

柔軟性の高い MA 回収・核変換技術の開発

(受託者) 一般財団法人電力中央研究所

(研究代表者) 飯塚政利 原子力技術研究所

(再委託先) 国立大学法人京都大学、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

(研究期間) 平成28年度～31年度

1. 研究の背景とねらい

金属燃料-乾式再処理技術は、高い MA 核変換効率¹、熱や放射線に対する溶媒の安定性、工程を付加することなくアクチノイド一括回収が可能²、射出鑄造法による燃料製造の遠隔操作適合性³などの利点を持っている。これを高速炉燃料サイクルに取り込むことにより、幅広い高速炉導入シナリオや Pu 需給シナリオに柔軟に対応しつつ廃棄物有害度低減効果を最大化することが可能な MA 回収・核変換システム (図1) を構築することを目的とした研究開発を実施している。

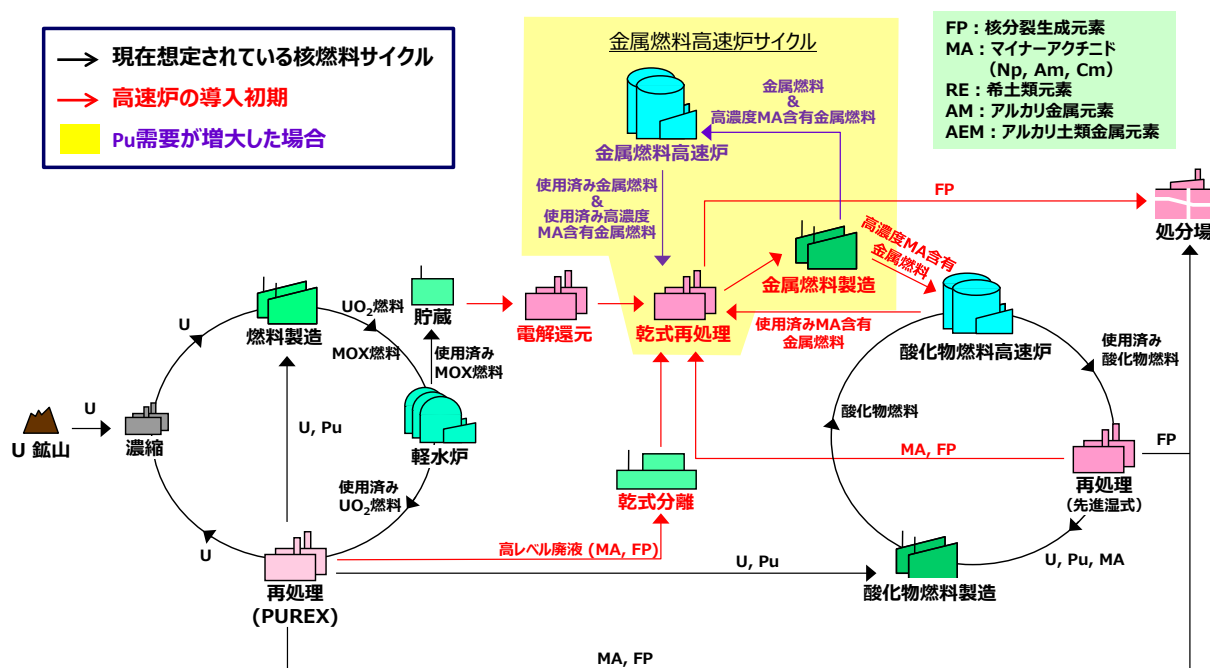


図1 本事業で提案する柔軟性の高い MA 回収・核変換システムの概念

このシステムの実現性を見通すために解決すべき技術的課題は以下のように集約される。

- ✓ MA 添加金属燃料を一部/全部に装荷した高速炉炉心に関する核変換効率と安全性の観点からの運用方法見直し
- ✓ 乾式法による MA 回収における希土類 FP 除染性能の向上
- ✓ 多重リサイクルによる MA 核変換特性の明確化

本事業では、上記の課題を解決するために以下の項目からなる技術開発を行う。

(1) 金属燃料および炉心開発

(1-1) 高濃度 MA 含有金属燃料の設計と特性評価

従来設計値 (数 wt%)⁴を上回る高濃度 MA を含有する金属燃料の成立条件 (製造時 TRU 濃度、不純物 FP 混入率、照射挙動で定まる制限など) を明確化し、燃料温度分布やガス放出率などの照射挙動を金属燃料照射挙動解析コードによって解析する。

