JAEA-Review
2022-052
DOI:10.11484/jaea-review-2022-052

JAEA-Review

日本原子力研究開発機構における分離変換技術に関する研究開発の現状

Present Status of R&D in JAEA on Partitioning and Transmutation Technology

原子力科学研究部門　原子力科学研究所　原子力基礎工学研究センター
高速炉・新型炉研究開発部門　燃料サイクル設計室
核燃料・バックエンド研究開発部門　核燃料サイクル工学研究所
プルトニウム燃料技術開発センター
高速炉・新型炉研究開発部門　プラント技術イノベーション推進室
高速炉・新型炉研究開発部門　大洗研究所　高速炉サイクル研究開発センター
原子力科学研究部門　J-PARC センター

Nuclear Science and Engineering Center,
Nuclear Science Research Institute, Sector of Nuclear Science Research
Fuel Cycle Design Office,
Sector of Fast Reactor and Advanced Reactor Research and Development
Plutonium Fuel Development Center, Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories,
Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development
Nuclear Plant Innovation Promotion Office,
Sector of Fast Reactor and Advanced Reactor Research and Development
Fast Reactor Cycle System Research and Development Center,
Oarai Research and Development Institute,
Sector of Fast Reactor and Advanced Reactor Research and Development
J-PARC Center, Sector of Nuclear Science Research

February 2023
Japan Atomic Energy Agency
日本原子力研究開発機構

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートはクリエイティブ・コモンズ 表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。
本レポートの成果（データを含む）に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の
条件で利用してください。（https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja）
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト（https://www.jaea.go.jp）
より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構　JAEA イノベーションハブ　研究成果利活用課
〒 319-1195　茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地 4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License
(https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en).
Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under
the same terms and conditions as CC-BY.
For inquiries regarding this report, please contact Institutional Repository and Utilization Section,
JAEA Innovation Hub, Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2023

JAEA-Review 2022-052

日本原子力研究開発機構における分離変換技術に関する研究開発の現状

日本原子力研究開発機構

原子力科学研究部門　原子力科学研究所　原子力基礎工学研究センター
高速炉・新型炉研究開発部門　燃料サイクル設計室
核燃料・バックエンド研究開発部門　核燃料サイクル工学研究所
プルトニウム燃料技術開発センター
高速炉・新型炉研究開発部門　プラント技術イノベーション推進室
高速炉・新型炉研究開発部門　大洗研究所　高速炉サイクル研究開発センター
原子力科学研究部門　J-PARC センター

（2022 年 10 月 14 日受理）

本報告書は、日本原子力研究開発機構が実施してきた分離変換技術に関する研究開発の現状について、特に第 3 期中長期計画期間（2015～2021 年度）における研究開発成果を中心としてまとめたものである。分離技術に関しては溶媒抽出法と抽出クロマト法の研究開発を述べ、マイナーアクチノイド含有燃料技術に関して簡素化ペレット法を用いた酸化物燃料製造と、外部ゲル化法を用いた窒化物燃料製造および窒化物燃料の乾式再処理に関する研究開発成果をまとめた。核変換技術に関しては、高速炉と加速器駆動システムを用いた核変換技術に係る研究開発をまとめた。最後に今後の研究開発に必要な施設整備に言及した。

原子力科学研究所：〒319-1195　茨城県那珂郡東海村大字白方 2-4

JAEA-Review 2022-052

Present Status of R&D in JAEA on Partitioning and Transmutation Technology

Nuclear Science and Engineering Center,
Nuclear Science Research Institute, Sector of Nuclear Science Research
Fuel Cycle Design Office,
Sector of Fast Reactor and Advanced Reactor Research and Development
Plutonium Fuel Development Center, Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories,
Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development
Nuclear Plant Innovation Promotion Office,
Sector of Fast Reactor and Advanced Reactor Research and Development
Fast Reactor Cycle System Research and Development Center,
Oarai Research and Development Institute,
Sector of Fast Reactor and Advanced Reactor Research and Development
J-PARC Center, Sector of Nuclear Science Research

Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received October 14, 2022)

This report summarizes the current status and future plans of research and development (R&D) on partitioning and transmutation technology in Japan Atomic Energy Agency, focusing on the results during the 3rd Medium- to Long-term Plan period (FY 2015-2021). Regarding the partitioning technology, R&D of the solvent extraction method and the extraction chromatography method are described, and regarding the minor actinide-containing fuel technology, R&D of the oxide fuel production using the simplified pellet method, the nitride fuel production using the external gelation method, and pyrochemical reprocessing of the nitride fuel were summarized. Regarding transmutation technology, R&D of technology using fast reactors and accelerator drive systems were summarized. Finally, the new facilities necessary for the future R&D were mentioned.

Keywords: Partitioning, Transmutation, Minor Actinide, Solvent Extraction, Extraction Chromatography, Oxide Fuel, Nitride Fuel, Pyrochemical Reprocessing, Fast Reactor, Accelerator-Driven System, J-PARC

目　次

1. 分離変換技術に関する研究開発----------1
1.1 分離変換技術研究開発の歴史的経緯----------1
1.2 2009 年チェック&レビューの概要----------1
1.3 2009 年チェック＆レビュー以降の状況----------3
1.4 JAEA の第 3 期中長期計画期間における計画----------5
2. 分離技術----------7
2.1 溶媒抽出法による MA 分離----------7
2.2 抽出クロマトグラフ法による MA 分離----------30
3. 核変換サイクル技術----------57
3.1 高速炉用 MA-MOX 燃料----------57
3.2 ADS 用 MA 窒化物燃料----------103
3.3 ADS 用 MA 窒化物燃料の乾式再処理----------127
4. 核変換技術----------151
4.1 高速炉----------151
4.2 ADS----------196
5. 研究開発に必要な施設----------282
5.1 分離研究に関する研究インフラ----------282
5.2 燃料研究に関する研究インフラ----------284
5.3 ADS による核変換研究に関する研究インフラ----------294
6. まとめ----------339
謝辞----------341

Contents

1. Research and Development for Partitioning and Transmutation Technology ----- 1
1.1 Historical Background of R&D for Partitioning and Transmutation Technology ----- 1
1.2 Overview of the 2009 Check & Review ----- 1
1.3 Status after the 2009 Check & Review ----- 3
1.4 Plans for JAEA's 3rd mid- and long-term plan period ----- 5
2. Partitioning Technology ----- 7
2.1 MA Separation by Solvent Extraction ----- 7
2.2 MA Separation by Extraction Chromatography ----- 30
3. Transmutation Cycle Technology ----- 57
3.1 MA-MOX Fuel for Fast Reactor ----- 57
3.2 MA Nitride Fuel for ADS ----- 103
3.3 Pyrochemical Reprocessing of MA Nitride Fuel ----- 127
4. Transmutation Technology ----- 151
4.1 Fast Reactor ----- 151
4.2 ADS ----- 196
5. Required Facilities for Each R&D ----- 282
5.1 Research Infrastructure for Partitioning Technology ----- 282
5.2 Research Infrastructure for Fuel Study ----- 284
5.3 Research Infrastructure for Transmutation Technology by ADS ----- 294
6. Concluding Remarks ----- 339
Acknowledgement ----- 341

