

160202

柔軟性の高いMA回収-核変換技術の開発
(2016~2019年度)

研究代表者	飯塚 政利 (電力中央研究所)
再委託先責任者	野平 俊之 (京都大学)
再委託先責任者	小藤 博英 (原子力機構)

2021年3月16日

研究の背景

- 放射性廃棄物に含まれるMAを回収し、高速炉燃料サイクルに閉じ込めて核変換することによる、放射性廃棄物の環境負荷低減技術を国内外で検討
- 高速炉開発の基本的方向性は堅持される一方、その役割、用いられる技術、開発スケジュール、国外状況は不確定
- 軽水炉使用済燃料、再処理Puの取扱い検討も急務



- 高速炉サイクルによる環境負荷低減のために、**魅力が大きく実現性の高い技術**によるMA核変換/Pu利用システムを、**柔軟かつ段階的に開発する戦略が必要**

- 高速原型炉「もんじゅ」廃止措置の意向決定（2016）
- 第5次エネルギー基本計画（2018）「高速炉R&Dは米国や仏国等と国際協力」
- 高速炉開発戦略ロードマップ（2018）：「21世紀半ば頃現実的なスケールの高速炉運転開始期待」
- 原子カイノベーションの創出促進のための政策（NEXIP）の一環として、METI補助事業開始（2019）
- 日米CNWGにおいて、金属燃料高速炉の安全性解析と 乾式再処理技術に関する研究協力を開始（2018）
- DOEが建設する多目的研究炉（VTR）のベースに金属燃料モジュール型高速炉PRISM技術選定（2018）
- 仏政府が高速実証炉ASTRID計画の大幅変更方針を表明（2018）
- 日本原燃（株）六ヶ所再処理工場が新規規制基準に対する適合性審査に合格（2020）
- 四国電力伊方原子力発電所3号機から我が国初の使用済MOX燃料取り出し（2020）

本研究で提案する柔軟な高速炉サイクル／MA分離変換技術導入

酸化物燃料高速炉サイクル

- ✓ 現行の燃料サイクルシナリオ
- ✓ 研究開発実績、インフラ多数
- ✓ 軽水炉燃料サイクルの経験

金属燃料高速炉サイクル

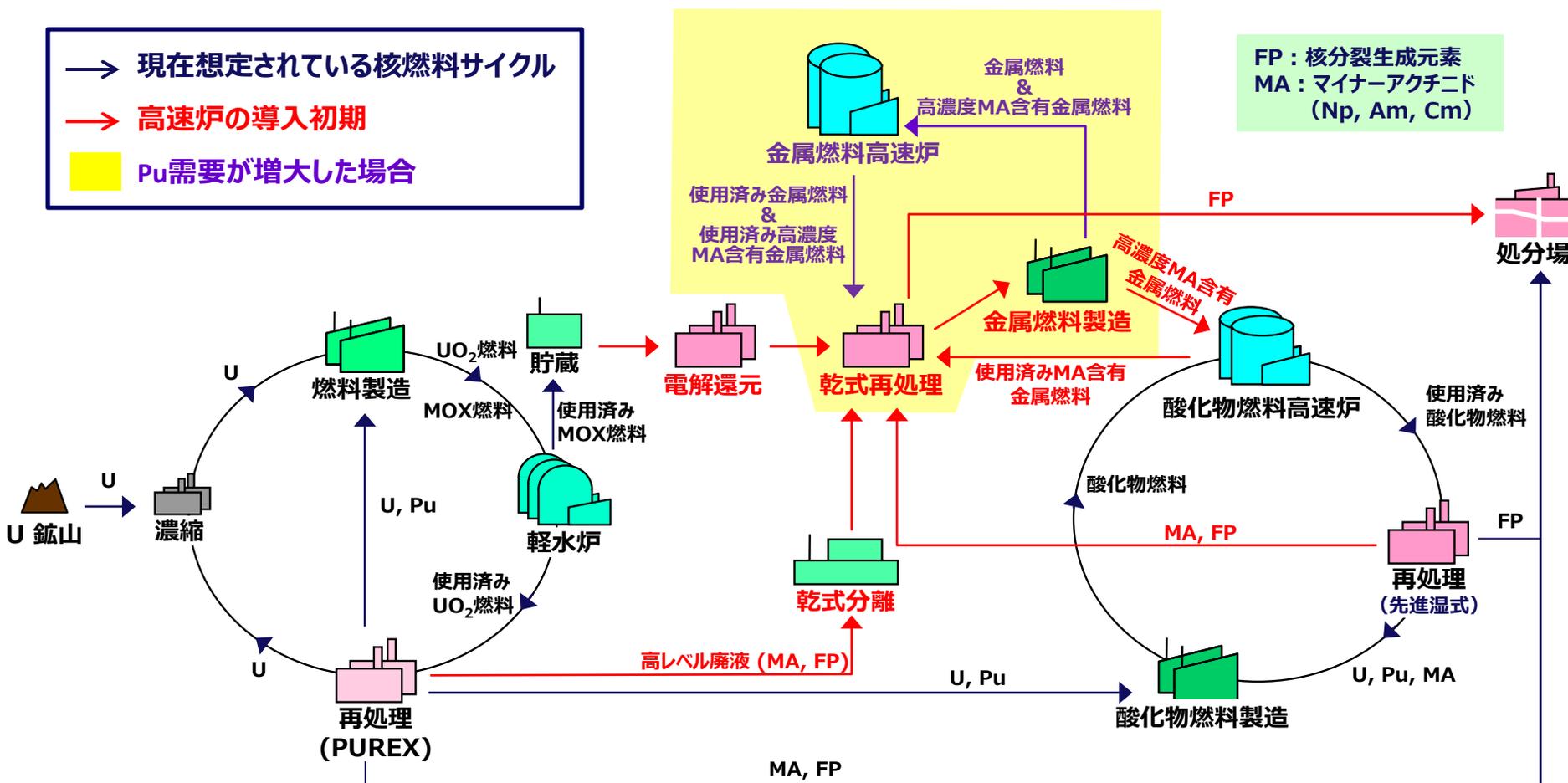
- ✓ ブランケットなしで増殖が可能
- ✓ 簡素な燃料製造プロセス
- ✓ 乾式再処理の適用
- MA核変換効率が高い
- 溶媒劣化なし、MA・Puを一括回収

→ 現在想定されている核燃料サイクル

→ 高速炉の導入初期

■ Pu需要が増大した場合

FP : 核分裂生成元素
MA : マイナーアクチノイド
(Np, Am, Cm)



