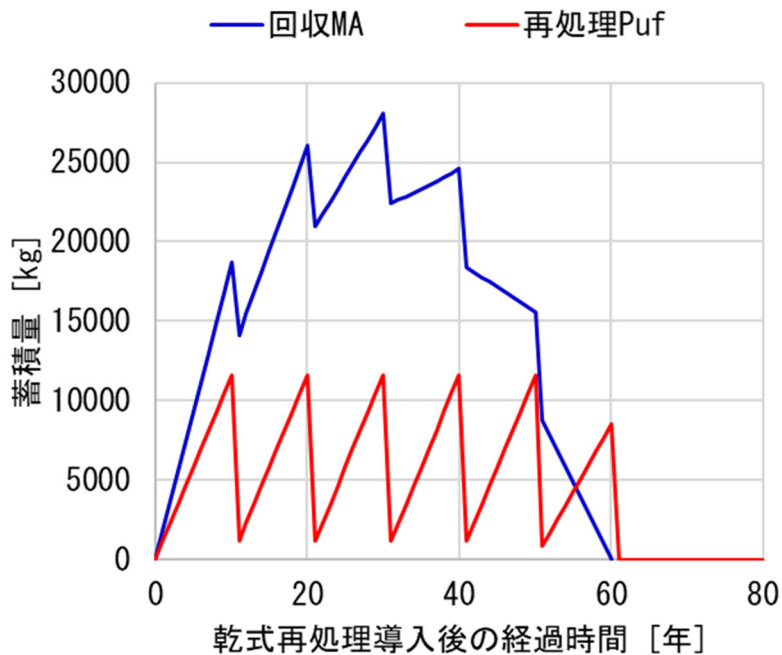


図 3.3-6 高濃度 MA 含有金属燃料を非均質装荷した金属燃料高速炉の炉心設計結果に基づく Puf および MA 蓄積量の推移
(2.0GWe/10年のペースで高速増殖炉を導入する場合)

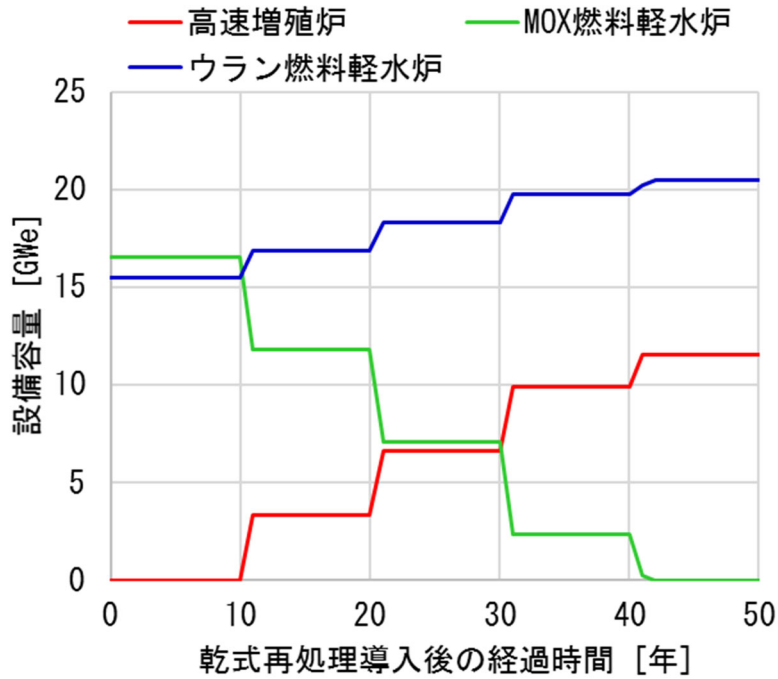


図 3.3-7 マテリアルバランス評価で想定した各炉型の設備容量の推移
(高速炉の導入ペースを 3.3GWe/10 年に早めたケース、図 3.3-1 (b) と同様)

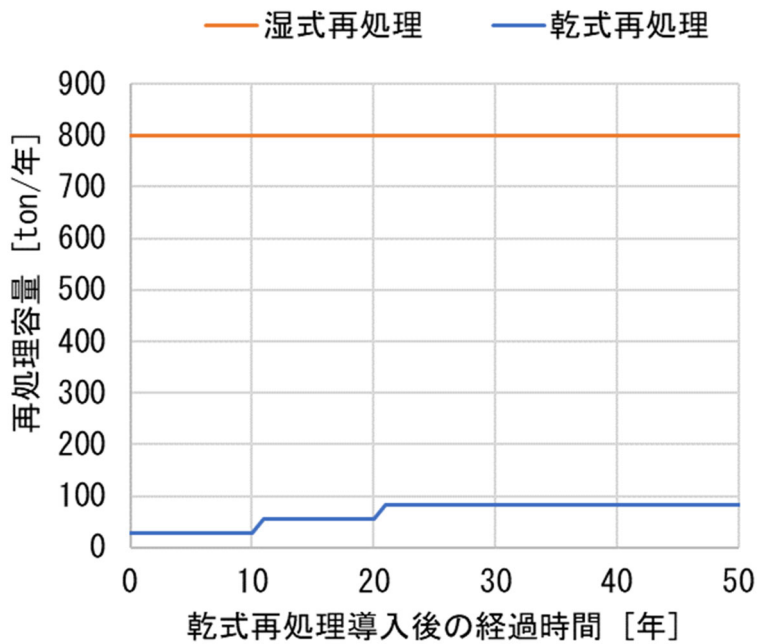


図 3.3-8 高濃度 MA 含有金属燃料を非均質装荷した金属燃料高速炉の炉心設計結果
に基づく必要再処理設備容量の推移
(高速炉の導入ペースを 3.3GWe/10 年に早めたケース)

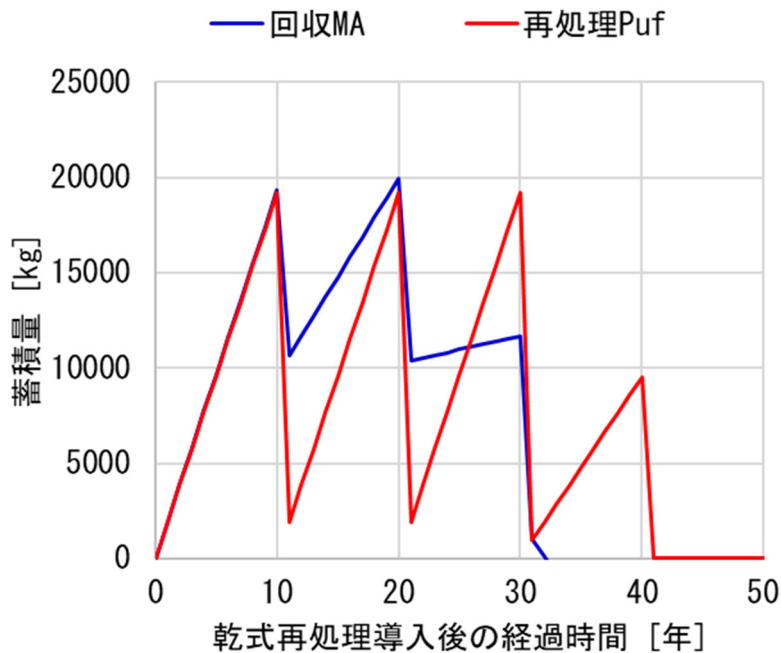


図 3.3-9 高濃度 MA 含有金属燃料を非均質装荷した金属燃料高速炉の炉心設計結果に基づく Puf および MA 蓄積量の推移
(高速炉の導入ペースを 3.3GWe/10 年に早めたケース)

②高濃度 MA 含有金属燃料を均質装荷した金属燃料高速炉の導入時マテリアルバランス評価

同様に、本年度に設計を行った SiC 反射体を利用することで、MA 含有率を増大させた金属燃料均質炉心の燃焼解析結果に基づき、当該高速炉を導入する際の Pu および MA のマテリアルバランスの概略評価を行った。

前述の高濃度 MA 含有金属燃料を部分的に装荷した炉心に対し、全炉心に渡って高濃度 MA 含有金属燃料を装荷する本ケースの炉心燃料解析結果によると、炉内への MA 装荷量は 3.35 倍に (+235%) 増加し、MA 変換率は 4.54 倍に (+354%) 増加する。

このケースでは、はじめに 800t/年規模の湿式再処理による使用済軽水炉 UO₂ 燃料からの回収 Pu とそこで発生する高レベル廃液から回収される MA を優先して高速炉燃料に利用することを想定し、800t/年規模の湿式再処理のみでは高速炉に装荷する Puf に不足が生じる時点から使用済 MOX 燃料の乾式再処理を導入することとした。