執筆分担

（順不同）

第 1 章	辻本 和文 1)
第 2 章	
第 2.1 節	鈴木 英哉 2)、伴 康俊 2)、樋川 智洋 2)、坂本 淳志 3)
第 2.2 節	宮﨑 康典 3)、渡部 創 3)、佐野 雄一 3)
第 3 章	
第 3.1 節	瀬川 智臣 3)、廣岡 瞬 4)、渡部 雅 5)、髙藤 清人 4)、石井 克典 3)、加藤 正人 5)
第 3.2 節	高野 公秀 2)
第 3.3 節	林 博和 2)、佐藤 匠 2)
第 4 章	
第 4.1 節	大木 繁夫 6)、佐々木 新治 7)、小澤 隆之 3)、大塚 智史 7)、皆藤 威二 3)
第 4.2 節	菅原 隆徳 8)、方野 量太 8)、岩元 大樹 8)、大泉 昭人 8)、武井 早憲 9)、佐々 敏信 10)、斎藤 滋 9)、大林 寛生 9)、大久保 成彰 2)、前川 藤夫 9)、田村 潤 11)、近藤 恭弘 11)、Yee-Rendon Bruce9)、明午 伸一郎 9)、西原 健司 8)
第 5 章	
第 5.1 節	竹内 正行 3)、伴 康俊
第 5.2 節	山田 美一 4)
第 5.3 節	西原 健司、菅原 隆徳、武井 早憲、前川 藤夫
第 6 章	辻本 和文
編集	菅原 隆徳、中村 聡志 2)、阿部 拓海 8)、西原 健司

所属（2022 年 7 月時点）

1) 原子力基礎工学研究センター
2) 原子力基礎工学研究センター　燃料･材料工学ディビジョン
3) 燃料サイクル設計室
4) プルトニウム燃料技術開発センター　燃料技術部
5) プラント技術イノベーション推進室
6) 高速炉サイクル研究開発センター　高速炉解析評価技術開発部
7) 高速炉サイクル研究開発センター　燃料材料開発部
8) 原子力基礎工学研究センター　核工学・炉工学ディビジョン
9) J-PARC センター　核変換ディビジョン
10) 新試験研究炉準備室
11) J-PARC センター　加速器ディビジョン

Major Contributors

(in no particular order)

Chapter 1	Kazufumi TSUJIMOTO[1)]
Chapter 2	
Section 2.1	Hideya SUZUKI[2)], Yasutoshi BAN[2)], Tomohiro TOIGAWA[2)], Atsushi SAKAMOTO[3)]
Section 2.2	Yasunori MIYAZAKI[3)], Sou WATANABE[3)], Yuichi SANO[3)]
Chapter 3	
Section 3.1	Tomoomi SEGAWA[3)], Shun HIROOKA[4)], Masashi WATANABE[5)], Kiyoto TAKATO[4)], Katsunori ISHII[3)], Masato KATO[5)]
Section 3.2	Masahide TAKANO[2)]
Section 3.3	Hirokazu HAYASHI[2)], Takumi SATO[2)]
Chapter 4	
Section 4.1	Shigeo OHKI[6)], Shinji SASAKI[7)], Takayuki OZAWA[3)], Satoshi OHTSUKA[7)], Takeji KAITO[3)]
Section 4.2	Takanori SUGAWARA[8)], Ryota KATANO[8)], Hiroki IWAMOTO[8)], Akito OIZUMI[8)], Hayanori TAKEI[9)], Toshinobu SASA[10)], Shigeru SAITO[9)], Hironari OBAYASHI[9)], Nariaki OKUBO[2)], Fujio MAEKAWA[9)], Jun TAMURA[11)], Yasuhiro KONDO[11)], Bruce YEE-RENDON[9)], Shin-ichiro MEIGO[9)], Kenji NISHIHARA[8)]
Chapter 5	
Section 5.1	Masayuki TAKEUCHI[3)], Yasutoshi BAN
Section 5.2	Yoshikazu YAMADA[4)]
Section 5.3	Kenji NISHIHARA, Takanori SUGAWARA, Hayanori TAKEI, Fujio MAEKAWA
Chapter 6	Kazufumi TSUJIMOTO
Editor	Takanori SUGAWARA, Satoshi NAKAMURA[2)], Takumi ABE[8)], Kenji NISHIHARA

July, 1st, 2022

1) Nuclear Science and Engineering Center
2) Fuels and Materials Engineering Division, Nuclear Science and Engineering Center
3) Fuel Cycle Design Office
4) Fuel Technology Department, Plutonium Fuel Development Center
5) Nuclear Plant Innovation Promotion Office
6) Fast Reactor Life-Cycle Safety and Integrity Evaluation Technology Development Department, Fast Reactor Cycle System Research and Development Center

7) Fuels and Materials Department, Fast Reactor Cycle System Research and Development Center
8) Nuclear Science and Reactor Engineering Division, Nuclear Science and Engineering Center
9) Nuclear Transmutation Division, J-PARC Center
10) Preparatory Office of New Research Reactor
11) Accelerator Division, J-PARC Center

This is a blank page.

1．分離変換技術に関する研究開発

1.1　分離変換技術研究開発の歴史的経緯

1988 年 10 月に、原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会に設置された核種分離消滅処理技術検討委員会が取りまとめた「群分離・消滅処理技術研究開発長期計画（通称：オメガ計画）」（OMEGA: Options Making Extra Gains from Actinides and Fission Products）を原子力委員会が了承し、我が国における本格的な分離変換技術の研究開発が開始された。

1999～2000 年には、オメガ計画による研究開発を評価するために、原子力委員会原子力バックエンド対策専門部会においてチェック＆レビューが行われ、2000 年 3 月に、「長寿命核種の分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方」[1-1)]が取りまとめられた。そこでは、分離変換技術は長期放射能インベントリを低減する等有用な技術となる可能性があり、今後も着実に進めることが適当である、と評価された。また、分離変換技術の研究開発を進める際には、核燃料サイクルの検討の場に対し、核燃料サイクルへの分離変換技術システムの導入シナリオを示すとともに、そのためのシステムを設計し、要素技術を確立すること、ならびにこのために核燃料サイクル全体を視野に入れ、経済性、エネルギー資源の確保、廃棄物に含まれる放射能インベントリの低減、新たな放射性廃棄物や二次廃棄物の発生量などについて信頼性の高い評価を行うこと、などを考慮すべきとされた。

その後、2008～2009 年には、原子力委員会研究開発専門部会分離変換技術検討会において、2 回目のチェック＆レビューが行われ、2009 年 4 月に「分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方」[1-2)]が取りまとめられた。原子力委員会では上記報告書を受け、同年 4 月に同報告書の内容は適切と判断し、関係行政機関等に対し、分離変換技術に関する研究開発の取組を着実に推進することを求めるとの委員会決定を出している。

1.2　2009 年チェック&レビューの概要

チェック&レビューにおいては、日本原子力研究開発機構（以下「JAEA」という。）および電力中央研究所で研究開発が進められていた以下の 4 つの概念について、それまでの研究開発の成果と現状の分析を実施し、技術的課題をまとめるとともに今後の研究開発の進め方が提示された。

