

マイナーアクチニド含有低除染燃料による 高速炉リサイクルの実証研究

研究代表機関	日本原子力研究開発機構	代表者	加藤正人
再委託機関	福井大学 九州大学	責任者	宇埜正美 有馬立身



日本原子力研究開発機構



福井大学



九州大学
KYUSHU UNIVERSITY



Idaho National Laboratory



- ✓ 実施年度 令和元年～令和4年度(12ヶ月の期間延長あり)
- ✓ 原子力システム研究開発事業
- ✓ 「放射性廃棄物減容・有害度低減技術研究開発」タイプA
- ✓ 課題名 マイナーアクチニド (MA)含有低除染燃料を用いた高速炉リサイクルの実証研究

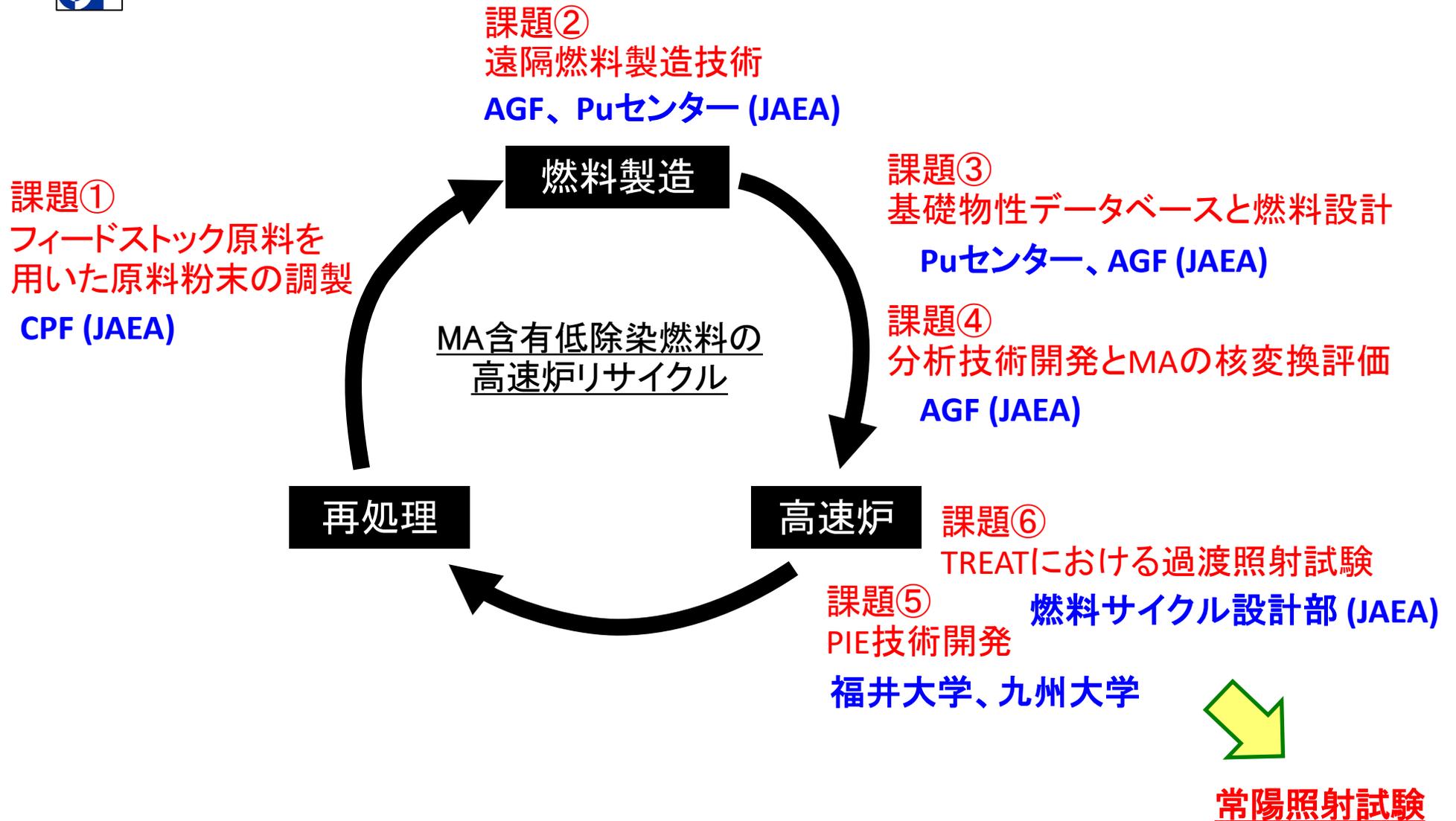
●本研究の対象

高速実験炉「常陽」で照射されたMOX燃料から、再処理・MA回収によって得られた**フィードストック原料**を用いて製造する**Np、Am、Cm及びFPを含む多元系燃料(MA含有低除染燃料)**を研究対象とする。