図 3.3-10 の各炉型の設備容量の推移に示すように、2GWe/10 年のペースで導入される高速炉の燃料をすべて湿式再処理によって確保する必要があるため、MOX 燃料軽水炉の運転割合が低下し、通常の U 燃料軽水炉の割合が増加する。この時、高レベル廃液から MA を回収するため 1.8tMA/年規模の乾式分離設備が導入される。高速炉の導入規模を 10GWe に増設する際に、800t/年規模の湿式再処理だけでは Puf に不足が生じるため、その 10 年前から 66.0t/年規模で使用済 MOX 燃料を処理する乾式再処理施設が導入され、最終的に約 120t/年規模が必要とされる。(図 3.3-11)。図 3.3-12 のように MA リサイクルの加速によって、高速炉導入期における MA の最大蓄積量は 17.5t で、およそ 20 年でそれらを高速

炉サイクルに移行できる。

さらに、高速炉の導入ペースを 3.3GWe/10 年と増加させた場合の結果を、図 3.3-13～図 3.3-15 に示す。高速炉の導入から、およそ 20 年で MOX 燃料軽水炉の利用がなくなる（図 3.3-13）。また、高速炉の導入規模を 10GWe に増設する際に Puf に不足が生じるため、その 10 年前から 62.3t/年規模の使用済 MOX 燃料の乾式再処理施設が導入される。このケースでは、MA のリサイクルペースがさらに加速されるため、高速炉の導入に向けた再処理の開始から 10 年後に MA の蓄積がピークに達し、その後、高速炉の新設に向けた MA の蓄積は必要なくなる。

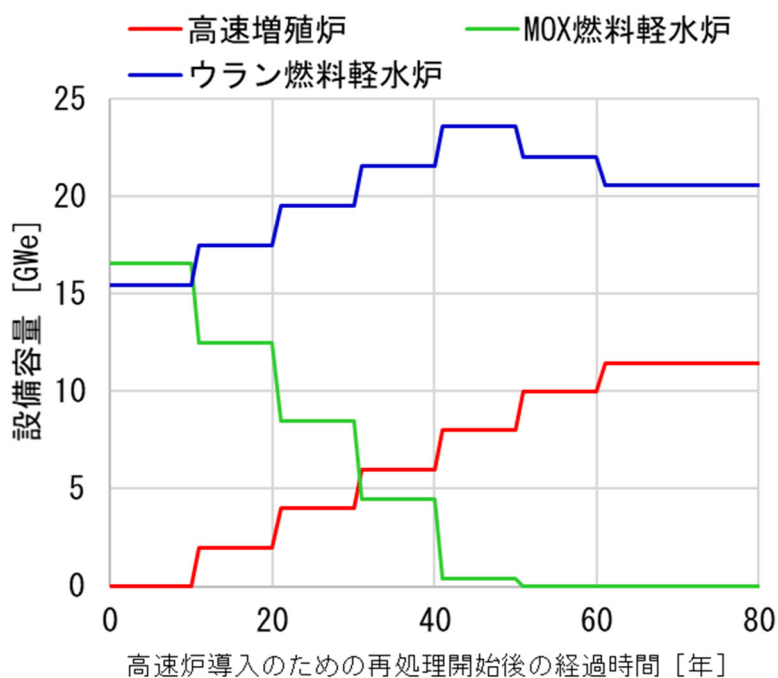


図 3.3-10 マテリアルバランス評価で想定した各炉型の設備容量の推移
(2.0GWe/10 年のペースで高速増殖炉を導入する場合)

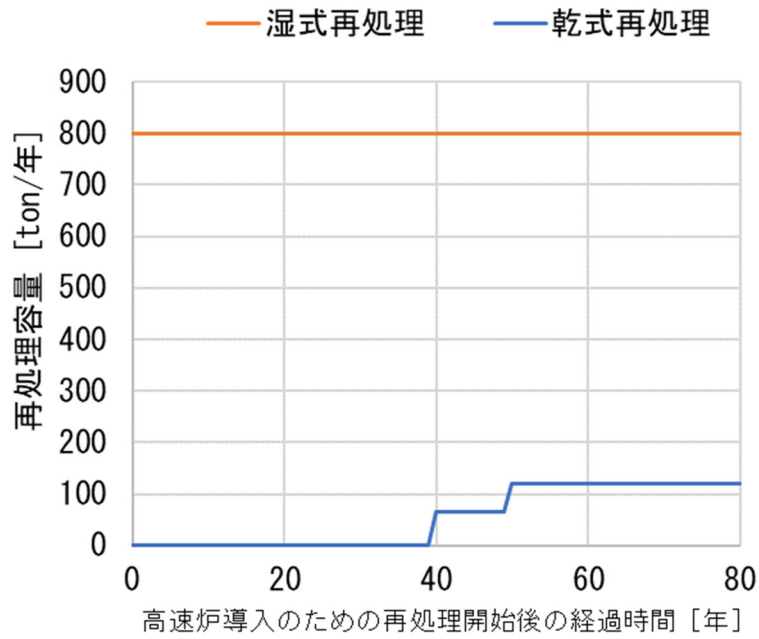


図 3.3-11 高濃度 MA 含有金属燃料を均質装荷した金属燃料高速炉の炉心設計結果に基づく必要再処理設備容量の推移 (2.0GWe/10年のペースで高速増殖炉を導入する場合)

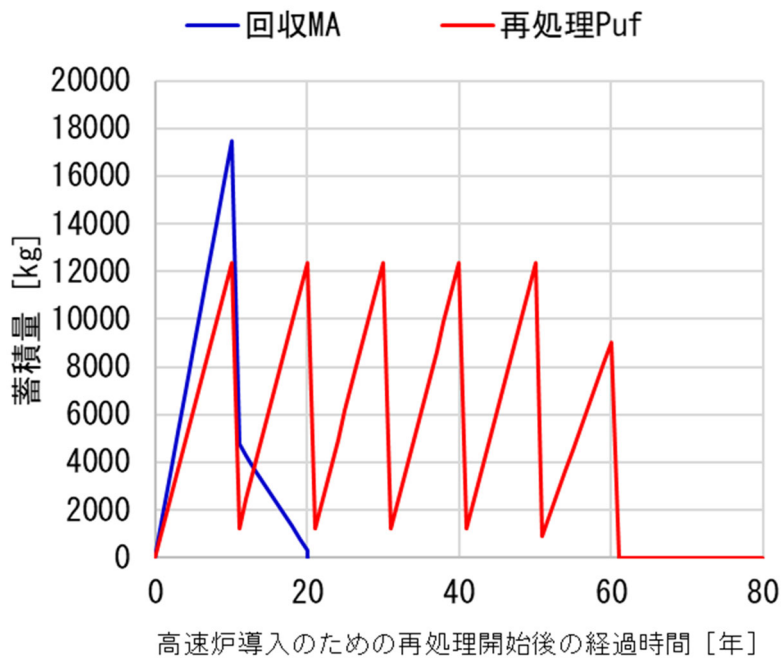


図 3.3-12 高濃度 MA 含有金属燃料を均質装荷した金属燃料高速炉の炉心設計結果に基づく Puf および MA 蓄積量の推移 (2.0GWe/10年のペースで高速増殖炉を導入する場合)

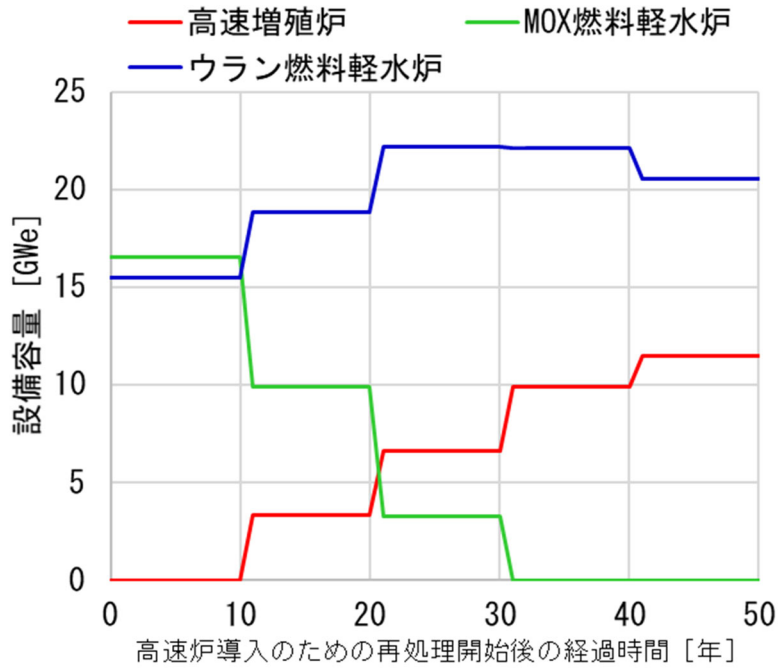


図 3.3-13 マテリアルバランス評価で想定した各炉型の設備容量の推移
(3.3GWe/10年のペースで高速増殖炉を導入する場合)