① マイナーアクチノイド（MA）均質装荷高速炉概念（ナトリウム冷却高速炉、酸化物燃料、湿式分離）

② MA 均質装荷高速炉概念（ナトリウム冷却高速炉、金属燃料、乾式処理）

③ 階層型（鉛ビスマス冷却加速器駆動システム（ADS）、窒化物燃料、乾式分離）

④ MA 非均質装荷高速炉概念（発電用高速炉における非均質装荷）

基本方針として、発電用高速炉への MA の均質サイクルおよび非均質サイクル概念による分離変換技術開発については、発電用高速増殖炉サイクル技術の実用化を目指した研究開発の一部として進めるべきであるとした。また、階層型概念の研究開発については、軽水炉サイクルから高速増殖炉サイクルへの移行期から高速増殖炉サイクルの平衡期までを含む将来の原子力発電システム体系の一部として研究開発を進めるべきであるとした。

JAEA が研究開発を行っている①、③、④に対する主な技術課題が下記のように示された。(以下、抜粋[1-2])

MA 均質・非均質サイクルを前提とした酸化物燃料高速増殖炉サイクル技術（①、④）

○ 高い信頼性を有する湿式分離法による MA 核種の分離回収システムの構築
○ MA 核種による高発熱・高線量に阻害されない MA 含有 MOX 燃料の実用的製造プロセスの構築
○ 所定の使用条件の下で、高燃焼度を高信頼度で達成できる燃料製造
○ 炉心に対する安全要求を満足して MA 核種を 5%まで装荷できる炉心設計
○ 非均質サイクルに関する研究開発については、Am だけでなく、Np、Cm を含む高い MA 含有率の燃料の非均質炉心での核的安全性、発電システムである高速増殖炉としての性能等総合的な評価検討が必要である。

ADS を中心とした階層型概念（③）

○ 発電システムに要求される性能目標の達成を妨げない加速器の性能・コストの実現
○ ビーム窓の工学的成立性の確証
○ 未臨界炉心の制御等の炉物理的課題を高い信頼度で解決
○ Pb-Bi 冷却炉の設計及び安全性の確証
○ 窒化物燃料の乾式再処理による燃料サイクルシステムの実用性の提示
○ 所定の使用条件下での燃料性能及び高燃焼度を達成する窒化物燃料製造の確証

更に、これらの技術課題の解決に向けた取組み方として、以下が示された。

分離プロセス

分離プロセスについては、実廃液を利用した実験室規模での原理実証は行われているが、工学的プロセス実証に着手するまで解決すべき課題が少なくない。また、先進湿式法は、軽水炉からの高速炉への移行期における分離プロセスに対しても柔軟性を確保した研究開発が必要である。

MA 含有燃料

MA 含有燃料については、基礎的な知見が得られているが、Cm を含めた燃料基礎物性データベースの整備は不十分である。また、高線量、高温環境下での MA 含有燃料製造の技術的成立性を判断できない。基礎的な研究開発段階では燃料ピンレベルあるいはペレットレベルでデータの充実を図り、集合体レベルの燃料を製造するための施設設計・建設・試験実施に向けて必要な基礎データの取得を継続することが重要である。

核変換システム

核変換システムについては、現時点ではシステムの安全性や性能を評価できる基礎的なデータが不足し、設計評価コードの精度評価も十分でない。また、MA 非均質装荷炉については、成立性を確認するための設計評価を優先すべきである。こうした特性評価の信頼性向上には、MA に関する基礎データの蓄積が必要である。MA 核データに関する微分実験及び積分実験については、既存の施設を用いての取組を強化して継続するとともに核データライブラリの充実と数値シミュレーション技法等の高度化を図るべきである。また、こうした方法に残る不確実

性を確認し、その減少方法を探求するためには特に Am、Cm 等を用いた臨界実験が求められるので、この実験を行う環境を整備するべきである。その一環として、J-PARC の第 2 期計画としている炉物理試験施設も検討するべきである。

ADS について工学的・経済的な面からの成立性を確認する段階に移行するには、さらなる研究開発が必要である。こうした取組は、海外の同種の取組、加速器中性子源の開発の進捗、高速増殖炉の実用化を目指した研究開発等と連携して効率よく推進していくべきである。なお、核破砕中性子源と高速未臨界炉心を組み合わせた模擬実験は世界的にも未着手であり、J-PARC 等の活用が期待される。その際には、加速器ー未臨界炉結合実験としての京大原子炉実験所における実験成果を十分に検討することが望まれる。

上記の取組においては、共通的な基盤研究の強化や国際協力の必要性も指摘された。

○ 現在研究開発が行われている 4 つの概念（MA 均質サイクルを前提とした酸化物燃料高速増殖炉サイクル技術・MA 均質サイクルを前提とした金属燃料高速増殖炉サイクル技術・MA 非均質サイクルを前提とした酸化物燃料高速増殖炉サイクル技術・ADS を中心とした階層型）については、その研究開発や性能評価に必須のデータには共通のものが多い。各概念共通に必須となるデータの獲得には、基礎と応用の垂直連携の取組と分野を横断する水平連携の取組が必須である。

○ さらに、これらのデータを獲得するためには、国内の施設だけでは不十分であることなどから、国際連携も追求していくべきである。また、こうした連携は、現在進められている候補技術概念を横断的に評価し、より良い組み合わせを探る取組も可能にする。

○ こうした連携により、階層型概念での金属燃料や酸化物燃料の利用可能性、種々の燃料形態を利用した非均質装荷高速炉概念、軽水炉高レベル放射性廃液からの MA 核種の湿式分離回収と他の概念の組み合わせなどの潜在的な可能性についても評価していくべきである。

1.3 2009 年チェック＆レビュー以降の状況

1.3.1 国の政策における原子力の位置づけ

2011 年 3 月 11 日の東日本大震災と東京電力福島第一原子力発電所事故以降、原子力政策や研究開発方針は大きく変わった。2010 年に閣議決定された「第 3 次エネルギー基本計画」[1-3]では、「原子力は供給安定性と経済性に優れた純国産エネルギーであり、また、発電過程において CO_2 を排出しない低炭素電源である。このため、供給安定性、環境適合性、経済効率性の 3E（Energy、Environment、Economy）を同時に満たす中長期的な基幹エネルギーとして、安全の確保を大前提に、国民の理解・信頼を得つつ、需要動向を踏まえた新増設の推進・設備利用率の向上などにより、原子力発電を積極的に推進する。」とされていた。しかし、2014 年に閣議決定された「第 4 次エネルギー基本計画」[1-4]では、原子力発電は「エネルギー需給構造の安定性に寄与する重要なベースロード電源」としつつも「いかなる事情よりも安全性を全てに優先させ、国民の懸念の解消に全力を挙げる前提の下、原子力発電所の安全性については、原子力規制委員会の専門的な判断に委ね、原子力規制委員会により世界で最も厳しい水準の規制基準に適合すると認められた場合には、その判断を尊重し原子力発電所の再稼働を進める。」として、「原発依存度については、省エネルギー・再生可能エネルギーの導入や火力発電所の効率化などにより、可能な限り低減さ