研究の構成

実施項目	技術的課題、達成目標
(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含有金属燃料の成立条件（製造時、運転時）の明確化
(1-2) MA含有金属燃料装荷方法の最適化検討	MA含有金属燃料装荷炉心の安全性とMA核変換性能の両立
(2) 乾式再処理技術開発	
(2-1) 液体Ga電極を用いたアクチノド／希土類分離回収技術開発	燃料製造に適した組成のMA回収
(2-2) 廃棄物の減容化技術開発	燃料サイクルで発生する高レベル廃棄物体積の最小化
(2-3) 乾式再処理機器概念の構築とプロセス設計	再処理プロセス実証に向けた設計データ取得
(3) MA回収・核変換シナリオと Pu／MA収支の検討	
MA回収・核変換シナリオとPu／MA収支の検討	MA回収・核変換システム全体の整合と放射毒性低減効果の提示

MA添加金属燃料を一部／全部に装荷した高速炉炉心の運用方法見通しを得る

種々の出発物質からの乾式法によるMA回収技術を実証する

多重リサイクルによるMA核変換特性を明らかにする

様々な高速炉導入シナリオやPu需給シナリオに柔軟に対応できるMA回収-核変換システムの構築

成果：高濃度MA含有金属燃料の設計と特性評価

燃料製造時条件の明確化

従来の研究実績、報告例を調査・検討

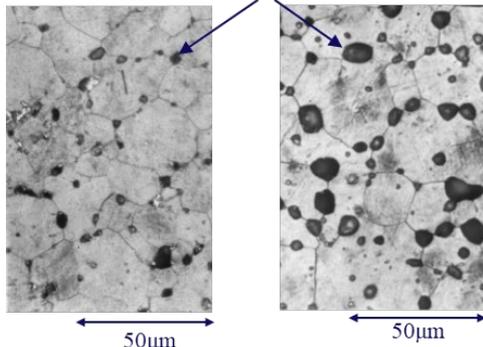
- ・アクチノイド金属の混合性
 - U-Am、Np-Amの固相での溶解度は低い
 - Puの共存によりU、Np、Amの混合性が高まる
- ・高濃度MA含有U-Pu-Zr合金の製造実績
 - U-20Pu-11Zr- 7Np- 4Am
 - U-23Pu-13Zr-15Np-10Am (wt%)



MA添加率の上限 ≤ Pu富化度

・希土類 (RE) の混入

Am-REリッチ析出相



U-Pu-Zr-2MA-2RE U-Pu-Zr-5MA-5RE
(RE：希土類)



希土類の混入率 ≤ 数%

高濃度MA含有金属燃料の照射健全性評価

従来の研究実績、報告例を調査・検討

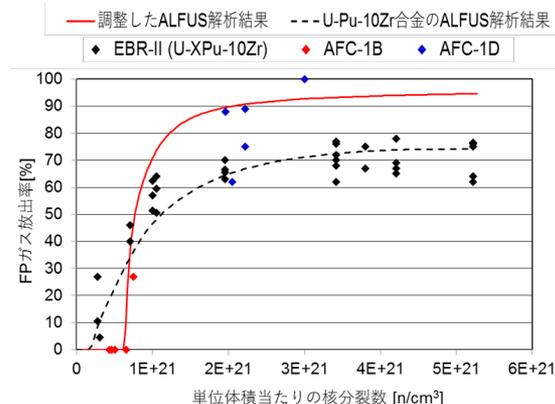
- ・MA含有金属燃料と被覆管材の高温溶融相
 - 炉外拡散対試験の結果、三元合金 (U-Pu-Zr) とMA-RE含有合金とで、スチール製被覆管材との反応開始温度に有意な差はなし



被覆管最高温度制限はU-Pu-Zr燃料と同等 (~650°C)

金属燃料照射挙動解析コードALFUSを用いた解析

- ・高濃度MA含有金属燃料を扱うための調整
 - 米国で観察された照射挙動 (FPガス放出率) を反映 (右図)



・照射挙動解析 (下表)

炉心構成*	Pu/MA含有率	被覆管最大CDF	被覆管最大変形率
(a)	18.5/16.0	3.7E-6	1.3%
(c)	18.8/18.8	3.8E-3	2.5%

*次頁の炉心設計参照

被覆管材:ODS鋼

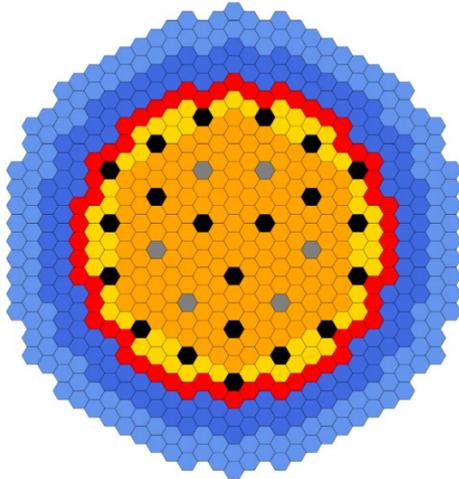


高濃度MA含有金属燃料ピンの健全性が確保できる見通し

成果：MA含有金属燃料装荷方法の最適化検討（1/2）

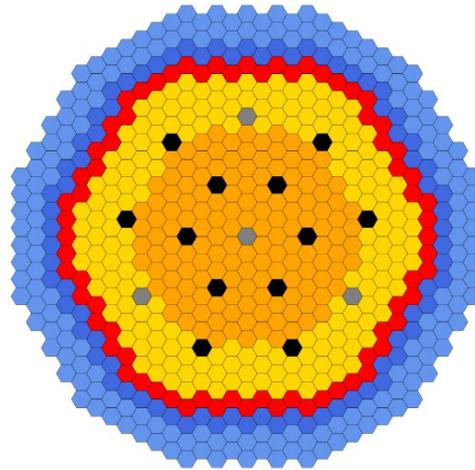
安全性とMA核変換性能の両立

- 内側炉心燃料(MOX or 金属)
- 主炉停止系制御棒
- Zr-H遮へい体
- 外側炉心燃料(MOX or 金属)
- 後備炉停止系制御棒
- SiC/SiC複合材減速集合体
- 高濃度MA含有金属燃料
- ステンレス反射体



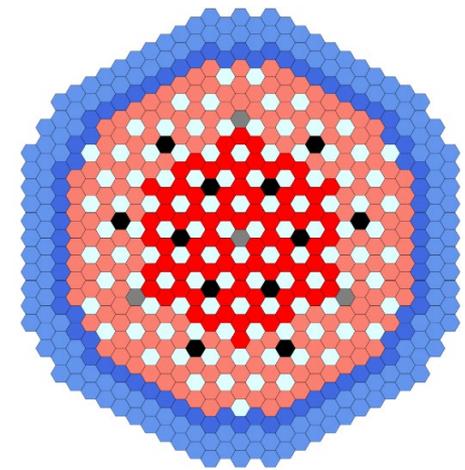
炉心(a)：高速炉導入初期

- ・MOX高速炉心に高濃度MA含有金属燃料を部分装荷
- ・ベース炉心（MOX燃料炉心）の設計変更不要
- ・MA均質装荷MOX燃料炉心の約1.6倍のMA核変換量達成



