

平成 29 年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業
原子力システム研究開発事業

MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる
革新的核廃棄物燃焼システムの開発

成果報告書

平成 30 年 3 月

東芝エネルギーシステムズ株式会社

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、東芝エネルギーシステムズ株式会社が実施した平成26-29年度「MA入りPu金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」の成果を取りまとめたものです。

目次

概略	xiv
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	
2.1 全体計画	2.1-1
3. 業務の実施内容及び成果	
3.1 燃料開発	3.1.1-1
3.1.1 TRU 金属燃料基礎物性評価及び精度向上検討 (再委託先：福井大学) (H26～H29)	3.1.1-1
3.1.2 TRU 金属燃料健全性評価 (再委託先：電力中央研究所) (H26～H29)	3.1.2-1
3.1.3 被覆管内面浸食抑制技術開発 (H27～H29)	3.1.3-1
3.1.4 RE 混入量制限値評価 (H28 年度再委託先：福井大学) (H26～H28)	3.1.4-1
3.2 再処理開発	3.2.1-1
3.2.1 高除染プロセスの開発 (再委託先：電力中央研究所) (H26～H29)	3.2.1-1
3.2.2 Zr 高含有燃料の電解精製試験 (H26～H29)	3.2-2-1
3.2.3 Zr 高含有燃料陽極溶解挙動の解析 (再委託先：電力中央研究所) (H27～H28)	3.2.3-1
3.2.4 廃棄物処理技術の開発 (再委託先：電力中央研究所) (H26～H29)	3.2.4-1
3.3 炉心開発	3.3.1-1
3.3.1 最適化炉心設計手法の開発 (H26～H27)	3.3.1-1
3.3.2 TRU 金属燃料炉心の構築 (H28)	3.3.2-1
3.3.3 合金材のドップラー効果の測定 (再委託先：京都大学) (H26～H29)	3.3.3-1
3.4 「核廃棄物燃焼システム」の検討	3.4.1-1
3.4.1 TRU 金属燃料炉心の評価 (H29)	3.4.1-1
3.4.2 サイクル施設概念の検討 (H29)	3.4.2-1
3.4.3 システム導入シナリオの検討 (H28)	3.4.3-1
3.4.4 実証試験計画の立案 (H29)	3.4.4-1
3.4.5 「核廃棄物燃焼システム」のまとめ (H29)	3.4.5-1
3.5 研究推進	3.5-1
4. 結言	4-1

表一覧

3.1.1 項

表 3.1.1-1	融点（固相線温度）組成依存性のパラメータ	3.1.1-8
表 3.1.1-2	融点（液相線温度）組成依存性のパラメータ	3.1.1-8
表 3.1.1-3	U-Pu-Zr の熱伝導度のデータベース整理	3.1.1-9
表 3.1.1-4	U-Pu-Zr の融点の整理	3.1.1-9

3.1.2 項

表 3.1.2-1	U を含まない TRU 金属燃料や U を含む MA 添加金属燃料の照射試験条件	3.1.2-2
表 3.1.2-2	燃料ピンの主要仕様	3.1.2-6
表 3.1.2-3	TRU 金属燃料炉心の核・熱流動解析結果に基づく主な照射条件	3.1.2-7
表 3.1.2-4	平成 29 年度の燃料・炉心検討結果に基づく燃料ピンの主要仕様	3.1.2-17

3.1.4 項

表 3.1.3-1	Ce の U-10Zr への溶解試験結果	3.1.4-5
表 3.1.3-2	Nd の U 単体及び U-10Zr への溶解試験結果	3.1.4-5

3.2.1 項

表 3.2.1-1	新燃料 1tHM 当たり発生する使用済み燃料の核種毎組成	3.2.1-23
表 3.2.1-2	各金属材料の融点/沸点	3.2.1-23
表 3.2.1-3	各金属材料での分離係数 (500°C)	3.2.1-24
表 3.2.1-4	各金属材料において熱力学量 (活量係数等) の報告がある元素	3.2.1-25
表 3.2.1-5	各金属材料中のアクチニド溶解度 (500°C)	3.2.1-25
表 3.2.1-6	液体 Ga や Bi に対して安定な材料の調査結果	3.2.1-25
表 3.2.1-7	液体金属陰極での各元素 (群) の Pu に対する分離係数	3.2.1-26
表 3.2.1-8	Cd、Bi、Ga 陰極を用いた場合の新燃料中の FP 濃度 (塩処理率を 2% に固定)	3.2.1-26
表 3.2.1-9	逆抽出プロセスの調査結果	3.2.1-26
表 3.2.1-10	液体 Cd 陰極での新燃料中 FP 濃度	3.2.1-26
表 3.2.1-11	液体 Bi 陰極での新燃料中 FP 濃度	3.2.1-27
表 3.2.1-12	液体 Ga 陰極での新燃料中 FP 濃度	3.2.1-27
表 3.2.1-13	U-Pu-Zr 金属燃料乾式再処理プラント建設費	3.2.1-27

3.2.2 項

表 3.2.2-1	優先的陽極溶解電解法の試験条件のまとめ	3.2.2-13
表 3.2.2-2	同時陽極溶解電解法の試験条件のまとめ	3.2.2-13
表 3.2.2-3	物質収支 (同時陽極溶解電解法 Run4)	3.2.2-14
表 3.2.2-4	化学抽出法の試験条件のまとめ	3.2.2-14
表 3.2.2-5	Cd 陽極電解法の試験条件のまとめ	3.2.2-15

表 3.2.2-6	物質収支 (Cd 陽極電解法 Run1)	3.2.2-15
表 3.2.2-7	物質収支 (Cd 陽極電解法 Run2)	3.2.2-16
表 3.2.2-8	物質収支 (Cd 陽極電解法 Run3)	3.2.2-16
表 3.2.2-9	Zr 高含有金属燃料の各処理方法の比較	3.2.2-17
表 3.2.2-10	候補電解プロセスの処理速度の概略比較	3.2.2-17
3.2.3 項		
表 3.2.3-1	U-Zr 合金の組成と密度から試算された残留 Zr 層の空隙率 及びこの層中における UCl ₃ の実効的拡散係数	3.2.3-15
3.2.4 項		
表 3.2.4-1	試料るつぼ穴開きフタを用いた Gd ₂ O ₃ +LiCl-KCl 塩蒸留試験での 各部材の重量	3.2.4-20
表 3.2.4-2	試料るつぼ穴開きフタを用いた Gd ₂ O ₃ +LiCl-KCl 塩蒸留試験での 元素分布	3.2.4-20
表 3.2.4-3	試料るつぼ穴開きフタの有無による各元素分布率の比較	3.2.4-20
表 3.2.4-4	Gd 沈殿を含む LiCl-KCl 塩塊蒸留試験での各部材の重量	3.2.4-21
表 3.2.4-5	Gd 沈殿を含む LiCl-KCl 塩塊の蒸留試験での各元素の分布	3.2.4-21
表 3.2.4-6	希土類酸化物を含む模擬塩廃棄物固化体の製造時に用いた試料量	3.2.4-21
表 3.2.4-7	希土類酸化物を含む模擬塩廃棄物固化試験後の固化体の寸法、 重量、見掛け密度	3.2.4-22
表 3.2.4-8	28wt.%Zr 模擬金属廃棄物の熔融固化試験の条件一覧	3.2.4-22
表 3.2.4-9	固化体試料の中央付近での半定量分析結果 (NM_Y_1600_30_1)	3.2.4-23
表 3.2.4-10	固化体試料の引け巣付近での半定量分析結果 (NM_Y_1600_30_1)	3.2.4-24
表 3.2.4-11	固化体試料のるつぼとの界面付近での半定量分析結果 (NM_Y_1600_30_1)	3.2.4-25
表 3.2.4-12	固化体試料の上表面付近での半定量分析結果 (NM_Y_1600_30_1)	3.2.4-26
表 3.2.4-13	金属廃棄物試験片の浸出試験までの重量、寸法および表面積	3.2.4-27
表 3.2.4-14	各浸出試験前後の小型容器重量変化、及び各種分析に用いた 溶液の重量	3.2.4-27
表 3.2.4-15	各浸出試験後の浸出液の pH	3.2.4-27
表 3.2.4-16	浸出試験後の小型容器内部の洗浄液重量	3.2.4-27
表 3.2.4-17	浸出試験後の各浸出液、洗浄液中の元素濃度分析結果	3.2.4-28
表 3.2.4-18	各試験片からの累積規格化浸出率	3.2.4-29
3.3.1 項		
表 3.3.1-1	U 有炉心と U 無炉心の特性	3.3.1-5
表 3.3.1-2	技術課題に対する設計対策	3.3.1-6
表 3.3.1-3	特性マップ作成用の炉心仕様とパラメータサーベイ範囲	3.3.1-6

3.3.2 項	
表 3.3.2-1	炉心設計上の課題に対する対策案と基本的考え方…………… 3.3.2-7
表 3.3.2-2	TRU 金属燃料炉心設定仕様…………… 3.3.2-8
表 3.3.2-3	主要炉心特性…………… 3.3.2-9
表 3.3.2-4	基準炉心の制御棒価値…………… 3.3.2-9
表 3.3.2-5	過渡解析結果…………… 3.3.2-9
表 3.3.2-6	燃料物性と燃料バンドル仕様…………… 3.3.2-10
表 3.3.2-7	U 有 TRU 金属炉心と U 無 TRU 金属炉心の起因過程での 負の反応度挿入挙動の比較…………… 3.3.2-11
表 3.3.2-8	溶融燃料の移動距離のサーベイ計算結果…………… 3.3.2-11
3.3.3 項	
表 3.3.3-1	試料と測定時間…………… 3.3.3-8
表 3.3.3-2	厚さ 3.0mm の Nb 試料における反応率の増加量…………… 3.3.3-8
3.4.1 項	
表 3.4.1-1	U 少量添加炉心と U 無炉心（基準炉心）の仕様…………… 3.4.1-6
表 3.4.1-2	設定炉心の特性値の比較…………… 3.4.1-7
表 3.4.1-3	制御棒引き抜き反応度…………… 3.4.1-7
表 3.4.1-4	UTOP 過渡事象特性評価…………… 3.4.1-8
表 3.4.1-5	マルチサイクルの TRU 組成と崩壊熱…………… 3.4.1-8
表 3.4.1-6	燃料仕様、崩壊熱等に関する FaCT 炉心燃料との比較…………… 3.4.2-9
表 3.4.1-7	縦置きピンの自然循環除熱計算データ…………… 3.4.2-10
3.4.2 項	
表 3.4.2-1	高除染化方策比較…………… 3.4.2-9
表 3.4.2-2	使用済み塩中の希土類除去方策比較…………… 3.4.2-9
表 3.4.2-3	金属廃棄物（バスケット残渣）処理方策比較…………… 3.4.2-10
表 3.4.2-4	平衡期使用済み燃料（1 年冷却）…………… 3.4.2-11
表 3.4.2-5	分類後の平衡期使用済み燃料…………… 3.4.2-11
表 3.4.2-6	新燃料製造量評価…………… 3.4.2-12
表 3.4.2-7	使用済み燃料処理量評価…………… 3.4.2-12
表 3.4.2-8	平衡期使用済み燃料の比崩壊熱と処理量の概算評価…………… 3.4.2-12
表 3.4.2-9	臨界制限概算評価…………… 3.4.2-13
表 3.4.2-10	主要機器処理容量及び必要台数リスト…………… 3.4.2-13
表 3.4.2-11	主要機器の過去の研究との比較…………… 3.4.2-14
表 3.4.2-12	リサイクルプラントセル容積の比較…………… 3.4.2-14
表 3.4.2-13	主建屋容積の FS 既往研究との比較…………… 3.4.2-14

表 3.4.2-14	施設建設費の相対評価結果	3.4.2-15
表 3.4.2-15	施設建設費の相対評価結果のまとめ	3.4.2-15
3.4.3 項		
表 3.4.3-1	検討対象の高速炉炉型	3.4.3-5
表 3.4.1-2	燃料サイクル施設コスト算出結果 (UO ₂ 軽水炉ケース、TRU 高速炉シナリオ)	3.4.3-5
表 3.4.1-3	核燃焼システムのシナリオの纏め	3.4.3-6
3.4.4 項		
表 3.4.4-1	開発課題	3.4.4-4
3.5 項		
表 3.5-1	キックオフ会議及びレビュー会議	3.5-2
表 3.5-2	学会等での発表 (1/3)	3.5-3
表 3.5-2	学会等での発表 (1/3)	3.5-4
表 3.5-2	学会等での発表 (3/3)	3.5-5
表 3.5-3	工業所有権	3.5-5

図一覧

1章

図 1-1 TRU 金属燃料高速炉サイクルによる「核廃棄物燃焼システム」概念と 導入効果	1-1
-------------------------------------------------	-----

2.1項

図 2.1-1 全体計画スケジュール	2.1-3
--------------------	-------

3.1.1項

図 3.1.1-1 Pu-Zr 合金系状態図 (赤線は Pu-40Zr の組成)	3.1.1-10
図 3.1.1-2 金属及び U-Zr 合金の熱容量測定結果 (まとめ)	3.1.1-10
図 3.1.1-3 Pu-Zr 合金熱容量評価結果	3.1.1-11
図 3.1.1-4 各種金属の熱伝導率	3.1.1-11
図 3.1.1-5 Pu-Zr 合金の熱伝導率評価結果	3.1.1-11
図 3.1.1-6 Pu の密度変化 (Hecker による)	3.1.1-12
図 3.1.1-7 Pu-40Zr の熱伝導率 (赤色破線が密度補正後)	3.1.1-12
図 3.1.1-8 評価式による熱伝導率の値	3.1.1-13
図 3.1.1-9 U-Pu-Zr 合金の熱伝導率	3.1.1-13
図 3.1.1-10 Pu-U-Zr 合金熱伝導評価結果	3.1.1-14
図 3.1.1-11 U-rich 領域における ANL 結果との比較	3.1.1-14
図 3.1.1-12 Pu-20Zr-U-20Zr 擬二元系状態図	3.1.1-15
図 3.1.1-13 Pu-40Zr-U-40Zr 擬二元系状態図	3.1.1-15

3.1.2項

図 3.1.2-1 Am の揮発を抑制する新型燃料製造装置 (BCS) の外観 及び鋳造の仕組み	3.1.2-3
図 3.1.2-2 TRU 金属燃料と通常の U-xPu-10Zr 合金燃料からの FP ガス放出率	3.1.2-5
図 3.1.2-3 燃料ピン断面図 (一部)	3.1.2-6
図 3.1.2-4 内側炉心燃料の線出力、中性子束、温度の軸方向分布	3.1.2-8
図 3.1.2-5 外側炉心燃料の線出力、中性子束、温度の軸方向分布	3.1.2-9
図 3.1.2-6 外側炉心燃料のホットスポット温度の軸方向分布の解析結果	3.1.2-11
図 3.1.2-7 ホットスポット条件における照射末期における被覆管外形変化 及び CDF 値の軸方向分布	3.1.2-12
図 3.1.2-8 ホットスポット条件における外側炉心燃料の被覆管最大 CDF の 燃焼度依存性	3.1.2-12
図 3.1.2-9 被覆管内面バリアの厚さによる被覆管最大 CDF の変化	3.1.2-13
図 3.1.2-10 燃料スラグの外径増加による FP ガス放出率の変化	3.1.2-14
図 3.1.2-11 燃料スラグの外径増加による FCMI 力の変化	3.1.2-14
図 3.1.2-12 燃料スラグの外径増加による被覆管の外形変化及び CDF の	

	軸方向分布の変化	3.1.2-15
図 3.1.2-13	照射末期の出力が 10%増加した場合の被覆管最高温度履歴の変化	3.1.2-15
図 3.1.2.14	照射末期の出力が 10%増加（被覆管温度が 20°C上昇）した場合の 被覆管最大 CDF 履歴の（燃焼度は基準値のまま）	3.1.2-16
図 3.1.2-15	照射末期の出力が 10%増加（燃焼度が 10%増加）した場合の 被覆管最高温度履歴の変化（被覆管温度は基準値のまま）	3.1.2-16
図 3.1.2-16	20U-TRU-20Zr 合金の照射挙動評価で想定した FP ガス放出率の履歴	3.1.2-18
図 3.1.2-17	燃料組成の変化による被覆管最大 CDF 値の変化	3.1.2-18
図 3.1.2-18	20U-TRU-20Zr 合金の熱伝導率変化による被覆管最大 CDF 値の変化	3.1.2-19
3.1.3 項		
図 3.1.3-1	試験概念	3.1.3-6
図 3.1.3-2	Cr-燃料境界でのラインスキャン結果（ケース 1）	3.1.3-7
図 3.1.3-3	Cr-燃料境界での元素マップ（ケース 1）	3.1.3-7
図 3.1.3-4	V-燃料境界でのラインスキャン結果（ケース 1）	3.1.3-8
図 3.1.3-5	V-燃料境界での元素マップ（ケース 1）	3.1.3-8
図 3.1.3-6	Cr-燃料（Pu-12Am-40Zr）境界のラインスキャン（ケース 2）	3.1.3-9
図 3.1.3-7	Cr-燃料（Pu-12Am-40Zr）境界の元素マップ（ケース 2）	3.1.3-9
図 3.1.3-8	Pu-12Am-40Zr/Cr の境界部の SEM による拡大図（ケース 2）	3.1.3-10
図 3.1.3-9	V-燃料（Pu-12Am-40Zr）境界のラインスキャン（ケース 2）	3.1.3-10
図 3.1.3-10	V-燃料（Pu-12Am-40Zr）境界の元素マップ（ケース 2）	3.1.3-11
図 3.1.3-11	Cr（受け入れ材）-燃料の試験後の状態（ケース 3）	3.1.3-12
図 3.1.3-12	Cr（as-received）-燃料境界部の拡大図（ケース 3）	3.1.3-12
図 3.1.3-13	Cr-燃料境界の EDS の結果（ケース 3 as-received）	3.1.3-13
図 3.1.3-14	Cr（アニール材）-燃料境界部の拡大図（ケース 3）	3.1.3-13
図 3.1.3-15	Cr（アニール材）-燃料境界部元素マップ（ケース 3）	3.1.3-14
図 3.1.3-16	Cr（アニール材）-燃料境界の EDS の結果	3.1.3-15
図 3.1.3-17	バリアと燃料境界の物質挙動模式図	3.1.3-16
図 3.1.3-18	酸化物の Gibbs 自由エネルギー	3.1.3-17
図 3.1.3-19	V-Pu-Am-40Zr 境界の Zr-rich 層の物質分布	3.1.3-18
図 3.1.3-25	Pu-40Zr と Pu-12Am-40Zr での Zr-rich 層の比較	3.1.3-19
3.1.4 項		
図 3.1.4-1	Ce の U-10Zr 燃料への添加量と溶解量の関係	3.1.4-6
図 3.1.4-2	Nd の U-10Zr 燃料への添加量と溶解量の関係	3.1.4-6
図 3.1.4-3	Zr 濃度変化割合の評価方法	3.1.4-7
図 3.1.4-4	Nb-Zr-Ce 系における Zr 濃度変化割合分布	3.1.4-7
図 3.1.4-5	Nb-Zr-Nd 系における Zr 濃度変化割合分布	3.1.4-8
図 3.1.4-6	Nb-Zr-RE 系の固化メカニズムの推定	3.1.4-8

3.2.1 項	
図 3.2.1-1	U-Pu-Zr 金属燃料の乾式再処理のブロックフロー図 …………… 3.2.1-28
図 3.2.1-2	TRU 金属燃料の乾式再処理のブロックフロー図 (Cd 陰極のケース) … 3.2.1-28
図 3.2.1-3	TRU 金属燃料の乾式再処理のマスバランス (Cd 陰極の標準ケース) …… 3.2.1-29
図 3.2.1-4	液体 Ga 陰極を採用する場合のブロックフロー図…………… 3.2.1-29
図 3.2.1-5	液体 Ga 陰極を採用する場合のマテリアルバランス…………… 3.2.1-30
図 3.2.1-7	RE 抽出を付加したブロックフロー図 (塩処理部分のみ) …………… 3.2.1-30
3.2.2 項	
図 3.2.2-1	同時陽極溶解電解法試験結果 (Run4) (1/2) …………… 3.2.2-18
図 3.2.2-1	同時陽極溶解法試験結果 (Run4) (2/2) …………… 3.2.2-19
図 3.2.2-2	Cd 陽極電解法試験結果 (Run1) (1/2) …………… 3.2.2-20
図 3.2.2-2	Cd 陽極電解法試験結果 (Run1) (2/2) …………… 3.2.2-21
図 3.2.2-3	Cd 陽極電解法試験結果 (Run2) (1/2) …………… 3.2.2-21
図 3.2.2-3	Cd 陽極電解法試験結果 (Run2) (2/2) …………… 3.2.2-22
図 3.2.2-4	Cd 陽極電解法試験結果 (Run3) (1/2) …………… 3.2.2-23
図 3.2.2-4	Cd 陽極電解法試験結果 (Run3) (2/2) …………… 3.2.2-24
図 3.2.2-5	選定したプロセスフローシート…………… 3.2.2-25
3.2.3 項	
図 3.2.3-1	溶融 LiCl-KCl-UCl ₃ 中でのクロノポテンシオメトリー測定例…………… 3.2.3-15
図 3.2.3-2	三元金属燃料合金の陽極溶解モデル…………… 3.2.3-15
図 3.2.3-3	U-Zr 二元系合金状態図…………… 3.2.3-16
3.2.4 項	
図 3.2.4-1	試料るつぼ穴開きフタ…………… 3.2.4-30
図 3.2.4-2	試料るつぼ穴開きフタを用いた Gd ₂ O ₃ +LiCl-KCl 塩蒸留試験開始前の 試料装荷及び装置組み立ての様子…………… 3.2.4-30
図 3.2.4-3	試料るつぼ穴開きフタを用いた Gd ₂ O ₃ +LiCl-KCl 塩蒸留試験時の 温度及び装置内圧の変化…………… 3.2.4-30
図 3.2.4-4	試料るつぼ穴開きフタを用いた Gd ₂ O ₃ +LiCl-KCl 塩蒸留試験後の様子…………… 3.2.4-31
図 3.2.4-5	試料るつぼ穴開きフタを用いた Gd ₂ O ₃ +LiCl-KCl 塩蒸留試験後の 各部位での元素検出量…………… 3.2.4-31
図 3.2.4-6	Gd 沈殿を含む LiCl-KCl 塩塊の蒸留試験に用いた試料…………… 3.2.4-31
図 3.2.4-7	Gd 沈殿を含む LiCl-KCl 塩塊の蒸留試験後の試料るつぼ内の様子…………… 3.2.4-32
図 3.2.4-8	Gd 沈殿を含む LiCl-KCl 塩塊の蒸留試験残留物の XRD パターン…………… 3.2.4-32
図 3.2.4-9	昇降部に取り付けた加圧軸…………… 3.2.4-32
図 3.2.4-10	試料加圧のための昇降機構…………… 3.2.4-32

図 3.2.4-11	ガス排気ライン	3.2.4-32
図 3.2.4-12	固化体製造時の温度、プレス荷重変化	3.2.4-33
図 3.2.4-13	固化体製造後の試料容器（左）及び内部から取り出した 固化体の外観（右）	3.2.4-33
図 3.2.4-14	製造した固化体を切断した際の様子（上）及び断面（下）	3.2.4-33
図 3.2.4-15	製造した固化体粉砕物の XRD パターン	3.2.4-33
図 3.2.4-16	固化体断面の XRF 画像（試料像（左）及び Al、Si、Cl の分布）	3.2.4-33
図 3.2.4-17	固化体断面の SEM 画像（上）及び EDS による Si、Al、Na、Cl の分布	3.2.4-34
図 3.2.4-18	各試験後の固化体外観及び断面	3.2.4-34
図 3.2.4-19	希土類酸化物を含む模擬塩廃棄物固化体粉砕物の XRD パターン	3.2.4-35
図 3.2.4-20	20-Gd 試験での固化体粉砕物の XRD パターンと Gd ₄ .67013Si ₃ のパターンの比較	3.2.4-35
図 3.2.4-21	各固化体断面の XRF 画像（試料像及び Gd、Al、Si、Cl の分布）	3.2.4-36
図 3.2.4-22	5-Gd 固化体断面の SEM 画像（左上）及び EDS による Gd、Si、Al、Na、Cl の分布	3.2.4-37
図 3.2.4-23	5-Gd 固化体断面での点分析箇所 SEM 画像 及び各点の元素濃度の EDS による分析値	3.2.4-37
図 3.2.4-24	10-Gd 固化体断面の SEM 画像（左上）及び EDS による Gd、Si、Al、Na、Cl の分布	3.2.4-38
図 3.2.4-25	10-Gd 固化体断面での点分析箇所 SEM 画像 及び各点の元素濃度の EDS による分析値	3.2.4-38
図 3.2.4-26	20-Gd 固化体断面の SEM 画像（左上）及び EDS による Gd、Si、Al、Na、Cl の分布	3.2.4-39
図 3.2.4-27	20-Gd 固化体断面での点分析箇所 SEM 画像 及び各点の元素濃度の EDS による分析値	3.2.4-39
図 3.2.4-28	5-Res-1 固化体断面の SEM 画像（左上）及び EDS による Gd、Si、Al、Na、Cl の分布	3.2.4-40
図 3.2.4-29	5-Res-1 固化体断面での点分析箇所 SEM 画像 及び各点の元素濃度の EDS による分析値	3.2.4-40
図 3.2.4-30	5-Res-2 固化体断面の SEM 画像（左上）及び EDS による Gd、Si、Al、Na、Cl の分布	3.2.4-41
図 3.2.4-31	5-Res-2 固化体断面での点分析箇所 SEM 画像及び 各点の元素濃度の EDS による分析値	3.2.4-41
図 3.2.4-32	Gd ₂ O ₃ 試薬の SEM 画像	3.2.4-42
図 3.2.4-33	金属材料を装荷したグラファイトるつぼ	3.2.4-42
図 3.2.4-34	金属廃棄物溶融固化試験における装置内温度／圧力変化の例 (NM_Y_1600_30_1)	3.2.4-42
図 3.2.4-35	冷却後るつぼから取り出した固化体の外観 (NM_Y_1600_30_1)	3.2.4-42

図 3. 2. 4-36	固化体取り出し後のグラファイトるつぼ内側の様子 (NM_Y_1600_30_1)	3. 2. 4-42
図 3. 2. 4-37	固化体試料の断面写真 (NM_Y_1600_30_1)	3. 2. 4-42
図 3. 2. 4-38	固化体試料の中央付近での 2 次電子像と反射電子像 (NM_Y_1600_30_1)	3. 2. 4-43
図 3. 2. 4-39	図 3. 2. 4-38(×500) の位置で EPMA により観察した 固化体構成各元素の分布	3. 2. 4-43
図 3. 2. 4-40	固化体試料の引け巣付近での 2 次電子像と反射電子像 (NM_Y_1600_30_1)	3. 2. 4-44
図 3. 2. 4-41	図 3. 2. 4-40(×500) の位置で EPMA により観察した 固化体構成各元素の分布	3. 2. 4-44
図 3. 2. 4-42	固化体試料とるつぼ界面付近での 2 次電子像と反射電子像 (NM_Y_1600_30_1)	3. 2. 4-45
図 3. 2. 4-43	図 3. 2. 4-42(×500) の位置で EPMA により観察した 固化体構成各元素の分布	3. 2. 4-45
図 3. 2. 4-44	固化体試料の上表面付近での 2 次電子像と反射電子像 (NM_Y_1600_30_1)	3. 2. 4-46
図 3. 2. 4-45	図 3. 2. 4-44(×500) の位置で EPMA により観察した 固化体構成各元素の分布	3. 2. 4-46
図 3. 2. 4-46	冷却後のるつぼから取り出した固化体の外観 (NM_Y_1600_30_2) ..	3. 2. 4-47
図 3. 2. 4-47	固化体取り出し後のグラファイトるつぼ内側の様子 (NM_Y_1600_30_2)	3. 2. 4-47
図 3. 2. 4-48	固化体試料の断面写真 (NM_Y_1600_30_2)	3. 2. 4-47
図 3. 2. 4-49	固化体試料の中央付近での 2 次電子像と反射電子像 (NM_Y_1600_30_2)	3. 2. 4-48
図 3. 2. 4-50	図 3. 2. 4-49(×500) の位置で EPMA により観察した 固化体構成各元素の分布	3. 2. 4-48
図 3. 2. 4-51	固化体試料の引け巣付近での 2 次電子像と反射電子像 (NM_Y_1600_30_2)	3. 2. 4-49
図 3. 2. 4-52	図 3. 2. 4-51(×500) の位置で EPMA により観察した 固化体構成各元素の分布	3. 2. 4-49
図 3. 2. 4-53	固化体試料とるつぼ界面付近での 2 次電子像と反射電子像 (NM_Y_1600_30_2)	3. 2. 4-50
図 3. 2. 4-54	図 3. 2. 4-53(×200) の位置で EPMA により観察した 固化体構成各元素の分布	3. 2. 4-50
図 3. 2. 4-55	固化体試料の上表面付近での 2 次電子像と反射電子像 (NM_Y_1600_30_2)	3. 2. 4-51
図 3. 2. 4-56	図 3. 2. 4-55(×500) の位置で EPMA により観察した 固化体構成各元素の分布	3. 2. 4-51

図 3.2.4-57	各試験片の浸出前後での外観	3.2.4-52
図 3.2.4-58	14 日及び 28 日間の浸出後の内容器内部及び フッ素樹脂製網の様子	3.2.4-52
図 3.2.4-59	各試験片からの累積規格化浸出量の浸漬期間による変化	3.2.4-52
図 3.2.4-60	各元素の累積規格化浸出量の浸漬期間による変化	3.2.4-53
3.3.1 項		
図 3.3.1-1	減速材、炉心高さに対するドップラー係数とボイド係数の感度	3.3.1-7
図 3.3.1-2	燃料熱伝導度の比較	3.3.1-7
図 3.3.1-3	炉心配置及び炉心燃料集合体断面	3.3.1-8
図 3.3.1-4	減速能とドップラー係数、ボイド反応度の関係	3.3.1-8
図 3.3.1-5	燃料合金捕獲断面積とドップラー係数、ボイド反応度の関係	3.3.1-8
図 3.3.1-6	減速能・輸送断面積・炉心高さ とドップラー係数、 ボイド反応度の相関マップ	3.3.1-9
図 3.3.1-7	合金捕獲断面積・炉心高さ とドップラー、ボイド反応度の相関マップ	3.3.1-10
図 3.3.1-8	燃焼反応度と炉心仕様の相関のまとめ	3.3.1-10
図 3.3.1-9	安全要求からの炉心特性要求範囲	3.3.1-11
3.3.2 項		
図 3.3.2-1	炉心構築の手順	3.3.2-12
図 3.3.2-2	ドップラー係数及びボイド反応度対策の最適化炉心仕様選択説明図	3.3.2-13
図 3.3.2-3	TRU 金属燃料炉心配置及び燃料集合体	3.3.2-14
図 3.3.2-4	一般的な金属燃料炉心の過酷事故進展の概要	3.3.2-15
図 3.3.2-5	バルク冷却モデル	3.3.2-16
図 3.3.2-6	燃料ピン・減速材ピン配置概念	3.3.2-17
3.3.3 項		
図 3.3.3-1	ターゲット室に設置した Ta ターゲットと軽水モデレータ	3.3.3-9
図 3.3.3-2	構築した中性子照射場（上面）	3.3.3-10
図 3.3.3-3	構築した中性子照射場（照射場下流）	3.3.3-10
図 3.3.3-4	中性子照射場の概略図	3.3.3-11
図 3.3.3-5	試料昇温の様子	3.3.3-11
図 3.3.3-6	各 Nb 試料の TOF スペクトル	3.3.3-12
図 3.3.3-7	各 Mo 試料の TOF スペクトル	3.3.3-12
図 3.3.3-8	厚さ 1.0mm ^t 試料における Nb-93 の共鳴捕獲率 (0 - 400 eV)	3.3.3-13
図 3.3.3-9	厚さ 3.0mm ^t 試料における Nb-93 の共鳴捕獲率 (0 - 400 eV)	3.3.3-13
図 3.3.3-10	厚さ 1.0mm ^t 試料における Nb-93 の共鳴捕獲率 (400 eV - 2 keV)	3.3.3-14
図 3.3.3-11	厚さ 3.0mm ^t 試料における Nb-93 の共鳴捕獲率 (400 eV - 2 keV)	3.3.3-14
図 3.3.3-12	厚さ 3.0mm ^t の Nb 試料における JFS-70 群構造での TOF スペクトル	3.3.3-15

図 3.3.3-13	厚さ 3.0mm ^t 試料の Nb 試料内における中性子捕獲率 (lethargy = 0.01)	3.3.3-15
図 3.3.3-14	厚さ 3.0mm ^t 試料の Mo 試料内における中性子捕獲率 (JFS-70 群構造)	3.3.3-16
図 3.3.3-15	厚さ 3.0mm ^t の Mo 試料におけるドップラー効果による反応率比	3.3.3-16
図 3.3.3-16	厚さ 3.0mm ^t 試料の Nb 試料内における中性子捕獲率 (JFS-70 群構造)	3.3.3-17
図 3.3.3-17	厚さ 3.0mm ^t の Nb 試料におけるドップラー効果による反応率比	3.3.3-17
図 3.3.3-18	事業開始時と最終年度の TOF スペクトルの比較	3.3.3-17
図 3.3.3-19	試料厚さ変化による中性子捕獲率変化	3.3.3-18
図 3.3.3-20	Nb-93 の主要共鳴の自己遮蔽因子図	3.3.3-19
図 3.3.3-21	Mo, Nb 試料の主要な共鳴に対する自己遮蔽因子と反応率比の関係 ..	3.3.3-20
3.4.1 項		
図 3.4.1-1	20U-60TRU-20Zr の熱伝導率の不確かさ	3.4.1-10
図 3.4.1-2	燃料製造概略工程と熱的成立性の観点から注意すべき項目	3.4.1-11
3.4.2 項		
図 3.4.2-1	U 有燃料の乾式再処理プロセスを基にした TRU 金属燃料開発課題	3.4.2-16
図 3.4.2-2	乾式再処理プロセスに関する検討項目とプロセスフローの関係	3.4.2-16
図 3.4.2-3	TRU 金属燃料の乾式再処理プロセスフロー図	3.4.2-17
図 3.4.2-4	平衡期使用済み燃料の取り出し後の比崩壊熱	3.4.2-17
3.4.3 項		
図 3.4.3-1	核廃棄物燃焼システムの概念図と検討内容	3.4.3-7
図 3.4.3-2	高速炉容量と TRU 蓄積量の推移 (UO ₂ 軽水炉群ケース、 TRU 高速炉シナリオ)	3.4.3-7
図 3.4.3-3	燃料サイクル施設の導入規模・ペースと推移 (UO ₂ 軽水炉群ケース、TRU 高速炉シナリオ)	3.4.3-8
図 3.4.3-4	燃料サイクル施設の導入規模・ペースと推移 (UO ₂ 軽水炉ケース、ABR (CR=0.75) シナリオ)	3.4.3-9
図 3.4.1-5	燃料サイクル施設必要容量の推移 (UO ₂ 軽水炉ケース、ABR (CR=0.75) シナリオ)	3.4.3-9
3.4.4 項		
図 3.4.4-1	試験計画	3.4.4-5
3.4.5		
図 3.4.5-1	TRU 燃焼量を同一とした場合の従来高速炉サイクルと 核廃棄物燃焼サイクルのコストの比較 (相対値)	3.4.5-3
図 3.4.5-2	サイクル概念と導入効果	3.4.5-3

略語一覧

BGO	: Bi ₄ Ge ₃ O ₁₂	(Bi ₄ Ge ₃ O ₁₂ シンチレーター)
CDA	: Core Disruptive Accident	(炉心損傷事象)
CDF	: Cumulative Damage Fraction	(累積損傷和)
DSC	: Differential Scanning Calorimetry	(示差走査熱分析)
ED	: Energy Dispersive Spectroscopy	(エネルギー分散分光法)
EPMA	: Electron Probe Micro Analyzer	(電子線マイクロアナライザ)
FIB	: Focused Ion Beam	(集束イオンビーム)
FCCI	: Fuel Cladding Chemical Interaction	(燃料—被覆管間の化学的相互作用)
FACT	: Fast Reactor Cycle Technology Development	(高速増殖炉サイクル実用化研究開発)
ICP-AES	: Inductively Coupled Plasma-Atomic Emission Spectrometry	(誘導結合プラズマ発光分光)
MA	: Minor Actinide	(マイナーアクチニド)
RE	: Rear Earth	(希土類)
SEI	: Secondary Electron Image	(二次電子写真)
SEM	: Scanning Electron Microscope	(走査型電子顕微鏡)
TEM	: Transmission Electron Microscope	(透過型電子顕微鏡)
TOF	: Time of Flight method	(飛行時間測定法)
TRU	: Transuranic Element	(超ウラン元素)
ULOF	: Unprotected Loss of Flow	(流量減少型スクラム失敗事象)
UTOP	: Unprotected Transient Overpower	(過出力型スクラム失敗事象)
XRD	: X-ray diffraction	(X線回折)

概略

我が国の軽水炉事業を将来にわたって継続するには、現在の国の方針である高レベル放射性廃棄物の地層処分と併せて将来の幅広い選択肢を確保するため、万年オーダーの放射性核種を含む高レベル放射性廃棄物の減容化・有害度低減などの技術開発を進める必要がある。本研究は、軽水炉使用済み燃料より回収したプルトニウムとマイナーアクチニド（以下、TRU と称す）を高速炉で燃焼させることで高レベル放射性廃棄物の毒性を約 300 年で天然ウラン並みとする技術を対象とするものである。具体的には、ウランを含まない TRU 燃料を用いた高速炉サイクルにより、高い効率で TRU を燃焼できる新しい「核廃棄物燃焼システム」の工学的見通しを得ることを研究開発目標とする。このシステムが実現できれば、当面、軽水炉時代が主流と見込まれる中、最小の高速炉基数にて軽水炉からの TRU を燃焼処理できる。

具体的には、高い効率で TRU を燃焼可能で、かつ経済合理性を有した「核廃棄物燃焼システム」として、TRU 金属燃料高速炉サイクルを最適な概念と位置づけ、表 1 に示す課題に取り組む。これらの課題は、ウランを含まず、かつ Zr 及び TRU の含有率が従来よりも高い金属燃料に固有のものとして抽出したものである。H26 年度から H29 年度まではこれらの課題を解決するために、以下に示す燃料開発、再処理開発及び炉心開発を実施した。

1. 燃料開発

1.1 TRU 金属燃料基礎物性評価及び精度向上検討（再委託先：福井大学）

U を含まない Zr 高含有 TRU 金属燃料の基礎物性はあまり整備されていないため、燃料照射挙動評価に必要な燃料基礎物性を評価した。

その為まず始めに、Pu-Zr 系の合金状態図に基づき、Am、Cm、Np を加えた場合の TRU 燃料の融点—組成の相関を定式化した。また熱力学的計算の確認、検証の為、Pu-MA-Zr 合金の模擬材として Ce-Zr-Nd 等による材料の溶解試験を実施し、熱力学計算と比較し計算がほぼ一致することを確認した。更に、U-Zr 燃料や Pu-Zr 燃料の既往データを整理し MA 入り Pu-Zr 燃料の比熱及び熱伝導度を評価し、これらの温度依存性、組織依存性を定式化した。H29 年度にはこれらの物性精度向上として、Pu-40Zr の熱伝導度について燃料の相変化に密度変化を考慮して評価をおこなったが、大きな向上効果は見られなかった。

またトレードオフ検討の一環として、U を少量添加した場合の燃料の熱伝導度と融点を評価した。その結果、20U-60Pu-20Zr の熱伝導率は Pu-40Zr よりも 2~3 割程度向上する可能性があるが、単純な加算則に基づかない場合には、両者の熱伝導率は大きな差はない可能性もある。融点については、U-Pu-Zr を含むデータベースで Pu-Zr の 2 元系のデータにおいて不確かさが大きいデータを除くことで、融点の上昇効果が期待できることから、融点の組成依存性を見直し再定式化を行った。

これらの結果を踏まえ、物性評価（熱伝導率、融点等）の課題と今後のデータ整備の必要性をまとめた。

1.2 TRU 金属燃料健全性評価（再委託先：電力中央研究所）

U を含まない TRU 金属燃料の健全性評価に先立ち、MA 添加金属燃料の製造や照射試験に関する既往知見を調査し、U を含む燃料に比較して、照射による FP ガスの放出にやや遅れ

が見られることや希土類元素 (RE) や MA の含有率が高いために、FCCI (Fuel Cladding Chemical Interaction) による被覆管減肉が厳しくなる可能性があること、Pu 富化度が高いことによる被覆管境界における液相形成温度の低下が懸念されることが明らかになった。

これらの調査結果や 3.1.1 項の燃料基礎物性評価結果、3.1.3 項の被覆管内面侵食抑制対策等に基づき、TRU-40Zr の FP ガス放出率、燃料物性を考慮するとともに被覆管内面に腐食抑制バリア材を設けることを想定して、金属燃料照射挙動解析コード ALFUS にて燃料健全性を評価した。3.3.2 項で構築した炉心の燃料を評価した結果、TRU-40Zr 燃料による被覆管応力やプレナムガス圧による被覆管の累積損傷和 (CDF) は 0.05 未満であり、基準値 (1.0) を十分下回ることが分かった。

また H28 年度構築炉心の燃料設計を変更した場合の裕度等を確認するため、バリア材の厚さ、燃料スラグ径の不確かさ、被覆管温度履歴の変化、燃焼度の変化、及び燃料組成の変化をそれぞれ考慮した燃料挙動解析を ALFUS にて行い、照射健全性に与える影響を評価した。その結果、平成 28 年度に設定した燃料仕様に対し、バリア材厚さで 50-150 μm の変化、燃料スラグの製作公差として 0.10mm の不確かさ、照射末期の被覆管温度で 20°C の上昇または取出燃焼度で 10% の増加 (燃焼度約 40at.%) を想定しても被覆管の累積損傷和 (CDF) や外径変化量の観点から、燃料の照射健全性は確保できる見通しを得た。更に、TRU 装荷量一定の条件下で、少量の U を添加した 20U-TRU-20Zr においても、照射健全性は確保できる結果が得られ、燃料及び炉心設計の変更に対する高い柔軟性を有することを確認した。

1.3 被覆管内面侵食抑制技術開発

TRU 金属燃料の FCCI や被覆管減肉などによる被覆管内面侵食を防止のための内面バリア材として有効と考えられる Cr 及び V を用いて、Pu-40Zr 金属燃料と同バリア材付被覆材の拡散対試験 (700°C、100 時間) を実施した。その結果、V の場合、Pu 等のバリア材への侵入はないことが確認できた。Cr の場合、粗粒化した Cr 試料表面近傍の結晶粒境界に若干、Pu が侵入したが、試験片の観察結果から試料表面の結晶粒の境界より内側への侵入はしないと考えられた。これより両バリア材候補は Pu-40Zr 燃料に対して有効であることが分かった。

また Pu-12Am-40Zr 燃料の拡散対試験を実施し、同じくバリア材の有効性を確認した。更に、H29 年度には「核廃棄物燃焼システムの検討」の一環として Cr バリア材の時間延長拡散対試験 (700°C、200 時間) を実施し、バリア材への侵食は時間とともに鈍化することが分かり、バリア材の有効性を再確認した。

1.4 RE 混入量制限値評価 (H28 年度再委託先：福井大学)

U を含まない TRU 金属燃料では再処理回収燃料への RE の混入量が多くなる可能性があり、その RE が新燃料製造の燃料合金溶解時に均一に混合しないと、燃料の照射健全性に悪影響を与える可能性がある。このため、新燃料中の RE 混入量制限値を設定することを目的として、代表的な RE として Ce 及び Nd を用いた試験等により、燃料への RE 溶解挙動を評価した。

具体的には、まず始めに RE 量をパラメータとした U-Zr に対する溶解試験を実施した。その結果、Ce の溶解量は Zr の影響はなく U-Ce の 2 元系状態図から推定される値と一致したが、Nd の場合、U-Nd の 2 元系状態図から推定される値より多く溶解することを確認した。この結果から、TRU-Zr 金属燃料への RE の溶解量は Zr による溶解量増加効果を考慮しないで燃料主成分である Pu と各 RE 元素の 2 元系状態図に基づき設定すれば保守側であり、RE を均一に溶解できる混入量は約 10%であることが分かった。一方、固化する際の偏析に関しては、従来の U-Pu-MA-Zr 燃料製造経験から RE 混入量は 2%以下であれば偏析しないことが確認されている。したがって、本研究では、RE が均一な TRU 金属燃料が製造できる条件として、リサイクル燃料の RE 混入量制限値を 2%と設定することにより、燃料ピンの局所的な RE の濃度が平均 RE 濃度の±20%以内とできることを確認した。(H26、27 年度：東芝)

更に H28 年度からは、上記 Nd のように、燃料と Nd の 2 元系状態図から推測される RE 溶解量よりも多く溶解するメカニズムを把握するために、燃料の模擬物質として Nb 等を用いて RE(Nd)の溶解試験を実施した。その結果、Nb-Zr-Nd による試験では、液相中では Nd は Zr 中に溶けており、Nb と Zr も溶け合うことから明確な相分離はせずに母材への溶解限度を超えて均一な液相となっていることが確認された。すなわち、燃料合金材である Zr が介在することで、Nd の溶解量は増加することを確認した。(H28 年度 再委託先：福井大学)

2. 再処理開発

2.1 高除染プロセスの開発（再委託先：電力中央研究所）

TRU 金属燃料では燃料中の MA 含有割合が高くなるため、再処理時に MA との分離性が比較的悪い希土類(RE)FP が回収燃料に多く混入する可能性がある。そのため、RE の除染性能向上策として、Cd 代替陰極材料を採用、電解精製使用済塩処理頻度増加、及び RE の還元抽出や沈殿による使用済塩からの希土類 FP 除去について検討した。

その結果、新燃料中 RE 混入量 2%以下という条件は Cd 陰極を用いた従来のフローシートでも満たされることが分かった。

しかし、高燃焼度化や多量の RE を含む軽水炉使用済み燃料再処理後の高レベル廃液から MA を回収する際には、Cd 陰極では制限値を満足できない可能性が高く、電解精製使用済塩処理頻度増加、還元抽出による使用済塩からの希土類 FP 除去、Ga や Bi などの Cd 代替陰極材料の採用のいずれの場合も、高い除染性能が見込めることが分かった。ただし、使用済塩からの RE の沈殿除去に関しては、RE の内、Eu の除染性能向上効果が小さいのに加えて、沈殿生成物が微粉末のため除染プロセスが複雑になることから、高除染化には適さないと考えられた。

更に、これらの方策について、処理施設の設置面積、塩処理量への影響等を総合的に考慮すると、高除染化策としては、従来の Cd 陰極に代わり Ga 陰極を用いることが有力であることが分かった。

2.2 Zr 高含有燃料の電解精製試験

U を含まない TRU 金属燃料では燃料合金材 Zr の割合を 40wt%程度まで高める必要がある

が、そのような Zr 高含有金属燃料の電解再処理の実績は少ないため、その成立性を見通しを得ることを目的として、TRU 金属燃料の模擬物質として U-Zr 燃料を用いた各種の電解試験を実施した。具体的には、従来の電解法と同じ、燃料合金材の Zr を熔融塩中に溶解させないで燃料を優先的に溶解させて電解する方法（優先的陽極溶解電解法）、燃料とともに Zr も熔融塩中に溶解して電解する方法（同時陽極溶解電解法）、電解槽中の Cd プールに燃料と Zr を化学的に溶解し、 $ZrCl_4$ を添加して Cd プールから熔融塩中に燃料のみを塩化物として化学抽出してから電解する方法（化学抽出+電解法）、電解槽中の Cd プールに燃料と Zr を化学的に溶解し、その Cd プールを陽極として電解する方法（Cd 陽極電解法）等の試験を実施した。

その結果、優先的陽極溶解電解法、同時陽極溶解電解法、化学抽出+電解法などでは、電流密度や電流効率の低下、処理操作（プロセス）の複雑化などを招くのに対し、Cd 陽極電解法では比較的シンプルなプロセスにて熔融塩中への Zr の溶解を抑制し、ひいては Zr 割合が低い燃料を陰極に回収できることが分かった。

更に、この結果に基づき、Cd 陽極電解法を正案とし、それを用いた場合の再処理プロセスフローシートを作成した。

2.3 Zr 高含有燃料陽極溶解挙動の解析（再委託先：電力中央研究所）

Zr 高含有金属燃料の電解時の陽極溶解挙動を把握する観点から、3.2.2 項に示した優先的陽極溶解電解試験結果と同時陽極溶解試験結果を参考として、機構論的解析モデルにて陽極溶解挙動を解析、検討した。その結果、Zr 高含有金属燃料を優先的陽極溶解電解する場合には電流密度を大幅に下げることが必要であり、また、残留 Zr 層中における TRU イオンの実効的拡散係数が低下することから、処理速度が大幅に低下することが予測された。また、燃料と Zr を同時溶解する場合、安定した燃料合金溶解を継続することが可能な条件は、アクチニドではなく Zr の溶解電流上限値によって定まり、 $ZrCl_4$ の拡散係数と溶解度を考慮して評価できることが分かった。

2.4 廃棄物処理技術の開発（再委託先：電力中央研究所）

U を含まない TRU 金属燃料では燃料合金材 Zr の割合が 40wt%程度まで高くなるため、電解後の陽極残留金属廃棄物の Zr 含有率が従来よりも高くなる。また、RE の高除染プロセスに適した使用済塩の廃棄物処理技術の見通しを得ておく必要がある。

このため、金属廃棄物に関しては、処分固化体製作のための熔融固化試験及びこの試験で作成した固化体試料を用いた浸出挙動試験を実施した。その結果、 Y_2O_3 コーティング/グラファイトるつぼを用いて 1600℃にて熔融固化することにより、SUS-30wt%Zr ベースに金属 FP を約 5wt.%添加した処分固化体が問題なく作成できることが分かった。また最長 140 日間の長期浸出試験により、従来のガラス固化体と同等以上の耐浸出性を確保できる見通しを得た。

また熔融塩廃棄物に関しては、 Li_2O による使用済塩からの希土類 FP の沈殿除去試験、沈殿物に付着した塩の蒸留分離試験、ガラス原料に沈殿回収した希土類 FP を 10wt.%添加したガラス結晶型ソーダライト固化試験を実施した。これらの一連のプロセス試験の結果、使

用済塩中の希土類 FP を空隙率 20%相当のソーダライト固化体にできることを確認した。

3. 炉心開発

3.1 最適化炉心設計手法の開発

U を含まない TRU 金属燃料炉心では、安全性確保の観点からドップラー反応度の改善（増強）、ボイド反応度の低減、運転サイクル長さなど炉心特性の観点からは燃焼反応度の低減等が重要である。しかし、これらの特性パラメータは相反する面があるため、本研究では炉心構築に先立ち、まず始めに炉心仕様最適化のための手法を開発した。具体的には、炉心高さ、減速材、燃料合金材、バーナブルポイズン等をパラメータとして様々なケースの炉心解析を実施し、炉心仕様と炉心特性の相関を分析、検討した。その結果、ドップラー係数やボイド反応度は、中性子の減速能、輸送断面積、燃料合金材の捕獲断面積、及び炉心高さの4つの炉物理的指標にて概略値を算出できることが分かった。

更に、この炉物理的指標と主要炉心特性の関係を相関マップとして定式化し、ドップラー係数とボイド反応度への要求条件をバランスよく満足する炉心仕様を容易に見出すことが出来る、最適化炉心設計手法を開発した。

また、炉心の受動安全特性確保の観点から、UTOP (Unprotected Transient Over Power) 時及び ULOF (Unprotected Loss of Flow) 時においても燃料溶融及び冷却材沸騰が防止できる、ドップラー係数とボイド反応度への要求条件を炉心のパラメータ過渡解析により明らかにした。

3.2 TRU 金属燃料炉心の構築

3.1 節にて開発した最適化炉心設計手法を用いて、U を含まない TRU 金属燃料炉心の基本仕様を選定し、基準炉心（軽水炉取出 TRU 燃料利用）とマルチリサイクル燃料炉心を構築した。具体的には TRU-40Zr 金属燃料をベースに BeO 減速材ピンを燃料集合体内に配置した、低線出力扁平炉心（最大線出力 210w/cm、炉心高さ 55cm）であり、その炉心特性、燃料特性及び安全特性を評価した。その結果、ドップラー係数は U 含有 TRU 金属燃料高速炉並み、ボイド反応度は約 0%であり、また、運転サイクル長さ 1 年相当のプラント稼働率が見込まれ、当初の目標達成及び成立の見通しを得た。また、希土類 FP 混入による炉心特性への影響を評価し、大きな問題は生じないことを確認した。

更に、構築した TRU 金属燃料炉心は過酷事故時を想定しても、燃料集合体中の燃料ピンと減速材ピンの配置の工夫により、U を含む通常の金属燃料炉心と同様に、起因過程で燃料分散等により事故終息できる見通しがあることを確認した。

3.3 合金材のドップラー効果の測定（再委託先：京都大学）

炉心のドップラー係数を改善する方策として、金属燃料合金材の Zr の代わりに Mo や Nb を用いることが将来オプションのひとつと考えられる。しかし、これらの核種の中性子の共鳴領域の吸収断面積の精度、すなわちドップラー反応率の評価精度は不明確であるため、本研究では、これらの物質を対象として、ライナックで発生させた中性子を用いた共鳴吸収分光法にて共鳴吸収領域の積分中性子吸収率の温度による変化量を測定した。測定にあたって

は、予備試験や照射場の中性子分布の数値計算等により、中性子検出系や鉛シャドウバー等の配置を工夫し測定系のノイズ低減など測定体系の最適化を図った。その結果、10keV 領域までのドップラー反応の測定に成功した。この実験値と数値計算を比較した結果、その差は±5%以内に収まっており、代替合金材 (Mo 及び Nb) のドップラー効果の評価精度は当初目標の±20%以内との見通しを得た。

4. 「核廃棄物燃焼システム」の検討

核廃棄物燃焼システムの炉心に関し、U 無炉心と U を少量添加した炉心について比較した結果、U の少量添加による炉心・燃料特性面のメリット (炉心コンパクト化、燃焼反応度低減効果等) は小さく、H28 年度に構築した U 無 TRU 炉心を TRU 燃焼炉心の正案とし、それに基づき軽水炉燃料からの TRU をワンスルーで燃焼する基準炉心と、マルチリサイクルで燃焼する場合のマルチリサイクル燃料炉心の2種類の炉心を設定した。

サイクル施設の概念に関しては、3.2 節の結果から Zr 高含有燃料の処理に適した再処理プロセスを設定し、プロセスフロー図を作成し、TRU 燃料組成の高次化に伴い取扱い燃料量が大きくなるマルチリサイクル燃料炉心の必要処理量をベースに、20GWe の軽水炉から毎年発生する 3.8tTRU を継続してリサイクル燃焼処理できる 4.9GWe の TRU 金属燃料高速炉に対応したサイクル施設概念を検討した。具体的には、新燃料製造能力 22.6tHM/年、使用済み燃料処理能力 18.8tHM/年のサイクル施設の規模や経済性を検討した。その結果、従来の既往研究の高速炉リサイクル施設 (同一発電量の金属燃料サイクル) と同等になることがわかった。

また、導入シナリオの検討の為、基準炉心を対象として炉とサイクル施設の導入規模と時期をサイクル諸量の観点から検討した結果、TRU 燃焼高速炉の導入規模に合わせて小規模の再処理施設や製造施設を段階的に増設するのではなく、将来必要となる処理容量の規模の施設を初期段階から導入する方が経済的であることが分かった。本研究のシステムの TRU 燃焼コストを従来の U も含むブランケット無し TRU 燃焼高速炉システムと相対評価した結果、本システムの TRU 燃焼コストは従来のシステムの約 1/4 になる見通しである。また、将来、U も用いた TRU 増殖リサイクルシステムに移行する場合に必要な、サイクル施設の主なプロセス変更点を抽出し、TRU 燃焼から TRU 増殖への柔軟な移行の可能性を検討した。その結果、装置の流用及び交換等により、TRU 増殖への切り替えは容易であることが分かった。

本研究で構築した核廃棄物燃焼システムの実証試験計画について、燃料、再処理、炉心の各分野での開発課題を整理し、同システム実現に必要なキー技術の実証試験を立案にした。具体的には、燃料開発は燃料物性、燃料健全性、製造技術に関する試験計画、再処理開発では電解技術及廃棄物処理技術に関する試験計画、炉心開発では炉心の各設計精度及び過酷事故に関する試験計画を立案した。

5. 研究推進

本研究の推進のため、各年度開始時のキックオフ会議や、適宜、個別レビュー会議等を行い、各研究項目間で密に研究を進めた。また、多数の学会発表を通じて、国内外の専門家と討議するとともに、本研究成果を対外的にアピールした。更に、論文投稿、特許出願も行き、有意義な研究成果を得た。

6. 今後の展望と将来の見通し

4年間の本研究により、ウランを含まない TRU 金属燃料高速炉サイクルにて、軽水炉で生成される TRU を軽水炉の発電規模の約 1/4 の規模にて燃焼処理できる技術見通しを得た。このことは、当面、軽水炉が主流と考えられる時代においても TRU 燃焼高速炉を大規模に導入しなくとも、軽水炉からの TRU の蓄積を防止し、高レベル放射性廃棄物の有害度を早期に低減できることを意味する。また、この技術を用いれば、我が国が既に有する Pu を早期に燃焼処理することにも適用可能である。更に、将来、エネルギーセキュリティ確保の観点から、燃料増殖が必要になった場合でも、新たな技術開発をすることなく、TRU 燃焼システムから TRU (Pu) 増殖システムに柔軟に移行できる。

すなわち、本研究で開発した技術は、高レベル放射性廃棄物の有害度の早期低減とともに、長期に渡るエネルギー資源確保も可能とするものであり、今後、実現に向けた開発が望まれる。その実現のためには、本研究で提示した各技術の実証を国際協力も含め着実に実施していくことが重要である。

表 1 TRU 金属燃料高速炉サイクルの技術課題と解決アプローチ

項目	技術課題	解決アプローチ
燃料	高Zr含有燃料の融点、熱伝導率等基礎物性が不十分、かつ種々の組成での燃料照射挙動が未確認	熱力学計算により不足する基礎物性を把握
	TRUを多く含むため、Puによる被覆管内面侵食が増加	Pu/TRUを用いた被覆管内面耐食試験により、侵食抑制対策を確立
	再処理時に希土類FP(RE:レアアース)の新燃料への混入が増加し、偏在することで燃料健全性劣化の可能性	RE 溶解試験にてRE が均一に混合する条件を把握し、燃料健全性劣化の回避策を立案
再処理	高Zr/TRU含有燃料のRE除染性能の向上が必要	既往研究より再処理フローの調整、マスバランスを評価、新たな陰極材料の適用によりRE 除染性能向上を達成する
	Zr高含有燃料のアクチニド回収実績が少ない	電解精製試験を実施して各種パラメータを評価し、必要な処理性能が得られることを示す
	Zr高含有燃料の廃棄物処理実績が少ない	Zr高含有燃料電解精製廃棄物の処理試験、RE沈殿物固化試験等により、その技術見通しを得る
炉心	既設炉と同程度の炉心安全特性および燃焼期間を満足するTRU 金属燃料炉心設計技術及び炉心仕様の確立が必要	研究代表者らの既往研究を基に設計パラメータの最適化を図り、TRU 金属燃料炉心の最適化核設計手法を開発する
	燃料溶融時の燃料挙動が従来炉心と異なり、過酷事故影響が激しくなる可能性がある	最適炉心を対象とした過酷事故解析を行い、過酷事故収束シナリオの見通しを得る
	ドップラー効果増強のための新たな燃料合金材は断面積の不確かさが大きい	加速器による照射試験により、不足データを取得して断面積精度を向上する

1. はじめに

軽水炉使用済み燃料中のプルトニウム(Pu)とマイナーアクチニド(Minor Actinide : MA)を回収し、高速炉等で燃焼させることで高レベル放射性廃棄物の毒性を約 300 年で天然ウランと同等にできることが知られており、その方策が国内外で検討されている。

本研究は、ウランを含まない MA 入り Pu 金属燃料（以後 TRU 金属燃料）高速炉と乾式再処理を用いた新しい TRU 金属燃料高速炉サイクルによる「核廃棄物燃焼システム」を構築し、Pu と MA の単位出力当たりの燃焼量（燃焼効率）を図 1-1 に示す様に従来の高速炉の約 5 倍に向上させることで、小さい高速炉の容量で高レベル放射性廃棄物の有害度低減を狙うものである。このため、当該システム特有の課題である TRU 金属燃料の健全性、炉心の安全性及び乾式再処理の適用性に関する技術を開発することにより実現の可能性を確認し、次のフェーズの工学的実証、早期実用化への道を開く。

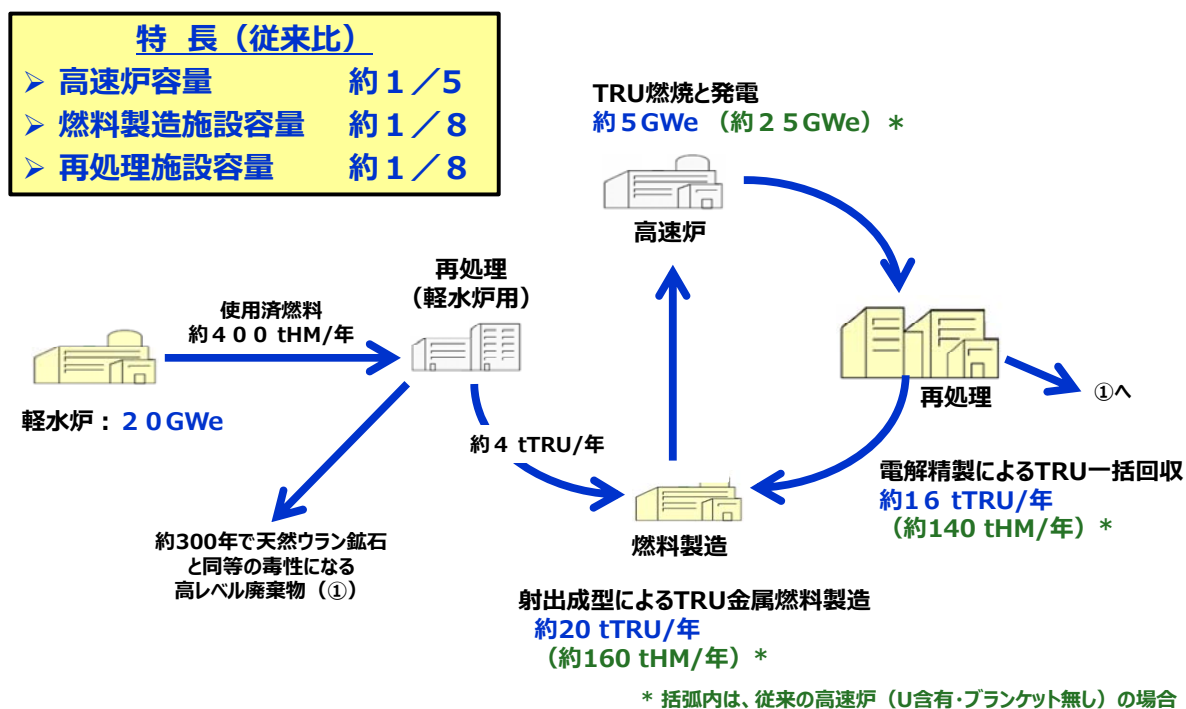


図 1-1 TRU 金属燃料高速炉サイクルによる「核廃棄物燃焼システム」概念と導入効果

2. 業務計画

2.1 全体計画

(1) 燃料開発

① TRU 金属燃料基礎物性評価

TRU 金属燃料の照射試験は米国にて実施されているが、データ数が限られているため、組成の異なる TRU 燃料の照射健全性は、基礎物性を整備した上で評価する必要がある。このため、TRU 金属燃料の相状態の熱力学的な計算により、定常、過渡時挙動評価に必要な融点、熱伝導度等の基礎物性を得る。

② TRU 金属燃料健全性評価

①で求めた基礎物性、機構論的金属燃料挙動解析コード ALFUS、照射試験データ及び③の被覆管内面コーティングの試験結果を活用し、スエリング速度やガス放出率、燃料との化学的相互作用による被覆管侵食量等を検討し、燃料健全性を評価する。本検討における燃料健全性達成目標は燃焼度 30at%以上とする。

③ 被覆管内面侵食抑制技術開発

TRU 金属燃料では燃料—被覆管間の化学的相互作用 (Fuel Cladding Chemical Interaction :FCCI) が増加すると予想され、対策として従来の U 含有 TRU 金属燃料でも検討されている被覆管内面コーティングが考えられる。しかし、TRU 含有率が高い TRU 金属燃料に対する内面コーティングの有効性は確認されていないため、TRU 金属燃料においても FCCI が抑制できることを試験により確認する。具体的には、Pu-Zr 金属及び Pu-MA-Zr 金属を用いた拡散対試験により、内面コーティング材料を通した被覆管材への Pu の有意な拡散移行がないことを確認する。

④ RE 混入量制限値評価

TRU 金属燃料では、再処理時に MA との分離性が比較的悪い希土類核分裂生成物 (Rare Earth element :RE) が回収燃料へ多く混入する可能性がある。その場合、燃料合金材溶解時に RE が均等に混合せずに燃料が不均一になり、燃料の健全性を損なう可能性があるため、RE が均一に混合するための RE 混入制限値を明確にする必要がある。したがって、U-Zr 燃料への RE 溶解試験にて RE が均一に混合する条件を把握する。本検討で目標とする RE の混入量制限値は、燃料ピンの局所的な RE の濃度が平均 RE 濃度の±20%以内とできる RE 量とする。

(2) 再処理開発

① 高除染プロセスの開発

TRU 金属燃料の再処理は従来の乾式再処理プロセスの大部分を踏襲することが可能と考えられるが、項目(1)④で評価した RE 混入量制限を満足するリサイクル燃料を製造するためには、再処理プロセスフロー、特に電解精製の方法を検討することにより RE 除染性能を大幅に向上させることが必須となる。本検討では、(i)電解精製工程における新たな陰極材料の適用、(ii)溶融塩化物浴処理の頻度を高めることによる電解精製条件の改善、という2つの改良に対して、既往研究の分析等から得られるデータを用いて、再処理フローの調整、マスバランスを評価することにより、本概念に必要な高い RE 除

染性能を達成する。

②Zr 高含有燃料の電解精製試験

従来のU含有金属燃料(U-20%Pu-10%Zr)の電解精製においては、運転の妨げとなるZrの溶出を抑えながら高いアクチニドの回収速度と溶解率を得るための条件把握及び周辺プロセス開発が大きな課題であった。Zrを最大40%含有するTRU金属燃料を対象とする本概念では、十分な処理速度と回収率を得るために、電解精製におけるTRUとZrの挙動把握と処理条件検討が重要な課題になる。本検討ではTRU模擬物質としてUを用い、U-Zr高含有燃料を作成した上で電解精製試験を実施することにより、ZrとTRU燃料の分離性能、燃料の溶解率などの重要なパラメータを評価し、必要な性能が得られることを示す。

これと上記①の結果から、Zr高含有(最大40%)TRU金属燃料の乾式再処理において、REに対する必要な除染性能を満足し、TRU回収率99.9%にできる乾式再処理のフローシートを作成する。

③廃棄物処理技術の開発

上記のとおり、TRU金属燃料の電解精製後の陽極にはZr含有率が高い残留物が生ずる。この廃棄物処理に、異なった組成を対象として過去に開発された熔融固化などの技術が適用できるかどうかを確認する必要がある。また、(2)-①に示したREの除染性能を高めるための熔融塩化物浴処理技術について、その性能及び過去に開発された廃棄物固化形態への適合性を見極めることが、プロセス成立性を評価する上で必須である。このため、陽極残留物の熔融固化・浸出試験、塩浴からのREの沈殿挙動、更にはRE沈殿物のゼオライト固化試験を実施し、TRU金属燃料特有の廃棄物処理の技術を開発する。

(3) 炉心開発

①最適化炉心設計手法の開発

TRU金属燃料炉心は、減速材の利用によりドップラー効果を通常炉心並みにできる見通しを得ているが、代案としてドップラー効果を増強できるニオブ(Nb)等を燃料合金材に用いることも考えられる⁽⁴⁾。この場合、減速材を用いないため炉心サイズ縮小などが期待できる。また、減速材を用いた炉心の事前検討では燃焼反応度が運転期間半年で約5% $\delta \rho$ と大きく、改善の余地がある。したがって、ドップラー効果のみならず、燃焼反応度、ボイド反応度、炉心サイズなど炉心性能をバランスさせた炉心仕様の最適化が必要である。しかし、従来、このような多様な特性をバランス良く最適化する炉心設計手法はなく、試行錯誤になっていた。したがって、本検討では、減速材、バーナブルポイズン、燃料合金材等、炉心材料の装荷量や配置と上記炉心特性との相関を炉物理的に明らかにし、TRU金属燃料炉心の最適化核設計手法を開発する。

②TRU金属燃料炉心の構築

①で開発した手法を用いて、最適炉心を構築する。目標とする炉心特性は、ドップラー係数は、U含有TRU金属燃料高速炉並み、ボイド反応度は約0%、運転サイクル長さ1年以上とする。また、構築した炉心は、炉心体系や炉心構成材料が従来炉心と異なる可能性があり、過酷事故時の事象進展が厳しくなる可能性がある。このため、最適炉心を

対象として、起因事象の即発臨境界反響度、反響度挿入要因と挿入量、FCI (Fuel Coolant Interaction)、デブリ冷却性を分析・評価し、過酷事故時の炉内終息の見通しを得る。

③合金材のドップラー効果の測定

ドップラー効果増強が期待できる代替燃料合金材 (Nb 等) の中性子吸収断面積は不確かさが大きく、精度向上が重要である。候補材に加速器で発生させた中性子を照射し、生じる即発 γ 線をエネルギー領域別に中性子共鳴吸収分光法により測定し共鳴吸収領域の積分中性子吸収率を得る。合金候補材の温度を変化させて積分中性子吸収率の温度による変化量を得ることで、候補材のドップラー効果を求める。それによりドップラー効果の評価精度を $\pm 20\%$ に向上させることを目指す。

(4) 「核廃棄物燃焼システム」の検討

TRU 金属燃料高速炉サイクルによる「核廃棄物処理システム」の導入シナリオと主要システム概念を具体化し、実用化に必要な実証試験計画を立案する。

以上の計画を図 2. 1-1 に示す。

題目 「MA入りPu金属燃料高速炉サイクルによる革新的各廃棄物燃焼システムの開発」 年度別全体計画

項目	年度	平成26年度	平成27年度	平成28年度	平成29年度
(1) 燃料開発					
① TRU金属燃料基礎物性評価 (福井大学)		状態図作成・融点評価	比熱・熱伝導度の評価、手法の妥当性検討		物性値精度向上検討
② TRU金属燃料健全性評価 (電力中央研究所)		MA含有金属燃料の挙動の調査・検討	MA含有合金燃料の照射挙動予測解析	挙動解析コードによる評価	燃料健全性評価
③ 被覆管内面侵食抑制技術開発			Pu-Zr燃料拡散対試験	Pu-MA-Zr燃料拡散対試験	
④ RE混入量制限値評価 (東芝/福井大)		溶解度予備試験	溶解度試験	相互溶解、液相分離試験	
(2) 再処理開発					
① 高除染プロセスの開発 (電力中央研究所)		既存のフローシートを用いた電解精製における分離性能向上効果評価	Od代替陰極材料を用いた場合のTRU/希土類FP間分離性能評価	Od代替陰極の工学的課題解決方法調査・検討と適用時のマテリアルバランス評価	評価・試験結果を反映したフローシート、マスバランス、分離性能評価
② Zr高含有燃料の電解精製試験		電解精製溶塩処理量を増やした場合の影響評価	電解精製溶塩からの希土類除去方法の調査・検討	希土類元素沈殿の分離・回収方法の検討	
③ Zr高含有燃料陽極溶解挙動の解析 (電力中央研究所)		原料製造	試験装置製作 電解試験実施	試験及びプロセス検討	試験及び総合評価
④ 廃棄物処理技術の開発 (電力中央研究所)		試験装置製作・据付	U-Zr合金における溶解/拡散パラメータ評価	電解精製条件下における溶解挙動評価	
(3) 炉心開発					
① 最適化炉心設計手法の開発		試験装置製作・据付	予備試験	適切な金属廃棄物溶融固化条件検討	希土類沈殿を含むソーダライト固化試験
② TRU金属燃料炉心の構築		炉特性サーベイ評価	炉心設計手法開発	炉心構築・過酷事故評価	
③ 合金材のドップラー効果の測定 (京都大学)		装置整備・昇温試験	装置整備・予備試験	ドップラー効果測定試験-1	ドップラー効果測定試験-2、評価
(4) 「核廃棄物燃焼システム」の検討				サイクル諸量評価・検討	施設検討・実証試験計画立案
(5) 研究推進		キックオフ	キックオフ 中間レビュー	キックオフ 中間レビュー	キックオフ 中間レビュー
		年度末レビュー	年度末レビュー	年度末レビュー	年度末レビュー
		原子力学会	国際学会 原子力学会	原子力学会 国際学会 原子力学会	国際学会 原子力学会

図 2. 1-1 全体計画スケジュール

3. 業務の実施内容及び成果

3.1 燃料開発

3.1.1 TRU 金属燃料基礎物性評価及び精度向上検討（再委託先：福井大学）（H26～H29）

(1) 概要

U を含まない Zr 高含有 TRU 金属燃料の基礎物性はあまり整備されていないため、燃料照射挙動評価に必要な燃料基礎物性を評価した。

そのため、まず始めに、Pu-Zr 系の合金状態図に基づき、Am、Cm、Np を加えた場合の TRU 燃料の融点—組成の相関を定式化した。また、熱力学的計算の確認、検証の為、Pu-MA-Zr 合金の模擬材として Ce-Zr-Nd 等による材料の溶解試験を実施し、熱力学計算と比較し計算とほぼ一致することを確認した。

更に、U-Zr 燃料や Pu-Zr 燃料の既往データを整理し MA 入り Pu-Zr 燃料の比熱及び熱伝導度を評価し、これらの温度依存性、組織依存性を定式化した。H29 年度にはこれらの物性精度向上として、Pu-40Zr の熱伝導度について燃料の相変化に密度変化を考慮して評価をおこなったが、大きな向上効果は見られなかった。

また、トレードオフ検討の一環として、U を少量添加した場合の燃料の熱伝導度と融点を評価した。その結果、20U-60Pu-20Zr の熱伝導率は Pu-40Zr よりも 2～3 割程度向上する可能性があるが、単純な加成則に基づかない可能性もあり、その場合、両者の熱伝導率は大きな差はない。融点については、U-Pu-Zr を含むデータベースで Pu-Zr の 2 元系のデータにおいて不確かさが大きいデータを除くことで、融点の上昇効果が期待できることから、融点の組成依存性を見直し再定式化を行った。

これらの結果を踏まえ、物性評価（熱伝導率、融点等）の課題と今後のデータ整備の必要性をまとめた。

(2) 融点評価

Pu-Zr 系合金⁽¹⁾をベースとして、MA を添加した場合の融点について、熱力学的計算手法によって評価した。基本的な熱力学的データベースは、U-Pu-Am-Np-Zr-Fe 系データベース⁽²⁾を基本として、Cm のデータを加えたもので実施した。図3.1.1-1に示すような二元系状態図のデータを元にPu-Zrの融点温度評価を行い、Pu-Am-Zr、Pu-Np-Zr、Pu-Cm-Zr 三元系について熱力学的に評価して、融点の定式化を行った。融点の定式化の結果は、下記に示す式で、その係数A、B、Cを表3.1.1-1と表3.1.1-2に示す。

$$T = A + B \times X + C \times X^2$$

T：温度（K） X：添加量（%）

MA（Am、Cm、Np）濃度が低い状態ではPu-Am-Np-Cm-Zrの5元系合金の融点はPu-Zr の組成依存性に比べて影響は小さく、またAmとCm、PuとNpは同等の挙動を示すとして、Pu-Am-Zr3元系合金燃料として計算しても、その差は-2～-1K程度しかなく⁽¹⁾、多元系の融点を簡易的な3元系により計算可能であることがわかった。また、熱力学的計算の確認、検証の為、Pu-MA-Zr合金の模擬材としてCe-Zr-Nd等による材料の溶解試験を実施し、熱力

学計算と比較し計算とほぼ一致することを確認した⁽³⁾。

(3) 燃料熱伝導度、比熱

U-Zr 燃料や Pu-Zr 燃料の既往データを整理し MA 入り Pu-Zr 燃料の熱容量及び熱伝導度を評価し、これらの温度依存性、組成依存性を定式化した⁽³⁾。

熱容量については、相変態のピーク以外の温度領域では、加成則が成り立つとして評価可能である。Pu-40Zr については図 3.1.1-1 に示す状態図は、相変態温度が 848K で結晶構造は fcc 構造から bcc 構造に変化するだけである、したがって、加成則で評価する熱容量は Pu の fcc 構造 (δ 相) と bcc (ϵ 相) の値と、Zr の hcp 構造と bcc 構造の値を該当する温度領域に対して内外挿して用いる。それらの値を図 3.1.1-2 に示す。また相変態のピークは Pu, Zr の挙動から大きくないとして評価した。

熱容量 (C_p) の温度依存性を以下に示す。

Pu-40wt%Zr

$$\begin{aligned} C_p(\text{J/mol}^{-1}\text{K}^{-1}) &= 24.66 + 0.01166 \times T(\text{K}) - 1.007 \times 10^{-6} \times T^2(\text{K}^2) : \text{RT}-902(\text{K}) \\ &= 25.35 + 0.00393 \times T(\text{K}) : 902-1400(\text{K}) \end{aligned}$$

Pu-30wt%Zr

$$\begin{aligned} C_p(\text{J/mol}^{-1}\text{K}^{-1}) &= 25.23 + 0.01164 \times T(\text{K}) - 8.3797 \times 10^{-7} \times T^2(\text{K}^2) : \text{RT}-902(\text{K}) \\ &= 26.76 + 0.00327 \times T(\text{K}) : 902-1400(\text{K}) \end{aligned}$$

熱伝導率は通常熱容量×熱拡散率×密度で評価される。図 3.1.1-4 に各構成元素の文献値を示す⁽⁷⁻¹¹⁾。U に比べると Pu は 1/3 程度の値となっている。また、報告者によって Pu の熱伝導率の挙動が異なる。通常、相転移を持つ物質の熱伝導率では、熱容量にピーク等が表れるがそれとは逆の挙動を熱拡散率が示すことから乗ずることで打ち消し合ってなめらかな温度依存性を示すことが多い。そのため、今回の評価では Kim らの値⁽¹¹⁾を用いた。また、合金の熱伝導率は純粋な金属に対してその平均値よりも下に凸の挙動を示すことが多い。今回は U-Zr 合金の組成依存性を元にして評価を行った。

U-Zr 合金の熱伝導率組成依存性は、測定温度域では一貫して平均値よりも小さな値となっている。差の割合の組成及び温度依存性を踏まえ Pu-40Zr 合金の熱伝導率を評価した。

⁽³⁾ その結果、図 3.1.1-5 に示すように^(10, 11, 12, 13, 14)、Pu-40Zr 合金熱伝導率は室温付近で 5W/mK 程度とあまり大きな値ではないことが示された。

熱伝導率 (K) の温度依存性を以下に示す。

Pu-40wt%Zr

$$K(\text{W/mK}) = 2.7814 + 0.00709 \times T(\text{K}) + 3.86831 \times 10^{-6} \times T^2(\text{K}^2)$$

Pu-30wt%Zr

$$K(\text{W/mK}) = -0.66031 + 0.011586 \times T(\text{K}) + 3.7144 \times 10^{-6} \times T^2(\text{K}^2)$$

T: 温度 (K)

(4) 評価精度向上検討

H29年度にはこれらの物性精度向上として、Pu-40Zrの熱伝導度について燃料の相変化に伴う密度変化を考慮して評価をおこなった。

Pu-Zr合金の密度の温度依存性や相変化に伴う密度変化のデータは見つからなかったため、低温相(FCC)と高温相(BCC)の密度変化がPu単体と同様として評価を試みた。PuではFCC相とBCC相が存在する。Heckerの論文によると、高温BCC相(ϵ 相)の密度は16.51g/cm³、一方、低温FCC相(δ 相)の密度は15.92g/cm³となっており、その比は1.037:1となっている(図3.1.1-6)⁽¹⁵⁾。相変態によって、密度がステップ状に変化し、それにより、熱伝導率=熱容量×熱拡散率×密度で表される熱伝導率が影響を受けるとして評価を行った結果を図3.1.1-7に示すが、密度変化が3.7%と小さいため大きな向上効果は見られなかった。

熱伝導率(K)の温度依存性は以下のように相変態後若干増加する。

$$K(\text{W/m K}) = 8.469 + 0.00868 \times T(\text{K}) + 1.6939 \times 10^{-6} \times T^2(\text{K}^2) \quad (\text{RT} \sim 870 \text{ K})$$

$$K(\text{W/m K}) = 8.783 + 0.00900 \times T(\text{K}) + 1.7567 \times 10^{-6} \times T^2(\text{K}^2) \quad (870 \sim 1500 \text{ K})$$

またトレードオフ検討の一環として、Uを少量添加した場合の燃料の熱伝導度と融点を評価した。

組成による熱伝導率の評価式として、Billoneら⁽¹⁶⁾、尾形氏⁽¹⁷⁾、Kimら⁽¹⁸⁾の物がある。それぞれの式は、

Billoneら

$$k_0 = A + BT + CT^2 \quad \textcircled{1}$$

$$A = 17.5 * [(1 - 2.23Wz) / (1 + 1.61Wz) - 2.62Wp]$$

$$B = 1.54 * 10^{-2} * [(1 + 0.061Wz) / (1 + 1.61Wz) - 0.90 Wp]$$

$$C = 9.38 * 10^{-6} * (1 - 2.70Wp)$$

Wz: Weight Fraction of Zr

Wp: Weight Fraction of Pu

尾形

$$k_0 = 16.309 + 0.02713T - 46.279C_{Zr} + 22.985C_{Zr}^2 - 53.545C_{Pu} \quad \textcircled{2}$$

$$T < 1173 \text{ K}, C_{Zr} < 0.72, C_{Pu} < 0.16 \text{ (atom fraction)}$$

Kimら

$$k_{UPuZr} = (1 - \sqrt{1 - x_{Pu}})k_{Pu} + \sqrt{1 - x_{Pu}}[(1 - x_{Pu})k_{UZr} + x_{Pu}k_{c,Pu}] \quad \textcircled{3}$$

$$k_{c,Pu} = -61.915 - 53.456x_{Pu} + 362.453x_{Pu}^2 + 0.1319T$$

$$-7.851 \times 10^{-5}T^2 - 0.0115x_{Pu}T$$

$$K_{c,Zr} = -102.0 + 200.1x_{Zr} - 109.2x_{Zr}^2 + 9.435 * 10^{-3}T +$$

$$3.459 * 10^{-5}T^2 - 0.02093x_{Zr}T$$

$$k_{Pu} = -4.987 + 4.408 * 10^{-2}T - 1.566 * 10^{-5}T^2$$

C_{Pu} , C_{Zr} : Concentration

$k_{U,Pu,Zr}$, k_{Pu} , $k_{U,Zr}$, k_{UZr} : Thermal Conductivity

x_U , x_{Zr} , x_{Pu} : Weight Fraction

と表されている。どの評価式も U-Zr 合金が主で Pu 含有量が少ないデータを用いている。

60Pu-20U-20Zr の組成について、式①～③を用いて評価した結果を図 3.1.1-8 に示す(破線)。三者で全く異なる結果となり、式②や式③では値がマイナスになるなど、どの評価式も適用できないと判断した。もともと、Pu 含有量の少ない試料の結果を用いて算出した評価式であるためであろう。

以上の結果から、2016 年度の評価手法に倣って U 含有 Pu-Zr 合金の熱伝導率評価を行った。U-Pu-Zr 合金にはいくつかの相転移があるが、図 3.1.1-9 に示す様に熱伝導率には相変態による影響は現れていないので、60Pu-20U-20Zr も同様に一樣な熱伝導率変化を示すとして評価した。Pu-Zr 合金へ U を加えた場合、Pu と U の質量がほぼ同じであること、2 元合金において既に異種元素の混合による熱伝導率低下の影響が最大になっていることから、新たに U を加えても混合による熱伝導率のさらなる低下はないものとした。すなわち U-Zr 合金の熱伝導率と Pu-Zr 合金熱伝導率が混合比によって変化する単純な加算則が成り立つとしている。その結果を図 3.1.1-10 に示す(補正前:破線)。

しかしながら、ANL の結果によれば、U-Zr 合金に Pu が追加されると熱伝導率の低下が起こることが報告されている⁽¹⁹⁾。その低下割合が Pu-Zr 合金へ U が追加された場合の低下割合と同様と仮定した場合の熱伝導率も評価し、図 3.1.1-10 に示す(補正後:実線)併せて 70Pu-10U-20Zr 合金の熱伝導率も同様に評価した。添加割合の評価には ANL の式による値と今回の補正前で評価した U-Zr 合金+0~20wt%Pu の値を元に計算した。その比較を図 3.1.1-11 に示す。ほぼ同様の値としてこの図より 3 元添加による減少割合を算出した。

以前評価した Pu-40Zr の熱伝導率に比べると、補正前でおおよそ 10W/m K 程度熱伝導率が高いことが示されたが、補正後ではほとんど変わらない値となることが示された。このことから、熱伝導率の良い U-Zr 合金を添加することで熱伝導率の向上が見込めるが、場合によってはほとんど変わらないという場合もある。

今回評価した 60Pu-20U-20Zr 合金の熱伝導率の式は以下の通りとなった。

補正前

$$K(\text{W/m K})=0.21+0.02945 \times T(\text{K})-9.631 \times 10^{-6} \times T^2(\text{K}^2)+1.268 \times 10^{-9} \times T^3(\text{K}^3)$$

(RT~mp)

補正後

$$K(\text{W/m K})=0.15+0.02102 \times T(\text{K})-6.875 \times 10^{-6} \times T^2(\text{K}^2)+9.053 \times 10^{-10} \times T^3(\text{K}^3)$$

(RT~mp)

70Pu-10U-20Zr 合金の熱伝導率の式(補正後)は

$$K(\text{W/m K})=4.12+0.02444 \times T(\text{K})-2.633 \times 10^{-6} \times T^2(\text{K}^2)+1.923 \times 10^{-10} \times T^3(\text{K}^3)$$

(RT~mp)

となった。

U の熱伝導率が大きい効果によって、20U-60Pu-20Zr の熱伝導率は Pu-40Zr よりも 2~3 割程度向上する可能性があるが、単純な加成則に基づかない可能性もあり、混合効果による熱伝導率の低下を考慮すると両者の熱伝導率に大きな差はない可能性がある。混合による熱伝導率低下効果については、いくつかの組成で実測する必要がある。

融点については、U-Pu-Zr を含むデータベースで Pu-Zr の 2 元系のデータにおいて不確かさが大きいデータ (図 3.1.1-1 の固相線、液相線の破線近傍のデータ) を除くことで、融点の上昇効果が期待できることから、融点の組成依存性を見直し評価を行った。図 3.1.1-12 に Pu-20Zr と U-20Zr の擬二元系状態図評価結果を示す。高温相は BCC 単相だが低温相は複雑な関係になっている。この図より、(Pu, U)-20Zr 合金の液相線及び固相線温度の式を評価した。この U の添加量での評価から、固相線は U が 0-20%では、ほぼ変化がないことが示されている。この為、Pu-20Zr の融点とほぼ等しいと考えられる。

U をパラメータとした固相、液相の式は $W_U = U$ の質量割合 (U 質量 / (Pu 質量 + U 質量 + Zr 質量)) として

液相線温度

$$T_L(K) = 1530.5 + 38507 \times W_U - 77.635 \times W_U^2$$

固相線温度は、

$$T_S(K) = 1321.1 - 0.38449 \times W_U + 0.06485 \times W_U^2$$

となった。

この評価データの見直しにより、Pu-40Zr の融点を再評価した結果を示す。この数値は、データを見直さない場合の H26 年度の評価値は Pu-40Zr は固相温度は、1478K、Pu-30Zr では 1351K より外挿して 1269K であるが、上記の式より 1321K と約 50°C 高くなる。

また、(Pu, U)-40Zr の融点を再評価データを用いて評価すると、図 3.1.1-13 のようになり、その液相線及び固相線の U 濃度依存式は以下のような式となった。

液相線温度

$$T_L(K) = 1758.4 + 3.9156 \times W_U - 0.01219 \times W_U^2$$

固相線温度

$$T_S(K) = 1608.9 + 1.0726 \times W_U - 0.06434 \times W_U^2$$

となった。融点は(2)項で示した値よりおよそ 150°C~130°C 程度上昇する。

(5) 今後の開発課題

以上の結果を踏まえ、物性評価 (熱伝導率、融点等) の課題と今後のデータ整備の必要性を表 3.1.1-3 及び表 3.1.1-4 にまとめた。

TRU-Zr 燃料熱伝導度は、Pu-Zr 2 元系では、Zr の添加による伝導度の低下についての確認データ (1 点程度) を取得することが必要である。

U を 30% 程度までの添加割合では、現状では、Pu 燃料への U の添加による熱伝導度の低下効果についてのデータがない為に、不確かさが大きくなっている。本領域の熱伝導度の評価には U を 0~30% 程度でパラメトリックなデータの取得が必要である。

融点については、不確かなデータを削除することで、50–100°C程度の TRU-Zr 燃料の融点の上昇が期待できる。これについては、1 点程度データを取得して確認することが重要である。

(6) まとめ

U を含まない Zr 高含有 TRU 金属燃料の基礎物性はあまり整備されていないため、燃料照射挙動評価に必要な燃料基礎物性を評価した。

そのためまず始めに、Pu-Zr 系の合金状態図に基づき、Am、Cm、Np を加えた場合の TRU 燃料の融点—組成の相関を定式化した。また熱力学的計算の確認、検証の為、Pu-MA-Zr 合金の模擬材として Ce-Zr-Nd 等による材料の溶解試験を実施し、熱力学計算と比較し計算とほぼ一致することを確認した。

更に、U-Zr 燃料や Pu-Zr 燃料の既往データを整理し MA 入り Pu-Zr 燃料の比熱及び熱伝導度を評価し、これらの温度依存性、組織依存性を定式化した。H29 年度にはこれらの物性精度向上として、Pu-40Zr の熱伝導度について燃料の相変化に密度変化を考慮して評価をおこなったが、大きな向上効果は見られなかった。

また、トレードオフ検討の一環として、U を少量添加した場合の燃料の熱伝導度と融点を評価した。その結果、20U-60Pu-20Zr の熱伝導率は Pu-40Zr よりも 2~3 割程度向上する可能性があるが、単純な加算則に基づかない可能性もあり、その場合、両者の熱伝導率は大きな差はない。融点については、U-Pu-Zr を含むデータベースで Pu-Zr の 2 元系のデータにおいて不確かさが大きいデータを除くことで、融点の上昇効果が期待できることから、融点の組成依存性を見直し再定式化を行った。

これらの結果を踏まえ、物性評価（熱伝導率、融点等）の課題と今後のデータ整備の必要性をまとめた。

参考文献

- (1) 原子力システム研究開発事業「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」平成 26 年度成果報告書(2015)
- (2) 名古屋大学、原子力システム研究開発事業「TRU 燃焼のための合金燃料設計と製造の基盤技術の開発」平成 18 年度成果報告書 (2007)
- (3) 原子力システム研究開発事業「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」平成 27 年度成果報告書(2016)
- (4) Y. Takahashi et al., *J. Nucl. Mater.*, 167 (1989) 147.
- (5) R. J. M. Konings and O. Banes, *J. Phys. Chem. Ref. Data* 39 (2010) 043102.
- (6) E. H. P. Cordfunke, “Thermochemical Data for Reactor Materials and Fission Products”, North-Holland (1990)
- (7) L. R. Still and S. Legvold, *Phys. Rev.*, 137 (1965) A1139.
- (8) Y. S. Touloukian et al., “Thermophysical Properties of Matter”, Vol. 1 IFI/Plenum (1975).

- (9) G. Koch, "Gmelin Handbuch der Anorganische Chemie. B1 Transurane", Springer Verlag (1976)
- (10) J. K. Fink and L. Leibowitz, *J. Nucl. Mater.*, 226 (1995) 44.
- (11) Y. S. Kim et al., *J. Nucl. Mater.*, 445 (2014) 272.
- (12) Y. Takahashi et al., *J. Nucl. Mater.*, 154 (1988) 141
- (13) W. J. Carmack et al., *J. Nucl. Mater.*, 392 (2009) 139.
- (14) M. K. Mayer et al. Proc. ICONE11 (2003) 36499.
- (15) S. S. Hecker, M. Stan, *J. Nucl. Mater.*, 383 (2008) 112-118.
- (16) M. C. Billone, Y. Y. Liu, E. E. Gruber, T. H. Hughes, J. M. Kramer, Proc. of the Int. Conf. on Reliable Fuels for Liquid Metal Reactors, Tucson, AZ, 7-11 Sept, American Nuclear Society, La Grange Park, IL (1986)
- (17) T. Ogata, *J. Nucl. Mater.*, 445 (2014) 272-280.
- (18) Y. S. Kim, T. W. Cho, D. S. Shon, *J. Nucl. Mater.*, 445 (2014) 272.
- (19) Argonne National Laboratory, Reactor Development Progress Report, ANL-7230 (1966).
- (20) L. R. Kelman, H. Savage, C. M. Walter, B. Blumenthal, R. J. Dunworth, H. V. Rhude, Proceeding of the 3rd International Conference on Plutonium, London, 22-26 Nov. 1965; Barnes and Noble: New York, 1967; p 458.

表 3. 1. 1-1 融点（固相線温度）組成依存性のパラメーター

	A	B×X	C×X ²
Am-30Zr	1351. 1	2. 44871	-0. 00935
Am-35Zr	1418. 7	2. 04259	-0. 00724
Am-40Zr	1478. 3	1. 69839	-0. 00568
Cm-30Zr	1351. 1	4. 26055	-0. 01017
Cm-35Zr	1418. 7	3. 83154	-0. 00854
Cm-40Zr	1478. 2	3. 46549	-0. 00727
Np-30Zr	1351. 1	-0. 48668	2. 40798×10 ⁻⁴
Np-35Zr	1418. 7	-0. 48606	1. 98313×10 ⁻⁴
Np-40Zr	1478. 3	-0. 47822	1. 61459×10 ⁻⁴

表 3. 1. 1-2 融点（液相線温度）組成依存性のパラメーター

	A	B×X
Am-30Zr	1506. 4	0. 86818
Am-35Zr	1557. 1	0. 7000
Am-40Zr	1600. 2	0. 57136
Cm-30Zr	1506. 4	2. 13409
Cm-35Zr	1557. 1	1. 88364
Cm-40Zr	1600. 2	1. 68545
Np-30Zr	1506. 4	-0. 2750
Np-35Zr	1557. 1	-0. 26182
Np-40Zr	1600. 2	-0. 25409

表 3. 1. 1-3 U-Pu-Zr の熱伝導度のデータベース整理

合金系	実測データ	課題	データの取得の必要性とデータ内容
U : 未添加 Pu : 90%~60% Zr : >10% MA : <20%	無	○Pu-Zr での Zr 添加効果は不明 ○MA の影響は小さいと推定されるが影響を確認することが必要	○Pu-40Zr など低減効果を確認のためのデータ (代表組成で 1 点でも測定データがあるとより確実。直接熱伝導率を測定することが出来ると良いが、電気伝導率測定から再出することでも可。) MA 入りの相 (3 元系以上) の挙動の確認データ (代表組成で 1 点でも測定データがあるとより確実。)
U : 添加 Pu : >40% Zr : >10% MA : <20%	無	○Pu-Zr に U を少量 (20% 程度) 混ぜた時の低減効果が不明	○20U-60Pu-20Zr 等確認のためのデータ取得
U : 添加 Pu : <40 Zr : <10% MA : <20%	有	40%Pu は Fs データで Zr 添加のデータではない。 Fitting 式の適用範囲は Pu30%程度まで	○高 Pu 領域での 3 元合金の熱伝導度の取得 (代表組成で 1 点でも測定データがあるとより確実。)

表 3. 1. 1-4 U-Pu-Zr の融点の整理

合金系	実測データ	課題	データの取得の必要性とデータ内容
U : 未添加 Pu : 90%~60% Zr : >10% MA : <20%	無	○ ベースデータの不確かさ評価	代表組成で 1 点でも測定データがあるとより確実。 DTA (熱測定) で融点 (固相線温度、液相線温度) 測定が必要。
U : 添加 Pu : >40% Zr : >10% MA : <20%	無	同上	同上
U : 添加 Pu : <40 Zr : <10% MA : <20%	有	同上	同上

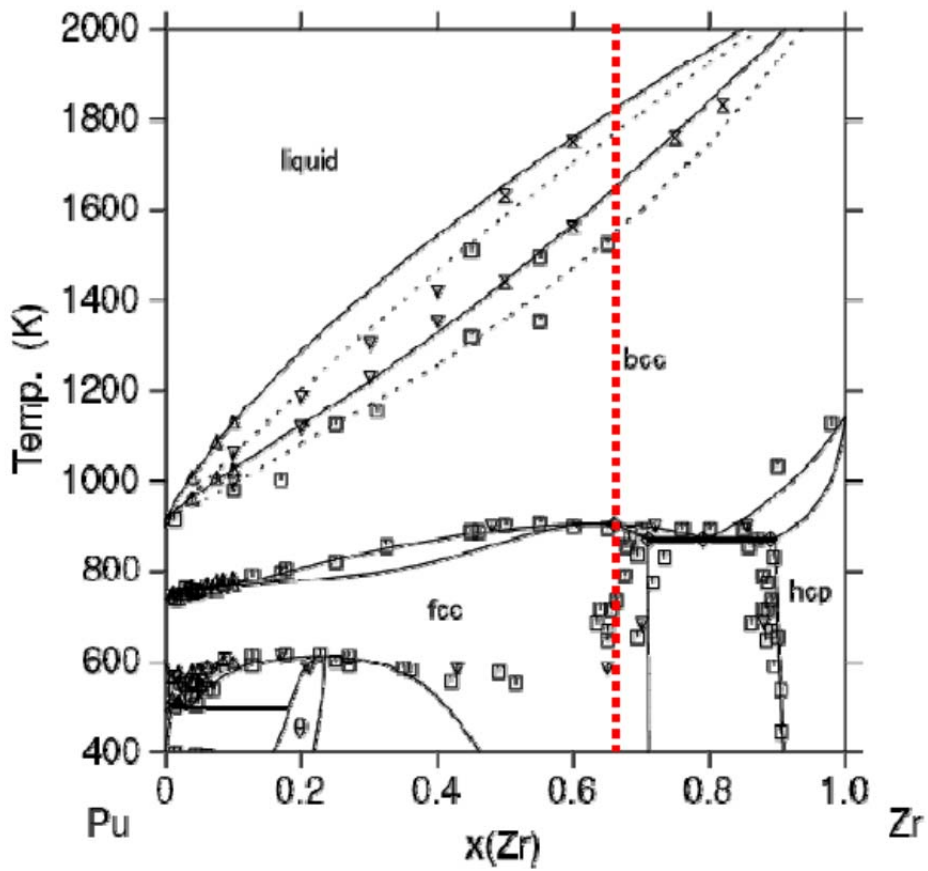


図 3. 1. 1-1 Pu-Zr 合金系状態図 (赤線は Pu-40Zr の組成)

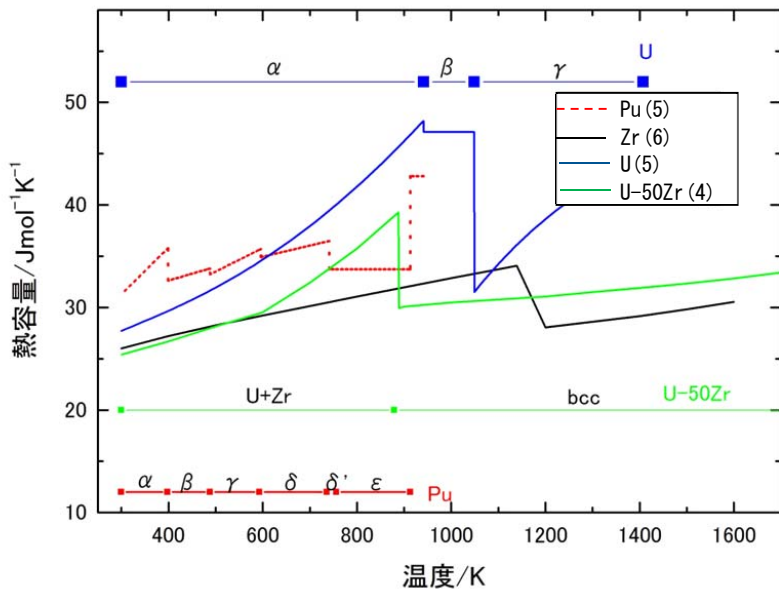


図 3. 1. 1-2 金属及び U-Zr 合金の熱容量測定結果 (まとめ)

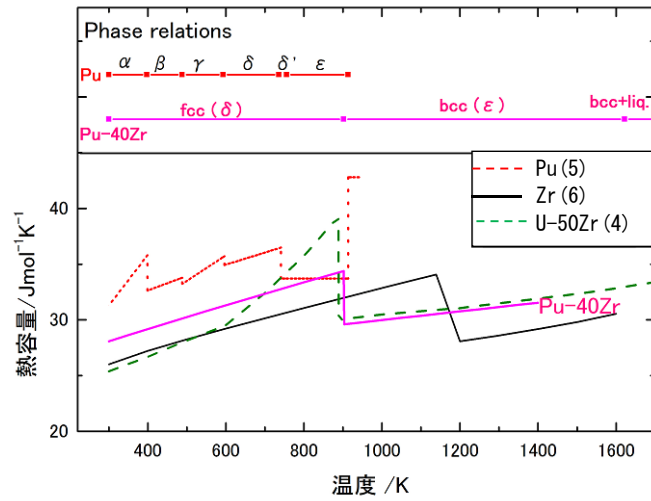


図 3.1.1-3 Pu-Zr 合金熱容量評価結果

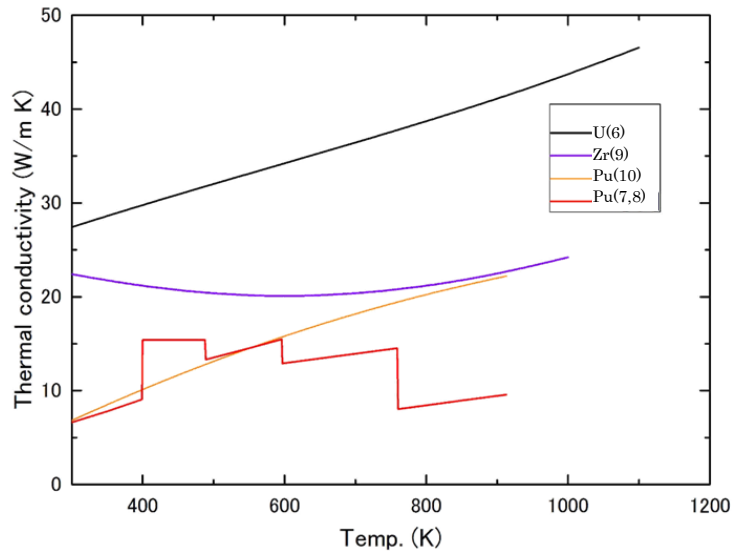


図 3.1.1-4 各種金属の熱伝導率

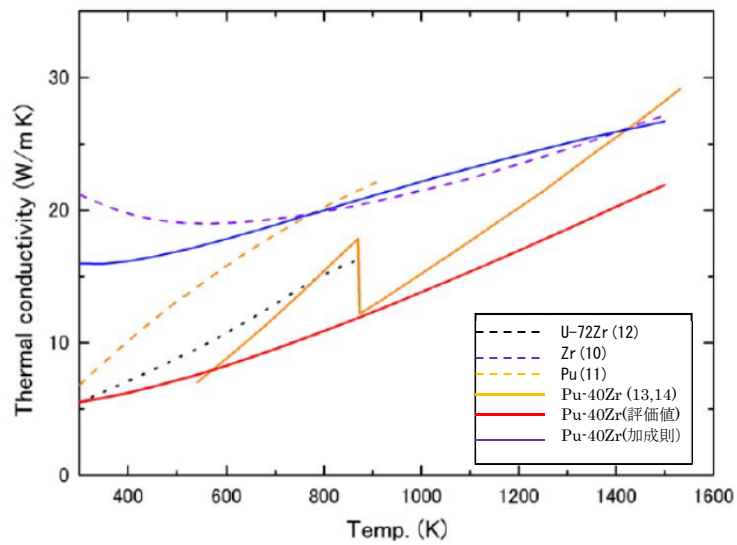


図 3.1.1-5 Pu-Zr 合金の熱伝導率評価結果

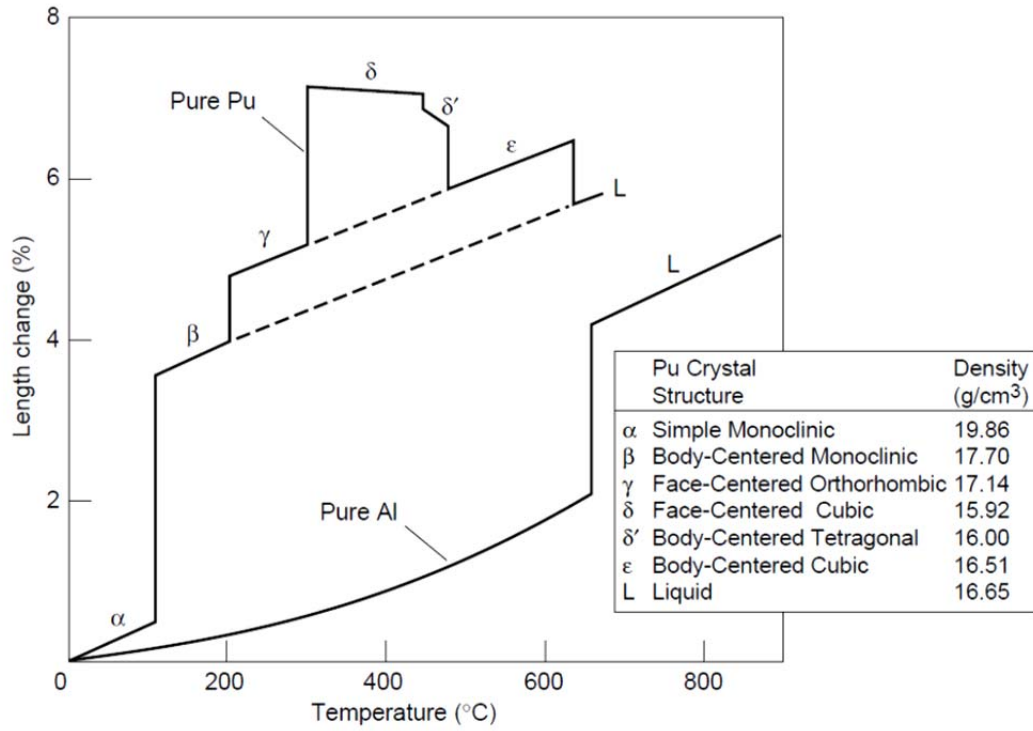


図 3. 1. 1-6 Pu の密度変化(Hecker による)

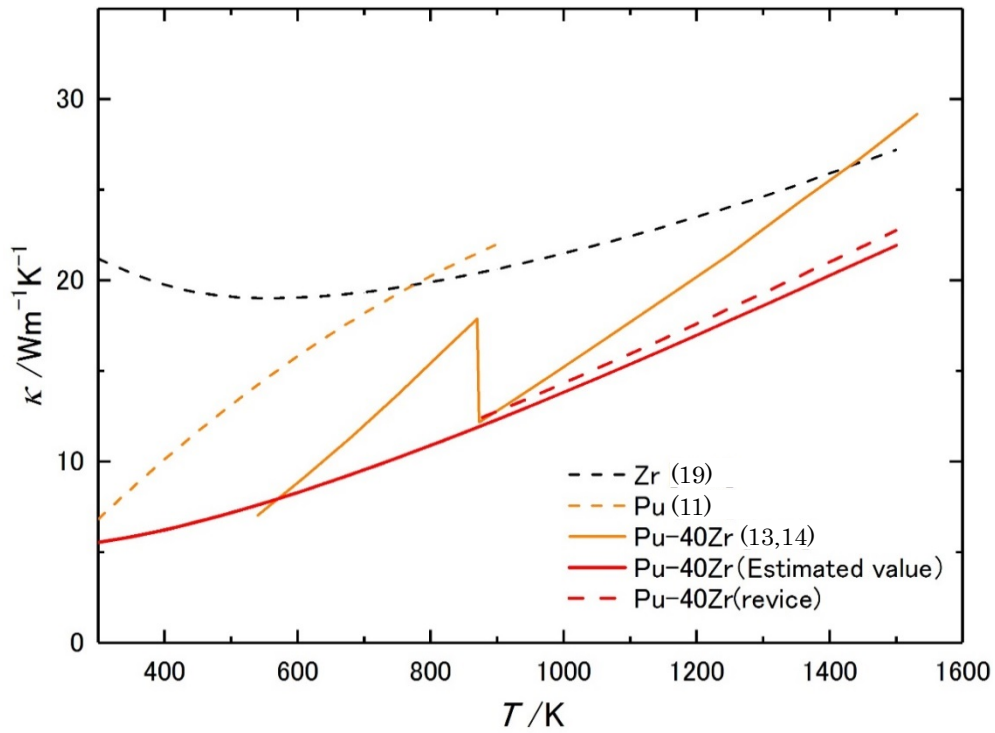


図 3. 1. 1-7 Pu-40Zr の熱伝導率(赤色破線が密度補正後)

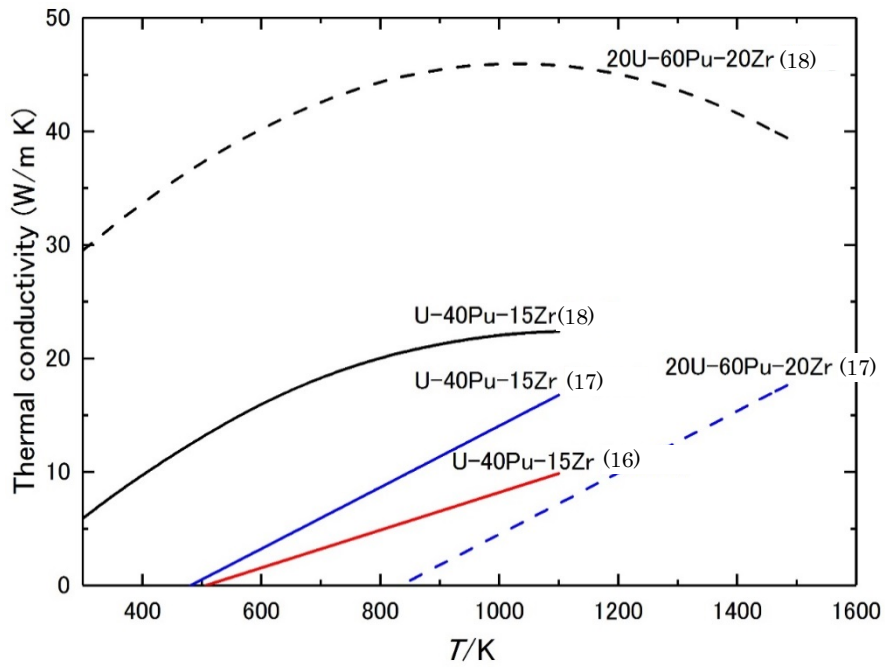


図 3. 1. 1-8 評価式による熱伝導率の値

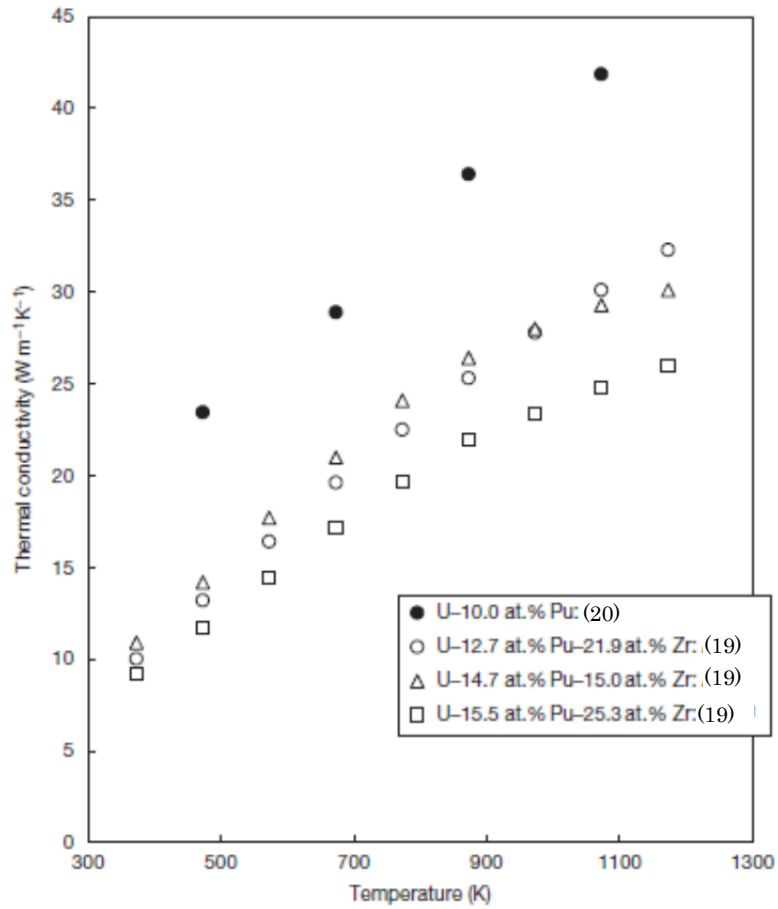


図 3. 1. 1-9 U-Pu-Zr 合金の熱伝導率

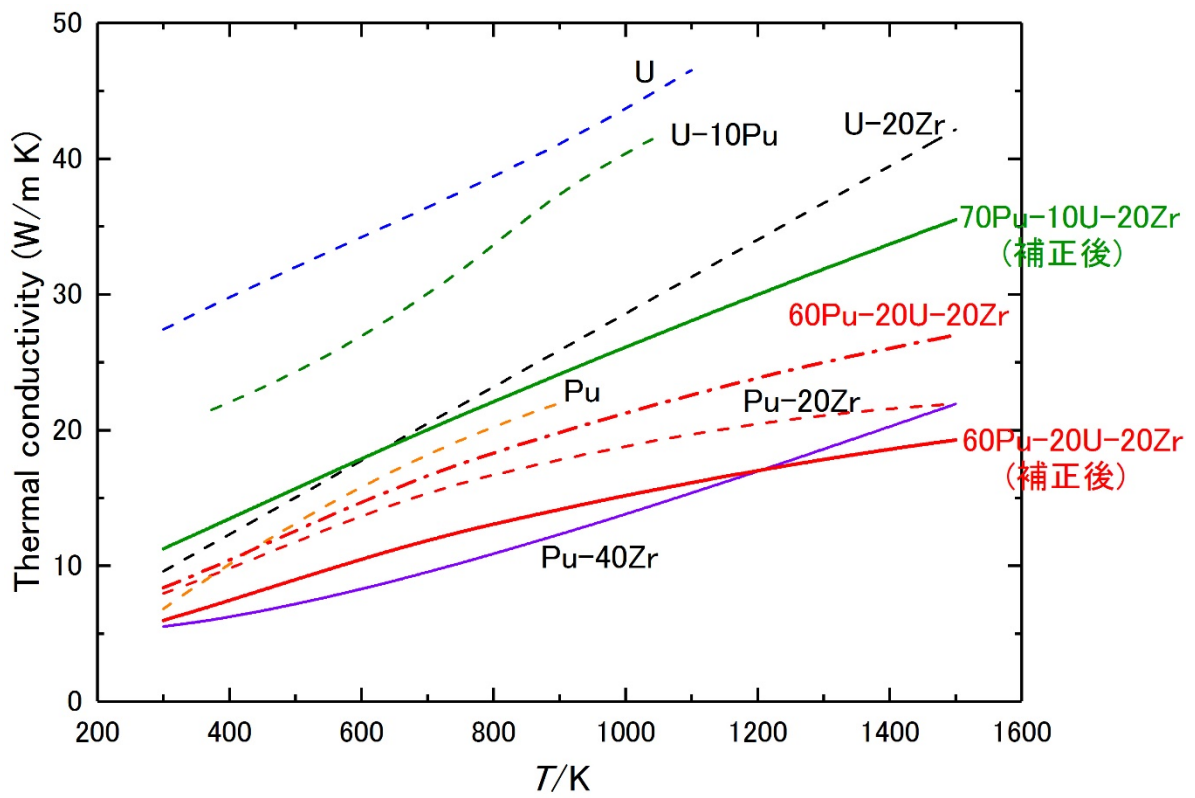


図 3.1.1-10 Pu-U-Zr 合金熱伝導評価結果

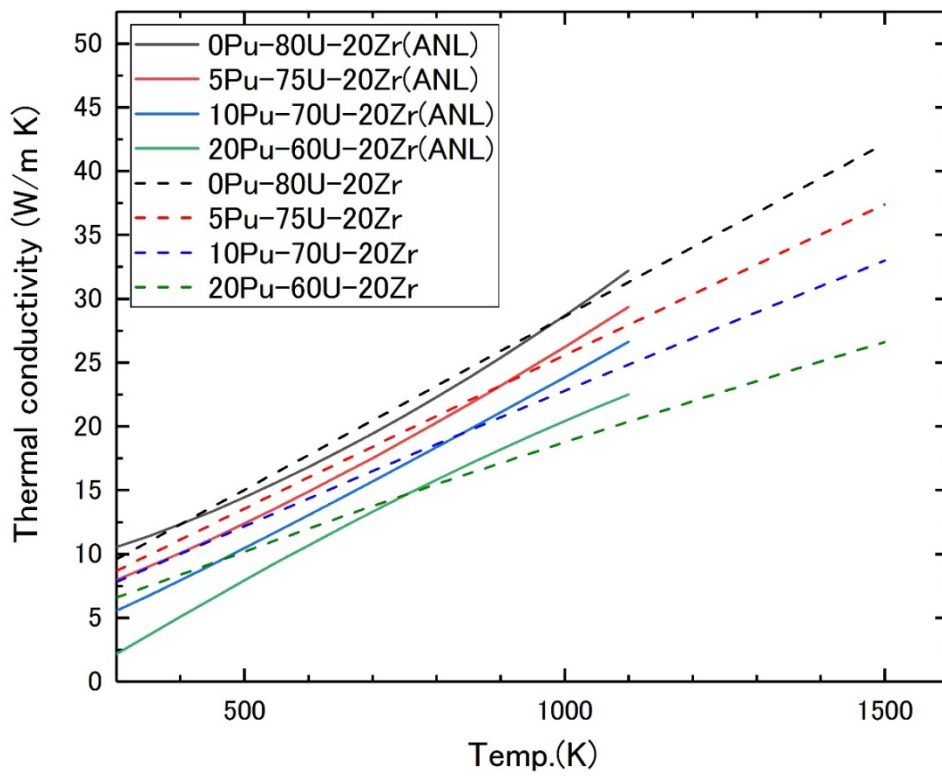


図 3.1.1-11 U-rich 領域における ANL 結果との比較

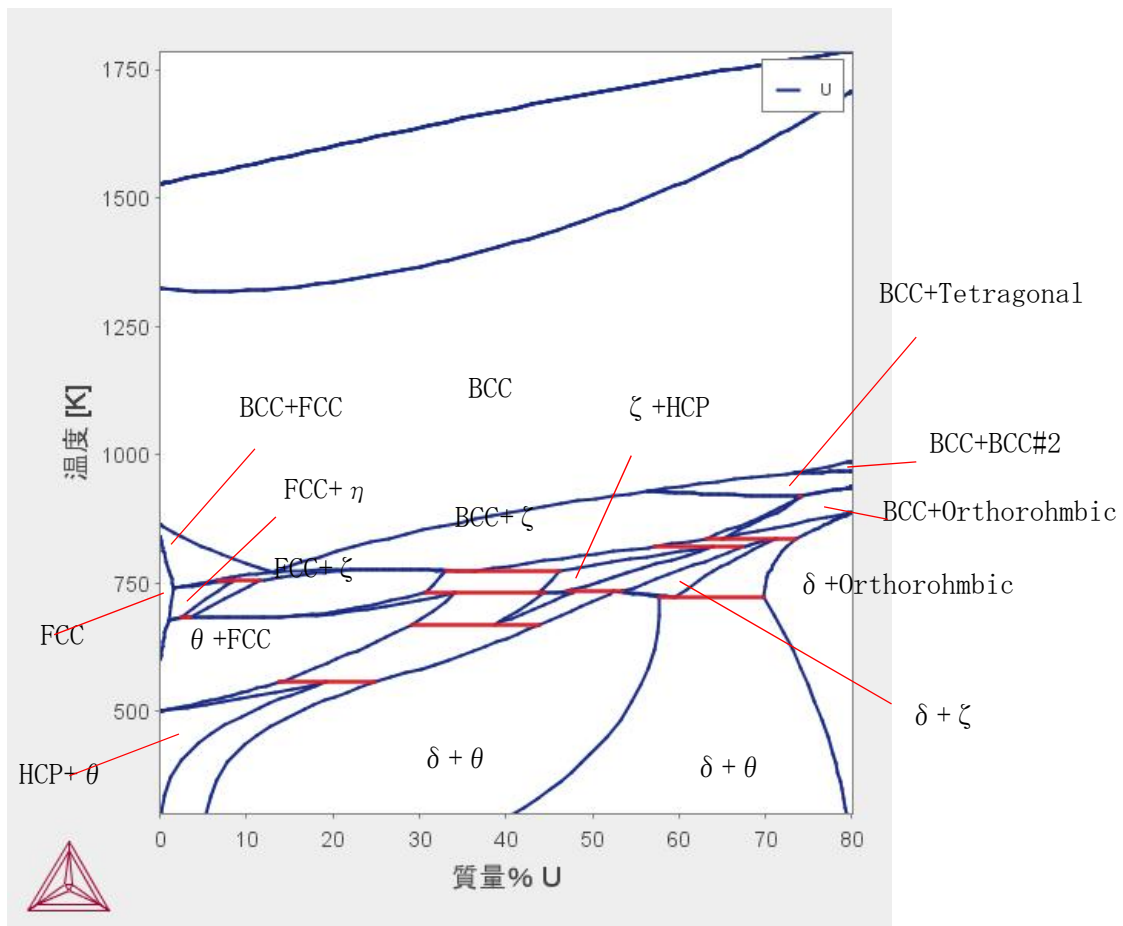


图 3.1.1-12 Pu-20Zr-U-20Zr 擬二元系狀態圖

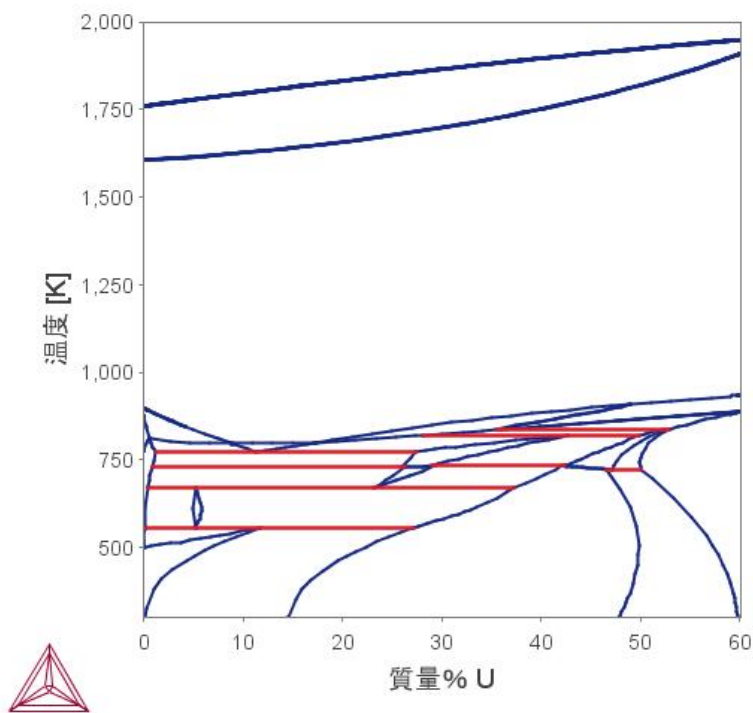


图 3.1.1-13 Pu-40Zr-U-40Zr 擬二元系狀態圖

3.1.2 TRU 金属燃料健全性評価 (再委託先 電力中央研究所) (H26~H29)

(1) 概要⁽¹⁾⁻⁽³⁾

U を含まない TRU 金属燃料の健全性評価に先立ち、MA 添加金属燃料の製造や照射試験に関する既往知見⁽⁴⁾⁻⁽¹⁴⁾を調査した。その結果、U を含む燃料に比較して、照射による FP ガスの放出にやや遅れが見られることや希土類元素 (RE) や MA の含有率が高いために、燃料—被覆管間の化学的相互作用 (Fuel Cladding Chemical Interaction:FCCI) による被覆管減肉が厳しくなる可能性があること、Pu 富化度が高いことによる被覆管境界における液相形成温度の低下が懸念されることが明らかになった。FCCI が発生した場合、被覆管内面の相互作用領域の強度が低下する為、燃料ピンの内圧による被覆管のクリープ損傷が増大し燃料寿命を低下させることから重要な現象である。

これら調査結果や 3.1.1 項の燃料基礎物性評価結果、3.1.3 項の被覆管内面腐食抑制対策試験結果等に基づき、TRU-40Zr の FP ガス放出率、燃料物性を考慮するとともに被覆管内面に腐食抑制バリア材⁽¹⁵⁾⁻⁽¹⁷⁾を設けることを想定して、金属燃料照射挙動解析コード ALFUS⁽¹⁸⁾にて燃料健全性を評価した。3.3.2 項で H28 年度に構築した炉心の燃料を評価した結果、TRU-40Zr 燃料による被覆管応力やプレナムガス圧による被覆管の累積損傷和 (Cumulative Damage Fraction:CDF) は 0.05 未満であり、基準値を十分下回ることが分かった。

また、H28 年度構築炉心に対する燃料設計の変化に対する裕度を確認するため、バリア材の厚さ、燃料スラグ径の不確かさ、被覆管温度履歴の変化、燃焼度の変化、及び燃料組成の変化をそれぞれ考慮した燃料挙動解析を ALFUS によって行い、照射健全性に与える影響を評価した。

その結果、平成 28 年度に設定した燃料仕様に対し、バリア材厚さで 50-150 μ m の変化、燃料スラグの製作公差として 0.10mm の不確かさ、照射末期の被覆管温度で 20℃の上昇または取出燃焼度で 10%の増加を想定しても被覆管の累積損傷和(CDF)や外径変化量の観点からは、燃料の照射健全性は確保される見通しとなった。また、Pu 装荷量を一致させたまま、少量の U を添加した 20U-TRU-20Zr においても、照射健全性は確保できる結果が得られ、燃料及び炉心設計仕様の変更に対する柔軟性を確認した。

(2) 既往知見の調査^{(1), (2)}

①TRU 金属燃料及び MA 添加金属燃料の開発状況

TRU 金属燃料や MA 添加金属燃料に関するこれまでの開発例として、米国の EBR-II で照射された X501 試験⁽⁵⁾、日・欧共同で Phenix 炉において照射された METAPHIX 試験⁽⁷⁾、米国による AFC 照射試験⁽⁷⁾、及び米・仏・欧で共同実施されている FUTURIX 試験⁽⁸⁾が挙げられる。これらの各試験の概要を表 3.1.2-1 にまとめる。

表 3.1.2-1 U を含まない TRU 金属燃料や U を含む MA 添加金属燃料の照射試験条件

照射試験	燃料組成 (wt%)	被覆管材	燃料長 (mm)	燃料ピン 外径 (mm)	最大 線出力 (W/cm)	被覆管 最高温度 (°C)	最大 燃焼度 (at.%HM)	実施 機関	
X501	U-20.2Pu-1.2Am-1.3Np-9.1Zr	HT-9	343	5.84	450	540	7.6	ANL INL	
METAPHIX	U-19Pu-10Zr U-19Pu-2MA-2RE-10Zr U-19Pu-5MA-10Zr U-19Pu-5MA-5RE-10Zr (MA: 60Np-30Am-10Cm) (RE: 10Y-10Ce-70Nd-10Gd)	15-15Ti	485 (100 ¹)	6.55	350	572	2.1-2.5 5.4-6.0 ~10 ³	電中研 ITU	
AFCシリーズ	AFC-1B AFC-1D	48Pu-12Am-40Zr 40Pu-10Am-10Np-40Zr 40Pu-60Zr 60Pu-40Zr	HT-9	38.1 25.4 ²	5.84	300	550 (設計限界)	3.1-3.5 ⁴ 16-27 ⁵	INL
	AFC-1G	50Pu-10Np-40Zr	HT-9	38.1	5.84	300	14-20	INL	
	AFC-1F AFC-1H	U-29Pu-4Am-2Np-30Zr U-34Pu-4Am-2Np-20Zr U-25Pu-3Am-2Np-40Zr U-28Pu-7Am-30Zr	HT-9	38.1	5.84	330	550 (設計限界)	2.8-5.0 ⁶ 17-30 ⁷	INL
	AFC-2A AFC-2B	U-20Pu-3Am-2Np-15Zr U-20Pu-3Am-2Np-1.0RE-15Zr U-20Pu-3Am-2Np-1.5RE-15Zr U-30Pu-5Am-3Np-20Zr U-30Pu-5Am-3Np-1.0RE-20Zr U-30Pu-5Am-3Np-1.5RE-20Zr (RE: 6La-16Pr-25Ce-53Nd)	HT-9	38.1	5.84	350	550 (設計限界)	7 ⁸ 11 ⁹	INL
	FUTURIX	48Pu-12Am-40Zr U-29Pu-4Am-2Np-30Zr	15-15Ti			272		7 ³	INL ¹⁰ CEA ITU

1: MA 添加合金セグメントの長さ

2: 60Pu-40Zr 燃料の値

3: 解析による評価値

4: AFC-1B の値

5: AFC-1D の値

6: AFC-1F の値

7: AFC-1H の値

8: AFC-2A の値 (燃料製造時のスミヤ密度の誤設定により破損発生により PIE を中断)

9: AFC-2B の値 (燃料製造時のスミヤ密度の誤設定により破損発生により照射試験を中断)

