

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 新技術応用プロジェクト部

(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。

2. 研究成果

2.1 燃料開発

(1) TRU金属燃料基礎物性評価

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。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(図2)。また、TRU燃料の比熱、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。これらの物性評価結果はTRU金属燃料健全性評価や安全評価に用いた。

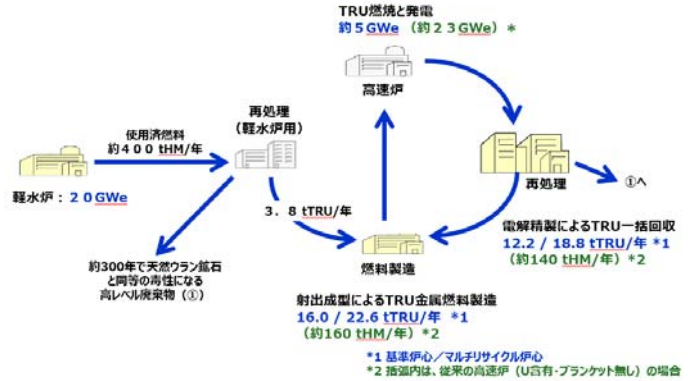


図1 「核廃棄物燃焼システム」概念と導入効果

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PP(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、新たな除染材料の適用により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
	燃料溶解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直しを得る
	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.

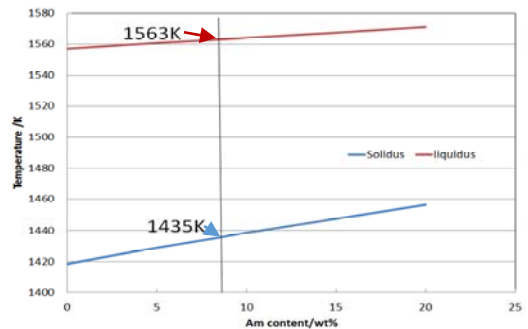


図2 58.8Pu-Am-35wt%Zr燃料の融点のAm量依存性

(2) TRU 金属燃料健全性評価

2.1(1)で評価・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3)。

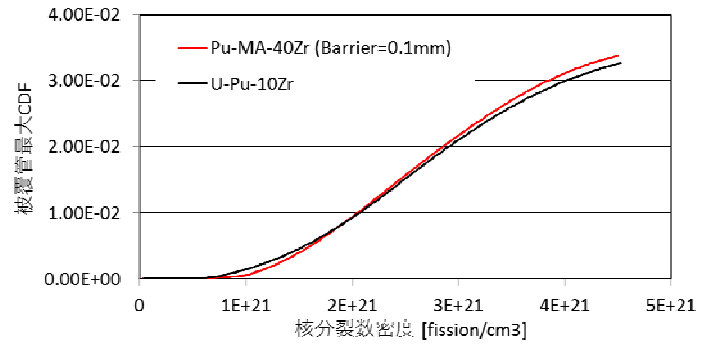


図3 被覆管最大 CDF の解析結果

(3) 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°C、100 時間)を米アイダホ国立研究所にて実施した。また Cr について Pu-12Am-40Zr で時間延長試験(700°C、200 時間)を実施した。その結果、図4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、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。