●研究意義・内容

MA含有低除染燃料を用いた高速炉リサイクル技術を実証することによって放射性廃棄物減容・有害度低減を達成する。本技術によって**高レベル廃棄物の体積を7分の1に、有害度を天然ウラン程度にする期間を約10万年から300年に減少**させることが可能である。

研究目的と研究項目





- ✓ 「常陽」照射済燃料溶解液からU, Puを回収し、高レベル放射性廃液を調製した溶液から抽出クロマトグラフィ法を用いてMAを回収。
- ✓ U, Pu, MA量を調製し、脱硝・転換によりMA含有MOX燃料粉末を調製(約2 g、Pu富化度約30%、MA約6.8%)。

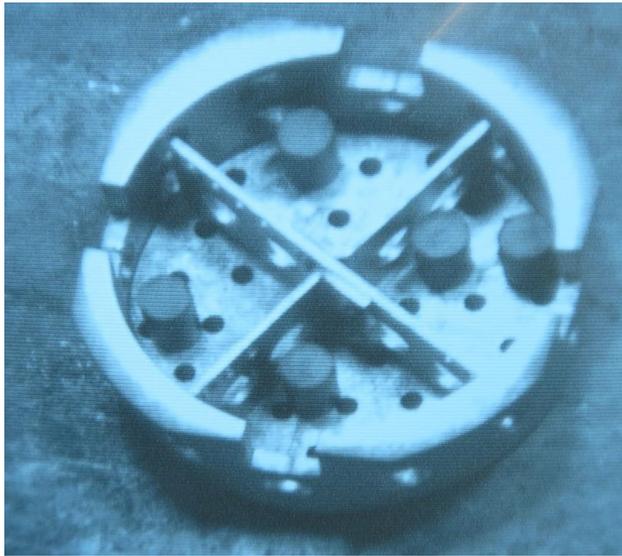
核種	Bq/mL	核種	ppm	核種	ppm
⁵⁴ Mn	< 3.7 × 10 ⁴	B	< 14	Zr	< 14
⁶⁰ Co	< 3.7 × 10 ⁴	Na	16	Mo	< 14
⁹⁵ Zr	< 3.7 × 10 ⁴	Mg	< 4.5	Tc	< 18
⁹⁵ Nb	< 3.7 × 10 ⁴	Al	< 14	Ru	< 9
¹⁰³ Ru	< 3.7 × 10 ⁴	Si	13	Rh	< 4.5
¹⁰⁶ Ru	< 3.7 × 10 ⁴	K	< 4.5	Pd	< 9
¹²⁵ Sb	< 3.7 × 10 ⁴	Ca	< 14	Ba	< 4.5
¹³⁴ Cs	< 3.7 × 10 ⁴	Cr	< 4.5	La	< 14
¹³⁷ Cs	< 3.7 × 10 ⁴	Mn	< 14	Ce	< 14
¹⁴⁴ Ce	< 3.7 × 10 ⁴	Fe	9.2	Pr	< 4.5
¹⁴⁴ Pr	< 3.7 × 10 ⁴	Co	< 4.5	Nd	36
¹⁵⁴ Eu	< 3.7 × 10 ⁴	Ni	< 4.5	Sm	< 4.5
¹⁵⁵ Eu	< 3.7 × 10 ⁴	Zn	< 68	Eu	< 4.5
²⁴¹Am	2.0 × 10⁷	Rb	< 22	U	1500
²⁴²Cm	3.0 × 10⁵	Sr	< 4.5	Pu	650
²⁴⁴Cm	4.8 × 10⁵	Y	< 4.5		



