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 原子カシステム研究開発事業

早期実用化を目指した MA-Zr 水素化物を 用いた核変換処理に関する研究開発

成果報告書

令和 2 年 3 月 国立大学法人 東北大学

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、国立大 学法人 東北大学が実施した平成28年度-2019年度「早期実用化を目指したMA-Zr水素 化物を用いた核変換処理に関する研究開発」 の成果を取りまとめたものです。

目次

概略x	(iii
1. はじめに	-1
2. 業務計画	
2.1 全体計画	-1
2.2 令和元年度の成果の目標及び業務の実施方法2.2	?-1
2.2.1 MA-Zr 水素化物開発2.2	?-1
2.2.1.1 MA-Zr 合金作製2.2	2–1
2.2.1.2 MA-Zr 水素化物作製2.2	2–1
2.2.1.3 物性測定	2–1
2.2.1.4 リサイクル前処理技術2.2	2–1
2.2.2 照射挙動評価	2–1
2.2.2.1 模擬 FP 含有試料の物性試験(再委託先:大阪大学, N F D)2.2	2–1
2.2.2.2 模擬試料照射後試験(再委託先:NFD)	2–1
2.2.3 安全性技術開発	2-2
2.2.3.1 定常運転時安全性2.2	2-2
2. 2. 3. 2 事故時安全性	2-2
2.2.4 システム評価	2-2
2.2.4.1 設計研究による成立性と有効性に関する研究(再委託先:MFBR)2.2	2-2
2.2.4.2 核燃料システム評価(再委託先:NDC)	2-2
2.2.5 研究推進	2–3
3. 業務の実施内容及び成果	
3.1 MA-Zr 水素化物開発【H28-R1】3.1.1.1	-1
3.1.1 MA-Zr 合金作製【H28-H30】3.1.1.1	-1
3.1.1.1 平成 28 年度~平成 30 年度 作製技術開発	2–1
3.1.1.2 MA-Zr 合金作製3.1.1.2	2–1
3.1.2 MA-Zr 水素化物作製【H28-R1】3.1.2.1	-1
3.1.2.1 作製技術開発(再委託先:大阪大学)	-1
3.1.2.2 水素化物作製3.1.2.2	2–1
3.1.3 物性測定 【H28-R1】3.1.3.1	-1
3.1.3.1 物性値傾向把握(再委託先:大阪大学)	-1
3.1.3.2 物性測定	2–1
3.1.4 リサイクル前処理技術 【H30-R1】3.1.4.1	-1
3.1.4.1 技術開発【H30】(再委託先:NFD)	-1
3.1.4.2 前処理試験【R1】3.1.4.2	2-1
3.2照射挙動評価【H30-R1】3.2.1	-1
3. 2. 1 模擬 FP 含有試料の物性試験(再委託先:大阪大学) 3. 2. 1	-1
3.2.1.1 物性試験【H30-R1】3.2.1	-1

3.2.2 模擬試料照射後試験【H30-R1】(再委託先:NFD)	3. 2. 2–1
3.2.2.1 光学顕微鏡観察	3. 2. 2–1
3.2.2.2 走査型電子顕微鏡(SEM)観察	3. 2. 2–5
3.2.2.3 透過型電子顕微鏡(TEM)観察	3. 2. 2–16
3.2.2.4 スエリング評価	3. 2. 2–26
3.2.2.5 X 線回折及び硬度試験のデータ解析	3. 2. 2–26
3.2.2.6 低密度ペレットの作製	3. 2. 2–29
3.3 安全性技術開発【H28-R1】	3. 3. 1–1
3.3.1 定常運転時安全性	3. 3. 1–1
3.3.2 事故時安全性【H28-R1】	3. 3. 2–1
3.4 システム評価	3. 4. 1–1
3.4.1 設計研究による成立性と有効性に関する研究【H28-R1】(再委託先:M	FBR) 3.4.1-1
3.4.2 核燃料システム評価【H28-R1】(再委託先:NDC)	3. 4. 2. 1–1
3.4.2.1 システム適合性評価	3. 4. 2. 1–1
3.4.2.1.1 平成 28 年度システム適合性評価【H28】	3. 4. 2. 1–1
(1)ターゲット製造・輸送時の被覆管の許容温度	3. 4. 2. 1–1
(2)ターゲット集合体冷却性評価のための熱流動解析、試計算	3. 4. 2. 1–1
3.4.2.1.2 平成 29 年度システム適合性評価【H29】	3. 4. 2. 1–2
(1)ターゲット集合体組み立て・輸送時の被覆管の許容温度	3. 4. 2. 1–2
(2) 定常熱流動解析	3. 4. 2. 1–2
(3) 冷却機能喪失時の過渡温度評価	3. 4. 2. 1–2
3.4.2.1.3 平成 30 年度システム適合性評価【H30】	3. 4. 2. 1–3
(1)目的	3. 4. 2. 1–3
(2) 送風機の選定	3. 4. 2. 1–3
(3) 送風機の設置及び輸送構造概念	3. 4. 2. 1–3
(4)バンドル構成方法の検討	3. 4. 2. 1–4
(5) ラッパ管装荷方法の検討	3. 4. 2. 1–5
(6) まとめ	3. 4. 2. 1–6
3.4.2.1.4 令和元年度システム適合性評価【R1】	3. 4. 2. 1–7
(1) 生成するプルトニウムのサイクルシステムに与える影響対策検討	3. 4. 2. 1–7
(2)サイクルシステム成立性に係わる検討	3. 4. 2. 1–10
3.4.2.2 マテリアルバランス (MB)評価【H28-R1】 (再委託先:NDC)	3. 4. 2. 2–1
(1)目的	3. 4. 2. 2–1
(2)MA 核変換型導入時の MB 評価の試計算【H28】	3. 4. 2. 2–1
① 軽水炉計算条件整備、試計算	3. 4. 2. 2–1
 高速炉計算条件整備、試計算 	3. 4. 2. 2–2
 MB評価の試計算に関するまとめ 	3. 4. 2. 2–3
(3)軽水炉単独シナリオの MB 評価【H29-H30】	3. 4. 2. 2–5
(4) MA 変換型導入シナリオの MB 評価【R1】	3. 4. 2. 2–8

① 高速炉炉心選定の考え方	
② 最初のケース (Am 変換率:約 25%、Am 年間消費量	量:約 90kg/EFPY)(平成 30 年度、ケ
ース 0)	
③ Am 消滅量を高くしたケース (Am 変換率 : 約 14%、	Am 年間消滅量:約 125kg/EFPY)
(令和元年度、ケース 1)	
④ Am 消滅量をさらに高くしたケース (Am 変換率:;	約12%、Am 年間消滅量:約
130kg/EFPY) (R1 年度、レファレンスケース)	
(5) 軽水炉単独シナリオと MA 変換型導入シナリオの.	比較【R1】3.4.2.2-21
① Am 量	
② Pu-f 量	
(6) 将来に関する考察【R1】	
(7)MB 評価のまとめ【R1】	
3.5研究推進	
4 結言	

図表一覧

表 3.1.1.1-1 アーク溶解による希土類元素の蒸発
表 3.1.2.1-1 Nd-Zr 水素化物及び模擬 FP 含有 Nd-Zr 水素化物試料の密度と格子定数(H28
H30)
表 3. 1. 3. 2-1 合金 65. 71Zr-9. 78Fe-5. 05AI-19. 45Am(vol%)の水素化による密度変化
表 3.1.3.2-2 元素分析結果(径方向中心位置、領域 2)
表 3. 1. 4. 2−1 溶融塩中の Am と Zr の含有量の時間変化
表 3.2.1.1-1 低密度水素化物試料の密度と水素比率(R1)
表 3. 2. 2. 3-1 ペレット中央部に形成したキャビティのサイズと数密度
表 3. 2. 2. 6-1 作製した Zr 及び Zr-Nd ペレットの密度
表 3. 4. 1-1 炉心及び径ブランケット燃料集合体の仕様・照射条件に対する制約条件
表 3.4.1-2 ターゲットの仕様・照射条件に対する制約条件
表 3.4.1-3 主要 MA 核種の特性3.4.1-1
表 3.4.1-4 核変換への効用の観点からの MA 核種の分析
表 3.4.1-5 最適化炉心検討用の主要炉心仕様
表 3.4.1-6 核変換炉(原型炉仕様炉心と最適化炉心)の主要な炉心核特性3.4.1-1-
表 3.4.1-7 MA 組成感度解析ケース 3.4.1-1-
表 3.4.1-8 装荷 MA 組成に応じた最適化炉心での炉心特性及び MA 核変換特性への影響
表 3.4.2.1.4-1 NRA 乾式貯蔵輸送・貯蔵兼用ラック基準
表 3. 4. 2. 1. 4-2 もんじゅ燃料集合体主要仕様
表 3.4.2.2-1 軽水炉単独シナリオ(H30)*1と MA 核変換型導入シナリオ(ケース 1) の燃料+
イクル全体の Am 量の比較結果
表 3.4.2.2-2 軽水炉単独シナリオ(H30)*1と MA 核変換型導入シナリオ(最終ケース)の燃料
サイクル全体の Am 量の比較結果
表 3.4.2.2-3 軽水炉単独シナリオ(H29、H30)の MB 評価計算結果及び MA 核変換型導入シナ
リオの MB 評価計算結果(H30、R1)

図一覧

図 2.1-1 全体計画図
図 3.1.1.1-1 Sm 分布に及ぼす冷却速度の影響(EDS 像)
図 3.1.1.1-2 メカニカルアロイ法により混合した Zr-10at%Nd における Nd 分散状態
(処理時間3時間、B/S比=6.9)
図 3.1.1.1-3 メカニカルアロイ法により混合した Zr-10at%Nd における Nd 分散状態
(処理時間3時間、B/S比=10.7)
図 3.1.1.1-4 メカニカルアロイ法により混合した Zr-10at%Nd における Nd 分散状態
(アジテータ回転速度 300rpm、B/S 比=10.7)
図 3. 1. 1. 1-5 メカニカルアロイ法により混合した Zr-10at%Nd の X 線回折測定(Cu-Kα)結果
図 3. 1. 1. 1-6 800℃-59MPa でホットプレスした Zr-10at%Nd の BSE 像と元素分布
図 3. 1. 1. 1-7 760℃-101MPa でホットプレスした Zr-10at%Nd の BSE 像と元素分布
図 3.1.1.1-8 アーク溶解により調製した Zr-10at%Nd 合金の水素化後元素分布3.1.1.1-7
図 3.1.1.1-9 メカニカルアロイ法により調製した Zr-10at%Nd 合金の水素化後元素分布
図 3.1.1.1-10 低融点合金化により調製した ZrFeAl-Nd 合金の水素化後元素分布.3.1.1.1-7
図 3.1.1.2-1 AmO₂の電極での還元反応3.1.1.2-1
図 3.1.1.2-2 AmO2還元用反応セル3.1.1.2-1
図 3.1.1.2-3 還元によって得られた金属 Am
図3.1.1.2-4 Am-ZrFeAl 合金ペレットの外観3.1.1.2-2
図 3.1.1.2-5 Am-ZrFeAl 合金ペレットの走査電子顕微鏡観と元素分析3.1.1.2-3
図 3.1.2.1-1 ジーベルツ装置の概略図(H29-R1)
図 3.1.2.1-2 水素化温度プログラム(H28-R1)
図 3.1.2.1−3 Nd _{0.1} Zr _{0.9} 試料の(a)合金及び(b)水素化物の外観(H28)3.1.2.1−8
図 3.1.2.1-4 Nd-Zr 合金試料の FE-SEM 観察像及び元素マッピング(H29) 3.1.2.1-8
図 3.1.2.1-5 Nd-Zr 合金試料の XRD パターン(Cu-Kα)
図 3.1.2.1-6 Nd-Zr 水素化試料の FE-SEM 観察像及び元素マッピング(H29) 3.1.2.1-9
図 3.1.2.1-7 Nd-Zr 水素化物試料の XRDパターン(Cu-Kα)(H29)3.1.2.1-10
図 3. 1. 2. 1−8 模擬 FP 含有合金試料の FE−SEM 観察像及び元素マッピング (a)Ce _{0. 05} Nd _{0. 1} Zr _{0. 85}
(b) $Ag_{0.05}Nd_{0.1}Zr_{0.85}$ (H30)
図 3. 1. 2. 1−9 模擬 FP 含有水素化物試料の FE−SEM 観察像及び元素マッピング
(a) $Ce_{0.05}Nd_{0.1}Zr_{0.85}$ (b) $Ag_{0.05}Nd_{0.1}Zr_{0.85}$ (H30)
図 3. 1. 2. 1-10 模擬 FP 添加水素化物試料の XRD パターン (a) Ce-Nd-Zr (b) Ag-Nd-Zr (縦
軸対数) (H30) 3.1.2.1-13
図 3.1.2.1-11 ε相 Zr 水素化物試料の XRD パターン(縦軸対数) (R1)

図 3.1.2.1-12 ZH1.9 試料の EBSD 観察結果 (R11)......3.1.2.1-14 図 3.1.2.1-13 ZrH1 』 試料の結晶方位マップにおける隣接する領域の(101) 極点図(R1) 図 3.1.2.2-1 水素吸収装置を設置している不活性雰囲気グローブボックス..... 3.1.2.2-1 図 3.1.2.2-2 水素吸収用反応セル......3.1.2.2-2 図 3.1.2.2-3 水素吸収過程の水素圧力と温度履歴......3.1.2.2-2 図 3.1.3.1-1 Nd0.1Zr0.9 水素化物試料の熱拡散率の温度依存性(H29)3.1.3.1-5 図 3.1.3.1-2 1%02-Ar ガスフロー下における Nd0.1Zr0.9 水素化物試料の熱拡散率測定時の 酸素分圧変化(H29) 3.1.3.1-5 図 3.1.3.1-3 Nd-Zr 水素化物試料の熱拡散率の温度依存性(H28, H29) 3.1.3.1-6 図 3.1.3.1-4 Nd-Zr 水素化物試料の熱伝導率の温度依存性(H28,H29).....3.1.3.1-6 図 3.1.3.1-5 模擬 FP 含有水素化物試料の熱拡散率の温度依存性(H30).....3.1.3.1-7 図 3.1.3.1-6 模擬 FP 含有水素化物試料の熱伝導率の温度依存性(H30).....3.1.3.1-7 図 3.1.3.1-9 縦波音速、横波音速、ポアソン比の組成依存性(H28-R1)......3.1.3.1-9 図 3.1.3.1-10 ヤング率の組成依存性(H28-R1)......3.1.3.1-9 図 3.1.3.1-11 ビッカース試験後の圧痕像(H30).....3.1.3.1-10 図 3.1.3.1-12 ビッカース硬度の組成依存性(H28-R1)......3.1-10 図 3.1.3.2-1 水素化後のペレット外観......3.1.3.2-1 図 3.1.3.2-2 水素化物のペレット(試料3)外観......3.1.3.2-2 図 3.1.3.2-4 水素化物ペレットの中心部組織......3.1.3.2-3 図 3.1.3.2-5 径方向中心位置での電子顕微鏡像と元素分布......3.1.3.2-4 図 3.1.3.2-6 電子顕微鏡画像(径方向中心位置、領域 2、二次電子像)と元素分布ポイント 図 3.1.3.2-7 水素化物の X 線パターン 65.71Zr-9.78Fe-5.05Al-19.45AmHx (δ-水素化物相デルタ、BeO-BeO 相線、Be-金属 Be 相線) 3.1.3.2-5 図 3.1.4.1-1 溶解試験用試料作製のための酸化前試料外観......3.1.4.1-3 図 3.1.4.1-2 溶解試験用酸化物外観......3.1.4.1-3 図 3.1.4.1-6 不溶解残渣の X 線回折パターン(Cu-K a)...... 3.1.4.1-4 図 3.1.4.2-2 LiCI-KCI 溶融塩 3.1.4.2-1

図 3.1.4.2-5	溶融後試料の外観	3. 1. 4. 2–3
図 3. 2. 1. 1-1	Nd-Zr 水素化物試料の熱伝導率の組成依存性(H30)	3. 2. 1–5
図 3. 2. 1. 1-2	模擬 FP 含有 Nd-Zr 水素化物の熱伝導率の組成依存性(H30)	3. 2. 1–5
図 3. 2. 1. 1-3	300 Kにおける熱伝導率(H30)	3. 2. 1–6
図 3. 2. 1. 1-4	低密度水素化物試料の熱拡散率の温度依存性(R1)	3. 2. 1–6
図 3. 2. 1. 1-5	低密度水素化物試料の熱伝導率の温度依存性(R1)	3. 2. 1–7
図 3. 2. 1. 1-6	熱拡散率測定後の低密度水素化物試料の XRD パターン(R1)	3. 2. 1–7
図 3. 2. 2. 1-1	照射済み U-Th-Zr 水素化物横断面のマクロ写真	3. 2. 2–2
図 3. 2. 2. 1-2	11U2 の詳細観察位置と詳細観察結果	3. 2. 2–3
図 3. 2. 2. 1-3	11U3 の詳細観察位置と詳細観察結果	3. 2. 2–4
図 3. 2. 2. 2-1	短冊状に切断後の金相写真と各領域の金相写真(11U-2TEM)	3. 2. 2–6
図 3. 2. 2. 2-2	短冊状に切断後の金相写真と各領域の金相写真(11U-3TEM)	3. 2. 2–7
図 3. 2. 2. 2-3	(1) 11U2 の EDS 分析結果(A:最外周)	3. 2. 2–8
図 3. 2. 2. 2-3	(2) 11U2 の EDS 分析結果(B:外周)	3. 2. 2–9
図 3. 2. 2. 2-3	(3) 11U2 の EDS 分析結果(C:中間)	. 3. 2. 2–10
図 3. 2. 2. 2-3	(4) 11U2 の EDS 分析結果(D:中央)	. 3. 2. 2–11
図 3. 2. 2. 2-4	(1) 11U3 の EDS 分析結果(A:最外周)	. 3. 2. 2–12
図 3. 2. 2. 2-4	(2) 11U3 の EDS 分析結果(B:外周)	. 3. 2. 2–13
図 3. 2. 2. 2-4	(3) 11U3 の EDS 分析結果(C:中間)	. 3. 2. 2–14
図 3. 2. 2. 2-4	(4) 11U3 の EDS 分析結果(D:中央)	. 3. 2. 2–15
図 3. 2. 2. 3-1	11U-2TEM 及び 11U-3TEM の TEM 像(明視野像)	. 3. 2. 2–17
図 3. 2. 2. 3-2	TEM 試料 膜厚測定方法の模式図	. 3. 2. 2–18
図 3. 2. 2. 3-3	11U-2TEM の中央部における EDS マッピング	. 3. 2. 2–19
図 3. 2. 2. 3-4	11U-2TEM の外周部における EDS マッピング	3. 2. 2–20
図 3. 2. 2. 3-5	11U-3TEM 中央部における EDS マッピング	. 3. 2. 2–21
図 3. 2. 2. 3-6	11U-3TEM の外周部における EDS マッピング	. 3. 2. 2–22
図 3. 2. 2. 3-7	11U-2TEMのTEM画像	. 3. 2. 2–23
図 3. 2. 2. 3-8	11U-3TEMのTEM画像	. 3. 2. 2–24
図 3. 2. 2. 3-9	中央部におけるキャビティサイズと数密度の関係	. 3. 2. 2–25
図 3. 2. 2. 5-1	ビッカース硬さの径方向分布	. 3. 2. 2–27
図 3. 2. 2. 5-2	照射後水素化物の断面金相	3. 2. 2–27
図 3. 2. 2. 5-3	Zr 水素化物の水素濃度による硬さの変化	3. 2. 2–28
図 3. 2. 2. 5-4	照射済み UTh₄Zr10H20 ペレット(燃焼度 0.2%FIMA)の X 線回折試験網	果
		. 3. 2. 2–28
図 3. 2. 2. 6-1	Zr ペレット表面の金相観察	. 3. 2. 2–30
図 3. 2. 2. 6-2	Zr ペレット表面の二次電子像	. 3. 2. 2–31
図 3. 2. 2. 6-3	Zr-Nd ペレット表面の二次電子像及び反射電子像	3. 2. 2–32
図 3. 2. 2. 6-4	Zr-Nd ペレット表面における EDS 分析結果	3. 2. 2–33
⊠ 3.3.1-1 Na	・充填キャプセル用水素放出試験装置	3. 3. 1–1

図 3.3.1-2 改良型 Na 充填なしキャプセルの水素放出試験結果(H30)3.3.1-2
図 3.3.1-3 Na 充填済みキャプセルの水素放出試験結果(H30)3.3.1-2
図 3.3.1-4 Zr 重水素化物からの水素放出試験(510°C)(R1)3.3.1-3
図 3.3.1-5 重水素化物からの水素放出試験(610°C)(R1)3.3.1-3
図 3.3.1-6 Zr 重水素化物からの水素放出試験(710°C)(R1)3.3.1-3
図 3.3.2-1 水素放出実験装置 3.3.2-1
図 3.3.2-2 水素化物からの水素放出試験結果 (H30)3.3.2-2
図 3.3.2-3 Zr 水素化物からの水素放出強度の酸素濃度による変化(R1)3.3.2-2
図 3.3.2-4 GD-OES で測定された試料 2 の深さ方向元素分布 (H30) 3.3.2-3
図3.3.2-5 試料2の表面酸化物とその下地の Zr 水素化物の元素分析 (R1)
図 3.3.2-6 第一原理計算による Zr 水素化物表面からの水素放出のシミュレーション結果
(白:水素原子、緑:Zr 原子)
図 3.3.2-7 水素分子を形成する過程の2個の水素原子の軌跡 (白:水素原子、青と紫:水素
分子を作る水素原子、緑:Zr 原子)
図 3.3.2-8 Zr 水素化物表面に吸着した酸素の挙動 (白:水素原子、赤:酸素原子、緑:Zr
原子) 3.3.2-6
図 3.3.2-9 試験後の試料 2 の水素高密度化現象のメカニズム3.3.2-6
図 3.3.2-10 凝集エネルギーと欠陥生成エネルギー3.3.2-7
図 3.4.1-1 炉心計算フロー3.4.1-16
図 3.4.1-2 燃焼チェーン 3.4.1-16
図 3.4.1-3 MA-Zr の水素化物と合金の場合の吸収断面積と各種スペクトルの比較
図 3.4.1-4 MA/(Zr+MA)比及び H/(Zr+MA)比に応じた中性子及び吸収反応率のスペクトルの比
較
図 3.4.1-5 MA/(Zr+MA)比に応じた捕獲及び核分裂ミクロ断面積の比較3.4.1-17
図 3.4.1-6 照射済みターゲットの崩壊熱の経時変化3.4.1-17
図 3. 4. 1-7 非均質体系と均質体系における燃料集合体内の燃焼領域分割の相違例
図 3.4.1-8 非均質体系計算で得られた中性子束及び線出力の分布3.4.1-18
図 3.4.1-9 集合体内水平方向のメッシュ分割に応じた最大線出力評価値の比較3.4.1-18
図 3.4.1-10 照射下でのターゲット中の Cm-242 量の燃焼変化
図 3.4.1-11 ターゲット装荷の有無に応じた出力分布の比較
図 3.4.1-12 見直し方策 A 及び B を採用した場合の径方向最大線出力分布の変化
図 3.4.1-13 仮置き位置での全中性子束レベルに応じた Cm-242 量の変化挙動3.4.1-20
図 3.4.1-14 ターゲット仮置き位置と炉外中性子計装位置との位置関係3.4.1-20
図 3.4.1-15 Am-Zr 水素化物ターゲットを用いた Am 核変換炉の最適化炉心の炉心構成

図 3.4.1-16 最適化炉心での Am 核変換特性	3. 4. 1–21
図 3.4.1-17 最適化炉心でのガス生成量	3. 4. 1–22
図 3.4.1-18 種々の MA 核変換方策に対する最適化炉心での Am 核変換特性の比較	Ż
	3. 4. 1–22
図 3.4.1-19 軽水炉取り出し燃料からの MA に対する Am 及び Np 組成変動範囲の	評価結果
	3. 4. 1–22
図 3.4.1-20 軽水炉取り出し燃料からの MA に対する Cm 組成変動範囲の評価結:	果.3.4.1-23
図 3.4.1-21 装荷される MA 組成に応じた最大線出力及びナトリウムボイド反応	度の比較
	3. 4. 1–23
図 3.4.1-22 ターゲットの装荷組成に応じた出力特性の燃焼変化	3. 4. 1–24
図 3.4.1-23 装荷組成に応じた組成変化(パラメータ:ターゲットの Am-241/A	m比)
	3. 4. 1–24
図 3.4.1-24 装荷組成に応じた組成変化 (パラメータ:ターゲットの Cm/(Am+C	m)比)
	3. 4. 1–24
図 3.4.1-25 装荷組成に応じた組成変化 (パラメータ:炉心燃料の Np/(Np+Pu)	比)
	3. 4. 1–25
図 3.4.1-26 種々の MA 組成を装荷した場合の核変換特性の比較	3. 4. 1–25
図 3.4.2.1.3-1 ターゲット集合体冷却機構概念	3. 4. 2. 1–4
図 3.4.2.1.3-2 ターゲット要素バンドル組み立て概念	3. 4. 2. 1–5
図 3.4.2.1.3-3 ラッパ管装荷概念	3. 4. 2. 1–6
図 3.4.2.1.4-1 軽水炉運転継続シナリオ	3. 4. 2. 1–7
図 3.4.2.1.4-2 軽水炉運転使用済み燃料再処理シナリオ	3. 4. 2. 1–7
図 3.4.2.1.4-3 小型高速炉導入時の軽水炉発電計画	3. 4. 2. 1–9
図 3.4.2.1.4-4 小型高速炉導入時の再処理量の推移	3. 4. 2. 1–9
図 3.4.2.1.4-5 小型高速炉導入時の使用済み燃料貯蔵量の推移	3. 4. 2. 1–9
図 3.4.2.1.4-6 ターゲットの輸送キャスク装荷までの流れ	. 3. 4. 2. 1–10
図 3.4.2.1.4-7 ターゲット集合体冷却機構概念	. 3. 4. 2. 1–11
図 3.4.2.1.4-8 三菱重工輸送・貯蔵兼用キャスク	. 3. 4. 2. 1–13
図 3.4.2.1.4-9 四電設計乾式キャスク	. 3. 4. 2. 1–14
図 3.4.2.1.4-10 神戸製鋼乾式貯蔵キャスク	. 3. 4. 2. 1–14
図 3.4.2.1.4-11 東電輸送貯蔵兼用キャスク(構造図と仕様)	. 3. 4. 2. 1–15
図 3. 4. 2. 1. 4-12 ターゲット集合体輸送キャスク概念図	. 3. 4. 2. 1–17
図 3. 4. 2. 1. 4-13 ターゲット集合体輸送キャスクを原子炉サイトまで運送する	概念
	3. 4. 1–18
図 3.4.2.2-1 軽水炉 1GWe 運転で生ずる MA 量(単位:ton)	3. 4. 2. 2–4
図 3.4.2.2-2 280MWe 高速炉の燃焼による燃料組成の変化	3. 4. 2. 2–4
図 3.4.2.2-3 核変換用小型高速炉の燃焼による燃料組成の変化	3. 4. 2. 2–4
図 3.4.2.2-4 軽水炉運転と再処理を継続した時の Pu 量の推移(H29)	3. 4. 2. 2–7
図 3.4.2.2-5 軽水炉運転と再処理を継続した時の MA 量の推移(H29)	3. 4. 2. 2–7

図 3.4.2.2-6	軽水炉単独シナリオにおける燃料サイクル全体の Am 量の推移(H30)
図 3.4.2.2-7	炉心検討による最適化炉心3.4.2.2-8
図 3. 4. 2. 2-8	Am/Zr + Am と Cm 生成量の関係 3.4.2.2-8
図 3. 4. 2. 2-9	小型高速炉③の運転基数3.4.2.2-10
図 3.4.2.2-10	軽水炉単独シナリオと MA 核変換型導入シナリオの燃料サイクル全体の Am 量
	の推移(ケース 0)
図 3. 4. 2. 2-11	小型高速炉導入の場合の Pu 量推移 (ケース 0)
図 3. 4. 2. 2-12	小型高速炉導入パターン3.4.2.2-12
図 3.4.2.2-13	MA 核変換型導入シナリオ (ケース 1) における原子力発電所の炉内保有量中の
	Am 量の推移3.4.2.2-14
図 3.4.2.2-14	MA 核変換型導入シナリオ (ケース 1) における燃料サイクル全体の Am 量の推移
図 3.4.2.2-15	軽水炉単独シナリオと MA 核変換型導入シナリオ (ケース 1)の燃料サイクル全
	体の Am 量の推移 3.4.2.2-16
図 3.4.2.2-16	MA 核変換型導入シナリオ(最終ケース)における原子力発電所の炉内保有量中
	のAm量の推移3.4.2.2-18
図 3.4.2.2-17	MA 核変換型導入シナリオ(最終ケース)における燃料サイクル全体の Am 量の
	推移3.4.2.2-19
図 3.4.2.2-18	軽水炉単独シナリオと MA 核変換型導入シナリオ(レファレンスケース)の燃料
	サイクル全体の Am 量の推移
図 3.4.2.2-19	軽水炉単独運転時の Am 量(H29 実施) 3.4.2.2-22
図 3.4.2.2-20	軽水炉単独シナリオ(H30)と MA 核変換型導入シナリオ(H30、H31)における燃
	料サイクル全体の Am 量の推移
図 3.4.2.2-21	MA 核変換型導入シナリオ(R1 最終ケース)における再処理施設での回収 Am 量
	の推移3.4.2.2-23
図 3.4.2.2-22	MA 核変換型導入シナリオ(R1 最終ケース)における再処理施設での回収 Am 量
	と MA ターゲットでの Am 核変換量 3. 4. 2. 2–23
図 3.4.2.2-23	高レベル放射性廃液中の Am 量の比較
図 3.4.2.2-24	MA 核変換型導入シナリオ(最終ケース)における再処理施設での Pu-f 貯蔵量
	の推移3.4.2.2-25

略語一覧		
BSE 像	Back Scattered Electron Image	後方反射電子像
BWR	Boiling Water Reactor	沸騰水型原子炉
DSC	Differential Scanning Calorimeter	示差走査熱量計
EDS	Energy Dispersive X-ray Spectrometer	エネルギー分散型X線分光器
EFPD	Effective Full Power Day	定格運転日数
EFPY	Effective Full Power Year	定格運転年数
FE	Field Emission	電界放出
FP	Fission Products	核分裂生成物
FIB	Focused Ion Beam	収束イオンビーム
GD-OES	Glow Discharge Optical Emission	グロー放電発光分光分析
	Spectrometry	
ICP-AES	Inductively Coupled Plasma Atomic	誘導プラズマ発光分光分析
	Emission Spectroscopy	
ICP-MS	Inductively Coupled Plasma Mass	誘導結合プラズマ質量分析計
	Spectrometer	
JAEA	Japan Atomic Energy Agency Institute	日本原子力研究開発機構
JMTR	Japan Materials Testing Reactor	材料試験炉
LWR	Light Water Reactor	軽水炉
MA	Minor Actinoid	希少なアクチノイド
MB	Material Balance	物質収支
MFBR	Mitsubishi FBR Systems, Inc.	三菱 FBR システムズ株式会社
NDC	Nuclear Development Corporation	ニュークリア・デベロップメント
		株式会社
NFD	Nippon Nuclear Fuel Development Co.,	日本核燃料開発株式会社
	Ltd.	
OECD-NEA	Organization for Economic Cooperation	経済協力開発機構・原子力局
	and Development-Nuclear Energy Agency	
PWR	Pressurized Water Reactor	加圧水型原子炉
Q-mass	Quadrupole mass spectrometer	四重極質量分析装置
RIAR	Research Institute of Atomic Reactors	ロシア原子炉科学研究所
RRP	Rokkasho Reprocessing Plant	六力所再処理施設
SEM	Scanning Electron Microscope	走査型電子顕微鏡
SPS	Spark Plasma Sintering	放電プラズマ焼結
TD	Theoretical Density	理論密度
TEM	Transmission Electron Microscope	透過型電子顕微鏡
VASP	Vienna Ab-initio Simulation Package	第一原理電子状態計算プログラム
		パッケージ

XRD X-Ray Diffraction

X 線回折

概略

これまで幾つもの核変換方法が提案されているが、本課題では早期実用化を念頭に既に技術が 確立されつつある Na 冷却酸化物燃料高速炉を用いる。核変換ターゲットは、炉心特性の影響を小 さくするために、炉心に燃料として装荷するのではなく径方向ブランケット領域に配置する。核 変換処理の特徴は、ブランケット領域に配置する核変換ターゲットの化学形態として水素化物を 用いることである。

MA(Minor Actinoid、希少なアクチノイド)水素化物中の水素の原子数密度は水中のそれと同程 度の大きな値を持っているため高速中性子を核変換ターゲット中で効率良く減速させることがで きる。減速したエネルギー領域では、中性子の吸収断面積が大きいため、中性子をMAに効率良く 吸収させることができる。これにより核変換処理の2つの主要処理性能、すなわち、処理速度と 処理量をともに大きく改善できる。

MA は発熱量が大きいため、製造施設での取り扱いを考えると希釈する必要がある。希釈するための材料としては、中性子吸収断面積が小さく原子炉での使用経験が豊富な Zr を用いる。

令和元年度は、(1)MA-Zr 水素化物の開発、(2)照射挙動評価、(3)安全性技術開発、(4)システ ム評価を実施した。特に本提案の中心課題である(1)MA-Zr 水素化物の開発では、研究用 MA を保 有し、世界でも有数のホットラボ施設を持つロシア原子炉科学研究所(Research Institute of Atomic Reactors, RIAR)において実施した。MA の中でも、高温での蒸気圧が高いために作製が最 も困難とされている Am を取り上げ、その Am-Zr 水素化物の作製研究を進めた。蒸発による Am の 飛散を避けるため Am に Fe 及び A1 を加えた合金を作製しその水素化物作製に成功した。

(2)の照射挙動評価では、JMTR(Japan Materials Testing Reactor、材料試験炉)で照射済みの 模擬試料 U-Th-Zr 水素化物をNFDホットラボへ輸送し詳細な照射後試験を実施した。

(3)の安全性技術開発では、定常運転時の温度条件で Na による明確な水素抑制効果を確認すこ とができた。また、事故時の温度条件では、平成 30 年度に見出した水素放出に及ぼす Zr 水素化 物表面の酸素雰囲気の水素放出抑制効果を第一原理分子動力学法を用いて解析し、そのメカニズ ムを解明した。