10: FUTURIX で金属燃料に関する試験は INL が実施

ANL: アルゴン国立研究所

INL: アイダホ国立研究所

ITU: 超ウラン元素研究所

CEA: フランス原子力・代替エネルギー庁

② TRU 金属燃料や MA 添加金属燃料の主な製造実績

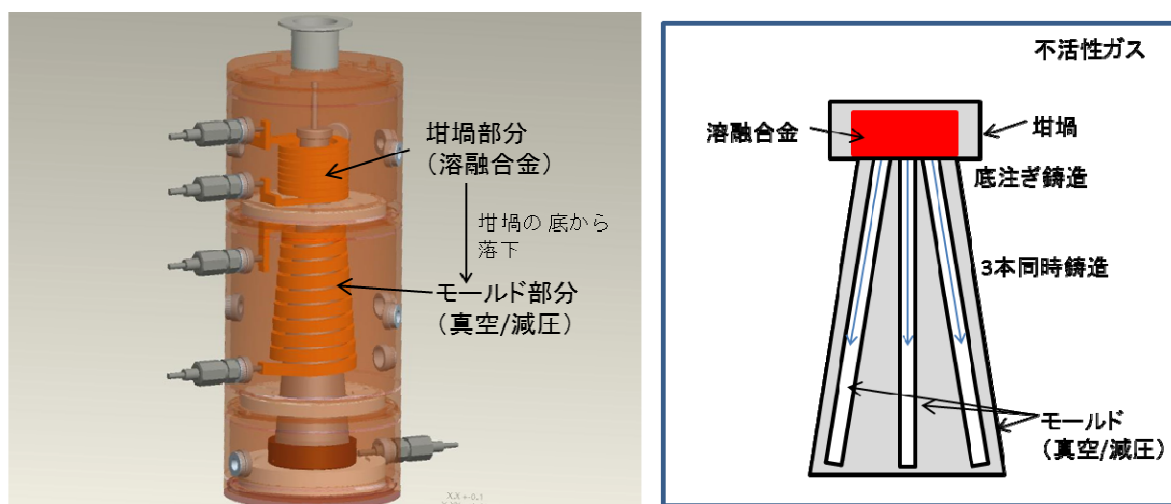
上述の各照射試験を実施するにあたって、それぞれ TRU 金属燃料や MA 添加金属燃料の製造開発が行われているが、いずれも実験室レベルの小規模体系に限られている。

TRU 金属燃料や MA 添加金属燃料の製造には、希土類元素 (RE) の混合性や Am の揮発が課題に挙げられる。特に、METAPHIX 燃料の製造試験結果からは、RE の混入率を数 wt% 以下

に抑えることが望まれ、高純度 TRU の回収を可能とする高除染プロセスの開発が必要と考えられる。

燃料製造中の Am の揮発を抑制することを目的に、METAPHIX や AFC 及び FUTURIX の各試験用燃料の製造⁽⁴⁾、⁽¹¹⁾には、通常の射出鑄造法に代わってアーク溶解による、少量の燃料合金を短時間に鑄込む方法が適用された。

更に、将来の工学化を目指した MA 含有金属燃料の製造法が、米国 INL を中心に検討されている⁽¹¹⁾。図 3.1.2-1 にベンチスケール鑄造システム (BCS) の外観とその鑄造の仕組みを示す。密閉した坩堝内で燃料合金を溶融させた後、坩堝の底から溶融金属を落下させてモールドに鑄込む「底注ぎ式の差圧鑄造法」で Am の揮発を防ぎながら均質な MA 装荷合金を鑄造することが可能となる。1 度の鑄造で 60 本のスラグ (50 kg) を同時に製造する工学スケール鑄造システム (ECS) も設計されている。



(a) BCS の外観

(b) BCS による鑄造の仕組み

図 3.1.2-1 Am の揮発を抑制する新型燃料製造装置 (BCS) の外観及び鑄造の仕組み

③被覆管侵食対策

TRU 金属燃料の照射健全性に大きな影響を与える可能性のある挙動の一つに被覆管との化学的相互作用が挙げられる。このような燃料と被覆管との化学的相互作用を抑制させるための方策として、被覆管内面に化学的に安定なバリア材を設けることが提案されている。これまでに Cr、V、Zr、Nb、Ti、Ta、Mo などの金属ライナーによる燃料合金 (U-Zr、U-Zr-Ce、U-Pu-Zr-Nd-Mo-Ru) と被覆管材の拡散対試験などが行われており、炉外での拡散対試験では、Cr や V ライナーによるバリア効果に期待が持てると高く評価されている⁽¹⁵⁾~⁽¹⁷⁾。しかしながら、U を含まない TRU 合金燃料に対する効果についての報告例は見当たらない。Pu や Np と Cr、V の二元系状態図⁽¹⁹⁾に見られるように、それぞれの共晶温度はおおよそ 500°C~625°C と想定される被覆管最高温度よりも低く、バリア材との間に液相が生じる可能性もあり、TRU 合金への適用性を確認する必要があると言える。

④TRU 金属燃料及び MA 添加金属燃料の照射後試験

通常の金属燃料ピンの場合、およそ 20at. %HM の高燃焼度まで燃料合金と被覆管の接触による機械的な応力 (FCMI 応力) が過大となることは無い。一方で、FP ガスの蓄積によるプレナムガス圧の上昇と FCCI にともなう被覆管の減肉による被覆管応力の増加に起因した内圧クリープによって被覆管破損が生じると考えられており、実際の燃料破損も被覆管の減肉が顕著となる燃料スラグの上端近傍で多く生じている^{(20), (21)}。これまでのところ、TRU 金属燃料や MA 添加金属燃料の照射後試験で、FCFI による被覆管侵食量や浸食速度を評価した例は見当たらないが、燃料製造時の段階で有意量の RE やそれと類似の化学的性質を持つ MA が混入している燃料合金の場合には、超高燃焼度燃料の開発で懸念されているように、RE (や MA) による FCCI の結果、照射中の被覆管減肉が過大となることが予測される。また、Pu 濃度の増大により燃料-被覆管境界での低融点相の形成⁽²²⁾も懸念される。

金属燃料における FCCI 対策や液相形成防止策として、上述のように被覆管の内面コーティング技術がある。また、RE と化合物を作り安定化し易いパラジウム (Pd) やインジウム (In) などの金属をあらかじめ燃料合金中に添加しておくといった FCCI 防止策^{(23), (24)}も検討されている。これらの対策は、U を含まない TRU 金属燃料や MA 添加金属燃料にも有効であると期待される。一方、TRU 金属燃料や MA 添加金属燃料における FP ガスの放出やそれと関係の深い燃料合金のスエリング挙動は、それを低減する方策がない一方で、被覆管応力に大きく影響を与えることから、燃料の照射健全性を検討する上で重要な照射挙動と位置付けられ、AFC シリーズや METAPHIX 照射試験において、詳しく調べられている。

TRU 金属燃料 (AFC-1B 及び AFC-1D 燃料) からの FP ガス放出率の燃焼度依存性を EBR-II によって照射された U-xPu-10Zr 合金燃料 (x=0-26) の結果と比較して図 3.1.2-2 に示す^{(13), (14)}。ここでは燃焼度の指標として単位体積当たりの核分裂数 (=核分裂密度 [fission/cm³]) を用い、組成の異なる各照射試験の FP ガス生成量が等価となるようにしている。なお、図 3.1.2-2 は Hilton ら⁽¹³⁾ や Chichester⁽¹⁴⁾ によって報告されたガス放出率の図を読み取り、再プロットしたものである。(原本 [14] にある明らかな誤表記は修正している。)

TRU 金属燃料における FP ガス放出の燃焼度依存性の傾向は、通常の U-xPu-10Zr 合金燃料と同様である一方で、U-xPu-10Zr 合金燃料では、およそ 2.5×10^{21} [fission/cm³] の核分裂密度で FP ガスの放出が始まっているのに対し、TRU 金属燃料では、FP ガスの放出開始が遅れ、 $6.0-7.0 \times 10^{21}$ [fission/cm³] 程度の核分裂密度に達するまで FP ガスの放出が起これないことが分かる。また、燃焼が進んだ AFC-1D 燃料の放出率を見ると、U-xPu-10Zr 合金燃料よりも放出率がやや高くなる傾向が見られる。ただし、試料毎のバラつきが大きく、より多くの試験データの蓄積が必要と考えられる。

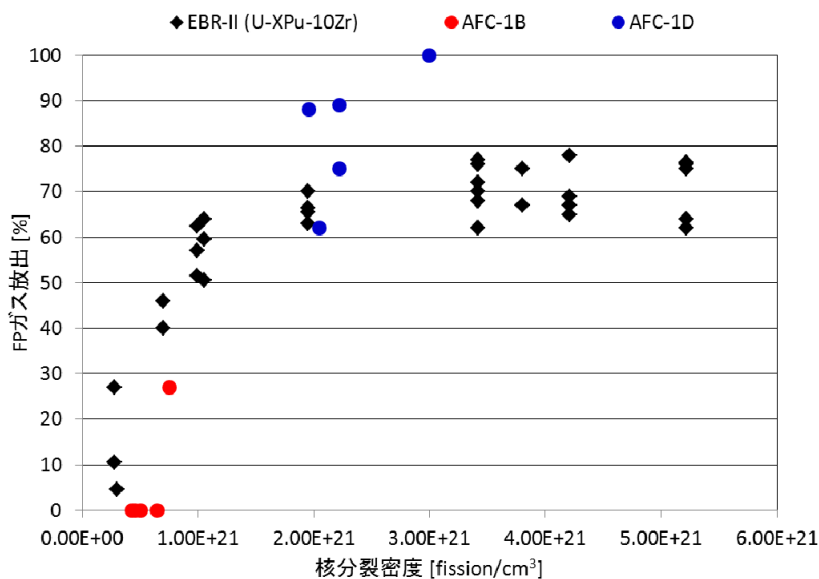


図 3.1.2-2 TRU 金属燃料と通常の U-xPu-10Zr 合金燃料からの FP ガス放出率

(3) 燃料健全性評価⁽³⁾

予測される TRU 金属燃料の照射挙動の特徴を踏まえた金属燃料照射挙動解析コード ALFUS による解析に基づき、その照射健全性を検討するため、炉心設計において想定された燃料仕様や照射条件及び TRU 金属燃料の特徴を考慮に入れた解析条件を以下に示す。

① 燃料仕様

燃料ピンの設計仕様を表 3.1.2-2 に示す。これらの値は、TRU 金属燃料炉心の設計検討⁽³⁾において設定されたものである。ただし、上述の通り TRU 金属燃料の場合には FCCI による被覆管減肉が過大となることが予想されることから、図 3.1.2-3 に示すように被覆管内面に厚さ 0.05mm (暫定値) のバリア材を装荷することとした。その際、被覆管の厚さを減肉することで、燃料スミヤ密度は変化せず、炉心核特性への影響を最小限に抑えるよう留意した。また、本評価ではバリア材の物質は特定せず、照射期間を通じて FCCI 侵食量をバリア材の厚さ以下に抑えることができると仮定した。また、バリア材に物理的強度は期待せず、被覆管強度は薄肉化された HT-9 のみによって確保されるものとして評価を行った。

表 3.1.2-2 燃料ピンの主要仕様⁽³⁾

被覆管外径 [mm]	4.75
被覆管厚さ [mm]	0.35
バリア材厚さ [μm]	50
燃料組成 [wt%]	TRU-40Zr
被覆管材	HT-9
バリア材	特定しない (例: Cr, V など)
燃料スラグ径 [mm]	3.33
燃料スタック長 [mm]	550
スミヤ密度 [%TD]	75
プレナム長 [mm]	825

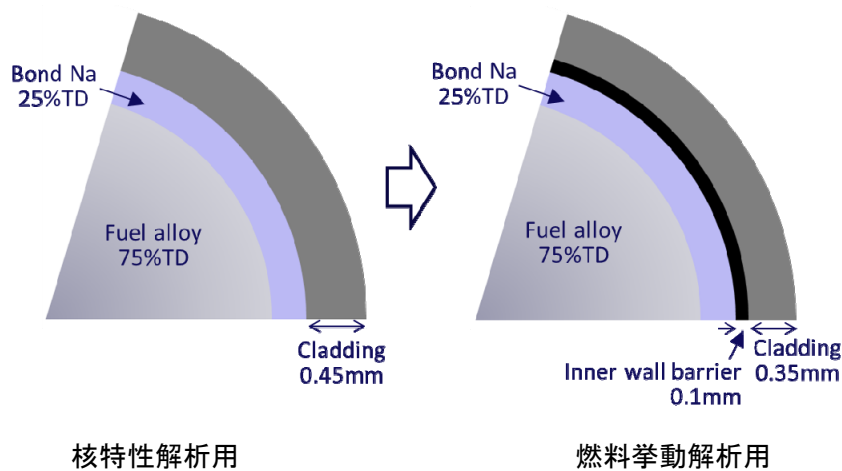


図 3.1.2-3 燃料ピン断面図 (一部)

② 照射条件

TRU 金属燃料炉心の核・熱流動解析の開示結果に基づき、内・外炉心燃料それぞれの最大線出力ピンを対象に照射条件を設定した。表 3.1.2-3 に主な照射条件を内・外炉心燃料それぞれについて示す。表中の被覆管内面温度の評価結果から、外側炉心燃料のホットスポット条件が最も高温となり、厳しい評価条件となることがわかる。ここでは、保守的評価のため外側炉心燃料のホットスポット条件について解析を行うこととした。また、図 3.1.2-4 及び図 3.1.2-5 にはそれぞれ内側炉心燃料及び外側炉心燃料の線出力、中性子束、温度の軸方向分布を示す。照射初期から末期にかけての変化は、照射期間に対して線形に変化するとして内挿評価した。

表 3.1.2-3 TRU 金属燃料炉心の核・熱流動解析結果に基づく主な照射条件⁽³⁾

	内側炉心燃料	外側炉心燃料
照射期間 [日×バッチ]	148×8	←
最大線出力*1 [W/cm]	215.0/126.8	184.9/125.4
被覆管内面最高温度*1 (ノミナル) [°C]	590/498	590/522
被覆管内面最高温度*1 (ホットスポット) [°C]	650/536	650/565
取出燃焼度 [Gwd/t]	370 (37)*2	330 (33)*2
最大高速中性子照射量 [n/cm ²]	1.40E+23	1.55E+23

*1: 照射初期/照射末期

*2: at. %

③ 燃料物性

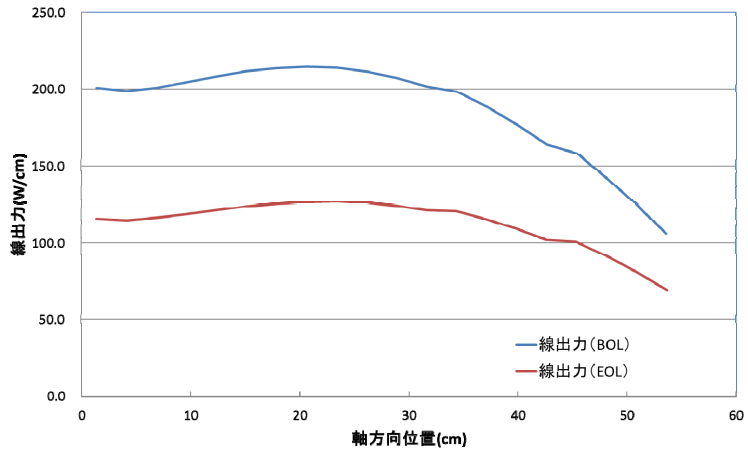
TRU-40Zr 合金の融点や比熱、熱伝導率などの熱物性値は、本事業で評価⁽³⁾された値を反映して解析を行った。

④ ガス放出挙動

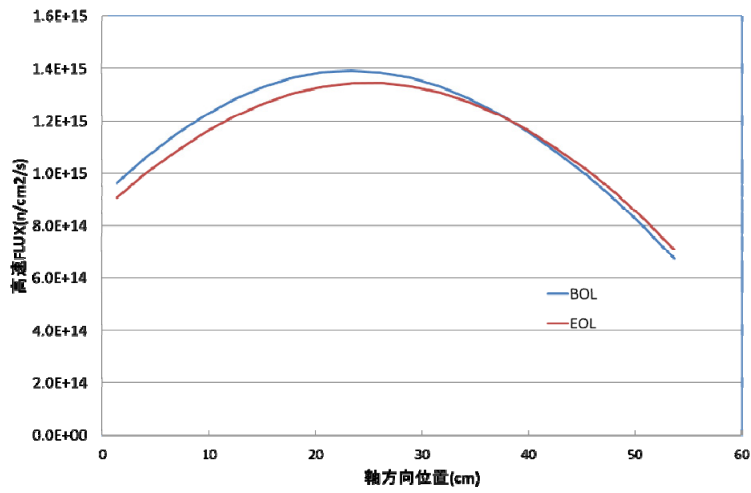
前節 (2) ④で述べたとおり、TRU-Zr 燃料からの FP ガス放出には、U-Pu-10Zr 合金と異なる傾向が見られる。現状では、そのメカニズムは明らかにされておらず、物理モデルを構築するには至っていない。そこで、ここでの評価では FP ガス気泡の拡散係数や気泡の合体・成長によるオープンポアの生成割合を調整することで、AFC-1B 及び 1D 試験燃料のガス放出率を再現することとした。なお、これらのパラメーターの調整値には理論的根拠はなく、照射試験データの拡充とともに物理モデルを構築が今後の課題といえる。

⑤ 固体 FP スエリング

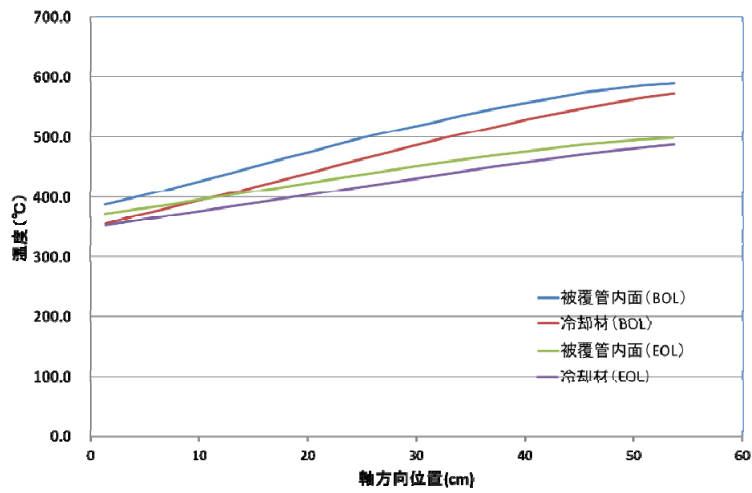
主要な FP のモル体積に基づく評価によれば、U-Pu-10Zr 燃料における固体 FP スエリング率は、1at. %燃焼度あたり、新燃料体積 V_0 に対して 1.2vol. %と見積もられている⁽²⁵⁾。一方、TRU-40Zr 合金と U-Pu-10Zr 合金では単位体積中に含まれるアクチニド元素の原子数 (=原子数密度 n/cm^3) が異なるため、それぞれの 1at. %燃焼度に相当する核分裂数が異なり、必然的に固体 FP スエリング率が変化すると考えられる。アクチニドや FP 元素のモル体積が合金組成によらないと仮定すれば、TRU-40Zr 合金内のアクチニドの原子数密度が U-Pu-10Zr 合金のおよそ 0.46 倍であることから、TRU-40Zr 燃料の固体 FP スエリング率は 1at. %燃焼度あたり $1.2 \times 0.46 \doteq 0.55\text{vol. \%}$ と見積もられる。



(a) 線出力

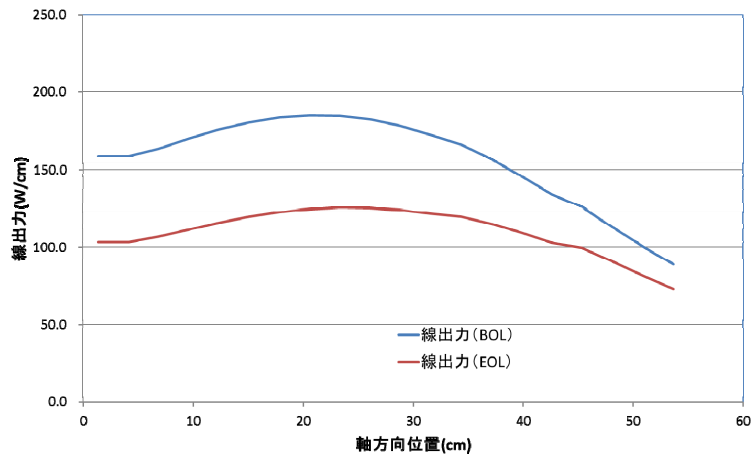


(b) 中性子束

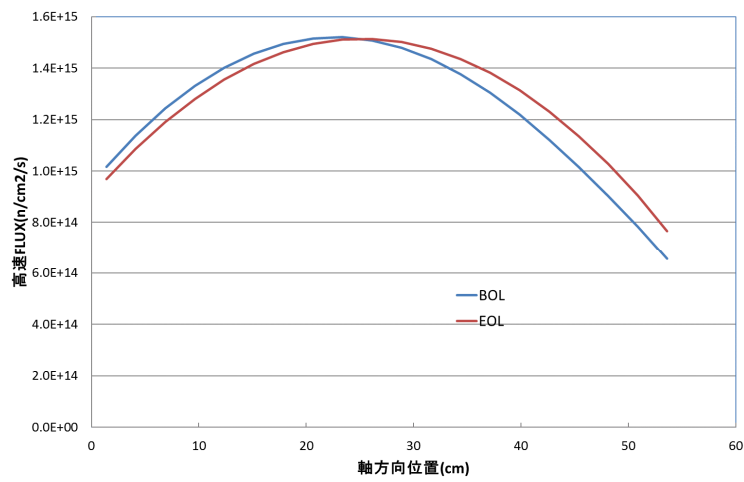


(c) 冷却材及び被覆管内面温度

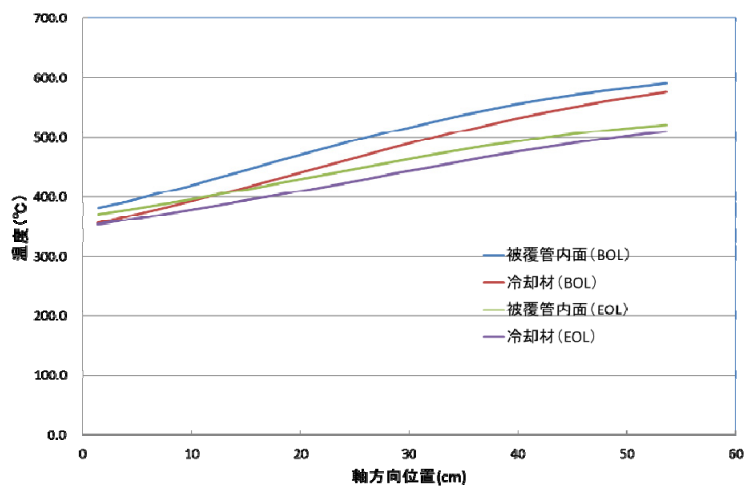
図 3.1.2-4 内側炉心燃料の線出力、中性子束、温度の軸方向分布



(a) 線出力



(b) 中性子束



(c) 冷却材及び被覆管内面温度

図 3.1.2-5 外側炉心燃料の線出力、中性子束、温度の軸方向分布

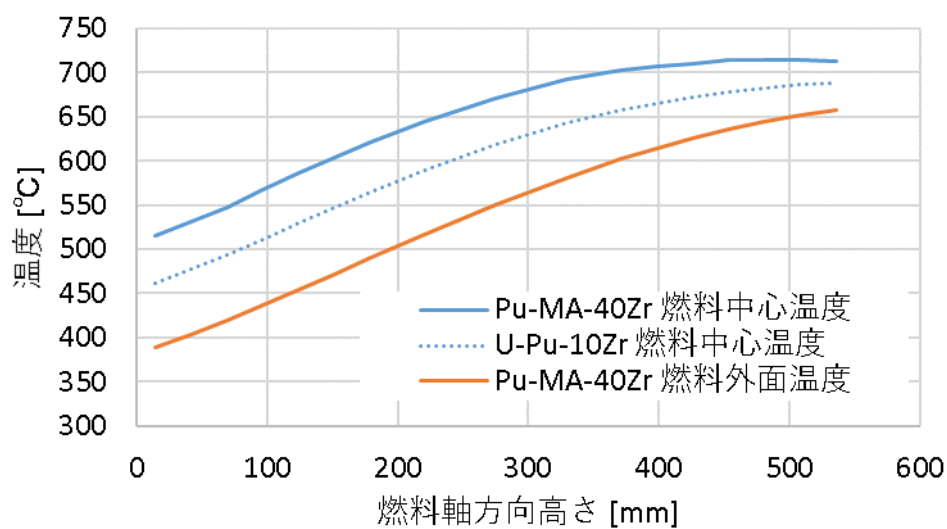
⑥ 解析結果

図 3.1.2-6 に照射初期及び末期における外側炉心燃料のホットスポット条件における軸方向温度分布の解析結果を示す。比較のため、図には同出力の従来燃料 (U-Pu-10Zr) による温度解析結果を合わせて示す。

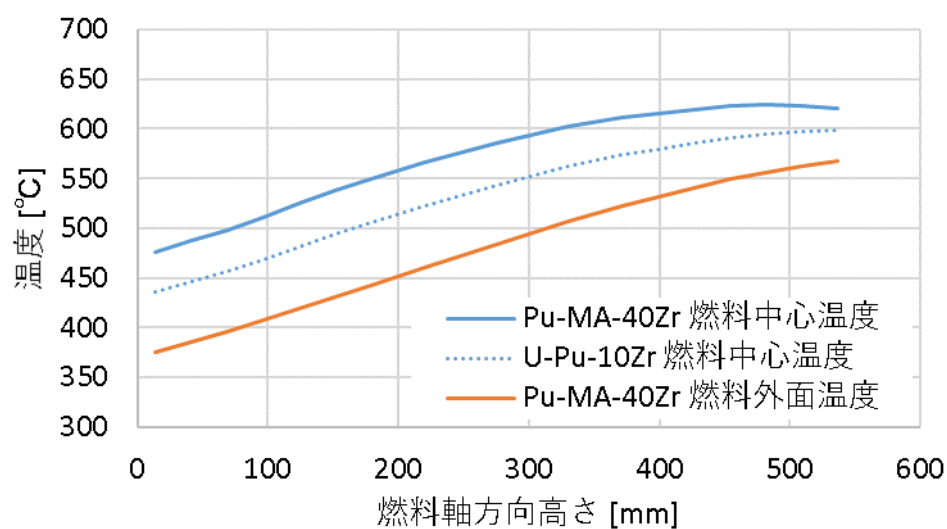
温度履歴やガス放出の時刻歴を考慮に入れて評価した燃焼末期における被覆管外形変化及び CDF 値の軸方向分布を U-Pu-10Zr 合金の結果と比較して図 3.1.2-7 に示す。燃料スタックの下部付近で TRU-40Zr 燃料ピンの外形変化が小さく抑えられ、上部付近では U-Pu-10Zr 合金燃料ピンと同程度となっている。これは、低温の燃料下部では、燃料合金のクリープ速度が低くオープンポアの潰れに高い応力が必要とされるため、FCMI 力が増大する傾向にあるが、熱伝導率の低い TRU-40Zr 合金では燃料温度が上昇するため、特に燃料下部で FCMI 力の低下が顕著になるためであると考えられる。

また、U-Pu-10Zr 燃料ピンでは実験値に基づく FCCI 侵食速度に従い、被覆管の減肉が考慮されているが、TRU-40Zr 燃料ピンの解析では、バリア材によって FCCI 侵食が抑えられる結果、図 3.1.2-8 のように照射末期の CDF 値が低く抑えられている。

以上のように、CDF 値は最大となる高温の燃料上端付近でも十分に 1.0 を下回っており、被覆管の外形変化も U-Pu-10Zr 燃料以下に抑えられていることから、厚さ $50\mu\text{m}$ のバリア材によって FCCI が防止され、その分薄肉化した被覆管肉厚が照射期間を通じて維持できれば、TRU-Zr 合金の照射健全性は確保できること示された。

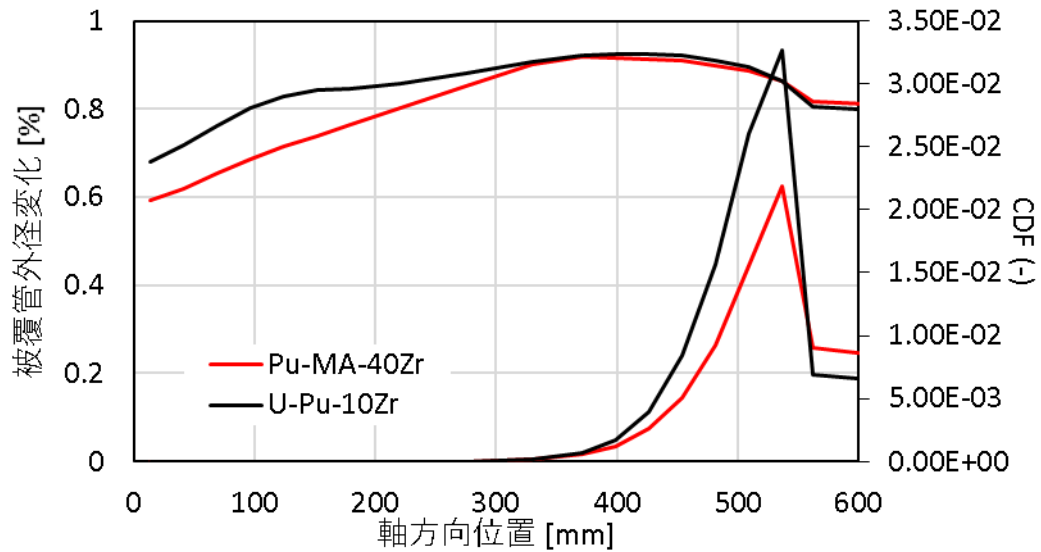


(a) 照射初期



(b) 照射末期

図 3.1.2-6 外側炉心燃料のホットスポット温度の軸方向分布の解析結果



(b) 外側炉心燃料

図 3.1.2-7 ホットスポット条件における照射末期における被覆管外形変化及び CDF 値の軸方向分布

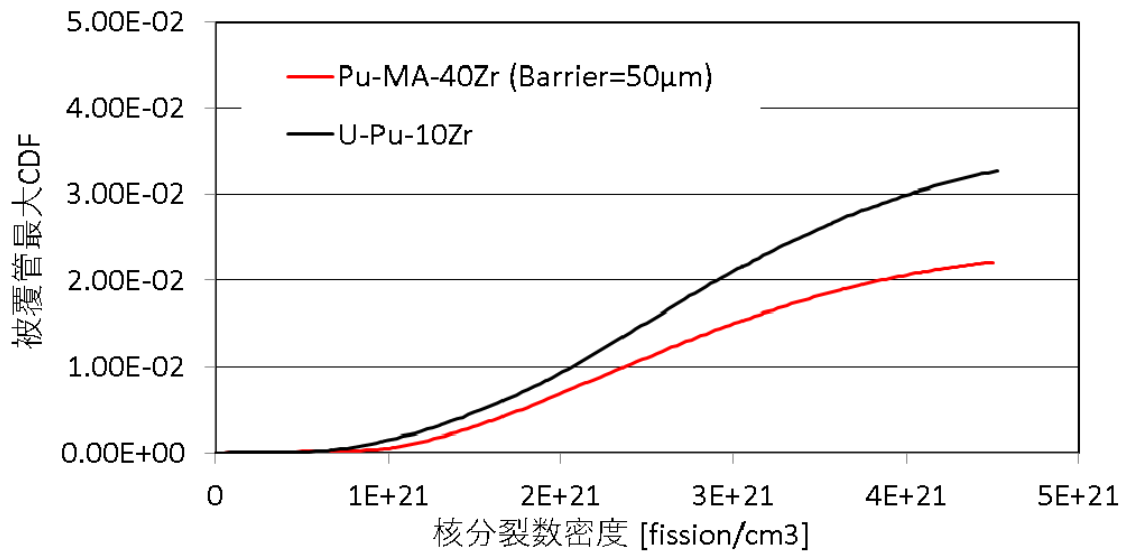


図 3.1.2-8 ホットスポット条件における外側炉心燃料の被覆管最大 CDF の燃焼度依存性

(4) 燃料設計の変化による影響評価

上述の TRU 金属燃料炉心の設計条件は、今後も変更の可能性があるとともに、知見の少ない TRU 金属燃料の物性や製造性には不確かさがともなうことから、燃料の照射挙動にも影響が生じると予想される。そこで燃料諸特性が変化した場合の影響を機構論的により評価し、炉心仕様の柔軟性を明らかにする。

① バリア材厚さ

被覆管内面のバリア材開発例として、金属ライナーによる燃料合金（U-Zr、U-Pu-Zr など）と被覆管材の拡散対試験などが行われており、Cr や V ライナーによるバリア効果が高く評価されている。しかしながら、U を含まない TRU 合金燃料に対する効果についての報告例は見当たらない上、薄肉のバリア材を施工した被覆管の実用化にはまだ時間を要すると予想される。そこで、バリア材の厚さをパラメーターとし、 $100\mu\text{m}$ 、 $150\mu\text{m}$ とした場合の照射健全性を評価した。基準条件と同様に、被覆管とバリア材を合わせた厚さを 0.45mm ($450\mu\text{m}$) に維持することとし、バリア材に物理的強度は期待しないものとして評価を行った。

図 3.1.2-9 にバリア材の厚さを基準値 ($50\mu\text{m}$) から、 $100\mu\text{m}$ または $150\mu\text{m}$ に増大させた場合の被覆管最大 CDF の時刻歴の解析結果を示す。バリア材の装荷厚さが増大すると被覆管の肉厚が減少するため、バリア材に物理的強度を期待しない本解析では、単純に被覆管強度が低下するため、CDF 値が増大する。バリア材厚さが $\sim 100\mu\text{m}$ のときに、通常の U-Pu-10Zr 燃料ピンと同等の強度となり、 $150\mu\text{m}$ まで厚くした場合には、U-Pu-10Zr 燃料ピンの強度を下回ることが分かる。ただし、 $150\mu\text{m}$ 厚のバリア材を装荷した場合でも、CDF は 0.1 を十分に下回っており、照射末期まで燃料の健全性が確保される見通しであるが、後述する燃料ピンの出力や燃焼度増大を検討する場合には、注意を要する。

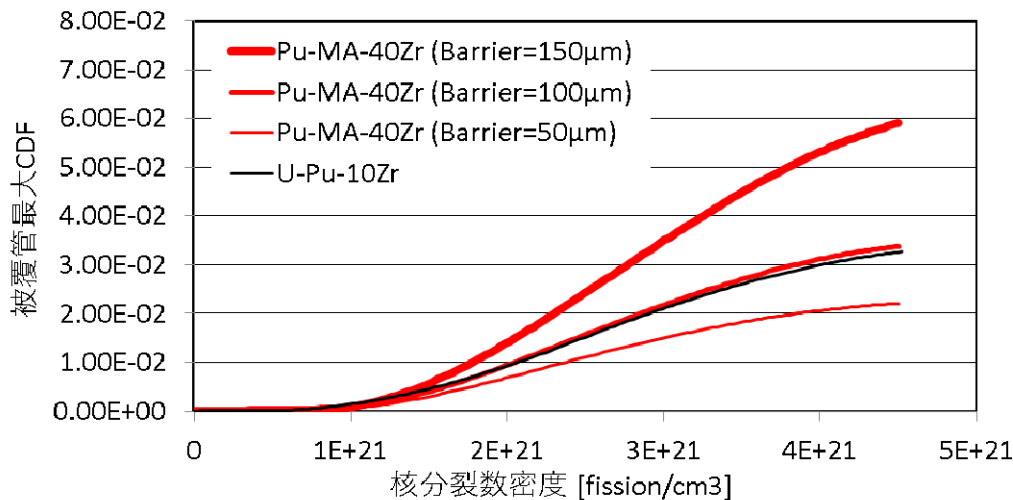


図 3.1.2-9 被覆管内面バリアの厚さによる被覆管最大 CDF の変化

② 燃料スラグ径の不確かさ

本概念の炉心設計によって得られている燃料スラグのノミナル外径は 3.33mm と比較的、細径燃料の製造技術が求められる。ここでは、燃料スラグの製作公差を 0.10mm とし、特に燃料健全性の観点から非安全側となる太径化する場合（燃料スラグ外径= 3.43mm ）について、評価を行う。ここで、燃料スラグ外径が 3.33mm から 3.43mm に増大することによって、燃料のスミヤ密度は $74.8\%TD$ から $79.4\%TD$ に増加する。

燃料スミヤ密度が増大することによって、照射初期における燃料スラグ内の FP ガスチャネルの形成が不十分となり、図 3.1.2-10 のようにガス放出が抑制される。その結果、

プレナムガス圧が低下する一方で、特に、燃料合金のクリープ速度の低い低温の下部側で燃料と被覆管の機械的相互作用（FCMI）の増大（図 3.1.2-11）が顕著となり、図 3.1.2-12 に示されるように被覆管の外形変化が増大する。ただし、被覆管の外形変化は 1%程度にとどまり、燃料の健全性上、問題とはならないと考えられる。また、高温の燃料上端付近では FCMI がほとんど増大しないことから、FP ガス圧の低下によって被覆管の最大 CDF 値はやや低下する結果となった。

以上より、本概念の炉心設計条件の場合、燃料スラグの製作に 0.10mm の公差を見込んでも燃料の照射健全性は確保できると考えられる。

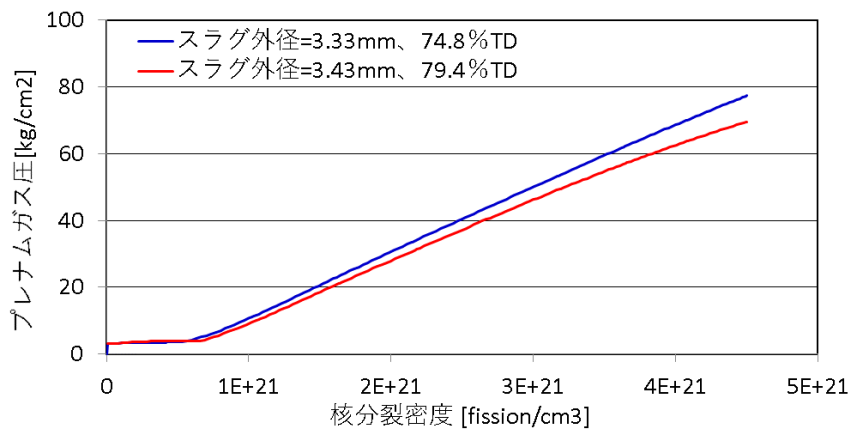


図 3.1.2-10 燃料スラグの外径増加による FP ガス放出率の変化

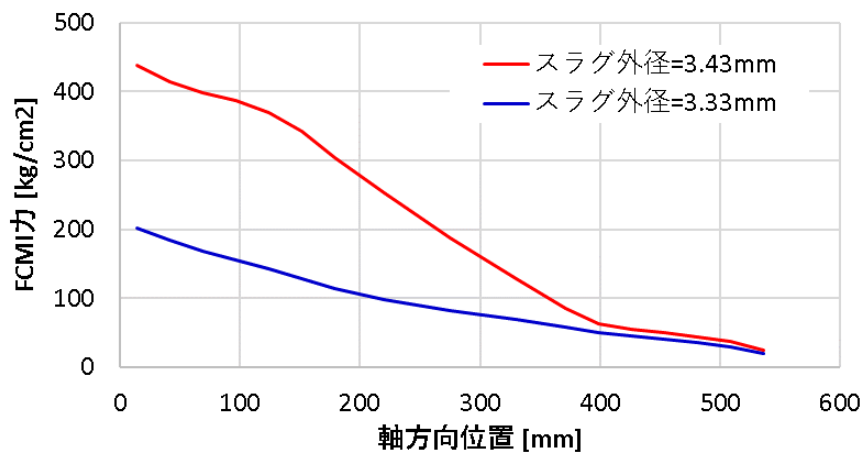


図 3.1.2-11 燃料スラグの外径増加による FCMI 力の変化

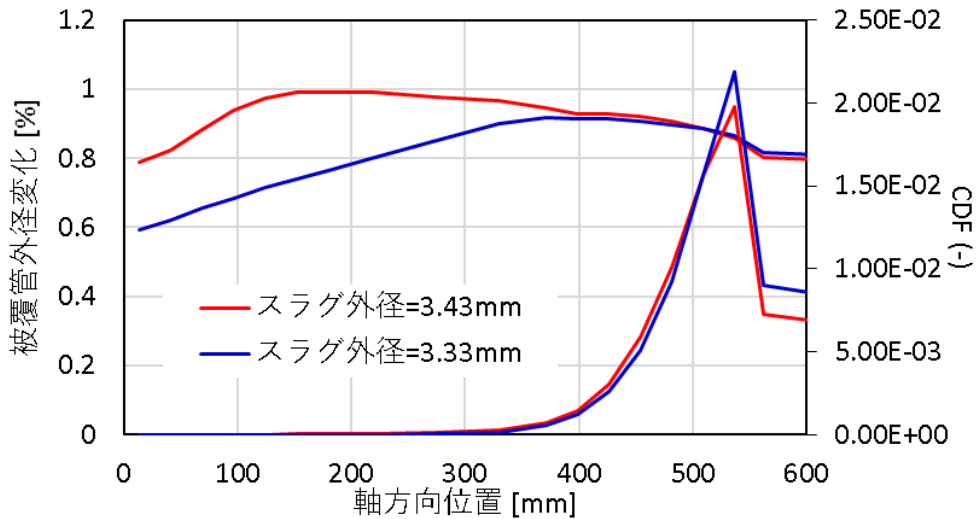


図 3. 1. 2-12 燃料スラグの外径増加による被覆管の外形変化及び CDF の軸方向分布の変化

③ 被覆管温度履歴

続いて、TRU-40Zr 燃料ピンの出力履歴（燃焼履歴）の不確かさによって、照射末期の被覆管最高温度が変化する場合の影響を評価する。ここでは、基準条件に対して照射末期の出力が、およそ 10% 増大することに相当する条件を想定し、被覆管温度が約 20°C 上昇することとした。図 3. 1. 2-13 に想定した被覆管最高温度履歴の変化を示す。なお、ここでは温度上昇による影響のみを検討するため、出力増大による燃焼度の変化、すなわち FP 蓄積量の変化は生じないものとした。

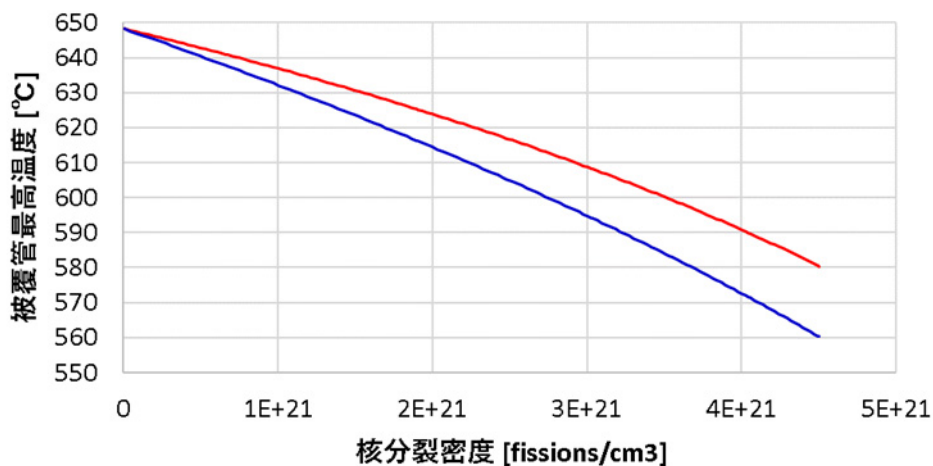


図 3. 1. 2-13 照射末期の出力が 10% 増加した場合の被覆管最高温度履歴の変化

燃料の出力変化にともなう被覆管温度の上昇による被覆管最大 CDF の変化を図 3. 1. 2-14 に示す。被覆管温度の変化に対する CDF 値の感度は高く、基準条件に対し、照射末期の燃料温度が 20°C 上昇すると、最大 CDF 値は 2 倍以上に増大する結果となった。

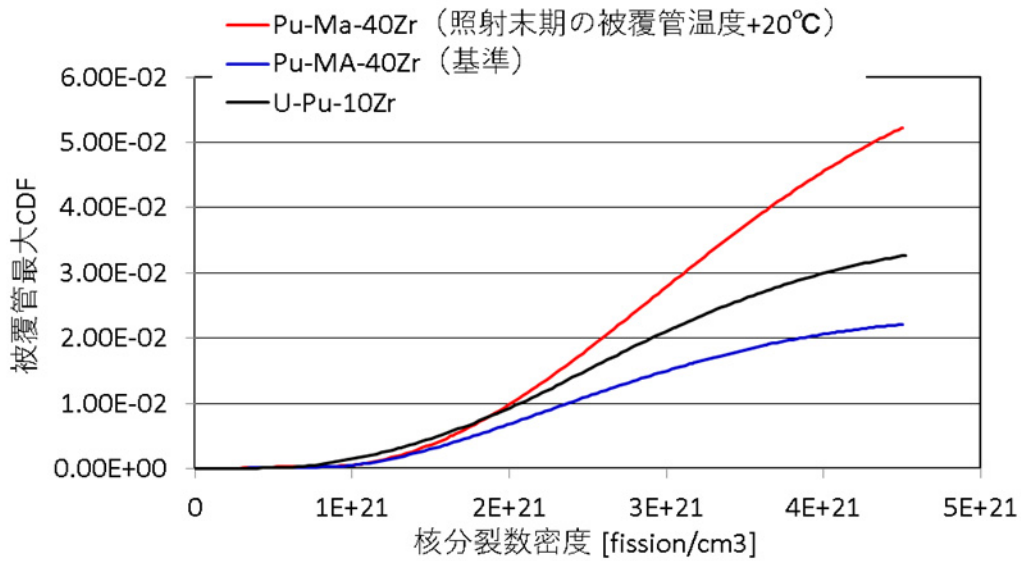


図 3. 1. 2-14 照射末期の出力が 10% 増加（被覆管温度が 20°C 上昇）した場合の被覆管最最大 CDF 履歴の（燃焼度は基準値のまま）

④ 燃焼度の変化

上述の③ 被覆管温度履歴では、燃料出力の変化による燃焼度の変化を考慮しなかった。そこで、ここでは照射末期にかけて燃焼度が 10% 増大した場合の影響を検討した。なお、出力変化による被覆管温度の変化の効果は除き、燃焼度変化のみについて考慮している。

燃焼度が増大によって、FP ガスの放出量及び固体 FP の蓄積量が増加するため、プレナムガス圧と FCMI 力による被覆管応力が増大する。ただし、図 3. 1. 2-15 に見られるように、基準条件に対し 10% 程度の燃焼度変化であれば、燃料健全性に与える影響は重大とはならないことが明らかとなった。

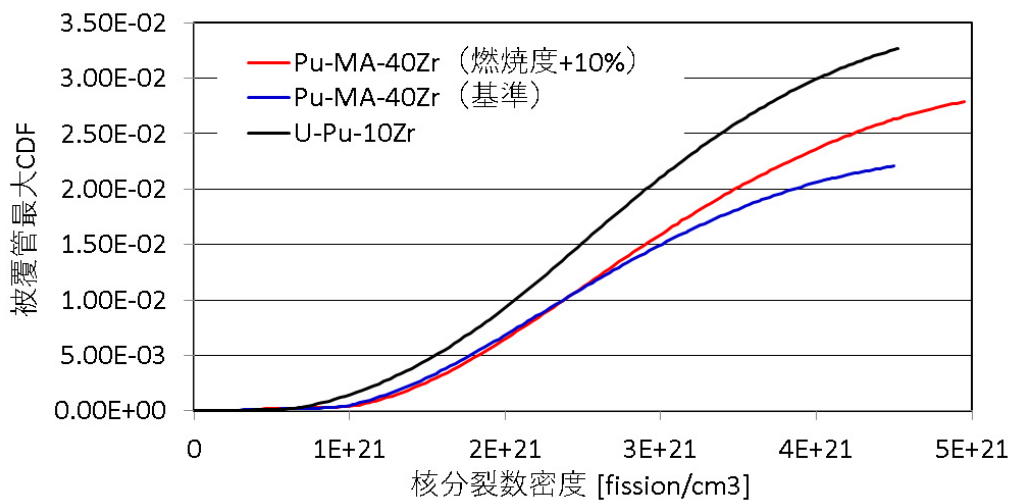


図 3. 1. 2-15 照射末期の出力が 10% 増加（燃焼度が 10% 増加）した場合の被覆管最高温度履歴の変化（被覆管温度は基準値のまま）

⑤ 燃料組成の変化

本事業における (1)②「TRU 金属燃料物性評価精度向上検討」や(4)「核廃棄物燃焼システム」の平成 29 年度の検討結果を踏まえ、燃料組成の変化による照射挙動への影響を評価した。燃料仕様を表 3.1.2-4 にまとめる。

基準燃料 (TRU-40Zr 合金) による炉心特性からの変化を抑えることを目的に、燃料中の Pu 装荷量を一致させるため、燃料スラグを細径化し、スミヤ密度を 58.0%まで低減させている。その結果、照射条件 (表 3.1.2-3) 及び出力履歴 (図 3.1.2-4 及び図 3.1.2-5) は、基準条件と一致するとした。

表 3.1.2-4 平成 29 年度の燃料・炉心検討結果に基づく燃料ピンの主要仕様

被覆管外径 [mm]	4.75
被覆管厚さ [mm]	0.40
バリア材厚さ [μ m]	50
燃料組成 [wt%]	20U-TRU-20Zr
被覆管材	HT-9
燃料スラグ径 [mm]	2.93
燃料スタック長 [mm]	550
スミヤ密度 [%TD]	58.0
プレナム長 [mm]	825

20U-TRU-20Zr 合金の熱伝導率に関する知見は乏しいことから、3.1.1 項で評価された上限式及び下限式のそれぞれについて評価を行った。

$$\text{下限式: } K \text{ (W/mK)} = 0.15 + 0.02102 \times T - 6.875 \times 10^{-6} \times T^2 + 9.053 \times 10^{-10} \times T^3$$

$$RT \leq T \text{ (K)} \leq \text{m. p.}$$

$$\text{上限式: } K \text{ (W/mK)} = 0.21 + 0.02945 \times T - 9.631 \times 10^{-6} \times T^2 + 1.268 \times 10^{-9} \times T^3$$

$$RT \leq T \text{ (K)} \leq \text{m. p.}$$

これまでに 20U-TRU-20Zr 合金の照射試験例は存在しないことから、FP ガス放出や合金のスエリングといった照射挙動は類似組成の 40U-TRU-20Zr、35U-TRU-30Zr、30U-TRU-40Zr の他、TRU-40Zr の照射挙動の特徴^{(13), (14)}を踏まえ、図 3.1.2-16 に示すように保守的な挙動を想定した解析を行った。

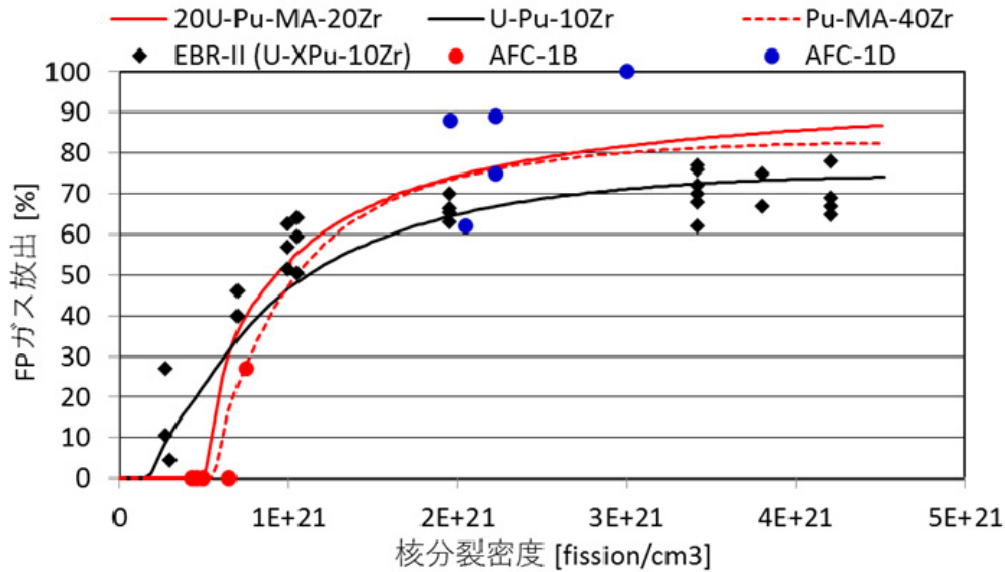


図 3. 1. 2-16 20U-TRU-20Zr 合金の照射挙動評価で想定した FP ガス放出率の履歴^{(13), (14)}

図 3. 1. 2-17 には、熱伝導率の下限評価式を用いた場合の 20U-TRU-20Zr 合金燃料の被覆管最大 CDF の履歴を TRU-40Zr 合金燃料及び通常の U-Pu-10Zr 合金燃料の場合と比較して示す。

図 3. 1. 2-18 に示すように、TRU-40Zr 合金にくらべ、20U-TRU-20Zr 合金では、FP ガスの放出開始が早く、放出率も高いと想定されていることから、プレナムガス圧が高く、被覆管の CDF が増大する傾向が見られる。(照射条件や出力履歴は基準ケースと同様であるため、被覆管温度や核分裂密度は TRU-40Zr 合金と 20U-TRU-20Zr 合金で一致している。)

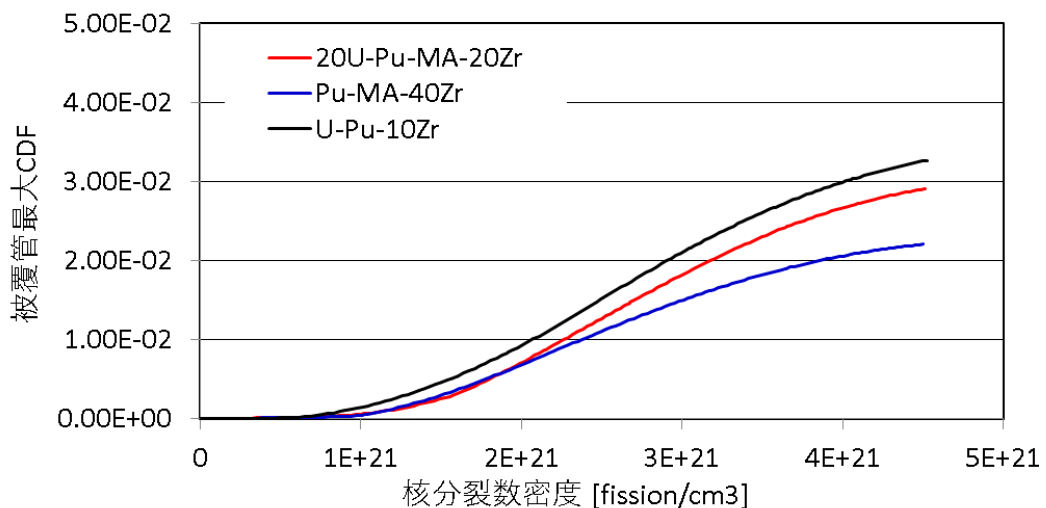


図 3. 1. 2-17 燃料組成の変化による被覆管最大 CDF 値の変化

更に、熱伝導率の上限評価式を用いた場合の被覆管最大 CDF 履歴を熱伝導率の下限式を用いた場合と比較して、図 3. 1. 2-15 に示す。熱伝導率の下限値を想定した場合、燃料中

心温度が 13～15℃程度上昇するものの燃料の中心溶融には十分な裕度が確保される。また燃料温度が上昇する結果、燃料合金からの FP ガス放出率が增大する一方で、燃料合金のクリープひずみ速度が増大することによる FCMI 力が低減することから、被覆管の CDF 値はわずかに低減する結果となった。定常運転時の燃料健全性の観点からは熱伝導率の評価式の変化の影響は小さいと言える。

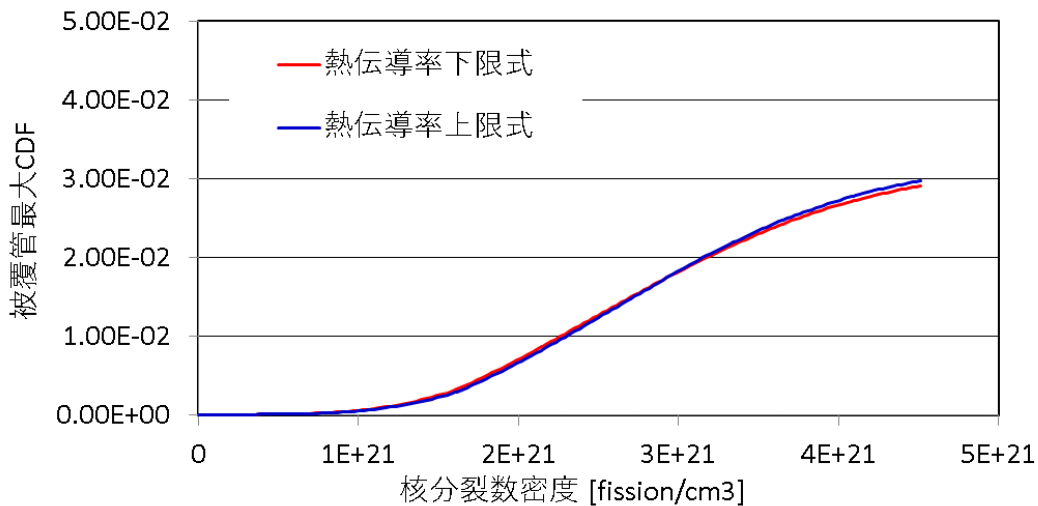


図 3.1.2-18 20U-TRU-20Zr 合金の熱伝導率変化による被覆管最大 CDF 値の変化

(5) 今後の開発課題

TRU 金属燃料の成立性検討を目的に実施した、上記の先行研究調査及び燃料照射挙動解析の結果を踏まえ、TRU 金属燃料を実用化する上で、以下の課題が抽出された。

① 燃料製造性について

TRU 金属燃料のように有意な MA を含む燃料の場合、通常の U-Pu-Zr 合金燃料製造に用いられる条件での射出鋳造法では、装荷 Am の 40%が揮発した報告例があり、Am の回収率を向上する燃料製造法の確立が課題に挙げられる。

一般に、金属 TRU を回収する際には、希土類元素 (RE) が不純物として混入するが、RE と Np や U の混合性は低く、TRU 回収工程における RE 混入量の低減が望まれるとともに、均質な燃料製造技術の開発が課題である。

Am の揮発を抑え、RE との混合性を向上させるため、実験室レベルでは、粉末混合した試料をアーク溶解し、ごく短時間のうちに鋳造する方法が用いられているが、粉末試料のアーク溶解法によって多量の MA 含有合金を製造することは難しく、工学規模への拡大について課題が残されている。

なお、その対策例として、「底注ぎ式の差圧鋳造法」が米国で開発・検討されているところである。

② 燃料照射挙動について

TRU 金属燃料では、燃料-被覆管境界での液相形成や FCCI による被覆管減肉が従来燃料に較べて著しく厳しくなると予想されることから、被覆管内面のコーティングが必須と

なるが、照射下におけるコーティング材の物理／化学的安定性の確認が課題として挙げられる。

また、照射によって TRU 合金燃料内部で低融点相の Am-RE 相のような析出物が成長し、局所的な溶融が懸念されるため、照射による析出物の成長挙動を観察するとともに、適切な温度条件の設定が必要となる。

本事業における TRU 金属燃料の照射健全性は、U-Pu-Zr 合金燃料の挙動をベースにしつつ、主に AFC 照射試験 (AFC-1B と-1D) の照射後試験結果のみに基づいて検討を行った。したがって、照射条件が AFC-1B や-1D と大きく異なる場合の適用性は確認する必要がある。また、FP ガスの放出や燃料合金のスエリングといった燃料照射挙動は燃料ピンごとのバラつきが比較的多い特性であることから、様々な照射条件に条件による照射実績を蓄積し、TRU 金属燃料特有の照射挙動を記述できる物理モデルを構築することが今後の課題と考えられる。

(6)まとめ

TRU 金属燃料の特性を把握するため、MA 添加金属燃料の製造試験や照射試験の文献調査を行い、MA 添加金属燃料の製造に係る RE の分離や、被覆管との化学的相互作用についての課題を抽出し、燃料成立の条件を整理した。

また、TRU 金属燃料の照射試験に関する情報を調査し、照射挙動の特徴を整理した。その結果、TRU 金属燃料の場合、U を含む金属燃料に比較して、照射初期のガス放出率は遅れるが、照射が進むとガス放出率が高くなる傾向が分かった。また、MA や RE の含有率が高いため、FCCI による被覆管減肉が厳しくなるとともに Pu 富化度が高いため被覆管境界における液相形成温度の低下が懸念される。したがって、TRU 金属燃料の健全性に係わる課題としては、燃料と被覆管の接触を防ぐ被覆管内面コーティング策の有効性確認が重要であると判断した。

TRU 金属燃料の照射挙動に対する文献調査及び評価結果に基づき、TRU-40Zr の FP ガス放出率、燃料スエリング、燃料物性を考慮した金属燃料照射挙動解析コードを用い、被覆管内面にバリア材を想定して燃料健全性評価を行った。その結果 TRU-40Zr 燃料のプレナムガス圧による被覆管 CDF は ~ 0.02 程度と十分小さいことが分かった。

TRU 金属燃料炉心の設計検討で想定された燃料組成や照射条件等をベースに燃料の設計仕様が変化した場合の照射挙動への影響を機構論的により解析した。その結果、TRU 金属燃料の照射挙動に関し、下記の特徴が明らかとなった。

- ・被覆管内面のバリア材は、厚さが $\sim 100 \mu\text{m}$ 程度 (被覆管有効肉厚 $=0.35\text{mm}$) の場合に、被覆管最大 CDF 値が通常の U-Pu-10Zr 燃料ピンと同等となり、 $150 \mu\text{m}$ 厚のバリア材を装荷した場合 (被覆管有効肉厚 $=0.30\text{mm}$) も、燃料健全性は確保される見通しである。
- ・燃料スラグの製作に直径 0.10mm の公差が見込まれる場合、FCMI が増大するものの被覆管の外形変化は 1%程度にとどまり、燃料の健全性上、問題とはならない範囲に収まった。
- ・燃焼履歴の不確かさによって、照射末期の被覆管最高温度が 20°C 上昇する場合、基準条件に対し、最大 CDF 値は 2 倍以上 (~ 0.05) に増大する結果となった。

- ・同様に、燃焼度が高くなると、FP ガスの放出量及び固体 FP の蓄積量が増加するため、プレナムガス圧と FCMI 力による被覆管応力が増大する。ただし、基準条件に対し 10%程度の燃焼度変化であれば、燃料健全性に与える影響は重大とはならない。
- ・燃料組成を TRU-40Zr から 20U-TRU-20Zr に変化させる場合、FP ガス放出率や熱伝導率等の不確かさを踏まえても被覆管の累積損傷和(CDF)は 0.05 以下となった。

以上の結果から、基準となる燃料仕様の基準値に対し、バリア材（被覆管）厚さ、燃料スラグ径、照射中の燃料ピン出力の変動を考慮しても燃料の照射健全性は確保される見通しとなった。また、少量の U を添加した 20U-TRU-20Zr の場合も、照射健全性は確保できる結果が得られ、燃料及び炉心設計仕様の変更に対する柔軟性を確認した。

参考文献

- (1) 原子力システム研究開発事業「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」平成 26 年度成果報告書（2015）
- (2) 原子力システム研究開発事業「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」平成 27 年度成果報告書（2016）
- (3) 原子力システム研究開発事業「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」平成 28 年度成果報告書（2017）
- (4) H. Ohta et al., “Development of Fast Reactor Metal Fuels Containing Minor Actinides,” *J. Nucl. Sci. and Technol.*, Vol. 48, No. 4, 1 (2011)
- (5) M. K. Meyer et al., “The EBR-II X501 Minor Actinide Burning Experiment,” *J. Nucl. Mater.*, 392 176 (2009)
- (6) H. Ohta et al., “Irradiation of Minor Actinide-Bearing Uranium-Plutonium-Zirconium Alloys up to ~2.5 at%, ~7 at.% and ~10 at.% Burnups,” *to be published in Nucl. Technol.*
- (7) H. J. MacLean et al., “Irradiation of Metallic and Oxide Fuels for Actinide Transmutation in the ATR,” *Proc. of GLOBAL2007*, Boise, Idaho, USA, Sep. 9-13 (2007)
- (8) Jaecki, et al., “Update on the FUTURIX-FTA experiment in phenix”, *Proc. of GLOBAL2005*, 448 Tsukuba, Japan, Oct. 2-13, (2005)
- (9) H. J. MacLean Chichester., “Irradiation and Postirradiation Examination of AFC-1 Transmutation Metallic Fuels for Fast Reactors,” *Proc. of FR13*, Paris, Mar. 4-7 (2013)
- (10) C. L. Trybus et al., “Casting of Metallic Fuel Containing Minor Actinide Additions,” *J. Nucl. Mater.*, 204 50 (1993)
- (11) S. Hayes et al., “Status of Transuranic Bearing Metallic Fuel Development,” *Proc. of Global 2009*, Paris, France, Sep. 6-11 (2009)
- (12) J. I. Cole et al., “Microstructural Characterization of Cast Metallic Transmutation Fuels,” *Proc. of GLOBAL2007*, Boise, Idaho, USA, Sep. 9-13 (2007)

- (13) B.A. Hilton, ‘Postirradiation Examination of AFC-1 Metallic Transmutation Fuels at 8 at.%,’ 9th Int. Ural Seminar.
- (14) H. J. M. Chichester, ‘Irradiation and Postirradiation Examination of AFC-1 Transmutation Metallic Fuels for Fast Reactors,’ Presentation Materials for FR13, INL/CON-27053.
- (15) H. J. Ryu, et al., “Performance of FCCI barrier foils for U-Zr-X metallic fuel,” *J. Nucl. Mater.*, 392 206 (2009)
- (16) J. H. Kim, et al., “Performance of a diffusion barrier under a fuel-clad chemical interaction (FCCI),” *J. Nucl. Mater.*, 394 144 (2009)
- (17) C.C. Keiser, et al., “An Evaluation of Potential Liner Materials for Eliminating FCCI in Irradiated Metallic Nuclear Fuel Elements,” *Proc. of GLOBAL2007*, Boise, Idaho, USA, Sep. 9-13 (2007).
- (18) T. Ogata, et al., ‘ ‘Development and validation of ALFUS: An irradiation behavior analysis code for metallic fast reactor fuels,’ ’ *Nucl. Technol.*, 128, 113-123 (1999)
- (19) H. Okamoto, ‘Phase Diagrams for Binary Alloys,’ ASM International
- (20) T. Ogata, “Metal Fuel. In: Konings R.J.M., (ed.) Comprehensive Nuclear Materials” , vol 3, pp. 1-40 Amsterdam: Elsevier,
- (21) Ogata T., et al., “Metal Fuel Performance Modeling and Simulation. In: Konings R. J.M., (ed.) Comprehensive Nuclear Materials” , vol. 3, pp. 713-753 Amsterdam: Elsevier.
- (22) 中村勤也、他「高速炉用高速炉用金属燃料における液相形成温度の評価 -U-Pu/Fe 拡散対を用いた液相形成条件の解明-」 電力中央研究所 研究報告 T99081, (2000).
- (23) G.W. Egeland et al., “Reduction of FCCI effects in lanthanide-iron diffusion couples by doping with palladium, *J. Nucl. Mater.*, 440, 178 (2013)
- (24) Y. S. Kim et al., “Characterization of U-10Zr-5In, U-10Zr-5In-2Ce, U-10Zr-5Sb-2Ce,” *Int. Conf. on Fast Reactors and Related Fuel Cycles: Safe Technologies and Sustainable Scenarios (FR13) IAEA-CN-199-175*, Paris, Mar. 4-7 (2013).
- (25) G. L. Hofman and L. C. Walters, “Metallic Fast Reactor Fuels,” *Materials Science and Technology, A Comprehensive Treatment*, R. W. Cain, P. Haasen, and E. J. Kramer, Eds.; In *Nuclear Materials*, 10A, Part 1, B. R. T. FROST, Ed., VCH Verlagsgesellschaft (1994)

3.1.3 被覆管内面侵食抑制技術開発 (H27～H29)

(1) 概要

TRU 金属燃料の FCCI や被覆管減肉などによる被覆管内面侵食を防止のための内面バリア材として有効と考えられる Cr 及び V を用いて、Pu-40Zr 金属燃料と同バリア付被覆材の拡散対試験 (700°C、100 時間) を実施した。その結果、V の場合、Pu 等のバリア材への侵入はないことが確認できた。Cr の場合、粗粒化した Cr 試料表面近傍の結晶粒境界に若干、Pu が侵入したが、試験片の観察結果から試料表面の結晶粒の境界より内側への侵入はしないと考えられる。これより両バリア材候補は Pu-40Zr 燃料に対して有効であることが分かった。

また Pu-12Am-40Zr 燃料の拡散対試験を実施し、同じくバリア材の有効性を確認した。更に、H29 年度には「核廃棄物燃焼システムの検討」の一項目として Cr バリア材の時間延長拡散対試験 (700°C、200 時間) を実施し、バリア材への侵食は時間とともに鈍化することが分かり、バリア材の有効性を再確認した。

(2) 拡散対試験

①試験方法

・拡散対試験

図 3.1.3-1 に試験概念図と実験した試験ケースを示す。バリア材候補材を被覆材と燃料材の間に挟み圧力をかけて接触させる。その試料温度を一定で保持し、取り出し後、接触面を走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope :SEM) /電子線マイクロアナライザ (Electron Probe Micro Analyzer :EPMA) で物質分布を観察する。試験体のネジ部分には焼付き防止の為、 Y_2O_3 を吹き付けてコーティングした。また、Ta フォイルで覆うことで酸素を除去と試料を治具から取り外し易くした。ケース 1 では、試験片の相互作用を防ぐため Ta 箔を挟んでいる。(図 3.1.3-1 参照) なお、試験は米国アイダホ国立研究所に依頼し実施した。

・バリア材候補

クロム (Cr) 、バナジウム (V)

・燃料試料

Pu-40Zr、48Pu-12Am-40Zr (wt%)

・被覆管材

HT-9

・試験温度、試験時間

700°C (定格温度は 650°C より高く設定)

試験に用いる加熱炉は Carbolite MTF 炉 ⁽¹⁾

試験時間 100h, 200h

・バリア材厚さ

Cr 層厚さ : 50 μ m、V 層厚さ : 100 μ m

Cr については、ケース 3 の as-received 材以外は、真空焼鈍 (900h、24h) を行い、延性を高めた後に 500 μ m の箔を削り、50 μ m の厚さ調製した。表面仕上げは 0.25 μ m

である。V については 125 μm の箔を削り、100 μm の厚さにした。表面仕上げは 0.25 μm である。燃料試料表面は 1 μm で鏡面仕上げをしている。

・測定方法

測定には、SEM (JEOL-700) を用い、SEM 写真と EDS、WDS による境界部のラインスキャン、元素マップによる元素分析を行った。また、ケース 2 の Cr-燃料の境界については収束イオンビーム (Focused Ion Beam :FIB) (Dual beam Quanta 3D/FEI 社製) による試料を取出し、透過型電子顕微鏡 (Transmission Electron Microscope : TEM) による詳細観察を行った。

②試験結果

・ケース 1⁽¹⁾

Cr バリアと燃料 (Pu-40Zr) の境界での元素マップとラインスキャン結果を、図 3.1.3-2 と図 3.1.3-3 に示す。図 3.1.3-2 に示す様に Cr バリアに Zr-finger (Zr が Cr 内に指状に侵入したもの) が発生している。Zr-finger の先端近くには、Pu の析出も生じている。また、燃料—Cr 境界近傍では Cr バリアに近いところに Zr-rich 層が形成され、その外側 (燃料側) には Cr 濃度が高い領域が存在している。

V について図 3.1.3-4 と図 3.1.3-5 に示すが、Cr の場合に発生した Zr-Finger は見られないが、Zr-rich 層は形成されている。その Zr-rich の領域では V が燃料側に僅かに移行している領域がある。

なお、被覆管材—Cr 及び V の境界には各元素の移行などは発生していない。

・ケース 2⁽²⁾

Cr バリアと燃料 (48Pu-12Am-40Zr) の境界での元素マップとラインスキャンの結果を図 3.1.3-6 と図 3.1.3-7 に示す。Pu-40Zr の場合と同様、Zr-finger や Zr-rich 層が形成されている。Cr は境界層領域で漸減し、燃料領域には移行していない。図 3.1.3-8 は Zr-finger 部の拡大図であるが、Pu-40Zr と同じように Finger 内部に Pu、Am の析出が見られる。V については図 3.1.3-9 と図 3.1.3-10 に示すが、Cr と同様、V バリアに近い領域で Zr-rich 層が形成されているが、Zr-finger や Pu、Am の析出は見られない。また V は境界層内で漸減している領域があることがわかる。なお、Zr-rich 層よりも燃料側では、Zr 量が減少し相対的に Pu-Am が増加した Pu-Am-rich 領域が形成されている。

・ケース 3

ケース 1、2 において、Cr バリアでは Cr バリアの表面に Zr-finger が発生している。その原因として Cr のサンプル厚さ調整において Cr 材に 900°C でアニール処理をすることにより Cr の結晶粒が粗大化するとともに結晶粒界に Cr 酸化物が生じ、拡散対試験中に Zr が酸素を Cr 酸化物から奪うとともに、Zr が Cr バリアの結晶粒界内に侵入したことにより発生している可能性が考えられた。このため、ケース 3 では、Cr 材としてアニールしていない受け入れ材 (As-received 材) と、ケース 1、2 と同じくアニール処理を行った Cr 材の 2 種類のバリア材を用い、ケース 1、2 より試験時間を 100h から 200h に 2 倍にした拡散対試験を行った。用いた燃料は Pu-12Am-40Zr である。

受け入れ材の SEM 観察結果を図 3.1.3-11 と図 3.1.3-12 に示す。As-received 材では、

その他のケースにはない Cr 層の亀裂が生じている。境界部には、ケース 1 や 2 と同様、Zr-Finger、Zr-rich 層、Cr-rich 層が生じている。EDS による元素分布測定結果を図 3.1.3-13 に示す。Cr 層から燃料内部に向かうと、Zr-rich 層、Cr-rich 層の順で形成されている。Cr (アニール材) の場合についての SEM 観察結果を図 3.1.3-14 と図 3.1.3-15 に、EDS による元素分布測定結果を図 3.1.3-16 に示す。境界部から燃料側に向けて Zr-rich 層と Cr-rich 層が形成されている。

受け入れ材、アニール材ともに、Zr-Finger が発生しているがケース 1 や 2 に比較すると明確ではない。またバリア材と燃料の境界部の反応層厚さは、ケース 2 で平均 $1.55\ \mu\text{m}$ 、ケース 3 で平均 $2.08\ \mu\text{m}$ であり、初期の 100 時間より、次の 100 時間の方が反応層の成長が小さくなり、反応が飽和する傾向にあることがわかる。

次項では、これらの挙動メカニズムについて総合的に検討評価する。

(3) 挙動の考察

Cr-燃料境界では、Cr 層内へ Zr-Finger が発生し、Cr-燃料の境界から燃料側には Zr-rich 層と Cr-rich 層が形成される。V バリアの場合は Zr-Finger は生じないが、V-燃料境界から燃料側に Zr-rich 層が形成され、V-rich 層は生じないが V が Zr-rich 層内で僅かに燃料側に移行している。

この燃料-バリア境界付近の元素挙動を模式図として図 3.1.3-17 に示す。

図 3.1.2-17 の①初期状態は、拡散対試験前の、燃料とバリア材が表面仕上げされた状態をしめす。サンプル準備段階でのバリア材と燃料の研磨は空気中で実施された為、Cr の場合は Cr_2O_3 層が $1\ \mu\text{m}$ ~数 μm 形成され⁽³⁾、V の場合は VO_2 が形成されると考えられる。燃料表面には ZrO_2 の層が生じており、燃料内には Zr の含有率が高い Zr インクルージョン領域がある。概念図では初期状態として Zr インクルージョンが燃料内部に分散していることが示した。なお、この段階で試料は空気にさらされているが、表面の酸化膜の厚さは μm オーダ以上にならないと考えられる。この理由は TEM 試料についても切り出した後に、空気中で数日保管されているが、酸化層は増加していないからである。

②で燃料とバリア材の表面を接触させ加熱装置にセットして Ar ガス雰囲気中で加熱試験 (拡散対試験) が開始される。

③において拡散対試験にて昇温すると、バリア材や燃料表面の酸化膜は各元素の Gibbs の自由エネルギーの差により酸素は燃料表面領域から移動し内側の Zr や Pu、Am と酸化物を形成する。高温 (700°C) では、図 3.1.13-18 に示す Gibbs の自由エネルギーによれば Pu よりも Zr のほうが酸化されやすい為、燃料内部の Zr インクルージョン中の金属 Zr は酸化され ZrO_2 になり、 ZrO_2 の周囲に Zr が集合し安定した α -Zr の Zr-rich 領域が形成される。その結果、Zr-インクルージョンは小さくなる。また Zr-rich 層中に Pu や Am の酸化物も形成される。この Zr-rich 層の酸素濃度はそれほど高くないことが図 3.1.3-19 の V-Pu-Am-Zr 燃料境界層に示されており、ナノスケールの ZrO_2 粒とその周りに α -Zr が集合して Zr-rich 層が形成されていると推定される。

なお、Zr-rich 層は Pu-40Zr の方が Pu-Am-40Zr の場合より図 3.1.3-20 に示す様に厚い。この原因は、ケース 1 の試験では Cr 層と燃料の分離があり、グローブボックスの中の不

純物の酸素が入り込み大きくなった可能性がある。また、Pu-40Zr 燃料に見られた空孔が酸素を供給した可能性もある。これよりケース 2、3 ではバリア材と燃料ができるだけ接触させるようにより注意した試験した。

④で昇温後時間が経過した場合、Cr バリアの場合は、Cr 表面近傍の結晶粒界の Cr 酸化膜 (Cr_2O_3) に向かい金属 Zr 等が移動する。その結果、Cr 層の結晶粒界中の Cr_2O_3 が金属 Zr により還元され ZrO_2 を形成し、 ZrO_2 は更に金属 Zr を呼び込み α -Zr として安定し Zr-Finger を形成すると考えられる。このように Zr は酸素濃度の高い方向すなわち Cr の結晶粒界に沿って移動する。また、Pu 及び Am も酸素濃度が高い方向に移動し、これらも酸化物として析出していると考えられる。これら挙動は、Am/ AO_2 、Pu/ PuO_2 、Zr/ ZrO_2 、及び Cr/ Cr_2O_3 の Gibbs の自由エネルギーが各々-1000、-925、-950、-600KJ/mol O_2 (700°C) であり、Cr より Zr、Pu、Am のほうが酸化されやすいためと考えられる。なお、Pu 及び Am の酸化物は、既往研究^{(6),(7)}で示されている関連の相図等から $\text{PuO}_{1.6}$ 、 PuO_{2-x} 、 Pu_2O_3 、 Am_2O_3 、 AmO_2 の可能性が考えられる。

Zr-rich 層の燃料側に生ずる Cr-rich 層は、酸素を奪われた Cr 自由金属が燃料側に移動して、 Cr_2Zr を形成したと図 3.1.3-16 から推定される。

バリア材と燃料の境界部の反応層の厚さは、Pu-12Am-40Zr を用いた 100h と 200h の拡散対試験結果を比較すると、100h で $1.55\mu\text{m}$ 、200h で $2.08\mu\text{m}$ であり、反応層の進展速度は低下している。上記の挙動の考察から、いずれの反応挙動も体系中での酸素の存在が起因となっているため、バリア材と燃料の表面の初期の酸化膜中の酸素を Zr-rich 層の形成などによりすべて消費しつくすと、金属 Zr や Pu、Am 等の移動が起こらなくなり、これらの元素のバリア材への侵入は停止すると考えられる。したがって、バリア材としての機能が維持されると判断できる。また、燃料製造段階での酸素の混入（材料酸化）をできるだけ抑制することが反応層拡大防止に重要であると考えられる。

⑤の V バリアの場合、 VO_2 、 V_2O_5 、 ZrO_2 の酸素ポテンシャルは、各々-702、-719、-960 KJ/mol O_2 であり、Cr と同様に Zr の移動等が生じ、Pu や Am の析出物は Zr-rich 層の結晶粒界に沿って生じている。また、この Zr-Finger が生じない理由は明確ではないが、V の結晶粒径が Cr と異なることが原因ではないかと推測される。また Zr-rich 層内の V は、V 酸化物の酸素が Zr や Pu、Am 等により還元され、遊離した金属 V が移動したものと考えられる。

なお、Cr、V とともに、金属 Pu との 2 相状態図では、620°C、625°C で Pu と共晶が生じるとされているが、実際の試験では共晶反応は起きていない。その理由は、燃料とバリア材の境界部では上述の様に、Zr の存在や Pu 酸化物の生成等により、状態図の前提となっている金属 Pu との単純な 2 相状態ではないことによるものと推測される。

以上の挙動メカニズムの考察から、被覆管内面に V や Cr のバリア材を導入した場合には、燃料製造中の酸素の混入を最小限に抑制することにより、バリア材への Zr や燃料の侵食を防止できることがわかった。

(4) 結論

TRU 金属燃料の FCCI や被覆管減肉などによる被覆管内面侵食を防止のための内面バリア材として有効と考えられる Cr 及び V を用いて、Pu-40Zr 金属燃料と同バリア付被覆材の拡散対試験 (700°C、100 時間) を実施した。その結果、V の場合、Pu 等のバリア材への侵入はないことが確認できた。Cr の場合、粗粒化した Cr 試料表面近傍の結晶粒境界に若干、Pu が侵入したが、試験片の観察結果から試料表面の結晶粒の境界より内側への侵入はしないと考えられる。これより両バリア材候補は Pu-40Zr 燃料に対して有効であることが分かった。

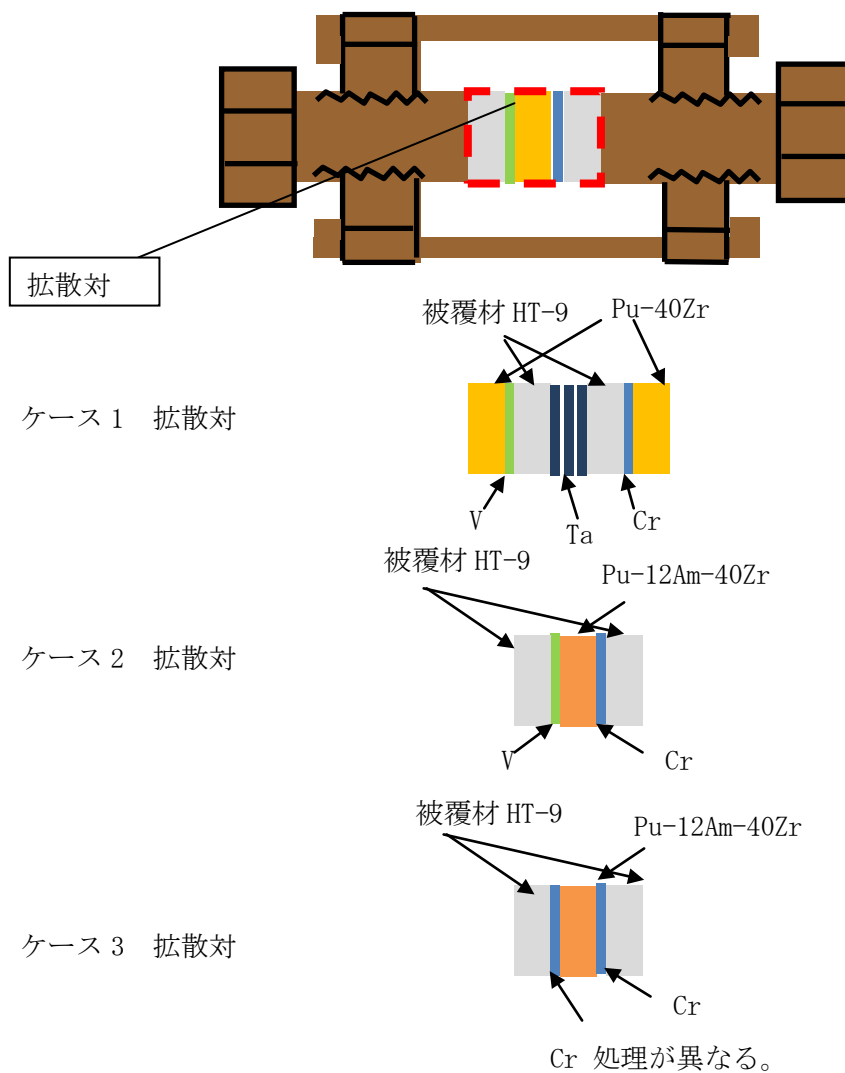
また、Pu-12Am-40Zr 燃料の拡散対試験を実施し、同じくバリア材の有効性を確認した。

更に、H29 年度に「核廃棄物燃焼システム」の一項目として Cr バリア材の時間延長拡散対試験 (700°C、200 時間) を実施し、バリア材への侵食は時間とともに鈍化することが分かり、バリア材の有効性を再確認した。

なお、これらの試験はアイダホ国立研究所の Brandon Miller、Jeff Aguiar らにより実施され、試験結果の評価・考察についても彼らとともに実施した。

参考文献

- (1)原子力システム研究開発事業「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」平成 27 年度成果報告書(2016)
- (2)原子力システム研究開発事業「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」平成 28 年度成果報告書(2017)
- (3)Oxidation or nitration behavior of pure chromium and chromium alloys containing 10 mass%Ni or Fe in atmospheric heating. K. Taneichi, T. Narushima, Y. Iguchi, C. Ouchi. 10, 2006, Materials Transactions, Vol. 47, pp. 2540-2546.
- (4)The chemical state of the fission products in oxide fuels. Kleykamp, H. 1985, Journal of Nuclear Materials, Vol. 131, pp. 221-246.
- (5)Zr inclusion in actinide-Zr alloys: New data and ideas about how they form. D. E. Janney, T. P. O'Holleran. 2015, Journal of Nuclear Materials, Vol. 460, pp. 13-15.
- (6)R. L. Miller, G. A. Reimann. Thermodynamics of gas-metal-slag equilibria for applications in in-situ and ex-situ vitrification melts. s.l. : Idaho National Engineering Laboratory, 1993.
http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/25/003/25003593.pdf.
- (7)Thermodynamic data for plutonium oxide. T. L. Markin, M. H. Rand. Vienna : s.n., 1965. Thermodynamics Vol. 1. Vol. 1, pp. 145-156.



試験ケース

ケース	燃料	温度 (°C)	時間 (h)	バリア材
1	Pu-40Zr	700	100	V、Cr
2	48Pu-12Am-40Zr	700	100	V、Cr
3	48Pu-12Am-40Zr	700	200	Cr、Cr(as-received)

図 3.1.3-1 試験概念

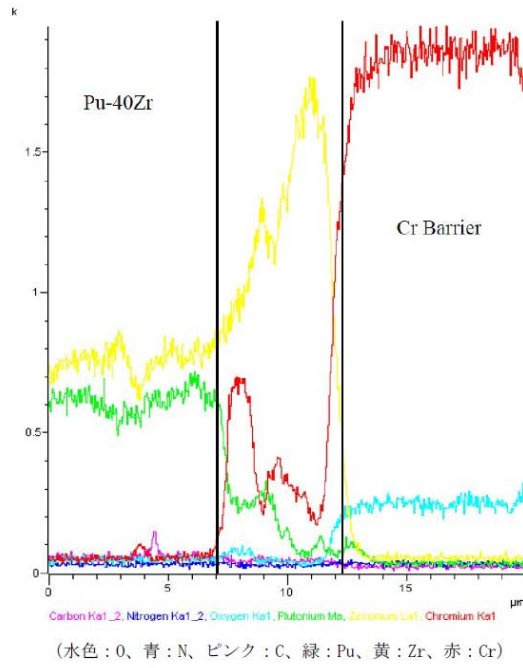
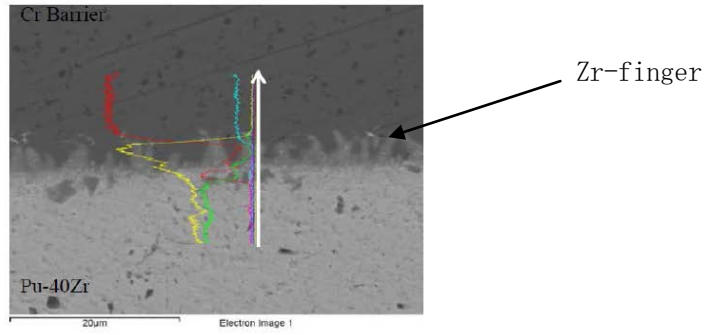


図 3. 1. 3-2 Cr-燃料境界でのラインスキャン結果 (ケース 1)

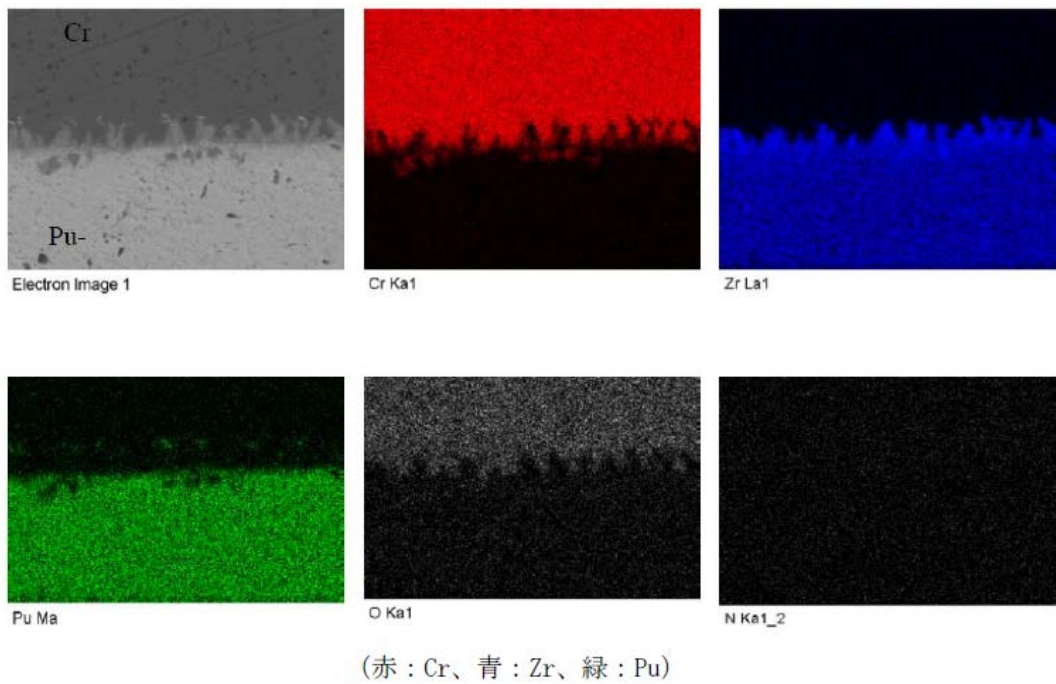


図 3. 1. 3-3 Cr-燃料境界での元素マップ (ケース 1)

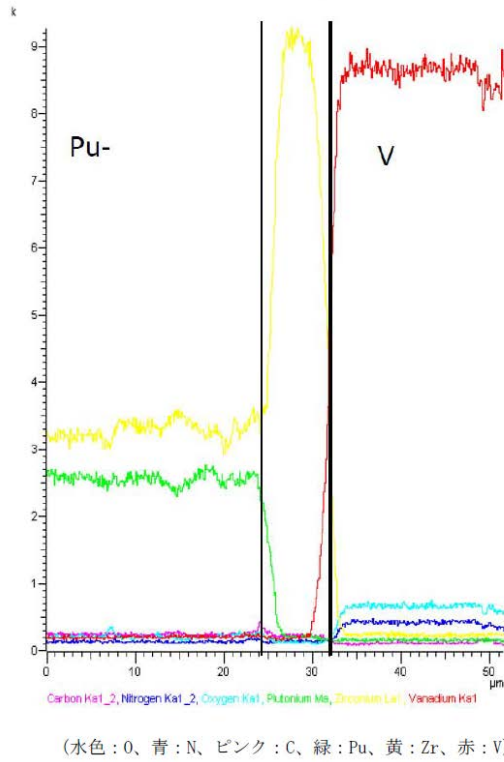
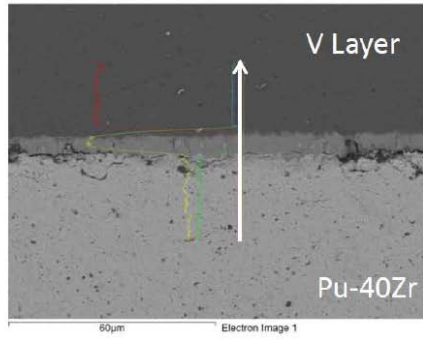


図 3. 1. 3-4 V-燃料境界でのラインスキャン結果 (ケース 1)

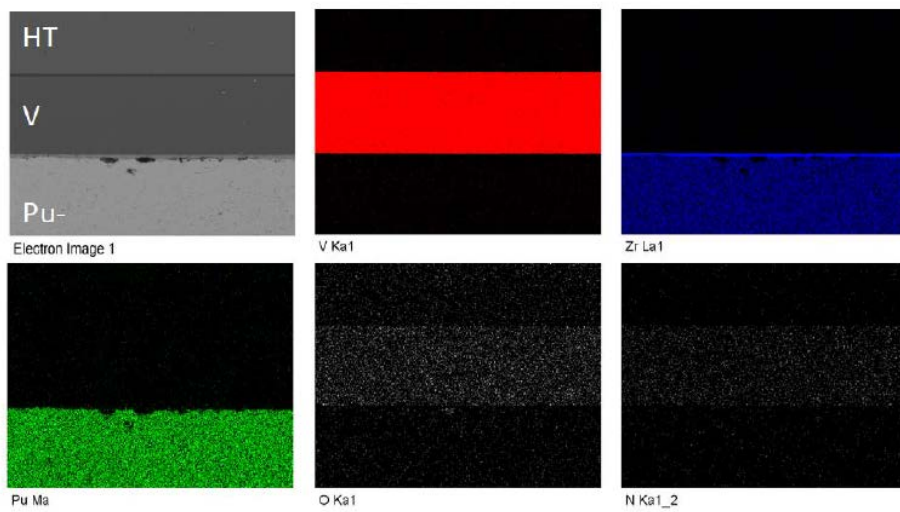


図 3. 1. 3-5 V-燃料境界での元素マップ (ケース 1)

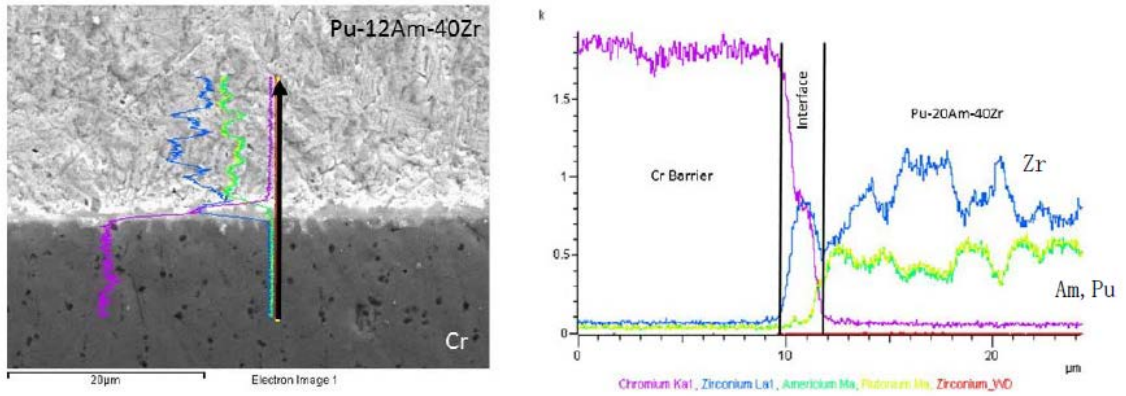


図 3. 1. 3-6 Cr-燃料 (Pu-12Am-40Zr) 境界のラインスキャン (ケース 2)

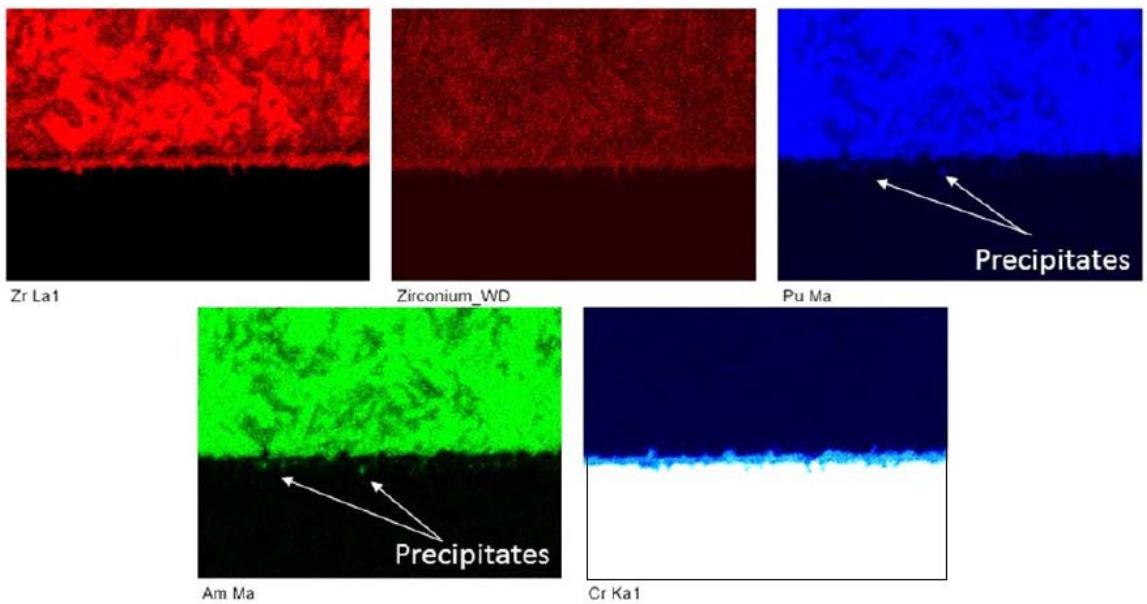
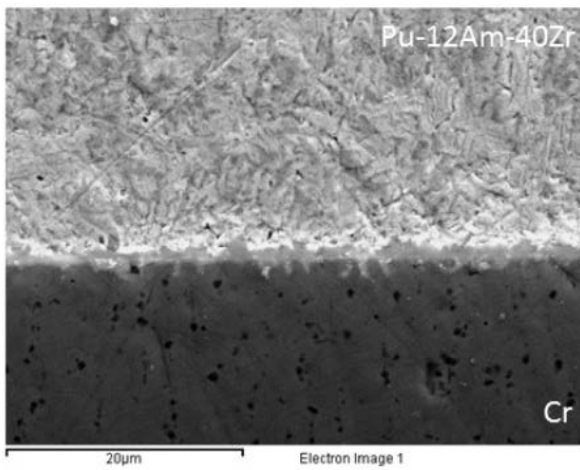
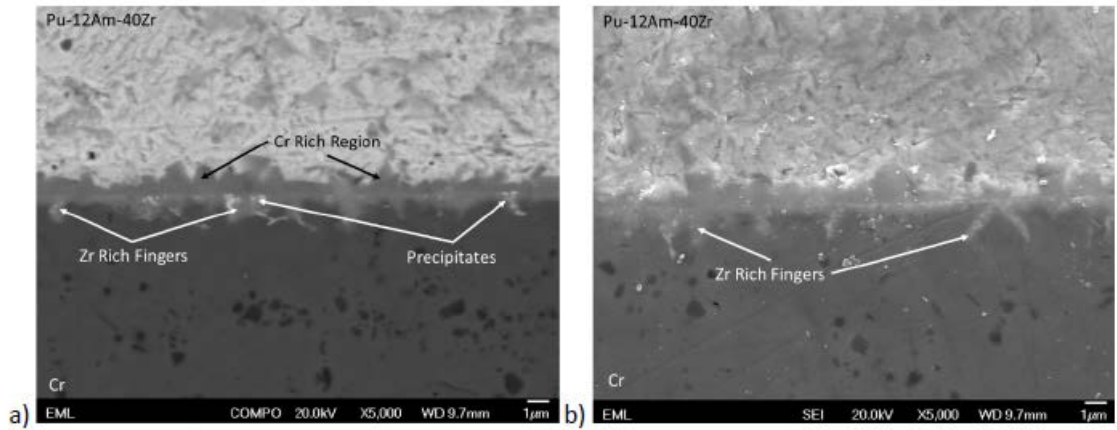


図 3. 1. 3-7 Cr-燃料 (Pu-12Am-40Zr) 境界の元素マップ (ケース 2)



a) BSE、b) SEI

図 3. 1. 3-8 Pu-12Am-40Zr/Cr の境界部の SEM による拡大図 (ケース 2)

Zr-Finger 部に Pu, Am の析出物がある。

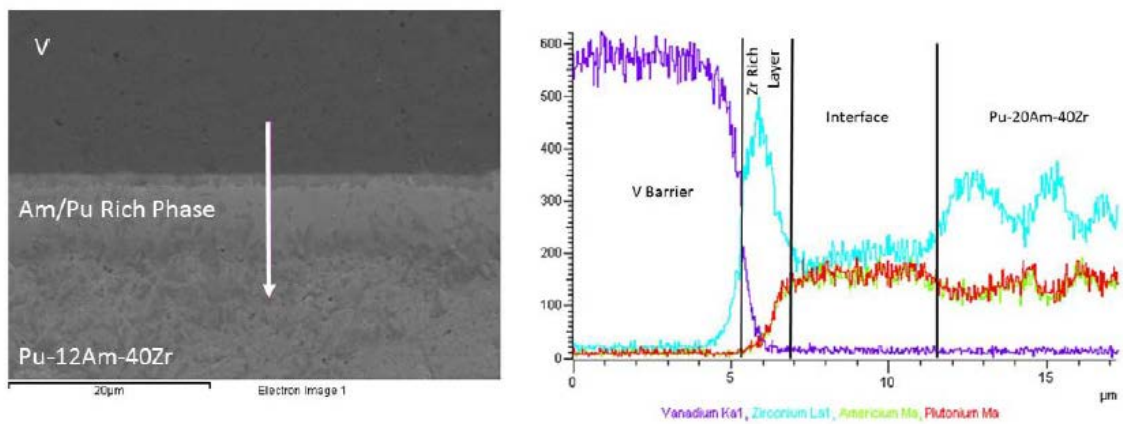


図 3. 1. 3-9 V-燃料 (Pu-12Am-40Zr) 境界のラインスキャン (ケース 2)

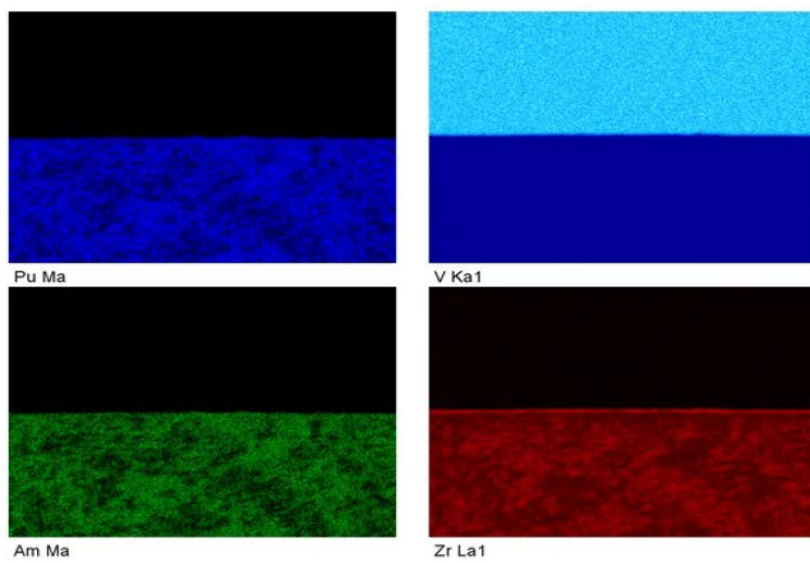
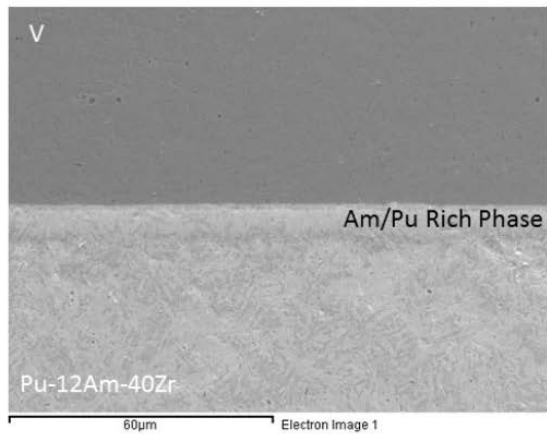


図 3. 1. 3-10 V-燃料 (Pu-12Am-40Zr) 境界の元素マップ (ケース 2)

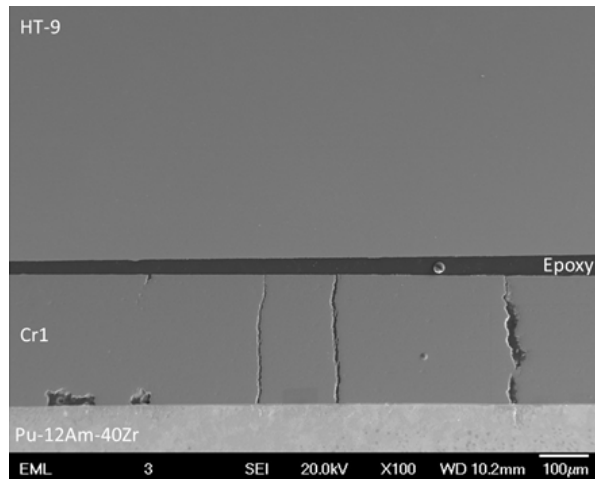


図 3. 1. 3-11 Cr (受け入れ材) -燃料の試験後の状態 (ケース 3)

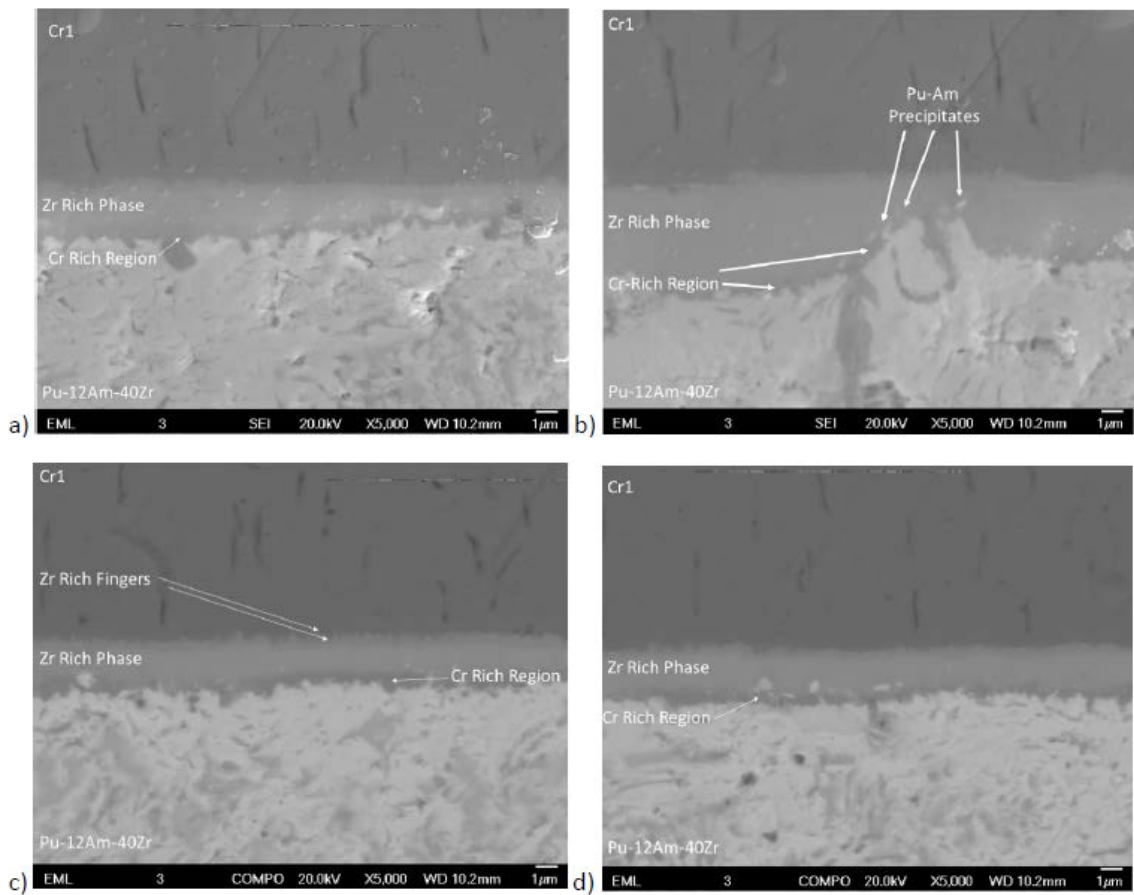


図 3. 1. 3-12 Cr (as-received)-燃料境界部の拡大図 (ケース 3)

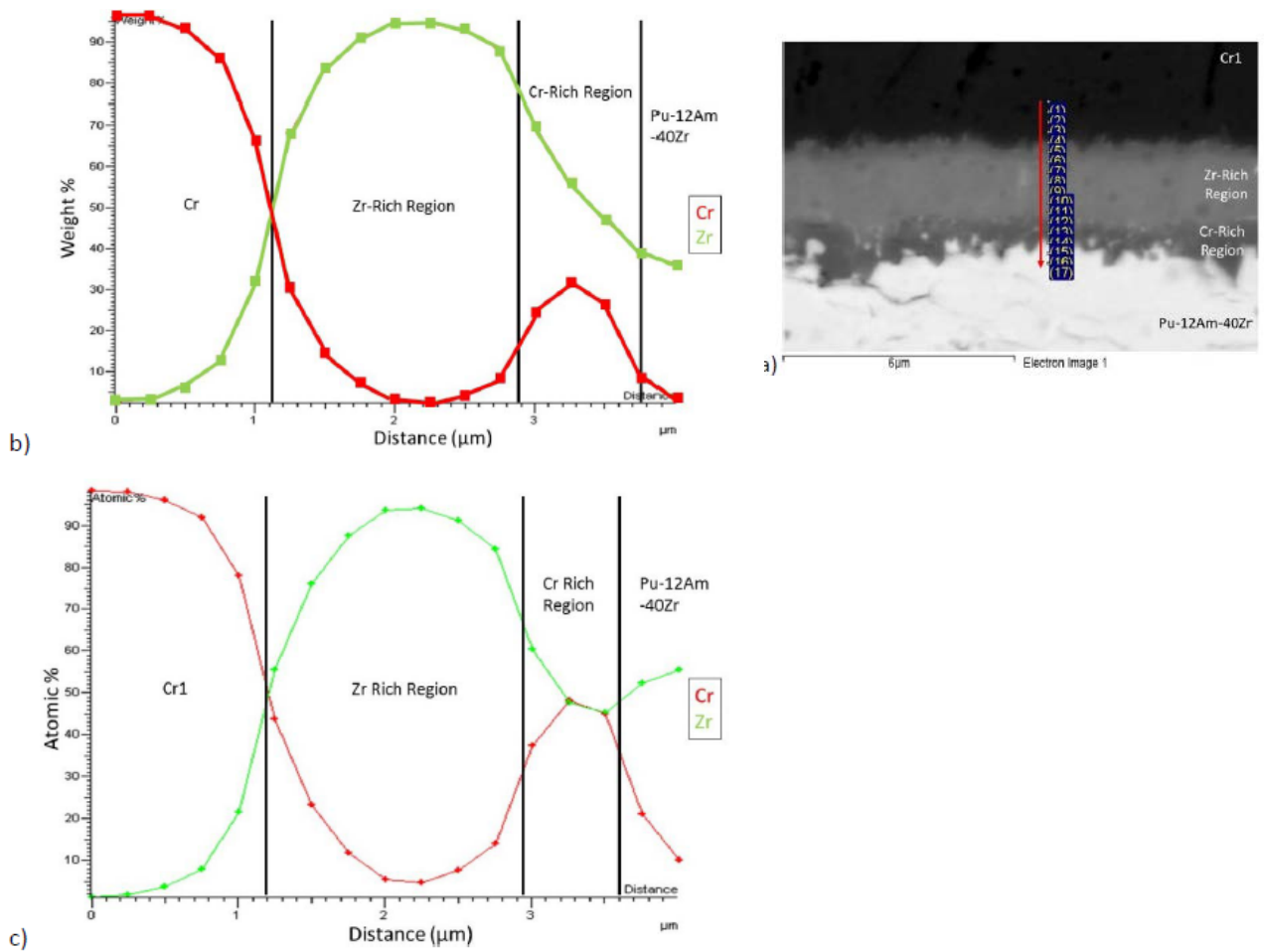


図 3.1.3-13 Cr-燃料境界のEDSの結果 (ケース3 as-received)

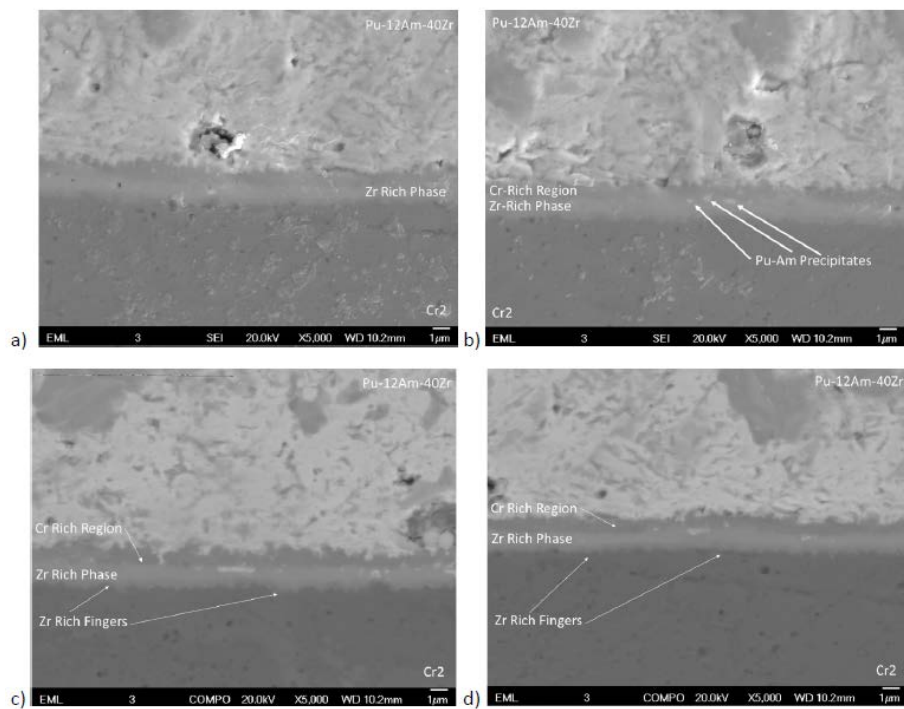
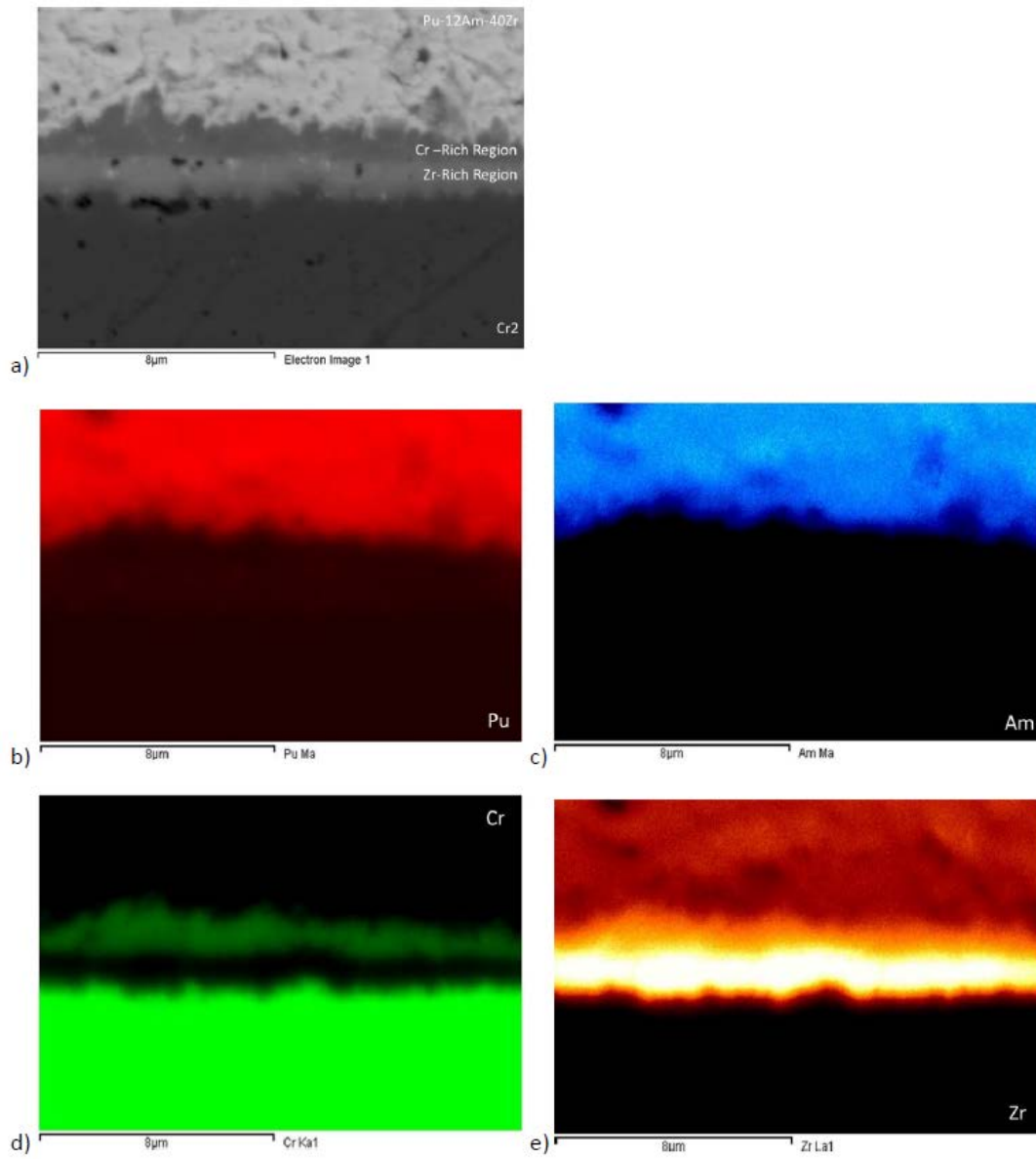
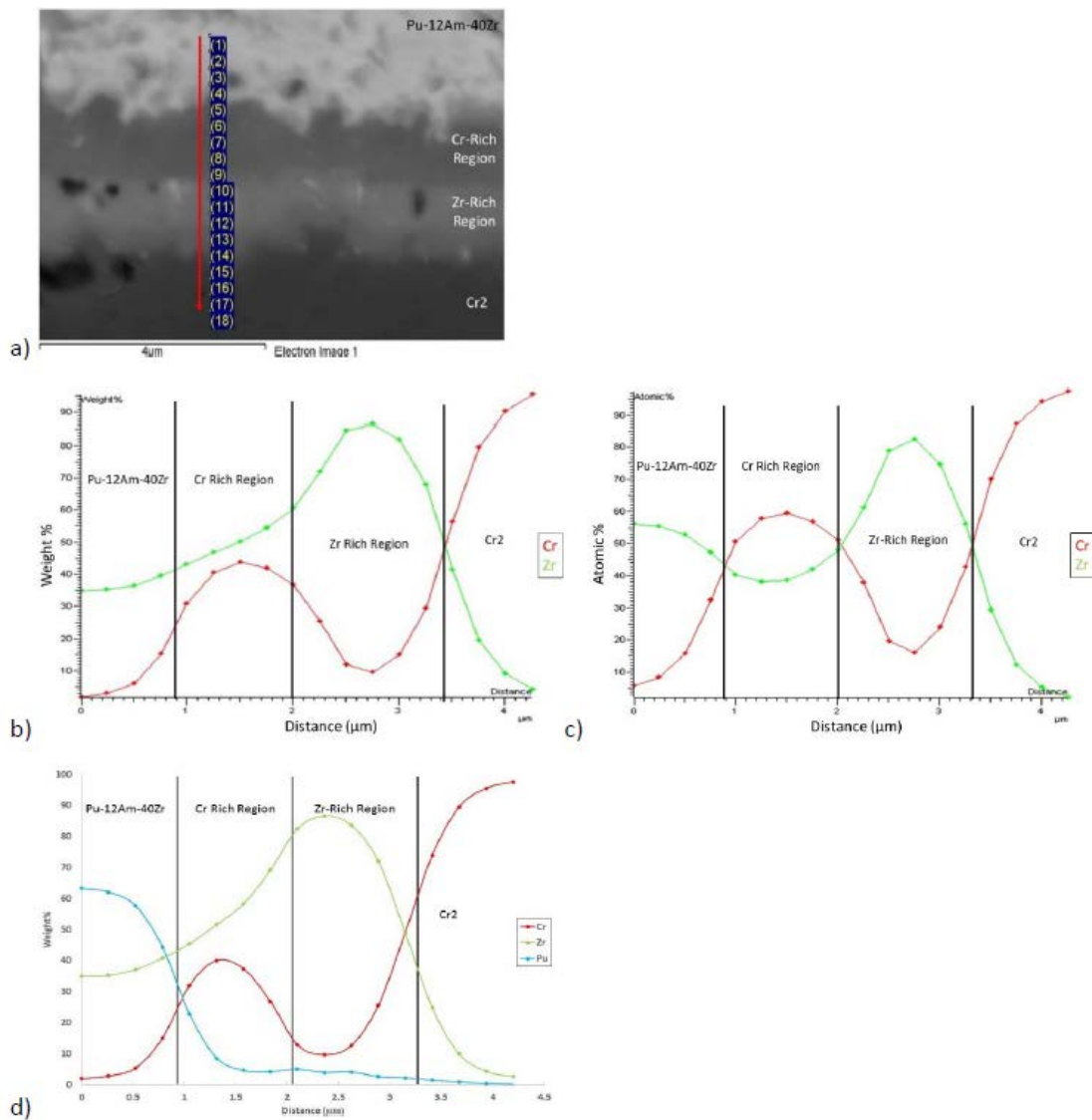


図 3.1.3-14 Cr(アニール材)-燃料境界部の拡大図 (ケース3)



b) Pu、c) Am、d) Cr、e) Zr

図 3.1.3-15 Cr(アニール材)-燃料境界部元素マップ (ケース 3)



b) wt% c) at%

図 3. 1. 3-16 Cr (アニール材) -燃料境界の EDS の結果

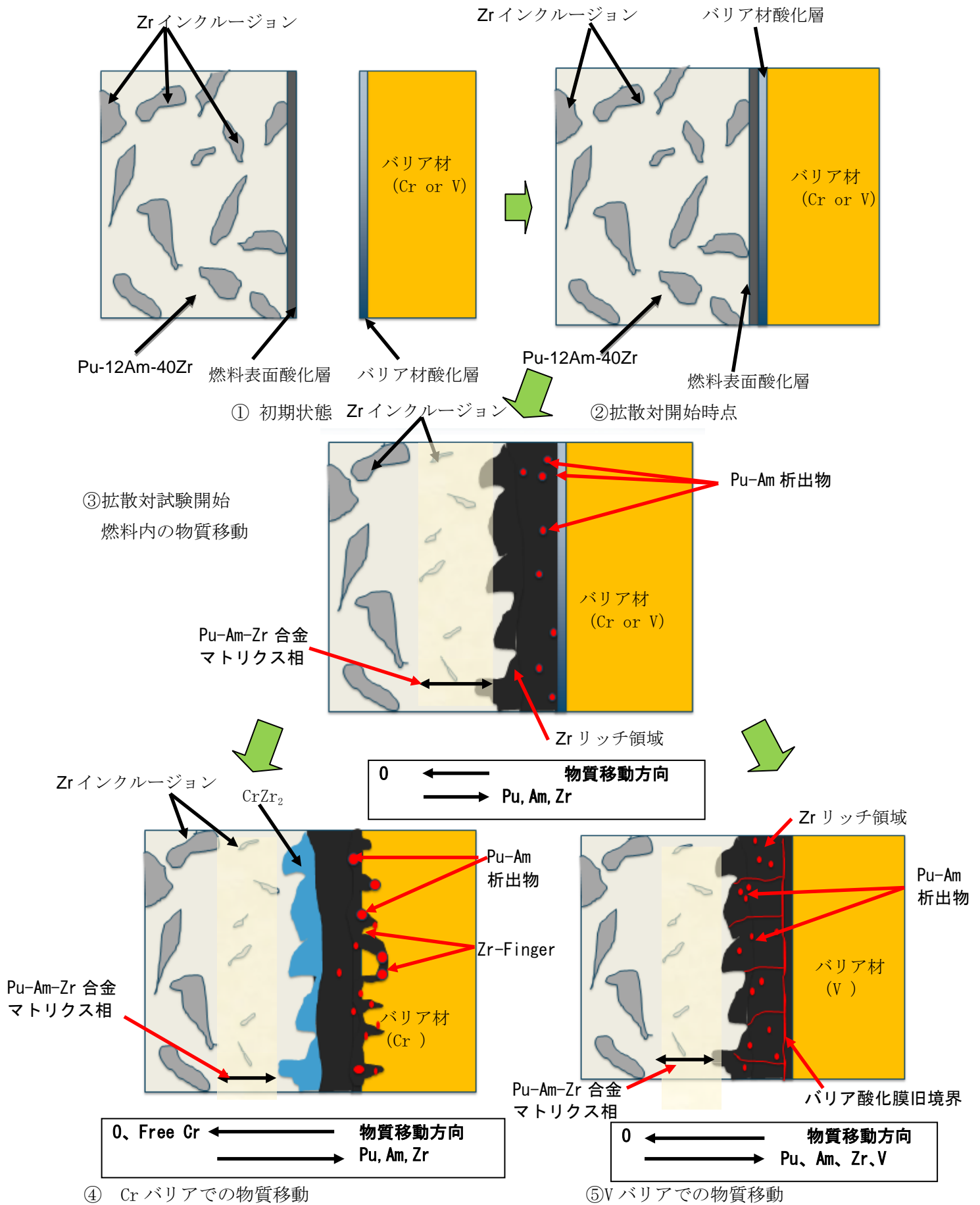


図 3. 1. 3-17 バリアと燃料境界の物質挙動模式図

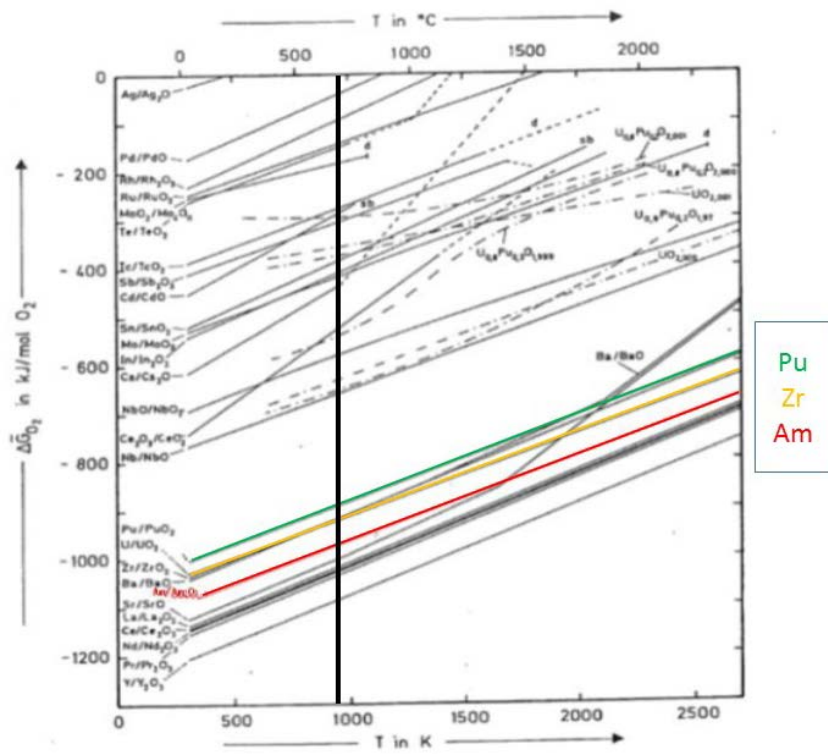


図 3.1.3-18 酸化物の Gibbs 自由エネルギー⁽⁴⁾

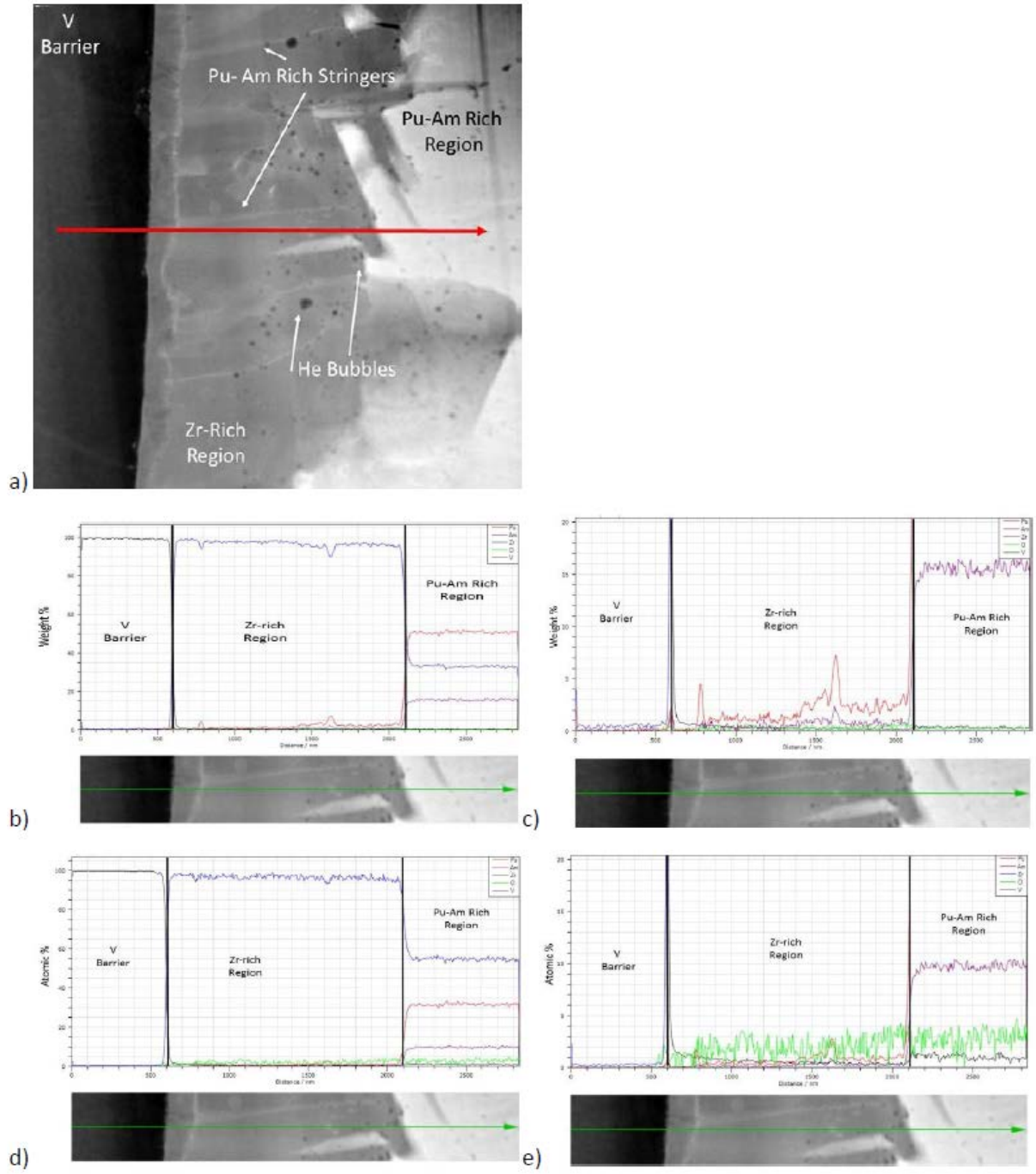
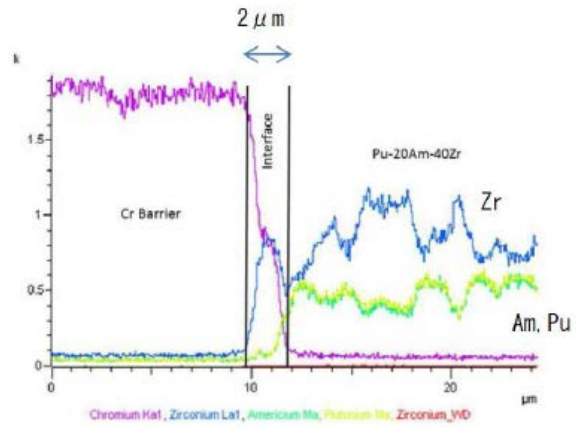
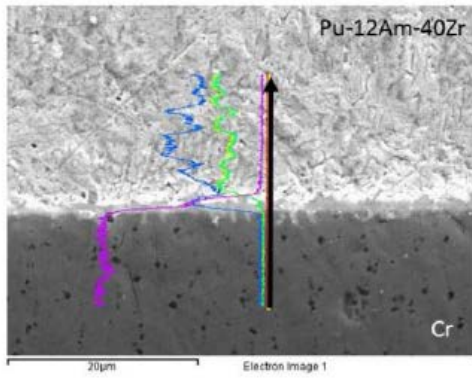