せる。」とされた。また、原子力政策の再構築の節において、対策を将来へ先送りせず着実に進める取組として、「使用済燃料対策を抜本的に強化し、総合的に推進する。」とし、その中で、「将来の幅広い選択肢を確保するため、放射性廃棄物の減容化・有害度低減などの技術開発を進める。」とし、「具体的には、高速炉や、加速器を用いた核種変換など、放射性廃棄物中に長期に残留する放射線量を少なくし、放射性廃棄物の処理・処分の安全性を高める技術等の開発を国際的なネットワークを活用しつつ推進する。また、最終処分に係る検討・進捗状況を見極めつつ、最終処分と減容化等技術開発や、関連する国際研究協力・研究人材の育成などの一体的な実施の可能性について検討する。」と記載されている。

このように、国の基本的な政策においては、「放射性廃棄物の減容化・有害度低減などの技術開発を進める。」としており、その後の第 5 次[1-5]および第 6 次エネルギー基本計画[1-6]においても、この記載は踏襲されている。

1.3.2 高速炉および ADS の研究開発方針

高速炉の研究開発については、2011 年 3 月以降の原子力政策の見直しを受けて、2006 年から実施されていた高速増殖炉サイクル実用化研究開発（FaCT）プロジェクトが凍結となった。2012 年 10 月に「もんじゅ」等の具体的な研究計画を策定するために、文部科学省の科学技術・学術審議会研究計画・評価分科会原子力科学技術委員会の下に、もんじゅ研究計画作業部会が設置され、2013 年 9 月に「もんじゅ研究計画」[1-7]をとりまとめた。ここでは、高速増殖炉サイクルによる分離変換技術研究開発については、高速増殖炉/高速炉システムを活用した廃棄物の減容および有害度の低減等を目指した研究開発として、研究計画の中で重点分野の一つとして位置づけられた。その後、2016 年 12 月に原子力関係閣僚会議において、「もんじゅ」は廃止措置に移行することが示されたが、同時に「我が国は「エネルギー基本計画」に基づき、核燃料サイクルを推進するとともに、高速炉の研究開発に取り組むとの方針を堅持」することが示され、研究開発方針を具体化する「戦略ロードマップ」を策定することとされた。2018 年 12 月には、高速炉開発会議で策定された「戦略ロードマップ」[1-8]が原子力閣僚会議で決定された。そこでは、「高速炉の本格的利用が期待されるタイミングは 21 世紀後半のいずれかのタイミングとなる可能性がある。」、「例えば 21 世紀半ば頃の適切なタイミングにおいて，技術成熟度，ファイナンス，運転経験等の観点から現実的なスケールの高速炉が運転開始されることが期待される。」とされた。また、「JAEA は，民間が取り組む多様な技術開発に対応できるニーズ対応型の研究開発基盤を維持していくことが必要。設計手法や安全基準等の我が国の技術を国際標準化する。」とされ、実用化のための技術基盤の確立とイノベーションの促進に，国内外一体となって取り組む方針が示された。

一方、ADS を中心とした階層型概念の研究開発については、2013 年 7 月に文部科学省は、科学技術・学術審議会研究計画・評価分科会原子力科学技術委員会の下に、群分離・核変換技術評価作業部会を設置し、同年 11 月に「群分離・核変換技術評価について（中間的な論点のとりまとめ）」[1-9]を取りまとめた。そこでは、「わが国には、群分離・核変換技術のポテンシャルや人材、関連の研究開発のインフラが蓄積されており、課題の解決に向けて着実に進めていくことが求められる。」、「工学規模の次のステージに移行するに当たっては、相当量の MA を用いた実験について、既存の施設だけでの実施は困難であることから、今後、本技術の研究開発を進めるに際しては、既存施設の有効利用と、新規施設の戦略的な整備を効果的に組み合わせて、研究開発の効率的推進を図ることが重要である。」などと評価された。

1.4　JAEA の第 3 期中長期計画期間における計画

JAEA では、2009 年チェック&レビューをはじめとする国の研究開発方針を踏まえて、第 3 期中長期計画期間（2015～2021 年度）における研究開発計画を以下のように定め、研究開発を実施した。

MA の分離変換のための共通基盤技術の研究開発

○　MA の分離技術に関する複数の候補技術のプロセスデータ、高レベル放射性廃液を用いた試験による分離回収データ等を取得し、MA 分離回収に関する技術的成立性を評価する。
○　幅広い組成の MA 燃料の基礎データを取得するとともに、ペレット製造等の機器試験等を進め、MA 燃料製造に関する技術的成立性を評価する。
○　MA 分離変換サイクル全体を通じた技術情報を得るため、既存施設を用いた MA の分離、ペレット製造から高速中性子照射までの一連の試験から成る小規模な MA サイクルの実証試験に着手する。

高速炉を用いた核変換技術の研究開発

○　Pu 及び MA を高速炉で柔軟かつ効果的に利用するための研究開発として、「もんじゅ」の性能試験等で得られるデータを用いた炉心設計手法の検証、炉心設計研究、均質 MA サイクル MOX 燃料の照射挙動データの取得及び長寿命炉心材料開発を行うとともに、
○　「常陽」再稼働後、MA 含有 MOX 燃料の照射性能を把握するため、米国及び仏国との共同照射試験を実施する。

ADS を用いた核変換技術の研究開発

○　J-PARC 核変換実験施設の建設に向けて必要な要素技術開発、施設の検討や安全評価等に取り組む。ADS ターゲット試験施設に関しては、早期に施設整備に必要な経費の精査や技術課題解決の見通し等について外部委員会による評価を受けた上で、目標期間半ばを目途に同施設の建設着手を目指す。核変換物理実験施設に関しては、施設の設計・設置許可に向けた技術的課題解決の見通し等について外部委員会による評価を受けた上で、目標期間内に設置許可を受けて建設着手を目指す。
○　また、ADS 概念設計、ターゲット窓材評価、MA 燃料乾式処理技術開発等を行うとともに、国際協力により ADS 開発を加速させる。

本報告書は、高速炉および ADS を中心とした分離変換技術の研究開発成果について、特に第 3 期中長期計画期間（2015～2021 年度）における研究開発成果を中心に、JAEA における分離変換技術に対する取組の現状と課題をまとめ、今後の研究開発の展望を示すことを目的とするものである。

参考文献

1-1) 原子力委員会 原子力バックエンド対策専門部会, 長寿命核種の分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方, 平成 12（2000）年 3 月 31 日, https://www.rwmc.or.jp/law/file/190930_shiryo_2.pdf, (accessed 2022/7/15).

1-2) 原子力委員会 研究開発専門部会 分離変換技術検討会, 分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方, 平成 21（2009）年 4 月 28 日, http://www.aec.go.jp/jicst/NC/senmon/bunri/houkokusho-090428.pdf, (accessed 2022/7/15).

1-3) エネルギー基本計画, 平成 22（2010）年 6 月, http://www.enecho.meti.go.jp/category/others/basic_plan/pdf/100618honbun.pdf, (accessed 2022/7/15).