(4)システム評価では、MA-Zr 水素化物を用いた MA 核変換の環境への寄与と開発課題を明らか にするために、実用化を最終目的として、MA 核変換の効果と MA-Zr 水素化物を用いた核変換の優 先的な開発課題を検討した。平成 30 年度に評価した MA 消滅量高ケースの炉心等について、MA 核 変換特性・炉心安全特性を評価するとともに、開発課題抽出に必要な MA 核変換効果等のデータを 整理した。システム適合性評価の観点からは、軽水炉の運転を継続した場合に累積する大量のプ ルトニウムのサイクルシステムに与える影響を評価した。また、燃料組立、原子炉への輸送等、 サイクルシステム全体を俯瞰した除熱・遮蔽等の成立性について検討し、マテリアルバランス評 価の観点から、MA 減容に適する導入シナリオを以下の手順により検討した。

i) Am 消滅率を高めることに着目したケースについて MB 計算を実施した。

ii) 上記 MB 計算結果と平成 30 年度の MB 計算結果を比較評価し、MA 減容に適する導入シナリ オを構築できる炉心(レファレンス炉心)を検討し、選定した。

iii)レファレンス炉心に対する MB 計算を実施した。

iv) MB 計算結果に基づき、MA 減容に適する導入シナリオをまとめた。

以上、4カ年計画の4年目である本年度の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。

1. はじめに

原子力発電が今後日本社会で受け入れられるためには、高い安全性の確保とともに、長寿命放 射性廃棄物を可能な限り低減し、その処分が現実的に可能であることを明らかにすることで一般 社会の理解を得ることが緊急の課題である。長寿命放射性核種は、その発生の経緯から核分裂生 成物とネプツニウム(Np)、アメリシウム(Am)等のマイナーアクチノイド(以下、MAと表す。) の2種類に分かれる。本研究ではMAを対象として有効かつ早期に開始することができる核変換処 理方法の確立を目指す。

原理的には長寿命放射性核種を核変換によって短半減期または安定核種に変えることは可能で ある。しかし、核変換処理を実用化するためには核変換装置、核変換ターゲット、核変換ターゲ ットの再処理プロセスをそれぞれ開発しなければならない。本研究では、早期の核変換処理開始 を目標として、技術的に大きな飛躍を期待せず今ある技術の延長線上のものを用いて実用化を目 指す。

2. 業務計画

2.1 全体計画

長寿命放射性廃棄物の地層処分の負担を低減するために核変換処理方法を開発する。本研究で は既に技術が確立されつつある Na 冷却酸化物燃料高速炉を用い、その炉心の燃料はそのままにし て径方向ブランケット領域に MA-Zr 水素化物ターゲットを配置することで核変換の効率化ととも に早期実用化を目指す。

このうち、MA-Zr 水素化物ターゲット開発では、Am-Zr 水素化物の作製技術を確立するとともに その物性を評価する。安全性技術開発では、定常運転時及び事故時の MA-Zr 水素化物からの水素 放出挙動を評価する。システム評価では、設計研究による核変換処理方法の成立性と有効性を評 価するとともに核燃料システムに適用した場合の評価を実施する。

本業務の全体計画図を図 2.1-1 に示す。

年度	亚成28 年度	亚成20年度	平成 3 0 年度	平成31年度
項目				
(1)MA-Zr水素化物開発				
a.MA-Zr合金作製	————————————————————————————————————	化物漂素 合合作制)		
・作製技術開発(NFD)	一 一 一 規 訊 敬 (酸	111/70 速76 波7 (波)		
. 今全作制	1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1	予備試驗 ∧封	■ ● ● ● (今 屋 作 制) _ A m 試 除 (今 全 作	
				₩ ²
b MA-7r水素化物作製	作製装置整備			
 作製技術開発(阪大) 	予備試験	作製条件依存性評価	元素種依存性評価	確認試験及び評価まとめ
	• • •		**	4
 水素化物作製 	試験準備	予備試験		Am-Zr水素化物作製試験
				· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
c.物性測定	又/出于+日今	組織依左性証価	二書孫什友供語店	たますまきまや ひょくきの /エナ しい
・物性値傾向把握(阪大)			九条裡107行111計1Ш	唯認訊験及び評価まとの
				Am 77状表化物
. 植物 经 30 中				(11-2) 小米に物
• 彻住测足			- J ¹ VR	
d リサイクル前処理技術	+++++++++++++++++++++++++++++++++++++++			
			希土類試験	
 前処理試験 				Am-Zr水素化物前処理試驗
				••••••
②照射挙動評価			FP含有希土類を用いた物性試験	物性試験及び評価まとめ
a. 模擬FP含有試料の物性試験(阪大)			٠ ٠ ٠ ٠	•
b.模擬試料照射後試験(NFD)			試料輸送,光字顕微鏡観察等	微細組藏観祭
③ 中 今 姓 井 御 間 改				
③女王性技術開先。 。 中世海転時史会姓	試験装置整備	予備試験	水麦诱過試驗	水素透過試験及び評価まとめ
a. 定吊運転时女主性				, 4
b. 事故時安全性	試験装置整備	予備試験	水素放出試験	水素放出試験及び評価まとめ
④システム評価		法人的人针线预度		
a. 設計研究による成立性と	核変換の最適化	炉心女主符性評価	比較検討	環境への寄与と開発課題
有効性に関する研究(MFBR)				
b.核燃料システム評価(NDC)		熱流動解析及び評価(1)	参い 本 動 砂 に ひ パ 可 (の)	システム影響対策検討及びまとめ
・ンステム週合性評価	計容温度の設定、解析準備			
- フニリフリ バニンフ (MP) 証(用	マニリマリ パニンフ計管准備 め	Ě水炉MB計算及ひターケット ッ+≤ :# /#	MDパラメ からのまた	導入シテリオ快討まとめ
- マリリアルハランス(MD)計1回		Ŧ17) 111 111 111 111 111 111 111 111 111		•
⑤研究堆准	+++++++++++++++++++++++++++++++++++++++			
 ・打ち合わせ 				
まとめと評価	まとめ・評価		平価 まとめ・評価	まため・評価
			●	

図 2.1-1 全体計画図

- 2.2 令和元年度の成果の目標及び業務の実施方法
 - 2.2.1 MA-Zr 水素化物開発
 - 2.2.1.1 MA-Zr 合金作製
 - ・作製技術開発(再委託先:NFD)
 平成29年度までに完了した。
 - ・合金作製

平成30年度までに完了した。

- 2.2.1.2 MA-Zr 水素化物作製
- ・作製技術開発(再委託先:大阪大学)

平成30年度までに得られた3成分系水素化物の知見を基に、ジーベルツ型の水素化物作製装置を用いて、模擬MAとしてのNd及び模擬FPを含有するZr水素化物試料を作製する。作製したZr水素化物試料の組織を観察する。これまでの作製試験の結果を総括し、添加元素の相状態、 組織への影響をまとめる。

・水素化物作製

平成30年度に作製したFe、A1を含むAm-Zr合金をホットラボの不活性雰囲気グローブボック ス内に設置したジーベルツ型の水素化物作製装置を用いて水素化する。

2.2.1.3 物性測定

物性値傾向把握(再委託先:大阪大学)

2.2.1.2で作製したNd及び模擬FP元素を加えた水素化物試料について熱物性、機械的特性を 測定する。これまでの物性測定試験の結果を総括し、添加元素の影響をまとめ、各種物性を 予測する手法を構築する。

・物性測定

2.2.1.2で作製した水素化物の外観観察、密度測定、X線回折試験、走査電子顕微鏡(SEM) 観察、元素分析試験を実施する。

2.2.1.4 リサイクル前処理技術

•技術開発(再委託先: N F D)

平成30年度に完了した。

・前処理試験

放射性廃棄物の核変換では、一回の原子炉照射10%-30%のAmが処理される。そのため、残ったAmを照射済みAm-Zr水素化物から回収し再度Am-Zr水素化物を作製する必要がある。Am-Zr水素化物に酸化等の前処理を施し、硝酸溶解試験を行うことにより、この前処理技術が回収プロセスに有効かを評価する。

2.2.2 照射挙動評価

2.2.2.1 模擬FP含有試料の物性試験

物性試験(再委託先:大阪大学)

平成30年度に続いて模擬FPの量をパラメータとした物性試験を実施し、結果を取りまとめる。また、FPガス及びHeガスの蓄積の効果を調べるため、密度の低いペレットの熱伝導度測 定試験を実施する。

2.2.2.2 模擬試料照射後試験(再委託先:NFD)

・X線回折、硬度試験のデータを解析するとともに、光学顕微鏡観察、走査電子顕微鏡(SEM) 観察を実施した後に透過型電子顕微鏡(TEM)を用いて照射済み水素化物(U, Th, Zr)Hx の微細 組織を観察し、ボイドスエリングについて評価する。また、コールドの模擬低密度試料を作 製し4. ②aに供するとともに光学顕微鏡観察、走査電子顕微鏡観察を実施する。

2.2.3 安全性技術開発

2.2.3.1 定常運転時安全性

平成30年度に整備した水素の被覆管透過実験装置を用いて水素透過試験を実施し、水素の被覆管透過現象がペレット-被覆管のギャップにナトリウムを充填することにより抑制できることを確認する。

2.2.3.2 事故時安全性

平成 30 年度に Zr 水素化物表面に酸素が存在する場合に水素放出が大幅に低減することを 見いだした現象について、試料の顕微鏡観察や第一原理計算を用いてメカニズムを解明する。

2.2.4 システム評価

2.2.4.1 設計研究による成立性と有効性に関する研究(再委託先: MFBR)

MA-Zr水素化物を用いたMA核変換の環境への寄与と開発課題を明らかにするために、実用化 を最終目的として、MA核変換の効果とMA-Zr水素化物を用いた核変換の優先的な開発課題を検 討する。

・開発課題抽出のためのMA核変換効果等の整理

平成29年度に構築した基準炉心、平成30年度に評価したMA消滅量高ケースの炉心等について、 MA核変換特性・炉心安全特性を評価し、開発課題抽出に必要なMA核変換効果等のデータを整 理する。

・MA-Zr水素化物を用いた核変換の開発課題の検討

上記で整理したデータに基づき、MA核変換の効果を総括し、優先的な開発課題を検討する。

2.2.4.2 核燃料システム評価(再委託先:NDC)

・システム適合性評価(再委託先:NDC)

システム適合性評価においては、下記の2つの事項を実施する。

i)生成するプルトニウムのサイクルシステムに与える影響対策検討

軽水炉の運転を継続した場合に累積する大量のプルトニウムのサイクルシステムに与える 影響を評価し、原子炉でプルトニウムを適正に消費・活用するシナリオを評価・検討する。 ii)サイクルシステム成立性に係わる検討

燃料組み立て、原子炉への輸送等、サイクルシステム全体を俯瞰した除熱・遮蔽等の成立 性について検討し、システム構造概念をまとめる。

・マテリアルバランス (MB) 評価

MA減容に適する導入シナリオを以下の手順により検討する。

i)Am消滅率を高めることに着目したケースについてMB計算を実施する。

ii) 上記MB計算結果と平成30年度のMB計算結果を比較評価し、MA減容に適する導入シナリオ を構築できる炉心(レファレンス炉心)を検討し、選定する。

iii)レファレンス炉心に対するMB計算を実施する。

- iv)MB計算結果に基づき、MA減容に適する導入シナリオをまとめる。
- 2.2.5. 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間の連携を密にして研究を進める。担当者間の情報交換と進捗の調整を図るため、担当者間の打ち合わせを国内及び海外において実施する。

3. 業務の実施内容及び成果

- 3.1 MA-Zr 水素化物開発【H28-R1】
 - 3.1.1 MA-Zr 合金作製【H28-H30】
 - 3.1.1.1 平成 28 年度~平成 30 年度 作製技術開発

Sm あるいは Nd を Am の模擬材とした試験により、Am-Zr 合金作製におけるアーク溶解、低融点合金溶融及びメカニカルアロイの適用性について調査及び検討を行った。また、これらの方法を用いて作製した合金についてジーベルツ法による水素化を行い、水素化までの適用性を確認した。

(1) アーク溶解による合金作製

これまでに、種々の希土類-Zr 合金がアーク溶解法で調製されていることが報告されてい る⁽¹⁾。アーク溶解法は、試料を水冷されたハースの上で溶解することから試料との反応を防 ぐことができる利点がある。一方、Ar 雰囲気下の開放系で加熱するため、添加元素の損失が 懸念される。そこで、Am よりも蒸気圧の高い Sm と若干 Am よりも蒸気圧の低い Nd を用いて、 アーク溶解法に蒸気圧が及ぼす影響の概略を検討した。Ar 雰囲気下で 5 回のアーク溶解を Nd-Zr、Sm-Zr について同じ条件で行った結果を表 3.1.1.1-1 に示す。Am よりも若干蒸気圧の 低い Nd の重量減少が装荷した Nd 重量の 3.6%であったのに対し、Sm の場合は装荷した Sm の 94%の重量減少が見られた。このことから、Am と Zr とをアーク溶解法で合金化する場合、Am の損失を考慮しておく必要があることが分かった。なお Am と Zr の状態図は H28 年度成果報 告書の図 3.1.1-1 に記載。

(2) 低融点合金化による合金作製

MA の融点は Zr の融点に比べて著しく低く、均一に溶融しようとすると MA の融点をはるか に超えて高い温度まで加熱する必要がある。特に Am は蒸気圧が高いため、(H28 年度成果報 告書の図 3.1.1-2 参照)。加熱中に Am の減損が懸念され、また、化学的に活性であるため、 坩堝との反応も懸念されている。そこで、Zr の融点を下げた ZrFeAl 合金を用いて、Am の蒸 発を抑制しながら均一に Am を分散させる技術開発を進めた。ここでは、低融点 ZrFeAl 合金 として Zr-11Fe-5.3Al 合金(融点 890°C)、及び Am の模擬物質として Sm を用い、Ar 雰囲気中 における加熱溶融試験を実施した。坩堝材は Y₂O₃ あるいは黒鉛とした。

試験後、試料を切断・研磨し、断面の金相観察、SEM 観察及び EDS 分析を行った。Sm 分布 に及ぼす冷却速度の影響を図 3.1.1.1-1 に示す同一の加熱条件においても、急冷した試料内 の Sm 分布は、場所に依存せず微細で均一に分散している一方、徐冷した試料内の Sm 分布は 非常に不均一であった。このことから、Sm を均一に微細に分散させるためには、急冷が必要 であることが確認された。また、試料と坩堝の反応については、黒鉛坩堝を用いた場合は、 200~300 µm 程度の反応層が見られたが、Y₂O₃坩堝を用いた場合、反応層は 20 µm 程度あるい はそれ以下であった。これらの反応層は、いずれも坩堝との界面近傍でのみ生じており、相 対的な量は少ないと考えられる。

(3) メカニカルアロイ法による合金作製

3.1.1.1-1

より低温で均一な試料を得る方法として、粉砕混合器(アトライタ)によるメカニカルア ロイ法により混合粉末の調製を試みた。ここでは、Amの模擬物質として化学的な特性が近い と考えられる希土類元素の Nd を用いた。(Nd と Zr の状態図は H28 年度成果報告書の図 3.1.2.1-8 に記載。)粉末の混合においては、アジテータと呼ばれる撹拌翼の回転速度、試料 に対するボールの重量比(B/S 比)、処理時間をパラメータとした。約 35g の試料に対して、 243 あるいは 375g のボールを使用したため、この時の B/S 比は、それぞれ 6.9 あるいは 10.7 となる。

得られた混合粉末を圧粉成型して SEM/EDS により Nd 分散状態を観察した。結果を図 3.1.1.1-2~図 3.1.1.1-4 に示す。3 時間処理したものは十分均一に粉砕混合されていた。混 合粉末の X 線回折パターン (Cu-K α) を図 3.1.1.1-5 に示す。アジテータ回転速度、B/S 比、 処理時間の増加 (付与エネルギーの増加) とともに、Nd のピークが小さくなり、Zr のピーク のブロードニング及び低角へのシフトが見られた。これは、Nd の Zr への固溶が進んだため と考えられる。

成型体は、ホットプレスにより焼結した。室温及び 600℃でプレスした試料は、取り出し時 に割れ、黒色の圧粉状態であった。一方、760℃、800℃及び 960℃でホットプレスした試料は いずれも金属光沢を呈しており、高密度化した。ここで、Zr と Nd とが独立に存在すると仮定 し、それぞれの理論密度と組成比から混合物の密度 6. 620g/cm³を算出し、理論密度と仮定し た。高密度化した試料の Nd 分布は図 3. 1. 1. 1-6、及び図 3. 1. 1. 1-7 に示されるようにほぼ均 一であった。

これらのことから、メカニカルアロイ法及びホットプレス法による合金ペレット作製方法は有効であると判断した。

(4) 水素化試験

アーク溶解法、ZrFeA1 合金を用いた溶融法、メカニカルアロイ・ホットプレス法により調 製した Nd-Zr 合金を試料として、ジーベルツ法による水素化試験を実施した。

アーク溶解法により調製した試料については、割れ欠けのない、健全なペレットが得られた。水素化後の元素分布を図 3.1.1.1-8 に示す。わずかに、Ndの酸化が見られるが、水素化前の組織と比較して大きな変化は見られなかった。

メカニカルアロイ法で調製した混合粉末をホットプレスで緻密化した試料では、水素化に よる割れ欠けの発生などは見られなかったが、試料表面に若干酸化したことを示す変色が見 られた。これは、試料温度昇温中に脱ガスにより真空度が低下し、試料が若干酸化したため と考えている。水素化前後の重量変化から求めた H/M 比は 1.43 で、試験中の水素圧力変化か ら求めた H/M 比は 1.36 と評価され、いずれも H/M 比=1.4 でほぼ一致した。目標の H/M 比は、 Zr-10at%Nd 水素化物が室温から高温まで δ 相 (ZrH_{1.6}-10at%NdH_{2.0}) となる 1.64 (1.6×0.9+2.0 ×0.1=1.64) であり、それと比較すると若干低い値となった。これは、試料表面の酸化によ り、水素が入りにくくなったものと考えられる。水素化後の元素分布を図 3.1.1.1-9 に示す。 Nd の凝集が散見されたが、凝集の大きさは微細であり、全体としては均一に分散していた。 Nd の分布と酸素の分布が一致していることから、水素化工程の昇温過程において酸化したこ とにより、当初、より微細に分散していた Nd が凝集した可能性が考えられる。 ZrFeA1 合金を用いた溶融法により調製した ZrFeA1-Nd 合金試料においても、水素化による 割れ欠けの発生などは見られなかった。水素化後の元素分布を図 3.1.1.1-10 に示す。Nd 析 出物のサイズは 20μm 程度以下であり、顕著な Nd の凝集は見られなかった。

メカニカルアロイ法で調製した混合紛末をホットプレスにより緻密化して得た合金ペレッ ト及び ZrFeA1-Nd 合金は、ジーベルツ法による水素化において、割れ欠けや Nd の顕著な凝集 を生じなかった。このことから、これらの合金調製手法が、水素化過程を考慮しても有効と なる見通しを得た。一方で、水素化前の昇温過程における脱ガスによる真空度低下に起因す ると思われる酸化が見られ、水素化後の試料の Nd の酸化が見られたことから、Am-Zr 合金の 水素化においても、合金作製から水素化まで、酸素ポテンシャルの低い状態を保って取り扱 うことが重要であることが示唆された。

参考文献

(1)Y. Kitano, et al., "Efects of Zr/Gd Ratio and Hydrogen Content on the Mechanical and Thermal Properties of Hydrides of Zr-Gd Alloys", 日本原子力学会和文論文誌, Vol. 10, No. 1 (2011),他

	initial weight (g)			Weight	Weight	Evaporation	
	Zr	Nd	Sm	合計	after melt (g)	reduction (g)	fraction [*] (%)
Zr-15Nd	85.002	15.007	-	100.009	99.473	0.536	3.6
Zr-15Sm	85.003	-	15.002	100.005	85.869	14.136	94.2

表 3.1.1.1-1 アーク溶解による希土類元素の蒸発

*: values against RE materials





(b) 6℃/min 昇温-1250℃-1 時間加熱-3℃/min 冷却
 図 3. 1. 1. 1-1 Sm 分布に及ぼす冷却速度の影響(EDS 像)

 $10\,\mu$ m

処理時間	B/S 比	300rpm	500rpm	1000rpm
3	6.9	M-Run1	M-Run2	M-Run3

図 3.1.1.1-2 メカニカルアロイ法により混合した Zr-10at%Nd における Nd 分散状態 (処理時間 3 時間、B/S 比=6.9)

処理時間	B/S 比	300rpm	1000rpm		
3	10. 7	Nd x1000 10um — I M-Run5	M-Run4	Nd x1000 10µm ⊣→ M−Run6	

図 3.1.1.1-3 メカニカルアロイ法により混合した Zr-10at%Nd における Nd 分散状態 (処理時間 3 時間、B/S 比=10.7)

回転速度	B/S 比	1時間処理	3時間処理	10 時間処理
300rpm	10. 7	Nd ×1000 10µm ⊢⊣ M−Run8	Nd x1000 10µm ⊢⊣ M−Run5	Nd x1000 10µm — 1 M-Run7

図 3.1.1.1-4 メカニカルアロイ法により混合した Zr-10at%Nd における Nd 分散状態 (アジテータ回転速度 300rpm、B/S 比=10.7)



図 3.1.1.1-5 メカニカルアロイ法により混合した Zr-10at%Nd の X 線回折測定(Cu-K a) 結果



図 3.1.1.1-6 800℃-59MPa でホットプレスした Zr-10at%Nd の BSE 像と元素分布



図 3.1.1.1-7 760℃-101MPa でホットプレスした Zr-10at%Nd の BSE 像と元素分布



図 3.1.1.1-8 アーク溶解により調製した Zr-10at Md 合金の水素化後元素分布



図 3.1.1.1-9 メカニカルアロイ法により調製した Zr-10at Md 合金の水素化後元素分布



BSE

Nd





図 3.1.1.1-10 低融点合金化により調製した ZrFeAl-Nd 合金の水素化後元素分布

3.1.1.2 MA-Zr 合金作製

(1) Am 酸化物の還元

ロシア原子炉科学研究所(以下、「RIAR」と言う。)は、研究用のAmを保有し、Am取り扱い可能なホットラボを有している世界でも数少ない研究所である。本試験は、RIARで実施した。

Am は酸化物の化学形態で供給されるため、まず金属に還元する必要がある。金属に還元する 手法について調査した結果、平成28年度には、Li(リチウム)還元法⁽¹⁾⁻⁽³⁾と炭素熱還元法⁽⁴⁾と の2法を選んだ。平成29年度には、この2つの方法について検討した結果、RIARにおけるこれ までの実績及び設備の整備状況を考慮して、Li還元法を選択した。平成30年度は、Li還元法を 用いて金属 Am を作製した。図3.1.1.2-1に示すLi還元法の電極での反応は次の通りである。

 $Li + e \rightarrow Li^0$ (3. 1. 1. 2-1)

(3. 1. 1. 2-2)

 AmO_2 + $4Li \rightarrow Am$ + $2Li_2O$

 $0^{-2} - 2e \rightarrow 0_2$

(3. 1. 1. 2 - 3)

図 3.1.1.2-2 に雰囲気制御グローブボックス内の AmO₂還元の反応セルを示す。得られた金属試料の写真を図 3.1.1.2-3 に示す。試料重量は 4.03g であった。また、この工程で失われた Am は非常に少なく 1 µ g 程度であった。金属 Am 中に含まれる Li の酸化は、不活性グローブボックス内であるので無視できる程度であった。







図 3.1.1.2-2 AmO2還元用反応セル



図 3.1.1.2-3 還元によって得られた金属 Am

(2) Am-ZrFeAl 合金の作製【H30】

Am の蒸気圧は非常に高く、合金化処理の際の温度が高ければ、飛散によって損失する懸念がある。そのため、Zr よりも低融点の ZrFeAl 合金を作製した。低融点の ZrFeAl 合金は、グラファイト容器内に Zr、Fe、Al を入れて、不活性雰囲気グローブボックス内に設置された高周波加熱炉を用いて 1900℃、5 分間加熱し溶融し作製した。

次に、金属 Am と低融点 ZrFeAl 合金を全て用いて Am-ZrFeAl 合金を作製した。作製方法は ZrFeAl 合金の作製と同様に 2 つの試料をグラファイト容器内に入れて、高周波加熱炉を用いて 1250℃、5 分間加熱し溶融した。試料表面のグラファイトを取り除くため外周を 2mm 程度研削した。その後試料をボールミルで 0-100 μ m の大きさに粉砕し、ペレット状にプレス加工し 760℃で 12 時間 焼結した。作製された 5 つのペレット試料の外観を図 3.1.1.2-4 に示す。図 3.1.1.2-5 に、ペレットの走査電子顕微鏡観察と元素分布を示す。Am は試料中に微細に分布していることが分かる。

(3) まとめ

AmO₂を原材料としてLi還元法により還元によるAm金属の作製に成功した。さらにAm金属を用いてAm-ZrFeA1合金の作製に成功した。この合金ではAmが微細に試料内に均一に分布していることが確認された。この試料を用いて令和元年度は最終目標のAm-ZrFeA1水素化物の作製を行った。



図 3.1.1.2-4 Am-ZrFeAl 合金ペレットの外観



図 3.1.1.2-5 Am-ZrFeAI 合金ペレットの走査電子顕微鏡観と元素分析

3.1.2 MA-Zr水素化物作製【H28-R1】

3.1.2.1 作製技術開発(再委託先:大阪大学)

(1) 試験の目的

MA-Zr 水素化物の作製においては、厳しい MA 取扱量の制限のため、模擬物質により作製手法と 微細組織の制御方法を確立しておくことが望まれる。過去の希土類-Zr 水素化物の作製実験にお いて、希土類の金属結合半径によって相状態が大きく異なることが報告されている^[1]。この結果 を基に、MA のなかでも特に重要となる Am の模擬元素として、金属結合半径が近い Nd を選定した ^[2]。Nd 含有量を変えた Nd_xZr_{1-x}H_yの作製と微細組織観察を行い、もって MA-Zr 水素化物ターゲット の作製技術に関する知見を得ることを第一の目的とした。

これに加え、核変換処理によってターゲット内には FP 元素が生成し、これが組織に影響すると 考えられる。FP 元素の状態としては Zr あるいは Nd 水素化物相への固溶と、化合物相としての析 出の 2 通りが考えられる。ここでは固溶する模擬 FP 元素として Nd と同程度の金属結合半径を持 ち、かつ同じ結晶構造の水素化物相を取り得る Ce を、析出する模擬 FP 元素として水素を吸収し ない Ag を選定し、Nd_{0.1}Zr_{0.85}X_{0.05} (X=Ce, Ag) を作製・観察した。以上から Nd-Zr 水素化物ターゲ ットにおける固溶 FP 及び析出 FP を模擬できる元素を決定することを第二の目的とした。

また、核変換処理においては精製した FP 元素が水素を吸収せず、このため水素が過剰となる可能性がある。この水素比率が増加することによる影響を評価するため、 δ 相 Zr 水素化物(ZrHx, 1.5<x<1.7)ではなく ϵ 相 Zr 水素化物(ZrHx, 1.8<x<2.0)を作製し、組織観察を行った。以上より、核変換処理時に水素比率が増加した際に現れる ϵ 相 Zr 水素化物が組織に与える影響を評価することを第三の目的とした。

(2) 作製試験及び表面観察

水素化物の作製はこれまでの作製経験に基づき、それぞれの合金インゴットをアーク溶解で作 製後、ジーベルツ装置中で水素ガスを吸収させることにより行った。

Nd-Zr 水素化物については、Nd 片(レアメタリック製, 99.9%)及び Zr 片(レアメタリック製, 99.9%, Hf <70 ppm)を NdxZr1-x (x=0, 0.05, 0.1, 0.15, 0.2, 0.3, 1.0)となるように秤量した。 模擬 FP 添加試料においては、A_xNd_{0.1}Zr_{0.9-x}(A=Ce, Ag, x=0.05, 0.10)となるよう秤量した。こ れを超小型真空アーク溶解装置(日新技研製 NEV-AD03BT 型)により溶融・混合し、合金インゴッ トを作製した。均質な合金を作製するため、インゴットを数回反転させ溶解させた。物性測定に 備え、得られたインゴットを数 mm~数十 mm 角に切断した。XRD 測定(リガク製 Ultima IV)から結 晶構造を観察するとともに、電界放出型走査型電子顕微鏡 FE-SEM(JEOL 製 6500F)とエネルギー 分散型 X 線分析装置 EDX(JEOL 製 EX-2300BU)により表面観察と元素分析を行った。また、その後 の水素の吸収を均一とするため、合金片の表面を 800 番のエメリーペーパーで研磨し、アセトン 中で 5 分間超音波洗浄を施した。

得られた合金片を保有するジーベルツ装置を用いて水素化した。ジーベルツ装置の概略図を図 3.1.2.1-1 に示す。装置は反応系、真空排気系、水素導入系、測定系から構成される。反応系は石 英製の反応管と管状電気炉からなる。真空排気系はターボ分子ポンプとロータリーポンプからな り、到達圧力はおよそ 10⁻⁶ Pa である。水素は高純度水素ガス(ネリキガス製, 99.99999%)を用 い、また水分等を除去するため液体窒素によるトラップが導入系に設置されている。水素量は測

3.1.2.1-1

定系におけるキャパシタンスマノメーターによって評価される。測定系には体積既知の標準体積 容器があり、ここからあらかじめ測定系と反応系の体積を測定しており、マノメーターによる水 素圧差から水素の吸収量を求めることができる。

合金片試料を反応管に設置した Mo 箔に置き、真空度が 10⁻⁶ Pa 程度となるまで 12 時間ほど保持した。その後電気炉により 2.6℃/min の速度で 800℃まで昇温した。この温度で 5 時間保持したのち、およそ 30 分かけて水素を導入した。水素圧は加えた Zr に対して H/Zr=1.6 となるよう に、Nd 及び Ce に対しては H/(Nd or Ce)=2.0 となるよう調整した。 ϵ 相 Zr 水素化物の合成においては、H/Zr=1.8, 1.9, 2.0 となるよう水素を導入した。水素に曝した状態で 12 時間保持したのち、0.2℃/min で 500℃まで降温し、2 時間保持したのちに室温までおよそ 0.6℃/min で降温した。水素化温度プログラムを図 3.1.2.1-2 に示す。遅い速度での降温、また水素吸収後の 500℃で 2 時間の熱処理は、この降温時の水素吸収により表面と内部で水素量の差が生じないようにするためのものである。Zr-Nd 試料及び Ce, Ag 添加試料は降温後の水素圧はいずれもほぼ 0 であり、所望の水素量が導入できたものと考えられる。一方で ϵ 相 Zr 水素化物試料では組成 ZrH2.0 を狙った試料において水素の残存が見られた。得られた水素化物について、重量及び寸法測定から密度を算出するとともに、合金片と同様の方法で結晶構造ならびに元素分析を行った。なお、 ϵ 相 Zr 水素化物試料に対しては FE-SEM に付属した後方散乱電子回折 (Electron BackScattering Diffraction pattern analysis, EBSD) 法による微細組織の観察を行った。

(3) 組織観察結果

・Nd-Zr 合金及び水素化物【H28-H29】

図 3.1.2.1-3 に Nd_{0.1}Zr_{0.9} 試料の合金片及び水素化物の外観を示す。いずれも金属光沢を有して おり、水素化時の酸化等は見られなかった。また、水素化前後の重量から算出した水素量は水素 圧差から算出したものとほぼ一致した。このことからも水素化時における試料の酸化はほぼ無視 できるものと考えられる。

図 3.1.2.1-4 に水素化前の、合金片の FE-SEM 観察像及び Nd、Zr についての元素マッピン グ結果を示す。また図 3.1.2.1-5 に Zr-Nd 合金の XRD パターンを示す。いずれも Zr リッチ相 と Nd リッチ相の 2 相に明確に分かれて存在していることが分かる。これは過去に報告されて いる Gd-Zr 合金と同様であり^[1]、Nd と Zr の金属結合半径差から予想される通りの結果である。 Nd リッチ相はマトリクスである Zr リッチ相の粒界部に析出しており、これも状態図から予測さ れる通り、溶融・固化時に融点の高い Zr リッチ部から先に析出したためである。また、Nd 添加量 が増えることで Nd 相が互いに連結している様子が見られる。

続いて水素化後の FE-SEM 観察像と元素マッピングの結果を図 3.1.2.1-6 に、XRD パターンを図 3.1.2.1-7 に示す。合金試料と同様に、Nd リッチ相と Zr リッチ相の 2 相にはっきり分かれてい る。XRD パターンからは立方晶構造である δ 相 Zr 水素化物相と、同じ結晶構造を持つ Nd 水素化 物相のみが検出され、これら 2 相の複合試料であることが確かめられた。組織については合金時 から多少の粒成長が見られるものの、Nd 水素化物相が粒界に分布しており、また Nd 量が増える ことによる Nd 相の連結も見られており、総じて合金時の組織がそのまま残されていると言える。 寸法から求めたそれぞれの試料の密度と格子定数を表 3.1.2.1-1 に示す。それぞれの試料におい て、Zr 水素化物相及び Nd 水素化物相の格子定数の違いは小さく、ほぼ同じ組成であることが分

3. 1. 2. 1-2

かる。 δ相 Zr 水素化物の格子定数は式 3.1.2.1-1 で与えられることが報告されている^[3]。

 $a = 0.4706 + 4.382 \times 10^{-3} \times C_H(H/Zr)$

(3. 1. 2. 1 - 1)

ここで C_{r} =1.6 とすると a=0.4776 nm であり、ほぼ Zr 水素化物相の値と一致する。また NdH₂ について報告されている格子定数は a=5.469 nm であり^[4]、得られた値はこれより小さい。Nd への Zr の固溶が影響していると思われる。

以上の結果から、Nd-Zr 水素化物は Zr 水素化物及び Nd リッチ水素化物の2 相複合試料を形成 し、またその組織は水素化前の合金のものから大きく変化しないことが確かめられた。Am-Zr 水 素化物ターゲットの組織制御においては、合金の作製条件が重要であることが示唆される。

・模擬 FP 含有水素化物【H28-H30】

Ce あるいは Ag を添加した合金インゴットについての FE-SEM 観察像と元素マッピング結果を図 3.1.2.1-8(a)(b)に示す。Ce_{0.05}Nd_{0.1}Zr_{0.85}合金では、Ce は Am の模擬元素である Nd リッチ相に固溶 しており、模擬固溶 FP として適していると言える。また Ag は Nd リッチ相に隣接して析出してお り、模擬析出 FP として望ましい分布をしていると言える。