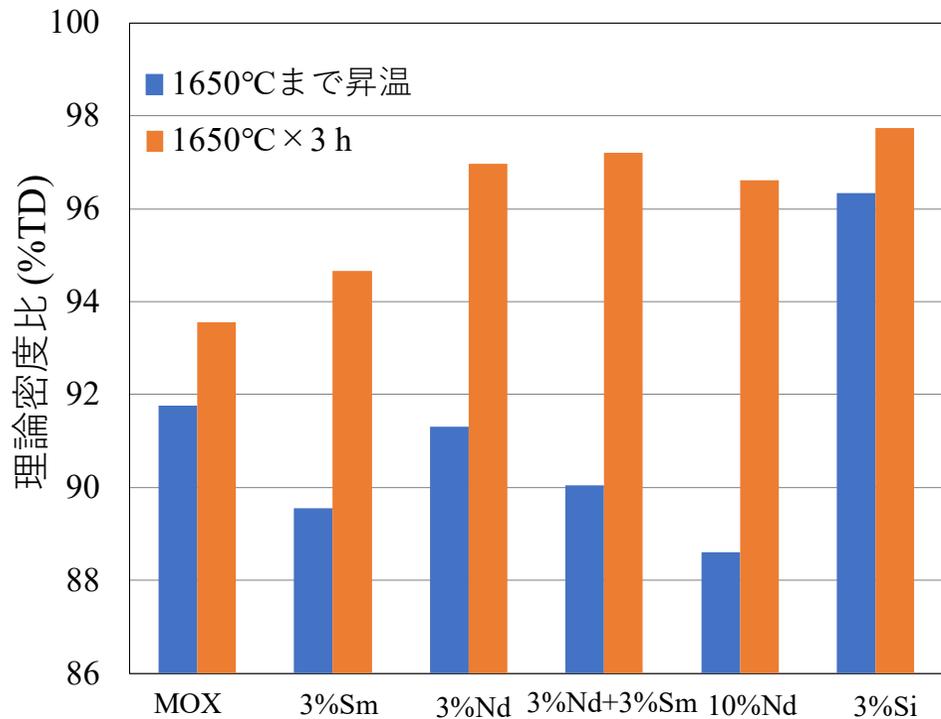
脱硝・転換後のMA含有MOX燃料粉末の外観

課題② 遠隔燃料製造技術

- ✓ AGFのホットセルにて、使用済燃料から、陰イオン交換樹脂及び抽出剤含浸型樹脂を用いてCmの分離を実施。粉末冶金法にてCm含有MOXペレットの遠隔製造を実施。(計5個、86%TD、ペレット1gあたりCmは約 $2\mu\text{g}$)
- ✓ マイクロ波脱硝で得られたMOX原料粉に、模擬FP (Nd_2O_3 , Sm_2O_3) または模擬不純物 (SiO_2) を添加して燃料製造試験を実施。酸素ポテンシャルを制御した従来の粉末冶金法により健全なペレットができることを確認。