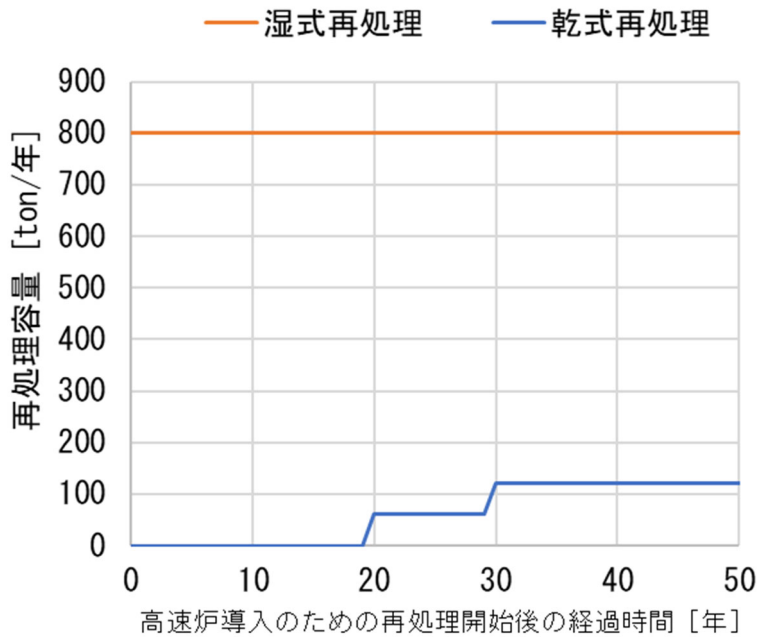


図 3.3-14 高濃度 MA 含有金属燃料を均質装荷した金属燃料高速炉の
炉心設計結果に基づく必要再処理設備容量の推移
(3.3GWe/10年のペースで高速増殖炉を導入する場合)

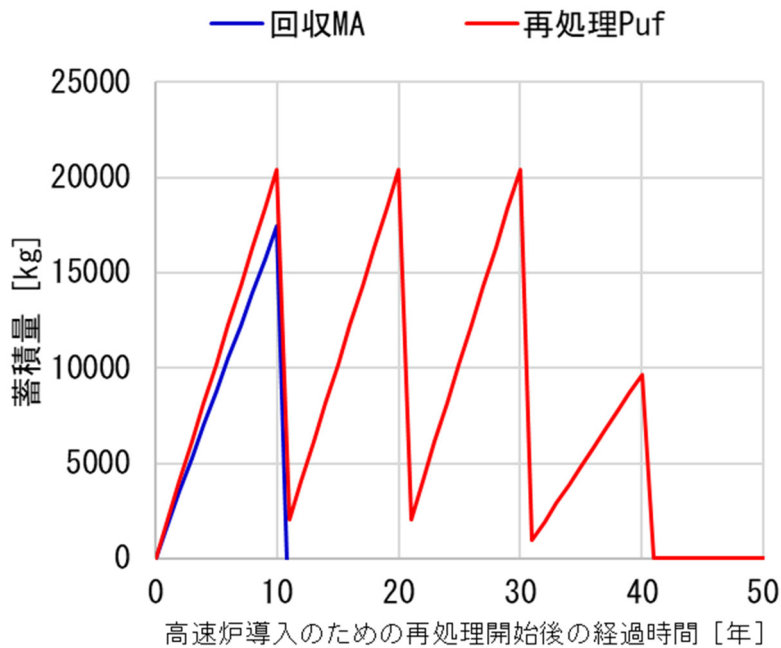


図 3.3-15 高濃度 MA 含有金属燃料を均質装荷した金属燃料高速炉の炉心設計結果に基づく Puf および MA 蓄積量の推移 (3.3GWe/10年のペースで高速増殖炉を導入する場合)

以上のように、高濃度 MA 含有金属燃料を装荷した金属燃料高速炉を導入する場合、MA 装荷量の増大と優れた MA 核変換性能によって、効率的に MA の蓄積量を低減できることが明らかとなった。特に高濃度 MA 含有金属燃料を均質に装荷する金属燃料炉心の場合、導入後 10 年～20 年以降は燃料中の MA 添加率を低減することが可能となる。

③MA 核変換による放射毒性の低減効果

本研究において、MOX 燃料炉心または金属燃料炉心に高濃度 MA 金属燃料を装荷することによって、効率的な MA 核変換が実現できることが、炉心特性解析とそれに基づくマテリアルバランス評価から明らかになった。これらの物量評価に基づき、MA 核変換による放射毒性の低減効果を、放射性廃棄物の放射毒性指標として利用されることの多い経口年摂取限度 (50mSv) に対する比によって評価した。表 3.3-1 には、各アクチニド同位体の経口年摂取限度 (50mSv) に相当する放射エネルギー (Bq) を示し、表 3.3-2 には高濃度 MA 金属燃料を装荷した各種炉心による燃焼前後の毒性指標 ($\text{GWe}^{-1} \text{年}^{-1}$) とその変化を比較して示している。

装荷時と照射後の差を見ると、 $^{242\text{m}}\text{Am}$ や ^{242}Cm のように照射によって新たに生成し、毒性が増加する核種も存在する。一方で、それらの寄与は小さく、いずれの場合も MA トータルの毒性は低減していることが分かる。特に MA 含有金属燃料炉心で 30% から 40% 以上の毒性が低減されていることが明らかとなった。

表 3.3-1 各アクチニド同位体の経口年摂取限度 (50mSv) に相当する放射能量 (Bq)

	経口年摂取限度 (50mSV) に相当する放射能 [Bq]
U-234	1.02E+06
U-235	1.09E+06
U-236	1.09E+06
U-238	1.14E+06
Np-237	4.55E+05
Np-239	6.25E+07
Pu-238	2.17E+05
Pu-239	2.00E+05
Pu-240	2.00E+05
Pu-241	1.06E+07
Pu-242	2.08E+05
Am-241	2.50E+05
Am-242M	2.63E+05
Am-243	2.50E+05
Cm-242	4.17E+06
Cm-243	3.33E+05
Cm-244	4.17E+05
Cm-245	2.38E+05
Cm-246	2.38E+05

表 3.3-2 高濃度 MA 金属燃料を装荷した炉心による単位出力当たりの潜在毒性指標の変化

同位体	高濃度MA含有金属燃料装荷・MOX燃料炉心			同位体	高濃度MA含有金属燃料非均質装荷金属燃料炉心		
	装荷時	照射後*	差		装荷時	照射後*	差
U-234	0.0000E+00	6.0809E+05	6.0809E+05	U-234	0.0000E+00	6.3540E+05	6.3540E+05
U-235	2.2710E+03	1.0037E+03	-1.2672E+03	U-235	1.7134E+03	6.3429E+02	-1.0791E+03
U-236	2.0859E+04	2.4526E+04	3.6669E+03	U-236	1.9139E+04	2.1772E+04	2.6337E+03
U-238	8.3337E+04	7.4415E+04	-8.9213E+03	U-238	5.8128E+04	5.0328E+04	-7.8001E+03
Pu-238	5.9373E+10	1.3996E+11	8.0590E+10	Pu-238	6.0605E+10	1.4817E+11	8.7565E+10
Pu-239	6.4092E+09	7.2396E+09	8.3031E+08	Pu-239	5.9361E+09	6.1599E+09	2.2388E+08
Pu-240	1.1853E+10	1.2166E+10	3.1321E+08	Pu-240	1.2879E+10	1.2756E+10	-1.2346E+08
Pu-241	8.6645E+09	3.1248E+09	-5.5398E+09	Pu-241	2.3150E+10	3.6792E+09	-1.9470E+10
Pu-242	5.6364E+07	4.9380E+07	-6.9845E+06	Pu-242	6.2190E+07	5.8107E+07	-4.0825E+06
Np-237	4.2375E+06	1.9909E+06	-2.2466E+06	Np-237	2.9287E+06	1.3099E+06	-1.6188E+06
Np-239	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00	Np-239	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00
Am-241	9.2493E+10	5.5283E+10	-3.7209E+10	Am-241	1.1538E+11	6.7497E+10	-4.7882E+10
Am-242M	0.0000E+00	7.2137E+09	7.2137E+09	Am-242M	1.2966E+08	9.1744E+09	9.0447E+09
Am-243	6.5549E+08	7.4410E+08	8.8606E+07	Am-243	1.2203E+09	1.1278E+09	-9.2494E+07
Cm-242	0.0000E+00	4.4243E-10	4.4243E-10	Cm-242	0.0000E+00	5.6956E-10	5.6956E-10
Cm-243	0.0000E+00	9.2556E+08	9.2556E+08	Cm-243	0.0000E+00	1.2751E+09	1.2751E+09
Cm-244	2.2753E+10	2.3283E+10	5.3000E+08	Cm-244	9.8166E+10	4.4795E+10	-5.3371E+10
Cm-245	0.0000E+00	2.3805E+07	2.3805E+07	Cm-245	9.4766E+06	5.3926E+07	4.4450E+07
Cm-246	0.0000E+00	2.7172E+06	2.7172E+06	Cm-246	0.0000E+00	6.8024E+06	6.8024E+06
MA Total	1.1591E+11	8.7479E+10	-2.8427E+10	MA Total	2.1491E+11	1.2393E+11	-9.0976E+10