1-4) エネルギー基本計画, 平成 26（2014）年 4 月, http://www.enecho.meti.go.jp/category/others/basic_plan/pdf/140411.pdf, (accessed 2022/7/15).

1-5) エネルギー基本計画, 平成 30（2018）年 7 月, http://www.enecho.meti.go.jp/category/others/basic_plan/pdf/180703.pdf, (accessed 2022/7/15).

1-6) エネルギー基本計画, 令和 3（2021）年 10 月, https://www.enecho.meti.go.jp/category/others/basic_plan/pdf/20211022_01.pdf, (accessed 2022/7/15).

1-7) 文部科学省 科学技術・学術審議会 研究計画・評価分科会 原子力科学技術委員会 もんじゅ研究計画作業部会, もんじゅ研究計画, 平成 25（2013）年 9 月, http://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/gijyutu/gijyutu2/061/houkoku/1344598.htm, (accessed 2022/7/15).

1-8) 戦略ロードマップ、平成 30（2018）年 12 月 21 日, https://www.cas.go.jp/jp/seisaku/genshiryoku_kakuryo_kaigi/pdf/h301220_siryou.pdf, (accessed 2022/7/15).

1-9) 文部科学省 科学技術・学術審議会 研究計画・評価分科会 原子力科学技術委員会 群分離・核変換技術評価作業部会, 群分離・核変換技術評価について（中間的な論点のとりまとめ）, 平成 25（2013）年 11 月, http://www.mext.go.jp/component/b_menu/shingi/toushin/__icsFiles/afieldfile/2014/01/28/1341663_2.pdf, (accessed 2022/7/15).

2. 分離技術

2.1 溶媒抽出法による MA 分離

日本原子力研究開発機構（JAEA）では、大量処理および連続処理が可能でかつ実プロセスでの使用実績がある溶媒抽出法を用いた、新しい分離技術である SELECT（Solvent Extraction from Liquid-waste using Extractants of CHON-type for Transmutation）プロセスの研究開発を行っている [2.1.1-1)]。

再処理と MA（マイナーアクチノイド）分離を統合した SELECT プロセスでは、はじめの再処理工程で使用済燃料溶解液からモノアミド型抽出剤によって、U、Pu 及び Np を抽出分離する。分離した後の抽出残液である HLLW（高レベル放射性廃液）中には、MA 以外に様々な元素が含まれているため、1 つの抽出剤で MA のみを分離回収することは非常に困難である。そこで、MA 分離工程では 3 種の抽出剤を用いた 3 ステップの構成を検討している。最初に、1). HLLW 中から MA と RE（希土類元素）を一括回収（MA・RE 一括回収）する。ここで、MA と RE が共に回収される。次に、2). MA を RE から分離（MA/RE 分離）する。そして最後に、3). Am と Cm を相互分離（Am/Cm 分離）する（MA 分離プロセスのオプション）。Fig. 2.1.1-1 に MA 分離プロセスフローの一例を示す。

MA・RE 一括回収では TDdDGA（*N,N,N',N'*-テトラドデシルジグリコールアミド）、MA/RE 分離では HONTA（*N,N,N',N',N'',N''*-ヘキサオクチルニトリロトリアセトアミド）、Am/Cm 分離においては ADAAM（アルキルジアミドアミン）が用いられる。抽出剤の構造式を Fig. 2.1.1-2 に示す。いずれの抽出剤も炭素（C）、水素（H）、酸素（O）、窒素（N）から構成され、完全焼却が可能で全て気体となるため、二次廃棄物がほとんど生成されない（CHON 原則）[2.1.1-2)]。さらに、溶解性に優れており、ドデカン等の安定なアルカン系希釈剤を使用することができる。また、溶媒和型抽出剤であることから、金属イオンを抽出する際にシビアな pH 調整が必要なく前処理が容易なことに加えて、沈澱生成を回避することができる。

SELECT プロセスは、高い実用性を有する抽出剤を用いており、簡便かつ単純フローで各段階の着実な分離を実現する。

2.1.1 バッチ抽出試験

多段連続抽出での抽出条件を最適化するには、抽出剤の基礎特性を把握することが重要である。各抽出剤（TDdDGA、HONTA、ADAAM）について、金属イオンの分配比と水相の硝酸濃度との関係、金属イオンの分配比と抽出剤濃度との関係、反応速度及び金属イオンに対する抽出容量についてバッチ抽出試験（バッチ法による抽出試験）を実施した。

＜バッチ抽出試験＞

バッチ抽出試験とは、閉鎖系の容器、例えば、ガラス製あるいはプラスチック製のスクリューチューブ容器に反応溶液である有機相と水相を入れ、振とう・撹拌により混合することで反応させ、反応後の溶液中の元素濃度を測定する実験である。

ホットでのバッチ抽出試験は、NUCEF（燃料サイクル安全工学研究施設）内に設置されてい

るドラフトチャンバにおいて、以下のように実施した。抽出剤である DGA、HONTA 又は ADAAM を溶解した *n*-ドデカンを有機相、トレーサ量の金属イオン（^{241}Am、^{244}Cm、^{152}Eu）を含む硝酸を水相とし、ガラス製スクリューチューブ内に等量（容積比）の水相と有機相を入れ、室温において振とう器を用い縦振り振とうにより混合し抽出平衡に達した後、遠心分離した。遠心分離後、水相と有機相をそれぞれ分取し、溶液中の ^{241}Am および ^{244}Cm の α 線量を α 線スペクトロメータ（セイコー EG&G 製 ALPHA ENSEMBLE 8）で測定、また ^{152}Eu の γ 線量をゲルマニウム半導体検出器（BSI 製 GCD-20180X）で測定し、分配比(D = $[MA]_{org.}/[MA]_{aq.}$)を算出した。ここで、$[MA]_{org.}$および$[MA]_{aq.}$は有機相および水相中の金属の放射能濃度を表す。また、SF（分離係数）は例えば D_{Am}（Am の分配比）と D_{Cm}（Cm の分配比）との比で求めた（$SF_{Am/Cm} = D_{Am}/D_{Cm}$）。

一方、抽出剤の金属イオンに対する抽出容量、および反応速度試験は、イオン半径が Am(III)とほぼ等しい非放射性の Nd(III)を用い、コールドバッチ試験で行った。また、それぞれの金属イオンの分配比の測定についても、上述のホット試験と同様の操作方法で正抽出を行い、金属イオン濃度を誘導結合プラズマ発光分光分析装置（島津製作所製 ICPS-7510）、また誘導結合プラズマ質量分析装置（アジレント製 ICP-7500x）により測定した。有機相の金属イオン濃度は、水相中の金属イオンの初期濃度から抽出後の水相の金属イオン濃度を差し引く、あるいは逆抽出後の濃度測定により求めた。また、金属イオンの分配比は、$D_M = [M]_{org.}/[M]_{aq.}$により算出した。ここで、$[M]_{org.}$および$[M]_{aq.}$は、有機相および水相中の金属イオンのモル濃度をそれぞれ示す。