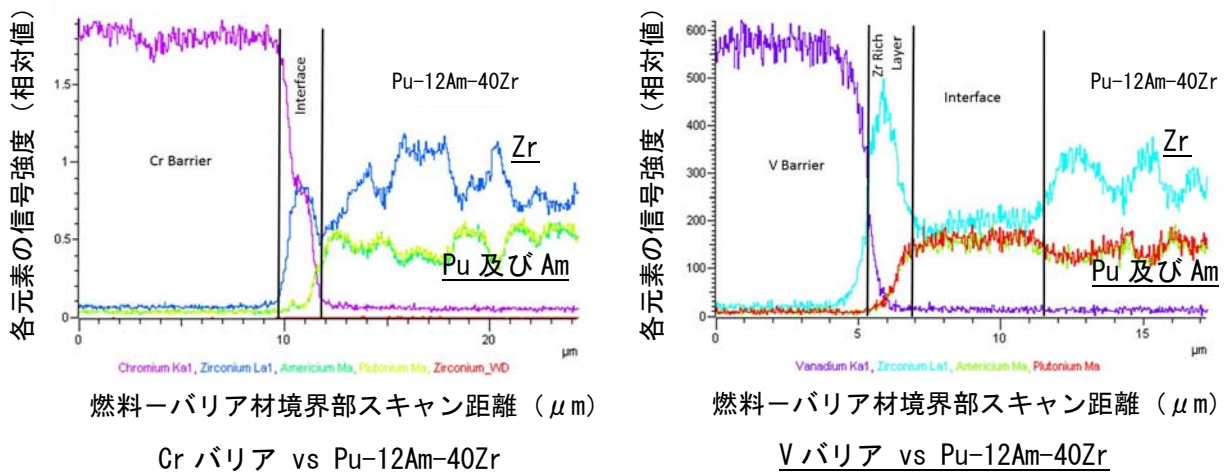


図4 Pu-12Am-40Zr 金属燃料の内面耐食拡散対試験後の元素分布ラインスキャン結果

(3) RE (希土類 FP) 混入量制限値評価

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た。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、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、リサイクル燃料の RE 混入量制限値を 2%以下(再処理側への要求条件)とすることにより、RE が偏析しない、均一な燃料が製造できることを確認した。

2.2 再処理開発

(1) 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 代替陰極材料の採用、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。

高燃焼度化や高レベル廃液から 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いが、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かのオプションを採用することにより TRU 金属燃料を製造するために十分な除染性能が見込めることが分かった。

ただし、塩処理量増大の影響、使用済塩中の FP 濃度が低い条件でのゼオライトへの FP 吸着効率低下に伴う廃棄物発生量増大の可能性、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) 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精製の実績は少ないため、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、従来と同じ熔融塩中に燃料成分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、 $ZrCl_4$ を添加して燃料のみを熔融塩中に移行させ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 の溶解を抑制しつつ、Zr 割合が低い燃料を陰極に回収できることが分かった (図 5)。

更に、上記 (1) やこの結果に



図 5 Cd 陽極電解法で電解回収したウラン

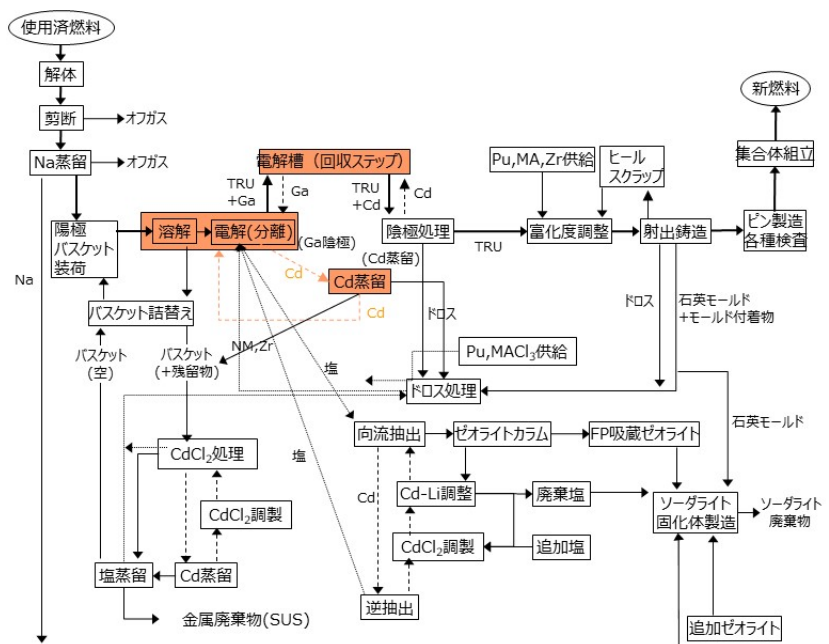


図 6 選定した再処理プロセスフロー

基づき、Cd 陽極電解法をベースに RE の除染性能が優れる Ga 陰極を組み合わせた電解法を考案し、その再処理プロセスフローシートを作成した(図 6)。

(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、 $ZrCl_4$ 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

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 含有率および融点が従来検討条件下(~10wt%Zr)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。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その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