同位体	高濃度MA含有金属燃料均質装荷炉心		
	装荷時	照射後*	差
U-234	0.0000E+00	1.2212E+07	1.2212E+07
U-235	2.2528E+03	1.0343E+03	-1.2185E+03
U-236	5.0552E+04	5.1763E+04	1.2106E+03
U-238	4.1287E+04	3.6737E+04	-4.5500E+03
Pu-238	8.7619E+10	5.4844E+11	4.6082E+11
Pu-239	7.1531E+09	5.8652E+09	-1.2879E+09
Pu-240	2.1661E+10	2.0362E+10	-1.2987E+09
Pu-241	2.3024E+10	5.5392E+09	-1.7485E+10
Pu-242	1.0601E+08	1.2626E+08	2.0247E+07
Np-237	7.0043E+05	2.3770E+06	1.6765E+06
Np-239	0.0000E+00	1.1608E+07	1.1608E+07
Am-241	5.4334E+11	2.8002E+11	-2.6331E+11
Am-242M	6.2972E+08	4.2315E+10	4.1685E+10
Am-243	4.1265E+09	2.9021E+09	-1.2244E+09
Cm-242	0.0000E+00	2.1961E+09	2.1961E+09
Cm-243	0.0000E+00	1.2089E+10	1.2089E+10
Cm-244	1.4454E+11	1.2404E+11	-2.0499E+10
Cm-245	4.6828E+07	1.8174E+08	1.3492E+08
Cm-246	0.0000E+00	2.9278E+07	2.9278E+07
MA Total	6.9268E+11	4.6379E+11	-2.2889E+11

* : 炉停止後の冷却期間30年後

④まとめ

軽水炉や高速炉の燃料組成や装荷量等に関する公開情報および平成 29 年度～本研究の最終年度である令和元年度に設計された高濃度 MA 含有金属燃料装荷・MOX 燃料炉心および金属燃料炉心の燃焼解析結果に基づき、800t/年規模の湿式再処理施設が存在する中で、10 年ごとに 2.0GWe～3.3GWe のペースで高速炉を導入する場合の Pu および MA のマテリアルバランスを評価した。

高速炉の炉心の一部に高濃度 MA 含有金属燃料を装荷して燃焼させる場合、使用済軽水炉 MOX 燃料を処理する 16.5t/年～30.9tHM/年の比較的小規模な乾式再処理プラントを 10 年ごとに導入し、初装荷燃料と導入後の交換燃料を製造すれば良い。また、高速炉の導入から 40～60 年で初装荷燃料に装荷するための MA の蓄積をなくすことができる。

一方、炉心全体に高濃度 MA 含有金属燃料を装荷して燃焼させる場合には、62.3t/年～66.0t/年の乾式再処理プラントを順次導入することで初装荷燃料と導入後の交換燃料に必要な Puf が確保できる。この場合、MA リサイクルが加速され高速炉の導入から 10～20 年で初装荷燃料に装荷する MA の蓄積をなくすことができる。

さらに、これらの炉心燃焼解析による物量評価に基づき、MA による放射毒性の低減効果を評価した。MA 核変換の前後で一部の同位体が新たに生成し、毒性が増加する一方で、高濃度 MA 含有金属燃料を装荷するいずれの場合も MA トータルの毒性は有意に低減することが定量的に評価された。特に MA 装荷量が多い MA 含有金属燃料炉心で毒性を大きく低減していることが明らかとなった。

以上の結果から、将来の高速炉燃料サイクルに金属燃料・乾式リサイクルプロセスを導入することで、様々な炉心概念によって MA 燃焼が実現できる柔軟性の高いシナリオの成立性と MA 核変換による有意な長期的放射毒性の低減効果が得られることが定量的に示された。

【3.3の参考文献】

- [1] 平成28年度 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(放射性廃棄物減容・有害度低減技術研究開発タイプA) 柔軟性が高いMA回収・核変換技術の開発 成果報告書 (2017).
- [2] 平成29年度 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(放射性廃棄物減容・有害度低減技術研究開発タイプA) 柔軟性が高いMA回収・核変換技術の開発 成果報告書 (2018).
- [3] “高速増殖炉サイクルの実用化戦略調査研究 フェーズII技術検討書-(1)原子炉プラントシステム-“, JAEA-Research 2006-042, (2006).
- [4] S. Maruyama, S. Ohki, T. Okubo, K. Kawashima, T. Mizuno, “Correlations among FBR core characteristics for various fuel compositions”, J. Nucl. Sci. Technol., 49, 640 (2012).
- [5] T. Kan, M. Ogura, K. Hibi, S. Ohki, S. Maeda, S. Maruyama, K. Ohgama, “Core design of the next-generation sodium-cooled fast reactor in Japan”, ICAPP2017, (2017).
- [6] K. Ohgama, S. Ohki, K. Sugino, T. Okubo, “Comparison and Sensitivity Analysis of the Core Characteristics of a Sodium-cooled Fast Breeder Reactor with 750 MWe Output Evaluated by JENDL-4.0 and ADJ2000R”, J. Nucl. Sci. Technol., 51, 558(2014).
- [7] K. Shibata, O. Iwamoto, T. Nakagawa, et al., “JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering”, J. Nucl. Sci. Technol., 48, 1 (2011).
- [8] 杉野 和輝, 神 智之, 羽様 平, 沼田 一幸, “JENDL-4.0に基づく高速炉用炉定数UFLIB.J40及びJFS-3-J4.0の作成”, JAEA-Data/Code 2011-017, (2011).
- [9] T. Hazama, G. Chiba, K. Sugino, “Development of a Fine and Ultra-fine Group Cell Calculation Code SLAROM-UF for Fast Reactor Analyses”, J. Nucl. Sci. Technol., 43, 908 (2006).
- [10] T. B. Fowler, D. R. Vondy, G. R. Cunningham, “Nuclear Reactor Core Analysis Code: CITATION”, ORNL-TM-2496 Rev.2, (1971).
- [11] S.B. Ludwig, A.G. Croff, “Revision to ORIGEN2 - Version 2.2”, Transmittal memo of CCC-0371/17, Oak Ridge National Laboratory (2002).
- [12] 須山賢也, “ORIGEN2.2 コードの核分裂収率を取り扱うルーチンの問題”, 核データニュース, No.83 (2006)
- [13] 奥村啓介, 杉野和輝, 小嶋健介, 神智之, 岡本力, 片倉純一, JENDL-4.0に基づくORIGEN2用断面積ライブラリセット: ORLIBJ40, JAEA-Data/Code 2012-032, (2012).