＜TDdDGA による MA・RE 一括回収＞

HLLW 中からの MA・RE 一括回収を目的として、金属イオンに強く多座配位する DGA（ジグリコールアミド）系抽出剤が JAEA で開発された。特に、TODGA（*N,N,N',N'*-テトラオクチルジグリコールアミド）は MA と RE に対する選択性が極めて高く、2～3 M (= mol/dm^3) 硝酸中から MA・RE を強力に抽出する [2.1.1-3, 2.1.1-4]。近年、JAEA は TODGA よりもアルキル側鎖の炭素数を増し疎水性を向上させた TDdDGA を開発した [2.1.1-1, 2.1.1-5]。TDdDGA は、高濃度の金属イオンを有機相中に抽出でき（抽出容量が大きい）、水相中のさらに高い濃度がさらに高い条件でも第三相を生成しない。TDdDGA での HLLW 中からの MA・RE 抽出において、抽出条件によっては金属抽出の妨げとなるクラッドを生じる場合がある。分析結果から、TDdDGA の不純物や分解生成物が Pd や Zr と形成する錯体がクラッド生成に関与していることが明らかとなった。クラッド抑制を目的として、数種類の高級アルコールを有機相中に添加するバッチ試験を行った。その結果、2-EH（2-エチルヘキサノール）を体積パーセント濃度 20 %(20 vol%)で添加することがクラッド抑制に最も効果的であることを確認できた。同時に、2-EH は MA、Eu、Gd、および Y の逆抽出での回収率を大幅に向上できることがわかり、MA・RE を全量回収できる見通しを得た。また、TDdDGA は HLLW 中から Pd 及び Zr を抽出するため、Pd 及び Zr 抽出にマスキング効果を持つ HEDTA（*N*-(2-ヒドロキシエチル)エチレンジアミン-*N,N',N'*-三酢酸）、及び H_2O_2（過酸化水素）の添加が有効であることがわかった [2.1.1-6]。

MA・RE 一括回収の条件として、正抽出における有機相は[TDdDGA] = 0.1 M、 [2-EH]

= 20 vol % / *n*-ドデカン、一方、水相は[HNO_3] = 2 M、[HEDTA] = 0.1 M、[H_2O_2] = 0.5 M であることが明らかになった。また、逆抽出での水相は[HNO_3] = 0.02 M が最適であることを確認できた。

＜HONTA による MA/RE 相互分離＞

MA/RE 相互分離ステップでは、存在量が多く核変換を阻害する RE を MA から分離することを目的とする。ここでは、ソフトドナー系抽出剤の一つである HONTA が用いられる [2.1.1-7]。HONTA は 3 つのカルボニル酸素と分子骨格中心に窒素原子を有する多座配位トリアミドアミンである。HONTA を用いたバッチ試験により、HONTA の基礎特性について検討した。0.05 M HONTA を含むドデカンを有機相として、トレーサ濃度の Am と Eu を含む 0.05 M の硝酸溶液からの抽出速度を調べた結果、HONTA は正抽出での MA に対する反応速度はやや遅いものの、逆抽出の反応速度が速いことを確認できた（Fig. 2.1.1-3）。さらに、0.1 M HONTA で 0.06 M の Nd を抽出できることから、抽出容量が十分に大きいことがわかった。また、金属イオンの分配比と硝酸濃度との関係、及び金属イオンの分配比と抽出剤濃度との関係を調べ、Am と Nd の分離係数 4.3 が得られ、多段抽出により相互分離可能であることがわかった。HONTA による MA/RE 相互分離の条件として、正抽出では有機相は[HONTA] = 0.05 M / *n*-ドデカン、水相は[HNO_3] = 0.08 M、一方、逆抽出での水相は[HNO_3] ≧ 0.2 M が最適であることを確認できた。Fig. 2.1.1-4 に分配比と硝酸濃度の関係を示す。

＜ADAAM による Am/Cm 分離＞

Am/Cm 分離ステップでは、Am から発熱性の Cm を分離する。核変換燃料の取り扱いを容易にするため、できる限り Am 中の Cm 量を減らすことが望ましい。しかしながら、Am と Cm の性質は非常に似ていることから、Am/Cm 分離は困難を極める。Am/Cm 分離には、ADAAM が用いられる [2.1.1-8]。HONTA と同様に、ADAAM もソフトドナー系抽出剤であり、2 つのカルボニル酸素と分子骨格の中心に窒素原子を有する 3 座配位のジアミドアミンである。ADAAM を用いたバッチ試験から、ADAAM の基礎特性について詳細な検討を行なった。ADAAM は、正抽出での MA に対する反応速度が十分に速く、逆抽出の反応速度はやや遅いものの実用性に問題ないレベルであることが確認できた。さらに、0.2 M ADAAM で 0.04 M、0.5 M ADAAM で 0.15 M の Nd を抽出できることから、抽出容量が十分に大きいことがわかった（Fig. 2.1.1-5）。また、金属イオンの分配比と硝酸濃度との関係、及び金属イオンの分配比と抽出剤濃度との関係(Fig. 2.1.1-6)を調べた。Fig. 2.1.1-6 のグラフから、[ADAAM]＝0.04～0.6 M、[HNO_3]＝1.5 M の条件で $SF_{Am/Cm}$＝5.5 が得られ、多段抽出によって Am/Cm 分離が可能であることがわかった。ADAAM による Am/Cm 分離の条件として、正抽出では有機相は[ADAAM] = 0.2 M / *n*-ドデカン、水相は[HNO_3] = 1.5 M、一方、逆抽出での水相は[HNO_3] = 0.05 M が最適であることが明らかになった。

参考文献

2.1.1-1) Y. Ban, H. Suzuki, S. Hotoku, et al., “Extraction of Trivalent Rare Earths and Minor

Actinides from Nitric Acid with *N,N',N',N'*-Tetradodecyldiglycolamide (TDdDGA) by Using Mixer-Settler Extractors in a Hot Cell", Solvent Extr. Ion Exch., vol.37, (2019) pp.27-37.

2.1.1-2) C. Musikas, "Solvent extraction for the chemical separations of the 5f elements", Inorganica Chim. Acta, 140, (1987) pp.197-206.

2.1.1-3) 館盛勝一, "ARTIST プロセス-使用済み核燃料の新規処理プロセス-", JAERI-Research 2001-048, (2001), 23p.

2.1.1-4) Y. Sasaki, Y. Sugo, S. Tachimori, et al., "The Novel extractants, diglycolamides, for the extraction of lanthanides and actinides in HNO_3-n-dodecane system", Solv. Extr. Ion Exch., vol.19 (1) (2001) pp.91-103.

2.1.1-5) Y. Sasaki, Y. Sugo, T Kimura, et al., "A method for the determination of extraction capacity and its application to *N,N,N',N'*-tetraalkylderivatives of diglycolamide-monoamide/n-dodecane media" Anal. Chim. Acta 543, (2005) pp.31-37.

2.1.1-6) Y. Morita, Y. Sasaki, T. Asakura, et al., "Development of a new extractant and a new extraction process for minor actinide separation", IOP Conf. Series, vol.9, (2010) pp.1-11.

2.1.1-7) Y. Sasaki, Y. Tsubata, Y. Kitatsuji, et al., "Novel Soft-Hard Donor Ligand, NTAamide, for Mutual Separation of Trivalent Actinoids and Lanthanoids", Chem. Lett., 42, (2013) pp.91-92.