図 3. 1. 3-19 V-Pu-Am-40Zr 境界の Zr-rich 層の物質分布

○ Pu-12Am-40Zr



○ Pu-40Zr (JY2015 report*)

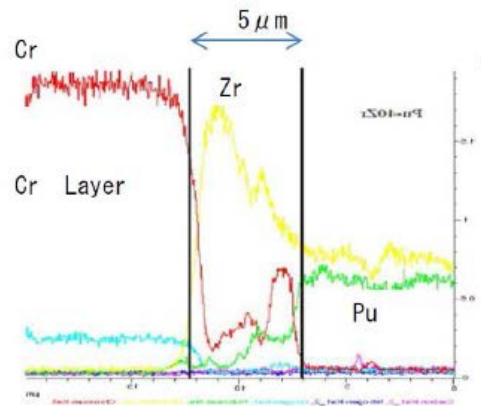
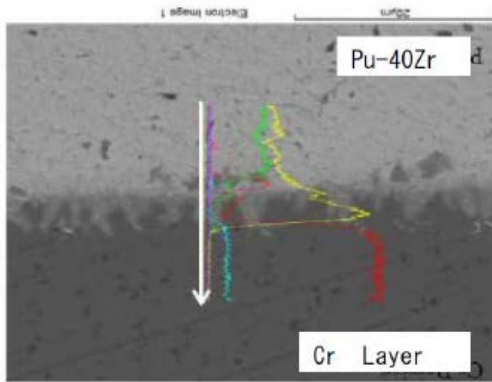


図 3. 1. 3-20 Pu-40Zr と Pu-12Am-40Zr での Zr-rich 層の比較

3.1.4 RE 混入量制限値評価 (H26、H27 年 東芝、H28 年 再委託先 福井大学)

(1) 概要

U を含まない TRU 金属燃料では再処理回収燃料への RE の混入量が多くなる可能性があり、その RE が新燃料製造の燃料合金溶解時に均一に混合しないと、燃料の照射健全性に悪影響を与える可能性がある。このため、新燃料中の RE 混入量制限値を設定することを目的として、代表的な RE として Ce 及び Nd を用いた試験等により、燃料への RE 溶解挙動を評価した。

具体的には、まず始めに RE 量をパラメータとした U-Zr に対する溶解試験を実施した。その結果、Ce の溶解量は Zr の影響はなく U-Ce の 2 元系状態図から推定される値と一致したが、Nd の場合、U-Nd の 2 元系状態図から推定される値より多く溶解することを確認した。この結果から、TRU-Zr 金属燃料への RE の溶解量は Zr による溶解量増加効果を考慮しないで燃料主成分である Pu と各 RE 元素の 2 元系状態図に基づき設定すれば保守側であり、RE を均一に溶解できる混入量は約 10%であることが分かった。一方、固化する際の偏析に関しては、従来の U-Pu-MA-Zr 燃料製造経験から RE 混入量は 2%以下であれば偏析しないことが確認されている。したがって、本研究では、RE が均一な TRU 金属燃料が製造できる条件として、リサイクル燃料の RE 混入量制限値を 2%と設定した。(H26、27 年度：東芝)

更に H28 年度からは、上記 Nd のように、燃料と Nd の 2 元系状態図から推測される RE 溶解量よりも多く溶解するメカニズムを把握するために、燃料の模擬物質として Nb 等を用いて RE (Nd) の溶解試験を実施した。その結果、Nb-Zr-Nd による試験では、液相中では Nd は Zr 中に溶けており、Nb と Zr も溶け合うことから明確な相分離はせずに母材への溶解限度を超えて均一な液相となっていることが確認された。すなわち、燃料合金材である Zr が介在することで、Nd の溶解量は増加することを確認した。(H28 年度：福井大)

(2) RE 溶解試験

①RE の代表核種選定と TRU 燃料模擬について

電解精製では回収燃料に混入しやすい RE 核種は Pr、Pm、Nd、Ce 等であり、その中で 80%を占める Nd、Ce を RE の代表核種とした。⁽¹⁾ TRU-Zr 燃料は U-Zr 燃料で模擬する。なお、Pu-Ce、Pu-Nd の 2 元系状態図と U-Ce、U-Nd の 2 元系状態図を比較すると⁽²⁾、U に対する Ce 及び Nd の溶解量は Pu よりも小さいことから、U-Zr 燃料への RE の溶解量は保守側の評価になると考えられる。

②溶解試験方法

既存の金属燃料射出成型装置を用いて、U-Zr への RE の溶解試験を実施した。RE を添加して溶解した試料は、るつぼの上/下部と径方向それぞれ 3 ケ所にガラスピンを同時に挿入してサンプル採取して分析することにより、均一に溶解していることを確認した。⁽¹⁾

③試験結果

代表核種の比率は使用済み燃料の組成比から Ce、Nd=1:1.6 として、U-Zr 燃料に添加した。それぞれの溶解量を整理すると、Ce の U-10Zr への溶解量は、表 3.1.4-1 と図 3.1.4-1 に示すように、約 3%で 2 元相図による U 単体への溶解量にほぼ等しい。一方、Nd の場合は、状態図から読み取れる U 単体に対する溶解量 (<0.5%) よりも大きく、Zr も共

存することによる溶解量の増加がみられた。

そこで、Nd 単体を U 単体及び U-10Zr に添加して挙動を見ると、U 単体では溶解量は約 0.14% とほぼ 2 元系の状態図から予測される値に近い⁽²⁾。しかしながら、U-10Zr については表 3.1.3-2 と図 3.1.3-2 に示すように溶解量が添加量に依存し増加した後、飽和する挙動が見られた。これは、U-Zr-Nd の 3 元系で U-Zr、Nd-Zr の相互の溶解量が 100% に近いが、U-Nd の 2 元系の液体状態での溶解量は 0.14% 程度と相互に反発しあう状態になっていることが原因していると推定される。ただし、このことを更に確認するために、U の模擬物質として Nd、Cr 等を用いた試験研究を福井大学にて実施した結果は(4)に示す。

(3) RE 混入量制限値評価

①射出成型における RE の均一性

TRU-Zr 溶融燃料中に RE が均一に溶解すると射出成型時にモールドに均一に流れ込み固化することから、軸方向に均一な燃料が形成される。RE の大部分を占める Pr、Pm、Nd、Ce の重量比と Pu への溶解量を以下の表に示す

ここで b/a は、各 RE を a の重量比の割合で Pu に溶かす場合に、溶解できる各 RE 量の相対値であり、全 RE が均一に溶解するためには、この b/a の値が最も小さい Nd が制限核種になることが分かる。

核種	重量比 a	Pu=1 への溶解量 b	b/a
Nd	0.512	~0.1	0.195
Ce	0.314	1	3 以上
Pr	0.160	約 0.05	0.312
Pm	0.0137	約 0.1	7.3

したがって、TRU-40Zr 燃料では Pu の割合は 0.52 であるので

$$0.195 \times 0.52 = 0.1 \text{ となり } 10\% \text{ が制限値となる。}$$

②金属燃料固化時の偏析防止

金属燃料固化時の偏析防止について RE 濃度 2-5% では、RE の偏析は生じていない。

③制限値の設定

上述の①、②より、制限値としては偏析防止から 5% とできるが、再処理との取り合い等の為、制限値は偏析防止の保守側に、

$$\text{RE 制限値 } 2\%$$

とする。またこれにより RE は均質に溶解し偏析も防げることから、局所的な RE の濃度は平均に対し ±20% 以内になると考えられる。

(4) RE 溶解挙動評価試験

(3) で示したように、Nd が燃料と Nd の 2 元系状態図から推測される RE 溶解量よりも多く溶解するメカニズムを把握するために、燃料の模擬物質として Nb 及び Cr を用いて RE (Nd) の溶解試験を実施した。その結果、Nb-Zr-Nd による試験では、液相中では Nd は Zr 中に溶けており、Nb と Zr も溶け合うことから明確な相分離はせずに母材への溶解限度を超えて均

一な液相となっていることが確認された⁽³⁾。メカニズムの想定を以下に示す。

- i : 液相中では Nd は Zr 中に溶けており、U-Zr も溶け合うことから明確な相分離はせずにある程度一様な液相となっている。(更に、誘導加熱による攪拌効果もあり、分離しにくい状態)
- ii : 射出鋳造時には均質な液相が送り込まれ、急冷されて固化する。その際、U-Zr は全率固溶の固相を形成するが Nd は固溶しにくいいため粒界に析出する。

上述のようなプロセスの場合、射出鋳造サンプルを溶かして成分分析を実施すると固溶限以上の添加物が検出されるため、(3)に示した実験結果を説明できる。Nd と Ce の挙動の差異については、液相中での添加物の分離性が影響を与える。Ce の場合、Zr と液体中で溶け合いにくく分離していると考えられる。その際、純粋な Ce は酸化しやすく装置内の残留酸素と結合して酸化物となり、溶解限度以上の余分な Ce は液相中から除去され、射出鋳造サンプルには液相中での溶解限度以上の Ce が観測されなかったと考えられる。

一方、Nd は Zr 中に溶け込み活量が小さくなったため酸化による分離はあまり発生せず溶解限度以上の Nd が射出鋳造サンプル中に残ったと考えられる。

燃料合金材である Zr が介在することで、Nd の溶解量が増加すると考えられる。このメカニズムを確認するため、急冷試料の Zr の局所的な濃度変化を評価し、RE 添加量によるその変化を調べた。図 3.1.4-3 に示すように SEM-EDS データから Zr 濃度の数値データを取得し、その位置変化量から濃度変化割合を評価した。その変化割合の分布が RE 添加量でどう変わるかをまとめたものを図 3.1.4-4 及び-5 に示す。RE 添加量が増すと Zr 濃度の変化が急になる傾向が見られた。これらの結果から、熔融金属が急冷されて固化する際には、液-液 2 相となる Nb と RE は反発の相互作用が働くが、双方と引力の相互作用を持つ Zr が介在することによって Nb と RE 間の反発力を弱めるものと考えられる。その結果図 3.1.4-4 に示すように液相中では Nb, Zr 及び RE が均質に存在し、固化する際には融点の高い系(Nb 及び Zr)から凝固しその後 RE を含む系が凝固し、結晶粒界等に集まるものと考えられる。

以上の結果から、液相で分離しやすい添加元素は液相での溶解限度を元に燃料組織への分配が決まり、液相で均質な添加元素は固溶限を超えた分が結晶粒界に析出する。射出鋳造など冷却速度が速い場合はその組織は一様となり組織の偏りへの影響は少ないと考えられる。しかしながら、FCCI など被覆管と反応をして悪影響を与える成分についてはその濃度に注意が必要となることが示された。ただし、液相 2 相となる不純物 RE は選択的に酸化させることで燃料製造時にある程度除去出来る可能性も示された。

また、U-Zr に Nd の添加量した場合、2 元系状態図から推定される溶解量を超えて、添加量の増加とともに溶解量/添加量が増加する挙動が生じた。この挙動は、Nd の添加量増加に従い Nd-Zr と U-Zr との間で液相分離がしにくくなる傾向が生じる為と考えられる。この溶解量の増加は、Nb-Zr-Nd 試験でも同様の挙動が生じており、溶解試験での混合力等の条件とも関係すると推定される。ただし、RE の制限値は 2 元系状態図における溶解量を用いて評価することから制限値には影響しない。本挙動については、Zr 量や混合条件を変えると RE の制限値を更に緩和できる可能性が生じると考えられるので、将来の検討課題とする。

(5) まとめ

新燃料中の RE 混入量制限値を設定することを目的として、代表的な RE として Ce 及び Nd を用いた試験等により、燃料への RE 溶解挙動を評価した。RE 量をパラメータとした U-Zr に対する溶解試験を実施した。その結果、Ce の溶解量は Zr の影響はなく U-Ce 2 元系状態図から推定される値と一致したが、Nd の場合、U-Nd の 2 元系状態図から推定される値より多く溶解することを確認した。この結果から、TRU-Zr 金属燃料への RE の溶解量は Zr による溶解量増加効果を考慮しないで燃料主成分である Pu と各 RE 元素の 2 元系状態図に基づき設定すれば保守側であり、RE を均一に溶解できる混入量は約 10%であることが分かった。一方、固化する際の偏析に関しては、従来の U-Pu-MA-Zr 燃料製造経験から RE 混入量は 2%以下であれば偏析しないことが確認されている。したがって、本研究では、RE が均一な TRU 金属燃料が製造できる条件として、リサイクル燃料の RE 混入量制限値を 2%と設定した。(H26、27 年度：東芝)

更に、H28 年度からは、上述の Nd のように、燃料と Nd の 2 元系状態図から推測される RE 溶解量よりも多く溶解する場合のメカニズムを把握するために、燃料の模擬物質として Nb 等を用いて RE (Nd) の溶解試験を実施した。その結果、Nb-Zr-Nd による試験では、液相中では Nd は Zr 中に溶けており、Nb と Zr も溶け合うことから明確な相分離はせずに母材への溶解限度を超えて均一な液相となっていることが確認された。すなわち、燃料合金材である Zr が介在することで、Nd の溶解量は増加することを確認した。(H28 年度：福井大)

参考文献

- (1)原子力システム研究開発事業「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」平成 26 年度成果報告書 (2015)
- (2)原子力システム研究開発事業「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」平成 27 年度成果報告書 (2016)
- (3)原子力システム研究開発事業「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」平成 28 年度成果報告書 (2017)

表 3. 1. 4-1 Ce の U-10Zr への溶解試験結果

添加量	溶解量
0.0114	0.0099
0.0203	0.0193
0.0427	0.0335
U-Zrに対する比率	

表 3. 1. 4-2 Nd の U 単体及び U-10Zr への溶解試験結果

Nd添加量②	Nd溶解量③	溶解量-U単体への溶解量④(③-①)	Nd添加量に対する溶解した比率 但し U のみの場合に対する増加分④/②	Nd添加量に対する溶解した比率③/②
0.0050	0.0016	0.00015	0.0302	0.3121
0.0183	0.0049	0.0035	0.1885	0.2659
0.0320	0.0155	0.0141	0.4401	0.4844
0.0684	0.0254	0.0239	0.3499	0.3706
0.0866	0.0273	0.0259	0.2986	0.3149
①U単体への溶解度	0.0014			

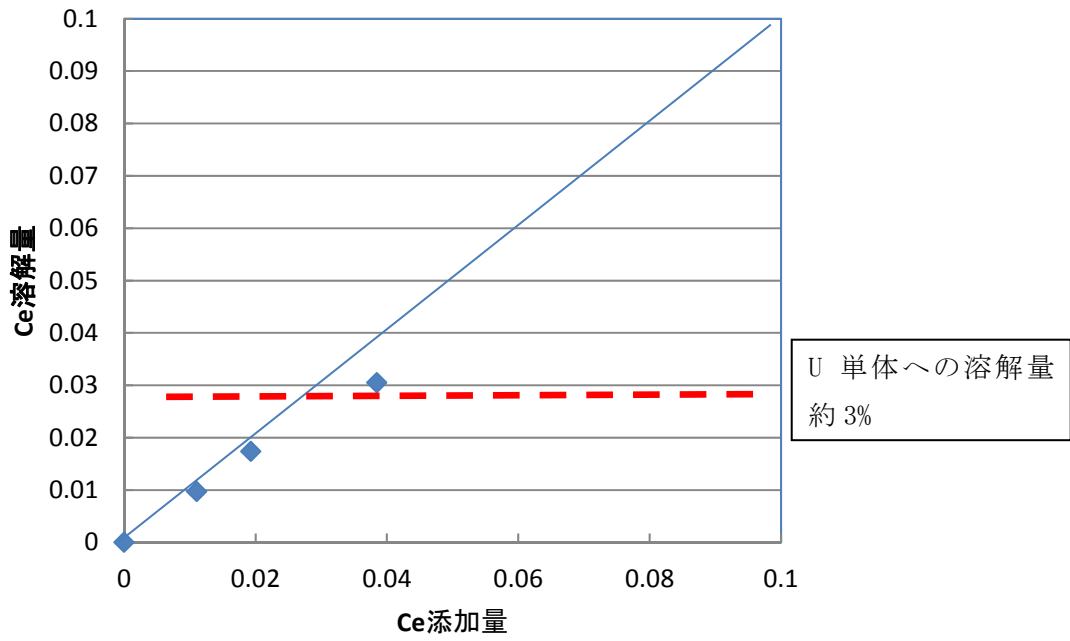


図 3. 1. 4-1 Ce の U-10Zr 燃料への添加量と溶解量の関係

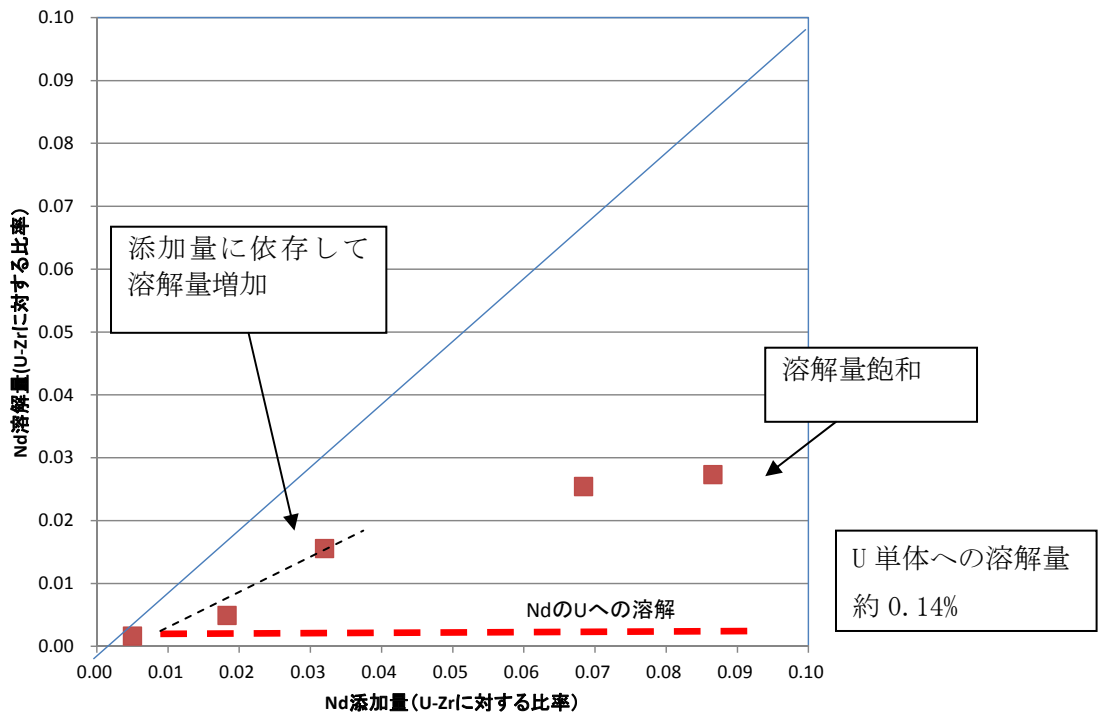


図 3. 1. 4-2 Nd の U-10Zr 燃料への添加量と溶解量の関係

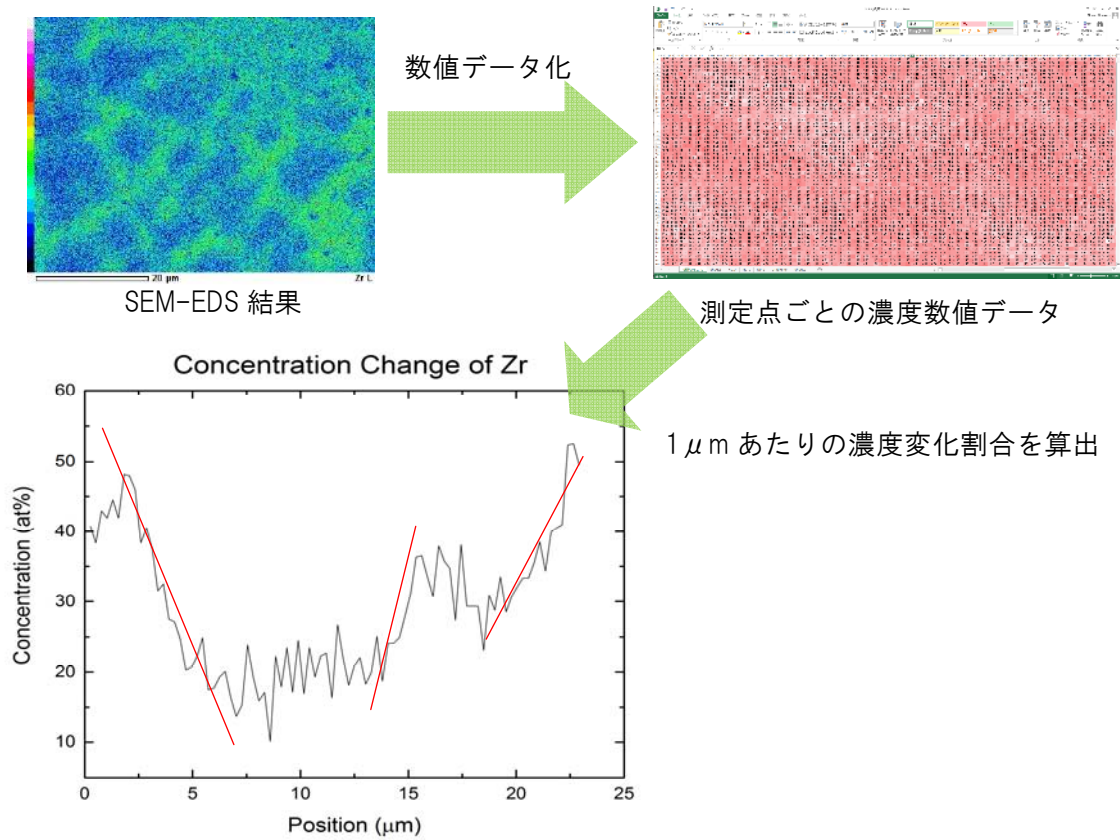


図 3. 1. 4-3 Zr 濃度変化割合の評価方法

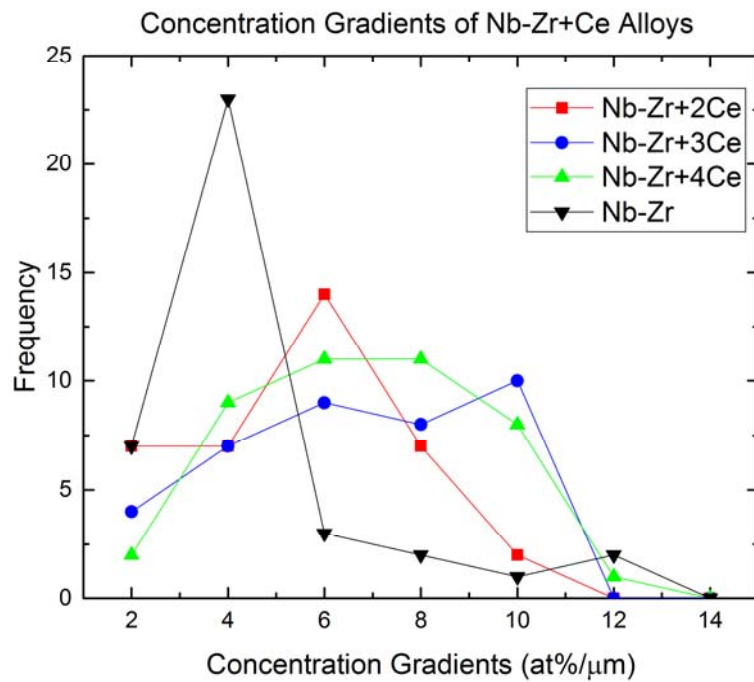


図 3. 1. 4-4 Nb-Zr-Ce 系における Zr 濃度変化割合分布

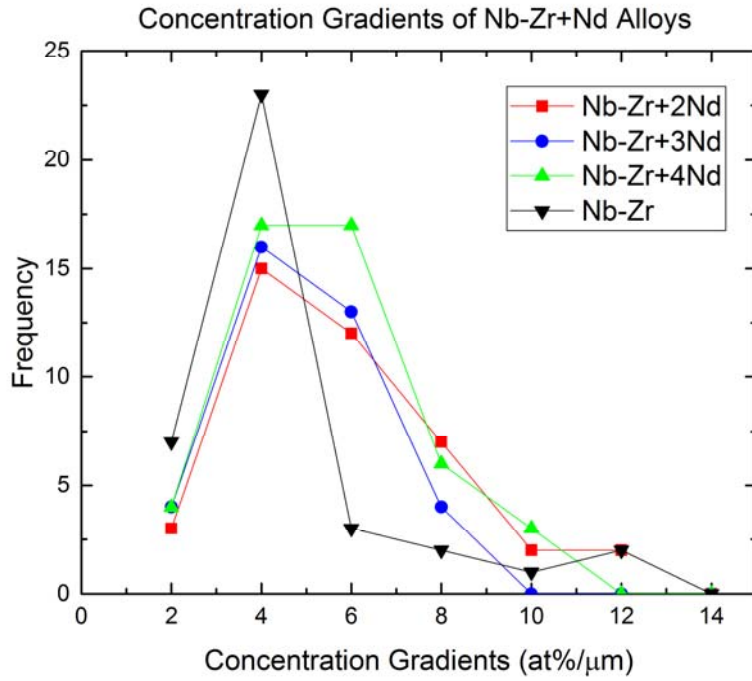


図 3. 1. 4-5 Nb-Zr-Nd 系における Zr 濃度変化割合分布

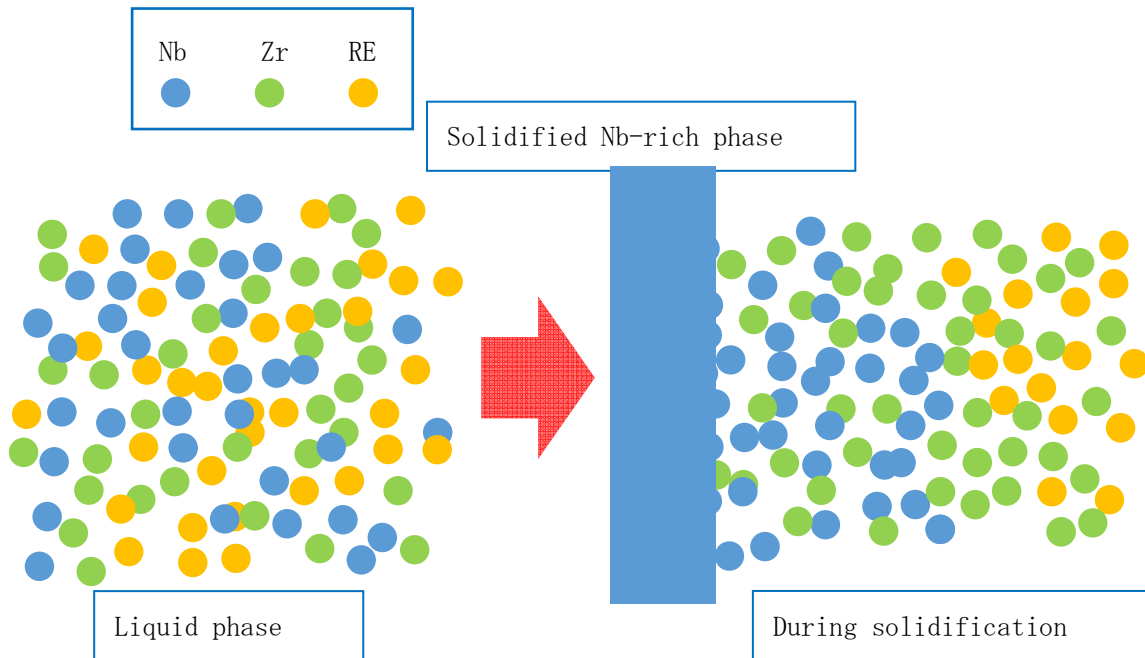


図 3. 1. 4-6 Nb-Zr-RE 系の固化メカニズムの推定

3.2 再処理開発

3.2.1 高除染プロセスの開発(再委託先：電力中央研究所) (H26～H29)

(1) 概要

TRU金属燃料では燃料中にUがほとんど存在しないため、液体Cd陰極を用いてTRUを回収する乾式再処理では、TRUとの除染係数が数十程度の希土類(RE)FPが回収燃料に多く混入する可能性がある。均一なTRU金属燃料を製造でき、かつ燃料健全性を担保できる条件にまでリサイクル燃料中の希土類存在量を低下させるためには、乾式再処理プロセスにおけるTRU元素回収方法の変更、あるいは電解精製その他の工程における運転条件の変更により、希土類FP除染性能の向上が必要となる可能性がある。TRU金属燃料を処理する場合にも、液体金属陰極の電解精製を中心とする乾式再処理技術を適用することが可能であり、Uを含む金属燃料を対象としたプロセスを大きく変更することなく、これまでの知見を活用できる点が重要なメリットであることから、できるだけ既存の報告⁽¹⁾に従い、図3.2.1-1に示す金属燃料FBRの乾式再処理プロセスフロー⁽²⁾を変えないことを重視した。

そのため、まず液体Cd陰極をそのまま使うTRU金属燃料再処理プロセスフローを検討した。更にREの除染性能向上策として、電解精製工程で液体Cdに代わるTRU回収用陰極材料を用いることによるTRU/希土類FP分離性能の向上、電解精製槽の使用済塩処理量の増大による塩浴中希土類FP濃度の低減、使用済塩処理工程における希土類FP除去工程の追加による塩化物廃棄物発生量の低減について検討した。

検討の結果、TRU金属燃料をリサイクルする場合に、除染の目標を新燃料中のRE混入量2%以下とすれば、液体Cd陰極を用いた乾式再処理プロセスフローで達成可能であることが分かった。しかし、RE/TRU比が高い軽水炉使用済み燃料再処理から発生する高レベル廃液から、MAを回収して本燃料サイクルに導入する際には、相当量の希土類FPが随伴すると考えられるので、プロセス全体としてはCd陰極では制限値を満足できなくなる可能性が高い。より高い除染性能を求める上では、上記いずれの検討案も有効であることが分かった。代替陰極については複数の候補材料について検討し、より分離性能が高いGaが有力と考えた。塩処理量の増大による塩浴中希土類FP存在量の低減や希土類除去工程の追加は、低濃度浴塩からのゼオライトへのFP吸着挙動あるいはそれに依存する塩廃棄物発生量が明確でなく、これらの適用には相対的に不確実性が高いと考えた。また、いずれの代替案でも装置数や設置面積の増大、それに伴うプラントコストへの影響は小さいと判断した。

これらを踏まえて、TRU金属燃料の乾式再処理プロセスフローとして、電解精製槽で従来のCd陰極の代替としてGa陰極を用いることが適当であると結論した。

以下では、(2)Cd陰極、(3)Cd代替陰極、(4)使用済塩処理量増加、(5)希土類FP除去工程付加、の選択肢についてのそれぞれの効果やプロセスへの影響の検討、(6)有力と判断したGa陰極プロセスについて実施した施設規模への影響の概略評価、(7)今後の開発課題、を順に示す。

(2) Cd陰極を用いたプロセスフローとマスバランス試算

本研究が対象とするTRU金属燃料の再処理にあたっては、U-Pu-Zr金属燃料の乾式再処理プロセスフローを準用することが適当である。ただし、今回の燃料にはUがほとんど含まれないために、それに応じたプロセスフローの修正が必要となる。ここでは、図3.2.1-1に示したU-Pu-Zr金属燃料の乾式再処理プロセスのフローシート⁽²⁾の概要を説明しつつ、TRU金属燃料への対応に必要な変更点を明らかにして、MA入りPu金属燃料の乾式再処理プロセスのフローシートを提示する。

①既存の乾式再処理フローシートのTRU金属燃料への対応^(1,2)

1) 前処理

前処理工程では、受け入れた燃料集合体を解体し、使用済U-Pu-Zr金属燃料ピンを10mm程度の長さに剪断する。続くNa蒸留工程で500℃、0.2Torrの条件でボンドNaを分離したのち、電解精製槽の陽極バスケットに装荷する。剪断及びNa蒸留の過程でオフガスが発生する。前処理工程は、TRU金属燃料の処理においても基本的な手順は変わらない。

2) 電解精製

電解精製工程は使用済燃料からFPを除去してアクチニドを回収する工程である。この工程では、LiCl-KCl共晶塩をベースとする浴塩中で、剪断した燃料ピンを装荷した陽極バスケットと陰極の間に電流を流すことで、陽極から燃料を溶かし出し、陰極に析出回収する。操業温度は500℃程度である。U-Pu-Zr金属燃料の乾式再処理においては、鉄棒の固体陰極と液体Cd陰極の2種類を用いる。固体陰極にはUのみが析出し、液体Cd陰極にはU、Pu、MAが析出するほか、希土類元素も同伴する。今回検討するTRU金属燃料の処理では固体陰極は不要であり、液体金属陰極のみとなる。

3) 陰極処理

陰極処理工程は回収したアクチニドに付随する塩化物やCdを分離する工程である。この工程では、固体陰極回収物の塩蒸留(蒸留：1000-1200℃、インゴット化：1400℃)によりU金属を回収し、液体Cd陰極回収物のCd蒸留(蒸留：700℃、インゴット化：1150℃)によりU-Pu合金(MAと希土類を含む)を回収する。蒸留するつばにはジルコニアコーティングしたグラファイトが用いられる。蒸留された塩及びCdは回収され再利用される。今回検討するTRU金属燃料の処理では、固体陰極の処理が不要であることから、Cdの蒸留工程のみとなる。

4) 燃料製造

燃料製造工程は回収したアクチニドを射出鋳造によりピンに成型し、これを燃料に加工する工程である。ここでは、まず射出鋳造する燃料成分の調整を行う。U-Pu-Zr金属燃料の乾式再処理においては、固体陰極と液体Cd陰極からそれぞれ回収されたU金属、U-Pu合金のほか、前回の射出鋳造の溶湯の残り、更にUの燃焼分の補償及び後述する陽極処理工程でのZrの廃棄分の補填として外部からUとZrを添加す

る。今回のTRU金属燃料の処理では、液体Cd陰極から回収されたTRU合金と前回の溶解の残りに、成分調整のためTRU、Zrを外部から添加することとした。

U-Pu-Zr金属燃料の射出鑄造は、イットリアコーティングしたグラファイトるつぼ中で燃料合金を1400℃で熔融し、減圧状態で上端を封じた石英管(モールド)を漬け、体系を加圧することにより石英管内に燃料を鑄込む手法である。その後、モールドの除去、ピンの剪断、スラグの検査などを経て、燃料ピンの組み立て、Naボンディング、ピン検査ののち、新たな燃料の集合体が製作される。TRU金属燃料の処理においても基本的な手順は変わらない。

ここまでの使用済燃料が新燃料となるまでの主要な工程である(以下では、このプロセスで製造される燃料を「新燃料」とする)。このほかに工程の状態を維持するための以下の工程がある。

5) 使用済塩処理

使用済塩処理工程は、電解精製槽の浴塩からFPを除去する工程であり、向流抽出器、逆抽出槽、ゼオライトカラムなどからなる。操業温度はいずれの工程も500℃程度である。向流抽出器は、還元剤であるLiを含むCdと電解精製槽の浴塩を向流接触させ、塩中のアクチニドを選択的にCd中に抽出するものである。アクチニドの回収率や希土類の回収率(アクチニドに対する希土類の除染効率)は抽出器の段数や還元剤量(Cd中Li濃度)によって制御できる。アクチニドを取り除いた後の電解槽浴塩は、次のゼオライトカラムに送られ、FPがゼオライトに吸着されて浴塩から除去される。FPを吸着したゼオライトは高レベル廃棄体であるソーダライト固化体となる。FPを取り除いた浴塩は逆抽出槽においてアクチニドを含むCdと再び接触させ、酸化剤として塩化Cdを添加することにより、アクチニドを再び浴塩に戻す。この浴塩を電解精製槽に戻すことで、電解精製槽浴塩のアクチニドを廃棄することなく、FP濃度を上限値で維持することが可能となる。

使用済塩処理工程には、このほかに還元剤のLiや酸化剤の塩化Cdを製造するための工程があるが、これらを含めて使用済処理工程は、U-Pu-Zr金属燃料の乾式再処理とTRU金属燃料の乾式再処理で共通の手順である。

6) 陽極処理

電解精製工程では、陽極バスケットに装荷した使用済塩燃料を全量溶解せず、一部が残留した状態で電解を終了する。これは使用済燃料中のZrやFPの貴金属をできるだけ浴塩中に溶解しないように操業するための手順であるが、これにより陽極バスケットに残留した燃料成分を回収/再利用するための工程が必要になる。これが陽極処理工程であり、残留した燃料金属を塩化Cdにより酸化して塩中に溶解し、その塩を電解槽で再利用するものである。発生した金属Cdは適当な頻度で蒸留処理(900℃)することで、Cdを回収再利用する。同時にZrや貴金属を回収し、これらは被覆管成分とともに1600℃で熔融処理され、フェライト系SUSを主成分とする金属固化体に成型される。陽極処理工程については、今回のTRU金属燃料の乾式再処理

でも同じ手順で処理できるものとする。

7) ドロス処理

乾式再処理の各工程では、主にUが体系内の酸素と反応してドロスと呼ばれる酸化物が発生する。とくに陰極処理や射出鋳造ではマスバランスに影響を及ぼす量の発生が見込まれる。そこで、燃料成分の廃棄物への移行低減を図るためにドロス処理工程を設ける。陰極処理、射出鋳造のドロス及び陽極処理後の塩を集め、塩化Zrを用いて還元して塩化物に戻す。また、塩化物イオンの調整のためにこの工程で塩化Uを添加する。

体系に十分な量のUが存在する場合は酸素と反応するのはほぼUに限られる。一方、今回のTRU金属燃料の乾式再処理では系内にUがほとんど存在しないため、その他のアクチニドが酸素と反応するものとし、発生する酸化物については上記のプロセスで処理できるものとする。

8) 廃棄物処理

乾式再処理の各工程で発生する廃棄物は大きく4つに分けられる。すなわち、前処理工程のオフガス、陽極処理工程の金属廃棄物(高レベル)、使用済塩処理工程のソーダライト廃棄物(高レベル)、及びドロス処理その他から発生するTRU廃棄物と高βγ廃棄物である。

金属廃棄物はハルを主成分としてZrと貴金属からなり、溶融固化することにより安定な固化体が製造でき、固化体性能として問題ない十分小さな浸出率が得られることを確認している。

ソーダライト廃棄物は、カラムから取り出されたFP吸蔵ゼオライト、廃棄浴塩、追加ゼオライト、及びガラスからなる。このガラスには射出鋳造の使用済石英モールド及び前処理で回収されたボンドNa、アルカリ金属、アルカリ土類が含まれる。ゼオライトとガラスの混合比は3:1であり、体系で発生する使用済石英モールドと廃棄ボンドNaはすべてここで使用することができる。これらを混合し900℃焼結することで比重2程度のガラス結合ソーダライトが製造でき、湿式再処理のガラス固化体と同じキャニスターに充填される。今回のTRU金属燃料の乾式再処理でも同じ手順で廃棄物の処理を行う。

以上が乾式再処理のすべての工程であり、既存のフローシートを今回のTRU金属燃料の乾式再処理に対応して修正したフローシートが図3.2.1-2である⁽²⁾。

②Cd陰極プロセスの各工程のマスバランスの算定根拠^(1,2)

設定したフローシートでのTRU金属燃料の乾式再処理のマスバランスを評価するために、初期条件や工程ごとの設定条件、及びそれらの根拠を示す。

1) 処理量、組成、前処理

表3.2.1-1に新燃料1tHMあたり発生する使用済み燃料の核種毎組成⁽²⁾を示す。新燃料の時点で1トンのTRUを含む燃料を、燃焼によるTRU重量の変化によらず「1トン

の燃料」と呼ぶことにする。ここで想定する乾式再処理プラントでは、1年間(操業日数は200日/年)に40トンの新燃料を燃やした後の使用済燃料を受け入れて再処理する。受け入れた使用済燃料は約31トンのTRUを含有する。これを乾式再処理してTRUを回収するとともに、軽水炉使用燃料の再処理から回収した約9トンのTRUを添加して、再びTRU重量で40トンの新燃料を製造する。

燃料は内側炉心燃料と外側炉心燃料からなり、両者は燃料成分の組成は同じであるが、Zrの含有率が異なる。マスバランスの評価では入り量としては両者を区別せず総量として扱い、燃料中のZrは全体を平均して重量比でTRU : Zr = 7 : 3とする。またボンドNaはU-Pu-Zr金属燃料と同等として受け入れ燃料1トン当たり25kgとする。

前処理では、既存のフローシートにおいて設定した除去率で各元素が除去されるものとする。すなわち、剪断とNa蒸留で希ガスの100%が放出され、オフガスとして回収される。また、Na蒸留ではボンドNaの90%が除去されるとともに、アルカリ金属とSrの50%、Baの20%が除去される。これらは全量が廃棄物処理(ソーダライト固化)工程に送られる。

2) 電解精製

電解精製工程では、既存フローシートで検討したU-Pu-Zr金属燃料の乾式再処理の電解精製槽の寸法や条件を踏襲するものとする。これに従うと、工程には2基の電解精製槽を置き、1基の電解精製槽にはLiCl-KCl重量で3750kgの熔融塩を保持し、2個の陽極と2個の液体Cd陰極を配置する。U-Pu-Zr金属燃料の乾式再処理の既存の評価では、電解浴塩中のPuの重量制限値は化学形態管理を適用して227kgとされた。今回は、1日の電解開始時の電解槽浴塩中のPu存在量が200kgとなる条件でマスバランスを計算した。

液体Cd陰極へのTRUと希土類FPの回収割合はそれぞれの元素の分離係数の関係によって決まるので、FPの浴塩中濃度が重要なパラメータとなる。すなわち、浴塩中の希土類濃度が高いと、陰極に回収される希土類の量が増加し、最終的にFPを多く含む製品ができる。ここではこれまでのU-Pu-Zr燃料での知見から燃料中に希土類を均一に混合できると考えられる2wt.%を新燃料中の希土類濃度の暫定的な上限値とし、それを達成できる浴塩中希土類FP濃度を維持する。

陽極溶解では、貴金属の溶解を避けるためにアクチニドを全量溶解しないで電解を終了するが、その割合(陽極残留率)も既存のフローに従って、U、TRU、貴金属とZrでそれぞれ、5、1、90%とする。陽極残留分は陽極処理工程で回収される。

電解槽2基の操業では、1日1基当たり約67kgのPuを受け入れ、約74kgを陰極に回収する。増加分はドロス処理工程に塩化物として外部から添加され電解槽浴塩に入るPuである。受け入れ燃料の燃焼分を補償して新燃料を製造するために、軽水炉燃料の再処理で回収したTRU(主にPu)を添加するが、この際、一部は塩化物としてドロス処理工程から電解槽浴塩に添加され、残りは金属として燃料製造工程に添加される。再処理プロセス全体で見ると、金属としてプロセスに入ったFP(希土類、アルカリ土類、アルカリ金属)が塩化物としてゼオライトに吸着され系外に排出され

るので、塩化物イオンが不足する。これを補充するために、TRUの一部は軽水炉燃料の再処理で得られた組成で塩化物として追加される。なお、マスバランスの評価上は、軽水炉由来のTRUは希土類FPを伴わないものとして取り扱う。

3) 陰極処理

U-Pu-Zr金属燃料の乾式再処理では、固体陰極析出物の塩蒸留と、液体Cd陰極回収物のCd蒸留の2種類の陰極処理を行うが、今回のTRU金属燃料の乾式再処理では液体Cd陰極回収物のCd蒸留のみである。Puの取扱量がU-Pu-Zr金属燃料の場合に比べ大幅に増加し、陰極処理で得られる金属Puは約148kg/日である。またCdの取扱量も、同じ処理量40トンのU-Pu-Zr金属燃料プラントの約1.9トン/日からMA入りPu金属燃料プラントでは約8.4トン/日に増大する。ここでは、Cd陰極中で取扱上許容されるTRU割合をU-Pu-Zr金属燃料の場合と同じ2wt.%として、扱われるTRU量から必要なCd量を単純に算定している。

また、陰極処理では系内の酸素との反応によりUの酸化物(ドロス)が発生することが想定され、U-Pu-Zr金属燃料プラントではUの3%、液体Cd陰極で約0.38kg/日がドロスになるとした。UがほとんどないTRU金属燃料プラントでは、暫定的にすべてのアクチニドの0.5%が反応すると仮定し、ドロス発生量は約0.86kg/日とした。

4) 燃料製造

燃料製造工程では内側炉心燃料と外側炉心燃料の2種類の組成を調整し、それぞれTRU重量で18.6トン/年、21.4トン/年の燃料を製造する。

U-Pu-Zr金属燃料プラントの条件を踏襲して燃料製造工程内のロスやリサイクルの割合を決定した。射出鑄造のバッチごとに製品にならない部分の大部分は前段の成分調整の工程にそのまま戻される。ガラスモールドに付着する部分の90%は回収できるが10%はガラスとともに高レベル廃棄体に移行する。酸素との反応によるドロスは燃料製造工程から除外されるが、ドロス処理に回されるためプラント全体で見ればロスにはならない。陰極処理と同様に、ここでも暫定的に射出溶湯の残留分(準備した溶湯の30%：ヒールと呼ぶ)の0.5%がドロスになるとした。

燃料製造工程で燃焼の補償分として、TRUは軽水炉使用済燃料の再処理によって回収された組成で添加され、このうちPuの量は合計で約5.66トンである。Zrは約17.2トンが外部から投入される。TRU金属燃料射出鑄造の運転条件(基数、回数/日、本数/回、など)についての検討はこれまで行われていないため、ここでは従来U-Pu-Zr燃料を対象として検討された条件を踏襲する。

5) 使用済塩処理

1日の操業後毎に使用済塩処理に持ち込む電解槽浴塩の割合を塩処理率と呼ぶ。塩処理率を増やすと、電解槽浴塩中の希土類濃度を低減でき、これにより製品燃料中の希土類濃度を低下させることができるが、高レベル廃棄物発生量は増加する。

アクチニドを回収するプロセスは、U-Pu-Zr金属燃料の乾式再処理と同じCdによ

る6段の向流抽出を想定する。アクチニドの99.5%以上が抽出され、3価の希土類のうち比較的抽出されやすいグループ(RE-1 : Ce, Pr, Nd, Pm)については20%、抽出されにくいグループ(RE-2 : Gd, La)は5%がアクチニドとともに抽出されるものとした。

ゼオライトカラムは、これまでの知見から評価したU-Pu-Zr金属燃料の乾式再処理の条件をほぼそのまま準用する。マスバランスの評価に当たっては、これまでの知見から想定できる吸着率(アクチニドや3価の希土類 : 98%、2価の希土類やアルカリ土類 : 95%、など)と処理塩量から、吸着させる元素数(等量数)を求める。ゼオライトの単位セル(AlとSiを各12個含む)にFPが12等量吸着可能として、これらの元素が理想的に最大限吸着する場合に必要なゼオライト量を算出する。このとき浴塩成分のアルカリ金属(Li, K, Na)はFPの吸着とは別に3個吸着することとし、このうちNaは単位セルに常に1個吸着するものとしていた。今回の検討で塩中Na濃度が非常に低下するケースがあり、Naが常に1個吸着する仮定では安定した計算結果を得られない場合が生じたため、ここでは塩中Na濃度(Li, K, NaのうちのNaのモル濃度)の1/10を吸着数とするように仮定した。塩中Na濃度は10mol%を上限としているので、最大濃度の場合にこれまでの仮定と同じ1個の吸着となる。

使用済塩処理工程では、電解槽浴塩中のNa濃度を調整する目的で塩の一部を廃棄する必要がある。浴塩の廃棄割合を増やすと、電解槽浴塩中のNa濃度を低下させることができるが、高レベル廃棄物量が増大する。マスバランスの評価においては、ゼオライトカラムを通過した後の塩を少量抜き取ってゼオライトとともに固化することとしている。ただし、これまでの実験では、ゼオライトカラムから取り出すゼオライトには抜き取る必要量以上の塩が付着しており、このままでは廃棄物量を増大させる結果となっている。今後の工学開発によりカラムに残留する塩量の低減を図る必要があるが、今回の評価では計算上の最少量に近い値で他のパラメータによらず一定値(電解槽浴塩量の0.03%)に固定した。

6) 陽極処理

TRU金属燃料であることによる工程の大きな変更は必要ないが、U-Pu-Zr金属燃料のプロセスではこの工程の浴塩として固体陰極の付着塩を回収して用いるとしていたところを、固体陰極が無いためにそれに相当する量の塩を電解槽から供給することになる。ただし、マスバランスの評価上は影響ない。

7) ドロス処理

UのかわりにTRUがドロスになること、そのドロスがUと同じ手順で還元できるとすることを仮定しており、今後の検討が必要であるが、ここではこれ以上言及しない。

8) 廃棄物処理

廃棄物のうち、主にFP成分を含むソーダライト固化体については、既存の研究成

果を反映したU-Pu-Zr金属燃料の乾式再処理のマスバランス評価と同じ条件で発生量を評価した。取り扱う物質は主にFPでありアクチニドはほとんど関係ないことから、今回の燃料であっても既存の検討からの変更はない。

以上の条件でマスバランスを計算した結果を図3.2.1-3⁽²⁾に示す。このケースでは液体Cd陰極で塩処理率(電解槽浴塩のうち毎日の塩処理に送る割合)を2%とした。この図ではフローシートの主要な場所に主要な元素としてPu、Np、Am+Cm、RE(Ce、Pr、Nd、Pm、La、Gdの合計)の物量を表示した。

プロセス全体で1年間に出入りするPuに着目すると、受け入れる使用済燃料中には26.76トン含まれており、燃料製造の富化度調整に5.65トン、ドロス処理に2.30トン、いずれも軽水炉使用済燃料の再処理製品から追加される。製品である新燃料には34.66トン含有される。一方、廃棄物としてはドロス廃棄物、金属廃棄物にはほとんど含まれず、ソーダライト廃棄物に0.05トン含有されることになる。REは受け入れ燃料中の2.06トンのうち新燃料には0.81トンが随伴し、新燃料中の希土類含有率は1.98wt.%となり、Cd陰極を用いて希土類混入率2wt.%以下の目標は達成できることになる。ただし、富化度調整とドロス処理で外部から受け入れるTRUはFPを含まないとしてマスバランス評価していることから、軽水炉使用済燃料再処理から発生する高レベル廃液からMAを回収して本燃料サイクルに導入する場合には、今回の設定条件(塩処理率2%など)では制限値を満足できなくなる可能性が高い。

③TRU燃料を取り扱うためのプロセスや機器設計上の変更点と課題⁽²⁾

工程としては、電解精製の固体陰極とそれに伴う陰極処理の塩蒸留が不要となる他は大きな変更はない。ただし、UがほとんどなくPuが大量に存在する主要工程、すなわち電解精製、陰極処理、燃料製造には操業条件など運用上の検討課題が多いと考えられる。

電解精製ではU-Pu-Zr金属燃料のプラントに比べて液体Cd陰極の取扱量が大幅に増大する。これは、電解槽の操業条件を陰極2本/電解槽1基で通電時間20時間/日とした場合、1陰極当たり166アンペア必要であった電流値を752アンペアにまで約4.5倍に増加させることに相当する。これだけ電流を増大させることは技術的に容易ではないと考えられることから、電極表面積を大きくする方法を検討するなど設計上の工夫が必要となる。

陰極処理ではPu、Cdの取扱量がともに増大するため、臨界管理及び操業上の制約を考慮して蒸留のバッチサイズや蒸留装置の基数、操業方法などの検討が必要である。U-Pu-Zr金属燃料のプラントでは8基の蒸留装置で1バッチのCd量約235kg、1日1回の運転をする想定となっている。上記の処理量増大に伴って陰極Cd量を4.5倍にすると、蒸留装置の設計及び運転方法に変更がなければ、蒸留装置は8基から36基に増大する。

燃料製造も陰極処理と同様にPuの取扱量の制限について配慮が必要である。射出鑄造の運転モードは既存の研究成果をもとに設定している現行の3バッチ/基/日を大きく変更できないと考えられることから、燃料中Pu存在比が高くなることに伴い、臨界管理の観点からバッチサイズが制限されることにより基数が大幅に増加する可能性がある。

ドロス処理については、Uがほとんど存在しない体系での雰囲気酸素との各元素の

反応や、その酸化処理については、ここでは熱力的な検討をせずに数字を仮定している。塩処理では、現状提示している廃棄物発生量などは理想的な最小値である。U-Pu-Zr金属燃料の乾式再処理においてもゼオライトへの吸着挙動など引き続き研究中であり、今後精度を高めていく。

このほか、電解槽浴塩のFP濃度などが大幅に変わりうるため、塩の融点や粘性、発熱量や放射能の観点から受け入れ可能な条件になっているかどうかも別途検討が必要である。これらについては、工学規模試験や実機の装置設計を実施する際に必要な検討事項であるとして、その具体的な解決策を探ることなく課題の抽出にとどめた。

(3) Cd代替陰極に関する調査及びプロセスフローとマスバランス試算

Cd代替陰極を検討するにあたって、まず候補材料の物性等の調査、候補材料を適用するための材料の調査を行い、つづいて代替陰極を採用した場合のプロセスフローとマスバランスの検討を行った。

①Cd代替陰極に関する調査^(2,3,39)

複数の候補材料についてその物性を調査し、有力な候補については、材料の観点からの検討、分離性能の比較評価をする。

1) 陰極材料の物性などの調査⁽³⁾

Cd代替陰極として、乾式再処理プロセスにおける電解浴(LiCl-KCl共晶塩、融点352℃)中において安定、かつ500℃付近で液体である金属を本調査対象とした。液体金属を調査対象とした理由は以下の通りである。乾式再処理プロセスにおいてTRUを同時回収する際の律速過程は、TRUの拡散であると考えられるが、一般的に液体金属の方が固体金属中よりも拡散速度が大きい。また、液体の場合には機械的に攪拌することによりTRU回収速度の増加が期待される。工学プロセスでは、回収速度は重要な設計パラメータの一つであり、高TRU同時回収速度を達成するためには、固体金属よりも液体金属を用いる方が有利であると考えられる。本調査ではこのような材料として、Ga、Ga-In合金、Ga-Al合金、Al、Bi、Zn及びPbを選定し、これらのTRU/希土類間分離性能に係る諸特性を公開文献ベースで調査した。具体的には、融点、沸点、以下の式で定義する分離係数、活量係数等の熱力学量の報告例及びアクチニド溶解度について調査した。

元素Aを基準とした元素Bの分離係数：

$$SF = (C_{A \text{ in melt}} / C_{B \text{ in melt}}) / (C_{A \text{ in metal}}) * (C_{B \text{ in metal}})$$

ここで、 $C_{A \text{ in melt}}$ は溶融塩中の元素A濃度、 $C_{B \text{ in melt}}$ は溶融塩中の元素B濃度、 $C_{A \text{ in metal}}$ は液体金属中の元素A濃度、 $C_{B \text{ in metal}}$ は液体金属中の元素B濃度である。

以下に調査結果を液体金属ごとにまとめて述べる。項目毎の調査結果は最後に表3.2.1-2～表3.2.1-5としてまとめた⁽³⁾。

Ga：非常に高いアクチニド/希土類分離係数が報告されている^(4,5,6)。PuやAmの分離係数はCdの場合の10倍以上であり、Cd代替陰極材料として非常に魅力的である。また、

融点が29.78℃であり、TRU同時回収を通常の乾式処理プロセスの500℃よりも低い温度で行うことも可能である。Cd(沸点764℃)に比べて沸点は2400℃と高いことから、GaはCdのように容易に蒸留することは困難である。そのため、Ga中にTRUを回収した後に、TRUを再度取り出すためには、蒸留とは別の工程が必要となる。アクチニドの溶解度としては、U及びPuに関して報告がある。U溶解度は0.034 at%(499℃)⁽¹⁸⁾、Pu溶解度は0.17 at%(500℃)⁽⁶⁾である。これらはそれぞれ、Cdの約1/30、及び約1/10と低い値である。液体Ga中アクチニドやランタニドの活量係数等の熱力学量に関する報告は限定的であり、特にMAに関しては、分離係数の報告もない。

Al : Gaと同様に高いアクチニド/希土類分離係数が報告されている^(6,10)。また、Al中アクチニドやランタニドの活量係数等の熱力学量に関する報告も多い。融点が高く、液体Alとして安定に使用するためには700℃以上が必要となる。乾式処理プロセスにおいて通常使用される電解浴は熔融LiCl-KClであるが、700℃以上では塩の蒸発が無視できない。Gaと同様に沸点が高いことから、Al中に回収したTRUをAlの蒸留により分離回収することは困難である。そのため、Al中アクチニドの分離回収法として、塩素化法が提案されている⁽²¹⁾。これは、アクチニド塩化物とAl塩化物の蒸気圧の違いによりアクチニドとAlを分離するプロセスであるが、複数の工程が必要で今後のさらなる研究開発が求められる。

Bi : UやPuの分離係数は、Ga、Alに次ぐ値が報告されている^(4,11,12)。また、MAの分離係数も報告されている。アクチニドやランタニドの活量係数等の熱力学量データは整備されている。GaやAlと同様に沸点が高いため、蒸留によりBi中に回収したアクチニドを分離回収できない。

Zn : アクチニド/希土類分離係数は、Cdよりも低いと報告されている⁽¹²⁾。沸点は907℃と比較的低いことから、Cdと同様に蒸留によりZn中に回収したアクチニドを分離回収できると考えられる。

Pb : アルカリ・アルカリ土類の回収に適用した報告例があるのみであり、アクチニドの分離係数は報告されていない⁽¹³⁾。

このほか、Ga-In、Ga-Al合金 : Ga-In、Ga-Al合金では、Uに関してのみ分離係数が報告されており、Gaと同等の非常に高い値である^(7,8,9)。Ga-In、Ga-Al合金中のU溶解度(X_U mol分率)に関しても報告されており^(17,18)、Ga-Al合金中のU溶解度はGa中よりもわずかに高いものの、Cd中のU溶解度よりは低いことが分かる。

本調査範囲においては、Ga及びBiがCd代替陰極の有力な候補として挙げられる。Gaは、非常に高いアクチニド/希土類分離性能を持ち、液体である温度域が広く、Gaは非常に有望なCd代替陰極材料であるといえる。しかしながら、次のように実用化には課題も多い。まず、鉄系材料はGaと合金形成しやすいため、液体Gaの保持にはセラミック材料(アルミナ等)を使用することが必要である。また、Gaの沸点が高くCdのように蒸留することが困難である。そのため、Ga中に希土類から分離して回収したアクチニドを再び取り出すために蒸留以外のプロセスが必要となる。このようなプロセスとして、電気化学的合金形成・脱合金化反応を利用した新規な乾式処理プロセスが提案されるとともに、提案プロセスにより高いアクチニド/希土類分離性能が得られる可

能性が示されている⁽⁶⁾。ただし、Ga中のアクチニド(U, Pu)溶解度が低いことを考慮した電解槽設計が必要となる。今後の課題として、MAに関して分離係数等を取得する必要がある。また、Alと合金化することで、U溶解度が向上すると示されていることから⁽¹⁸⁾、高い分離係数を維持しつつ、Cdと同程度のアクチニド溶解度をもつ合金系の探索を今後の検討課題とする価値は十分にあると考えられる。

Biは、Gaよりは低いもののCdより高い分離係数が報告されており、GaについてCd代替陰極材料として有望である。沸点が高いことはGaと同様であり、Bi中に回収したアクチニドを再び取り出すために蒸留以外のプロセスが必要である。上記のGaを用いた提案プロセス⁽⁶⁾はBiにも適用可能であると考えられる。

2) 液体Gaや液体Biに対して安定な材料の検討⁽³⁹⁾

液体Gaや液体Biを電極材料に用いた工学プロセスはこれまでにないことから、まずこれらを安定に長期間保持するためのろつぽ材料や電極リードに適する材料を検討する必要がある。また、液体Gaや液体Biを攪拌することによる電流密度増加(アクチニド回収速度向上)を期待する場合には、攪拌羽用の安定な材料が求められる。

液体Gaや液体Biに対して安定な材料を検討するために、溶融塩中でこれらを使用した研究報告について調査し表3.2.1-6にまとめた⁽³⁹⁾。その結果、液体Gaや液体Biは、実験室規模において電極材料や抽出媒体として使用されていることが分かった。このような報告においては、液体Gaのろつぽ材料として、アルミナ(Al_2O_3)^(40, 48)、ベリリア(BeO)⁽⁴⁶⁾、マグネシア(MgO)⁽⁴⁷⁾、タンタル(Ta)⁽⁴⁹⁾、ウランガラスチューブ⁽⁵⁵⁾を、電極リード材料としては Ta ^(40, 48)、タングステン(W)^(46, 47, 55)を用いている。SUSを攪拌羽として用いたがGaと合金を形成するため使用不可との報告もある⁽⁴⁰⁾。

液体Biのろつぽ材料としては、 Al_2O_3 ^(41, 45, 51)、ホウ珪酸ガラス⁽⁴³⁾、パイレックス⁽⁴⁴⁾、ボロンナイトライド(BN)⁽⁵⁰⁾、窒化アルミニウム(AlN)⁽⁵²⁾、レーザーで表面処理した Al_2O_3 ⁽⁴²⁾、カルシウムアルミネート⁽⁴²⁾が用いられている。また、W線電極上へのBi金属膜の電析が報告されており^(44, 53, 54)、WはBiのろつぽや電極リードとして適することが分かる。

調査結果より、液体Ga電極や液体Bi電極の電極リード材料や攪拌羽としては、Wが適すると考えられる。Taも液体Ga電極リードとして用いた実績があるが、Ga-Ta二元系状態図⁽⁵⁷⁾には、金属間化合物が存在することから、長期間の使用ではTaリードがGaと合金を形成する恐れがある(Ga-WやBi-W二元系状態図においては、金属間化合物は存在しない)。

液体Gaや液体Biのろつぽ材料としては、使用実績が多く安価な Al_2O_3 が適すると考えられる。また、BNや AlN は Al_2O_3 よりも熱伝導率が高く熱衝撃にも強いことから、Gaのろつぽ材料としては報告例がないものの魅力的なろつぽ材料と考えられる。ただし、これらのようなセラミックをろつぽ材料として用いる場合には、次に注意した設計とすることが必要である：GaやBiは凝固する際に体積が膨張するため、GaやBiが凝固しないように常に温度を融点以上にする、または、融点以下となり凝固した場合にも上方にGaやBiが膨張する余裕を持った構造とする。

一方、電極リードに適するWをるつぼ材料とすることも有望である(るつぼに加工することが困難な場合には、例えばSUSるつぼの表面をWでコーティングすること等が考えられる)。ただし、この場合にはるつぼ上にアクチニド合金が電析しないように電流・電位を制御する必要がある。

今回の調査範囲においては、液体Gaや液体Biに対して長期間の安定性を検討した材料の報告はなかった。このため、長期間の安定性が今後の検討課題である。

3) Cd代替陰極の分離性能評価⁽²⁾

物性等の観点から有力な候補材料とされたGaとBiについて、再処理プロセスでの分離性能を簡易に評価する。

表3.2.1-7に計算に用いたLiCl-KClとCd、Bi、及びGaの系での分離係数の関係を示す⁽²⁾。ここでは、液体金属陰極での分離回収の検討に必要なアクチニドと3価の希土類のみを取り上げ、かつ、アクチニドのうちAmとCm、3価の希土類のうち比較的回収されやすい元素としてCe、Pr、Nd、Pmの4元素(RE-1)、回収されにくい元素としてGd、Laの2元素(RE-2)、をそれぞれグループ化した。既存の分配平衡データをもとに、グループごとの分配係数を概算した。ただし、Ga系についてはCeとPu、Amの関係しか明らかになっていないため、UとNpについてはGa系の値としてBi系と同じ値、Ga系のRE-2はBi系のRE-1とRE-2及びGa系のRE-1から概算した値をそれぞれ用いることとした。これらの分離係数の関係に従って、塩中のアクチニド及び3価の希土類が液体金属陰極中に回収されるものとして、それぞれのマスバランスを計算した。

表3.2.1-8に塩処理率2%のケースでのCd、Bi、Gaのそれぞれの液体陰極の場合の新燃料中のFP(ほぼ3価の希土類)濃度などを示す⁽²⁾。1列目(左列)で「塩処理率(%)」は電解槽浴塩のうち毎日の塩処理に送る割合、「塩廃棄率(%)」は電解槽浴塩のうち毎日廃棄する割合、を示す。「RE-1(kg)」、「RE-1+RE-2(kg)」はそれぞれ電解槽浴塩中に存在する、先にグループ分けした希土類の量である。「新燃料中FP(%)」はこのプロセスで製造される新燃料中のFP/(アクチニド+FP)の割合(重量%)であるが、このFPのほとんどはRE-1である。

表中の1行目で「Cd-2」は「Cd陰極を用いて塩処理率が2%の場合」を表す。塩処理率2%、塩廃棄率0.03%を共通のパラメータとしたとき、新燃料中のFP濃度はCd、Bi、Gaの系でそれぞれ順に、1.98%、0.70%、0.38%となった。Cdの標準ケースでも新燃料中の希土類の混入量の目標値2wt.%以下は達成できるが、アクチニドと希土類と分離効率が高いBiやGaを用いることにより、更に新燃料中の不純物を低減できることが明らかとなった。なお、このとき表中ではCd、Bi、Gaの順で定常状態での電解槽浴塩中の希土類濃度が増加しているが、これはいずれのケースも計算の入力値(受け入れ燃料)がFPを含まない初装荷燃料からの使用済燃料であるが主たる要因である。例えば、製造される新燃料中のFP濃度が相対的に高いCd陰極プロセスの場合には、その使用済燃料中のFP濃度も相対的に高いはずで、それにより陰極金属ごとの塩中濃度差は表の値より小さくなると考えられる。新燃料中のFP濃度が燃焼に与える影響を全く無視できるならば、炉と再処理を合わせた燃料サイクル全体で平衡状態においては、同

じ塩処理率の場合には浴塩中FP濃度は等しくなる。従って、燃焼計算まで含めて平衡状態を計算できれば、陰極材料のFP濃度への効果が表の値より更に顕著にみられる方向に変化するものと考えられる。

② Cd代替陰極でのフローシート作成とマスバランス試算^(3, 39)

電解精製槽でCd代替陰極としてGaを採用する場合のプロセスフローの変更を検討し、フローシートを作成してマスバランスを試算する。

1) プロセス上の変更点と影響に関する評価⁽³⁾

乾式再処理においてCdが液体金属陰極として利用される大きな要因として、TRUを電解で回収した後に、Cdの高い蒸気圧を利用して蒸留分離できる点がある。従って、Cd代替陰極を採用する場合、陰極からPuなどの回収物を直接的に分離・回収することが困難な場合には、陰極回収物をいったんCdに移した後に、Cd蒸留によりTRUを回収することになる。

液体陰極を用いる場合のプロセスフローの基本的な変化は共通であると考えられるので、ここではGaを採用したケースで考える。以下では特に断らない限り、Gaの記載に対しては、Biなど他の候補材料についても同様の検討、課題が必要である。図3.2.1-4に液体陰極としてCdの代わりにGaを採用し、陰極処理は従前の通りCd蒸留による場合のプロセスフロー⁽³⁾を示す。このプロセスでは液体Ga中に回収されたTRUを何らかの方法でCdに移した後に、Cd蒸留によってTRUを金属として回収する。プロセス上の変更点としては、ブロックフロー図では「TRUの移送(Ga→Cd)」という工程が一つ増えるのみである。TRU(及びRE)をGaからCdへ移送する方法としては、還元抽出による移送あるいは電解による移送を採用できる。

還元抽出を採用した場合には、(i)TRUを含むGaを電解槽浴塩とは別の塩化物浴と接触させ、(ii)その塩に酸化剤GaCl₃を添加してGa中のTRUを酸化して塩中に移行させる。(iii)この塩化物浴に液体Cdを接触させ、(iv)Cdに還元剤としてCd-Liを添加して塩中のPuなどをCdに抽出する、という手順になる。GaとCdの2種類の液体金属を別々に保持できる抽出槽を開発すれば、操作自体は1つの抽出槽でも可能と考えられるが、このとき酸化剤のGaCl₃や還元剤のCd-Liを外部から供給すると、この工程で金属Gaと浴塩(還元剤のLiがLiClになる)の量が操業とともに増大していく。それを避けるためにはプロセス内でこれらを調製する必要があり、再処理プロセスの塩処理工程(フロー図の中央下部)のような還元剤調製、酸化剤調製の複数の付加工程が必要となる。

したがって、ここでは工学的には電解移送が適当であると考ええる。前述の通りブロックフロー上は液体Ga陽極と液体Cd陰極を持つ電解槽(電解移送槽とする)を追加するのみであり、工学的にはこれまでの知見で設計可能と考えられる。図3.2.1-4に示すフローシート⁽³⁾の2つの電解精製槽のうち、前段が液体Ga陰極を用いる電解精製槽で「分離ステップ」と呼ぶことにする。この電解精製槽では必要量のアクチニドを回収すると共に、Ga陰極の高い分離性能を生かして希土類等のPFを除染する。「分離ステップ」でGa陰極中に回収されたアクチニド等を金属として分離回収可能な状態にするた

め、後段の「回収ステップ」の電解移送槽ではアクチニド等を含むGaを陽極、液体Cdを陰極としてアクチニド等をGaからCdに電解移送する。この2つの電解槽により、「使用済燃料を電解槽に持ち込み、液体Cd合金として取り出して、次の陰極処理(Cd蒸留)に移す」というCd陰極のケースと同じ状況を作ることができるため、その他の工程には影響を及ぼさず付加工程も必要ないと考えることができる。この電解移送槽には浴塩に接触して互いには独立している液体Ga陽極と液体Cd陰極があり、電解はバッチ的に行われるが、電解精製槽のGa陰極から電解移送槽のGa陽極への液体Gaの移送とその戻り、及び電解移送槽のCd陰極からCd蒸留装置への液体Cdの移送とその戻りは、これまでの試験結果^(58, 59, 60)やプロセス設計⁽¹⁾に基づいてポンプ移送することを想定する。液体Cdの移送は、図3.2.1-1のCd陰極の場合と共通であり新たな課題は発生しない。液体Gaをポンプで移送すること自体はCd陰極の場合と同様に可能であるとする。

図3.2.1-4のフロー図では電解移送槽だけを追加し、そこには塩処理(塩中の希土類の除去)やTRUの外部からの補充を考えていない。この条件では、電解精製槽のGa陰極回収物が電解移送槽のGa陽極となって同質・同量で溶出し、電解移送槽のCd陰極へのそのまま回収されることが必要である。原理的にはこれを満たすような電解移送槽浴塩中のTRUとREの組成、及び電解精製槽陰極/電解移送槽陽極中のTRUとREの滞留量が存在し、操業を通して定常的にそれを維持することができる。もっとも単純なプロセスフローとなるこの条件でのマスバランスを正確に評価するためには、基礎的な実験により電解におけるBi陽極での溶出特性を把握すること非常に重要である。

なお、電解移送槽でCdとGaが共存する場合、少量の陽極Gaは塩中に溶出し陰極のCdに回収されるため、製品にGaが混入する。燃料の製造や性能に影響を与える可能性があり、その混入量は許容値に収まるかどうかの評価は重要である。

GaやBiを用いて電解移送するプロセスについての基礎検討を文献調査した。調査結果を表3.2.1-9にまとめるが⁽³⁹⁾、Gaについては、Uを含む使用済燃料の再処理法の開発⁽⁴⁰⁾で溶出挙動が確認されているのみである。Biの適用可能性を検討する上では、液体Bi-アクチニド合金からのアクチニド陽極溶出挙動について調査する必要があるが、公開文献ベースでは、液体Bi-Zn、-Li、-Baからのこれら元素の電気化学的溶出が報告されていることが分かった^(43, 52)。一方、液体Bi-アクチニドや液体Bi-希土類からのアクチニドや希土類の溶出に関しては、サイクリックボルタンメトリーによる検討があるのみであり^(44, 45, 52, 53, 54, 56)、液体Bi-アクチニドや液体Bi-希土類からのこれら元素の陽極溶出速度や電流効率は不明である。これらより、液体Biの場合においても上記の電気化学的逆抽出プロセスが適用可能であると思われるが、今後、プロセス評価に必要なパラメータとして陽極溶出速度や電流効率を求めることが重要である。

2) マスバランスの試算

Cd陰極の場合の条件を踏襲して評価したマテリアルバランスを図3.2.1-5に示す。塩処理率をCd陰極の標準ケースと同じ2.0%に設定したが、Cd陰極の場合は最終製品中のFP割合が約2.0wt.%であったのに対し、Ga陰極を用いると0.38wt.%まで低下し、Gaの高い分離性能が示された。塩処理率の調整により更にFP混入率の低い製品を作るこ

とは可能であるが、ここではこれ以上検討しない。

上述のように、電解精製工程について、今回は分離ステップのGa陰極回収物を回収ステップで全量Cd陰極に移送できるとして全体のマスバランスを評価している。ここでは、分離ステップと回収ステップの電解槽の運転条件について定性的に考察する。

まず、分離ステップのGa陰極を回収ステップのGa陽極とする際の電解槽間の移送の際に、移送する液体Gaに付着して移送される塩について検討する。付着塩があると回収ステップの浴塩量が増加するので、付着塩に応じた量の回収ステップ浴塩を取り出して分離ステップに戻す必要が生じる。これを繰り返すと定常に到達した状態では分離ステップと回収ステップの浴塩組成は等しくなるので、マスバランスの計算上は、Gaを介した意味がなくなり元のCd陰極の1段の電解精製の場合と同じ回収物になってしまう。従って、付着塩を上回る量の浴塩を回収ステップから排出して、代わりに新しい塩を追加するというような運転を考えないのであれば、Ga移送の際の付着塩は許容できない。付着塩を許容しないならば、Gaの全量バッチ移送は困難であり、ポンプ移送を採用することになると思われる。液体金属のポンプ移送はこれまでに開発経験があり⁽²²⁾、その採用は問題ないと考えるが、Ga中に飽和以上にTRUを電解回収するとポンプ移送を困難にする可能性が高いため、飽和未満での運転が必要になる可能性が高く、Ga陰極の量や運転モードの検討が必要になる。

次に回収ステップの陽極溶解の状況を考える。今回のマスバランスの評価では分離ステップと回収ステップの間のやり取りを実際に計算していないので、結果としてGa陽極からCd陰極に100%移送されていることになっているが、実操業では必要な電流を維持するためには、電解をバッチ式に運転する以上、全量を陽極溶解することは難しい。高い電流を維持して操業するためには、陽極に5%残して電解を終了する必要があるというような条件を明らかにする必要がある。例えば、分離ステップで5%相当のTRUを含むGaを陰極として100%分の電解をし、合計で105%相当のTRUを含むGaを回収ステップに移送して、100%分を陽極溶解して5%分残したままGaを分離ステップに戻す、というような運転となる。この際、定性的には定常状態で一定の塩組成を保った操業は可能であり、回収ステップでTRUの更なる精製は起こらず、また、付着塩がなければ塩処理(浴塩の精製)は不要である。

なお、BiやGaで液体金属陰極の分離性能が上がることにより、計算上は塩中希土類濃度が高い(塩が汚い)状態での操業が可能となるが、実際には浴塩の発熱制限などに考慮の必要があり、様々な条件について詳細に検討することが必要である。

(4) 使用済塩処理量増加に関する検討⁽²⁾

電解精製槽の浴塩に蓄積するFPを除去するために、使用済塩処理を行うことはこれまでに述べたとおりである。製品である新燃料の純度を上げる(不純物であるFP濃度を下げる)ために、(3)ではCdより高い分離性能が見込まれる金属を液体陰極に用いることを検討した。もう一つの方法として定常運転時の電解槽浴塩中の希土類FP濃度を低減する(低く保つ)ことが考えられ、(4)では塩処理量を増やすことでそれを達成できることを示し、その効果と影響を評価する。なお、塩処理量を増加させるとタンク容量が大きく

なるなど個々の機器寸法には影響を与える可能性があるが、プロセスフローには変化はない。

塩処理量を増やすと、電解精製槽の浴塩中のFP濃度が低下する。これにより液体金属陰極中に回収される希土類の割合が低下する、すなわち、製品燃料中のFP濃度を下げることができる。既存のプロセスフローでは、いくつかの条件で決まる上限値に浴塩中のFP濃度を維持するように必要最小限の処理量で塩処理を行うことにしているが、ここではその最小限度に近い標準ケースから段階的に塩処理率を増やしたいくつかのケースについてマスバランスを計算した。

表3.2.1-10に液体Cd陰極の場合に塩処理率を2、3、5、10%と変化させた場合の新燃料中のFP濃度などを示す⁽²⁾。いずれも塩廃棄率は0.03%に固定している。塩処理率を上げるに従って、電解槽浴塩中のFP存在量が低下し、それとほぼ比例するように、新燃料中のFP濃度は、1.98、1.53、1.05、0.57%と低下する。これにより、塩処理量を増やすことで製品純度を上げられることを明らかにできた。同様にして表3.2.1-11と表3.2.1-12に陰極をBiとGaにした場合の評価結果⁽²⁾をそれぞれ示す。Cdより高い除染が期待できるBiやGaのケースで更に塩処理量を増やすことによって、新燃料中のFP濃度を大きく低減することが可能である。

ただし、相対的に希土類FP濃度が低い塩を処理する場合には、ゼオライトカラムでの吸着効率が低下することによりカラムに必要なゼオライト量が増加する可能性が高い。また、カラムのゼオライト量が増加すると、ゼオライトへの付着塩量も増加する可能性が高い。いずれも高レベル廃棄物量を増加させる要因であり、定性的には電解槽浴塩を薄く保つほど高レベル廃棄物発生量が増加すると考えられる。吸着特性や必要ゼオライト量の検討などが課題であるが、現状では代替陰極を用いる場合に比べて、廃棄物発生量の評価に不確実性が高い。

(5) 使用済塩からの希土類FP除去に関する検討⁽³⁹⁾

電解槽の浴塩処理量を増やして定常的に電解槽浴塩中の希土類FP濃度を低下させることにより、リサイクル燃料中の希土類FP濃度を低減できることがわかった。一方で、現在の処理方法のままで浴塩処理量を増大させることは高レベル廃棄物発生量増大の可能性を高めるため、安易に採用することは難しい。そこで、電解槽の塩処理量を増やした場合に、用いられるゼオライト量を抑える方策として、ここでは還元抽出による希土類の除去について検討する。そもそも乾式再処理の塩処理工程では、ゼオライトによるFP除去に先立って多段抽出により電解槽の塩からアクチニドを液体Cdに抽出するプロセスを採用しており、抽出技術に関する知見は多い^(58, 59, 60)。アクチニド回収のための多段抽出に続いて希土類FPを回収するための一段あるいは数段の抽出工程を付加することにより、ゼオライトカラムにFPを吸着させる前に処理塩中の希土類FP量を低減することが可能である。

図3.2.1-6にTRUの回収と希土類の回収を行う2段階の抽出工程のイメージ図⁽³⁹⁾を、図3.2.1-7に塩処理プロセスに希土類抽出工程を付加したフロー図⁽³⁹⁾を示す。これまでのプロセスでは電解精製槽からの処理塩は図中左上の「向流抽出」に入り、そこでアクチニ

ドをCd相に移した後にすぐ右隣の「ゼオライトカラム」に持ち込まれる。これに対して今回のプロセスでは、「向流抽出」後の塩を「RE抽出」で更に処理して希土類FPを除去した後に「ゼオライトカラム」に持ち込むことになる。この「RE抽出」ではCd中に希土類が抽出され、そこから希土類を除去するために「Cd蒸留」で希土類FPを金属として回収した後に「酸化処理」で酸化物に転換して、ガラス結合ソーダライト固化体に混合する。あるいは「Cd蒸留」により金属で回収したまま、電解精製槽の陽極処理から発生する金属廃棄物に混合することも考えられる。いずれにせよ、それぞれの廃棄体の中での希土類金属あるいは希土類酸化物の状態や、放射能、発熱など、考慮する要因は多いが、ここでは具体的な検討はしない。

乾式再処理プロセスでは、還元抽出工程で必要となる還元剤のCd-Li合金や酸化剤のCdCl₂をプロセス内で製造することにより廃棄物量の軽減を図るものとしており、「向流抽出」と「逆抽出」の間に「Cd-Li調製」と「CdCl₂調製」の工程を設けている。「RE抽出」でも「Cd蒸留」後のCdにCd-Liを供給する必要があるが、ここでは既設の「Cd-Li調製」を共用することとした。

今回は希土類FPの回収やそれによる製品中の希土類FP濃度の変化を詳細に計算することはしないが、以下に概算を試みる。ここではGa陰極ケースのマスバランスシートにおいて、TRUを回収する多段抽出の後に「RE抽出」を置いたことを想定して、多段抽出後の塩から、3価の希土類のうち比較的抽出されやすいグループ(RE-1 : Ce, Pr, Nd, Pm)については90%、抽出されにくいグループ(RE-2 : Gd, La)は50%を削減した後にゼオライトカラムに入るように計算した。同じ塩処理率2.0%で他の条件を同一とすると、希土類が除去されたことで必要なゼオライト量が減少するので、ゼオライト工程からの高レベル廃棄物発生量が178本から86本に減少する。また、RE抽出があるケースで塩処理率を2.0%から4.0%にしても、廃棄体は86本から106本までしか増加しない一方で、新燃料中のFP濃度は0.38wt.%から0.19wt.%に低減する。RE抽出した希土類元素がプロセス全体の廃棄体に与える影響を一切考慮しないためこれらの数字に定量的な意味は低いが、定性的には単純に塩処理量を増やす場合に比べて「RE抽出」による希土類除去効果は高いと考えられる。ただし、除去した希土類FPの処理方法や廃棄物発生量は不確実であり、また低濃度の浴塩をゼオライト処理することに起因するゼオライト廃棄物発生量増大の不確実性が無くなるわけではない。

なお、電解槽浴塩中の希土類FP濃度を低下させる方法のひとつとして、本研究では沈澱除去を検討しており、これについては3.2.4項の「廃棄物処理技術の開発」に記述した。

(6) Ga陰極を採用した場合の施設規模への影響評価

TRU金属燃料でより高い希土類FPの除染係数を必要とする場合には、(3)(4)及び(5)の検討から、より不確定要素が少ないと考えることができる、(3)の電解精製槽にCd代替陰極としてGa陰極を採用プロセスが適当であると考えられる。U-Pu-Zr燃料の乾式再処理プラントで電解槽が2基設置されているので、これを踏襲したTRU燃料再処理のCd陰極ケースでもプラントの電解槽は2基である。Ga陰極を採用した場合は2基のGa陰極電解槽に、それぞれ回収TRUをGaからCdに移送する電解槽が追加されるので、プラントとしては電解槽2

基の追加となる。ここでは、Cd陰極の場合に比べて、Ga陰極を採用することが機器数や設置面積にどの程度の影響を与えるのかをごく概略的に評価する。

U-Pu-Zr金属燃料の乾式再処理プラント(年間処理量40トン)について公開されている報告書⁽¹⁾をベースに検討する。機器配置図としては建屋1階部分のみが公開されており、ここには主要工程の中で、前処理工程のうちのピン剪断後の工程、電解精製工程、陰極処理工程(塩蒸留とCd蒸留)が設置されている。電解精製に付随する工程として陽極・陰極アSEMBリの組立・解体工程、陰極処理に付随する工程としてインゴットの回収や蒸留するつぼメンテナンスの工程の機器もここに含まれる。同報告書のプラント鳥瞰図によれば、主要工程のその他の部分は、集合体解体・ピン剪断などが建屋3階に、向流抽出を含む塩処理工程などが建屋2階に、射出鋳造やピン組み立てなど燃料製造工程が建屋地階に、それぞれ設置されている。

まず機器数増加によるArセルの面積増加を考える。建屋1階部分の図面でArセルに設置されている機器数は、前処理に関わる機器：8個、電解精製と陰極処理に直接関わる機器：10個、陰極処理のインゴット回収やつぼメンテナンスに関わる機器：10個の合計28個である。なお、電解精製槽1基について固体陰極処理装置2基と液体Cd陰極処理装置4基が設置されているが、陰極処理装置はそれぞれ2基あるいは4基がユニットとして設置されているので、他の機器に比べて図面上も大きい面積を占めているが、ここではそれぞれ1個と数えている。また装置間を移動する移送装置やサンプリング装置は床面積に影響しないものとして機器数から除いた。ここから固体陰極に関わる機器6個を除くと、Cd陰極の場合のTRU燃料の再処理プロセスの当該部分の機器数は22個であり、Ga陰極の場合は24個となる。機器数が9%増であり、各機器の大きさの違いを無視すると、Cd陰極プロセスをGa陰極プロセスに変更した場合の当該部分の設置面積は9%増と概算できる。建屋1階のArセルが全体のArセルの1/2を占めるとすると、アルゴンセルの面積の増加は4.5%である。

また、同報告書の建設コストの概略評価の数値を表3.2.1-13に示す。再処理工程のうち固体陰極処理に関わる工程を省くことの影響を無視して、TRU燃料のCd陰極プロセスで全体としてこの表の比率が維持されるとする。再処理部分の設備費について、個々の機器ごとの製作単価の違いは無視し、Ga陰極プロセスとする際の設備費の増加を先ほどの9%増とすると325→354億円となる。また、この設備費の増加が、同表の分析から建屋費までの5項目にそのまま影響するとして、554→604億円となる。その他の部分に変更がないとすると、総計が1902→1981億円となり、建設コストは4.2%増となる。非常に粗い試算ではあるが、Cd陰極を採用してTRU燃料再処理プラントが成立することを前提とした場合には、代替陰極としてGa陰極を採用して電解槽が2基増える影響はそれほど大きくないと考えることができる。

なお、(2)③に記述したようにCd蒸留装置や射出鋳造装置は、操業条件や臨界管理の観点から、U-Pu-Zr燃料再処理の場合に比べてTRU燃料再処理の場合に機器数が大幅に増加する可能性があり、例えば、Cd陰極処理が8基(ここでは2個と数えている)から36基(9個)に増大する影響は、Ga電解槽2基の増加に比べてインパクトが相当大きい。つまり、U-Pu-Zr燃料からTRU燃料にすることによる機器数やプラントコストの増加の可能性に比べ

れば、陰極をCdからGaに変更することによる増加の可能性は、少なくとも今後の開発上は大きな問題ではないと考えられる。

最後に、代替プロセスとして検討した(4)塩処理量増加、(5)FP除去プロセスの追加についても、ここで簡単に検討する。(4)の塩処理量増加の場合は、Cd陰極の基本プロセスから機器の構成に変化はなく、一日の処理バッチ数を増加させることで対応が可能な場合は機器数量・寸法とも変更がない可能性がある。バッチサイズが増加する場合には、抽出器やゼオライトカラムの前後のタンク類について、機器数に変化はないがそれぞれの容量が大きくなる分だけ設置面積が増大する。ゼオライトカラム自体は、カラムのサイズが大きくなるかカラム装置の数量が増加することになるが、どのような選択が適当であるかはここでは判断できない。(5)のFP除去プロセス追加の場合には、(4)の機器増加あるいは容量増大に付加してREの抽出器が追加される。ただし、もともと存在するTRU抽出器はその前後のタンク類に比べて小さい⁽¹⁾うえに、1段ないし2段程度のRE抽出器はTRU抽出器と一体構造にできる可能性が高いので、ここでの影響は非常に小さいと考えられる。

すなわち、Cd陰極によるTRU燃料再処理プロセスが構築できることを前提とするならば、(4)(5)のいずれの場合においても、機器数や機器サイズの増大の影響はプラント全体からすればそれほど大きくなく、プラント規模や建設コストへの影響はさほど大きくはないと推定できる。

(7) 今後の開発課題

これまでに述べたように、TRU金属燃料の再処理にはU-Pu-Zr金属燃料の乾式再処理プロセスを大きく変更することなく活用できると考えられ、U-Pu-Zr金属燃料の乾式再処理が工学的に成立することを前提とすれば新たな開発課題は少ない。また、高除染を目指してCd代替陰極としてGa陰極を採用する場合にも、これまでの電解精製槽に関する知見を利用して電解移送用の電解槽を設計できると考えられる。

一方、処理すべきPu量が増大することにより、それに必要な液体Cd及びGa陰極の取扱量が増大し、処理速度や臨界管理の観点から機器数が増加する可能性がある。今後の開発課題として電流効率や蒸留速度の向上策の検討、臨界管理を考慮したバッチ処理量や必要な機器数の検討、それを踏まえた上での電解精製槽及びCd陰極処理装置の設計研究が必要である。

液体陰極や電解槽浴塩のTRUやFPの濃度が大幅に変わりうるため、融点や粘性、発熱量や放射能の観点から受け入れ可能な条件になっているかについては、工学規模試験や実機の装置設計を実施する際に必要な検討事項である。また、体系にUがほとんど存在しないことで、Uに代わってTRUが系内の酸素と反応してドロスとなることを仮定し、その処理はUのドロス処理と同様に可能であることを仮定した。これについてはその挙動と工学的な処理法の両面で研究開発が必要である。

(8) まとめ

Uをほとんど含まないTRU金属燃料の乾式再処理プロセスを、これまでに豊富な知見が

あるU-Pu-Zr 3元合金の高速炉金属燃料の乾式再処理プロセスをベースに検討した。

検討の結果、TRU金属燃料をリサイクルする場合に、除染の目標を新燃料中のRE混入量2%以下とすれば、液体Cd陰極を用いた乾式再処理プロセスフローで達成可能であることが分かった。しかし、RE/TRU比が高い軽水炉使用済み燃料再処理から発生する高レベル廃液から、MAを回収して本燃料サイクルに導入する際には、相当量の希土類FPが随伴すると考えられるので、プロセス全体としてはCd陰極では制限値を満足できなくなる可能性が高い。より高い除染性能を求めめるための代替プロセスとして、電解槽での代替陰極の採用、塩処理量の増大による塩浴中希土類FP存在量の低減、希土類FP除去工程の追加、の3つについて検討し、いずれの案も有効であることが分かった。代替陰極については複数の候補材料について検討し、より分離性能が高いGaが有力と考えた。塩処理量増大や希土類FP除去工程追加は、低濃度浴塩からのゼオライトへのFP吸着挙動あるいはそれに依存する塩廃棄物発生量が明確でなく、これらの適用には相対的に不確実性が高いと考えた。なお、いずれの代替案でも装置数や設置面積の増大、それに伴うプラントコストへの影響は小さいと判断した。

これらを踏まえて、TRU金属燃料の乾式再処理プロセスフローとして、電解精製槽で従来のCd陰極の代替としてGa陰極を用いることが有力であると結論した。

参考文献

- (1) 木下賢介、ほか、電力中央研究所報告 研究報告L11009「金属燃料乾式再処理プロセスのマスバランス評価とプラント概念設計」、平成24年7月
- (2) 原子力システム研究開発事業「MA入りPu金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」平成26年度成果報告書（2015）
- (3) 原子力システム研究開発事業「MA入りPu金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」平成27年度成果報告書（2016）
- (4) T. Toda et al., J. Nucl. Sci. Technol., vol. 46, No. 1, (2009) 18-25.
- (5) T. Toda et al., Electrochemistry Communication, vol. 77 (2009) 649.
- (6) 電力中央研究所 原子力システム研究開発事業 “マイナーアクチニド/希土類分離性能の高い乾式処理プロセスの開発” 平成25-26年度成果報告書(2014、2015)
- (7) V. Smolenski et al., Electrochim. Acta, 145 (2014) 81-85.
- (8) V. Smolenski et al., Electrochim. Acta, 133 (2014) 354-358.
- (9) A. Novoselova et al., J. Nucl. Mater., 466 (2015) 373-378.
- (10) P. Soucek et al., J. Nucl. Mater. 459 (2015) 114-121.
- (11) M. Kurata et al., J. Nucl. Mater., 227 (1995) 110-121.
- (12) H. Moriyama et al., J. Alloy. Compd., 271-273 (1998) 587-591.
- (13) 木下ら、電力中央研究所報告T97015 (1998)
- (14) S. Yu. Melchakov et al., ECS Transactions, 64(4) (2014) 369-375.
- (15) D. Lambertin et al., J. Nucl. Mater., 341 (2005) 131-140.
- (16) B. P. Reddy et al., Thermochem. Acta, 366 (2001) 37-45.
- (17) V. A. Volkovich et al., J. Nucl. Mater., 438 (2013) 94-98.

- (18)V. A. Volkovich et al., *J. Nucl. Mater.*, 465 (2015) 153-160.
- (19)Y. Castrillejo et al., *J. Nucl. Mater.*, 360 (2007) 32-42.
- (20)K. Liu et al., *Electrochim. Acta*, 130 (2014) 650-659.
- (21)P. Soucek et al., *Proc. Global 2009, Paris, France, Sep. 6-11, 2009*, paper 9217.
- (22)Y. Castrillejo et al., *Electrochim. Acta*, 51 (2006) 1941-1951.
- (23)M. R. Bermejo et al., *J. Electroanal. Chem.*, 588 (2006) 253-266.
- (24)S. Vandarkuzhali et al., *Electrochim. Acta*, 59 (2012) 245-255.
- (25)P. Soucek et al., *J. Nucl. Mater.*, 394 (2009) 26-33.
- (26)Y. Castrillejo et al., *J. Electroanal. Chem.*, 575 (2005) 61-74.
- (27)E. Mendes et al., *J. Nucl. Mater.*, 420 (2012) 424-429.
- (28)C. Nourry et al., *Proc. Global 2009, Paris, France, Sep. 6-11, 2009*, paper 9237.
- (29)Y. Castrillejo et al., *Electrochim. Acta*, 118 (2014) 58-66.
- (30)L. Cassayre et al., *J. Nucl. Mater.*, 378 (2008) 79-85.
- (31)Y. Sakamura et al., *J. Electrochem. Soc.*, 147(2) (2000) 642-649.
- (32)O. Shirai et al., *J. Appl. Electrochem.*, 34 (2004) 323-330.
- (33)Y. Castrillejo et al., *J. Electroanal. Chem.*, 579 (2005) 343-358.
- (34)O. Shirai et al., *Analytical Sciences* January 2001, vol 17 (2001) 51.
- (35)H. Moriyama et al., *J. Nucl. Mater.*, 247 (1997) 197-202.
- (36)I. Johnson et al., *Transactions of the ASM*, vol 56 (1963) 272.
- (37)F. H. Ellinger et al., *J. Nucl. Mater.*, 12 (1964) 226-236.
- (38)P. R. Roy, *J. Nucl. Mater.*, 11 (1964) 59-66.
- (39) 原子力システム研究開発事業「MA入りPu金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」平成28年度成果報告書 (2017)
- (40) 電力中央研究所、原子力システム研究開発事業、「マイナーアクチニド/希土類分離性能の高い乾式処理プロセスの開発」平成25-26年度成果報告書 (2015、2016)
- (41)M. Kurata, et al., *J. Nucl. Mater.*, 227, 110 (1995)
- (42)D. Kim, et al., *J. Nucl. Mater.*, 478, 91 (2016)
- (43)J. Norman., *Anal. Chem.*, 33, 946 (1961).
- (44)Y. Castrillejo, et al., *J. Electroanal. Chem.*, 579, 343 (2005)
- (45)O. Shirai, et al., *Anal. Sci.*, 17, 51 (2001).
- (46)V.A. Volkovich, et al., *J. Nucl. Mater.*, 438, 94 (2013)
- (47)D. Lambertin, et al., *J. Nucl. Mater.*, 341, 131 (2005)
- (48)I. Johnson, et al., *Transactions of the ASM*, 56, 272 (1963)
- (49)B. P. Reddy, et al., *Thermochim. Acta*, 366, 37 (2001)
- (50)H. Kim, et al., *Electrochim. Acta*, 220, 237 (2016)
- (51)Y. Sakamura, et al., *J. Electrochem. Soc.*, 147, 642 (2000)
- (52)O. Shirai, et al., *J. Appl. Electrochem.*, 34, 323 (2004)
- (53)J. Serp, et al., *J. Nucl. Mater.*, 340, 266 (2005)
- (54)K. Liu, et al., *Electrochim. Acta*, 130, 650 (2014)

- (55) J. M. Shafir, et al., Canadian J. Chem., 48, 2131 (1970)
- (56) Y. Castrillejo, et al., J. Nucl. Mater., 360, 32 (2007)
- (57) Binary Phase Diagram, T. B. Massalski, Editor, American Society for Metals, Metals Park, OH, USA (1986)
- (58) K. Kinoshita et al., J. Nucl. Sci. Technol., 44(12), 1557-1564, 2007
- (59) K. Kinoshita et al., J. Nucl. Sci. Technol., 47(2), 211-218, 2010
- (60) 電力中央研究所、原子力システム技術開発公募事業「実用化に向けた金属燃料サイクルの工学技術実証に関する研究開発」平成21-23年度成果報告書 (2010、2011、2012)

表3.2.1-1 新燃料1tHM当たり発生する使用済み燃料の核種毎組成⁽²⁾

U	1.91E+00	GA	4.12E-08	RH	5.95E+00	PR	6.95E+00
Np	3.00E+01	GE	6.15E-03	PD	1.72E+01	ND	2.22E+01
Pu	6.69E+02	AS	1.79E-03	AG	1.80E+00	PM	5.93E-01
Am	6.64E+01	SE	2.21E-01	CD	1.29E+00	SM	6.79E+00
Cm	8.61E+00	BR	6.68E-02	IN	7.59E-02	EU	7.81E-01
HM合計	7.76E+02	KR	1.38E+00	SN	8.60E-01	GD	8.10E-01
H	3.70E-04	RB	1.20E+00	SB	2.31E-01	TB	5.84E-02
LI	2.74E-06	SR	2.58E+00	TE	3.88E+00	DY	4.82E-02
BE	9.65E-07	Y	1.40E+00	I	2.18E+00	HO	1.09E-03
C	1.00E-07	ZR	1.56E+01	XE	2.92E+01	ER	1.57E-03
CO	0.00E+00	NB	2.31E-05	CS	2.41E+01	TM	2.99E-07
NI	0.00E+00	MO	1.96E+01	BA	9.65E+00	YB	3.45E-08
CU	0.00E+00	TC	5.14E+00	LA	7.46E+00	FP合計	2.22E+02
ZN	3.25E-10	RU	1.89E+01	CE	1.36E+01	総計	9.98E+02

表3.2.1-2 核金属材料の融点/沸点⁽³⁾

(°C)

代替材料	融点/沸点 (°C)
Ga	29.78/2400
Ga-21.8wt%In	15.7/
Ga-1.6wt%Al	26.6/
Al	660.4/2470
Bi	271.3/1560
Zn	419.6/907
Pb	327.5/1740

表3.2.1-3 各金属材料での分離係数(500°C) ⁽³⁾

元素Aを基準とした元素Bの分離係数SF = $(C_{A \text{ in melt}})/(C_{B \text{ in melt}})/(C_{A \text{ in metal}}) * (C_{B \text{ in metal}})$

代替材料	分離係数SF(500°C)								参考文献
	U	Pu	Np	Am	Cm	Ce	La	Nd	
Ga	30000	260		112		1(基準)			(4)
	450	220		140		1(基準)			(6) [注1]
Ga- 21.8wt%In	83176						1(基準)		(7)
	29512							1(基準)	(8) [注4]
Ga- 1.6wt%Al	105000						1(基準)		(9) [注4]
Al	14000	230		240		1(基準)			(6) [注2]
	1(基準)	31.8	10.4	82	254	4276	4111	3432	(10) [注5]
Bi	1(基準)	13	11			834	2530	933	(11) [注6]
		4.6×10^9	1.9×10^8	3.1×10^9	1.3×10^9	5.1×10^6	4.0×10^6	4.4×10^6	(12) [注3]
	846	38		45		1(基準)			(4)
Zn		4.7×10^{11}	1.7×10^{11}	2.3×10^{12}	9.6×10^{11}	1.6×10^{11}	7.6×10^{10}	8.6×10^{10}	(11) [注3]
Pb	アルカリ、アルカリ土類、Sm, Euについて報告あり								(13)
Cd(参考)	1(基準)	1.9	1.9	1.1		49	131	45	(11) [注6]

[注1] 電解試験により得られた分離係数

[注2] 700°C

[注3] 600°C、分離係数の定義は1式とは異なり下式により定義される。

$$\text{Liを基準とした元素Mの分離係数SF} = (C_{Li \text{ in melt}})^3 / (C_{M \text{ in melt}}) / (C_{Li \text{ in metal}})^3 * (C_{M \text{ in metal}})$$

[注4] 510°C

[注5] 電解試験により得られた分離係数、分離係数の定義は1式とは異なり下式により定義される。

$$\text{Uを基準とした元素Mの分離係数SF} = (C_{M \text{ in melt}}) / (C_{U \text{ in melt}}) / (C_{M \text{ in metal}}) * (C_{U \text{ in metal}})$$

[注6] 分離係数の定義は1式とは異なり下式により定義される。

$$\text{Uを基準とした元素Mの分離係数SF} = (C_{M \text{ in melt}}) / (C_{U \text{ in melt}}) / (C_{M \text{ in metal}}) * (C_{U \text{ in metal}})$$

表 3. 2. 1-4 各金属材料において熱力学量(活量係数等)の報告がある元素⁽³⁾

代替材料	熱力学量(活量係数等)の報告がある元素	参考文献
Ga	U, Pu, Ce, Pr, Nd	(6), (14)-(16)
Ga-21.8wt%In	U	(17)
Ga-1.6wt%Al	U	(18)
Al	U, Np, Pu, Y, Sc, La, Ce, Pr, Gd, Ho, Er	(19)-(30)
Bi	U, Np, Pu, Am, Cm, Th, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Tm, Yb	(12), (19), (20), (31)- (34)
Zn	U, Np, Pu, Am, Cm, Th, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Pa	(12), (35)
Pb		

表3. 2. 1-5 各金属材料中のアクチニド溶解度 (500°C)⁽³⁾

代替材料	アクチニド溶解度	参考文献
Ga	U: 0.034 at%	(18)
	Pu: 0.17 at%	(6)
Ga-21.8wt%In	U: 0.032 at%	(17)
Ga-1.6wt%Al	U: 0.057 at%	(18)
Al	U: 0.06 wt% (646°C)	(36)
	Pu: 0.05 wt% (650°C)	(36)
Bi	U: 0.45 at%	(37)
	Pu: 1.17 at%	(37)
	Np: 1.05 at%	(37)
	Th: 0.068 at%	(37)
Zn	U: 10 ⁻² at%オーダー(600°C)	(38)
Pb	U: 0.0019 at%	(18)

表3. 2. 1-6 液体GaやBiに対して安定な材料の調査結果⁽³⁹⁾

	るつぼ材料	電極リード材料	備考
液体Ga	Al ₂ O ₃ ^(40, 48) 、BeO ⁽⁴⁶⁾ 、MgO ⁽⁴⁷⁾ 、Ta ⁽⁴⁹⁾ 、 ウランガラスチューブ ⁽⁵⁵⁾	Ta ^(40, 48) 、 W ^(46, 47, 55)	長時間の安定性を確認した報告なし
液体Bi	Al ₂ O ₃ ^(41, 45, 51) 、ホウ珪酸ガラス ⁽⁴³⁾ 、パイレックス ⁽⁴⁴⁾ 、BN ⁽⁵⁰⁾ 、AlN ⁽⁵²⁾ レーザーで表面処理したAl ₂ O ₃ ⁽⁴²⁾ 、カルシウムアルミネート ⁽⁴²⁾	W ^(5, 14, 15)	

表3. 2. 1-7 液体金属陰極での各元素(群)のPuに対する分離係数⁽²⁾

	Cd系	Bi系	Ga系
U	0.0667	0.009	0.009 (*)
Pu	1	1	1
Np	1	0.7	0.7 (*)
Am+Cm	2.6	2	2.3
RE-1 (Ce, Nd, Pr, Pm)	30	130	260
RE-2 (La, Gd)	100	360	700 (*)

(*) Ga系のU, NpはBi系と同じ値を用いた。

またGa系のRE-2はBi系のRE-1、RE-2とGa系のRE-1から概算した。

表3. 2. 1-8 Cd、Bi、Ga陰極を用いた場合の新燃料中のFP濃度（塩処理率を2%に固定）⁽²⁾

	Cd-2	Bi-2	Ga-2
塩処理率(%)	2	2	2
塩廃棄率(%)	0.03	0.03	0.03
塩中RE-1(kg)	154.9	231.2	250.3
塩中RE-1+RE-2(kg)	191.6	272.6	292.8
新燃料中FP(%)	1.98	0.70	0.38

表3. 2. 1-9 逆抽出プロセスの調査結果⁽³⁹⁾

液体Ga	Ga中のU、Pu、Ce、Ndの高効率な電気化学的溶出を確認 ⁽⁴⁰⁾
液体Bi	Bi中のZn、Li、Baの電気化学的溶出を確認 ^(4, 11) アクチニドやランタニドに関しては、サイクリックボルタンメトリーによる報告のみ ^(44. 45. 52. 53. 54. 56)

表3. 2. 1-10 液体Cd陰極での新燃料中FP濃度⁽²⁾

<Cd>	Cd-2	Cd-3	Cd-5	Cd-10
塩処理率(%)	2	3	5	10
塩廃棄率(%)	0.03	0.03	0.03	0.03
塩中RE-1(kg)	154.9	119.7	81.8	44.6
塩中RE-1+RE-2(kg)	191.6	145.3	97.6	52.4
新燃料中FP(%)	1.98	1.53	1.05	0.57

表3.2.1-11 液体Bi陰極での新燃料中FP濃度⁽²⁾

<Bi>	Bi-2	Bi-3	Bi-5	Bi-10
塩処理率(%)	2	3	5	10
塩廃棄率(%)	0.03	0.03	0.03	0.03
塩中RE-1(kg)	231.2	161.3	99.6	49.5
塩中RE-1+RE-2(kg)	272.6	189.1	116.2	57.5
新燃料中FP(%)	0.70	0.49	0.30	0.15

表3.2.1-12 液体Ga陰極での新燃料中FP濃度⁽²⁾

<Ga>	Ga-2	Ga-3	Ga-5	Ga-10
塩処理率(%)	2	3	5	10
塩廃棄率(%)	0.03	0.03	0.03	0.03
塩中RE-1(kg)	250.3	170.4	103.0	50.3
塩中RE-1+RE-2(kg)	292.8	198.7	119.8	58.4
新燃料中FP(%)	0.38	0.26	0.16	0.077

表3.2.1-13 U-Pu-Zr金属燃料乾式再処理プラント建設費 (億円)⁽¹⁾

		再処理	燃料製造
再処理・燃料製造建屋	受入・前処理	78	-
	再処理	325	-
	原料受入	-	7
	射出鑄造	-	62
	要素組立	-	79
	集合体組立・払出	-	55
	廃棄物処理	236	26
	廃棄物貯蔵	18	
	小計	657	229
	分析	63	36
	保守	111	32
	計装制御	101	20
	ユーティリティ	50	5
	建屋費(建電喚)	229	115
小計	554	208	
合計	1211	437	
使用済燃料貯蔵小屋	設備費および建屋費	131	
新燃料貯蔵小屋	設備費および建屋費		123
総計		1342	560
		1902	

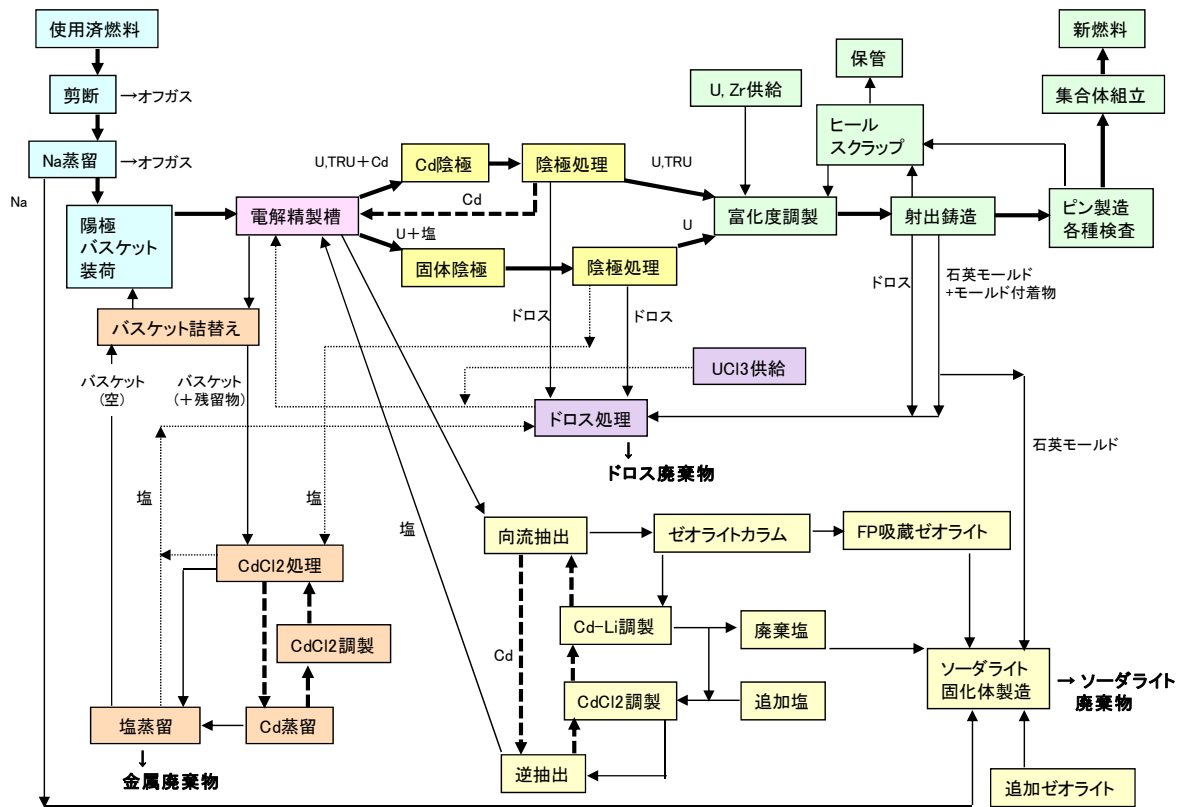


図3.2.1-1 U-Pu-Zr金属燃料の乾式再処理のブロックフロー図⁽²⁾

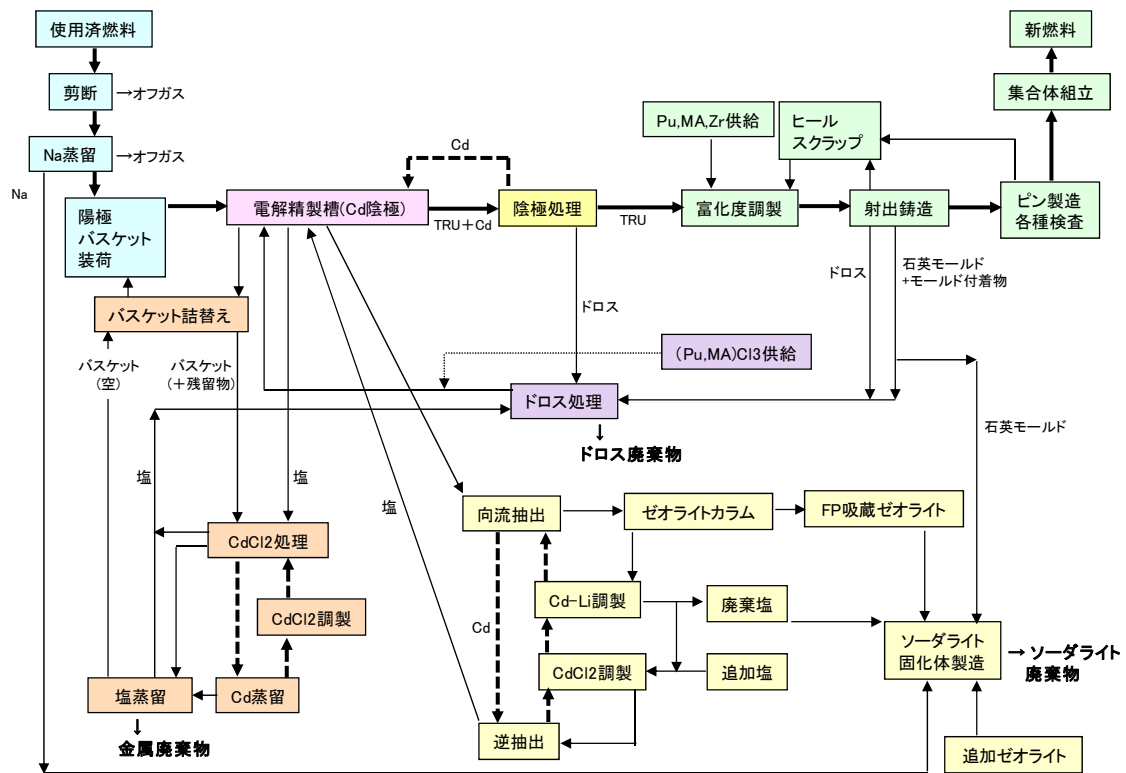


図3.2.1-2 TRU金属燃料の乾式再処理のブロックフロー図 (Cd陰極のケース)⁽²⁾

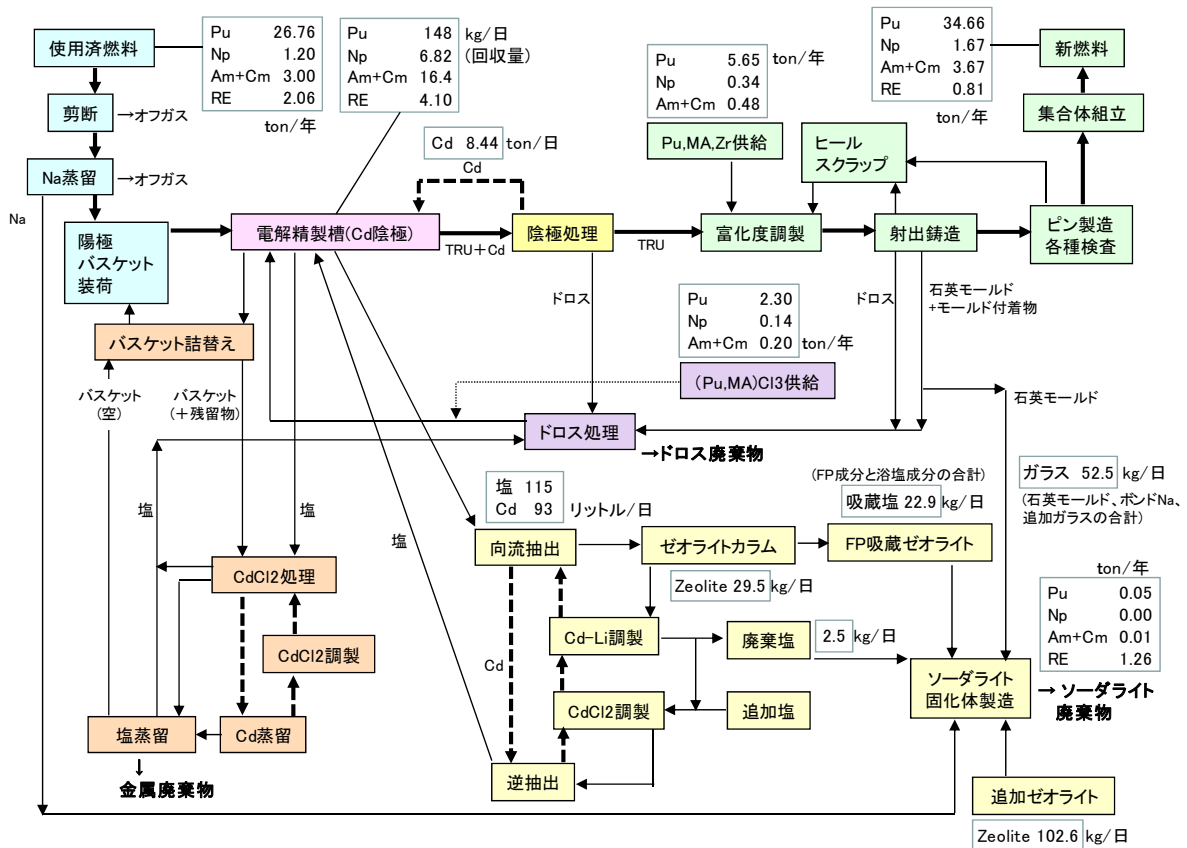


図3.2.1-3 TRU金属燃料の乾式再処理のマスバランス(Cd陰極の標準ケース)⁽²⁾

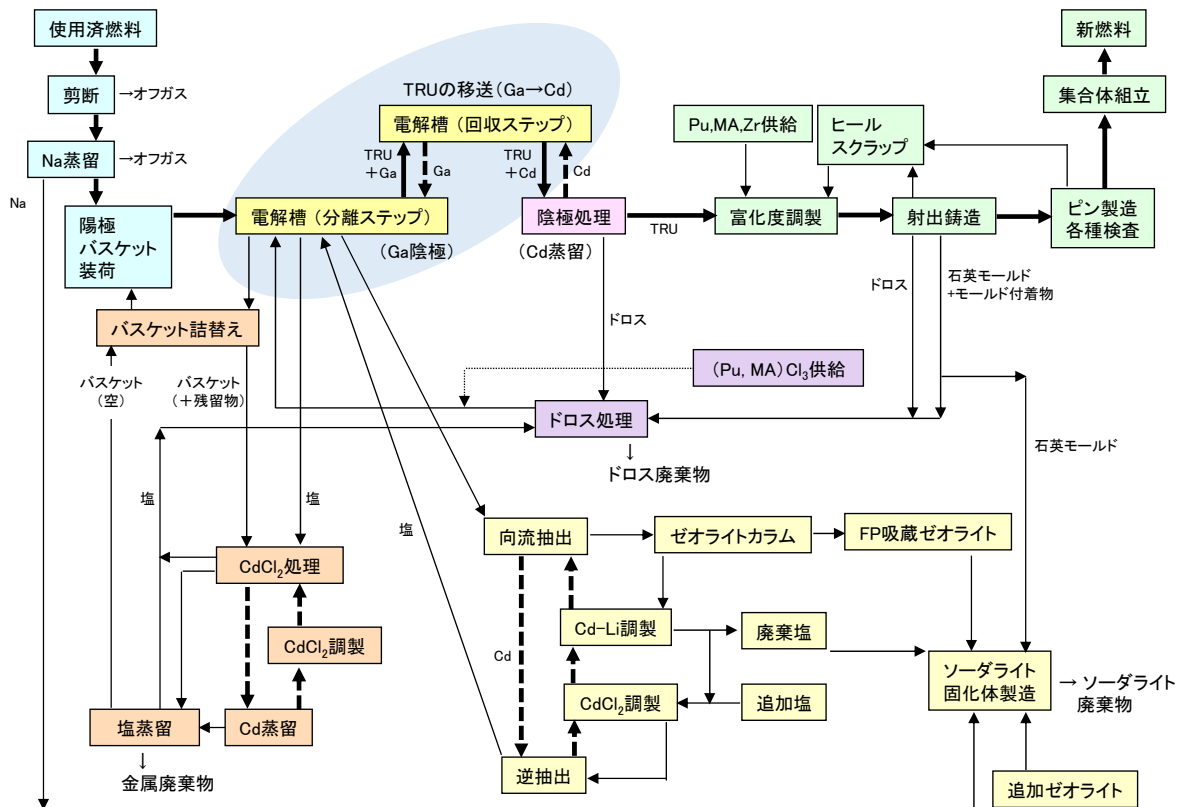


図3.2.1-4 液体Ga陰極を採用する場合のブロックフロー図⁽³⁹⁾

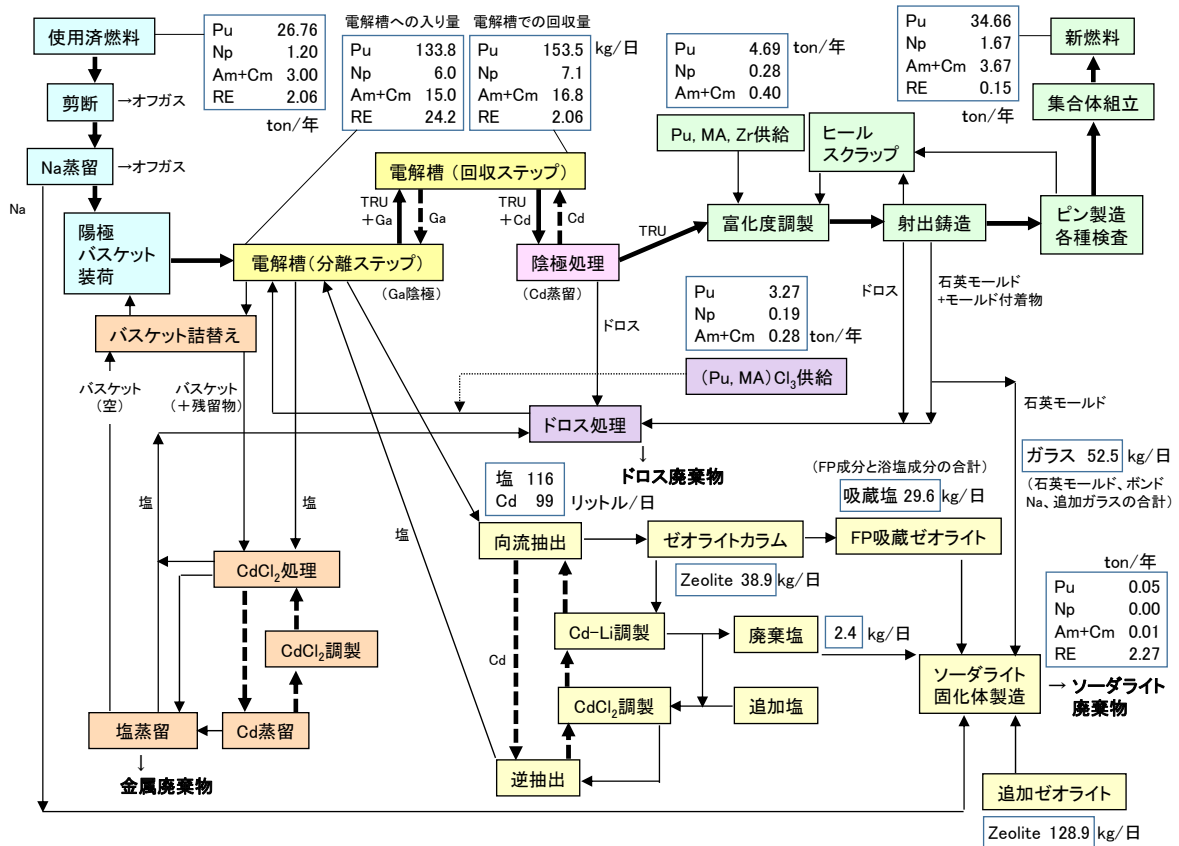


図3.2.1-5 液体Ga陰極を採用する場合のマテリアルバランス⁽³⁹⁾

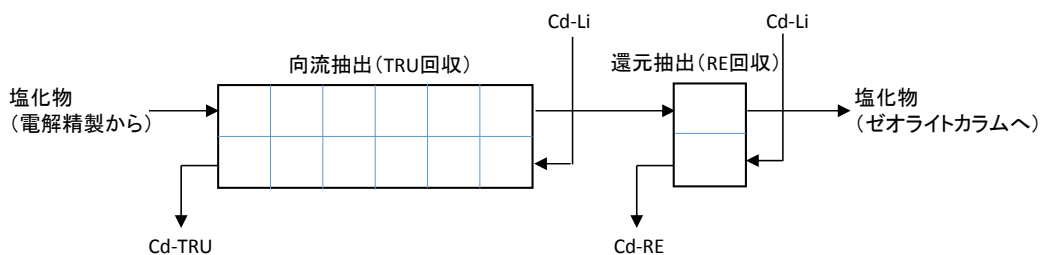


図3.2.1-6 2段階での抽出工程のイメージ図⁽³⁹⁾

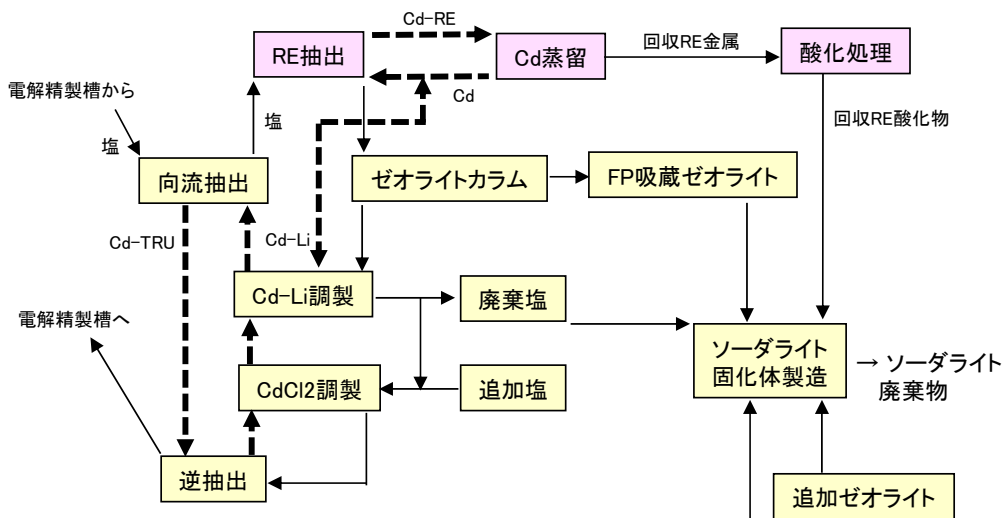


図3.2.1-7 RE抽出を付加したブロックフロー図 (塩処理部分のみ)⁽³⁹⁾

3.2.2 Zr 高含有燃料の電解精製試験 (H26~H29)

(1) 概要

U を含まない TRU 金属燃料では燃料合金材 Zr の割合を 40wt%程度まで高める必要があるが、そのような Zr 高含有金属燃料の電解再処理の実績は少ないため、その成立性の見通しを得ることを目的として、TRU 金属燃料の模擬物質として U-Zr 燃料を用いた各種の電解試験を実施した。具体的には、従来の電解法と同じ、燃料合金材の Zr を熔融塩中に溶解させないで燃料を優先的に溶解させて電解する方法（優先的陽極溶解電解法）、燃料とともに Zr も熔融塩中に溶解して電解する方法（同時陽極溶解電解法）、電解槽中の Cd プールに燃料と Zr を化学的に溶解し、 $ZrCl_4$ を添加して Cd プールから熔融塩中に燃料のみを塩化物として化学抽出してから電解する方法（化学抽出+電解法）、電解槽中の Cd プールに燃料と Zr を化学的に溶解し、その Cd プールを陽極として電解する方法（Cd 陽極電解法）等の試験を実施した。

その結果、優先的陽極溶解電解法、同時陽極溶解電解法、化学抽出+電解法などでは、電流密度や電流効率の低下、処理操作（プロセス）の複雑化などを招くのに対し、Cd 陽極電解法では比較的シンプルなプロセスにて熔融塩中への Zr の溶解を抑制し、ひいては Zr 割合が低い燃料を陰極に回収できることが分かった。

(2) 優先的陽極溶解電解法に関する試験 (H27-H28)

H26 年度は、試験に必要な U-20Zr、U-40Zr 組成の U-Zr 合金燃料を製作した。U-20Zr、U-40Zr 組成共に $\phi 18\text{mm} \times 13\text{mmH}$ 程度となるように、 $\phi 18\text{mm} \times 25\text{mmH}$ のイトリアるつぼ中に金属 U と金属 Zr を所定の重量比となるように装荷し、U と Zr の固溶体を作る為に Ar 雰囲気中で、U-Zr 系の液相線以上である 1900°C で 5 分間保持した後、炉冷した。なお、U-40Zr の液相線は約 1660°C 、U-20Zr の液相線は約 1480°C となる (H26 年度報告書⁽¹⁾)。

H27 年度は、Zr 高含有金属燃料の電解精製試験に用いる試験装置を設計・製作した。ペレット形状の U-Zr 合金試料を、有効表面積を一定に保つためにペレットの接液面積を一定にするためにフォルダ内に収納したものを陽極とし、塩中溶質濃度を一定に保つための攪拌機構を備え、LiCl-KCl 共晶塩中で電気化学測定及び電解を行うものである (H27 年度報告書⁽²⁾)。

従来の 10wt%Zr の U 含有金属燃料では、Zr の溶出を抑えながら電解する手法を取っており、20wt%Zr、40wt%Zr 燃料でもアクチニドの優先的溶解を行うことが可能かどうかを見極めるために、電極にステップ的に定電流を与えることにより起こる電位変化を観察する手法であるクロノポテンシオメトリー (CP:Chronopotentiometry) により評価を行った。試験条件を表 3.2.2-1 にまとめて示す。試験は、約 $\phi 105\text{m} \times 220\text{mmH}$ の SUS 製のつぼ中に装荷した LiCl-KCl (エーピーエル製、純度 99.99%) を電気炉中で熔融した後、金属 U と CdCl_2 と反応させて UCl_3 を生成し、塩浴中 U 濃度を約 2wt%とした後に、反応表面積を制限した陽極フォルダーを作用極としてクロノポテンシオグラムを取得した。また比較のために、U 及び Zr のクロノポテンシオグラムも取得した。

U-10Zr 試料では、 $500\text{mA}/\text{cm}^2$ まで上げると、約 -1.1V (vs. Ag/AgCl) の U から U^{3+} への溶

解反応を示すプラトーから、電極表面近傍中の UCl_3 濃度が飽和溶解度に達して Zr から Zr^{4+} への溶解反応を表すプラトーを示し、U の優先的溶解が可能なことを確認した。

U-20Zr 試料では、電流密度 $1000\text{mA}/\text{cm}^2$ まで測定しても、 $10\text{wt}\%\text{Zr}$ 試料のような、U から U^{3+} への溶解反応を示すプラトーと、電極表面近傍中の UCl_3 濃度が飽和溶解度に達し Zr から Zr^{4+} への溶解反応を示すプラトーを示す現象は現れず、U 金属とともに Zr 金属が溶解していると考えられる挙動を示した。この電気化学測定の範囲からは、 $100\text{mA}/\text{cm}^2$ 以下の電流密度では U の優先的溶解が起きている可能性は考えられるが、処理速度が遅くなる課題がある。