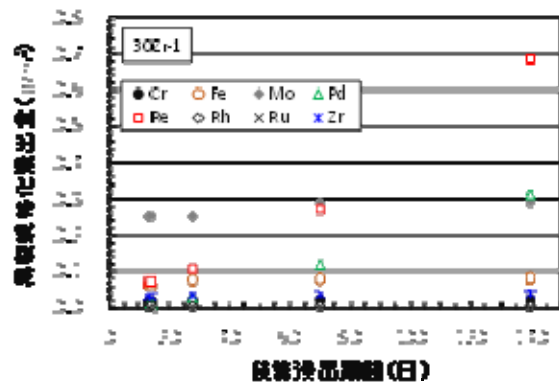


図 7 金属固化体浸出試験結果

トるつぽ用いて従来と同じく 1600℃にて熔融固化することにより、SUS-30wt%Zr 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り、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(図 7)。

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、使用済塩中に含まれる希土類 FP の吸着に必要なゼオライト量の削減を通じて、最終的な固化体(ガラス結合型ソーダライト)発生量は、FP 沈殿除去しない場合に比べ、約 30%低減できる見通しを得た。

2.3 炉心開発

(1) 最適化炉心設計手法の開発及び TRU 金属燃料炉心の構築

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、種々の炉心パラメータ解析を行った結果、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り、これに基づき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、炉心仕様最適化手法を開発した。

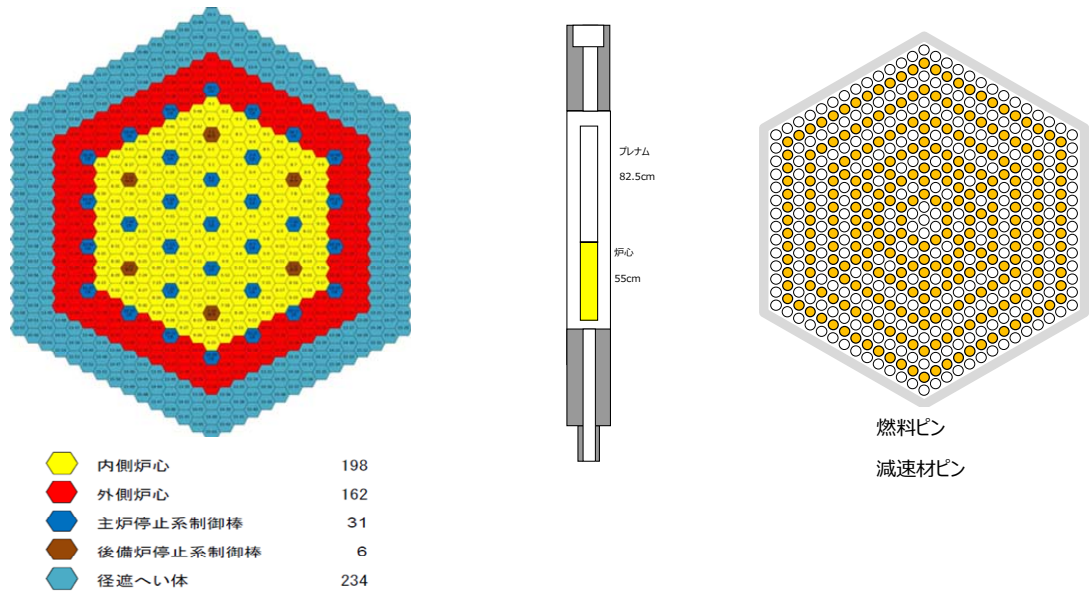


図 8 炉心配置及び燃料集合体構成

この手法を用いて、U を含まない TRU 金属燃料炉心として、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（図 8）。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、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熔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、優れた TRU 燃焼効率が実現可能であることを確認した（表 2）。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。