炉心(b)：金属燃料高速炉導入後-1

- ・金属高速炉心の一部に高濃度MA含有金属燃料を装荷
- ・出力ピーキングが過大
- ・炉心安全パラメータが悪化



炉心(c)：金属燃料高速炉導入後-2

- ・高濃度MA含有金属燃料を均質装荷
- ・減速集合体により炉心安全パラメータを維持
- ・MA均質装荷MOX燃料炉心の約8倍のMA核変換量達成

➡ 提案したシナリオのいずれの時点でも安全性とMA核変換性能を両立した炉心設計が可能の見通し

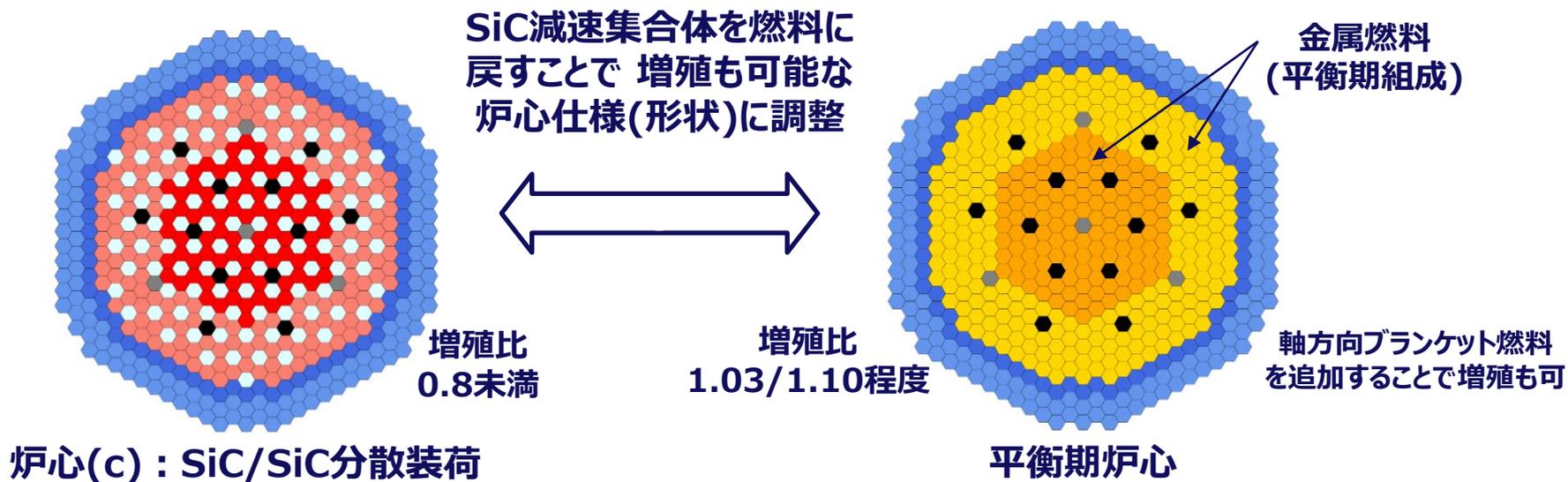
	炉心(a)	炉心(b)	炉心(c)
Pu富化度 (wt%) *1	18.7/24.8/18.5	13.7/13.7/22.7	18.8/18.8/-
MA添加率(wt%) *2	16.0	22.7	18.8
増殖比 (-)	1.00	0.98	0.78
取出燃焼度 (GWd/t)	116	96	133
MA変換量 (kg/Gwe-y)	89	94	461

*1 内側炉心/外側炉心/非均質装荷・高濃度MA含有金属燃料 *2 高濃度MA含有金属燃料のMA添加率

成果：MA含有金属燃料装荷方法の最適化検討 (2/2)

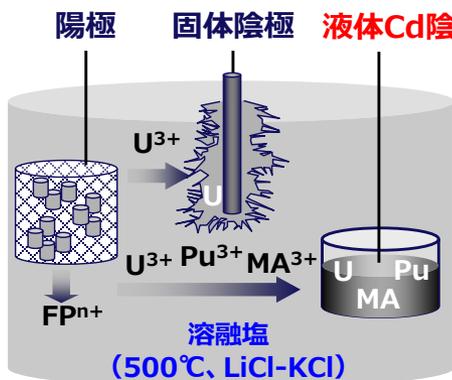
高速炉サイクルへのニーズ変化に対する柔軟性

時期	ニーズ	燃料組成
近い将来	MA核変換	高濃度MA
平衡期	サイクル維持 または増殖	低濃度MA、 高フィッサイル



成果：液体Ga電極を用いた分離回収技術開発 (1/2)

従来の乾式法(高速炉金属燃料の処理)



液体Cd陰極：全アクチノイド一括回収が可能だが、希土類に対する分離性能がやや低く、製品に希土類が混入

燃料合金の不均一性

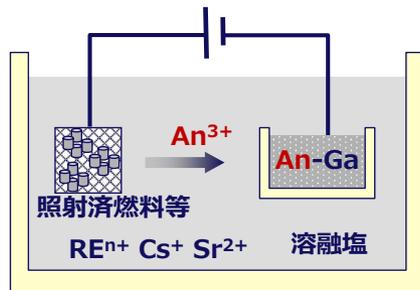
高MA含有金属燃料の製造、希土類/TRU比の高い原料(HLLWなど)の処理には、より高い分離性能が必要

	Ceを基準とする分離係数(a)	
	液体Ga電極(b)	液体Cd電極(c)
U	450	45
Pu	220	21
Am	140	15

$$(a) \text{ 分離係数} = \frac{C_M \text{ 液体金属}}{C_M \text{ 溶融塩}} \times \frac{C_{Ce} \text{ 溶融塩}}{C_{Ce} \text{ 液体金属}}$$

- 過去の小規模試験で液体Cd陰極の10倍程度のアクチノイド／希土類分離性能が期待できることを確認
- 実用規模・条件で液体Ga電極の性能を発揮させるためには、知見が不足