(1-2) MA 含有金属燃料装荷方法の最適化検討

MA 含有金属燃料を非均質装荷した酸化物 (MOX) 燃料炉心、MA を均質または非均質に装荷した金属燃料炉心において、安全性と MA 核変換特性が両立する最適な装荷法を検討する。

(2) 乾式再処理技術開発

(2-1) 液体 Ga 電極を用いたアクチニド/希土類分離回収技術開発

実用規模・条件で液体 Ga 電極の分離性能 (図 2) ⁵ を発揮させるために、Ga 中溶解度を超える濃度での回収が可能となる条件を明らかにする。不足している Np, Cm と FP との分離性能データを取得する。

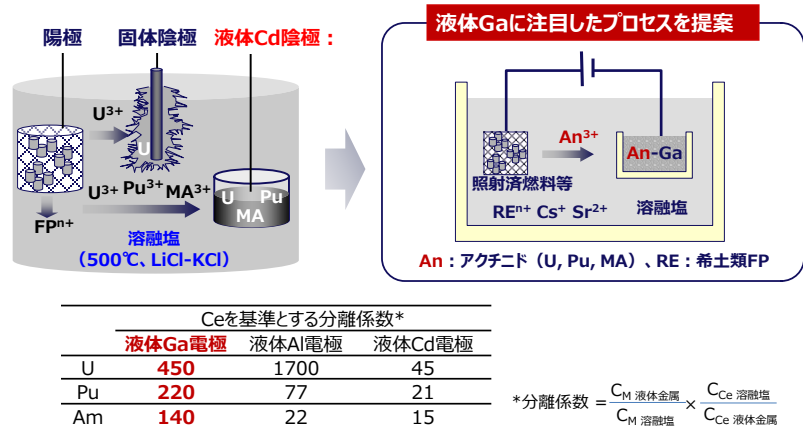


図 2 液体 Ga 電極を用いたアクチニド/希土類分離の概要 ⁵

(2-2) 廃棄物の減容化技術開発 (図 3)

電解精製使用済塩化物中に存在する希土類、アルカリ土類、アルカリ各 FP の液体 Ga 電極への回収可能性を調べ、酸化物としてガラスに移行させる方法の成立性を評価する。ハロゲン FP (ヨウ素等) については電解時の陽極挙動を明らかにし、回収プロセスの成立性を評価する。

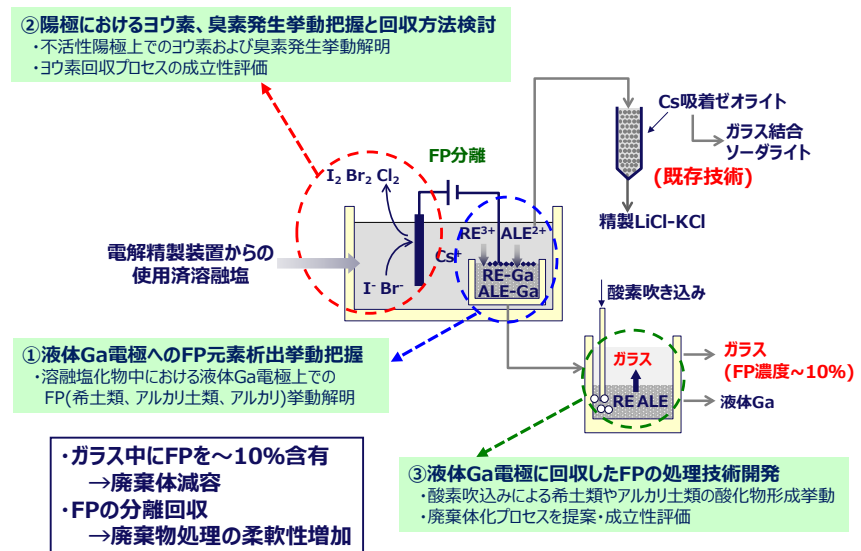


図 3 乾式再処理プロセスにおける廃棄物減容化技術開発

(2-3) 乾式再処理機器概念の構築とプロセス設計

実用 Ga 電極の設計に必要な知見と工学的データを取得する。本研究で得られた知見を反映した乾式再処理プロセスフロー、必要機器イメージ、マスバランスを作成する。

(3) MA 回収・核変換シナリオと Pu/MA 収支の検討

核変換量や乾式プロセスマスバランスなどの検討結果を反映したサイクル全体の物量解析により、必要な高速炉や再処理施設の導入規模、多重サイクルの成立性評価を行い、廃棄物に含まれる長期的な放射毒性の低減効果を示す。