3.4 研究推進【平成 28 年度-令和元年度】

本研究の推進にあたっては以下の研究進捗打ち合わせを実施し、連携機関間で業務の進捗状況や今後の試験・検討の進め方について情報共有と協議を行うことにより密に連携を保ちながら研究を進めた。

【連携機関（電力中央研究所、京都大学、日本原子力研究開発機構による全体会）】

- ・実施日：令和元年 6 月 27 日
- ・実施場所：京都大学 エネルギー理工学研究所（宇治キャンパス内）
- ・参加者：
 - 京都大学 野平
 - JAEA 小藤、大釜、多田
 - 電中研 飯塚、太田、坂村、魚住、村上
- ・内容：平成 30 年度までの成果報告、令和元年度実施計画説明、各機関における研究内容と今後の研究の進め方に関する議論、京都大学エネルギー理工学研究所試験設備見学

【乾式再処理研究開発担当者による打ち合わせ】

- ・実施日：令和元年 6 月 21 日
- ・実施場所：JAEA 核燃料サイクル工学研究所
- ・参加者：
 - JAEA 多田
 - 電中研 飯塚、村上
- ・内容：今年度 JAEA で実施する MOX を対象とした小規模連続プロセス試験試験の条件詳細やスケジュールに関する調整、使用する酸化物試料の作成手順に関する議論

【MOX を対象とした小規模連続プロセス試験の進捗と計画に関する打ち合わせ】

- ・実施日：令和元年 10 月 1 日
- ・実施場所：原子力安全研究協会 地下会議室
- ・参加者：池田 PO、小野、藤崎、松尾、岡本（以上原安協）、小藤、多田（以上 JAEA）飯塚（電中研）
- ・内容：JAEA 内にて発生したトラブルに伴う、MOX を対象とした小規模連続プロセス試験計画の合理化、模擬使用済 MOX 燃料試料の調製方法の簡略化に関する打ち合わせ

4. 結言

放射性廃棄物の長期的な有害度を低減させるために、軽水炉使用済燃料から Pu と MA を回収して高速炉で燃焼させる方法が各国で検討されている。本研究は、高速炉燃料サイクルに金属燃料—乾式再処理技術を取り込むことにより、幅広い高速炉導入シナリオや Pu 需給シナリオに柔軟に対応しつつ、廃棄物有害度低減効果を最大化することが可能な MA 回収・核変換システムを構築することを目的としている。

この新しい MA 回収・核変換システムの実現性を見通すためには、日米を中心に従来蓄積されてきた金属燃料—乾式再処理に関わる技術基盤に加えて、以下の技術的課題を解決する必要がある。

- 核変換効率と安全性の観点からの MA 含有金属燃料設計および炉心装荷方法の最適化（均質／非均質）
- MA 含有燃料の多重リサイクルにより効果的に MA 量を低減することを目的とした、FP（特に希土類）の同伴量低減および TRU 回収率向上

これらの課題を解決するために、4 ヶ年の全体計画（平成 28～令和元年度）の最終年度である本年度は下記の研究開発を実施した。

(1) 金属燃料および炉心開発

(1-1) 高濃度 MA 含有金属燃料の設計と特性評価

高濃度に MA を含有する金属燃料を炉心の一部および全部に装荷した金属燃料炉心の核・熱流動設計の結果に基づき、それぞれ最も照射条件が厳しいと評価された燃料ピンを対象に、当所開発の金属燃料 ALFUS コードによって照射健全性を評価した。ALFUS コードは、高濃度 MA 金属燃料の照射後試験で観察された FP ガス放出率を模擬するようあらかじめ調整した。その結果、いずれにおいても被覆管のクリープ破損に関する累積損傷和（CDF）は 1.0 を十分に下回り（ 3.8×10^{-3} 以下）、外形変形も 1.8-2.5%程度と評価され、照射期間を通じて高濃度 MA 含有金属燃料ピンの健全性が確保できる見通しが得られた。

(1-2) MA 含有金属燃料装荷炉心の最適化検討

平成 30 年度までに検討した高濃度 MA 含有金属燃料を炉心の一部に装荷した非均質炉心よりも高い MA 核変換量を得ることを目的に、全炉心に高濃度 MA 含有金属燃料を装荷した炉心の最適化を検討した。高濃度の MA 装荷による炉心の安全性低下は、SiC の減速材集合体を分散装荷することで改善でき、局所的な出力ピークの抑制とスクラム失敗を伴う冷却材流量喪失事故時における受動的炉停止の見通しが得られた。また、この最適化炉心によっても、従来からの 3wt%MA 均質装荷酸化物燃料炉心の約 8 倍の MA 核変換率が達成された。本炉心は MA 核変換が不要な場合に、通常の U-Pu-Zr 合金燃料を装荷することで、平衡期炉心として運転できる柔軟性を有している。なお平衡期炉心の場合、SiC 減速材集合体を装荷することによって、高速中性子照射量が低減されるため、運転サイクルの延長(10%)が可能となるなどの利点を確認できた。

(2) 乾式再処理技術開発

(2-1) 液体 Ga 電極を用いたアクチニド／希土類分離回収技術開発

本研究で提案している MA 回収・核変換システムの根幹部分の成立性を明らかにするため、模擬使用済 MOX 燃料を出発物質として用いた電解還元による金属への転換／電解精製による液体 Ga 電極へのアクチニド回収からなる連続試験を実施し、マスバランスや共存 FP 元素挙動を調べた。模擬使用済 MOX ペレットは破碎した MOX ペレット (59wt%-U、28wt%-Pu、40ppm-Am) と模擬 FP (希土類および貴金属) を混合して加圧成型することにより作製した。

電解還元試験では、電解時の電位変化が典型的な還元反応の挙動を示し、還元試験後の試料の重量減少や還元生成物の SEM 観察により、電解によるペレットの還元が進行したことが分かった。還元生成物を陽極、液体 Ga を陰極として行った電解精製試験では、試験前後の浴塩および液体 Ga の濃度分析の結果、液体 Ga 電極へアクチニド元素が回収されていることが確認できた。また、アクチニドと希土類元素の分離性能は、過年度の結果と同等であったことから、本回収プロセスは実現可能であることが明らかとなった。

(2-2) 廃棄物の減容化技術開発

固体 Si 電極に回収した FP 処理技術開発における予備試験として、あらかじめ酸化させた LaSi_2 や CeSi_2 にガラス材料の $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ と SiO_2 、 CaO 、 Li_2O をガラス固化体の組成を考慮して適量混合し、大気雰囲気下で 1100°C まで加熱した結果、ガラスに転換されたことが XRD 分析により確認された。生成したガラスの断面を SEM-EDX で観察したところ、ガラスのマトリックス中に希土類元素 (特に Ce) の濃度が高い微粒子が集合してできたスポットが点在していることが分かった。本試験では、熔融塩電解で調製した CeSi_2 を用い、予備試験と同様の手順でガラス化されることが確認できた。

電解装置上部に Cu メッシュを設置し、金電極で発生した I_2 を CuI の形態で回収できることを確認した。グラッシーカーボン電極では、 I_3^- の発生と反対側の電極での I^- への再還元に伴う若干の電流効率低下 (金電極での 92.9% に対して 86.5%) が見られた。金電極は溶出が避けられなかったため、グラッシーカーボン電極を用いることが実用上最も適切と結論付けられた。グラッシーカーボン電極を用いた Ar フロー下での電解において、ガス出口管に接続したチューブ内に丸く巻いた Cu メッシュを複数個設置することにより、ヨウ素の回収が可能であることが分かった。Cu メッシュのヨウ化反応は十分速く進行するため、Cu メッシュを後段から前段へと順送りすることにより I_2 ガスを発生させながら、高い回収効率で CuI を連続して回収可能と期待できる。実機に適用できるシリサイド層剥ぎ取り・回収方法については今後検討の必要がある。

(2-3) 乾式再処理機器概念の構築とプロセス設計

電極表面に形成したシリサイドを剥ぎ取った後の Si 電極を繰り返し使用できることを確認した。これにより、シリサイド層成長による形成速度の低下を抑えて希土類回収を行うことが可能との見通しが得られた。

アクチニドの模擬物質として希土類 (Ce) を用いた工学規模 Ga 電解試験 (使用 Ga 量約 2kg) では、Pu の場合と異なり Ga 中における Ce 濃度が飽和溶解度に達すると表面に蓄積して固相を形成すること、飽和溶解度到達までの平均約 $1.5 \times 10^{-2} \text{ g-Ce h}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ (時間・Ga 電極表面積当たり) の速度で Ce が回収できることが分かった。

軽水炉 UO_2 燃料再処理で発生する高レベル廃液の乾式分離製品 (塩化物) と軽水炉 MOX 燃料の電解還元物 (金属) を乾式再処理に受け入れ、高濃度 MA 含有金属燃料を部分装荷した

MOX 高速炉炉心または全炉心装荷した金属燃料高速炉炉心で使用する金属燃料を製造する場合についてマテリアルバランス評価を行った。乾式再処理で液体 Cd 電極を使用すると燃料組成スペックを満たす回収 MA 量が不足する可能性があること、除染性能の高い液体 Ga 電極を使用すると乾式分離の段階で希土類 FP を除去する必要がないことなどが分かった。