U-40Zr 試料でも、電流密度密度 $10\text{mA}/\text{cm}^2 \sim 500\text{mA}/\text{cm}^2$ までのクロノポテンシオグラムを取得したが、U の溶解電位から Zr の溶解電位に遷移する挙動はこの範囲では見られず、U 金属と共に Zr 金属が溶解していると考えられる挙動を示した。この電気化学測定の範囲からは、 $20\text{mA}/\text{cm}^2$ の電流密度以下では U の優先溶解が起きている可能性は考えられるが、処理速度が遅くなる課題がある。

U-40wt%Zr は状態図にあるように 500°C でほぼ全量が δ 相をとる⁽³⁾。 δ (U, Zr) 相における U の活量が複数の研究者により測定されており、Murakami らによると、 $700\text{K} \sim 839\text{K}$ の範囲の測定で、 δ 相中の U の活量は αU に対して $0.753 \sim 0.927$ と報告されている⁽⁴⁾。また、 δ 相の U, Zr 相互拡散係数は、高温領域の γ 相の相互拡散係数を低温側に外挿した値より一桁低いという報告もある⁽⁵⁾。Pu-Zr 系においても $40\text{wt}\%\text{Zr}$ 組成は 500°C では δ Pu 相を取るため、U-40wt%Zr 試料を 700°C の (γU , βZr) 相に変態させて、U 優先溶解が起こるかどうかを確認する目的で電気化学測定を行った。電流密度 $10\text{mA}/\text{cm}^2 \sim 500\text{mA}/\text{cm}^2$ までのクロノポテンシオグラムを取得したが、U-10Zr 試料に見られるような U の溶解電位から Zr の溶解電位に遷移する挙動は見られず、 δ (U, Zr) 相から (γU , βZr) 相に変態することによる効果は本試験からは見られなかった。

<まとめ>

U-40wt%Zr では、通常考えられている操作温度 500°C においても、活量が低いことが報告されている δ 相から 700°C に昇温して (γU , βZr) 相に変態させることによっても、工学的に U の優先的溶解が成立する条件は見つからなかった。U-20wt%Zr についても、 $100\text{mA}/\text{cm}^2$ 以下の電流密度では U の優先的溶解が起きている可能性はあるが、それ以上の電流密度では U と Zr が同時に溶解していると考えられる結果となった。

本研究で対象としている TRU 金属燃料の場合、Pu-Zr 二元系状態図⁽³⁾に示すように、 $40\text{wt}\%\text{Zr}$ 、 $20\text{wt}\%\text{Zr}$ 組成ともに温度 500°C においては結晶構造は δ 相を示すため、同様の傾向を示す可能性がある。その一方、 500°C における塩化物の標準生成自由エネルギー $\Delta G_f^{(6)}$ からは、 ZrCl_4 は -195.28 (kJ/mol-Cl)、 UCl_3 は -232.35 (kJ/mol-Cl)、 PuCl_3 は -261.41 (kJ/mol-Cl) であり、模擬物質である U よりも Pu の方が Zr と分離しやすい可能性はある。

(3) 同時陽極溶解電解法に関する試験 (H28-H29)

従来 U 含有金属燃料の $10\text{wt}\%\text{Zr}$ 組成では、Zr の溶出を抑えながら電解精製を行える見通しを得ていたが、実用的な電流密度の確保を考えると U の優先的溶解は困難なため、

Zr の溶解を許容して電流密度を下げない方向の電解挙動を評価した。

試験条件を表 3.2.2-2 にまとめて示す。

<Run1 (H28 年度報告書⁽⁷⁾) >

まず U-40Zr ペレット 2 個を用いて、U 及び Zr を共溶解させ、塩中 U 濃度及び Zr 濃度の陰極析出物組成への影響を調べる目的で電解試験を合計 4 日間行った。

1 日目は 2.0A (約 80mA/cm²) で 1 時間電解を行ったが、陽極電位が -0.1~-0.2V の間を推移し、試料表面に付着している Y₂O₃ による抵抗、もしくは Fe の溶解が始まっている可能性を考慮して電解を中断し、試料表面の研磨を行いペレットを 4 分割して表面積を増やして新しいバスケットに装荷した。試料装荷後の塩中の CV 測定からは、塩中に Zr イオンが溶出している為、Zr の 0→4 価、0→2 価もしくは 2→4 価の酸化ピークが観察された。2~4 日目の電解は、2A もしくは 1.5A の電流値で電解を行い、陽極電位は約 -0.3V 迄上昇し、U の 3 価⇔4 価の循環電流が生じている可能性は考えられた。

2~4 日目迄で評価すると、U が 0 価→3 価、Zr が 0 価→4 価に溶解すると仮定した場合の理論電気量の約 47%に相当する 15.69AH の電気量を流して終了した。得られた陰極析出物の外観は、Zr が混入している際の典型的な外観であったが、塩中の Zr 濃度は約 0.21wt%まで上昇し、析出物中の Zr 濃度は約 6.4wt%以下と析出物中 Zr 濃度は低い結果であった。しかし、各電解日の間の日数が空いていることと、途中で析出物が落下してしまいマスバランスが取れないことから、陰極に析出物落下防止用の傘を設けて再試験を実施することとした。

<Run2 (H28 年度報告書⁽⁷⁾) >

次に U-40Zr 試料で安定的に U と Zr を溶解可能な電流密度条件を探る目的で試験を行った。塩浴は Run1 で用いたものを継続して用いた。電流密度を評価するため、反応表面積を制限した陽極フォルダーに試料を装荷し作用極として、電流密度 10mA/cm²~1600mA/cm² 範囲でクロノポテンシオグラムを取得した。電流密度 300mA/cm² 以下までは U, Zr が共溶解する電位を示しており、更に電流密度を上げて行くと Zr の 0 価/4 価の酸化反応のプラトーから U の 3 価/4 価の酸化反応の領域へ移行する挙動が見られた。

この挙動の解析については、3.2.3 章にて評価されているように、アクチニドと Zr の同時溶解を許容した場合、安定した燃料合金溶解を継続することが可能な条件は、アクチニドではなく Zr の溶解電流上限値によって定まり、ZrCl₄ の拡散係数と溶解度によることが分かった。

<Run3 (H28 年度報告書⁽⁷⁾) >

次に、U-40Zr ペレット 1 個を用いて U 金属と Zr 金属を共溶解させ、塩中 Zr 濃度の陰極析出物組成への影響及び物質収支を取る目的で電解試験を合計 2 日間行った。SUS304 るつぼ内のアルミナるつぼ中に LiCl-KCl-UCl₃ を調整し塩中 U 濃度は約 1.82wt%となった。試料は、表面に付着した Y₂O₃ を研磨した後に 4 分割し、陽極バスケットに装荷した。試料の外径が研磨前のままと仮定すると試料表面積は約 22.2cm² と評価される。1 日目は 1 時間×4 回、2 日目は 1 時間×2 回の電解を行い、その都度陰極は交換し、電流値は、2A (約 90mA/cm²)→1.5A (約 68mA/cm²)→1A (約 45mA/cm²) と陽極電位約 -0.3V を目安として上昇するにつれて電流値を下げた。

1 日目の電解終了時には、塩中 Zr 濃度は約 0.07wt%で、陰極析出物中 Zr 割合は約 51.5wt%まで上昇したが、一晚(約 15 時間)静置した後は、塩中 Zr 濃度は約 0.07wt%から約 0.05wt%に低下した。塩中のサイクリックボルタモグラムも、Zr の酸化反応が少し見られたのみの状態に戻った。この後、電解試験を 1A で再開したところ、陽極電位は約-0.3V で推移し、電解後の塩中 Zr 濃度は約 0.09wt%まで上昇したが、陰極析出物中 Zr 割合は約 18.6wt%に留まった。しかしながら、続けて 1A で電解試験を行ったところ、電解後の塩中 Zr 濃度は若干上昇し、陰極析出物中の Zr 割合は約 86wt%まで上昇した。ただ通電量に対して析出量が極端に少ないため、析出物の落下が考えられた。電解は、U が 0 価から 3 価に、Zr が 0 価から 4 価に溶解すると仮定した場合の理論電気量の約 47%に相当する電気量を流して終了した。電解終了時のサイクリックボルタモグラムからは、第一サイクルでは、卑側では Zr の還元から U の還元へ続く δ 相の生成と U、Zr の溶解、U の 3 価、4 価の酸化還元反応と思われる反応が見られたが、第二サイクル以降は卑側の U の還元、酸化、Zr の溶解と、U の 3 価、4 価の酸化還元反応が見られた。また、陽極残渣の全量化学分析を行ったところ、U : Zr は 60 : 40 となり、溶解はほぼ U 金属と Zr 金属が同じ重量比で溶解したことが分かる。

上記から、析出物中の Zr 割合を下げるには、塩中の Zr 濃度を高くしないことが重要で、電解と電解の間に U と Zr イオンの交換反応の時間を取れば、炉心組成の 40wt%以下の析出物が得られる可能が示唆された。

<Run4>

Run3 において、金属 U と Zr イオンの交換反応により塩中の Zr 濃度を下げることにより、陰極析出物の Zr 割合を炉心組成の 40wt%以下にできる可能性が示唆されたため、U-40Zr ペレット 1 個を用いて、電流密度を下げずに Zr の同時溶解を許容した場合の陰極回収物組成を評価した。物質収支を取る為に塩浴は新しいものを用いた。図 3.2.2-1(a)に示すように、 $\phi 105\text{mm} \times \phi 100\text{mm} \times 200\text{mm}$ SUS304 のつぼ中に $\phi 90\text{mm} \times \phi 84\text{mm} \times 120\text{mm}$ のアルミナルツボを装荷した体系とし、485.49g の LiCl-KCl (APL 製、純度 99.99%) を電気炉中で熔融した後、金属 U と CdCl_2 を反応させて UCl_3 を生成し、塩浴中 U 濃度を約 1.94wt%とした。試料は、図 3.2.2-1(b) (c) (d)に示すように、表面に付着した Y_2O_3 を研磨した後、4 分割にし、陽極バスケットに装荷した。試料の外径が研磨前のままで $\phi 18\text{mm} \times 13\text{mm}$ と仮定すると、4 分割することにより試料表面積は約 22.2cm^2 と評価される。図 3.2.2-1(e)に示すように、陰極には析出物が落下ないようにアルミナ製の傘を下部に設けた。試験条件は表 3.2.2-2 に示した。

図 3.2.2-1(f)に電解開始前に作用極、対極に Ta 線を用いて掃引速度 0.1V/s にて取得したサイクリックボルタンメトリーを示す。電位が卑な側のピークは U の 0 価と 3 価の酸化・還元反応、貴な側のピークは U の 3 価と 4 価の酸化・還元反応を示している。

図 3.2.2-1(g)に 3 日間の電解中の電流、陽極電位、電気量の経時変化を纏めて示す。1 日目には、1A \times 1h の電解を 8 回行いその都度陰極は交換した。その度に CV、CP を取得し、電気量に分極測定分を加えた。1 日目と 2 日目の間は、電極を塩から引き上げた。2 日目は 1A \times 1h の電解を行った。2 日目と 3 日目の間は、塩中 Zr 濃度を下げるために電極を塩に浸漬・静置したままとした。3 日目の電解は 1A \times 1h の電解を行った。

図 3.2.2-1(h)は 1 回目電解後の CV、図 3.2.2-1(i)9 回目(2 日目)電解後の CV、図 3.2.2-1(j)は 9 回目電解後に電極試料を塩中に浸漬・静置し、10 回目の電解開始前の CV、図 3.2.2-1(k)は各電解の開始前に測定した分極測定結果を纏めたものである。図 3.2.2-1(l)は陽極残渣、塩、Cd、陰極析出物の分析手順、図 3.2.2-1(m)～(v)には陰極析出物を、図 3.2.2-1(w)には陽極残渣を、図 3.2.2-1(x)には塩中の U, Zr の濃度を、図 3.2.2-1(y)は塩中、Cd 中、析出物中の Zr 濃度を示す。

1, 2 回目の電解は、それぞれ 1A(約 45mA/cm²)で 1 時間行った。陽極電位は約-0.85V で推移していたが、1 回目電解後の CV から Zr の酸化ピークが見られ 1 回目の電解から U と共に Zr も溶解していたことが分かる。1 回の電解により塩中 Zr 濃度は約 0.05wt%に到達し、陰極析出物中 Zr 割合は 1 回目電解では 26%であったが、2 回目電解では 51%まで到達した。1 日目の電解は電流値 1A で 8 回繰り返して行い、陽極電位は約-0.2V まで上昇した。8 回目電解後の塩中 Zr 濃度は約 0.061wt%で、陰極析出物中 Zr 割合は約 67%まで上昇した。この間の塩中 Zr、Cd 中 Zr、析出物中 Zr、塩中 U, Zr 濃度の経時変化は図 3.2.2-1(x) (y)に示したとおりである。

この後、電極は引き上げて一晩静置した後、2 日目に 9 回目の電解を 1A×1h で行った。陽極電位は約-0.3V～-0.2V を推移した。電解終了後の CV 測定からは Zr の酸化ピークが高く表れた(図 3.2.2-1(i))。塩中の Zr 濃度は約 0.06wt%で、陰極析出物中 Zr 割合は約 53.6%となった。

この後、電極を塩中に浸漬・静置した状態で一晩静置した(約 21 時間)。その結果、塩中 Zr 濃度は 0.007wt%まで減少した。塩中の CV から Zr の酸化ピークが小さいブロード状態になったことが分かる(図 3.2.2-1(j))。この状態で 10 回目の電解を 1A×1h で行った。その結果、塩中 Zr 濃度は約 0.032wt%、陰極析出物中 Zr 割合は約 21%のものが得られた。

表 3.2.2-3 に物質収支をまとめた結果を示す。電解終了後の陽極残渣の分析結果から、陽極残渣中の U/Zr 比は約 65/35 となり、合金試料の溶解はほぼ同重量で溶解したと考えられる。装荷試料、陽極残渣、10 個の陰極析出物、塩中及び Cd 中の U と Zr の濃度変化から評価したところ、U の回収率は約 118%、Zr の回収率は約 142%と評価された。

<まとめ>

U-40wt%Zr では、工学的に U の優先的溶解を成立させるのは困難であることが分かったため、Zr の陽極溶解を許容した同時陽極溶解電解試験を TRU 金属燃料の模擬物質として U-40wt%Zr を用いて行った。

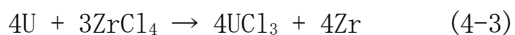
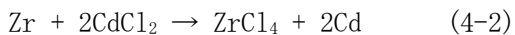
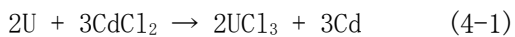
塩中に Zr が溶解していると塩化物生成自由エネルギーが貴である Zr が析出するため陰極析出物中 Zr 濃度が高くなる結果となった。少なくとも Zr 割合が炉心組成の 40wt%Zr 以下の析出物を得るためには、電解開始時の塩中 Zr 濃度がゼロに近い時と、塩中 Zr 濃度が安定になるまでの過渡期が必要となる。このためには、処理対象の金属燃料と塩中 Zr イオンとの化学交換反応により、塩中 Zr イオン濃度を下げることが有効であることが分かった。

(4) 化学抽出法と電解法の組み合わせプロセスに関する試験 (H27-H28)

TRU 金属燃料の模擬物質 U-40wt%Zr を用いた試験において、従来の U 含有金属燃料の 10wt%Zr 組成のように、アクチニドを優先的に溶解させて大部分の Zr を陽極バスケット中に残渣として残す手法を工学的に成立させることは困難なことが分かってきた。

<CdCl₂による溶解 (H27 年度報告書⁽²⁾) >

従来の 10wt%Zr 組成の金属燃料の電解精製試験においても、U の溶解が進むと処理速度が低下して Zr の溶解が始まるため、Zr の溶解が著しくなる前に電解を終了して、陽極残渣である残留アクチニドを CdCl₂ 等の酸化剤により化学的に溶解する手法を取っていた⁽⁸⁾⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾。そこで、本手法を応用して、(4-1)、(4-2)式に示すように、CdCl₂ により燃料である U (Zr も相当量溶解すると想定) を溶解し、U と共に溶解した Zr は、(4-3)式のように、金属 U との交換反応により溶解した Zr を金属に戻すことが可能なことを確認した。本反応により、熔融塩中にアクチニドイオンのみが塩化物として溶解している状況を作り出し、熔融塩中で電解精製を行うことにより、アクチニドを Zr と分離し回収することが可能となる。Zr は別途沈殿物として回収、もしくは液体 Cd 中に溶解させた後に回収することになる。

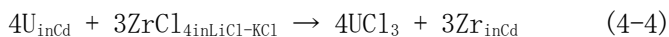


試験は、アルミナるつぼ中に U-40Zr 試料と LiCl-KCl 塩を装荷し、500°C に昇温して塩を熔融した。酸化剤は、過去の試験ではアクチニドである U のみを溶解し、Zr をなるべく溶解させないために CdCl₂ を数ステップに分けて投入したが、本試験では U-40Zr 合金の溶解と Zr イオンの還元を確認することが目的なので CdCl₂ は一括投入した。

本試験結果から、CdCl₂ による溶解と Zr イオンの還元を容易に行うことができ、塩中から Zr イオンを除いた後にアクチニドの電解回収を行うことができる可能性を示した。本試験では金属 U を外から投入したが、金属 U の代わりに使用済み金属燃料を用いることでサイクル外からの物質の投入はせずに済む。

<ZrCl₄による熔融 U 逆抽出 (H28 年度報告書⁽⁷⁾) >

ここでは、酸化剤としてドロスの塩化に用いられている ZrCl₄ を用いて、金属 U のみをイオン化することが可能かどうかを確認する試験を行った。(4-4)式に示すように、U-40Zr 試料を熔融 Cd 中に溶解させた後、添加した ZrCl₄ によって Cd 中の U を塩中に UCl₃ として抽出し、Zr は Cd 中に残留させる方法である。



これにより、Zr を Cd 中に留めて塩中のアクチニドイオンと分離し、熔融塩中で電解回収を行うことで、陰極析出物への Zr の混入を減少させる方法である。試験は、アルミナるつぼ内に、LiCl-KCl、Cd、U-40Zr 試料、ZrCl₄ を装荷し、電気炉内に設置して 450°C に昇温した。添加した ZrCl₄ 量は U 試料が塩化物に転換するのに必要な当モル量である。金属 U の反応に必要な等モル量の ZrCl₄ しか投入しなかったため途中から (4-4) の反応が遅くなる現象が見られ、ZrCl₄ が足りなくなってからは、Cd 中 U 濃度も上昇した。系内 (主に Cd 内) に Zr を外から追加することになるが、塩中 Zr 濃度はかなり(約

0.01wt%)に抑ることができ、本溶融 Cd 中への試料溶解と塩中での電解回収を組み合わせ、陰極析出物中の Zr 濃度を低く抑えるプロセスが得られる可能性が示唆された。

(5) Cd 陽極電解法に関する試験 (H29)

TRU 金属燃料の模擬物質 U-40wt%Zr を用いた Zr の溶解も許容する電解において、塩中の Zr イオン濃度が高くなる度に塩中 Zr イオンと金属燃料との化学交換反応の時間を取り、Zr イオンを金属 Zr に還元することで、その直後の電解の析出物中の Zr 割合を低下可能なことが分かった。しかしながら、電解の途中で塩中 Zr 除去などの煩雑な操作が必要となることから、始めから Cd 相中に燃料を溶解させ、その Cd を陽極とした電解精製試験によるアクチニドと Zr の分離挙動の評価を行った。

<Run1>

表 3.2.2-5 に Cd 陽極電解法の試験条件を纏めて示す。図 3.2.2-2(a)に示すように、φ 80mm の炭素鋼るつぼの中に、LiCl-KCl (APL 製、純度 99.99%)、金属 Cd、酸化剤 CdCl₂ (11.99g) を装荷して温度 500°C に昇温した後、金属 U を用いて浴調製を行った。一旦冷却後に金属 U と金属 Zr を重量比率 60:40 で装荷して温度 500°C に昇温し、Cd 相中に U と Zr を溶解させた。図 3.2.2-2(b) に試験概念を示す。金属燃料を Cd 相中で溶解後に、Cd 陽極/塩中固体陰極の体系として電解を行い、金属 Zr は Cd 中に閉じ込め、U イオンを塩中に移行させて固体陰極に析出させる。なお、参照電極はパイレックスガラス中に LiCl-KCl-1wt%AgCl を装荷し、Ag を導線とした。

図 3.2.2-2(c) に示すように、約 96 時間保持した結果、Cd 中 U 濃度は約 1.99wt%、Cd 中 Zr 濃度は約 1.31wt% となった。773K で報告されている Cd 中 U の溶解度は 2.35wt%⁽⁶⁾ で約 85% 溶解した。同じく Zr の溶解度は 0.240wt%⁽⁶⁾ であるが、Cd₃Zr、Cd₂Zr、CdZr、CdZr₂ 等の金属間化合物が存在することが報告されており⁽³⁾、多数の金属間化合物相が分散して存在していることによると推測している。

図 3.2.2-2(d) に電解開始前に作用極、対極に Ta 線を用いて掃引速度 0.1V/s にて取得したサイクリックボルタンメトリーを示す。卑側のピークは U の 0 価/3 価の酸化・還元反応、貴側のピークは U の 3 価/4 価の酸化・還元反応を示している。溶融塩と Cd の接触面を反応表面積とすると表面積は約 50cm² と評価されるため、1 日間で 2A (40mA/cm²) × 1h → 1A (20mA/cm²) × 1h → 0.5A (10mA/cm²) × 2h の 3 回の電解を行い、陰極はその都度交換した。図 3.2.2-2(e) に電解中の電流値、陽極電位、通電量の経時変化をまとめて示す。各電解終了後には CV を取得し塩浴の状態を調べた。

全電解を通じて陽極電位は -1.3V ~ -1.2V を推移し、ほぼ U の溶解電位を維持していたと考えられる。図 3.2.2-2(f) に 1 回目電解後の CV、図 3.2.2-2(g) に 2 回目電解後の CV、図 3.2.2-2(h) に 3 回目電解後の CV を示す。3 回目電解終了後の CV に約 -1.2V のピークが見られるが、図 3.2.2-2(i) の電解中における塩、Cd 中の U、Zr 分析結果からは、塩中の Zr 濃度はほぼゼロを維持しており何かは特定できていない。

図 3.2.2-2(j) (k) (1) に、1 回目、2 回目、3 回目それぞれの陰極析出物の外観を示す。1 回目析出物の下部に見られる金属光沢は、1 回目電解後半の陽極電位の振動に見られるように、陰極析出物が成長したことで Cd 界面と接触したことによる Cd と考えられる。

表 3.2.2-6 に陰極析出物の分析結果を含めた物質収支を示す。1 回目電解、2 回目電解では、塩中 U 濃度が 1.81wt%→1.16wt%→0.64wt%と極端に低下し、Cd 中 U 濃度も 2.02wt%→0.71wt%→0.56wt%と低下しているため、定常的に電解が行われているとは言い難い。このため、次の電解では Cd 量を約 2 倍に増やして U インベントリーを増大させた状態にして、塩中 U 濃度が保たれる電解を目指すこととした。

<Run2>

表 3.2.2-5 に Run2 の試験条件を示す。Run1 と同様の手順で、図 3.2.2-3(a)に示すように浴調整を行った。但し酸化剤 CdCl_2 は、浴調製時に 11.65g 装荷し、金属 U, Zr の溶解時に追加で 2.41g 添加した。Cd の量は Run1 の 2 倍の重量にして、金属 U と金属 Zr の量も約 4 倍量とした。図 3.2.2-3(b)に示すように約 69 時間保持した結果、Cd 中 U 濃度は約 1.59wt%、Cd 中 Zr 濃度は約 4.13wt%となった。Run1 との違いは Cd 相の攪拌を行ったことであり、サンプリング試料中に金属間化合物を拾ったことによると推測される。

図 3.2.2-3(c)に電解開始前に作用極、対極に Ta 線を用いて掃引速度 0.1V/s にて取得したサイクリックボルタンメトリーを示す。U の 0 価/3 価の酸化還元反応、U の 3 価/4 価の酸化還元反応が見られる。

図 3.2.2-3(d)に電解中の電流値、陽極電位、通電量の経時変化をまとめて示す。陽極電位がウランの溶解だけが起こるように、陽極電位が-1.0V 以下にはなることを目安として電解を行った。熔融塩と Cd の接触面を反応表面積とすると表面積は約 50cm^2 と評価されるため、1 日目は $0.5\text{A}(10\text{mA}/\text{cm}^2) \times 3600$ 秒、2 日目は $1\text{A}(20\text{mA}/\text{cm}^2) \times 3600$ 秒、3 日目は $0.7\text{A}(14\text{mA}/\text{cm}^2) \times 1606$ 秒、 $0.5\text{A}(10\text{mA}/\text{cm}^2) \times 1208$ 秒、 $0.3\text{A}(6\text{mA}/\text{cm}^2) \times 1397$ 秒の電解を行い、陰極はその日毎に交換した。各電解終了後には CV を取得した。更に、電解開始前、2 日目電解開始前後、3 日目電解開始前後の分極測定を行った。図 3.2.2-3(e)に 1 回目(1 日目)の電解終了後の CV、図 3.2.2-3(f)に 2 回目(2 日目)の電解開始前の CV、図 3.2.2-3(g)に 2 回目(2 日目)の電解終了後の CV、図 3.2.2-3(h)に 3 回目(3 日目)の電解開始前の CV、図 3.2.2-3(i)に 3 回目(3 日目)の電解終了後の CV、図 3.2.2-3(j)に測定した分極曲線のまとめ、図 3.2.2-3(k)に電解中の塩中及び Cd 中の U, Zr 濃度経時変化、図 3.2.2-3(l) (m) (n)に各電解析出物の写真を示す。

1 日目の電解は、陽極電位が-1.3V 以下に維持できており、1 日目電解終了後の CV は少しブロードなピークとなっはいるが、塩中の U 濃度は 2.37wt%から 1.90wt%へと少し減少したが、塩中の Zr 濃度はほぼ 0wt%を維持できた。Cd 中 Zr 濃度が上昇した結果となったのは攪拌により舞っている CdZr 金属間化合物をサンプリングしたことによると推測している。

2 日目の電解開始前の CV から U の酸化還元ピークが観察された。塩中と Cd 中のサンプリングからは Cd 中 Zr 濃度は 2.24wt%となった。2 日目の電解は 1A で行い、陽極電位が上昇し約-0.9V まで上昇して終了した。電解終了後の CV から少しブロードなピークとなったが、塩中 U 濃度はほぼ一定だった。Cd 中 Zr 濃度の上昇は 1 日目と同様な理由と考えられる。

3 日目の電解開始前の CV から U の酸化還元ピークが観察された。2 日目の 1A では陽極電位の上昇が早かったため、0.7A で開始したが、陽極電位の上昇が早く、0.5A→

0.3A とさげて、陽極電位が約-1.0V に到達するあたりで電解を終了した。電解終了後の CV からは、有意な Zr のピークは観察されなかった。電解終了後のサンプリングからは、塩中の U 濃度はほぼ一定だった。Cd 中 Zr 濃度の上昇は 1 日目、3 日目とどのような理由と考えられる。

表 3.2.2-7 に陰極析出物の分析結果も含めた物質収支をまとめて示す。1 日目、2 日目、3 日目の陰極析出物全て Zr 含有率は 1wt%以下のデンドライト状の金属 U が得られた。

<Run3>

表 3.2.2-5 に Run3 の試験条件を示す。ルツボ、試薬等は Run2 のものを継続使用した。本研究はアクチニドと Zr の分離すなわち陽極に注目していたため、陰極は取扱いが容易な固体陰極を用いていたが、実際のプロセスでは液体陰極を用いることになるため、本試験では Cd 陰極を用いて、液体陰極においても同様な挙動を取ることを確認することを目的とした。

図 3.2.2-4(a)に試験に用いた Cd 陰極の外観を示す。用いた Cd の量は 36.25g である。なお、試験開始前の塩中及び Cd 中の U, Zr 濃度は試験条件に示した通りである。図 3.2.2-4(b)には試験体系の概念を示した。図 3.2.2-4(c)に電解開始前に作用極、対極に Ta 線を用いて掃引速度 0.1V/s、0.05V/s、0.01V/s にて取得したサイクリックボルタメトリーを示す。U の 0 価/3 価の酸化還元反応が見られる。図 3.2.2-4(d)にはクロノポテンシャルメトリーを示す。塩中の攪拌は行わずに測定し、電流値 500mA のみ攪拌したデータも取得したが、攪拌による分極の度合いは変わらなかった。

図 3.2.2-4(e)に電解中の電流値、陽極電位、通電量の経時変化をまとめて示す。陽極電位がウランの溶解のみが起こるよう、電流値を 0.5A として合計 3 時間定電流電解を行った。熔融塩と Cd の接触面を反応表面積とすると表面積は約 50cm²と評価され、陰極は内径 23mm のアルミナるつぼを用いて、中心に φ4mm のシャフトで導通を取っているため、表面積は約 4cm²と評価される。陽極電流密度約 10mA/cm²、陰極電流密度約 125mA/cm²で電解を行ったことになる。電解終了後には塩中の CV を取得した。

陽極電位は約-1.3V でウランの溶解電位を維持した。電解終了後の CV からは有意な Zr のピークは観察されなかった。

図 3.2.2-4(g)に電解終了後の電極外観を示す。図 3.2.2-4(h)に Cd 陰極析出物を拡大した外観を、図 3.2.2-4(i)に陰極上部の析出物を、図 3.2.2-4(j)に析出物を取り除いた後の Cd 界面の外観を、図 3.2.2-4(k)に坩堝除去後の Cd の外観を示す。表 3.2.2-8 に Cd 陰極析出物を全量溶解して分析結果を示す。水溶性のものは不純物と考え、それ以外を足すと U 約 3.0967g、Zr 約 0.0146g を回収し、析出物中の Zr は約 0.47%と評価できる。分極測定も含めた合計の通電量は約 5700C のため、全量 U に使われたと仮定して U の理論析出量は約 4.687g で、電流効率は約 66%と評価された。

<まとめ>

電荷槽に Cd 相を作り燃料を溶解後に、Cd 相を陽極として電解回収を行うことにより、陰極析出物中の Zr 割合は 1%以下となり、また塩中の U 濃度をほぼ一定にたもって電解

が成立する見通しを得ることができた。

(6) 各候補プロセスの比較評価 (H29)

本研究において、下記のプロセス検証試験及び評価を行った。

- ・ 10wt%Zr 燃料の処理に用いてきた優先的陽極溶解電解法
- ・ アクチニドと同時に Zr の溶解を許容した同時陽極溶解電解法
- ・ 酸化剤 (CdCl_2 もしくは ZrCl_4) を用いた化学溶解と電解法の組合せプロセス
- ・ Cd 中に燃料を溶解後に Cd を陽極として電解を行う Cd 陽極電解法

表 3.2.2-9 に各種処理方法の比較評価結果を示す。

優先的陽極溶解電解法については、アクチニドを優先的に溶解させるには、電流密度を極端に小さく抑える必要があるため工学的には成立しないと判断した。

アクチニドと同時に Zr の溶解を許容した同時陽極溶解電解法については、Zr の溶解を許容すると電解初期の陰極析出物はUリッチなものとなるが、Zr が塩中に溶解することで析出物中の Zr 濃度が高くなる。このため、定期的に電解を中断して塩中の Zr イオンと燃料中のアクチニド金属の交換反応を起こす必要がある。これらのことから、電解途中で塩中 Zr 除去などの複雑な操作が必要となることから採用しないこととした。

Cd 陽極電解法については、Cd 中に燃料を溶解後に、Cd を陽極として電解を行うことで塩中にアクチニドイオンを移行させて陰極にアクチニド金属を回収する。TRU の模擬物質 U と Zr を用いた試験にて、Cd 中に Zr を閉じ込めつつ、アクチニド割合が 99%以上の陰極回収物を得られたため、本方法が最もアクチニドと Zr の分離に優れていると考えられる。なお、試薬添加による手法はアクチニドと Zr の分離を行うのに優れているが、反応速度が遅いこと、系外から物質を投入することのデメリットを考慮して、採用しないこととした。

次に、試薬添加をしない各種電解法による処理速度の概略評価を試みた結果を表 3.2.2-10 に示す。電中研により行われたエンジニアリングスケール試験装置¹¹⁾と同等の規模の大きさの装置を用いると仮定して、前処理(Cd相への燃料溶解)の有無、固体陰極を想定した電解部分の処理時間、塩中 Zr イオン対策時間の3つの因子で評価した。

優先的陽極溶解電解法は、H27, H28 の試験結果より陽極電流密度は約 $10\sim 20\text{mA}/\text{cm}^2$ 、電流効率は $90\sim 100\%$ と推測して電解時間を評価した。処理時間合計は小さい評価値となったが、電解を継続すると電流が流れなくなって Zr を溶解せざるを得なくなり、すると陰極析出物中の Zr 濃度を下げるには塩中 Zr イオン対策の追加が必要となり、処理時間が結局増大するため候補から除外した。

同時陽極溶解電解法は、H28, H29 の試験結果より陽極電流密度は約 $50\sim 300\text{mA}/\text{cm}^2$ 、電流効率はU回収量で評価すると約 $25\sim 75\%$ となることから、電解時間は約 $11\sim 201$ 時間と評価した。陰極析出物中の Zr 濃度を下げるには塩中 Zr イオンの交換反応静置時間が必要となるため、仮に 15 回、 $10\sim 20$ 時間/回必要と仮定すると 150 時間 ~ 300 時間となり、処理時間合計は $160\sim 500$ 時間と評価されることになり、処理時間が大きくなるため除外した。

Cd 陽極電解法は、H29 の試験結果より Cd 相への燃料溶解時間は約 96 時間と想定した。固体陰極を用いて試験を 2 ラン行った結果、1 ラン目で電解中の塩中 U 濃度が一定とな

った条件は、陽極電流密度約 10mA/cm²、電流効率約 55%であった。2 ラン目では、陽極電流密度約 6, 10, 14, 20mA/cm² と振ったが、塩中 U 濃度は一定で、電流効率は 92%以上得られた。これらの結果から、陽極電流密度約 10mA/cm²、電流効率約 55%~92%を用いると、処理時間は 147 時間~246 時間と評価された。

これらから、Zr との分離性能に優れるポテンシャルを持っている Cd 陽極溶解電解法をリファレンスプロセスとした。選定したプロセスフローシートを図 3.2.2-5 に示す。

TRU は U よりも塩化物生成自由エネルギーが大きいことから、実燃料の TRU の場合は、Cd 槽中から熔融塩中へより容易に移行しやすい。また Cd 中への Pu 溶解度は U の溶解度より大きい為、TRU 金属の場合でも本プロセスは成立すると考えられる。

(7) 今後の開発課題

Cd 陽極溶解電解法をリファレンスプロセスとする場合の今後の開発課題を表 3.2.2-9 にまとめて示した。

るつぼ内径 80mm の実験室規模ではあるが、Cd 相中に TRU 模擬物質の U と 40wt%相当の Zr を溶解させることで、塩中の U 濃度をほぼ一定に保つ電解試験を行うことが可能となり、Cd 中の U を塩中に移行させながら陰極に析出させることが出来た。しかし、本研究では TRU 模擬物質として U を用いたこと、FP が無い体系での試験であること、また 3 日間の電解途中では、約 18~20 時間の静置時間（電解停止期間）があること等から今後、U だけでなく、TRU や FP を用いた試験により下記を確認することが重要である。

- Cd 相中への燃料の溶解挙動の把握
- Cd から塩への燃料成分の移行と陰極析出のバランスする電解条件の確立
- Cd 相に大量に蓄積する Zr、貴金属 FP 等の除去技術開発、必要となる除去頻度
- 電解中のその他 FP の移行挙動と除去技術開発。

参考文献

- (1) 原子力システム研究開発事業 「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」 平成 26 年度成果報告書 (2015)
- (2) 原子力システム研究開発事業 「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」 平成 27 年度成果報告書 (2016)
- (3) Thaddeus B. Massalski et.al, BINARY ALLOY PHASE DIAGRAMS, American Society for Metals, Metals Park, Ohio 44073
- (4) T. Murakami, et al., "Electrochemical formation of uranium-zirconium alloy in LiCl-KCl melts", J. Nucl. Mater., 394 (2009) 131-135.
- (5) M. Akabori et al, Interdiffusion in the U-Zr system at δ -phase compositions, J. Alloys and Compounds 271-273 (1998) 597-601.
- (6) 「高温冶金法物性値集」 電力中央研究所報告・調査報告：T93003 (1994 年 4 月)
- (7) 原子力システム研究開発事業 「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」 平成 28 年度成果報告書 (2017)

- (8) 電力中央研究所 原子力システム研究開発事業 「金属燃料の溶融塩電解精製における陰極／陽極の処理に関する研究開発」平成 19 年度成果報告書(2008)
- (9) 電力中央研究所 原子力システム研究開発事業 「金属燃料の溶融塩電解精製における陰極／陽極の処理に関する研究開発」平成 20 年度成果報告書 (2009)
- (10) M. IIZUKA et al., “Development of Treatment Process for Anode Residue from Molten Salt Electrorefining of Spent Metallic Fast Reactor Fuel,” Nucl. Technol., 181, 507 (2013)
- (11) M. IIZUKA et al., “Development of an Innovative electrorefiner for High Uranium Recovery Rate from Metal Fast Reactor Fuels,” J. Nucl. Sci. Technol., 46, 699-716(2009)

表 3.2.2-1 優先的陽極溶解電解法の試験条件のまとめ

		Run1 (U-10Zr)	Run2 (U-20Zr)	Run3 (U-40Zr)	Run4 (U-40Zr)
溶融塩		LiCl-KCl 約 1300g	LiCl-KCl	LiCl-KCl : 1499.82g	LiCl-KCl
		初期 U 濃度 : 2.03wt%	継続	初期 U 濃度 : 2.02wt%	継続 (U:1.96wt%, Zr:0.002wt%)
温度		500°C	500°C	500°C	700°C
試料	組成	U-10wt%Zr	U-20wt%Zr	U-40wt%Zr	U-40wt%Zr
	形状	φ 18×6mmH 程度	φ 18×6mmH 程度	φ 18×6mmH 程度	φ 18×6mmH 程度
	重量	—	—	6.60g	8.97g
陽極	材質	SUS304	SUS304	SUS304	SUS304
	反応有効径	φ 5mm	φ 5mm	φ 5mm	φ 5mm
	反応表面積	0.196cm ²	0.196cm ²	0.196cm ²	0.196cm ²
陰極	材質	SUS304	SUS304	SUS304	SUS304
	形状	φ 10×48mmH ヒッチ 2, 深さ 2 溝加工	φ 10×48mmH ヒッチ 2, 深さ 2 溝加工	φ 10×48mmH ヒッチ 2, 深さ 2 溝加工	φ 10×48mmH ヒッチ 2, 深さ 2 溝加工
参照極		パイレックスガラス製 Ag/AgCl 電極 (LiCl-KCl-1wt%AgCl)			
電流密度		10~500mA/cm ²	10m~1000mA/cm ²	10m~500mA/cm ²	10~500mA/cm ²

表 3.2.2-2 同時陽極溶解電解法の試験条件のまとめ

		Run1 (H28 年度)	Run2 (H28 年度)	Run3 (H28 年度)	Run4 (H29 年度)
溶融塩		LiCl-KCl 継続	LiCl-KCl 継続	LiCl-KCl:480.86g	LiCl-KCl:485.49g
		初期 U:2.07wt%, Zr:0.001wt%	U:1.48wt%(塩中) Zr:0.17wt%(塩中)	U:1.82wt%(塩中) U:0.001wt%(Cd 中)	U:1.939wt%(塩中) Zr:0.001wt%(塩中) U:0.008wt%(Cd 中) Zr:0.000wt%(Cd 中)
		2 日目 U:2.09wt%, Zr:0.005wt%	U:0.003wt%(Zr 中) Zr:0.25wt%(Zr 中)		
		温度	500°C	500°C	500°C
試料	組成	U-40wt%Zr	U-40wt%Zr	U-40wt%Zr	U-40wt%Zr
	形状	φ 18×13mmH×2 個 (途中から 4 分割)	φ 18×6mmH 程度	φ 18×13mmH×1 個 (4 分割)	φ 18mm×13mmH×1 個 (4 分割)
	重量	63.11g→49.35g ^{*1)}	9.99g	26.12g	27.37g
陽極	材質	SUS304	SUS304	SUS304	SUS304
	反応表面積	φ 20×50mmH バスケット 1 日目 24.88cm ² 2 日目 43.60cm ² *1)	フォルダ 1.088cm ² (φ 11.5mm)	φ 20×50mmH バスケット 22.2cm ² (初期)	φ 20×50mmH バスケット 22.2cm ² (開始時)
	回転速度	16.7rpm→50rpm	—	11rpm→50rpm	50rpm
陰極	材質	SUS304	SUS304	SUS304	SUS304
	形状	φ 10×48mmH ヒッチ 2, 深さ 2 溝加工	φ 10×48mmH ヒッチ 2, 深さ 2 溝加工	φ 10×48mmH ヒッチ 2, 深さ 2 溝加工, 傘付	φ 10×48mmH ヒッチ 2, 深さ 2 溝加工, 傘付
参照極		パイレックスガラス製 Ag/AgCl 電極 (LiCl-KCl-1wt%AgCl)			
電流値		2A→1.5A→2A→1.5A	10~1600mA/cm ²	2A→1.5A→1.0A	1A
通電量		17.87AH(1~4 日目) 15.69AH(2~4 日目)	—	8.41AH(30271C)	10.71AH(38564C)

*1) : 1 時間電解後に 4 分割し、表面研磨後の 2 日目の開始時

表 3. 2. 2-3 物質収支(同時陽極溶解電解法 Run4)

	U+Zr(g)	元素量(g)		元素含有率(%)		備考	
		U	Zr	U	Zr		
装荷試料	27.37	16.422	10.948	60.0	40.0	試料装荷重量から評価	
陽極残渣	13.415	8.670	4.745	64.6	35.4	残渣分析結果から評価	
陰極析出物	1	3.175	2.358	0.817	74.3	25.7	析出物分析結果から評価
	2	2.710	1.328	1.382	49.0	51.0	析出物分析結果から評価
	3	1.786	1.013	0.773	56.7	43.3	析出物分析結果から評価
	4	2.820	1.216	1.605	43.1	56.9	析出物分析結果から評価
	5	2.782	1.260	1.522	45.3	54.7	析出物分析結果から評価
	6	2.273	1.070	1.203	47.1	52.9	析出物分析結果から評価
	7	1.462	0.783	0.679	53.5	46.5	析出物分析結果から評価
	8	1.334	0.447	0.887	33.5	66.5	析出物分析結果から評価
	9	1.703	0.790	0.914	46.4	53.6	析出物分析結果から評価
	10	2.498	1.963	0.535	78.6	21.4	析出物分析結果から評価
Total	22.544	12.227	10.317	-	-		
塩中U変化量	-	-1.495	-	-	-		
Cd中U変化量	-	-0.022	-	-	-		
塩中Zr変化量	-	-	0.150	-	-		
Cd中Zr変化量	-	-	0.355	-	-		
捕捉率(%)		118.01	142.19	-	-		

表 3. 2. 2-4 化学抽出法の試験条件のまとめ

		Run1 (H27 年度) CdCl ₂ による溶解	Run2 (H28 年度) ZrCl ₄ による逆抽出
溶媒	LiCl-KCl	200. 28g	350. 86g
	Cd	—	Cd : 250. 12g
試験温度		500°C	450°C
試料	組成	U-40wt%Zr	U-40wt%Zr
	形状	φ 18mm×13mmH	φ 18mm
	重量	10. 65g	7. 45g
投入 試薬	1 回目	CdCl ₂ :7. 4g	ZrCl ₄ : 3. 3g
	2 回目	CdCl ₂ :12. 92g	—
	3 回目	金属 U 棒浸漬	—

表 3. 2. 2-5 Cd 陽極電解法の試験条件のまとめ

		Run1 (H29 年度)	Run2 (H29 年度)	Run3 (H29 年度)
溶融塩		LiCl-KCl : 491.57g	LiCl-KCl : 491.64 g	継続使用
		Cd : 501.99 g	Cd : 1000.39g	継続使用
		(塩中)U:1.911wt%, Zr:0.001wt% (Cd 中)U:1.991wt%, Zr:1.310wt%	(塩中)U:2.176wt%, Zr:0.000wt% (Cd 中)U:1.587wt%, Zr:4.132wt%	(塩中)U:1.605wt%, Zr:0.000wt% (Cd 中)U:1.207wt%, Zr:1.884wt%
温度		500°C	500°C	500°C
試料	組成	U:Zr=60:40	U:Zr=60:40	継続
	重量	U : 23.73g (4 分割) Zr : 15.89g (ピン形状)	U : 93.31g (8 分割) Zr : 62.24g (ピン形状)	継続
	溶解時間	96 時間	69.3 時間	継続
陽極	ルツボ	低炭素鋼 φ 80mm	低炭素鋼 φ 80mm	低炭素鋼 φ 80mm
	材質	Cd (Ta 導線)	Cd (Ta 導線)	Cd (Ta 導線)
	反応面積	約 50.3cm ² (塩/Cd 接触面積で評価)	約 50.3cm ² (塩/Cd 接触面積で評価)	約 50.3cm ² (塩/Cd 接触面積で評価)
	攪拌速度	—	50rpm (攪拌翼による回転)	50rpm (攪拌翼による回転)
陰極	材質	SUS304	SUS304	Cd
	形状	φ 10×48mmH ピッチ 2, 深さ 2 溝加工, アルミナ傘付	φ 10×48mmH ピッチ 2, 深さ 2 溝加工, アルミナ傘付	36.25g 内径 23mm(シャフト径 4mm) 表面積約 4.03cm ²
	回転速度	10rpm	10rpm	—
塩浴攪拌速度		—	50rpm	50rpm
参照極		パイレックスガラス製 Ag/AgCl 電極 (LiCl-KCl-1wt%AgCl)		
電流値		2A→1.5A→1A	0.5A→1A→ 0.7A→0.5A→0.3A	0.5A
通電量		4.10AH(14762C)	2.28AH(8219C)	1.58AH(5700C)

表 3. 2. 2-6 物質収支 (Cd 陽極電解法 Run1)

		元素量(g)			元素含有率(%)		U理論析出量g	電流効率
		U	Zr	Cd	U	Zr		
装荷試料		23.73	15.89	—	0.599	0.401		
陰極析出物	1回目	5.748	0.030	11.308	0.995	0.005	5.921	97.1%
	2回目	1.930	0.002	0.004	0.999	0.001	2.960	65.2%
	3回目	1.634	0.000	0.000	1.000	0.000	2.960	55.2%
	Total	9.312	0.032	11.312	—	—		
全電解 ΔU(塩中)		-5.193	—	—	—	—		
全電解 ΔU(Cd中)		-7.596	—	—	—	—		
全電解 ΔZr(塩中)		—	0.000	—	—	—		
全電解 ΔZr(Cd中)		—	0.287	—	—	—		

表 3. 2. 2-7 物質収支 (Cd 陽極電解法 Run2)

		元素量(g)		元素含有率(%)	
		U	Zr	U	Zr
装荷試料		93.31	62.24	60.0%	40.0%
陰極析出物	1回目	1.901	0.002	99.9%	0.1%
	2回目	3.099	0.014	99.5%	0.5%
	3回目	3.138	0.012	99.6%	0.4%
	TOTAL	8.138	0.028	-	-
全電解 Δ U(塩中)		-0.860	-	-	-
全電解 Δ U(Cd中)		-0.334	-	-	-
全電解 Δ Zr(塩中)		-	0.002	-	-
全電解 Δ Zr(Cd中)		-	3.591	-	-

表 3. 2. 2-8 陰極析出物の分析結果 (Cd 陽極電解法 Run3)

析出物箇所	元素量(mg)		Zr 含有率
	U	Zr	%
Cd 陰極界面	2129.1	0.6	0.03
Cd 陰極溶解	967.6	14.0	1.42
TOTAL	3096.7	14.6	0.47

表 3.2.2-9 Zr 高含有金属燃料の各処理方法の比較

処理項目	優先的陽極溶解電解法 (従来法)	同時陽極溶解電解法	化学抽出法と電解法の 組合せプロセス	Cd陽極電解法
長所	<ul style="list-style-type: none"> 高い電流効率 塩中へのZr溶解が少ない 	<ul style="list-style-type: none"> 高い電流密度 	<ul style="list-style-type: none"> 塩中へのZr溶解は殆ど無い 	<ul style="list-style-type: none"> 塩中へのZr溶解は殆ど無い (塩からのZr除去操作不要)
短所	<ul style="list-style-type: none"> 極度に低い電流密度 電解進展とともに未溶解燃料部分のZr含有率が更に上昇し、陽極溶解が困難になる可能性あり 	<ul style="list-style-type: none"> 低い電流効率 (U析出量評価) 塩中に溶解したZrイオンを燃料との交換反応により還元除去するため、電解途中で頻りに処理停止・静置が必要 使用済み塩及びCdプールからのZr除去が必要 	<ul style="list-style-type: none"> CdCl₂で塩中に溶解したZrイオンを燃料との交換反応により還元除去する必要あり 燃料をCd相に溶解させる必要があり、ZrCl₄により外部からZrを供給してしまう 燃料溶解時間が長く、さらに電解の時間が必要 	<ul style="list-style-type: none"> 電解前に燃料をCd相に化学溶解させる必要あり
開発課題	<ul style="list-style-type: none"> 工学規模処理時の電解持続性確認 (電解による溶解部分Zr含有率上昇) TRU燃料による実験検証 	<ul style="list-style-type: none"> 燃料との交換反応のみで、塩中Zrイオンの還元除去可能性 Zrが溶解した使用済み塩の処理技術 TRU燃料による実験検証 	<ul style="list-style-type: none"> Cd中の燃料の溶解速度 Cd相からのZr、貴金属FP等の除去技術開発 その他FPの移行挙動と除去技術開発 TRU燃料による実験検証 	<ul style="list-style-type: none"> Cd中の燃料の溶解速度 燃料のCdから塩への移行と陰極析出がバランスする電解条件 Cd相からのZr、貴金属FP等の除去技術開発 その他FPの移行挙動と除去技術開発 TRU燃料による実験検証
総合評価	<ul style="list-style-type: none"> U試験ベースでは長時間電解は困難と推測 塩化物生成自由エネルギーがUよりTRUが大きく、TRU燃料の長時間電解の可能性有 → 現段階では採用は困難と判断 	<ul style="list-style-type: none"> 高い電流密度が可能だが、電流効率の低下や塩中Zrイオン除去のため、全体処理速度は遅くなる見通し 塩中へのZr溶解により電解時の元素挙動が複雑 → 電解途中で塩中Zr除去など煩雑な操作が必要であることから不採用 	<ul style="list-style-type: none"> 外部から試薬(CdCl₂, ZrCl₄)を添加するデメリットがある。 Zrを金属としてCd中に移行させることが可能 燃料の溶解時間が必要 → 試薬の添加による二次廃棄物増加と処理時間が掛かることから不採用 	<ul style="list-style-type: none"> 塩中にZrが溶解しないため電解時の元素挙動がシンプル → Cdの処理などが必要になるが、電解時の挙動がシンプルで、処理速度も他の方法と大きな差がないと見込めることから、本案として採用

表 3.2.2-10 候補電解プロセスの処理速度の概略比較

処理項目		優先的陽極溶解電解法 (従来法)	同時陽極溶解電解法	Cd陽極電解法
前処理	Cd相への燃料溶解	不要	不要	約96時間/5kgHMバッチ (U,Zr溶解試験から想定)
電解 (固体陰極想定)	陽極電流密度	10~20mA/cm ² (試料表面積で評価)	50~300mA/cm ² (試料表面積で評価)	~10mA/cm ² (塩/Cd界面面積で評価)
	電流効率	90~100% (推測)	25~75% (U回収量のみで評価)	55~92% (U回収量のみで評価)
	電解時間	76~168時間/5kgHMバッチ	11~201時間/5kgHMバッチ	147~246時間/5kgHMバッチ
塩中Zrイオン 対策	塩中Zrイオン-アクチニド金属交換反応	不要	イオン交換反応静置時間: 15回 x 10~20時間/5kgHMバッチ	不要
	陰極交換頻度及び時間	不要	15回 x 10~20時間/5kgHMバッチ	不要
	塩中Zrイオン対策総時間	不要	150~300時間/5kgHMバッチ	不要
処理時間合計 (5kgHMバッチあたり)		76~168時間 + α	160~500時間	147~246時間 *1
総合評価		?	△	○ UとZrの分離が可能な見通し *1:前処理は前バッチ処理時に並行実施することを想定

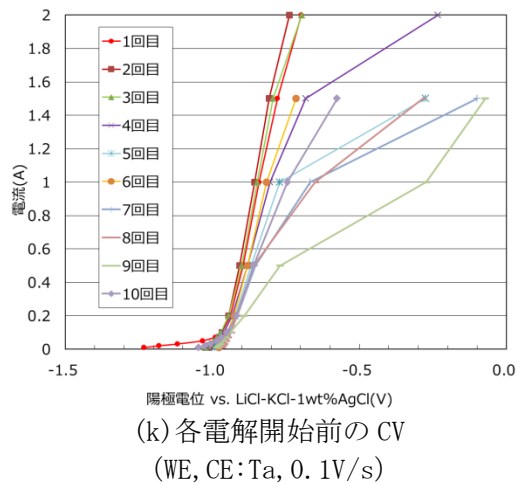
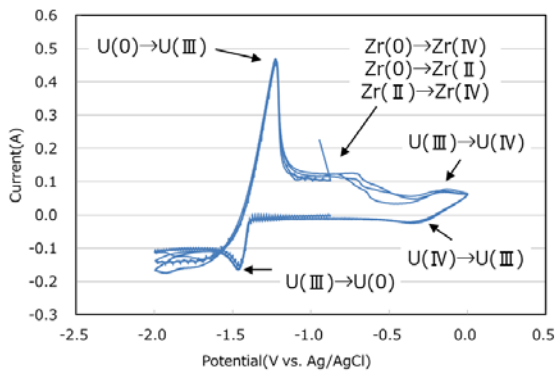
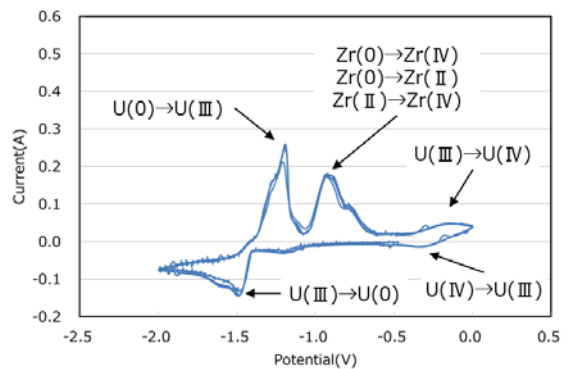
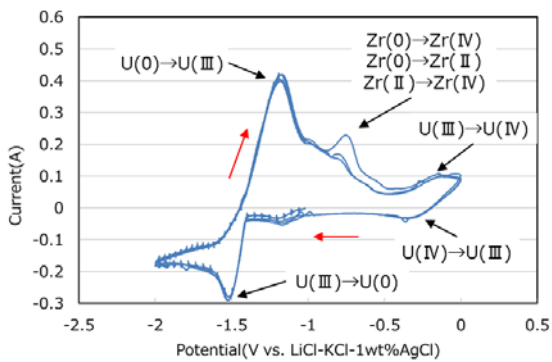
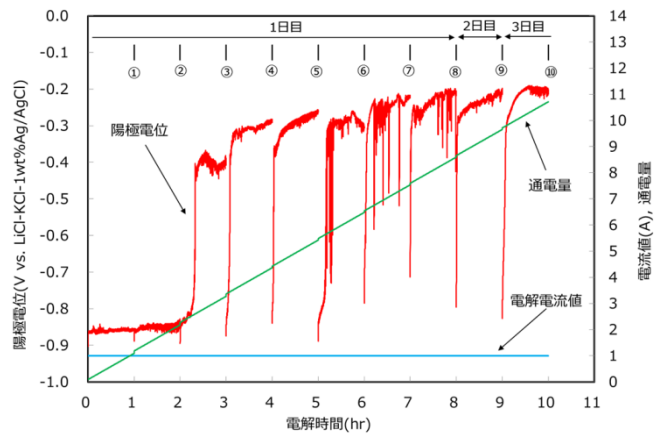
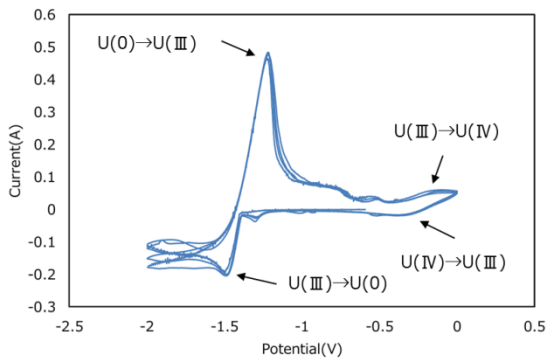
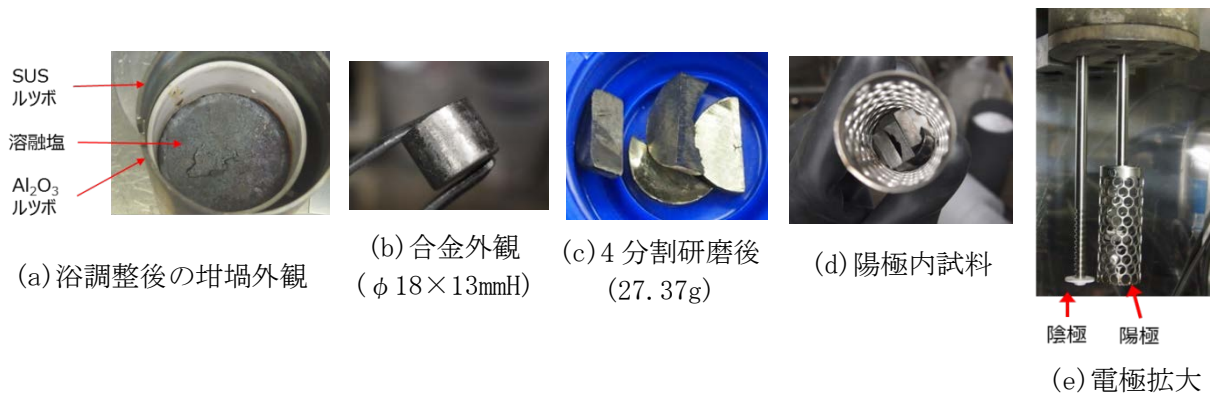


図 3.2.2-1 同時陽極溶解電解法試験結果 (Run4) (1/2)

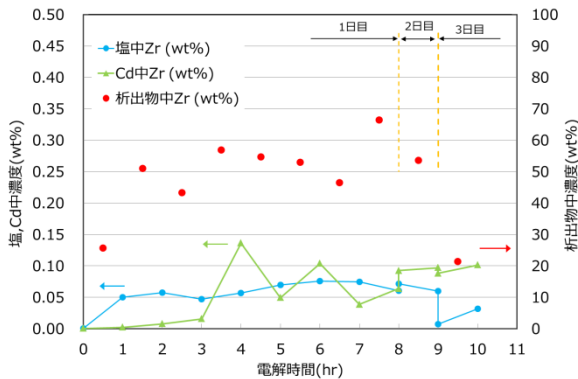
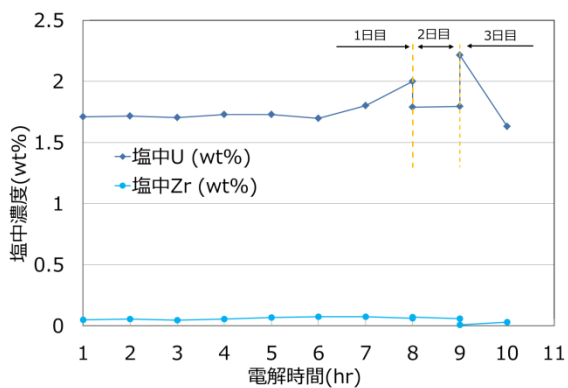
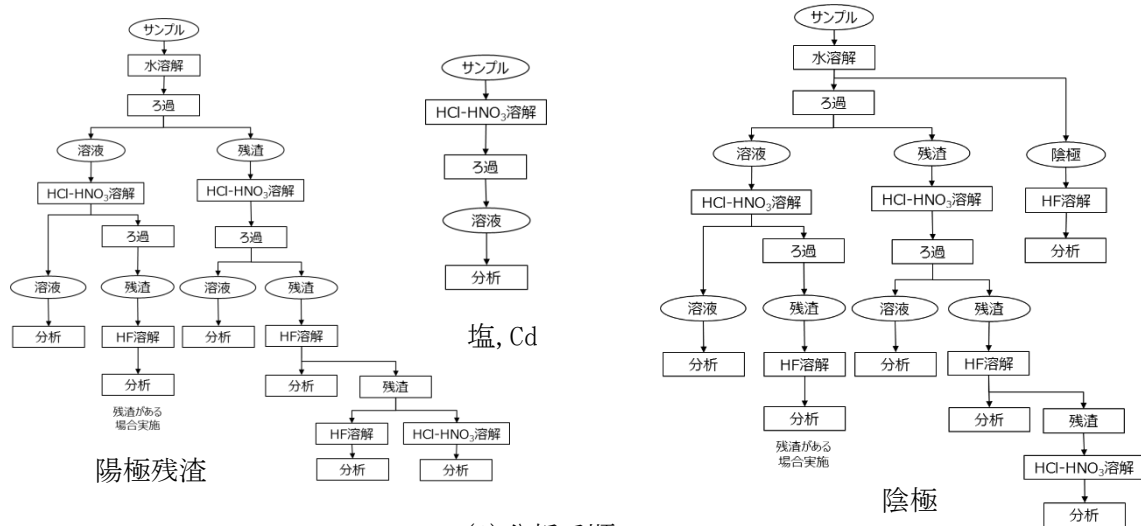
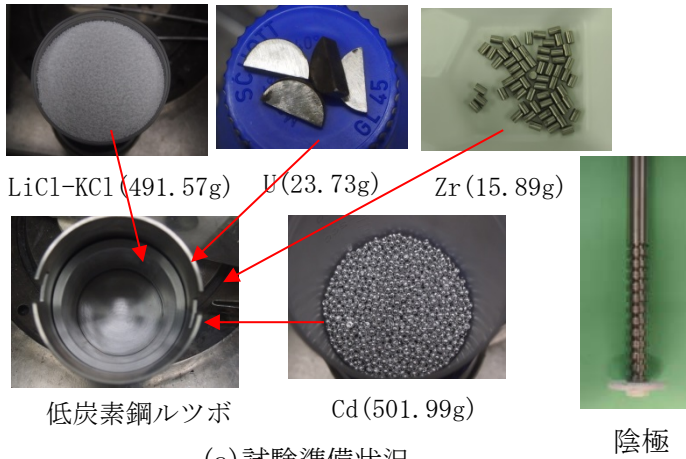
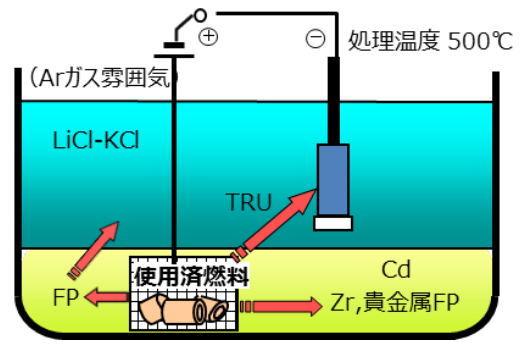


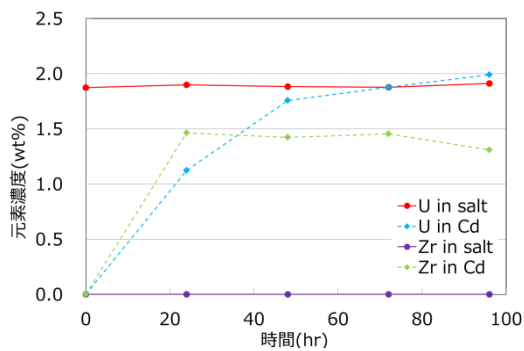
図 3. 2. 2-1 同時陽極溶解法試験結果 (Run4) (2/2)



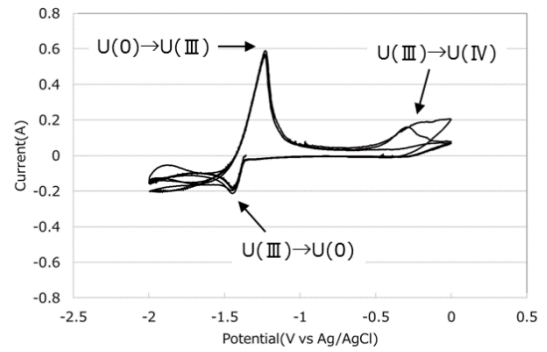
(a) 試験準備状況



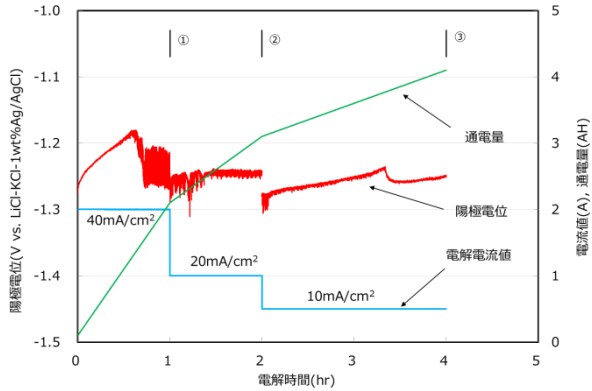
(b) 試験体系概念



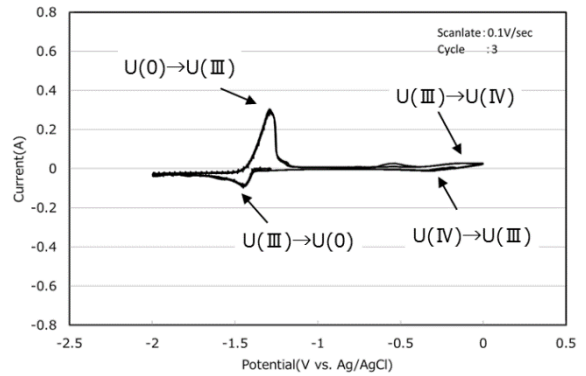
(c) Cd 中 U, Zr 溶解経時変化



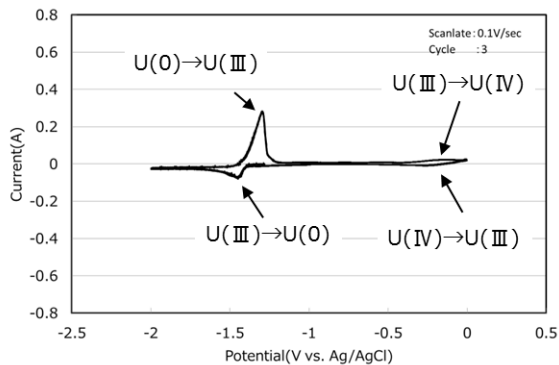
(d) 電解開始前の CV
(WE, CE: Ta, 0.1V/s, U: 1.91wt%)



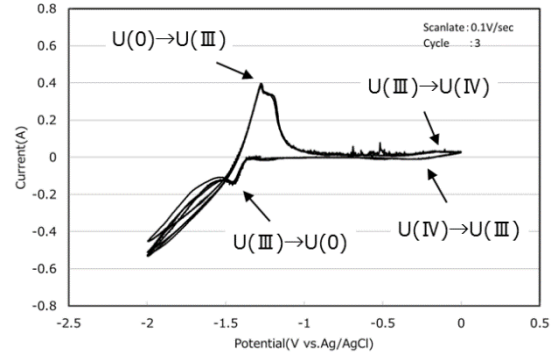
(e) 電解中の陽極電位, 電流, 電気量の経時変化



(f) 1 回目電解後の CV
(WE, CE: Ta, 0.1V/s)

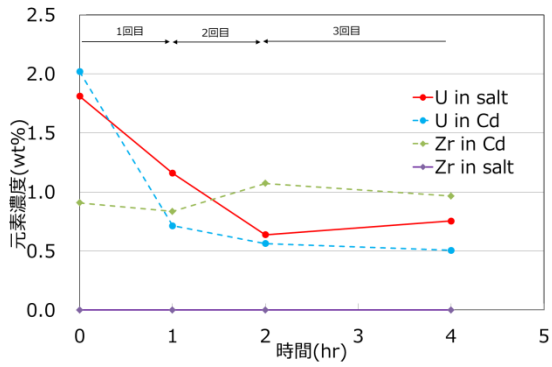


(g) 2 回目電解後の CV
(WE, CE: Ta, 0.1V/s)



(h) 3 回目電解後の CV
(WE, CE: Ta, 0.1V/s)

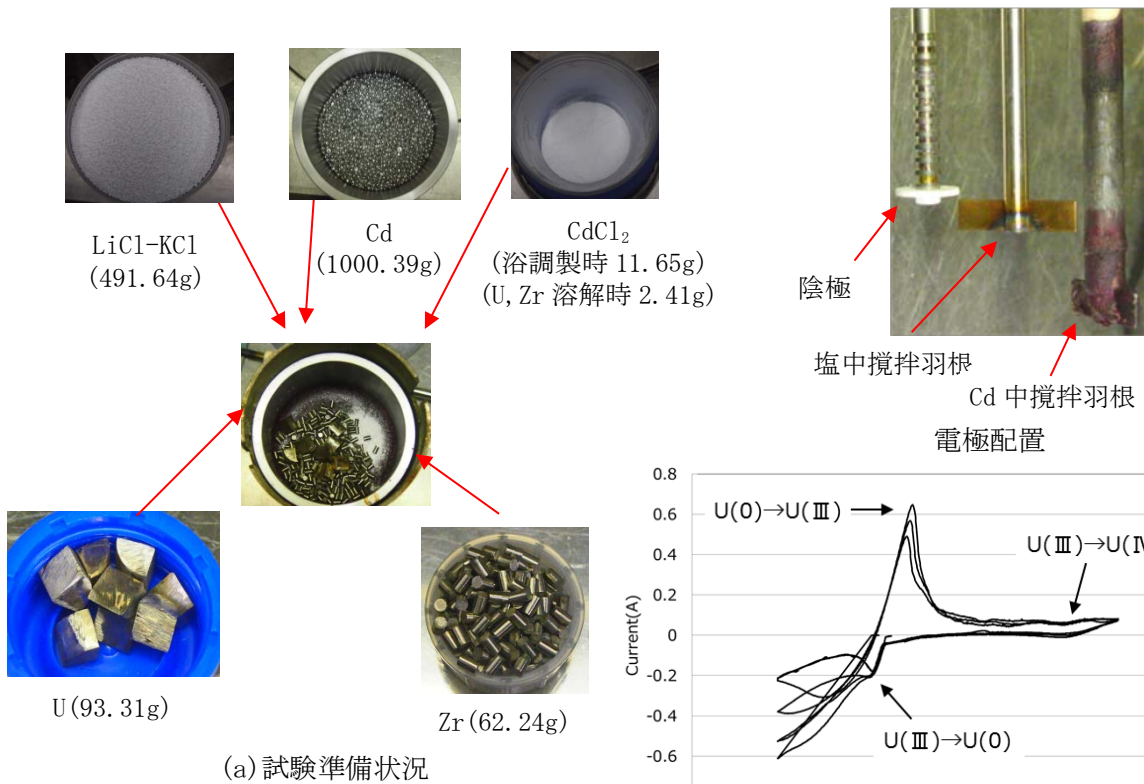
図 3. 2. 2-2 Cd 陽極電解法試験結果 (Run1) (1/2)



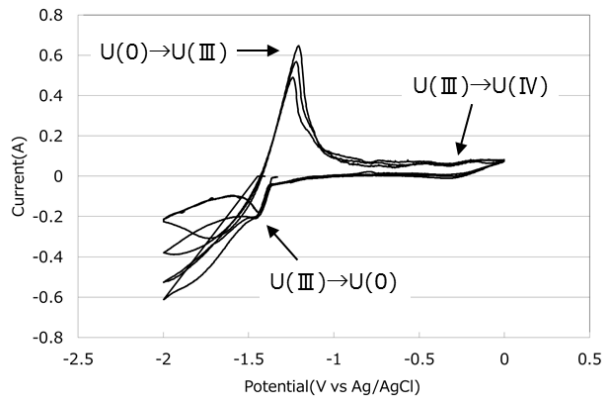
(i) 塩, Cd 中の U, Zr 濃度経時変化

(j) 1回目析出物 (k) 2回目析出物 (l) 3回目析出物

図 3.2.2-2 Cd 陽極電解法試験結果 (Run1) (2/2)

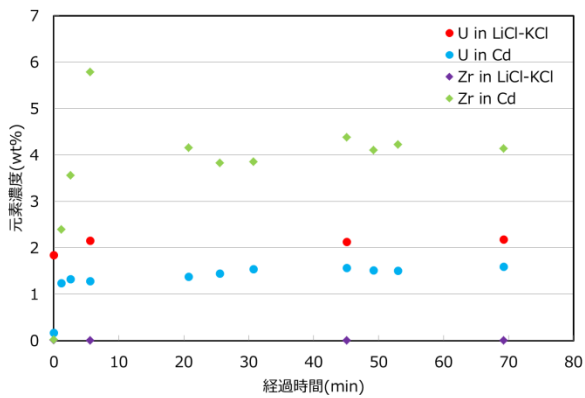


(a) 試験準備状況

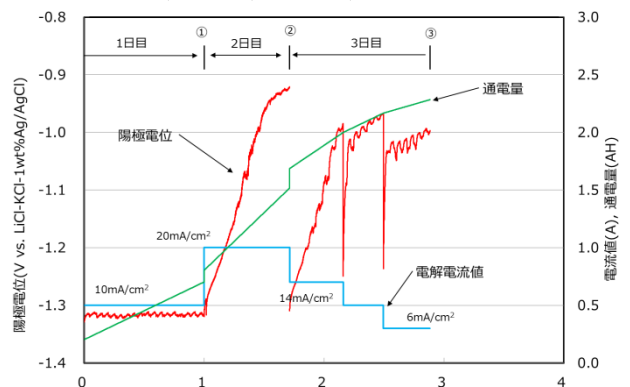


(c) 電解開始前の CV

(WE, CE: Ta, 0.1V/s, U: 1.91wt%)

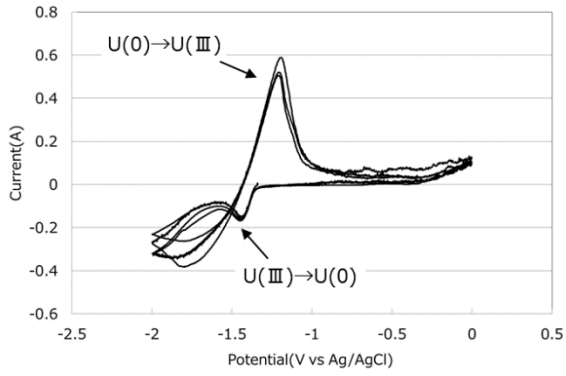


(b) Cd 中 U, Zr 溶解経時変化

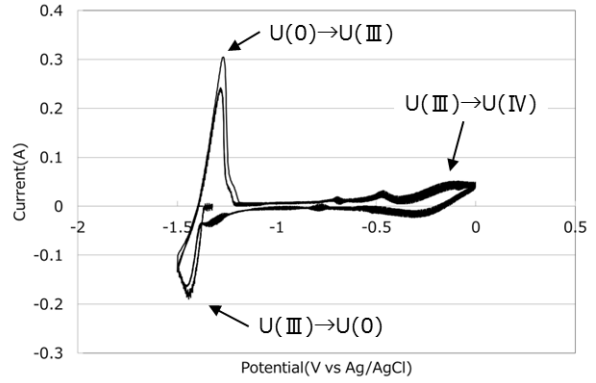


(d) 電解中の陽極電位, 電流, 電気量の経時変化

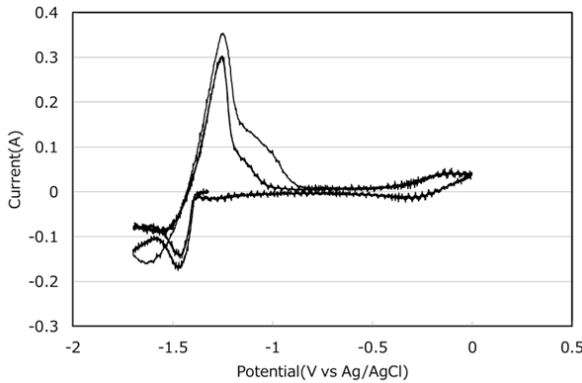
図 3.2.2-3 Cd 陽極電解法試験結果 (Run2) (1/2)



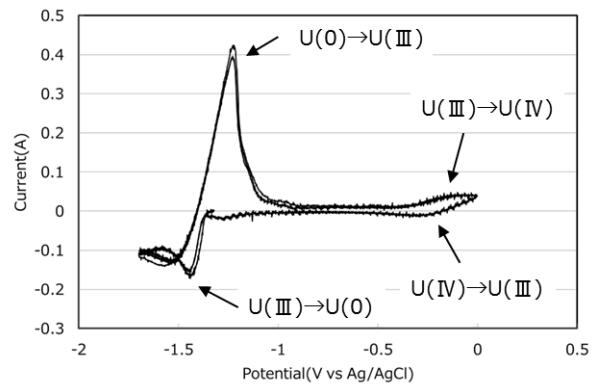
(e) 1回目(1日目)電解後のCV
(WE, CE:Ta, 0.1V/s)



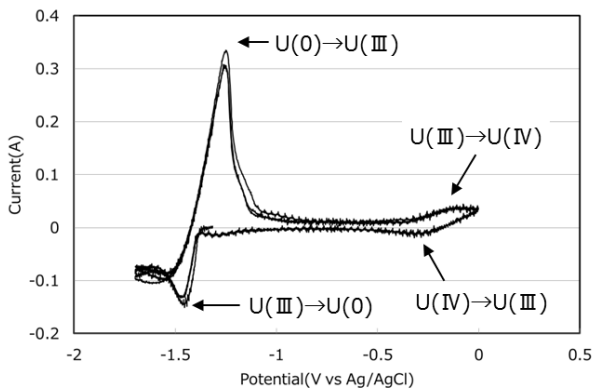
(f) 2回目(2日目)電解前のCV
(WE, CE:Ta, 0.1V/s)



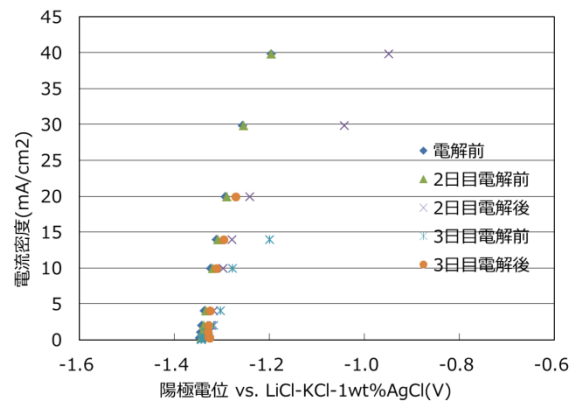
(g) 2回目(2日目)電解後のCV
(WE, CE:Ta, 0.1V/s)



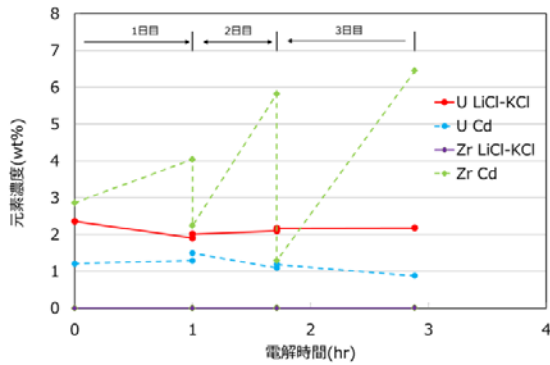
(h) 3回目(3日目)電解前のCV
(WE, CE:Ta, 0.1V/s)



(i) 3回目(3日目)電解後のCV
(WE, CE:Ta, 0.1V/s)



(j) 分極曲線



(k) 塩, Cd 中の U, Zr 濃度経時変化

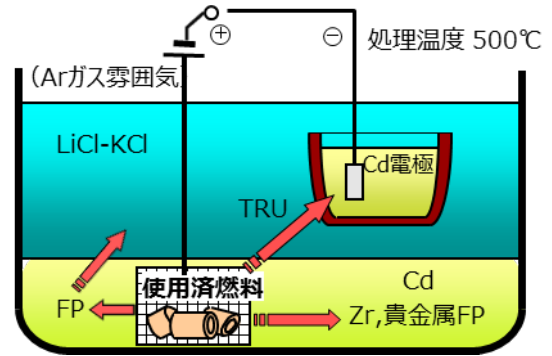


(l) 1回目析出物 (m) 2回目析出物 (n) 3回目析出物

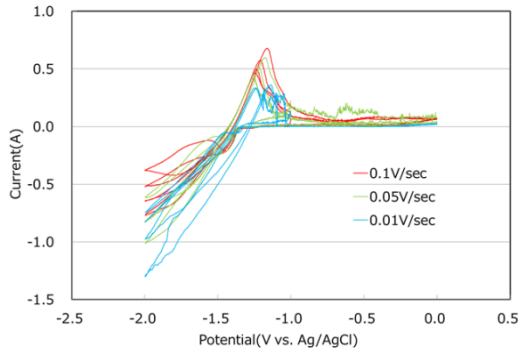
図 3. 2. 2-3 Cd 陽極電解法試験結果 (Run2) (2/2)



(a) 試験に用いた Cd 陰極

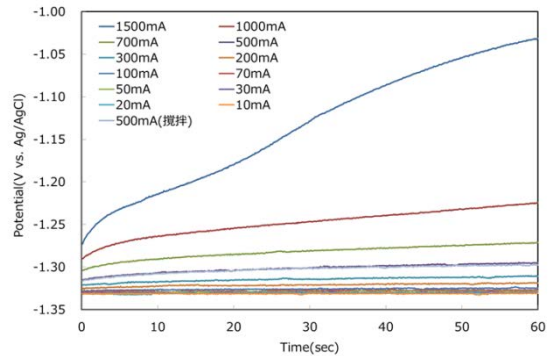


(b) 試験体系概念



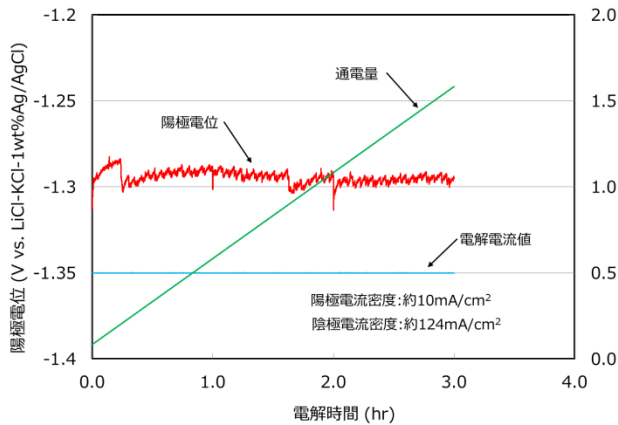
(c) 電解開始前の CV

(WE, CE: Ta, 0.1, 0.05, 0.01V/s)

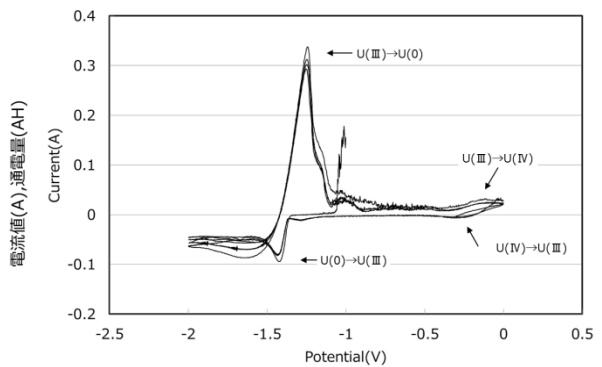


(d) 電解開始前の CP

(WE, CE: Ta)

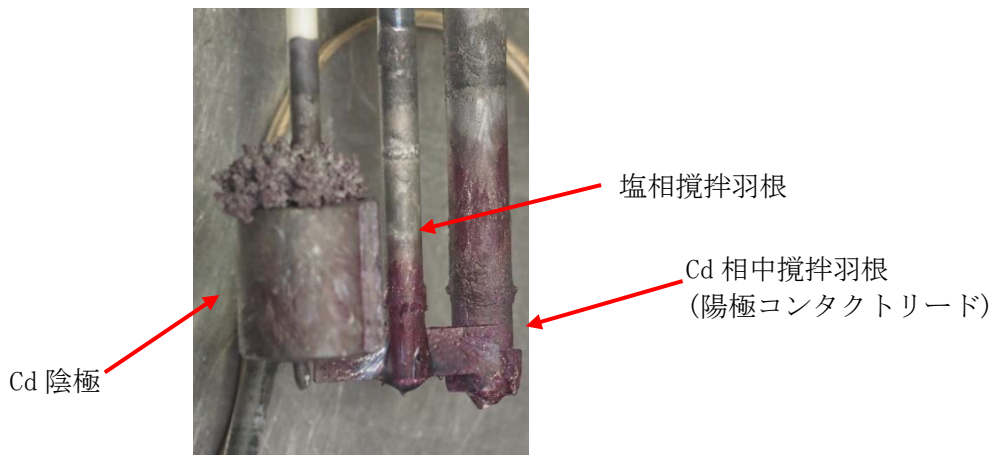


(e) 電解中の陽極電位, 電流, 電気量の経時変化



(f) 電解後の CV

(WE, CE: Ta, 0.1V/s)



(g) 電解後の電極外観

図 3.2.2-4 Cd 陽極電解法試験結果 (Run3) (1/2)



(h) 陰極析出物外観

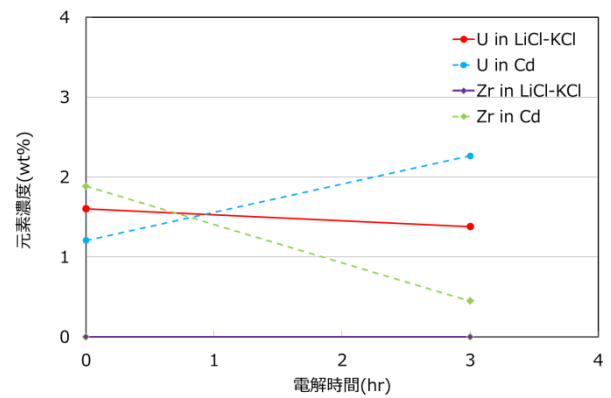


(i) 陰極界面析出物

(j) 析出物分離後の Cd 陰極界面



(k) 坩堝除去後の Cd 陰極外観



(1) 塩, Cd 中の U, Zr 濃度経時変化

図 3.2.2-4 Cd 陽極電解法試験結果 (Run3) (2/2)

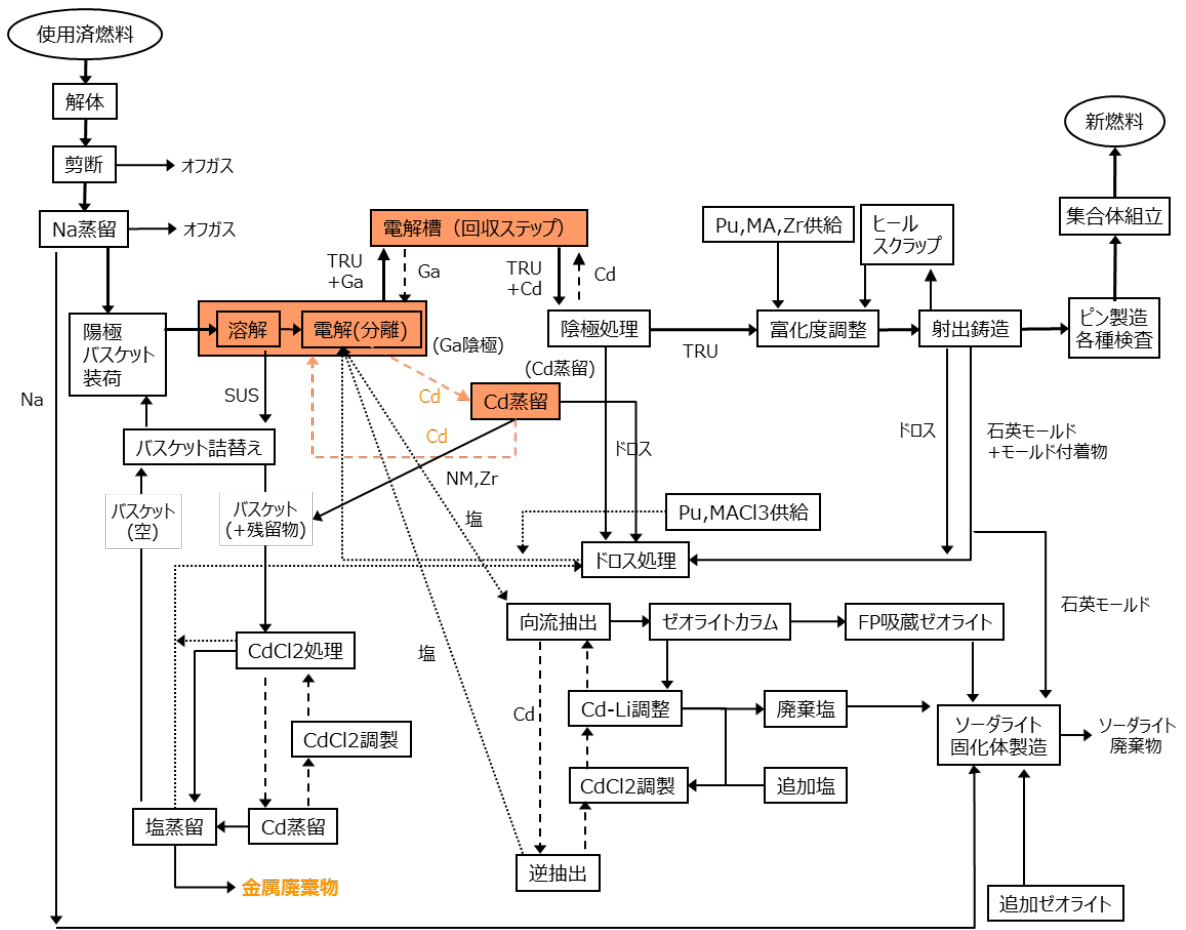


図 3. 2. 2-5 選定したプロセスフローシート

3.2.3 Zr高含有燃料陽極溶解挙動の解析^{(1), (2)} (再委託先：電力中央研究所) (H27, H28)

(1) 概要

U含有金属燃料(U-20%Pu-10%ZrあるいはU-10wt%Zr)の乾式再処理では、電解精製工程においてアクチニドを選択的に陽極溶解するため、使用済み燃料には、スポンジ状のZrが残留して未溶解部分の周囲に層を形成する。このZr層は、アクチニドの継続的な溶解反応に対する障壁となり、アクチニド溶解率及び溶解速度を低下させることがわかっている。しかし、この層をアクチニドと共に溶解すると、Zrが陰極析出物に混入し、リサイクル燃料原料の不均一性を招くほか、多孔質層にトラップされていた貴金属FPが電解精製装置内に広く分散して回収が極めて困難になってしまうなど、電解精製及び乾式再処理プロセスの性能を大きく損なう。

過去に行われたU含有金属燃料を用いた検討では、運転の妨げとなるZrの溶出を抑えながら高いアクチニドの回収速度と溶解率を得ることが電解精製工程単独では困難なため、陽極残渣中に残留するアクチニドを化学的に溶解する陽極処理工程を加えることによって高い回収速度と溶解率が両立可能となった経緯がある⁽³⁾。MA入りPu金属燃料を処理する場合には、燃料合金中のZr含有率が高いため、アクチニドの回収速度と溶解率の両立が更に困難になる可能性が高く、電解精製におけるアクチニドとZrの挙動把握と処理条件検討が重要な課題となる。具体的には、三元燃料の電解精製において陽極挙動をよく再現する複数拡散層モデル⁽⁴⁾において、評価結果に大きな影響を与える残留多孔質Zr層中での溶解アクチニドの実効的拡散係数を取得し、これを用いた電解精製工程のシミュレーションを行うことが重要である。

そこで本事業では、平成27年度に、MA入りPu金属燃料の模擬物質としてU-10, 20, 40wt%Zr合金を用い、電気化学的手法により残留多孔質Zr層中での溶解アクチニドの実効的拡散係数の取得、及びZr存在比が与える影響の評価を試みた⁽¹⁾。平成28年度には、高含有Zr合金においてアクチニド優先的溶解が可能と仮定した場合について算出される残留Zr層中における UCl_3 の実効的拡散係数の試算と陽極溶解挙動の予測及びZrの同時溶解を許容した場合に陽極溶解処理速度を律速する可能性があるZr溶解速度に影響するパラメータの評価を実施した⁽²⁾。

その結果、U-20wt%Zr、U-40wt%Zr合金中のU活量は非常に低く電気化学的にはほぼZr金属としてふるまい、Zrに優先してUを溶解させることが可能な電流密度が低いため有意な厚さの多孔質Zr層を形成させることが困難なことから、電気化学的手法による残留多孔質Zr層中における UCl_3 の実効的拡散係数及びZr存在比による影響を評価することはできなかった。Pu-MA-Zr合金については電解条件の最適化によってPuとMAを選択的に溶解することが可能であると仮定して陽極溶解挙動を予測した結果、Zrを陽極に残しつつZr含有率の高い金属燃料を陽極溶解する場合には残留Zr層中におけるアクチニドイオンの実効的拡散係数が低下することから、処理速度が大幅に低下することが予測された。Zrの同時溶解を許容した場合を想定してZr金属及びU-40wt%合金を用いて行った電気化学測定結果から、電流効率を悪化させる $U^{3+} \rightarrow U^{4+} + e^-$ の反応を避けて陽極溶解を継続することが可能な条件は、UではなくZrの溶解電流上限値によって定まる、すなわち $ZrCl_4$ の拡散係数と溶解度を考慮した検討により評価可能であることがわかった。

(2) 解析及び実験方法

① 電気化学測定に基づく拡散パラメータ決定方法

拡散パラメータ取得のために用いた電気化学測定方法はクロノポテンシオメトリー（以下 CP と略記）と呼ばれる方法で、電極にステップ状の一定電流を与えることにより起こる電位変化を観察するものである（図 3.2.3-1）。この図は、実際に U-9wt%Zr 合金電極（この組成では Zr を残留させて U を優先的に陽極溶解させることが可能）に溶解電流を与えたときの電位変化を示したものである。陽極溶解により生成した UCl_3 が電極から離れていく拡散速度が十分高い間は U 溶解に相当する電位でプラトーを形成するが、これが次第に電極表面に蓄積して溶解度に達すると、電位が急激にプラス方向に変化して Zr の溶解が始まる。電位変化が始まるまでの時間を遷移時間と呼び、その長さから Sand の式⁽⁵⁾にしたがって拡散化学種の拡散係数を求めることができる。Sand の式は以下の通りであるが、

$$\frac{i\tau^{1/2}}{C} = \frac{nFAD^{1/2}\pi^{1/2}}{2} \quad (3.2.3-1)$$

i : 印加電流 (A)、 τ : 遷移時間 (s)、 C : 反応物質初期濃度 (mol/cm^3)、
 n : 反応電子数、 F : Faraday 定数、 A : 電極表面積 (cm^2)、
 D : 反応物質の拡散係数 (cm^2/s)

今回は、溶解度にまで表面濃度が増加することによる電位の遷移に対応させるため、Sand の式を次のように変形して用いた。

$$\frac{i\tau^{1/2}}{C_{sol} - C} = \frac{nFAD^{1/2}\pi^{1/2}}{2} \quad (3.2.3-2)$$

C_{sol} : 溶解化学種の溶解度 (mol/cm^3)

図 3.2.3-1 に示した測定結果は、U-Zr 合金そのもの（多孔質 Zr 層が形成する前）に対して得られたものであるが、U が選択的に溶解する条件で一定電気量の陽極溶解を行い、ある程度の厚さの多孔質 Zr 層を形成させた後に同様の測定を行うことにより、原理的には多孔質 Zr 層中における実効的な UCl_3 拡散係数を決定可能である。また、上記の解析は他の金属の陽極溶解、例えば Zr 金属の溶解により $ZrCl_4$ が生じる場合などについても同様に適用可能である。

② 陽極モデルの概要

前述の通り、Zr を含む三元金属燃料合金の溶解挙動のモデル化がすでに行われており、10%Zr 合金については試験結果を良好に再現することに成功している。このモデルでは、陽極の周囲に 3 つの拡散層が配置されている（図 3.2.3-2）。これらは内側から

順に δ 組成層、多孔質 Zr 層、熔融塩拡散層である。それぞれの拡散層について、U-Zr 合金の場合を例にして説明する。

δ 組成層は、陽極溶解により U-Zr (U リッチであることが前提となっている) 合金から U が選択的に溶解し、U-Zr 二元系合金状態図⁽⁶⁾ (図 3.2.3-3) における δ 相 (Zr モル分率 0.7~0.8 程度) に相当する組成の層が形成したものである。 δ 組成層は、何らかの理由で該当位置における電流密度が非常に低い場合のみに成長し⁽⁷⁾、通常は未溶解 U-Zr 合金から直接多孔質 Zr 層へと移行する。

多孔質 Zr 層は、U の選択的溶解が進んでほぼ Zr のみが残留することにより多孔質化したものである。U-10wt%Zr の場合、理論的に Zr が占める体積割合は 23%程度である。未照射 U-Zr 合金を用いた電解試験では、Zr が綿の繊維のような形状で残留している様子が観察されている⁽⁷⁾。このような多孔質層に電解精製塩浴 (LiCl-KCl- UCl_3) が浸み込み、陽極溶解により生成した UCl_3 の拡散経路となるため、後述の熔融塩のみからなる拡散層中におけるよりも実質的な UCl_3 拡散係数は低下する。

熔融塩拡散層は、陽極溶解により生成した UCl_3 が電解精製塩浴中に移動していくときに必要となる濃度勾配を形成する層である。

熔融塩拡散層は理論的には時間とともに厚さが増し、浴が完全に静止している場合には無限大にまで成長するが、実際には対流や攪拌などの影響により最大でも 100 μ m オーダーの有限厚さとなる。これに対して多孔質 Zr 層は U が選択的に溶解した量にしたがって制限なく成長し、最大せん断した U-Zr 合金の中心から表面までの距離程度 (数 mm) に達する。この厚さと前述の実効的拡散係数の低さにより、多孔質 Zr 層が陽極溶解において最も強力な反応速度制限要因となる。

陽極モデルでは、次のメカニズムに従って陽極溶解で生成した UCl_3 の拡散が次第に遅滞すると共に陽極電位が上昇し、ある時点で U の次に溶解電位が低い Zr の陽極溶解が始まる。

- (i) U の選択的溶解により形成・成長する残留 Zr 層が、分厚い濃度拡散層として作用 (バルク熔融塩中よりも UCl_3 拡散速度は低い)
- (ii) それぞれの拡散層内での直線と仮定した濃度プロファイルの内端における値は直線と仮定
- (iii) 熔融塩中に溶解した UCl_3 の拡散遅れにより、それぞれの拡散層内で直線と仮定した濃度プロファイルの内端における UCl_3 濃度が上昇
- (iv) 最も高い値となる未溶解 U-Zr 合金表面における UCl_3 濃度が上限値 (溶解度) に達すると Zr の溶解開始

このモデルにおいて、熔融塩中における UCl_3 拡散係数については既往文献値⁽⁸⁾ がある。 UCl_3 溶解度については状態図評価などの間接的な情報はあるものの、そのものを測定した例はない。電気化学測定結果をもとに評価した値 (0.00449 mol/cm³ = 36.6 wt%-U)⁽⁹⁾ があり、本研究ではこの値を使用する。残る重要なパラメータは多孔質 Zr 層中における実効的な UCl_3 拡散係数である。U-10wt%Zr 合金については、この

値を $0.7 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$ と設定した場合にモデルによる予測結果と試験結果がよく一致したことから^{(4), (9)}、本研究ではこの値を採用することにする。

③ 実験方法

実験は全て高純度 Ar 雰囲気グローブボックス内で実施した。グローブボックス内に設置された電気炉内で直径 100mm のステンレス製容器内に装荷した 1.3kg の LiCl-KCl を溶融して 773K に保持した。この浴中で金属 U を CdCl_2 と反応させて塩化することにより UCl_3 を生成し、浴中 U 濃度を 2.03wt%-U に調整した。この浴に、電気化学測定に必要な以下の電極類を挿入した。

1) 作用電極となる U-Zr 合金円板を保持したホルダー

ホルダーの形状と寸法は参考文献(1)の図 3.2.3-4 に示した通りである。ホルダー下部中央のスペースに U-Zr 合金円板を装荷し、円形窓のあいた蓋で覆って締め付けることにより、浴塩に接する部分を $\phi 5.0\text{mm}$ の円形（開口部面積 0.196cm^2 ）に制限した。使用した U-Zr 合金は、Zr 含有量 10wt%、20wt%、40wt% の 3 種類である。これらは太さ 18mm 程度の棒状のものを円盤状に切断して使用した。

2) 対極

対極としては、直径 10mm の SUS304 棒の先端 48mm にわたって表面積拡大及び析出物脱落防止溝（ピッチ 2mm、深さ 2mm）を切ったものを使用した。

3) 参照極

参照極としては、Pyrex 管に入れた Ag/AgCl (LiCl-KCl-1wt%AgCl) 電極を使用した。塩浴の攪拌を止め、作用電極電位が落ち着いたところで電気化学測定（クロノポテンシオメトリー）を行った。ひとつの測定が終わる毎に塩浴の攪拌を再開し、電極周囲の UCl_3 濃度分布をできるだけ速やかに解消するように努めた。なお、電気化学測定は Princeton Applied Research 社のポテンシオ／ガルバナスタット VersaSTAT4 及び同社の電気化学測定用ソフトウェア VersaStudio ver 2.40.4 を用いて行った。

(3) 結果と考察

① 様々な組成の U-Zr 合金を用いた電気化学的測定による残留多孔質 Zr 層中での溶解アクチニドの実効的拡散係数と Zr 存在比が与える影響の評価

1) U-10wt%合金を用いた試験の結果

U-10wt%をホルダーに装荷し、浴塩に浸した。電流を印加する前の静止電位は -1.265V (vs. Ag/AgCl) であった。この合金を作用極として、電流密度 $0.01 \sim 0.5\text{A}/\text{cm}^2$ でクロノポテンシオグラム測定したところ、合金の電位は、最初に -1.1V 付近でプラトーを形成し、40~50 秒にかけて上昇して 60 秒では -0.9V 付近で再びプラトーを形成開始した（参考文献(1)の図 3.2.5-5）。前半のプラトーは $\text{U} \rightarrow \text{U}^{3+} + 3\text{e}^-$ という電極反応に対応し、後半のプラトーは $\text{Zr} \rightarrow \text{Zr}^{4+} + 4\text{e}^-$ という電極反応に対応するものと考えられる。電位の立ち上がり時間（最初のプラトーの接線と電位上昇部位の接線との交点）から、この測定における遷移時間は約 37 秒と評価された。

一方、(3.2.3-2)式にこの測定における条件を入力して得られる遷移時間の計算値は約 47 秒であった。ここで、LiCl-KCl 中における UCl_3 の溶解度としては、過去に U-9wt%Zr 合金を用いて行われた測定の結果をもとに評価された値 0.0049mol/cm^3 ⁽⁹⁾ を用いた。また、浴塩バルク中における UCl_3 の拡散係数としては、文献値 $1.45 \times 10^{-5}\text{cm}^2/\text{s}$ ⁽⁸⁾ を用いた。

実際の測定では、電流密度を 0.01A/cm^2 から少しずつ増加させてクロノポテンシヨメトリーを繰り返した ($0.01, 0.02, 0.05, 0.07, 0.10, 0.15, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5\text{A/cm}^2$)。計算値よりも実際に観察された遷移時間が短いのは、繰り返し測定を行うことにより合金表面に多孔質 Zr 層が形成し、かつその内部に生じた UCl_3 濃度分布が完全に緩和されないうちに次の測定を行った影響と考えられる。このため、Sand 式の場合と同じ物性値を用いて、U の陽極溶解に伴う拡散層中 UCl_3 濃度分布形成と多孔質 Zr 層成長を有限差分法により計算する陽極挙動解析コードを使用して、実際の試験と同じ一連の測定全体を模擬した (参考文献(1)の図 3.2.3-6, 7)。この結果によれば、電流密度 0.5A/cm^2 での測定を行う時点で、すでに約 0.0053cm の多孔質 Zr 層が形成していたと考えられる。また、それぞれのクロノポテンシヨグラム測定の間には 1~8 分程度の間隔しかなかったため、測定により生じた多孔質 Zr 層中の UCl_3 濃度分布が完全に初期値 (0.00138mol/cm^3) には戻らなかったと考えられる。これらの影響により、最後に行った電流密度 0.5A/cm^2 での測定における遷移時間計算値 (合金表面における UCl_3 濃度が溶解度に達した時間) は測定履歴が内場合よりも大幅に短い約 37.2s となり、実際に観察された値にほぼ一致した。

これらの測定及び計算の結果から、クロノポテンシヨメトリー結果の解析に上記の物性値を用いること、及びは試料ホルダーの円形窓部面積を電極有効表面積とすることは妥当と考えた。

2) U-20wt%合金を用いた試験の結果

試料ホルダーに U-20wt%Zr を装荷し、電流密度を $100\sim 500\text{mA}$ の範囲で変えてクロノポテンシヨグラムを測定した (参考文献(1)の図 3.2.3-8)。

U-20wt%Zr について測定された電位は全般に Zr 線と U 棒を用いた場合の間に位置したが、 $U \rightarrow U^{3+} + 3e^-$ という電極反応に対応するプラトーは観察されず、単純に Zr 線の場合の電位 ($Zr \rightarrow Zr^{4+} + 4e^-$ という電極反応に対応) に漸近した。

この結果から、U-20wt%Zr の陽極溶解においては、U を Zr に優先して溶解させることが可能な電流密度は 0.1A/cm^2 程度と低く、これ以上の電流密度では U と Zr とが同時に溶解するものと考えられる。このため、有意な厚さの多孔質 Zr 層を形成させることが困難と考え、試験を終了した。U-10wt%Zr と挙動が大きく異なる原因は明らかではないが、合金表面に多孔質 Zr 層が形成した場合には、合金中 Zr 含有量が 2 倍程度と大きく増大していることからこの層における実効的な UCl_3 拡散係数が極端に低下することにより観察が困難なほどに遷移時間が短くなっている可能性がある。

更に考察を進めるためには測定後の電極表面付近の断面観察などを行うことが必要と考えられる。

3) U-40wt%合金を用いた試験の結果

試料ホルダーに U-40wt%Zr を装荷して測定したクロノポテンシオグラムを測定した(参考文献(1)の図 3.2.3-9)。電流を印加した直後には-1.1V 付近に U から U^{3+} への溶解反応を示すプラトーが、電極表面近傍浴中の UCl_3 濃度が溶解度に達した後は-0.8V 付近に電位が遷移して Zr から Zr^{4+} への溶解反応を示すプラトーが観察されることを予期していたが、実際には測定期間を通じて陽極電位が-0.9V~-0.8V 付近に留まり、電位の遷移は見られなかった。

より詳しく見ると、電位を印加する前に測定された合金の浸漬電位(約-1.1V)は、U 金属を浸漬した場合に測定された電位(約-1.35V)よりも大幅に高く、むしろ Zr 金属を浸漬した場合の電位(約-1.06V)に近かった。

比較のため、Zr 線(ϕ 1mm、浸漬深さ 70mm、表面積 2.199cm^2)を作用極としてクロノポテンシオメトリーを行ったところ、U-40wt%Zr 作用極の場合とよく似た結果が得られた。この結果は、浸漬電位の比較結果を併せて、U-40wt%Zr 合金中の U 活量が非常に低く、電気化学的にほぼ Zr 金属として振舞うことを示している。

参考のため、U 棒(ϕ 4mm、浸漬深さ 10mm、表面積 0.126cm^2)を作用極として再度クロノポテンシオメトリーを行った。この測定では作用極電位が-1.1V から-0.95V の範囲で緩やかに変化しており、専ら U から U^{3+} への陽極溶解反応が起こっていることを示唆している。U 棒の表面積が大きい(作用極における陽極溶解電流密度が低い)ために Zr 溶解反応への遷移は見られていない。この挙動は U-40wt%Zr 作用極を用いた場合と大きく異なっており、やはりこの測定条件下で U-40wt%Zr 作用極は Zr 金属に近い挙動を示していると考えられる。

U-40wt%Zr は、塩浴に浸漬した直後から高い浸漬電位(約-1.1V、U 金属と比較して+約 0.25V)を示し、かつ U から U^{3+} への溶解反応を示すプラトーが全く見られないことから、多孔質 Zr 層における実効的な UCl_3 の拡散係数とは関係なく、合金中における U の活量が極めて低下している(0.25V の電位差は 773K において U の活量が約 1.8×10^{-5} に低下することに相当)ことが推測される。ただし、LiCl-KCl- UCl_3 - $ZrCl_4$ 中での電解により得られた δ 相組成を持つ析出物を用いた起電力測定⁽¹⁰⁾によれば、775K での δ -(U, Zr)中の U の活量は 0.856 であり、今回の U-40wt%Zr 合金の挙動とは一致してしない。

上記のクロノポテンシオメトリーの結果から、U-40wt%Zr の陽極溶解においてはごく小さい電流密度においても U が優先的に溶解することはなく、最初から U と Zr とが同時に溶解するものと考えられる。すなわち溶け残った物質が多孔質層を形成することはないことから、(2)①で述べた通常の金属燃料陽極溶解モデルが成り立たない。この場合、LiCl-KCl 浴塩中における $ZrCl_4$ の拡散係数が UCl_3 の拡散係数よりも若干低く、溶解度(0.013 mol fraction⁽¹¹⁾)は U よりも大幅に低いため、U-40wt%Zr の陽極溶解は Zr の溶解速度に律速されると予測される。拡散層は熔融塩中のみに存在

することになるため、拡散層厚さによって定まる拡散限界＝最大陽極溶解速度は、攪拌や陽極容器の形状、回転などの機械的条件及び電解精製装置設計に依存することが予測される。

4) 1)から 3)のまとめ

MA 入り Pu 金属燃料の模擬物質として U-10, 20, 40wt%Zr 合金を用い、電気化学的手法により残留多孔質 Zr 層中での溶解アクチニドの実効的拡散係数を取得し、Zr 存在比が与える影響を評価することを試みた。U-10wt%Zr 合金を用いたクロノポテンシヨメトリーでは、過去に U-9wt%Zr 合金について行われた試験で得られた物性値による解析とほぼ一致する測定結果が得られ、解析方法及び試験方法の妥当性が確認された。しかし、U-40wt%Zr 合金を用いた測定結果からは、この合金中の U 活量が非常に低く、電気化学的にはほぼ Zr 金属としてふるまうことが分かった。このため U の優先的溶解は起こらず、最初から U と Zr とが同時に溶解すると考えられ、残留多孔質 Zr 層の存在を前提とする陽極モデルが成り立たないことがわかった。U-20wt%Zr 合金を用いたクロノポテンシヨメトリーにおいても U から U^{3+} への溶解反応を示すプラトーは見られず、U を Zr に優先して溶解させることが可能な電流密度が低いため有意な厚さの多孔質 Zr 層を形成させることが困難なことから、電気化学的手法による残留多孔質 Zr 層中における UCl_3 の実効的拡散係数取得はできなかった。

② U-Zr 合金に生じる残留 Zr 層中の拡散パラメータの試算

①で述べた通り、U-20wt%Zr あるいは U-40wt%Zr 合金を用いて行われた電気化学測定の結果からは、U の優先的溶解が可能な条件を見出すことができおらず、U を陽極溶解する際には Zr が同時に溶解することを避けるのは困難と考えられる。MA 入り Pu 金属燃料を構成する超ウラン元素は U よりも酸化還元電位が低いことから、Pu-MA-Zr 合金の陽極挙動は U-Zr 合金のそれと異なる可能性があるが、現在のところ合理的な予測はできていない。

ここでは、合金の熱力学的性質の影響をひとまず除外し、仮にアクチニドの優先的な陽極溶解が可能である場合を想定し、合金中 Zr 含有量増加が残留 Zr 層の空隙率減少に与える影響を評価する。

U-9wt%Zr、U-20wt%Zr、U-40wt%Zr^{(12)・(13)} の各組成の合金密度は実測されている。したがって、これらの合金から全ての U が優先的に陽極溶解した場合に残留する体積当たりの Zr 重量を計算することができる。これを金属 Zr の比重で割れば、残留 Zr 層内の Zr 嵩密度が得られる。この値を 1 から差し引くことにより、残留 Zr 層内の空隙率を評価した。これらの結果を表 3.2.3-1 に示す。U-40wt%Zr から U が溶解した後の残留 Zr 層の空隙率は、U-9wt%Zr の場合の半分以下となることが予測される。

残留 Zr 層が形成した後、更にもその内側にある未溶解合金から U が溶解する際には、溶解により生成した U^{3+} イオンが残留 Zr 層を濃度拡散により通過して溶融塩溶媒に到達する必要がある。残留 Zr 層は微細構造を持つ多孔質であることから⁽⁷⁾、 U^{3+} イオン

の輸送挙動を説明する上で細孔拡散モデルが適用できると考えられる。細孔拡散モデルにおいて、見掛けの拡散係数は次式で表される。

$$D_a = \frac{1}{\varepsilon + \rho K_d} \varepsilon \frac{\delta}{\tau^2} D_0 \cong \varepsilon \frac{\delta}{\tau^2} D_0 \quad (3.2.3-3)$$

ここで、

D_a, D_0 : 拡散物質の見掛けの拡散係数及び純溶媒中における拡散係数 (cm²/s)

ε : 拡散障壁となる多孔質の空隙率

K_d : 多孔質表面における拡散物質吸着の分配係数 (cm³/g)

ρ : 拡散障壁となる多孔質の密度 (g/cm³)

δ : 拡散障壁となる多孔質の屈曲度

τ : 拡散障壁となる多孔質の収斂度

である。(3.2.3-3)式における $1/(\varepsilon + \rho K_d)$ は細孔内表面における拡散物質の吸着による拡散の遅延の度合を表す項であるが、残留 Zr 層を形成する金属 Zr 表面へのアクチニドイオン吸着はあったとしてもごく弱いと考えられることから、(3.2.3-3)式での寄与は無視できると考えた。

上記(2)②で述べたように、U-9wt%Zr に形成した残留 Zr 層を通過する UCl₃ の挙動を金属燃料陽極モデルで評価した結果は、見掛けの拡散係数を 0.7×10^{-5} cm²/s 程度と仮定することにより最もよく測定結果に一致した。バルクの熔融 LiCl-KCl (500°C) 中における拡散係数については 1.45×10^{-5} cm²/s との測定値があることから⁽⁸⁾、この条件での(3.2.3-3)式における (δ/τ^2) は約 0.6 と評価される(収斂度を 1 とすると屈曲率約 1.3 に相当)。屈曲率あるいは収斂度と空隙率との関係は拡散経路となる空孔径などに依存してさまざまであるが、ここでは (δ/τ^2) は空隙率(合金組成)に依らず一定値であると仮定し、残留 Zr 層中におけるアクチニドイオンの実効的拡散係数は、この層の空隙率に比例すると考えた。この仮定の下で、各組成の U-Zr 合金について残留 Zr 層が形成した場合におけるこの層中における UCl₃ の実効的拡散係数の試算値を表 3.2.3-1 の右欄に示す。

③ 高 Zr 合金においてアクチニド優先的溶解が可能と仮定した場合の陽極溶解挙動の予測

上記①で各組成の U-Zr 合金について試算した残留 Zr 層中における UCl₃ の実効的拡散係数値を用いて、数点の電流密度での CP 測定を模擬して陽極反応が U→U³⁺から Zr→Zr⁴⁺に移る遷移時間を計算した(参考文献(2)の図 3.2.3-5~7)。合金中の Zr 含有比が増加するにつれて残留 Zr 層中における実効的拡散係数は低下する(表 3.2.3-1)ことから、遷移時間計算値は次第に短くなっている。これに対して実験結果には連続性が見られず、U-20wt%Zr 合金を用いた測定では、U→U³⁺から Zr→Zr⁴⁺への陽極反応の

遷移は判然としなかった。最も高い電流密度 ($1000\text{mA}/\text{cm}^2$) では 25 秒付近に電極電位変化の変曲点があるようにも見えるが、U-10wt%Zr 合金における電位変化のように明瞭なものではなかった。また、U-40wt%Zr 合金を用いた測定では、U の優先的溶解が起きる電位領域 (およそ $-1.3\text{V}\sim-1.1\text{V}$) では電流が流れず、合金の示す電位は測定開始前から終始 Zr 単体金属と変わらない範囲 (-0.95V 以上) に留まり、 $\text{U}\rightarrow\text{U}^{3+}$ から $\text{Zr}\rightarrow\text{Zr}^{4+}$ へと陽極反応が遷移する様子は見出すことができなかった。電流密度が高いケースでは、 -0.4V 付近から -0.1V 付近に見られるプラトーに向かって電位が遷移しているが、これは④で後述するように熔融塩中に存在する U^{3+} の酸化反応 ($\text{U}^{3+}\rightarrow\text{U}^{4+}+\text{e}^-$) に対応するものと考えられる。

これらの結果から、計算結果は U-Zr 合金を用いた測定の結果に見られる Zr 含有比増加 (10wt% \rightarrow 20、40wt%) による極端な陽極挙動変化を説明することはできないことがわかった。

MA 入り Pu 金属燃料を構成する超ウラン元素は U よりも酸化還元電位が低いことから、Pu-MA-Zr 合金の陽極挙動は U-Zr 合金のそれと異なる可能性があるが、これまでに Pu-MA-Zr 合金を用いた熔融塩電解試験あるいは電気化学測定が行われた例がないため、実際の陽極挙動に関する知見はなく、合理的な予測もできていない。ただし、ある条件の下で Pu-MA-Zr 合金から Pu と MA を選択的に溶解することが可能であると仮定し、形成する残留 Zr 層中における空隙率 (\propto 溶解アクチニドイオンの実効的拡散係数) が U-10wt%Zr 合金の場合よりも低いことによる影響を、近似的であれ評価することは意味があると考えられる。

そこで、今回 3 種類の組成の U-Zr 合金について試算した残留 Zr 層中における UCl_3 の実効的活量係数を用いて、より長期間の陽極溶解における陽極挙動を評価した。U と Pu、MA の密度及び LiCl-KCl 中におけるこれらの元素の塩化物の拡散係数は大きく変わらないことから、陽極モデルを用いて U-Zr について計算した結果により、Pu-MA-Zr 合金の陽極挙動を評価することには妥当性があると考えた。ただし、LiCl-KCl 中におけるこれらの元素の塩化物溶解度データは未整備であり、その違いが評価結果に影響を与える可能性がある。

これらの塩化物熔融塩 1 回あたり数 kg の U-10wt%Zr 合金 (SUS 管で被覆したまま 5 \sim 10mm の長さにせん断したもの) を使用して行われた電解精製試験⁽¹⁴⁾の結果を前述の陽極モデルを用いて解析した結果⁽⁴⁾によれば、陽極電流密度が $40\text{mA}/\text{cm}^2$ 程度であれば、Zr を溶解させることなくほとんどの U を陽極溶解させることが可能である。そこで、今回の評価では陽極電流密度を $40\text{mA}/\text{cm}^2$ とし、溶解は被覆されたまません断された燃料ピンの円形開口部のみから一様に内側に進行するものと仮定して計算を行い、U-Zr 合金中の Zr 含有率による陽極溶解挙動の違いを検討した。U-9wt%Zr、U-20wt%Zr、U-40wt%Zr の各合金について計算された陽極電位変化、U と Zr の溶解電流割合の変化、残留 Zr 層形成厚さの変化、U と Zr の累積溶解量 (合金表面積あたり)、陽極表面における UCl_3 と ZrCl_4 の濃度の変化を計算した (参考文献(2)の図 3.2.3-8 \sim 10)。

合金中の Zr 含有率が増加すると、陽極電位が急激に上昇して Zr が溶解し始めるタイミングが早まることがわかった。このタイミングは U-9wt%Zr の場合で 93,500s、U-

20wt%Zr の場合で 51,410s、U-40wt%Zr の場合で 18,630s であった。この時点までに形成する残留 Zr 層の厚さはそれぞれ 0.213cm、0.157cm、0.099cm である。この結果は、使用済燃料を長さ 5mm にせん断し、陽極電流密度 40mA/cm² (一定) の条件下で陽極溶解が理想的にせん断面両側から進行したと仮定すると、U-9wt%Zr の場合は Zr をほとんど溶解させることなく使用済燃料中 U の約 85%が溶解し、U-40wt%Zr の場合には約 40%が溶解することを示している。

U の陽極溶解に伴い残留 Zr 層が厚くなると、Zr 溶解を避けて流すことができる陽極電流密度が低下する。例として、U-9wt%Zr 合金について、Zr 溶解を避けて次第に陽極電流密度を低下させていったときの陽極電位と残留 Zr 層形成厚さの変化を計算した (参考文献(2)の図 3.2.3-11)。陽極電流密度を低下させていくパターンは無数にあるが、この計算例では 80mA/cm² から始まって陽極電位が急激に上昇する直前に 60mA/cm²→50mA/cm²→40mA/cm²→30mA/cm² と変化させた場合に、合金表面から深さ 2.5mm 以上まで U を陽極溶解させるための所要時間を評価したところ、約 90,000s となった。この結果は、工学規模の電解試験において Zr 溶解を抑えながら長さ 5mm にせん断した被覆管付 U-9wt%Zr 合金中に含まれる U の大部分を溶解するのに 18~27h 程度を要したという実験結果^{(14),(15)}と概ね一致している。U-40wt%Zr 合金について同様の計算を行った (参考文献(2)の図 3.2.3-12)。合金中 Zr 存在比が高い場合には陽極電流密度が限られ、この計算例では 40mA/cm² から始まって陽極電位が急激に上昇する直前に電流密度を 30mA/cm²→20mA/cm²→100mA/cm² と変化させた。合金表面から深さ 2.5mm 以上まで U を陽極溶解させるための所要時間を評価したところ、約 85,000s となった。この所要時間は U-9wt%Zr 合金の場合と U-40wt%Zr 合金の場合とで大差ないが、表 3.2.3-1 に示す通り、これらの合金体積当たり (陽極溶解における表面積が等しければ合金深さ当たり) の U 含有量は 2.3 倍以上の比率で異なっている。したがって上記の評価結果は、これら 2 種類の合金について単位時間あたりに陽極溶解可能な量 (体積) はほぼ等しいが、U 処理速度は 2.3 倍程度異なる (U-40wt%Zr の方が低い) ことを示している。つまり、Zr 含有率の高い金属燃料を Zr を陽極に残しつつ陽極溶解させる場合には、仮にアクチニドの優先的溶解が可能な処理条件が得られたとしても、処理速度が大幅に低下することが予測される。

④ Zr 溶解速度に影響するパラメータの評価

これまでの検討で用いた陽極モデルでは、陽極溶解による生じたアクチニド塩化物の LiCl-KCl 中における溶解度を、処理速度を制限する重要な因子として考慮している。多量の Zr 溶解を許容した運転条件では、アクチニドと同様に LiCl-KCl 中における ZrCl₄ の拡散係数と溶解度もまた合金全体の溶解速度を制限する重要な要素となることから、陽極溶解挙動を定量的に評価するためには、陽極モデルにおいて ZrCl₄ の溶解度の効果を取り入れていく必要がある。ZrCl₄ の拡散係数については山田らの報告値 (1.45×10^{-5} cm²/s⁽¹⁵⁾) が、溶解度については坂村らの報告値 (mol 比で 0.013⁽¹¹⁾) がある。ここでは、金属 Zr 電極を用いて行った電気化学測定試験の結果から、ZrCl₄ の拡散係数と溶解度として上記の文献値を適用することの妥当性を確認した。

1. 481wt%のUを含む500°CのLiCl-KCl中(Zrは含まない)でZr製、Fe製電極(直径3mm、熔融塩への浸漬深さ10mm、有効表面積1cm²)及びU-40wt%Zrに300mA/cm²の酸化電流を与えて測定したCPを比較した(参考文献(2)の図3.2.3-13)。Zr電極を用いて測定したCPには、-0.82V付近及び0.2V付近の2つの電位プラトーが見られた。前者はU-40wt%Zrとの比較から金属Zrの溶解反応($Zr \rightarrow Zr^{4+}+4e^{-}$)に、後者はFe製電極との比較から熔融塩中に存在するU³⁺の酸化反応($U^{3+} \rightarrow U^{4+}+e^{-}$)に、それぞれ帰属するものと考えられる。このCP結果から得られた前者の反応における遷移時間は2.6sであった。上記試験条件を変形後のSand式(3.2.3-2)に代入することにより、500°CのLiCl-KCl中におけるZrCl₄の溶解度 C_{sol} と拡散係数 D との関係について以下の式が得られる。

$$\frac{0.4837}{C_{sol}} = 342030 D^{1/2} \quad (3.2.3-4)$$

以上の結果のみから C_{sol} と D の両者を求めることはできないが、上記文献値のうち拡散係数 1.45×10^{-5} cm²/sを(3.2.3-4)式に代入して得られる C_{sol} は0.0142(mol比)となり、10%程度以下の差で文献値と一致する。逆に文献値として溶解度0.013(mol比)を(3.2.3-4)式に代入して得られる D は 1.21×10^{-5} cm²/sとなり、文献値との差は16%程度となる。この結果から、Zrの陽極溶解挙動は、ZrCl₄の拡散係数と溶解度の文献値を適用することにより概ね評価可能と考えられる。

続いて、Zrの溶解を許容した場合にU-40wt%Zr合金全体としての陽極溶解速度の上限値を評価するために、この合金を使ってより広い酸化電流密度範囲でCP測定を行った(参考文献(2)の図3.2.3-14)。大きく分けて2つの電位プラトー(-0.9V付近から電流密度増加に従って-0.7V付近に移動しているもの、-0.4V付近から電流密度増加に従って0V付近に移動しているもの)が見られた。前者はZrの溶解する電位範囲かあるいはそれよりも高い位置に存在するが、Zr電極を用いた場合(参考文献(2)の図3.2.3-13)に見られた最初のプラトーに比較的近い電位であること、Uの溶解電位は本来Zrの溶解電位よりも低いことを考慮すると、このプラトーはU及びZrの溶解反応に対応するものと考えられる。これに対して後者は熔融塩中に存在するU³⁺の酸化反応($U^{3+} \rightarrow U^{4+}+e^{-}$)に対応するものと考えられる。 $U^{3+} \rightarrow U^{4+}+e^{-}$ という反応は、陽極のUやZrの溶解には直接寄与せず、陰極で逆反応($U^{4+}+e^{-} \rightarrow U^{3+}$)が起これば電流を無駄に消費することになるので、電解精製装置を運転する上で避けるべき反応である。U-40wt%Zr合金を用いたCP測定結果(参考文献(2)の図3.2.3-14)から、反応： $U^{3+} \rightarrow U^{4+}+e^{-}$ を避けて少なくとも60秒間UとZrの陽極溶解を継続するためには陽極電流密度は200mA/cm²程度以下である必要があることがわかった。電解を長時間継続するに従って一般的に陽極電位は上昇する傾向にあることから、合金中のUを全量溶解するためには、更に陽極電流密度が低く制限されることが予測される。U-40wt%Zr合金のU/Zr比は重量で60/40、モル比で37/63、溶解より生成するイオンの価数(それぞれ3価/4価)を考慮した当量比では30/70となる。したがって、例えば陽極電流

密度を $200\text{mA}/\text{cm}^2$ に設定した場合 U と Zr とが合金中存在比に従って調和的に溶解している状況では、U の溶解に $200 \times 30 / (30+70) = 60\text{mA}/\text{cm}^2$ が、Zr の溶解に $200 \times 70 / (30+70) = 140\text{mA}/\text{cm}^2$ が使われていることになる。

上述の CP 測定に使用した熔融塩浴中で、Zr 棒（直径 3mm、熔融塩への浸漬深さ 10mm、有効表面積 1cm^2 ）を用いて CP 測定を行った（参考文献(2)の図 3.2.3-15）。陽極電流密度 $100\text{mA}/\text{cm}^2$ の条件では、60 秒間の測定を通じて陽極電位は $\text{Zr} \rightarrow \text{Zr}^{4+}+4\text{e}^-$ のみが起こる範囲（-0.9V 付近）にとどまった。これに対し、電流密度 $200\text{mA}/\text{cm}^2$ の条件では速やかに Zr 電極電位が上昇して $\text{U}^{3+} \rightarrow \text{U}^{4+}+\text{e}^-$ の反応に対応する電位にまで到達した。この結果は、反応： $\text{U}^{3+} \rightarrow \text{U}^{4+}+\text{e}^-$ を避けて少なくとも 60 秒間 Zr の陽極溶解を継続可能な陽極電流密度が $100\text{mA}/\text{cm}^2$ と $200\text{mA}/\text{cm}^2$ の間にあることを示しており、上述の U-40wt%合金中を用いた場合における適切な陽極溶解条件及び合金中 U、Zr 存在比を考慮した検討と概ね一致している。なお、U 金属については 60 秒間の測定を通じて少なくとも $500\text{mA}/\text{cm}^2$ までの陽極電流密度で $\text{U}^{3+} \rightarrow \text{U}^{4+}+\text{e}^-$ の反応を起こすことなく U の陽極溶解を継続することが可能である。従って U-40wt%合金を用いて Zr の同時溶解を許容した場合、 $\text{U}^{3+} \rightarrow \text{U}^{4+}+\text{e}^-$ の反応を避けて陽極溶解を継続することが可能な条件は、U ではなく Zr の溶解電流上限値によって定まる、すなわち ZrCl_4 の拡散係数と溶解度を考慮した検討により評価可能であることがわかった。

(4) 今後の開発課題

本研究で行った U-20wt%Zr、U-40wt%Zr 合金を用いたクロノポテンシオメトリーにおいては、これらの合金が電気化学的にほぼ Zr 金属としてふるまうことから合金中の U 活量が非常に低下していることが示唆された。しかし U-Zr 二元系状態図からは、これらの組成では α -U 相と δ 相とが共存していると考えられ、仮に δ 相における U 活量が低いとしても α -U 相存在比に相応する U 溶解速度が得られることが予測される。この状態図からの予測と実際の試験結果との著しい差異の原因を解明することは、金属燃料及び乾式再処理技術開発上の重要な課題である。

一方、本来の TRU 金属燃料（Pu-MA-Zr 合金）の熔融塩中における化学的・電気化学的挙動については過去に全く検討例がなく、TRU 元素の優先的陽極溶解の可否についても情報がない状態である。今後、たとえ小規模であっても TRU 金属燃料を作成し、熔融塩中における電気化学測定と電解精製試験を実施し、本事業で得た上記の結果が TRU 金属燃料にも当てはまるのか、あるいは TRU 元素が選択的に陽極溶解して三元合金と同様の電解精製工程と乾式再処理プロセスとが適用可能なのかを明らかにする必要がある。

