# 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

(受託者) 東芝エネルギーシステムズ株式会社

(研究代表者) 有江和夫 原子力先端システム設計部

(再委託先)一般財団法人電力中央研究所、国立大学法人福井大学、国立大学法人京都大学 (研究期間)平成26年度~29年度

#### 1. 研究の背景とねらい

本研究は、軽水炉時代が当面、主流と見 込まれることを踏まえ、ウランを含まない TRU (プルトニウムとマイナーアクチニド) 金属燃料を用いた高速炉により TRU の燃焼 効率を極大化し、軽水炉で発生する TRU を 最小の高速炉基数にて燃焼することを狙う ものである。本研究が目指す全体システム 概念およびその効果は図1に示すように、 通常のウランを含む TRU 燃焼高速炉に比べ、 必要な施設容量 (スループット)は1/5(高 速炉)~1/8(サイクル施設)に削減できる。 本研究では、このような新しい「核廃棄物 燃焼システム」の工学的見通しを得ること を研究開発目標としている。

このため、ウランを含まないTRU 金属燃料高速炉サイクルの特徴である、燃料中の TRUと燃料合金材(通常はZr)の含有率が 高いこと(Zr 高含有TRU 金属燃料)に起因 した技術課題(Ref.参照)を表1に示すアプ ローチにて解決する。

# TRU燃焼と発電 約5 GWe (約 2 5 GWe) \* 使用消燃料 約4 00 0 tHM/年 再処理 (軽水炉用) 移4 00 0 tHM/年 再処理 (軽水炉用) 約300年で天然ウラン値石 と同等の寄住になる 高レベル県棄物(1) 一日 約10 0 tHM/年) \* 第出成型によるTRU全面燃料製造 第出成型によるTRU全面燃料製造 \*活動内は、従来の高速炉 (約 150 tHM/年) \* 約150 tHM/年) \* (約 150 tHM/年) \*

### 図1 「核廃棄物燃焼システム」概念と導入効果

### 表1 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
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 事故影響が厳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

Ref.: K. Arie et. al., "TRU Burning Fast Reactor Cycle Using Uranium-free Metallic Fuel", ICAPP2014, April 6-9, 2014.

#### 2. これまでの研究成果

2.1 燃料開発

(1) TRU 金属燃料健全性評価

H27 年度に評価・整備した TRU 金 属燃料の熱伝導率等の物性に基づき、 TRU 金属燃料炉心(2.3(1)参照)の燃 料健全性を照射挙動解析コード ALFUS にて評価した。その結果、被 覆管内面バリア材が機能すれば被覆 管の累積損傷和(CDF)は 1.0 を十分 下回り、燃料健全性は確保できる見 通しを得た(図 2)。



## (2) 被覆管内面侵食抑制技術開発

TRU 金属燃料で懸念される燃焼中の被覆管内面侵食に対し、被覆管内面バリア材 Cr 及び V に ついて Pu-12AM-40Zr 金属燃料を用いた拡散対試験(700℃、100 時間)を米アイダホ国立研究所 にて実施した。その結果、図 3 に示すとおり、Pu 及び Am はバリア材内部へ侵入しておらず、H27 年度の Pu-40Zr 金属燃料と同様、被覆管内面侵食は防止できることが確認できた。



(3) RE(希土類 FP)混入量制限值評価

TRU 金属燃料ではリサイクル時に新燃料中の RE の混入率が高まる可能性があるため、その混入 制限値を検討している。H27 年度の TRU の模擬物質として U-Zr 金属燃料を用いた RE (Ce、Nd)の溶 解試験では、Nd は U への飽和溶解度以上の量が溶解したため、そのメカニズムを把握する観点か ら、H28 年度は燃料模擬物質として液相での Nd の溶解挙動が U-Zr と類似している Nb-Zr を用い て Nd 溶解時の挙動を試験にて詳細に分析した。その結果、液相中では Nd は Zr 中に溶けており、 Nb は Zr にも溶け合うことから、Nd は燃料母材への飽和溶解度を超えても均一な液相となって溶 解することが確認された。したがって、新燃料中の RE 混入制限は燃料母材への飽和溶解度に対応 する量で設定すれば保守側であり、妥当であることが確認できた。

2.2 再処理開発

#### (1) 高除染プロセスの開発

H27年度に絞り込んだCd陰極代替材 料のGa及びBiからのTRU抽出方法を 検討した結果、電気化学的プロセスが 適用可能であることを確認した。更に、 液体Ga陰極の場合のフローシートと マテリアルバランスを評価し、電解精 製を2段階にする他は従来のフローの 変更の必要はなく、Gaの高い除染性能 を生かしたプロセスが構築可能である ことが分かった(図4)。除染されたRE



図4 液体Ga 陰極を採用する場合のブロックフロー

は従来のフローシートと同じく溶融塩中に蓄積し、最終的にはソーダライト廃棄物として処分される。

(2) Zr 高含有燃料の電解精製試験

Zr 含有率が高い金属燃料の電解処理の成立性を確認するため、H28 年 度は TRU 模擬物質として U-Zr を用いて計 6 回の電解試験等を実施した。 U の活性を高めた 700℃での U の優先的溶解電解試験では、従来の 500℃ の場合と同様に、電流密度を極めて低く抑える必要があり、U の優先的 溶解は処理速度の観点から現実的でないことが分かった。