Cm含有MOXのペレット外観



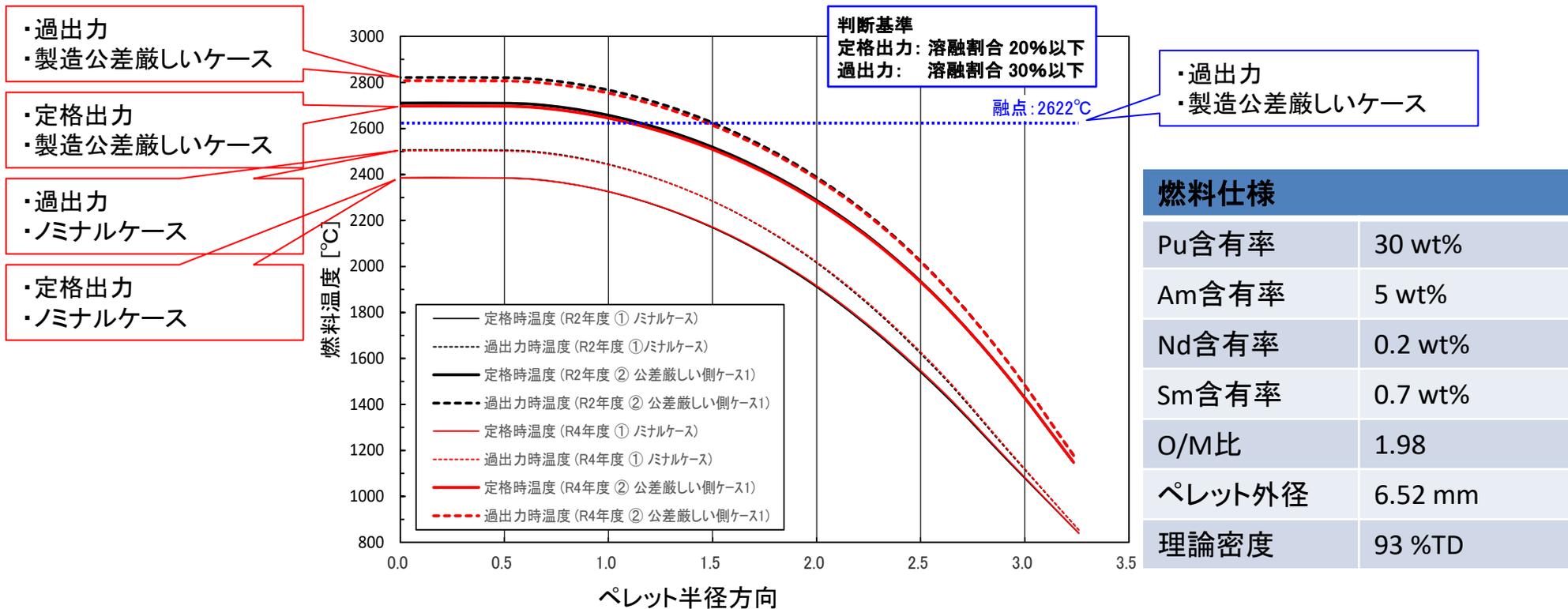
模擬FP/不純物を含むMOXの焼結密度



MA含有低除染燃料に関して以下の基礎物性データを取得。

- ✓ 熱伝導率: $\text{Nd}_2\text{O}_3/\text{Sm}_2\text{O}_3$ 含有MOX、高Am含有MOX、Cm含有MOX
- ✓ 酸素ポテンシャル: Nd_2O_3 含有MOX、高Am含有MOX

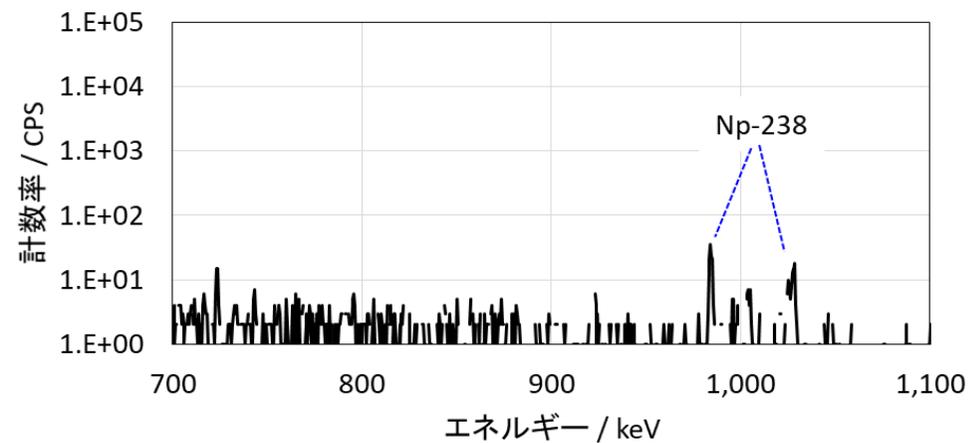
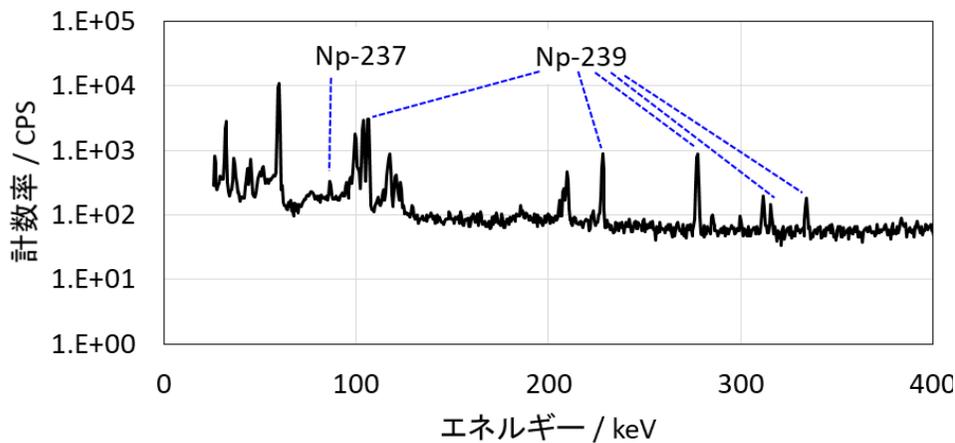
熱伝導率については燃料設計に反映し、MA含有低除染MOXの燃料仕様において、目標とする線出力 (430 W/cm) で熱的に成立する見通しを確認した。