(3) MA 回収・核変換シナリオと Pu/MA 収支の検討

原子力発電容量が 2030 年度時点における総発電量の～22% (～32GWe) で維持されるシナリオにおいて、本事業で設計された高濃度 MA 含有金属燃料を装荷する非均質炉心 (平成 30 年度) および均質炉心 (令和元年度) を導入する際の Pu および MA 収支を評価した。800t/年規模の湿式再処理が存在する状況下で、2.0GWe/10 年のペースで本炉心を導入する場合、非均質炉心に装荷する高濃度 MA 含有金属燃料を製造するため、使用済 MOX 燃料を処理する 16.5t/年規模の乾式再処理プラントを 10 年ごとにおよそ 5 基 (合計 82.6t/年) 導入する必要があることが明らかとなった。この場合、回収 MA が最大で 27.2t 蓄積し、およそ 60 年で高速炉サイクルに移行できると評価された。一方、均質に高濃度 MA 金属燃料を装荷する場合、回収 MA の最大蓄積量は 17.5t に低減され、およそ 20 年で高速炉サイクルに移行でき、それ以降は MA 添加率を低減できることが分かった。

(4) 研究推進

本研究の推進にあたっては連携機関間で研究進捗打ち合わせを実施し、業務の進捗状況や今後の試験・検討の進め方について情報共有と協議を行うことにより密に連携を保ちながら研究を進めた。

5. 本研究の総括

5.1 4カ年の成果のまとめ

平成 28 年度から令和元年度までの 4 年間にわたって行われた本研究の成果を、実施項目毎にまとめて以下に示す。

5.1.2 金属燃料および炉心開発

・高濃度 MA 含有金属燃料の設計と特性評価

- ✓ 国内外で評価された金属燃料の物性値や製造実績に関する公開データの調査結果などから、U-Pu-Zr 合金への MA 添加率の上限を Pu 富化度と同程度、希土類の混入率条件は数%以下と暫定した。
- ✓ 16wt%以上の高濃度に MA を含有する金属燃料を炉心の一部および全部に装荷した金属燃料炉心の核・熱流動設計の結果に基づき、それぞれ最も照射条件が厳しいと評価された燃料ピンの照射挙動を、当所開発の金属燃料挙動解析コード ALFUS によって解析し照射健全性を評価した。ALFUS は、高濃度 MA 含有金属燃料の照射後試験で観察された FP ガス放出率を模擬するようにあらかじめ調整した。その結果、いずれの燃料ピンにおいても被覆管のクリープ破損に関する累積損傷和 (CDF) は 1.0 を十分に下回り (3.8×10^{-3} 以下)、外径変形も 1.8-2.5%程度と評価され、照射期間を通じて高濃度 MA 含有金属燃料ピンの健全性が確保できる見通しが得られた。

・MA 含有金属燃料装荷炉心の最適化検討

- ✓ 外側炉心最外周に 16wt%MA 含有金属燃料を装荷した MOX 燃料炉心の核・熱特性解析を行い、3wt%MA 均質装荷 MOX 燃料炉心と同等の炉心安全性を確保しながら、約 1.6 倍の MA 核変換量を達成できることを確認した。
- ✓ さらに高い MA 核変換性能を達成するため、炉心全体に渡って高濃度 MA 含有金属燃料を装荷する MA 核変換用金属燃料炉心を設計した。高濃度の MA 装荷による炉心安全性の低下を防ぐため、SiC/SiC 複合材等による減速材を炉心内に分散装荷することで、ULOF 時にも受動的安全性を確保しながら、MA 含有 MOX 燃料炉心に比べて約 8 倍以上の MA 核変換量を達成できる見通しを得ることができた。

5.1.3 乾式再処理技術開発

・液体 Ga 電極を用いたアクチニド／希土類分離回収技術開発

- ✓ アクチニド(U、Pu、Am、Np、Cm)および FP(希土類、アルカリ、アルカリ土類)を含む溶融 LiCl-KCl 中(773 K)での液体 Ga 電極を用いた電解試験で得た試料の化学分析により、これまでに報告されていない Np および Cm の分離係数を評価した。アクチニドの分離係数は $U > Np > Pu > Am > Cm$ の順に大きくなり、電解電流密度と溶融塩中 U 濃度が小さいほど分離係数が大きくなる傾向が見られることがわかった。
- ✓ Pu を回収した液体 Ga 電極断面を SEM/EDX 分析したところ、Pu 含有析出物は断面上部よりも中央／下部に多く分布し、表面への蓄積による阻害なく Pu が Ga 中に回収され

る可能性が高いこと、Ga への飽和溶解度の 2 倍程度の濃度まで回収しても希土類との間の分離性能に変化が見られないことがわかった。

- ✓ MA 回収・核変換システムの根幹部分の成立性を明らかにするため、模擬使用済 MOX 燃料を出発物質として用いた電解還元による金属への転換／電解精製による液体 Ga 電極へのアクチニド回収からなる連続試験を実施した。電解還元試験では、試験前後の試料の重量変化からほぼ全体が還元されたことがわかった。また、電解精製試験後の液体 Ga 電極の化学分析結果から、高い希土類 FP 除染係数でアクチニドが回収されたことがわかった。これらの試験から、出発物質が酸化物燃料である場合にも、乾式再処理プロセスが本研究で提案されている MA 回収・核変換シナリオの成立に必要な性能を持つことが確認された。

・廃棄物の減容化技術開発

- ✓ 使用済塩化物溶媒からの希土類 FP 回収への適用を検討する予定であった液体 Ga 電極は、後段の回収 FP 酸化工程で自身が酸化物と転換されて廃棄物量を増加させる問題があることが判明した。このため代替電極材料として、固体 Si 電極への希土類元素 (Nd, Gd, Sm, Eu) の回収挙動を調べたところ、シリサイドを形成して回収可能であることがわかった。
- ✓ 使用済塩化物溶媒から固体 Si 電極への希土類模擬 FP 回収試験で得られた CeSi_2 を用い、ガラス材料の $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$ 、 SiO_2 、 CaO 、 Li_2O をガラス固化体の組成を考慮して適量混合し、大気雰囲気下で 1100°C まで加熱した結果、ガラスに転換されたことが XRD 分析により確認され、使用済塩中の希土類 FP 元素をガラス固化して廃棄物発生量を低減する方法の成立性が明らかになった。
- ✓ 臭素、ヨウ素の各イオンを含む溶融塩化物中での電解試験の結果から金電極あるいはグラッシーカーボン電極を用いた電解によりヨウ素が発生すること、電気化学測定の結果からヨウ素を臭素と塩素から分離して回収できる可能性が高いことが確認された。また、電解により発生したヨウ素を Ar フローによりガス出口管に導き、ここに接続したチューブ内に設置した Cu メッシュを用いて CuI の形態で回収可能なこと、複数設置した Cu メッシュを後段から前段へと順送りすることにより、高い回収効率での連続的な CuI 回収が期待できることがわかった。

・乾式再処理機器概念の構築とプロセス設計

- ✓ 電解精製工程でのアクチニド回収において希土類 FP に対する高い除染性能が期待できる液体 Ga 電極るつばに関して、 Al_2O_3 、 MgO 、 W は液体 Ga と反応しない安定な材料であることが明らかになった。また、液体 Ga 電極における処理速度向上には攪拌などによる液体 Ga 表面から内側への析出物移行促進が重要であることがわかった。これらの知見を反映して工学規模電解試験装置 (約 5kg-Ga) を設計・製作し、アクチニドの模擬元素として希土類元素 (Ce) が回収できることを確認した。
- ✓ 使用済塩化物溶媒からの希土類 FP 回収用の固体 Si 電極が、表面に形成したシリサイドを剥ぎ取った後も繰り返し使用できること、これによりシリサイド層成長による析

出希土類金属の電極内部への拡散に伴う回収速度制限を抑えて回収を行うことが可能との見通しが得られた。

- ✓ 軽水炉 UO_2 燃料再処理で発生する高レベル廃液の乾式分離製品と軽水炉 MOX 燃料の電解還元物を乾式再処理に受け入れ、高濃度 MA 含有金属燃料を部分装荷した MOX 高速炉炉心または全炉心装荷した金属燃料高速炉炉心で使用する金属燃料を製造するプロセスフローを構築した上でマテリアルバランス評価を行い、後述のシナリオおよび Pu/MA 収支の検討に供した。除染性能の高い液体 Ga 電極を使用すると乾式分離の段階で希土類 FP を除去しなくてもリサイクル燃料中希土類濃度が許容上限値以下にできること、液体 Cd 電極を使用すると製品中の希土類 FP/MA 比が上昇するためにリサイクル燃料組成スペックが満足できない場合があることなどがわかった。