水素化後の FE-SEM 観察像及び元素マッピング結果を図 3.1.2.1-9(a) (b) に、XRD パターンを図 3.1.2.1-10(a) (b) に示す。Ce-Nd-Zr 水素化物は、Zr リッチ相と Nd リッチ相の2 相に分離してお り、CeはNdリッチ相に均一に固溶している。Nd-Zr水素化物試料がほぼ同じ組織を示した。XRD パターンより、作製された Ce-Nd-Zr 水素化物試料は立方晶構造であるδ相 Zr 水素化物相と、同 じ結晶構造を持つ(Ce, Nd)水素化物相の2相から構成される複合試料であることが確かめられた。 一方 Ag 含有試料では、水素化後も Nd リッチ相近傍に Ag が析出物を形成して存在していることが 分かった。この析出物を定量分析したところ、おおよそ Ag:Nd=2:1 であり、XRD パターンが Ag2Nd のピークと一致した。この結果より Ag は Ag2Nd として存在しており、作製された Ag0.05Nd0.1Zr0.85 水素化物は六方晶構造の Ag2Nd 相、立方晶構造のδ相 Zr 水素化物相、そして Nd 水素化物相の3 相からなる複合試料であることが分かった。また Ago. 1Ndo. 1Zro. 8 水素化物試料の XRD パターンにお いて、わずかに ε 相 Zr 水素化物のピークが見られた。 ε 相 Zr 水素化物は前述の通り δ 相より水 素比率が高い相であり、この生成メカニズムについては、推定であるものの Ag の添加によりアー ク溶解及び水素化時の Nd 蒸発が促進され、本来 Nd が吸収する分の水素を Zr が吸収し、結果とし て H/Zr 比が目標の 1.60 より過剰になったと考察される。これより、Ago, Ndo, Zro.8 水素化物試料 は、前述の3相に加え Zr リッチ相内に少量の ε相 Zr 水素化物を含んだ4相からなる複合材料と なっていると考えられる。

質量及び寸法から求めたそれぞれの試料の密度と格子定数を表 3.1.2.1-1 に示す。Nd-Zr 水素 化物の密度が 5.4-5.6 g cm⁻³の間で大きな変化が見られなかったのに対して、FP 含有水素化物は Ce、Ag どちらの場合も密度が低下した。Zr リッチ相の格子定数は Ce、Ag どちらを含有している 場合でも Nd-Zr 水素化物と同程度の値を示し、Zr 相への固溶はほとんど起こっていないと考えら れる。一方で、Nd リッチ相の格子定数は Ce 含有水素化物のみがより大きな値を示した。この結果 は Ce が Nd リッチ相に固溶し、Ag は Nd リッチ相にほとんど固溶していないことを表している。 これらはいずれも FE-SEM 観察及び元素マッピング結果と一致する。

• ε相 Zr 水素化物【R1】

水素化後、ZrH_{1.8}及びZrH_{1.9}試料についてはほぼ水素の残存はなく、想定通りの水素比を持つ試料が作製できた。一方でZrH_{2.0}となるよう水素を導入した試料では、0.1気圧程度の水素が残存し、圧力変化から推定される水素比はZrH_{1.91}となった。このため、作製した試料の表記はZrH_{1.91}とする。

作製した ε 相 Zr 水素化物試料の XRD パターンを図 3.1.2.1-11 に示す。第二ピーク以降のピー ク強度が小さかったため、縦軸の回折強度を対数で示している。得られたピークは全て ε 相のも のと一致しており、またδ相によるピークは見られない。このことから、3 つの試料いずれも単相 の ε 相 Zr 水素化物が得られていると判断できる。

組織の評価として、ZrH_{1.9}試料における EBSD 観察による Image Quality (IQ) マップ及び結晶 方位マップを図 3.1.2.1-12 に示す。全ての粒において双晶が見られている。この組織は δ 相 (fcc) から ε 相 (fct) に変化する際に起こる 4%程の体積膨張のため形成されたものと考えられる。な お、試料中にクラックなどは見られなかった。双晶関係を明らかにするため、隣り合う領域の方 位を観察した。隣接する双晶組織の 2 つの結晶方位領域「1」「2」の(101)についての極点図を図 3.1.2.1-13 に示す。隣接する領域の極点図の一点はほぼ一致していることが分かる。ここで K. G. Barraclouqh と C. J. Beevers の報告では ε -ZrH_{1.77} (fct)における双晶組織の方位測定の結果 {101}が双晶面であるとしており、今回得られた結果と同じであった。以上より、作製した試料は {111}を双晶面とする双晶組織を有する単相 ε 相 Zr 水素化物相であることが確かめられた。

(4) まとめ

本節では Nd-Zr 試料、模擬 FP として Ce または Ag を含有する Nd-Zr 試料、また ε 相 Zr 水素化物試料を作製し、その組織を観察した。得られた結果を以下に示す。

・作製した Nd-Zr 合金及び Nd-Zr 水素化物は、それぞれ Nd リッチ相と Zr リッチ相の 2 相に分離 した。水素化物試料は結晶構造が同一である立方晶 NdH_{2.0-d}相と δ 相 ZrH_{2-d}相から形成される。

・Nd-Zr 水素化物の Nd/Zr 分布は、水素化前の Nd-Zr 合金のものとほぼ一致した。合金における Nd リッチ相がほぼ形状を変えずに Nd 水素化物に、Zr リッチ相が Zr 水素化物となっている。この ことから、Nd-Zr 水素化物の微細組織は合金形成時に決定されると考えられ、組織制御のためには その合金形成手法及び過程が重要である。

・Ce-Nd-Zr 水素化物は δ 相 Zr 水素化物相と(Ce, Nd)水素化物相の2相から構成される複合材料であり、Ce はNd リッチ相に均質に存在することより固溶FPの模擬元素として用いることができる。

・ $Ag_{0.05}Nd_{0.1}Zr_{0.85}$ 水素化物は $Ag_{2}Nd$ 相、 δ 相 Zr 水素化物相、Nd 水素化物相の3 相からなる複合材料であり、 $Ag_{0.10}Nd_{0.1}Zr_{0.8}$ 水素化物はこれらに加え ϵ 相 Zr 水素化物を含む4 相混合試料となった。いずれも Ag は Nd リッチ相側に析出物 $Ag_{2}Nd$ として存在することより、析出 FP の模擬元素として適している。

・ ϵ 相 Zr 水素化物は δ 相から ϵ 相への相変態に伴って形成される双晶組織が全体に形成される ことが確認された。このため核変換処理時に水素が過剰となった際、双晶組織がターゲット内に 形成される可能性があると言える。

参考文献

(1) 北野祐樹, 修士論文, 大阪大学, 2011年3月.

- (2) 第4版化学便覧基礎編, 日本化学会 編, 丸善, 1993年.
- (3) S. Yamanaka, K. Yoshioka, M. Uno, M. Katsura, H. Anada, T. Matsuda, S. Kobayashi,
 J. Alloys Compd., 293-295 (1999) 23-29.
- (4) W. L. Korst, J. C. Warf, *Inorg. Chem.*, **5** (1966) 1719-1726.

			格子定数		
	試料組成	密度	Zrリッチ相	Ndリッチ相	
	(水素量は省略)	(gcm^{-3})	$(ZrH_{1.6})$	(NdH _{2.0})	
			a (nm)	a (nm)	
	ZrH _{1.6} *	5.66	0.4776	_	
	Nd _{0.05} Zr _{0.95}	5.40	0.4780	0.5436	
	Nd _{0. 10} Zr _{0. 90}	5.57	0.4780	0.5434	
Nd-Zr	Nd _{0. 15} Zr _{0. 85}	5.56	0.4784	0.5476	
	Nd _{0. 20} Zr _{0. 80}	5.45	0.4783	0.5457	
	Nd _{0.30} Zr _{0.70}	5.44	0.4777	0.5452	
	NdH _{2.0}	5.75	_	0.5467	
	$Ce_{0.05}Nd_{0.1}Zr_{0.85}$	5.33	0.4783	0.5504	
坩埚ED会右	$Ce_{0.1}Nd_{0.1}Zr_{0.8}$	5.35	0. 4778	0.5514	
犑 ^{按FP} 召 有	Ag _{0.05} Nd _{0.1} Zr _{0.85}	5. 11	0.4781	0.5434	
	$Ag_{0.1}Nd_{0.1}Zr_{0.8}$	5.87	0. 4778	0.5431	

表 3.1.2.1-1 Nd-Zr 水素化物及び模擬 FP 含有 Nd-Zr 水素化物試料の密度と格子定数(H28-H30)

*文献値(1)


図 3.1.2.1-1 ジーベルツ装置の概略図(H28-R1)



図 3.1.2.1-2 水素化温度プログラム(R1)



図 3.1.2.1-3 Nd0.1Zr0.9 試料の(a) 合金及び(b) 水素化物の外観(H28)



図 3.1.2.1-4 Nd-Zr 合金試料の FE-SEM 観察像及び元素マッピング(H29)



図 3.1.2.1-5 Nd-Zr 合金試料の XRD パターン(Cu-K α) (H29)



図 3.1.2.1-6 Nd-Zr 水素化試料の FE-SEM 観察像及び元素マッピング(H29)



図 3.1.2.1-7 Nd-Zr 水素化物試料の XRD パターン(Cu-K a) (H29)

(a)



図 3. 1. 2. 1-8 模擬 FP 含有合金試料の FE-SEM 観察像及び元素マッピング(H30) (a) Ce_{0.05}Nd_{0.1}Zr_{0.85} (b) Ag_{0.05}Nd_{0.1}Zr_{0.85}



(b)



図 3. 1. 2. 1-9 模擬 FP 含有水素化物試料の FE-SEM 観察像及び元素マッピング(H30) (a) Ce_{0.05}Nd_{0.1}Zr_{0.85} (b) Ag_{0.05}Nd_{0.1}Zr_{0.85}



(a)

(a)Ce-Nd-Zr (b)Ag-Nd-Zr (縦軸対数)



図 3. 1. 2. 1-11 ε相 Zr 水素化物試料の XRD パターン(縦軸対数)(R1)



図 3.1.2.1-12 ZrH1.9 試料の EBSD 観察結果(R1)



図 3.1.2.1-13 ZrH1.9 試料の結晶方位マップにおける隣接する領域の(101) 極点図(R1)

3.1.2.2 水素化物作製

国内で本課題の研究材料である Am を入手することは難しいため、Am の必要量を供給できホットラボでの合金作製技術及び設備を持っているロシア連邦国立科学センター原子炉科学研究所 (RIAR)の設備を用いて Am-Zr 水素化物作製を実施した。平成 30 年度に作製した Fe、A1 を含む Am-Zr 合金を水素化する。

平成 28 年度策定した水素化物作成装置の仕様及び装置概略図を基に、平成 29 年度は装置を整備した。また、装置の性能を確認するため、Amの模擬物質として Nd を用いて Zr-Nd 合金を用いて水素化物作製試験を実施した。その結果、Nd 水素化物が均一に分散した Zr-Nd 水素化物が得られた。Nd 水素化物は、Zr 水素化物母材の粒界及び粒内に微細に分散していることが SEM 観察結果及び元素分布観察により分かった。この結果により、Am-Zr 水素化物においても同様な相が形成されるものと推測される。作製した装置によって Am-Zr 水素化物作製を実施するための水素ガス 圧、流量、温度を適正に制御できることが確認でき、水素化物作製に対する十分な知見を得た。

Am-Zr 水素化物作製作業は、不活性ガス雰囲気グローブボックスの中で実施した(図3.1.2.2-1)。 図 3.1.2.2-2 は、グローブボックス内に設置されたジーベルツ型の水素化装置である。試料の水素化 は、図 3.1.2.2-3 に示すように次の順序で実行された。

1) 真空中、サンプルを 400°C / hの速度で 800°C に加熱。

2) 800°Cで2時間真空保持。

3) 800°Cで1.25 ml / min の供給速度でセルに水素を供給しながら9時間水素吸収した。

4) 800 から 720°C まで冷却しながら 7 時間水素吸収した。

5) 720°Cから600°Cまで冷却しながら10時間水素吸収した。

6) 600°Cで16時間水素吸収した。

7)加熱を停止し試料を自然冷却し、室温に達した後水素化物試料を取り出した。



図 3.1.2.2-1 水素吸収装置を設置している不活性雰囲気グローブボックス



図 3.1.2.2-2 水素吸収用反応セル



図 3.1.2.2-3 水素吸収過程の水素圧力と温度履歴

3.1.3 物性測定【H28-R1】

3.1.3.1 物性值傾向把握(再委託先:大阪大学)

(1) 試験の目的

MA-Zr 水素化物の炉内挙動の評価のためにはその熱・機械物性の取得が必要となる。本節では 模擬試料として作製した Nd-Zr 水素化物試料並びに模擬 FP 元素として Ce、Ag を含有する Nd-Zr 水素化物試料、また ε 相 Zr 水素化物試料の測定を行い、その熱物性、機械的特性に関する知見を 得ることを目的とする。なお複合試料の物性予測手法については、3.2.1.1 節で述べる。

(2) 実験方法

① 熱拡散率

作製した水素化物試料の熱拡散率及び熱伝導率をレーザーフラッシュ法熱定数測定装置 (NETZSCH 社製 LFA457)にて測定した。レーザーはガラスレーザーを用い、検出器は InSb 製で ある。測定はそれぞれのサンプルにおいて、室温から 800℃までの測定を行った。通常の Ar フロ ー雰囲気の条件下では、450℃程度で水素の解離が起こってしまう。そこで、平成 29 年度に行っ た Nd-Zr 水素化物の高温域での測定と同様に雰囲気の調整を行った。東北大学における検討より、 酸素濃度およそ 1%以上の雰囲気下では、900℃までの水素放出が抑制されることが分かっている。 この知見に従い、1%02-Ar 混合ガスを購入し、この混合ガスフロー下で 800℃までの測定を行った。 この時の装置出口側の酸素濃度、また測定後の試料観察を行った。いずれもサンプルホルダーは SiC 製、 φ 6.0 mm あるいは 10×10 mm² のものを使用した。

レーザーフラッシュ法はレーザー発振器から試料表面にレーザーパルスを入射させ、試料裏面 の温度上昇の過程を赤外線検出器で測定し、試料厚さと熱拡散に要する時間から熱拡散率を求め るものである。実際には試料表面及び裏面からの熱損失の影響を無視できないため、ここでは装 置測定ソフトウェアにより Cowan モデルによる熱損失の補正を行った。

この熱拡散率 D と試料寸法から求めた密度 d、文献値⁽¹⁾の足し合わせによって算出した比熱 容量 C_p を用いて、熱伝導率 κ を式 3.1.3.1-1 から求めた。なお試料密度の温度依存性は考慮 せずに室温の値を使用した。

 $\kappa = DdC_{\rm P}$

(3. 1. 3. 1 - 1)

② 弾性定数

本研究では音速測定装置(超音波工業製UVM-2)を使用して、シングアラウンド法によって、作 製した水素化物試料の縦波及び横波音速を測定した。また、それらの値から弾性率も算出した。 超音波の周波数は 10 MHz とし、全て室温で測定を行った。

シングアラウンド法について説明する。一組の平行平面を持つ試料の片面にトランスデューサーを接着させた状態でパルス音波を照射する。試料長既知の試料中をパルス音波が伝播して対向面で反射されて戻ってくるまでに要する時間と伝播路長から音速が求められる。シングアラウンド法においては1000回この伝搬を輪唱させることで測定精度を高めている。パルス波を照射した時間を *T*₁、反射され戻ってきた時の時間を *T*₂、試料厚さを *L* とすると音速 *V*は式 3.1.3.1-2 によって求まる。

3. 1. 3. 1-1

$$V = \frac{2L}{T_2 - T_1} \tag{3. 1. 3. 1-2}$$

ここではパルス音波発生源として水晶トランスデューサーを用いており、カットする結晶面を変 えることで発生するパルス波を縦波及び横波とすることができる。これにより、縦・横波それぞ れの伝播速度 V₄、V₈を求めることができる。

求められた縦波伝播速度 VL、横波伝播速度 VSによって各種弾性率 (剛性率 G、ヤング率 E、ポア ソン比 v)を式 3.1.3.1-3~式 3.1.3.1-9 を用いて算出した。

$$G = \rho V_{S}^{2}$$
(3. 1. 3. 1-3)
$$E = \frac{3\rho V_{S}^{2} \left(V_{L}^{2} - \frac{4}{3} V_{S}^{2} \right)}{V_{L}^{2} - V_{S}^{2}}$$
(3. 1. 3. 1-4)

$$v = \frac{E}{2G} - 1 = \frac{1}{2} \frac{V_L^2 - 2V_S^2}{V_L^2 - V_S^2}$$
(3.1.3.1-5)

③ ビッカース硬度測定

作製した水素化物試料のビッカース硬度を微小ビッカース硬度測定器(松沢精機社製 HMT-1) によって測定した。ビッカース硬度 H_{ℓ} は対面角 136°、ダイアモンド製の四角錐圧子を試料表面 に押し付ける試験荷重と、その際生じる永久ひずみの表面積から求まる。ビッカース硬度 H_{ℓ} は荷 重 P_{H} 、圧痕の表面積 S、圧痕の対角線の長さ d、圧子の頂角 2 Φ (=136°) を用いて式 3.1.3.1-6 のように定義される。

$$H_V = \frac{P_H}{c} = \frac{2P_H \sin(\Phi/2)}{d^2} = 1.854 \frac{P_H}{d^2}$$
(3. 1. 3. 1-6)

本研究では荷重1 kg、保持時間10 s の条件で10 点測定し、その平均値を求めた。

(3) 測定結果と考察

熱拡散率

・Nd-Zr水素化物【H29-R1】

熱拡散率の温度依存性について、東北大学において確かめられた酸素分圧制御により、450℃以上での測定を初めて試みた。具体的には1%02-Arガスフロー下での測定を行った。図3.1.3.1-1にNd0.1Zr0.9水素化物試料の熱拡散率の温度依存性を、またこの測定中の酸素濃度を図3.1.3.1-2に示す。熱拡散率は900℃で飛びが見られたものの、降温時の値は昇温時のものと大きく変化していない。酸素分圧を見てみると、800℃近くまでは0.01 atm付近、つまり用いた1%02-Arガスの酸素濃度と同じ値を示し、800-850℃で急激に減少している。これは試料の酸化により酸素が消費されたためと考えられる。900℃におけるデータの飛びは、この酸化の影響と思われる。なお測定後の試料観察より、測定中に形成した試料表面酸化膜の厚さは20μm程度であり、これは試料の厚さ1-2 mmと比べて十分薄く、測定値に影響は小さいことを確認している。以上から、およそ800℃までの熱拡散率測定に初めて成功した。

3. 1. 3. 1-2

測定された熱拡散率の温度依存性を図3.1.3.1-3に示す。また、比熱容量の計算値と併せて求め た熱伝導率の温度依存性を図3.1.3.1-4に示す。熱拡散率、熱伝導率ともに室温近傍ではNdH2.0試 料が最も高く、Nd量の増加とともに減少する傾向が見られた。またZrH1.6相の熱伝導率は温度依存 性がほとんどなく、電子の寄与が多い一方で、NdH2.0試料の熱伝導率は温度とともにほぼ温度の逆 数(T⁻¹)に従って大きく減少しており、格子熱伝導率の寄与がほとんどであることが推定される。 このため、温度に増加とともに熱伝導率の差は減少、さらに逆転し、およそ500℃以上ではNdH2.0 試料はZrH1.6試料よりも低い熱伝導率を示した。

・模擬FP含有水素化物【H30-R1】

模擬FP含有水素化物試料の熱拡散率の温度依存性を図3.1.3.1-5に、熱伝導率の温度依存性を図 3.1.3.1-6に示す。CeあるいはAgを含むNd-Zr水素化物試料の熱伝導率は、いずれもNd-Zr水素化物 よりも低い値を示した。固溶型のCeを含むCe-Nd-Zr水素化物に関しては、Ndリッチ水素化物相に おける合金化散乱により、フォノンの散乱が増加したことで熱伝導率が低下したと考えられる。 析出型のAgを含むAg-Nd-Zr水素化物に関しては、析出したAg2Nd自身の熱伝導率は不明なものの、 3相あるいは4相の複雑な相状態を取るため、析出物と各水素化物相の界面におけるフォノン散乱 により熱伝導率が低下したと考えられる。

 ・ ε 相Zr水素化物【R1】

 ϵ 相Zr水素化物試料の熱拡散率の温度依存性を図3.1.3.1-7に、熱伝導率の温度依存性を図 3.1.3.1-8に示す。参考として δ 相Zr水素化物ZrH_{1.60}の値をともに示す。 ϵ 相Zr水素化物試料の熱 伝導率は、いずれも δ 相試料よりも高い熱拡散率と熱伝導率を示しており、水素量が増えるほど 高くなる傾向を示した。このことから水素量が過剰になることは、熱伝導率の観点からは問題が ないものと考えられる。またおよそ600℃以上において熱伝導率が減少する傾向が見られる。この 理由は定かではないが、Zr-H二元系状態図より高温で ϵ 相は δ 相に相変態することが分かってお り、この相変態等が関わっているものと思われる。

② 弹性定数【H28-R1】

音速測定で得られた縦波及び横波の伝播速度及びポアソン比を図3.1.3.1-9に、計算されたヤン グ率を図3.1.3.1-10に示す。Nd-Zr水素化物試料においては、Nd量が増えるにつれ縦波音速値はわ ずかに減少し、一方で横波音速値はわずかに増加する傾向が見られた。これに伴ってポアソン比 は減少、ヤング率はわずかに増加傾向にある。ここで縦波音速、横波音速、ポアソン比はいずれ もNd量に対して線形に変化していることが分かる。この傾向を用いて、Nd-Zr水素化物系、またAm-Zr水素化物系における弾性定数を推測することができると考えられる。

Ce_{0.05}Nd_{0.1}Zr_{0.85}水素化物試料とAg_{0.05}Nd_{0.1}Zr_{0.85}水素化物試料においては、縦波音速、横波音速はわ ずかに増加した。ヤング率は、Nd_{0.15}Zr_{0.85}水素化物と比較すると高い値であったが、Nd含有率x=0.05 ~0.3の範囲のNd-Zr水素化物のヤング率の範囲に収まり、大きな変化はないと言える。固溶FPと なるCe、析出するFPとなるAgいずれの添加も弾性定数に与える影響は小さいと考えられる。

図中でx=0のプロットで示される ε 相水素化物試料においては、縦波音速は線形関係から外挿で 得られる δ 相水素化物の値とほぼ同じであるものの、著しく横波音速が増加した。これに伴って ポアソン比が低下し、またヤング率の増加が見られた。水素量依存性は一様ではなく、誤差も大 きいと考えられるが、水素量の増加は機械的特性に影響することが示唆される。

③ ビッカース硬度【H28-R1】

ビッカース硬度試験における圧痕像を図3.1.3.1-11に示す。また、値の組成依存性をまとめて 図3.1.3.1-12に示す。いずれの圧痕にもき裂が観察され、脆性を示した。ZrH_{1.6}試料のビッカース 硬度は2.6 GPaと報告されており⁽²⁾、Nd量x=0.05から0.3まではこの値とほぼ等しい。マトリクス のZrH_{1.6}相が硬度を決定しているように思われ、この範囲であればAm-Zr水素化物においてもAm量 がx=0.1程度と十分小さければ、硬度についてはZrH_{1.6}マトリクスと変化がないと仮定して良いと 思われる。なお、NdH_{2.0}試料は明らかにこれより低い硬度を示した。またCe-Nd-Zr水素化物試料及 びAg-Nd-Zr水素化物試料のビッカース硬度はNd-Zr水素化物よりわずかに高い値を示しており、こ れは添加したCe、Agがそれぞれ固溶強化、析出強化を起こしたためと考えられるが、その増加量 は小さい。弾性定数と同様に、FPが硬度に与える影響は十分小さいと考えられる。また、 ϵ 相Zr 水素化物の硬度における水素量依存性は小さいものの、1.6 GPa程度と δ 相と比較して小さい値を 示した。

(4) まとめ

Nd-Zr水素化物試料、模擬FPとしてCeまたはAgを含有した水素化物試料、また ε 相Zr水素化物試 料の熱拡散率、弾性定数、ビッカース硬度を測定した。熱拡散から算出した熱伝導率は、Ce、Ag どちらの模擬FPを添加した場合でも、Nd-Zr水素化物よりも低くなった。一方、機械物性に関して は弾性定数、ビッカース硬度ともにNd-Zr水素化物に近い値を示した。これらの結果よりAm (Nd) -Zr水素化物においては、FP元素は機械物性より熱伝導特性に影響を与えやすいと考えられる。熱 伝導率の予測手法については3.2.1.1節で述べる。以上の通り、作製したNd及び模擬FP元素を加え た水素化物試料について熱物性、機械的特性を測定した。これまでの物性測定試験の結果を総括 し、添加元素の影響をまとめ、各種物性を予測する手法を構築した。

参考文献

(1) Factsage database.

(2) S. Yamanaka, K. Yoshioka, M. Uno, M. Katsura, H. Anada, T. Matsuda, S. Kobayashi,J. Alloys Compd., 293-295 (1999) 23-29.



図 3.1.3.1-1 Nd_{0.1}Zr_{0.9}水素化物試料の熱拡散率の温度依存性(H29)



図 3.1.3.1-2 1%0₂-Ar ガスフロー下における Nd_{0.1}Zr_{0.9}水素化物試料の熱拡散率測定時の酸素分 圧変化(H29)



図 3.1.3.1-3 Nd-Zr 水素化物試料の熱拡散率の温度依存性(H28, H29)



図 3.1.3.1-4 Nd-Zr 水素化物試料の熱伝導率の温度依存性(H28, H29)



図3.1.3.1-5 模擬FP含有水素化物試料の熱拡散率の温度依存性(H30)



図3.1.3.1-6 模擬FP含有水素化物試料の熱伝導率の温度依存性(H30)



図3.1.3.1-7 ε相水素化物試料の熱拡散率の温度依存性(R1)



図3.1.3.1-8 *ε*相水素化物試料の熱伝導率の温度依存性(R1)



図3.1.3.1-9 縦波音速、横波音速、ポアソン比の組成依存性(H28-R1)



図3.1.3.1-10 ヤング率の組成依存性(H28-R1)

3.1.3.1-9



図3.1.3.1-11 ビッカース試験後の圧痕像(H30)



図3.1.3.1-12 ビッカース硬度の組成依存性(H28-R1)

3.1.3.2 物性測定

作製した水素化物の密度測定、外観観察、走査電子顕微鏡(SEM)観察、元素分析試験、X線回 折試験を実施した。表 3.1.3.2-1 に作成した水素化物試料をまとめて示す。作製した水素化物の外観 観察、密度測定、X線回折試験、走査電子顕微鏡(SEM)観察、元素分析試験を実施した。作製し た水素化物ペレットを図 3.1.3.2-1 に示す。図 3.1.3.2-2 は試料 3 の外観写真である。割れや欠け がない試料が作製された。

Sample	Alloy/hydride	Diameter, mm	Height, mm	Mass, g	Density*, g/cm³	Note/ application
1	Alloy	7.00	6.85	1.223	4.639	Not hydrogenated
2	Alloy	7.00	6.75	1.221	4.700	
	Hydride	7.25	6.90	1.237	4.286	Thermal expansion
3	Alloy	7.00	6.90	1.220	4.594	
	Hydride	7.20	7.1	1.236	4.275	XRD and dissolution
4	Alloy	7.02	5.75	1.021	4.588	
	Hydride	7.22	5.99	1.035	4.213	Thermal diffusivity
5	Alloy	6.98	7.20	1.281	4.650	
	Hydride	7.21	7.45	1.298	4.267	SEM

表3.1.3.2-1合金65.71Zr-9.78Fe-5.05Al-19.45Am (vol%)の水素化による密度変化

Note- The densities of hydride pellets are estimated due to the large error in determining the diameter of the pellets associated with a slight swelling of the samples



図3.1.3.2-1 水素化後のペレット外観



図3.1.3.2-2 水素化物の試料3外観

水素化物ペレットの光学顕微鏡観察を図 3.1.3.2-3 に示す。中心部付近の高倍率写真を図 3.1.3.2-4 に示す。試料半径方向のそれぞれ中心位置、中間位置、外周位置について調べたところ、 半径位置によって変化は見られなかった。



図3.1.3.2-3 水素化物ペレットの断面全体写真



図 3.1.3.2-4 水素化物ペレットの中心部組織

13

図 3.1.3.2-5 は、径方向中心位置での電子顕微鏡像と元素分布を示す。図 3.1.3.2-6 に電子顕微 鏡画像(径方向中心位置、二次電子像)と元素分析ポイントを示す。各元素分析ポイントでの元 素分析結果を表 3.1.3.2-2 に示す。灰色に見える Zr-リッチ領域と白く見える Am-リッチ領域に分かれて いることが分かる。図 3.1.3.2-7に水素放出試料の X線回折パターンを示す。Zr 水素化物のδ相は同 定できたが、Am 関連相の同定はできなかった。



Тооµт Zr Fe Al

図 3.1.3.2-5 径方向中心位置での電子顕微鏡像と元素分布



図 3.1.3.2-6 電子顕微鏡画像(径方向中心位置、領域 2、二次電子像)と元素分布ポイント

Place of analysis	Element mass fraction, %			
	Al	Fe	Zr	Am
Point 1	0.6	2.3	7.8	70.3
Point 2	0.2	0.9	3.6	77.0
Point 3	0.3	1.2	4.9	76.9
Point 4	7.4	8.7	79.3	0.4
Point 5	6.2	18.3	65.8	3.3
Point 6	5.6	18.8	69.2	0.7
Point 7	6.2	17.0	70.5	0.7

表 3.1.3.2-2 元素分析結果(径方向中心位置、領域 2)





2

3.1.4 リサイクル前処理技術【H30-R1】

3.1.4.1 技術開発(再委託先:NFD)【H30】

照射済み水素化物を既存の湿式再処理プロセスによりマルチリサイクルすることの適用性 を確認するために、Zr-Nd水素化物を酸化処理、硝酸溶解回収を行い、回収率を測定した。こ の際、高 Zr02濃度領域では硝酸溶解が困難と考えられるため、分離回収等により Zr02濃度が 下げられることを考慮して Zr02濃度を下げた領域での溶解特性も調べ、プロセスの適用性を 確認した。

(1) Zr-Nd 合金試料の酸化

Zr-Nd 水素化物は真空下で高温に加熱することにより脱水素化することができる。したが って、ここでは、Zr-Nd 合金を酸化して試料を得た。アーク溶解で得た 90at%Zr-10at%Nd 試 料を図 3.1.4.1-1の(a)に示すように切断し、Ar+20%02中で850℃、96時間加熱することに より酸化物試料を得た。試料は図 3.1.4.1-2 の(a)に示すように酸化時の体積変化により粉 砕した。一部残っていた塊は図 3.1.4.1-2の(b)のように乳鉢で粉砕して溶解試験に供した。 低温で酸化することにより ZrO2の結晶化が進みにくくなり、硝酸への溶解が容易となること が期待されたため、水蒸気中、450℃での酸化を試みた。この場合、酸化により粉化すること が高温酸化試験により確認されたこと、低温のため反応速度が遅いことが予想され表面積を 増加させて反応速度を加速させる必要があると判断されたことから、90at%の Zr 粉末と 10at%のNd粉体のメカニカルアロイ法混合粉末(M-run4)を酸化した。酸化前後の試料の外 観を図 3.1.4.1-1の(b)、及び図 3.1.4.1-2の(c)にそれぞれ示す。また、溶融塩精製法など の乾式法により Zr 濃度を低下させることが可能と期待されるため、Zr 濃度が低い領域での Nd の溶解特性を調べるために、5at%の Zr 粉末と 95at%の Nd 粉体を混合し、Y₂O₃坩堝で 1200℃-10分加熱して溶融試料を得た。溶融前後の試料外観を図 3.1.4.1-1の(c)、及び(d) に示す。得られた溶融試料から Y203 坩堝を研削して除去し、図 3.1.4.1-1の(e)に示す試料 を 850℃で空気中 3 時間加熱して酸化物を得た。 得られた酸化物は図 3.1.4.1-2 の(d)に示す ように塊状となっていたため、同図(e)に示すように粉砕して溶解試験に供した。

(2) 溶解試験

溶解試験の装置外観と溶液部を図 3.1.4.1-3 に示す。6M 硝酸 300ml をフラスコに入れ、硝酸を 80℃に加熱する。秤量した酸化物試料を試料投入口から投入し、15 分後、30 分後、60 分後、120 分後、240 分後に溶液を 3ml サンプリングし、分析試料とした。溶液はできる限り 上澄みを取るが、微細試料が混入する可能性があるため、分取溶液はフィルターでろ過して 分析を行った。溶液の分析には、誘導結合プラズマ質量分析計(ICP-MS)を用いた。結果を 図 3.1.4.1-4、及び図 3.1.4.1-5 に示す。ここで、回収率は投入した試料に含まれるそれぞ れの元素量に対する溶液中の濃度と定義した。図に示すように高温で酸化処理した試料は Nd の含有率に関わらず、硝酸溶液に速やかにほぼ溶解することが確認された。一方、低温で酸 化処理した試料は、50%程度の回収率で、不溶解残渣中に Nd が残存した。不溶解残渣の X 線 回折パターンを図 3.1.4.1-6 に示す。図に示すように、高温酸化処理した試料の不溶解残渣 のピークに比べて低温処理した試料のピークはブロードとなっており、母相である Zr0₂ に Nd

3.1.4.1-1

が固溶していることが示唆され、このために Nd が硝酸に溶出しにくくなったと考えられる。 一方、Zr に関しては、図 3.1.4.1-5 に示すように、高温処理した 90at%Zr-10at%Nd 酸化物 に関しては、ほとんど硝酸に溶解せず、低温酸化試料では若干 Zr の溶解が促進された。低 Zr 濃度領域の試料に関しては、回収率が他に比べて高くなっているが、投入量が約 1 桁低くな っていることから、溶解量としては小さいと判断した。

(3) リサイクル前処理の概要

リサイクル前処理のフローとして幾つかの選択肢がある。流れの概念の一例をまとめたものを図 3.1.4.1-7 に示す。本試験では、赤いラインで示す水素化物を脱水素して酸化する前処理方法の適用性を確認した。

本手法のほかに、溶融塩を用いる方法が可能と考えられる。その中でも、青いラインで示 す溶融塩を用いて酸化させる方法は、Zr、MA、Pu、FP などを分離しながら、かつ硝酸溶解 に与える影響が少ないことから有望と考えられる。このほかに、Zr や MA を金属として分離 する方法も提案されている⁽¹⁾⁽²⁾が、MA は Pu と析出電位が近く、Pu に随伴して析出する⁽³⁾こ とから、分離後さらに精製が必要と思われる。



(c)



(a) アーク溶解で得た 90at%Zr-10at%Nd の塊から切断した試料

(b)

- (b) メカニカルアロイで得た 90at%Zr-10at%Nd の試料 (M-run4) (低温酸化用)
- (c) Zr 粉末と Nd 粉末を 5:95(モル比)で乳鉢により混合した試料(溶融前)
- (d) Zr 粉末と Nd 粉末を 5:95 (モル比) で乳鉢により混合した試料(溶融後)
- (e) Zr 粉末と Nd 粉末を5:95(モル比)で乳鉢により混合した試料(酸化前)





(a)



(e)

(e)

(d)

(d)

図 3.1.4.1-2 溶解試験用酸化物外観

- (a) 高温酸化による 90at%Zr-10at%Nd 酸化物試料(粉砕前)
- (b) 高温酸化による 90at%Zr-10at%Nd 酸化物試料(粉砕後)
- (c) 低温酸化による 90at%Zr-10at%Nd 酸化物試料

(b)

- (d) 高温酸化による 5at%Zr-95at%Nd 酸化物試料(粉砕前)
- (e) 高温酸化による 5at%Zr-95at%Nd 酸化物試料(粉砕後)



図3.1.4.1-3 溶解試験装置の概念図と装置外観



図3.1.4.1-6 不溶解残渣のX線回折パターン(Cu-K a)

3.1.4.1-4



参考文献

(1) 小山ら、電中研レビュー、No.37 (2000)26-33.