線出力430 W/cmでの燃料ペレット径方向の温度分布



- ✓ MA含有MOXペレットのグローブボックス内品質保証分析について、少量の鉛遮蔽を追加することで作業者の被ばく量を十分に低減可能なことを確認した。
- ✓ HClを用いないNp分離条件及び γ 線スペクトル測定を用いたNp定量手法を組み合わせることでホット試験施設の設備にダメージを与えることなくNpの定量ができることを見いだした。
- ✓ 高速実験炉「常陽」で照射されたMOX燃料ピンの軸方向位置が隣接する2試料から調製した燃料溶解液(MA含有量の多い試料、少ない試料)を対象にICP質量分析を実施し、両試料におけるNp-237含有量の比を評価した。その結果、Np-237含有量の僅かな差異を識別できることが示唆され、ほかのMA核種にも適用可能な手法であることも示された。



Np分離後試料の γ 線スペクトル測定結果

- ✓ 非定常平面熱源法による熱伝導率測定方法として、ホットディスク装置 (HD) 及びTCi装置 (TCi) を用いてUO₂の熱伝導率測定を実施。レーザーフラッシュ法と同等の結果が得られることを確認。

HD測定条件と結果

センササイズ (mm)	加熱出力 (mW)	測定時間 (s)	熱伝導率 W/mK	温度上昇 K	全特性時間
1	30	5	5.209	0.28	0.695
1	30	10	4.484	0.287	0.305
1	30	20	3.793	0.321	0.269
4	50	20	4.358	0.347	0.989
4	100	5	8.728	0.529	0.439
4	100	10	5.634	3.05	0.125
4	100	20	3.089	3.48	0.049
4	150	20	3.146	1.13	0.049

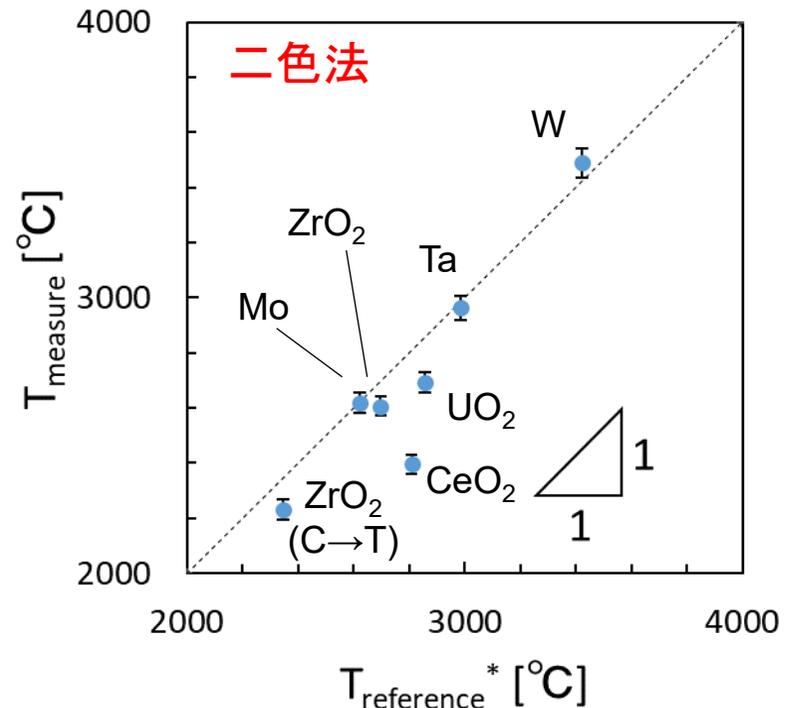
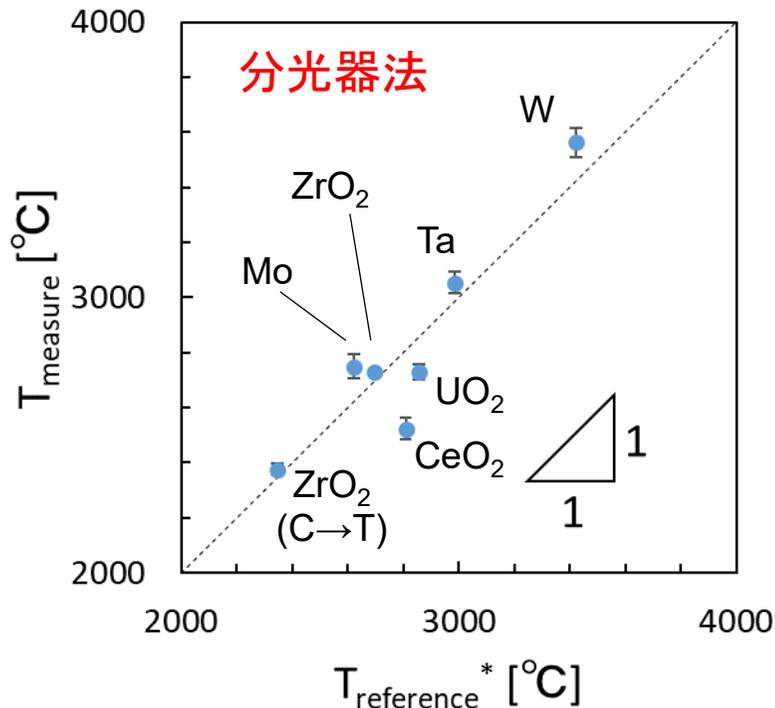
温度上昇、全特性時間についてそれぞれの推奨値は
 ・温度上昇: 0.4-4.0 (K)
 ・全特性時間($\sqrt{\alpha \cdot t / r^2}$): 0.3-1.5