2. これまでの研究成果

(1) 金属燃料および炉心開発

(1-1) 高濃度 MA 含有金属燃料の設計と特性評価

高濃度 MA 含有 U-Pu-Zr 金属燃料の均一な混合性を検討するため、公開データを調査したところ、アクチニド元素 (U、Np、Pu、Am) のうち、U と Am および Np と Am の固相での溶解度は低く、高濃度 MA 含有金属燃料には Pu が共存する必要があることがわかった。また、これまでの製造実績によれば、Pu が MA と同量程度以上含まれる場合には合金の均一性が確保できることから、U-Pu-Zr 合金への MA 添加率の上限を Pu 富化度と同程度と暫定した。なお、低濃度 MA 金属燃料と同様に希土類元素の混入率は数%以下に抑える必要がある。

(1-2) MA 含有金属燃料装荷方法の最適化検討

炉内径方向位置に高濃度 MA 含有金属燃料を非均質装荷 (MA 装荷量は 3wt% の MA 均質装荷 MOX 燃料炉心と同量) した 750MWe MOX 燃料高速炉の炉心特性を 2 次元核計算により解析した (図 4)。炉心中心に装荷したケースを除いて、冷却材 Na ボイド

反応度や最大線出力が MA 均質装荷 MOX 燃料炉心と同等または下回り、本研究で検討した非均質装荷炉心の成立性が確認できた。また、外側炉心最外周に冷却材 Na ボイド反応度 6\$ までの範囲で MA 装荷量を増加させた炉心 (16wt%、60 体、図 4 中の赤丸) では、MA 均質装荷 MOX 燃料炉心の約 1.6 倍の MA 核変換量が得られることを確認した。

(2) 乾式再処理技術

(2-1) 液体 Ga 電極を用いたアクチニド／希土類分離回収技術開発

小型の SEM/EDX を選定し、Pu 試験用グローブボックス内に設置した。過去の実験で回収した Ga-U 合金表面に U を主体とする微細な析出物が見られ、アクチニドの析出状態が観察できる見込みが得られた (図 5)。Ga-Pu 合金の観察では EDX による Pu 存在の確認はできなかつたため、次年度以降に高濃度 Pu 試料を用いて確認を行う予定。

(2-2) 廃棄物の減容化技術開発

熔融 LiCl-KCl-CeCl₃ 中 (723 K) において液体 Ga 電極を用いた Ce 電解回収試験を行った結果、液体 Ga 表面に固相 Ce-Ga 合金が形成することが示された (図 6)。電解中の電流経時変化より、