(2) 木下ら、電中研レビュー、No.37 (2000)48-58.

(3) JAEA-Evaluation-2006-002、「高速増殖炉サイクルの実用化戦略調査研究 -フェーズⅡ最終報告書-」次世代原子力システム研究開発部門日本原子力発電株式会社研究開発室(2006).

3.1.4.2 前処理試験【R1】

放射性廃棄物の核変換では、1回の原子炉照射により10%-30%のAmが処理される。そのため、 残ったAmを照射済みAm-Zr水素化物から回収し再度Am-Zr水素化物を作製する必要がある。平成 30年度の模擬物質を用いた溶解試験で大部分は硝酸へ溶ける見通しが得られたため、ここでは、 さらに溶け残ったものに対して溶解度を上げるためにAm-Zr水素化物のLiC1-KC1への溶解実験 を実施した。図 3.1.4.2-1 にLiC1-KC1 溶解試験に用いた水素化物ペレット片を示す。また、図 3.1.4.2-2 にLiC1-KC1 溶融塩試料を示す。図 3.1.4.2-3 は、LiC1-KC1 溶解試験を実施した石英セル の外観である。この中にLiC1-KC1 溶融塩を入れた炭素坩堝が設置されている。図 3.1.4.2-4 は、 LiC1-KC1 溶解試験を実施した不活性グローブボックスの外観である。



図 3.1.4.2-1 LiCI-KCI 溶解試験に用いた水素化物ペレット



図 3.1.4.2-2 LiCI-KCI 溶融塩



図 3.1.4.2-3 LiCI-KCI 溶解試験を実施した石英セルの外観



図 3.1.4.2-4 LiCI-KCI 溶解試験を実施した不活性ボックス外観

溶解性実験は、図 3.1.4.2-5 に示す石英容器の中に炭素坩堝を入れて実施した。 実験手順を下記に示す。

- ① 水素化物ペレットの断片と 2.087g の LiCl KCl 及び CdCl₂ 塩を炭素坩堝に入れた。
- ② 難溶性の水素化物の溶融物への変換を促進するために、塩化カドミウム(6.5mass%)を添加 した。
- ③ 坩堝を石英セルに設置した。
- ④ 塩を 500°Cに加熱した。
- ⑤ 一定時間(4、22、28、46、52、70)後にサンプルを採取した。

溶融後の試料の外観を図 3.1.4.2-5 に示す。Am と Zr の含有量に関する試料の化学分析の結果を 表 3.1.4.2-1に示す。試料は硝酸に溶解した後に希釈され分析された。Am は α 線分光法で測られ、 測定誤差は 10%である。また、Zr は発光分光法で測られ、測定誤差は 15-25%である。70 時間後 に溶解度から計算すると Am は 95%が回収されたことになる。この結果、Am-Zr 水素化物を LiC1 -KC1 に溶融することができることが示された。



図 3.1.4.2-5 溶融後試料の外観

#	Emperative 1	Content in salt, wt.%		
	Exposure time, it	Am	Zr	
1	4	0,030	0,28	
2	22	0,049	0,67	
3	28	0,056	0,63	
4	46	0,094	0,67	
5	52	0,12	0,62	
6	70	0,11	0,63	

表 3.1.4.2-1 溶融塩中の Am と Zr の含有量の時間変化

3.2 照射挙動評価【H30-R1】

3.2.1 模擬 FP 含有試料の物性試験(再委託先:大阪大学)

- 3.2.1.1 物性試験【H30-R1】
- (1) 試験の目的

MA(Am)-Zr 水素化物ターゲット材を核変換処理することで、ターゲット材内部に FP が蓄積され ていく。この FP 量は時間とともに変化し、Am-Zr 水素化物の物性は Am 及び FP の蓄積量に依存し て変化していくと考えられる。このため、照射中の Am-Zr 水素化物の物性を正確に評価するため には、Am 及び FP 含有率をパラメータとした FP-Am-Zr 水素化物の物性評価が必要である。本節で は、3.1.3.1節(物性値傾向把握)で示した水素化物試料について、Nd 及び FP 含有率と各熱及び 機械的物性の関係を評価することを第一の目的とする。

これに加え、核変換に伴いターゲット内には FP ガス及び He ガスが蓄積し、ボイドを形成する と考えられる。このため気孔を含む低密度試料を作製し、ボイドが物性に与える影響を評価する ことを第二の目的とする。

(2) 実験方法

Nd、FP 量依存性の評価については 3.1.3.1 節で報告したデータを用いた。低密度試料について は、NFDにおいてホットプレスによって作製された 3 つの Zr 密度調整ペレット及び 1 つの Ndo.1Zro.9密度調整ペレットを出発物質として水素化した。なお Zr 試料については、3 試料を同時 に水素化した。水素化時の条件及びその後の観察、物性測定はいずれも 3.1.2.1 節及び 3.1.3.1 節で述べたものと同様の方法で行った。

(3) 測定結果と考察【H30-R1】

3.1.3.1節で述べた通り、硬度に与えるNd、FPの影響は小さく、ほぼマトリクスであるδ相Zr 水素化物の値から変化しないと考えて良い。このため硬度のNd、FP量依存性については取り扱わ ず、熱伝導率及び弾性定数への影響についてのみ定式化を図る。

・熱伝導率のNd、FP量依存性

Nd-Zr 水素化物について、図 3.2.1.1-1 に室温近傍、400℃、800℃における熱伝導率の組成依存 性を示す。各温度での変化はほぼ組成に対して線形であることから、ZrH_{1.6}及び NdH_{2.0}試料の熱伝 導率のみから各組成、各温度における推定が可能と考えられる。例えば図中に示した 3 つの温度 における熱伝導率 y は、式 3.2.1.1-1 から式 3.2.1.1-3 のように Nd 量を x として y=Ax+B のよう に表すことができる。

 $\kappa_{Nd-Zr}(300\text{K}) = 56.3x + 16.6 \quad (Wm^{-1}K^{-1}, Nd_xZr_{1-x}H_y) \tag{3.2.1.1-1}$

 $\kappa_{Nd-Zr}(673\text{K}) = 4.81x + 18.6 + (Wm^{-1}K^{-1}, Nd_xZr_{1-x}H_y)$ (3. 2. 1. 1-2)

 $\kappa_{Nd-Zr}(1073\text{K}) = -7.13x + 17.9 \quad (Wm^{-1}K^{-1}, Nd_xZr_{1-x}H_y) \tag{3.2.1.1-3}$

室温では Nd リッチ相の熱伝導率がより高いため、x とともに増加する。高温ではむしろ Nd リッチ相の方が熱伝導率が低くなり、x とともに減少する。以上の傾向は組織が類似する Am-Zr 水素化物にも適用できると考えられ、既知の δ 相 Zr 水素化物データに加え AmH₂のデータさえ得られれば、全組成にわたる Am-Zr 水素化物の熱伝導率を推定できると思われる。 δ 相 Zr 水素化物より高い熱伝導率を示す ϵ 相 Zr 水素化物の影響についても Nd リッチ相と同様に、足し合わせによ
り値を予測できると考えられる。

次に FP の影響について、熱伝導率の模擬 FP 量と Nd 量依存性を図 3.2.1.1-2 に示す。Nd リッ チ相に固溶する Ce については、Nd リッチ相の熱伝導率がフォノンの不純物散乱により減少する ため、Nd の増加に係わる係数 A が小さくなる。例として、室温近傍においては(Ce, Nd) _xZr_{1-x} 水素 化物の熱伝導率は式 3.2.1.1-4 で与えられる。

 $\kappa_{Ce-Nd-Zr} = 16.6 + 22.3x (Wm^{-1}K^{-1}, (Ce, Nd)_x Zr_{1-x}H_y)$ (3.2.1.1-4)
またAg含有試料に対しては、Ag2Nd相及び ϵ 相Zr水素化物による歪み導入により、 δ 相Zr水素化
物自体の熱伝導率を減少させる効果が大きいと思われる。このため式3.2.1.1-1の定数項Bの部分
の変化を考え、Nd_xAgyZr_1-x-y</sub>水素化物の熱伝導率は式3.2.1.1-5のように表せると考えられる。

 $\kappa_{Ag-Nd-Zr} = 11.1 + 56.3x (Wm^{-1}K^{-1}, Ag_yNd_xZr_{1-x-y}H_z)$ これら直線の測定結果との比較を図3.2.1.1-3に示す。固溶するCe添加試料についてはよく一致 しており、固溶FP-Am-Zr水素化物試料については式中の係数を変更する必要があるものの、予測 手法を確立できたと言える。一方Ag含有試料については式で示された直線とそれほど一致してい ない。これは試料が3相あるいは4相から形成される複雑な相状態をしていること、それらの相の 体積率が不明であること、またAg2Nd相の熱伝導率データが不足していることによる。

・弾性定数【H30-R1】

3.1.3.1節で示した通り、模擬 FP 含有 Nd-Zr 水素化物試料の縦波音速、横波音速、ポアソン比、 ヤング率の組成依存性においては、Ce-Nd-Zr 水素化物試料と Ag-Nd-Zr 水素化物試料は Nd-Zr 水 素化物と同程度の値を示した。このため FP 量が少なければ、音速及び弾性定数の影響はほぼ無視 できると言える。一方、 ε 相 Zr 水素化物の弾性定数は大きく異なっており、影響の考慮が必要と 考えられる。

ε相Zr水素化物のヤング率への影響を考えるに当たり、A、B2相からなる複合物質のヤング率は式3.2.1.1-6で与えられるVoigt則と式3.2.1.1-7で与えられるReuss則の間の値を取るとされている。

$$E_{voigt} = x_A E_A + (1 - x_A) E_B \text{ (GPa)}$$
(3. 2. 1. 1-6)
$$E_{Reuss} = \frac{1}{x_A / E_A + (1 - x_A) / E_B} \text{ (GPa)}$$
(3. 2. 1. 1-7)

主相となる Nd 水素化物及び δ 相 Zr 水素化物、また ϵ 相 Zr 水素化物相のデータは取得済みであるため、この式より FP 添加試料のヤング率を予測することができると考えられる。

・低密度 Zr 水素化物【R1】

低密度Zr水素化物試料の密度と理論密度比、水素比率を表3.2.1.1-1に示す。今回3つのZr及び1 つのNd_{0.1}Zr_{0.9}ホットプレス試料を水素化したが、うち2試料は水素を十分吸収しなかった。これら の試料は金属ZrあるいはNdが残存していると考えられるため、熱拡散率の評価は行わず、理論密 度比93 %のZrH_{1.63}試料及び理論密度比84 %のZrH_{1.64}試料に対して測定を行った。

図3.2.1.1-4、図3.2.1.1-5に測定した熱拡散率及び熱伝導率の温度依存性を示す。7%あるいは 16%もの気孔にも拘らず、室温近傍では熱拡散率及び熱伝導率は気孔のないδ相ZrH_{1.60}試料と大き く変わらない値を示した。水素比率が高いことの影響もあると思われるが、ボイド蓄積による密 度減少が熱伝導率に与える影響は比較的小さいことが示唆される。一方で温度が増加するに従っ て、熱拡散率及び熱伝導率は大きく減少している。また、測定降温時に373Kで測定したプロット を見ると、昇温時に測定した値から著しく減少していることが分かる。これは高温測定時に水素 の脱離及び酸化した影響と見られる。このため測定後に試料表面を研磨し、XRD測定を行った。図 3.2.1.1-6にXRDパターンを示す。水素化物相のピークは弱くなっており、ほぼα-Zrとなっている ことが示唆される。このように、表面の酸化と内部の水素脱離により高温で熱伝導率が減少した ものと考えられる。図3.1.3.1-1で示した通り、アーク溶解した合金から作製した高密度試料では 試料内部まで酸化せず、また水素脱離も起こらないため、その影響は無視できるが、低密度試料 では開気孔が存在し、内部まで酸化及び水素脱離したためこのような大きな減少が起こったと考 えられる。

(4) まとめ

Nd-Zr 水素化物試料、模擬 FP 含有 Nd-Zr 水素化物試料、低密度水素化物試料の熱拡散率、熱伝 導率、弾性定数を評価し、それぞれの組成依存性を求めた。熱伝導率においては、固溶 FP は Nd リ ッチ相と Zr リッチ相の比率を考慮し、固溶による Nd リッチ相の熱伝導率低下を考慮することで 定量的に予測できることが分かった。析出 FP の影響の定量的な予測においては相状態の詳細な評 価が必要と考えられる。一方、弾性定数やビッカース硬度といった機械物性については、マトリ クス相である δ 相 Zr 水素化物の値から大きく変化しない傾向が見られる。FP 量が少なければ、 固溶析出いずれの FP も大きく影響しないと言える。また熱伝導率への密度の影響は大きくないこ とが確かめられた。一方で酸化に対して敏感であり、低密度化は周辺雰囲気の影響を受けやすく することが示唆される。以上の通り、平成 30 年度に続いて模擬 FP の量をパラメータとした物性 試験を実施し、結果をとりまとめた。また、FP ガス及び He ガスの蓄積の効果を調べるため、密度 の低いペレットの熱伝導度測定試験を実施した。

	試料表記	密度 ρ(gcm ⁻³)	理論密度比 (%)	水素比 (H/(Zr+Nd))
低密度	ZrH _{1.6} (100%)*	5.66	100	1.6
	ZrH _{1.63} (93%)	5.45	93.1	1.63
	ZrH _{1.64} (84%)	5.36	83.9	1.64
	ZrH _{0.76} **	5.33	_	0.76
	Nd _{0.1} Zr _{0.9} H _{1.12} **	5.21	-	1.12

表 3.2.1.1-1 低密度水素化物試料の密度と水素比率(R1)

*文献値(1)

**水素を十分吸収しなかったため物性評価は行わない



図 3.2.1.1-1 Nd-Zr 水素化物試料の熱伝導率の組成依存性(H30)



図3.2.1.1-2 模擬FP含有Nd-Zr水素化物の熱伝導率の組成依存性(H30)



図3.2.1.1-3 300 Kにおける熱伝導率(H30)



図3.2.1.1-4 低密度水素化物試料の熱拡散率の温度依存性(R1)



図3.2.1.1-5 低密度水素化物試料の熱伝導率の温度依存性(R1)



図3.2.1.1-6 熱拡散率測定後の低密度水素化物試料のXRDパターン(R1)

3.2.2 模擬試料照射後試験【H30-R1】(再委託先:NFD)

平成 30 年度に日本原子力研究開発機構の材料試験炉 (JMTR)からNFDへ輸送した照射済 みU-Th-Zr水素化物 (UTh₄Zr10H20) について、光学顕微鏡観察及び走査型電子顕微鏡観察を実 施した後、透過型電子顕微鏡を用いてその微細組織を観察し、ボイドスエリングに関する評 価を行った。天然ウラン及び濃縮ウラン (19.90%)を用いて作製されたペレットの試料番号 をそれぞれ 11U-2TEM 及び 11U-3TEM とした。11U-3TEM については、照射時の外表面温度約が 450℃、中心温度約が 530℃、燃焼度が 1.1 %FIMA と評価されている。また、前節の模擬 FP 含 有試料の物性試験に供するため、コールドの模擬低密度 Zr 及び Zr-Nd 試料を作製し、その光 学顕微鏡観察、走査電子顕微鏡観察を実施した。

3.2.2.1 光学顕微鏡観察

11U-2TEM及び11U-3TEMについて、光学顕微鏡観察のための試料調整を行った。まず、ペレットを固定するため、試料端面にエポキシ樹脂によるコーティングを施し、そこから約2 mmの位置を精密切断機で切断した。その後、切断試料を樹脂埋めし、切断面の機械研磨を行った。図3.2.2.1-1に11U-2TEM及び11U-3TEMのマクロ写真を示す。11U-2TEMにおいては、顕著なクラックや損傷はほとんど見られなかったが、11U-3TEMでは試料全体にわたるクラックが存在しており、外径側の一部は欠損していた。図3.2.2.1-2及び図3.2.2.1-3に、より高倍率の光学顕微鏡観察結果を示す。11U-2TEMでは、図3.2.2.1-2中の②で示されるように、空隙のようなものが確認された。また、全体にわたって、色の濃い母相と薄い析出相の2相に分離しているような組織が観察された。一方で、図3.2.2.1-3に示す11U-3TEMでは、図中の②、⑤、⑥に示されるように、四角形あるいは三角形の析出物が存在しており、また、③、④のように、析出物が密集している不均質な組織となっていた。



11U-2TEM



11U-3TEM





図 3.2.2.1-2 11U2の詳細観察位置と詳細観察結果



図 3.2.2.1-3 11U3 の詳細観察位置と詳細観察結果

3.2.2.2 走查型電子顕微鏡 (SEM) 観察

SEM観察用に供するため、図3.2.2.1-1に示した照射済み水素化物11U-2TEM及び1 1U-3TEMを、精密切断機を用いて軸方向に切断し、短冊状試料とした。切断後に再 度樹脂埋めを行い、機械研磨を行った。11U-2TEM及び11U-3TEMの全体写真、ペレッ ト最外周部、外周部、中間部及び中央部の金相写真を図3.2.2.2-1及び図3.2.2.2-2にそれぞれ示す。また、11U-2TEM及び11U-3TEMの各領域においてSEM/EDS元素マッ ピングを行った結果を図3.2.2.2-3及び図3.2.2.2-4にそれぞれ示す。

EDS元素マッピングの結果から、11U-2TEMの二次電子像における色の薄い相は、 いずれの領域においてもThを主成分とすると推定され、そこでは、Zr及びUの含有 率が低下する傾向が見られた。

11U-3TEMについては、最外周部では、元素分布がほとんど均一であったが、外周 部から中央部では、特徴的な形状を有するThを主成分とする析出物が見られた。こ のような析出物は、11U-2TEMにおいては観察されなかったが、それを除くと、11U -2TEM及び11U-3TEM組織に顕著な差異はなかった。





図 3.2.2.2-1 短冊状に切断後の金相写真と各領域の金相写真(11U-2TEM)



A (最外周)

B (外周) 50 µm



図 3.2.2.2-2 短冊状に切断後の金相写真と各領域の金相写真(11U-3TEM)



図 3.2.2.2-3(1) 11U2 の EDS 分析結果(A:最外周)



図 3. 2. 2. 2-3 (2) 11U2 の EDS 分析結果(B:外周)



図 3. 2. 2. 2-3 (3) 11U2 の EDS 分析結果(C:中間)



図 3. 2. 2. 2-3 (4) 11U2 の EDS 分析結果 (D:中央)



図 3.2.2.2-4(1) 11U3 の EDS 分析結果(A:最外周)



図 3.2.2.2-4 (2) 11U3 の EDS 分析結果(B:外周)



図 3. 2. 2. 2-4 (3) 11U3 の EDS 分析結果(C:中間)



図 3. 2. 2. 2-4 (4) 11U3 の EDS 分析結果 (D:中央)

3.2.2.3 透過型電子顕微鏡(TEM) 観察

(1) FIB 加工

TEM 観察に供するため、FIB (Focused Ion Beam) 装置を用いて、11U-2TEM 及び 11U-3TEM の中央部及び外周部からそれぞれ微小試料を採取し、それを薄膜化することにより TEM 観察 用試料を作製した。試料採取は、SEM/EDS 分析結果から、各場所において代表的な組織と考え られる領域で行った。なお、TEM 観察用の微小試料固定用メッシュには、EDS 分析時における Mo 製メッシュの影響を排除するため、Cu 製メッシュを使用した。図 3.2.2.3-1 に示すよう に、いずれの照射済み試料においても、数十 nm から数 µ m 程度の析出物が不均一に分布して おり、それらの影響により均一に薄膜化することはできなかった。そのため、主に析出物の 周辺組織を薄膜化し、TEM 観察可能となるように加工を行った。

試料の膜厚測定方法を図 3.2.2.3-2 に模式的に示し、測定方法を下記に簡略に示す。本試料は、TEM の回折図形から結晶構造を決定することが困難であったため、TEM の電子線を絞り、 試料に照射する際に試料両面に付着するコンタミネーション(以下、コンタミと略記。)を利 用して、膜厚測定を行った。コンタミを付けた後、試料を傾斜させ、その傾斜角に対応して ずれた試料両面のコンタミの中心間距離を TEM 像から計測し、三角関数により計算すること で決定した。なお、電子線照射によるコンタミの厚さは、ほぼ無視できる程度であると考え られるため、試料の膜厚決定の際には無視した。

(2) TEM 観察

(2-1) STEM/EDS 分析

作製した TEM 観察用試料を用いて、11U-2TEM 及び 11U-3TEM の STEM/EDS 分析を行った。分 析結果をそれぞれ図 3.2.2.3-3~図 3.2.2.3-6 に示す。図 3.2.2.3-1 に示した明視野像にお いて黒く見える析出物は、U を主成分としており、それらの周辺は、U-Th-Zr 相あるいは Zr を主成分とする相となっていた。

(2-2) TEM 観察

外周部及び中央部のそれぞれ Zr を主成分とする相において、TEM 観察を実施した。いずれ の試料においても既往研究において報告されているようなボイドやバブルは観察されなかっ たため、主に照射損傷に伴って形成されたキャビティに着目した。11U-2TEM 及び 11U-3TEM の TEM 観察結果をそれぞれ図 3.2.2.3-7、図 3.2.2.3-8 に示す。キャビティは、アンダーフォー カスで白く、オーバーフォーカスで黒くなり、コントラストが反転する。11U-2TEM 及び 11U-3TEM とも、ペレット中央部においてはキャビティの数密度は比較的大きかったが、外周部に おけるキャビティの密度は非常に小さかった。外周部では、温度が内側と比較して低いため、 キャビティが TEM で観察可能なサイズ(数 nm) まで成長できなかったと考えられる。外周部 における 1 nm 程度の微小キャビティの存在は否定できないが、ここでは、有意に存在を確認 できた中央部のキャビティについて、そのサイズ及び数密度の評価を行った。表 3.2.2.3-1 にキャビティのサイズと数密度、図 3.2.2.3-9 にサイズと数密度の関係を示す。キャビティ の数密度は、11U-2TEM において若干大きい傾向が見られたが、観察における不確かさについ ては留意する必要がある。平均サイズについては、図 3.2.2.3-9 に示されるように、濃縮度

3.2.2-16

が高い11U-3TEMの方が大きく、サイズのピークも粗大側にシフトしていた。濃縮度が高い試料において、キャビティの数密度が小さく、サイズが大きい傾向を示したことは、照射時の 温度が高くなることで空孔の拡散が促進されたことを示唆している。

表 3. 2. 2. 3-1 🦯	ペレット中央部に形成し	たキャビティの	サイズと数密度
------------------	-------------	---------	---------

	サイズ(nm)	数密度(m-3)
11U-2TEM	1.9	4.5 $\times 10^{22}$
11U-3TEM	2.8	1.1×10^{22}

11U-2TEM

中央部

中央部

外周部



11U-3TEM

外周部



図 3.2.2.3-1 11U-2TEM 及び 11U-3TEM の TEM 像(明視野像)



図 3.2.2.3-2 TEM 試料 膜厚測定方法の模式図



図 3.2.2.3-3 11U-2TEMの中央部における EDS マッピング



図 3.2.2.3-4 11U-2TEMの外周部における EDS マッピング



図 3.2.2.3-5 11U-3TEM 中央部における EDS マッピング



図 3.2.2.3-6 11U-3TEMの外周部における EDS マッピング



50 nm

アンダーフォーカス



中央部



アンダーフォーカス

オーバーフォーカス







50 nm

アンダーフォーカス

50 nm

オーバーフォーカス





アンダーフォーカス







図 3.2.2.3-9 中央部におけるキャビティサイズと数密度の関係

3.2.2.4 スエリング評価

U-Th-Zr 水素化物のZr を主成分とする相についてTEM 観察を実施した結果、11U-2TEM 及び 11U-3TEM ともボイドやバブルは観察されなかった。すなわち、MA-Zr 水素化物においては、 ボイドスエリングやバブルスエリングは生じないと考えられる。また、照射量の高い外周部 においてキャビティが非常に少ないことは、MA-Zr 水素化物の微細組織が照射損傷の影響を 受けにくいことを示唆している。

キャビティの数密度及び平均直径からペレット中央部における単位体積当たりのキャビティの体積割合を概算すると、11U-2TEMにおいては 0.016%、11U-3TEMにおいては 0.013%となる。外周部において観察されたキャビティは非常に少ないが、TEM で観察できないサイズのキャビティの影響が同程度あると仮定しても、キャビティが体積変化に及ぼす影響はほとんど無視できると考えられる。

3.2.2.5 X線回折及び硬度試験のデータ解析

関連研究における濃縮ウラン(19.90%)を用いて作製された UTh₄Zr₁₀H₂₀ペレット(燃焼度 0.2%FIMA)の硬度試験結果を図 3.2.2.5-1 に示す。ビッカース硬さは、未照射試料と比較して、 燃料中心部では大きく、外周部では小さかった。図 3.2.2.5-2 に示す金相試験結果では、中 心部と外周部では金相組織が異なっており、それは、中心部と外周部で析出している Zr 水素 化物相の Zr – 水素比が変化したためと考えられる。Zr 水素化物の硬さは、図 3.2.2.5-3 に示 すように Zr – 水素比によって変化するため、それが硬さに影響した可能性がある。一方で、 母相である ThZr₂H_x 相の硬さは水素濃度の変化によってあまり影響を受けないため、Zr 水素 化物の影響のみで図 3.2.2.5-1 に示されるような硬さの顕著な変化を説明できない。そこで、 結晶構造を調査するために X 線回折測定が実施された。図 3.2.2.5-4 に示される X 線回折測 定結果では、外周部において、 δ – ZrH_{1.6}、 ϵ – ZrH_{1.74} 及び ThZr₂H_x などの水素化物のピークが 照射により消失しており、アモルファス化等の組織変化が進行したことが示唆された。すな わち、3.2.2.3 節で示したように、外周部では照射によるキャビティがほとんど観察されな かったことは、アモルファス化が要因となっている可能性がある。



図 3.2.2.5-1 ビッカース硬さの径方向分布



図 3.2.2.5-2 照射後水素化物の断面金相



図 3.2.2.5-3 Zr 水素化物の水素濃度による硬さの変化



図 3. 2. 2. 5-4 照射済み UTh₄Zr₁₀H₂₀ペレット(燃焼度 0. 2%FIMA)の X 線回折試験結果 (図中上から no-irr、outer、inner、outer の順)

3.2.2.6 低密度ペレットの作製

(1) 作製方法

Zr ワイヤーカット材及び Nd 粉末を用いて、Zr 及び Zr-Nd の低密度ペレットを作製した。 ここで用いた Zr ワイヤーカット材は、線径 0.5 mm の Zr ワイヤーを約 0.5 mm の長さに切断 したものである。Zr ペレットは、Zr ワイヤーカット材のみを圧縮成型し、焼結することによ り作製した。3 種類の密度の異なる Zr ペレットを作製するため、圧縮成型に際して圧縮荷重 を変化させた。Zr-Nd ペレットは、Zr ワイヤーカット材及び Nd 粉末を乳鉢で混合し、それを 圧縮成型後、焼結することにより作製した。

(2) 密度測定

液浸法を用いて、作製した Zr 及び Zr-Nd ペレットの密度を作製した。表 3.2.2.6-1 に Zr 及び Zr-Nd ペレットの密度を示す。

試料	密度(%TD)
$\operatorname{Zr} \sim \nu \gamma \models $	93. 1
Zr ペレット②	83.9
Zr ペレット③	89.7
Zr-Nd ペレット	77.3

表 3.2.2.6-1 作製した Zr 及び Zr-Nd ペレットの密度

(3) 光学顕微鏡観察及び走査型電子顕微鏡観察

Zr ペレット表面の光学顕微鏡観察結果及び走査型電子顕微鏡観察結果(二次電子像)を図 3.2.2.6-1 及び図 3.2.2.6-2 に示す。いずれの試料もほぼ均質であり、クラック等はないこ とが確認された。また、成型時の圧縮荷重が大きい試料ほど、焼結が進んでいたことが確認 された。

Zr-Nd ペレット表面の走査型電子顕微鏡観察結果(二次電子像及び反射電子像)を図 3.2.2.6-3 に示す。試料全体にわたるようなクラック等は見られなかったが、局所的に焼結が 進んでいないと推定されるくぼみ状の欠陥が散見された。また、反射電子像においては、微 細な析出相が観察された。EDS による元素分析結果を図 3.2.2.6-4 に示す。母相は、Zr を主 成分としており、そこに Nd を主成分とする微細な析出相が分散していることが確認された。



図 3.2.2.6-1 Zr ペレット表面の金相観察


図 3.2.2.6-2 Zr ペレット表面の二次電子像



図 3. 2. 2. 6-3 Zr-Nd ペレット表面の二次電子像及び反射電子像



図 3.2.2.6-4 Zr-Nd ペレット表面における EDS 分析結果

3.3 安全性技術開発【H28-R1】

3.3.1 定常運転時安全性

(1) Na 充填キャプセル用水素放出実験装置【H30】

図 3.3.1-1 に Na 充填キャプセル用水素放出試験装置を示す。真空中でZr 水素化物を封じ込 めたステンレス製キャプセルを加熱し、ステンレス鋼を透過して出てくる水素を四重極質量分析 計で検出する。平成 28 年度に整備した実験装置を用いて、平成 29 年度は、Na 充填ありキャプ セルと Na 充填なしキャプセルを用いて 800℃加熱試験を実施し Na 充填の水素放出抑制効果を確 認した。しかし、実験の再現が難しく結果がばらついたためキャプセルの改良と実験方法を見直 した (平成 30 年度)。図 3.3.1-2(a)と 図 3.3.1-3(a)に改良型キャプセルの構造を示す。それぞ れのキャプセルを、400℃で長時間ベーキングした後に、500℃、600℃、700℃と段階的に昇温し 加熱試験を実施した。



図 3.3.1-1 Na 充填キャプセル用水素放出試験装置

(2) 放出実験結果

改良型キャプセルに ZrH_{1.6}ペレットを入れ真空封入したものと Na 充填し真空封入したものを 作製した。試験結果をそれぞれ、図 3.3.1-2(b)及び図 3.3.1-3(b)に示す(平成 30 年度)。Na 充 填なしキャプセルでは、図 3.3.1-2(b)に示すように、500℃へ昇温直後はH₂シグナルが一旦上昇 するがその後減少している。これは、キャプセル表面付近の吸着水素が放出されたものと考えら れる。600℃では、昇温直後は 500℃と同様に吸着水素が上昇後に一旦減少する傾向が見られる が、すぐにキャプセル内部からの水素がステンレス薄板を透過し放出し始めている。700℃では 水素透過速度が速くなり 600℃に比べて1桁大きな水素のシグナルを記録している。これに対し て Na 充填キャプセルでは、500℃、600℃とも昇温直後はH₂シグナルは一旦上昇するがその後減 少しており、キャプセル内部からの水素透過は観測されない。また、700℃でも水素シグナル は、600℃と同程度であり、Na 充填なしキャプセルの場合の1桁低い値にとどまっている。



図 3.3.1-2 改良型 Na 充填なしキャプセルの水素放出試験結果(H30)



図 3.3.1-3 Na 充填済みキャプセルの水素放出試験結果(H30)

上記の結果から、高温での SUS316 ステンレス鋼製の薄板からの水素水素透過が大幅に減少し ていることが分かった。しかしながら、キャプセル外表面の吸着水素の放出が、データに重なっ て観測されるため、Na による水素放出抑制効果を定量的に把握できなかった。 そこで、天然に はほとんど存在しない重水素を用いて Zr 重水素化物を作製し、再実験を行った(令和元年度)。 実験装置は軽水素と同じものを用いた。四重極質量分析器は故障のため別の機器に交換している ため Intensity の値に整合性はない。各温度での実験結果は、次の通りである。

1) 510℃の実験(図 3.3.1-4)

Na なしでは、微量な放出が見られる Na ありでは、水素は観測されない

2) 610℃の実験(図 3.3.1-5)

Na なしでは、明確な放出が見られる Na あり では、極微量の水素放出が見られる。放出量は 飽和値には至っていない

3) 710℃の実験(図 3.3.1-6)

Na なしでは、さらに大きな水素放出が見られる。Na ありでは、明確な水素放出が見られるがNa なしの2桁以上小さな値である。放出量はほぼ飽和値には至っている

以上の結果から、水素の被覆管透過現象がペ レット-被覆管のギャップにナトリウムを充填す ることにより抑制できることを確認した。



図 3.3.1-5 Zr 重水素化物からの水素放出試験 (610°C)(R1)







図 3.3.1-6 Zr 重水素化物からの水素放出試験 (710°C)(R1)

(3) まとめ

水素の被覆管透過現象がペレット-被覆管のギャップにナトリウムを充填すること(ナトリウ ムボンドピン)により抑制できることを確認した。

3.3.2 事故時安全性【H28-R1】

(1) 緒言

上述した定常運転時はキャプセルが破損せず、Na ボンドピンとしてNa が存在する場合を考え ている。この場合はMA-Zr 水素化物ペレットからの水素の放出は、低く抑えられることが示され た。これに対して、事故時には、ピンの破損が起き、Na がなくなる可能性がある。また、短時 間であるがMA-Zr 水素化物ペレットの温度が通常よりも高温まで上昇する場合がある。このため MA-Zr 水素化物ペレット表面から直接水素が放出することが想定される。本節では、MA-Zr 水素 化物ペレット表面からの直接水素放出について、実験的及び計算シミュレーションを用いて調べ る。特に、水素放出に対する、MA-Zr 水素化物ペレット表面での酸素の影響について調べる。