2.1.1-8) H. Suzuki, Y. Tsubata, T. Kurosawa, et al., "Continuous extraction and separation of Am(III) and Cm(III) using a highly practical diamide amine extractant," J. Nucl. Sci. Technol., vol.54[11], (2017) pp.1163-1167.

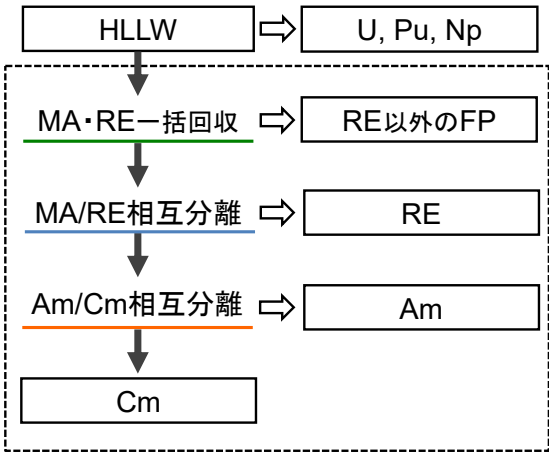


Fig. 2.1.1-1　MA分離プロセスのフロー図の例

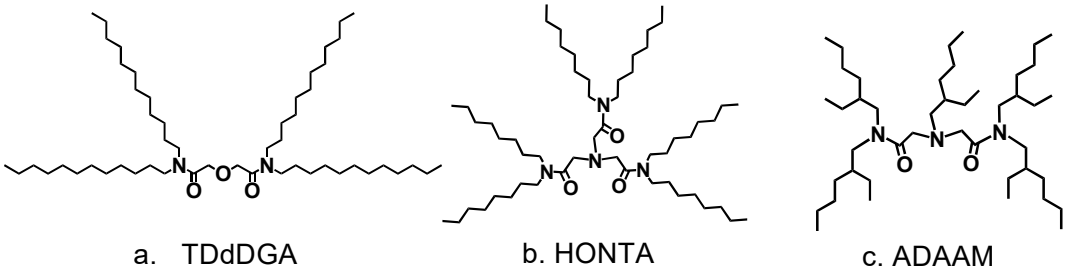


Fig. 2.1.1-2　抽出剤の分子構造 a: TDdDGA, b: HONTA, c: ADAAM

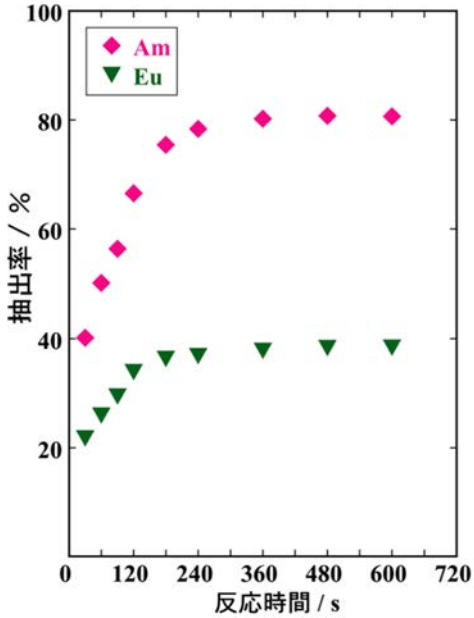


Fig. 2.1.1-3　HONTA による Am(III)と Eu(III)の反応速度
有機相 ：[HONTA] = 0.05 M /ドデカン
水　相 ：[Am] = [Eu] = トレーサ濃度、[HNO_3] = 0.05 M

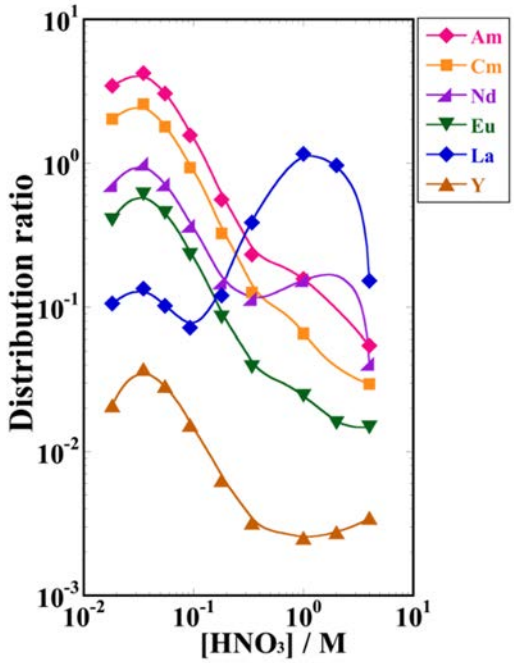


Fig. 2.1.1-4　MA(III)と RE(III)の分配比と硝酸濃度との関係
有機相：[HONTA] = 0.05 M /ドデカン
水　相：[HNO_3] = 0.02～4 M, [RE] = 各 1 ppm, [MA] = トレーサ濃度

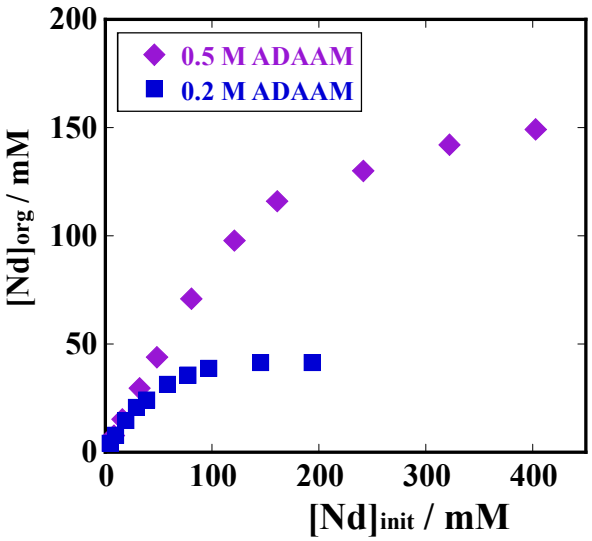


Fig. 2.1.1-5　ADAAM による Nd の抽出容量
有機相：[ADAAM] = 0.2 M, 0.5 M /ドデカン
水　相：[HNO_3] = 1.5 M