次に U-Zr の同時溶解電解試験を実施したところ、溶融塩中の Zr 濃度 が低い場合、U 濃度が高い陰極析出物が得られた。継続して電解すると 塩中の Zr 濃度が上昇し、析出物の Zr 割合が多くなるが、電解を停止し て一定時間静置するとUと Zr イオンの交換反応により塩中の Zr イオン は金属として Cd 中に移行するため、析出物中の Zr 割合を抑制しつつ高 濃度の Uを陰極析出できる見通しを得た。(図 5)



U:89% Zr:11% 図5 電解回収U

化学抽出法では、化学的に U-Zr を溶解させた Cd 中に ZrCl<sub>4</sub>を添加して U を溶融塩中に UCl<sub>3</sub>と して抽出すると、Zr は Cd 中に留まり塩中の Zr 濃度は抑制できることを確認した。すなわちこの 溶融 Cd 中への燃料の溶解と電解を組み合わせれば、Zr 割合を低く抑えた燃料を回収できる可能 性があることが分かった。

Pu など TRU の塩化物生成自由エネルギーは U よりも大きいため、これらの結果から TRU-Zr 燃料でも Zr 割合を抑制しつつ TRU が回収できると考えられる。

(3) Zr 高含有燃料陽極溶解挙動の解析

Zr 高含有燃料に適した拡散パラメータを既存の陽極モデルに適用し、U-Zr 合金を用いて行った 電気化学測定結果を利用して種々の電解工程の運転条件におけるTRU及びZrの溶解挙動を予測評 価した。その結果、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 は低下し、処理速度が大幅に低下することが予測された。また、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、ZrCl<sub>4</sub>の拡散係数と溶解度により評価可能であることが分かった。

(4) 廃棄物処理技術の開発

TRU 金属燃料電解後の陽極バスケットに残留する金属廃棄物 (RE 等は溶融塩中に残留するため金属廃棄物には含まれない) の固化体試料(SUS-20wt%ZrおよびSUS-36wt%Zrに模擬貴金属FP を加えたもの)を作成して、高純度水を用いて最長140日の浸出 挙動試験を実施した。その結果、ガラス固化体からのSiの規

格化浸出率と比較して1桁程度小さく、十分な安定性がある



ことを確認した(図 6)。溶融るつぼ材と溶融金属との反応抑制等の観点を総合すると固化工程の 運転条件は、組成:SUS-20wt%Zr、溶融温度1600℃がより適切と評価した。 2.3 炉心開発

(1) TRU 金属燃料炉心の構築

H27 年度に開発した炉心最適化設計手法を用いて、U を含まない TRU 金属燃料炉心を構築した(図 7)。この炉心では、燃料集合体への減速材 (Be0)ピン導入、炉心高さ低減(55cm)、低線出力化(最大 210w/cm)等に より、制御棒誤引抜事故時や一次系冷却材流量喪失事故時にスクラム失 敗を想定しても燃料溶融や冷却材沸騰はなく、ボイド反応度も1\$以下と 高い安全性を確保しつつ、U がないことから優れた TRU 燃焼効率が実現 可能であることを確認した。また、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、従来のUを含む金属燃料炉心と同様、過酷事故 時には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。



図 7 TRU 燃料炉心

(2) 合金材のドップラー効果の測定

ドップラー効果を増強できる燃料代替合金材のドップ ラー効果評価精度向上のため、代替合金材候補の Mo に対 して温度 300K と 600K で飛行時間測定(TOF 測定)を実 施した(図 8)。その結果、エネルギー 10eV-1000eV に存 在する Mo のドップラー効果による共鳴吸収の反応率変



#### 図 8 共鳴吸収反応率測定体系

化が測定できた。測定誤差は Mo 試料厚さ 0.5mm で 18%以内、厚さ 3mm では 3%以内であった。また、 この測定体系でのドップラー効果による解析値と実験値は実験誤差の範囲内で一致し、解析誤差 は 20%以内であることを確認した。

2.4 「核廃棄物燃焼システム」の検討

軽水炉 20GWe から発生する TRU を、2.3(1)で構築した TRU 燃焼金属燃料高速炉により燃焼処理 する場合に必要な炉、再処理及び燃料製造の各施設容量を評価するとともに、当システムの導入 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/年となり、最小限の高速炉サイクル施設にて軽水炉 20Gwe から の年間 4t の TRU を燃焼処理できることを確認した。システム導入時は、TRU 燃焼高速炉の導入に 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、将来必要な処理量に対応 した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。

<u>3. 今後の研究</u>

これまでの3年間の本研究により、Uを含まないTRU金属燃料高速炉システムを構築、具体化 した。電解再処理評価はTRU模擬物質としてU-Zrを用いた試験に基づいているが、塩化物生成自 由エネルギーはUよりTRUのほうが大きいため、電解時の燃料とZrの分離はTRUのほうが容易と 考えられること等から、当システムの成立見通しを得た。最終年度の今年度は、残された技術課 題の最終的な詰めを行うとともに、サイクル施設の経済性を含め総合評価を実施中である。また、 TRUやPuを用いた確認試験なども含め、工学実証段階で必要になる試験計画を立案し、実現に向 けた道筋を示す予定である。