(2) 水素放出実験装置【H29】

図 3.3.2-1 に実験に用いた水素放出実験装置の構成図を示す(平成 29 年度)。試料は MA-Zr 水素化物の主成分である Zr 水素化物を用いた。Ar または Ar+0²のガス気流下で、試料を加熱し、 試料から放出された水素は四重極質量分析計で検出した。



図 3.3.2-1 水素放出実験装置

(3) 水素放出実験結果【H30-R1】

図 3.3.2-1 に示す石英容器中で低酸素分圧(1×10⁻²³atm)と高酸素分圧(2×10⁻¹atm(大気))の 酸素濃度の異なる Ar ガス気流下で 800℃、1.5h 加熱した。四重極質量分析器で検出された放出 水素を図 3.3.2-2 に示す(平成 30 年度)。低酸素分圧 800℃加熱中に試料1(ZrH_{1.61})からは、 水素放出が見られたのに対して、高酸素分圧 800℃加熱中には試料2(ZrH_{1.62})からは水素放出 は見られなかった。これによって高酸素分圧下では、800℃まで加熱しても試料からは水素放出 が起こらなかったと結論付けた(平成 30 年度)。

【令和元年度】

図 3.3.2-3 に Zr 水素化物からの水素放出を Ar 気流中の酸素濃度を変化させて測定した結果を 示す。低酸素分圧条件から酸素濃度を増加させると試料表面から放出される水素強度は、徐々に 減少するが酸素分圧が 10⁻⁴atm を超えて上昇急激に水素放出強度の減少が起きることが分かっ た。すなわち、高温でも Zr 水素化物表面の酸素濃度が 10⁻⁴atm 以上あれば水素放出は抑制され る。



(4) 水素放出試験後の試料観察【H30-R1】

実験後の試料2の深さ方向の元素分布を高周波グロー放電発光分光分析装置を用いて調べた結 果を図3.3.2-4に示す(平成30年度)。高温加熱中にZrH_{1.62}の表面にできる酸化膜の直下に、高 水素濃度領域があり、酸化物生成時に遊離した水素が、放出されずに下地との境界に蓄積したも のと考えられる。図3.3.2-5に試料2の表面酸化膜近傍の走査断面電子顕微鏡(SEM)写真と EDSによる元素分布分析結果を示す(令和元年度)。表面に8µm程度の酸化膜があることが分か



図 3.3.2-4 GD-OES で測定された試料 2 の深さ方向元素分布(H30)



図 3.3.2-5 試料 2 の表面酸化物とその下地の Zr 水素化物の元素分析 (R1)

る。

(5) 第一原理計算コードによるメカニズムの解明

上述したように平成 30 年度には、Zr 水素化物表面に酸素が存在する場合に水素放出が大幅に 低減することを見出した。この実験結果を第一原理計算(First-principles calculation また は Ab initio calculation)を用いて解析しメカニズムを解明する。実験データを微視的な観点 から理解するために、現在最も進んでいる解析手法の1つが第一原理計算である。第一原理計算 とは固体のような電子を多数含んでいる系の電子のふるまいを量子論的に扱う計算手法である。 本研究では第一原理計算コードとして、平面波擬ポテンシャル法である VASP (Vienna Abinitio Simulation Package)を利用する。VASP は、オーストリア・ウィーン大学で開発された 密度汎関数法を用いた平面波一擬ポテンシャル法電子構造計算プログラムであり、固体を研究し ている研究者によってよく利用されている信頼性の高いコードである。計算には PAW (projector augmented wave method) - PBE (Perdew-Burke-Ernzerhof)を用いた、またカットオ

フエネルギーは、400eV とした。

まずはじめに、各 ZrH₂ 及び ZrO₂の構造を最適化したのち、金属スラブモデルを作成し構造最 適化を行った(平成 28 年度-平成 30 年度)。【令和元年度】は、第一原理計算と分子動力学(MD) 計算を組み合わせた第一原理 MD 計算を用いて表面の水素原子の挙動を解析した。その後、今回 の解析では水素原子が ZrH₂ 及び ZrO₂の表面に移動する計算を行うため、第一原理計算と分子動 力学(MD)計算を組み合わせた第一原理 MD 計算を用いて行った。

第一原理では、系の凝集エネルギーや構造緩和などを計算することにより固体の静的な性質を 計算できる。この第一原理の計算結果に基づき動力学計算を行うことで量子力学的な原子分子の 運動を記述することができる。これが、第一原理 MD 計算である。古典分子動力学のようにポテ ンシャル関数をあらかじめ用意する必要がないので理論的な厳密性を保てるのが特徴である。今 回の計算では、アンサンブルを NVT とし、温度制御を Nose Hoover 法を用い、タイムステップを 1fs とした。

図 3.3.2-6 に 1000K での第一原理計算による Zr 水素化物表面からの水素放出のシミュレーション結果の例を示す。(a)は初期配置を示し、(b)は水素分子 He が放出された 160 step の構造を示す。図 3.3.2-7 は、水素分子を形成する過程の 2 個の水素原子の軌跡を表示したものである。 青い水素原子と紫の水素原子が、それぞれと結合している Zr 原子の表面を移動し、両者が接近すると水素分子を形成していることが分かる。この結果から分かるように、表面の Zr 原子に水素が滞在できる Zr 原子が存在することが重要である。

そのため、Zr 水素化物の表面に酸素が吸着すると水素原子の出会う確率が減少し水素分子を 作って離脱し難くなる。





図 3.3.2-6 第一原理計算による Zr 水素化物表面からの水素放出のシミュレーション結果 (白:水素原子、緑: Zr 原子)



図 3.3.2-7 水素分子を形成する過程の2個の水素原子の軌跡 (白:水素原子、青と紫:水素分子を作る水素原子、緑:Zr 原子)

真空、または不活性ガス雰囲気では、水素が表面に多く存在できるが、酸素雰囲気では Zr 原 子表面に酸素が吸着することになる。それによって、表面での水素分子の生成による離脱が起こ りにくくなる。しかし、酸素は表面にとどまることはできず、図 3.3.2-8 に示すように、時間が 経つに従い表面から内部に移動していく。そのために再度、表面での Zr 元素付近での水素同士 の結合による水素分子の結合が起こり始める。したがって、水素の放出を抑制するためには、Zr 水素化物表面へ酸素を継続的に供給する必要がある。

図 3.3.2-3 が示すように、実験では酸素分圧が増加し 10⁻⁴ atom を超えると水素の放出が少な くなっている。これを上述した第一原理の解析結果から説明すると、10⁻⁴ atom では、Zr 水素化 物表面が酸素によって覆われ、かつ酸素の内部への移動を補うことができる十分な酸素分圧であ ると考えることができる。



次に、図 3.3.2-4 に示す GD-OES 分析で見られた水素高密度領域に水素が集中しているメカニ ズムを、第一原理計算結果を基に考察した。図 3.3.2-9 に示すように結晶境界で格子が歪むた め、この領域では下地の水素化物よりも格子定数が大きくなる。そのため図 3.3.2-10 に示すよ うに水素の安定性が高くなり、水素は Zr 水素化物母材から境界領域へ移動する。これが水素高 密度領域が存在する理由と考えられる。

Zr02				水素高密度領域		ZrH _{1.6}								
	0	0	0	0	•	•	•							
	0	0	0	0	•	•	•	•		- •	•	•	•	•
	0	0	0	0	•	•	•	•	Ľ		•	•	•	•
	0	0	0	0	•	•	•	•	•	•	•	•		•

図 3.3.2-9 試験後の試料2の水素高密度化現象のメカニズム



(6) まとめ

平成 30 年度には、Zr 水素化物表面に酸素が存在する場合に水素放出が大幅に低減することを 見出した。この現象について、試料の顕微鏡観察や第一原理計算を用いてメカニズムを解明した。 3.4 システム評価

3.4.1 設計研究による成立性と有効性に関する研究(再委託先: MFBR)【H28-R1】

集合体として MA-Zr 水素化物を装荷したターゲットを配した MA 核変換用高速炉に対し、核変換能力を最大限に引き出すことができる炉心仕様を構築し、炉心設計上の技術的課題を考慮しても、他の MA 核変換に比べて、環境へ負荷となる長半減期の放射性廃棄物が効率的に削減することができることを明らかにした。

炉心計算では、図 3.4.1-1 に示す計算フローに従い、図 3.4.1-2 に示す燃焼チェーン⁽¹⁾を用いた 3 次元三角メッシュ拡散燃焼計算及び崩壊熱計算等を実施した。

(1) MA-Zr 水素化物を用いた効率的な MA 核変換と出力分布・崩壊熱等への影響の検討【H28-H29】

MA-Zr 水素化物使用がもたらす出力分布・崩壊熱等への影響を検討し、制約条件を設定した。 ① 炉心及び径ブランケット燃料集合体、ターゲットの仕様・制限条件の設定

炉心及び径ブランケット燃料集合体は、高速増殖原型炉「もんじゅ」の建設とその高度化に向けて実証された技術の許容範囲内になるよう、基本的に、表 3.4.1-1 に示す原型炉の燃料集合体に対する仕様及び制約条件により設計する。

ターゲットは、核燃料サイクルの状況を踏まえ、現実的かつ効率的な MA 核変換炉が構築できる よう、燃料体が熱伝導度の高い金属であることと、MA 核変換方法に対し国際的に知られている先 行研究成果⁽²⁾を活用し、径ブランケット燃料集合体仕様をベースに表 3.4.1-2 に示す仕様及び制 約条件により設計する。

② MA-Zr 水素化物による MA 核変換挙動の把握

MA-Zr 水素化物による核変換能力を最大限に引き出す方策を抽出するために、Am-241 を例として、核変換挙動について定量的な把握を行った。

a) 水素化物装荷の効果

MA-Zr の水素化物と合金をそれぞれ装荷した場合について、原子炉熱出力を同一とした条件でのターゲットでの中性子スペクトル及び吸収反応率スペクトルの比較を図 3.4.1-3 に示す。

水素化物では、水素の中性子減速によって、合金装荷の場合で見られる 100keV 近傍の中性子ピークが大きく減少し、吸収断面積が大きな 1keV 以下の低エネルギー中性子が増加する(ただし、1eV 以下の熱中性子はほとんど増加しない。)ことで、吸収反応が活発化して中性子束分布に変化が生じ、原子炉熱出力を同一とした条件では、Am-241 の捕獲反応率を約5倍に増加させる効果があることが分かった。

b) H/(Zr+MA)比の感度

MA/(Zr+MA)比は 0.10、H/(Zr+MA)比は 1.7を基準として、MA/(Zr+MA)比のみを 0.05、H/(Zr+MA) 比のみを 0.0 及び 0.85 に変更した場合について、全中性子束を 1.0 に規格化した条件でのターゲ ットにおける中性子スペクトル及び吸収反応率スペクトルの比較を図 3.4.1-4 に示す。水素の若 干の添加によって中性子スペクトルは急速に軟化するが、H/(Zr+MA)比が 1.0 近傍以上では中性子 スペクトル軟化効果は収束に向かうことが分かった。

したがって、H/(Zr+MA)比は、現行技術で上限と考えられる 1.7 を目指して検討するのではなく、 水素安定性が高いことを優先して 1.6 を用いて核変換炉を設計する。

c) MA/(Zr+MA)比の感度

図 3.4.1-4 には、H/(Zr+MA)比に比べて影響は小さいものの、MA/(Zr+MA)比の減少によっても中

性子スペクトルの軟化が生じること、すなわち、MA/(Zr+MA)比の増加によって、0.5keVを境にそれより高いエネルギーでは増加し、低いエネルギーでは減少していることも示されている。この中性子スペクトルの軟化によって、MA/(Zr+MA)比に応じた1群ミクロ断面積を図3.4.1-5に示すように、MA/(Zr+MA)比が増加すると、捕獲反応断面積は全てのMA核種で減少するが、核分裂断面積はほとんどのMA核種では変化せず、Am-242mとCm-245のみ減少することが分かった。

d) ターゲットの崩壊熱挙動

<未照射ターゲットの場合>

表 3.4.1-3 より、表 3.4.1-2 記載の崩壊熱制限 3kW/集合体⁽³⁾を満足する重量は、Am-241 換算で 約 26.3kg/集合体と概算できる。Am-241/Am 比が小さくなると、崩壊熱が小さい Am-243 が増加し て約 18kg/集合体/kg-Am-241 の割合で Am 装荷量を増やすことが可能となる。一方、崩壊熱が高 い Cm を混入すると、約 15kg/集合体/kg-Cm の割合で Am+Cm 装荷量を減らす必要が生じる。

<照射済みターゲットの場合>

崩壊熱の評価結果を図 3.4.1-6 に示す。照射済みターゲットの最大発熱源は Cm-242 であり、全崩壊熱に占める Cm-242 の割合は炉停止後から 200 日程度までであれば 90%以上である。

この結果より、照射済みターゲットの崩壊熱が制限値を満足していることは、原子炉容器から 搬出する際の Cm-242 量が 290g/集合体以下であることを目安にすれば良いことが分かった。 e) ターゲットの中性子放出率挙動

表 3.4.1-3 より、中性子放出率の主線源核種は Cm-244 であり、0.86kg/集合体以上になると制限値を上回る(Cm-246 は、中性子放出率が Cm-244 の約 3/4 であるが、Cm-246/Cm-244 比は高々 0.005 であるため無視。)と概算される。

f)燃焼計算用の体系モデル

MA-Zr 水素化物を装荷するとターゲットと炉心燃料の間で急峻な出力ピークが生じるという報告がある⁽⁴⁾。この出力ピークが炉心計算に与える影響を把握するため、燃料集合体内の燃焼領域を燃料ピン層ごとに詳細に分割した非均質体系(図3.4.1-7:ターゲットでの領域分割例)での計算と、全燃料ピン層を1領域で扱う均質体系での計算(従来手法)を実施して、比較した。

非均質体系計算で得られた中性子束及び取出燃焼度の分布図を図 3.4.1-8 に示す。中性子束分 布は均質体系と非均質体系ではほぼ一致し、集合体平均燃焼度は、均質体系の場合に対し炉心燃 料では約 0.1%、ターゲットは約 1.6%で一致し、照射済みターゲット中の MA 量も約 1.6%の相 違で一致することが分かった。この程度の相違は出力分布誤差 5%⁽⁵⁾に比して十分に小さく、現検 討段階では、炉心計算における燃焼に伴う燃料組成変化は従来手法を適用して問題ないと判断で きる。

g)最大線出力評価手法

最大線出力評価においては、ターゲットと外側炉心の境界面にある最外周燃料ピンの最大線出 カピーク(図3.4.1-8(b)参照)発生の原因となる、1keV未満の低エネルギー中性子東ピーク(図 3.4.1-8(a)参照)を精度良く内挿する必要がある。

低エネルギー中性子の平均自由行程は短く、ラッパ管位置で若干の中性子束歪が生じているが、 燃料バンドル部では内挿可能な滑らかな分布となっていることから、集合体内の中性子束計算点 は、ラッパ管の内側で、最外周燃料ピンのラッパ管側にあることが望ましいことが分かった。検 討の結果、図 3.4.1-9 に示すように、54 分割とした 3 倍メッシュであれば、適切な計算点が存在 し、集合体中心と炉中心の方向関係が変化した場合でも、54分割とした3倍メッシュ以上の詳細 メッシュであれば線出力ピーキング係数が安定して得られることが分かった。

(2) MA-Zr 水素化物を用いた効率的な MA 核変換を可能とする最適炉心の検討【H28,H30】

上記(1)に記載された、MA-Zr 水素化物による MA 核変換挙動に配慮し、設計可能な仕様及び満 足すべき制限条件との両立を図り、効率的な MA 核変換を可能とする最適炉心を検討した。 ① 検討用の主要炉心仕様の設定

ここでは、炉心主要目として、核変換の対象とする MA 核種、運転サイクル長を設定した。 a) 核変換の対象とする MA 核種の選定

軽水炉取出燃料から得られる主要 MA 核種は表 3.4.1-3 に示す特性を有しており、核変換への効用の観点から、対象とする MA 核種を限定することが望ましい。具体的には、表 3.4.1-4 に示す分析結果より、Am を選定する。

b)運転サイクル長の設定

核変換能力を最大限に引き出すこととは、下記の特性を有する炉心を構築することである。

i) MAの核分裂率を高くできる中性子束場を有する炉心

ii) 核分裂断面積の大きな MA 核種に核変換する捕獲反応率を高くできる中性子束場を有する炉
 心

iii)短半減期核種を生成し、その核種が長半減期核種に再度核変換されることを抑制する炉心

項目 i 及び ii は、ターゲット照射中に有害な MA を消滅させることを直接目指すものであり、MA の核分裂率向上は高速中性子束の増加、捕獲反応率向上は 1keV 以下の低エネルギー中性子束の増加により達成できる現象である。項目 i は高速炉の採用、項目 ii は水素化物の採用で基本的な方向性は満たしており、項目 i と項目 ii のさらなる向上のためには、ターゲット平均の全中性子束を高めることができる炉心を構築することとなる。

一方、項目iiiは、U-Pu 燃料から逸脱した MA を自然崩壊により U-Pu 燃料に戻し、燃料として再 使用することとで MA 減容を目指す考え方である。具体的には、半減期が約 160 日と短い Cm-242 に着目して、最適な運転サイクル長を設定することで対応することとなる。

Cm-242の生成・崩壊挙動は、概ね下式で表され(Am-241の半減期は約430年で、炉内滞在期間より十分長いため無視。)、Cm-242の半減期を考慮すると、照射期間中は過渡平衡状態(徐々に増加してピークとなり、その後減少する状態。)にある。

 $\phi(t)$:時間 t のターゲット集合体平均の中性子束 $(n/cm^2/s)$

λ_{Cm-242}: Cm-242の崩壊定数 (sec⁻¹)

ターゲット中の Cm-242 量の燃焼変化を図 3.4.1-10 に示す。 $N_{Am-241}(t)$ の時間減衰が十分小さけ れば、Cm-242 量がピークとなる照射日数は、一般的に、Cm-242 の半減期の約 3 倍の 500EFPD 程度 になる。しかしながら、Am/(Zr+Am)比 0.05 の場合に顕著であるが、Am-241 の核変換率が高く、 $N_{Am-241}(t)$ が有意に減衰するために、Cm-242 量のピーク時期は 300~400EFPD 近傍まで早くなるこ とが分かる。

この結果より、ターゲットの照射日数は約350EFPDとし、表3.4.1-1の運転サイクル長制限を 満足する条件として、ターゲットを3バッチ交換として運転サイクル長117EFPDを設定する。 c)主要炉心仕様の設定

原型炉の仕様を適用し、上記 a 及び b 項の結果を踏まえて設定した、最適化炉心の検討用の主要炉心仕様を表 3.4.1-5 にまとめる。

② 最適炉心の検討

ここでは、MA として Am のみをターゲットとして装荷した場合に対し、核変換性能を高める場合の課題を抽出し、その課題の解決方策を取り入れた炉心構築を行った。

a) 原型炉の炉心仕様における Am 核変換炉心としての課題

Am-Zr 水素化物を装荷した場合、水素の中性子減速効果によって、下記のように中性子束の再分 布が生じ、図 3.4.1-11 に示すように、炉心中心近傍にある内側炉心で最大線出力が大きく増加す ることとなる。

ターゲット装荷によりターゲットの中性子束が低下

→外側炉心の中性子束が低下し、外側炉心の総出力が低下

(外側炉心の外側層では、ターゲットでの中性子スペクトル軟化効果によりターゲット側の 一部で核分裂率が増加して最大線出力は増加するが、集合体出力としては低下。)

→外側炉心の出力低下を補って原子炉熱出力を維持するために、内側炉心の総出力が増加す るよう、内側炉心の中性子束が上昇

→中性子束上昇が最も顕著に生じる炉心中心近傍の内側炉心で最大線出力が大きく増加

この現象により、原型炉の炉心仕様では炉心最適化のための設計調整代がなくなり、ターゲットの Am/(Zr+Am)比は 0.08 が限界となって、Am-Zr 水素化物に期待する核変換能力を最大限に引き 出すことができない状態にある。

b) 課題解決方策の検討

炉心最適化のための設計調整代を確保し、ターゲットの中性子束を向上させることを目標として、下記の3方策について検討した。いずれの検討でも、炉心燃料の最大線出力が制限値375W/cm⁽⁶⁾になるよう、制限値の範囲内でPu富化度調整を行った結果となっている。

<見直し方策A: ターゲットの最大線出力向上(内側炉心の5層化(中心制御棒を除く。))>

解決する課題:外側炉心2層の炉心構成の場合、外側炉心ではPu富化度を上限値まで上げても 最大線出力を制限値まで上げられず、ターゲットの中性子束を高くできない。

見直し策:プラント設計への影響がある炉心大型化を回避することに配慮し、炉心燃料の層数 を8層(中心制御棒を除く。)としたまま、内側炉心より外側で最大線出力が発生するよう、 Pu 富化度が低い内側炉心の層数を1層減の5層とする。(注)

3.4.1-4

- (注)内側炉心の層数を2層以上削減することについては、制御棒が高Pu富化度の炉心 燃料のみによって囲まれることとなり、制御棒挿入量の変化による出力分布歪が不必 要に大きくなることが懸念されるため、推奨されない。
- <見直し方策 B: 炉心燃料の最大線出力制限に対する設計調整代の拡大(炉心の3領域化)> 解決する課題:ターゲットから2層離れた炉心燃料位置では、ターゲット装荷に伴う中性子束 低下の影響が軽微となるため、見直し方策 A の採用のみでは外側炉心最内層で最大線出力と なり、ターゲットに隣接する外側炉心最外層の最大線出力増加の度合いが小さい。
 - 見直し策:見直し策Aに加え、Pu富化度が外側炉心より低い「中間炉心」を内側炉心と外側炉 心の間に設け、Pu富化度の設計調整代を拡げる。
- <見直し方策C:ターゲットの平均全中性子束の向上(炉心の円柱化)>
- 解決する課題: 炉心コーナー部にある各3体の全18体のターゲットの全中性子束は、平均値の 0.3~0.5倍と低く、炉心全体のAm核変換割合を下げている。
 - 見直し策: 炉心コーナー部にある全18体のターゲットを、炉心辺部よりも中性子東レベルが高 い炉心コーナー部の外側炉心領域に装荷する。その際、炉心燃料の集合体数が18体減の180 体となり、炉心有効高さ93cmのままでは最大線出力制限が厳しくなるため、最適な炉心有効 長を設定する。

見直し方策 A 及び B の採用については、径方向最大線出力分布の変化を図 3.4.1-12 に示すよう に、ターゲットの最大線出力の向上、すなわち中性子束の増加が得られている。見直し方策 C の 採用については、炉心有効長を 100cm にすれば 93cm の場合と同等の炉心燃料仕様で制約条件を満 足することを確認し、110cm が Am 核変換割合を有意に低下させることなく、Am 年間核変換量を高 められる最適高さであることを確認した。

これら3方策の採用により、年間核変換量は原型炉仕様の約73kg/EFPYから約100kg/EFPYに高められた。しかしながら、炉停止10日後のCm-242量は、原型炉仕様では約0.256kg/集合体であるのに対し、3方策採用炉心ではAm装荷量によっては0.5kg/集合体以上となり、原子炉容器搬出時期までにCm-242量を減少(0.5kg/集合体の場合では約3/5倍に減少。)させることが必要となる。そこで、下記の見直し方策Dについて検討した。

- <見直し方策D:照射済みターゲットの原子炉容器搬出時崩壊熱の低減(ターゲットの仮置き)> 解決する課題:MA-Zr水素化物、特にAm-241を多く含むMA-Zr水素化物の場合では、照射済み
 - ターゲットの崩壊熱制限、すなわち Cm-242 量制限を容易に上回ることとなるため、原子炉容 器搬出時までに Cm-242 量を減少させる必要がある。
 - 見直し策:照射済みターゲットを中性子束が十分低い中性子遮蔽体領域に移設し、そこで1サ イクル仮置きしたのち原子炉容器から搬出する。

その際、i)ターゲットの外套部(エントランスノズル、ラッパ管、ハンドリングヘッドの総称)の照射変形が小さいこと、ii)炉内監視系である炉外中性子計装に対しターゲット仮置き による外乱が生じないことに配慮して仮置き位置を設定する。

仮置き位置での全中性子に応じた Cm-242 量の変化挙動を図 3.4.1-13 に示す。仮置き位置の全 中性子束が通常装荷位置での 0.2 倍以下であれば、1 サイクル仮置きすることで Cm-242 量を 0.6 倍以下にできることが分かった。

また、項目iのターゲット外套部の照射変形に対する具体的な要求条件は、ターゲットの中性

子最大照射量が、構造材として想定している PNC316 で照射スエリングが顕著に現れない潜伏期間 (50dpa⁽⁷⁾)内であることである。ターゲット装荷位置での中性子照射量は、文献(7)の換算係数 を用いれば、高々7dpa であり、集合体外套部の外形変形は十分小さく問題ないと言える。

さらに、項目 ii の炉外中性子計装に対する外乱については、原子炉熱出力に比例しない照射済 みターゲット起因の中性子(ターゲット内での自発核分裂及び(α,n)反応で放出される中性子) の検知を極力排除することであり、特に原子炉起動時に使用される線源領域系中性子計装への配 慮が重要となる。具体的には、高速増殖原型炉での中性子検出器の配置⁽⁹⁾を例とすれば、図 3.4.1-14 に示すように、照射済みターゲットを炉心と中性子検出器の間に配置されない 0°、120°及び 240°方向に仮置きすれば、中性子検出器に対するターゲットの空間見込み角度を十分小さくでき るため、問題にならないと判断できる。

c) 最適化炉心の炉心構成

本研究で設定された最適化炉心の炉心構成を図 3.4.1-15 に示す。Pu 富化度制限が 31.5wt%⁽⁶⁾ と 34.5wt%⁽¹⁰⁾の場合に対し、この最適化炉心で評価された、Am/(Zr+Am)比に応じた Am 核変換割 合と Am 年間核変換量の相関図を図 3.4.1-16 に示す。Pu 富化度制限 31.5wt%の条件の下で、原型 炉仕様の炉心と最適化炉心で同組成のターゲットを照射した場合、Am 核変換割合はほぼ同じであ るにも拘らず、Am 年間核変換量は約 1.5 倍(全炉心。ターゲット単体では約 1.6 倍。)まで向上で きていることが分かった。

さらに、原型炉仕様の炉心では最大線出力制限により Am/(Zr+Am)比は 0.08 より高めることが できなかったが、最適化炉心では 0.3 (MA が 100%の Am-241 の場合に未照射燃料の崩壊熱制限を 満足するのは約 0.33 以下。)でも装荷できることが分かった。その場合、Cm-242 量は、Am 年間核 変換量が最大となるケースで照射直後は約 0.51kg/集合体であるが、1 サイクル仮置きすることで 約 0.27kg/集合体まで減衰しており、搬出可能となっている。

また、本最適化炉心の核変換特性は、図 3.4.1-16 に示すように、ターゲットと炉心燃料を合計 した全炉心の核変換で比較する(以下同じ。)と、Am/(Zr+Am)比が 0.1 程度の高核変換割合型(Am 核変換割合:約 0.2、Am 年間核変換量:約 86~90kg/EFPY)と Am/(Zr+Am)比が 0.25 程度の高核変 換量型(Am 核変換割合:約 0.1、Am 年間核変換量:約 110~120kg/EFPY)に分類されるが、これ は Am/(Zr+Am)比が Am 燃焼挙動に影響を及ぼすためである。

以上の結果を Am 年間核変換量で比較すると、原型炉仕様の炉心 (Pu 富化度制限 31.5wt%) に比 して、高核変換割合型では Am 核変換割合は約 0.2 のままで Am 年間核変換量は約 33kg/EFPY 向上 し、炉心燃料での Am 生成も加味した全炉心での Am 年間消滅量は約 86kg/EFPY で、高核変換量型 では約 116kg/EFPY (Am 核変換割合: 0.087) となる。さらに Pu 富化度制限を 34.5wt%に上げた場 合では、Am 核変換割合はほぼ変化せずに、高核変換割合型で約 90kg/EFPY、高核変換量型で約 121kg/EFPY を達成することができるようになった。

(3) MA-Zr 水素化物を用いた MA 核変換炉心の炉心安全特性の検討【H28-R1】

炉心核特性・安全特性を、平成28年度は原型炉仕様の炉心、令和元年度は最適化炉心の高核変換割合型と高核変換量型に対し評価し、Am核変換性能とともに表3.4.1-6にまとめた。

最適化炉心は、ターゲットの中性子束を高めるよう、Pu 富化度を中間/外側炉心では可能な限 り高くして内側炉心では低くしたことで、原型炉仕様炉心に比して、i)燃焼欠損反応度の増加 とそれに伴うPu装荷量の増加、ii)制御棒反応度価値の減少という結果になったものの、iii)実 効遅発中性子割合は約20%増加し、iv)ナトリウムボイド反応度は概ね半減しており、3炉心と もに、「もんじゅ」設置許可申請書に記載の反応度係数の変動範囲⁽⁹⁾内に収まるものであり、炉心 安全特性に関し、ターゲット集合体装荷に伴う特段の設計配慮は不要な炉心であると推察される。

また、ターゲットでのガス生成量の評価結果を図 3.4.1-17 に示す。照射第1サイクルでは中性 子捕獲反応が主であるために生成 FP ガス量は微量で、Am 核変換がある程度進んだ段階で FP ガス は有意に生成される挙動を示す。ORIGEN 計算ではターゲット中に存在する MA の FP 収率データは Cm-245 で代表するモデルとなっている⁽¹⁰⁾が、MA 核変換では α 崩壊によって生成される He ガス が支配因子であるため、FP ガスの取り扱いモデルは特段の問題にならないと言える。

現行の評価では、照射済みターゲットのガス生成量は炉心燃料の約3.0~3.6倍となるが、ター ゲットの燃料ピン内径は10.6mm(炉心燃料:5.56mm)と太く、ガスプレナム体積が約3.6倍のた め、内圧はほぼ同等となり、被覆管材の開発も含めた新技術開発を必要とするような、設計成立 性に係わる特段の懸念事項にはならないと判断される。

(4) MA-Zr 水素化物を用いた MA 核変換とその他概念の比較検討【H30】

本研究で提案している MA-Zr 水素化物以外の主たる MA 核変換方策として、参考文献(2)及び (12)から下記の6方策を選定し、MA-Zr 水素化物と同一条件での比較を行った。

- ・(Am, U)O₂:ブランケット燃料に Am を混入。
- ・(Am, Zr)02: 安定性が高いと考えられる酸化物を適用し、酸素とZrによる中性子減速に期待。
- ・(Am, Zr)合金:下記3種類の基準となる材料。
- (Am, Zr)合金+BeO 減速: (Am, Zr)合金ピンに対し、減速材ピンとして質量数が最小の固体である BeO ピンを使用。
- (Am, Zr)合金+¹¹B₄C 減速: (Am, Zr)合金ピンに対し、減速材ピンとして吸収反応断面積の小さい¹¹B₄C ピンを使用。
- (Am, Zr)合金+MgO 減速: (Am, Zr)合金ピンに対し、減速材ピンとして非弾性散乱による高エネ ルギー中性子の減速効果が高い MgO ピンを使用。

比較に際しては、Amは全てターゲットに装荷され、(Am, Zr)合金+BeO減速等の減速材ピンを使用する場合では、減速材ピンは30本、Am含有ピンは31本としてターゲットに装荷されるとして、 炉心計算を実施した。図3.4.1-18に示す核変換特性比較より、以下のことが分かった。

- (Am, Zr)合金+減速ピンの方が、酸化物の場合より多い Am 年間核変換量となっているが、最も Am 年間核変換量が多い(Am, Zr)合金+BeO 減速で Am/(Zr+Am)比を 0.3 としても 90kg/EFPY には達しない。
- ・全方策とも、Am 核変換割合は概ね 0.1 前後であり、減速材による 100keV 以下の低エネルギ ー中性子の生成は少なく、MA-Zr 水素化物で見られたような Am/(Zr+Am)比増が核変換割合 減を招くという傾向は見られない。
- ・全方策とも、Am/(Zr+Am)比 0.2 超では照射済みターゲットの原子炉容器内仮置きが必要。
- ・全方策とも、Am 年間消滅量 100kg/EFPY を達成するには、Am/(Zr+Am)比 0.3 以上の Am 装荷量 が必要であるが、未照射材の崩壊熱制限の観点から製造が困難となる。

(5) MA-Zr 水素化物を用いた MA 核変換の環境への寄与と開発課題の検討【R1】

MA-Zr 水素化物による MA 核変換の環境への寄与と開発課題を明らかにするために、実用化を最終目的として、MA 核変換の効果と MA-Zr 水素化物を用いた核変換の優先的な開発課題を検討した。

3.4.1-7

① 開発課題抽出のための MA 核変換効果等の整理

第(3)項で評価した MA 核変換特性・炉心安全特性と比較できるよう、軽水炉使用済み燃料に対し想定される取り出し燃焼度に応じた MA 組成を評価し、その組成変動範囲における MA 核変換特性・炉心安全特性への影響を評価し、開発課題抽出に必要な MA 核変換効果等のデータを整理した。 評価結果に基づき、組成変動範囲を以下のように設定した。

・Am-241/Am 比:0.6~0.9 (図 3.4.1-19(a)参照)

• Cm/(Am+Cm)比: 0.016~0.059 (図 3.4.1-20 参照)

(注)新燃料の崩壊熱制限に配慮し、Cm/(Am+Cm)比が高い場合は、Am/(Zr+Am)比は下がる。
 Np/(Pu+Np)比 :0.04~0.07 (図 3.4.1-19(b)参照)

上記組成変動範囲に対し表 3.4.1-7 に示す感度解析ケースを実施し、下記に示す結果を得た。

図 3.4.1-21: 最大線出力及びナトリウムボイド反応度への影響

図 3.4.1-22: 出力特性の燃焼変化への影響

図 3.4.1-23~25:照射済みターゲットの組成変化への影響

図 3.4.1-26: MA 核変換特性への影響

MA 組成に応じた炉心特性及び MA 核変換特性への主な影響は下記である(表 3.4.1-8 参照)。

<最大線出力>

- ・高 Am-241/Am 比では核分裂断面積の大きい Am-242m が生成増となり、約1.14 倍まで増加。
- Cm/(Am+Cm)比の変動による直接の影響は軽微であるが、付随して生じる Am/(Zr+Am)比の 変動の影響が大。
- ・Np/(Pu+Np)比においては、0.04 まではほとんど変化しないが、その値を超えると内側炉 心では急増、外側炉心・ターゲットでは急減。

<集合体出力>

- ・高い Am-241/Am 比及び Cm/(Am+Cm)比では、燃焼に伴う出力増加率は増加。
- ・Np/(Pu+Np)比の影響は軽微。

<ナトリウムボイド反応度>

- ・Np/(Pu+Np)比が 0.04 を超えると、内側炉心のみで急増するが、通常の径ブランケット装 荷体系のナトリウムボイド反応度値以下止まり。
- ・Am-241/Am 比及び Cm/(Am+Cm)比の影響は軽微。

<MA 核変換特性>

- 高 Am/(Zr+Am)比あるいは低 Am-241/Am 比の場合では Am-243 装荷量が増加して Cm-244 生 成量の増加、高 Cm/(Am+Cm)比では直接的な Cm-244 生成量の増加を招いて、製造時の崩壊 熱が増加。
- ・想定される組成変動範囲では、照射済みターゲットの崩壊熱は、中性子遮蔽体領域で最長 2サイクル仮置きすれば、原子炉容器搬出時の崩壊熱制限を未超過。
- Cm 核変換も考慮すると、高 Am/(Zr+Am)比と高 Am-241/Am 比の組成を組み合わせた Am の 核変換が最も有利。
- ・Am と Cm を分離せずに(Am+Cm)ZrH_{1.6}ターゲット材として核変換を繰り返して実施すると、 Cm-244 の蓄積によってターゲット製造時の崩壊熱制限を満足できなくなる可能性が増加。
- ・Npの炉心装荷により、Npは10~20kg/EFPYの核変換が可能で、核変換割合は約0.17の達

成が可能であり、炉心反応度特性は、Np/(Pu+Np)比が 0.07 であっても、原型炉設計の許 容範囲以内。

② MA-Zr 水素化物を用いた核変換の開発課題の検討

整理したデータに基づき、MA 核変換の効果を総括し、燃料・炉心設計の観点から優先的な開発 課題4件を抽出した。

1) 炉心燃料での Np 核変換の可能性検討

本研究開始当初はNp もターゲットに装荷することを想定していたが、本研究で構築された核変 換炉であれば、Np を炉心燃料に装荷した場合でのナトリウムボイド反応度が小さい等、炉心燃料 でのNp 核変換は炉心安全上問題とならない可能性があるため、炉心安全解析を実施して、ターゲ ットでのAm 核変換と炉心燃料でのNp 核変換の両立性について検討する必要がある。

2) 低残渣率型の製造・再処理技術の開発

Am 核変換を少数基の核変換炉で実施する場合、核変換炉としては Am 核変換割合が約 0.1 であ る高核変換量型が選択されることとなるが、Am 年間取り扱い量はターゲット製造・再処理ともに 約 1100kg/EFPY/基-核変換炉必要である。製造・再処理の工程で発生する廃棄物に混入して処分 場に移行する MA 量を抑制する観点から、処分場に移行する MA 量を著しく増やさない低残渣率と なる製造・再処理技術を開発する必要がある。

3) ターゲットピンからの水素流出対策の検討

図 3.4.1-11 に示すように、外周部にある炉心燃料の出力はターゲット装荷によって抑制された 状態となっており、ターゲット部から水素が流出すると出力が大きく上昇して炉心燃料破損を招 く可能性が生じる。平成 21~23 年度の文部科学省委託事業「水素化物中性子吸収材を用いた革新 的高速炉炉心の研究」で明らかになったように、高温でも水素解離性が低く、水素流出は発生し 難い現象であると考えられるが、炉心設計の観点からは、万一の場合の成立性検討に資すること ができるよう、水素流出規模に応じた炉心への影響把握を実施しておくことが必要である。

4) 量産型の Am-Cm 分離技術の開発

軽水炉使用済み燃料の取り出し平均燃焼度と貯蔵期間の現状を見た場合、Am-241/Am 比は約0.9 と高く、Cm/(Am+Cm)比は約0.02以下まで減衰していること、さらには、核変換炉によるAm 核変 換を開始しても、照射済みターゲットを2回目の核変換に供するまでの貯蔵期間は10年規模にな ると予想されることから、ターゲット製造時のCm-244起因の崩壊熱問題は回避できると考えられ る。しかしながら、ターゲット型核変換炉を利用したMA 核変換を長期にわたって実施していくに は、Am と Cm の分離が不可欠で、約400kg/EFPY/基-核変換炉の処理能力を有する量産型の分離技 術を開発する必要がある。

参考文献

- Japanese nuclear data committee and nuclear data center, Chart of the nuclides 2014, Japan Atomic Energy Agency, Tokai-mura, Ibaragi-ken, Japan (2014).
- (2) Nuclear Energy Agency, "Homogeneous versus Heterogeneous Recycling of Transuranics in Fast Nuclear Reactors," OECD/NEA Publishing, Paris, ISBN 978-92-64-99177-4 (2012).
- (3) K. Itoh et al., "Development of the cooling technology on TRU fuel pin bundle during fuel fabrication process, (1) Whole study plan and fabrication of test

apparatuses," Proc. ICAPP' 08, Anaheim, CA (2008).