(5) まとめ

MA 入り Pu 金属燃料の模擬物質として U-Zr 合金（Zr 含有量 10wt%、20wt%、40wt%）を用いて行った電気化学測定結果を利用して、以下の検討を行った。

- ・電気化学的手法による陽極残留物内多孔質 Zr 層中での溶解アクチニドの実効的拡散係数及びこれに Zr 存在比が与える影響の評価

- ・高 Zr 合金においてアクチニド優先的溶解が可能と仮定した場合について算出される残留 Zr 層中における UCl_3 の実効的拡散係数の試算、及び陽極溶解挙動の予測
- ・Zr の同時溶解を強要した場合に陽極溶解処理速度を律速する可能性がある、Zr 溶解速度に影響するパラメータの評価

検討の結果、U-20wt%Zr、U-40wt%Zr 合金中の U 活量は非常に低く電気化学的にほぼ Zr 金属としてふるまうことから、クロノポテンシオメトリーの結果において U から U^{3+} への溶解反応を示すプラトーは見られなかった。U を Zr に優先して溶解させることが可能な電流密度が低いため有意な厚さの多孔質 Zr 層を形成させることが困難なことから、電気化学的手法による残留多孔質 Zr 層中における UCl_3 の実効的拡散係数取得はできなかった。

一方、合金中の Zr 含有比が増加するにつれて残留 Zr 層中における空隙率の減少から実効的拡散係数は低下し、CP における $U \rightarrow U^{3+}+3e^-$ から $Zr \rightarrow Zr^{4+}+4e^-$ への遷移時間は次第に短くなるとの計算結果が得られたが、U-20wt%Zr、U-40wt%Zr 合金を用いた測定の結果に見られる Zr 含有比増加による極端な陽極挙動変化を説明することはできなかった。

電解条件の最適化によって Pu-MA-Zr 合金から Pu と MA を選択的に溶解することが可能であると仮定して陽極溶解挙動を予測した結果、Zr を陽極に残しつつ Zr 含有率の高い金属燃料を陽極溶解する場合には残留 Zr 層中におけるアクチニドイオンの実効的拡散係数が低下することから、処理速度が大幅に低下することが予測された。

また、Zr 金属及び U-40wt%合金を用いて行った CP 測定結果の比較により、Zr の同時溶解を許容した場合、 $U^{3+} \rightarrow U^{4+}+e^-$ の反応を避けて陽極溶解を継続することが可能な条件は、U ではなく Zr の溶解電流上限値によって定まる、すなわち $ZrCl_4$ の拡散係数と溶解度を考慮した検討により評価可能であることがわかった。

参考文献

- (1) 原子力システム研究開発事業, 「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」平成 27 年度成果報告書 (2016)
- (2) 原子力システム研究開発事業, 「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」平成 28 年度成果報告書 (2017)
- (3) M. Iizuka, M. Akagi and T. Omori, “Development of treatment process for anode residue from molten salt electrorefining of spent metallic fast reactor fuel”, Nucl. Technol., 181, 507-525 (2013)
- (4) M. Iizuka and H. Moriyama, ” Analysis of anodic behavior of metallic fast reactor fuel using a multi diffusion layer model”, J Nucl Sci Technol, 47, 1140-1154 (2010)
- (5) H. J. S. Sand, Phil. Mag., 1, 45 (1901)
- (6) T. B. Massalski (Ed.), Binary Alloy Phase Diagrams, ASM International (1990)

- (7) M. Iizuka, T. Omori and T. Tsukada, "Behavior of U-Zr alloy containing simulated fission products during anodic dissolution in molten chloride electrolyte", *J. Nucl. Sci. Technol.*, 47, 244-254 (2010)
- (8) S. A. Kuznetsov, H. Hayashi, K. Minato and M. Gaune-Escardc, "Electrochemical behavior and some thermodynamic properties of UCl_4 and UCl_3 dissolved in a LiCl-KCl eutectic melt", *J. Electrochem. Soc.*, 152, C203-C212 (2005)
- (9) 飯塚、坂村、上原、山名、「U-Zr 合金陽極拡散層モデルにおける主要パラメータの電気化学的手法による評価」、日本原子力学会 2014 年秋の大会、2014 年 9 月
- (10) T. Murakami, T. Kato, M. Kurata and H. Yamana, "Electrochemical formation of uranium-zirconium alloy in LiCl-KCl melts", *J. Nucl. Mater.*, 394, 131-135 (2009)
- (11) Y. Sakamura and T. Inoue, "Conversion of oxide into metal or chloride for the pyrometallurgical partitioning process", *Proc. 5th Top. Mtg. on DOE Spent Nuclear Fuel and Fissile Materials Management*, Charleston, SC. USA, Sep. 17-20, 2002.
- (12) T. Ogata and T. Tsukada, "Engineering-scale development of injection casting technology for metal fuel cycle", *Proc. GLOBAL 2007*, Boise, Idaho, USA, Sep. 9-13, 2007.
- (13) 原子力システム研究開発事業, 「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」平成 26 年度成果報告書 (2014)
- (14) M. Iizuka, K. Uozumi, T. Ogata, T. Omori and T. Tsukada, "Development of an innovative electrorefiner for high uranium recovery rate from metal fast reactor fuels", *J. Nucl. Sci. Technol.*, 46, 699-716 (2009)
- (15) M. Iizuka, K. Kinoshita, Y. Sakamura, T. Ogata and T. Koyama, "Performance of pyro-process equipment of semi-industrial design and material balance in repeated engineering-scale fuel cycle tests using simulated oxide/metal fuels", *Nucl. Technol.*, 184, 107-120 (2013)
- (16) D. Yamada, T. Murai, K. Moritani, T. Sasaki, I. Takagi, H. Moriyama, K. Kinoshita and H. Yamana, "Diffusion behavior of actinide and lanthanide elements in molten salt for reductive extraction", *J. Alloys Compd.*, 444-445, 557-560 (2007)

表 3. 2. 3-1 U-Zr 合金の組成と密度から試算された残留 Zr 層の空隙率
及びこの層中における UCl_3 の実効的拡散係数

合金組成	合金の密度 (g/cm^3)	合金中重量 (g/cm^3)	U溶解後の残留物 $1cm^3$ 中に占める体積 (cm^3/cm^3)	残留物Zr層の 空隙率評価値	残留Zr層中における UCl_3 の実効的拡散係数 (cm^2/s)
U-9wt%Zr	15.9 ⁽⁹⁾	U 14.47 Zr 1.43	U 0 Zr 0.220	0.78	0.7×10^{-5} ⁽²⁾
U-20wt%Zr	13.4 ⁽³⁾	U 10.72 Zr 2.68	U 0 Zr 0.412	0.588	0.528×10^{-5}
U-40wt%Zr	10.33 ⁽³⁾	U 6.20 Zr 4.13	U 0 Zr 0.636	0.364	0.327×10^{-5}

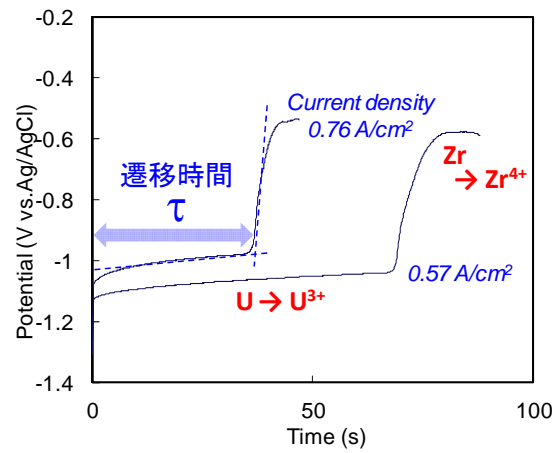


図 3. 2. 3-1 熔融 $LiCl-KCl-UCl_3$ 中でのクロノポテンシオメトリー測定例

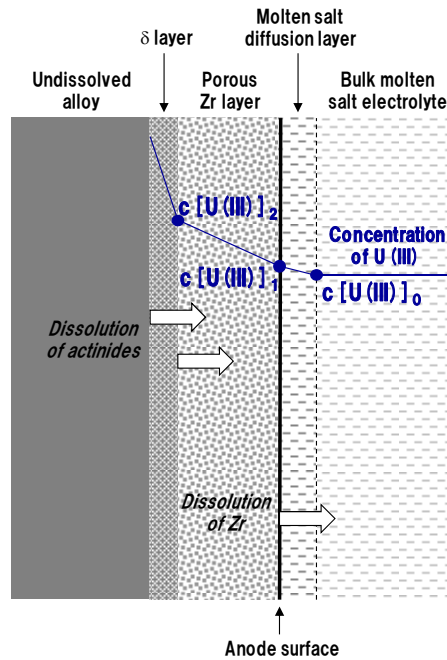


図 3. 2. 3-2 三元金属燃料合金の陽極溶解モデル⁽²⁾

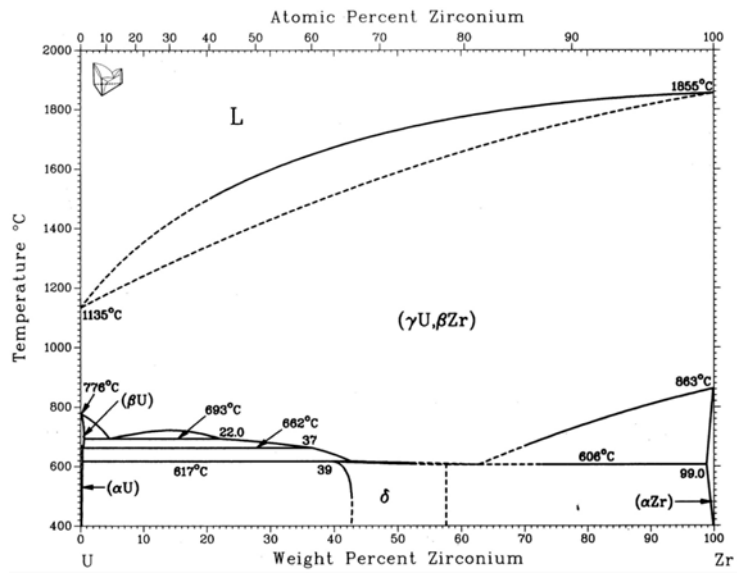


图 3.2.3-3 U-Zr 二元系合金状态图⁽⁴⁾

3.2.4 廃棄物処理技術の開発（再委託先：電力中央研究所）（H26～H29）

(1) 概要

使用済塩処理廃棄物処理技術の開発

これまでに沈殿と塩相の分離方法としては真空高温蒸留による塩相の揮発分離が有望と判断し、 Gd_2O_3 と $LiCl-KCl$ 塩の混合物を真空蒸留する予備試験を行い、 Gd_2O_3 の全量を残しつつ $LiCl-KCl$ を完全に分離した^(1,2)。ただし、試料を装荷したるつぼのへりに残留物が飛散し、これがマスロスの原因となり得ると思われた。そこで平成 29 年度は蒸留に際して残留物のマスロス抑制を目的とした部材を用いた試験を行い、その効果を確認した。更に、実際に $GdCl_3$ を含む $LiCl-KCl$ 塩浴に Li_2O を投入して生じた沈澱を含む塩塊を用いた塩蒸留試験を実施し、蒸留残渣の組成等を調べた。

塩廃棄物固化体の製造に関しては、単軸プレスによりガラス結合ソーダライト固化体を製造できることを確認しているものの⁽³⁾、平成 29 年度には装置及び固化方法を改良により、更に稠密な固化体製造を試みた。また、希土類沈殿の模擬物質としての Gd_2O_3 試薬や、実際に $GdCl_3$ を含む $LiCl-KCl$ 共晶熔融塩への Li_2O 投入により生成した沈澱を含む塩塊を蒸留して得られた残渣を添加・混合してガラス結合ソーダライト固化体を製造し、その性状を調べた。

金属廃棄物処理技術の開発

これまで模擬 FP を含む金属廃棄物（主要成分は SUS430 と Zr）の熔融固化試験を実施し、20wt.%Zr の模擬金属廃棄物は 1600℃で、36wt.%Zr の場合は 1700℃で熔融可能であることを確認した⁽¹⁾。また、これらの模擬金属廃棄物固化体から切り出した試験片を用いて 90℃、のべ 140 日間の純水中での浸出試験を実施し、両固化体とも、含有するいずれの元素についてもガラス固化体中の Si と比べて 1 桁程度以上低い規格化浸出率となった⁽²⁾。また、熔融固化時のるつぼ材に関しては、 Y_2O_3 コーティングした大型グラファイトるつぼを用いることで、20wt.%Zr と 36wt.%Zr のいずれの場合も、るつぼを破損することなく SUS-Zr 固化体試料を取り出すことができ、本るつぼの健全性が確認された⁽²⁾。以上より、熔融に必要な温度や固化体性状の観点から上記 2 種類の組成を比較し、現状では金属廃棄物組成として SUS-20wt.%Zr の方が好ましいと評価した⁽²⁾。

一方、模擬 FP を含まない SUS-30wt.%Zr の熔融固化試験を実施し、20wt.%Zr の場合と同様に、1600℃での熔融により一様かつ機械的強度を持った固化体を得ている⁽¹⁾。30wt.%Zr では貴金属 FP 装荷量を 20wt.%Zr に比べて約 50%増加できるため、本組成にて模擬金属廃棄物固化体を作製し、その浸出特性を把握することは、発生廃棄物体積低減の観点から金属廃棄物処理条件を最適化する上で重要である。そこで平成 29 年度は Zr 含有率が 30wt.%程度となるように調製した模擬貴金属 FP 含有金属廃棄物を Y_2O_3 コーティングしたグラファイトるつぼを用いて熔融固化し、得られた固化体の微細構造を観察すると共に、その浸出特性を把握する試験を行った。

(2) 使用済塩廃棄物処理技術の開発

① 使用済塩浴からの希土類FPの分離・回収

1) 背景

乾式再処理プロセスの使用済塩中に蓄積する FP の処理方法として、使用済塩を A 型ゼオライトと接触させて塩中の FP をゼオライトに吸着させた後に、このゼオライトを新たなゼオライトやガラスと共に加熱してガラス結合ソーダライトに転換する方法の開発が行われている⁽⁵⁾。しかしながら、ガラス結合ソーダライト中の FP 含有率が低いため、塩廃棄物固化体の体積が比較的大きくなる欠点がある。そこで、使用済塩中に沈殿剤 (Li_2O など) を添加して FP の中では比較的酸化物に転換されやすい希土類 FP を塩に不溶な酸化物等に転換することで、ガラス結合ソーダライトとして固化する FP 量を減らし、塩廃棄物固化体量を削減することが検討されている^(1,2)。なお、酸化物等に転換された希土類 FP は、塩相と分離した後にガラス結合ソーダライト原料に混ぜて加熱することで、希土類 FP 酸化物がガラス相に溶解あるいは分散したガラス結合ソーダライト固化体に転換できると期待される。

このため、平成 27 年度は希土類塩化物 (CeCl_3 、 SmCl_3 、 EuCl_3 、 GdCl_3 のいずれか) が溶解した LiCl-KCl 熔融塩中に沈殿剤として Li_2O あるいは Li_2CO_3 を添加して生ずる沈殿の化学形を XRD により調べた⁽¹⁾。一方、 Sm 及び Eu は実際の使用済塩中では 2 価の陽イオンとして存在すると推定されることから、平成 28 年度は SmCl_2 あるいは EuCl_2 が溶解した LiCl-KCl 熔融塩中に Li_2O あるいは Li_2CO_3 を添加して生ずる沈殿の化学形を XRD により調べた⁽²⁾。また、メタノール洗浄による付着塩除去後の沈殿の顕微鏡観察により、沈殿の粒径は小さいものでは数 μm 程度であることが分かり、フィルターのみによる沈殿と塩相の分離は容易でなく、沈殿と塩相の分離方法としては真空高温蒸留による塩相の揮発分離が有望と判断した。そこで、 Gd_2O_3 と LiCl-KCl 塩の混合物を最高 1000°C で真空蒸留する予備試験を行い、 Gd_2O_3 の全量を残しつつ、 LiCl-KCl 塩を完全に分離した⁽²⁾。しかしながら、試料を装荷したるつぼのへり(ふち)に白色の残留物が飛散しており、これがマスロスの原因となり得ると思われた。

そこで平成 29 年度は蒸留に際して残留物のマスロス抑制を目的とした部材(試料るつぼ穴開きフタ)を使用し、その効果を調べた。更に、実際に GdCl_3 を含む LiCl-KCl 塩浴に Li_2O を投入して生じた沈澱を含む塩塊を用いて塩蒸留試験を実施し、蒸留残渣の組成等を調べた。

2) 試料るつぼ穴開きフタによる塩蒸留方法の改良

試験手順

今回使用した試料るつぼ穴開きフタを図 3.2.4-1 に示す。これを図 3.2.4-2 (左) に示す試料るつぼに乗せることで、 LiCl-KCl 塩の揮発に伴う沈殿成分の周囲への飛散抑制を目指すものである。試験方法は平成 28 年度と同様であり、蒸留試験時の温度、内圧等の運転方法は、文献(6)に従い、以下のようにした。

- 1) 試料を装荷し、試料るつぼ穴開きフタに乗せたグラフアイトるつぼを装置内の所定の場所に配置し、各部材を組み上げた後に装置のフタを下ろし、装置内を真空引き

- 2) 装置内圧が 1Pa 以下まで下がったところで真空引きを停止し、閉じ切り
- 3) 1 時間で試料部温度が 600°C に達するように昇温し、そのまま 600°C に 1 時間保持して塩を融解した後に装置内を真空引きし、内圧が 5~10Pa 程度となったところで閉じ切り
- 4) 1 時間で試料部温度が 1000°C に達するように昇温し、そのまま 1000°C に 1 時間保持して塩を揮発
- 5) 装置内に Ar ガスを 50000Pa 程度まで導入し、降温開始

なお、試料として Gd_2O_3 と LiCl-KCl 塩の混合物を用いたが、粉末状の Gd_2O_3 が試験開始時の真空引きに際して飛散することが危惧されたため、1.000g の Gd_2O_3 (和光純薬製、粉末状、>99.9%) と 5.085g の LiCl-KCl 共晶塩 (APL 製、粒状) を試料るつぼに装荷し、Ar 雰囲気グローブボックス内で約 490°C に 1 時間保持した後に冷却したものを使用した。なお、本昇温に伴う試料重量変化は -0.031g であり、塩の揮発等はほぼ無視できる。

上記の真空蒸留操作後、装置内の各部材の試験前後での重量変化を調べると共に、サセプターを除く各部材を 1 規定硝酸で洗浄し、洗浄液中の元素濃度から各部位での残留量あるいは付着量を評価した。なお、洗浄液中の元素濃度分析には対象元素に応じて次の機器を用いた、K : 原子吸光分析 (Thermo Electron 製、S4 AA system)、Li 及び Gd : ICP-AES (Thermo Scientific 製、iCAP 6300 Duo)、Cl : イオンクロマトグラフィー (日本 Dionex 製、ICS-2000)。また、一部の洗浄液にはグラファイト部材に起因すると思われる黒色粉末が見られたので、ミリポア製のろ紙を用いて吸引ろ過後のろ液を分析した。

試験結果

本試験における温度、装置内圧の変化を図 3.2.4-3 に、試験後の試料るつぼ及び各部材の様子を図 3.2.4-4 に示す。なお、昇温に際しては装置試料部の温度校正結果⁽²⁾に基づき制御温度を補正している。また、各部材の試験前後の重量を表 3.2.4-1 に示すが、試料るつぼの重量減少は 5.125g と装荷した LiCl-KCl 塩重量である 5.085g とほぼ一致し、本るつぼ内の残留物重量も 0.960g と装荷した Gd_2O_3 量である 1.000g とほぼ一致した。また、試料るつぼ以外の各部材の重量変化の合計は 4.98g で、装荷した LiCl-KCl 塩量と概ね一致した。次に、試験後の各部材の硝酸洗浄液中に検出された各元素量を表 3.2.4-2 及び図 3.2.4-5 に示す。Gd はほぼ全量が試料るつぼから検出され、94.1%と良好なマスバランスを示した。一方、塩の成分である Li、K、Cl は大部分が穴開き円板及び上部円筒の洗浄液から検出され、装荷量に対するマスバランスは 83~90%となった。

なお、試料るつぼ穴開きフタの効果の検証のため、蒸留後の検出部位を残留物側 (試料るつぼ内残留物の溶解液 + 試料るつぼ洗浄液 + 試料るつぼ穴開きフタ洗浄液) と揮発物側 (アルミナるつぼ洗浄液 + 穴開き円板洗浄液 + 上部円筒洗浄液 + 上部フタ洗浄液) とに分け、各部位での元素検出率 (= 総検出量に対する割合) を、平成 28 年度に試料るつぼ穴開きフタ無しで Gd_2O_3 と LiCl-KCl 塩の混合物を用いて実

施した蒸留試験での結果⁽²⁾と比較した。本結果を表 3.2.4-3 に示す。まず、残留させたい成分である Gd の試料るつぼ穴開きフタ使用時の揮発物側での検出率は 0.050% と、試料るつぼ穴開きフタ無し場合の 1.48%より大幅に低下し、本フタにより試料るつぼ外への飛散が抑制されることを示している。一方、揮発させたい成分である Li、K、Cl について、試料るつぼ穴開きフタの使用により残留物側での検出率が増加する傾向があるものの、その値は 0.1%以下と十分に低い。よって、試料るつぼ穴開きフタを用いて開口部を狭めることは、塩成分の残留量がやや増えるものの、希土類 FP の飛散抑制の上で有効である。

3) Gd 沈殿を含む LiCl-KCl 塩塊の蒸留試験

試験手順

上記で試料るつぼ穴開きフタの効果が確認されたことから、Gd 沈殿を含む LiCl-KCl 塩塊を装荷しての蒸留試験を行った。装荷した試料は GdCl₃ を含む LiCl-KCl 塩浴に Li₂O を投入して Gd の大部分を沈殿化した後に冷却して得られた凝固物を破碎したもの (1.886g、図 3.2.4-6) である。なお、本試料は真空引きによる飛散の恐れは無いと判断し、事前の昇温は行わなかった。その後、上述の「2. 試料るつぼ穴開きフタによる塩蒸留方法の改良」と同様の試験体系、同様の試験手順にて真空蒸留操作を行い、降温後に各部材の重量変化を調べると共に、サセプターを除く各部材を 1 規定硝酸で洗浄し、洗浄液中の元素濃度から各部位での在留量あるいは付着量を評価した。また、残渣の一部を Ar 雰囲気グローブボックス内で乳鉢により粉碎し、XRD により化学組成を調べた (リガク製、RINT 2500V を使用)。なお、この際、試料と空気中の水分との反応を抑制するため、粉碎した試料を押し付けたガラス製試料板をポリエチレン製の袋に入れてシーラーにより溶着し、密封した状態で測定した。

試験結果

本試験後の試料るつぼ内の様子を図 3.2.4-7 に、各部材の試験前後の重量を表 3.2.4-4 に示す。本表に示すように試料るつぼ内の残留物は 0.138g、装置各部に付着した揮発物量 (サセプターの重量減少分は考慮せず) は 1.66g となり、その合計量 (1.80g) は装荷した試料量の 95.5%に相当した。

蒸留残渣粉碎物の XRD パターンを、バックグラウンド (試料無し状態でポリエチレン袋に密封したガラス製試料板を測定した際のピーク) 及び Gd₂O₃ の XRD パターン⁽⁷⁾と共に図 3.2.4-8 に示すが、蒸留残渣の XRD パターンはバックグラウンド及び Gd₂O₃ に対応している。なお、沈殿には沈殿剤として浴塩に過剰に添加した Li₂O が含まれる可能性があったが、Li₂O に対応する XRD ピーク⁽⁸⁾は確認されなかった。

次に、試験後の各硝酸洗浄液中に検出された各元素量 (ただし、蒸留残渣の一部を XRD 分析に供したため、本試料採取分を補正済み) を表 3.2.4-5 に示す。蒸留残渣溶解液からはほぼ Gd のみが検出され、蒸留残渣中の塩成分の元素濃度は Li : 0.021wt.%, K : 0.061wt.%, Cl : 0.127wt.%に相当した。よって、残渣に Li₂O や LiCl-KCl 塩はほとんど残っていない。なお、検出された元素量に Gd₂O₃ に相当する 0 を加

えて算出した系内の元素重量は 1.465g で、装置各部の重量変化から求めた値である 1.803g の 81.3%に留まった。これは、上部円筒への付着物が重量変化からは 1.66g と求められたのに対し、上部円筒洗浄液中からは 1.312g しか検出されなかったためであり、本部材の硝酸洗浄が不十分であったと思われる。

② 使用済塩から分離した希土類FPのガラス結合ソーダライト固化

1) 背景

これまでの塩廃棄物固化試験では固化体原料の上に重石を乗せた状態で加熱する PC 法 (Pressureless Consolidation) でガラス結合ソーダライト固化体を製造してきたが、重石寸法の制約から最大荷重を 200g-重/cm² 程度より増やすことは困難であった⁽⁹⁾。そこで、より大きな荷重下で塩廃棄物固化体を製造するため、固化体原料を上方から押し下げつつ加熱する単軸プレス法の確立が求められていた。そこで平成 26 年度にトルク制御可能なモーターで駆動部を上下させる機構によりプレス荷重を制御可能な廃棄物処理試験装置を設置し、最大荷重 3370g-重/cm² の単軸プレス下で模擬塩廃棄物固化体を製造した⁽³⁾。その結果、側面に幾つかの空隙が見られるものの、見掛け密度が 1.93g/cm³ と従来の重石による荷重下で製造した固化体の見掛け密度の最高値 (荷重 200g-重/cm² にて 1.8g/cm³ 程度⁽⁹⁾) を上回る固化体が得られ、固化体粉碎物の XRD パターンもほぼ完全に合成ソーダライトのパターン⁽¹⁰⁾ と一致したことから、本装置の単軸プレスにより模擬塩廃棄物固化体を製造できることを確認した。

ただし、本装置及び固化方法には改良の余地があると思われたことから、平成 29 年度にこれらを改良し、より稠密な固化体の製造を試みた。更に、塩蒸留により使用済塩から分離した希土類沈殿の模擬物質として Gd₂O₃ を加えた固化体を製造すると共に、実際に GdCl₃ を含む LiCl-KCl 共晶熔融塩に Li₂O を投入して調製した沈澱を含む塩塊を蒸留して得られた残渣を加えてガラス結合ソーダライト固化体を製造し、それらの性状を調べた。

2) 塩廃棄物固化体の製造装置及び固化方法の改良

改良内容

平成 26 年度に実施したガラス結合ソーダライト固化試験により、廃棄物処理試験装置を用いて加圧下で模擬塩廃棄物固化体を製造できることが示されたが、この段階では試料の加圧に次のような方法を採用していた⁽³⁾。

- 固化体原料を装荷したステンレス製容器内で加圧軸を自立した状態で保持し、装置上部の昇降機構により本加圧軸を押し下げる。
- 上記昇降機構の昇降用モーターのトルクを調整することで加圧力を制御する。

このため、加圧により加圧軸が試料容器に対して傾いたために装荷原料上に配置したステンレス製円板と容器の間の隙間が広がり、加熱により流動性を持った内容物が加圧軸により押し出されて試料容器から流出するケースが見られた。本現象の防止のためには加圧軸を常に鉛直に保つ必要があるが、それまでの穴の開いた円板による位

置決めでは容易でなかった。更に、昇降用モーターから昇降機構に駆動力を伝達する間にギアを介在させているため、昇降用モーター自身のトルク制御では実際の加圧力の微細な調整が困難であった。

そこで平成 29 年度には廃棄物処理試験装置に次のような改良を施した。

- 加圧軸を上下動する昇降部に直接取り付け、常に鉛直状態に保つようにした(図 3.2.4-9)。
- 昇降部とこれを駆動するギア部の間にロードセルを取り付け、本ロードセルにかかる圧縮力に基づいて試料部への荷重を求めることとした。この際、昇降により装置の気密性を保つためのベローズの反発力が変動することから、昇降部高さ とベローズ反発力の関係を予め測定しておき、昇降部の高さに応じてロードセルの指示値を補正している。なお、昇降部周囲の様子を図 3.2.4-10 に示す。
- 試験中は Ar ガスをフローさせているが、ガス排気ライン(図 3.2.4-11)に取り付けた目開き 2 μ m の焼結ステンレス製フィルターによる圧損で装置内圧が上昇し、ロードセルでの見掛けの圧縮力が増加することが判明した。これにより試料部での実荷重が減少することから、上記のフィルターを介さないバイパス系統を設け、試験中に内圧が大気圧とほぼ等しい状態(差圧は 200Pa 程度以下)に保てるようにした。
- 一定の荷重をかけ続ける「調節モード」として、荷重の変動範囲を設定し、実際の荷重がこれを上回る場合は昇降部を僅かに上昇させ、逆に荷重が設定範囲を下回る場合は昇降部を僅かに降下させる運転方法をとるようにした。

模擬塩廃棄物固化体の製造による改良効果の確認

上記の改良を施した上で、平成 26 年度と同様に模擬塩廃棄物固化体を製造した。今回の模擬塩廃棄物固化体製造に用いた試料は以下の通りである。

- LiCl-KCl 塩浸漬済みゼオライト(平成 26 年度に作製し、40~250 μ m に分級済み) : 1.885g
- 未処理の UOP 製ゼオライト 4A(乾燥及び破碎後、40~250 μ m に分級済み) : 8.111g
- ホウケイ酸ガラス(75 μ m 以下の粉末、乾燥済み) : 3.297g

これらの物質を 1 つの容器内で加振して混合した後に、内径 26.3~26.4mm、高さ 37mm の薄肉ステンレス製の試料容器(市販のモルトン栓)内に装荷し、その上に直径 26.2mm、厚さ 1.5mm のステンレス製円板を乗せた。なお、試料の混合や装荷の際のロスのため、最終的な試料装荷量は 13.259g であった。ここまでの操作は Ar 雰囲気グローブボックス内で行い、試料の吸湿等を防止した。その後、本試料を装荷した試料容器を廃棄物処理試験装置のサセプター内に設置した。この際、カーボン製加圧軸とステンレスの反応を防ぐため、ステンレス製円板上にアルミナ製の円板を 4 枚乗せた。

その後、25.0 \pm 0.5kgf で試料をプレスした後に装置内を真空引きし、その後 Ar ガスを導入することで酸素や水分の影響を排除した。昇温パターンは文献(9)の

reference 条件である「560℃に5時間保持した後に915℃に5時間保持する」ものとした。なお、昇温に際しては装置試料部の温度校正結果⁽²⁾に基づき制御温度を補正している。本試験での温度及びプレス荷重の変化を図 3.2.4-12 に示す。試験中は毎分2リットルの Ar ガスを流し続けた。本試験での加熱時の最大荷重は $7.0 \pm 0.2 \text{ kgf}$ であり、圧力は 1270 g-重/cm^2 となった。これは文献(9)での最大圧力である 200 g-重/cm^2 の 6.35 倍に相当した。

本試験後の試料容器及びこれを解体して得られた固化体を図 3.2.4-13 に示す。固化体は滑らかな外観をした一見稠密なもので、平成 26 年度の試験⁽³⁾で観察されたような外表面の空隙は見られなかった。本固化体の厚み及び直径を夫々8回測定した平均値は厚み：11.72mm、直径：26.46mm であり、固化体重量が 13.0825g であったことから本固化体の見掛け密度は 2.03 g/cm^3 と算出された。この値は過去の温度や荷重を変えつつ行ったパラメータ試験での最高値 (1.8 g/cm^3 程度)⁽⁹⁾よりも大きく、試料部に高い圧力をかけた効果が表れている。なお、以前の HIP 法による固化体製造試験⁽¹¹⁾で得られた固化体（見掛け密度= 2.35 g/cm^3 ）での空隙率を 0 とすると、今回の固化体の空隙率は 13.7%と算出された。

次に、回収した固化体を切断した際の様子及び断面の光学顕微鏡画像を図 3.2.4-14 に示す。過去のガラス結合ソーダライト固化体断面と同様に断面は白みがかっており、ところどころに空隙のような白色のスポットが見られた。本固化体の一部を破砕、粉体化し、粉末 XRD 測定を行った（リガク製、RINT 2500V を使用）。得られた XRD パターンを合成ソーダライトのデータ⁽¹⁰⁾と共に図 3.2.4-15 に示すが、今回製造した固化体の XRD パターンはほぼ完全に合成ソーダライトのパターンと一致した。

固化体断面を XRF（エスアイアイ・ナノテクノロジー製、SEA6000VX HSFinder を使用）で分析したところ、ソーダライト及びガラスを構成する Al、Si、Cl がほぼ一様に分布していることが示された（図 3.2.4-16）。一方、固化体断面を SEM/EDS（Phenom-World 製、ProX を使用）で観察したところ、空隙部以外では Al、Si、Na、Cl はほぼ一様に分布しているものの、例えば図 3.2.4-17 中の○で示した領域のように、各元素濃度に濃淡がある。Si 濃度が相対的に高い領域では Al、Na、Cl の濃度が相対的に低いことから、Si 濃度が高い領域はガラス相、Al、Na、Cl の濃度が高い領域はソーダライト相であると思われる（図 3.2.4-17）。

以上より、塩廃棄物固化体の製造装置及び固化方法の改良により、従来よりも稠密な模擬塩廃棄物固化体を製造できることが示された。

3) 希土類酸化物を含む模擬塩廃棄物固化体の製造

試験手順

上述のように、Gd 沈殿を含む LiCl-KCl 塩塊の蒸留試験により Gd_2O_3 を LiCl-KCl 塩と分離した状態で回収すると共に、従来よりも稠密な模擬塩廃棄物固化体を製造した。そこで次の段階として、蒸留で分離した Gd_2O_3 を含む塩廃棄物固化体の製造試験を実施した。なお、実際の蒸留残渣は試験に使用できる量が限られることから、まず、市販の Gd_2O_3 試薬をガラス結合ソーダライト製造原料に加えた試験を計 3 回実施し、次

に Gd 沈殿を含む LiCl-KCl 塩塊の蒸留試験で得られた残渣をガラス結合ソーダライト製造原料に加えた試験を 2 回実施した。

今回の模擬塩廃棄物固化体製造に用いた試料は以下の通りである。

- LiCl-KCl 塩浸漬済みゼオライト（平成 26 年度に作製し、40～250 μm に分級済み）
- 未処理の UOP 製ゼオライト 4A（乾燥及び破碎後、40～250 μm に分級済み）
- ホウケイ酸ガラス（75 μm 以下の粉末、乾燥済み）
- Gd₂O₃ 試薬（和光純薬製、粉末状、99.9%）
- Gd 沈殿を含む LiCl-KCl 塩塊の蒸留残渣（固化試験ごとに蒸留試験を実施して調製したもの）

また、各試験で用いた試料量を表 3.2.4-6 に示す。5-Res-2 試験では使用可能な蒸留残渣が少なかったため、それまでの試験に比べて各試料の量を減らした。試験手順は「2）塩廃棄物固化体の製造装置及び固化方法の改良」と同様であるが、試験中は毎分 1 リットルの Ar ガスを流した。これらの試験での加熱中の最大荷重は 7.0 ± 0.2kgf であり、圧力は 1270g-重/cm² となった。

試験結果

各試験後に得られた固化体の外観及び断面の光学顕微鏡画像を図 3.2.4-18 に示す。固化体はいずれも滑らかな外観をした一見稠密なものである。断面はこれまでのガラス結合ソーダライト固化体断面と同様に白みがかっており、ところどころに白色のスポットが見られた。各固化体の寸法（厚み及び直径を各 8 回測定した平均値）、重量、これらより求められた見かけの密度、及び空隙率（HIP 法による固化体製造試験で得られた固化体の空隙率を 0 と仮定したもの）を表 3.2.4-7 に示す。Gd₂O₃ 無添加で製造した固化体の見掛け密度が 2.03g/cm³ とであったことも勘案すると、原料への Gd₂O₃ 添加濃度が 10wt.% を超えると見掛け密度がやや低下している。この原因は現段階では不明だが、Gd₂O₃ 自体の密度は 7.4g/cm³ と大きいことから、Gd₂O₃ が加えられることでガラス相の粘性が増加し、空隙が充填されにくくなることなどが考えられる。

各固化体の一部を破碎、紛体化し、粉末 X 線回折を行った（リガク製、RINT 2500V を使用）。得られた XRD パターンを合成ソーダライトのデータ⁽¹⁰⁾ と共に図 3.2.4-19 に示す。今回の固化体の各ピークは概ね合成ソーダライトと一致した。Gd に関しては、いずれの固化体でも Gd₂O₃ に対応するピークは確認されなかったものの、10-Gd 及び 20-Gd 試験では合成ソーダライト以外の細かなピークが見られ、Gd_{4.67}O₁₃Si₃⁽¹²⁾ が最も妥当と判断された。なお、図 3.2.4-20 にて 20-Gd 試験固化体と Gd_{4.67}O₁₃Si₃ とで XRD パターンを比較する。

固化体断面を XRF（エスアイアイ・ナノテクノロジー製、SEA6000VX HSFinder を使用）で分析した結果を図 3.2.4-21 に示す。Gd₂O₃ 試薬を用いた 3 つの固化体ではいずれも Gd、Al、Si、Cl がほぼ一様に分布していたが、Gd₂O₃ 混入量が最も多い 20-Gd 試験では Gd の分布にやや濃淡が見られた。一方、蒸留残渣を用いた 2 つの固化体のうち、5-Res-1 試験では残渣を乳鉢で粉碎しなかったためか、Gd の濃い領域が所々に存在し、それ以外の場所には Gd はあまり存在しない。これに対し残渣を乳鉢で粉碎し

た 5-Res-2 試験では Gd の分布がかなり一様になっているが、やはり Gd が濃い領域がスポット状に存在している。

固化体断面を SEM/EDS (Phenom-World 製、ProX を使用) で観察した際の SEM 画像、Gd、Si、Al、Na、Cl のマッピング画像、及び各分析点での原子濃度の半定量分析結果を図 3-2. 1-22~3. 2. 4-31 に示す。Gd₂O₃ 試薬を用いた 3 つの固化体では、Gd は 10μm 程度以下の微細な粒子として Si と共存しており、XRD で Gd_{4.67}O₁₃Si₃ の存在が示唆されたことを裏付けている。なお、ガラス相やソーダライト相からは Gd は有意に検出されなかったため、ガラス相に Gd はほとんど溶解していなかったか、あるいは冷却に伴い Gd を含む相が析出したものと思われる。一方で蒸留残渣を用いた 2 つの固化体には、Si を含まず Gd₂O₃ のまま残留していたと思われる数十 μm の相が確認された。これらより Gd₂O₃ とガラス相の反応にはある程度の時間が必要であり、現在の運転方法では 10μm 程度より大きな粒子は Gd₂O₃ の状態で残ることが伺えた。このため、希土類 FP が酸化物のままガラス結合ソーダライト中に分散した場合の性状について更なる評価が必要であるものの、沈殿化により塩相から分離した希土類 FP をガラス結合ソーダライトと共に固化するに際しては、蒸留残渣を相当細かく粉砕する必要があると思われる。なお、使用した Gd₂O₃ 試薬の粒子を上記の SEM で観察したところ、図 3. 2. 4-32 に示すように粒径は 10μm 以下であった。

(3) 金属廃棄物処理技術の開発

① 30wt. %Zr 含有模擬金属廃棄物の溶融固化試験

1) 背景

金属廃棄物中の Zr 含有率

平成 27 年度に模擬 FP (Mo、Ru、Rh、Pd 及び Re (Tc の模擬元素)) を含んだ金属廃棄物 (主要成分は SUS430 と Zr) の溶融固化試験を実施した⁽¹⁾。この際の廃棄物組成は、想定される照射済 TRU 金属燃料の乾式再処理により被覆管、Zr 及び貴金属 FP の全量が陽極残渣として残り、その全てが金属廃棄物として処理されると仮定して算出したものである。ただし、被覆管についてはせん断工程で上部プレナム部と燃料ミート部分とを分別できる可能性があることから、想定し得る金属廃棄物組成範囲内で含有する被覆管成分が最も多くなる場合 (被覆管材料の全てが金属廃棄物になると仮定) として 20wt. %Zr、最も少なくなる場合 (上部プレナム部を除いた燃料ミート部分のみが金属廃棄物になると仮定) として 36wt. %Zr を設定した。

本試験の結果、20wt. %Zr の模擬金属廃棄物は 1600℃で、36wt. %Zr の場合は 1700℃で溶融可能であり、固化体の大部分は稠密で、微細構造も均一な塊となることが分かった。しかし、後者は固化体の大半を占める FeZr 相同土を僅かな量の FeCr 相が繋いでいる状態で、機械的に脆くなる傾向が見られた⁽¹⁾。これらの模擬金属廃棄物固化体から切り出した薄片を用いて 90℃、のべ 140 日間の純水中での浸出試験を実施した結果、いずれの試料、含有するいずれの元素についてもガラス固化体中の Si に比較して 1 桁程度以上低い累積規格化浸出率が得られた⁽²⁾。これ

らの結果から、熔融に必要な温度（＝るつぼ材との反応）や固化体性状（表面の凹凸、内部の亀裂・引け巣、機械的脆さ）の観点から上記 2 種類の組成を比較すると、現状では金属廃棄物組成としては SUS-20wt.%Zr の方が好ましいと評価した⁽²⁾。

一方、模擬 FP を含まない条件にて SUS-30wt.%Zr の熔融固化試験を実施し、20wt.%Zr の場合と同様に 1600℃で一樣かつ機械的強度を持った固化体が得られている⁽¹⁾。よって、貴金属 FP 装荷量を 20wt.%Zr の場合よりも約 50%大きくすることが可能な 30wt.%Zr 程度の模擬金属廃棄物固化体を、るつぼ材との反応を抑制可能な処理温度にて作製し、その微細構造や浸出特性を把握することは、金属廃棄物処理条件を発生廃棄物体積低減の観点から最適化する上で重要である。

るつぼ及びコーティング材料

平成 26 年度は小型の Al₂O₃ るつぼに 30g の SUS-5wt.%Zr を、小型の Y₂O₃ るつぼに 15g の SUS-5wt.%Zr あるいは Zr を含まない SUS430 を装荷し、いずれも 1600℃に昇温して内容物を熔融固化する試験を行った⁽³⁾。その結果、Al₂O₃ るつぼでは明らかな反応層が形成し、インゴットとるつぼ底面とが強く固着した。一方、Y₂O₃ るつぼでは反応層は形成されなかったものの、熱衝撃（温度勾配）に弱く、冷却時に破損した。

引き続き平成 27 年度はこれらの小型セラミックるつぼ中で種々の組成の SUS-Zr（約 25g）を最高 1700℃で熔融固化する試験を実施した⁽¹⁾。その結果、無垢のセラミックるつぼは大きなものを作製することが技術的に困難かつ高コストであり、物理的・熱的衝撃に対する強度が低く、特に冷却過程で割れを起こすケースが多いなど信頼性に劣ることなどから、実用を含めたスケールアップ時には適さないと判断した。そこで、Y₂O₃ でコーティングした大型グラファイトるつぼを使用し、金属量を 250～300g 程度に増やした熔融固化試験を実施したところ、20 wt.%Zr と 36wt.%Zr の双方ともるつぼを破損することなく SUS-Zr 固化体試料を取り出すことができた。

平成 29 年度の実施内容

上記のこれまでの結果を踏まえ、平成 29 年度は Zr 含有率が 30wt.%程度となるように調製した模擬貴金属 FP 含有金属廃棄物を Y₂O₃ コーティングしたグラファイトるつぼを用いて熔融固化し、得られた固化体の微細構造を観察すると共に、浸出特性を把握する試験を実施した。

2) 試験方法

試薬

使用した試薬は全て平成 27 年度に用いたもの⁽¹⁾と同様であり、ステンレスは SUS430（レアメタリック社、5mm×3mm×1mm-t シャーリングカット品）、Zr は 2～3mm に粉碎した Zr スポンジ（レアメタリック社、純度 99.9%）を、いずれも特に前処理せずに使用した。貴金属元素（Mo、Ru、Rh、Pd、Re）は全てレアメタリック社

から購入した粒状のものである。

るつぼ

グラファイトるつぼには IG-11 または IGS-743 製のもの（底部内径 50mm、上部内径 60mm、高さ 70mm、厚さ 5mm）を使用した。コーティング材には過去の金属廃棄物溶融固化試験において溶融 SUS-Zr に対して最も優れた両立性を示した Y_2O_3 （ZYP 社、type Y）を使用し、乾燥器内で 95~105°C に余熱したグラファイトるつぼに Y_2O_3 コーティング材を刷毛で薄く塗布し、その後に乾燥器で再余熱・乾燥させる手順を繰り返した。なお、途中でひびが生じたり、コーティング厚さが不足していると思われる部分には塗布し直した。塗布後のるつぼは 95°C で 12 時間以上乾燥後、空气中 300°C で 2 時間加熱してより確実に乾燥させた。最後に本乾燥後のるつぼを廃棄物処理試験装置内にて真空下で 1000°C に加熱することで、溶融固化試験途中でコーティング層から発生する不純物量をできる限り抑制すると共に、原料金属の装荷時に損傷しない程度にコーティング表面を硬化させた。コーティング材の塗布量は、上記の 1000°C での処理後時点でのるつぼ 1 個あたり 12g 前後であった。

試験方法

模擬金属廃棄物の溶融固化試験には平成 26 年度に設計・製作した廃棄物処理試験装置⁽⁴⁾を使用し、再現性確認のため同じ条件で 2 回行った。上記の金属試料を秤量し、使用するるつぼ内に Zr、SUS430、貴金属元素の順に装荷した。これらを装荷した際のグラファイトるつぼを図 3.2.4-33 に、使用した各金属量を含めた試験条件をまとめて表 3.2.4-8 に示す。

溶融固化試験における装置内温度と圧力変化の一例を図 3.2.4-34 に示す。本図に示す装置内温度は、金属廃棄物を装荷したるつぼを収めたグラファイト製サセプター底に下から当てた B 型熱電対の指示値であり、装置設置後に測定したるつぼ内温度との相関⁽¹⁾から、図中の最高温度（1446°C）が意図したるつぼ内温度（1600°C）に相当する。試験開始から最高温度到達までの 2 時間は、装置内に残留あるいは発生する不純物気体と装荷金属の反応防止のため、真空排気を行いながら加熱した。その後は SUS430 の成分の 1 つである Cr の揮発抑制と装置内の対流による温度の均一化を図るため、装置内に約 0.5 気圧の高純度 Ar を導入して閉じ切った。各試験にて最高温度の 1600°C で 2 時間保持した後に冷却を開始した。この際、装置内 Ar の対流により効率的な冷却を行うため、冷却開始後も装置を閉じ切ったままで Ar 雰囲気を保持した。

溶融試験終了後、るつぼと固化体試料の外観観察と重量測定を行った。SEM/EPMA 分析のため、高速切断機（砥石）を用いて固化体試料を垂直方向に切断し、複数のスライス状金属片を作製した。一部のスライス状金属片は、後述の浸出試験で使用した。切断後の試料表面を粒度 #300、#600、#1000 の耐水研磨紙で研磨した後、SEM/EPMA 分析（JEOL、JXA-8230）に供した。以下、各溶融固化試験で得られた固化体試料について、観察及び分析結果を記載する。

3) 試験結果

NM_Y_1600_30_1 溶融固化試験の結果

試験後、グラファイトるつぼを逆さにするだけで固化体を取り出すことができた。図 3.2.4-35 に取り出した固化体の外観を示す。固化体に付着していた Y_2O_3 コーティング層は簡単に除去可能であり、薄い銅色あるいは銀色の固化体本体の表面の大半を黒灰色の物質が覆っていた。上面には凹凸の大きなやや濃い灰色の部分と、よりなだらかな薄い灰色の部分とがあり、後者は前者の一部を覆っているように見えた。側面は一部が上下 2 層に分かれているように見え、表面の凹凸が著しいのに対し、底面は滑らかであった。以上の側面及び底面の外観は平成 27 年度に作製した SUS-20wt.%Zr 固化体あるいは SUS-20wt.%Zr-模擬 FP 固化体⁽¹⁾とほぼ同様である。図 3.2.4-36 に固化体取り出し後のグラファイトるつぼ内側の様子を示す。コーティング層は熱収縮のためひび割れていたが、グラファイト母材からは容易に剥がれ落ち、グラファイト表面に破損や浸食の形跡は見られなかった。

固化体試料の断面を図 3.2.4-37 に示す。これは垂直方向に切断した試料の側面近くの部分を、SEM 試料台サイズに合わせて更に切断したものである。切断面上端及び側面には外観同様に凹凸が見られるが、試料のほぼ全面で十分に溶融した稠密かつ均質な混合物であり、表面に見られる黒灰色層は極めて薄いことが分かる。試料内の各所に空隙が見られたものの、後述の SEM/EPMA 観察の結果から、これらは異なる相の境界ではなく、冷却時に生じた引け巣と考えられる。

図 3.2.4-28 は固化体試料中央付近での 2 次電子像と反射電子像、表 3.2.4-9 は観察視野に含まれる特徴的な部分の半定量分析結果である。反射電子像の明るい部分は主に Fe と Zr を含む相である。この FeZr 相は固化体の大半を占め、多くは $100\mu\text{m}$ ～数 mm に達する大きな粒を形成しているが、大きな粒と粒との間の隙間には最小で数 μm 程度の小さな粒も見られる。FeZr 相の Fe/Zr 原子数比が 1.86～2.15 であることから、この相は金属間化合物： Fe_2Zr からなると考えられる。一方、Cr/Fe 重量比は 0.15～0.18 であり、原料 SUS430 中の値である 0.196 より若干低下している。反射電子像にて FeZr 相の隙間に存在する暗い部分は、主に Fe と Cr を含む相である。FeCr 相中の Zr 濃度は 0.5wt.%程度以下と非常に低く、固化体中 Zr はほぼ全量が FeZr 相中に含まれていることを表している。一方、Fe の相当部分が FeZr 相に取り込まれるため、FeCr 相中の Cr/Fe 重量比は 0.35～0.38 と、原料 SUS430 中の値である 0.196 より大幅に増大している。図 3.2.4-39 は図 3.2.4-38($\times 500$)の位置で EPMA により観察した固化体構成各元素の分布である。本図より Mo は FeZr 相と FeCr 相の双方に存在するが FeZr 相中の濃度がやや低いこと、Re も両方の相に存在するものの FeZr 相中の濃度が逆にやや高いことが分かる。その他の貴金属元素 (Ru, Rh, Pd) はいずれも FeZr 相に集中して分布し、その傾向は $Pd > Ru > Rh$ の順に強いことが伺われる。Pd の分布は更に特徴的で、粒の小さい FeZr 相及び粒の大きな FeZr 相の周辺部に高い濃度で分布する傾向が見られる。一方、Ru は逆に粒の大きな FeZr 相に厚く分布している様子が見られる。なお、これらは模擬貴金属 FP を含む SUS-20wt.%Zr

あるいは SUS-36wt. %Zr 固化体試料で観察された挙動⁽²⁾と同じである。

図 3.2.4-40 は固化体試料の引け巣付近での 2 次電子像と反射電子像、表 3.2.4-10 は観察視野に含まれる特徴的な部分の半定量分析結果である。空孔部以外の相構成や各相の元素組成は試料中心の稠密部分（図 3.2.4-38、表 3.2.4-9）と差異が無く、この空孔は異なる相の境界ではなく、冷却時に生じた引け巣であるという考察が裏付けられる。図 3.2.4-41 は図 3.2.4-40(×500)の位置で EPMA により観察した固化体構成各元素の分布である。固化体試料中心部で観察された貴金属元素の分配挙動、即ち、

- Mo は FeZr、FeCr の両相に存在するが、FeZr 相中濃度がやや低い。
- Re も両相に存在するが、FeZr 相中濃度がやや高い。
- その他の貴金属元素はいずれも FeZr 相に厚く分布し、その傾向は Pd>Ru>Rh の順。
- Pd は粒の小さい FeZr 相により高い濃度で分布する傾向があり、大きな粒では周辺部に偏る。
- Ru は逆に粒の大きい FeZr 相に厚く分布する。

は、引け巣付近においても同様であった。

図 3.2.4-42 は固化体試料のるつぼとの界面付近での 2 次電子像と反射電子像、表 3.2.4-11 は観察視野に含まれる特徴的な部分の半定量分析結果である。るつぼと接する界面まで試料中心部と同様の微視構造が続いており、コーティング材 (Y_2O_3) と反応していないことを示している。図 3.2.4-43 に示す固化体構成各元素の分布は大部分において試料中心部と同様であるが、るつぼとの界面近くには Zr 濃度が極端に高い数 μm 径のスポットがいくつか見られる。本スポットには他の固化体構成元素がほとんど共存していないことから、これらは原料 Zr 中に微量に含まれていた ZrO_2 あるいは Zr がコーティング材と反応して生じた ZrO_2 と考えられるが、現状ではどちらが起源かは不明である。

図 3.2.4-44 は固化体試料の上表面付近での 2 次電子像と反射電子像、表 3.2.4-12 は観察視野に含まれる特徴的な部分の半定量分析結果である。表面の凹凸が著しいが、内側の相構成や各相の元素組成には全く影響がないことがわかる。表面からやや内側の黒い染みのように見える部分は何らかの影響で画像が乱れたものであり、図 3.2.4-45 の元素分布測定結果には全く影響がないことから、試料の均一性に起因するものではない。図 3.2.4-45 に見られるように、試料の上表面近くには、るつぼとの界面近くで観察されたものと類似した Zr 濃度が極端に高い数 μm 径のスポットが大量に存在している。

NM_Y_1600_30_2 熔融固化試験の結果

NM_Y_1600_30_1 熔融固化試験の再現性確認のため、全く同じ条件で再度熔融固化試験を行った。試験後、グラファイトるつぼを逆さにするだけで固化体試料を取り出すことができた。図 3.2.4-46 はるつぼから取り出した固化体の外観であり、NM_Y_1600_30_1 と同様に薄い銅色あるいは銀色の固化体本体の表面の大半を黒灰色の物質が覆っていた。上表面、側面、底面の様子や固化体取り出し後のグラファイトる

つぼ内側の様子（図 3.2.4-47）も NM_Y_1600_30_1 と同様であり、グラファイト表面に破損や浸食の形跡は見られなかった。

固化体断面を図 3.2.4-48 に示す。これは垂直方向に切断した試料の側面近くの部分を、SEM 試料台サイズに合わせて更に切断したものである。NM_Y_1600_30_1 と同様に切断面上端及び側面には外観同様に凹凸が見られるが、試料のほぼ全てにわたり十分に熔融した稠密かつ均質な混合物であり、表面に見られる黒灰色の層は極めて薄い。試料内の各所に空隙が見られることも同様である。

図 3.2.4-49 は固化体試料の中央付近での 2 次電子像と反射電子像、図 3.2.4-50 は図 3.2.4-49(×500)の位置で EPMA により観察した固化体構成各元素の分布である。FeZr 相と FeCr 相からなる構成、FeZr 相の粒サイズ、貴金属元素の両相への分布挙動など、NM_Y_1600_30_1 試料の観察結果との差異は見られない。

図 3.2.4-51 は固化体試料の引け巣付近での 2 次電子像と反射電子像、図 3.2.4-52 は図 3.2.4-51(×500)の位置で EPMA により観察した固化体構成各元素の分布である。この部分についても NM_Y_1600_30_1 試料の観察結果（図 3.2.4-40、3.2.4-41）との違いはなかった。

図 3.2.4-53 は固化体試料のるつぼとの界面付近での 2 次電子像と反射電子像、図 3.2.4-54 は図 3.2.4-53(×200)の位置で EPMA により観察した固化体構成各元素の分布である。固化体側面のるつぼと接していた部分に Zr 濃度の高い層が見られ、その少し内側にも Zr 濃度の高いスポットが点在している。これらがるつぼとの界面に沿って存在し、同じ部分に明らかに Y が共存していることから、これらの高 Zr 濃度部は熔融金属中の Zr とるつぼコーティング材である Y_2O_3 との反応により形成したと考えられる。このような高 Zr 濃度層の発生部位は少ないものの、熔融温度を 1600℃に抑えても僅かではあるが熔融金属廃棄物と Y_2O_3 コーティング材との反応が起こることに留意する必要がある。

図 3.2.4-55 は固化体試料の上表面付近での 2 次電子像と反射電子像、図 3.2.4-56 は図 3.2.4-55(×500)の位置で EPMA により観察した固化体構成各元素の分布である。表面の凹凸、内側の相構成や各相の元素組成、 ZrO_2 とと思われる高 Zr 濃度スポットの存在などの観察結果は NM_Y_1600_30_1 の場合（図 3.2.4-44、3.2.4-45）と共通している。

② 模擬金属廃棄物の浸出試験

1) 背景

平成 27～28 年度にかけて、2 回の熔融固化試験（NM_Y_1600_20、NM_Y_1700_40）で作製した模擬金属廃棄物を用いて、90℃の純水中で累積浸出期間が 140 日までの浸出試験を実施した^(1,2)。「① 30wt.%Zr 含有模擬金属廃棄物の熔融固化試験」で述べたように、平成 29 年度はこれらの中間に当たる Zr 含有率の模擬金属廃棄物を作製したことから、本試料を用いて同様の浸出試験を行い、固化体組成の違いによる影響を評価した。以下、その詳細を述べる。

2) 試験片

平成 29 年度に実施した 2 回の溶融固化試験 (NM_Y_1600_30_1、NM_Y_1600_30_2) で作製した模擬金属廃棄物を約 9~10mm 角、厚さ 1.3mm の平板状に切断後、320 番、600 番、1000 番、1500 番のエメリー紙で研磨したものを各 1 個を浸出試験に用いた。各試験片はノギスで寸法を測定した後に、アセトン、高純度水、及びエタノール中での超音波洗浄後に乾燥させたものを用いた。使用した試験片の重量 (超音波洗浄・乾燥後の値)、寸法、及びこれらに基づいて算出した表面積を表 3.2.4-13 に示す。また、これらの試験片の浸出試験前の外観を、浸出試験後のものと合わせて図 3.2.4-57 に示す。

3) 試験手順^(1,2)

平成 27~28 年度に実施した浸出試験と同様であり、基本的に過去に実施された同様の浸出試験^(4,13)の手順を踏襲したものの、試験片の表面積が 2.5cm²程度と過去の試験での表面積 (5.7cm²) の半分程度であることなどを踏まえ、以下の条件で実施した。

- ・試験片が十分に浸るように浸出液体積は 2.9ml とする。ただし、S/V 比 (= 試験片表面積/浸出液体積比) は 100m⁻¹ と上記浸出試験^(4,13)での値 (200m⁻¹) の半分程度となることから、「S/V 比×浸出時間」を揃えるため、最長浸出期間を過去の試験^(4,13)の 2 倍の 140 日とする。
- ・温度は 90°C、浸出液は高純度水のみとし、pH 制御や Cl⁻添加等の操作は行わない。
- ・浸出容器内は空気で満たされた酸化性雰囲気とし、雰囲気制御は行わない。
- ・浸出試験開始後 14 日後、28 日後、70 日後に浸出液を交換することで、固化体表面での形成が予想される酸化保護層の影響を調べる。この際、交換直後の古い浸出液の pH を測定する。
- ・各浸出液中に溶出した元素量及び容器内部の洗浄により溶出した元素量を分析し、これらの合算値に基づき各元素の規格化浸出率を求める。

今回の浸出試験も内径 25mm のフッ素樹脂製容器 (以下、小型容器と称する) 中で浸出を行い、試験片底面からの浸出を阻害しないように各小型容器内にフッ素樹脂製の網を置き、その上に試験片を乗せた状態で浸出液である高純度水 (メルクミリポア製の純水製造装置 : Direct-Q UV3 により製造) を加えて密封した。なお、本容器からの水分蒸発抑制のため、小型容器を更に大型のフッ素樹脂容器 (内径 44mm) に入れ、約 12ml の純水を加えた後に密封した。このような 2 重のフッ素樹脂容器を両試験片について用意し、90°C に保持した乾燥機中に所定期間保持した。

累積浸出期間は 14 日間 (336 時間)、28 日間 (372 時間)、70 日間 (1680 時間)、140 日間 (3360 時間) とし、これに相当する浸出時間が経過したところで上記の 2 重のフッ素樹脂容器を恒温槽より取り出し、内側の小型容器全体の重量を測定することで浸出液量の増減を評価した。その後、浸出液のうちの約 0.4ml を採取し、三商製パーソナル pH メーター : SPH-71 により pH を測定した。残りの浸出液は小型容器内部や試験片をゆすいだ洗浄用の純水と共に回収し、約 0.12ml の濃硝酸を加えて溶質成分の沈殿化を防止した上で、各溶液中の Re、Zr を除く各元素濃度をファーネス法原子吸光

(Thermo Scientific 製、iCE 3500) で、Re と Zr の元素濃度を ICP-AES (Thermo Scientific 製、iCAP 6300 Duo) により分析した。

また、純水でゆすいだ後の小型容器は、用いたフッ素樹脂製網と共にと約 12ml の 2wt.%硝酸を入れて密封し、90°Cの恒温槽に 24 時間保持することで小型容器内部や網を洗浄し、洗浄液を回収した。更に、本容器に濃塩酸を入れ、24 時間以上室温に保持することによる洗浄も行った。なお、これらの洗浄液も浸出液同様にファーネス法原子吸光あるいは ICP-AES により元素分析を行い、洗浄液中の元素量を求めた。

これらの結果を基に、以下の式 (3.2.4-1) で定義される規格化浸出率を各元素について算出した。

$$\begin{aligned} \text{元素 : A の規格化浸出率 (g/m}^2\text{)} = & \\ & \text{浸出した元素 : A の重量 (g) / (試験片中の元素 : A の重量分率} \times \\ & \text{試験片表面積 (m}^2\text{))} \end{aligned} \quad (3.2.4-1)$$

ここで、「浸出した元素 : A の重量」には浸出液中で検出された量と、希硝酸及び濃塩酸による洗浄液中で検出された量の合計値を用いた。また、試験片中の元素重量分率は、製造時の原料組成 (表 3.2.4-8) 及び SUS430 の組成⁽¹⁾に基づき算出した。なお、浸出液の一部を pH 測定用に採取したことから、本採取量に応じて本来の浸出液中に存在していた元素量を補正している。

4) 試験結果

各期間の浸出後の試験片外観を図 3.2.4-57 に、14 日間、28 日間の浸出後の小型容器内部及びフッ素樹脂製網の様子を図 3.2.4-58 に示す。浸出試験を継続するに従い各試験片は茶色っぽく着色し、表面に酸化膜が生じたことが伺われた。また、14 日間の浸出後には両試験片ともフッ素樹脂製の網がやや赤茶色に着色したのに対し、28 日間及びそれ以降の浸出後ではそのような着色は確認されなかった。

各浸出試験前後の小型容器内の浸出液の重量変化、pH 測定のために採取した浸出液量、及び浸出量測定のための分析溶液量を表 3.2.4-14 に示す。小型容器の重量は概ね浸出前と同じで、浸出液の顕著な漏出は無かった。また、pH 測定結果を表 3.2.4-15 に示すが、pH 測定に用いた浸出液量が約 0.4ml と少なかったためか、測定中に CO₂ 吸収によるものと思われる pH 値の低下が見られた。このため、10 分程度後の再測定では pH 値がやや低下しているものが多い。更に、浸出試験後の小型容器内部の洗浄液重量を表 3.2.4-16 に示す。

次に、各試験片の浸出液 (+純水洗浄液+硝酸)、及び希硝酸及び濃塩酸による洗浄回収液中の各元素濃度を表 3.2.4-17 に示す。また、各浸出試験での浸出量を元に規格化浸出率を算出し、これを経時的に足し合わせた値である累積規格化浸出量の累積浸出期間に対する変化を、平成 27~28 年度に行った浸出試験での結果^(1,2)も含めて表 3.2.4-18 に示すと共に、28wt.%Zr 含有模擬金属廃棄物からの浸出試験についてはそのグラフを図 3.2.4-59 に示す。更に、累積規格化浸出量変化を元素ごとまとめたものを

図 3.2.4-60 に示す。

これらから明らかなように、多くの元素で浸出の継続に伴い累積規格化浸出量が一定になり、溶出が進行しなくなるが、これは試験片表面の酸化によるものと思われる。元素ごとの違いでは Re の累積規格化浸出量は他の元素に比べて有意に大きいですが、これは Re の試験片中濃度が低いこともあり、浸出液中で飽和しないためと思われる。ただし、Zr 含有率の大きい 36wt.%Zr 試験片からの累積規格化浸出率は 20wt.%Zr や 28wt.%Zr 組成の試験片からの累積規格化浸出率の 25%~50%程度であり、Zr の共存により Re の溶出が抑制されている模様である。Re 以外では Fe、Mo、Pd の累積規格化浸出率が比較的大きいが、その値は概ね $0.4\text{g}/\text{m}^2$ 以下である。これらの元素の累積規格化浸出率も基本的には Zr 含有率が高いほど小さくなる傾向が見られるが、Mo に関しては 28wt.%Zr 組成の 2 つの試験片からの浸出量が大きいなどのバラつきも見られる。なお、これらの浸出試験と同様の 90°C での MCC-1 法での模擬ガラス固化体からの浸出性に関しては、ガラス固化体の母材である Si の 14 日後の規格化浸出率は $5\sim 10\text{g}/\text{m}^2$ 程度と報告されている⁽¹⁴⁾。よって、模擬金属廃棄物固化体から浸出試験での元素の規格化浸出率はこの値よりも概ね 1 桁以上小さく、これらの模擬金属廃棄物固化体は純水中で十分な安定性を有していると言える。

(4) 今後の開発課題

① 塩蒸留による使用済塩浴からの希土類 FP 分離・回収に関する課題

今回の蒸留試験に使用した装置はそもそも塩廃棄物固化体や金属廃棄物固化体の製造のために製作したものであり、蒸留試験時に揮発した塩が上部円筒内部に析出するなど、必ずしも塩蒸留試験に適してはいない。このため、蒸留に関する挙動を更に調べるためには、物質を効率的に回収するための工夫等を施した装置が必要である。

② 希土類 FP を含む塩廃棄物固化体製造に関する課題

今回の試験よりもプレス荷重を増やすことでより高密度な固化体を製造可能と思われるが、過大な荷重は保持容器からの内容物漏出を招く恐れがある。今回は内容物のシールに用いたステンレス製円板として直径を 0.1mm ずつ変えて何種類か作製した中から最適なものを選んだが、実機でクリアランスをどこまで制御できるかは不明である。このため、実際は固化体の密度と耐浸出性を含む固化体の安定性の関係から合理的な荷重を選択することになると思われる。なお、仮に現行の最大荷重率 ($1.27\text{kgf}/\text{cm}^2$) をガラス固化体と同等の $\phi 40\text{cm}$ に適用した場合、必要な荷重は 1600kgf となる。また、以前の研究では少量とは言え固化体製造に伴い揮発物が確認されており⁽⁹⁾、揮発物補集のための工夫も必要である。

製造した固化体の取り出しに関しては、現在は薄肉ステンレス容器をペンチ類で剥いているが、実用的ではない。実機では固化体を取り出さずに保持容器ごと処分することもあり得るが、固化に伴い見かけの体積が半分程度に収縮するため、容器の上半分が余剰になる。INL では固化体表面付近で容器を切断し、残った上部には底及び円筒部を取り付けて新たな保持容器としての再利用することを提案している⁽¹⁵⁾が、容器の健全性

などを評価する必要がある。一方で保持容器を最終的な固化体容器として使用しない場合には、廃棄物量の観点からの検討も必要であろう。

③ 金属廃棄物処理技術の開発に関する課題

金属廃棄物処理技術の開発に関しては、以下の項目が課題として挙げられる。

- るつぼの大型化
- るつぼ並びにコーティング材の耐久性（再利用性）の把握及び向上
- 熔融固化時の揮発物への対処法の確立
- 本研究では Re で代替している Tc の挙動の把握
- 熔融固化で得られた固化物を最終処分につなげる方策の検討

(5) 3.2.4 のまとめ

使用済塩廃棄物処理技術の開発に関しては、まず、希土類塩化物を含む LiCl-KCl 熔融塩に沈殿剤として Li_2O あるいは Li_2CO_3 を添加した際の沈殿の性状を調べると共に、塩相との分離に関する試験を行い、以下の結果を得た。

- ・ 沈殿の化学形は、 Li_2O 添加時はセスキ酸化物、 Li_2CO_3 添加時はオキシ塩化物あるいはオキシ炭酸塩が主体である。なお、 Li_2CO_3 添加に伴い発泡すると共に、2 価の希土類塩化物の場合には炭素と思われる黒色粉末が生成する。
- ・ 沈殿生成による見かけの除染係数は、Eu 以外は概ね 10 以上で除去が見込めるものの、沈殿の粒径は小さいものは数 μm 程度しかなく、フィルターのみによる沈殿除去は有効でない。
- ・ 以上より、希土類 FP の除去方法としては、
 Li_2O 添加 \Rightarrow 上澄み塩を回収 \Rightarrow 残留成分の蒸留により塩相と沈殿相を分離の手順が有望と判断された。

- ・ そこで、沈殿と塩相の蒸留による分離挙動を調べ、実沈殿を用いた蒸留試験でも沈殿相成分から塩相成分を完全に除去できることを確認した。

次に、分離した沈殿のガラス結合ソーダライト固化に関連して、固化装置及び固化方法の改良により、単軸プレスでより稠密な固化体を製造可能にした。更に沈殿の蒸留残渣模擬物質である Gd_2O_3 、あるいは実際の Gd 沈殿含有塩を蒸留して得られた残渣を含む固化体を製造し、稠密な固化体が製造できることを確認すると共に、固化体中での Gd の挙動を明らかにした。

以上より、使用済塩中の希土類 FP を選択的に分離し、ガラス結合ソーダライト固化体に混合した状態で固化できる見通しを得た。

金属廃棄物処理技術の開発に関しては、Zr 含有率を 20wt. %、28wt. %、36wt. %と変化させて模擬金属廃棄物固化体を作製し、いずれの中の組成においても熔融固化物が得られるものの、熔融温度の観点から Zr 含有率を 20wt. %あるいは 28wt. %にするのが望ましいことが明らかになった。なお、貴金属 FP 含有率の観点からは Zr 含有率は高い方が望ましい。

また、これらの組成に対しては Y_2O_3 コーティングを施したグラファイトのつぼが使用可能である。

次に、模擬金属廃棄物固化体片を用いた 90°C の純水中での浸出試験により、固化体中の Zr 含有率が大きくなるほど元素の規格化浸出率が小さくなる傾向があるものの、いずれの組成でも模擬金属廃棄物固化体からの各元素の規格化浸出率はガラス固化体からの Si の規格化浸出率と比べて 1 桁程度以上小さく、十分な安定性を有していることが示された。

以上より金属廃棄物の組成としては、Zr 含有率を 28wt.% 程度に設定するのが望ましいと判断された。

参考文献

- (1) 原子力システム研究開発事業、「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」平成 27 年度成果報告書、(2016)
- (2) 原子力システム研究開発事業、「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」平成 28 年度成果報告書、(2017)
- (3) 原子力システム研究開発事業、「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」平成 26 年度成果報告書 (2015)
- (4) 電力中央研究所、原子力システム研究開発事業、「金属燃料の熔融塩電解精製における陰極／陽極の処理に関する研究開発」平成 21 年度成果報告書 (2010)
- (5) K. Uozumi, *et al.*, *Nucl. Technol.*, **188**, 83 (2014)
- (6) M. Iizuka, *et al.*, *J. Nucl. Mater.*, **448**, 259 (2014)
- (7) ICDD(International Centre for Diffraction Data) 粉末 X 線回折データベース, PDF 番号 01-073-6442.
- (8) ICDD(International Centre for Diffraction Data) 粉末 X 線回折データベース, PDF 番号 00-012-0254.
- (9) K. Fujihata, *et al.*, “Parameter survey on heating conditions for glass-bonded sodalite fabrication from type-A zeolite containing simulating FPs”, *Proc. Int. Conf. GLOBAL 2013*, Salt Lake City, Utah, U.S.A., 2013-09/10.
- (10) ICDD(International Centre for Diffraction Data) 粉末 X 線回折データベース, PDF 番号 01-079-0091.
- (11) 千代 亮、他、日本原子力学会 2003 年秋の大会、I26、静岡、2003 年 9 月.
- (12) ICDD(International Centre for Diffraction Data) 粉末 X 線回折データベース, PDF 番号:01-072-2070.
- (13) 電力中央研究所、原子力システム研究開発事業、「金属燃料の熔融塩電解精製における陰極／陽極の処理に関する研究開発」平成 20 年度成果報告書 (2009)
- (14) 稲垣 八穂広、他、原子力バックエンド研究 (日本原子力学会 バックエンド部会 部会誌)、**10**、69 (2004)
- (15) K. Bateman, *et al.*, “Scale up of ceramic waste forms for the EBR-II spent fuel treatment process”, *2014 Int. Pyroprocessing Res. Conf. (IPRC 2014)*, Idaho Falls, Idaho, U.S.A., 2014-10.

表 3.2.4-1 試料るつぼ穴開きフタを用いた Gd₂O₃+LiCl-KCl 塩蒸留試験での各部材の重量

部材名	部材の重量 (g)		蒸留前後の重量 変化 (g)	残留物重量 (g)
	使用前	蒸留試験後		
試料るつぼ	54.589	49.464	-5.125	0.960
試料るつぼ穴開きフタ	11.646	11.647	0.001	—
アルミナるつぼ	353.951	353.958	0.007	—
穴開き円板	107.649	107.744	0.095	—
上部円筒	1185.05	1189.85	4.80	—
上部フタ	275.311	275.366	0.055	—
サセプター	598.66	598.68	0.02	—

表 3.2.4-2 試料るつぼ穴開きフタを用いた Gd₂O₃+LiCl-KCl 塩蒸留試験での元素分布 (g)

洗浄液	Gd	Li	K	Cl
試料るつぼ内残留物溶解液 (ろ過済み*)	0.783	0.000	0.000	0.002
試料るつぼ洗浄液	0.031	0.000	0.000	0.000
試料るつぼ穴開きフタ洗浄液	0.002	0.000	0.000	0.000
アルミナるつぼ洗浄液 (ろ過済み*)	0.000	0.000	0.000	0.000
穴開き円板洗浄液	0.000	0.004	0.026	0.039
上部円筒洗浄液 (ろ過済み*)	0.000	0.315	1.279	2.628
上部フタ洗浄液	0.000	0.004	0.013	0.029
総検出量	0.816	0.323	1.318	2.699
マスバランス (=総検出量/装荷量)	94.1%	86.1%	89.9%	83.2%

*: 洗浄液中の黒色粉末を除去するための操作

表 3.2.4-3 試料るつぼ穴開きフタの有無による各元素分布率の比較

(当該部位での検出量/総検出量)

検出場所	試料るつぼ穴開きフタの有無***	Gd	Li	K	Cl
残留物側*	無し	98.52%	0.010%	0.015%	0.000%
	有り	99.95%	0.008%	0.028%	0.081%
揮発物側**	無し	1.48%	99.99%	99.99%	100.00%
	有り	0.050%	99.99%	99.97%	99.92%

*: 試料るつぼ内残留物溶解液+試料るつぼ洗浄液+試料るつぼ穴開きフタ洗浄液 での検出量の合計

** : アルミナるつぼ洗浄液+穴開き円板洗浄液+上部円筒洗浄液+上部フタ洗浄液 での検出量の合計

*** : フタ無しは平成 28 年度に実施した試験 (Gd₂O₃ : 0.498g、LiCl-KCl : 3.049g)、フタ有りは平成 29 年度に実施した試験 (Gd₂O₃ : 1.000g、LiCl-KCl : 5.085g) の結果

表 3.2.4-4 Gd 沈殿を含む LiCl-KCl 塩塊蒸留試験での各部材の重量

部材名	部材の重量 (g)		蒸留前後の重量 変化 (g)	残留物重量 (g)
	使用前	蒸留試験後		
試料るつぼ	50.378	48.630	-1.748	0.138
試料るつぼ穴開きフタ	11.642	11.642	0.000	—
アルミなるつぼ	353.952	353.957	0.005	—
穴開き円板	107.619	107.619	0.000	—
上部円筒	1184.20	1185.86	1.66	—
上部フタ	275.277	275.276	-0.001	—
サセプター	598.15	598.12	-0.03	—

表 3.2.4-5 Gd 沈殿を含む LiCl-KCl 塩塊の蒸留試験での各元素の分布 (g)

洗浄液	Gd	Li	K	Cl
試料るつぼ内残留物溶解液 (XRD 試料採取分を補正済み)	0.120	0.000	0.000	0.000
試料るつぼ洗浄液	0.003	0.000	0.000	0.000
試料るつぼ穴開きフタ洗浄液	0.000	0.000	0.000	0.000
アルミなるつぼ洗浄液 (ろ過済み*)	0.000	0.000	0.000	0.000
穴開き円板洗浄液	0.000	0.000	0.000	0.000
上部円筒洗浄液 (ろ過済み*)	0.000	0.101	0.374	0.837
上部フタ洗浄液	0.000	0.001	0.003	0.007
総検出量	0.124	0.102	0.377	0.844

*: 洗浄液中の黒色粉末を除去するための操作

表 3.2.4-6 希土類酸化物を含む模擬塩廃棄物固化体の製造時に用いた試料量

試験番号	試料量 (g)					Gd ₂ O ₃ あるいは蒸留残渣のガラスに対する重量比
	塩浸漬ゼオライト	未処理ゼオライト	ホウケイ酸ガラス	Gd ₂ O ₃ 試薬	Gd 沈殿蒸留残渣	
5-Gd	1.888	8.115	3.301	0.170	—	5.1wt. %
10-Gd	1.889	8.114	3.301	0.331	—	10.0wt. %
20-Gd	1.888	8.116	3.302	0.663	—	20.1wt. %
5-Res-1	1.889	8.114	3.304	—	0.168	5.1wt. %
5-Res-2	1.325	5.682	2.316	—	0.116*	5.0wt. %

*: 混合前に残渣を乳鉢で粉砕

表 3.2.4-7 希土類酸化物を含む模擬塩廃棄物固化試験後の固化体の寸法、重量、見掛け密度

試験番号	平均寸法 (mm)		重量 (g)	見掛け密度 (g/cm ³)	推定される 空隙率*
	直径	高さ			
5-Gd	26.50	11.91	13.2912	2.02	13.9%
10-Gd	26.41	12.94	13.4050	1.89	19.6%
20-Gd	26.56	12.58	13.7015	1.97	16.3%
5-Res-1	26.53	11.70	13.2585	2.05	12.8%
5-Res-2	26.47	8.19	9.2679	2.06	12.4%

* : HIP 法で製造試験した固化体 (見掛け密度 = 2.35g/cm³) の空隙率を 0 と仮定して算出

表 3.2.4-8 28wt.%Zr 模擬金属廃棄物の溶融固化試験の条件一覧

試験番号	装荷量(g)							Zr 含有率 (wt.%)	最高溶融 温度(°C)
	SUS430	Zr	Mo	Ru	Rh	Pd	Re		
NM_Y_1600_30_1	167.33	70.26	3.39	3.30	1.05	2.96	1.67	28.1	1600
NM_Y_1600_30_2	167.36	70.21	3.40	3.26	1.04	2.98	1.66	28.1	1600

表 3. 2. 4-9 固化体試料の中央付近での半定量分析結果 (NM_Y_1600_30_1)

試料中心部 FeCr相 (1)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	0.915	4.0893	Cr/Fe = 0.378 (重量比)
O	0.895	3.0032	
Cr	25.145	25.9506	
Fe	66.41	63.8113	
Y	0.522	0.3152	
Zr	0.373	0.2193	
Mo	1.893	1.059	
Ru	0.619	0.329	
Rh	0.639	0.3335	
Pd	0.664	0.3353	
Re	1.923	0.5542	

試料中心部 FeCr相 (2)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	0.574	2.6005	Cr/Fe = 0.351 (重量比)
O	1.165	3.9611	
Cr	23.479	24.5574	
Fe	66.801	65.0513	
Y	0.551	0.3368	
Zr	0.537	0.3201	
Mo	2.285	1.2952	
Ru	1.153	0.6208	
Rh	0.562	0.297	
Pd	0.524	0.2678	
Re	2.37	0.6921	

試料中心部 FeZr相 (大きな粒 1)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	1.626	8.4126	Cr/Fe = 0.184 (重量比) Zr/Fe = 0.538 (原子数比)
O	1.284	4.9865	
Cr	7.701	9.1994	
Fe	41.871	46.574	
Y	0.4	0.2794	
Zr	36.771	25.0417	
Mo	1.349	0.874	
Ru	2.702	1.6609	
Rh	1.095	0.661	
Pd	2.298	1.3419	
Re	2.903	0.9687	

試料中心部 FeZr相 (大きな粒 2)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	1.429	7.2759	Cr/Fe = 0.180 (重量比) Zr/Fe = 0.466 (原子数比)
O	1.6	6.1141	
Cr	8.057	9.4734	
Fe	44.721	48.954	
Y	0.519	0.3571	
Zr	34.029	22.8059	
Mo	1.369	0.8723	
Ru	2.131	1.2891	
Rh	1.094	0.6501	
Pd	2.234	1.2837	
Re	2.816	0.9245	

試料中心部 FeZr相 (小さな粒 1)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	4.686	21.2081	Cr/Fe = 0.170 (重量比) Zr/Fe = 0.494 (原子数比)
O	1.627	5.5263	
Cr	6.981	7.2964	
Fe	41.156	40.0515	
Y	0.538	0.3288	
Zr	33.235	19.8025	
Mo	2.321	1.3147	
Ru	0.984	0.5291	
Rh	1.488	0.7858	
Pd	5.109	2.61	
Re	1.874	0.547	

試料中心部 FeZr相 (小さな粒 2)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	2.865	13.9162	Cr/Fe = 0.148 (重量比) Zr/Fe = 0.486 (原子数比)
O	1.36	4.9575	
Cr	6.501	7.2943	
Fe	43.91	45.8696	
Y	0.31	0.2037	
Zr	34.827	22.2744	
Mo	1.888	1.1482	
Ru	1.527	0.8816	
Rh	0.971	0.5505	
Pd	4.57	2.5059	
Re	1.271	0.3981	

表 3. 2. 4-10 固化体試料の引け巢付近での半定量分析結果 (NM_Y_1600_30_1)

試料中の引け巢付近FeCr相 (1)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	1.172	5.1786	Cr/Fe = 0.453 (重量比)
O	1.013	3.3612	
Cr	28.234	28.8092	
Fe	62.268	59.1553	
Y	0.719	0.4291	
Zr	0.583	0.3386	
Mo	2.284	1.263	
Ru	0.708	0.372	
Rh	0.431	0.2222	
Pd	0.625	0.3114	
Re	1.964	0.5595	

試料中の引け巢付近FeCr相 (2)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	1.126	5.0138	Cr/Fe = 0.465 (重量比)
O	0.845	2.8242	
Cr	28.642	29.4457	
Fe	61.591	58.9535	
Y	0.332	0.1995	
Zr	0.873	0.5114	
Mo	2.425	1.3515	
Ru	0.538	0.2845	
Rh	0.73	0.379	
Pd	0.954	0.479	
Re	1.944	0.558	

試料中の引け巢付近FeZr相 (大きな粒 1)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	1.406	7.2967	Cr/Fe = 0.182 (重量比) Zr/Fe = 0.508 (原子数比)
O	1.41	5.4925	
Cr	7.754	9.2938	
Fe	42.52	47.4524	
Y	0.171	0.1202	
Zr	35.292	24.1145	
Mo	1.432	0.9303	
Ru	4.118	2.5395	
Rh	1.415	0.8574	
Pd	1.605	0.94	
Re	2.876	0.9627	

試料中の引け巢付近FeZr相 (大きな粒 2)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	1.523	7.7472	Cr/Fe = 0.188 (重量比) Zr/Fe = 0.492 (原子数比)
O	1.508	5.7596	
Cr	8.171	9.6033	
Fe	43.5	47.6022	
Y	0.433	0.298	
Zr	34.984	23.4388	
Mo	2.158	1.3745	
Ru	2.244	1.3571	
Rh	1.476	0.8764	
Pd	2.553	1.4666	
Re	1.451	0.4762	

試料中の引け巢付近FeZr相 (小さな粒 1)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	1.631	8.3859	Cr/Fe = 0.161 (重量比) Zr/Fe = 0.501 (原子数比)
O	1.623	6.2632	
Cr	6.749	8.015	
Fe	41.899	46.3288	
Y	0.555	0.3851	
Zr	34.303	23.2231	
Mo	2.111	1.3586	
Ru	1.689	1.0323	
Rh	1.539	0.9235	
Pd	5.885	3.4159	
Re	2.016	0.6686	

試料中の引け巢付近FeZr相 (小さな粒 2)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	1.822	9.2665	Cr/Fe = 0.159 (重量比) Zr/Fe = 0.465 (原子数比)
O	1.319	5.0355	
Cr	7.048	8.2786	
Fe	44.216	48.3563	
Y	0.473	0.325	
Zr	33.559	22.4706	
Mo	1.867	1.189	
Ru	1.817	1.0981	
Rh	1.034	0.6136	
Pd	4.56	2.6177	
Re	2.284	0.7491	

表 3. 2. 4-11 固化体試料のるつぼとの界面付近での半定量分析結果 (NM_Y_1600_30_1)

るつぼとの界面付近FeCr相 (1)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	1.351	5.8491	Cr/Fe = 0.443 (重量比)
O	1.844	5.9946	
Cr	27.043	27.0568	
Fe	61.074	56.8921	
Y	0.453	0.2651	
Zr	1.767	1.0076	
Mo	2.219	1.2032	
Ru	0.885	0.4554	
Rh	0.72	0.364	
Pd	0.826	0.4043	
Re	1.818	0.5079	

るつぼとの界面付近FeCr相 (2)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	1.623	7.0758	Cr/Fe = 0.479 (重量比)
O	0.959	3.1371	
Cr	29.176	29.3659	
Fe	60.9	57.07	
Y	0.574	0.3379	
Zr	0.44	0.2527	
Mo	1.999	1.0904	
Ru	0.694	0.3593	
Rh	0.588	0.2987	
Pd	0.737	0.3629	
Re	2.309	0.6491	

るつぼとの界面付近FeZr相(大きな粒 1)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	1.631	8.2178	Cr/Fe = 0.184 (重量比) Zr/Fe = 0.486 (原子数比)
O	1.634	6.1795	
Cr	8.122	9.4546	
Fe	44.132	47.8283	
Y	0.474	0.3229	
Zr	35.021	23.238	
Mo	1.644	1.0373	
Ru	2.208	1.3224	
Rh	1.243	0.7308	
Pd	1.656	0.9422	
Re	2.235	0.7262	

るつぼとの界面付近FeZr相(大きな粒 2)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	1.718	8.7051	Cr/Fe = 0.194 (重量比) Zr/Fe = 0.548 (原子数比)
O	2.024	7.6995	
Cr	7.81	9.1425	
Fe	40.302	43.9267	
Y	0.49	0.3353	
Zr	36.074	24.0727	
Mo	1.776	1.127	
Ru	4.387	2.6417	
Rh	0.911	0.5392	
Pd	1.371	0.7846	
Re	3.137	1.0257	

るつぼとの界面付近FeZr相(小さな粒 1)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	2.114	10.4926	Cr/Fe = 0.168 (重量比) Zr/Fe = 0.515 (原子数比)
O	1.902	7.0854	
Cr	7.091	8.1286	
Fe	42.23	45.0707	
Y	0.355	0.2379	
Zr	35.509	23.2035	
Mo	2.174	1.3503	
Ru	1.554	0.9161	
Rh	1.112	0.6443	
Pd	4.01	2.2464	
Re	1.949	0.624	

るつぼとの界面付近FeZr相(小さな粒 2)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	2.576	12.2382	Cr/Fe = 0.169 (重量比) Zr/Fe = 0.501 (原子数比)
O	2.674	9.5341	
Cr	7.147	7.8416	
Fe	42.346	43.2563	
Y	0.374	0.24	
Zr	34.646	21.6684	
Mo	1.984	1.1794	
Ru	1.22	0.6886	
Rh	0.978	0.5419	
Pd	4.162	2.2315	
Re	1.893	0.58	

るつぼとの界面付近 高Zr濃度のスポット (1)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	9.219	34.9211	
O	8.184	23.2697	
Cr	1.029	0.9007	
Fe	2.823	2.2999	
Y	0.525	0.2685	
Zr	74.024	36.9204	
Mo	0.405	0.1924	
Ru	0.675	0.3039	
Rh	0.416	0.1838	
Pd	0.435	0.1862	
Re	2.264	0.5533	

るつぼとの界面付近 高Zr濃度のスポット (2)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	5.733	24.316	
O	5.531	17.608	
Cr	6.696	6.5594	
Fe	17.686	16.1302	
Y	0.26	0.1489	
Zr	60.426	33.7408	
Mo	0.457	0.2426	
Ru	0.508	0.256	
Rh	0.577	0.2854	
Pd	0.64	0.3064	
Re	1.485	0.4063	

表 3. 2. 4-12 固化体試料の上表面付近での半定量分析結果 (NM_Y_1600_30_1)

固化体試料上表面付近FeCr相 (1)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	1.749	7.0322	Cr/Fe = 0.464 (重量比)
O	4.746	14.3234	
Cr	26.492	24.5972	
Fe	57.134	49.392	
Y	0.695	0.3779	
Zr	3.537	1.8719	
Mo	2.191	1.1024	
Ru	0.886	0.4233	
Rh	0.535	0.2508	
Pd	0.523	0.2372	
Re	1.511	0.3917	

固化体試料上表面付近FeCr相 (2)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	1.816	7.8119	Cr/Fe = 0.465 (重量比)
O	1.117	3.6072	
Cr	28.647	28.4535	
Fe	61.593	56.9602	
Y	0.359	0.2087	
Zr	0.699	0.3955	
Mo	2.094	1.1277	
Ru	0.765	0.391	
Rh	0.513	0.2576	
Pd	0.588	0.2855	
Re	1.808	0.5013	

固化体試料上表面付近FeZr相(大きな粒 1)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	2.445	11.9761	Cr/Fe = 0.185 (重量比) Zr/Fe = 0.515 (原子数比)
O	1.868	6.865	
Cr	7.735	8.7498	
Fe	41.795	44.0204	
Y	0.649	0.4291	
Zr	35.123	22.6495	
Mo	1.72	1.0549	
Ru	2.76	1.6061	
Rh	1.104	0.6311	
Pd	2.113	1.1683	
Re	2.69	0.8497	

固化体試料上表面付近FeZr相(大きな粒 2)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	2.093	10.6182	Cr/Fe = 0.202 (重量比) Zr/Fe = 0.610 (原子数比)
O	1.621	6.1706	
Cr	7.826	9.1683	
Fe	38.837	42.3647	
Y	0.545	0.3734	
Zr	38.709	25.8532	
Mo	1.554	0.987	
Ru	2.736	1.6497	
Rh	1.44	0.8525	
Pd	1.809	1.0363	
Re	2.831	0.9261	

固化体試料上表面付近FeZr相(小さな粒 1)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	2.702	13.4547	Cr/Fe = 0.172 (重量比) Zr/Fe = 0.538 (原子数比)
O	1.112	4.1588	
Cr	7.11	8.1756	
Fe	41.334	44.2565	
Y	0.287	0.1932	
Zr	36.328	23.8143	
Mo	2.02	1.2591	
Ru	1.656	0.9799	
Rh	1.292	0.7504	
Pd	4.068	2.2863	
Re	2.09	0.6712	

固化体試料上表面付近FeZr相(小さな粒 2)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	2.517	12.2153	Cr/Fe = 0.161 (重量比) Zr/Fe = 0.511 (原子数比)
O	2.014	7.3329	
Cr	6.893	7.7238	
Fe	42.691	44.5429	
Y	0.36	0.2364	
Zr	35.638	22.7659	
Mo	1.735	1.054	
Ru	1.291	0.7447	
Rh	1.124	0.6363	
Pd	4.057	2.2218	
Re	1.681	0.5261	

固化体試料上表面付近 高Zr濃度のスポット (1)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	5.71	23.899	
O	6.059	19.0367	
Cr	3.702	3.5785	
Fe	22.129	19.9176	
Y	0.182	0.1025	
Zr	55.034	30.3285	
Mo	1.132	0.593	
Ru	1.256	0.6248	
Rh	0.874	0.4269	
Pd	2.142	1.0121	
Re	1.78	0.4805	

固化体試料上表面付近 高Zr濃度のスポット (2)			
元素名	重量(%)	原子数(%)	その他
C	4.715	16.4751	
O	18.181	47.6897	
Cr	0.582	0.4697	
Fe	1.838	1.3808	
Y	0.437	0.2064	
Zr	71.448	32.873	
Mo	0.306	0.134	
Ru	0.307	0.1276	
Rh	0.405	0.1653	
Pd	0.453	0.1789	
Re	1.328	0.2993	

表 3. 2. 4-13 金属廃棄物試験片の浸出試験までの重量、寸法及び表面積

(乾燥重量は超音波洗浄後、寸法は超音波洗浄前の測定値)

試験片名	模擬金属廃棄物の 製造試験番号	乾燥重量 (g)	寸法 (mm)			表面積 (cm ²)
			長さ-1*	長さ-2*	平均厚さ	
30Zr-1	NM_Y_1600_30_1	1.006	9.87, 9.73	9.52, 10.04	1.37	2.65
30Zr-2	NM_Y_1600_30_2	0.888	9.22, 9.24	9.16, 10.33	1.29	2.45

*: 試験片がややいびつになったため、4辺の長さを記載 (長さ-1 と長さ-2 は直交する方向)

表 3. 2. 4-14 各浸出試験前後の小型容器重量変化、及び各種分析に用いた溶液の重量

試験片名	浸出回数	浸出開始時	浸出後		
		浸出液重量 (g)	浸出期間中の小型容 器の重量変化 (g)	pH 測定に採取した 浸出液 (g)	残った浸出液+洗浄 用純水+濃硝酸 (g)
30Zr-1	1回目	2.744	0.019	0.445	11.233
	2回目	2.634	0.033	0.398	17.207
	3回目	2.810	0.084	0.391	13.093
	4回目	2.472	0.129	0.443	11.908
30Zr-2	1回目	2.899	-0.003	0.393	17.492
	2回目	2.621	-0.003	0.271	14.331
	3回目	2.794	0.024	0.314	18.015
	4回目	2.499	0.062	0.386	14.306

表 3. 2. 4-15 各浸出試験後の浸出液の pH (() 内は再測定値)

試験片名	1回目の浸出後	2回目の浸出後	3回目の浸出後	4回目の浸出後
30Zr-1	5.02 (4.69)	5.05 (4.69)	5.08 (5.17)	5.41 (4.92)
30Zr-2	4.85 (4.60)	4.88 (4.64)	5.10 (4.86)	4.97 (4.74)

表 3. 2. 4-16 浸出試験後の小型容器内部の洗浄液重量 (g)

試験 片名	1回目の浸出後		2回目の浸出後		3回目の浸出後		4回目の浸出後	
	硝酸洗浄液	塩酸洗浄液	硝酸洗浄液	塩酸洗浄液	硝酸洗浄液	塩酸洗浄液	硝酸洗浄液	塩酸洗浄液
30Zr-1	16.602	13.715	17.476	14.553	19.846	12.347	14.315	12.049
30Zr-2	15.437	11.867	17.421	12.415	19.762	17.972	15.053	15.500

表 3. 2. 4-17 浸出試験後の各浸出液、洗浄液中の元素濃度分析結果 (ng/ml)

試験片	浸出回	液種	Cr	Fe	Mo	Pd	Re	Rh	Ru	Zr
30Zr-1	1 回目	浸出液	5. 14	43. 5	ND	0. 88	9. 44	<i>0. 01</i>	ND	62. 9
		硝酸洗浄液	22. 5	52. 6	54. 8	0. 86	ND	0. 27	ND	59. 5
		塩酸洗浄液	3. 19	612. 3	ND	0. 66	ND	ND	ND	40. 0
	2 回目	浸出液	1. 67	14. 7	ND	1. 16	<i>3. 01</i>	ND	ND	8. 64
		硝酸洗浄液	2. 32	69. 6	MD	1. 14	ND	ND	ND	<i>7. 42</i>
		塩酸洗浄液	0. 24	31. 6	ND	0. 64	ND	ND	ND	ND
	3 回目	浸出液	1. 56	7. 33	<i>9. 80</i>	15. 6	19. 5	ND	<i>0. 03</i>	8. 65
		硝酸洗浄液	0. 78	9. 14	ND	1. 32	ND	ND	ND	ND
		塩酸洗浄液	0. 33	11. 7	ND	1. 81	ND	ND	ND	ND
	4 回目	浸出液	0. 99	5. 41	<i>0. 00</i>	27. 0	51. 6	<i>0. 02</i>	<i>0. 03</i>	7. 83
		硝酸洗浄液	0. 31	1. 91	<i>0. 11</i>	11. 9	ND	<i>0. 01</i>	ND	ND
		塩酸洗浄液	ND	15. 0	<i>0. 22</i>	4. 80	ND	<i>0. 01</i>	<i>0. 05</i>	ND
30Zr-2	1 回目	浸出液	2. 00	17. 6	ND	<i>0. 32</i>	<i>4. 23</i>	ND	ND	21. 3
		硝酸洗浄液	28. 9	424. 0	73. 3	0. 63	ND	0. 40	<i>0. 04</i>	73. 9
		塩酸洗浄液	3. 45	119. 6	12. 5	0. 86	ND	ND	ND	56. 5
	2 回目	浸出液	1. 69	11. 8	ND	2. 34	<i>3. 42</i>	ND	ND	16. 5
		硝酸洗浄液	1. 59	41. 4	ND	0. 87	ND	ND	ND	ND
		塩酸洗浄液	ND	14. 5	ND	0. 44	ND	ND	ND	ND
	3 回目	浸出液	1. 44	3. 90	ND	3. 63	14. 5	ND	ND	9. 46
		硝酸洗浄液	1. 07	12. 3	ND	1. 51	ND	ND	ND	ND
		塩酸洗浄液	1. 45	12. 1	ND	1. 75	ND	ND	ND	ND
	4 回目	浸出液	0. 56	1. 09	<i>0. 00</i>	6. 72	50. 0	<i>0. 01</i>	<i>0. 09</i>	10. 7
		硝酸洗浄液	0. 38	ND	<i>0. 00</i>	13. 2	ND	<i>0. 03</i>	<i>0. 01</i>	ND
		塩酸洗浄液	ND	17. 3	<i>0. 20</i>	7. 01	ND	ND	ND	ND

斜字：定量分析下限値以下、ND：分析下限値以下

表 3.2.4-18 各試験片からの累積規格化浸出率 (g/m²)

試験片名	累積浸出期間 (日)	Cr	Fe	Mo	Pd	Re	Rh	Ru	Zr
20Zr-1	14	3.58E-2	1.31E-1	1.07E-1	7.00E-2	2.88E-1	3.62E-2	1.34E-2	6.59E-2
	28	3.85E-2	1.32E-1	1.07E-1	7.98E-2	6.51E-1	3.62E-2	1.59E-2	6.59E-2
	70	3.97E-2	1.38E-1	1.08E-1	9.36E-2	6.68E-1	4.57E-2	1.81E-2	6.59E-2
	140	4.00E-2	1.43E-1	1.09E-1	9.62E-2	6.90E-1	4.62E-2	2.03E-2	6.59E-2
20Zr-2	14	4.31E-2	1.51E-1	8.06E-2	1.04E-1	2.98E-1	4.43E-2	1.23E-2	7.06E-2
	28	4.50E-2	1.53E-1	8.11E-2	1.14E-1	6.68E-1	4.48E-2	1.52E-2	7.06E-2
	70	4.58E-2	1.58E-1	8.28E-2	1.44E-1	6.84E-1	4.86E-2	1.67E-2	7.06E-2
	140	4.60E-2	1.58E-1	8.50E-2	3.50E-1	7.06E-1	5.49E-2	1.95E-2	7.06E-2
30Zr-1	14	1.66E-2	6.32E-2	2.51E-1	1.09E-2	7.08E-2	3.99E-3	0.00E+0	3.12E-2
	28	1.93E-2	7.63E-2	2.51E-1	2.74E-2	1.05E-1	3.99E-3	0.00E+0	3.53E-2
	70	2.08E-2	7.92E-2	2.92E-1	1.17E-1	2.71E-1	3.99E-3	1.27E-4	3.70E-2
	140	2.14E-2	8.11E-2	2.93E-1	3.11E-1	6.86E-1	4.37E-3	4.18E-4	3.85E-2
30Zr-2	14	2.05E-2	6.66E-2	4.06E-1	1.09E-2	5.19E-2	6.04E-3	1.77E-4	3.78E-2
	28	2.25E-2	7.44E-2	4.06E-1	3.05E-2	8.51E-2	6.04E-3	1.77E-4	4.16E-2
	70	2.53E-2	7.83E-2	4.06E-1	7.57E-2	2.63E-1	6.04E-3	1.77E-4	4.44E-2
	140	2.59E-2	8.03E-2	4.07E-1	2.16E-1	7.75E-1	6.68E-3	7.01E-4	4.70E-2
40Zr-1	14	4.42E-2	1.31E-1	8.05E-2	1.83E-2	1.07E-1	1.32E-2	4.95E-3	1.82E-2
	28	4.89E-2	1.36E-1	8.09E-2	2.13E-2	1.57E-1	1.43E-2	6.15E-3	2.17E-2
	70	4.95E-2	1.40E-1	8.18E-2	2.46E-2	1.57E-1	1.68E-2	7.17E-3	2.17E-2
	140	4.95E-2	1.41E-1	8.25E-2	2.73E-2	1.57E-1	1.80E-2	8.11E-3	2.17E-2
40Zr-2	14	3.80E-2	1.15E-1	8.94E-2	1.73E-2	9.78E-2	1.26E-2	4.38E-3	1.46E-2
	28	4.03E-2	1.21E-1	8.95E-2	1.95E-2	1.68E-1	1.32E-2	5.59E-3	1.46E-2
	70	4.38E-2	1.31E-1	9.07E-2	2.53E-2	3.19E-1	1.61E-2	6.41E-3	1.46E-2
	140	4.40E-2	1.34E-1	9.07E-2	2.92E-2	3.27E-1	1.61E-2	7.29E-3	1.46E-2

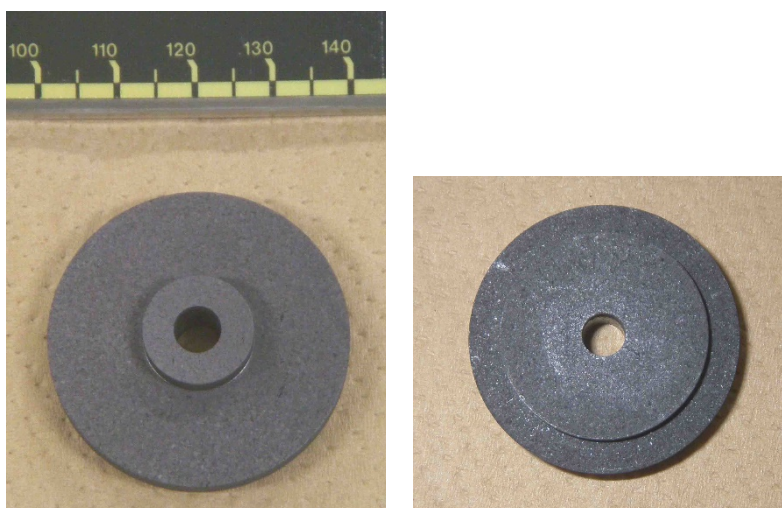


図 3.2.4-1 試料るつぼ穴開きフタ（左：上面、右：下面（試料側））

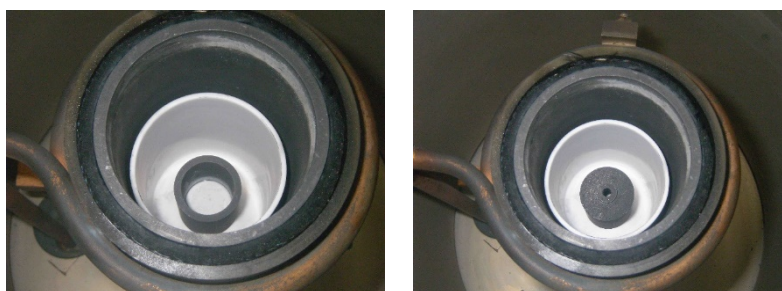


図 3.2.4-2 試料るつぼ穴開きフタを用いた $Gd_2O_3+LiCl-KCl$ 塩蒸留試験開始前の試料装荷及び装置組み立ての様子

左：サセプター内のアルミナるつぼに試料るつぼを配置した状態
 右：試料るつぼに試料るつぼ穴開きフタを乗せた状態

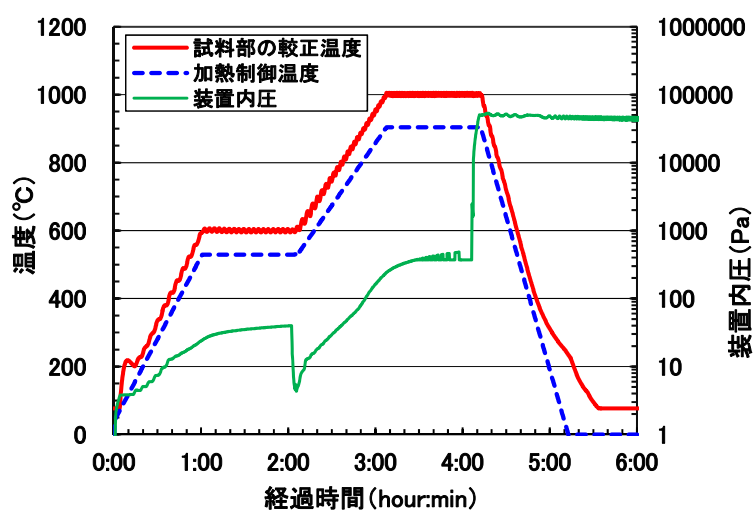


図 3.2.4-3 試料るつぼ穴開きフタを用いた $Gd_2O_3+LiCl-KCl$ 塩蒸留試験時の温度及び装置内圧の変化

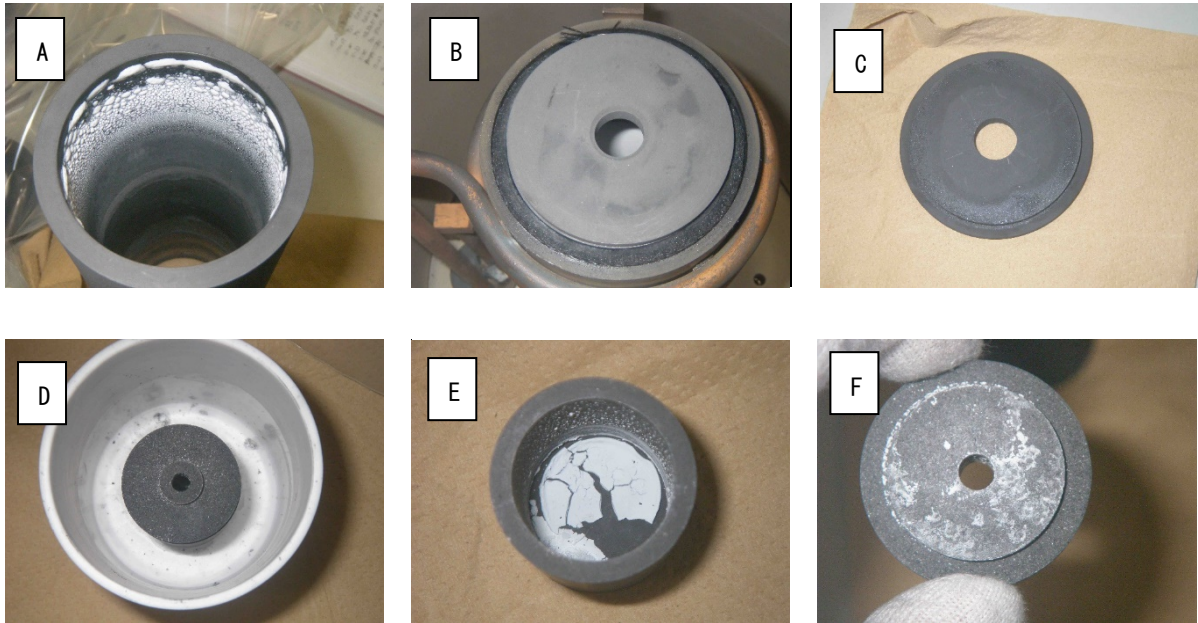


図 3.2.4-4 試料るつぼ穴開きフタを用いた $Gd_2O_3+LiCl-KCl$ 塩蒸留試験後の様子
 A : 上部円筒内部 (試験時の下側から観察)、B : 穴開き円板の上面、C : 穴開き円板の下面
 D : 試料るつぼ穴開きフタの上面、E : 試料るつぼの内部、F : 試料るつぼ穴開きフタの下面

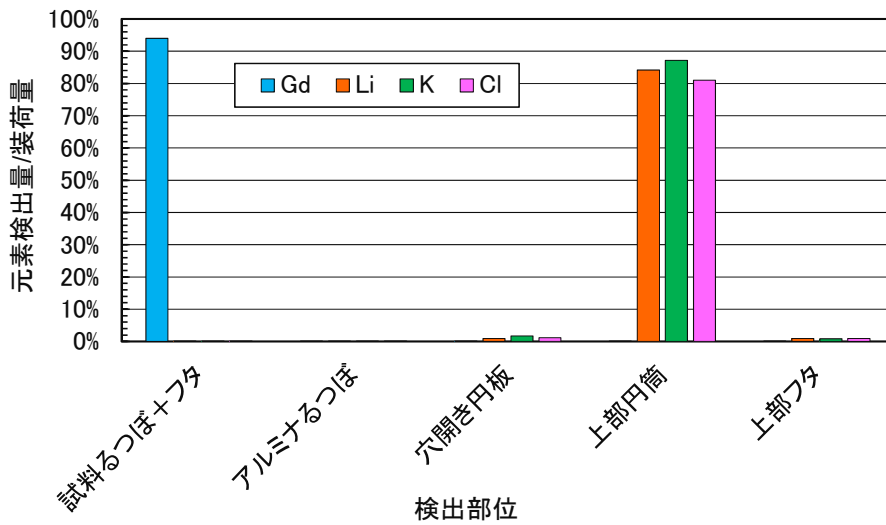


図 3.2.4-5 試料るつぼ穴開きフタを用いた $Gd_2O_3+LiCl-KCl$ 塩蒸留試験後の各部位での元素検出量



図 3.2.4-6 Gd 沈殿を含む $LiCl-KCl$ 塩塊の蒸留試験に用いた試料



図 3.2.4-7 Gd 沈殿を含む LiCl-KCl 塩塊の蒸留試験後の試料るつぼ内の様子

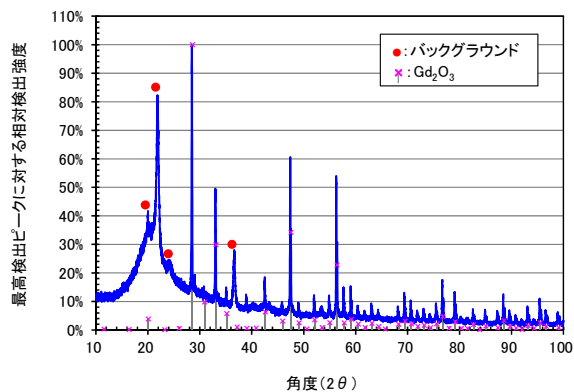


図 3.2.4-8 Gd 沈殿を含む LiCl-KCl 塩塊の蒸留試験残留物の XRD パターン



図 3.2.4-9 昇降部に取り付けた加圧軸 (左: 加圧軸取り付け部分、右: 加圧軸先端部分)

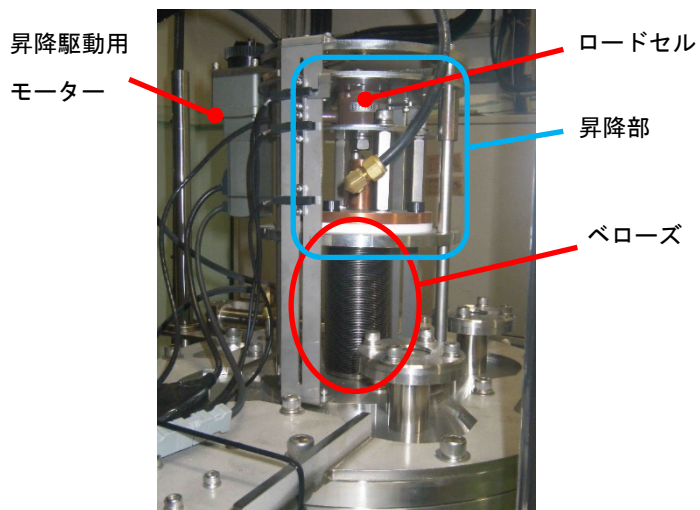


図 3.2.4-10 試料加圧のための昇降機構

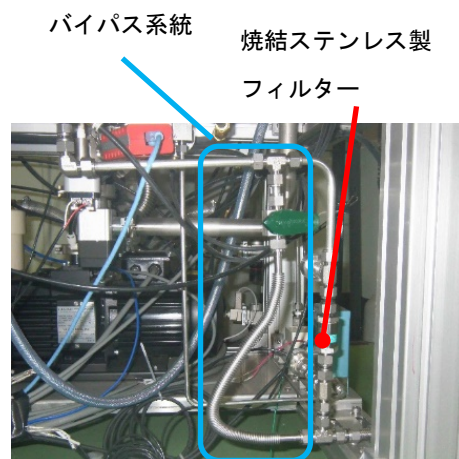


図 3.2.4-11 ガス排気ライン

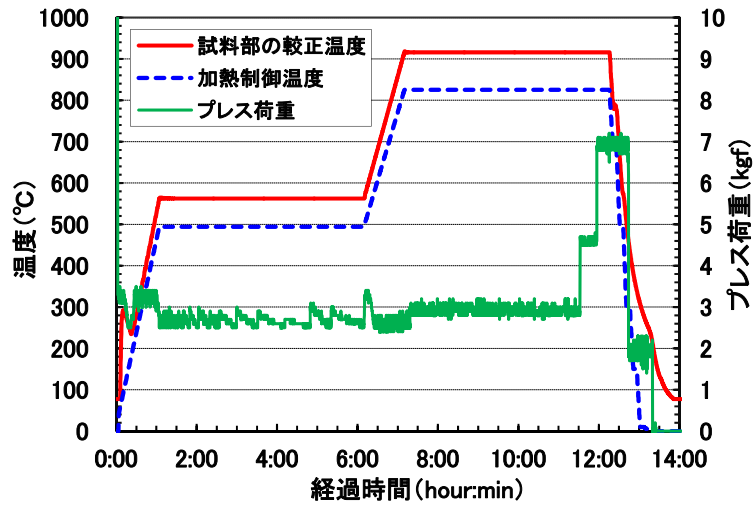


図 3. 2. 4-12 固化体製造時の温度、プレス荷重変化



図 3. 2. 4-13 固化体製造後の試料容器（左）及び内部から取り出した固化体の外観（右）

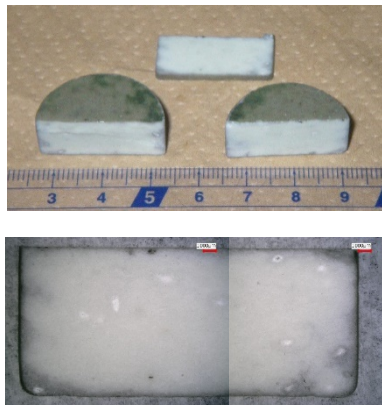


図 3. 2. 4-14 製造した固化体を切断した際の様子（上）及び断面（下）

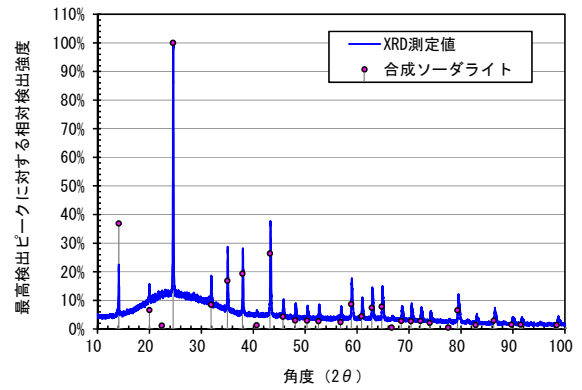


図 3. 2. 4-15 製造した固化体粉砕物の XRD パターン

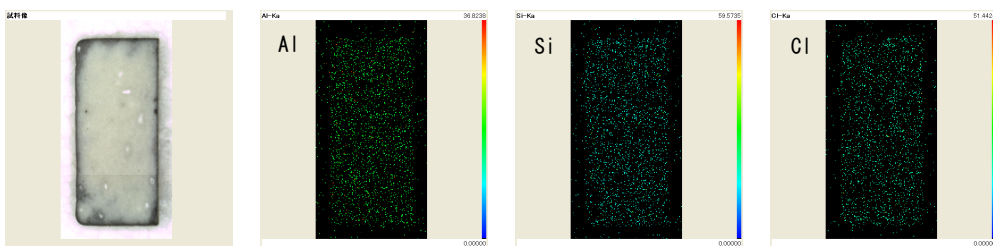


図 3. 2. 4-16 固化体断面の XRF 画像（試料像（左）及び Al、Si、Cl の分布）

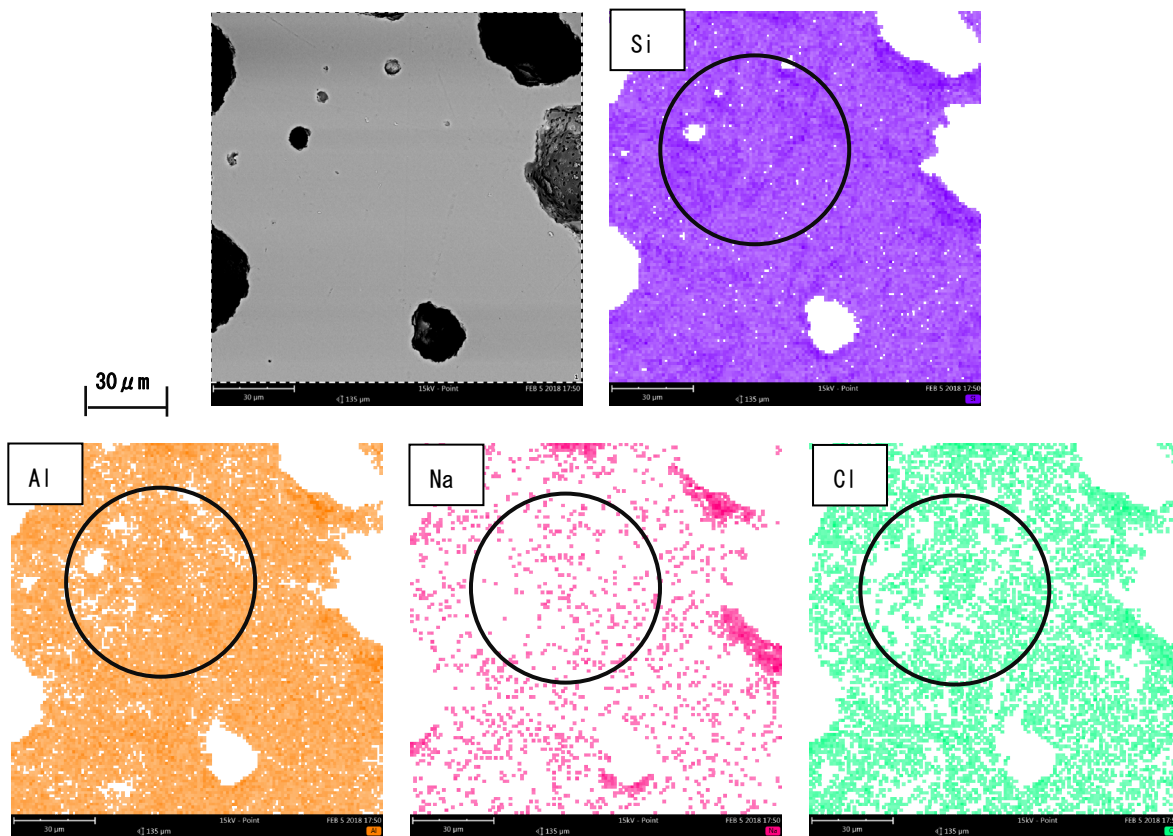


図 3. 2. 4-17 固化体断面の SEM 画像（上）及び EDS による Si、Al、Na、Cl の分布

試験番号	外観	断面
5-Gd		
10-Gd		
20-Gd		
5-Res-1		
5-Res-2		

図 3. 2. 4-18 各試験後の固化体外観よび断面

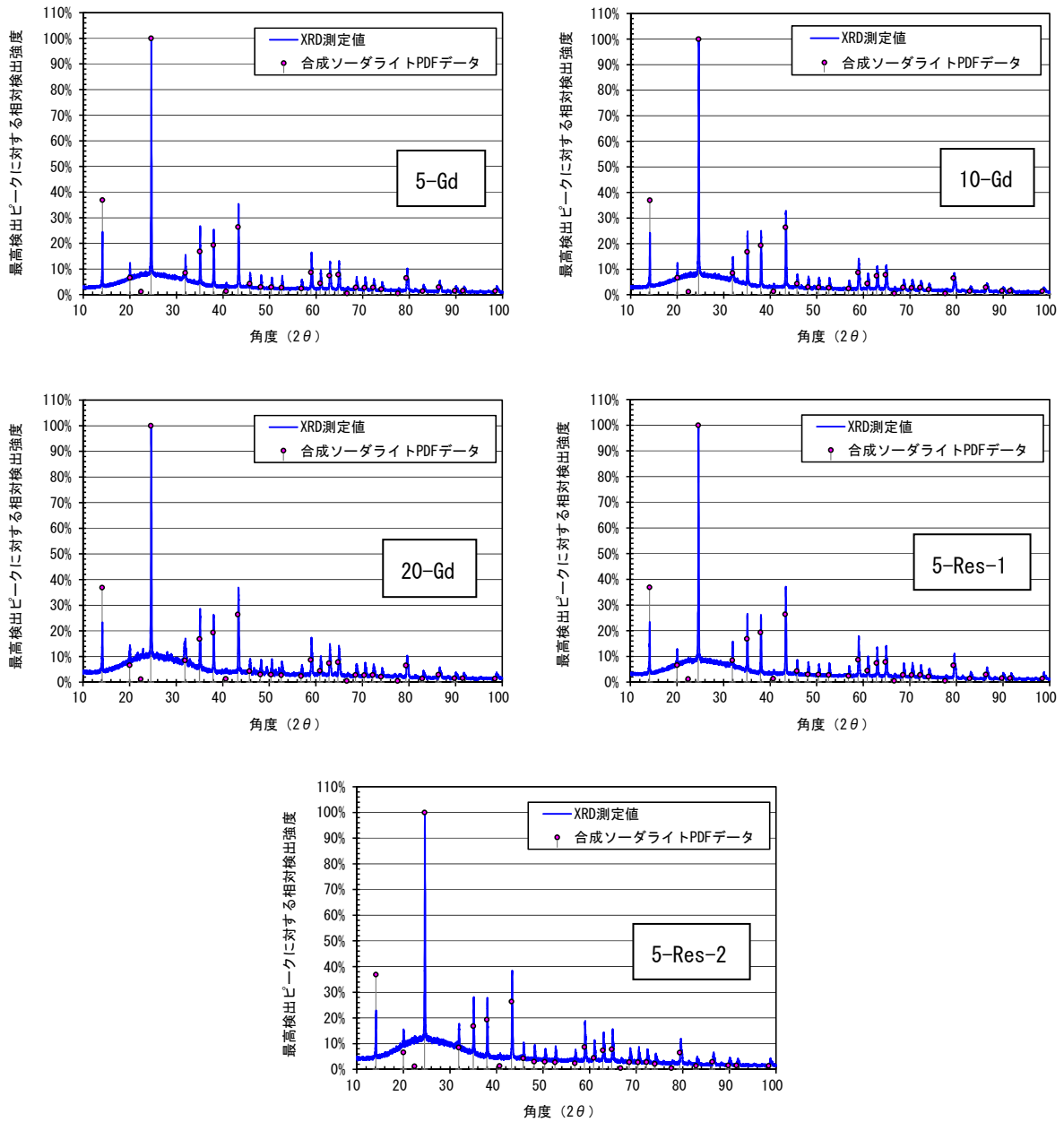


図 3. 2. 4-19 希土類酸化物を含む模擬塩廃棄物固化体粉碎物の XRD パターン

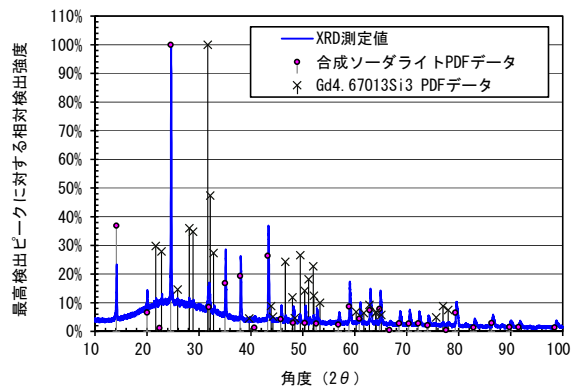


図 3. 2. 4-20 20-Gd 試験での固化体粉碎物の XRD パターンと $Gd_{4.67}O_{13}Si_3$ のパターンの比較

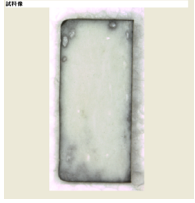
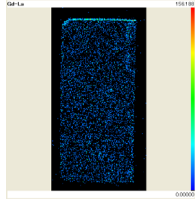
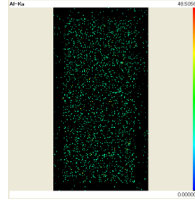
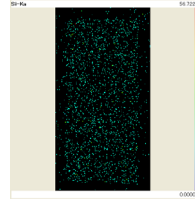
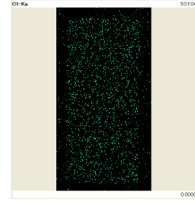

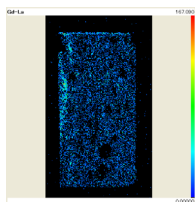
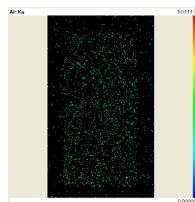
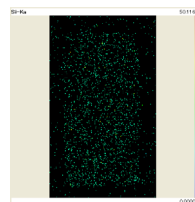
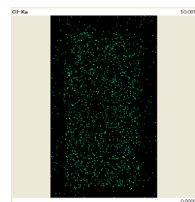

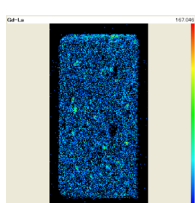
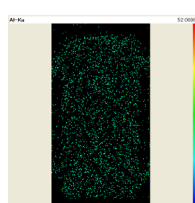
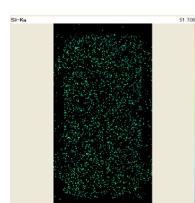
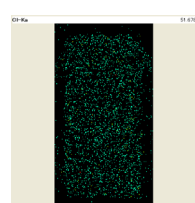

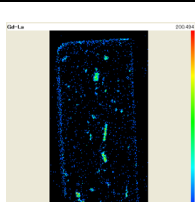
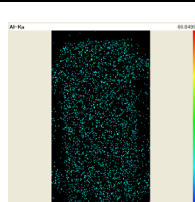
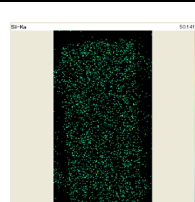
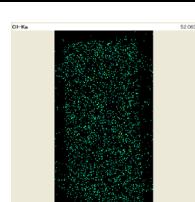

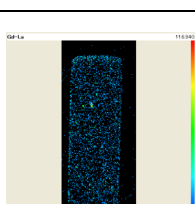
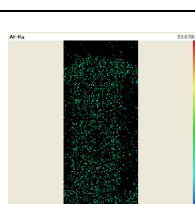
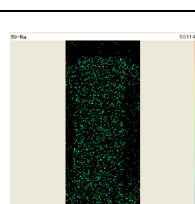
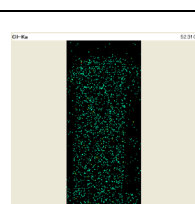
試験 番号	試料像	Gd	Al	Si	Cl
5-Gd					
10-Gd					
20-Gd					
5-Res-1					
5-Res-2					

図 3. 2. 4-21 各固化体断面の XRF 画像 (試料像及び Gd、Al、Si、Cl の分布)