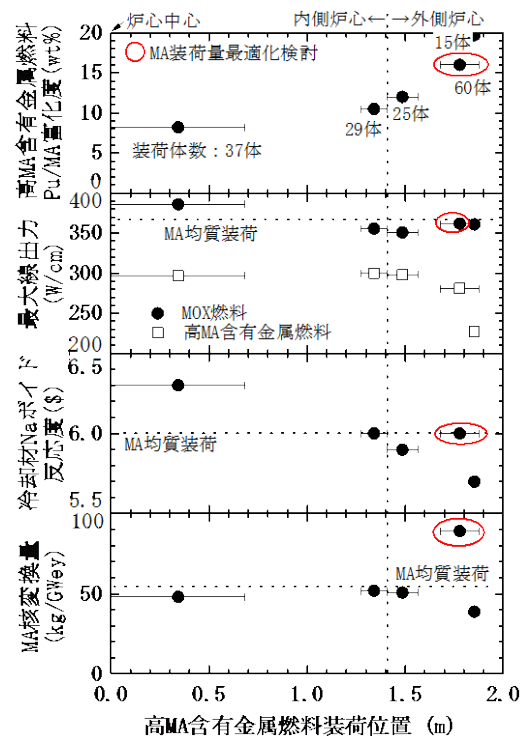


図 4 高濃度 MA 含有金属燃料を非均質装荷した MOX 燃料高速炉の炉心特性解析結果

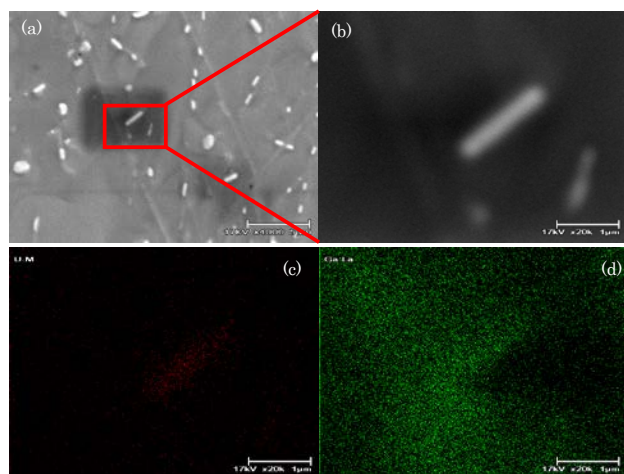


図 5 Ga-U 合金の SEM/EDX 像 (a) 二次電子像、(b) 反射電子像、(c) EDX:U、(d) EDX:Ga

この固相形成は液体 Ga 中 Ce 濃度が飽和に達する前から進行していたと推察された。これは、電解による Ce 析出速度に対して液体 Ga 電極表面から液体 Ga バルクへの Ce の拡散が遅いためと考えられる。

723K の溶融 LiCl-KCl-LiI 中においてグラッシーカーボン電極を用いた電気化学測定を行い、ヨウ化物イオン(I⁻)の陽極酸化反応電子数が 1 であることを確認し、ヨウ化物イオンの酸化還元電位および拡散係数などの回収プロセスの設計および性能に影響を与える基礎的データを求めた。

(2-3) 乾式再処理機器概念の構築とプロセス設計

Al₂O₃、MgO、W、Ta、Mo、Zr、Fe、Ni と液体 Ga を数日間接触させた後、接触面の観察を実施した結果、Al₂O₃、MgO、W は液体 Ga と反応しない安定な材料であることがわかった。工学規模 Ga 電極のつぼ（直径数十 cm）材料としては Al₂O₃ または MgO が適する。また、液体 Ga 電極の攪拌羽や電極リード材料としては、電気抵抗が比較的 low 高い機械強度を持つ W が適する。

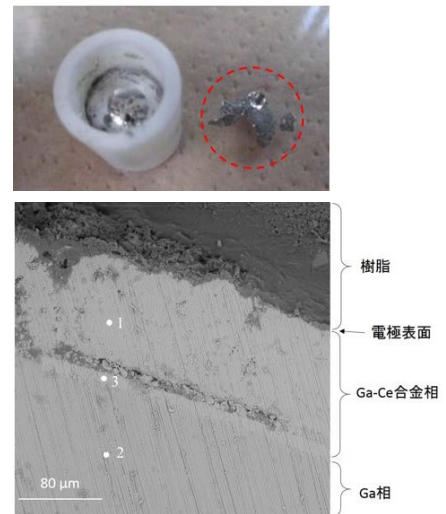


図 6 液体 Ga 表面に形成した固体析出物(赤丸)の断面 SEM 像

(3) MA 回収・核変換シナリオと Pu/MA 収支の検討

高速炉や再処理施設の導入規模、Pu および MA の燃焼率、乾式再処理マスバランス等を考慮に入れた様々な核燃料サイクルシナリオを検討するために必要とされる、炉型や燃焼度などのパラメータを整理し、各種原子炉の運転条件や燃料組成、装荷・取出量に関する公開情報を取りまとめた。

3. 今後の研究

平成 29 年度以降も当初計画に沿って研究開発が進捗している。MA を用いたアクチニド/希土類分離性能測定は請負委託先である欧州 JRC-Karlsruhe の乾式試験用ホットセルで、液体 Ga 電極における U および Pu の挙動把握および模擬使用済 MOX 燃料を出発物質とするプロセス連続試験は JAEA に設置されたグローブボックスで、それぞれ実施する。総合的な検討として、MA 含有金属燃料の非均質装荷炉心による核変換量や乾式再処理プロセス設計評価の結果を反映し、サイクル全体のマテリアルバランス解析を行う。複数の高速炉導入シナリオや Pu 需給シナリオについてこれらの検討を繰返し行うことによりシステム全体の整合を図ると共に、廃棄物に含まれる長期的な放射毒性の低減効果を示す。

4. 参考文献

- (1) T. Yokoo et al., Nucl. Technol., 116, 173-179 (1996).
- (2) T. Murakami et al., J. Nucl. Mater., 466, 502-508 (2015).
- (3) C. E. Stevenson, “The EBR-II Fuel Cycle Story, Chapter 7: Production of Fuel Pins”, ANS, (1987).
- (4) 植松眞理マリアンヌ、他、JAEA-Research 2012-041, 2013.
- (5) 平成 26 年度 文部科学省 原子力システム研究開発事業「マイナーアクチニド/希土類分離性能の高い乾式処理プロセスの開発」成果報告書 (2015).