- (4) K. Konashi et al., "Enhancing MA Transmutation by Irradiation of (MA, Zr)Hx in FBR Blanket Region," Proc. Global2015, Paris, France (2015).
- (5) 高速増殖原型炉もんじゅ性能試験報告書<臨界試験~起動試験(40%出力)>(JNCTN2410 2005-002)
- (6)「もんじゅ」高度化炉心における実用化技術実証概念の検討 サイクル機構技報(No. 14, 2002. 3)
- (7) PNC316 スエリング設計式の策定(JNC TN9400 2003-007)
- (8) S. B. Ludwig, A. G. Croff, "Revision to ORIGEN2 Version 2.2", Transmittal memo of CCC-0371/17, Oak Ridge National Laboratory (2002).
- (9)動力炉・核燃料開発事業団原子炉設置許可申請書(高速増殖原型炉もんじゅ原子炉施設)(昭和55年12月)
- (10)「常陽」MK-Ⅲ取替炉心の核熱設計に関する設計評価 (JNC TN9410 2001-013)
- (11) JENDL-4.0 に基づく ORIGEN2 用断面積ライブラリセット:ORLIBJ40J (JAEA-Data/Code 2012-032)
- (12) K. Arie et al., "TRU Burning Fast Reactor Cycle Using Uranium-free Metallic Fuel," Proc. ICAPP2014, Charlotte, USA (2014).
- (13) 高速増殖原型炉もんじゅ性能試験(炉心確認試験)報告書「フィードバック反応度評価」(JAEA-Technology 2014-008)
- (14)「もんじゅ」型燃料集合体(MFA-1)の照射挙動評価 (JNC TN9400 2000-075).
- (15) 高速炉燃料の照射実績と諸データの概要:「常陽」炉心燃料集合体の高燃焼度化に向けて(PNC-TN943-85-11)
- (16) M.T. Simnad, "The U-ZrHx alloy: Its Properties and Use in TRIGA Fuel," Nucl. Eng. Des. 64 (1981), pp. 403-422.
- (17) T. Yokoo, T. Ogata, H. Ohta, "A Design Study of the Metal Fuel and Core for Commercial Applications," J. Nucl. Sci. Technol. 37 8 (2000), pp. 636-645.
- (18) D. Olandera et al., "Uranium-zirconium hydride fuel properties," Nucl. Eng. and Design 239 (2009), pp. 1406-1424.
- (19) ICRP Pub. 72, "Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides: Paret 5 Compilation of Ingestion and Inhalation Dose Coefficients".
- (20) 核燃料サイクル工学概論 (JAEA-Review 2008-020)
- (21) K. Shibata, O. Iwamoto, et al., "JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering," J. Nucl. Sci. Technol., 48, 1, (2011), pp. 1-30.
- (22) K. Sugino, T. Jin, T. Hazama, and K. Numata, Preparation of Fast Reactor Group Constant Sets UFLIB. J40 and JFS-3-J4.0 Based on the JENDL-4.0 Data, JAEA-Data/Code 2011-017, JAEA, Tokai-mura, Japan (2011).
- (23) 高速増殖原型炉もんじゅ 炉心特性の詳細評価(V) (PNC-TJ1678 96-002).
- (24) K. Ikeda, H. Moriwakia, W. Nakazato, "Nuclear Calculation Methodology and Development of 3-D Transport Nuclear Design Code," Proc. FR' 09, Dec. 7-11, Kyoto, Japan (2009).

表 3.4.1-1 炉心及び径ブランケット燃料集合体の仕様・照射条件に対する制約条件

項目		条件	出典			
集合体共通事項						
集合体配列ピッチ		115.6 mm	文献(13)			
ラッパ管内	対面間距離	110.6 mm	同上			
ラッパ管肉	厚	3 mm	同上			
運転サイク	ル長	約 150 EFPD 以下	文献(6)に基づき、原型炉の制御棒仕様で反応度制 御が可能な上限値として設定			
高速中性子	照射量	2.3×10 ²³ n/cm ² 以下	文献(14)			
炉心燃料集	合体(原型炉	『仕様に準じて設定)				
(44) 半1	理論密度	93%TD	炉心燃料は文献(15)、ブランケット燃料は文献(13)			
旅社	形状	中実ペレット	同上			
	外径	5.4 mm	文献(13)			
被覆管内径/外径		5.56⁄6.5 mm	同上			
燃料ピン本数		169 本	同上			
照射期間		740 EFPD 程度以下	原型炉高燃焼度炉心の条件(148EFPD×5) ⁶			
最大線出力		375 W/cm以下	文献(6)			
Pu 富化度	(Pu/(U+Pu))	現行:31.5wt%以下	文献(6)			
		将来:34.5wt%以下	文献(10)			
径ブランケ	ット燃料集合	▶体(原型炉仕様に準じ~	て設定)			
伏米	理論密度	93%TD	文献(13)			
ペレット	形状	中実ペレット	同上			
	外径	11.4 mm	同上			
被覆管内径	/外径	10.6/11.6 mm	同上			
燃料ピン本	数	61 本	同上			
照射期間		740 EFPD 程度以下	同上(5 サイクル滞在 ⁽⁹⁾)			

表 3.4.1-2 ターゲットの仕様・照射条件に対する制約条件

	項目	条件	出典、設定理由等
ターゲッ	ト材長	炉心燃料長に同じ	軸ブランケット高さにターゲット材なし
被覆管内征	径/外径	10.6/11.6 mm	径ブランケット燃料に同じ
燃料ピンス	本数	61 本	同上
H/(Zr+MA)比	1.6	推奨値として、本研究で設定(上限値:1.7)
最大線出	力	500 W/cm以下	照射データはないが、熱伝導特性 ^{(16)~(18)} か
			ら金属燃料並みとして、本研究で設定
燃料型式		Na ボンド密封型	最大線出力制限を高めるため、金属燃料と
			同じ扱い
崩壊熱		3 kW/集合体以下	文献(3)に基づき、本研究で設定
未照射			(本研究での検討により、Am-241 換算重量で
時			約 26.3kg/集合体以下であることに相当)
	中性子放出率	1×10 ¹⁰ n/s/集合体以下	文献(2)に基づき、本研究で設定
Na 洗浄時	崩壊熱	7 kW/集合体以下	同上
原子炉容	器取り出し時崩壊	40 kW/集合体以下	同上(本研究での検討により、Cm-242 量が
熱			0.29kg/集合体以下であることに相当)

核種	半減期(年) ^⑴	放射能毒性 (Sv/g) ^{(11)、(19)}	崩壊熱の発熱 密度 (₩/g) ⁽¹¹⁾	自発核分裂中性子放 出率(n/s/g) ⁽¹¹⁾
Np-237	2. 144×10^{6}	2.87	2. 16×10^{-5}	$1.05 imes 10^{-4}$
Am-241	432.6	2. 54×10^4	0.114	0.569
Am-242m	141	6.83 $\times 10^{4}$	3. 84×10^{-3}	$1.00 imes 10^{-4}$
Am-243	7370	1.48×10^{3}	6. 41×10^{-3}	4.20
Cm-242	0.446(162.94 日)	1.47×10^{6}	1.22×10^{2}	1.97×10^{5}
Cm-243	29.1	2.87×10^{5}	1.86	1.22×10^{3}
Cm-244	18.11	3. 59×10^5	2.83	1.16×10^{7}
Cm-245	8. 5×10^{3}	1.33×10^{3}	5. 70×10^{-3}	—
Cm-246	4. 73 $\times 10^3$	4.02×10^{2}	1.69×10^{-3}	8.84×10^{6}
(参考)Pu-239	2. 411×10^4	5. 75 $\times 10^{2}$	1.94×10^{-3}	2.26×10^{-2}

表 3.4.1-3 主要 MA 核種の特性

表 3.4.1-4 核変換への効用の観点からの MA 核種の分析

元素	分析結果(注)			
兀茶 Np	 ①Np-237。 ②約 0. 6kg/t-重金属で、生成量は大。 ③ α 崩壊する超長半減期核種で、自然減は極小。 ④Pu との共存性が高く、PUREX 法では右図の「Pu 分配」工程で分離されるが、処理負荷は大。 ⑤放射能毒性は低であるが、Pu-238 への核変換が減突 			
	 ⑥旅知能毎日ははとしのふか、14250 300 夜夏漢が「歳存 できる唯一の方法。 ⑥Puとともに高速炉炉心燃料として装荷し、核変換す ることを選択。 			
Am	 ①Am-241/242m/243。 ②Pu-241のβ崩壊によりAm-241が生成されるため、 再処理までの貯蔵期間に応じて約0.2~1.9kg/t-重 金属で変動し、生成量は大。 ③α崩壊する長半減期核種で、自然減の期待は小。 ④PUREX法では右図の「共除染」工程で分離される が、Cmとの共存性が高い。Am-Cm分離は技術的には 可能(開発中)であるが、その処理負荷は大。 ⑤放射能毒性は高であり、核変換することが必要。 ⑥ターゲットで核変換することを選択。 			
Cm	 ①Cm-244/245/246。 ②約 0.04kg/t-重金属で、生成量は中。 ③いずれもα崩壊し、約 85%を占める Cm-244 は短半減期核種で自然減の期待は大であるが、長期貯蔵時には約 1%を占める Cm-246 の影響が顕著化。 ④Am+Cm として燃料製造する時は、崩壊熱・中性子放出に対する対策が必要。 ⑤減容の観点では、自然減に期待することは可能。 ⑥当面は Cm 単体抽出での貯蔵を選択(ただし、Am+Cmとしたターゲットでの核変換は検討。)。 			



PUREX 法での TRU の流れ⁽²⁰⁾

(注) 記載内容

①:対象となる主要核種
 ②:軽水炉からの生成量

④:再処理等取り扱い上の特徴 ⑤:核変換の効用

③:自然崩壊に対する特徴

⑥:核変換に対する評価

表 3.4.1-5	最適化炉心検討用の主要炉心仕様

項目	条件	出典
原子炉熱出力	714 MWt	文献(9)
運転サイクル長	117 EFPD	ターゲット照射日数約 350EFPD を 3 サイクル
		で達成日数
炉停止期間	30日/サイクル	本研究で設定、燃料の原子炉容器搬出は炉停
		止 10 日後に開始
1 次冷却材	Na	
炉心有効長	検討パラメータ	検討初期値は 93 cm ⁽⁹⁾
炉心構成	検討パラメータ	検討初期値は下図 ⁽⁹⁾
		 内側炉心(6層) の外側炉心(2層) ケーゲット(1層) の径ブランケット(2層) 中性子遮蔽体(4層) の制御棒:19体(3 リンク)
MA 組成	Am 単体 (Am-241/242m/243 =0.597/0.002/0.401(重量比))	Am 同位体組成は、燃焼度 60GWd/t の PWR 使用 済み燃料4年冷却の組成に相当

表 3.4.1-6 核変換炉(原型炉仕様炉心と最適化炉心)の主要な炉心核特性

項目				評価値			
			単位	百刑后仕垟后心	最適化炉心		
				尿至炉讧嗽炉心	高核変換割合型	高核変換量型	
	炉心型式		—	2領域均質炉心	3領域均質炉心	\leftarrow	
	D. 宫化座(肉框	11/1日月/24/101)		22.50/-	19.45/31.50	19.08/32.03	
	ru	则/ 中间/ 2F 侧/ F 心 亚 均 储)	wt%	/31.50	/31.50	/34.50	
	() / _ + 112/	"山中"》(画)		(26.6)	(26.7)	(27.5)	
	Pu装荷量		t/炉心	1.71	1.84	1.90	
	ターゲットの	Am/(Zr+Am)比	(原子数比)	0.08	0.10	0.20	
17	燃焼欠損反応度		$\%\Delta k/kk'$	1.7	1.9	2.0	
沪	制御棒反応度	主炉停止系		9.1	7.7	7.6	
全	価値	後備炉停止系		7.8	6.9	6.7	
体		全制御棒		17.0	15.0	14.5	
	実効遅発中性	子割合	%	0.356	0.441	0.411	
	Am年間核変	ターゲット単体	kg/EFPY	69.7	102.0	123.7	
	換量	全炉心		53.7	85.6	107.2	
	Am核変換割	ターゲット単体	_	0.232	0.229	0.139	
	合	全炉心		0.179	0.192	0.121	
	照射済みターゲット中の Cm/(Am+Cm)比		(重量比)	0.113	0.106	0.051	
	集合体最大出力(注1)		MW/集合体	4.6/- /3.7/0.97	4. 3/5. 2 /3. 7/1. 17	4. 1/5. 2 /3. 9/1. 25	
	最大線出力(注1)		W/cm	374/- /320/243	288/374 /285/280	275/375 /305/358	
	発熱割合 (注1)	平衡サイクル初期		0.55/- /0.37/0.03	0.37/0.35 /0.21/0.04	0.36/0.35 /0.21/0.05	
		平衡サイクル末期		0.54/- /0.37/0.04	0.38/0.33 /0.20/0.05	0.37/0.34 /0.20/0.06	
燃料領	ナトリウム	正味の値(注3)	\$	2.9/- /-1.2/-0.5 (1.7)	2.7/0.2 /-1.5/-0.6 (1.4)	2.7/0.2 /-1.7/-0.6 (1.2)	
岐 城 別	度(注1、2)	正値領域の値		3.0/- /0.0/0.0 (3.0)	$2.8/0.5 \\ /0.0/0.0 \\ (3.3)$	2.8/0.5 /0.0/0.0 (3.3)	
	ドップラ定数		$\times10^{^{-3}}\text{T}\Deltak/\Delta\text{T}$	-5.2/- /-2.2/-0.5	-4.4/-1.6 /-1.6/-0.7	-4.4/-1.6 /-1.1/-0.7	
		燃料		0.25/-/0.15/-0.007	0.15/0.17 /0.08/-0.005	0.15/0.17 /0.09/-0.005	
	密度係数(注1	構造材	Δ k/kk' ⁄Δ ρ / ρ	-0.042/- /0.005/0.004	-0.036/-0.009 /0.010/0.005	-0.036/-0.009 /0.012/0.005	
		冷却材		-0.012/- /0.005/0.002	-0.011/-0.001 /0.006/0.003	-0.011/-0.001 /0.007/0.003	

(注1) 内側/中間/外側/ターゲットの順

(注2) カッコ内は炉心燃料領域の合計値

(注3) 原型炉では内側炉心3.03、外側炉心-0.26(炉心燃料領域の合計値2.77)

パラメータ 炉心 Am/(Zr+Am) 比 重量割合 特徴 仕様 項目 (-) (-) 原型炉 径ブランケット装荷 検討用基準組成 仕様 ターゲット装荷 0.08 Am-241/Am比: 0.597 高核変換割合型 0.10 Cm,Np: 0.0 0.706 ターゲットの 0.756 Am-241/Am比 0.907 最適化 高核変換量型 0.25 0.042 炉心 炉心燃料の 0.054 仕様 Np/(Pu+Np)比 0.067 0.070 感度解析用 0.014 ターゲットの 注)AmにはCmを 0.20 0.030 Cm/(Am+Cm)比 含む 0.15 0.054

表 3.4.1-7 MA 組成感度解析ケース

着目事項		ターゲットでの Am 組成変 化に対する感度	ターゲットでの Cm 組成変化に 対する感度	炉心燃料での Np 組成変化 に対する感度
	最大線出 力	 炉心燃料:内側炉心で減少 傾向にあるが、影響は軽 微。 ターゲット: Am-241/Am 比 	「炉心燃料:内側炉心は減少傾向 にあるが、中間/外側炉心での 影響は軽微。 ターゲット: Am/(Zr+Am)比が	炉 心 燃 料 : Np/(Pu+Np) 比 0.04 を境に、内側炉心は急 増、外側炉心は急減。 Np/(Pu+Np)比 0.07 超では
		が高くなると増加する傾 向にあり、標準組成の約 1.2倍まで増加。	0.25 にできる範囲の Cm 微量 添加の条件では激増するが、 さらなる Cm/(Am+Cm)比の増 加 は Am-241/Am 比 及 び Am/(Zr+Am)比の減少となるた め、総合的には減少。	Pu 富化度調整による中間 炉心 375W/cm 制限維持は 困難。 ターゲット:炉心燃料の影 響を受け、Np/(Pu+Np)比 0.04を境に急減。
炉心特性	集合体出 力	炉心燃料:最大線出力に比 ベ影響は小。 ターゲット:Am-241/Am 比 の増加は核分裂性の高い Am-242m の生成量増加を もたらし、照射末期まで の上昇率は約1.4 倍が約 1.5 倍に増加。	炉心燃料:最大線出力に比べ影 響は小。 ターゲット:傾向は最大線出力 に同じ。	炉心燃料:傾向は最大線出 力に同じ。 ターゲット:同上。
	Na ボイド 反応度	炉心燃料・ターゲットとも に、影響は軽微。	炉心燃料・ターゲットともに、 影響は軽微。	外側炉心・ターゲットでは 微減であるが、内側炉心で 大きく増加。 ただし、通常の径ブランケ ット装荷炉心の値 (2.77\$)までは増加せ ず。
	Am 核変換	 Am 核変換割合:影響はほとんどなし。 Am 年間消滅量:有意な減少効果あり。 	Am 核変換割合:影響はほとんどなし。 Am 年間消滅量:約3kg/EFPYの 一様減。	 Am 核変換割合:有意な減少 効果あり。 Am 年間消滅量:Np/(Pu+Np) 比に応じて大きく減少す るが、全炉心でのAm+Np合 計で見れば有意な減少効 果止まり。
MA核変換特性	Cm 核変換 (短期間 で自然崩 壊する Cm- 242 は除 く)	ターゲットでの Cm 生成が 顕著。 Am-241/Am 比が低いと Am- 243 からの Cm-244 生成量 が増加し、ターゲットでの リサイクル照射に向けて は Am と Cm の分離が必要。 一方、Am-241/Am 比が高い と Cm-244 生成量が抑制さ れ、ターゲットでのリサイ クル照射が Cm 分離なしで も実施の可能性あり。	Cm/(Am+Cm) 比 が 高 い と Am- 241/Am 比が低くなるため、左記 と同じ傾向となり、ターゲット でのリサイクル照射に向けて は Am と Cm の分離が必要。	
	Np 核変換	_	_	 炉心装荷により、Npは 11.7~22.4kg/EFPYの核変 換が可能(核変換割合は約 0.17~0.19)。 Np/(Pu+Np)比が約0.04ま でであればPuが約 75kg/EFPYの節約となる が、0.06以上になると節約 効果なし。

表 3.4.1-8 装荷 MA 組成に応じた最適化炉心での炉心特性及び MA 核変換特性への影響

















(b) 内訳変化図

(a) 発熱量変化図



図3.4.1-7 非均質体系と均質体系における燃料集合体内の燃焼領域分割の相違例



図 3.4.1-8 非均質体系計算で得られた中性子束及び線出力の分布



(a) 燃料ピン配置と中性子束評価点の位置関係 (b) メッシュ分割に応じた最大線出力の比較 図 3.4.1-9 集合体内水平方向のメッシュ分割に応じた最大線出力評価値の比較



図 3.4.1-12 見直し方策 A 及び B を採用した場合の径方向最大線出力分布の変化



図 3.4.1-13 仮置き位置での全中性子束レベルに応じた Cm-242 量の変化挙動



図 3.4.1-14 ターゲット仮置き位置と炉外中性子計装位置⁽⁹⁾との位置関係



図 3.4.1-15 Am-Zr 水素化物ターゲットを用いた Am 核変換炉の最適化炉心の炉心構成



炉心構成 図 3. 4. 1-16 最適化炉心での Am 核変換特性





図 3.4.1-18 種々の MA 核変換方策に対する最適化炉心での Am 核変換特性の比較

図 3.4.1-19 軽水炉取り出し燃料からの MA に対する Am 及び Np 組成変動範囲の評価結果

3.4.1-22



図 3.4.1-21 装荷される MA 組成に応じた最大線出力及びナトリウムボイド反応度の比較






図 3.4.1-23 装荷組成に応じた組成変化(パラメータ:ターゲットの Am-241/Am 比)



注)新燃料の崩壊熱制限のため、Cm/(Am+Cm)比に応じてAm/(Zr+Am)比も変動 図 3.4.1-24 装荷組成に応じた組成変化(パラメータ:ターゲットのCm/(Am+Cm)比)



■Pu-238 □Pu-239 ■Pu-240 ■Pu-241 ■Pu-242 ■Np-237

(a) 装荷と取り出しでの組成比較

(b) Np の核変換特性





図 3.4.1-26 種々の MA 組成を装荷した場合の核変換特性の比較

3.4.2 核燃料システム評価【H28-R1】(再委託先:NDC)

3.4.2.1 システム適合性評価

- 3.4.2.1.1 平成 28 年度システム適合性評価【H28】
 - (1) ターゲット製造・輸送時の被覆管の許容温度

水素化物ターゲット要素は、万一、水素がターゲットから解離した場合においても、 水素が被覆管外に透過することを抑制することが可能な Na ボンド型を用いる。Na ボンド型の水素透過抑制の効果は、ロシアの BOR-60 炉での照射試験により確認され ている。

Na ボンド型は、ターゲットと被覆管の間に溶融 Na を満たしており、溶融 Na の安 定性を保つために、ターゲット集合体の組み立て、輸送も立てた状態で取り扱う。

一方、ターゲットに装荷する MA が発熱するので、組み立て、輸送において、被覆 管が損傷しないように強制的に空気で冷却する必要があり、冷却設計を行う上で必 要となる被覆管の許容温度を設定した。

ターゲット組み立て・輸送時の被覆管許容温度を規定するのは、①水素化物と被覆 管の反応温度、②被覆管のクリープ損傷の2種類である。

a. 反応許容温度

反応に関して文献調査を行い、許容温度として650℃に設定した。

b. 通常時の対クリープ損傷許容温度

被覆管クリープ損傷防止の観点から、クリープ強度データを調査し、通常時の 被覆管許容温度を以下とした。

- ・ターゲット発熱量 1kW*→400℃
- ・ターゲット発熱量 6k₩**→650℃

*ターゲット初装荷(Am: 10%)の場合の発熱量

**リサイクルを経た MA 入りターゲットに想定される最大発熱量

c. 異常な過渡変化時の対クリープ損傷許容温度 異常な過渡変化時許容温度を、ターゲットが短期間に水素解離を生じない被 覆管温度として、余裕を見て 800℃と設定した。

(2) ターゲット集合体冷却性評価のための熱流動解析、試計算

燃料システムに必要な冷却設備の仕様・構造概念を検討するため、MA-Zr水素化物 ターゲット集合体(以下、MA-Zr集合体。)の組み立て・輸送過程における冷却性の試 計算を汎用熱流動解析コードを用いて実施した。Naボンド型とするため、MA-Zr集合 体を「縦置き」としてモデル化し、MA-Zr集合体仕様は、「もんじゅブランケット燃 料」仕様と同じとした。

汎用熱流動解析コードを用いて解析モデルの作成と試計算を実施し、解析が実行 可能であること、試計算結果が妥当であることを確認した。

3.4.2.1.2 平成 29 年度システム適合性評価【H29】

(1) ターゲット集合体組み立て・輸送時の被覆管の許容温度

水素化物ターゲット要素は、万一、水素がターゲットから解離した場合においても、 水素が被覆管外に透過することを抑制することが可能な Na ボンド型を用いる。Na ボ ンド型は、ターゲットと被覆管の間に溶融 Na を満たしており、溶融 Na の安定性を 保つために、ターゲット集合体の組み立て、輸送も立てた状態で取り扱う。

一方、ターゲットに装荷する MA が発熱するので、組み立て、輸送において、被覆 管が損傷しないように強制的に空気で冷却する必要がある。冷却性検討を行う上で 必要となる燃料被覆管許容温度は、平成 28 年度に検討・設定したものが使えること を確認した。

(2) 定常熱流動解析

MA-Zr 水素化物ターゲット集合体(以下、ターゲット集合体)を取り扱う時の温度挙動を評価するため、空気冷却熱流動解析を実施し、平成28年度に設定した被覆管許容温度を満足する冷却材流量を求めた。評価の結果、ターゲット集合体組み立て・輸送時等取り扱い時に必要な冷却設備(送風機)の要件を明らかにした。

・ターゲット集合体発熱1kW時(初装荷の場合):

バンドル入口部空気流量 1.0m/s以上の送風機

同 6kW時(サイクルを重ねた場合の最大発熱量):
 バンドル入口流量 3.5m/s 以上の送風機

(3) 冷却機能喪失時の過渡温度評価

定常熱流動解析結果を基に、冷却機能が喪失した際の定常状態から被覆管許容温度(800℃)に到達するまでの時間を評価した。

送風機故障、外部電源喪失等の事故事象への対応として、200秒以内に起動する予備送風機及びバックアップ電源が必要となることが明らかとなった。

3.4.2.1.3 平成 30 年度システム適合性評価【H30】

(1) 目的

高発熱である MA-Zr 水素化物は、ターゲット集合体組み立て時及び原子炉まで移 動する間、強制冷却することが必要となる。また、Na ボンド体系であるため、組み 立て中及び移動は燃料要素を縦置きの状態で保持しなければならない。このため、タ ーゲット要素を束ねたバンドルを縦置きでラッパ管に挿入する状態に対応した冷却 システムを構築する必要があり、ターゲット要素をラッパ管に挿入するまで及び原 子炉への移動の過程で必要となる冷却設備、ターゲットバンドルの組み立てに係わ る支持装置、等の構造概念を構築することを目的とした。

(2) 送風機の選定

発熱量 6kW のターゲット要素 61 本からなるターゲット集合体の冷却機能を成立さ せるためには、前年度の評価結果より、流速 3.5m/s 及び風圧 1.53kPa の空気で除熱 する必要があり、必要な風量、風圧等を評価し、送風機の仕様を下記の通りとした。

最大風量: 4.8m³/hr

最大風圧: 2.1kPa

 $200V-60Hz_{\circ}$

(3) 送風機の設置及び輸送構造概念

送風機は冷却機能消失時を考慮し、通常時電源による運転器と、非常時電源による 運転器の2系統とし、通常時電源系統の送風機は、非常時電源でも運転可能とするバ ックアップ機能を有するものとした。ターゲット集合体冷却機構概念を図 3.4.2.1.3-1に示す。

なお、冷却機とターゲット集合体支持機構は組み上げたターゲット集合体ととも に、原子炉まで敷設したレール上を移動し、冷却を継続するものとした。ただし、タ ーゲット集合体組み立て施設と原子炉が遠隔地にある場合は、ターゲット集合体・支 持装置と冷却機を一体とした状態で移動する概念を採用した。



図3.4.2.1.3-1 ターゲット集合体冷却機構概念

(4) バンドル構成方法の検討

Na ボンド体系であるため、ターゲット要素を縦置き状態のままで、ラッパ管に挿入する必要があるが、各要素には、スペーサワイヤが巻かれており、要素配列ピッチ を維持したまま直接ラッパ管に挿入することができない(要素配列ピッチを維持し て挿入すると挿入済みのターゲット要素群と干渉する。)。

そこで、ラッパ管よりやや広めな「組み立て時バンドル構成ダクト」(以下、バンドル構成ダクトと呼ぶ。)を用意する。なお、このバンドル構成ダクトは、エントランスノズルより送り込む冷却用空気の流路を形成する機能も有し、また、ラッパ管装荷後には退避させるものとした。ターゲット要素バンドルを組み立てる概念を図3.4.2.1.3-2に示した。



図3.4.2.1.3-2 ターゲット要素バンドル組み立て概念

(5) ラッパ管装荷方法の検討

組み立て時バンドル構成ダクト内で構成された、ターゲット要素バンドルは、若干 広めにできており、このままではラッパ管を装荷することができない。そこで、正規 寸法にするため、「バンドル構成ガイド」(以下、構成ガイドと呼ぶ。)が必要となる。 組み立て時バンドル構成ダクトの上部に構成ガイドを用意し、ラッパ管が装荷可能 な正規寸法のバンドルを構成する。

ハンドリングヘッドと1体となったラッパ管を用意し、バンドル上部に装荷する。 ラッパ管内にターゲット要素のバンドルが挿入できたのを確認後、構成ガイドを解 放・退避させる。引き続いてラッパ管装荷完了直前に、ラッパ管ダクトも退避させ、 装荷を完了させる。装荷したラッパ管とエントランスノズルを溶接接合し、ターゲッ ト集合体として完成させる。これらのラッパ管装荷概念を図 3.4.2.1.3-3 に示す。



図3.4.2.1.3-3 ラッパ管装荷概念

(6) まとめ

ターゲット集合体の組み立て工程(バンドルをラッパ管に挿入。)から原子炉まで 輸送する過程で必要となる冷却設備、支持装置、等の構造概念を検討した。また、冷 却設備仕様を設定し、バンドルを立てた状態で空気冷却しながら組み立てる手法を 示した。

3.4.2.1.4 令和元年度システム適合性評価【R1】

軽水炉の運転を継続した場合に生成するプルトニウムのサイクルシステムに与え る影響を評価し原子炉でプルトニウムを適正に消費・活用する方策を検討すること、 燃料組み立て、原子炉への輸送等、サイクルシステムを俯瞰した除熱・遮蔽等の成立 性を検討しシステム構造概念をまとめた。

(1) 生成するプルトニウムのサイクルシステムに与える影響対策検討

軽水炉の運転を継続した場合に累積する大量のプルトニウムのサイクルシステム に与える影響を評価し、原子炉でプルトニウムを適正に消費・活用するシナリオを評 価・検討した。

a. 現計画に従って軽水炉の運転、再処理を継続した場合

現計画では発電設備容量30GWeの軽水炉を稼働率80%で運転を継続するとしている。そこで、図3.4.2.1.4-1に示すように軽水炉を低燃焼度から高燃焼度炉心運転に順次移行し、3分の1をプルサーマル燃料として運転することを想定する。そして軽水炉運転に伴って生ずる使用済み燃料を六ケ所再処理工場(RRP)にて全て再処理するとする(RRPが設計寿命を終えたのちも同等能力の再処理工場が稼働するものとし、ここではそれらを含めてRRPと言う。)。図3.4.2.1.4-2において2075年頃から再処理量が半分程度に低下するのは現在貯蔵している使用済み燃料の再処理が完了し、稼働中の軽水炉から発生する使用済み燃料がRRPの処理能力の半分程度となるためである。