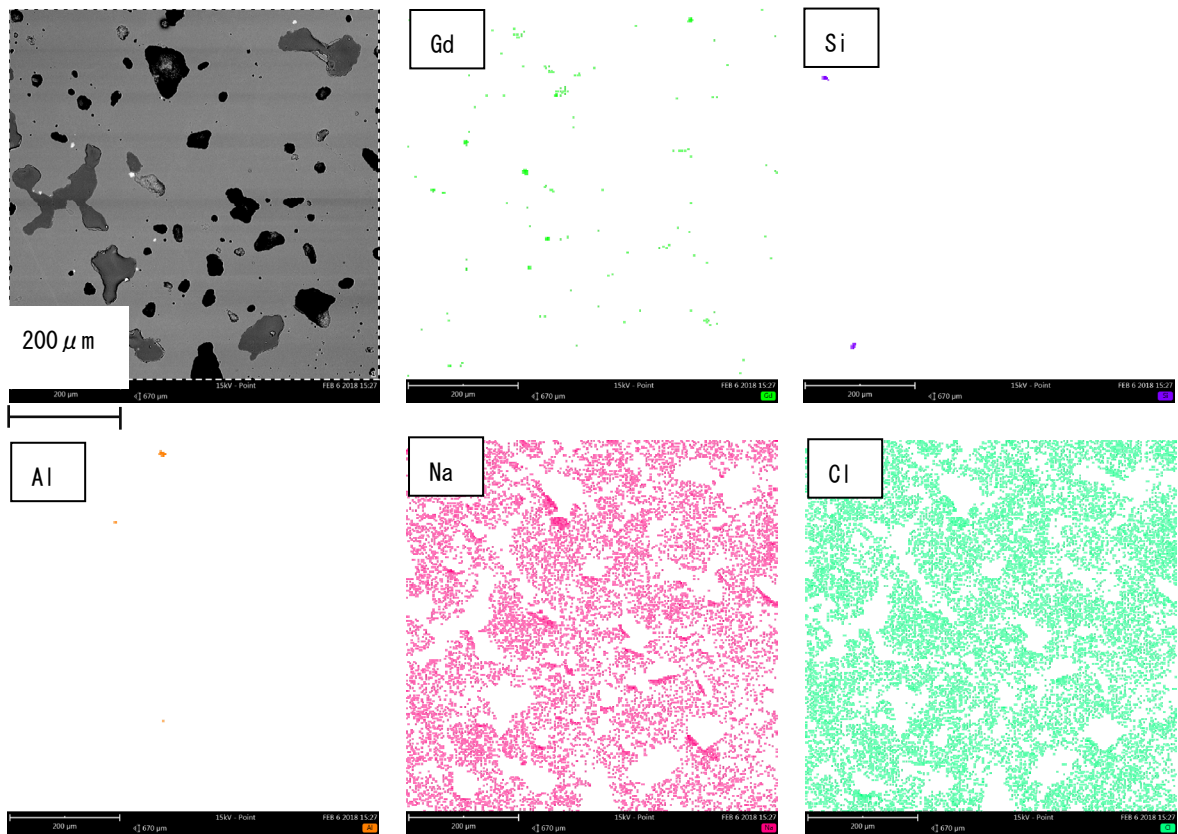


図 3.2.4-22 5-Gd 固化体断面の SEM 画像（左上）及び EDS による Gd、Si、Al、Na、Cl の分布

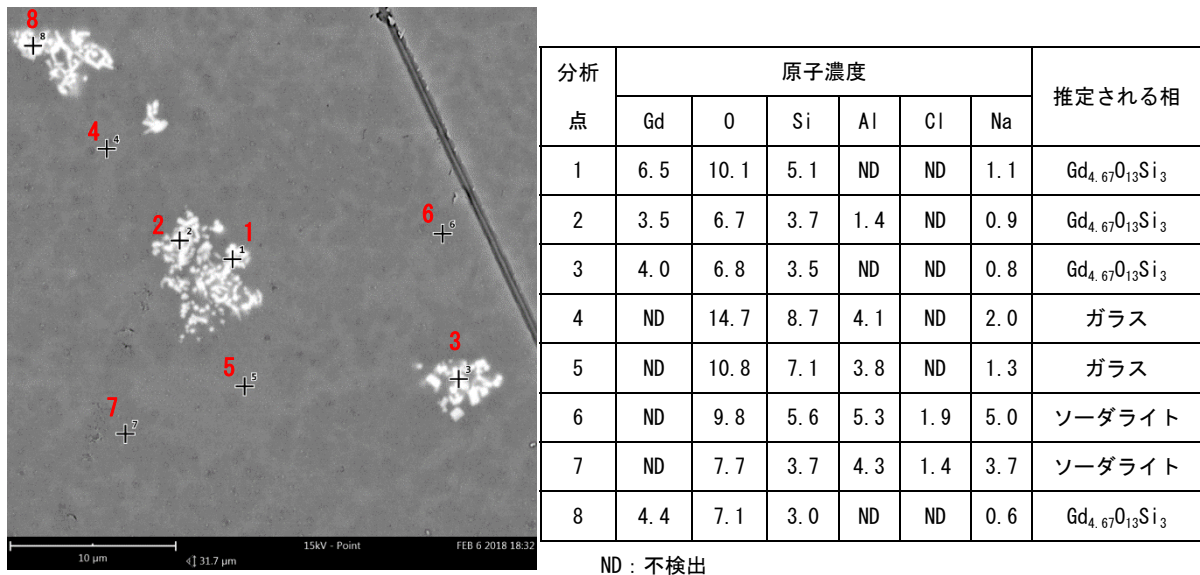


図 3.2.4-23 5-Gd 固化体断面での点分析箇所の SEM 画像及び各点の元素濃度の EDS による分析値

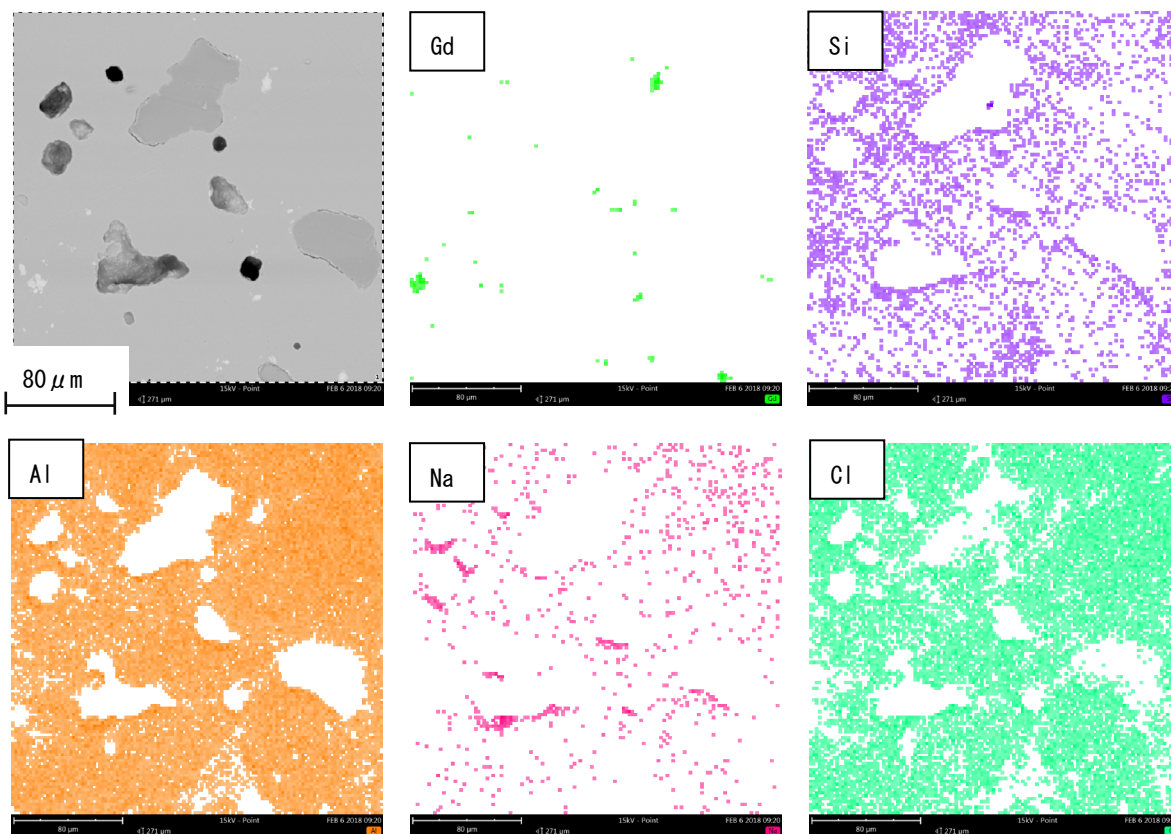
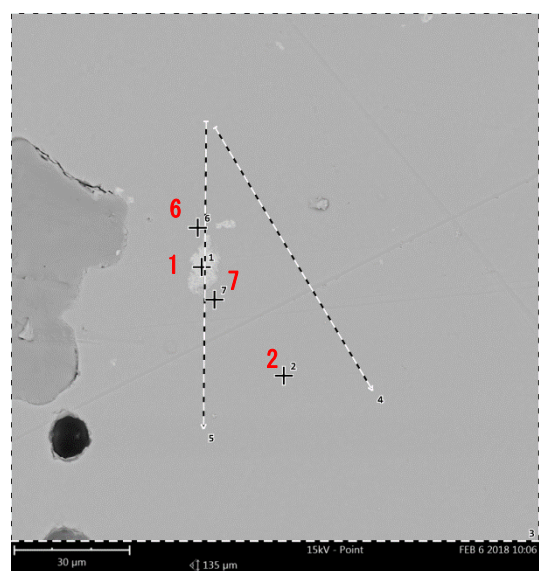


図 3. 2. 4-24 10-Gd 固化体断面の SEM 画像（左上）及び EDS による Gd、Si、Al、Na、Cl の分布



分析点	原子濃度						推定される相
	Gd	O	Si	Al	Cl	Na	
1	4.6	5.3	2.8	ND	ND	0.7	$Gd_{4.67}O_{13}Si_3$
2	ND	8.2	5.1	4.7	1.4	4.0	ソーダライト
6	ND	7.5	5.4	ND	ND	1.6	ガラス
7	ND	8.7	5.3	4.3	1.2	3.2	ソーダライト

ND：不検出

図 3. 2. 4-25 10-Gd 固化体断面での点分析箇所の SEM 画像及び各点の元素濃度の EDS による分析値

（4、5 の線分析結果は不掲載）

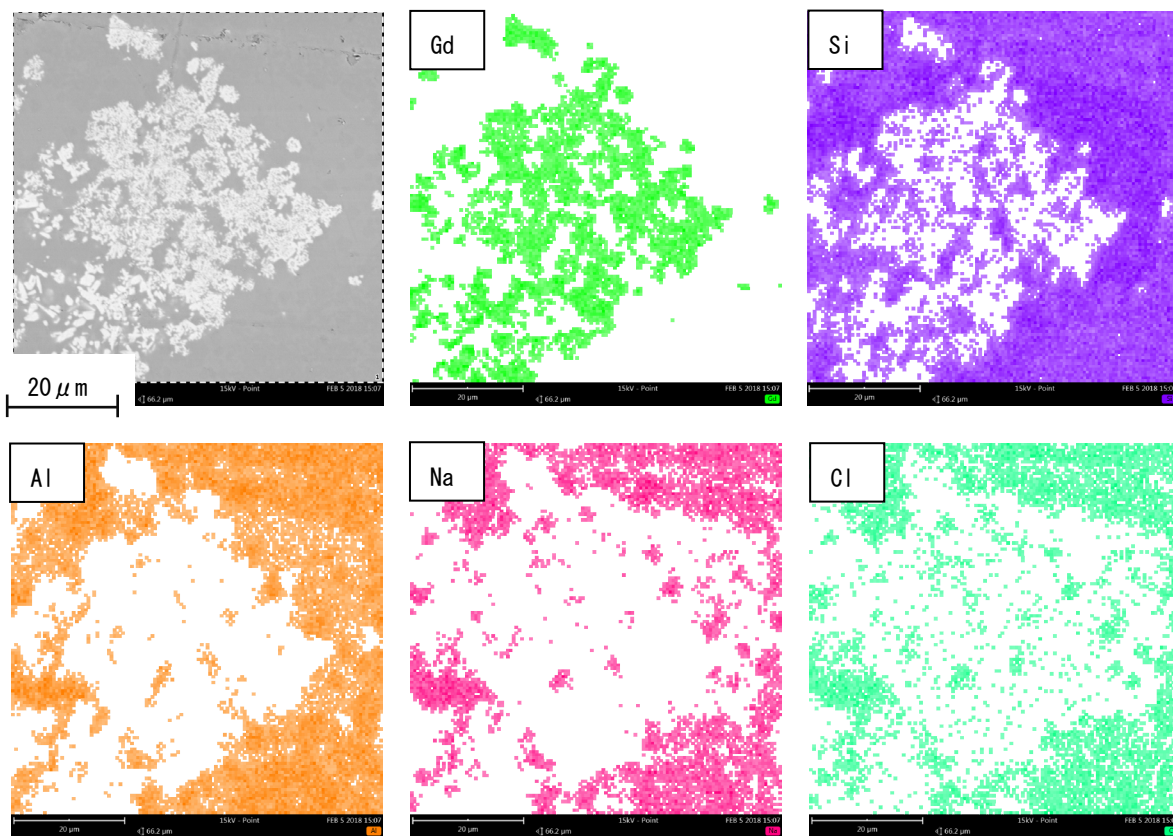


図 3. 2. 4-26 20-Gd 固化体断面の SEM 画像（左上）及び EDS による Gd、Si、Al、Na、Cl の分布

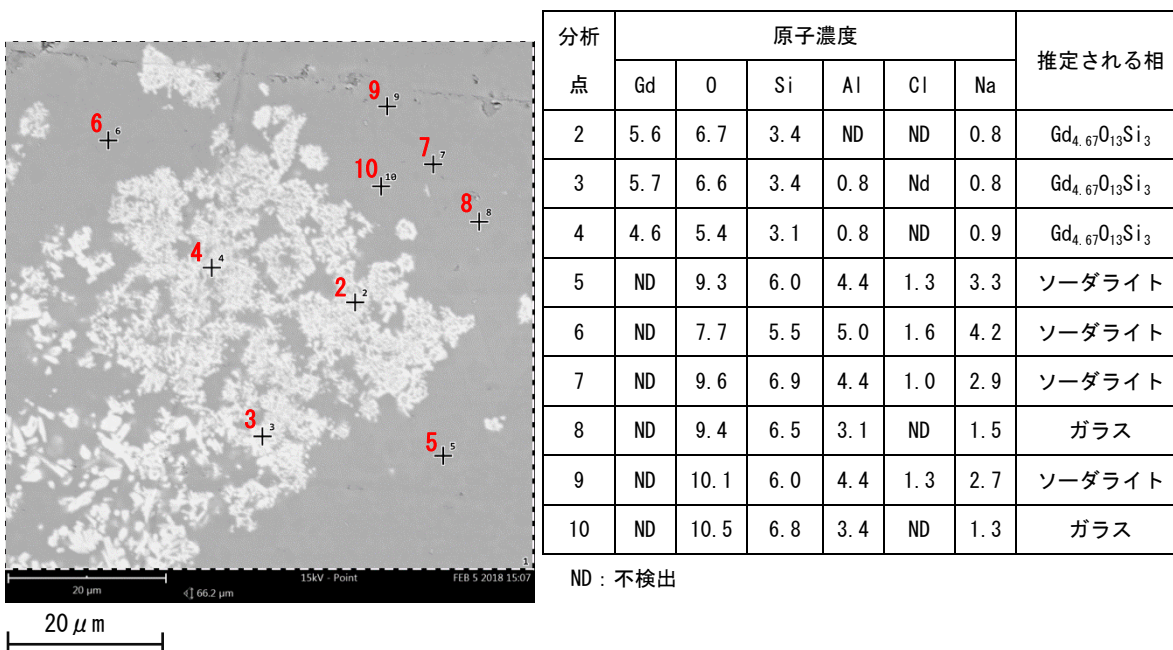


図 3. 2. 4-27 20-Gd 固化体断面での点分析箇所 SEM 画像及び各点の元素濃度の EDS による分析値

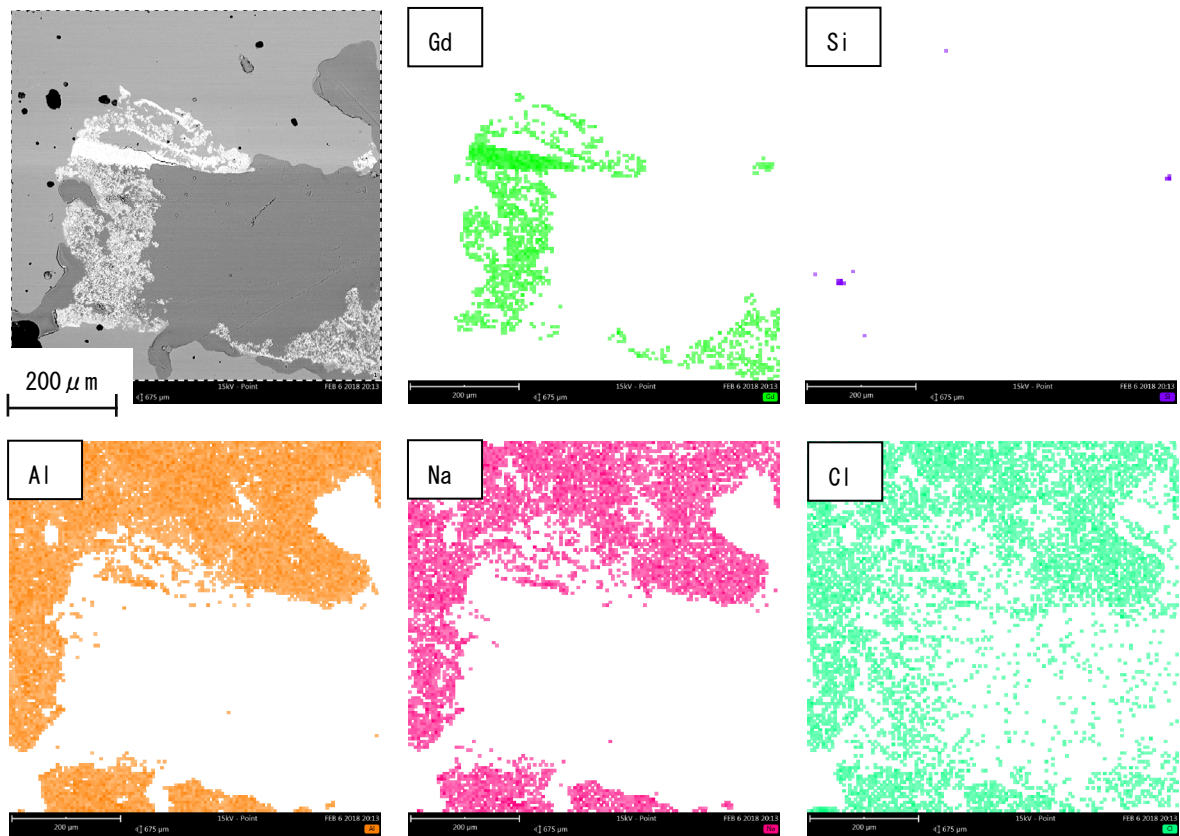


図 3. 2. 4-28 5-Res-1 固化体断面の SEM 画像（左上）及び EDS による Gd、Si、Al、Na、Cl の分布

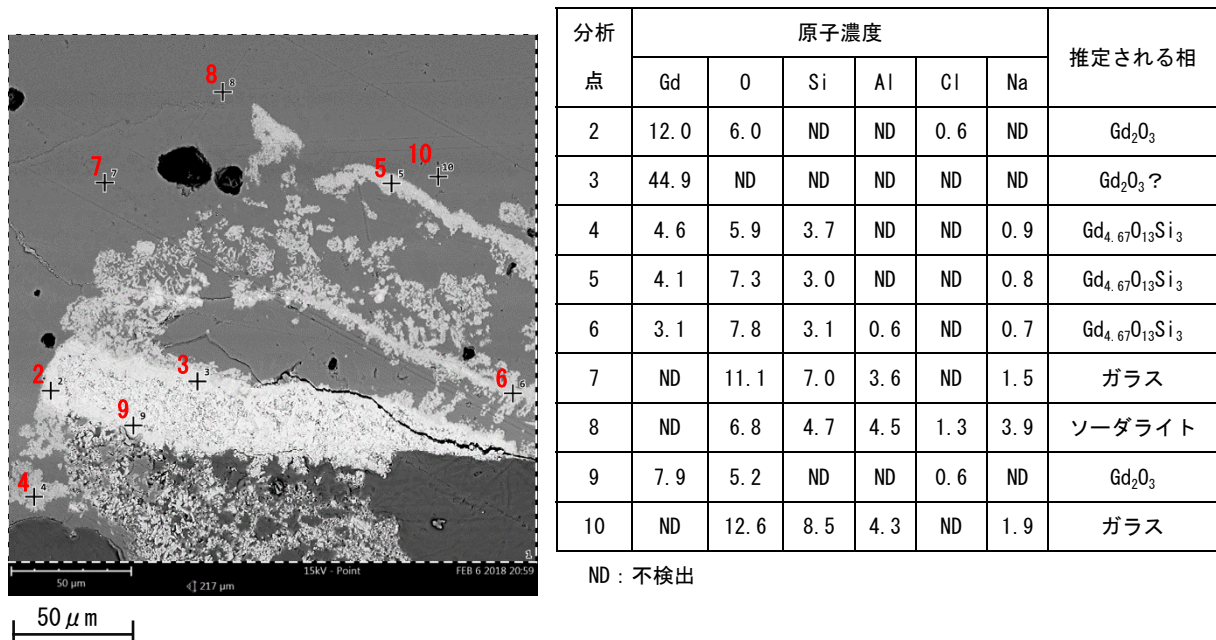


図 3. 2. 4-29 5-Res-1 固化体断面での点分析箇所の SEM 画像及び各点の元素濃度の EDS による分析値

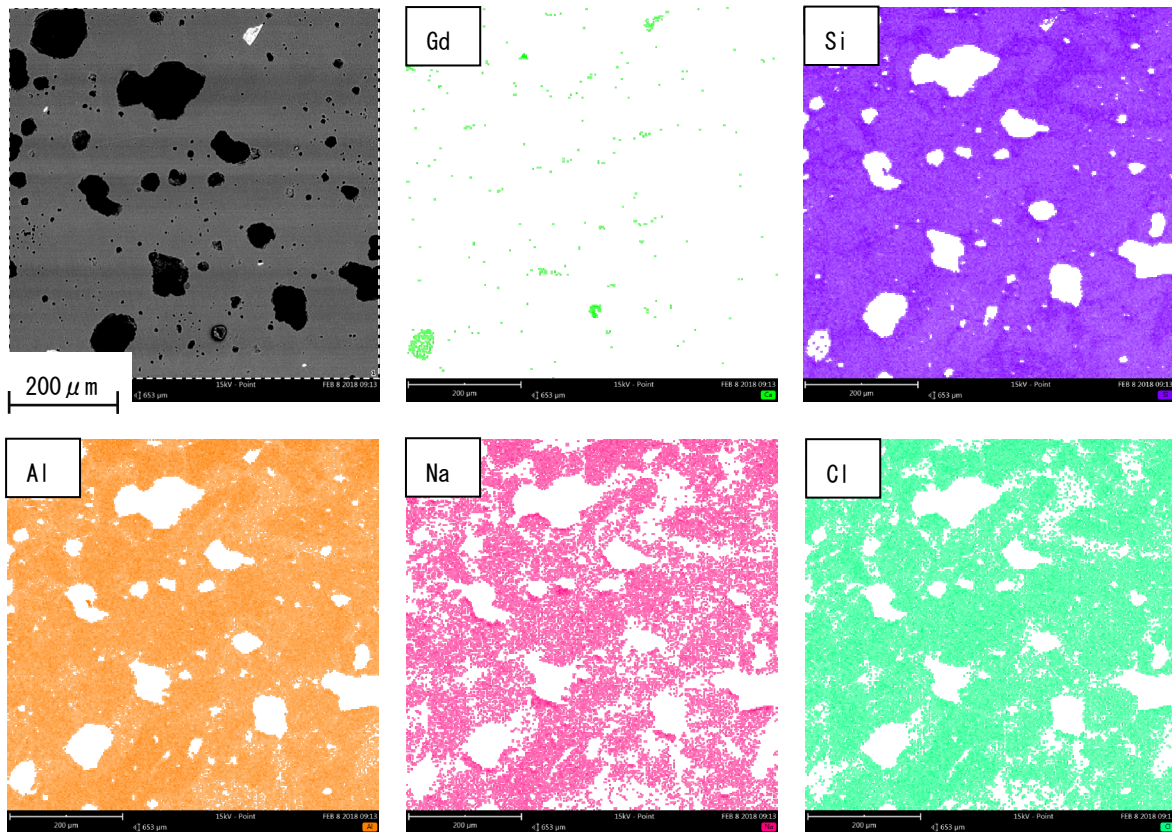


図 3. 2. 4-30 5-Res-2 固化体断面の SEM 画像（左上）及び EDS による Gd、Si、Al、Na、Cl の分布

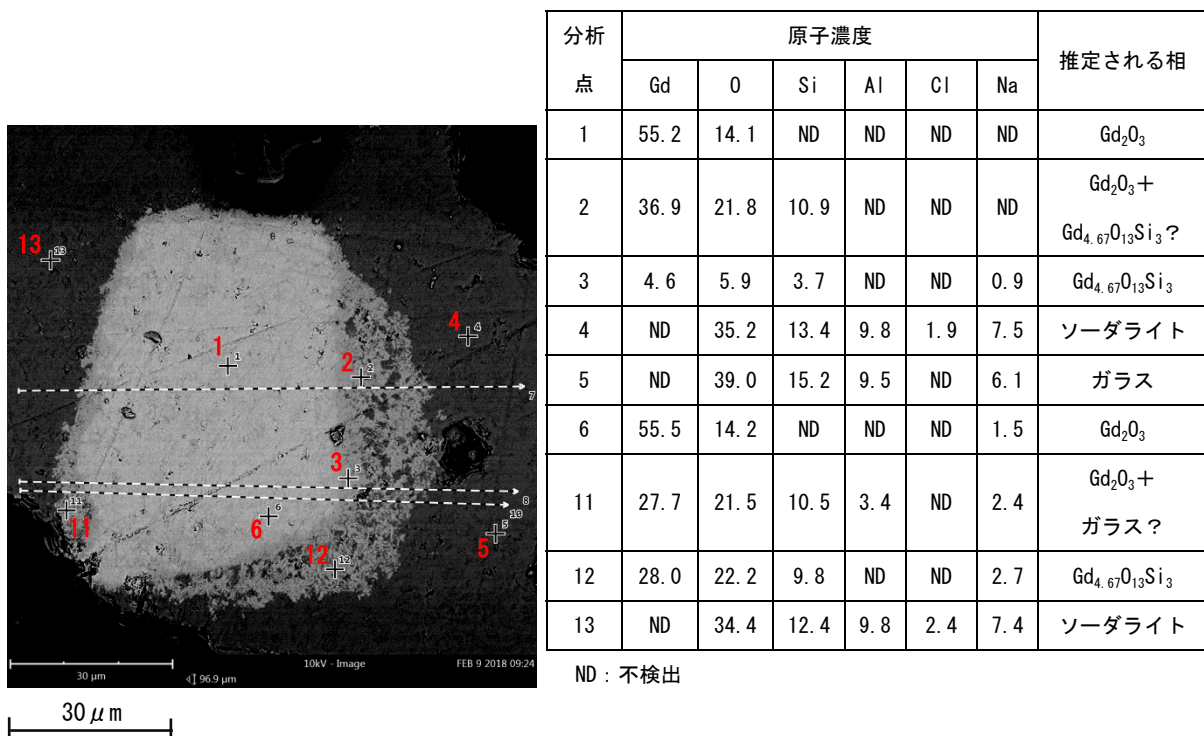


図 3. 2. 4-31 5-Res-2 固化体断面での点分析箇所の SEM 画像及び各点の元素濃度の EDS による分析値（7、8、10 の線分析結果は不掲載）

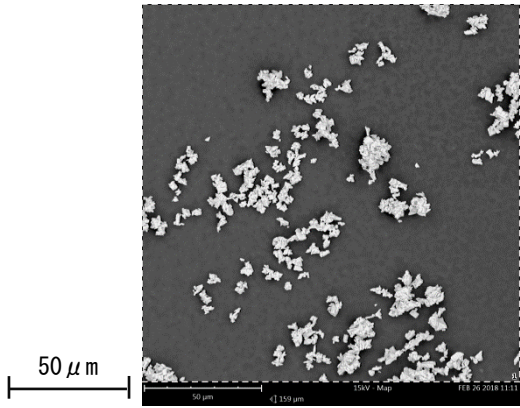


図 3. 2. 4-32 Gd₂O₃ 試薬の SEM 画像図

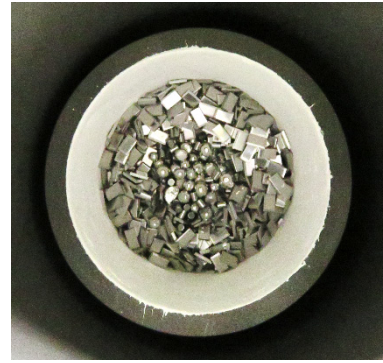


図 3. 2. 4-33 金属材料を装荷した
グラファイトるつぼ

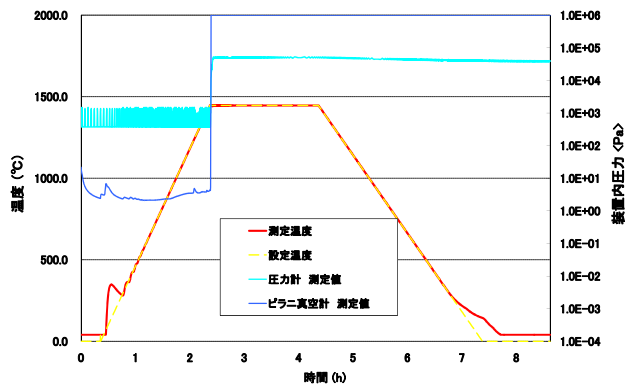


図 3. 2. 4-34 金属廃棄物溶融固化試験に
おける装置内温度／圧力変化の例
(NM_Y_1600_30_1)



図 3. 2. 4-35 冷却後にくつぼから取
り出した固化体の外観
(NM_Y_1600_30_1)



図 3. 2. 4-36 固化体取り出し後の
グラファイトるつぼ内側の様子
(NM_Y_1600_30_1)

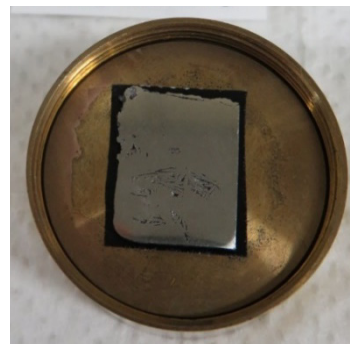


図 3. 2. 4-37 固化体試料の断面写真
(NM_Y_1600_30_1)

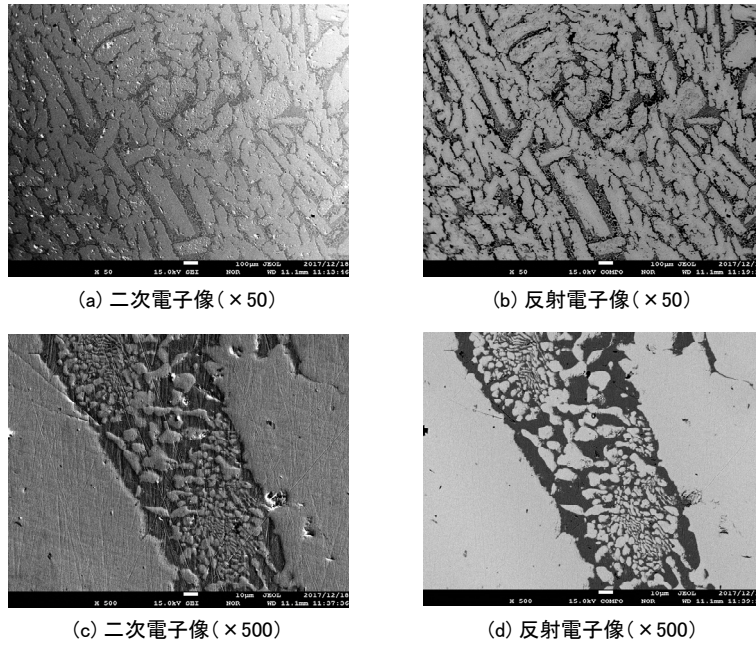


図 3. 2. 4-38 固化体試料の中央付近での 2 次電子像と反射電子像 (NM_Y_1600_30_1)

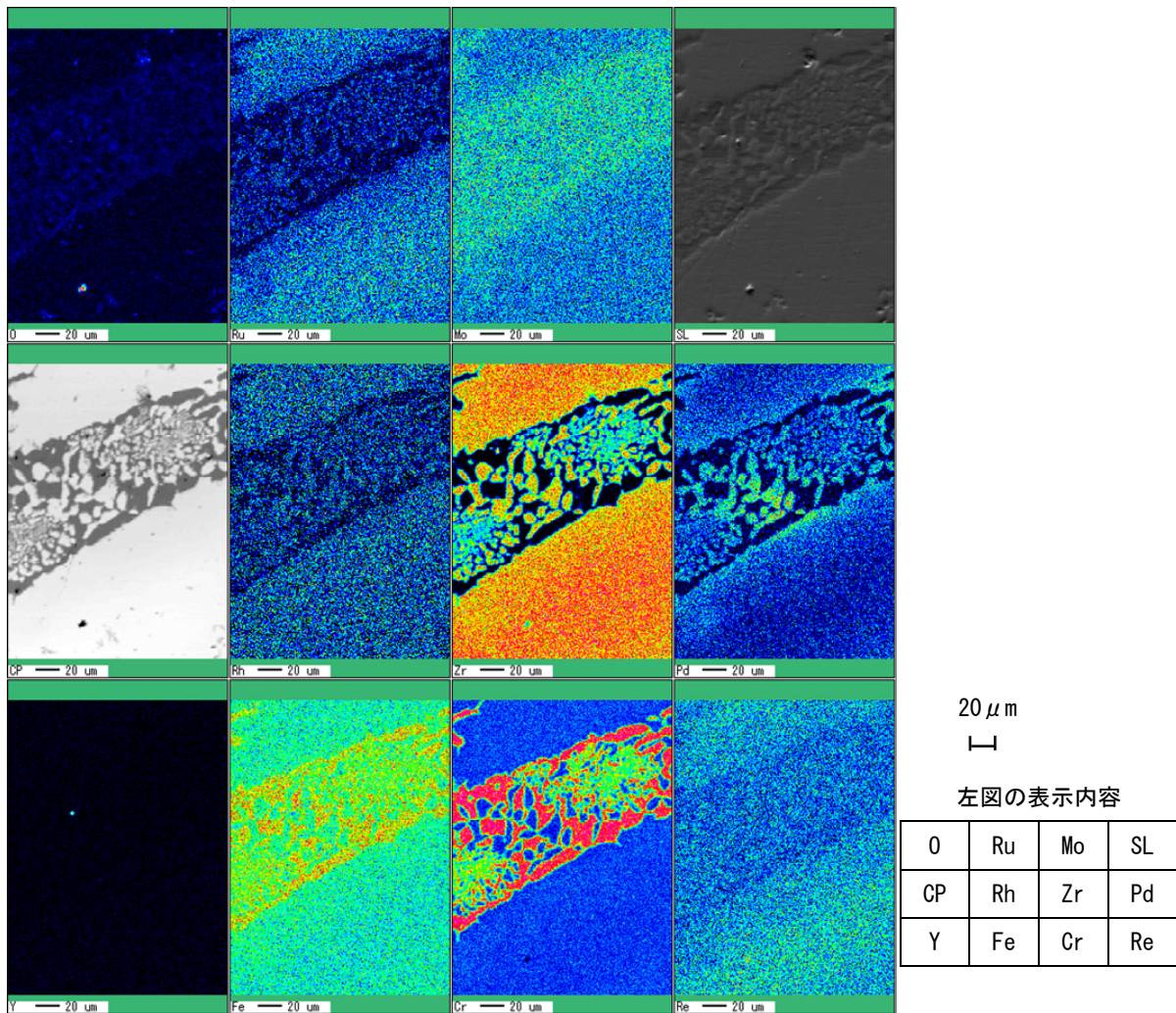


図 3. 2. 4-39 図 3. 2. 4-38(×500)の位置で EPMA により観察した固化体構成各元素の分布

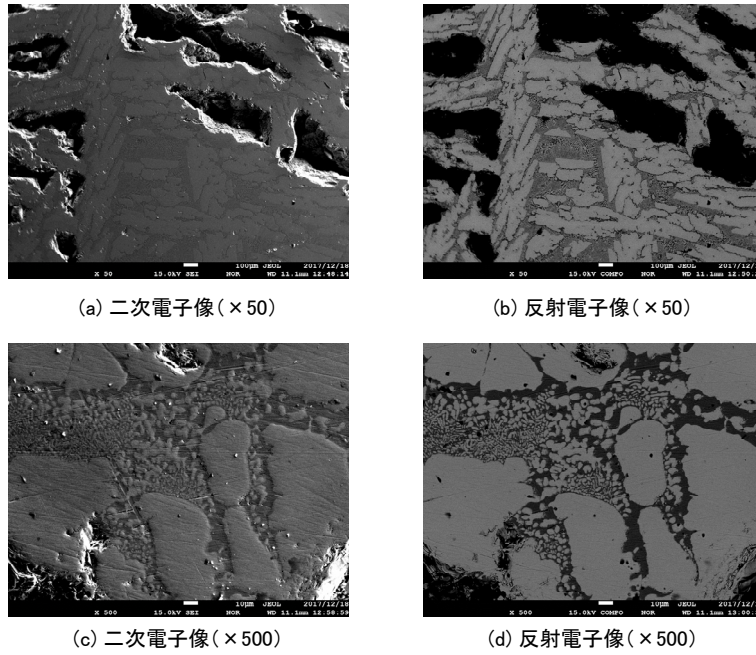


図 3. 2. 4-40 固化体試料の引け巣付近での 2 次電子像と反射電子像 (NM_Y_1600_30_1)

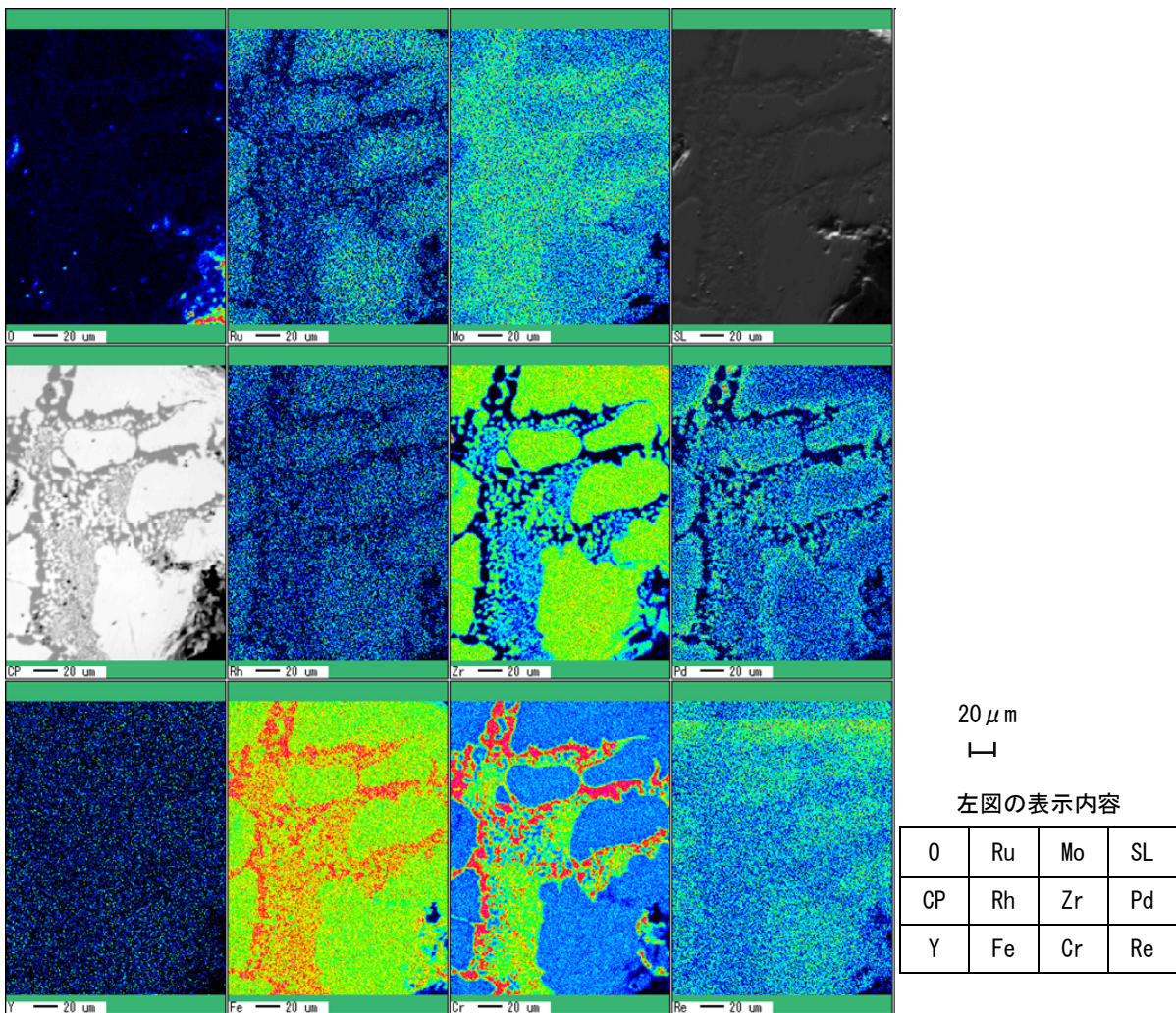
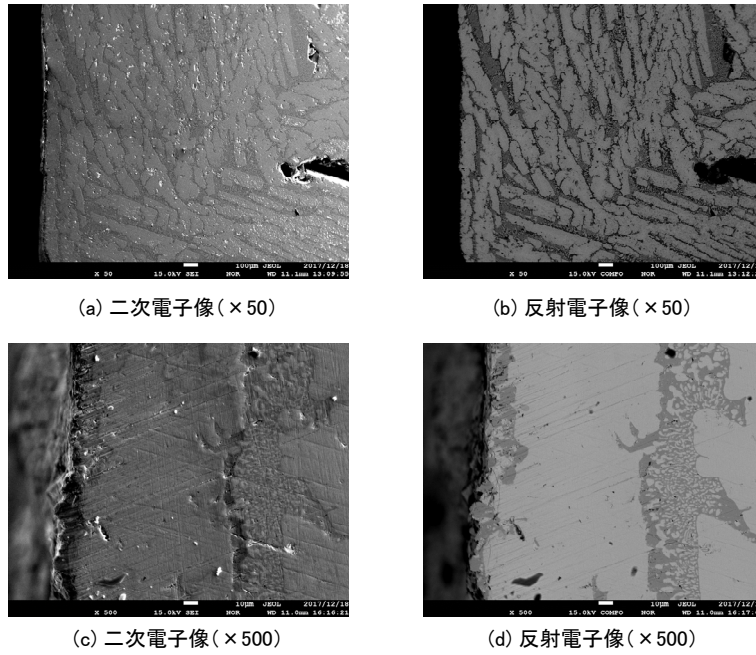


図 3. 2. 4-41 図 3. 2. 4-40(×500)の位置で EPMA により観察した固化体構成各元素の分布



(a) 二次電子像(×50)

(b) 反射電子像(×50)

(c) 二次電子像(×500)

(d) 反射電子像(×500)

図 3. 2. 4-42 固化体試料とろつぽ界面付近での 2 次電子像と反射電子像 (NM_Y_1600_30_1)

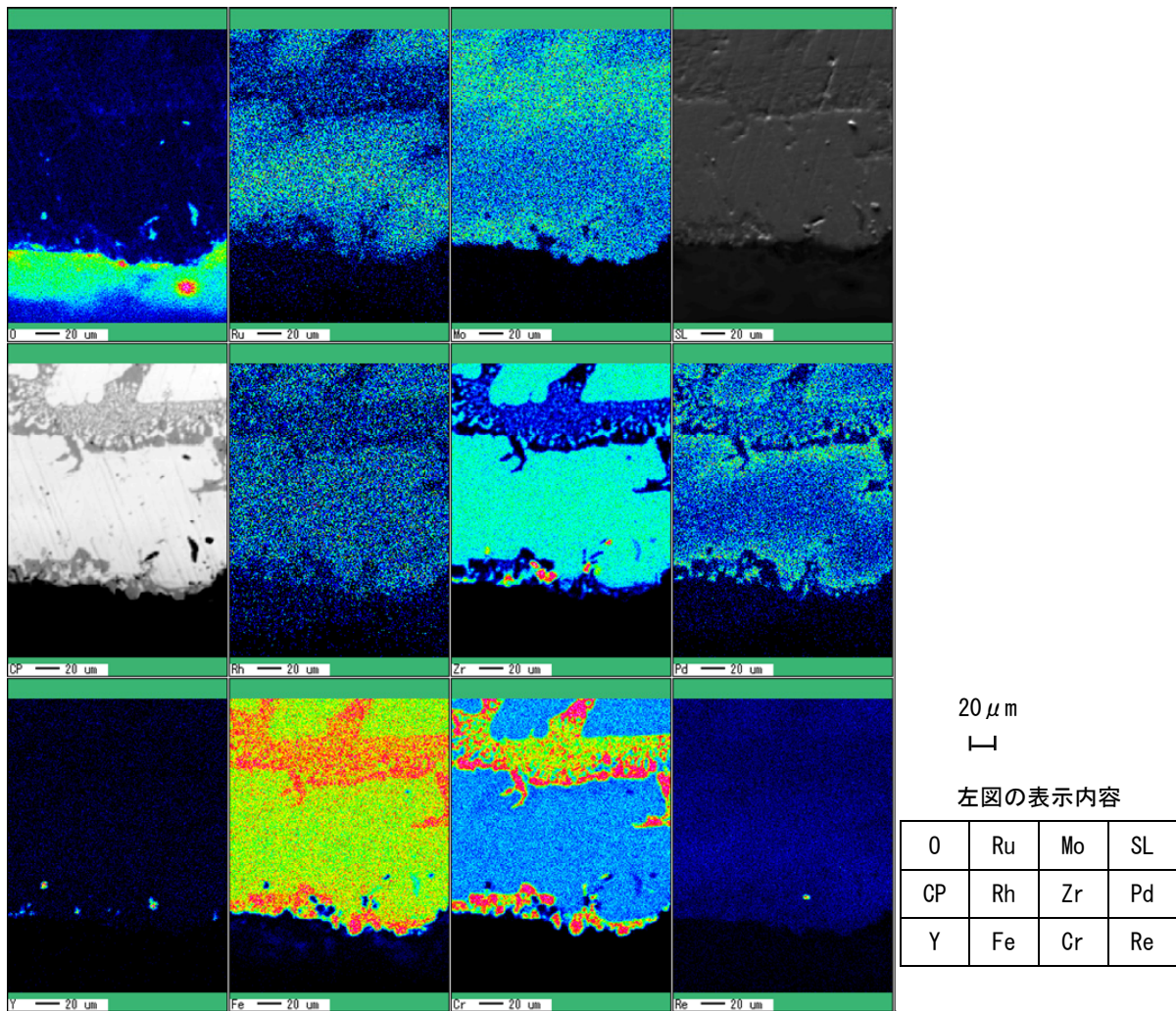


図 3. 2. 4-43 図 3. 2. 4-42(×500)の位置で EPMA により観察した固化体構成各元素の分布

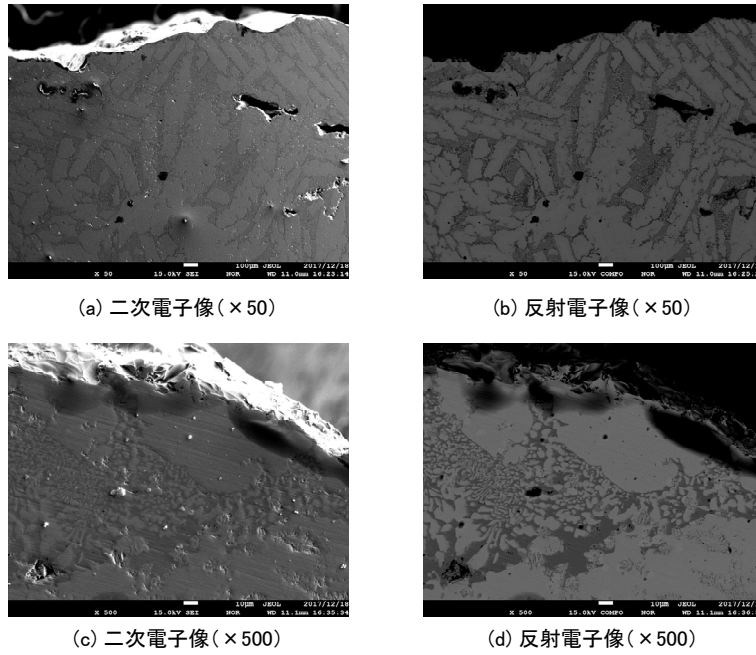


図 3. 2. 4-44 固化体試料の上表面付近での 2 次電子像と反射電子像 (NM_Y_1600_30_1)

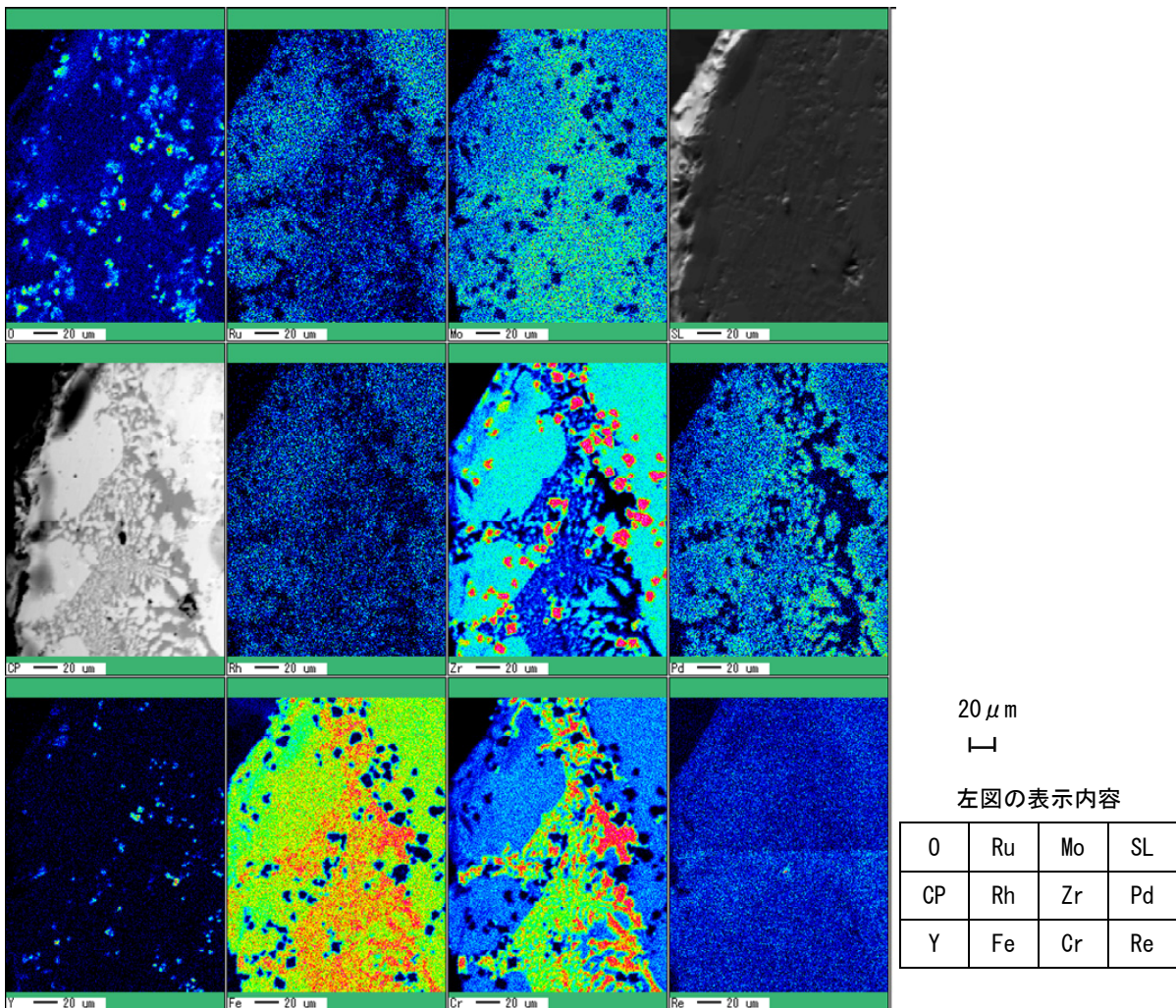


図 3. 2. 4-45 図 3. 2. 4-44 (×500) の位置で EPMA により観察した固化体構成各元素の分布



上面



側面



底面

図 3. 2. 4-46 冷却後のるつぼから取り出した固化体の外観 (NM_Y_1600_30_2)



図 3. 2. 4-47 固化体取り出し後のグラファイトるつぼ内側の様子 (NM_Y_1600_30_2)



図 3. 2. 4-48 固化体試料の断面写真 (NM_Y_1600_30_2)

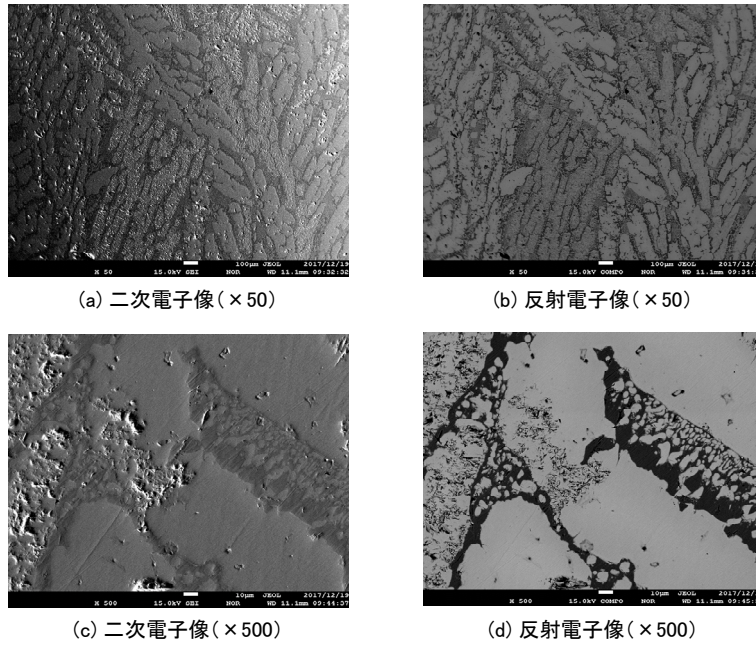


図 3. 2. 4-49 固化体試料の中央付近での 2 次電子像と反射電子像 (NM_Y_1600_30_2)

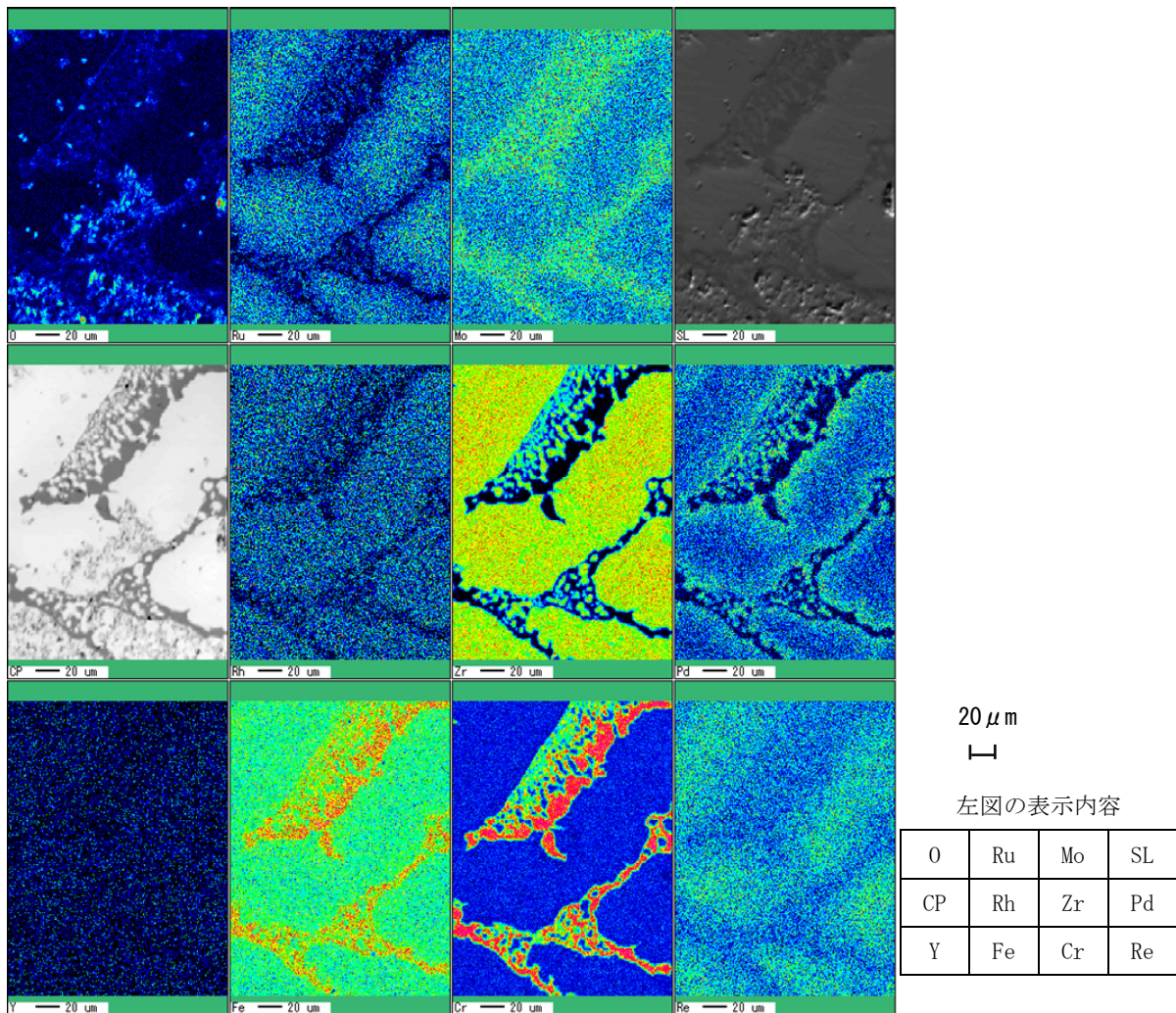


図 3. 2. 4-50 図 3. 2. 4-49 (×500) の位置で EPMA により観察した固化体構成各元素の分布

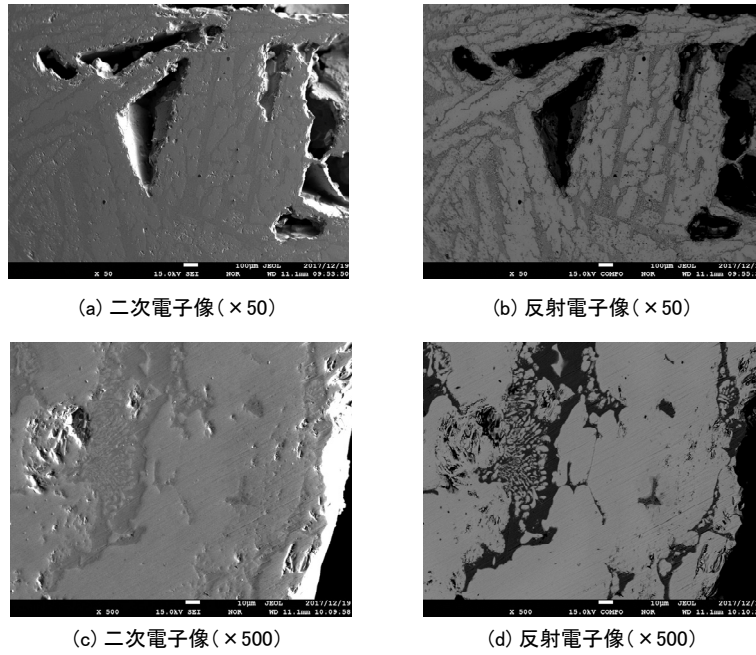


図 3. 2. 4-51 固化体試料の引け巣付近での 2 次電子像と反射電子像 (NM_Y_1600_30_2)

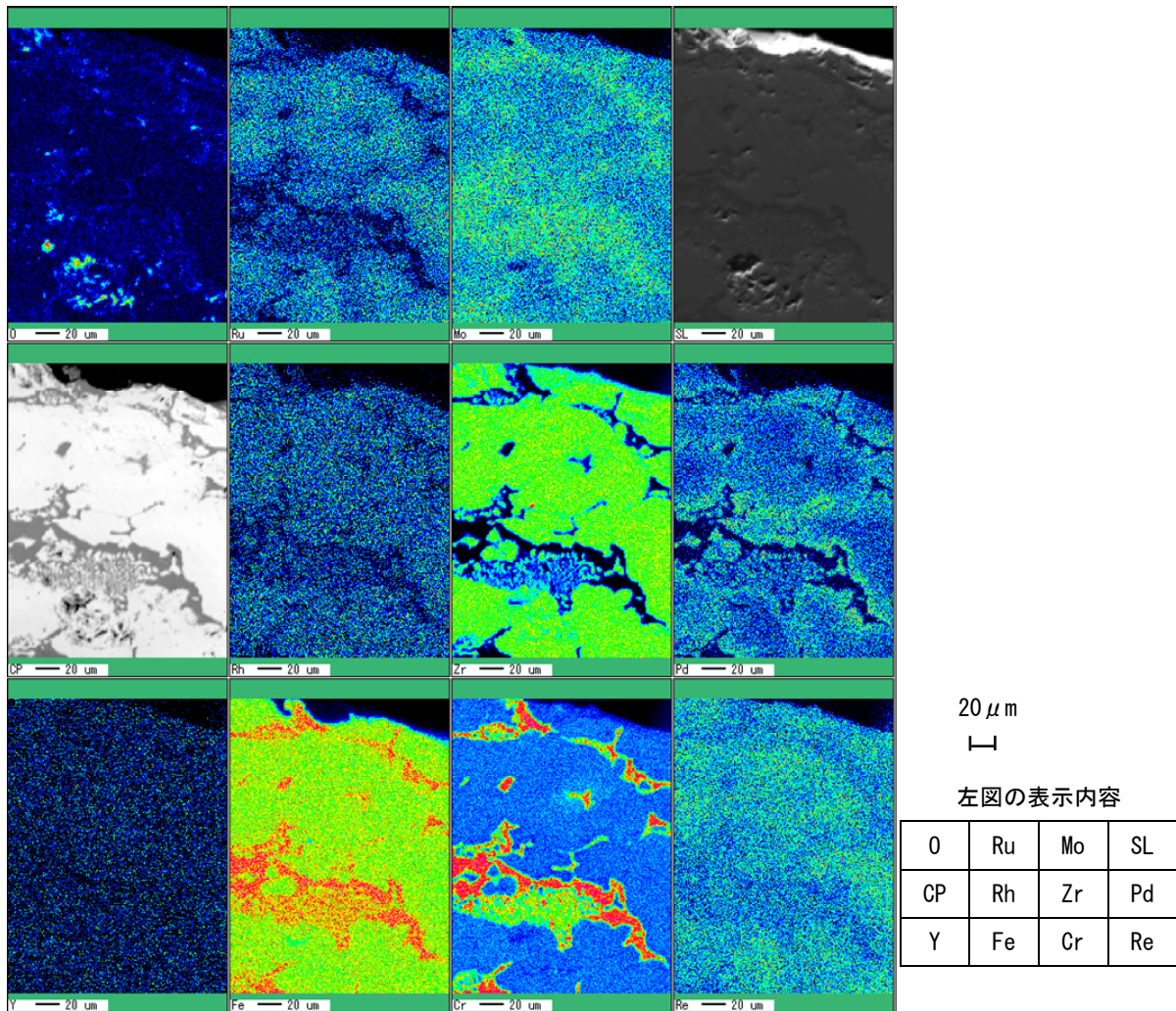


図 3. 2. 4-52 図 3. 2. 4-51 (×500) の位置で EPMA により観察した固化体構成各元素の分布

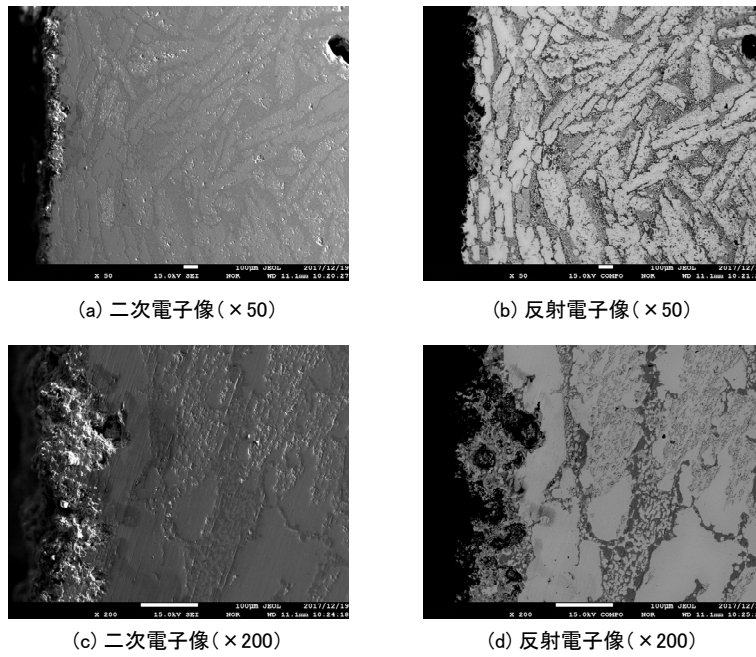


図 3. 2. 4-53 固化体試料とろつぼ界面付近での 2 次電子像と反射電子像 (NM_Y_1600_30_2)

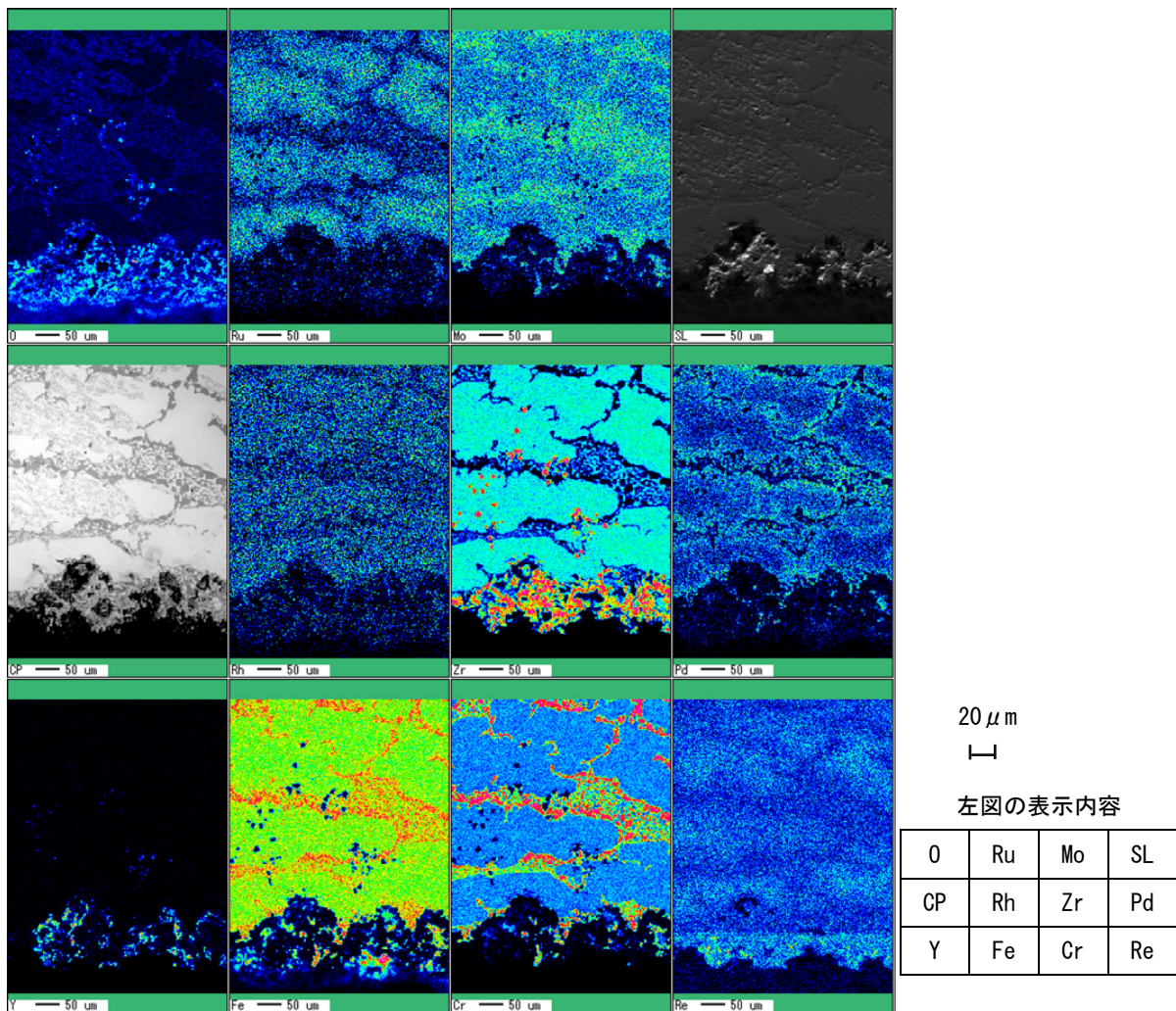


図 3. 2. 4-54 図 3. 2. 4-53(×200)の位置で EPMA により観察した固化体構成各元素の分布

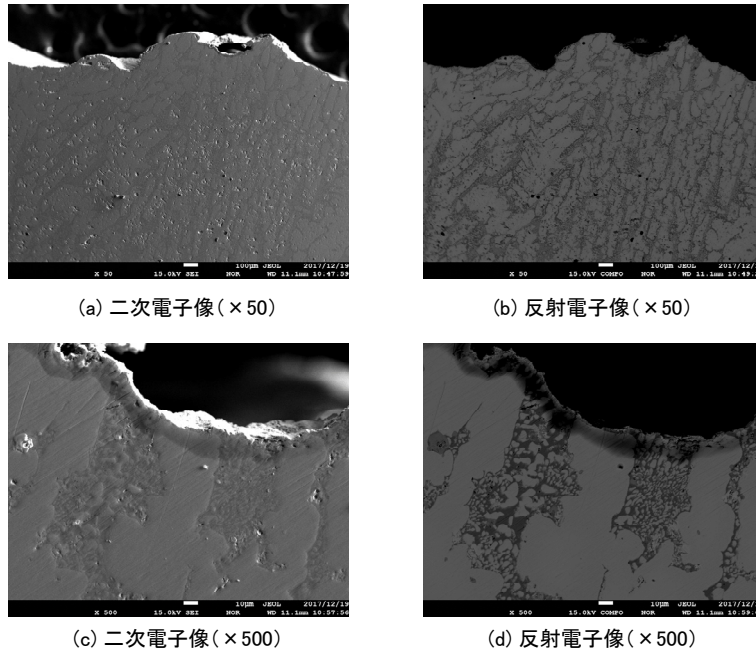


図 3. 2. 4-55 固化体試料の上表面付近での 2 次電子像と反射電子像 (NM_Y_1600_30_2)

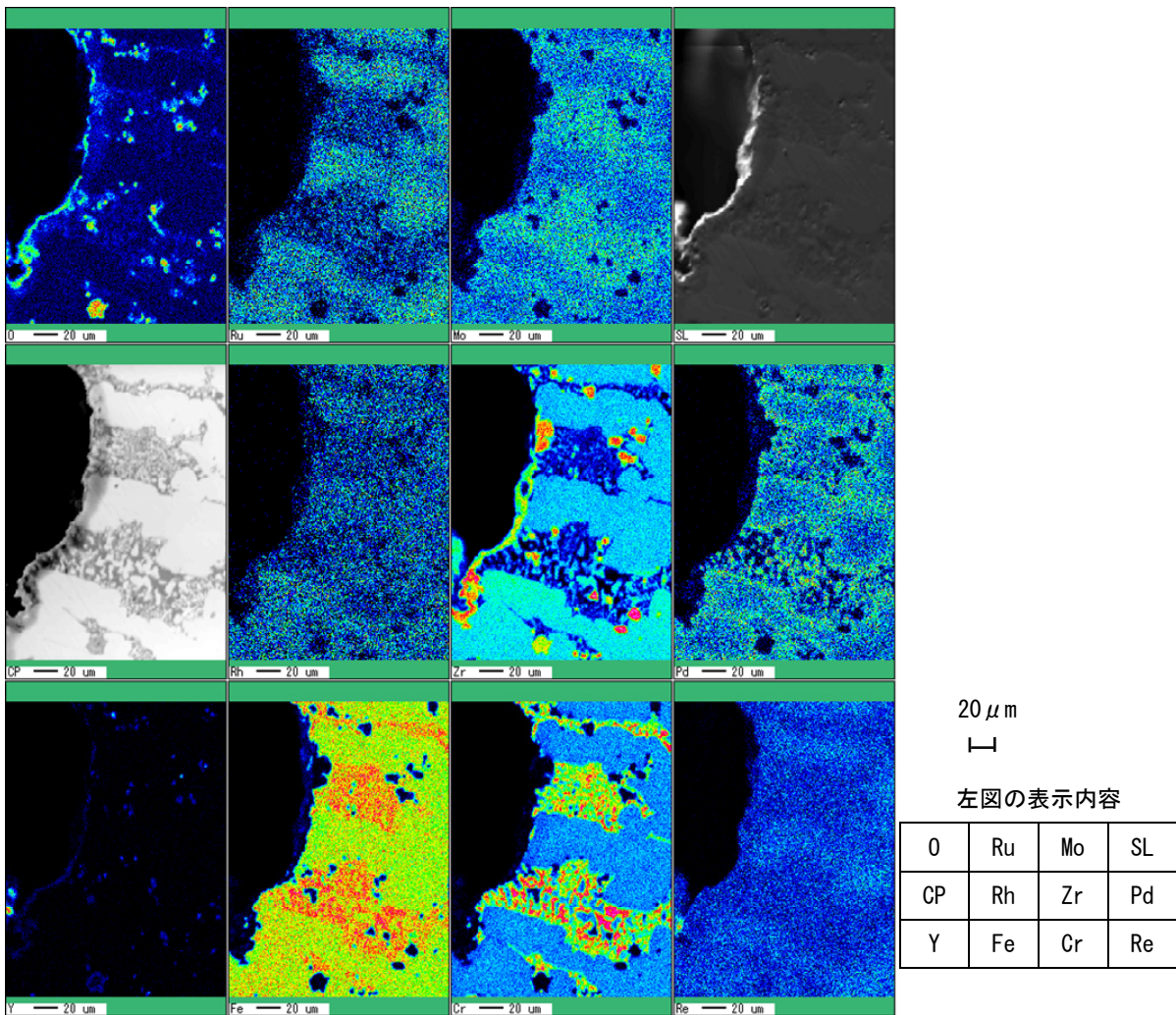


図 3. 2. 4-56 図 3. 2. 4-55 (×500) の位置で EPMA により観察した固化体構成各元素の分布

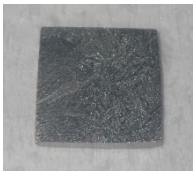
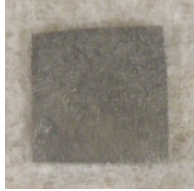
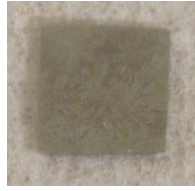
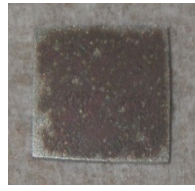
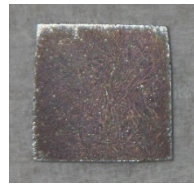
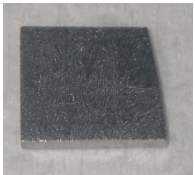
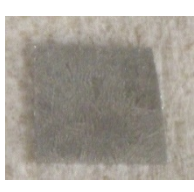
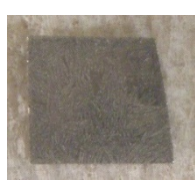
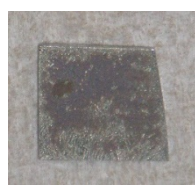
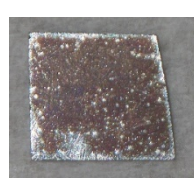
試験片名	浸出前	浸出後（累積浸出期間）			
		14日	28日	70日	140日
30Zr-1					
30Zr-2					

図 3. 2. 4-57 各試験片の浸出前後での外観




試験片名	累積浸出期間		
	14日	28日	
	内容器内部+フッ素樹脂製網	内容器内部	フッ素樹脂製網
30Zr-1			
30Zr-2			

図 3. 2. 4-58 14日及び28日間の浸出後の内容器内部及びフッ素樹脂製網の様子

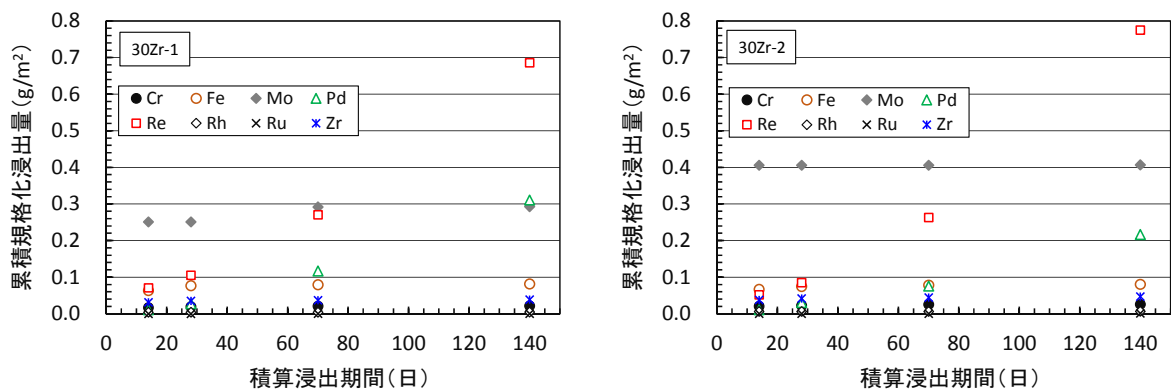


図 3. 2. 4-59 各試験片からの累積規格化浸出量の浸漬期間による変化

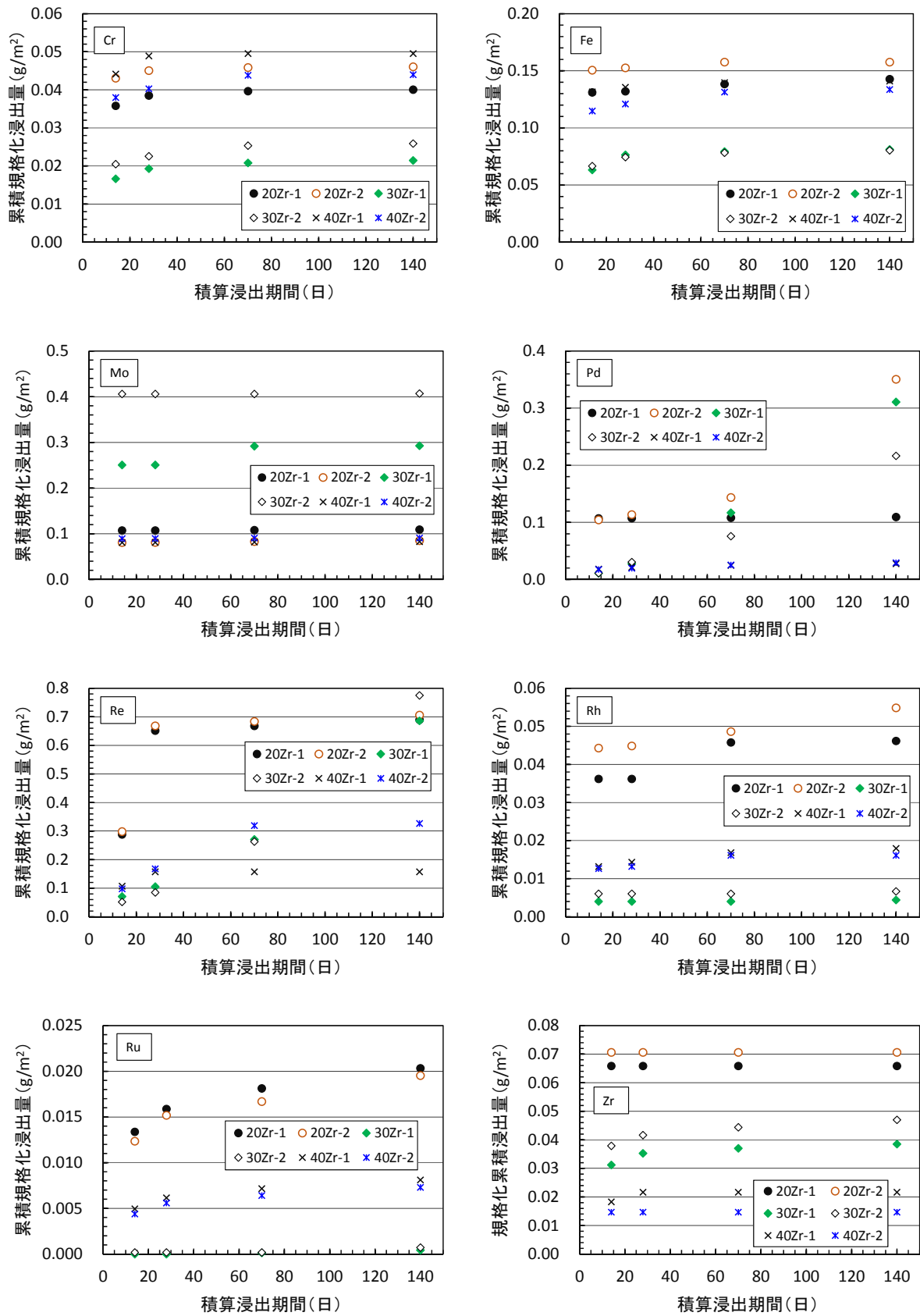


図 3.2.4-60 各元素の累積規格化浸出量の浸漬期間による変化

3.3 炉心開発

3.3.1 最適化炉心設計手法の開発 (H26, H27)

(1) 概要

U を含まない TRU 金属燃料炉心では、安全性確保の観点からドップラー反応度の改善（増強）、ボイド反応度の低減、運転サイクル長さなど炉心性能の観点からは燃焼反応度の低減等が重要である。しかし、これらの特性パラメータは相反する面があるため、本研究では炉心構築に先立ち、まず始めに炉心仕様最適化のための手法を開発した。具体的には、炉心高さ、減速材、燃料合金材、バーナブルポイズン等をパラメータとして様々なケースの炉心解析を実施し、炉心仕様と炉心特性の相関を分析、検討した。その結果、ドップラー係数やボイド反応度は、中性子の減速能、輸送断面積、燃料合金材の捕獲断面積、及び炉心高さの4つの炉物理的指標にて概略値を算出できることが分かった。更に、この炉物理的指標と主要炉心特性の関係を相関マップとして定式化し、ドップラー係数とボイド反応度への要求条件をバランスよく満足する炉心仕様を容易に見出すことが出来る炉心最適化設計手法を開発した。

また、炉心の受動安全特性確保の観点から、過出力型スクラム失敗事象（Unprotected Transient Over Power:UTOP）時及び流量減少型スクラム失敗事象（Unprotected Loss of Flow:ULOF）時においても燃料溶融及び冷却材沸騰が防止できる、ドップラー係数とボイド反応度への要求条件を炉心のパラメータ過渡解析により明らかにし、上記の炉心最適化手法と組み合わせることにより、高い安全性を確保できる炉心仕様を容易に見出すことが可能となった。

(2) 炉心最適化手法の構築

①TRU 金属燃料炉心の設計上の課題

U を含まない TRU 金属燃料炉心では、同一の炉心形状、燃料寸法の U を含む U-TRU 金属燃料炉心と比較して表 3.3.1-1 に示す様にドップラー係数が大きく低下する。また、燃焼反応度が大幅に増加する等の課題が生じる。それに対し、低下したドップラー係数を増加させる為に減速材ピンを導入すると、図 3.3.1-1 に示す様にボイド反応度の増加を招き、ボイド反応度の増加を低減するために炉心高さを扁平化するとドップラーは低下する⁽¹⁾。また、Pu の比率が高い燃料では融点の低下が生じることから、Zr を～40%程度まで高める必要があり、その場合の燃料の熱伝導度は通常の U 有金属燃料と比較して図 3.3.1-2 に示す様に 60%程度に低下する^{(2), (3), (4)}。これにより炉心の過渡特性、特に UTOP 時でも燃料溶融を防止する為に線出力の低減等の対策が必要となる。これらの課題への対策案を表 3.3.1-2 に示す。

②炉心仕様と炉心特性の相関

表 3.3.1-3 に炉心仕様と炉心特性の相関を把握するために想定したレファレンス仕様とパラメータサーベいの範囲を示す。また、パラメータサーベいの基準とした炉心配置及び燃料集合体の断面仕様を図 3.3.1-3 に示す。パラメータ解析の結果を汎用化して使うことができるように、ドップラー係数とボイド反応度については、以下の4

つの炉物理パラメータで整理した。

- ・減速能
- ・燃料合金材料捕獲断面積
- ・炉心高さ
- ・炉心部のマクロ輸送断面積

その結果を図 3.3.1-4、5 に示す⁽²⁾。これらの結果を用いて、横軸を炉心高さ、縦軸を減速能及び輸送断面積としてドップラー係数とボイド反応度を等高線図として整理した結果を図 3.3.1-6 に示す⁽²⁾。横軸を炉心高さ、縦軸を燃料合金材の捕獲断面積として同様に等高線図として整理した結果を図 3.3.1-7 に示す⁽²⁾。

更に、各種解析ケースの燃焼反応度と取出燃焼度の相関を整理した結果を図 3.3.1-8 に示す⁽⁵⁾。バーナブルポイズンとして B_4C を炉心に装荷した場合を除けば、種々のドップラー係数改善対策に関わらず、概ね燃料の取出平均燃焼度に比例しており、いずれの場合も炉心扁平化は燃焼反応度低減に効果があることが分かる。

これらの相関図を使えば、目標とするドップラー係数とボイド反応度が設定されれば、炉心高さや炉心部の減速能等をどのような仕様にすれば良いかが、概ね予測できようになり、有用な炉心最適化手法が整備できた。

(3) 受動的安全性確保のための要求条件評価

炉心の受動的安全性確保の観点からドップラー係数、ボイド反応度に対する ULOF、UTOP での燃料溶融及び冷却材沸騰防止のための要求条件を評価した。これらの成立判断基準は下記とした。

燃料中心最高温度	1150℃以下（燃料溶融防止）
冷却材最高温度	920℃以下（冷却材沸騰防止）

評価対象炉心は、これまでのパラメータ解析結果を踏まえ、炉心高さは 65cm、BeO 減速材ピンを配置し、TRU 金属燃料の熱伝導率の低下効果⁽²⁾を踏まえ、まずは最大線出力が 360w/cm と $360w/cm * 0.7 = 約 250w/cm$ の 2 ケースについて、ボイド反応度とドップラー係数をパラメータとした ULOF 及び UTOP 時の予備的過渡解析を行った。解析はフローネットワークモデル過渡解析コード ARGON⁽⁶⁾にて行った。その結果、ULOF 時には、ボイド反応度とドップラー係数が広い範囲で受動的安全性が成立するが、UTOP 時は燃料溶融防止が困難（すなわち、UTOP 事象がクリティカル事象）であることが分かった。

このため、最大線出力を更に 210w/cm まで低減した場合を基準ケースとして、ボイド反応度とドップラー係数に対する受動的安全性確保のための要求条件を同様の過渡解析にて評価した。UTOP 時の制御棒誤引き抜き（1本）挿入反応度は $60\phi / 200$ 秒、ULOF 時の一次系ポンプ半減時間は 10 秒とした。燃料の熱伝導度及び比熱は 3.1.1 章で評価した、Pu-40Zr の値を用いた。過渡時の反応度フィードバックは、ドップラー効果、冷却材密度

変化効果、燃料密度変化効果、構造材密度変化効果、支持板膨張効果、及び炉心の径方向膨張効果を考慮した。

以上の条件下にて、ドップラー係数とボイド反応度を下記範囲で変化させて UTOP 及び ULOF 時のパラメータ過渡解析を行った。

ドップラー	$-5 \times 10^{-3} \sim -1.5 \times 10^{-3} \text{ Tdk/dT}$
全炉心ボイド反応度	$-5\% \sim +3\%$

この結果、得られた受動的安全性確保のために必要なドップラー係数とボイド反応度の範囲を図 3.3.1-9 に示す⁽²⁾。このサーベイ範囲では、初期の UTOP 時の燃料溶融防止が支配因子となっており、この範囲内であれば ULOF 時の受動的安全性は確保されている。このように、本検討において ULOF が支配因子になっていない主な要因は UTOP 時の挿入反応度が 60ϕ と比較的大きいためと思われる。

(4) 今後の開発課題

ここで構築した炉心の最適化手法における上記相関図等は、本研究で目指すウラン無し TRU 金属燃料炉心をベースとしたものであり、汎用的なものではない。しかし、ここで用いた、炉心仕様と特性の相関を整理するための炉物理パラメータや、相関図作成の基本的な考え方は、本研究以外の炉心設計等に活用できるものであり、この手法そのものに関する、今後の実証試験などの開発課題は特にない。

(5) まとめ

炉心高さ、減速材、燃料合金材、バーナブルポイズン等をパラメータとして様々なケースの炉心解析を実施し、炉心仕様と炉心特性の相関を分析、検討した。その結果、ドップラー係数やボイド反応度は、中性子の減速能、輸送断面積、燃料合金材の捕獲断面積、及び炉心高さの4つの炉物理的指標にて概略値を算出できることが分かった。更に、この炉物理的指標と主要炉心特性の関係を相関マップとして定式化し、ドップラー係数とボイド反応度への要求条件をバランスよく満足する炉心仕様を容易に見出すことが出来る炉心最適化設計手法を開発した。また、炉心の受動安全特性確保の観点から、UTOP 時及び ULOF 時においても燃料溶融及び冷却材沸騰が防止できる、ドップラー係数とボイド反応度への要求条件を炉心のパラメータ過渡解析により明らかにして、上記の炉心最適化手法と組み合わせることにより、安全性も確保した炉心仕様を容易に見出すことが可能となった。

参考文献

- (1) 原子力システム研究開発事業、「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」、平成 26 年度成果報告書(2015)
- (2) 原子力システム研究開発事業、「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」、平成 27 年度成果報告書(2016)

- (3) M.C. Billone, et. al., "Status of fuel element modeling codes for metallic fuels", Int. Conf. on Reliable Fuels for Liquid Metal Reactors, Tucson, September 7-11, 1986.
- (4) Y. Tsuboi, K. Arie, C. Papesch, B. Miller, R. Mariani, Y. Arita and H. Ohta, "Fundamental Properties for Evaluation of Uranium-free TRU-Zr Metal Fuel Performance", ANS 2016 Winter Meeting, Las Vegas, Nov. 6 -10, 2016.
- (5) 原子力システム研究開発事業、「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」、平成 28 年度成果報告書(2017)
- (6) H.ENDO, EL. KUMAOKA, Y. GOLAN, S. and NAKAGAWA, H. "Passive safety features of a bottom supported fast breeder reactor vessel", Nuclear Technology, Vol.99, p.318, (1992)

表 3.3.1-1 U 有炉心と U 無炉心の特性⁽¹⁾

燃料	U有 氧化物燃料 TRUO ₂ -UO ₂	U有 金属燃料 TRU-U-Zr	U無 金属燃料 TRU-Zr
TRU富化度 (wt%)			
内側炉心	28	20	—
外側炉心	38	27	—
平均	32	23	—
燃料合金材割合 (wt%)			
内側炉心	—	10	66
外側炉心	—	10	58
平均	—	10	62
燃焼反応度 (%dk/kk')	2.7	1.7	6.5
増殖比 ^{*1)}	0.58	0.73	0.12
最大高速中性子束 ^{*2)} (n/cm ² ·s)	3.4E+15	3.8E+15	4.5E+15
最大全中性子束 (n/cm ² ·s)	5.7E+15	5.8E+15	7.3E+15
最大高速中性子照射量 ^{*2)} (n/cm ²)	2.1E+23	2.5E+23	2.9E+23
取出平均燃焼度 (atom%)	9.0	6.6	27.8
燃料装荷量 (kg/バッチ)			
U	799.7	1236.4	0.0
Pu	333.7	325.2	328.7
Np	19.7	19.2	19.4
Am	26.7	26.0	26.3
Cm	1.6	1.6	1.6
合計	1181.4	1608.3	376.0
燃料燃焼量 (kg/バッチ)			
U	59.0	75.0	0.0
Pu	38.3	24.0	93.7
Np	6.5	5.4	7.8
Am	4.6	3.7	5.9
Cm	-2.7	-2.2	-3.1
合計	105.7	105.8	104.2
最大線出力 (W/cm)			
内側炉心	353	334	400
外側炉心	354	342	370
集合体出力ミスマッチファクター ^{*3)}			
内側炉心 (最大)	1.08	1.04	1.27
外側炉心 (最大)	1.09	1.06	1.18
燃料 ^{*4)} ドップラー係数 (Tdk/dT)			
内側炉心	-3.1E-03	-2.2E-03	-6.3E-04
外側炉心	-1.2E-03	-1.0E-03	-3.3E-04
合計	-4.3E-03	-3.2E-03	-9.5E-04
構造材 ^{*5)} ドップラー係数 (Tdk/dT)			
内側炉心	-5.5E-04	-3.4E-04	-8.9E-04
外側炉心	-2.1E-04	-1.3E-04	-3.2E-04
合計	-7.6E-04	-4.7E-04	-1.2E-03
ボイド ^{*6)} 反応度 (%dk/kk')			
内側炉心	1.71	2.24	0.91
外側炉心	0.11	0.27	-0.46
上部プレナム	-0.39	-0.29	-0.48
合計	1.43	2.23	-0.02

*1) 平衡サイクル中期

*2) 0.1MeV 以上

*3) 新旧燃料集合体の最大集合体出力と平均集合体出力との比

*4) 酸素或いは合金材を含む燃料温度を 1000K→1500K

*5) ラッパ管、被覆管及びスパーサワイヤの構造材温度を 700K→1200K

*6) 冷却材 100%をボイド

表 3.3.1-2 技術課題に対する設計対策

技術課題	設計対策案	
燃料融点上昇	Zr 添加量を 30-40%にして融点を 1100-1400°Cに保つ Zr 添加量 30-40%となるように燃料ピン本数を調整	
燃料熱伝導度の低下	線出力の低減	
ドップラー係数の低下	中性子スペクトルの軟化	MgAl ₂ O ₄ 、BeO 等の減速材ピンを燃料ピンと集合体内で混在して装荷。
	燃料合金をドップラー領域の吸収断面積の大きいものに変える。	TRU-Mo、TRU-Nb を TRU-Zr のかわりに導入
ドップラー係数の増加時のボイド反応度の上昇	中性子漏洩の増加	炉心高さの低減
燃焼反応度の低減	燃料インベントリの増加	中性子漏洩が大きい炉心（例炉心高さを低くする）
	バーナブルポイズン	中性子減速材と B ₄ C を装荷

表 3.3.1-3 特性マップ作成用の炉心仕様とパラメータサーベイ範囲

項 目	値
炉出力	714MW t
サイクル長	148 日
炉心配置及び燃料集合体断面仕様	図 3.3.1-3
金属燃料合金材料	Zr (ref) 、Mo, Nb
炉心高さ	93、65、40cm
炉心体積	2335 リットル (一定)
燃料ピン径	0.475cm
燃料ピン本数／集合体	331 本 (全本数)
- TRU 燃料ピン	169 本
- 中性子減速材もしくはバーナブルポイズン	162 本
中性子減速材 (減速ピン本数サーベイ範囲)	BeO、MgAl ₂ O ₄ 、中空ピン (0, 90, 162 本)
バーナブルポイズン	B ₄ C (均質、非均質配置)

Pu 同位体組成 (軽水炉取出し組成)

核種	Pu					Np	Am				Cm					(%)
	238	239	240	241	242		237	241	242m	243	242	243	244	245	246	
LWR 取り出し	2.1	48.9	21.8	8.4	6.2	5.2	5.6	0	1.4	0	0	0.4	0	0		
計	87.4					5.2	7				0.4					

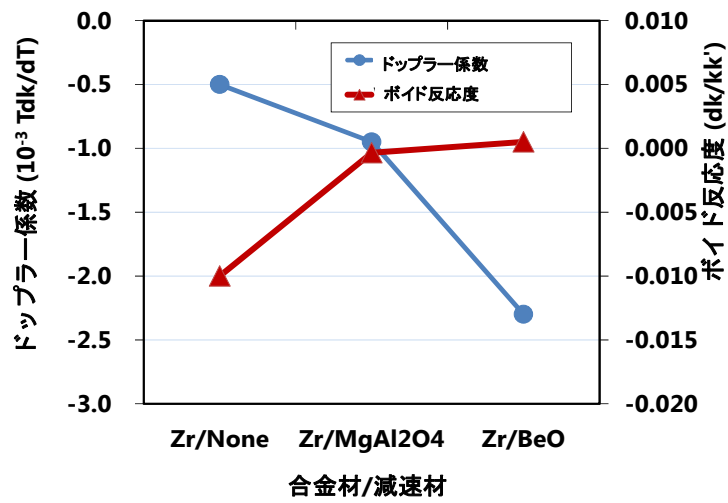
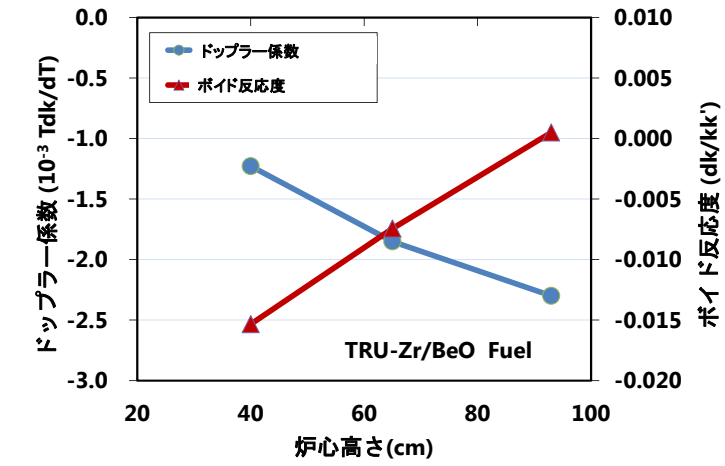


図 3.3.1-1 減速材、炉心高さに対するドップラー係数とボイド係数の感度

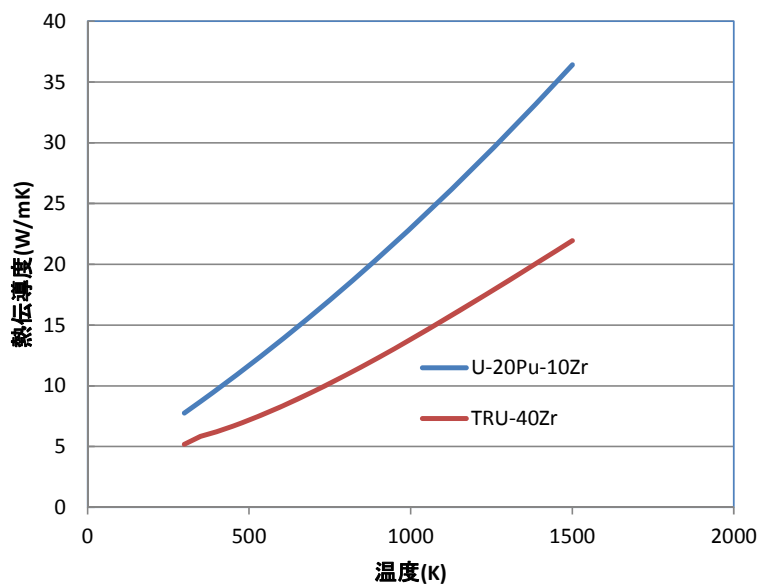
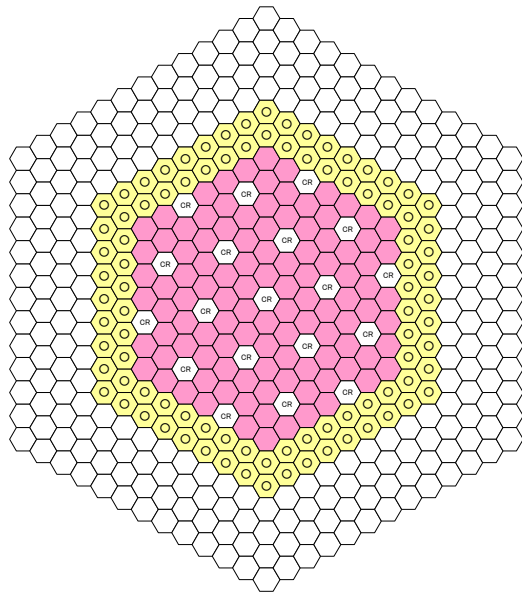
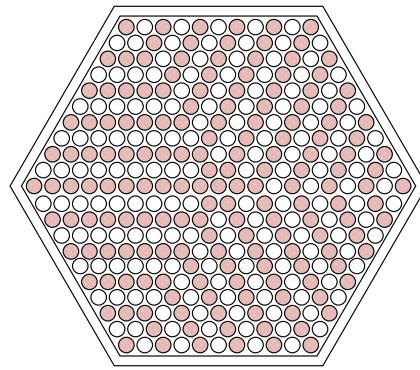


図 3.3.1-2 燃料熱伝導度の比較^{(2), (3), (4)}



- 内側炉心 108
- 制御棒 19
- 外側炉心 90
- 径252

炉心配置



- 燃料ピン
- 中空ピン或いは減速材ピン

炉心燃料集合体断面

図 3.3.1-3 炉心配置及び炉心燃料集合体断面⁽²⁾

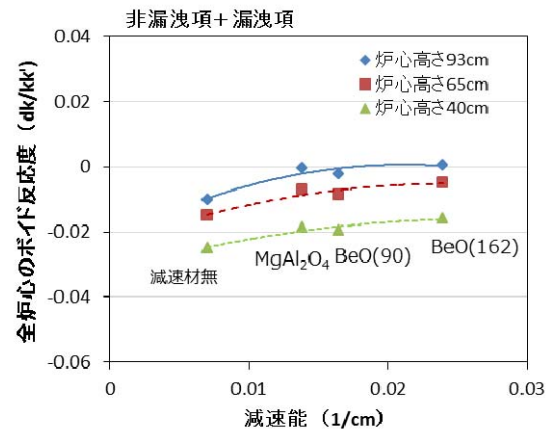
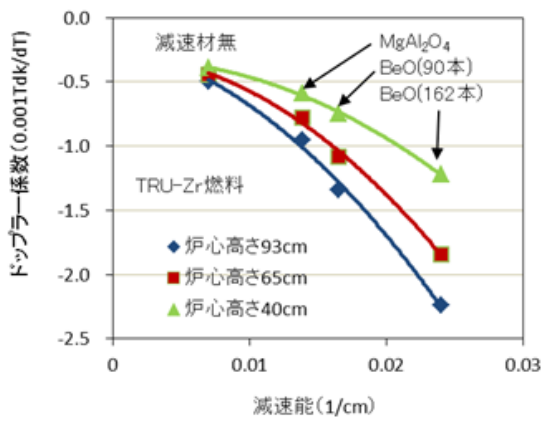


図 3.3.1-4 減速能とドップラー係数、ボイド反応度の関係⁽²⁾

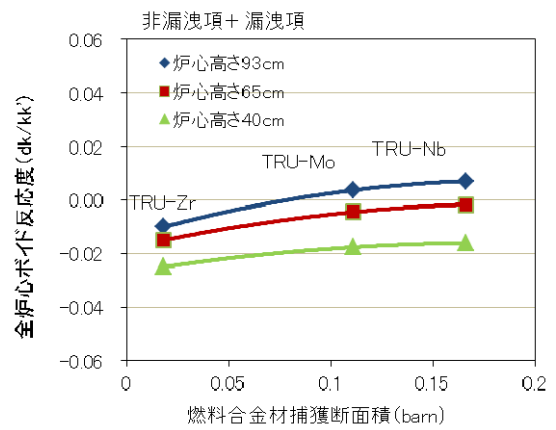
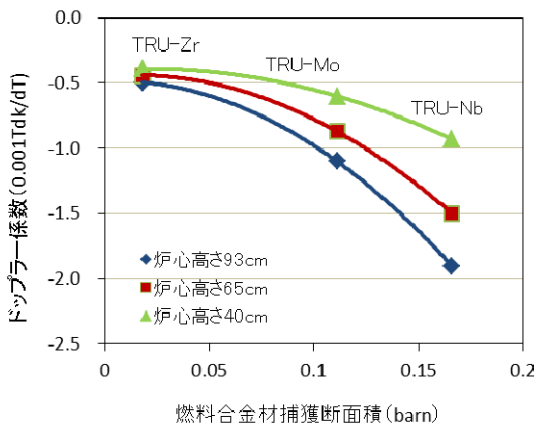


図 3.3.1-5 燃料合金捕獲断面積とドップラー係数、ボイド反応度の関係⁽²⁾

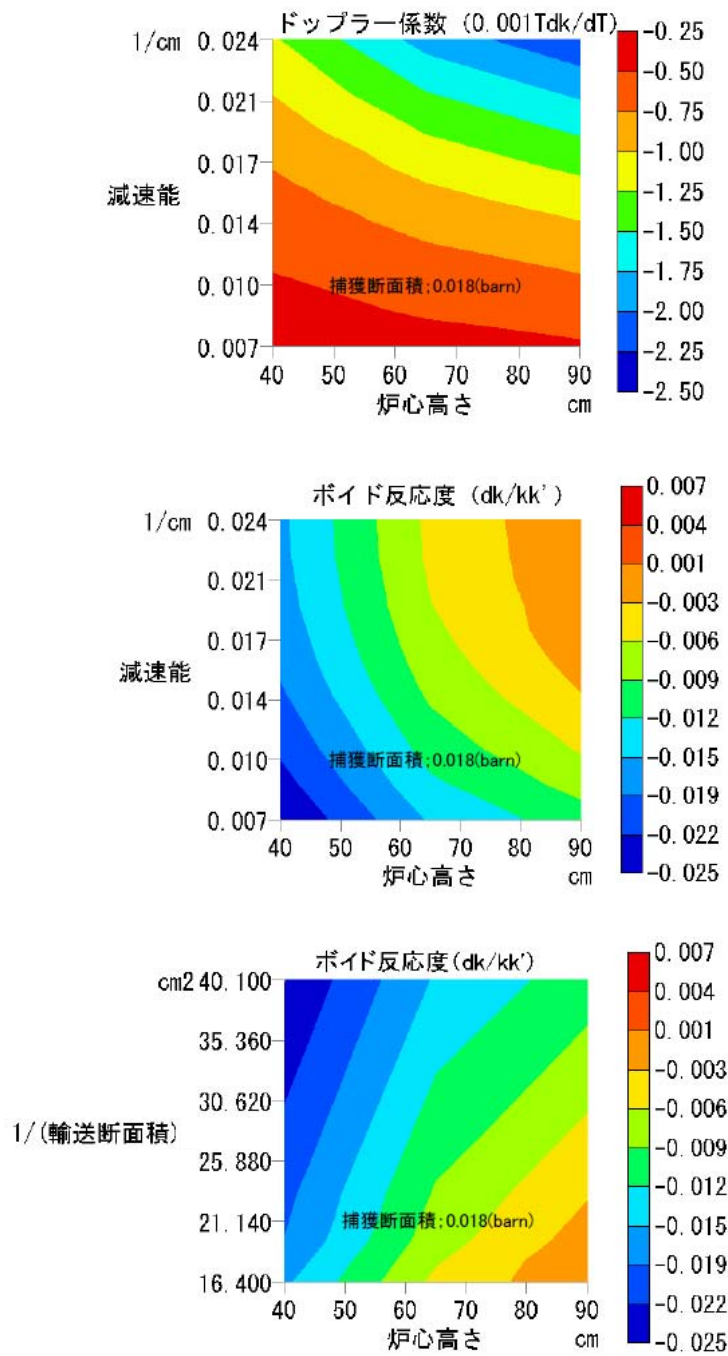


図 3.3.1-6 減速能・輸送断面積・炉心高さ とドップラー係数、ボイド反応度の相関マップ⁽²⁾

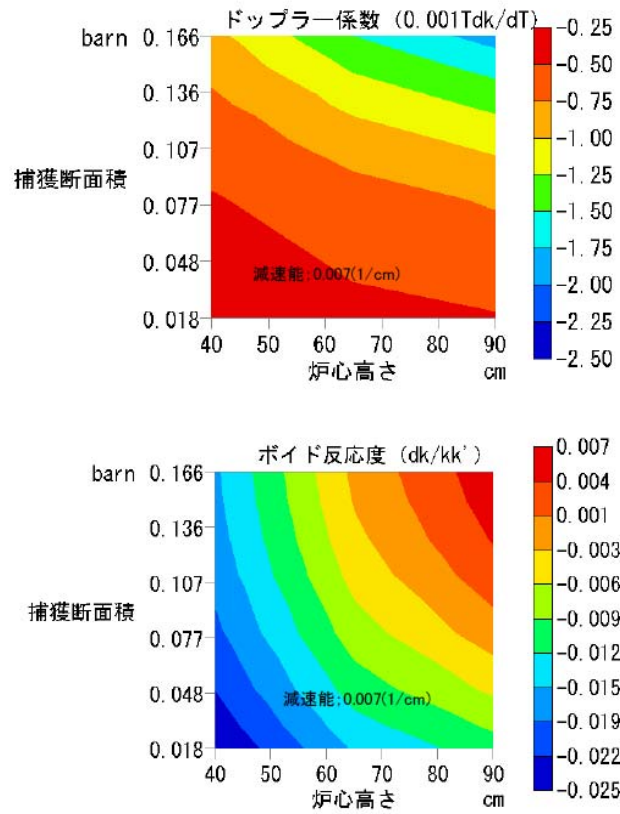


図 3. 3. 1-7 合金捕獲断面積・炉心高さとのドップラー、ボイド反応度の相関マップ⁽²⁾

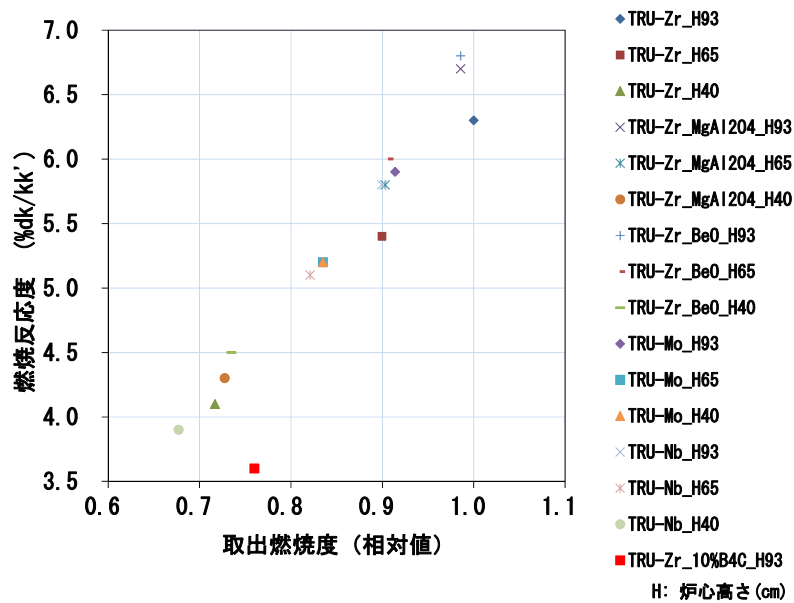


図 3. 3. 1-8 燃焼反応度と炉心仕様の相関のまとめ⁽⁵⁾

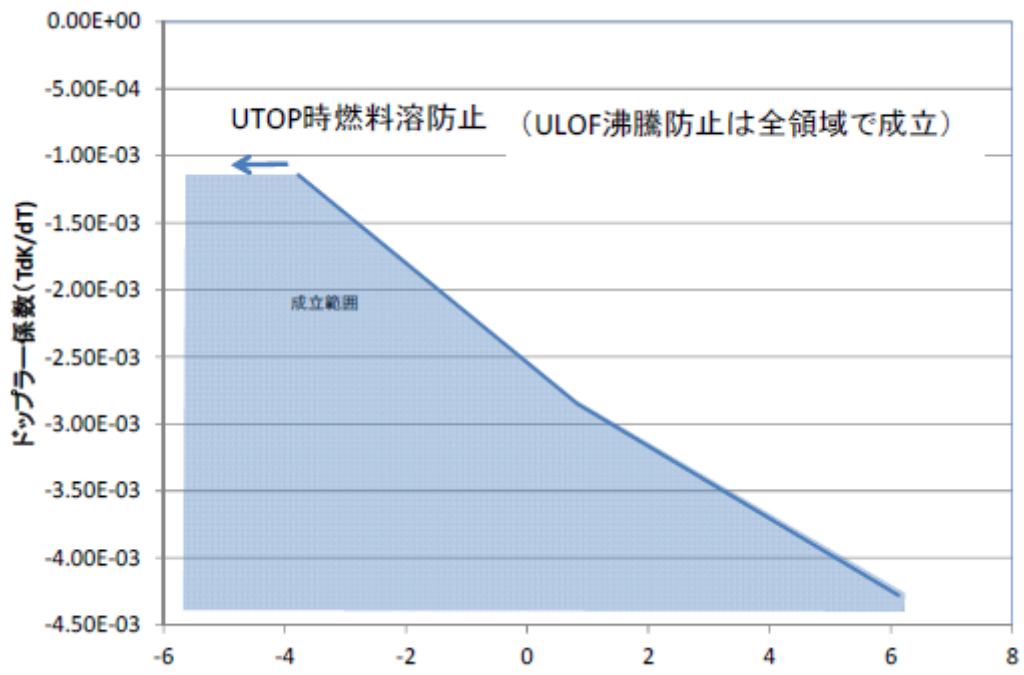


図 3. 3. 1-9 安全要求からの炉心特性要求範囲⁽²⁾

3.3.2 TRU 金属燃料炉心の構築 (H28)

(1) 概要

3.3.1 項にて開発した最適化炉心設計手法を用いて、U を含まない TRU 金属燃料炉心の基本仕様を選定し、基準炉心（軽水炉取出 TRU 燃料利用）とマルチリサイクル燃料炉心（TRU 金属燃料高速炉マルチリサイクル後の TRU 燃料利用）を構築した。TRU-40Zr 金属燃料をベースに BeO 減速材ピンを燃料集合体内に配置した、低線出力扁平炉心（最大線出力 210w/cm、炉心高さ 55cm）であり、その炉心特性、燃料特性及び安全特性を評価し、成立見通しを得た。また、希土類 FP 混入による炉心特性への影響を評価し、大きな問題は生じないことを確認した。

更に、構築した TRU 金属燃料炉心は過酷事故時を想定しても、燃料集合体中の燃料ピンと減速材ピンの配置の工夫により、U を含む通常の金属燃料炉心と同様に、起因過程で燃料分散等により事故終息できる見通しがあることを確認した。

(2) TRU 金属燃料炉心の構築

① 炉心仕様選定の基本的考え方

炉心構築の手順を図 3.3.2-1 に示す。

炉心設計上の課題に対する対策案と基本的考え方を表 3.3.2-1 に示す。燃料製造時や事故時の燃料溶融防止などの観点から、燃料組成は、融点が約 1400°C となる TRU-40Zr とする。また、それに伴う燃料熱伝導率の低下に対応して最大線出力は約 210w/cm となるように炉心・燃料仕様を選定する。ドップラー係数の低下、ボイド反応度の増加に対しては、上記最適化設計手法に基づき炉心高さ、減速材種類とその装荷量などを選定する。Nb などの燃料代替合金材は将来の潜在的な選択肢と考え、本検討では採用しない。また、燃焼反応度の低減対策としては、ボイド反応度抑制対策でもある炉心の扁平化を採用し、B₄C などのバーナブルポイズンは出力分布への悪影響の懸念があるため、本研究では採用しない。

② ドップラー係数及びボイド反応度対策の最適化

ドップラー係数とボイド反応度に対する設計対策の最適点を見出すために用いた具体的な手順を図 3.3.2-2 に示す。同図上部に示す受動的安全性確保が可能なドップラー係数とボイド反応度の範囲の中で、例えば、赤線で示すドップラー係数 $-2.25 \times 10^{-3} \text{Tdk/dT}$ 、ボイド反応度 $-0.09 \text{dk/kk}'$ となる設計点は、同図中央の炉心高さと減速能をパラメータとした等高線図から成立しないことがわかる。しかし、同図上部に紫色で示すドップラー係数 $-1.5 \times 10^{-3} \text{Tdk/dT}$ 、ボイド反応度 $-0.012 \text{dk/kk}'$ となる設計点は、同図下部の等高線図から炉心高さ 55cm、減速能 0.024cm^{-1} にて成立することが分かる。

以上の検討から、ドップラー係数とボイド反応度に対する要求条件を満足できる設計点として下記を選定した。

選定点	炉心高さ	55cm	
	減速能	0.024cm^{-1}	(燃料集合体内の BeO ピンと燃料ピンの本数割合がほぼ同数程度に相当)

③炉心仕様の具体化

以上の結果に基づき選定した炉心仕様を表 3.3.2-2 に、炉心配置と集合体断面仕様を図 3.3.2-3 に示す。

3.3.1 項のパラメータサーベイで想定した炉心出力 (714MWt)、サイクル長さ (148 日)、燃料ピン外径 (0.475cm) 等と同一とし、炉心高さ 55cm、最大線出力 210W/cm、炉心部の減速能が約 0.024cm^{-1} となるように BeO 減速材ピンを集合体に約 1/2 程度設置している。燃料交換バッチ数は、燃料の高速中性子累積照射量をパラメータサーベイ時の炉心と同等となるように調整している。線出力と炉心高さを小さくしたことにより炉心燃料ピン総本数が増加し集合体本数は比例して多くなるが、燃料交換期間等への影響を小さくするため、大型バンドルを採用し、集合体当たりの燃料ピン本数は 331 本から 547 本に増やした。これらの結果、燃料集合体本数はサーベイで想定した炉心の 198 体から 360 体に増えている。

基準炉心は、取替燃料 TRU は、軽水炉取出後 10 年冷却の TRU 組成⁽²⁾を想定したものである。炉心で燃焼した燃料を再処理して、再び炉に戻して燃焼するマルチリサイクル (燃焼して減った分の TRU は軽水炉取出 10 年冷却の TRU を補給) の TRU 燃料を使用する場合は、炉心の臨界性及び出力分布を調整する必要がある。これを炉心形状、集合体配列ピッチ、燃料ピン等の仕様は同一とし、燃料集合体内の燃料ピンと BeO ピンの本数割合の変更のみで対応した。なお、U を含む炉心では Pu 富化度で調整するが、U 無炉心では Pu 富化度は変更できない。また、Zr 添加量を 40%と固定しているため、炉心の臨界性や内外炉心の出力平坦化は集合体当たりの燃料ピンと減速材ピンの本数割合で調整している。

④炉心特性評価

選定した炉心の特性を解析した結果、主要炉心特性を表 3.3.2-3 に示す。制御棒価値を表 3.3.2-4 に示す。

TRU 燃焼量は、基準炉心が約 750kg/GWe/年、マルチリサイクル燃料炉心が約 780kg/GWe/年であり、1GWe の UO_2 軽水炉の年間 TRU 生成量は約 190kg/GWe/年であるため、ウランを含まない TRU 金属燃料炉心 1GWe にて、約 4GWe の UO_2 軽水炉が生成する TRU を継続的に燃焼処理できることが再確認できた。なお、基準炉心とマルチリサイクル炉心で TRU 燃焼量が異なるのは、両炉心の燃料核種組成が異なり、また、燃料核種によって 1 回の核分裂時の発生エネルギーが若干異なるためである。いずれにしても、燃料にウランが含まれないため、炉心で発生する熱は全て TRU の核分裂によるものであるため、TRU 燃焼性能は極大化できていることに変わりはない。

基準炉心の燃焼反応度は約 $2.5\%dk/kk'$ に対し、主炉停止系制御棒の価値は $14.4\%dk/kk'$ であり、またマルチリサイクル炉心では燃焼反応度はより小さいため、両炉心とも制御棒反応度バランスは成立していると考えられる。なお、構築した炉心の運転サイクル長さは 148 日にて検討したが、制御棒反応度バランスの余裕の切りつめ、燃料交換方法の工夫による燃交時間の短縮等により、運転サイクル長さ 1 年相当の稼働率が見込まれる。

取出平均燃焼度は約 24at.%（基準炉心）～約 17at.%（マルチリサイクル炉心）で見かけ上、やや高めの値であるが、これは燃料にウランが含まれないためであり、燃料健全性上の重要因子のひとつである高速中性子照射量は約 $1.5 \times 10^{23} \text{n/cm}^2$ と、通常の高速度炉燃料より 3 割程度小さいため、燃料健全性に影響を与えるレベルではない。

更に、新燃料に希土類 FP が 2wt.% した場合の炉心特性への影響を評価した結果、燃料インベントリが約 1.5% 増加、ドップラー係数（絶対値）が約 10% 低下、ボイド反応度が約 0.1%dk/kk' 弱増加した。この程度であれば、炉心の安全性等に大きな影響はないと考えられる。

⑤ 燃料健全性評価

1) 定常時の挙動

H28 年度報告書⁽¹⁾に評価されているように、寿命末期の燃料被覆管の累積損傷和（CDF）等は十分小さく、燃料健全性が確保されている。またマルチリサイクル燃料炉心では、表 3.3.2-3 に示す様に線出力、燃焼度は基準炉心の約 60% と小さく、フルエンスも小さいため、同様に燃料健全性が確保される。

2) UTOP 及び ULOF 時の挙動

a) 対象炉心

③項にて設定した炉心高さ 55cm の炉心に対してフローネットワークモデルにて UTOP 及び ULOF 時の過渡解析を実施した。

過渡解析条件は、UTOP 時の制御棒誤引き抜き（1本）挿入反応度は $60 \phi / 200$ 秒、ULOF 時の一次系ポンプ半減時間 10 秒とした。また、燃料熱伝導度、比熱は Pu-40Zr を想定した。反応度フィードバックはドップラー効果、冷却材密度変化効果、燃料密度変化（燃料軸方向膨張）効果、構造材密度変化効果、支持板膨張効果及び炉心径方向膨張効果を考慮した。

マルチリサイクル燃料炉心は基準炉心に比較して冷却材密度係数は、炉心部で負側になっており⁽¹⁾、ドップラー係数の分布はあまり差異がない。

成立性の判断基準

ULOF： 被覆管温度 冷却材沸点（920℃）以下

UTOP： 燃料中心温度 燃料融点（1150℃）以下

b) 過渡解析結果

過渡解析結果を表 3.3.2-5 に示す。

いずれも過渡時の燃料温度、被覆管温度は制限値以下であり、ULOF、UTOP などのスクラム失敗時でも高い受動的安全性が確保できることが確認された。

⑥ まとめ

開発した炉心最適化設計手法を適用して、ウランを含まない TRU 金属燃料炉心を構築し、基準炉心とマルチリサイクル燃料炉心を具体化した。その結果、いずれも良好な

TRU 燃焼性能や燃料健全性と高い受動的安全性が両立できることが分かった。

(3) 過酷事故時の事象進展検討

① 目的

(2)で構築した炉心の過酷事故の事象進展について既往の金属燃料炉心から推定し、炉内終息の見通しを得る。

② 金属燃料炉心の過酷事故進展の概要

炉心損傷事象 (Core Disruptive Accident : CDA) の事象推移概略⁽³⁾を図 3.3.2-4 に示す。起因事象で燃料ピン破損が生じ、燃料ピンからの燃料放出・燃料分散が生じる。これ以降、燃料の破損が拡大して遷移過程に入る。遷移過程では、集合体から全炉心への溶融が進む。燃料の炉心部からの分散放出等による負の反応度で事象進展が止まらない場合には、燃料溶融プールの形成に進む。燃料溶融プールがスロッシング等により核物質が集まると、大きなエナジェティック^{注1)}が生じる可能性がある。燃料の炉心からの分散を考慮しない場合にはこの時点で最も大きなエネルギーは生ずると考えられる。

上記の CDA 挙動進展において、燃料溶融プールが生じた場合の挙動は不確実性が大きく、かつエネルギー放出も最大になると考えられるため、この遷移過程に進展させないことが重要である。すなわち、起因過程での燃料の破損、燃料の炉心外への排出に伴う負の反応度挿入より早期に事故終息させることが重要である。

注 1) 冷却材のボイド化、炉心の損傷等の仮想的な物質の再配置が正のフィードバック効果を持つ場合があり、これにより生ずる機械的エネルギー放出を指す。

③ 起因過程における負の反応度挿入要因

金属燃料炉心の CDA の起因過程においては、燃料破損が生じるまでに負の反応度に寄与するいくつかの燃料挙動がある。また、燃料破損が生じた場合、破損燃料から放出された燃料の移動による負の反応度が入ることで事故の終息に寄与する。

表 3.3.2-6 に示す U 有燃料と U 無燃料の仕様の差が、起因過程における負の反応度現象に与える影響を比較整理したものを表 3.3.2-7 に示す。燃料の軸伸び、燃料 extrusion 及び FCI による燃料分散に関しては、両者の差は小さいが、ボイド化領域の燃料排出現象に関しては、U 無炉心ではピンの細径化により U 有燃料より配列ピッチが狭いために燃料が固化しやすくなることと、燃料ピンに隣接する減速材ピンの発熱が小さいために冷却材流路壁の温度が低くなることにより、冷却材流路を通じた燃料の軸方向の分散が阻害される可能性がある。

④ U 無 TRU 金属燃料炉心における冷却材ボイド時の溶融燃料の排出挙動の検討

上述の溶融燃料の燃料下端方向への移動距離を図 3.3.2-5 に示す燃料のバルク冷却モデル⁽⁴⁾で評価した⁽¹⁾。そのサーベイ結果を表 3.3.2-8 に示す。

ケース②に示すように、配列ピッチが狭いことにより移動距離は小さくなるが、炉心長 (55cm) を上回っており、燃料下部からの排出が期待できる。しかしながら、ケース

③に示すように、低温の減速材ピンがある場合には、移動距離が小さくなり炉心下部に到達しない可能性がある。対策としてピンピッチを拡大しても、ケース④に示すように移動距離はあまり増加しない。したがって、図 3.3.2-6 に示すように燃料ピンを集合体中心に集めて、通常の U 有燃料の温度状態に近づけることで、集合体中心部の燃料の溶融移動を向上させる方策が有効と考えられる。ただし、ドップラー効果やボイド反応度の非均質効果が分散型の集合体内ピン配置の場合とは異なる可能性があるため、その効果を評価した。その結果、ドップラー係数は負側に約 10%大きくなるが、ボイド反応度は正側に約 $0.17\% \Delta k/kk'$ 大きくなった⁽¹⁾。これは、図 3.3.2-2 の上図に示すように、両者の増減は UTOP ではほとんど相殺されるものと推定され、このようなピンの配置の変更は受動的安全性に大きな影響はないと考えられる。

⑤デブリ冷却

金属燃料炉心では溶融燃料は FCI により顆粒状になる。それらが炉心下部で蓄積しても 10%のポロシティで厚さ 12cm の場合、定格時の 1%の崩壊熱をもっている熱伝導だけで冷却できる⁽⁵⁾。下部に流れ出た金属燃料デブリは MOX 燃料よりも熱伝導がよく、また、微粉となり高いポロシティで積み重なり、その部分に伝熱特性が良い Na が侵入することから、MOX 燃料よりも冷却可能性が高いと考えられる。したがって、燃料集合体のエントランスノズルからの排出を可能にする等の設計対応を行うことで燃料デブリは十分冷却が可能と考えられる。

⑥まとめ

U 無 TRU 金属燃料炉心の過酷事故を起因過程で終息させるための負の反応度に着目して、事象進展と設計対策を検討した。従来の U 有炉心では起因過程で燃料分散により事故終息の見通しがあり、3.3.2(2)項で構築した U 無 TRU 金属燃料炉心は、減速材ピンや細径ピンを用いたことなどから過酷事故時の燃料分散特性が低下する可能性がある。しかしながら、燃料ピンの集中配置等の設計対応により U 有 TRU 金属燃料炉心と同等にできることを確認した。すなわち、炉心損傷に至る過酷事故を想定した場合でも、燃料分散等により起因過程で炉内終息できる見通しを得た。

(4) 今後の開発課題

本検討にて構築した TRU 金属燃料炉心は、従来の通常の金属燃料炉心とは異なる特徴的な点は、

- ・ U を含まない TRU 金属燃料で炉心が構成されていること
- ・ 扁平炉心（炉心高さ 55cm）形状であること
- ・ 燃料集合体には燃料ピンとともに減速材ピンが導入されていること

である。本研究により、過酷事故時の安全性も含め、このような炉心の成立性の見通しを得たが、実現にあたっては炉心設計の信頼度を示す許認可取得のためのデータを拡充することが必要である。そのような観点から今後の主な開発課題は以下と考えられる。

- ・ U を含まない TRU 金属燃料扁平炉心で BeO 等の減速材を炉心部に導入した炉心体系での各種臨界試験により、核設計精度を検証する
- ・ 減速材ピンを導入した TRU 金属燃料集合体及び同炉心における燃料溶融破損時の燃料分散等の物質挙動に関する実証試験

(5) まとめ

3.3.1 項にて開発した最適化炉心設計手法を用いて、U を含まない TRU 金属燃料炉心の基本仕様を選定し、基準炉心（軽水炉取出 TRU 燃料利用）とマルチリサイクル燃料炉心を構築した。TRU-40Zr 金属燃料をベースに BeO 減速材ピンを燃料集合体内に配置した、低線出力扁平炉心（最大線出力 210w/cm、炉心高さ 55cm）であり、その炉心特性、燃料特性及び安全特性を評価し、成立見通しを得た。また、希土類 FP 混入による炉心特性への影響を評価し、大きな問題は生じないことを確認した。

更に、構築した TRU 金属燃料炉心は過酷事故時を想定しても、燃料集合体中の燃料ピンと減速材ピンの配置の工夫により、U を含む通常の金属燃料炉心と同様に、起因過程で燃料分散等により事故終息できる見通しがあることを確認した。

参考文献

- (1) 原子力システム研究開発事業、「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」、平成 28 年度成果報告書(2018)
- (2) 安藤良平、高野秀機、「使用済軽水炉燃料の核種組成評価」、JAERI-Research 99-004, P. 100.
- (3) 馬場譲、平野豪、川田賢一、丹羽元、「金属燃料の過渡時挙動に関する基礎的研究」、JNC TY9400 99-002、1999 年 3 月
- (4) Hans K Fauske et al. "Assessment of FBR Core Disruptive Accident (CDA): The Role and application of General Behavior Principals (GBPs)", Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 39, No. 6, p. 615-627 (June 2002)
- (5) Tanji Sofu, "A review of inherent safety characteristics of metallic alloy sodium-cooled Fast reactor fuel against postulated accident", Nuclear Technology, Vol. 47, p. 227-239 (2015)

表 3.3.2-1 炉心設計上の課題に対する対策案と基本的考え方

技術課題	設計対策案		炉心構築時の考え方
燃料融点上昇	Zr 添加量を 30-40%にして融点を 1100-1400℃に保つ Zr 添加量 30-40%となるように燃料ピン本数を調整		燃料スラグ製造時に適度な燃料溶融温度の確保及び反応度挿入事故時の燃料溶融防止の観点から、燃料融点が約 1400℃に対応した Zr 添加量 40%とする。
燃料熱伝導度の低下	線出力の低減		40%Zr 金属燃料の熱伝導率低下（約 60%）に対応して最大線出力を 360w/cm から 210w/cm に低減。
ドップラー係数の低下	中性子スペクトルの軟化	MgAl ₂ O ₄ 、BeO 等の減速材ピンを燃料ピンと集合体内で混在して装荷。	H27 年度に開発した最適化炉心設計手法及び関連データベースに基づき、下記ボイド反応度抑制対策と合わせて仕様を選定する。
	燃料合金をドップラー領域の吸収断面積の大きいものに変える。	TRU-Mo、TRU-Nb を TRU-Zr のかわりに導入	将来の潜在的選択肢と考え、今回の構築炉心では採用しない。
ドップラー係数の増加時のボイド反応度の上昇	中性子漏洩の増加	炉心高さの低減	H27 年度に開発した最適化炉心設計手法及び関連データベースに基づき、上記ドップラー係数改善対策と合わせて仕様を選定する。
燃焼反応度の低減	燃料インベントリの増加	炉心体積の増加（炉心径増加）	炉心高さを大きくするとボイド反応度が增大するため、径方向へ大きくする。ドップラー係数の悪化が許容できる範囲内で炉心扁平化を指向する。
	バーナブルボイズン	中性子減速材と B ₄ C を装荷	非均質装荷型 B4C バーナブルボイズン利用によりドップラー係数やボイド反応度に大きな影響を与えることなく、燃焼反応度を 1~2 割程度低減できる可能性があるが、出力分布の乱れなどが懸念されるため、今回の構築炉心では採用しない。