液体Gaに注目したプロセスを提案



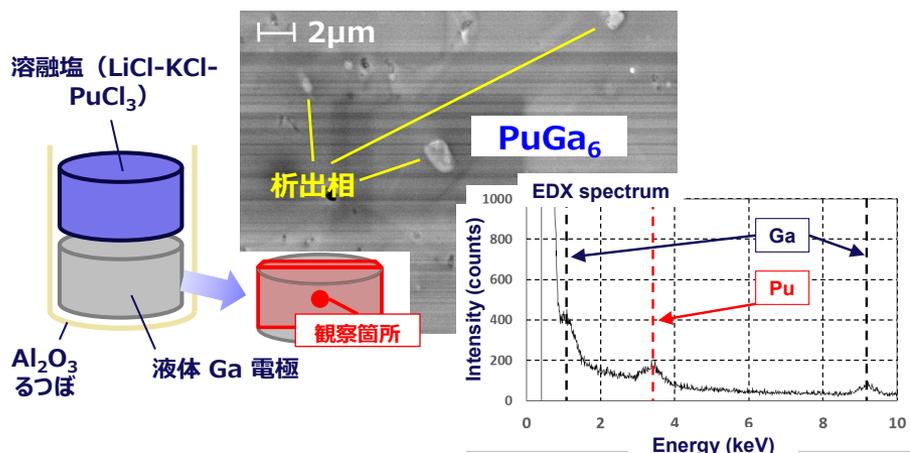
An：アクチノイド (U, Pu, MA)、RE：希土類FP

本研究での実施事項

- 多量（液体Ga中溶解度以上）にアクチノイドを回収したときの挙動確認
- 全MA（新たにNp、Cm）のデータ整備
- 液体Ga電極工学設計のためのデータ取得
- 酸化物還元からの連続プロセス成立性確認

成果：液体Ga電極を用いた分離回収技術開発 (2/2)

液体Ga中溶解度以上にアクチノドを回収したときの挙動確認



電解試験後のGa電極断面SEM/EDX分析結果

- Puは電極表面に滞留せず、スムーズにGa電極内部に移行
- 回収量を増やしても運転を阻害する挙動は見られず
- 液体Ga中溶解度以上にPuを回収しても、アクチノド／希土類間の分離性能には影響なし

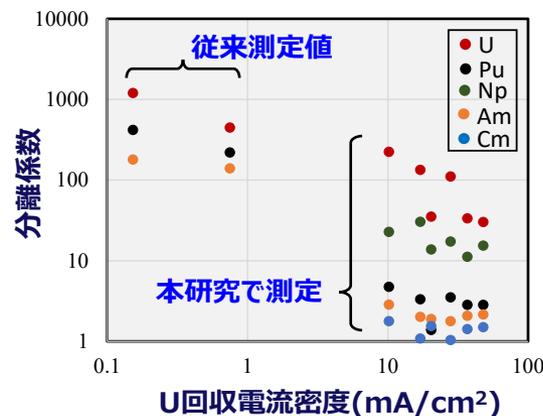
酸化物還元からの連続プロセス成立性確認

- 模擬使用済プルサーマル燃料を作成
- 650℃溶融LiCl中での電解還元によりU, Puを金属に転換
- 想定通りの希土類分離性能で液体Ga電極にU, Puを回収

液体Ga電極工学設計のためのデータ取得

- 工学規模装置（溶融塩：約7kg、電極Ga：約2kg）を製作、使用
- 適用性のある材料（W, Al₂O₃, MgO）を選定
- Ceの回収において、溶融塩よりも液体Gaの攪拌により高い処理速度が得られることを確認

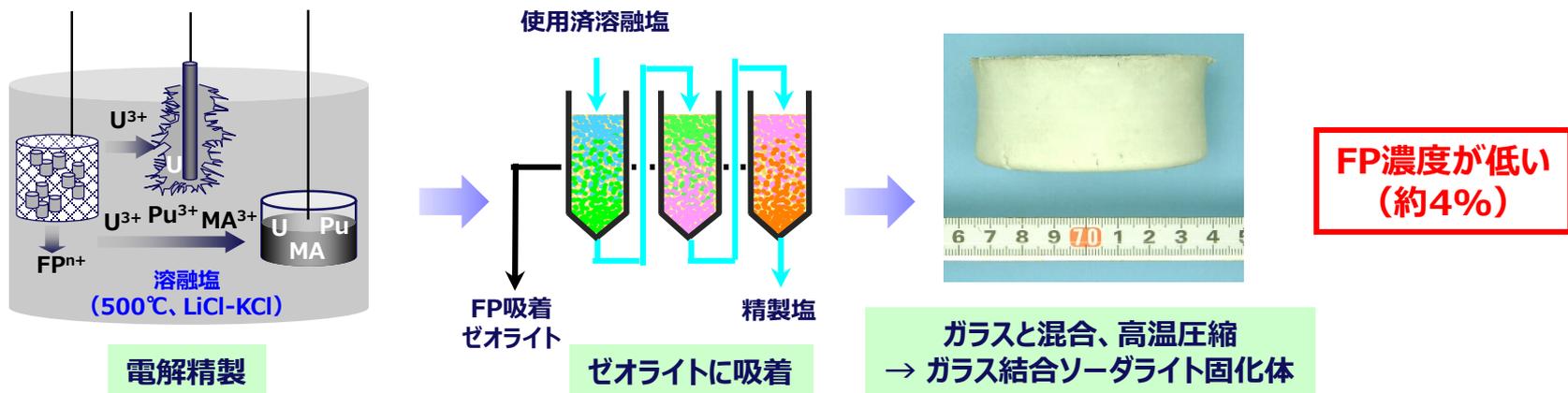
全MA（新たにNp、Cm）のデータ整備



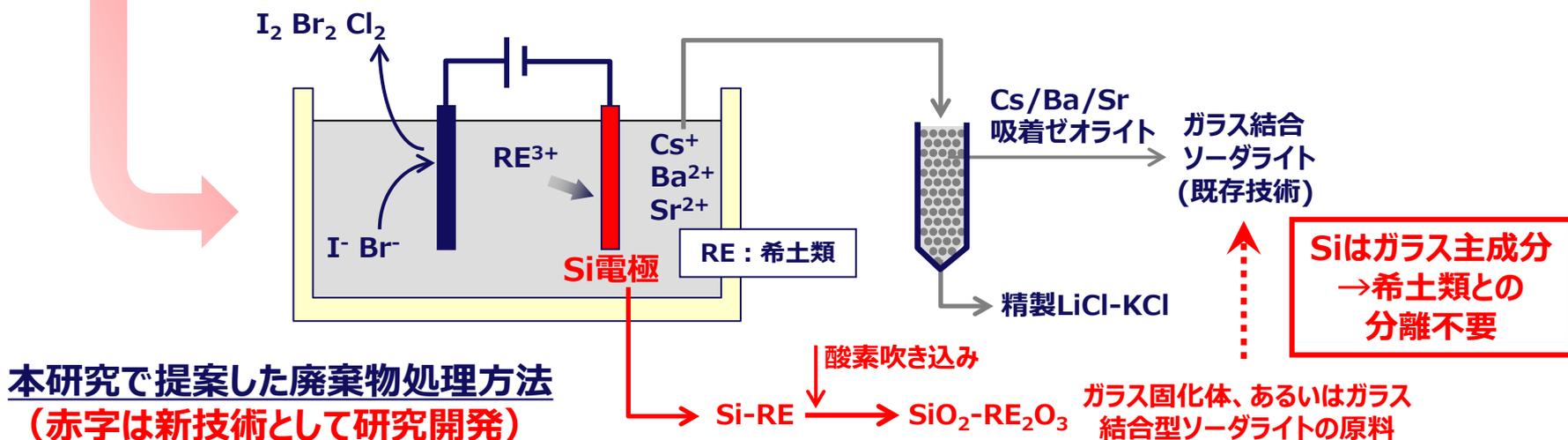
- 分離係数の大小順は U>Np>Pu>Am>Cm であることを確認（液体Cdと同様）
- U回収速度増加 → 分離係数低下の傾向
- 低い溶融塩中U濃度／電流密度での回収が必要