非定常平面熱源法

- レーザーフラッシュ法と比較すると
- 空隙を含む試料に対しても測定が可能
 - 厚さが10mmでも測定が可能

- ✓ 分光器法及び二色法(+高速度カメラ)による局所融点測定法を用いて, UO_2 及び模擬MAとしてNdまたはDyを固溶させた UO_2 の融点を解析・評価。
- ✓ セル及びグローブボックス内使用への適用性を評価。



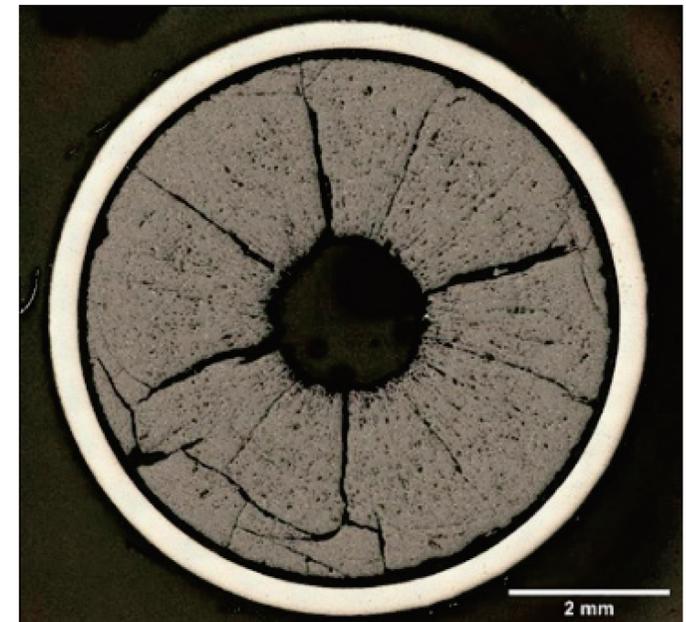
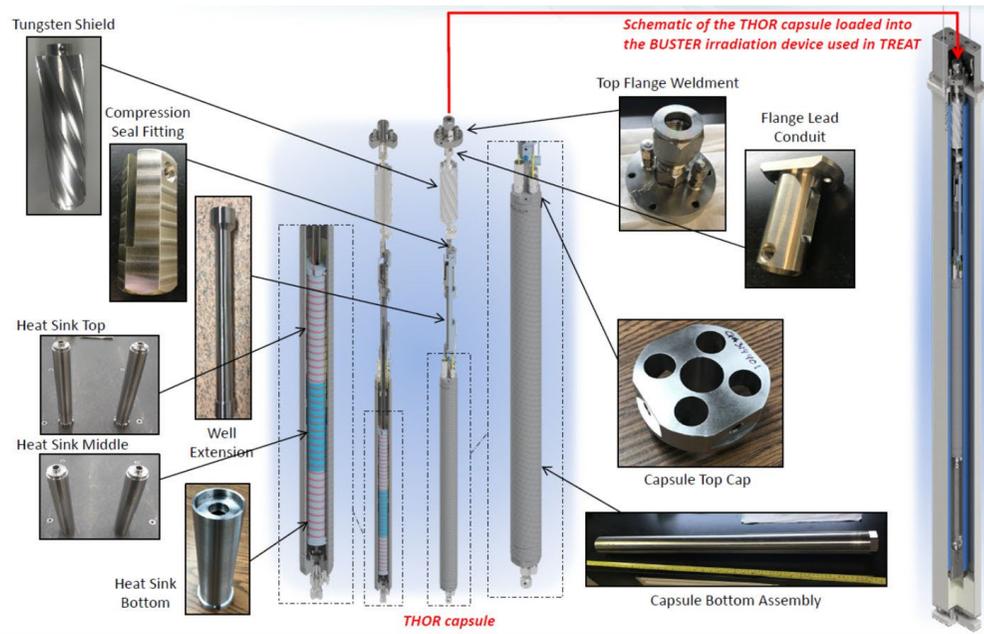
- 高融点金属
 - 放射率の波長依存性が大きい→ 文献値との差あり
- 高融点酸化物
 - ZrO_2 → 文献値とよく一致
 - CeO_2 , UO_2 → 揮発成分による光の散乱・吸収が測定に影響(CeO_2 はITUの測定値とはよく一致)