表 3.3.2-2 TRU 金属燃料炉心設定仕様

項 目	基準炉心	マルチサイクル炉心
原子炉出力 (MWth/MWe)	714/280	←
原子炉出入口温度 (°C)	482/350	←
運転サイクル長 (日)	148	←
燃料交換バッチ数	8	←
集合体数		
内側炉心	198	←
外側炉心	162	←
主炉停止棒	31	←
後備炉停止棒	6	←
反射体	234	←
炉心高さ (cm)	55	←
集合体配列ピッチ (cm)	14.68	←
燃料集合体		
ガspreナム長 (cm)	82.5	←
上部遮蔽体長 (cm)	40	←
下部遮蔽体長 (cm)	75	←
ラップ管外対面距離 (cm)	14.18	←
ラップ管内対面距離 (cm)	13.38	←
ラップ管肉厚 (cm)	0.4	←
ピン本数		
全本数	547	←
燃料ピン (内側炉心/外側炉心)	279/389	389/547
BeO ピン	268/158	158/0
燃料ピン配列ピッチ	0.565	←
燃料ピン		
被覆管外径 (cm)	0.475	←
被覆管内径 (cm)	0.385	←
被覆管肉厚 (cm)	0.045	←
燃料スラグ径	0.333	←
(燃料スミア密度 %TD)	75	←
燃料材質	TRU-40wt%Zr	←
ボンド材	Na	←
減速材ピン		
被覆管外径 (cm)	0.475	←
被覆管内径 (cm)	0.415	←
被覆管肉厚 (cm)	0.03	←
減速材材質	BeO	←
減速材スミア密度 (%TD)	85	←
制御棒		
吸収体有効長 (cm)	55	←
B ₄ C ペレット理論密度 (%TD)	0.95	←

注：装荷燃料の TRU 組成

核種	Pu															Np	Am			Cm				
	238	239	240	241	242	237	241	242m	243	242	243	244	245	246										
LWR取り出し	2.1	48.9	21.8	8.4	6.2	5.2	5.6	0	1.4	0	0	0.4	0	0										
計	87.4					5.2	7			0.4														
マルチサイクル	5.9	18.4	32.9	9	14.5	1.8	3.3	0.2	4.7	0.4	0.1	6	1.7	1										
計	80.8					1.8	8.2			9.2														

表 3.3.2-3 主要炉心特性

項 目	基準炉心	マルチリサイクル炉心
TRU 燃焼量 (kg/GWe/年) *1	747	777
ドップラー係数 (Tdk/dT) *2	-1.91E-3	-2.15E-3
燃料密度係数 ($\Delta K/KK'$) / ($\Delta \rho / \rho$) *3	0.40	0.49
構造材密度係数 ($\Delta K/KK'$) / ($\Delta \rho / \rho$) *3	-0.010	-0.033
冷却材密度係数 ($\Delta K/KK'$) / ($\Delta \rho / \rho$) *3	0.010	-0.004
遅発中性子割合	0.00251	0.00257
燃焼反応度 (%dk/kk')	3.45	2.52
取出平均燃焼反応度 (at%)	約 24	約 17
最大線出力		
内側炉心 (BOL/EOL) (W/cm)	215/127	121/107
外側炉心 (BOL/EOL) (W/cm)	185/125	118/106
中性子束		
内側炉心 (BOL/EOL) (1E15n/cm ²)	1.39/1.35	-
外側炉心 (BOL/EOL) (1E15n/cm ²)	1.52/1.51	-
高速中性子照射量 (1E23n/cm ²) *4	1.42	1.48

*1:稼働率 80%、*2:BOEC、*3:EOEC、*4:2次元 RZ 計算値

表 3.3.2-4 基準炉心の制御棒価値

項 目	反応度価値 (%dk/kk')	備 考
主炉停止系	14.4	本数 31 本
後備炉停止系	3.7	本数 6 本
主炉停止棒 1 本誤引抜反応度	0.136 (54¢)	最大価値を有する制御棒の定格運転時からの引抜を想定

表 3.3.2-5 過渡解析結果

項 目	基準炉心	マルチリサイクル燃料炉心
UTOP 燃料温度 (°C)	1139	984
ULOF 被覆管温度 (°C)	853	857

表 3.3.2-6 燃料物性と燃料バンドル仕様

燃料仕様 項目	U有炉心	U無炉心
ピン径(m)	8.50E-03	4.75E-03
ピンピッチ(m)	9.95E-03	5.65E-03
伝熱面積(1ch)	1.34E-02	7.46E-03
全ピン本数	271	547
発熱ピン本数	271	279
非発熱ピン	0	268
発熱ピン伝熱面積 (m ²)	1.34E-02	3.81E-03
非発熱ピン伝熱面積 (m ²)	0.00E+00	3.66E-03
燃料密度(Pu-40Zr相当)(kg/m ³)	1.48E+04	1.09E+04
S/C面積 A	1.45E-05	4.96E-06
濡れぶち L	1.34E-02	7.46E-03
DH =4*A/L	4.34E-03	2.66E-03
物性		
熱伝導度(W/mk) K 1600K	30	24.1
比熱 (J/molK) Cp 1600K	31	31.6
比熱(J/KgK)	214.052	218.195
融解熱 (J/kg)	6.86E+04	6.86E+04
粘性係数 (Pas) η	6.50E-03	6.50E-03
動粘性係数 (m ² S) $\nu = \eta / \rho$	4.38E-07	5.99E-07
固相温度 K	1330	1437
液相温度 K	1487	1546
Pr数 Cp* η /K	4.64E-02	5.88E-02

表 3.3.2-7 U有 TRU 金属炉心とU無 TRU 金属炉心の起因過程での負の反応度挿入挙動の比較

項目	挙動	U有燃料とU無燃料の差	対策案
1) 燃料軸伸び	燃料熱膨張による軸方向伸びでの負の反応度	熱膨張挙動はほぼ同等で差異はない。	(不要)
2) 燃料 extrusion	燃料中の未放出 FP ガスの膨張で溶融した燃料が被覆管内を移動して負の反応度が入る	TRU 燃料の照射データでは、燃料中のガス放出開始は U 燃料より遅れるとのものであり、extrusion の駆動力は U 有燃料と同等以上に確保される	(不要)
3) FCI*による燃料分散 *)Fuel Coolant Interaction	燃料が上部で破損し、溶融燃料が、冷却材が残留しているところに放出される。燃料は、微細な粒子になり、冷却材とともに上部に抜ける	U有燃料とU無燃料では、融点は大差ないように仕様を選択しており、大きな差異はない。	(不要)
4) ボイド化領域へ燃料排出、移動	燃料は、ピン内のガス圧及びボンドナトリウムの蒸気により被覆管外に排出され、サブチャンネル（冷却材流路）領域で上下に移動する。	<ul style="list-style-type: none"> ・U無燃料では、減速材ピンの発熱が小さいことから冷却材流路壁の温度が低くなり、溶融燃料のサブチャンネル内の移動距離が小さくなる可能性あり。 ・ピンピッチが小さいと溶融燃料の除熱が促進されて移動距離が小さくなる可能性あり。 	<ul style="list-style-type: none"> ・減速材ピンと燃料ピンを均等配置から集合体内で燃料ピンを集中して配置 ・ピンピッチの拡大

表 3.3.2-8 溶融燃料の移動距離のサーベイ計算結果

ケース No.	評価項目			溶融燃料温度 (°C)	被覆管表面温度 (K)		ピン内圧 (MPa)	移動距離 (cm)
	燃料仕様	物性	減速ピン考慮		燃料	減速材		
①	U有燃料炉心	U有燃料	無	1220	1325	-	7	278
②	TRU 炉心	TRU 燃料	無	1220	1432	-	7	62.5
③	TRU 炉心	TRU 燃料	有	1220	1432	1223	7	4.2
④	TRU 炉心 ピッチ 6.15mm	TRU 燃料	有	1220	722	1223	7	15.5

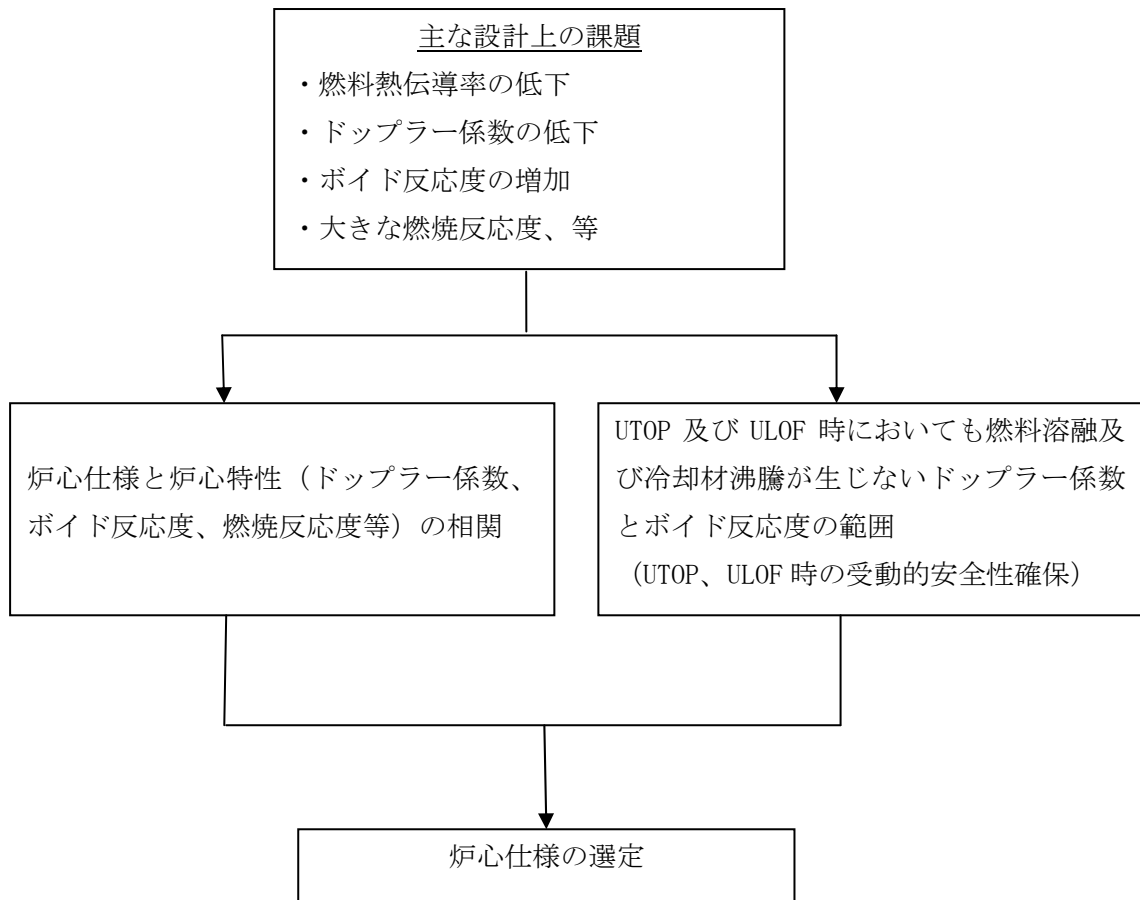
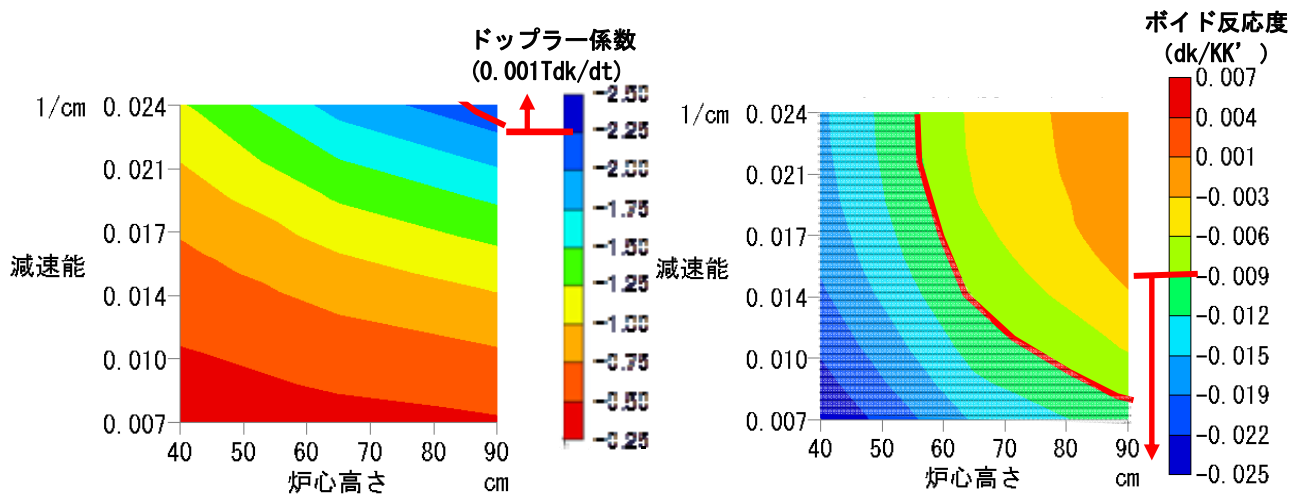
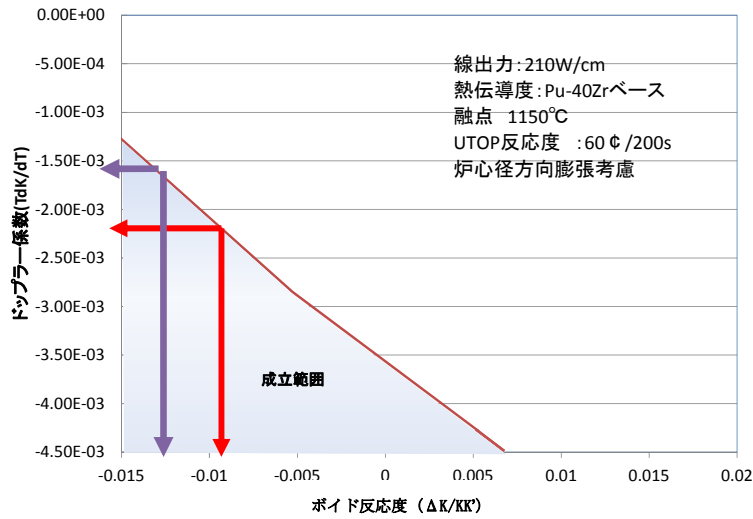
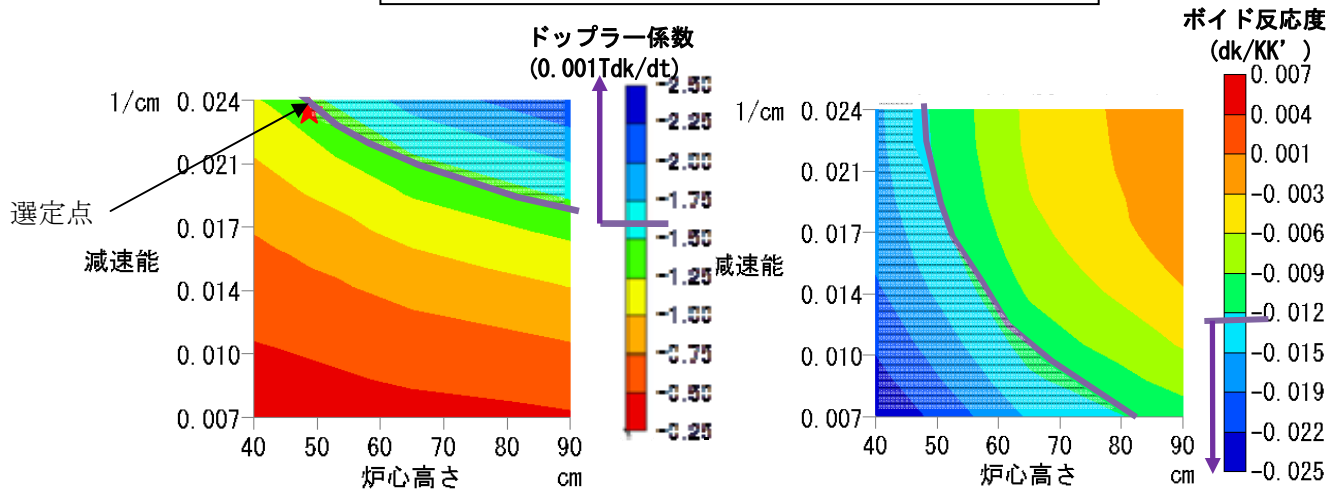


図 3.3.2-1 炉心構築の手順

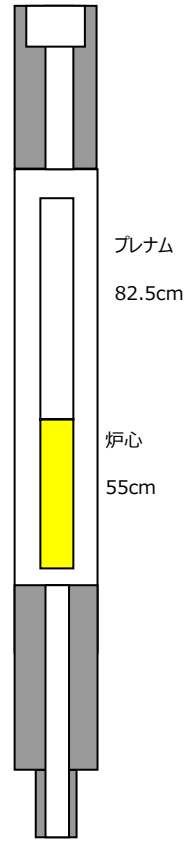
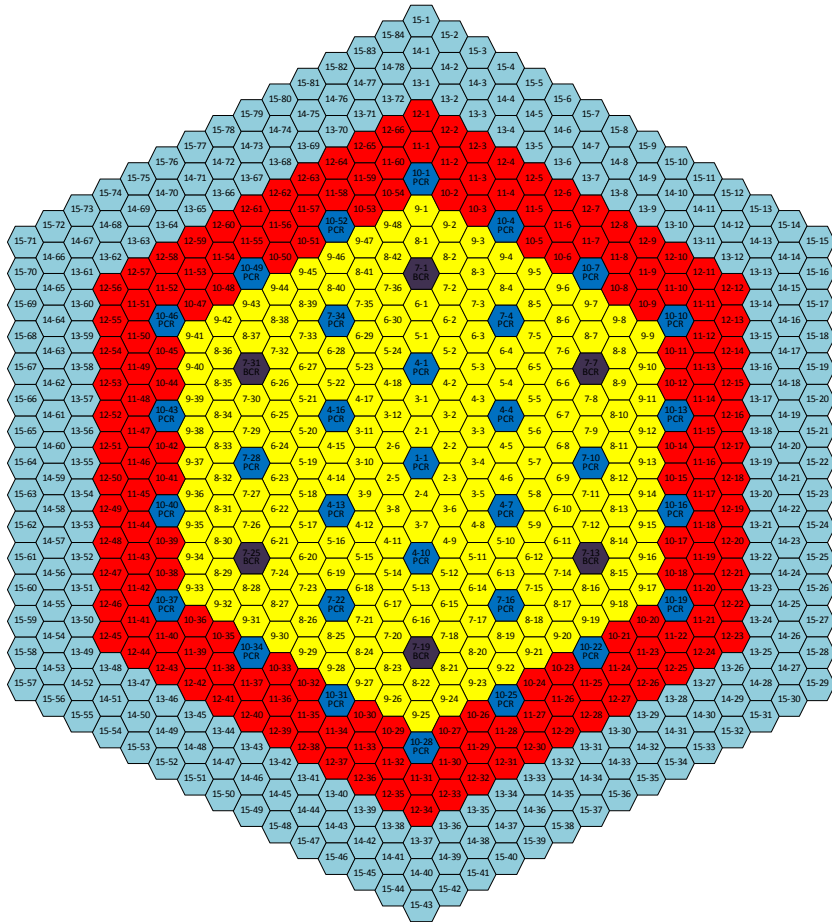







赤線の領域：両者の成立範囲が重ならない。

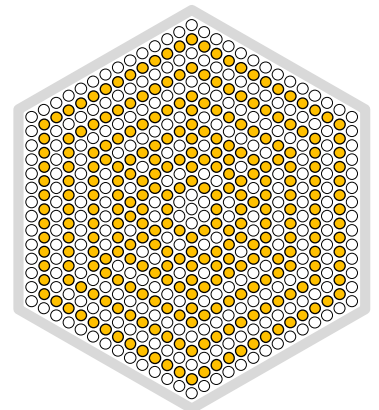




紫線の領域：両者の成立範囲で重なる

図 3.3.2-2 ドップラー係数及びボイド反応度対策の最適化炉心仕様選択説明図



- | | | |
|-------------------------------------------------------------------------------------|-----------|-----|
|  | 内側炉心 | 198 |
|  | 外側炉心 | 162 |
|  | 主炉停止系制御棒 | 31 |
|  | 後備炉停止系制御棒 | 6 |
|  | 径遮へい体 | 234 |



-  燃料ピン
-  減速材ピン

内側炉心燃料集合体内ピン配置例

図 3.3.2-3 TRU 金属燃料炉心配置及び燃料集合体

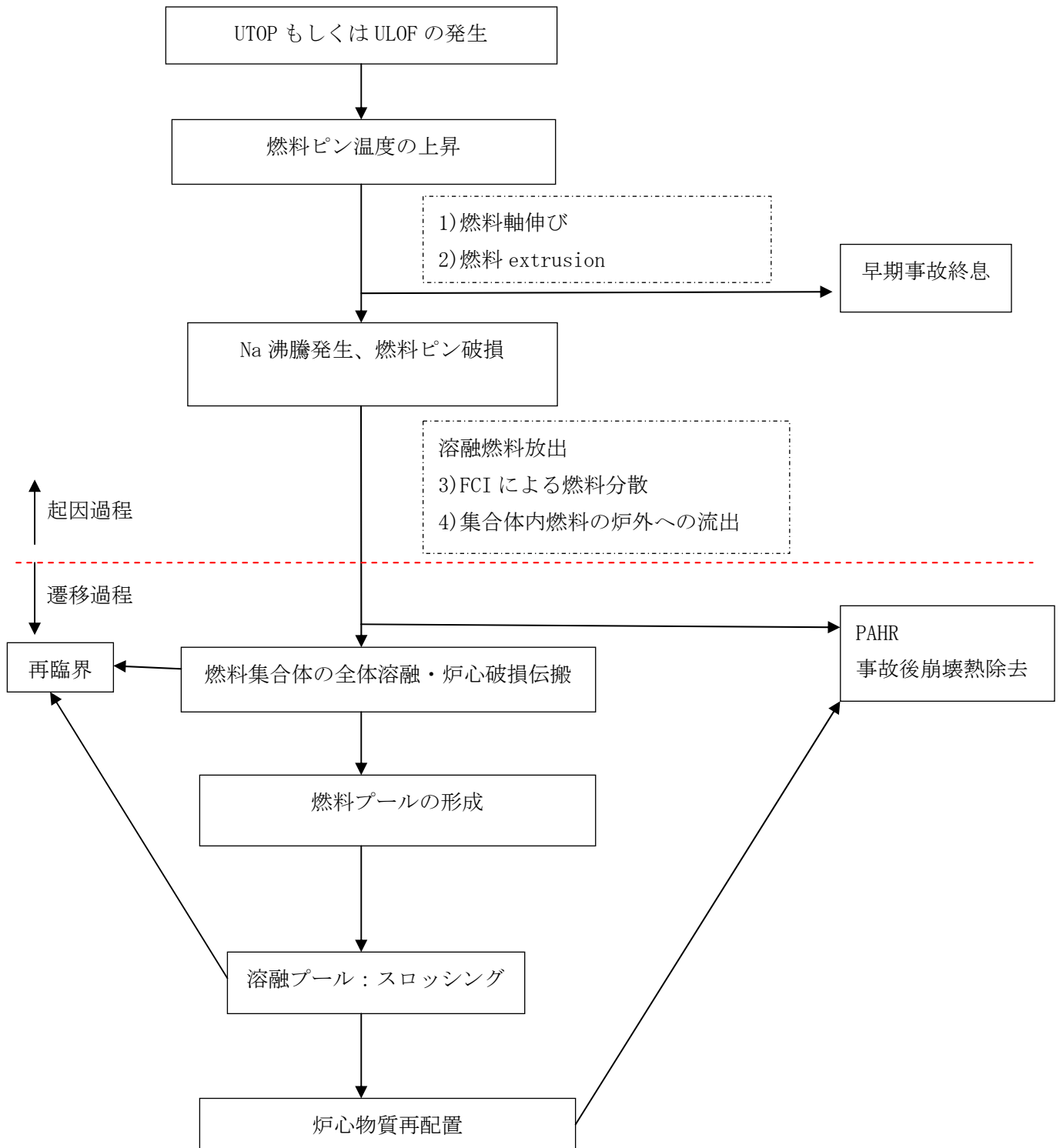


図 3.3.2-4 一般的な金属燃料炉心の過酷事故進展の概要

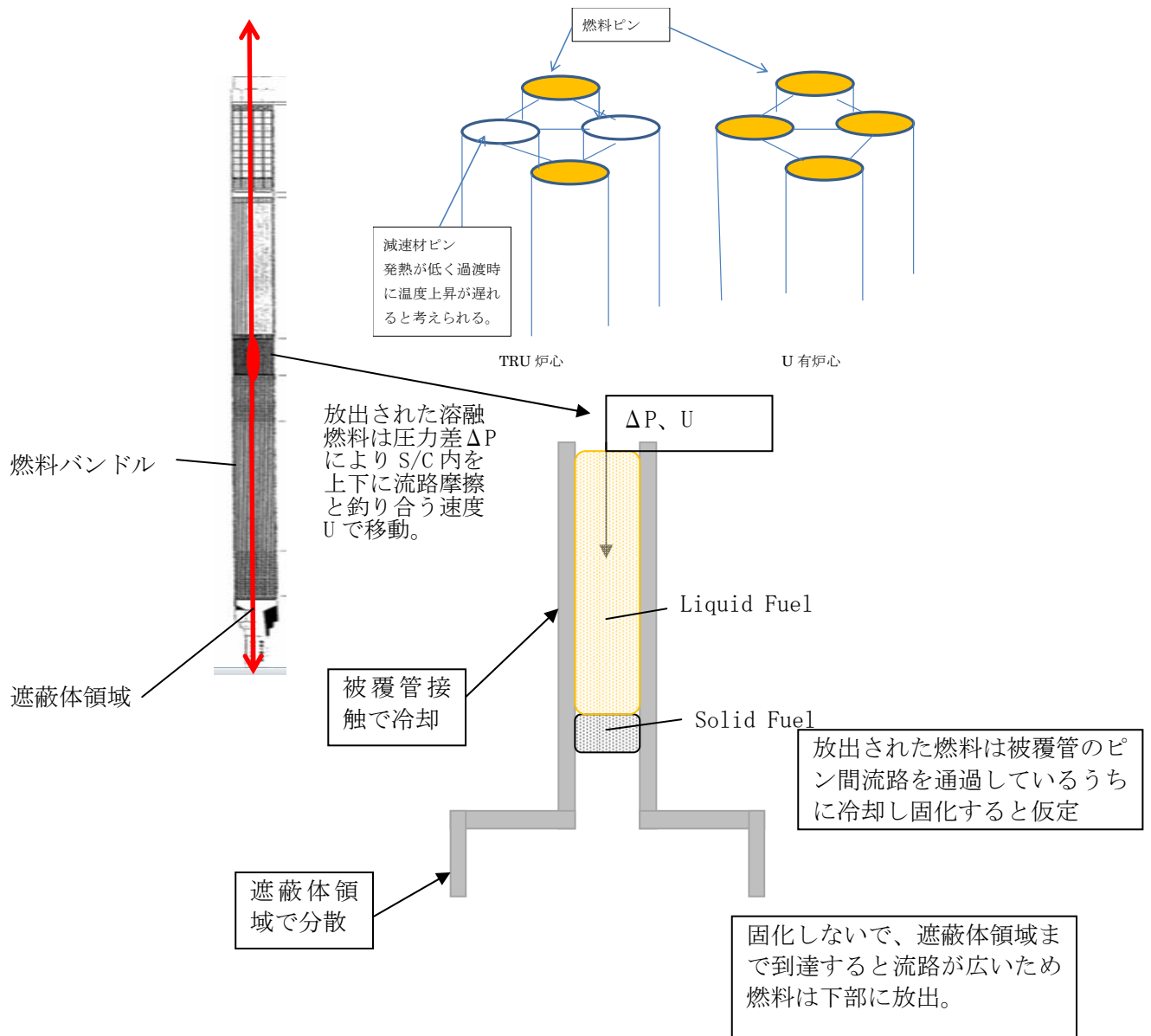
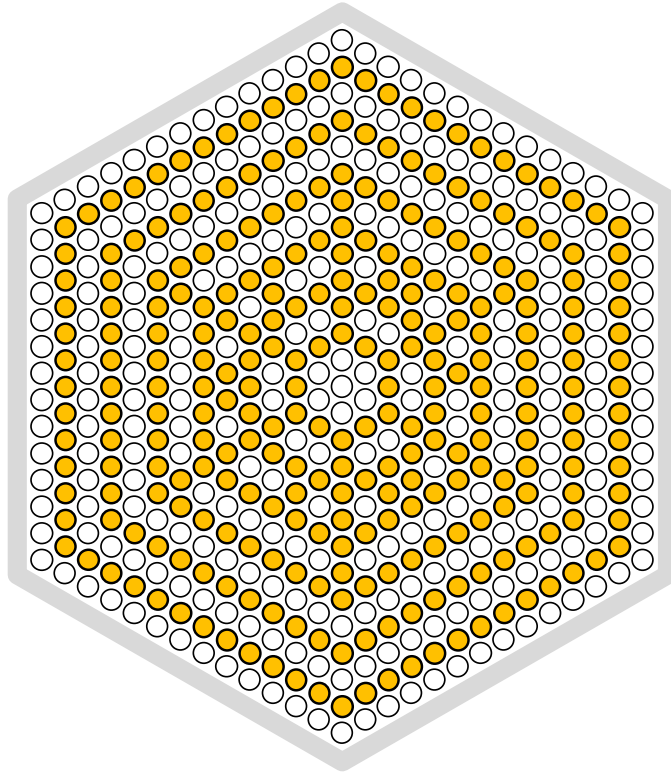
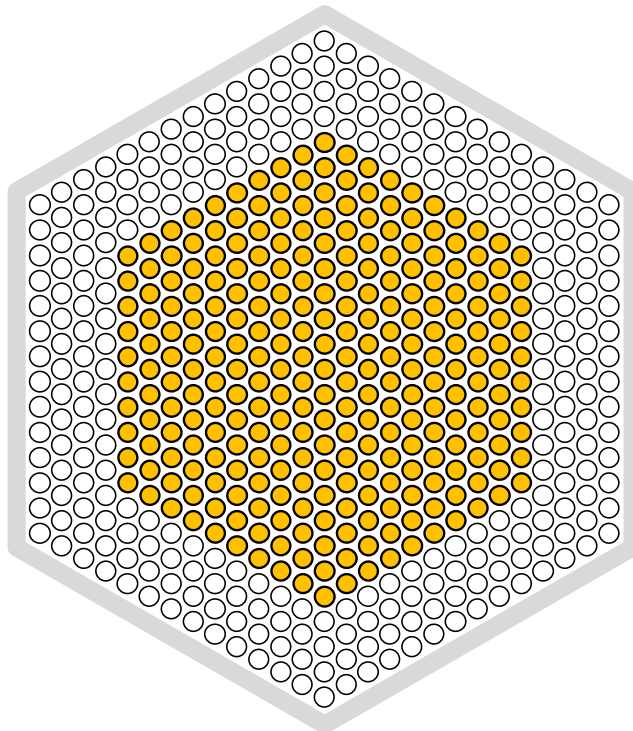


図 3.3.2-5 バルク冷却モデル⁽⁴⁾



燃料ピン・減速材ピン分散配置概念



燃料ピン・減速材ピン集中配置概念
(中心部にピンを集める、減速材ピンは外周に配置)

図 3. 3. 2-6 燃料ピン・減速材ピン配置概念

3.3.3 合金材のドップラー効果の測定（再委託先：京都大学）（H26～H29）

(1) 概要

炉心のドップラー係数を改善する方策として、金属燃料合金材の Zr の代わりに Mo や Nb を用いることが将来オプションのひとつと考えられる。しかし、これらの核種の共鳴エネルギー領域の中性子捕獲断面積の精度、すなわちドップラー反応率の評価精度は不明確である。本事業では、代替候補材である Mo, Nb を対象として、京大炉ライナックパルス中性子源を用いて中性子吸収率の微分値を飛行時間測定法（Time of Flight method : TOF）法で測定することにより、共鳴エネルギー領域におけるドップラー反応率比を取得した。測定にあたっては、平成 26 年度から平成 27 年度にかけて実施した京大炉ライナックのパルス中性子源のエネルギー分解能の評価や照射場の中性子分布の数値計算等及び予備試験の知見^(1,2)及び平成 28 年度に実施した Mo 試料に対する試験で得た知見⁽³⁾により、鉛シャドーバーを最適な位置に配置することによりガンマフラッシュの影響を抑制し、更に、検出器まわりの中性子遮蔽強化によりバックグラウンドを低減した。その結果、Nb について 1keV までの共鳴領域に対してドップラー反応率比の測定に成功した。

平成 28 年度に取得した Mo の実験値と平成 29 年度に取得した Nb の実験値を数値計算から得られた結果と比較したところ、いずれの核種も主要な共鳴を含むエネルギー群に対しては 10%以内の精度で予測可能であることを確認した。本事業では、代替合金材（Mo 及び Nb）のドップラー効果の評価精度として 20%以内の精度を目標に掲げていたが、上記の通り目標を達成できた。更に、ドップラー効果による反応率変化と共鳴毎の自己遮蔽因子の相関性に着目し、測定値及び数値計算値を整理した。その結果、共鳴パラメータが既知の共鳴であれば、核種によらず任意の厚さの試料に対するドップラー効果による反応率比を予測できる可能性を見出した。

(2) 測定試験方法

①中性子照射場の設計

平成 26 年度は、京大炉ライナックを用いた研究を実施するために、ドップラー効果測定に適した中性子照射場の設計及び評価を行った。中性子照射場として利用を考えている京大炉ライナック中性子源に対して、エネルギー分解能の評価を行った。モデレータ起因のエネルギー分解能成分についてはモンテカルロシミュレーションコードを用いた輸送計算を行うことによりモデレータからの中性子放出平均時間を求め、エネルギー分解能を評価したところ、簡易計算による概算値と良い一致を示すことが分かった。断面積測定で使用している実効厚さ 5cm の軽水モデレータを用いた場合、モデレータ起因のエネルギー分解能は 1.0%と予想され、現状では測定エネルギー領域の 300eV 付近ではドップラー効果による共鳴拡がりを測定するのに十分なエネルギー分解能を得るのが難しいことが分かった。試料温度昇温装置の特性試験では、平成 26 年度に整備した試料温度昇温装置により試料温度を 300℃以上に昇温可能であることを確認した。また、長時間の連続運転においても試料温度変化は 10℃以内であることを確認した。試料温度の 10℃の変化がドップラー拡がりの観測量に及ぼす影響は約 2.5%であり、ドップラ

一効果の定量に対し大きな影響を与えないと評価した。

②予備試験

平成 26 年度に得られた知見を基に、平成 27 年度には京大炉ライナックに合金材ドップラー効果測定のための中性子照射場を設置し、天然 Mo 板からの即発ガンマ線を BGO 検出器で測定することにより、中性子捕獲反応の TOF スペクトルを測定した。測定は 300K と 600K で行い、その比較から共鳴毎のドップラー効果を観測した。その結果、TOF スペクトル中に BGO 検出器の構成元素の一つである Ge による共鳴吸収に由来するバックグラウンド成分が顕著に観測されたため、SN 比を向上させるためにはバックグラウンド成分の低減が必要不可欠であることが明らかとなった。バックグラウンド成分の低減のために、中性子ビーム径の縮小、中性子ビーム導管中の中性子遮蔽強化と検出器全面のガンマ線遮蔽強化が必要であることが分かった。更に、早いタイミングの飛行時間（高エネルギー領域）の TOF スペクトル中にガンマフラッシュの影響が顕著に見られたことから、ガンマフラッシュの影響を抑えるための鉛シャドーバーの最適化が必要であることが分かった。

③代替合金材のドップラー効果測定試験

平成 28 年度は、前年度の予備試験で得られた知見を基に、中性子ビーム径の縮小、中性子ビーム導管中の中性子遮蔽強化と検出器全面のガンマ線遮蔽強化を図ることによって最適な照射場を構築した。平成 27 年度に実施した予備試験では中性子源に対しては良好なエネルギー分解能が得られたので、平成 28 年度以降に行ったドップラー効果測定試験においても、中性子減速材として 8 角形型軽水モデレータを用いた（図 3.3.3-1）。平成 28 年度は Mo 試料のドップラー効果測定を実施した⁽³⁾。平成 29 年度の測定対象である Nb は、Mo に比べて高いエネルギー領域まで分離共鳴が存在するため、測定エネルギー領域の拡張を図る必要がある。測定エネルギー領域を拡張するためには、Ta ターゲットから発生する強力な制動 X 線（ガンマフラッシュ）を適切に遮蔽し、測定系に与える影響を抑制する手段が有効である。そこで、平成 29 年度は Ta ターゲットと中性子飛行管の間に設置した鉛シャドーバー（50mmφ×100mm，2 本）の支持架台を新たに製作し、鉛シャドーバーの位置調整を遠隔で行えるように改良した。本改良により、加速器運転中に鉛シャドーバーの位置に調整することによって、ガンマフラッシュに対して最適な遮蔽条件で試験を実施することができた。更に、本試験では使用しない飛行導管のターゲット室側及び出口側に Bi₂O₃ と B₄C をエポキシ樹脂で固めた中性子兼ガンマ線遮蔽体を設置し、中性子捕獲ガンマ線測定用の BGO 検出器周辺の中性子遮蔽を強化するとともに、照射場下流の壁からの散乱中性子を遮蔽するために、⁶LiF タイルを設置することによって、中性子照射場におけるバックグラウンドの低減を図った。図 3.3.3-2 及び 3.3.3-3 に構築した中性子照射場、図 3.3.3-4 に中性子照射場の概略図を示す。なお、測定回路系は平成 28 年度と同じもの⁽³⁾を用いた。

ライナックの運転条件は平成 28 年度の試験と同じくパルス幅 47nsec、繰返し周波数 250Hz、平均電子ビーム電流 34μA で運転した。試料は厚さ 3.0mm^t 及び 1.0mm^t の天然

Nb (Nb93:100%) とし、試料温度を 300K 及び 600K として TOF 測定を実施した。図 3.3.3-5 に試料昇温の様子を示す。またバックグラウンドの影響を評価するために、昇温装置のみを設置した Blank 測定を実施した。表 3.3.3-1 にそれぞれの試料の試験条件を示す。

(3) 測定試験結果

図 3.3.3-6 に本年度測定した Nb 試料の TOF スペクトル、図 3.3.3-7 に昨年度測定した Mo 試料の TOF スペクトル⁽³⁾を示す。昨年度よりもバックグラウンドが低減されたことにより、10 eV~10 keV のエネルギー範囲において 10 b 程度の共鳴まで観測することに成功した。また、昨年度の試験において Blank 測定の TOF スペクトル上に観測された共鳴構造 (BGO 検出器中に含まれる Ge-75 による中性子共鳴吸収) が今年度の試験では大幅に抑制されたことが分かる。このことは、BGO 検出器周りの追加遮蔽が十分に機能していることを示している。なお、平成 28 年度の知見より、昇温装置のみを設置した Blank 測定のデータをバックグラウンドとして採用した。

図 3.3.3-8 及び図 3.3.2-9 に試料温度が異なる条件における Nb-93 の TOF スペクトル (0 - 400 eV) を示す。1.0mm^t 試料、3.0mm^t 試料共に明確にドップラー効果による反応率の増加が観測された。これは、平成 28 年度の試料である Mo とは異なり、Nb-93 の共鳴は飽和していないためであり、このエネルギー領域の全ての共鳴でドップラー効果の観測が可能であることを示している。図 3.3.3-10 及び図 3.3.3-11 に 400eV~2keV のエネルギー領域の TOF スペクトルを示す。このエネルギー領域でも、1.0mm^t 試料、3.0mm^t 試料共に明確にドップラー効果による反応率の増加の観測に成功した。以上の結果より、厚さ 1.0mm から 3.0mm の Nb 試料では何れの共鳴も飽和しておらず、各共鳴でドップラー効果が観測できることが分かった。

次に、Mo 試料の解析と同様に、厚さ 3mm^t の試料について決定論的手法による高速炉の炉心解析で使用される JFS-70 群構造⁽⁴⁾ (lethargy=0.25) でバンチングした結果を図 3.3.3-12 に示す。ドップラー効果による各群での反応率の増加量は、表 3.3.3-2 に示すように第 41 群で 1.16±1.9 %、第 42 群で 1.09±2.3 %、第 44 群で 1.15±1.3 %、第 46 群で 1.04±1.6 %、第 51 群で 1.06±4.9 %であった。JFS-70 群構造を採用した場合、厚さ 3.0mm^t 試料では実験誤差が 5%以内でドップラー効果による反応率変化を測定することができた。

(4) 試験結果の解析・評価

Mo 試料を用いた試験の解析と同様に、数値解析はモンテカルロ輸送計算コード MVP2.0⁽⁵⁾と評価済み核データライブラリ JENDL-4.0⁽⁶⁾を用いて実施した。試料への入射中性子スペクトルは昨年度と同じ面線源⁽³⁾を使用した。

図 3.3.3-13 に数値解析で得られた厚さ 3.0mm^t の Nb 試料に対する中性子捕獲率を詳細群構造 (lethargy=0.01) で示す。測定では 378eV 付近に一本のピークとして観測されていたものが、実際は 3 本の共鳴が重複していることが分かった。何れの共鳴も共鳴ピークの増加及び共鳴幅の増加が確認でき実験と同じ傾向を示している。

ここで、ドップラー効果による反応率変化（以下、反応率比という）を次のように定義する。

$$\text{反応率比} = \text{試料温度 600K における捕獲率} / \text{試料温度 300K における捕獲率}$$

① Mo 試料に対するドップラー反応率比

平成 28 年度に測定した厚さ 3mm^t の Mo 試料に対する 300K と 600K での捕獲反応率を図 3.3.3-14 に示す。44.9, 70.9, 131.4, 358.6eV 共鳴を含む 4 つのエネルギー群での捕獲反応率が大きく観測されており、いずれのエネルギー群においても温度上昇による反応率の増加が観測されている。JFS-70 群構造によるドップラー効果による反応率比について、計算値と実験値の比較を図 3.3.3-15 に示す。ドップラー効果に大きく寄与する主要な共鳴を含むエネルギー群では、1.01~1.08 のドップラー反応率比を実験誤差 3%以内で測定することができた。更に、数値計算により同じ群構造でのドップラー反応率比を計算すると、反応率の大きな群では 131.4eV 共鳴を除き、計算値と実験値は実験誤差の範囲内で一致した。

② Nb 試料に対するドップラー反応率比

平成 29 年度に測定した厚さ 3mm^t の Nb 試料に対する 300K と 600K での捕獲反応率を図 3.3.3-16 に示す。35.9, 105.9, 119.1, 193.8, 335.4, 378.5eV 共鳴を含む 5 つのエネルギー群での捕獲反応率が大きく観測されており、いずれのエネルギー群においても温度上昇による反応率の増加が観測されている。JFS-70 群構造によるドップラー効果による反応率比について、計算値と実験値の比較を図 3.3.3-17 に示す。ドップラー効果に大きく寄与する主要な共鳴を含むエネルギー群では、1.04~1.16 のドップラー反応率比を実験誤差 5%以内で測定することができた。更に、数値計算により同じ群構造でのドップラー反応率比を計算すると、反応率の大きな群では 335.4eV 共鳴を除き、計算値と実験値は実験誤差の範囲内で一致した。

(5) 目標を上回る成果

①測定技術の向上

本事業を進める過程において、ガンマフラッシュの影響低減及び中性子照射場のバックグラウンドの低減に努めた。平成 27 年度当初に予備的に実施した Mo 試料の測定と平成 28 年度に実施した Nb 試料の測定で得られた TOF スペクトルの比較を図 3.3.3-18 に示す。ただし、TOF スペクトルは測定時間で規格化したものである。事業開始当初は試料を置かない Blank 測定において、BGO 検出器に含まれる Ge の中性子捕獲反応に由来する共鳴構造が顕著に観測されていたが、中性子に対する検出器の遮蔽強化によって共鳴構造が大幅に抑制された。更に、鉛シャドーパーを遠隔操作で位置調整できる機器を導入し、ガンマフラッシュの影響を確実に低減できたことにより、TOF スペクトルの測定範囲が拡張した。また、1keV 以上の領域ではガンマフラッシュの影響により 1keV 以上のエネルギーにおいて TOF スペクトルが「波打つ」或いは「振動す

る」ような構造（リングング）が観測されていたが、改良後はリングングが見られなくなった。これらの結果、ドップラー効果の測定上限が、当初は 300eV という想定であったが、最終的には数 keV まで測定することができた。

②理論的な新たな知見

本事業で取得した Mo, Nb に対するドップラー効果による反応率比と共鳴毎の自己遮蔽因子の相関性について検討を行った。試料厚さが十分に薄い場合、試料による中性子捕獲率は次式で定義される。

$$Y_c = n\sigma_c\phi \quad (3.3.3-1)$$

一方、試料厚さが無視できない場合は、

$$Y_c = (1 - \exp(-n\sigma_t)) \frac{\sigma_c}{\sigma_t} = n\sigma_c\phi fs \quad (3.3.3-2)$$

となる。ここで、各記号は

Y_c	: Capture yield	n	: Thickness (/b)
σ_c	: Capture cross section (b)	σ_t	: Total cross section (b)
ϕ	: Neutron flux	fs	: Self-shielding factor

である。図 3.3.3-19 に試料の厚さによる中性子捕獲率の変化の一例を示す。この例では試料厚さが 2E-4 (/b) より厚くなると共鳴自己遮蔽効果は無視できなくなることを示している。これまでの研究により、共鳴自己遮蔽効果が大きくなるとドップラー効果による反応率比が小さくなることが分かっている。そこで、共鳴ピーク断面積より共鳴パラメータから導出し、(3.3.3-2)式から共鳴自己遮蔽因子 f_s を算出し、各共鳴におけるドップラー効果について整理した。なお、共鳴自己遮蔽因子は(3.3.3-2)式の定義により、自己遮蔽効果が無視できる場合は 1 に収束し、自己遮蔽効果が増加するにつれて減少する。一例として、図 3.3.3-20 に Nb-93 の主要共鳴の自己遮蔽因子を示す。例えば厚さ 3mm[†] 試料において 119.8eV と 193.8eV 共鳴の自己遮蔽因子を比較すると 193.8V の方が約 3.5 倍小さい。一方、厚さ 3mm[†] 試料の 119.8eV と厚さ 1mm[†] 試料 193.8eV の自己遮蔽因子はほぼ等しい。この様に共鳴断面積や試料厚さが異なっても、自己遮蔽因子を指標として共鳴を分類することができる。この考え方を基に、Mo, Nb 試料の代表的な共鳴に対する反応率比を共鳴自己遮蔽因子の関数としてプロットした結果を図 3.3.3-21 に示す。自己遮蔽因子が大きい場合、反応率比は 1.0 に近い値となる。一方、自己遮蔽因子が小さくなる、即ち、共鳴による中性子

捕獲率が大きくなると、反応率比が増加する傾向が見られるが自己遮蔽因子が極端に小さい場合、即ち、共鳴が飽和している場合、反応率比は 1.0 に近くなる。図中の点線は各測定データを対数曲線で近似した曲線であり、明らかに自己遮蔽因子とドップラー効果による反応率変化の間に強い相関があることを示している。

本結果は、自己遮蔽因子を指標とすることで、共鳴パラメータが既知であれば任意の核種・共鳴毎の反応率比を予測できる可能性を示唆している。すなわち、共鳴の重なりや散乱断面積の大きさ等を加味して評価する手法を確立すれば、実験が困難である核種や共鳴についても反応率比を予測できることを意味する。この成果は、炉心設計での材料選択時のスクリーニングのみならず、測定データの検証への用途まで応用可能な世界的にも例を見ない本研究独自の知見である。

(6) 今後の開発課題

本研究開発では TOF 法を用いて共鳴吸収領域の積分中性子吸収率の温度による変化量の測定が目的であったが、研究過程において、共鳴の自己遮蔽因子とドップラー効果は強い相関性があることを見出した。本研究開発で用いた試料は Mo と Nb であり核反応においては中性子捕獲よりも散乱が大きな寄与を占める。本研究開発で示した共鳴自己遮蔽因子とドップラー効果の相関性を一般化するためには、中性子捕獲が中心の核種を用いた実験が必要である。この事に関しては、本研究開発が終了後も自主財源を用いて研究を進める予定である。この相関性について理論的な裏付けを行うことで、ドップラー効果測定が困難な核燃料核種や MA 核種等の任意の共鳴のドップラー効果を予測できる可能性がある。

(7) まとめ

平成 26 年度から平成 29 年度にかけて、京大炉ライナックのパルス中性子源を用いて共鳴吸収分光法による金属燃料代替合金材候補である Mo 及び Nb 金属のドップラー効果測定を実施した。試験に先立ち、平成 26 年度から平成 27 年度にかけて、ドップラー効果測定に適した中性子照射場の設計及び評価を行った。当初、5cm の軽水モデレータを用いた場合、モデレータ起因のエネルギー分解能は 1.0% と予想され、現状では測定エネルギー領域の 300eV 付近ではドップラー効果による共鳴広がり測定するのに十分なエネルギー分解能を得るのが難しいとの評価であったが、予備試験等の知見に基に、中性子照射場、中性子導管中の中性子コリメータ、鉛シャドーバー等を最適配置することにより、最終的に数 keV までのドップラー効果測定に成功した。

平成 27 年度までの知見を基に平成 28 年度から平成 29 年度にかけて、代替燃料合金候補材の一つである Mo 及び Nb を測定対象としてドップラー効果の本測定を実施した。その結果、Mo 試料についてはエネルギー 10eV から 1keV に存在する Mo 同位体の主な共鳴の観測及びドップラー効果による反応率変化の測定に成功した。また、Nb 試料については、照射場の更なる改良を行い 10 eV~10 keV のエネルギー範囲に於いて 10 b 程度の共鳴まで観測に成功した。ドップラー効果による反応率比を試料温度 600K における捕獲率に対する試料温度 300K における捕獲率の比として定義し、JFS-70 群構造によ

る解析を実施した。その結果、Mo 試料については計算値と実験値は 3 %、Nb 試料については計算値と測定値は最大 5 %の範囲内で一致した。特に、反応率の大きなエネルギー群については計算値と実験値は 3%以内で一致した。その結果、本研究開発で着目した代替合金材である Mo 及び Nb のドップラー効果評価の所期の目標精度である 20 %を実現できた。

更に、本研究の発展としてドップラー効果による反応率変化と共鳴毎の自己遮蔽因子の相関性について検討を行った。特に、個々の共鳴毎のドップラー効果測定は本研究独自のものである。その結果、自己遮蔽因子を指標とすることで、今回の研究対象となる金属燃料代替合金材の核種・共鳴毎の反応率比を評価可能との知見を得た。即ち、既存の実験値或いは計算値を用いることで、実験が困難である核種・共鳴の反応率比を予測することが可能である見通しを得た。これは、今後、理論及び実験の両面から詳細な検討が必要であるが、世界的にも例を見ない本研究独自の知見である。

参考文献

- (1) 原子力システム研究開発事業「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」、平成 26 年成果度報告書、(2015)
- (2) 原子力システム研究開発事業「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」、平成 27 年度成果報告書、(2016)
- (3) 原子力システム研究開発事業「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」、平成 28 年度成果報告書、(2017)
- (4) M.Nakagawa and K. Tsuchihashi: "SLAROM : A Code for Cell Homogenization Calculation of Fast Reactor," JAERI 1294, (1984)
- (5) Y. Nagaya, et. al.,: "MVP/GMVP II: General Purpose Monte Carlo Codes for Neutron and Photon Transport Calculations based on Continuous Energy and Multigroup Methods", JAERI 1348, Japan Atomic Energy Research Institute, (2005)
- (6) K. Shibata, et al., "JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering," J. Nucl. Sci. and Technol., Vol.48, pp.1, (2011)

表 3. 3. 3-1 試料と測定時間

サンプル	温度	測定時間 (hour)
3.0mm ^t	300K	28.0
3.0mm ^t	600K	30.8
1.0mm ^t	300K	11.7
1.0mm ^t	600K	9.9
昇温装置のみ	300K	7.2

表 3. 3. 3-2 厚さ 3. 0mm^t の Nb 試料における反応率の増加量

エネルギー群	主な共鳴 (eV)	反応率の増加量
41	378. 5	1. 16±1. 9%
42	335. 4	1. 09±2. 3%
44	193. 8	1. 15±1. 3%
46	105. 9, 119. 1	1. 04±1. 6%
51	35. 9	1. 06±4. 9%

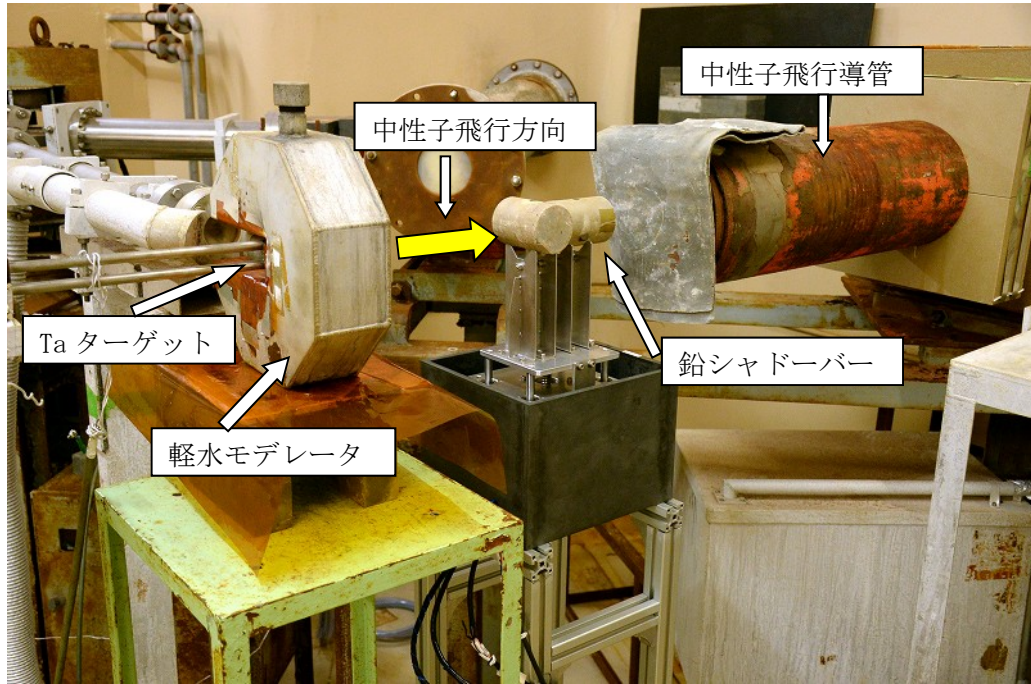


図 3. 3. 3-1 ターゲット室に設置した Ta ターゲットと軽水モデレータ

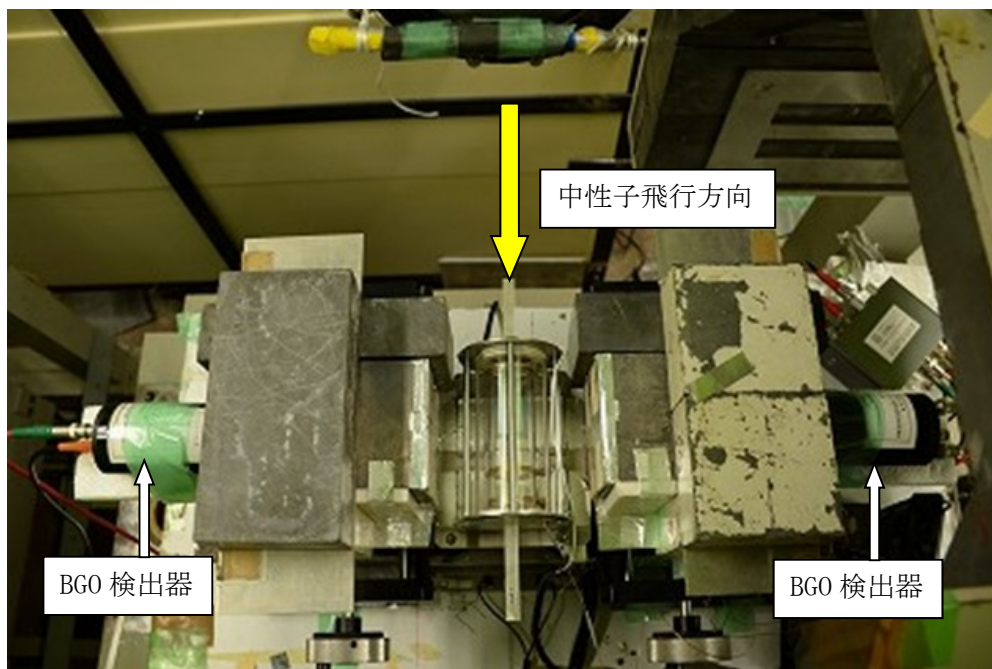


図 3.3.3-2 構築した中性子照射場（上面から見た写真）
 中央のガラス体：昇温装置
 両脇のブロック： γ 線遮蔽用鉛ブロック

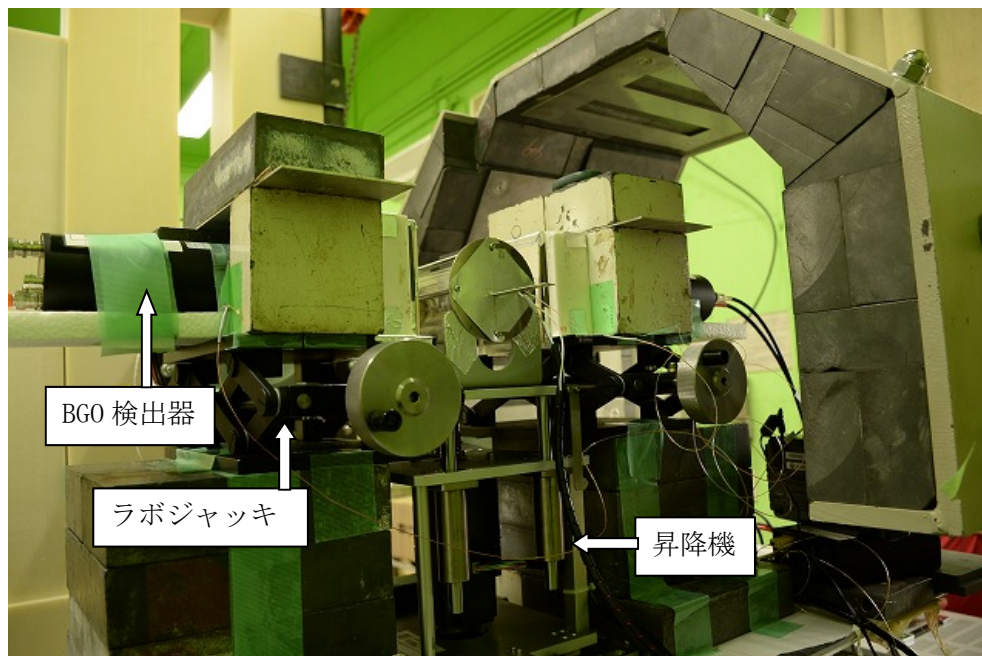


図 3.3.3-3 構築した中性子照射場（照射場下流から見た写真）
 昇温装置は専用の昇降台、BGO 検出器と γ 線遮蔽用鉛ブロックは
 ラボジャッキに設置し上下方向の微調整が可能となっている。

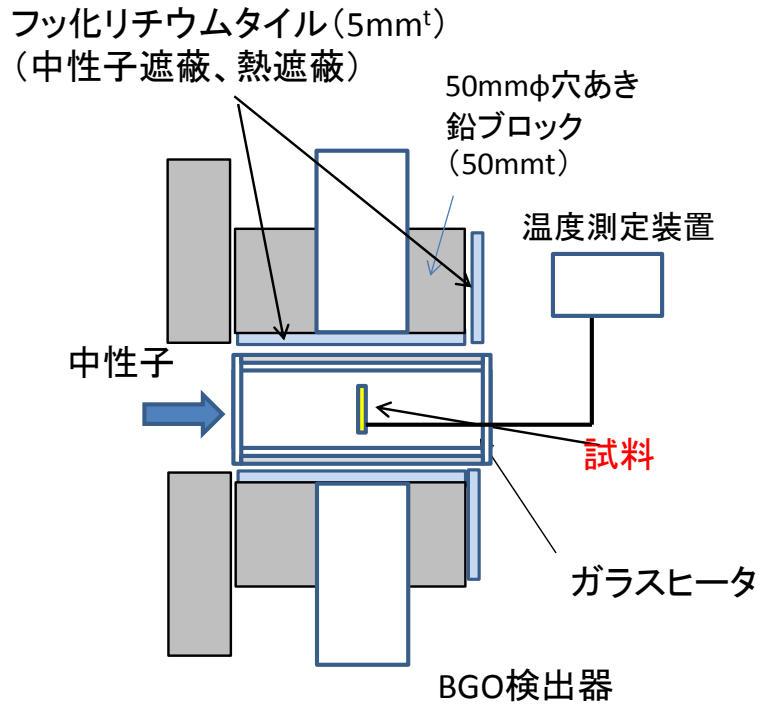


図 3. 3. 3-4 中性子照射場の概略図

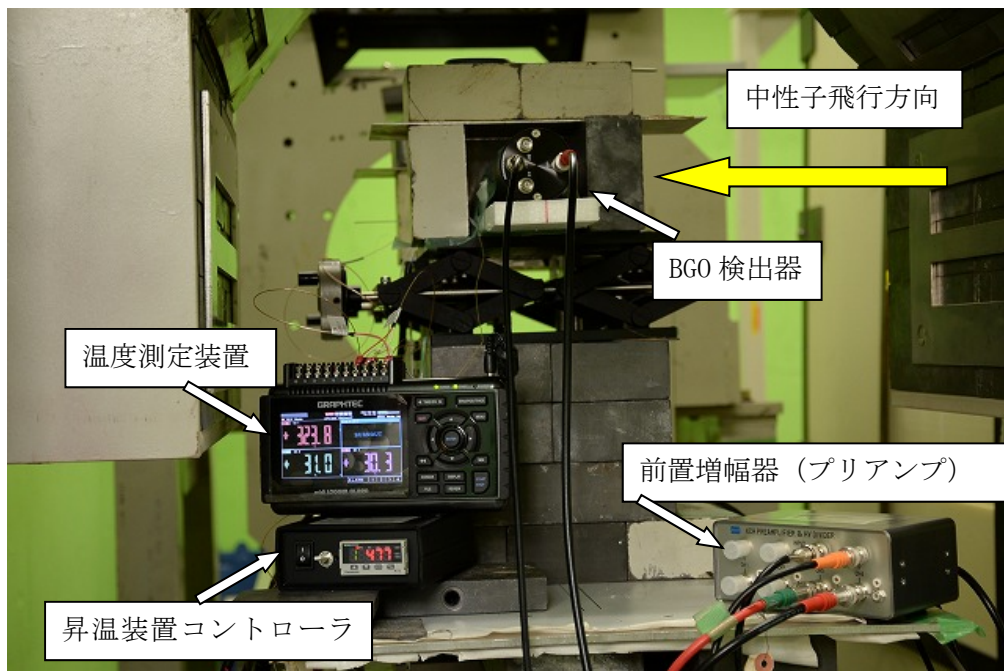


図 3. 3. 3-5 試料昇温の様子 (照射場を側面方向から見た写真)

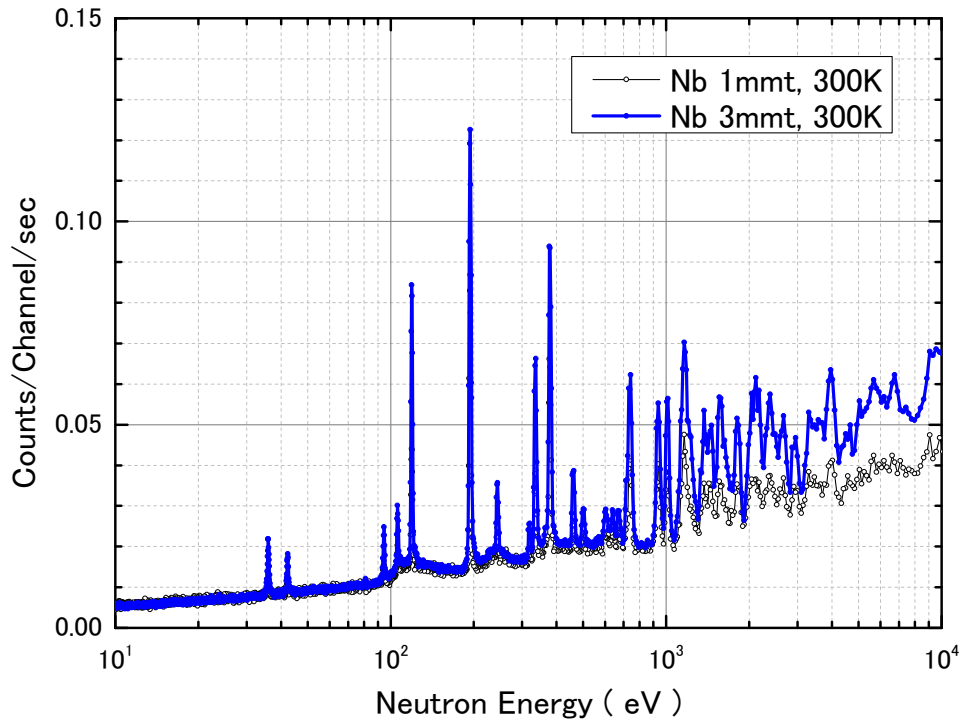


図 3. 3. 3-6 各 Nb 試料の TOF スペクトル

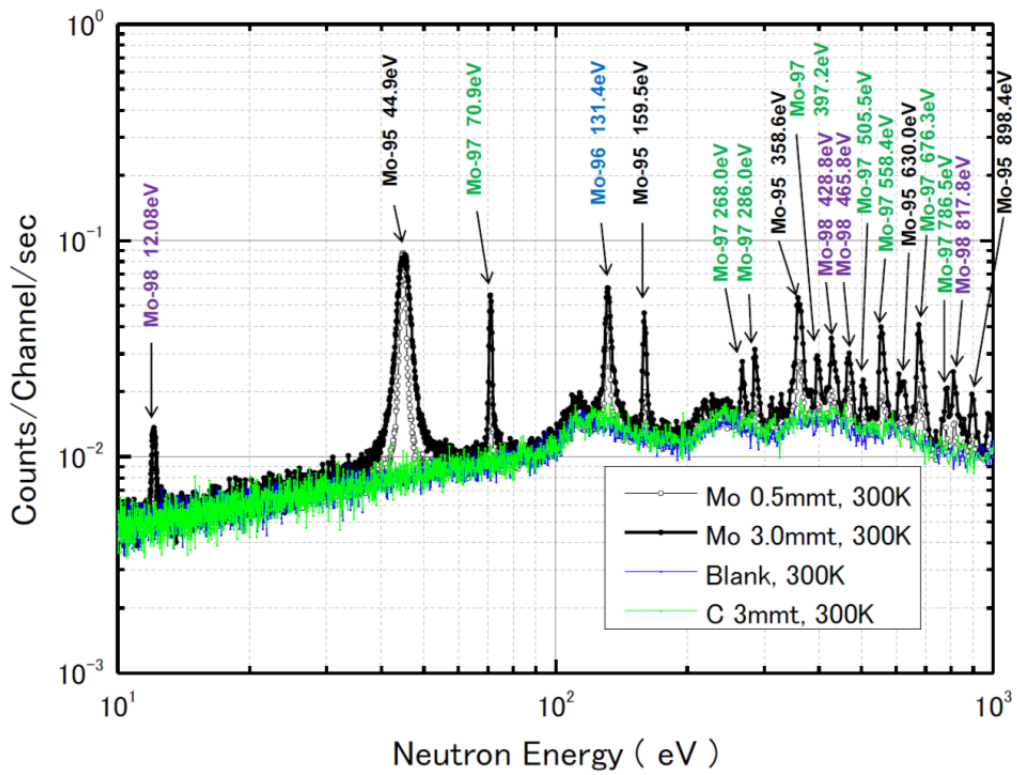


図 3. 3. 3-7 各 Mo 試料の TOF スペクトル[3]

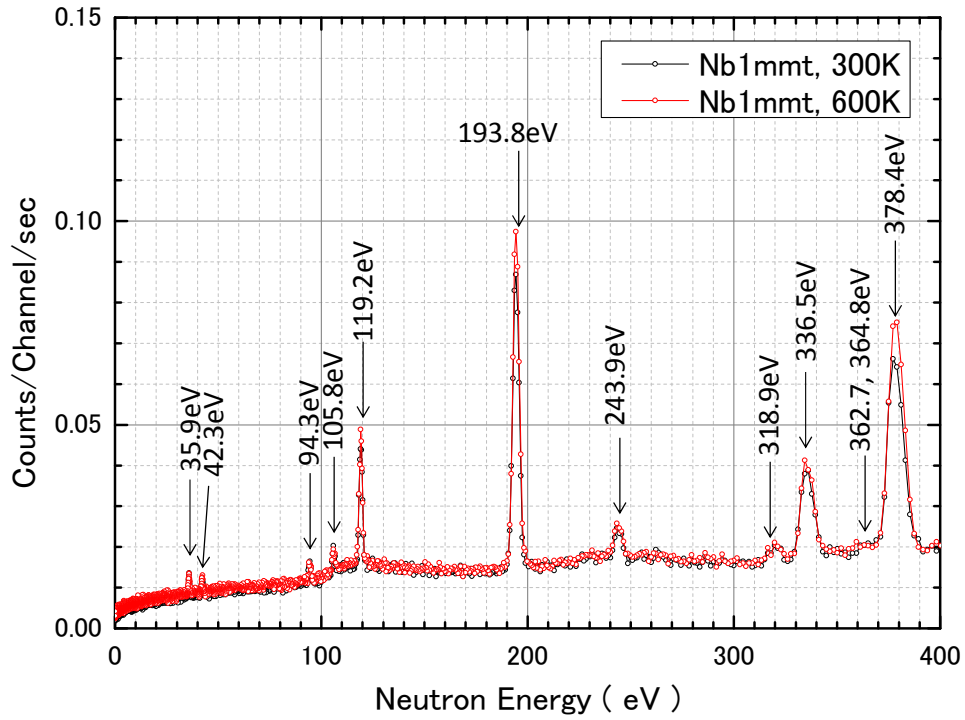


図 3. 3. 3-8 厚さ 1.0mm^t 試料における Nb-93 の共鳴捕獲率 (0 - 400 eV)

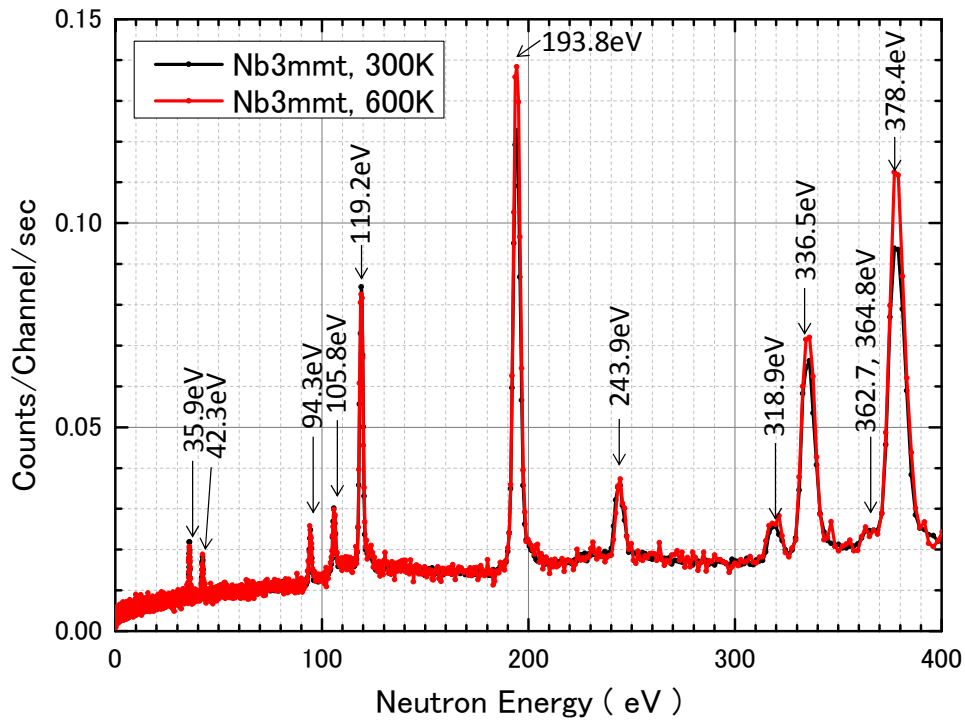


図 3. 3. 3-9 厚さ 3.0mm^t 試料における Nb-93 の共鳴捕獲率 (0 - 400 eV)

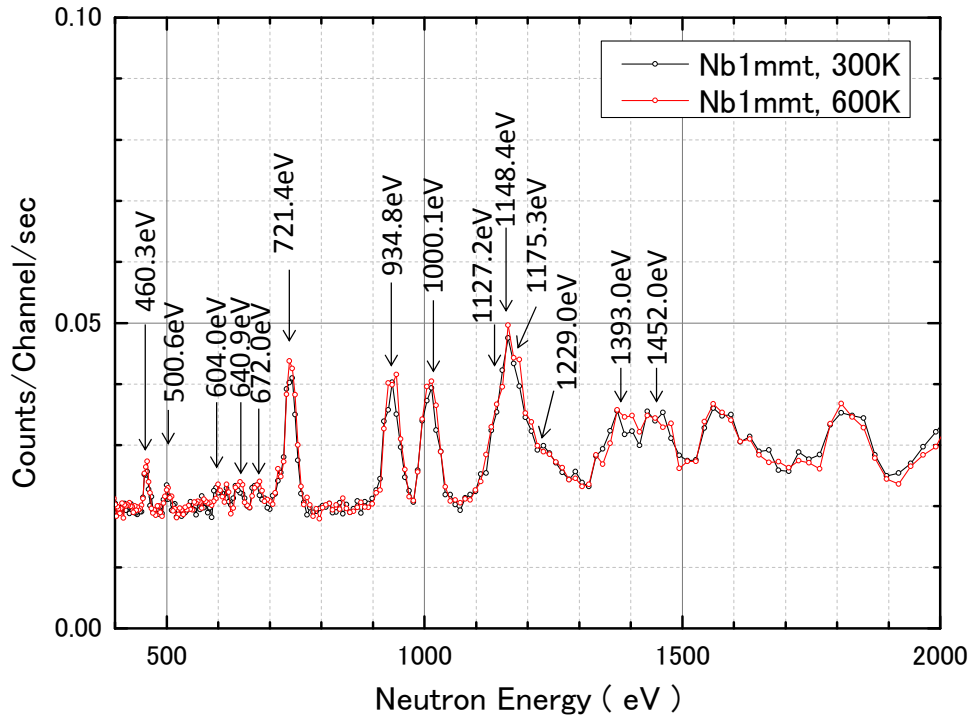


図 3.3.3-10 厚さ 1.0mm^t 試料における Nb-93 の共鳴捕獲率(400 eV - 2 keV)

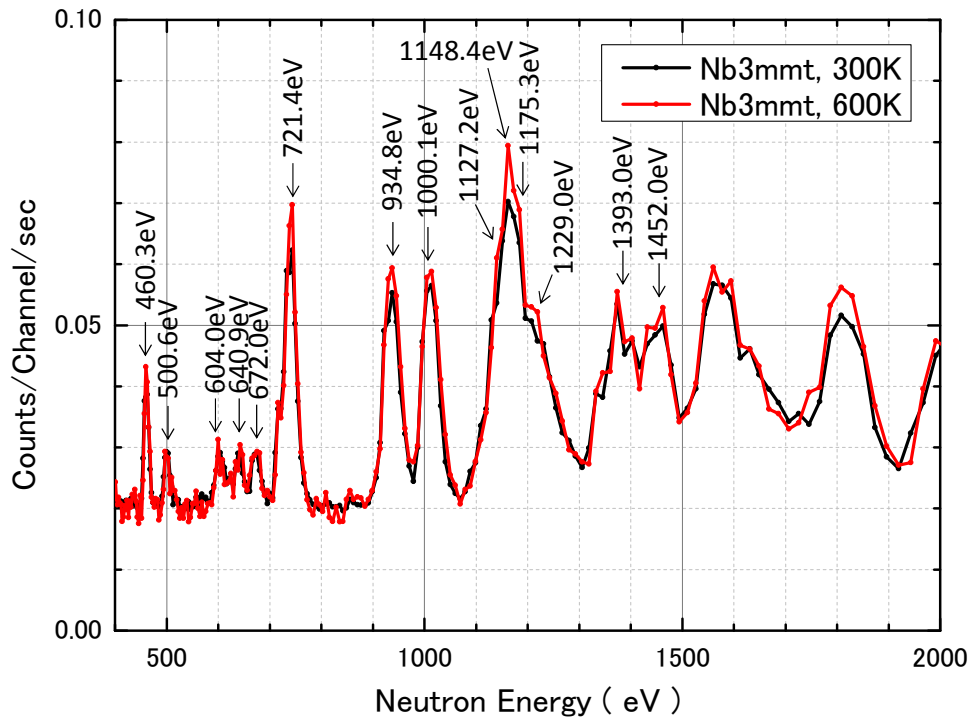


図 3.3.3-11 厚さ 3.0mm^t 試料における Nb-93 の共鳴捕獲率(400 eV - 2 keV)

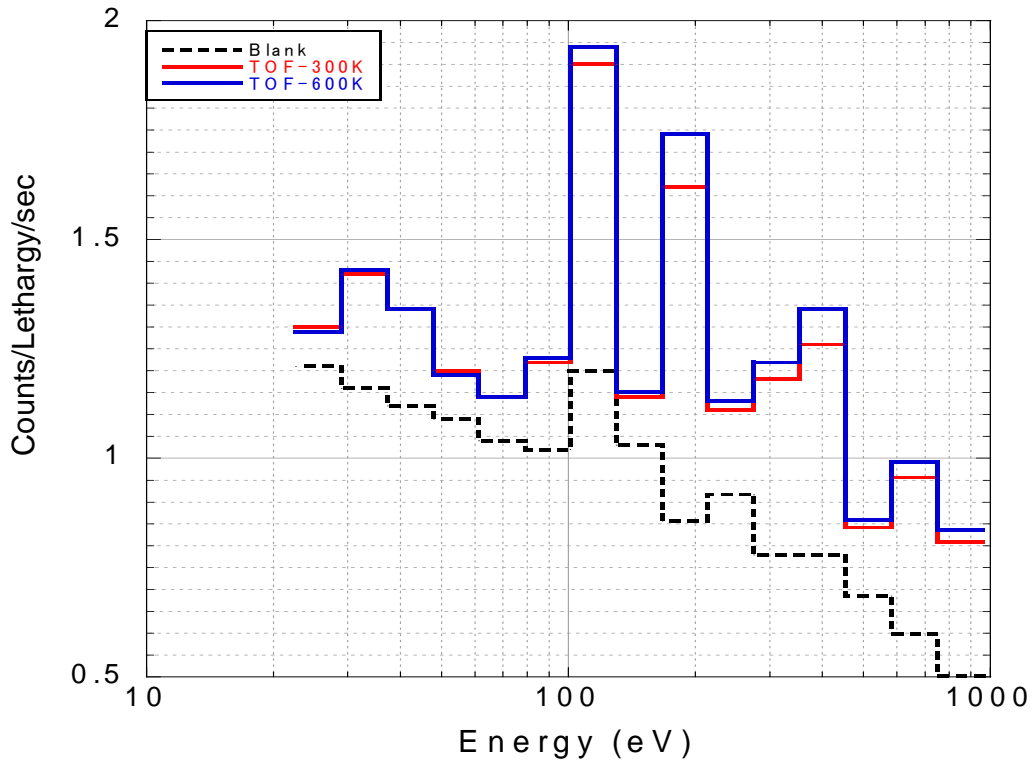


図 3. 3. 3-12 厚さ 3. 0mm^t の Nb 試料における JFS-70 群構造での TOF スペクトル

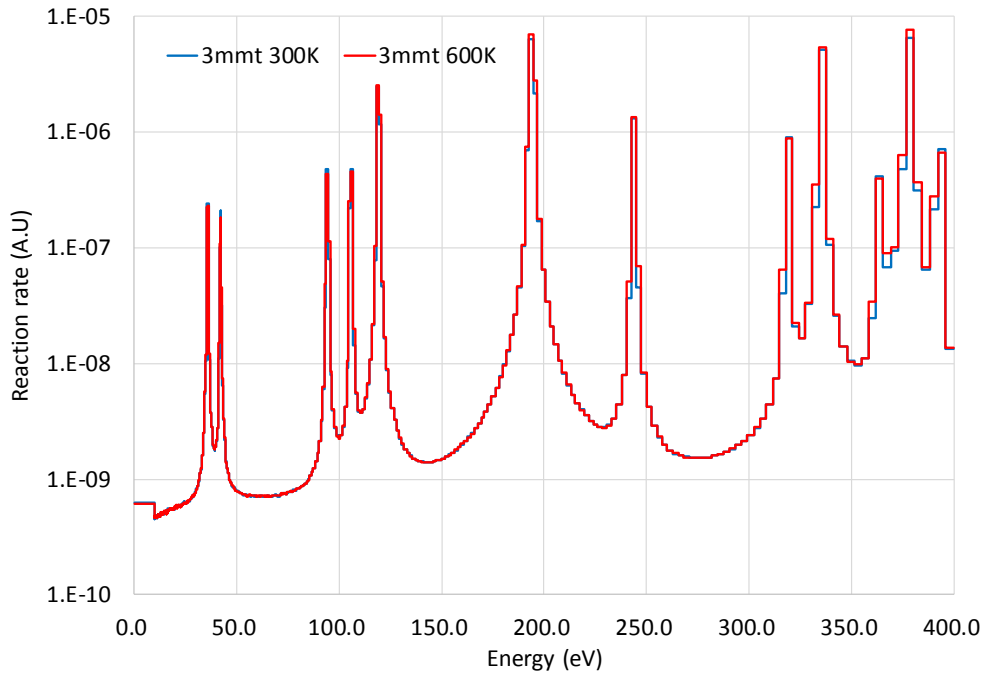


図 3. 3. 3-13 厚さ 3. 0mm^t 試料の Nb 試料内における中性子捕獲率 (lethargy = 0. 01)

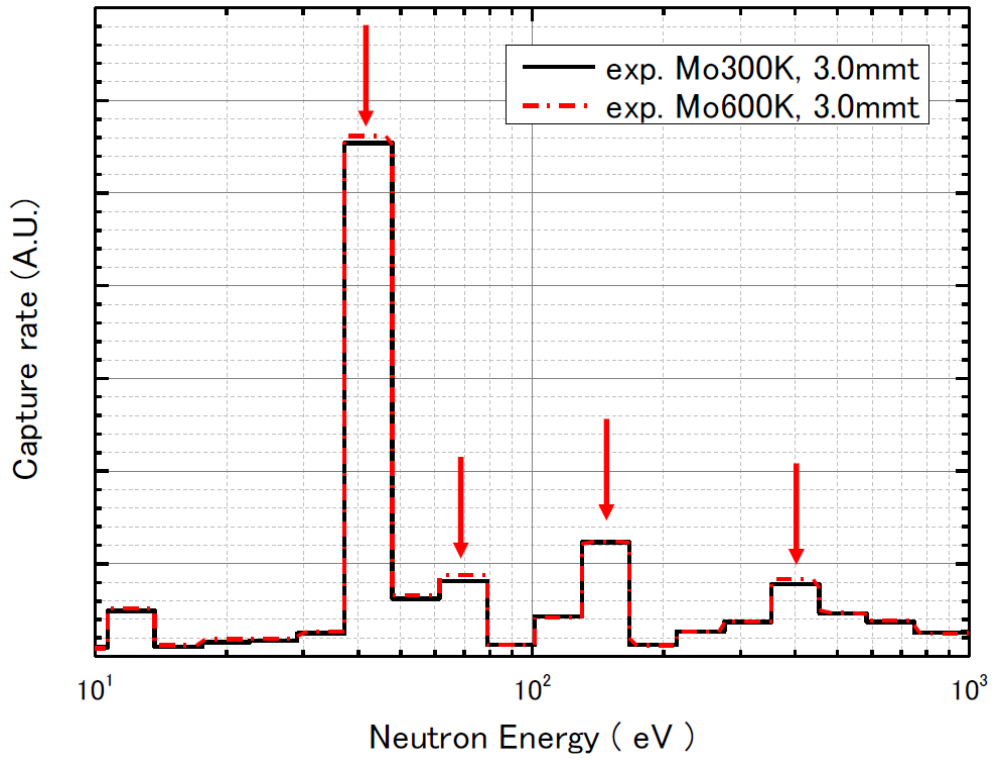


図 3.3.3-14 厚さ 3.0mm^t 試料の Mo 試料内における中性子捕獲率 (JFS-70 群構造)

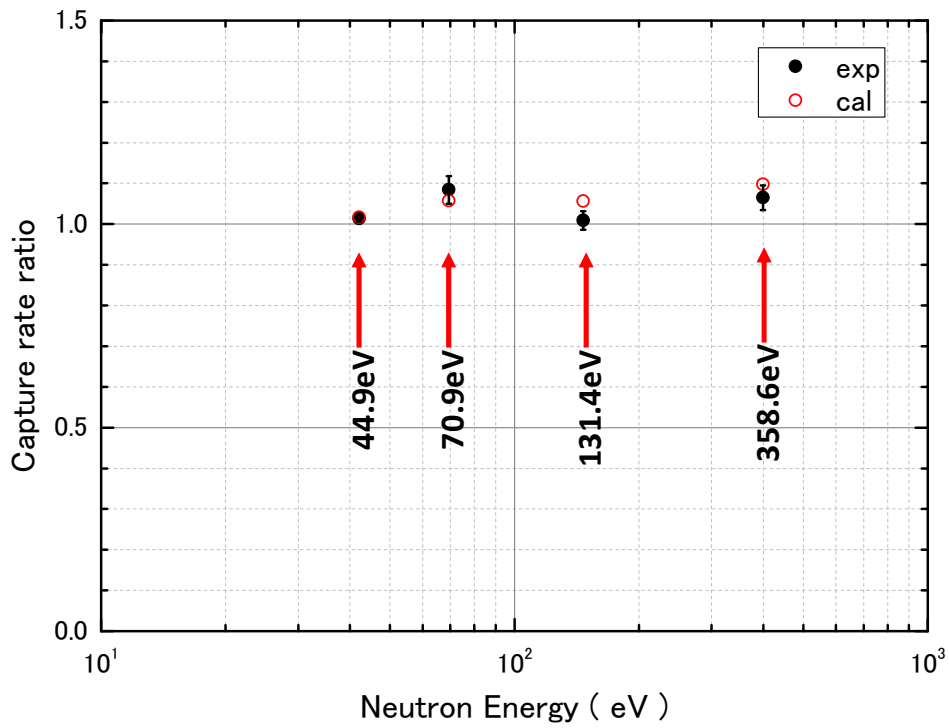


図 3.3.3-15 厚さ 3.0mm^t の Mo 試料におけるドップラー効果による反応率比 (計算値及び実験値)

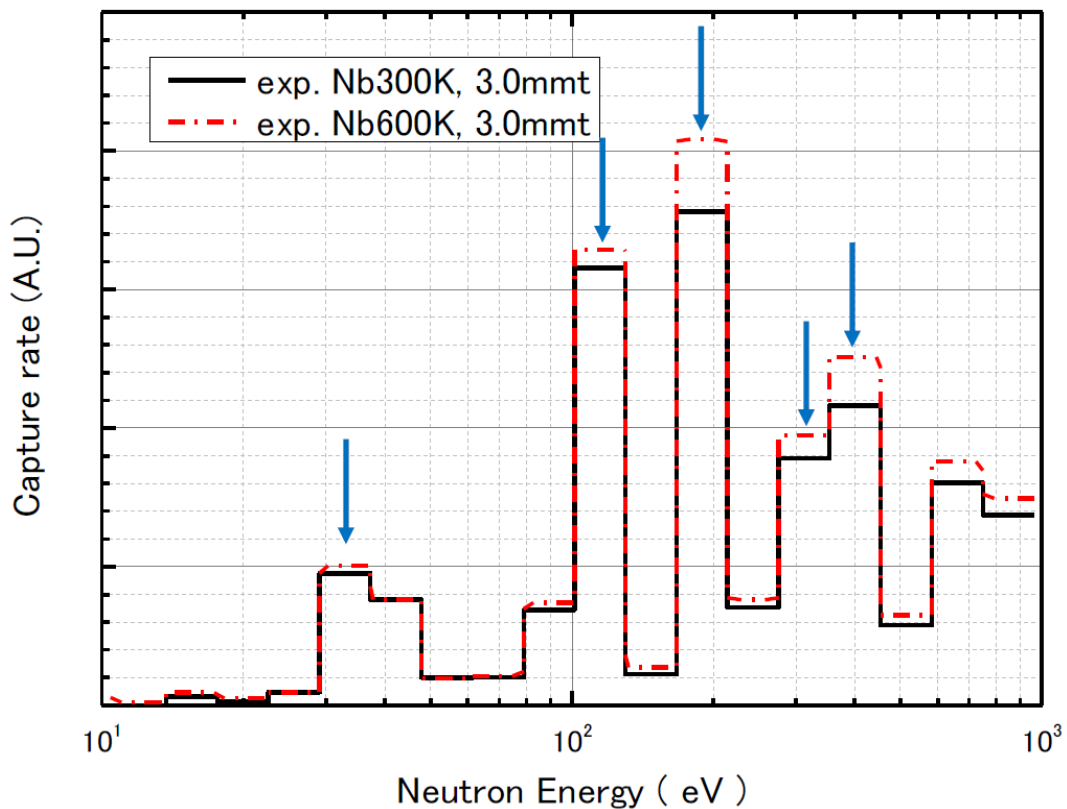


図 3.3.3-16 厚さ 3.0mm^t 試料の Nb 試料内における中性子捕獲率 (JFS-70 群構造)

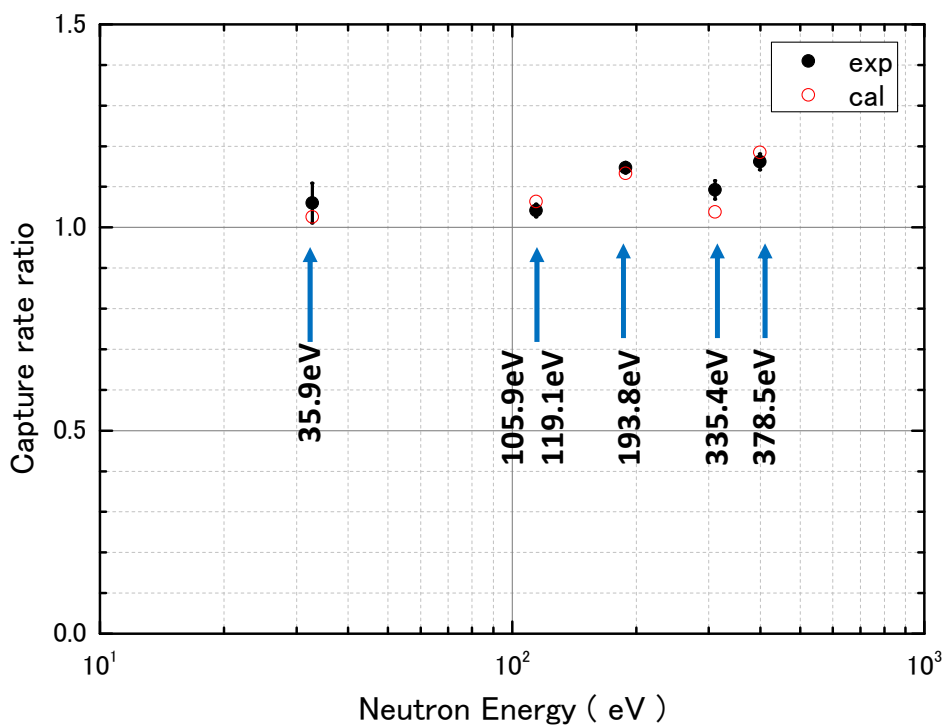


図 3.3.3-17 厚さ 3.0mm^t の Nb 試料におけるドップラー効果による反応率比 (計算値及び実験値)

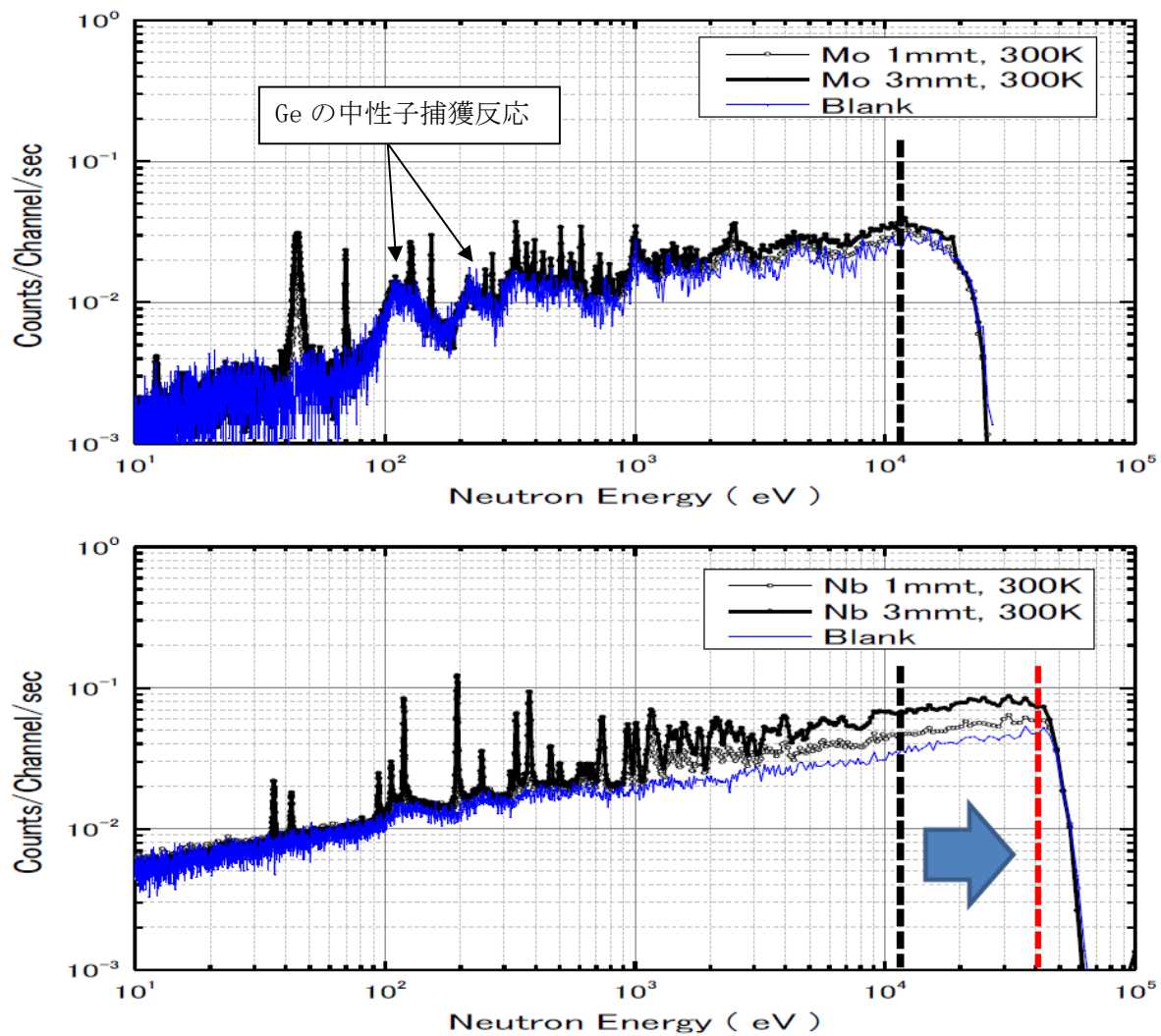


図 3.3.3-18 事業開始時と最終年度の TOF スペクトルの比較
 (上が事業開始時、下が最終年度の TOF スペクトル)

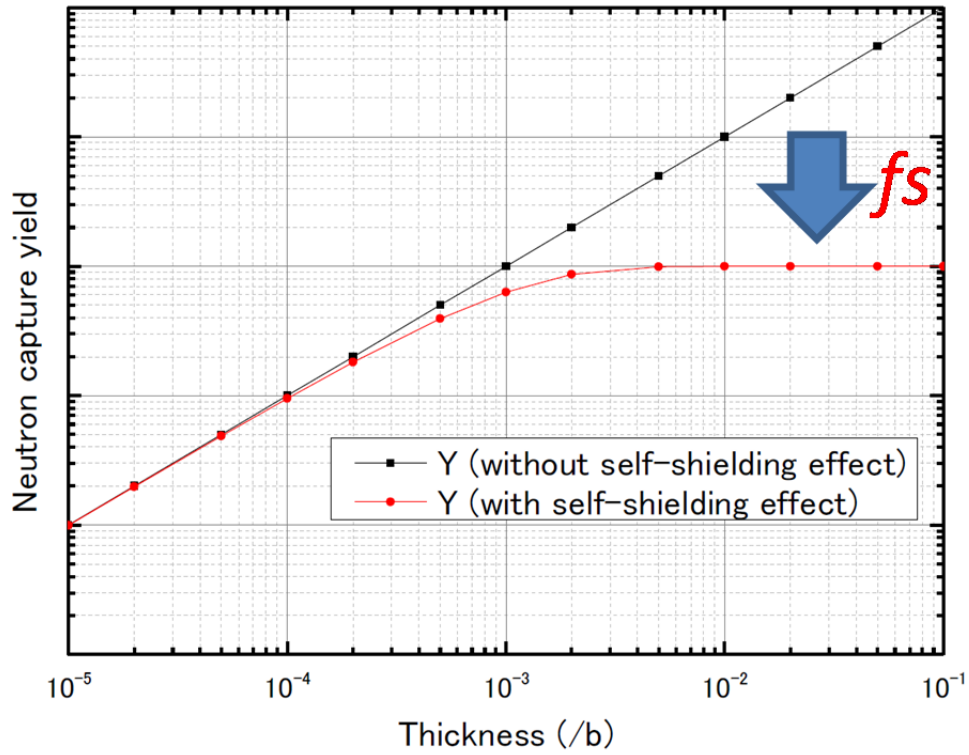


図 3. 3. 3-19 試料厚さ変化による中性子捕獲率変化

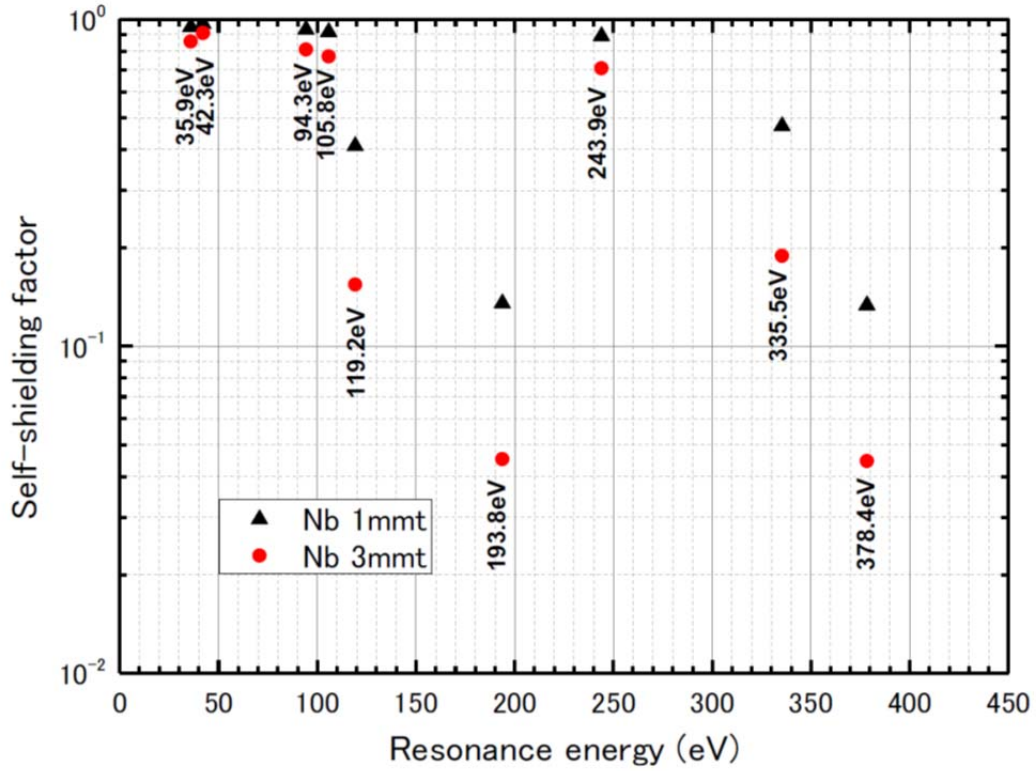


図 3. 3. 3-20 Nb-93 の主要共鳴の自己遮蔽因子

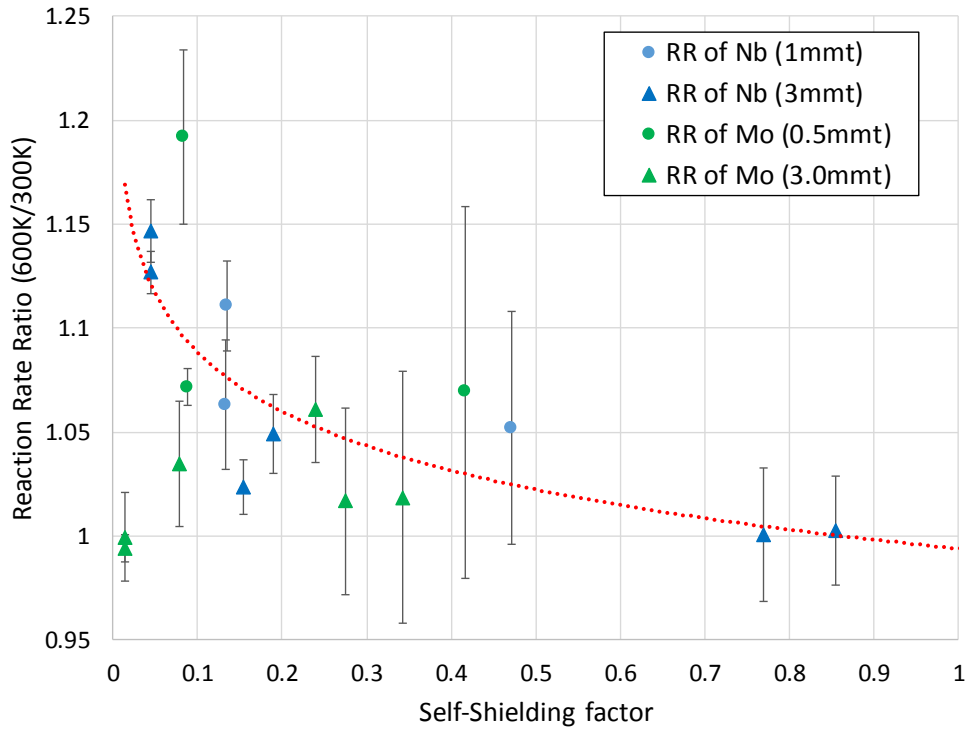


図 3. 3. 3-21 Mo, Nb 試料の主要な共鳴に対する自己遮蔽因子と反応率比の関係
(但し、測定誤差が 2σ で 50%を超えるデータは棄却した)

3.4 「核廃棄物燃焼システム」の検討

3.4.1 TRU 金属燃料炉心の評価 (H29)

(1) 概要

U 無 (TRU-40Zr) 炉心と U 少量添加 (20U-60TRU-20Zr) 炉心との炉心特性を比較した結果、U 少量添加による炉心・燃料特性面のメリット (炉心コンパクト化、燃焼反応度低減等) は小さいことが明らかになった。このため「核廃棄物燃焼システム」のシステム検討に用いる対象炉心は、3.3.2 項で設定した U 無しの基準炉心とマルチリサイクル燃料炉心とした。

なお、マルチリサイクル時の Cm 等の蓄積による新燃料崩壊熱の増加の影響として燃料製造工程の温度評価を実施し成立見通しを得た。

(2) U 少量添加効果の検討

3.3.2 項にて構築した炉心に U を 20wt.% 添加し、それに応じて Zr 割合を 20wt.% 減少させた 20U-60TRU-20Zr 金属燃料炉心を設定し、U 少量添加の効果を評価する。

U 少量添加炉心は、3.3.2 項に示した U を含まない TRU 金属燃料炉心 (炉心仕様：表 3.3.2-2、炉心配置：図 3.3.2-3) に対し、炉心配置、燃料寸法仕様等は変更せず、炉心の臨界性が同等となるように、内側／外側燃料のスミア密度を調整した。すなわち、60TRU-40Zr と 20U-60TRU-20Zr の密度は各々、約 10.6g/cm³ と約 13.8g/cm³ と考えられるので、両者の TRU 量を同じにするために、スミア密度を 75% から 58% に下げた。設定した仕様を、U 無炉心とともに表 3.4.1-1 に示す。

U 少量添加炉心の炉心特性の評価結果を、U 無炉心と比較して表 3.4.1-2 に示す。また、制御棒引抜反応度を表 3.4.1-3 に示す。これらの結果から、U を 20% 添加したことによる主な効果や影響は下記であることが分かる。

- TRU 燃焼量：約 12% 低下 (U238 からの TRU の新たな生成や、U238 の核分裂により TRU の核分裂量が減少するため)
- 最大線出力：約 5% 低下 (転換比が向上し燃焼に伴う出力低下が抑制されたため)
- 燃焼反応度：約 0.5%dk/kk' 低下 (転換比が向上するため)
- 誤引き抜き反応度：60¢ → 50¢ (燃焼反応度が低減するため)
- ドップラー係数：絶対値で約 30% 増加 (U238 のドップラー効果が加わったため)
- ボイド反応度：1.6\$ 正側に増加するが負 (U238 の閾核分裂反応のため)

燃料の基礎物性に関しては、3.1.1 項の検討結果に基づいて各種燃料組成の熱伝導率を図 3.4.1-1 に示すように、U を 20% 添加することにより Pu-40Zr よりも向上すると考えられるが、U をこの程度の範囲で添加した場合の物性データが十分ではなく、40% 程度の不確かさがあるため、最も保守側に想定すると熱伝導率は大きく向上しない可能性もある。融点については、Zr 割合が 20% まで低下することなどにより、保守側想定では Pu-40Zr の 1150℃ から 996℃ 程度まで低下する可能性があるが⁽¹⁾、熱伝導率と同様、この組成領域のデータは十分整備されていないため、150℃ 程度の不確かさがあると思われる。

このように、現状、20U-60TRU-20Zr の燃料基礎物性の不確かさが大きいですが、それらを保守側に想定した場合でも、定常時の燃料健全性は 3.1.2 項で示した通り CDF は 0.05 以下となり健全性は保てる見通しである。

燃料の過渡時の特性は、上記に示す様に熱伝導度は上昇するが、融点は低下するため反応度挿入事象時が厳しくなると考えられる。このため融点は最も保守側の値を想定して UTOP 時の燃料最高温度を過渡解析コード ARGO⁽³⁾にて評価した。このときの投入反応度は表 3.4.1-3 の制御棒価値に基づき、50¢/200 秒とした。解析結果を表 3.4.1-4 に示すように、熱伝導度が不確かさの上限の場合には、UTOP 時でも燃料溶融は回避できるが、熱伝導率も保守側想定した場合には燃料溶融に至る可能性があると推測される。(熱伝導率、融点とも不確かさの下限値を想定することは過度に保守的と考え、そのようなケースの解析は実施していない。)

以上の結果から、U を 20%添加すると、TRU 燃焼量が約 12%低下するとともに、燃料融点の低下や熱伝導率の不確かさが大きいことなどから UTOP 時の燃料溶融回避に対する裕度は必ずしも増えないため、線出力向上(高出力密度化)による炉心コンパクト化は難しいと考えられ、U の少量添加による大きなメリットは見出せないことが分かった。したがって、3.3.2 項で示した U を含まない TRU 金属燃料炉心の方が魅力的である。

ただし、現状知見の範囲では U 少量添加 TRU 金属燃料の熱伝導率や融点等の基礎物性は不確かさが大きいため、今後、これらのデータベースの精度向上が重要であり、その結果によっては、U を少量添加した TRU 燃焼金属燃料炉心は将来の選択肢となる可能性は残されている。

(3) マルチリサイクル燃料製造の検討

①目的

マルチリサイクル燃料は Cm 等の組成割合が多くなるため、燃料の発熱量(崩壊熱)が高くなる。このような燃料の製造工程で高発熱燃料ピンを扱うことができるかについて検討する。

②マルチリサイクル燃料の発熱量について

マルチリサイクル燃料とは、TRU 燃焼高速炉炉心から取出し後、燃料再処理し、炉で燃焼して消費した分の TRU を燃料に補充した上で、燃料集合体として再び高速炉炉心に装荷するサイクルを繰り返したときに燃料組成が平衡となったときの燃料のことである。

燃料製造工程に供給される燃料は、取出—再処理—TRU の新規補充等を経て、射出成型により燃料スラグが成型される。炉心から取出した後、当該燃料が炉外に置かれる時間は、冷却時間 1 年、燃料再処理 1 年、燃料製造 1 年、炉心装荷前の燃料待機貯蔵 1 年の計 4 年間の冷却を想定する。このような過程を繰り返してマルチリサイクルされる燃料について燃料サイクル解析コードシステム REBUS-PC⁽⁴⁾を用いて算出した。その結果、得られた燃料組成と燃料崩壊熱を表 3.4.1-5 に示す。マルチリサイクル TRU 燃料の重金

属重量 1kg 当たりの崩壊熱は 123W/kg である。

③燃料製造工程の熱的成立性検討

燃料製造工程が成立するためには、各工程において燃料及び被覆管が健全性に影響しない温度範囲に収まる必要があるとあり、図 3.4.1-2 に燃料製造の概略工程と熱的成立性の観点から確認すべき項目を示す。すなわち、1)燃料スラグを被覆管内に装荷し加工された燃料ピンが仮置された状態（自然循環冷却）、2)加工された燃料ピンのリーク検査時に検査装置内で真空引きされた状態（約 30 分、断熱状態）、3)複数の燃料ピンをバンドルとして燃料集合体として組み立てた状態（強制冷却状態）の 3 か所に着目した。

ここでは、既往研究⁽⁵⁾の高速増殖炉サイクル実用化研究開発(Fast Reactor Cycle Technology Development :FaCT)プロジェクトの炉心燃料の製造工程は成立しているとの前提に立ち、それと比較することにより評価した。表 3.4.1-6 には燃料仕様や燃料崩壊熱等について FaCT との比較を示す。1)の燃料ピン 1 本の仮置き自然循環冷却状態では、燃料ピンの表面熱流速は FaCT と同等であるが、酸化物燃料の FaCT では燃料ピンは横置きであるのに対して、金属燃料ピンは通常、縦置きであるので除熱挙動が異なる。2)の断熱状態でのリーク検査時に関しては、本研究の燃料ピンの崩壊熱線出力は FaCT の約 1/2 であるが、燃料ピン単位長さ当たりの重金属燃料量は FaCT の約 1/10 であるため、燃料の熱容量が小さく、断熱状態では燃料温度上昇幅が大きくなる。3)のバンドル組立時に関しては、集合体を組み立てた際の燃料ピンバンドルの単位長さ当たりの出力（約 38W/cm）は FaCT と同等であり、また強制冷却が期待できること等を考慮すると問題ないと考えられる。

したがって、以下では、1)の燃料ピン 1 本の自然循環冷却時と、2)の断熱状態のリーク検査時について、最高温度を評価した。

④各状態の温度評価

1)燃料ピン 1 本の自然循環除熱時温度

垂直円柱体系での自然循環除熱⁽⁶⁾特性を下記にて評価した。

温度上昇量 ΔT

$$\Delta T = (T_w - T_\infty) = q'/h$$

T_w : 被覆管壁温度

T_∞ : バルク領域温度

q' : 熱流速

h : 被覆管表面の熱伝達率

被覆管表面の熱伝達率 h

$$h = \text{Nulave} \cdot l/\lambda$$

Nulave: 平均 Nu 数

$$\text{Nulave} = 4/3 (\text{Nux})_{x=l}$$

$$Nux = C_1(v_{\infty}/v_w)^{0.21} Ra_x^{1/4}$$

$$C_1 = \frac{3}{4}(Pr/(2.4 + 4.9\sqrt{Pr} + 5Pr))$$

$$Ra = Gr \cdot Pr$$

$$Gr = g \cdot \beta(T_w - T_{\infty})l^3/v^2$$

v : 動粘性係数

l : ピンの高さ 0.55m

λ : 空気の熱伝導率

β : 空気の体膨張係数

Nux : 局所ヌセルト数

Pr : プラントル数

Ra : レーレー数

Gr : グラスホフ数

上記の自然循環計算のパラメータを表 3.4.2-7 に示す。評価結果は以下になった。被覆管制限温度は被覆管の空気中での酸化防止の 300°C⁽⁷⁾であるので、成立している。

表面熱流速 : 470W/m²

被覆管温度 (Tw) : 113°C

2) 断熱リーク検査時の温度評価

リーク検査は真空引き状態であるため気体による自然循環除熱が困難であるため、断熱時間を 30 分⁽⁵⁾として、その間の温度上昇を評価した。成立性の判断条件は燃料スラッグの熔融防止 (1160°C以下) とした。

評価結果は下記のとおりであり、室温 20°Cとすると燃料スラッグの最高到達温度は 629°Cであり、燃料熔融に対し十分な余裕があることが分かった。

$$\text{温度上昇幅 } \Delta T = q \times 1800 / 0.218 / (0.385^2 \times \pi \times 0.75 \times 10.9) = 609$$

$$q = 0.07 \text{ W/cm} \quad (\text{表 3.4.2-6 参照})$$

$$\text{燃料スラッグ中心温度評価結果 : } 629^\circ\text{C} < 1160^\circ\text{C}$$

⑤まとめ

マルチリサイクル燃料の発熱量を評価し、燃料製造工程を想定して、温度が上昇する可能性が高い工程を摘出し取扱いできるかを検討した。その結果、いずれも制限値以下となる見通しであり、マルチリサイクル燃料の製造において除熱上の問題となる工程はない。

(4) 「核廃棄物燃焼システム」への適用炉心

上述のとおり、U 少量添加による炉心・燃料特性面のメリット (炉心コンパクト化、燃焼反応度低減等) は小さいため、本研究の「核廃棄物燃焼システム」に適用する炉心は、TRU 燃焼効率の高い、3.2.2 項で設定した基準炉心とマルチリサイクル燃料炉心 (表 3.3.2-2 参照) とする。

(5) 今後の開発課題

U を少量添加することは将来の選択肢の 1 つとして考慮することは考えられる。その際には以下が課題となる。

U を少量添加した場合の熱伝導等の不確かさが大きい。これらについては実際の物質での熱伝導度測定による精度向上が必要である。

(6) まとめ

U 無 (TRU-40Zr) 炉心と U 少量添加 (20U-60TRU-20Zr) 炉心との炉心特性を比較した結果、U 少量添加による炉心・燃料特性面のメリット (炉心コンパクト化、燃焼反応度低減等) は小さいことが明らかになった。このため「核廃棄物燃焼システム」のシステム検討に用いる対象炉心は、3.3.2 項で設定した U 無しの基準炉心とマルチリサイクル燃料炉心とした。

また、マルチリサイクル時の C_m 等の蓄積による新燃料崩壊熱の増加を考慮して燃料製造工程の温度評価を実施し、その成立見通しを得た。

参考文献

- (1) 原子力システム研究開発事業「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」平成 26 年度成果報告書、(2015)
- (2) 原子力システム研究開発事業「MA 入り Pu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」平成 28 年度成果報告書、(2017)
- (3) H. ENDO, EL. KUMAOKA, Y. GOLAN, S. and NAKAGAWA, H. "Passive safety features of a bottom supported fast breeder reactor vessel", Nuclear Technology, Vol.99, p.318, (1992)
- (4) A. P. Olson, "A User's Guide for the REBUS-PC Code, Version 1.4," Argonne National Laboratory, (December 21, 2001)
- (5) 「高速増殖炉サイクルの実用化戦略調査研究 フェーズ II 技術検討書 ー (2) 燃料サイクルシステムー」, JAEA-Research 2006-43 (2006)
- (6) 伝熱工学資料 改定第 4 版
- (7) K. Kawaguchi et. Al., "CONCEPTUAL STUDY OF MEASURES AGAINST HEAT GENERATION FOR TRU FUEL FABRICATION SYSTEM", Global 2007, Boise, Idaho, September 9-13, 2007.