成果：廃棄物の減容化技術開発 (1/3)

従来の使用済塩化物廃棄物処理方法



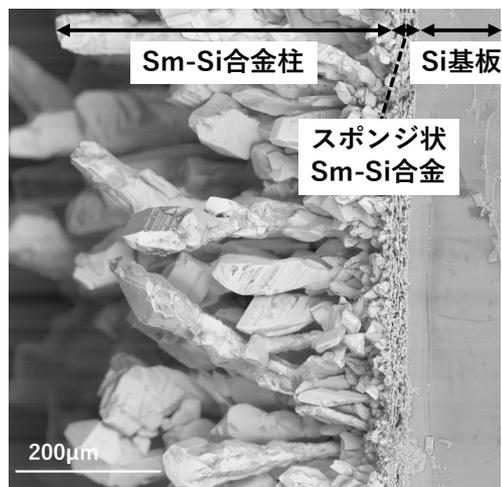
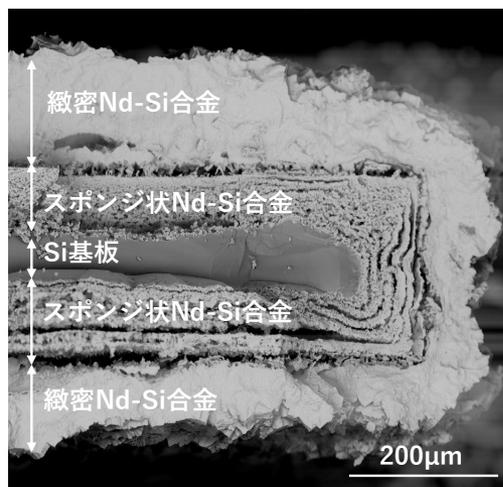
廃棄体発生量を減らすため、ゼオライトに移行するFP量を低減する必要



本研究で提案した廃棄物処理方法
(赤字は新技術として研究開発)

成果：廃棄物の減容化技術開発 (2/3)

固体Si電極への希土類元素回収



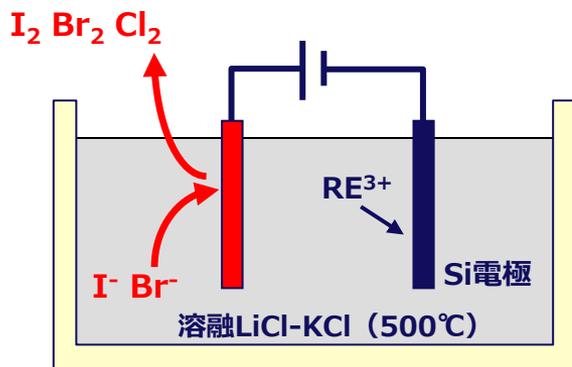
- 溶融塩中の希土類 (La, Ce, Pr, Nd, Eu, Sm, Gd) をシリサイドの形態で回収可能

回収した希土類の酸化物転換、ガラス化

- 溶融塩中で固体Si上に電解回収した希土類を大気中で酸化処理した後、ガラス原料 ($\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7$, SiO_2 , CaO , Li_2O) と混合して加熱することによりガラスに転換できることを確認

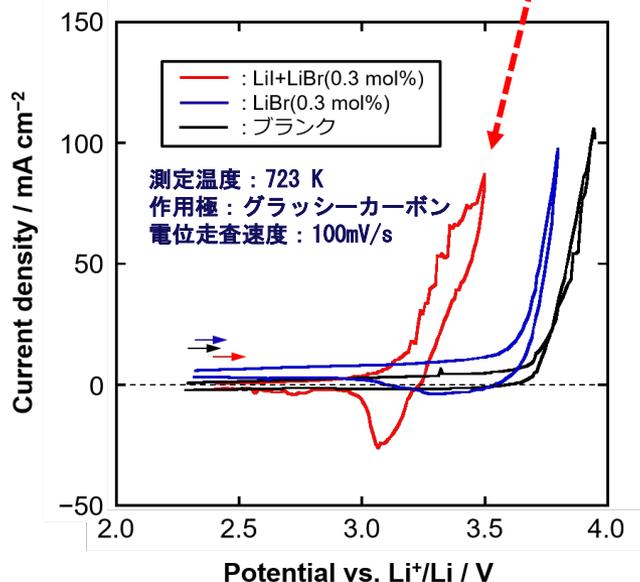
成果：廃棄物の減容化技術開発 (3/3)