5.1.4 MA 回収・核変換シナリオと Pu/MA 収支の検討

- ✓ 核燃料サイクルシナリオ検討に必要な炉型や燃焼度などのパラメータを整理し、各種原子炉の運転条件や燃料組成、装荷・取出量に関する公開情報を整理した。
- ✓ 原子力発電容量が 2030 年度時点における総発電量の約 22% (32GWe) で維持され 800t/年規模の軽水炉 U 燃料を対象とする湿式再処理が存在するという条件下で、マルチリサイクルも考慮した成立性が確認された 3 種類の炉心、(a)高濃度 MA 金属燃料を MOX 燃料炉心に部分装荷、(b)金属燃料炉心の一部に高濃度 MA 金属燃料を装荷、(c)SiC 減速材集合体を分散配置した金属燃料炉心に高濃度 MA 金属燃料を均質装荷、を用いた MA 回収・核変換シナリオについて、本研究で別途得られた MA 核変換量・回収性能評価結果を踏まえた Pu/MA の物質収支評価を行った。その結果、いずれのシナリオでも高い Pu/MA 蓄積量・放射毒性低減効果が得られるが、MA 最大蓄積量低減、高速炉サイクルへの MA 移行に要する期間短縮および放射毒性低減について、効果は(c) > (b) > (a)の順で大きいと評価された。例として、炉心(b)を用いるシナリオでは、非均質炉心に装荷する高濃度 MA 含有金属燃料を製造するため、使用済 MOX 燃料を処理する 16.5t/年規模の乾式再処理プラントを 10 年毎におよそ 5 基 (合計 82.6t/年) 導入する必要があり、回収 MA が最大で 27.2t 蓄積するが、およそ 60 年で高速炉サイクルに移行できると評価された。

5.2 本研究成果の総合的評価と位置付け

1 章で述べた通り、本研究は、「使用済燃料の対策の柱の一つとなり得る」技術として「将来の幅広い選択肢を確保するため、再処理で発生する高レベル廃棄物の深地層処分の着実な実施および使用済燃料直接処分の検討に加えて、放射性廃棄物の減容化・有害度低減などの技術開発を進める」という第 4 次エネルギー基本計画 (2014 年閣議決定) の方針に則り、金属燃料高速炉・乾式再処理技術を最大限に活用して、高次化への対応を含む計画的な Pu 利用、長期的なエネルギー安定供給、MA マルチリサイクルによる放射性廃棄物の有害度低減、を同時に満足すると共に、多様な高速炉導入シナリオに適応可能な燃料サイクル概念を実現するための技術的課題を解決するため、2016 年半ばに開始され、2019 年度までの 4 ヶ年にわたって実施されてきた。

本研究が開始された 2016 年半ば以降、我が国の核燃料サイクル政策とその研究開発方針に大

きな影響を与える動きが相次いだ。

- ・ 原子力関係閣僚会議にて高速原型炉「もんじゅ」の廃止措置の意向決定（2016年12月、その後2018年3月に廃止措置計画認可）
- ・ 日米政府間の民生用原子力研究開発ワーキンググループ（CNWG：Civil Nuclear Energy Research & Development Working Group）において、JAEA、電中研、米国エネルギー省の3機関が、金属燃料高速炉の安全性解析に関する新たなプロジェクトを開始（2018年5月）
- ・ フランス政府が建設コスト増を理由に高速実証炉「ASTRID」計画の大幅縮小（60万kWeから10～20万kWe）方針を表明（2018年6月）
- ・ 第5次エネルギー基本計画が閣議決定され、高速炉等の研究開発については米国や仏国等と国際協力を進めつつ取り組むとの方針を表明（2018年7月）
- ・ 米国エネルギー省が、新規に建設する多目的研究炉（VTR）プログラム支援技術として金属燃料モジュール型高速炉であるPRISM技術を選定（2018年11月）
- ・ 原子力関係閣僚会議が公表した「高速炉開発戦略ロードマップ」では高速炉導入時期について、技術や経験の段階的な蓄積・発展の必要性を勘案しつつ、例えば21世紀半ば頃の適切なタイミングにおいて、（中略）現実的なスケールの高速炉が運転開始されることが期待される、と記載（2018年12月）
- ・ 原子力イノベーションの創出促進のための政策（NEXIP：Nuclear Energy× Innovation Promotion）の一環として、経済産業省による「社会的要請に応える革新的な原子力技術開発支援事業」が開始され、民間の創意工夫を活かした開発提案に対して国がサポートを行うスキームでの革新炉研究開発スキームが発足（2019年4月）
- ・ 四国電力伊方原子力発電所3号機から我が国初の使用済MOX燃料取り出し（2020年1月）

また、日本原燃（株）が建設中の六ヶ所再処理工場について、2021年度中の竣工を目指して新規規制基準に対する適合性審査が大詰めを迎えており、程なく合格することが見込まれている。

これら一連の出来事を俯瞰すると、我が国の高速炉・核燃料サイクル技術開発と将来の原子力エネルギー利用方針を維持する上で「もんじゅ」の廃止は非常に大きなダメージであり、さらにフランスにおけるASTRID計画の縮小・停滞が「もんじゅ」を代替する研究開発進展とインフラ確保を困難にしている状況である。その一方で、日米間での高速炉研究開発協力の維持・拡大と米国における高速試験炉建設に向けた動きには期待が寄せられており、これらがいずれも米国で高速炉主要概念となっている金属燃料高速炉に関わる進展であることが注目される。

一方、六ヶ所再処理工場竣工後は本格的にMOX製品が生産されることになり、その蓄積を避けるためには必然的に軽水炉におけるPu利用（プルサーマル）が本格化することが予測される。伊方発電所からの取り出し時には、現在日本では使用済MOXの処置方法が定まっていないことが話題となっており、今後さらに多量の使用済MOXが蓄積する前に、これを処理可能な技術、特に国策として掲げられている高速炉およびその燃料サイクル技術の見極めとその実現性見通しが急がれている。

この状況下では、高速炉燃料サイクル技術に対して、前述した3つの要件（計画的なPu利用、

長期的なエネルギー安定供給、放射性廃棄物の有害度低減)に加えて、技術的蓄積と開発ステップの短さにより高い実現性を持つ上、多様な炉型および核燃料物質形態に適応し、幅広い Pu 需給シナリオに対応可能であることが求められる。

本研究では、MOX 利用を含む現行の軽水炉燃料サイクル、豊富な研究実績から早期実現が期待される酸化物高速炉燃料サイクル、広い Pu 燃焼～増殖可能性や高い MA 核変換効率、高 Pu/高線量/高発熱燃料への適合性などの観点から優れたポテンシャルを持つ金属燃料高速炉燃料サイクルからなる MA 回収・核変換システム(図 5-1)を提案し、その実現性を見通すため、表 5-1 に示す技術的課題に取り組んできた。前頁に掲げた近年の動きを経て、この研究開発の方向性とアプローチの妥当性は損なわれておらず、むしろ改めて非常に適確かつ有効であったと考えられる。この背景には、図 5-1 に示したシステムが多様なシナリオに対する優れた柔軟性を持っていることに加えて、1 章でも述べた金属燃料サイクル技術が持つ以下の利点が、現在高速炉燃料サイクルに求められている課題解決に適した特徴として際立っていることがある。

- ・金属燃料炉心の装荷重金属密度および中性子束が高いため MA 核変換効率が高い。
- ・いずれの MA 核変換システムにおいても、高い核変換率を達成するためには炉内装荷・MA 回収・リサイクル燃料製造を繰り返す必要がある。有機溶媒を用いない乾式再処理では熱や放射線による溶媒劣化がなく、燃料の炉外サイクル時間短縮と二次廃棄物低減の観点から、MA 含有燃料の多重リサイクルに適する。
- ・乾式再処理はバッチ式プロセスであるため、小規模でも経済性に優れる可能性がある。
- ・乾式再処理では、特に工程を付加しなくても MA が Pu と共に一括回収される。
- ・遠隔操作性に優れた射出鑄造技術により、比較的容易に MA 含有燃料が製造できる。

表 5-1 で挙げた技術的課題に対して、本研究では適切な実施項目を設け、5.1 で述べたようにそれぞれの目的を果たす成果を得た。すなわち、図 5-1 に示す金属燃料・乾式再処理技術を適用した MA 回収・核変換システムの実現に必要な高 MA 含有金属燃料の成立条件を明確化し、酸化物燃料高速炉心への金属燃料部分装荷から本格的な高速炉運用による高い Pu 需要に応える金属燃料全炉心装荷までを含む多様な炉心構成が安全性を保って成立することを示し、新たな TRU 回収用電極材料の適用などにより軽水炉使用済 MOX 燃料などサイクル内の様々な物質から MA を回収する乾式再処理プロセスフローが成り立つことを明らかにした。さらに、検討したいずれのシナリオに関する諸量評価においても、マルチサイクルにより数十年の間にサイクル外での Pu/MA 蓄積が解消可能なこと、またリサイクル燃料中 MA による放射毒性についても高い低減効果が得られることが示された。