表 3.4.1-1 U 少量添加炉心とU 無炉心（基準炉心）の仕様

項 目	U 無炉心（基準炉心） （60TRU-40Zr 燃料）	U 少量添加炉心 （20U-60TRU-20Zr 燃料）
原子炉出力 (MWth/MWe)	714/280	←
原子炉出入口温度 (°C)	482/350	←
運転サイクル長 (日)	148	←
燃料交換バッチ数	8	←
集合体数		
内側炉心	198	←
外側炉心	162	←
主炉停止棒	31	←
後備炉停止棒	6	←
反射体	234	←
炉心高さ (cm)	55	←
集合体配列ピッチ (cm)	14.68	←
燃料集合体		
ガスペナム長 (cm)	82.5	←
上部遮蔽体長 (cm)	40	←
下部遮蔽体長 (cm)	75	←
ラッパ管外対面距離 (cm)	14.18	←
ラッパ管内対面距離 (cm)	13.38	←
ラッパ管肉厚 (cm)	0.4	←
ピン本数		
全本数	547	←
燃料ピン (内側炉心/外側炉心)	279/389	←
BeO ピン	268/158	←
燃料ピン配列ピッチ	0.565	←
燃料ピン		
被覆管外径 (cm)	0.475	←
被覆管内径 (cm)	0.385	←
被覆管肉厚 (cm)	0.045	←
燃料スラグ径	0.333	0.293
(燃料スミア密度 %TD)	75	58
燃料材質	60TRU-40Zr	20U-60TRU-20Zr
ボンド材	Na	←
減速材ピン		
被覆管外径 (cm)	0.475	←
被覆管内径 (cm)	0.415	←
被覆管肉厚 (cm)	0.03	←
減速材材質	BeO	←
減速材スミア密度 (%TD)	85	←
制御棒		
吸収体有効長 (cm)	55	←
B ₄ C ペレット理論密度 (%TD)	0.95	←

表 3. 4. 1-2 設定炉心の特性値の比較

項 目	U 無炉心 (基準炉心) (60TRU-40Zr 燃料)	U 少量添加炉心 (20U-60TRU-20Zr 燃料)
TRU 燃焼量 (kg/GWe/年) *	747	655
ドップラー係数 (Td _k /dT) **	-1.91E-03	-2.56E-03
燃料密度係数 (Δk/kk')/(Δρ/ρ)***	0.40	0.41
構造材密度係数 (Δk/kk')/(Δρ/ρ)***	-0.010	-0.016
冷却材密度係数 (Δk/kk')/(Δρ/ρ)***	0.010	0.006
ボイド反応度 (\$) ***	-2.8	-4.4
遅発中性子割合	0.00251	0.00266
燃焼反応度 (% Δk/kk')	3.45	2.96
取出平均燃焼反応度 (at%)	約 24	約 17
最大線出力		
内側炉心 (BOL/EOL) (W/cm)	215/127	205/129
外側炉心 (BOL/EOL) (W/cm)	185/125	178/124
高速中性子照射量 (1E23n/cm ²) ****	1.42	1.39

*:稼働率 80%、**:BOEC、***:EOEC、****:2次元 RZ 計算値

表 3. 4. 1-3 制御棒引き抜き反応度

主炉停止系制御棒状態	60TRU-40Zr 炉心 (基準炉心)	20U-60TRU-20Zr 炉心	
	反応度 (cent)	反応度 (Δk/kk')	反応度 (cent)
全制御棒 16.5cm 挿入 (BOEC 定格運転状態)	-	-3.20%	-
中心制御棒 1 本引抜	50	0.11%	43
第 4 列制御棒 1 本引抜	52	0.12%	45
第 7 列制御棒 1 本引抜	54	0.13%	47
第 10 列制御棒 1 本引抜	36	0.09%	33
第 10 列制御棒 1 本引抜	50	0.11%	42

表 3.4.1-4 UTOP 過渡事象特性評価

炉心タイプ	投入反応度 (β / 200s)	線出力 (W/cm)	熱伝導率	ドップラー係数 及び 冷却材密度係数	燃料最高温度 解析結果 ($^{\circ}$ C)	燃料溶融回避 判断基準
U20%添加炉心	50	205	20U-60TRU-20Zr (上限値)	H29年度評価値	980	燃料融点996 $^{\circ}$ C
TRU-40Zr炉心 (H28年度)	60	215	TRU-40Zr	H28年度評価値	1139	燃料融点1150 $^{\circ}$ C

表 3.4.1-5 マルチサイクルの TRU 組成と崩壊熱

核種	比率	比発熱 (W/g)	燃料 1kg 当たり 発熱 (W)
Pu238	0.062	5.67E-01	3.54E+01
Pu239	0.241	1.92E-03	4.62E-01
Pu240	0.340	7.10E-03	2.42E+00
Pu241	0.053	3.20E-03	1.69E-01
Pu242	0.123	1.13E-04	1.39E-02
Np237	0.031	2.16E-05	6.73E-04
Am241	0.075	1.14E-01	8.50E+00
Am242m	0.004	3.84E-03	1.65E-02
Am243	0.039	6.41E-03	2.51E-01
Cm242	0.000	1.22E+02	1.51E+01
Cm243	0.000	1.90E+00	8.18E-01
Cm244	0.021	2.83E+00	6.03E+01
Cm245	0.005	5.70E-03	2.78E-02
Cm246	0.003	1.01E-02	2.72E-02
計	0.998	計	1.23E+02

U は若干含まれるが、その崩壊熱は小さいため発熱評価では無視した。

表 3. 4. 1-6 燃料仕様、崩壊熱等に関する FaCT 炉心燃料との比較⁽³⁾

項 目	FaCT	本炉心
燃料ピン径 (mm)	10. 4	4. 75
燃料ピン内径 (mm)	8. 98	3. 85
燃料肉厚 (mm)	0. 71	0. 45
燃料ペレット		
外径 (mm)	8. 74	3. 33
内径 (mm)	2. 6	0
スミア密度	82	75
ペレット密度 (g/cm ³)	11	10. 9
HM 比率	0. 88	0. 6
炉心長 (cm)	100	55
ペレット理論密度 (frac.)	0. 95	1
ワイヤー径 (mm)	1. 03	0. 9
P/D	1. 11	1. 19
pin-pin gap (mm)	1. 10	0. 90
ピン本数	255	547
ラッパ管内対面 (mm)	201. 6	141. 8
ピン単位長さ当たりの重金属量 (g)	5. 029	0. 570
集合体当たりの重金属量 (kg)	128. 24	17. 14
発熱量 (W/kg)	30. 0	123. 0
単位長さバンドル断面出力 (W/cm)	38. 47	38. 32
ピン 1 本出力 (W)	15. 09	3. 85
比熱 (J/kg)	214	218
比重 (g/cm ³)	11	10. 9
1 秒当たりの温度上昇量 (°C/s)	0. 107	0. 339
線出力 (W/cm)	0. 151	0. 070
断熱 30 分後の温度 (°C)	192. 3	609. 4
表面熱流速 (W/m ²)	461. 8	469. 5

表 3. 4. 1-7 縦置きピンの自然循環除熱計算データ

温度提示	T_w	386.074
	T_∞	290
		349.5659
	λ (W/mK)	0.035
	ν (m ² /s)	2.49E-05
	β	0.003448
	η (Pa/s)	2.10E-05
	C_p (J/kg/k)	1.01E+03
	$Pr=n*C_p/\lambda$	6.07E-01
	C_1	3.80E-01
	X	0.55
	Gr_x	5.24E+09
	$GrX-0.5$	8.71E+08
	Ra数 Gr_x*Pr	5.28E+08
	Nux $C_1*Ra^{1/4}$	5.75E+01
	h_x	3.66E+00
	熱流束 (w/m ²)	351.825
	平均熱流束 (W/m ²)	469.1

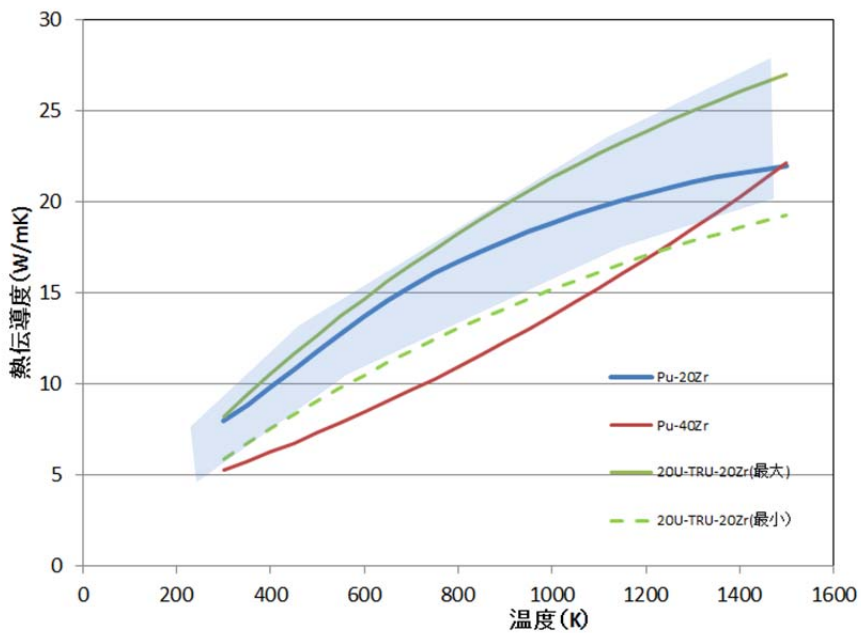
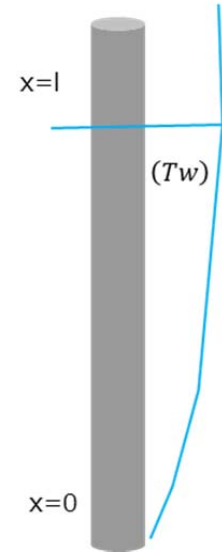


図 3. 4. 1-1 20U-60TRU-20Zr の熱伝導率の不確かさ

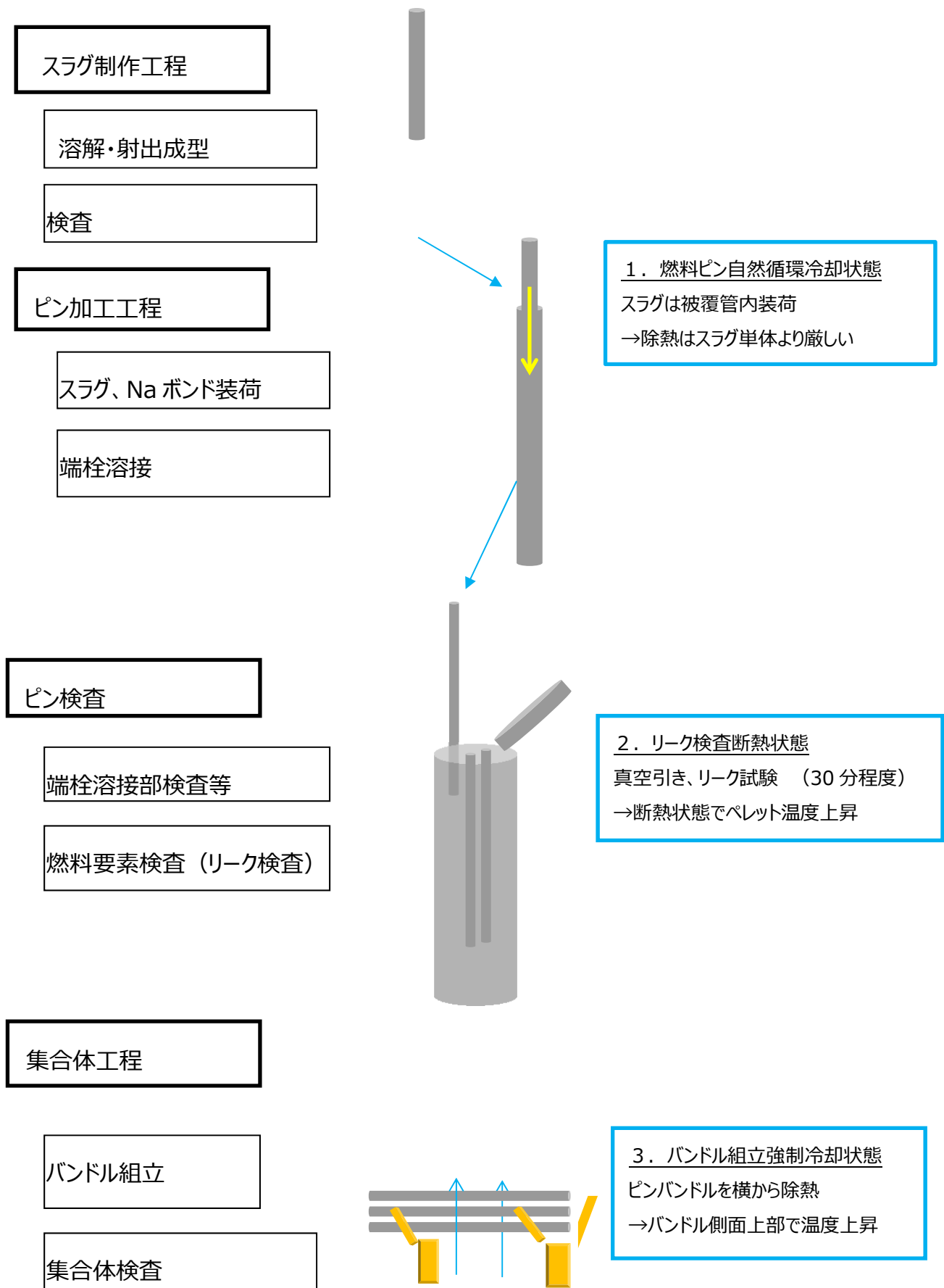


図 3. 4. 1-2 燃料製造概略工程と熱的成立性の観点から注意すべき項目

3.4.2 サイクル施設概念の検討 (H29)

(1) 概要

3.2 節の電解、廃棄物処理等の各検討結果を踏まえて、サイクル施設のプロセスフローを選定し、プロセスフロー図を作成した。それらに基づき、TRU 燃料量が多いマルチサイクル燃料炉心での使用済み燃料処理量をベースに主要機器の必要台数等を算出し、サイクル施設の経済性を U を含む通常の金属燃料システムと概略比較評価した。その結果、既往研究における発電量あたりの建設コストと同等であることが分かった。

また、将来、U も用いた TRU 増殖リサイクルシステムに移行する場合に必要なサイクル施設の主なプロセス変更点を摘出し、TRU 燃焼から TRU 増殖への柔軟な移行の可能性を検討した。その結果、そのまま装置を流用したり、交換して最適化することにより、使用済み燃料の処理、新燃料の製造が可能なが分かった。

(2) プロセスフロー及び物量評価

① プロセスフロー

3.2 節で検討したように、図 3.4.2-1 の U 有り燃料の乾式再処理プロセスフローを TRU 金属燃料の乾式再処理に適用する際の課題を、プロセスフロー上で纏めた。

本プロセスは具体的には、U を含まない TRU 燃料を用いた高速炉サイクルにより、少ない高速炉基数にて軽水炉からの TRU を燃焼処理することを目指している。Zr 含有率が従来と同等の条件においては燃料融点が低くなるため、Zr の含有率を 10wt% から約 40wt%まで大幅に増加して、従来と同等の燃料融点を保つようにしている。このことで再処理プロセスとして電解精製と金属廃棄物処理が大きな影響を受ける。Cd 陰極は希土類除染係数が余り高くないため、燃料中の RE の割合が多くなって均等に混合しなくなり、燃料健全性を損なう恐れがある。

そこで下に示す課題を設定して研究開発を行った。図 3.4.2-2 に乾式再処理プロセスに関する検討項目とプロセスフローの関係に示した。

- ・電解プロセス (アクチニド/分離の電解精製、Cd 代替陰極)
- ・使用済み塩処理プロセス (使用済み塩処理率、RE 沈殿除去、RE 還元抽出除去、RE 沈殿物ソーダライト固化処理)
- ・金属廃棄物処理プロセス (高 Zr 組成廃棄物の溶融固化処理、浸出特性評価)

<アクチニド/Zr 分離電解精製>

3.2 節で比較検討したように、Cd の処理が追加で必要となるが、Zr とアクチニドの分離が出来て電解時の挙動がシンプルとなり、処理速度も他の方法と大きな差がないと見込めることから、Cd 中に燃料を溶解後に、Cd を陽極とした電解精製プロセスを採用した。

<高除染化方策 (Cd 代替陰極、使用済み塩処理率) >

3.2 節で検討したように、従来プロセスよりも希土類の除染係数を上げたい場合の方策として、代替陰極材料を用いることと使用済み塩処理率を上げる手段がある(表

3.4.2-1)。

TRU/希土類 FP 分離性能を向上する陰極材料として、Ga、Ga-Al 合金、Ga-In 合金、Bi、Al、Zn の調査・評価から、アクチニド/希土類除染係数が高く、液体状態で扱うことが可能なことから、液体 Ga 陰極を候補材として採用した。但し、Ga は沸点が 2400℃と高いため蒸留によるアクチニドとの分離は困難なことから、アクチニドを Ga 陰極中から Cd 中に移送する必要がある。移送法としては電解法と還元抽出法があるが、電解法は 1 度の電解移送のみで良いが、還元抽出は酸化剤、還元剤が必要となり工程が複雑なため、電解移送を採用した。

使用済み塩処理率を上げて塩中 RE 濃度を低い状態に保てば、Cd 陰極中 RE 濃度も低減することが可能となる。しかし、低濃度の塩をゼオライトカラムに通すとカラムの吸着効率が低下して、ゼオライト量が増大し、高レベル廃棄物量が増大するデメリットがあるため、代替陰極を用いることとした。

<使用済み塩中の希土類除去方策（沈殿法、還元抽出法）>

3.2 節で検討したように、希土類を沈殿法もしくは還元抽出法により、使用済み塩中の希土類濃度を低減することで、新燃料中の希土類濃度低減とゼオライト量低減によるソーダライト固化体低減を試みた(表 3.4.2-2)。沈殿法は 3 価の Ce, Gd は除染係数が高いが、2 価の特に Eu は殆ど除染できない (Eu は量が少ないため影響は殆ど無い)。また、生成した沈殿物の大きさが小さいため濾過は適さず、Li₂O 添加、上澄み塩回収、蒸留により沈殿相を分離する手順が有望である。還元抽出法は、取扱いが難しい沈殿物を生じさせないが、Cd 蒸留や酸化処理が必要となり、現段階では不確実性が高いことから、沈殿法の方が有望と考えられる。

<金属廃棄物処理プロセス（高 Zr 組成廃棄物の熔融固化処理、浸出特性評価）>

3.2 節で検討したように、SUS-20Zr-NM(被覆管全量が金属廃棄物になる場合)、SUS-40Zr-NM(被覆管の上部プレナム部は TRU を含まないため別処理されると仮定)の間の組成について金属廃棄物熔融固化試験と固化体の浸出率測定を実施した(表 3.4.2-3)。その結果、20%Zr、30%Zr 組成は 1600℃で熔融固化体製造可能で、40%Zr 組成は 1700℃で巣が発生し機械的に脆い傾向が出たが、いずれの組成も規格化浸出率はガラス固化体母材 Si よりも 1 桁以上小さい結果となった。ルツボ材に関しては、Y₂O₃、Y₂O₃ コーティンググラファイトは熔融金属と化学的両立性を持った。

<まとめ>

これらの検討から、TRU 金属燃料の高除染化のための再処理プロセスフローは、U を含有しない燃料のため固体陰極は用いず、代替陰極材料として Ga を用いて、塩処理率 2%/d のままでその他のプロセス上の変更は加えずに、新燃料中 FP 濃度が 0.38%まで低減可能なため、Cd 陰極を Ga 陰極に変更するのみとした。これに伴い、Ga 陰極中の TRU を Cd に移行させる回収ステップの電解工程が一つ追加となる。

更に、電解精製プロセスにおいて、Zr を熔融塩中に溶解させないで済む Cd 陽極溶

解法を用いる。これに伴い、電解槽下部の Cd 相を定期的に取り出して Cd 蒸留を行うことで、NM, Zr 等を回収する工程が一つ追加となる。

それ以外の工程に関しては、大きな変更とはならない。

②物量評価

<設計条件>

表 3.4.2-4 に平衡期使用済み燃料を 1 年冷却後の組成と崩壊熱を纏めて示す。表 3.4.2-5 には物質移行の検討のためにそれらを化学的に類似した以下に示すグループに分類した⁽¹⁾⁽²⁾。

- ・アクチニド：元素ごとに分類 (U, Np, Pu, Am, Cm)
- ・ALM：アルカリ金属 FP
- ・ALE：アルカリ土類金属 FP
- ・RE：希土類 FP (分離のし易さで更に分類した。

RE1 (Y, Eu, Sm)、RE2 (Ce, Pr, Nd, Pm)、RE3 (La, Gd)

- ・NM：貴金属 FP
- ・HG：ハロゲン
- ・CAL：カルコゲン
- ・NG：希ガス

3.4.1 項の検討から、約 5GWe 発電量相当のマルチリサイクル燃料炉心の使用済み燃料 18.8tHM/y に規格化した。設計条件としては、新燃料 22.6tHM/y、燃焼分の追加として 3.8tHM/y となる。マルチサイクルでは少量の U が生じるため HM 表示とした。表 3.4.2-6 に新燃料中の重元素重量 22.6tHM で示した新燃料製造量の評価結果を示す。既報のプラント概念設計結果⁽²⁾によると、ピン製造工程における合格率は約 73%と評価されているため、合格率を考慮した製造が必要な射出ピン数は、約 4952 ピン/d と評価される。表 3.4.2-7 には使用済み燃料の必要処理量 18.8tHM/y で示した評価結果を示す。

3.2.1 項の液体 Ga 陰極を採用して新燃料 40tTRU/y、使用済み燃料 31tTRU/y として評価したマテリアルバランス結果(図 3.2.1-5)を、ここではそれぞれ 22.6t/y、18.8t/y と規格化した値を基に以降の施設検討を行った。マルチリサイクルとシングルサイクルで多少の違いがあるが、施設概念の一次検討としては大きな影響は与えない。

表 3.4.2-8 に主要な工程における比崩壊熱、燃料処理量等を纏めた。使用済み燃料は約 140W/kg、電解回収物は液体金属込では約 19W/kg、Cd 蒸留後の TRU 回収物は約 206W/kg、Zr を所定量添加した後の射出原料は約 118W/kg と評価された。発熱量の観点から考えると、剪断ピンのバスケットへの装荷時、電極に TRU を回収後の Cd を蒸発した時、射出用に TRU 回収物を複数用いる状態に注意が必要になる。

<臨界制限>

表 3.4.2-9 に臨界制限値の概算評価結果を纏めて示す。先行研究の実用化戦略調査

研究⁽¹⁾においては、核的制限値として、ピン剪断～陽極アセンブリ組立(陽極バスケット)についてはダブルバッチの思想から 1.14kgPu、液体 Cd 陰極については 4.1kgPu の半分、化学形態管理を適用した電解精製槽の核的制限値として、熔融塩と Cd プール量をまとめて 227kgPu、液体 Cd 陰極については 4.1kgPu、射出鋳造については 4.5kgPu としていることを踏襲した。これらに本研究のマルチリサイクル時の使用済み燃料組成の Pu/HM 比 78.95%を考慮して臨界制限値を設定した。詳細は表中の備考欄に記載した。

<主要機器の概算評価>

表 3.4.2-10 に主要機器の処理容量及び必要台数を纏めた結果を示す。表は、主要機器名称、臨界制限値、年間もしくは 1 日当たりの必要処理量、処理可能量(処理容量)、処理時間・能力、必要台数からなる。以下に主なものを説明する。

剪断装置

内側炉心のみだと、4.32 集合体/d=1681 ピン/d、外側炉心のみだと 3.54 集合体/d=1934 ピン/d 処理する必要がある。処理単位は集合体単位とし、処理時間はピン長約 600mm を 5mm 毎に 1s/回で切断、プラス 1 分で合計 3 分/ピンと評価した結果、必要台数は 4 台となる。

電解精製装置 (バスケット)

陽極バスケットを円筒と仮定し、剪断燃料ピンをランダムに装荷した状態で、バスケット寸法、空隙率を任意に設定し、自然対流により燃料が冷却されるモデルにおいて燃料ピンの中心温度を評価した。その結果、 $\phi 15\text{cm} \times 15\text{cm}$ のバスケットに空隙率 70%、臨界制限値の 1.44kgHM(2.64kgSF)を装荷すると、温度は約 513K と評価された。このことから、処理単位は 1.44kgHM とし、必要処理量は 18800kgHM/1.44kgHM=13056 個/y=65 個/d となる。

電解精製装置分離用 (Ga 陰極)

Cd 蒸発後の坩堝に TRU が装荷されている場合の熱評価を行った。ルツボ上面からの自然循環除熱ではルツボ径が大きくなる程有利になる。評価の結果ルツボ径をバスケットと同等の $\phi 15\text{cm}$ とし、臨界制限値 2.50kgHM より小さい単位となるが、バスケットの燃料 1.44kgHM をそのまま回収することになると、温度は約 220°C と Ga、Cd を固体に保てるため、取扱いと設計の便利さから上記に設定した。

必要処理量は、図 3.2.1-5 に示されているように、ドロス処理や追加 TRU、使用済み塩からの回収 TRU を足すと約 21545kgHM/y と評価される。処理容量は少なめであるが 1.44kgHM とし、電極数は 19 個/槽とした。また Cd プール中の Zr 許容濃度を 10wt%とすると約 10.2 回電解ごとに 1 度 Cd を交換する必要がある。処理時間は、燃料の溶解はウラン試験結果から約 96 時間、電解時間は電流密度 100mA/cm² から約 27.4 時間、Cd 引き抜き時間は 3 時間/10.2 回として評価した結果、必要電解槽数は 21 台と評価された。

尚、電解精製装置(分離用)の大きさは、電解槽内径として $\phi 115\text{cm} \times 90\text{cmH}$ で、バスケット及び Ga 陰極兼用の孔を 19 個設ける。

19 個のバスケットを電解装置に装荷して燃料を溶解後に、バスケットを Ga 陰極に総取り替えして電解を行う方法とした。溶融塩量は約 500kg、Cd 量は約 1850kg と評価した。電解装置の寸法は $\phi 2\text{m} \times 2.5\text{mH}$ 程度を想定した。

電解精製装置回収用 (Cd 陰極)

必要処理量は、21 台の分離用電解装置から 19 個の Ga 陰極が 123.7h 毎に排出され、これを Cd 陰極に移し替えるため、1 日当たり約 109 電極の処理が必要となる。処理単位は、8 個の Ga 陽極と 8 個の Cd 陰極を交互に配置した電解槽を想定する。処理時間は、Ga 陰極電解と同様に $100\text{mA}/\text{cm}^2$ の電流密度で 27.4h の電解時間とし、設置、取出にそれぞれ 1h で合計 29.4h と想定した。

尚、電解精製装置 (回収用) の大きさは、電解槽内径として約 $100\text{cm} \times 100\text{cm} \times 60\text{cmH}$ で、Ga 陽極、Cd 陰極を 8 個ずつ設置する。溶融塩量は約 400kg と評価した。電解装置の寸法は $2\text{m} \times 2\text{m} \times 2\text{mH}$ 程度を想定した。

液体陰極処理装置

Cd 蒸留処理は、液体 Cd るつぼ 4 個毎に行い、処理時間は既往研究から 12h/バッチを想定して評価を行った。

射出鑄造装置

必要処理量は、ピン合格率を考慮して 4952 ピン/d と評価した。処理容量は、臨界制限から Cd 蒸留後の TRU 製品を 4 枚用いて 5.7kgHM とし、ピン重量 $0.0313\text{kg}/\text{ピン}$ と、既往研究で得られている射出坩堝のヒール割合 30%を用いて、127 ピン/バッチと評価した。処理時間は、既往研究より 8h/バッチとした。これらから必要台数は 13 台と評価された。

Na ボンディング装置

装置のセルに占める割合が大きいため評価した。処理可能量については、既往研究から 100~200 本処理する際に 24 時間と評価しているが、ここでは米国での 12 時間という値を採用して、200 本処理する際に 12 時間かかると想定し、装置台数は 10 台と評価した。

上述の検討結果と、既往研究である高速増殖炉サイクルの実用化戦略調査研究⁽¹⁾、及び電中研報告⁽²⁾との比較を行った結果を表 3.4.2-11 に示す。TRU 燃料処理に伴う臨界制限と発熱制限及び細径ピン採用によるピン本数増加のため、剪断装置、電解精製装置 (分離用)、電解精製装置 (回収用)、陰極処理装置、射出鑄造装置、燃料ピン製造、集合体組立装置が増加すると評価された。減少要因としては、固体陰極処理装置である。

<施設規模の概算評価>

リサイクルプラントセル容積

表 3.4.2-12 にリサイクルプラントセル容積の既往研究⁽¹⁾との比較による概算評価結果を示す。考え方は以下の通りである。

- ・前処理セル

既往研究で読み取れるセル内配置図より、剪断装置の専有面積は約 1/3 と評価し、剪断装置が既往研究の 1 台→4 台に増加した結果、前処理セル容積は、 $1/3 \times (4/1) + 2/3 = 2$ 倍と評価した。

- 電解分離セル

セル内配置図より、各機器の専有面積を、電解 45%、固体陰極処理 20%、液体陰極処理 20%、Na ボンド 15%と評価し、電解装置は 5 台→38 台(分離 21 台+回収 17 台)に増加し、固体陰極処理装置は 1 台→0 台になり、液体陰極処理装置は 1 台 (4 台と評価) →14 台に増加し、Na ボンド除去装置は 1 台→4 台に増加(剪断装置と同等と評価)した。その結果、電解セル容積は、 $45\% \times (38/5) + 20\% \times (-1) + 20\% \times (14/4) + 15\% \times (4/1) = 4.52$ 倍と評価した。

- 射出成型セル

セル内配置図より、射出鋳造装置の専有面積は 25%と評価し、射出鋳造装置は 4 台→13 台に増加した結果、射出成型セル容積は $25\% \times (13/4) + 75\% = 1.56$ 倍と評価した。

- 燃料集合体セル

セル内配置図より、集合体組立装置の専有面積は 10%、Na ボンディング装置の専有面積は 30%と評価した。集合体組立装置は 1 台→5 台に増加し、Na ボンディング装置は 2 台→10 台に増加した結果、セル容積は、 $10\% \times (5/1) + 30\% \times (10/2) + 60\% = 2.60$ 倍と評価した。

- その他のセルは変更が無いものとした。

この結果、Ar セル容積は約 3 倍、空気セルは約 1.47 倍、セル全体としては約 2.42 倍に増加する結果となった。

施設規模及び建設費の概算評価

施設建設費の項目としては、主要プロセス設備、廃棄物処理・貯蔵設備、分析設備、保守設備、計装制御設備、ユーティリティ設備、燃料貯蔵設備、建屋として公開されている⁽¹⁾。

建屋費は、表 3.4.2-13 に示すように、既往研究⁽¹⁾の主建屋通芯容積(170,000m³)に本研究のセル増加分(46,156m³)を足した値(216,156m³)を本研究の主建屋容積として、その増加比率 1.27 倍の 2/3 乗則で増加すると評価した。主要プロセス設備費は表 3.4.2-12 に示したように、Ar セルと空気セルを足したセル容積の増加率 2.42 倍(=78,656m³/32,500m³)の値と評価した。

既往研究⁽¹⁾においては、主要プロセス設備(25%)、廃棄物処理・貯蔵設備(17%)、分析設備(6%)、保守設備(14%)、計装制御設備(8%)、ユーティリティ設備(2%)、燃料貯蔵設備(5%)、建屋(22%)の比率が公開されている。これを基に、主要プロセス設備と建屋は前述のように増加し、その他の設備は既往研究と変わらないものとした。これらに基づいて本サイクルの建設費を評価した結果を表 3.4.2-14 に示す。

表 3.4.2-15 に施設規模と建設費の概算評価結果を纏めて示す。炉の単位出力規模

当たりで規格化したサイクル施設の建設費は、既往研究(1)の FS 研究におけるブランケット有り金属燃料高速炉サイクルの場合とほぼ同等であることがわかる。尚、この FS 研究では燃料増殖システムであるため、TRU 燃焼量同一条件下での比較はできないため、それに関しては、3.4.5 項に考察結果を示す。

(3) 燃焼から増殖システムへの移行検討

将来、U を用いた TRU 増殖リサイクルシステムに移行する場合の主なプロセス変更点について考察を行った。

- ・プロセスフロー

図 3.4.2-3 に示す TRU 金属燃料用のプロセスを、図 3.4.2-1 の従来プロセスに戻し、固体陰極回収、固体陰極処理の両プロセスを復活させるのみで対応可能である。

- ・集合体解体装置

集合体形状が異なれば装置は取り換えとなるが、台数は同様に 1 台となる。

- ・剪断装置

U を添加してピン系を太くし、ピン本数が減れば装置台数は減らせる。装置にもともと裕度を持たせておけばどのピンにも対応可能と考えられる。

- ・電解精製装置（分離用、回収用）

臨界制限量、発熱量が緩和されることで、バッチ取扱量を増やすことが可能となり、装置台数を減らすことができる。フランジを交換することで電解槽自体を流用することも可能である。

- ・Cd 蒸留装置

燃料中の Zr 割合が減ることで、本装置は不要となる可能性がある。必要な場合でも使用頻度は減るため本装置 1 台のままで対応が可能である。

- ・液体陰極処理装置

臨界制限量、発熱量が緩和されることで、バッチ取扱量を増やすことが可能となる。装置をそのまま流用することも、装置台数を減らしつつバッチ量を増やして設置することも可能である。

- ・固体陰極処理装置

固体陰極による回収 U を処理するために必要となる。液体陰極処理装置の装置能力を変更することで流用することも検討できる。

- ・射出鑄造装置

臨界制限量、発熱量が緩和されることで、バッチ取扱量を増やすことが可能となり、装置台数を減らすことができる。装置をそのまま流用することも可能である。

- ・Na ボンディング装置

ピン系を太くし、ピン本数が減れば装置台数を減らせる。装置は交換となる。

- ・集合体組立装置

ピン系を太くし、ピン本数が減れば装置台数を減らせる。装置は交換となる。

TRU 燃焼から TRU 増殖への柔軟な移行の可能性を検討した。その結果、そのまま装置

を流用したり、交換して最適化することにより、使用済み燃料の処理、新燃料の製造が可能なが分かった。

(4) 今後の開発課題

TRU 金属燃料の乾式再処理プロセスフローを決定し、そのプロセスの概略物量評価を行った。今後の開発課題は下記が考えられる。

- ・各プロセス条件の精度を高めて各設備の設計の精度を上げる。
- ・可能性のあるさまざまな燃料に対応可能な施設設計を進める。

(5) まとめ

3.2 節の電解、廃棄物処理等の各検討結果を踏まえて、サイクル施設のプロセスフローを選定し、プロセスフロー図を作成した。

それらに基づき、TRU 燃料量が大きいマルチリサイクル燃料炉心での使用済み燃料処理量をベースに主要機器の必要台数等を算出し、サイクル施設の経済性を U を含む通常の金属燃料システムと概略比較評価した。その結果、既往研究における発電量あたりの建設コストと同等であることが分かった。

参考文献

- (1) 「高速増殖炉サイクルの実用化戦略調査研究フェーズⅡ-(2)燃料サイクルシステム-」、JAEA Research 2006-043.
- (2) 木下賢介他、電力中央研究所報告 研究報告 L1109 「金属燃料乾式再処理プロセスのマスバランス評価とプラント概念設計」平成 24 年 7 月

表 3.4.2-1 高除染化方策比較

処理項目	Ga 陰極利用	使用済み塩処理頻度増加
長所	<ul style="list-style-type: none"> 電解精製工程で直接除染性能を向上 新燃料中 RE を従来法 (Cd, 塩処理 2%/d) より 1/5 に低下 (U, Pu, Ce, Nd) については逆抽出の原理検証済み 	<ul style="list-style-type: none"> 塩中 RE 濃度を低くして除染性能を向上 (Cd 陰極で、塩処理率 2%/d から 10%/d により新燃料中 RE を 1.98 から 0.57wt%迄低下)
短所	<ul style="list-style-type: none"> 沸点が高く蒸留が困難。 TRU の Ga から Cd への移送法として電解が必要 (還元抽出は、酸化剤、還元剤が必要で付加工程大) An 溶解度が Cd の約 1/30, 1/10 と低い (U0.034at, Pu0.17at%) 低濃度塩処理のためソーダライト固化体本数は約 27%増大 	<ul style="list-style-type: none"> ゼオライトカラムの吸着効率が低下してゼオライト量増加し、高レベル廃液物量が増大
開発課題	<ul style="list-style-type: none"> Ga 陰極→Ga 陽極/Cd 陰極の 2 段階電解の検証 Ga 陽極溶出速度。陽極 Ga の陰極 Cd への混入許容制限。Ga 陰極中付着塩の許容 (Ga 中 TRU の飽和、飽和未満時の運転方法) Ga, Bi は融点密度が固体より大きく、凝固の影響 ルツボ材候補は Al₂O₃、電極リード材候補は W Bi 電極での An, Ln の逆抽出試験報告無し 	<ul style="list-style-type: none"> 現状特に無し
総合評価	<ul style="list-style-type: none"> アクチド/希土類除染係数は Ga, Al > Bi > Cd の順に高い Al は固体状態の扱いとなる。 Ga が高除染用として適している。 <p>→RE/TRU 比が高い軽水炉使用済み燃料再処理後の高レベル廃液から MA を回収することを考え、Ga 陰極を採用</p>	<ul style="list-style-type: none"> 施設経済性は Ga 陰極より劣る →高除染を達成可能だが、高レベル廃棄物量が増大するため、Ga 陰極を採用して本方策は不採用

表 3.4.2-2 使用済み塩中の希土類除去方策比較

処理項目	沈殿法	還元抽出法
長所	<ul style="list-style-type: none"> 沈殿剤 (Li₂O, Li₂CO₃) により RE の沈殿分離が可能 新燃料中 RE 濃度低減とソーダライト固化体の低減を可能 	<ul style="list-style-type: none"> 取扱いが難しい沈殿物を生じさせない 新燃料中 RE 濃度低減とソーダライト固化体の低減を可能 塩処理頻度増加より希土類除去効果は高い
短所	<ul style="list-style-type: none"> RE 沈殿物が小さいものは数 μm の為、フィルターによる濾過が適さない 塩からの分離に複数プロセス追加が必要でそれほど除染係数が稼げない。 	<ul style="list-style-type: none"> 回収 RE の処理 (Cd 蒸留、酸化工程) とその廃棄物発生量増加 低濃度浴塩処理によるゼオライト廃棄物発生量増加
開発課題	<ul style="list-style-type: none"> 沈殿により塩相から分離した希土類 FP をガラス結合ソーダライトと固化するには、蒸留残渣を相当細かく粉砕する必要がある。 	<ul style="list-style-type: none"> 同上
総合評価	<ul style="list-style-type: none"> 高除染プロセスのための手法 3 価 (Ce, Gd) は DF30 以上、2 価 Eu は殆ど除染出来ず、Sm は DF4~40 で Li₂O なら沈殿除去可能 Li₂O 添加、上澄み塩回収、蒸留により沈殿相を分離の手順が有望 <p>→Ga 陰極を用いることで高除染が達成可能なため不採用</p>	<ul style="list-style-type: none"> 高除染プロセスのための手法 現段階では不確実性が高い →Ga 陰極を用いることで高除染が達成可能なため不採用

表 3. 4. 2-3 金属廃棄物（バスケット残渣）処理方策比較

処理項目	溶融固化処理 従来プロセスの場合 U 燃料：SUS-(5~20)Zr-NM	溶融固化処理 An 選択溶解の場合 TRU 燃料：SUS-(20~40)Zr-NM	溶融固化処理 Cd 陽極電解法採用の場合 TRU 燃料：SUS-(20~40)Zr-NM
長所	<ul style="list-style-type: none"> 溶融温度 1600℃でち密な固化体が製造可能。 浸出率にも問題がない。 	<ul style="list-style-type: none"> SUS430-(20~40)Zr-NM の溶融固化体の規格化浸出率はガラス固化体母材 Si より 1 桁以上小さい。 	<ul style="list-style-type: none"> 電解精製時のアクチニド /Zr 分離性能が良い
短所	<ul style="list-style-type: none"> 現状特に無し 	<ul style="list-style-type: none"> 現状特に無し 	<ul style="list-style-type: none"> 金属廃棄物が、陽極残渣 (SUS)、Cd プール (Zr, NM)に分かれ、Cd 取扱工程、Cd 蒸留工程追加
開発課題	<ul style="list-style-type: none"> 現状特に無し 	<ul style="list-style-type: none"> 現状特に無し 	<ul style="list-style-type: none"> Cd 取扱方法 Cd 蒸留時の各元素の移行挙動
総合評価	<ul style="list-style-type: none"> SUS-(5~20)Zr-NM は、溶融温度 1600℃でち密な固化体が製造でき規格化浸出率にも問題はない。 	<ul style="list-style-type: none"> ルツボ材の開発 Y₂O₃、Y₂O₃ コーティング Gr は溶融金属と化学的両立性を持つ (Al₂O₃は反応) MgO は表面に ZrO₂ との反応物相を形成するが固化体の巣の発生は少ない。 SUS430-20Zr-NM、SUS430-30Zr-NM は 1600℃で溶融固化可能。 SUS430-40Zr-NM は 1700℃が必要。巣が発生し機械的には脆い傾向。ルツボ耐久性から懸念が残る。 →SUS-30Zr 組成迄が良いと判断 	<ul style="list-style-type: none"> Cd 取扱、Cd 蒸留工程が追加となるが、最終的な金属廃棄物は An 選択溶解と同等になる。 →SUS-30Zr 組成迄が良いと判断

表 3. 4. 2-4 平衡期使用済み燃料(1年冷却)

元素領域	合計		分類
	重量,kg	崩壊熱,kW	
U	6.13E+02	7.51E-02	U
Np	4.83E+02	4.23E-01	Np
Pu	1.48E+04	8.23E+02	Pu
Am	2.17E+03	1.51E+02	Am
Cm	6.92E+02	2.91E+03	Cm
HM合計	1.88E+04	3.88E+03	
H	6.86E-03	2.23E-03	T
LI	4.45E-05	0.00E+00	ALM
BE	1.56E-05	3.65E-10	ALE
C	2.75E-06	3.59E-09	NG
CO	0.00E+00	0.00E+00	NM
NI	0.00E+00	0.00E+00	NM
CU	0.00E+00	0.00E+00	NM
ZN	6.29E-09	0.00E+00	NM
GA	6.47E-07	0.00E+00	NM
GE	1.01E-01	0.00E+00	NM
AS	2.94E-02	0.00E+00	NM
SE	3.62E+00	8.75E-06	CAL
BR	1.10E+00	0.00E+00	HG
KR	2.27E+01	8.14E-01	NG
RB	1.96E+01	3.48E-06	ALM
SR	4.37E+01	5.02E+00	ALE
Y	2.29E+01	2.22E+01	RE
ZR	2.52E+02	1.05E+01	NM
NB	1.15E-01	2.16E+01	NM
MO	3.16E+02	5.07E-38	NM
TC	8.32E+01	7.08E-04	NM
RU	3.17E+02	3.92E+00	NM
RH	9.53E+01	4.95E+02	NM
PD	2.67E+02	1.69E-06	NM
AG	2.94E+01	3.80E+00	NM
CD	2.16E+01	2.24E-02	NM
IN	1.28E+00	9.72E-06	NM
SN	1.41E+01	2.06E-01	NM
SB	4.54E+00	5.42E+00	CAL
TE	6.17E+01	6.80E-01	CAL
I	3.48E+01	2.10E-06	HG
XE	4.72E+02	1.55E-08	NG
CS	3.99E+02	7.31E+01	ALM
BA	1.46E+02	3.97E+01	ALE
LA	1.21E+02	6.15E-06	RE
CE	2.27E+02	2.31E+01	RE
PR	1.12E+02	2.55E+02	RE
ND	3.51E+02	1.42E-08	RE
PM	1.88E+01	6.49E+00	RE
SM	1.01E+02	4.32E-02	RE
EU	1.37E+01	5.96E+00	RE
GD	1.17E+01	1.60E-03	RE
TB	9.62E-01	1.05E-01	RE
DY	7.73E-01	6.66E-35	RE
HO	1.73E-02	2.39E-06	RE
ER	2.52E-02	6.23E-17	RE
TM	4.64E-06	3.87E-07	RE
YB	5.21E-07	0.00E+00	RE
FP合計	3.59E+03	9.72E+02	
An+FP	2.24E+04	4.85E+03	
希釈材Zr	1.25E+04	0.00E+00	

表 3. 4. 2-5 分類後の平衡期使用済み燃料
(1年冷却)

項目 分類	重量 (kg/y)	崩壊熱 (W/y)	比崩壊熱 (W/kg)
U	613	7.51E+01	1.23E-01
Np	483	4.23E+02	8.74E-01
Pu	14842	8.23E+05	5.54E+01
Am	2170	1.51E+05	6.98E+01
Cm	692	2.91E+06	4.20E+03
TRU合計	18187	3.88E+06	
HM合計	18800	3.88E+06	
ALM	418	7.31E+04	1.75E+02
ALE	190	4.47E+04	2.35E+02
RE	981	3.13E+05	3.19E+02
(RE1)	138	2.82E+04	2.05E+02
(RE2)	709	2.84E+05	4.01E+02
(RE3)	134	1.07E+02	7.92E-01
NM	1397	5.35E+05	3.83E+02
HG	36	2.10E-03	5.84E-05
CAL	70	6.10E+03	8.73E+01
NG	495	8.16E+02	1.65E+00
Zr	12533	0.00E+00	0.00E+00
FP合計	3587	9.72E+05	
合計	34920	4.85E+06	1.39E+02

表 3. 4. 2-6 新燃料製造量評価

							年間稼働日数 200		
	燃料形態	必要集合体数	HM重量	集合体当りのHM重量	燃料ビン総数	ビン当りのHM重量	1日の処理量	1日の処理集合体数	1日の処理ビン数
		[体/y]	[kgHM/y]	[kgHM]	[ビン/y]	[kgHM]	[kgHM/d]	[体/d]	[ビン/d]
5GWe級 FBR [年当たり]	内側炉心	864.2	10509	12.16	336180	0.0313	52.5	4.32	1680.9
	外側炉心	707.1	12091	17.10	386775	0.0313	60.5	3.54	1933.9
	合計	1571.3	22600	14.38	722955	0.0313	113.0	7.86	3614.8
本検討で設定したビン製造工程合格率（電中研報告参照）					73%				
合格者を考慮した必要な射出ビン数					990349				4951.7

表 3. 4. 2-7 使用済み燃料処理量評価

							年間稼働日数 200		
	燃料形態	必要集合体数	HM重量	集合体当りのHM重量	燃料ビン総数	ビン当りのHM重量	1日の処理量	1日の処理集合体数	1日の処理ビン数
		[体/y]	[kgHM/y]	[kgHM]	[ビン/y]	[kgHM]	[kgHM/d]	[体/d]	[ビン/d]
5GWe級 FBR [年当たり]	内側炉心	864.2	8742	10.1	336180	0.0260	43.7	4.32	1680.9
	外側炉心	707.1	10058	14.2	386775	0.0260	50.3	3.54	1933.9
	合計	1571.3	18800	11.96	722955	0.0260	94.0	7.86	3614.8

表 3. 4. 2-8 平衡期使用済み燃料の比崩壊熱と処理量の概算評価

	項目	単位	使用済燃料	解体・剪断後燃料	溶解残渣	Ga陰極回収物	Cd陰極回収物	TRU回収物	射出原料
平衡期 使用済燃料	比崩壊熱 ¹⁾	W/kg	139	141	135	19	19	206	118
	年間処理量 ²⁾	kg/y	34920	34475	328	18353	18353	18262	35190
		kgHM/y	18800	18800	188	18227	18227	18136	24397
		kg/y ³⁾				200627	200627		
	一日処理量 ⁴⁾	kg/d	174.6	172.4	1.6	91.8	91.8	91.3	175.9
kgHM/d		94.0	94.0	0.9	91.1	91.1	90.7	122.0	
1) Ga回収物およびCd回収物の比崩壊熱は、HM/Ga=10%, HM/Cd=10%としてGa, Cd量を考慮した値									
2) 年間処理量は使用済み燃料16.8tHM/年で評価（平衡期リサイクルでは少量のUが生成するためHM表示）									
3) GaもしくはCdを含んだ値									
4) 200日/年運転で評価									
ポイドNaは評価から除いた									

表 3. 4. 2-9 臨界制限概算評価

機器	臨界制限量	備考
剪断装置 (陽極バスケット)	1.44kgHM	1.14kgPu(1.14kgPuを使用) 1.14kgPu/79%=1.44kgHM
電解精製装置 (Ga陰極)	2.50kgHM	2kgPu(2.05kgPuを使用) 2kgPu/79%=2.50kgHM
電解精製装置 (Cd陰極)	2.50kgHM	2kgPu(2.05kgPuを使用) 2kgPu/79%=2.50kgHM
電解精製装置 (Cd相・溶融塩)	227kgPu	溶融塩とCdプール中のPu量管理
液体陰極処理装置	3kgPu	3kgPu(4.1kgPuを保守側に設定) 3kgPu/79%=3.80kgHM
射出鑄造装置	5.70kgHM	4.5kgPu(4.5kgPuを設定) 4.5kgPu/79%=5.70kgHM

表 3. 4. 2-10 主要機器処理容量及び必要台数リスト

No	機器	臨界制限	必要処理量	処理可能量 (処理容量)	処理時間・能力	必要台数
			(a)	[バッチ]	(b)	(a/b)
1	集合体解体装置	1集合体以上	1572体/y⇒7.9体/d (内側炉心864.2体+外側炉心707.1体)	1体/バッチ 内側炉心10.1kgHM/体 外側炉心14.2kgHM/体	3h/体⇒8体/d FSの解体時間2h/体+1h(設置)=3h	1
2	剪断装置	1.44kgHM	内側炉心：4.32集合体/d=1681ピン/d 外側炉心：3.54集合体/d=1934ピン/d	内側炉心：389ピン/トレー 外側炉心：547ピン/トレー	120回(ピン長600mm/5mm)×1s/回 +1min=3min/ピン⇒480ピン/d 内側炉心：1.20集合体/d 外側炉心：0.87集合体/d	4
3	電解精製装置 (バスケット)	1.44kgHM	18800kgHM/y/1.44kgHM=13056個/y ⇒65個/d	1.44kgHM/バスケット (バスケット寸法：φ15cm×15cm)	-	-
3	電解精製装置 分離用 (Ga陰極)	2.5kgHM	21545kgHM/y⇒107.7kgHM/d	1.44kgHM×19電極=27.36kgHM (陰極寸法：φ15cm×15cm×19電極の多極電 解槽が成立と想定) Cd交換はZr10wt%(1849×10%=185kgZr) 185kgZr/(19電極×0.96kgZr/バッチ)=10.2/回	123.7h/バッチ(=溶解96h+電解27.4h+Cd引抜 3h/10.2) 電流密度100mA/cm ² として電解時間を評価 27.36kgHM*(24/123.7)=5.31kgHM/h	21
4	電解精製装置 回収用 (Cd陰極)	2.5kgHM	21台×19電極×123.7h/24h⇒109電極/d	陽極：1.44kgHM/電極×8電極 陰極：1.44kgHM/電極×8電極	電解27.4h+設置1h+取出1h=29.4hと仮定 8電極/29.4h=6.5電極/d	17
5	電解精製装置 (Cd相・溶融塩)	227kgPu	-	-	-	-
6	Cd蒸留装置	-	13056個/y/19電極/10回⇒69回/y	1850kgCd/バッチ/d	1バッチ/d	1
7	液体陰極処理装置	3kgPu	109電極/d (1.44kgHMIn14.6kgCd/電極)	4電極/バッチ/基	4電極/バッチ/12h ⇒8電極/d/基	14
8	射出鑄造装置	5.7kgHM	990349ピン/y⇒4952ピン/d	127ピン/バッチ (臨界制限5.7kgHM/ピン重量0.0313kgHM× 70%)	8h/バッチ(電中研報告より評価) ⇒381ピン/d	13
9	Naボンディング装置	1集合体以上	722955ピン/y⇒3614ピン/d 内側炉心：336180ピン/y 外側炉心：386775ピン/y	FS研究の100~200本単位処理を採用	200ピン/12h⇒400ピン/d	10
10	集合体組立装置	1集合体以上	1572体/y⇒7.9体/d (内側炉心864.2体+外側炉心707.1体)	1体/バッチ 内側炉心389ピン/体単位 外側炉心547ピン/体単位	MOX製造施設169ピン/体=4.8体/日を基準 (内側炉心：2.1体/d、外側炉心：0.6体/d)	5

表 3.4.2-11 主要機器の過去の研究との比較

主要設備	本検討 (新燃料22.4tHM/y) 5GWe	FS研究*1) (38tHM/y) 3.65GWe	電中研報告*2) (40tHM/y) 6.355GWe
集合体解体装置	1基	1基	記載無し
剪断装置	4基	1基	記載無し
電解精製装置 (分離用)	21基	5基 (陽極4、固体陰極3、液体陰極1)	2基 (高速電解槽2、液体陰極2)
電解精製装置 (回収用)	17基	無し	無し
固体陰極処理装置	無し	1基 (8坩堝/d処理)	4基
液体陰極処理装置	14基	1基 (10坩堝/d処理)	8基
Cd蒸留装置	1基	1基	無し
射出鑄造装置	13基	4基	4基
Naボンディング装置	10基	2基	記載無し
集合体組立装置	5基	1基	記載無し

表 3.4.2-12 リサイクルプラントセル容積の比較

セル名		本検討		FS研究 (38tHM/y)*1)	
		容積 (m3)		容積 (m3)	
Arセル	前処理セル	5,000	60,756	2,500	20,300
	電気分離セル	45,200		10,000	
	塩処理セル	2,500		2,500	
	射出成型セル	7,656		4,900	
	その他	400		400	
空気セル	燃料払出/燃料集合体セル	10,400	17,900	4,000	12,200
	人工鉱物固化セル	1,000		1,000	
	高放射性廃棄物処理セル	1,600		1,600	
	保守セル	1,900		1,900	
	エアロックセル (Ar置換)	2,100		2,100	
	その他	900		900	
合計		78,656		32,500	

表 3.4.2-13 主建屋容積の FS 既往研究との比較

FS研究主建屋通芯容積	170,000
本研究のセル増加分	46,156
合計	216,156
主建屋の増加比率評価値	1.27

表 3. 4. 2-14 施設建設費の相対評価結果

	本検討	FS研究*1)
主要プロセス設備*2	61%	25%
廃棄物処理・貯蔵設備	17%	17%
分析設備	6%	6%
保守設備	14%	14%
計装制御設備	8%	8%
ユーティリティ設備	2%	2%
燃料貯蔵設備	5%	5%
建屋*3	26%	22%
合計	138%	100%

*2) 主要プロセス設備は、セル容積増加比率(2.42倍)をかけた

*3) 建屋はリサイクルセル増加比率(1.27倍)の2/3乗則とした

その他はFS研究と同等とした

表 3. 4. 2-15 施設建設費の相対評価結果のまとめ

項目		UフリーTRU金属燃料サイクル施設 (本研究)	JAEA既往研究 (U含有金属燃料サイクル施設)
発電量(Gwe)		5	3.65
再処理容量(tHM/y)		18.8	38
燃料製造容量(tHM/y)		22.6	同上
アルゴンセル容積(万m ³)		約6.1	2.03
空気セル容積(万m ³)		約1.8	1.22
主建屋容積 (万m ³)		約21.6	17.0
建設費 (JAEA既往研究に対する相対値)	主要プロセス設備	61%	25%
	廃棄物処理・貯蔵設備	17%	17%
	分析設備	6%	6%
	保守設備	14%	14%
	計装制御設備	8%	8%
	ユーティリティ設備	2%	2%
	燃料貯蔵設備	5%	5%
	建屋	26%	22%
合計		138%	100%
GWe当たりの建設費 (相対値)		1.01	1

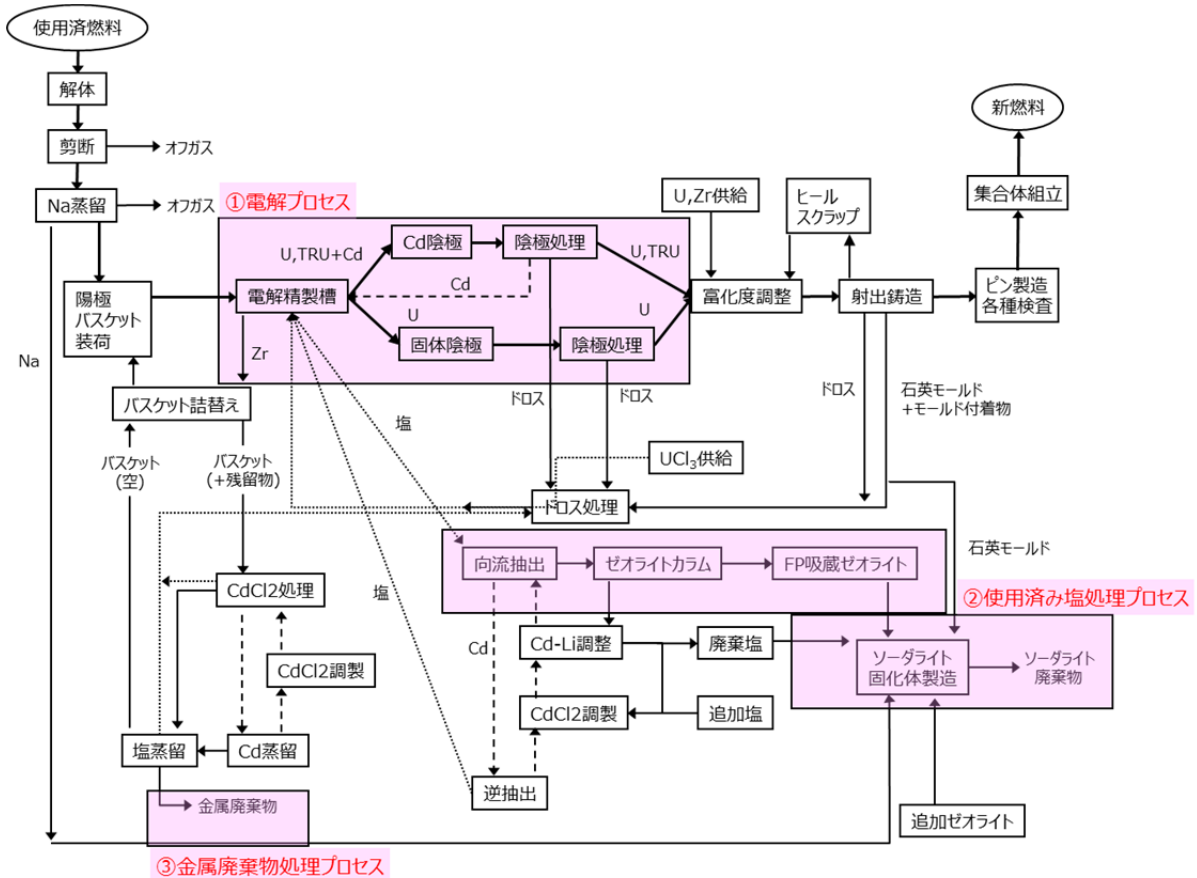


図 3. 4. 2-1 U 有燃料の乾式再処理プロセスを基にした TRU 金属燃料開発課題

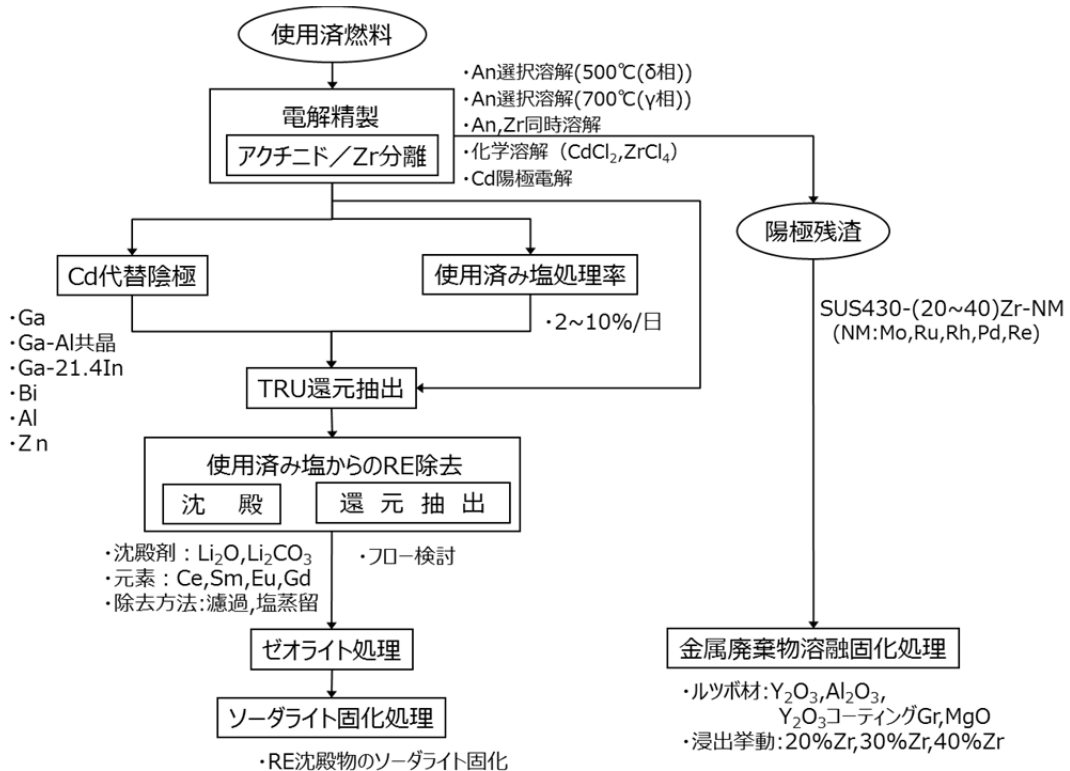


図 3. 4. 2-2 乾式再処理プロセスに関する検討項目とプロセスフローの関係

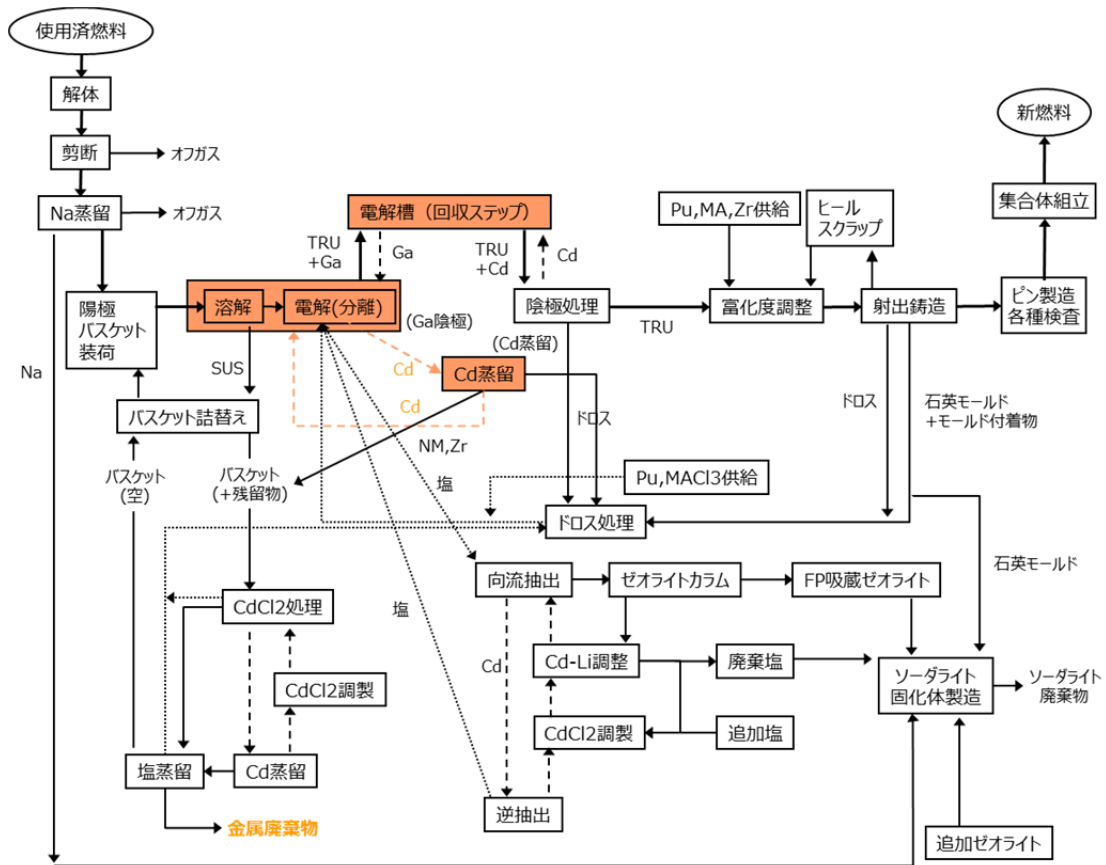


図 3.4.2-3 TRU 金属燃料の乾式再処理プロセスフロー図

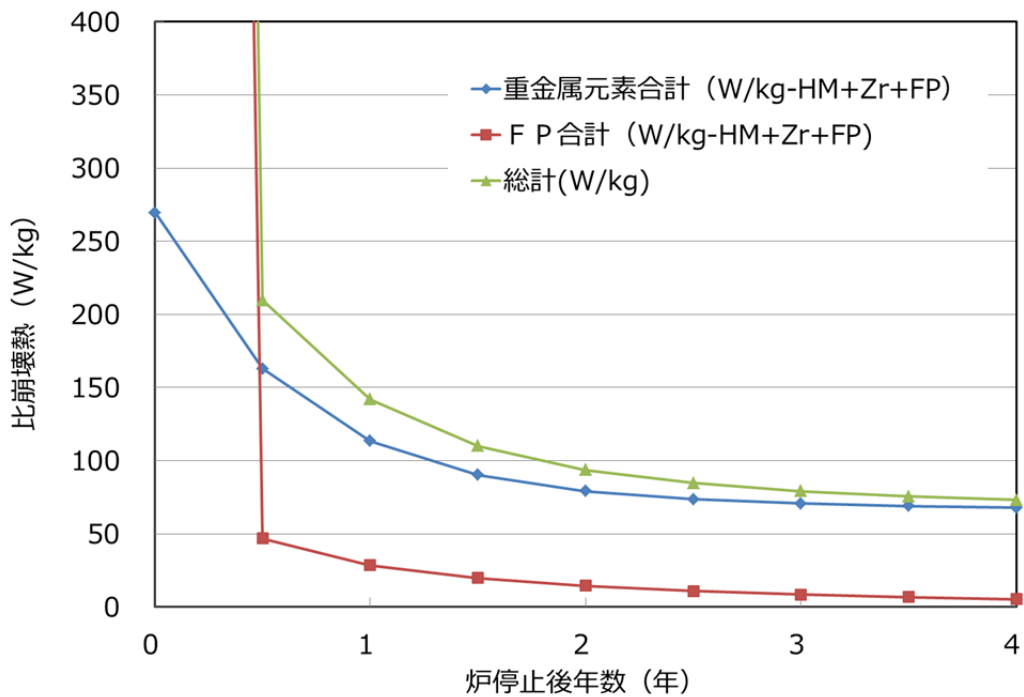


図 3.4.2-4 平衡期使用済み燃料の取り出し後の比崩壊熱

3.4.3 システム導入シナリオの検討(H28)

(1) 概要

3.3.2 項で評価した TRU 燃焼金属燃料高速炉炉心の基準炉心をベースとして、軽水炉 20GWe から発生する TRU を燃焼処理する場合に必要な導入初期からの高速炉の規模、燃料再処理及び燃料製造の施設容量及びその際のサイクル諸量を評価し、当 TRU 燃焼システムの導入シナリオを検討した。その結果、必要な炉の規模は約 5GWe、再処理及び燃料製造の必要処理容量はそれぞれ約 12tHM/年、約 16tHM/年であり、当初目標である、軽水炉主流時代において少ない高速炉サイクル施設にて軽水炉からの TRU を継続的に燃焼処理できることが確認できた。

また、同サイクル施設の導入方法に関しては、当 TRU 燃焼高速炉の規模の増加に合わせて小規模の再処理及び製造施設を段階的に増設するのではなく、施設の耐用年数を踏まえ、将来必要となる処理容量に対応できる規模の施設を初期段階から導入するほうが経済的であることが分かった。

(2) シナリオ検討条件

①シナリオ検討の基本的考え方

本検討で想定した核廃棄物燃焼システムは、図 3.4.3-1 の通り、軽水炉 20GWe から発生する TRU を TRU 燃焼高速炉、高速炉燃料製造施設、高速炉再処理施設にて処理する構成である。

具体的には、軽水炉取出 TRU 量、TRU 燃焼高速炉炉心仕様、燃料サイクル諸条件をインプットに、TRU 燃焼高速炉導入ペース、燃料サイクル施設(高速炉燃料製造施設、高速炉再処理施設)の容量、加えて燃料サイクル施設の合理的な導入シナリオを検討した。高速炉導入は、TRU の需給バランスを取りつつ、各時点で利用可能な TRU にて当該高速炉を順次、導入、運開し、軽水炉取出 TRU を定常的に燃焼可能な容量となるまで導入した。燃料サイクル施設の必要容量は、高速炉容量に応じ算出した。

また、同施設の合理的導入シナリオ検討では、既往研究の燃料サイクルコスト評価結果⁽¹⁾を参考に、複数の導入ケースの相対コストを評価⁽²⁾したが、以下はレファレンスとなるケースの結果を示す。

② 燃料組成に関する前提条件

導入初期からのシナリオ検討の為、軽水炉の運用による TRU 組成の差異や経時変化、多重リサイクルに伴う TRU 組成変化、及びこれらに起因する炉心やサイクル諸量の特性変化は考慮しないとした。

③ 軽水炉側の検討条件

軽水炉発電規模は 20GWe で一定とし、毎年の軽水炉使用済燃料取出量は変化しないとした。また、すべての軽水炉は同一組成タイプの燃料を装荷するとし、燃料タイプは UO₂燃料を想定した。ここでは、「UO₂軽水炉群」と呼ぶ。使用済燃料中 TRU 量は、内閣

府原子力政策担当室の資料「核燃料サイクルの諸量・経済性評価について（解説資料）」⁽³⁾から引用した。なお、毎年取出される TRU 量は UO_2 軽水炉群で 3.8t/yr である。

④ TRU 燃焼高速炉導入に関する検討条件

高速炉導入計算では、タイムステップを 1 年、最小導入単位は 1 基とした。原子炉耐用年数は考慮しないとした。

比較対象とした炉型は、①「3.4.1 TRU 金属燃料炉心の評価」で設定した「U 無し TRU 金属燃料高速炉の基準炉心（以後 TRU 高速炉）」に加えて、比較対象として、②「ABR(Advanced Burner Reactor)」⁽⁴⁾（転換比=0.75）である。両炉型の仕様一覧を表 3.4.3-1 に示す。ABR は、GEH の S-PRISM をベースに米国 ANL が構築した、ブランケット削除型 U 含有金属燃料の TRU 燃焼高速炉であり、一般的な TRU 燃焼高速炉の代表例として引用した。この②は、U 含有燃料を用いた場合の TRU 燃焼効率への影響を評価するためのものである。なお、設備利用率とプラント熱効率は炉型に係らず同じ値とした。

⑤ 燃料サイクルに関する検討条件

軽水炉再処理施設では、毎年取出される軽水炉使用済燃料全量を直ちに受入れて再処理し、回収した TRU は全量が即時に高速炉燃料製造施設へ送られるとした。同施設容量は、20GWe の軽水炉から毎年取り出される使用済燃料すべてを処理できる能力:400tHM/yr を有し、再処理所要時間は 6 年とした。運転開始年は 2030 年とし、それ以前に取出・蓄積された軽水炉使用済燃料は考慮しないとした。

高速炉燃料製造施設では、再処理施設から受入れた製品全量を用いて直ちに燃料製造を開始し、2 年間かけ高速炉燃料とするとした。高速炉再処理施設では、高速炉使用済燃料の炉心取出後即時に全量を受入れ、2 年かけて再処理するとした。したがって、炉外サイクル時間は、燃料製造に 2 年、高速炉燃料再処理に 2 年の計 4 年である。また、これら施設の耐用年数は 40 年とし、寿命を迎えるたびに切れ目ないリプレースを想定した。

なお、軽水炉再処理施設、高速炉燃料製造施設、高速炉再処理施設のいずれも回収ロス は考慮しないとした。

⑥ 燃料サイクル施設の合理的な導入シナリオの検討条件

必要容量に応じた燃料サイクル施設の導入計画案を複数検討し、各ケースの相対コストを評価した。なお、この検討は TRU 高速炉のシナリオに対してのみ行った。

施設導入計算の時間範囲は、軽水炉取出 TRU を定常的に燃焼可能な高速炉容量に応じた施設容量に達するまでとした。施設新規建設の間隔は、①40 年毎、②10 年毎、③5 年毎の 3 ケースを想定し、算出した各ケースの建設費・操業費を相対コストとして比較評価した。なお、施設導入計算ではタイムステップを高速炉導入計算と同じく 1 年とし、最小導入単位は 1tHM/yr とした。

燃料製造施設及び高速炉再処理施設の建設費・操業費は、施設処理容量の 2/3 乗則に

従い、事業税は施設処理容量に比例するとした。なお、両施設の建設費と操業費の相対値は、電中研の金属燃料乾式再処理プロセスのプラント概念設計研究⁽¹⁾を引用した。

(3) シナリオ検討結果

① TRU 高速炉の導入シナリオ (UO₂軽水炉群ケース)

1) 原子炉導入可能ペースと TRU 蓄積量の推移

TRU 高速炉の発電容量と TRU 蓄積量の推移を図 3.4.3-2 に示す。本シナリオの場合、高速炉が燃焼する TRU 量：0.77tTRU/GWe/yr に対し、軽水炉群からの TRU 総取出量は 3.8tTRU/yr であるため、取出 TRU の定常的な処理に必要な平衡容量は 4.90GWe(17.5 基)となる。

高速炉の導入は、2040 年に 1 基目が運開、その後、73 年で定常的な TRU 燃焼に必要な発電容量の約 96%を達成しほぼ平衡となる。TRU 蓄積量は、高速炉導入初期には軽水炉取出分と初装荷燃料分が取り合い、TRU 高速炉の炉内+炉外インベントリである約 7t をおおよその上限として短サイクルで大きく変動するが、ほぼ平衡となった頃から TRU 燃焼ペースが軽水炉群の TRU 取出ペースに近接し、TRU 蓄積量も下がる。高速炉による燃焼が軽水炉からの取出を上回るのは運開から 113 年後の 2153 年、5.04GWe(18 基)導入後であり、これは軽水炉発電容量 20GWe のおよそ 25%となる。また、TRU 蓄積量が 0 となるのは運開から 127 年後の 2167 年である。

2) 燃料サイクル施設必要容量の推移と合理的な導入シナリオ

施設必要容量の推移とそれに応じた燃料サイクル施設導入パターンの算出結果を図 3.4.1-3 に示す。同図中の黒線は施設必要容量の推移、赤線は新規建設分の容量、青線は運用中の容量を示す。同図より、導入初期においては導入間隔が長いほど大容量の施設導入となるが、これは設備利用効率が低く非合理的な面がある。しかし、表 3.4.3-2 に示す相対コスト算出結果の通り、大容量施設の導入の方が経済的である。これは、少なくとも～50tHM/yr 程度の容量の範囲では、小規模施設ほど建設・操業単価が高いためである。なお、燃料製造施設の最大必要容量は 2156 年に約 16tHM/yr、高速炉再処理施設の最大必要容量は 2154 年に約 12tHM/yr、である。

ただし、実際の事業実施段階ではコスト面に限らず、①導入初期には初期投資額低減ならびに技術・ノウハウの蓄積のため短間隔で小規模に施設を導入、②後期には最新知見や技術革新を取り込みつつ標準化を推し進めながら適切な間隔・規模で施設を導入し習熟効果を蓄積する、といったことも考慮されると考えられる。

② ABR (転換比：0.75) の導入シナリオ

1) 原子炉導入可能ペースと燃料サイクル施設必要容量

ABR (転換比：0.75) の発電容量と TRU 蓄積量の推移を図 3.4.3-4 に示す。本シナリオの場合、高速炉が燃焼する TRU 量：0.17tTRU/GWe/yr に対し、軽水炉群の TRU 総取出量は 3.8tTRU/yr であるため、取出 TRU の定常的な処理に必要な平衡容量は 22.3GWe(56.9 基)となる。

高速炉の導入は、2040年の1基目の運開から207年後の2247年で、取出TRUすべての燃焼に必要な発電容量の約95%を達成、ほぼ平衡となる。高速炉の燃焼が軽水炉の取出を上回るのは運開から357年後の2397年、22.4GWe(57基)導入後であり、これは軽水炉発電容量20GWeに対し約112%となる。また、TRU蓄積量が0となるのは運開から397年後の2437年である。

以上より、転換比0.75程度のTRU燃焼高速炉では、軽水炉取出TRUの定常的な燃焼には軽水炉と同等規模以上の高速炉容量が必要になり、平衡に至るまで200年以上要する。したがって、このようなシステムは軽水炉主流時代の核廃棄物燃焼システムに適さない。

2) 燃料サイクル施設必要容量

燃料サイクル施設の必要容量と推移を図3.4.3-5に示す。燃料製造施設の最大必要容量は2456年に約163tHM/yr、高速炉再処理施設では2454年に約145tHM/yr、とTRU高速炉のシナリオに比べ10倍以上の容量が必要となる。

以上の①と②の比較の纏めを表3.4.3-3に示す。

(4) まとめ

3.3.2項で構築したTRU燃焼金属燃料高速炉の基準炉心をベースとして、軽水炉20GWeから発生するTRUを燃焼処理する場合に必要な高速炉の規模、燃料再処理及び燃料製造の施設容量及びその際のサイクル諸量を評価し、当TRU燃焼システムの導入シナリオを検討した。その結果、必要な炉の規模は約5GWe、再処理及び燃料製造の必要処理容量はそれぞれ約12tHM/年、約16tHM/年であり、当初目標である、軽水炉主流時代において少ない高速炉サイクル施設にて軽水炉からのTRUを継続的に燃焼処理できることが分かった。

また、同サイクル施設の導入方法に関しては、当TRU燃焼高速炉の規模の増加に合わせて小規模の再処理及び製造施設を段階的に増設するのではなく、施設の耐用年数を踏まえ、将来必要となる処理容量に対応できる規模の施設を初期段階から導入するほうが経済的であることが分かった。

参考文献

- (1) 木下 賢介、他、「金属燃料乾式再処理プロセスのマスバランス評価とプラント概念設計」、電力中央研究所、研究報告：L11009、2012年7月
- (2) 原子力システム研究開発事業「MA入りPu金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」H28年度成果報告書(2017)
- (3) 「核燃料サイクルの諸量・経済性評価について(解説資料)」、内閣府 原子力政策担当室、2012年6月
- (4) E. A. Hoffman, et al., “Preliminary Core Design Studies for the Advanced Burner Reactor Over a Wide Range of Conversion Ratios”, Argonne National Laboratory, Nuclear Energy Division, ANL-AFCI-177, September 29, 2006.

表 3. 4. 3-1 検討対象の高速炉炉型

項目	単位	TRU高速炉	ABR (転換比:0.75)	ABR (転換比:0.25)
炉心熱出力	MWt	714	1000	1000
熱効率	-	39%	39%	39%
電気出力	GWe	0.28	0.39	0.39
設備利用率	-	80%	80%	80%
転換比	-	0.00	0.75	0.25
TRU/HM	-	1.00	0.21	0.54
炉心インベントリ	HM	tHM/GWe	11.5	34.3
	HM/core	tHM/core	3.21	13.4
	TRU	tTRU/GWe	11.5	7.28
	TRU/core	tTRU/core	3.21	2.86
取替燃料中TRU	TRU装荷量	tTRU/GWe/yr	3.21	1.54
	TRU燃焼量	tTRU/GWe/yr	0.77	0.17
	TRU取出量	tTRU/GWe/yr	2.44	1.37
炉外インベントリ	HM	tHM/GWe	12.8	28.9
	TRU	tTRU/GWe	12.8	6.15

表 3. 4. 3-2 燃料サイクル施設コスト算出結果 (UO₂軽水炉ケース、TRU 高速炉シナリオ)

コスト評価結果(UO ₂ 軽水炉ケース、TRU高速炉)				
施設導入間隔	年	40	10	5
総費用	-	1.00	1.36	1.65
うち燃料製造施設コスト	-	38%	38%	38%
うち再処理施設コスト	-	62%	62%	62%
燃料製造施設内訳	建設費	-	20%	20%
	操業費	-	80%	80%
再処理施設内訳	建設費	-	23%	23%
	操業費	-	77%	77%

表 3. 4. 3-3 核廃棄物燃焼システムの導入シナリオの纏め

炉型 (軽水炉運用の想定)	①TRU 高速炉 (UO ₂ 軽水炉群ケース)	②ABR 転換比 : 0. 75 (UO ₂ 軽水炉群ケース)
TRU 燃焼処理能力 [tTRU/GWe/y]	0. 77	0. 17
高速炉必要発電容量 [GWe]	5. 04	22. 4
高速炉運転開始年 [y]	2040	2040
高速炉必要容量到達年 [y]	2153	2397
燃料製造施設必要容量 [tHM/y]	16	163
高速炉再処理施設必要容量 [tHM/y]	12	145
利点	<ul style="list-style-type: none"> コンパクトな TRU 燃焼システム 早期に TRU 燃焼可能 	<ul style="list-style-type: none"> 実証済み技術で実現の見通し
課題	<ul style="list-style-type: none"> 実現にあたり、特に TRU 燃料再処理の工学的実証が必要 	<ul style="list-style-type: none"> 大規模なシステムが必要 超長期に亘る燃焼処理が必要
備考	-	軽水炉主流時代の核廃棄物燃焼システムとしては不適

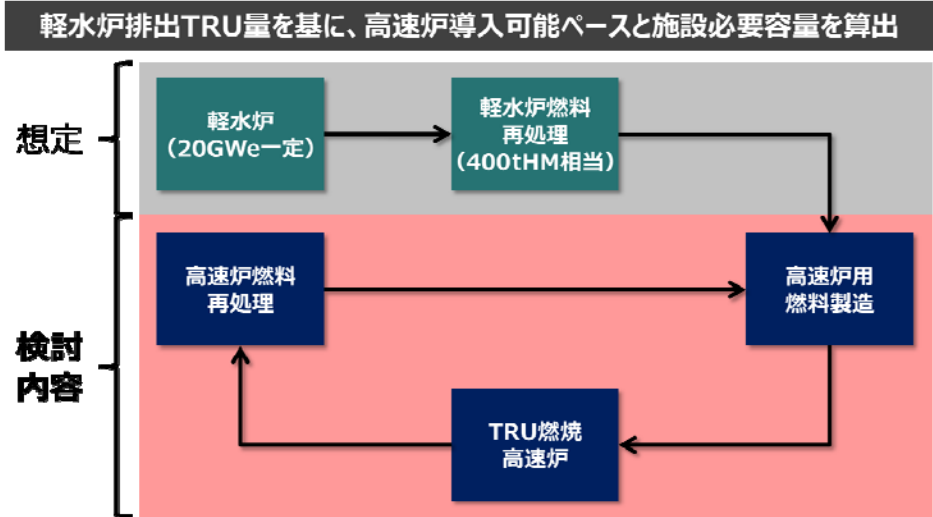


図 3. 4. 3-1 核廃棄物燃焼システムの概念図と検討内容

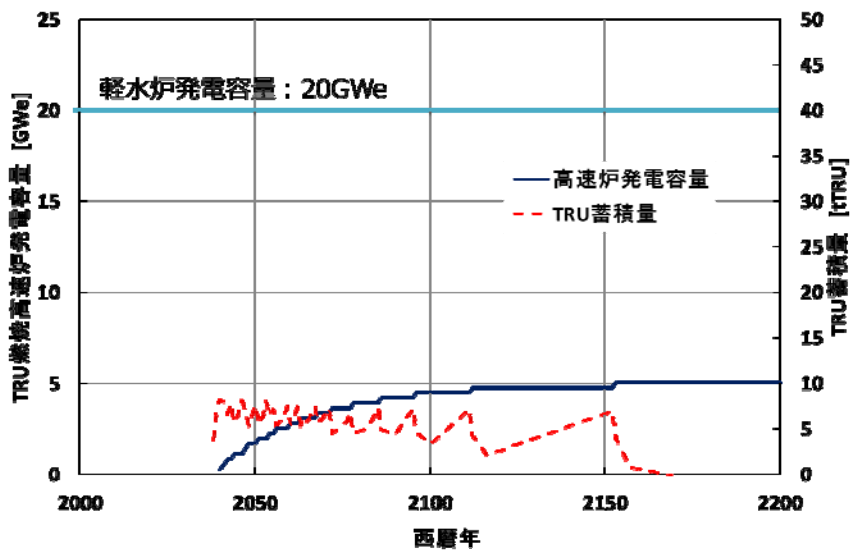


図 3. 4. 3-2 高速炉容量と TRU 蓄積量の推移 (U₂軽水炉群ケース、TRU 高速炉シナリオ)

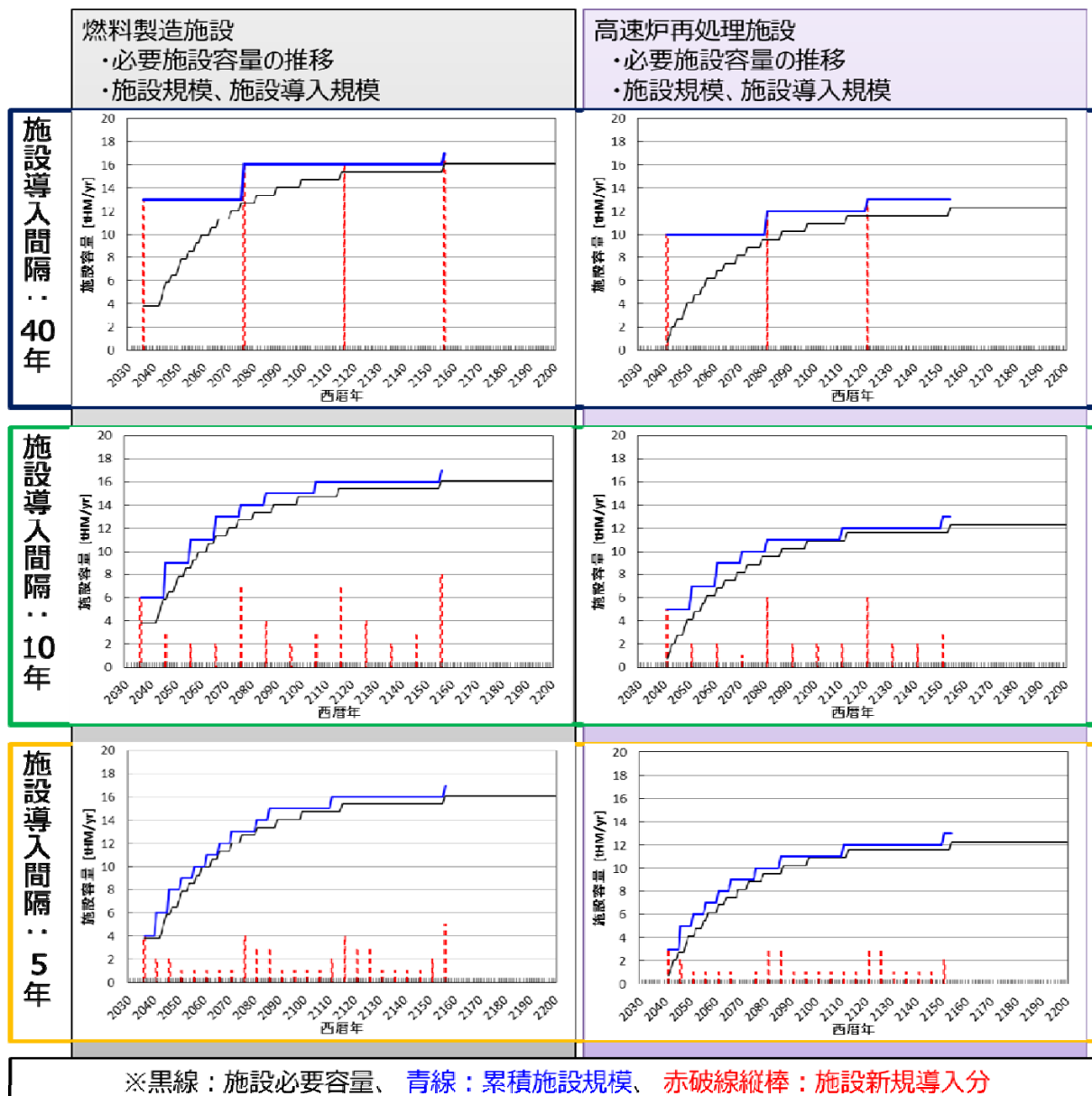


図 3.4.3-3 燃料サイクル施設の導入規模・ペースと推移 (U₂軽水炉群ケース、TRU 高速炉シナリオ)

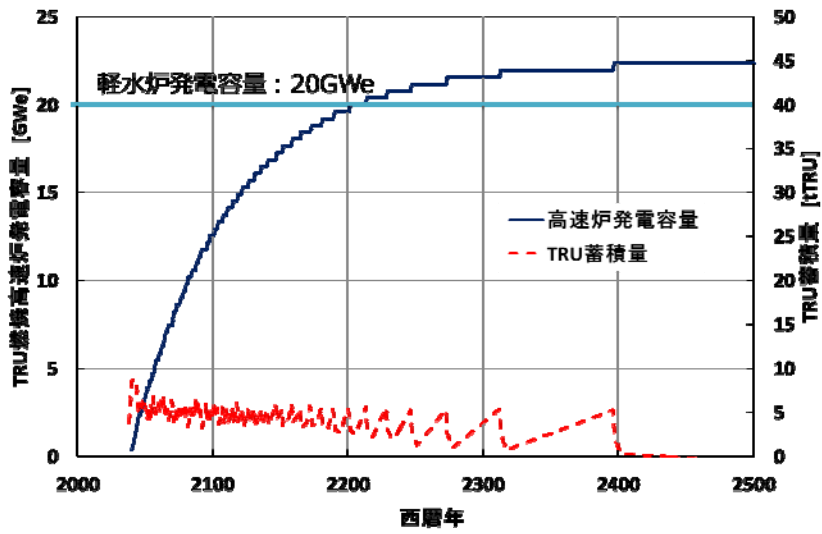


図 3. 4. 3-4 高速炉容量と TRU 蓄積量の推移 (U₂軽水炉ケース、ABR (CR=0.75) シナリオ)

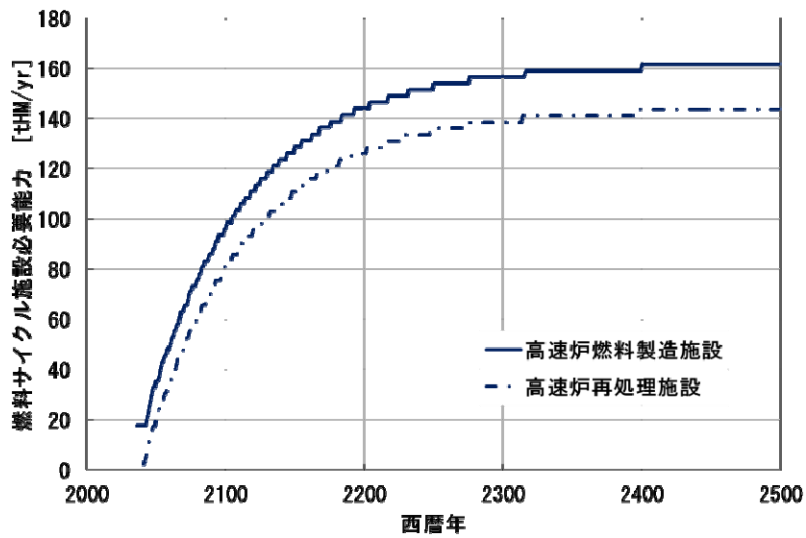


図 3. 4. 3-5 燃料サイクル施設必要容量の推移 (U₂軽水炉ケース、ABR (CR=0.75) シナリオ)

3.4.4 実証試験計画の立案

(1) 概要

U を含まない TRU 金属燃料高速炉サイクルシステムの燃料、再処理、炉心の各分野の開発課題を整理するとともに、同システム実現に必要なキー技術の実証試験計画を立案した。具体的には、燃料開発については、燃料物性、燃料健全性、製造技術に関する試験計画、再処理開発では、電解技術及び廃棄物処理技術に関する試験計画、炉心開発では、炉心の核設計精度及び過酷事故挙動に関する試験計画を立案した。

(2) 開発課題と実証試験計画

3.1 節から 3.4 節までの検討にて、摘出された今後の開発課題を表 3.4.4-1 に示す。これらを解決するための実証試験計画をを図 3.4.4-1 に示す。開発課題と試験項目の関係は、図 3.4.4-1 の最右欄に示す。

各試験計画の概要を以下に示す。

①燃料開発

燃料開発においては、基礎物性、健全性、製造技術に対して試験計画を示した。

1) 金属燃料基礎物性

a) 燃料物性精度向上

表 3.4.4-1 の課題で示すように、U が含まれない燃料も含め U 濃度 0~30%程度や Zr 合金割合が比較的高い組成の TRU 金属燃料や) では、熱伝導率や融点の過去の実測値が少なく、不確かさが大きいいため、実燃料を用いた実測試験等により評価精度を向上することが重要である。なお、実施する場合には、照射試験用金属燃料の製造等の実績がある日本原子力開発機構 (JAEA) の試験施設で可能であると考えられる。また、本研究において被覆管内面浸食試験を実施した米国 INL (アイダホ国立研究所) が充実した試験設備、燃料試料、測定ノウハウ等を有しており、同機関に依頼実施すれば、より効率的で少ない研究コストでデータ取得、整備できると思われる。

2) 金属燃料健全性

a) 燃料照射健全性確認

燃料健全性には、照射試験と、そのデータを用いた解析技術の向上が必要である。

燃料の照射試験では、試験燃料の製造 (TRU 燃料スラグと FCCI 防止バリア付被覆管の製造も含む) し、高速中性子スペクトル場にて所定の燃焼度まで炉内照射した燃料ピンの照射後試験まで行う。これらを実施する場合の有力候補施設としては、JAEA の高速実験炉「常陽」や照射後試験施設である照射材料試験施設 (AGF) 等が考えられる。また、海外の場合、米国 INL の金属燃料の製造施設、高速中性子スペクトル場が模擬できる ATR (Advanced Test Reactor)、更に金属燃料の照射後試験設備が考えられる。

解析技術開発では、従来の U 有金属燃料用のコードをベースに TRU 金属燃料特有の挙動の物理モデル等を構築し、解析コードを高度化する。これには、既に電中研で開発済みの金属燃料照射挙動解析コード ALFUSなどをベースに、上記の照射試験

等で取得されたデータと既存のデータを組み合わせて実施する。

3) 金属燃料製造技術

a) 燃料製造技術の確立

TRU 金属燃料製造では、Am の蒸発を防ぐ「底注ぎ式差圧鋳造法」等の開発が必要である。また、FCCI 防止バリア材付の被覆管の製造技術についても合わせて実施する必要がある。これらは、JAEA の既存の燃料試験施設等に開発関連機器を追設することで開発できると考えられる。また、米国 INL では関連技術開発が既に進められていることから、日米協力などの枠組み下にて、これらの技術開発を実施することも効率的な開発という観点から一考に値すると考えられる。

②再処理開発

再処理開発では、電解技術関連と、廃棄物処理技術に対して試験計画を示す。

1) 電解技術

a) 商用電解プロセス最適化

商用プロセスの電解条件最適化の為、Cd 陽極電解法における Cd プールへの燃料溶解挙動（溶解速度）や、Cd プールから塩への燃料移行速度や陰極析出速度等のデータをまずは U を用いて試験を行い、その後に TRU 金属燃料を用いた試験にて取得する。U 試験は東芝エネルギーシステムズ社（東芝 ESS 社）の乾式再処理試験施設にて可能であり、TRU を用いた試験は、JAEA 東海の高レベル放射性物質研究施設（CPF）などのホット試験施設を改造することで実施できる。ただし、CPF は JAEA の廃止試験施設の対象になっているため、この場合、JAEA の施設計画の変更が必要と思われる。また、海外を活用する場合には、関連設備が整っている米国 INL が最も安価で合理的に試験ができると考えられる。

b) 商用工学規模装置開発

商用で用いる規模の装置（電解装置、陰極処理装置、廃棄物処理装置等）について、ホットセルを用いて工学規模の電解装置、Ga 陰極及び Cd 陰極処理装置、ドロス処理装置、周辺マテハン機器などを開発する必要がある。開発手順としては、まずは U 金属燃料にて装置大型化の見通しを得るとともに、最終的には TRU 金属燃料を用いたホットセル試験にて運転・メンテナンス等も含めた装置技術を確立する。U 金属燃料を用いた装置大型化等の技術開発は東芝 ESS 社の乾式再処理試験施設にて可能であり、TRU を用いたホット試験実証は、上記と同様、JAEA の CPF 施設活用が望まれる。

c) 陽極挙動解析技術の確立

商用施設における電解運転シミュレーション等にも活用できる電解挙動解析技術を確立しておくことが重要である。特に、U を含まない TRU 金属燃料では陽極溶解挙動等において従来の U を含む金属燃料とは異なる部分もあり、これらも含め挙動解析技術を高度化する必要がある。その際には、上記 a) に述べた商用電解プロセスの最適化において取得したデータも有効に活用する。

2) 廃棄物処理技術

a) 工学規模試験装置開発

塩蒸留による希土類 FP の分離、回収装置、希土類 FP を含む塩廃棄物固化体製造装置、金属廃棄物処理装置の工学規模の装置の開発は、まずは電中研や東芝 ESS 社等の試験施設にてコールド試験や U 試験により装置大型化の見通しを得て、最終的には JAEA 等のホットセルにて実廃棄物を用いた実証試験が必要と考えられる。

③炉心開発

炉心関係では、核設計精度確認と、過酷事故挙動の確認を行う。

1) 臨界試験

減速材を導入した TRU 金属燃料炉心の核設計精度を検証するために、炉心を模擬した臨界実験が必要である。実施する場合の利用候補施設は、仏国 CEA の MASURCA 臨界試験設備、露国物理発電工学研究所 (Institute for Physics and Power Engineering named after A. I. Leypunsky : IPPE) の BFS 臨界試験設備など世界的にも限られる。尚、高速中性子スペクトル場の臨界実験装置として、国内には JAEA の FCA 臨界実験装置があったが、廃止されたため、現状では国内実施は不可能であり、同様の装置を JAEA に新設することが強く望まれる。

2) 過酷事故挙動確認

減速材を導入した TRU 金属燃料炉心の過酷事故時の燃料溶融・分散挙動への減速材導入の影響等を確認するため、燃料溶融破損時の燃料分散挙動の実証試験が必要である。実施する場合に利用候補施設は、これまで我が国の高速炉や軽水炉の過酷事故時の燃料挙動試験の実績があるカザフスタンの施設や米国 INL の TREAT 試験炉等が考えられる。現状、このような試験が可能な国内施設はないため、本研究で構築した TRU 燃焼金属燃料炉心だけでなく、将来軽水炉も含めた、多様な原子炉の過酷事故時燃料挙動を把握、実証できる試験施設を我が国も導入することが、我が国の原子力技術、特に安全技術の維持、向上のために極めて重要であると考えられる。

(3) まとめ

U を含まない TRU 金属燃料高速炉サイクルシステムの燃料、再処理、炉心の各分野の開発課題を整理するとともに、同システム実現に必要なキー技術の実証試験計画を立案した。具体的には、燃料開発については、燃料物性、燃料健全性、製造技術に関する試験計画、再処理開発では、電解技術及び廃棄物処理技術に関する試験計画、炉心開発では、炉心の核設計精度及び過酷事故挙動に関する試験計画を立案した。

表 3.4.4-1 開発課題

研究項目		今後の開発課題
1. 燃料開発	(1) TRU金属燃料基礎物性	①燃料熱伝導率： -Zr添加による熱伝導率低下影響の評価精度向上 -U割合0～30wt.%の組成領域の評価精度向上 ②融点： -U割合0～30wt.%の組成領域の評価精度向上
	(2) TRU金属燃料健全性	①燃料スラグ製造時に、Amの揮発を抑えつつ、希土類FPと均一混合できる工学規模燃料スラグ製造装置技術の確立（「底注ぎ式の差圧鋳造法」等） ②TRU金属燃料の照射健全性実証： -被覆管内面耐食バリア材による、燃料-被覆管境界の液相形成防止やFCCI抑制効果の確認 ③TRU金属燃料照射挙動解析コードの確立： -各種照射データに基づく、TRU金属燃料特有の照射挙動の物理モデルの構築
	(3) 被覆管内面浸食抑制技術開発	(上記参照)
	(4) RE混入量制限値評価	(上記参照)
2. 再処理開発	(1) 高除染プロセスの開発	①工学規模装置の開発： -高電流効率工学規模電解装置 -工学規模G a 陰極/C d 陰極処理装置 -TRU金属燃料電解プロセス特有のドロス処理装置 -マテハン機器、等
	(2) Zr含有燃料の電解精製	①TRU金属燃料を用いたプロセス実証試験 ②商用電解プロセス及び装置の最適化のための実規模実証試験： -Cdプール中への燃料の溶解挙動（溶解速度、等） -Cdプールから塩への燃料移行速度と陰極析出速度の最適化（最適電解運転条件の確立） ③Cdプールから蓄積Zr、貴金属FP等の工学規模除去装置開発
	(3) Zr含有燃料陽極溶解挙動の解析	①TRU元素の優先的陽極溶解電解法（従来法）のTRU金属燃料への適用可能性の見極め： （代替プロセス研究） -TRU金属燃料を用いた電気化学測定と電解精製試験 ②陽極溶解挙動解析コードの高度化
	(4) 廃棄物処理技術の開発	①塩蒸留による使用済塩浴からの希土類FP分離・回収工学規模装置の開発 ②希土類FPを含む塩廃棄物固化体製造最適処理条件の確立と同工学規模装置の開発と： -高密度固化体製造と固化体製造時の漏出防止が両立する最適荷重条件（固化体製造時処理条件） -固化体製造時揮発物捕集装置や廃棄物容器への封入装置も含めた工学規模固化体製造装置 ③工学規模金属廃棄物処理装置の開発： - るつぼの大型化 - るつぼ並びにコーティング材の耐久性（再利用性）向上 - 溶融固化時の揮発物捕集装置 - 溶融固化時のTc挙動の確認 ④各廃棄物の最終処分策の確立
3. 炉心開発	(1) 最適化炉心設計手法の開発	①減速材集合体内非均質装荷時の燃焼解析手法
	(2) TRU金属燃料炉心	①減速材を導入したTRU金属燃料扁平炉心の臨界実験（核設計精度検証） ②減速材を導入したTRU金属燃料集合体及び同炉心における燃料溶融破損時の燃料分散挙動に関する実証試験
	(3) 合金材のドブラー効果	①MoやNbを金属燃料合金材に使用することは将来オプションとして考えており、本研究で構築したTRU燃焼システムには採用していないため、特に開発課題はない。 ただし、本成果の他分野への波及効果をより高めるため、すなわち、ドブラー効果測定が困難な核燃料核種であるマイナーアクチニド（MA）等の任意の核種・共鳴のドブラー効果の予測精度を高めるために、中性子捕獲が中心の核種を用いた実験等により、共鳴自己遮蔽因子とドブラー効果の相関性を一般化することが期待される。
4. 「核廃棄物燃焼システム」	(1) 導入シナリオの検討	①技術的な開発課題は特にないが、本システムの本格導入の際には、その時点でのとりまく原子力環境条件等を踏まえた再評価が望まれる。
	(2) TRU燃焼炉心の検討	①Uを少量添加することは将来の選択肢の1つとして考慮することは考えられる。その際には以下が課題となる。 Uを少量添加した場合の熱伝導の不確かさが大きい。これらについては実際の物質での熱伝導測定による精度向上が必要である。
	(3) サイクル施設概念の検討	①商用リサイクル施設最適化設計研究とそれによる経済性評価
	実証試験計画の立案	—

年度	2018	2019	2020	2025	2030	2035	項目の対応 (表3.4.4-1の項目)
1. 燃料開発							
(1) 金属燃料基礎物性							
・燃料物性精度向上		実燃料熱伝導率、融点測定等					1-(1)-①、1-(1)-②
(2) 金属燃料健全性							
・燃料照射健全性の確認				試験準備	照射試験	照射後試験	1-(2)-②
・解析技術の確立					データに基づくモデル構築等		1-(2)-③
(3) 金属燃料製造技術							
・燃料製造技術の確立		スラグ製造技術・FCCI防止内面バリア製造技術等					1-(2)-①、1-(2)-②
2再処理開発							
(1) 電解技術							
・商用電解プロセス最適化		電解精製試験 (Cd陽極プールの溶解、移行挙動) 等					2-(2)-③
・商用工学規模装置開発				ホットセルでの工学規模試験			2-(1)-①、2-(2)-①
							2-(2)-②
・電解挙動解析技術の確立		陽極溶解挙動評価開発等					2-(3)-①、2-(3)-②
(2) 廃棄物処理技術							
・工学規模装置開発				FP分離回収、金属廃棄物処理等			2-(4)-①、2-(4)-②
							2-(4)-③、2-(4)-④
3. 炉心開発							
・核設計精度確認				TRU炉心臨界試験			3-(1)-①、3-(2)-①
・過酷事故挙動確認				金属燃料CDA模擬試験			3-(2)-②

図 3.4.4-1 実証試験計画 (案)

3.4.5 「核廃棄物燃焼システム」のまとめ (H29年)

核廃棄物燃焼システムの炉心に関し、U 無炉心と U を少量添加した炉心について比較した結果、U の少量添加による炉心・燃料特性面のメリット（炉心コンパクト化、燃焼反応度低減効果等）は小さく、H28 年度に構築した U 無 TRU 炉心を TRU 燃焼炉心の正案とし、それに基づき軽水炉燃料からの TRU をワンスルーで燃焼する基準炉心と、マルチリサイクルで燃焼する場合のマルチリサイクル燃料炉心の 2 種類の炉心を設定した。

サイクル施設の概念に関しては、3.2 節の結果から Zr 高含有燃料の処理に適した再処理プロセスを設定し、プロセスフロー図を作成し、TRU 燃料組成の高次化に伴い取扱い燃料量が大きくなるマルチリサイクル燃料炉心の必要処理量をベースに、20GWe の軽水炉から毎年発生する 3.8tTRU を継続してリサイクル燃焼処理できる 4.9GWe の TRU 金属燃料高速炉に対応したサイクル施設概念を検討した。具体的には、新燃料製造能力 22.6tHM/年、使用済み燃料処理能力 18.8tHM/年の施設規模や経済性を検討した。その結果、従来の既往研究の高速炉リサイクル施設（同一発電量の金属燃料サイクル）¹⁾と同等になることがわかった。

また、導入シナリオの検討の為、基準炉心を対象として炉とサイクル施設の導入規模と時期をサイクル諸量の観点から検討した結果、TRU 燃焼高速炉の導入規模に合わせて小規模の再処理施設や製造施設を段階的に増設するのではなく、将来必要となる処理容量の規模の施設を初期段階から導入する方が経済的であることが分かった。

以上の検討結果を踏まえ、本研究にて構築した U を用いない TRU 燃焼高速炉システムと、従来の U を用いた TRU 燃焼高速炉システム（ブランケット無炉心）の経済性を概略評価する。

TRU 燃焼量は、U を用いたブランケット無し TRU 燃焼高速炉炉心では 170kg/GWe/年であり、一方、本研究のマルチリサイクル燃料炉心では 777kg/GWe/年である。したがって、20GWe の軽水炉から生成する約 3.8ton/年の TRU を燃焼するために必要な高速炉の規模は、U 有炉心で 22.4GWe、U 無炉心では 4.9GWe である。つまり、本研究の原子炉施設の出力規模は U 有炉心に比較して $4.9/22.4=0.22$ 倍ですむ。

燃料サイクル費に関しては、ブランケット無し TRU 燃焼高速炉ではブランケット有り高速炉（FaCT の燃料増殖炉心）の $1/1.72$ であることが過去の電中研報告²⁾に示されている。しかし、3.4.2 章にも示したとおり、本研究の TRU 燃焼高速炉システムでは U を用いないことによりサイクル施設の臨界制限や崩壊熱制限が厳しくなることから、同一出力規模ベースではブランケット有りの通常の高速度炉システムと同等のサイクル施設の経済性となっている。したがって、本研究のシステムの燃料サイクル費は、通常ブランケット無し TRU 燃焼高速炉に対する相対値としては、同一出力規模では約 1.72 倍になるが、同一の TRU 燃焼性能の条件下では出力規模は上記のとおり 0.22 倍となるため、結果的には、 $1.72 \times 0.22 = 0.38$ 倍となる。

従来の高速炉システムの発電コスト（80%稼働率）の資本費（原子炉建設費）、運転費、再処理費（燃料製造含む）の内訳は、各々 30%:40%:30%である^{1),3)}。この比率に基づき、本研究のシステムの TRU 燃焼コストを比較する。なお資本費、運転費は原子炉の出力規模に比例するとした。従来の U も含むブランケット無し TRU 燃焼高速炉システムと相対評価した結果を図 3.5-1 に示す。本システムのコストは従来のシステムの約 1/4 になる見通しである。

以上の結果をまとめて図 3.4.5-2 に示す。原子炉コストは約 1/5、再処理・燃料製造コストは約 2/5 となり、全体の TRU 燃焼コストは約 1/4 になり、U を含まない TRU 金属燃料高速炉サイクルは経済的な核廃棄物燃焼システムであることが確認できた。更に、サイクル施設は TRU 燃焼炉心の今後の更なる高燃焼度化により、燃料取扱量が大幅に低減し、サイクルコストも更に低減できる可能性があると考えられる。

また、3.4.4 項に示したとおり、本研究で構築した核廃棄物燃焼システムの実証試験計画について、燃料、再処理、炉心の各分野での開発課題を整理し、同システム実現に必要なキー技術の実証試験を立案にした。具体的には、燃料開発は燃料物性、燃料健全性、製造技術に関する試験計画、再処理開発では電解技術及廃棄物処理技術に関する試験計画、炉心開発では炉心の各設計精度及び過酷事故に関する試験計画を立案した。

参考文献

- (1) 「高速増殖炉サイクル実用化研究開発 (FaCT プロジェクト) ーフェーズ 1 報告書」
JAEA-Evaluation 2011-003、2011 年 3 月
- (2) 「金属燃料乾式再処理プロセスのマスバランス評価とプラント概念設計」、電力中央研究所
報告 : L11009、平成 24 年 7 月
- (3) 「日本の高速炉開発のゆくえ」、都市大原子力シンポジウム 平成 29 年 7 月 20 日
http://www.nuc.tcu.ac.jp/_wp/wp-content/uploads/2017/07/918ca489666eebef9a143f7c12fb44f4.pdf

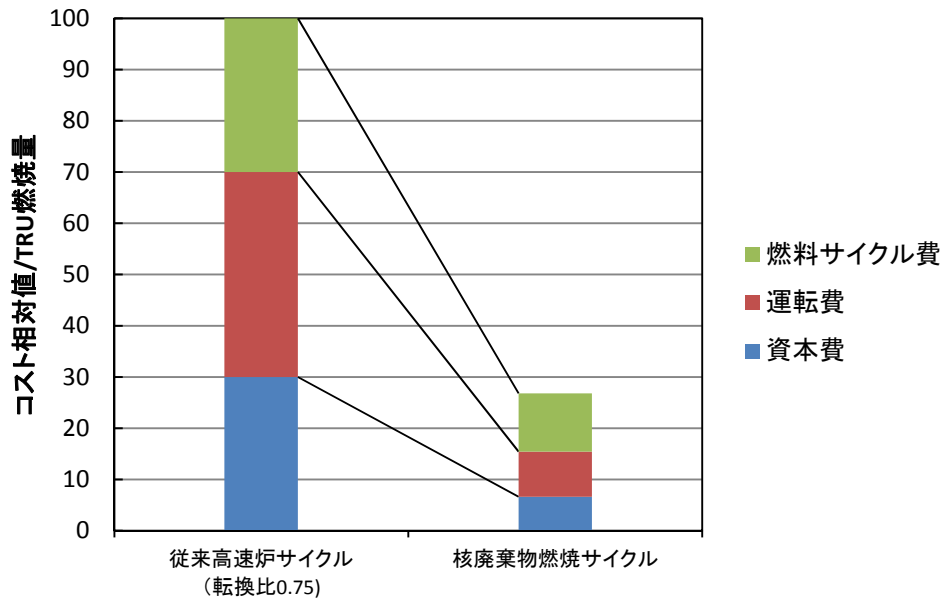


図 3.4.5-1 TRU 燃焼量を同一とした場合の
従来高速炉サイクルと核廃棄物燃焼サイクルのコストの比較 (相対値)

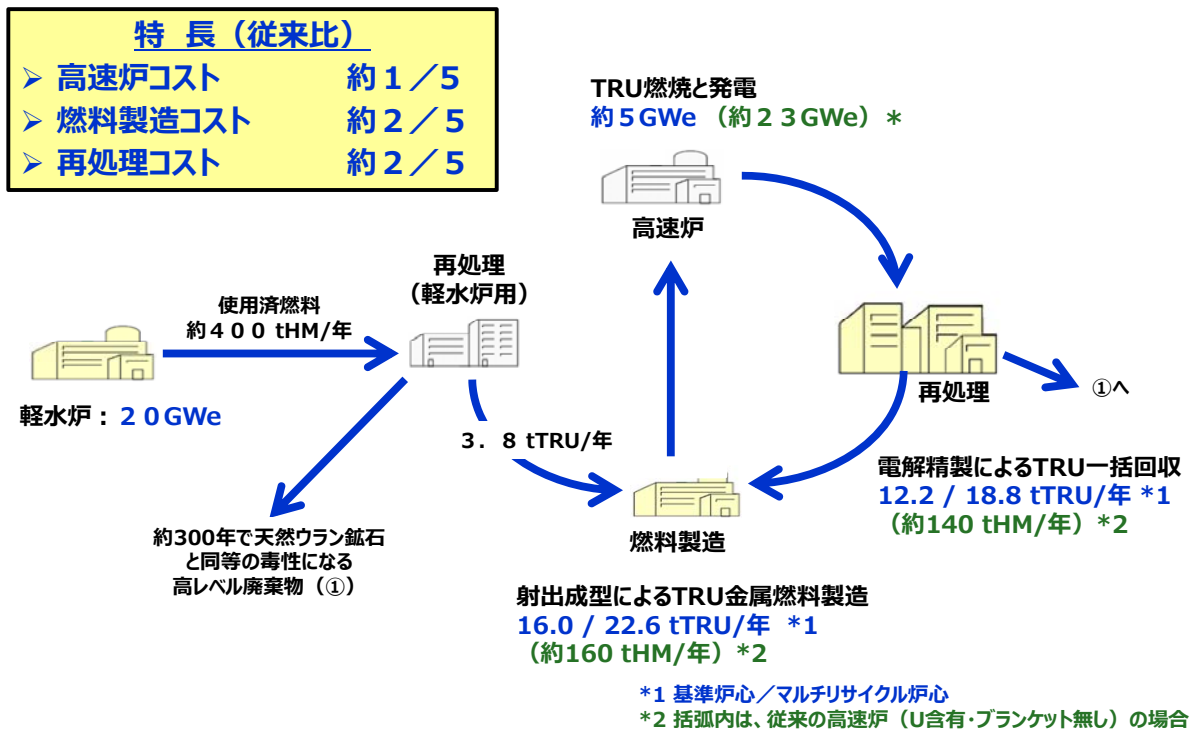


図 3.4.5-2 サイクル概念と導入効果

3.5 研究推進

本研究の推進にあたり、キックオフ会議、レビュー会議を行い、各研究項目間で密に研究を進めた。

(1) 会議

実施した会議を表 3.5-1 に示す。

キックオフ会議は、スケジュールの確認及び H28 年度の成果と本年度作業計画を確認した。また、全連携機関での調整、情報の伝達、技術討議を行った。

レビュー会議では、個別の技術項目についての討議、情報の伝達を行った。

(2) 学会報告

表 3.5-2 に示す学会に成果を発表した。いずれも Q&A を通じ研究の進め方、内容に大きな問題がないことを確認した。

なお4年間の研究により

国内外の学会 26 件 (海外発表 6 件、査読付 8 件)

学術誌 1 件

計 27 件

の発表を行った。また

工業所有権 1 件

を出願した。

以上により 3.1 節～3.4 節の研究を取り纏めた。

表 3.5-1 キックオフ会議及びレビュー会議

	項目	開催日	出席機関	討議項目
1	レビュー会議	2017/4/20	東芝一福井大	・H29年度作業内容打合せ (物性評価方法)
2	キックオフ会議	2017/4/25	東芝、電中研、京大、福井大	・H28年度成果の確認 ・H29年度検討項目、取り合い ・スケジュールの確認 ・成果の学会発表の調整
3	レビュー会議	2017/6/23	東芝、京大	・ドップラー測定技術の技術討論、まとめ方の議論
4	レビュー会議	2017/7/6	東芝、電中研	・炉心評価条件の打合せ
5	レビュー会議	2017/10/26	東芝、電中研	・電解精製試験結果の共有とプロセス選定方針の協議
6	レビュー会議	2017/12/8	東芝、電中研	・再処理プロセス方針の討議
7	レビュー会議	2018/2/16	東芝、京大	・ドップラー測定技術の技術打合せ

表 3.5-2 学会等での発表(1/3)

(1)H26 年度報告

1. 学会等における口頭・ポスター発表

発表した成果（発表題目）	口頭・ポスター発表の別	発表者氏名	発表した学会等名、場所	発表月日等	国内・外の別
MA入りPu金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発	口頭	(東芝) 浅野和仁	第14回「放射性廃棄物の分離・変換」研究専門委員会 電力中央研究所	2014年12月18日	国内
MA入りPu金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発； (1) 全体研究計画	口頭	(東芝) ○有江和夫、(電中研) 飯塚政利、(福井大) 有田裕二、(京大) 宇根崎博信	日本原子力学会2015年「春の年会」 茨城大学 日立キャンパス	2015年3月22日	国内
MA入りPu金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発； (2) ウラン無しTRU金属燃料高速炉炉心の検討	口頭	(東芝) ○山岡光明、森木保幸、木村礼、坪井靖、浅野和仁、有江和夫	日本原子力学会2015年「春の年会」 茨城大学 日立キャンパス	2015年3月22日	国内
MA入りPu金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発； (3) ウラン無しTRU金属燃料の基礎物性評価	口頭	(福井大) ○有田裕二、(東芝) 坪井靖、(電中研) 太田宏一	日本原子力学会2015年「春の年会」 茨城大学 日立キャンパス	2015年3月22日	国内

(2)H27 年度報告

1. 学会等における口頭・ポスター発表

発表した成果（発表題目）	口頭・ポスター発表の別	発表者氏名	発表した学会等名、場所	発表月日等	国内・外の別
Innovative TRU Burning Fast Reactor Cycle Using Uranium-free TRU Metal Fuel (1) Overview and Progress of Core Design Study	口頭	OKazuo Arie, Yasushi Tsuboi, Mitsuaki Yamaoka, Yasuyuki Moriki, Kazuhito Asano, Rei Kimura, Yuji Arita Hironobu Uhesaki, Masatoshi Iizuka4	Global 2015 Paris France	September 24, 2015	国外
Innovative TRU Burning Fast Reactor Cycle Using Uranium-free TRU Metal Fuel (2) Fundamental Properties of Uranium-free TRU-Zr Metal Fuel	口頭	○Yuji ARITA, Yasushi TSUBOI, Hirokazu OHTA	Global 2015 Paris France	September 24, 2015	国外
Nuclear Plant technology Development Toward safety Enhancement and the future	口頭	Kotaro Nakada	世界工学会議 (WECC) 2015	December 1, 2015	国内
2021 MA入りPu金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発(4)ウラン無しTRU金属燃料の基礎物性評価	口頭	有田裕二、坪井靖、太田宏一	2016年原子力学会春の年会	2016年3月27日	国内
2022 MA入りPu金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発(5)TRU金属燃料への希土類FP混入量制限値の検討	口頭	坪井靖、中村等、有江和夫、有田裕二、太田宏一	2016年原子力学会春の年会	2016年3月27日	国内
2023 MA入りPu金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発(6)ウラン無しTRU金属燃料高速炉炉心の検討	口頭	山岡光明、森木保幸、原昭浩、坪井靖、瀧部美美絵、木村礼、有江和夫	2016年原子力学会春の年会	2016年3月27日	国内

表 3.5-2 学会等での発表(2/3)

(3)H28 年度報告

発表した成果（発表題目）	口頭・ポスター発表の別	発表者氏名	発表した学会等名、場所	発表月日等	国内・外の別
MA入りPu金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発 (7) Zr高含有金属燃料の電解精製 J48	口頭	○大森 孝、中村 等、坪井 靖、有江 和夫、飯塚 政利、村上 毅	日本原子力学会 2016年秋の大会 久留米シティホール	2016年9月7日	国内
MA入りPu金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発 (8) 金属廃棄物溶融固化試験 J49	口頭	○飯塚 政利、魚住 浩一、村上 毅、大森 孝、有江 和夫	日本原子力学会 2016年秋の大会 久留米シティホール	2016年9月7日	国内
MA 入りPu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発 (9) ハルス中性子源を用いた金属燃料合金材のドッブラ効果測定 1122	口頭	○宇根崎 博信、佐野 忠史、堀 順一、高橋 佳之、中島 健、原 昭浩、坪井 靖、有江 和夫	日本原子力学会 2016年秋の大会 久留米シティホール	2016年9月8日	国内
Program Overview on Development of Innovative TRU Burning Fast Reactor Cycle with Uranium-free Metal Fuel	口頭	○Kazuo Arie, Yasushi Tsuboi, Takashi Omori, Yuji Arita, Hironobu Unesaki, Masatoshi Iizuka, Hirokazu Ohta	OECD NEA “Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation” 14th Information Exchange Meeting San Diego, CA, US	October 17-20, 2016	国外
Innovative TRU Burning Fast Reactor Cycle Using U-free TRU Metal Fuel -Estimation of Thermal Properties of Pu-Zr Metal Fuel	ポスター	○Y. Arita, T. Yonehara, N. Ohdaira, Y. Tsuboi, H. Ohta	Asian Nuclear prospect 2016 Nuclear Fuel Cycle for Sustainable Energy Supply and Human Prosperity Tohoku-Univ. Sendai Japan	October 24-27, 2016	国内
Innovative TRU Burning Fast Reactor Cycle Using Uranium - free TRU Metal Fuel - Development of Pyroprocessing Technology -	口頭	○Masatoshi IIZUKA, Koichi UOZUMI, Tsuyoshi MURAKAMI, Takashi OOMORI, Kazuo ARIE	Asian Nuclear prospect 2016 Nuclear Fuel Cycle for Sustainable Energy Supply and Human Prosperity Tohoku-Univ. Sendai Japan	October 24-27, 2016	国内
Measurement of Doppler Effect for Metallic Fuel Alloy Material by TOF Method	口頭	○Tadafumi Sano, Jun-ichi Hori, Hironobu Unesaki, Yoshiyuki Takahashi, Akihiro Hara and Ken Nakajima	5th International Symposium on Innovative Nuclear Energy Systems, INES-5 Tokyo Institute of Technology, Tokyo, JAPAN	31 October - 2 November, 2016,	国内
Fundamental Properties for Evaluation of Uranium-free TRU-Zr Metal Fuel Performance	口頭	○Yasushi Tsuboi, Kazuo Arie, Cynthia Papesch, Brandon Miller, Robert D. Mariani, Yuji Arita, Hirokazu Ohta	ANS Winter Meeting & Expo Las Vegas, NV, US	November 6 - 10, 2016	国外
MA入りPu金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発 (10) TRU燃焼炉心解析における燃料・減速材の非均質効果の検討 2F22	口頭	○山岡光明、森木保幸、原昭浩、木村 礼、坪井 靖、有江和夫	日本原子力学会 2017年春の年会 東海大学 相模キャンパス	2017年3月28日	国内

表 3.5-2 学会等での発表(3/3)

(4)H29 年度報告

1. 学会等における口頭・ポスター発表

発表した成果（発表題目）	口頭・ポスター発表の別	発表者氏名	発表した学会等名、場所	発表月日等	国内・外の別
MA入りPu金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発 (13) 希土類元素添加によるNb-Zr合金の組織変化 2P13	口頭	○大平 直也、有田裕二、坪井靖、有江 和夫	日本原子力学会 2017年秋の大会 北海道大学	2017年9月14日	国内
MA入りPu金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発 (11) Zr含有金属燃料の電解精製(2) 2K04	口頭	○大森 孝、中村 等、坪井靖、有江 和夫、飯塚 政利、村上 毅	日本原子力学会 2017年秋の大会 北海道大学	2017年9月14日	国内
MA入りPu金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発 (12) 金属廃棄物溶融固化試験 2K02	口頭	○魚住 浩一、飯塚 政利、村上 毅、大森 孝	日本原子力学会 2017年秋の大会 北海道大学	2017年9月13日	国内
MA 入りPu 金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発 (14) バルブ中性子源を用いた金属燃料合金材のドップラ効果測定 3G14	口頭	○宇根崎 博信、佐野 忠史、堀 順一、高橋 住之、中島 健、原 昭浩、坪井 靖、有江 和夫	日本原子力学会 2017年秋の大会 北海道大学	2017年9月15日	国内
"Innovative TRU Burning Fast Reactor Cycle Using Uranium-free TRU Metal Fuel -Core design progress-"	口頭	○Kazuo Arie, Akihiro Hara, Yasushi Tsuboi, Yuji Arita, Hirokazu Ohata	IAEA International Conference on Fast Reactors and Related Fuel Cycles: Next Generation Nuclear Systems for Sustainable Development (FR17)	June26-29, 2017	国外
EVALUATION OF THE SOLUBILITY BEHAVIOR OF RARE-EARTH IN CR-ZR AND NB-ZR ALLOYS	ポスター	○N. Ohdaira, Y. Arita, T. Yonehara, Y. Tsuboi	GLOBAL 2017 September 24-29, 2017 - Seoul (Korea)	September 24-29, 2017	国外
MA入りPu金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発 (15) Zr含有金属燃料の電解精製(3)	口頭	○大森 孝、中村 等、三浦 涼介、坪井 靖、有江 和夫	日本原子力学会 2018年春の年会 大阪大学	2018年3月26日	国内

2. 学会誌・雑誌等における論文掲載

掲載した論文（タイトル、）	発表者氏名	発表媒体（学会誌・雑誌等名 巻号 ページ、発表日時 等）	発表した月	DOI（持っており分かれれば）	国内・外の別	査読の有無
Measurement of Doppler Effect for Metallic Fuel Alloy Material by TOF Method	Tadafumi Sanoa, Jun-ichi Horia, Hironobu Unesakia, Yoshiyuki Takahashia, Akihiro Harab and Ken Nakajimaa	Energy Procedia	Feb. 2017 accepted	DOI:10.1016/j.egypro.2017.09.437	国外	有

表 3.5-3 工業所有権

出願番号	出願日	出願人	発明等の名称
特願 2017-162080	平成29年8月25日	株式会社 東芝	Zr含有混合物の電解回収方法及びZr含有混合物の電解回収装置

4. 結言

本研究は、ウランを含まない MA 入り Pu 金属燃料（TRU 金属燃料）高速炉と乾式再処理を用いた新しい TRU 燃料金属燃料高速炉サイクルによる「核廃棄物燃焼システム」を構築し、単位出力当たりの Pu と MA の燃焼量を従来の 5 倍に向上させることで、小さい容量の高速炉サイクルで高レベル放射性廃棄物の有害度を低減させるものである。

4 年間の本研究により、燃料開発、再処理開発及び炉心開発について以下の成果を得た。

(1) 燃料開発

・ TRU 金属燃料基礎物性評価及び精度向上検討

U を含まない Zr 高含有 TRU 金属燃料の基礎物性はあまり整備されていないため、燃料照射挙動評価に必要な燃料基礎物性を評価した。

その為まず始めに、Pu-Zr 系の合金状態図に基づき、Am、Cm、Np を加えた場合の TRU 燃料の融点—組成の相関を定式化した。また熱力学的計算の確認、検証の為、Pu-MA-Zr 合金の模擬材として Ce-Zr-Nd 等による材料の溶解試験を実施し、熱力学計算と比較し計算がほぼ一致することを確認した。更に、U-Zr 燃料や Pu-Zr 燃料の既往データを整理し MA 入り Pu-Zr 燃料の比熱及び熱伝導度を評価し、これらの温度依存性、組織依存性を定式化した。H29 年度にはこれらの物性精度向上として、Pu-40Zr の熱伝導度について燃料の相変化に密度変化を考慮して評価をおこなったが、大きな向上効果は見られなかった。

またトレードオフ検討の一環として、U を少量添加した場合の燃料の熱伝導度と融点を評価した。その結果、20U-60Pu-20Zr の熱伝導率は Pu-40Zr よりも 2~3 割程度向上する可能性があるが、単純な加成則に基づかない場合には、両者の熱伝導率は大きな差はない可能性もある。融点については、U-Pu-Zr を含むデータベースで Pu-Zr の 2 元系のデータにおいて不確かさが大きいデータを除くことで、融点の上昇効果が期待できることから、融点の組成依存性を見直し再定式化を行った。

これらの結果を踏まえ、物性評価（熱伝導率、融点等）の課題と今後のデータ整備の必要性をまとめた。

・ TRU 金属燃料健全性評価

U を含まない TRU 金属燃料の健全性評価に先立ち、MA 添加金属燃料の製造や照射試験に関する既往知見を調査し、U を含む燃料に比較して、照射による FP ガスの放出にやや遅れが見られることや希土類元素（RE）や MA の含有率が高いために、FCCI による被覆管減肉が厳しくなる可能性があること、Pu 富化度が高いことによる被覆管境界における液相形成温度の低下が懸念されることが明らかになった。

これらの調査結果や燃料基礎物性評価結果、被覆管内面侵食抑制対策等に基づき、TRU-40Zr の FP ガス放出率、燃料物性を考慮するとともに被覆管内面に腐食抑制バリア材を設けることを想定して、金属燃料照射挙動解析コード ALFUS にて燃料健全性を評価した。3.3.2 「TRU 金属燃料炉心の構築」で H28 年度に構築した炉心の燃料を評価した結果、TRU-40Zr 燃料による被覆管応力やプレナムガス圧による被覆管の累積損傷和（CDF）は 0.05 未満であり、基準値（1.0）を十分下回ることが分かった。

また H28 年度構築炉心の燃料設計を変更した場合の裕度等を確認するため、バリア材の厚さ、燃料スラグ径の不確かさ、被覆管温度履歴の変化、燃焼度の変化、及び燃料組成の変化

をそれぞれ考慮した燃料挙動解析を ALFUS にて行い、照射健全性に与える影響を評価した。その結果、平成 28 年度に設定した燃料仕様に対し、バリア材厚さで 50-150 μ m の変化、燃料スラグの製作公差として 0.10mm の不確かさ、照射末期の被覆管温度で 20 $^{\circ}$ C の上昇または取出燃焼度で 10% の増加（燃焼度約 40at. %）を想定しても被覆管の累積損傷和 (CDF) や外径変化量の観点から、燃料の照射健全性は確保できる見通しを得た。更に、TRU 装荷量一定の条件下で、少量の U を添加した 20U-TRU-20Zr においても、照射健全性は確保できる結果が得られ、燃料及び炉心設計の変更に対する高い柔軟性を有することを確認した。

- ・被覆管内面侵食抑制技術開発

TRU 金属燃料の FCCI や被覆管減肉などによる被覆管内面侵食を防止のための内面バリア材として有効と考えられる Cr 及び V を用いて、Pu-40Zr 金属燃料と同バリア付被覆材の拡散対試験（700 $^{\circ}$ C、100 時間）を実施した。その結果、V の場合、Pu 等のバリア材への侵入はないことが確認できた。Cr の場合、粗粒化した Cr 試料表面近傍の結晶粒境界に若干、Pu が侵入したが、試験片の観察結果から試料表面の結晶粒の境界より内側への侵入はしないと考えられた。これより両バリア材候補は Pu-40Zr 燃料に対して有効であることが分かった。

また、Pu-12Am-40Zr 燃料の拡散対試験を実施し、同じくバリア材の有効性を確認した。

更に、H29 年度には「核廃棄物燃焼システムの検討」の一環として Cr バリア材の時間延長拡散対試験（700 $^{\circ}$ C、200 時間）を実施し、バリア材への侵食は時間とともに鈍化することが分かり、バリア材の有効性を再確認した。

- ・RE 混入量制限値評価

U を含まない TRU 金属燃料では再処理回収燃料への RE の混入量が多くなる可能性があり、その RE が新燃料製造の燃料合金溶解時に均一に混合しないと、燃料の照射健全性に悪影響を与える可能性がある。このため、新燃料中の RE 混入量制限値を設定することを目的として、代表的な RE として Ce 及び Nd を用いた試験等により、燃料への RE 溶解挙動を評価した。

具体的には、まず始めに RE 量をパラメータとした U-Zr に対する溶解試験を実施した。その結果、Ce の溶解量は Zr の影響はなく U-Ce の 2 元系状態図から推定される値と一致したが、Nd の場合、U-Nd の 2 元系状態図から推定される値より多く溶解することを確認した。この結果から、TRU-Zr 金属燃料への RE の溶解量は Zr による溶解量増加効果を考慮しないで燃料主成分である Pu と各 RE 元素の 2 元系状態図に基づき設定すれば保守側であり、RE を均一に溶解できる混入量は約 10% であることが分かった。一方、固化する際の偏析に関しては、従来の U-Pu-MA-Zr 燃料製造経験から RE 混入量は 2% 以下であれば偏析しないことが確認されている。したがって、本研究では、RE が均一な TRU 金属燃料が製造できる条件として、リサイクル燃料の RE 混入量制限値を 2% と設定することにより、燃料ピンの局所的な RE の濃度が平均 RE 濃度の $\pm 20\%$ 以内とできることを確認した。

更に H28 年度からは、上記 Nd のように、燃料と Nd の 2 元系状態図から推測される RE 溶解量よりも多く溶解するメカニズムを把握するために、燃料の模擬物質として Nb 等を用いて RE (Nd) の溶解試験を実施した。その結果、Nb-Zr-Nd による試験では、液相中では Nd は Zr 中に溶けており、Nb と Zr も溶け合うことから明確な相分離はせずに母材への溶解限度を超えて均一な液相となっていることが確認された。すなわち、燃料合金材である Zr が介在することで、Nd の溶解量は増加することを確認した。

(2) 再処理開発

・高除染プロセスの開発

TRU 金属燃料では燃料中の MA 含有割合が高くなるため、再処理時に MA との分離性が比較的悪い希土類(RE)FP が回収燃料に多く混入する可能性がある。そのため、RE の除染性能向上策として、Cd 代替陰極材料を採用、電解精製使用済塩処理頻度増加、及び RE の還元抽出や沈殿による使用済塩からの希土類 FP 除去について検討した。

その結果、新燃料中 RE 混入量 2%以下という条件は Cd 陰極を用いた従来のフローシートでも満たされることが分かった。

しかし、高燃焼度化や多量の RE を含む軽水炉使用済み燃料再処理後の高レベル廃液から MA を回収する際には、Cd 陰極では制限値を満足できない可能性が高く、電解精製使用済塩処理頻度増加、還元抽出による使用済塩からの希土類 FP 除去、Ga や Bi などの Cd 代替陰極材料の採用のいずれの場合も、高い除染性能が見込めることが分かった。ただし、使用済塩からの RE の沈殿除去に関しては、RE の内、Eu の除染性能向上効果が小さいのに加えて、沈殿生成物が微粉末のため除染プロセスが複雑になることから、高除染化には適さないと考えられた。更に、これらの方策について、処理施設の設置面積、塩処理量への影響等を総合的に考慮すると、高除染化策としては、従来の Cd 陰極に代わり Ga 陰極を用いることが有力であることが分かった。

・Zr 高含有燃料の電解精製試験

U を含まない TRU 金属燃料では燃料合金材 Zr の割合を 40wt%程度まで高める必要があるが、そのような Zr 高含有金属燃料の電解再処理の実績は少ないため、その成立性を見通しを得ることを目的として、TRU 金属燃料の模擬物質として U-Zr 燃料を用いた各種の電解試験を実施した。具体的には、従来の電解法と同じ、燃料合金材の Zr を熔融塩中に溶解させないで燃料を優先的に溶解させて電解する方法（優先的陽極溶解電解法）、燃料とともに Zr も熔融塩中に溶解して電解する方法（同時陽極溶解電解法）、電解槽中の Cd プールに燃料と Zr を化学的に溶解し、 $ZrCl_4$ を添加して Cd プールから熔融塩中に燃料のみを塩化物として化学抽出してから電解する方法（化学抽出+電解法）、電解槽中の Cd プールに燃料と Zr を化学的に溶解し、その Cd プールを陽極として電解する方法（Cd 陽極電解法）等の試験を実施した。

その結果、優先的陽極溶解電解法、同時陽極溶解電解法、化学抽出+電解法などでは、電流密度や電流効率の低下、処理操作（プロセス）の複雑化などを招くのに対し、Cd 陽極電解法では比較的シンプルなプロセスにて熔融塩中への Zr の溶解を抑制し、ひいては Zr 割合が低い燃料を陰極に回収できることが分かった。

更に、この結果に基づき、Cd 陽極電解法を正案とし、それを用いた場合の再処理プロセスフローシートを作成した。

・Zr 高含有燃料陽極溶解挙動の解析

Zr 高含有金属燃料の電解時の陽極溶解挙動を把握する観点から、優先的陽極溶解電解試験結果と同時陽極溶解試験結果を参考として、機構論的解析モデルにて陽極溶解挙動を解析、検討した。その結果、Zr 高含有金属燃料を優先的陽極溶解電解する場合には電流密度を大幅に下げることが必要であり、また、残留 Zr 層中における TRU イオンの実効的拡散係数が低下す

ることから、処理速度が大幅に低下することが予測された。また、燃料と Zr を同時溶解する場合、安定した燃料合金溶解を継続することが可能な条件は、アクチニドではなく Zr の溶解電流上限値によって定まり、 $ZrCl_4$ の拡散係数と溶解度を考慮して評価できることが分かった。

・廃棄物処理技術の開発

U を含まない TRU 金属燃料では燃料合金材 Zr の割合が 40wt%程度まで高くなるため、電解後の陽極残留金属廃棄物の Zr 含有率が従来よりも高くなる。また、RE の高除染プロセスに適した使用済塩の廃棄物処理技術の見通しを得ておく必要がある。

このため、金属廃棄物に関しては、処分固化体製作のための熔融固化試験及びこの試験で作成した固化体試料を用いた浸出挙動試験を実施した。その結果、 Y_2O_3 コーティング/グラファイトをつぼ用いて 1600°Cにて熔融固化することにより、SUS-30wt%Zr ベースに金属 FP を約 5wt.%添加した処分固化体が問題なく作成できることが分かった。また最長 140 日間の長期浸出試験により、従来のガラス固化体と同等以上の耐浸出性を確保できる見通しを得た。

また熔融塩廃棄物に関しては、 Li_2O による使用済塩からの希土類 FP の沈殿除去試験、沈殿物に付着した塩の蒸留分離試験、ガラス原料に沈殿回収した希土類 FP を 10wt.%添加したガラス結合型ソーダライト固化試験を実施した。これらの一連のプロセス試験の結果、使用済塩中の希土類 FP を空隙率 20%相当のソーダライト固化体にできることを確認した。

(3) 炉心開発

・最適化炉心設計手法の開発

U を含まない TRU 金属燃料炉心では、安全性確保の観点からドップラー反応度の改善（増強）、ボイド反応度の低減、運転サイクル長さなど炉心特性の観点からは燃焼反応度の低減等が重要である。しかし、これらの特性パラメータは相反する面があるため、本研究では炉心構築に先立ち、まず始めに炉心仕様最適化のための手法を開発した。具体的には、炉心高さ、減速材、燃料合金材、バーナブルポイズン等をパラメータとして様々なケースの炉心解析を実施し、炉心仕様と炉心特性の相関を分析、検討した。その結果、ドップラー係数やボイド反応度は、中性子の減速能、輸送断面積、燃料合金材の捕獲断面積、及び炉心高さの 4 つの炉物理的指標にて概略値を算出できることが分かった。

更に、この炉物理的指標と主要炉心特性の関係を相関マップとして定式化し、ドップラー係数とボイド反応度への要求条件をバランスよく満足する炉心仕様を容易に見出すことが出来る、最適化炉心設計手法を開発した。

また、炉心の受動安全特性確保の観点から、UTOP 時及び ULOF 時においても燃料溶解及び冷却材沸騰が防止できる、ドップラー係数とボイド反応度への要求条件を炉心のパラメータ過渡解析により明らかにした。

・TRU 金属燃料炉心の構築

上記にて開発した最適化炉心設計手法を用いて、U を含まない TRU 金属燃料炉心の基本仕様を選定し、基準炉心（軽水炉取出 TRU 燃料利用）とマルチリサイクル燃料炉心を構築した。具体的には TRU-40Zr 金属燃料をベースに BeO 減速材ピンを燃料集合体内に配置した、低線出力扁平炉心（最大線出力 210w/cm、炉心高さ 55cm）であり、その炉心特性、燃料特性

及び安全特性を評価した。その結果、ドップラー係数はU含有TRU金属燃料高速炉並み、ボイド反応度は約0\$であり、また、運転サイクル長さ1年相当のプラント稼働率が見込まれ、当初の目標達成及び成立の見通しを得た。また、希土類FP混入による炉心特性への影響を評価し、大きな問題は生じないことを確認した。

更に、構築したTRU金属燃料炉心は過酷事故時を想定しても、燃料集合体中の燃料ピンと減速材ピンの配置の工夫により、Uを含む通常の金属燃料炉心と同様に、起因過程で燃料分散等により事故終息できる見通しがあることを確認した。

・合金材のドップラー効果の測定

炉心のドップラー係数を改善する方策として、金属燃料合金材のZrの代わりにMoやNbを用いることが将来オプションのひとつと考えられる。しかし、これらの核種の中性子の共鳴領域の吸収断面積の精度、すなわちドップラー反応率の評価精度は不明確であるため、本研究では、これらの物質を対象として、ライナックで発生させた中性子を用いた共鳴吸収分光法にて共鳴吸収領域の積分中性子吸収率の温度による変化量を測定した。測定にあたっては、予備試験や照射場の中性子分布の数値計算等により、中性子検出系や鉛シャドウバー等の配置を工夫し測定系のノイズ低減など測定体系の最適化を図った。その結果、10keV領域までのドップラー反応の測定に成功した。この実験値と数値計算を比較した結果、その差は±5%以内に収まっており、代替合金材(Mo及びNb)のドップラー効果の評価精度は当初目標の±20%以内との見通しを得た。

(4)「核廃棄物燃焼システム」の検討

核廃棄物燃焼システムの炉心に関し、U無炉心とUを少量添加した炉心について比較した結果、Uの少量添加による炉心・燃料特性面のメリット(炉心コンパクト化、燃焼反応度低減効果等)は小さく、H28年度に構築したU無TRU炉心をTRU燃焼炉心の正案とし、それに基づき軽水炉燃料からのTRUをワンスルーで燃焼する基準炉心と、マルチリサイクルで燃焼する場合のマルチリサイクル燃料炉心の2種類の炉心を設定した。

サイクル施設の概念に関しては、Zr高含有燃料の処理に適した再処理プロセスを設定し、プロセスフロー図を作成し、TRU燃料組成の高次化に伴い取扱い燃料量が大きくなるマルチリサイクル燃料炉心の必要処理量をベースに、20GWeの軽水炉から毎年発生する3.8tTRUを継続してリサイクル燃焼処理できる4.9GWeのTRU金属燃料高速炉に対応したサイクル施設概念を検討した。具体的には、新燃料製造能力22.6tHM/年、使用済み燃料処理能力18.8tHM/年のサイクル施設の規模や経済性を検討した。その結果、従来の既往研究の高速炉リサイクル施設(同一発電量の金属燃料サイクル)と同等になることがわかった。

また、導入シナリオの検討の為、基準炉心を対象として炉とサイクル施設の導入規模と時期をサイクル諸量の観点から検討した結果、TRU燃焼高速炉の導入規模に合わせて小規模の再処理施設や製造施設を段階的に増設するのではなく、将来必要となる処理容量の規模の施設を初期段階から導入する方が経済的であることが分かった。本研究のシステムのTRU燃焼コストを従来のUも含むブランケット無しTRU燃焼高速炉システムと相対評価した結果、本システムのTRU燃焼コストは従来のシステムの約1/4になる見通しである。また、将来、Uも用いたTRU増殖リサイクルシステムに移行する場合に必要な、サイクル施設の主なプロセス変

更点を摘出し、TRU 燃焼から TRU 増殖への柔軟な移行の可能性を検討した。その結果、装置の流用及び交換等により、TRU 増殖への切り替えは容易であることが分かった。

本研究で構築した核廃棄物燃焼システムの実証試験計画について、燃料、再処理、炉心の各分野での開発課題を整理し、同システム実現に必要なキー技術の実証試験を立案にした。具体的には、燃料開発は燃料物性、燃料健全性、製造技術に関する試験計画、再処理開発では電解技術及廃棄物処理技術に関する試験計画、炉心開発では炉心の各設計精度及び過酷事故に関する試験計画を立案した。

(5) 研究推進

本研究の推進のため、各年度開始時のキックオフ会議や、適宜、個別レビュー会議等を行い、各研究項目間で密に研究を進めた。また、多数の学会発表を通じて、国内外の専門家と討議するとともに、本研究成果を対外的にアピールした。更に、論文投稿、特許出願も行い、有意義な研究成果を得た。

(6) 今後の展望と将来の見通し

4年間の本研究により、ウランを含まない TRU 金属燃料高速炉サイクルにて、軽水炉で生成される TRU を軽水炉の発電規模の約 1/4 の規模にて燃焼処理できる技術見通しを得た。このことは、当面、軽水炉が主流と考えられる時代においても TRU 燃焼高速炉を大規模に導入しなくとも、軽水炉からの TRU の蓄積を防止し、高レベル放射性廃棄物の有害度を早期に低減できることを意味する。また、この技術を用いれば、我が国が既に有する Pu を早期に燃焼処理することにも適用可能である。更に、将来、エネルギーセキュリティ確保の観点から、燃料増殖が必要になった場合でも、新たな技術開発をすることなく、TRU 燃焼システムから TRU (Pu) 増殖システムに柔軟に移行できる。

すなわち、本研究で開発した技術は、高レベル放射性廃棄物の有害度の早期低減とともに、長期に渡るエネルギー資源確保も可能とするものであり、今後、実現に向けた開発が望まれる。その実現のためには、本研究で提示した各技術の実証を国際協力も含め着実に実施していくことが重要である。