固体Si電極への希土類元素回収と同時にヨウ素を分離・回収



LiIを添加した場合にはより低い電位で酸化電流増加

→ ヨウ素の選択的な酸化・回収の可能性



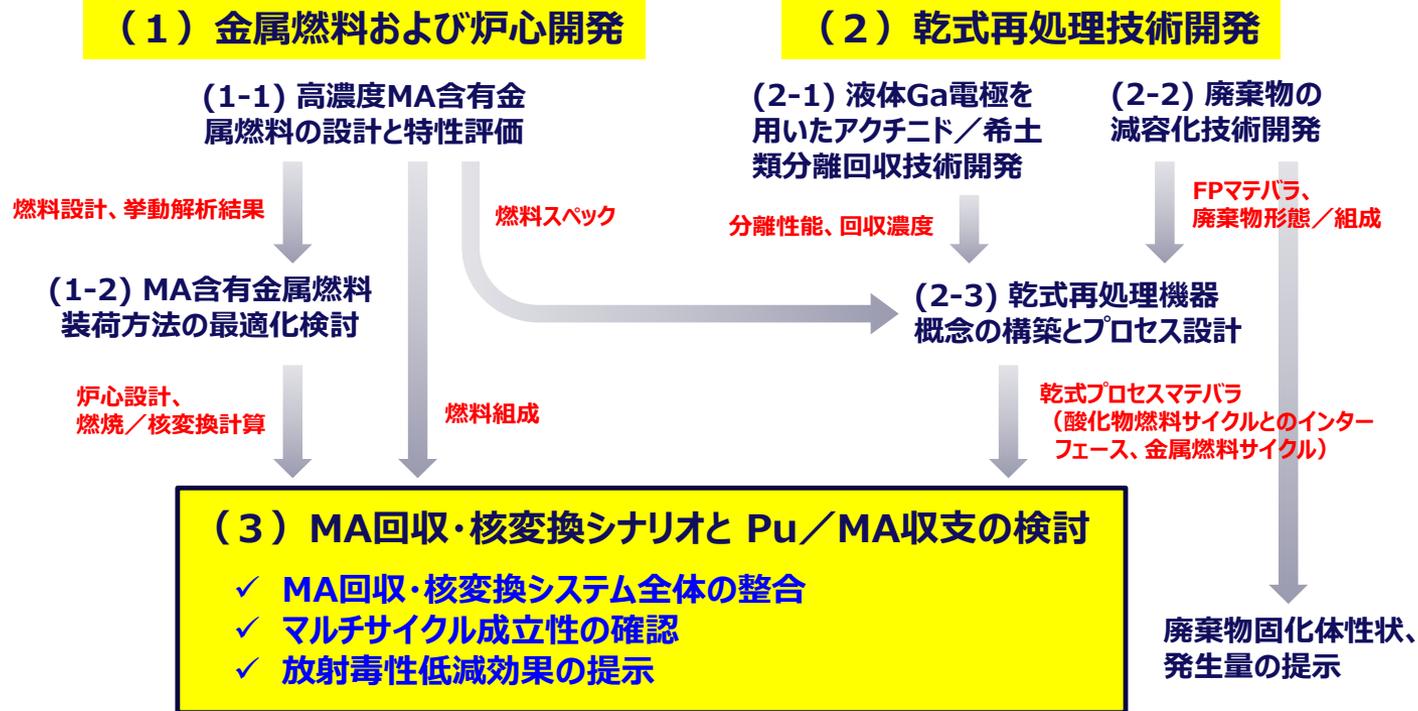
ヨウ素、臭素を含む溶融塩中で測定したサイクリックボルタモグラム

- Arガスフロー下で溶融LiCl-KCl-LiI-LiBrの電解
- ガス出口配管内にCuメッシュを設置



- 使用済溶融塩の電解により、ヨウ素を他のハロゲンから分離し、CuIの形態で回収
- Cuメッシュの順送りにより高効率かつ連続的な回収が可能

成果：MA回収・核変換シナリオと Pu/MA収支の検討 (1/4)



評価の前提条件

原子力発電容量

- ✓ 2030年度時点で総発電量の20~22% → 32GWeをそれ以降も維持

高速炉導入量

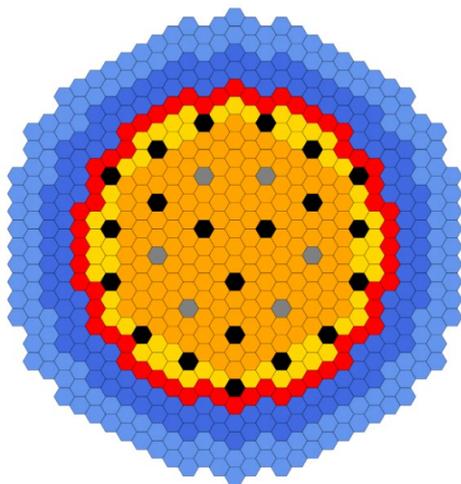
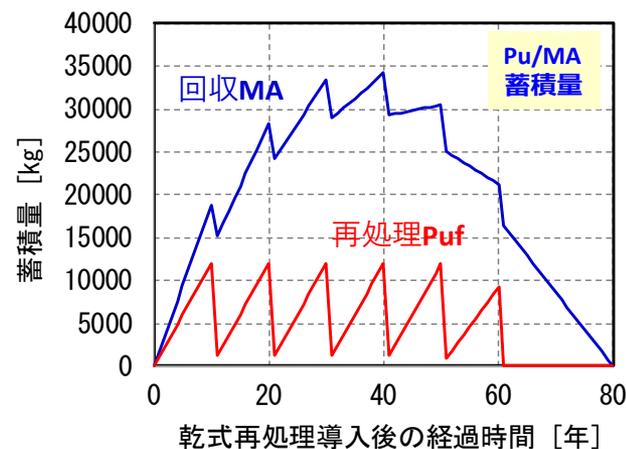
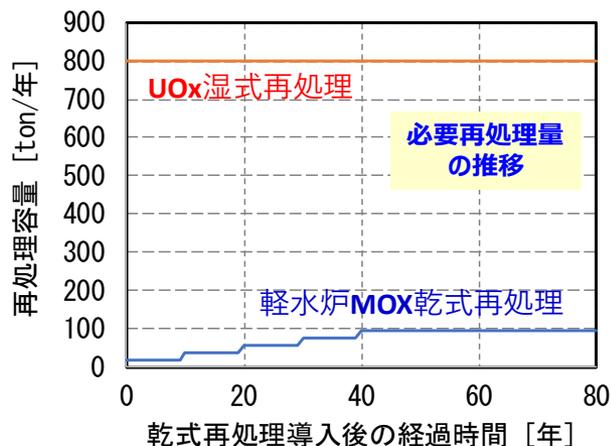
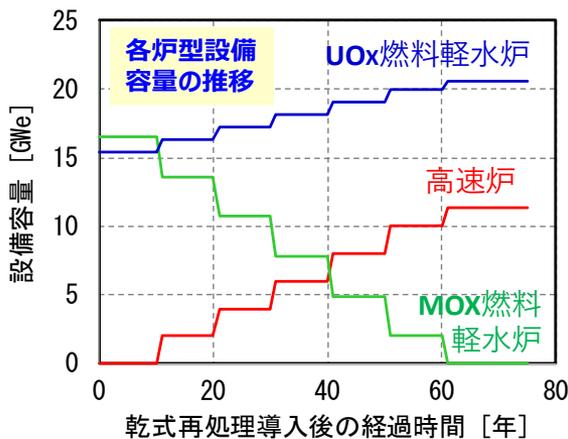
- ✓ 2.0GWe/10年、または3.3GWe/10年のペースで導入
- ✓ 最終的な導入量は約11.6GWe (軽水炉UO_x再処理で得られるPu_fとバランス)