この運転におけるプルトニウム量の推移を図 3.4.2.2-4 に示す(図中の Puf は核分裂性プルトニウム。)。Pu-f は徐々に増加し 2070 年頃に約 100ton に 到達しその後減少する。この運転では Pu-f が現状量を上回ることになる。



図3.4.2.1.4-2 軽水炉運転使用済み燃料再処理シナリオ

b. MA 核変換型小型高速炉を導入して Pu-f のサイクルに与える影響を緩和する方策

本検討では、Pu-f の保持量を現状以下にする方策として小型高速炉を導入して Pu-f を減らすことを検討するが、軽水炉の運転を継続することで蓄積していく MA を小型高速炉で核変換して減らすことで最終処分への負担を軽減する視点も加え る。

(a) Pu-fを増加させずに MA を低減する運転パターンの設定

Pu-f を現状以上に保持することなく小型高速炉を導入して Am 量を低減す るための軽水炉、RRP 及び高速炉の運転シナリオを次の基本方針の下で検討した。

・国の原子力政策を基本に軽水炉運転計画を設定する。

・小型高速炉運転に必要な Pu-f を確保する。

図 3.4.2.1.4-3 に示すように、軽水炉を順次再稼働し、2030 年に発電容量約 30GWe (設備稼働率 80%)に到達するものとする。既設プラントは、寿命到達後、リプレースすることで、発電容量を維持する。発電容量の 1/3 をプルサーマル運転とするが、小型高速炉導入後に必要な Pu-f 量を確保するため、2050年でプルサーマル運転を取り止めるものとする。

軽水炉使用済み燃料の再処理の考え方を図 3.4.2.1.4-4 に示す。RRP で再処 理し、寿命到達後も同規模の再処理施設が稼働するものとする。2010 年時点 で貯蔵されている使用済み燃料(図 3.4.2.1.4-5)から順次再処理を行う。Puf 保持量を抑制するため、再処理量は、小型高速炉を導入する時期(2040 年)ま では、400tHM/年とし、2041 年以降は、800tHM/年とする。小型高速炉用ターゲ ット製作のために、2035 年から、軽水炉使用済み燃料中の Am を回収するもの とし、プルサーマル燃料及び小型高速炉燃料の再処理は行わないとする。

ターゲットの Am 核変換を行うことを目的とした小型高速炉を 2040 年から 3 年ごとに 1 基ずつ導入し、Pu-f 量の小型高速炉への供給を確保し、過度な Pu-f の蓄積がないように調整を行い、導入基数をパラメトリックにサーベイ し、図 3.4.2.2-12 のパターンを選定した。

(b) Pu-f 量の推移とサイクルに与える影響

上述の小型高速炉の運転を行った場合の Pu-f 量の推移を図 3.4.2.2-16 に 示しているが、計算した 2150 年までの全期間にわたって、Pu-f 量が現状を上 回ることがないことを確認した。2050 年まで減少するのは RRP 稼働率半減・ Pu サーマル運転のため、その後 2095 年まで増加するのは小型高速炉を順次導 入するものの RRP フル稼働のため、その後一定となるのは軽水炉運転に見合 った RRP 処理量と小型高速炉装荷量がほぼバランスするためである。

ここで取り上げた運転パターンは1例であり、実際の軽水炉、RRP、小型高 速炉の運転状況は今後様々なパターンが想定されるが、その時点で最適な運 転調整を行えば過度な Pu-f を持たずに Am の変換が可能と考えられる。Pu の 過度な保有は、核防護対策、厳密な計量管理、発熱対応、等が求められるが、 現状並みの保有量とすることで対応が可能である。



図3.4.2.1.4-3 小型高速炉導入時の軽水炉発電計画





図3.4.2.1.4-5 小型高速炉導入時の使用済み燃料貯蔵量の推移

(2) サイクルシステム成立性に係わる検討

a. 概要

燃料組み立て、原子炉への輸送等、サイクルシステム全体を俯瞰した除熱・遮蔽 等の成立性について検討し、システム構造概念をまとめた。

b. 輸送キャスク組み込みまでの流れ

図 3.4.2.1.4-6 にターゲット要素をバンドルとして組み上げて集合体とし、タ ーゲット輸送キャスクに組み込んで、輸送車両に装荷するまでの流れを示す。 水素化ペレット製造セルではセル内温度を冷却しながらペレットを製造する。タ ーゲット要素組み立てセルではターゲットピンを直立した状態(下部端栓を下側と する。)で被覆管上部からターゲットペレットを投入し、その後溶融 Na を注ぎ込み、 ピンが十分に冷えた段階で上部端栓を溶接する。このターゲットピン組み立てにお いてもセル内温度を冷却する。集合体組み立てセルでは、Na ボンド体系であるため、 ターゲット要素を縦置き状態のままで、ラッパ管に挿入する。平成 30 年度、ターゲ ット集合体の組み立て工程で必要となる冷却設備、支持装置、等の構造概念を検討 している(図 3.4.2.1.4-7 に示す。)。集合体輸送キャスク収納セルでは、ターゲッ ト集合体 19 体を輸送キャスクに収納する。



図3.4.2.1.4-6 ターゲットの輸送キャスク装荷までの流れ



図3.4.2.1.4-7 ターゲット集合体冷却機構概念

- c. ターゲット集合体輸送ラックの構造概念の検討
 - (a) 想定する基準

NRA の乾式貯蔵輸送・貯蔵兼用ラックの基準は表 3.4.2.1.4-1 となっており、 この基準を念頭に入れてターゲット集合体輸送ラックの構造概念を検討した。 また、輸送・貯蔵兼用キャスクの設計例を参考とした。ただし、ターゲット集合 体キャスクにおいては、除熱を空気による強制循環によるため排熱を放出する 必要があり、キャスク内の空気に対して隔離性を確保した熱交換器を設置し、タ ーゲット集合体に含まれる放射性物質の閉じ込め性を確保する。ただし、万一の 放射性物質の熱交換器側空気への混入があった場合に備えて、フィルターを熱 交換器から空気を排出するダクトに設置している。遮蔽、耐震性については将来 的には設計計算が必要となるが、ここでは既存のキャスクの例を参考にして十 分に厚い構造とすることで対応した。臨界については内蔵する放射性物質が Am であるので、問題とはならない。

表 3.4.2.1.4-1 NRA 乾式貯蔵輸送・貯蔵兼用ラック基準

出典:原子力発電所敷地内輸送・貯蔵兼用キャスク貯蔵の基準の見直しについて (平成29年4月26日)

機能等	原子力発電所敷地内貯蔵*1		機能等	原子力発電所敷地内貯蔵*1
除熱機能	 ・使用済燃料:設計貯蔵期間中に被覆管の累積クリーブ量1%を超えない温度以下 ・金属キャスク:キャスクの構成部材が健全性を保つ温度以下 ・貯蔵建屋:キャスク周囲温度が妥当なものであること 		安全評価	安全評価上、想定すべき異常事象の選定の考え 方と4つの基本的安全機能の評価基準を規定 ・除熱:各部の温度が密封、遮蔽及び臨界防止 のために設定する温度制限を上回らない。 ・密封:キャスク本体、1次蓋は未破損、1次蓋締 め付けポルト、密封シール面は塑性変形を生じ ない、金属ガスケットは密封健全性を維持 ・遮へい・表面よりIm&で10mSv/h以下 ・臨界防止:Keff≦0.95
遮蔽機能 (敷地境界)	他の施設と合算し空気カーマ年間50µGy			
密封機能	シール性能が必要とされる漏えい率以下			
臨界防止機能	いかなる場合でもKeff≦0.95		保守管理等	・キャスクの構造強度材料は最低使用温度における低温脆性の考慮と設計貯蔵期間における放射線照射影響、腐食、クリーブ、疲労、応力腐食剤れ等の経年変化に対し、十分な信頼性を有する材料を選定
耐震性 (キャスク)	Sクラス			
			核物質防護	記載なし(堅固な構造の障壁による区画)
(貯蔵建屋)	Cクラス(Ss機能維持)		金属キャスク線 量率	表面:2mSv/h以下 表面から1m先:100µSv/h
			監視機能	連続監視
(支持構造物)	Sクラス			
自然現象 及び 外部人為事象	・安全評価において想定すべき異常事象は内部 事象と外部事象に分けて対応の有効性、影響度、 事象の包絡性を考慮して選定			

(b) 既往設計例

輸送・貯蔵兼用キャスクの設計例4種類(三菱重工、四電、神戸製鋼、東電)を 以下に示す。

(ア) 三菱重工 出典: NRA 原子力発電所敷地内輸送・貯蔵兼用キャスク貯蔵の 基準の見直しについて(平成 29 年 4 月 26 日)

図 3.4.2.1.4-8 に三菱重工の輸送・貯蔵兼用キャスクを示す。

輸送・貯蔵兼用キャスクの構造(1/2)

構造例



出典:三菱重エパンフレット「使用済燃料及び高レベル放射性廃棄物の輸送・貯蔵技術」に一部加筆

6. 輸送・貯蔵兼用キャスクの構造(2/2)

輸送・貯蔵兼用キャスクの耐震裕度の例

リサイクル燃料備蓄センターの場合、キャスク本体は基準地震動Ss*1に対し、中性子遮蔽材カバーを除き、5倍程度以上の裕度がある。(値は審査中につき暫定値)



図 3.4.2.1.4-8 三菱重工輸送・貯蔵兼用キャスク

(イ)四電 出典:使用済燃料乾式貯蔵施設の設置にかかわる申請の概要について (H30.6.11)

> 【乾式キャスクの構造図】 <タイプ1> 1.2号機燃料用 <タイプ2> 3号機燃料用 乾式キャスクの形状 法:(直径)2.6m イオ 二次蓋 (高さ)5.2m さ:約120トン く重 (使用済燃料含む) 使用済燃料 バスケット 収納する使用済燃料の仕様 ✓ 収納体数:32体/基(1,2号機用) 24体/基(3号機用) ガンマ緑道へい層 ✓ ウラン濃縮度:4.1wt%以下 中性子遮へい層 5.2 5.2 ✓ 最高燃焼度 :48GWd/t以下 伝熱フィン ✓ 冷却期間 :15年以上 2.6 2. 6m 貯蔵架台 固定ポルト(床面に固定) 図3.4.2.1.4-9 四電設計乾式キャスク

図 3.4.2.1.4-9 に四国電力(四電)設計の乾式キャスクを示す。

(ウ) 神戸製鋼 出典:神戸製鋼技報 Vol. 64 No. 1 2014.4図 3. 4. 2. 1. 4-10 に神戸製鋼所の乾式貯蔵キャスクを示す。





(エ)東電 出典:福一発電所 使用済燃料乾式キャスク仮保管設備(2012.09.28)図 3.4.2.1.4-11 に東京電力(東電)の輸送貯蔵兼用キャスクを示す。



図 5-3 輸送貯蔵兼用キャスクの構造図例 (輸送貯蔵兼用キャスクA)

表 5-3 主要仕様(輸送貯蔵兼用キャスク)

項目	輸送貯蔵兼用キャスクA	輸送貯蔵兼用キャスクB
重量(t) (燃料を含む)	約 119	約 119
全長 (m)	約 5.4	約 5.3
外径 (m)	約 2.5	約 2.5
収納体数(体)	69	69
	8×8燃料、新型8×8燃料、	
収納可能燃料	新型 8×8 ジルコニウムライナ燃料	新型 8×8 ジルコニウムライナ燃料
	冷却期間 18 年以上	冷却期間 18 年以上

図3.4.2.1.4-11 東電輸送貯蔵兼用キャスク(構造図と仕様)

(c) ターゲット集合体輸送キャスク検討仕様

(7)から(x)までの輸送用キャスク例を参考にして、以下の基本事項を満足す るターゲット集合体輸送キャスクを検討した。図 3.4.2.1.4-12 に輸送キャスク の構造概念図を示す。

- 集合体は直立状態(Na ボンドであるため)
- 除熱装置付随
- 遮蔽機能付随
- 落下衝撃に耐える構造
- ・収納ターゲット集合体数は19体とする。軽水炉の乾式貯蔵兼輸送キャスクの 例では69体と多くなっており、当初4集合体として検討するとしたが、変更 して19体として構造概念を検討した。
- ・ 配列:もんじゅ炉心と同じく、稠密配列である六角配列とする。

- ・配列ピッチ:125.0mm。もんじゅ炉心の集合体配列ピッチは表 3.4.2.1.4-2に示すように115.6mmであるが、ターゲット集合体輸送キャスクにおいては、集合体の横方向(水平方向)を保持する構造物(肉厚 8mm)の装荷が必要であり、そのスペースを考慮して配列ピッチを拡げる。配列ピッチは下記ハニカムグリッド支持構造で確保する。
- ・横方向支持構造:ハニカムグリッド型支持構造を軸方向2ヶ所(上部パッド部、 中間パッド部)に設置する。軽水炉の輸送キャスクでは仕切り板構造としてい る。
- ・下部支持構造:もんじゅ炉心の下部支持構造相当とし、厚肉の支持板にエント ランスノズルを突き刺すための貫通口を設ける。エントランスノズル下端か ら冷却用空気を流入する。
- ・除熱装置:空気冷却(バックアップ冷却、熱交換機能付随) 冷却2系統とし、一方の冷却系故障時にもバックアップ系統のみで除熱が継 続される。

図中には気体・気体熱交換器と記載。

- ・熱交換器で冷やされた空気は2系統の配管によってキャスク下部に送られて下部のエントランスノズルからターゲット集合体に入り、ターゲット集合体バンドル部を通過して、ターゲットを除熱する。配管には軸流ファンを高さ中央部付近に設置し空気を強制循環させる。
- ・蓄電池電源を 4 系統有し、配管及び熱交換器の軸流ファンに十分な電気を供 給する。
- (d) 輸送キャスク重量計算

表 3.4.2.1.4-2 にもんじゅ燃料集合体の仕様を示す。ターゲット集合体の形 状はブランケット集合体と同一としており、重量計算のベースデータとして用 いた。ターゲット集合体キャスクの重量は約 90 トンである。軽水炉の輸送・貯 蔵兼用キャスクの重量は概ね 120 トンであり、本検討キャスクの重量はそれを 下回っているので、運搬等に問題はない。

(i)キャスク外筒(遮蔽材含む)

- 外径 2000mm
- 内径 1400mm
- 高さ 6000mm
- 材質 炭素鋼(密度 7.8g/cc)
- 重量 77ton
- (ii)キャスク内筒(遮蔽、電源含む)

重量 3ton

(iii)キャスク内部構造物(冷却配管、熱交換器、軸流ファン、等)

重量 5.8ton

(iv)ターゲット集合体(19体)

重量 42ton

(vi) 輸送キャスク合計重量

キャスク内外筒 80ton+キャスク内部構造物 5.8ton+ターゲット集合体 42ton=90ton



図3.4.2.1.4-12 ターゲット集合体輸送キャスク概念図

d. ターゲット集合体輸送キャスクの原子炉サイトまでの運送

ターゲット集合体輸送キャスクの原子炉サイトまで運送する概念を図 3.4.2.1.4-13 に示す。図 3.4.2.1.4-6 においてターゲット集合体を組み立て るホットセルにてターゲット集合体を輸送キャスクに装荷するまでの概念を 示した。図 3.4.2.1.4-13 左上に示すようにクレーンを用いて輸送キャスクを 輸送車両に立てた状態で載せ、近隣の港湾施設まで輸送する。港にて、クレー ンを用いて輸送キャスクを輸送船に立てた状態で載せ、原子炉サイト近隣の 港湾施設まで運送する。原子炉サイトに近い港にて輸送キャスクを車両に積 み替えて、原子炉サイトまで車両で運搬する。この間、電源や空気の供給が途 絶えることはなく、ターゲット集合体の冷却は維持される。



図3.4.2.1.4-13 ターゲット集合体輸送キャスクを原子炉サイトまで運送する概念

表3.4.2.1.4-2 もんじゅ燃料集合体主要仕様

		炉心燃料集合体	ブランケット燃料集合体		
-	材質	316 相当鋼	同左		
-	外対面間距離				
	ラッパ管	110.6mm	同左		
	下部パッド				
	中間パッド	114.6mm	同左		
	上部パッド	114.9mm	同左		
-	厚さ				
	ラッパ管	3. Omm	同左		
	中間パッド	5. Omm	同左		
	上部パッド	5.15mm	同左		
-	集合体配列ピッチ	115.6mm	同左		
-	集合体全長	4200mm	同左		
-	- ハンドリングヘッド(上部遮蔽体含む長さ)				
	軸方向長さ	250mm	同左		
-	燃料ピン軸方向長さ	2813 mm	2805mm		
-	燃料ピン本数	169 本	61 本		
-	被覆管外径	6.5mm	11.6mm		
-	被覆管内径	5.56mm	10.6mm		
-	被覆管肉厚	0.47mm	0.5mm		

(3) ターゲット集合体の現地までの輸送の概念の検討

- ・ターゲット集合体は、空調(温度一定維持)、遮蔽機能を有する大型ホットセル内で、
 空気を集合体内に強制循環する除熱を行いながら組み立てられる。
- ・組み立てた集合体は-レール上を移動し、輸送キャスクを地下に縦置きした箇所にて、 空気冷却装置を一旦取り外し、クレーンにて、短時間のうちに輸送キャスクに挿入す る。この間輸送キャスク内にも空気の送風を維持し、除熱が途絶える時間をわずかな ものとする。例えばターゲット集合体発熱量を最大6kWを想定しても、許容温度800℃ に達するまでに200秒ほどの時間があり(平成29年度評価)、この時間内に除熱を回 復させれば被覆管へのダメージを防ぐことができる。

3.4.2.2マテリアルバランス(MB)評価【H28-R1】(再委託先:NDC)

(1) 目的

ブランケット領域に MA-Zr 水素化物を装荷した小型高速炉(もんじゅクラス)(以 下、「MA 核変換型」と言う。)を導入した場合の長期的な放射性廃棄物の低減効果の 把握を目的とした検討を進めている。具体的には,軽水炉のみを順次再稼働する場合 (以下、「軽水炉単独シナリオ」と言う。)と MA 核変換型を導入した場合(以下、「MA 核 変換型導入シナリオ」と言う。)の長期的なマテリアルバランス計算を実施する。

MA 核変換型導入シナリオに対しては、MA 核変換型の発電計画及び炉特性を変更した場合のマイナーアクチノイド(MA) 量等の推移し,軽水炉単独シナリオと比較することで、導入効果を確認する。

(2) MA 核変換型導入時の MB 評価の試計算【H28】

① 軽水炉計算条件整備、試計算

水素化物ターゲット要素は、軽水炉稼働基数をパラメータとした Pu 量及び MA 量の変動を計算するための準備として、軽水炉に関する発電条件等を整備し、試計算 を実施した。

1) 計算条件整備

原子力委員会等の資料に基づき、軽水炉(PWR、PWR-Pu、APWR、BWR、BWR-Pu、ABWR、FullMOX)に関する発電条件、装荷燃料組成、ORIGEN 計算条件を整備した。 なお、「-Pu」はプルサーマル炉心、「FullMOX」とは大間原子力発電所のように炉 心に全て MOX 燃料を装荷する炉心を指す。

2) 試計算

1)項で整備した条件に基づき、ORIGEN コードを使用した燃焼・崩壊試計算を行 い、軽水炉の各炉型について炉から取り出し後6年経過時点の使用済み燃料組成 (装荷燃料重量1tHM中に存在するPu、MA量)を求めた。また、この各装荷燃料組 成[t/tHM]に対し、初装荷重量[tHM/GWe]を乗じ、軽水炉1GWeを運転した場合に 発生する使用燃料中のPu、MA量を試算した。使用済み燃料中のPu量は以下の通 り。

a)PWR : 0.88 t/GWe b)APWR: 0.94 t/GWe c)BWR : 1.0 t/GWe

d)ABWR: 1.1 t/GWe e)PWR-Pu(MOX) : 5.3 t/GWe

f)BWR-Pu(MOX): 2.8 t/GWe g)FullMOX: 2.8 t/GWe

なお、e)、f)は MOX 燃料のみで 1GWe 分を発電した際の数値を記載しており、 プルサーマル炉 1GWe 運転時の発生量に関しては、MOX 装荷割合を考慮する必要 がある(例えば、PWR プルサーマル炉(MOX 装荷割合=0.25)であれば、a)PWR× 0.75GWe+e)PWR-Pu(MOX)×0.25GWe にて、Pu 量、MA 量を算出する等。)。

図 3.4.2.2-1 に軽水炉 1GWe 運転した際に生ずる MA 量(単位:ton)を示す。ただし、ここでは Pu サーマル炉(MOX 装荷割合 25%)について、補正済みの値で示している。MA 生成量は BWR (ABWR)の方が PWR (APWR) よりもやや多いが、Pu サーマ

ルでは、逆に PWR の方が BWR よりも MA をやや多く生成する。FullMOX では MA 生 成量が軽水炉内での MOX 燃焼に比べて単位 MWe 当たりの生成量が 3 倍近く多く なる。

② 高速炉計算条件整備、試計算

マテリアルバランス計算では、核変換用ではない通常小型高速炉の計算システム となっており、MA 変換用の小型高速炉を取り込んだ計算を直接行うことができな いため、別途、それぞれの高速炉における核種の変動量を計算し、補正係数の形で、 MA 核変換用の小型高速炉を導入した場合のマテリアルバランス計算に反映する。 このことを目的に、もんじゅ相当高速炉(以下、280MWe 高速炉と言う。)及び MA 核 変換用小型高速炉(280MWe 高速炉の最内層ブランケットをターゲット集合体に置き 換えた炉:以下、核変換用小型高速炉。)のマテリアルバランス計算の条件として発 電条件、燃料条件等を整備し、ORIGEN コードを使用した試計算により、炉取り出 し後7年を経過した時点における U、Pu、MA 量を求めた。

1) 計算条件整備

280MWe 高速炉、核変換用小型高速炉の計算条件として、発電条件、装荷燃料組成、ORIGEN 計算条件を整備した。

2) 試計算

上記 1)で整備した条件に基づき、ORIGEN コードを使用した燃焼・崩壊試計算を 行い、280MWe 高速炉、核変換用小型高速炉について炉から取り出し後7年経過時点 の使用済み燃料組成(装荷燃料重量1tHM中に存在するU、Pu、MA量)を求めた。こ の結果を用いて、高速炉を1GWe 運転した場合の、炉から取り出し後7年経過時点 の使用済み燃料組成(U、Pu、MA量)を整理した。また、この各組成[t/tHM]に対し、 1GWe 当たりの装荷燃料重量に変換し、高速炉1GWe を運転した場合に発生する使用 済み燃料中のPu, MA (Np、Am、Cm)量を計算した。

この結果、280MWe 高速炉 1GWe の運転で発生する使用済み燃料中の Pu, MA 量(燃料取り出し後7年経過時点)は以下となる。

Pu量:約6.0 tPu/GWe (参考:装荷量=約5.5 tPu/GWe)

MA 量:約0.21 tMA/GWe (参考:装荷量=0 tMA/GWe)

(内側炉心、外側炉心、軸方向ブランケット、径方向ブランケットの合計) また、280MWe 高速炉炉心全体として、

・装荷 Pu 量約 1.55ton に対して燃焼後 Pu 存在量が約 2.09ton と増殖している。
 これにはブランケットでの Pu 生成 0.72ton が大きく寄与している。

・MA は装荷していないが、燃焼後 MA が 0.058ton 生成される。

図 3.4.2.2-2 に 280MWe 高速炉の燃焼(内側炉心の燃焼度は 6 万 MWd/t)による燃料組成(炉心取り出し後 7 年)の変化を示す。Pu が増殖し、MA がわずかに生成されていることが分かる。

3.4.2.2-2

一方、核変換用小型高速炉(MA-Zr 水素化物をターゲットに使用する場合)の Pu、 MA 量(燃料取り出し後7年経過時点)は以下となる。

Pu 量:約 6.1 t/GWe (参考:Pu 装荷量=約 6.0 t/GWe)

MA 量:約1.1 t/GWe (参考:MA 装荷量=約1.3 tMA/GWe)

(内側炉心、外側炉心、軸/径方向ブランケット、MA ターゲットの合計) 核変換用小型高速炉の炉心全体では、

- ・装荷 Pu 量 1.665ton に対して燃焼後の Pu 量が 1.695ton とほぼ横ばいである (Pu がブランケットで 0.15ton、ターゲットで 0.09ton 生成される。)。
- ・装荷 MA 量が 0.361ton であるのに対して、燃焼後 MA 量が 0.317ton と減少している。ターゲットでの MA 変換量を見ると、装荷 0.361ton が 0.254ton まで減少する。

図 3.4.2.2-3 に核変換用小型高速炉の燃焼(内側炉心の燃焼度 6 万 MWd/t)による燃料組成(炉心取り出し後 7 年)の変化を示す。Pu はほとんど変化せず(炉心領域では減少するがブランケットとターゲットで Pu が生成して炉心としてはほぼ同量。)、MA が減少していることが分かる。

以上より、もんじゅ相当の 280MWe 高速炉のブランケット燃料最内層領域を MA 装荷ターゲット集合体に置き換えた核変換用小型高速炉を用いることで、MA を減少させることが可能となることが示された。

MB 評価の試計算に関するまとめ

マテリアルバランス(MB)評価の準備作業として、以下を実施した。

- ・軽水炉(PWR、PWR-Pu、APWR、BWR、BWR-Pu、ABWR)に関する発電条件、装荷燃料組 成、ORIGE 計算条件を整備した。整備した計算条件に基づき、ORIGEN コードを使 用した燃焼/崩壊計算を実施し、炉取り出し後の使用済み燃料中のPu、MA 量につ いて試計算結果をまとめた。
- ・280MWe 高速炉、核変換用小型高速炉に関する発電条件、装荷燃料組成、ORIGEN 計 算条件を整備した。整備した計算条件に基づき、ORIGEN コードを使用した燃焼/ 崩壊計算を実施し、炉取り出し後の使用済み燃料中の Pu、MA 量について試計算 結果をまとめた。
- ・平成28年度の条件整備及び試計算御結果より、280MWe 高速炉のブランケット燃料最内層領域をMA装荷ターゲット集合体に置き換えた核変換用小型高速炉を用いることで、MAを減少させることが可能となる見通しが得られた。







図3.4.2.2-2 280MWe高速炉の燃焼による燃料組成の変化



図3.4.2.2-3 核変換用小型高速炉の燃焼による燃料組成の変化

(3) 軽水炉単独シナリオの MB 評価【H29-H30】

MA 核変換型導入シナリオの MB 評価(3.4.2.2(4)項)の実施に当たり、必要となるデータを 取得するため、平成 29 年度と平成 30 年度に、軽水炉単独シナリオの入力データを作成し、 MB 評価を実施した。

平成 29 年度には、軽水炉の再稼働ペースを国の原子力政策に合わせて、原子力発電計画、 燃料条件 (PWR, BWR, MOX 等)、再処理計画を設定して、MB 評価を実施した。平成 29 年度の MB 評価結果を図 3.4.2.2-4 と図 3.4.2.2-5 に示す。

図3.4.2.1.4-1、図3.4.2.1.4-2の条件の下で軽水炉運転と再処理を継続した時のプルトニウム(Pu)量の推移を図3.4.2.2-4に示す(平成29年度に解析した結果)。核分裂性Pu(以下、Pu-fと言う。)量(赤線で示す。)が2070年過ぎまで増加を続け、以降減少に転じて2150年には現在保持するPu-f量並みとなることが分かる。

軽水炉運転を設備容量30GWeの下で運転(稼働率80%)を継続し、再処理を行ってい くと、Pu-f量が現状よりもかなり増大することとなる。Pu-fを現在以上に保持しない という条件を実現するには、中間貯蔵を続けて再処理を行わずPu-fを抽出しないで おくか、あるいはRRPの稼働率を最初から50%程度の低いレベルに抑える必要がある。 このようなプルサーマル運転を伴う軽水炉の運転と再処理工場の運転の組み合わせ ることはそれ以降もずっと継続できる(ただし、プルサーマル燃料の装荷量は再処理 で得られるPu-f分に見合った量とする。)。この場合、Pu-f量は増加しないが、図3. 4.2.2-5(平成29年度解析)に示すように、使用済み燃料中や再処理工場にAmやNpが大 量に存在し、中長期にわたって毒性の高い状態が続くことになる(図3.4.2.2-5は軽 水炉運転とRRPフル稼働を想定した場合のMAの蓄積状況であるが、RRPの操業度を調 整してPu-f保持量を調整した場合でもMAの蓄積速度が遅くなるだけで蓄積する量は 変わらない。)。

平成 30 年度には、軽水炉単独シナリオに対して、以下の観点で見直しを図り、MB 評価を 実施した。

- 国のプルトニウム利用方針に基づき、MA 核変換型の導入までの Pu 貯蔵量を現状の水準を超えないようにするため、再処理施設での再処理量を低減する。
- ・ MA 核変換型の早期実用化を達成するため、再処理施設における MA (Am) 回収を早期に開始する。
- 再処理で回収した Pu を MA 核変換型に供給するため、MA 核変換型の導入時期を
 考慮し、プルサーマル発電を停止する(ウラン発電に切り替える。)。

軽水炉単独シナリオの主な計画を以下に示す。

① 原子力発電計画

2015年から軽水炉を順次再稼働し、2030年に発電量 24GWe に到達、2030年以降 は同発電量を維持する。なお、原子力発電計画について、平成 29年度評価からの 変更点を以下に示す。

- ・MA 核変換型導入時に使用可能な Pu 量を取得するため、2051 年以降、プルサーマル発電を取り止め、全てウラン発電として運転する。
- ② 再処理計画

平成 30 年より六ヶ所再処理施設(以下、「RRP」と言う。)を稼働し、RRP 廃止後 も同規模の再処理施設により再処理を継続する。なお、再処理計画について、平成 29 年度評価からの変更点を以下に示す。

- ・国のプルトニウム利用方針に基づき Pu 貯蔵量を低減させるため、RRP 運開から 2040年までの再処理量は 400tHM/年とする。また、MA 核変換型導入時に使用可 能な Pu 量を確保するため、2041年以降の再処理量は 800tHM/年とする。
- ・MA 核変換型導入時に使用可能な Am 量を取得するため、2035 年より RRP で Am 回 収を開始し、同規模の後継プラントでも同様に実施する。

マイナーアクチノイド(MA) 量等の比較用データとして以下の施設に貯蔵、処分される Am 量の合計を燃料サイクル全体の Am 量として整理した結果を図 3.4.2.2-6 に示す。



図3.4.2.2-4 軽水炉運転と再処理を継続した時のPu量の推移(平成29年度)



図3.4.2.2-5 軽水炉運転と再処理を継続した時のMA量の推移(平成29年度) SF:使用済燃料 HAW:高レベル廃液



図3.4.2.2-6 軽水炉単独シナリオにおける燃料サイクル全体のAm量の推移(平成30年度)

(4) MA 変換型導入シナリオの MB 評価【H30-R1】

高速炉炉心選定の考え方

本研究では、核変換の対象をAmとしている。 α 崩壊することで発熱が問題となるAm-241の半減期は432.2年であり、Amがガラス固化体の容量(=最終処分場の規模)を決める主核種となるためである。 α 崩壊するNp-237は半減期が2.14×10⁶年と長く超長期の先の時点における主要毒物となるが、高速炉で燃料として燃焼させることができる。Cm-242は半減期が162.5日で α 崩壊するので、自然消滅が期待できる。

炉心検討では、ターゲット領域での Am の核変換を促進するため、ターゲット領 域の中性子束向上策として炉心を 3 領域化して炉心最外層部の燃料の出力を高め るという最適化が行われた。図 3.4.2.2-7 はその結果であるが、①が Am の消滅率 25%で Am の年間変換量が 100kg/EFPY、②が消滅率 14%で年間変換量が 125kg/EFPY の炉心、④はそれよりも合金中の Am の比率を増加させて年間変換量をさらに高め た炉心である。ただし、①、②、④いずれについても、炉心から取り出す際の崩壊 熱量(主たる発熱減は生成する Cm)の制限を満足させるために炉心内に 1 サイクル (150 日)間仮置きするとしている。図 3.4.2.2-8 は Am の Zr+AM 合金に対する比率 と Cm 生成量の関係である。図 3.4.2.2-7 の③のみは平成 30 年度にマテリアルバ ランス(MB)を検討した炉心である。図 3.4.2.2-8 に示されるように③の炉心の場 合 Cm 生成による崩壊熱が小さく、炉内での仮置きは無用であるが、①、②、④の 炉心の場合は炉内に 1 サイクル仮置きした後、炉心から取り出すことになる。







図 3.4.2.2-8 Am/Zr + Am と Cm 生成量の関

係

3.4.2.2(3)項の平成 30 年度に実施した軽水炉単独シナリオの MB 評価結果に基づき、MA 核変換型導入シナリオの MB 評価を実施した。MA 核変換型導入に当たっては、最初のケース として、Am 転換率の高い炉心(図 3.4.2.2-7 の③)を選定して、Am 量低減効果を確認するこ ととした (ケース 0)。この後、Am ターゲットの Am 装荷量及び炉心での Pu-f 装荷量を増や すことで、Am 量の低減が見込まれる炉心(図 3.4.2.2-7 の②)を選定して、MB 評価を実施し た (ケース 1)。ケース 0 とケース 1 の結果を踏まえて、最も Am 量の低減が見込まれる最適 な炉心(最終的には図 3.4.2.2-7 の④)を選定して MB 評価を実施した(レファレンスケース)。

② 最初のケース(Am 変換率:約25%、Am 年間消費量:約90kg/EFPY)(平成30年度、ケース

0)

1) MA 変換型導入時の入力データ

軽水炉単独シナリオの計画に対して、以下の観点で原子力発電計画を追加した。 a)原子力発電計画

再処理施設で回収した Pu-f の小型高速炉での有効利用を図り、Am の効率的 な核変換を行うという考え方に基づき、小型高速炉(③:もんじゅ相当炉心)を 2040 年から3 年ごとに1 基増設し、2058 年に合計で最大7基(1.57GWe 相当) を導入するものとする(図3.4.2.2-9)。ただし、図3.4.2.1.4-8 に示したよう に、2100 年以降は再処理する使用済み燃料が半減し、回収される Pu-f 量も大 きく減少するため、Pu-f 確保のために、2040 年、2043 年、2046 年に導入する プラントは、2080 年、2090 年、2100 年に廃止し、新設は行わないものとする (廃止後は、4 基(0.90GWe 相当)で運転を継続する。)。