この成果は、金属燃料・乾式再処理技術を適用することにより、我が国の核燃料サイクルの現在、将来の状況を鑑みて必要とされる要件である、計画的な Pu 利用、長期的なエネルギー安定供給、放射性廃棄物の有害度低減、多様な炉型および核燃料物質形態への適応、幅広い Pu 需給シナリオへの対応、の全てを満たす高速炉サイクル導入が可能であることが示している。

金属燃料・乾式再処理技術に技術レベルに関して、米国では長年にわたる金属燃料高速実験炉

EBR-II の運用と炉心安全技術開発、ならびにその燃料設計・製造と使用済燃料処理実績に示される実証レベルの技術基盤が蓄積されている。我が国においても、多様な金属燃料炉心設計、U-Pu-Zr 三元系金属燃料の製造、乾式再処理主要工程の小規模ホット実証、より高い性能・効率を目指したプロセス開発と工学規模機器開発などが進行中であるが、2018年6月に高速炉開発会議戦略ワーキンググループがとりまとめた「現時点で我が国が保有している高速炉サイクル技術に対する評価について ― 技術成熟度 (TRL) 評価結果 ―」においては、金属燃料に特有の高速炉技術の TRL は開発段階である 4~5、金属燃料サイクル技術 (再処理、燃料製造) の TRL は一部について実証段階初期である 6、それ以外は 4~5 とされている。

今後、金属燃料・乾式再処理からなる金属燃料サイクル技術全体を実証段階にレベルアップするためには、以下の研究開発が必要と考えられる。

- ✓ 金属燃料に特有の燃料挙動を踏まえた、仮想的な炉心損傷事故時の安全評価モデルの検証
- ✓ 国内炉心設計で求められる高燃焼度化・高温化に応える U-Pu-Zr 燃料ピンの照射試験による実証
- ✓ リサイクル燃料を用いた工学規模での遠隔燃料製造技術の実証
- ✓ 電解還元工程をはじめとする乾式再処理各工程のプロセス最適化と機器の工学設計・開発による処理速度向上
- ✓ 電解還元工程における酸素発生電極や酸素と接触する構造物、高温での燃料合金溶融するつばなど、厳しい処理条件下での使用に耐える材料の開発
- ✓ 乾式再処理で発生する使用済溶融塩処理プロセスの確立と用いられる機器概念の構築
- ✓ 使用済溶融塩処理などで発生する廃棄物発生量の低減と処分概念の構築
- ✓ 乾式再処理プロセス機器および施設の遠隔操作対応設計
- ✓ 乾式再処理・金属燃料製造施設に適用する計量管理技術とシステムの開発

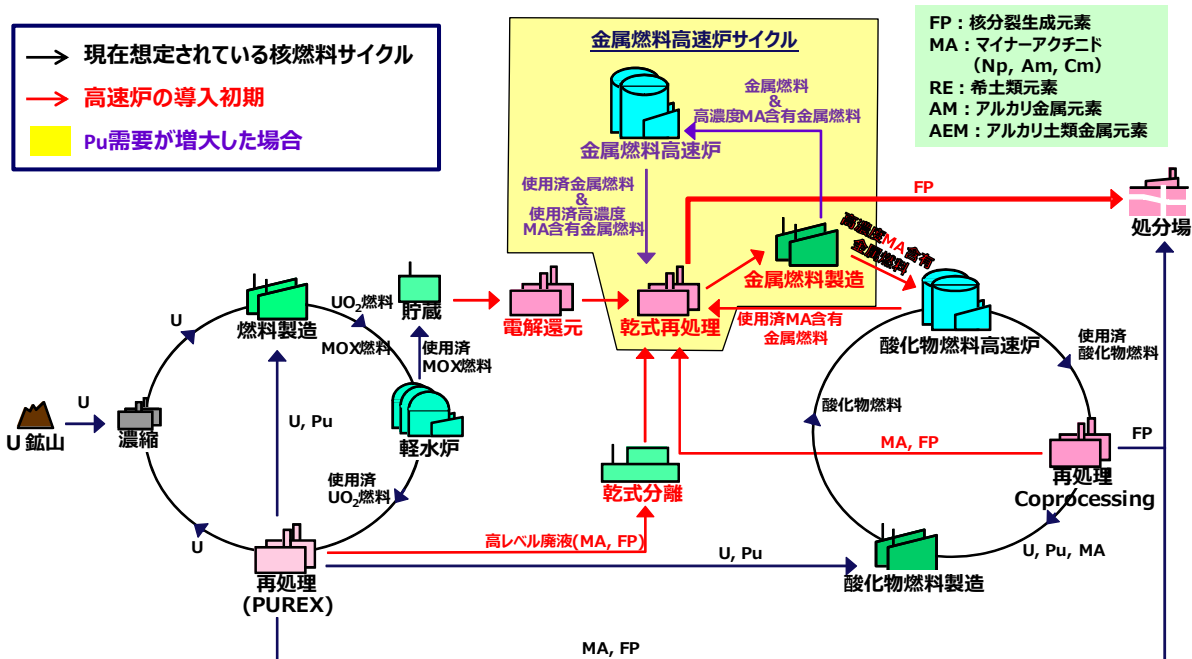
これらの中で、MA リサイクル燃料、特に高濃度 MA 含有燃料の場合には、Pu と MA 組成比の明確化や Am の揮発を抑制する燃料製造法の検討の他、MA を含む不純物 FP と被覆管との共存性や燃料合金からの FP ガス放出率の時間変化など、本研究における解析・評価をフォローする照射試験によるデータ拡充が必要である。また、本研究で成立性が確認された液体 Ga 電極による高除染アクチニド回収技術や廃棄物発生量低減をもたらす新たな塩廃棄物処理・廃棄物固化技術については、スケールアップ試験による工学設計データ取得と実用機器概念の構築ならびに処理速度向上が次のステップにおける課題となる。これらの研究開発は、高い MA 回収・核変換性能をはじめとする金属燃料高速炉サイクル技術のアドバンテージを実証するものであり、優先度を高くして実施することが効率的な技術到達度向上と実用化に向けた進展となる。

一方で、金属燃料高速炉のシステムは酸化物燃料の場合と共通であり特別な開発は不要であること、乾式再処理はバッチ式であるため小規模でも経済性が低下せず、実証規模から実用規模までは機器数拡大により対応可能であるため開発のステップと負担が少ないことが特徴である。今後、国が進める原子力イノベーションの創出促進のための政策 (NEXIP) の中で行われる各種事

業などに本研究成果を積極的に利用し、上記の特徴を活かした金属燃料サイクル導入シナリオ検討、および実用化に向けた研究開発の推進に活用していくことが、我が国の核燃料サイクル政策と将来世代のエネルギー需要を支える技術確立のために有効と考えられる。

表 5-1 本研究の目的、解決のための課題と達成目標と本研究における実施項目

本提案での目的	技術的課題、達成目標	実施項目
MA添加金属燃料を一部／全部に装荷した高速炉炉心の運用方法見通しを得る	(1) 金属燃料および炉心開発	
	高濃度MA含有金属燃料の成立条件（製造時、運転時）の明確化	(1-1) 高濃度MA含有金属燃料の設計と特性評価
種々の出発物質からの乾式法によるMA回収技術を実証する	MA含有金属燃料装荷炉心の安全性とMA核変換性能の両立	(1-2) MA含有金属燃料装荷方法の最適化検討
	(2) 乾式再処理技術開発	
	燃料製造に適した組成のMA回収	(2-1) 液体Ga電極を用いたアクチノイド／希土類分離回収技術開発
	燃料サイクルで発生する高レベル廃棄物体積の最小化	(2-2) 廃棄物の減容化技術開発
多重リサイクルによるMA核変換特性を明らかにする	再処理プロセス実証に向けた設計データ取得	(2-3) 乾式再処理機器概念の構築とプロセス設計
	(3) MA回収・核変換シナリオと Pu/MA収支の検討	
	MA回収・核変換システム全体の整合と放射毒性低減効果の提示	MA回収・核変換シナリオとPu/MA収支の検討



軽水炉MOXや高速炉酸化物燃料に対しても、乾式によるMA回収技術を実証し、MA含有金属燃料を一部あるいは全部に装荷した高速炉炉心の運用方法の見通しと多重リサイクルによるMA核変換特性を明らかにすれば、様々な高速炉導入シナリオやPu需給シナリオに柔軟に対応できるMA回収・核変換システムを構築可能

図 5-1 本研究で提案した、高速炉金属燃料と乾式再処理技術の導入による柔軟性の高いMA回収・核変換システムの概念