軽水炉UO_x燃料再処理

- ✓ 処理量：800t-HM/yを保持、必要な期間にわたって施設を更新
- ✓ 回収PuはMOX粉 (Pu:U=50:50) として供給

高レベル廃液の乾式分離、軽水炉MOXの乾式再処理によりアクチノドを回収・供給、など

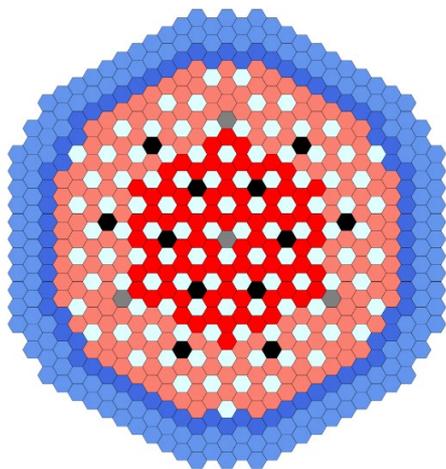
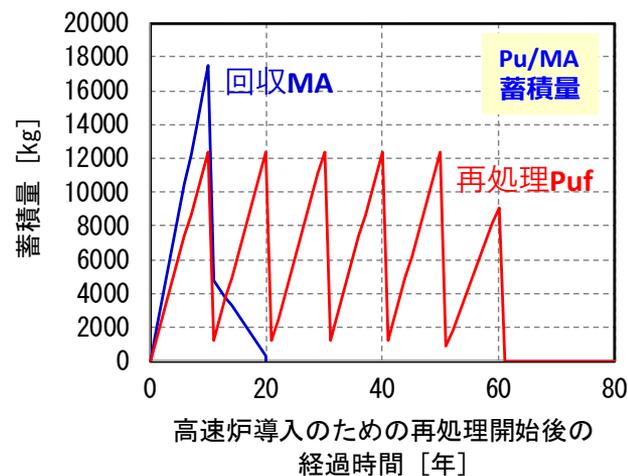
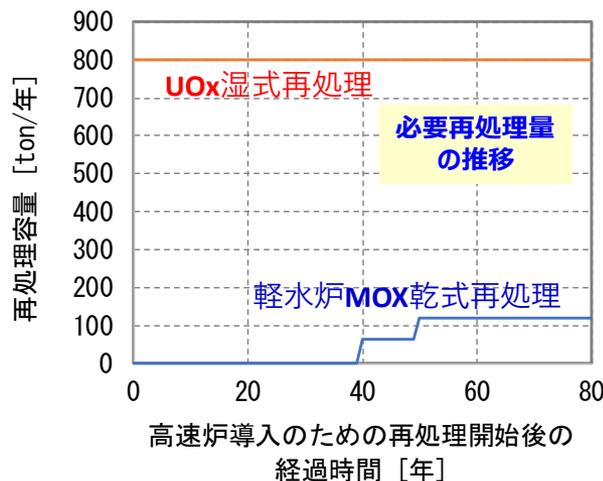
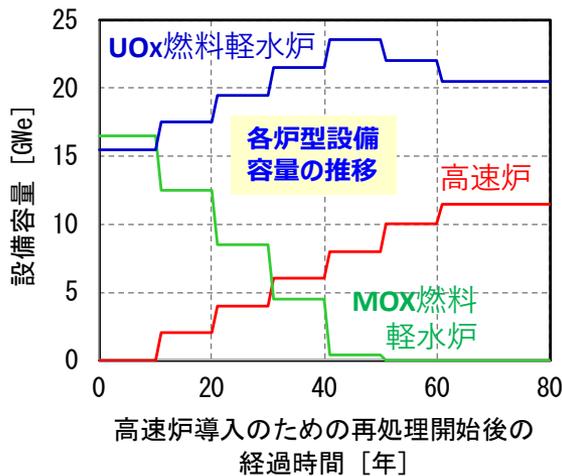
研究成果 6 : MA回収・核変換シナリオとPu/MA収支-2/4



- 炉心(a)
- MOX高速炉心に高濃度MA含有金属燃料を部分装荷
 - MA均質装荷MOX燃料炉心の約1.6倍のMA核変換量達成

- ✓ 高速炉へのPu供給
 - 軽水炉MOXは減少、高速炉への移行に要する期間は60年
 - 10年毎に18.7t-HM/yの軽水炉MOX乾式再処理施設を導入（最大93.7t-HM/y）
- ✓ 最大サイクル外蓄積量と解消までの所要期間
 - Puf : 11.9t、60年
 - MA : 34.2t、80年

研究成果 6 : MA回収・核変換シナリオとPu/MA収支-3/4



炉心(c) ・高濃度MA含有金属燃料を均質装荷
 ・MA均質装荷MOX燃料炉心の約8倍のMA核変換量達成

- ✓ 高速炉へのPu供給
 - UOx燃料再処理で発生するPu (MOX) と高レベル廃液中のMAを高速炉燃料に利用
 - 高速炉への移行途中でPufが不足するため、66.0t-HM/yのL-MOX乾式再処理施設を導入、最終的には120t-HM/y規模が必要
- ✓ 最大サイクル外蓄積量と解消までの所要期間
 - ・ Puf : 12.4t、60年 (炉心(a)より僅かに増加)
 - ・ MA : 17.5t、20年 (大幅に縮小かつ短縮)

研究成果 6 : MA回収・核変換シナリオとPu/MA収支-4/4

金属燃料を装荷した高速炉を用いたMA核変換による放射毒性（1GWe-yあたり）の低減効果を、アクチニドの経口年摂取限度（50mSv）に対する比で評価

炉心(a)			
元素	装荷時	照射後※	差
Np	4.24E+06	1.99E+06	-2.25E+06
Am	9.31E+10	6.32E+10	-2.99E+10
Cm	2.28E+10	2.42E+10	1.48E+09
MA合計	1.16E+11	8.75E+10	-2.84E+10

炉心(c)			
元素	装荷時	照射後※	差
Np	7.00E+05	1.40E+07	1.33E+07
Am	5.48E+11	3.25E+11	-2.23E+11
Cm	1.45E+11	1.39E+11	-6.05E+09
MA合計	6.93E+11	4.64E+11	-2.29E+11

単位：経口年摂取限度（50mSv）に対する比

※炉停止の後、30年冷却後の値

- ✓ 照射によって新たに生成して毒性が増加する核種も存在するが、MA全体としての毒性は低減
- ✓ 今後は廃棄物処分までを含めた燃料サイクル全体における放射毒性低減効果の評価が必要

研究成果のまとめ

高濃度MA含有金属燃料を採り入れた高速炉炉心

- 金属燃料合金組成条件（MA 添加率／希土類混入率上限）を評価
- 高濃度MA含有金属燃料を、MOX燃料炉心への部分装荷、金属燃料炉心への部分装荷、SiC減速材集合体を分散配置した金属燃料炉心に均質装荷、したいずれの場合も、安全性確保と高いMA核変換量が両立可能と確認
- 上記の炉心において高濃度MA含有金属燃料の照射健全性確保の見通し

高いFP/MA比の物質（使用済軽水炉MOX、HLLW）からのMA回収

- 乾式再処理 – 熔融塩電解精製工程で液体Ga電極を使用することにより、模擬使用済軽水炉MOX燃料を出発物質として、高い希土類FP除染係数でアクチニドが回収できることを実証
- Pu、Am（既知）に加えてNp、Cmについて、液体Ga電極における希土類FP除染性能を把握
- 液体Ga電極に飽和溶解度以上にPuを回収しても希土類FP除染性能が影響を受けないことを確認