図3.4.2.2-9 小型高速炉③の運転基数

b) 再処理計画

軽水炉単独シナリオの再処理計画と同じ。

2) MB 評価結果

軽水炉単独シナリオと MA 核変換型導入シナリオについて、燃料サイクル全体の Am 量の推移の比較を図 3.4.2.2-10 に示す。燃料サイクル全体の Am 量は、MA 核変換型の導入により減少しており、MA 核変換型導入による Am 量の低減割合は評価終了年(2150年)で0.31 程度となり、Am 量を低減できることが分かった。

小型高速炉炉心③を運転した場合の Pu-f 量の推移を図 3.4.2.2-11 に示す。2100 年頃までは現状レベルを維持しているが、その先において、徐々に現状レベルを上 回っていく。



図3.4.2.2-10 軽水炉単独シナリオとMA核変換型導入シナリオの燃料サイクル全体 のAm量の推移(ケース0)



③ Am 消滅量を高くしたケース(Am 変換率:約14%、Am 年間消滅量:約125kg/EFPY)
 (令和元年度、ケース1)

3.4.2.2(4) ①項の炉心条件に比べて、MA ターゲットの Am 装荷量を多くすることで、Am 変換率は低いが、Am 年間消滅量を多くした炉心条件での MB 評価を行った。

1) MA 変換型導入時の入力データ

高速炉の原子力発電計画に関して、上述の 3.4.2.2(4) ①項のケースから、以下の観点で見直しを行った。

小型高速炉導入する場合(ケース1)の小型高速炉の導入パターンを図 3.4.2.2-12 に示す。ケース1は、図3.4.2.2-7の②に相当し、炉心に装荷する Pu-f 量が多いため、小型高速炉の7基の導入は不可能であり、6基導入したのち 2100年には2基閉鎖して以降4基運転を継続するとしている。



図3.4.2.2-12 小型高速炉導入パターン

- ・平成30年度のMA核変換型導入シナリオから再処理施設におけるPu-f 貯蔵 量を削減するため、高速炉の導入基数、寿命及び廃炉時期を見直した。
 本入力データの平成30年度からの変更点は以下の通り。
- a) 原子力発電計画

高速炉の原子力発電計画について、もんじゅ型を2040年から3年ごとに 1基ずつ、合計6基(発電量で1.34GWe)を導入する。その後、2100年に2基 を廃炉し、以降は合計4基(発電量で0.90GWe)を維持する。

2) MB 評価結果

マイナーアクチノイド(MA) 量等の比較用データとして原子力発電所及び再処 理施設の Am 量、並びに、再処理施設の Pu 量 を計算した。さらに、平成 30 年度 に実施した軽水炉単独シナリオと MA 核変換型導入シナリオの燃料サイクル全体 の Am 量について比較を実施した。

a) 原子力発電所の Am 量の推移

原子力発電所の Am 量の推移グラフを図 3.4.2.2-13 のグラフ「(b) 炉内保 有量、再処理製品 (MA 貯蔵) 中の Am 量」の「凡例:炉内保有量」に示す。

b) 再処理施設のAm 量の推移

再処理施設の Am 量の推移グラフを図 3.4.2.2-13 のグラフ「(b) 炉内保有 量、再処理製品(MA 貯蔵) 中の Am 量」の「凡例:再処理製品(MA 貯蔵)」に示 す。

c)再処理施設のPu量の推移

再処理施設の Pu、Pu-f 量の推移グラフを図 3.4.2.2-13 のグラフ「(a) 再 処理施設における全 Pu 貯蔵量、Pu-f 貯蔵量」に示す。

d) 燃料サイクル全体の Am 量の推移

燃料サイクル全体の Am 量は、以下の施設が保有する Am 量の合計とした。

- i)原子力発電所(炉内に装荷中の燃料に含まれるAm)
- ii)使用済燃料貯蔵施設(原子力発電所、中間貯蔵施設、再処理施設の使用 済燃料に含まれる Am)
- iii) 再処理施設(再処理施設の回収製品、燃料製造施設の燃料原料、新燃料、 原子力発電所の装荷前の未照射燃料に含まれる Am)
- iv) ガラス固化体貯蔵・処分施設(ガラス固化体に含まれる Am)

MA 核変換型導入シナリオ(ケース1)の燃料サイクル全体の Am 量の推移グ ラフを図 3.4.2.2-14 に示す。



図3.4.2.2-13 MA核変換型導入シナリオ(ケース1)における原子力発電所の炉内保 有量中のAm量の推移



3) MB 評価結果の比較

軽水炉単独シナリオと MA 核変換型導入シナリオについて、燃料サイクル全体の Am 量の比較を実施した。

両シナリオの燃料サイクル全体の Am 量の推移の比較グラフを図 3.4.2.2-15 に示す。また、2050 年、2100 年、2150 年の燃料サイクル全体の Am 量につ いて比較した結果を表 3.4.2.2-1 に示す。燃料サイクル全体の Am 量は、MA 核 変換型の導入により減少しており、MA 核変換型導入による Am 量の低減割合は 評価終了年(2150 年)で 0.30 程度となった。
評価年	燃料サイクル全体のAm量		MA 核変換型導入 による Am 量
	シナリオ	いれ 核変換主導入 シナリオ	低減割合*2
2050 年	54t	53t	0. 03
2100 年	100t	77t	0. 24
2150 年	140t	98t	0.30

表3.4.2.2-1 軽水炉単独シナリオ(平成30年度)*¹とMA核変換型導入シナリオ(ケース1) の燃料サイクル全体のAm量の比較結果

*1 H30 年度実施ケース

*2 端数処理の関係で割合が合わないことがある。



イクル全体のAm量の推移

④ Am 消滅量をさらに高くしたケース(Am 変換率:約12%、Am 年間消滅量:約130kg/EFPY)(令
和元年度、レファレンスケース)

3.4.2.2(4)②項の炉心条件に比べて、MA ターゲットへの Am 装荷量を増やすことで、Am 年間消滅量がさらに多くなる炉心を選定することで、最終シナリオでの MB 評価を行った。

1) MA 変換型導入時の入力データ

高速炉の原子力発電計画は、上述の3.4.2.2(4)②項のケースと同じである。

2) MB 評価結果

マイナーアクチノイド(MA)量等の比較用データとして原子力発電所及び再処理 施設のAm量、並びに、再処理施設のPu量を計算した。さらに、平成30年度に実 施した軽水炉単独シナリオとMA核変換型導入シナリオの燃料サイクル全体のAm 量について比較を実施した。

a) 原子力発電所の Am 量の推移

原子力発電所の Am 量の推移グラフを図 3.4.2.2-16 のグラフ「(b) 炉内保有 量、再処理製品 (MA 貯蔵) 中の Am 量」の「凡例:炉内保有量」に示す。

b)再処理施設のAm量の推移

再処理施設のAm量の推移グラフを図3.4.2.2-16のグラフ「(b)炉内保有量、 再処理製品(MA 貯蔵)中のAm量」の「凡例:再処理製品(MA 貯蔵)」に示す。

c)再処理施設のPu量の推移

再処理施設の Pu、Pu-f 量の推移グラフを図 3.4.2.2-16 のグラフ「(a) 再処 理施設における全 Pu 貯蔵量, Pu-f 貯蔵量」に示す。

d) 燃料サイクル全体の Am 量の推移

燃料サイクル全体の Am 量は、以下の施設が保有する Am 量の合計とした。

- i) 原子力発電所(炉内に装荷中の燃料に含まれる Am)
- ii)使用済み燃料貯蔵施設(原子力発電所、中間貯蔵施設、再処理施設の 使用済み燃料に含まれる Am)
- iii) 再処理施設(再処理施設の回収製品、燃料製造施設の燃料原料、新燃料、原子力発電所の装荷前の未照射燃料に含まれる Am)
- iv) ガラス固化体貯蔵・処分施設(ガラス固化体に含まれる Am)

MA核変換型導入シナリオ(レファレンスケース)の燃料サイクル全体のAm量の推移グラフを図 3.4.2.2-17 に示す。

3. 4. 2. 2-17



図3.4.2.2-16 MA核変換型導入シナリオ(レファレンスケース)における原子力発電 所の炉内保有量中のAm量の推移



ル全体のAm量の推移

3) MB 評価結果の比較

軽水炉単独シナリオと MA 核変換型導入シナリオについて、燃料サイクル全体の Am 量の比較を実施した。

両シナリオの燃料サイクル全体の Am 量の推移の比較グラフを図 3.4.2.2-18 に示す。また、2050 年、2100 年、2150 年の燃料サイクル全体の Am 量について 比較した結果を表 3.4.2.2-2 に示す。燃料サイクル全体の Am 量は、MA 核変換型 の導入により減少しており、MA 核変換型導入による Am 量の低減割合は評価終了 年(2150 年)で 0.32 程度となった。

表3.4.2.2-2	軽水炉単独シナリオ(平成30年度)*1とMA核変換型導入シナリオ(レファレン
	スケース)の燃料サイクル全体のAm量の比較結果

評価年	燃料サイクル全体の Am 量軽水炉単独MA 核変換型導入シナリオシナリオ		MA 核変換型導入 による Am 量 低減割合 ^{*2}
2050 年	54t	53t	0. 04
2100 年	100t	75t	0. 26
2150 年	140t	95t	0. 32

*1 H30 年度実施ケース

*2 端数処理の関係で割合が合わないことがある。



ス)の燃料サイクル全体のAm量の推移

(5) 軽水炉単独シナリオと MA 変換型導入シナリオの比較【R1】

MA変換型導入シナリオでは、Am転換率と年間Am消費量に着目して、3種類の炉心特性を持った炉に対して、MB評価を実施した。そこで、軽水炉単独シナリオとMA変換型導入シナリオの比較を行うことで、MB評価結果に及ぼす炉心特性の影響について考察した。

軽水炉単独シナリオ(平成 30 年度)と MA 核変換型導入シナリオにおける Am 量の比較を図 3.4.2.2-18 に示す。また、平成 29 年度~令和元年度に実施した MB 評価結果の一覧表を表 3.4.2.2-3 に示す。

① Am 量

図 3.4.2.2-19 に小型高速炉を導入することなく軽水炉の運転を継続した場合の Am の推移を示すが、ガラス固化体として保管されることになる茶色部分のみで 2150 年時点で約 70 トンにも及んでいる(ピンク色部分は再処理を行わないプルサ ーマル使用済み燃料中の Am)。一方、図 3.4.2.2-16 から小型高速炉を導入するこ とで、Pu-f の保持量を現状以下に維持し、ガラス固化体として保管処分すること になる Am を約 20 トンと約 1/3 まで低減できることを示している。この量は 2150 年以降も減り続け、いずれなくすことができる。ただし、後述するように、小型高 速炉及びプルサーマルの使用済み燃料中の Am 量は増え続けるのが課題である。

平成 30 年度に実施した軽水炉単独シナリオと平成 30 年度~令和元年度に実施した MA 変換型導入シナリオにおける核燃料サイクル全体の Am 量の比較(図 3.4.2.2-20 参照)から、 MA 変換型導入シナリオのいずれも、軽水炉単独シナリオに比べて、Am 量が低減できること が分かる。

図 3.4.2.2-20 の MA 変換型導入シナリオで Am 低減割合の差は顕著ではないが、レファレ ンスケースが最も Am 量の低下割合が大きくなっている。これは、他のケースに比べて年間 Am 消費量が大きいことによる。

図 3.4.2.2-21の再処理施設において回収した Am 量は、2150 年時点で以下となった。

・軽水炉単独シナリオ(平成 30 年度):約 70ton

・MA変換型導入シナリオ(レファレンスケース):約20ton

この結果から、MA変換型導入シナリオによって、再処理施設で回収した Am 量を約 1/3 に 低下することができることが分かった。

図 3.4.2.2-22 に Am の年間回収量と核変換量を示すが、既存の使用済み燃料の再処理が 終了(2095 年頃)した後は、MA ターゲットでの Am 核変換量が約 0.3 ton と再処理施設での Am 回収量約 0.2 ton を 0.1 ton 上回るので、軽水炉運転に伴って発生する Am を全て核変換する 他、再処理施設での Am 貯蔵量も減らしていくことができる。もしこのまま運転を継続すれ ば、2300 年代前半には Am 貯蔵量がゼロとなる(もし 2150 年時点で貯蔵している Am 20 ton のみを小型高速炉で核変換するとすれば 70 年で終了できることになる。)。

図 3.4.2.2-23 には、軽水炉単独シナリオと MA 核変換導入シナリオでの再処理施設で発生する高レベル放射性廃液中の Am 量の比較を示す。図 3.4.2.2-23 の Am は、ガラス固化さ

れて高レベル放射性廃棄物として処分されるものである。軽水炉単独シナリオでは、2150年 時点で約70tonのAmが蓄積し処分される。一方、MA核変換導入シナリオでは、2150年時点 でのAm量は、約7tonとなり、処分施設への負荷が大幅に低減できることが分かった。





図3.4.2.2-20 軽水炉単独シナリオ(平成30年度)とMA核変換型導入シナリオ(平成 30年度、令和元年度)における燃料サイクル全体のAm量の推移



図3.4.2.2-21 MA核変換型導入シナリオ(令和元年度レファレンスケース)における 再処理施設での回収Am量の推移



図3.4.2.2-22 MA核変換型導入シナリオ(令和元年度レファレンスケース)における 再処理施設での回収Am量とMAターゲットでのAm核変換量



図3.4.2.2-23 高レベル放射性廃液中のAm量の比較

② Pu-f 量

MA 変換型シナリオ(レファレンスケース)における再処理施設での Pu-f 貯蔵量を図 3.4.2.2-24 に示す。図 3.4.2.2-24 において、MB 評価を開始した 2010 年時点では Pu-f 量 は約 30ton ある。これは、2010 年よりも前の使用済み軽水炉燃料の再処理によって既に発 生しているものである。

MA 変換型導入シナリオでは、再処理施設で回収した Pu-f を高速炉燃料に装荷するため、 Pu-f 貯蔵量が増加することなく、低いレベルを維持している。再処理施設において回収した Pu-f 貯蔵量は、2150年時点で約 20ton であり、Pu-f の蓄積を抑制できると考えられる。



図3.4.2.2-24 MA核変換型導入シナリオ(レファレンスケース)における再処理施設 でのPu-f貯蔵量の推移



表3.4.2.2-3 軽水炉単独シナリオ(平成29年度、平成30年度)のMB評価計算結果及びMA核変換型導入シナリオのMB評価計算結果(平成30年度、令和元年度)

3.4.2.2-26

(6) 将来に関する考察【R1】

本研究では、軽水炉の運転を継続した場合のAmの過大な発生を小型高速炉による核変換 で抑制すると同時に、過大なPu-f量を持たない条件が成立する炉及び再処理の運転パター ンを探った。上述のように、基本的にはそれを達成する条件を見出すことができたが、図 3.4.2.2-15に示すようにサイクル全体としては、Amは依然としてプルサーマルと小型高速 炉使用済燃料中に存在する。

図 3.4.2.2-14 のピンク色部分が示す「使用済み燃料貯蔵施設」に存在する Am とは、プ ルサーマル燃料、小型高速炉燃料の再処理を行わず、貯蔵しているために増え続けている ものである。

図 3.4.2.2-14 の水色部分が示す「再処理施設(Pu 貯蔵、U 貯蔵)」に存在する Am とは、 再処理工場で抽出される Pu、U に随伴する Am であり、小型高速炉に再装荷されるものであ る。

図 3.4.2.2-14 の緑色部分が示す「再処理施設(MA 貯蔵)」に存在する Am とは、いずれガ ラス固化体とされて最終処分に回されるものである。この量が 2090 年以降において低減 傾向にあることは、軽水炉燃料で発生する Am 量を上回る量が小型高速炉で核変換されて いくことを示している。

短中期的(100 から 200 年)には、本研究で検討した軽水炉の運転継続に加えて小型高速 炉の適切な導入を行えば、Pu-f 量を現状以上に増やすことなく、今後の軽水炉運転で生成 する Am 以上の量を核変換できることが確認できた。

しかしながら、高速炉使用済み燃料中の Am は蓄積を続けることになるので、Am を減少 させてガラス固化体の量を絶対的に減らすには将来的に高速炉再処理の導入が不可欠であ る。

100 年程度の小型高速炉の運転の期間に、高速炉設計技術の向上を図り、高速炉燃料再処理技術を確立し、高速炉燃料サイクルを完成させることができれば、高速炉炉心の中で Np を燃焼させ(燃料として有効利用する。)、Am を高速炉内で核変換することでサイクルが 完成し(Cm は半減期が短いので自然消滅する。)、最終処分場の負荷が大きく減少すること になる。

(7) MB 評価のまとめ【R1】

MA 核変換型を導入した場合の長期的な放射性廃棄物の低減効果の把握を目的として、軽 水炉単独シナリオと MA 核変換導入シナリオの長期的なマテリアルバランス計算を実施し た。燃料サイクル全体の Am 量を減らすには、再処理施設で回収した Am を核変換させるこ とが重要である。そこで、MA 核変換型導入シナリオでは、Am 量を低減する複数の炉心を選 定して、MB 評価を実施し、最終的には、以下の結果が得られた。

- ① MA 核変換型導入シナリオ(レファレンスケース)では、既存の使用済み燃料の再処理 が終了(2095年頃)した後は、MA ターゲットでの Am 核変換量が、再処理施設での Am 回収量を上回るため、再処理施設での Am 貯蔵量が低下する傾向になった。このこ とから、再処理施設で回収した Am を MA ターゲットで有効に消滅できると考えられ る。2150年時点での Am 量は約 20ton であり、もしこのまま運転を継続すれば、 2300年代前半には、Am 貯蔵量がゼロになる。
- ② 小型高速炉を導入することなく軽水炉運転を継続した場合、ガラス固化体として保管される Am 量は、2150年時点で約70tonになる。一方、MA 核変換導入シナリオでは、再処理施設で回収されずにガラス固化される Am 量は、2150年時点で約7tonとなり、処分施設への負荷が大幅に低減できることが分かった。
- ③ MA 変換型導入シナリオ(レファレンスケース)では、2150年時点での Pu-f 貯蔵量は約 20ton であり、2010年時点の Pu-f 貯蔵量(約 30ton)を下回ることが分かった。
- ④ 小型高速炉を導入することで、再処理施設で回収した Am を有効に低減できる一方で、高速炉使用済み燃料及び MOX 燃料中には Am が蓄積を続けることが課題である。今後、高速炉燃料の再処理技術が確立すれば、高速炉使用済み燃料から回収した Am を含めて高速炉で核変換し、加えて Np を高速炉で燃焼させ、Cm を減衰待ち処分とすることで、基本的に MA に係わる処分の問題が解消し、最終処分場の面積を大きく減少させることができる。

3.5 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間の連携を密にして研究を進めた。担当者間の情報交換と進捗の調整を図るため、担当者間の打ち合わせを国内及び海外において実施した。

(1) 国内

下記の通り再委託先と進捗と実施計画について打ち合わせを行った。

- ① 第1回国内打ち合わせ 令和元年 5月17日 全体打ち合わせ
- ② 第2回国内打ち合わせ 令和元年 7月26日 阪大打ち合わせ
- ③ 第3回国内打ち合わせ 令和元年 8月20日 NFD打ち合わせ
- ④ 第4回国内打ち合わせ 令和元年 8月21日 NDC打ち合わせ
- ⑤ 第5回国内打ち合わせ 令和2年 3月27日 全体打ち合わせ
- (2) 打ち合わせ海外(ロシア)

下記の通り RIAR と進捗と実施計画について打ち合わせを行った。

- ① 第1回海外打ち合わせ 令和元年 7月11日 モスクワ
- ② 第2回海外打ち合わせ 令和2年 2月4日-5日 デミトロフグラード

4. 結言

本業務は、既に技術が確立されつつある Na 冷却酸化物燃料高速炉を用い、その炉心の燃料は そのままにして径方向ブランケット領域に MA (マイナーアクチノイド)-Zr 水素化物ターゲット を配置することで核変換の効率化とともに早期実用化を目的とする。

以下に4カ年の業務の成果をまとめて記載する。

(1) MA-Zr 水素化物の開発

①MA-Zr合金作製

均一な組成の MA-Zr 水素化物を得るために前処理として MA-Zr 合金を作製するため、以下の業務を実施した。

・作製技術開発(再委託先:NFD)

Am は高温での蒸気圧が高く Am-Zr 合金作製時に蒸発によって飛散する可能性が高いため、Fe 及び Al を合金に添加する等により処理温度を下げ、飛散による材料の損失を避けた。Am の試験 を行う前にまず、模擬材として Sm あるいは Nd を用いてコールド試験を実施した。また、もう1 つの選択肢としてメカニカルアロイ・ホットプレス法により、Sm あるいは Nd がほぼ均一に分布 した合金が得られることを確認した。両方の方法によって作製した試料を、ジーベルツ型の水素 化装置を用いて水素化した。外観上の割れ欠け及び Nd の顕著な凝集が生じなかったことから、 水素化への適用性について見通しが得られた。

· 合金作製

研究用のAmを保有し、Amを扱うことができるホットラボを有しているロシア原子炉科学研究所(以下、RIARと略す。)においてAm-Zr合金を作製した。現在入手可能なAmは酸化物のみなので、Am-Zr合金を作製するため、まずAm酸化物からLi還元法を用いてAm金属に還元した。 次に上述したコールド試験によって確立された方法を用いてFe及びAlを含むAm-Zr合金を作製した。

②MA-Zr水素化物作製

·作製技術開発(再委託先:大阪大学)

コールド試験として、Nd-Zr 試料、模擬 FP として Ce または Ag を含有する Nd-Zr 試料、また ϵ 相 Zr 水素化物試料を作製し、その組織を観察した。Nd-Zr 水素化物の微細組織は合金形成時 に決定されるなど組織制御のための知見が得られ、また模擬固溶 FP として Ce、模擬析出 FP と して Ag を選定した。

·水素化物作製

コールド試験で確立されたジーベルツ型の水素化装置を用いた方法によって Fe 及び A1 を含む Am-Zr 水素化物を作製した。Fe 及び A1 を含む Am-Zr 合金は、活性なため水素化作業は、不活性 ガス雰囲気グローブボックスの中で実施した。近年のほとんどの MA ターゲット作製研究が取り 扱いやすさの観点から非放射性の模擬材料を使用して行われている。本研究で Am を用いて試料 を作製できたことは、世界的にも貴重なデータであり大きな成果である。 ③物性測定

·物性值傾向把握(再委託先:大阪大学)

Fe 及び A1 を含む Am-Zr 水素化物の物性測定に先立って、コールド試験を実施した。Nd-Zr 水素 化物試料、模擬 FP 含有試料、また ε相 Zr 水素化物試料の熱物性及び機械的特性を測定した。FP により熱伝導率が減少する一方で、機械的特性には大きく影響しないことが確かめられた。

·物性測定

Fe 及び Al を含む Am-Zr 水素化物の外観観察、密度測定、X 線回折試験、走査電子顕微鏡 (SEM) 観察、元素分析試験を実施した。外観観察からは、割れや欠けがない試料が作製された ことが分かった。SEM 観察、元素分析試験からは、微細な組織を持つ均一な組織であることが分 かった。密度測定、X 線回折試験の貴重なデータが得られた。

④リサイクル前処理技術

・技術開発(再委託先:NFD)

放射性廃棄物の核変換では、1回の原子炉照射により10%-30%のAmが処理される。そのため、残ったAmを照射済みAm-Zr水素化物から回収し再度Am-Zr水素化物を作製する必要がある。Am-Zr水素化物に酸化等の前処理を施し、硝酸溶解試験を行うことにより、この前処理技術が回収プロセスに有効かを評価した。

まず、非放射性の模擬試料 Zr-Nd 水素化物を酸化処理、硝酸溶解回収を行い、回収率を測定した。この際、高 ZrO₂ 濃度領域では硝酸溶解が困難と考えられるため、分離回収等により ZrO₂ 濃度が下げられることを考慮して ZrO₂ 濃度を下げた領域での溶解特性も調べ、プロセスの適用性を確認した。この結果、合金ペレットは酸化により破砕すること、高 ZrO₂ 領域においても、投入試料に含まれる Nd の 90%以上が硝酸に溶解すること、低 ZrO₂ 濃度領域では、ほぼ 100%の Nd が硝酸に溶解することが確認された。

・前処理試験

模擬物質を用いた溶解試験で大部分は硝酸へ溶ける見通しが得られたため、ここでは、さらに 溶け残ったものに対して溶解度を上げるために、RIAR で作製した Fe 及び A1 を含む Am-Zr 水素 化物を用いて LiC1-KC1 への溶解実験を実施した。LiC1 -KC1 に溶融した Am を測定したところ 95%が回収されたことが分かった。上述した硝酸溶解の回収率と合わせれば十分高い回収率が得 られる見通しを得た。

(2) 照射挙動評価

①模擬 FP 含有試料の物性試験(再委託先:大阪大学)

Nd-Zr 水素化物試料、模擬 FP 含有試料、低密度水素化物試料の物性を評価し、それぞれの組 成依存性を求めた。熱伝導率においては、Nd 量に比例して変化すること、また固溶 FP の影響は Nd リッチ相と Zr リッチ相の比率を考慮し、固溶による Nd リッチ相の熱伝導率低下を考慮する ことで定量的に予測できることが分かった。一方で機械物性については δ 相 Zr 水素化物の値か ら大きく変化しない傾向が見られた。また熱伝導率への密度の影響は大きくないこと、ただ低密 度化は周辺雰囲気の影響を受けやすくすることが示唆される結果が得られた。 ②模擬試料照射後試験(再委託先:NFD)

平成 30 年度に日本原子力研究開発機構の材料試験炉(JMTR)からNFDへ輸送した照射済み U-Th-Zr水素化物(11U-2TEM及び11U-3TEM)について、光学顕微鏡観察及びSEM観察を実施し た後、外周部及び中央部のそれぞれZrを主成分とする相においてTEMによる微細組織観察を行 った。いずれの観察領域においても既往研究において報告されているようなボイドやバブルは観 察されなかった。照射損傷に伴って形成されたキャビティに着目すると、11U-2TEM及び11U-3TEMとも、中央部においてはキャビティの数密度は比較的大きかったが、外周部におけるキャ ビティの密度は非常に小さかった。また、11U-2TEMと11U-3TEMを比較すると、濃縮度が高い 11U-3TEMにおいて、キャビティの数密度が小さく、サイズが大きい傾向を示していた。

微細組織観察において、いずれの試料、いずれの領域においてもボイドやバブルは観察されな かったことから、MA-Zr水素化物ではボイドスエリングやバブルスエリングを生じにくいと推定 される。また、照射量の高い外周部においてキャビティが非常に少ないことは、MA-Zr水素化物 の微細組織が照射損傷の影響を受けにくいことを示唆している。なお、観察されたキャビティの 数密度及び平均直径から、キャビティがペレットの体積変化に及ぼす影響はほとんど無視できる と評価された。

関連研究において実施された U-Th-Zr 水素化物の硬度試験結果から、ペレット径方向のジルコ ニウムー水素比の変化が硬さの変化の一因であると考えられた。また、XRD 測定結果からはペレ ット外周部におけるアモルファス化等の組織変化が示唆され、それが外周部でキャビティがほと んど観察されない要因となっていると推定された。

(3) 安全性技術開発

①定常運転時安全性

ペレット-被覆管のギャップに充填したナトリウムによる水素放出抑制効果を調べるため、水 素の被覆管透過実験装置を用いて水素透過試験を実施した。その結果、明確な水素抑制効果を見 出すことができた。この効果は、Zr 重水素化物を用いた試料を用いて確証試験が実施され効果 が確証された。水素の被覆管透過現象がペレット-被覆管のギャップにナトリウムを充填するこ と(ナトリウムボンドピン)により抑制できることを確認した。これによって定常照射時のMA 水素化物ターゲットからの水素損失は、十分に抑制できる。

②事故時安全性

高温でのMA-Zr水素化物ペレットからの水素放出現象を調べるため、水素放出試験装置を用いて水素放出試験を実施した。その結果、低酸素雰囲気では見られた水素放出が高酸素雰囲気では 起こらないことが分かった。また、第一原理分子動力学法を用いてZr水素化物表面上の水素の 挙動を解析し水素放出抑制のメカニズムを提案した。

(4) システム評価

①設計研究による成立性と有効性に関する研究(再委託先:MFBR)

核変換対象核種としてその発熱特性から崩壊熱削減へ大きな寄与を持っている Am-241 と Am-243 を対象とすることとした。これを核変換するための小型高速炉を最適化した結果、次の2種 類の核変換炉を提案した。 高核変換型: Am/(Zr+Am)比が 0.1 程度のターゲット集合体を用いて、Am 核変換割合:約 0.2、 Am 年間核変換量:約 86~90kg/EFPY を達成する。

高核変換量型: Am/(Zr+Am)比が 0.25 程度のターゲット集合体を用いて、Am 核変換割合:約 0.1、 Am 年間核変換量:約 110~120kg/EFPY を達成する。

PWR の使用済み核燃料(燃焼度 45GWe/t、5 年冷却)から1 年間に発生する Am が 12kg であると すると、高核変換型では、PWR 約7 基分、高核変換量型では約10 基分の Am を処理することがで きる。原子炉を用いた核変換の最も大きな課題の1 つは、核変換に使用することができる中性子 が限られているため処理量が限定されることである。本研究の結果、MA 水素化物を用いた核変換 は、放射性廃棄物の大幅な低減に有効であることが示された。

②核燃料システム評価

・システム適合性評価(再委託先:NDC)

MA 水素化物ターゲットは、高放射能核種を含み発熱するため製造時の取り扱いが問題とな る。MA 発熱に対する取り扱い時の燃料許容温度を設定し、燃料被覆管としての採用候補材(SUS 等)の高温損傷防止の観点からの取り扱い時(製造プロセス、輸送等)における許容温度、水素 解離防止、燃料と被覆管の共晶防止のための、許容できる燃料の定常時及び異常事象発生時の温 度を検討し、これを温度に関する成立要件とした。定常時被覆管許容温度をサイクル初期段階で 400℃、サイクルが進み発熱量が増加した段階で650℃に設定した。

ターゲット集合体の組み立て工程(バンドルをラッパ管に挿入。)から原子炉まで輸送する過 程で必要となる冷却設備、支持装置、等の構造概念を検討しシステム構造概念をまとめた。発熱 等の課題に対応するため、ターゲット集合体は、バンドルを立てた状態で空気冷却しながら組み 立てる手法を考案した。また、冷却設備仕様は、熱流動解析結果に基づき、定常冷却時及び冷却 機能喪失時(非常時)に対応可能な設備容量、多重性を考慮したものとした。

MA 水素化物による核変換処理を核燃料サイクルに取り入れるための課題の1つを解決できる 見通しを得た。

・マテリアルバランス (MB) 評価 (再委託先:NDC)

MA 核変換型を導入した場合の長期的な放射性廃棄物の低減効果の把握を目的として,軽水炉単 独シナリオと MA 核変換導入シナリオの長期的なマテリアルバランス計算を実施した。燃料サイク ル全体の Am 量を減らすには、再処理施設で回収した Am を核変換させることが重要である。そこ で、MA 核変換型導入シナリオでは、Am 量を低減する複数の炉心を選定して、MB 評価を実施し、最 終的には、以下の結果が得られた。

- 1) MA 核変換型導入シナリオ(レファレンスケース)では、既存の使用済み燃料の再処理が終了 (2095年頃)した後は、MA ターゲットでの Am 核変換量が、再処理施設での Am 回収量を上回る ため、再処理施設での Am 貯蔵量が低下する傾向になった。このことから、再処理施設で回収 した Am を MA ターゲットで有効に消滅できると考えられる。2150年時点での Am 量は約 20ton であり、もしこのまま運転を継続すれば、2300年代前半には、Am 貯蔵量がゼロになる。
- 2) 小型高速炉を導入することなく軽水炉運転を継続した場合、ガラス固化体として保管される Am 量は、2150 年時点で約 70ton になった。一方、MA 核変換導入シナリオでは、再処理施設で

回収されずにガラス固化される Am 量は、2150 年時点で約 7ton となり、処分施設への負荷が 大幅に低減できることが分かった。

- 3) MA 変換型導入シナリオ(レファレンスケース)では、2150 年時点での Pu-f 貯蔵量は約 20ton であり、2010 年時点の Pu-f 貯蔵量(約 30ton)を下回ることが分かった。
- 4)小型高速炉を導入することで、再処理施設で回収したAmを有効に低減できる一方で、高速炉使用済み燃料及びMOX燃料中にはAmが蓄積を続けることが課題である。今後、高速炉燃料の再処理技術が確立すれば、高速炉使用済み燃料から回収したAmを含めて高速炉で核変換し、加えてNpを高速炉で燃焼させ、Cmを減衰待ち処分とすることで、基本的にMAに係わる処分の問題が解消し、最終処分場の面積を大きく減少させることができる。

放射性廃棄物を原子炉で核変換するというアイデアは、1960年代から考えられ色々な方式が 研究されてきた。しかし、なかなか実現しなかったのは、核変換できる量を多くすることができ ないためである。運転中の原子炉の中では、多くの中性子が作られるが、そのほとんどが原子炉 の運転維持に使われるため核変換処理に利用できる中性子は数が限られる。この提案では、この 限られた中性子を効率良く利用することを考え、原子炉の材料としては、使われた経験の少ない 水素化物を利用した。

1 基の発電用原子炉から発生する年間の MA 量を 23kg とするとその中の Am は、約半分の 11.5kg である。本事業で新しく設計された高核変換割合炉を用いると、Am が発電用原子炉約 7 基分から発生する Am を処理することができる。例えば、エネルギー基本計画で示されているよ うに国内に、今後再稼働により 30 基の発電用原子炉(炉熱出力 3.3GMW t)が稼働する場合は、 本研究で提案した高核変換割合炉(炉熱出力 714 MWt)を4基稼働させれば、Am の収支をゼロに することができる。高核変換割合炉は、出力だけで比較すると発電用原子炉に比べて十分小さい 割合である。また、これを達成するための技術の多くは、これまでに開発されてきた高速炉の技 術が使えるので早期実現化が可能であると言える。

本研究では、実際に Am を使った水素化物を作製することができた。次の段階は、これを用いた照射試験を実施し、この技術の妥当性を証明することである。

原子力発電が今後日本社会で受け入れられるためには、高い安全性の確保とともに、長寿命放 射性廃棄物を可能な限り低減し、その処分が現実的に可能であることを明らかにし、一般社会の 理解を得ることが必要である。MA-Zr 水素化物を用いた核変換処理は、この目的に対して大きな 貢献ができる。

(5) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間の連携を密にして研究を進めた。担当者間の情報交換と進捗の 調整を図るため、担当者間の打ち合わせを国内及び海外において実施した。

以上、4カ年計画の4年目である本年度の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。