- 高融点金属
 - 文献値とよく一致(±2%以内)
- 高融点酸化物
 - 放射率の波長特性が、温度校正に用いたWと異なる
→ 文献値との差あり

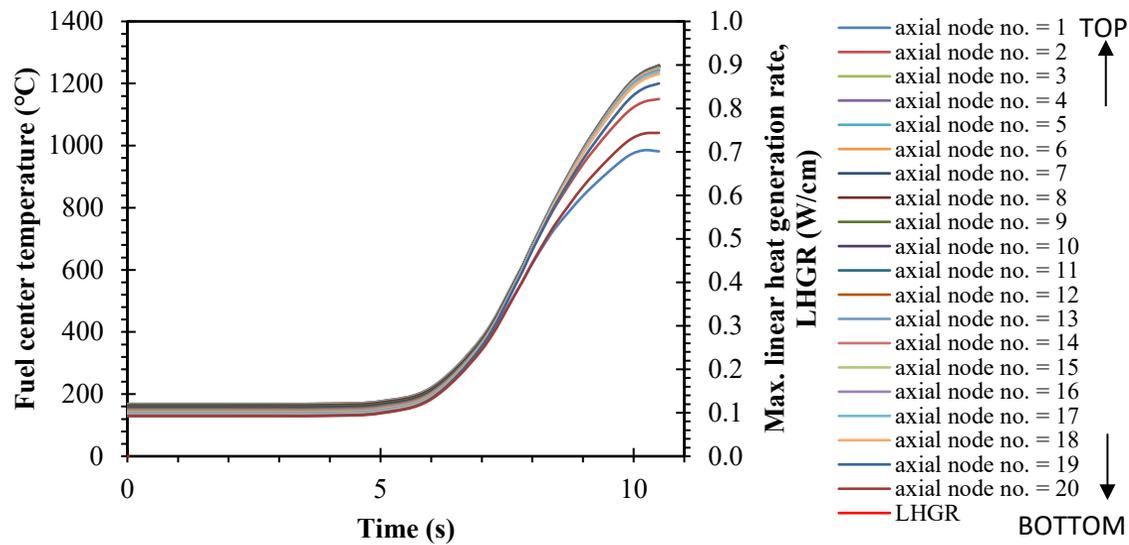
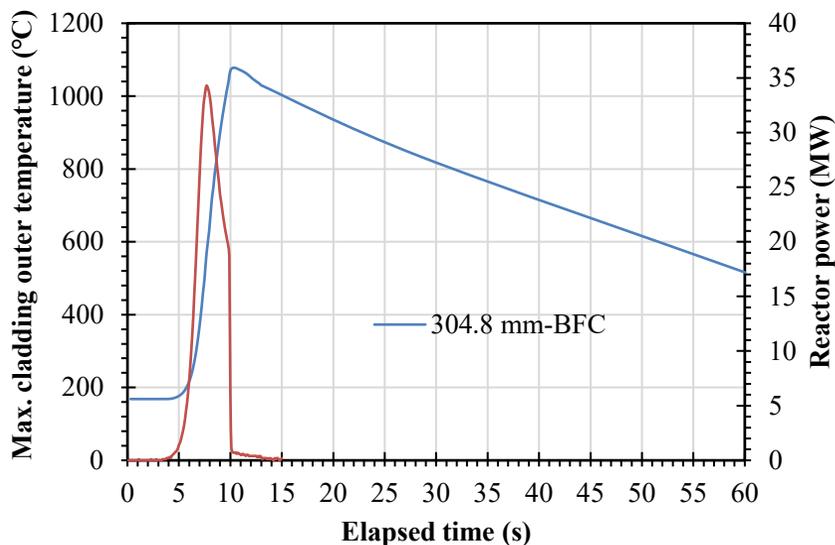
*NIST Chemistry WebBook, R.J.M Konings, et al, JPCD43(2014), C.Wang, et al, Calphad28(2004)