燃料サイクルで発生する廃棄物発生量の低減

- 電解精製使用済塩化物溶媒から固体Si電極への希土類FP回収、回収物のガラス化による廃棄物発生量低減の可能性を確認
- 長半減期核種を含むヨウ素について、使用済塩化物溶媒の電解により塩素・臭素から分離されてガスとして発生すること、Cuメッシュを用いて発生ヨウ素をCuIの形態で回収可能なことを確認

MA回収・核変換シナリオ評価

- 上記の技術を採り入れたサイクルの諸量評価を行うことにより、検討したいずれの高速炉導入シナリオについても、MA最大蓄積量・期間および放射毒性の低減効果を確認

「様々な高速炉導入シナリオやPu需給シナリオに柔軟に対応できるMA回収・核変換システムの構築」という目的を達成

成果の新規性、研究効果

成果の新規性：幅広い観点からの廃棄物有害度低減効果最大化

- ✓ 酸化物燃料／金属燃料の特徴、利点を柔軟に取り入れた高速炉導入進展シナリオを提示
- ✓ 燃料、炉心に加えてPuやMAの調達、使用済燃料再処理を含めた総合的検討の結果、検討したいずれのシナリオについても、マルチサイクルの成立性、MA最大蓄積量・期間および放射毒性の低減効果を確認
- ✓ 酸化物燃料炉心への高濃度MA含有金属燃料の部分装荷、SiC/SiC複合材減速集合体の配置などの斬新な炉心構成アイデアにおける安全性とMA核変換性能両立を確認
- ✓ 乾式再処理への液体Ga電極導入がもたらす、高い希土類FP／アクチノイド分離性能を明示
- ✓ 固体Si電極への希土類FP回収という独創的アイデアにより、乾式再処理の技術的課題の一つである廃棄物発生量低減の見込
- ✓ 代表的な長寿命FPの一つであるヨウ素を熔融塩電解という新規な方法で分離し、CuIの形態で回収することに成功

研究効果：革新的原子力システム技術開発への寄与

- ✓ 多様な技術的・社会的要請を満たす革新的原子力システムの有望なオプションとして高速炉サイクル関連研究を牽引
- ✓ 金属燃料高速炉の実用化に向けた燃料・炉心設計基盤技術と知見蓄積
- ✓ 高いTRU／希土類除染性能が付加された乾式再処理技術を活用することによる、多様な高線量／高発熱燃料を用いた燃料サイクルおよびMA分離核変換システム（加速器駆動核変換システムなど）の成立性確立にも寄与
- ✓ 長寿命FPの分離・核変換による放射性廃棄物有害度低減のための技術開発の促進

技術的課題

- ✓ PuとMA組成比の明確化、Amの揮発を抑制する燃料製造法の検討
- ✓ 解析・評価をフォローする照射試験によるデータ拡充（MA／FPと被覆管との共存性、燃料合金からのFPガス放出率変化など）
- ✓ 乾式再処理技術（液体Ga電極による高除染アクチノイド回収、廃棄物発生量を低減させる塩廃棄物処理・廃棄物固化）のスケールアップ試験による工学設計データ取得、実用機器概念の構築、処理速度向上
など



金属燃料サイクル技術の実証段階へのレベルアップ



我が国の核燃料サイクルに必要なとされる要件

- ✓ 計画的なPu 利用
- ✓ 長期的なエネルギー安定供給
- ✓ 放射性廃棄物の有害度低減
- ✓ 多様な炉型および核燃料物質形態への適応
- ✓ 幅広いPu 需給シナリオへの対応

を満たす高速炉サイクル導入

国内外の研究開発
機関の連携・協力
NEXIPなどの事業
への成果活用

補足資料：実施体制

課題全体の取りまとめ【電中研】

(1) 金属燃料および炉心開発【電中研】

(1-1) 高濃度MA含有金属燃料の設計と特性評価【電中研】

(1-2) MA含有金属燃料装荷炉心の設計【JAEA】

- ① MA含有金属燃料装荷・酸化物燃料炉心の設計
- ② MA核変換用金属燃料炉心の設計
- ③ MA含有金属燃料炉心の性能向上策の適用性検

(2) 乾式再処理技術開発【電中研】

(2-1) 液体Ga電極を用いたアクチノイド／希土類分離回収技術開発【電中研】

- ① UおよびPu析出挙動把握
- ② MOXを対象とした小規模連続プロセス試験【以上、JAEA】
- ③ マイナーアクチノイド析出挙動把握 → 請負先：欧州超ウラン元素研究所

(2-2) 廃棄物の減容化技術開発【電中研】

- ① 液体Ga電極へのFP元素析出挙動把握【電中研】
- ② 陽極におけるヨウ素、臭素発生挙動把握と回収方法検討【京大】
- ③-1 液体Ga電極に回収したFPの処理技術開発
- ③-2 固体Si電極に回収したFPの処理技術開発【以上、電中研】

(2-3) 乾式再処理機器概念の構築とプロセス設計【電中研】

- ① 乾式再処理機器概念の構築【電中研】
- ② 乾式再処理プロセス設計【電中研】

(3) MA回収-核変換シナリオとPu/MA収支の検討【電中研】

補足資料：実施スケジュール

分担機関  :電中研  :JAEA  :京大

研究開発項目	2016年度	2017年度	2018年度	2019年度
(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	公開データの調査	MA含有率の組成評価	高濃度MA含有燃料の照射挙動評価	
(1-2) MA含有金属燃料装荷炉心の設計	手法整備、設計条件整理、予備解析	金属燃料部分装荷炉心設計・特性評価	MA変換用金属燃料炉心設計・特性評価	MA含有金属燃料炉心性向上策
(2) 乾式再処理技術開発				
(2-1) 液体Ga電極を用いたアクチノド/希土類分離回収技術開発	U-Ga固相析出挙動把握	Pu-Ga固相析出挙動把握	U,Pu固相/希土類分離回収試験	小規模連続プロセス試験
(2-2) 廃棄物の減容化技術開発	Ga陰極への希土類固相析出挙動把握	アルカリ土類析出挙動把握	ヨウ素回収方法検討	回収FP酸化・廃棄体化試験
(2-3) 乾式再処理機器概念の構築とプロセス設計	Ga電極つば材料検討	小規模電解試験	工学規模装置設計・製作	工学規模電解試験
(3) MA回収-核変換シナリオとPu/MA収支の検討	燃焼条件によるMA組成評価	MA変換特性評価、乾式プロセス設計に基づくマテリアルバランス評価および廃棄物毒性低減効果の定量化		