表 2 炉心主要特性

項目	値	
	軽水炉取出	マルチリサイクル
燃焼反応度 (%dk/kk')	3.5	2.52
取出平均燃焼度 (at.%)	24	17
TRU 燃焼量 (KgHM/Gwe/年)	747	777
最大線出力 (W/cm)		
内側炉心 (BOL/EOL)	215 / 127	121/107
外側炉心 (BOL/EOL)	185 / 125	118/106
最大高速中性子照射量 (X10 ¹⁵ n/cm ²)	16	17
主炉停止系制御棒価値 (%dk/kk')	14.4	-
後備炉停止系制御棒価値 (%dk/kk')	3.7	-
ドップラー係数 (x 10 ⁻³ Tdk/dT)	-1.9	-2.2
Naボイド反応度 (\$)	-1.1	0.4
実効遅発中性子割合, β _{eff}	0.0025	0.0025
UTOP特性		
挿入反応度 (cent)	60	60
ピーク燃料最高温度 (°C)	1,139	984
ULOF特性		
主ポンプ半減時間 (S)	10	10
ピーク被覆管最高温度 (°C)	853	857

(2) 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、これらの核種のドップラー反応率の評価精度は不明確であるため、これらの物質を対象として、京都大学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（図 9）。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。

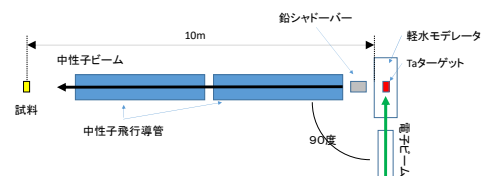


図 9 共鳴吸収反応率測定体系

更に、これらの検討を通じて、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性があることが明らかになり、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実験による測定が困難な核種の共鳴についてもドップラー効果による反応率変化を十分な精度で予測できる可能性があることを見出した。

2.4 「核廃棄物燃焼システム」の検討

軽水炉 20GWe から毎年発生する TRU 約 4t を、本研究で構築したシステムにより燃焼処理する場合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規模にて軽水炉からの TRU を継続的に燃焼処理できることを確認した。また、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、最終的に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。

更に、本システムの TRU 燃焼コストを従来の U を含むブランケット無し TRU 燃焼高速炉システムと比較評価した結果、本システムの TRU 燃焼コストは従来の約 1/4 になる見通しを得た(図 10)。

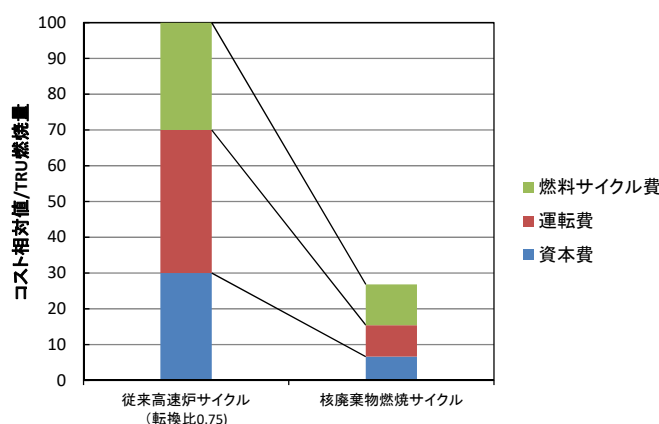


図 10 TRU 燃焼コストの比較

3. 今後の展望

本研究により、U を含まない TRU 金属燃料高速炉サイクルの課題であった、①燃料の基礎物性の欠如及び照射健全性、②Zr 高含有 TRU 金属燃料の電解精製、燃料製造及び同プロセスからの廃棄物処理の見通し、③炉心のドップラー反応度低下等に対する安全性確保対策と炉心性能の両立等、システムの成立性に関わる課題が解決でき、工学的見通しを得ることができた。

本システムを用いれば、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ため、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することなく、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。また、この技術は、我が国が有する Pu を早期に燃焼処理することにも適用できる。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、新たな技術を開発することなく、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。

このシステムの実現に向けた今後の主な課題は、許認可取得等の観点から、燃料物性データの拡充、燃料実証照射試験、炉心の臨界試験、過酷事故時の炉心損傷挙動実証、本研究で開発した電解精製プロセスに用いる商用工学規模装置開発等を通じて、当システムの安全性、経済性等のデータベースを拡充し、設計・評価精度を高めることである。そのためには、国の継続的なサポートの下、これらの技術実証を国内外の国立研究所や共通の関心をもつ企業等が連携してリスク分散しながら開発を進めることが重要である。

脚注：本資料に掲載の商品の名称は、それぞれ各社が商標として使用している場合があります。