- ✓ 令和元年度～3年度は、RBR-IIでの照射済燃料ピンから過渡照射試験用燃料ピンを選定し(下右図、シスターピンの横断面金相)、照射条件、PIE結果等を調査・整理するとともに、燃料挙動解析を行い過渡照射試験条件を策定した。また、米国側では過渡照射試験用THORキャプセル(下左図)の設計、製作と装置組立を進めた。
- ✓ 当初は、令和4年度にTREAT照射試験を実施する予定としていたが、新型コロナウイルス感染症の影響により、テレワークに切り替り、施設が閉鎖となったこと等による人員制限、搬入設備の故障による利用制限及び金属ナトリウム充填不良により実施の遅延があった。そのため、契約期間を1年間延長し、令和5年度に照射試験及び照射後試験を実施することとした。



- ✓ TREAT照射試験は、ヒートシンク内で試験燃料ピンを取り囲むナトリウムが存在しない状態での照射となり、予定よりも低い最大出力で試験を終えた。本試験における被覆管外表面最高温度は約1150°Cに達し、約5秒間1000°C以上を経験したものと評価された(下左図)。
- ✓ **本試験は予定よりも低出力であったものの、冷却材喪失事象相当の条件を模擬した試験と考えられ、事故時のバーンアウト後の被覆管破損限界を評価することが可能であり、燃料開発において重要な結果を提供した。高燃焼度の実燃料で実施した世界で初めての成果といえる。**
- ✓ 本試験で得られた線出力及び被覆管外表面温度を用いて、JAEAの燃料挙動解析コード(CEPTAR)を用いて燃料温度の非定常解析を実施した(下右図)。今回の試験では燃料最高温度は1250°Cに達し、融点を十分に下回る結果となった。



- 照射済高速炉燃料から回収されたMAを含む低除染燃料のフォードストック原料を用いた原料粉末調製は世界で初めての成果であり、**転換に用いた直接・マイクロ波加熱のハイブリット転換技術は、原子力機構で独自に開発を進めてきた高効率の方法で、本研究において初めて実燃料による実証試験結果が得られた。**
- 照射燃料の設計を行うため、**MOX燃料の熱物性に及ぼす微量元素の影響を定量的に評価し定式化したことで、世界で唯一のMA含有MOX燃料基礎物性データベースが作成できた。**また、本研究で得たMA含有MOX燃料の基礎特性データは国際的にも極めて貴重なデータのため、世界標準となるデータベースが供給できると考えられる。
- **非定常平面熱源法を用いて世界で初めてUO₂の熱伝導率を直接測定することができた。**また、**レーザー溶融による融点測定技術については、高速度カメラによる極微小領域の融点測定を達成し、試料容器との反応がない環境での新たな融点測定術が開発できた。**
- **100GWd/tを超える高燃焼度MOX燃料について世界で初めての過渡照射試験を行い、低出力時のデータ及び過渡照射後のPIE結果を用いて非定常解析モデルによる過渡照射時燃料挙動の解析に成功した。**

- ▶ 本研究で得られた成果は、高速実験炉「常陽」で今後予定されているMA含有低除染燃料の照射試験に反映する予定であり、燃料製造や燃料設計において本研究で得た成果を活用する。具体的には、日本原子力研究開発機構 核燃料サイクル工学研究所CPFにおいて原料粉末の調製を行い、同機構 大洗原子力工学研究所AGFで燃料ペレット製造及びピン加工後に「常陽」において照射試験を実施する計画である。
- ▶ また、本研究で開発したPIE技術については、日本原子力研究開発機構において新設する高速炉燃料用の物性測定装置へ反映する予定
- ▶ 現在国内外で小型モジュール炉をはじめとする様々な新型革新炉の研究開発が進められており、本研究で得られた成果は、これらに対してもMOX燃料技術に関する観点から幅広い知見を提供できると考えられる。