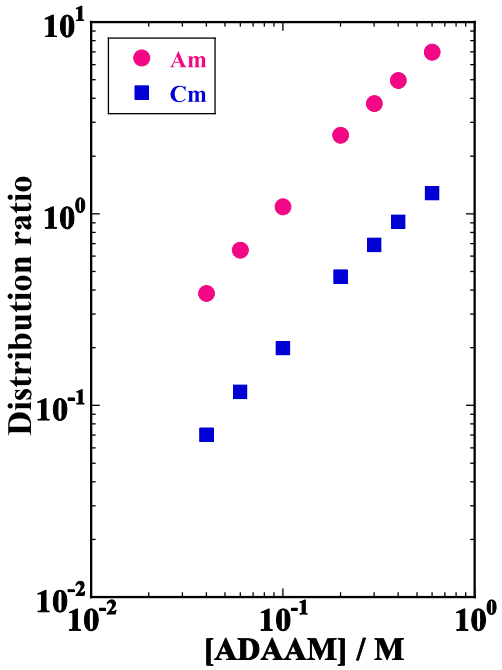


Fig. 2.1.1-6　Am と Cm の分配比と ADAAM 濃度の関係

有機相：　[ADAAM] = 0.04～0.6 M

水　相：　[HNO_3] = 1.5 M、[MA] = トレーサ濃度

2.1.2 TDdDGA による MA・RE 一括回収試験

HLW から MA 及び RE を一括して回収するために種々の抽出剤が合成されており、中でも DGA の一種である TODGA は精力的に研究が行われている。TODGA よりも窒素原子に結合しているアルキル基の長さが長い、TDdDGA は TODGA よりも第三相を生成せずに有機相により多くの金属元素を抽出できることが RE を用いた試験によって確認されており、TDdDGA の適用によって MA・RE 一括回収プロセスの効率化が期待される。これまでに、一段のバッチ抽出法で得た TDdDGA の MA 及び RE に対する抽出特性が報告されている。ミキサセトラ抽出器を用いたコールド及び RI トレーサの連続抽出試験も行われており、Am(III)の回収率として>99.99%が報告されている。この連続抽出試験では Pd 及び Zr が TDdDGA に抽出されるのを防ぐため、HEDTA 及び過酸化水素の添加が有効であることも示されている [2.1.2-1)]。

MA・RE 一括回収プロセスにおける TDdDGA の適用性を評価するため、NUCEF のコンクリートセル内に設置されているミキサセトラ抽出器を使用した連続抽出試験を行った [2.1.2-2)]。この試験では 1 器あたり 20 段のミキサ部及びセトラ部を持つミキサセトラ抽出器を 2 器使用した。硝酸濃度 2.1 M に調整した HLLW（コンクリートセル貯槽内の実廃液）に含まれる MA 及び RE をドデカンで 0.1 M に希釈した TDdDGA で抽出した。その後、0.02 M の硝酸で TDdDGA に抽出した MA 及び RE を逆抽出し、MA-RE フラクションとして回収した。積算の試験時間は 10 時間であり、1 日あたり 5 時間の試験を連続する 2 日間で行った。

MA-RE フラクションへの MA 及び RE の移行率は 98.2%（Am）、99.9%（Cm）、94.0%（Y）、99.9%（La）、99.9%（Nd）及び 86.9%（Eu）であり、おおむね想定どおりの移行率が得られた。なお、抽出分離計算コード PARC（Program for Advanced Extraction Process with Radiation Effect Calculation）コード [2.1.2-3, 4)]で得た MA-RE フラクションへの MA 及び RE の移行率の計算値は 99.9%（Am）、99.9%（Cm）、99.7%（Y）、99.9%（La）、99.9%（Nd）及び 99.9%（Eu）であり、Y 及び Eu 以外の元素に対してプロセスの分離能力の推定に PARC コードが有用であることが示された。

Sr、Cs、Zr、Mo、Ru、Rh 及び Pd は TDdDGA にほとんど抽出されず、いずれも 98%以上が抽出残液に移行した。一連の連続抽出試験において第三相や析出物の発生は観察されず、セトラ部における有機相と水相の界面の安定性も良好であり、抽出試験装置の運転は安定的に行われた。ホットセルでの実廃液試験において、MA 及び RE とその他の元素との分離がなされており、MA・RE 一括回収プロセスにおける抽出剤として TDdDGA の適用性を支持する結果が得られた。

参考文献

2.1.2-1) Y. Morita, Y. Sasaki, T Asakura, et al., “Development of a new extractant and a new extraction process for minor actinide separation”, IOP Conf. Series, vol.9, (2010) pp.1-11.

2.1.2-2) Y. Ban, H. Suzuki, S. Hotoku, et al., “Extraction of Trivalent Rare Earths and Minor Actinides from Nitric Acid with *N′,N′,N″,N″*-Tetradodecyldiglycolamide (TDdDGA) by Using Mixer-Settler Extractors in a Hot Cell”, Solvent Extr. Ion Exch. vol.37, (2019) pp.27-37.

2.1.2-3) 津幡靖宏, 朝倉俊英, 森田泰治, “再処理抽出分離工程シミュレーションコード PARC

の開発”, JAEA-Data/Code 2008-010, (2008), 145p.

2.1.2-4) 津幡靖宏, 朝倉俊英, 森田泰治, “再処理抽出分離工程シミュレーションコード PARC の開発”, 日本原子力学会和文論文誌, vol.8, no.3, (2009) pp.211-220.

2.1.3 HONTA による MA/RE 相互分離試験

RE の中には中性子吸収断面積の大きい同位体を持つものがあるため、ADS（Accelerator Driven System）等による MA の核変換を十分な効率で行うには、MA と RE の相互分離（MA/RE 相互分離）が必要である。これまでに研究が進められてきた MA/RE 相互分離プロセスではリン又は硫黄を含む試薬の使用が検討されている。例えば、TALSPEAK（Trivalent Actinide Lanthanide Separation with Phosphorus-Reagent Extraction from Aqueous Komplexes）プロセスではランタノイドの抽出剤として HDEHP（ジ-2-エチルヘキシルリン酸）を使用し[2.1.3-1)]、i-SANEX（innovative Selective ActiNide EXtraction）プロセスでは Am 及び Cm の逆抽出剤としての SO_3-Ph-BTP（2,6-ビス(5,6-ジ(スルフォフェニル)-1,2,4-トリアジン-3-イル)ピリジン）を使用している[2.1.3-2)]。

リン又は硫黄を含む試薬は完全焼却処分が不可能であるため、二次廃棄物発生量低減の観点から炭素、水素、酸素及び窒素から構成された完全焼却処分が可能な抽出剤の研究開発が進められてきた。HONTA は RE と比較して Am 及び Cm に対する選択的抽出能力が高く、錯形成剤等を使用せずに硝酸濃度の調整だけで MA/RE 相互分離が達成できる可能性を示唆する結果が一段のバッチ抽出試験で得られている[2.1.3-3, 4)]。

MA/RE 相互分離プロセスにおける HONTA の適用性を評価するため、NUCEF のコンクリートセル内に設置されているミキサセトラ抽出器を使用した連続抽出試験を行った[2.1.3-5)]。使用したミキサセトラ抽出器は前述した TDdDGA による MA・RE 一括回収プロセス試験で用いたものと同じである。TDdDGA による MA・RE 一括回収プロセス試験で回収した MA-RE フラクションの硝酸濃度を 0.08 M に調整し、これを MA/RE 相互分離プロセス試験のフィード液として使用した。このフィード液中の MA をドデカンで 0.05 M に希釈した HONTA で抽出した後、1.0 M 硝酸で逆抽出し、MA フラクションとして回収した。積算で 14 時間の試験を 3 日間（1 日目 1.5 時間、2 日目 6.0 時間、3 日目 6.5 時間）に分けて実施した。MA フラクションへの Am 及び Cm の移行率はそれぞれ 94.9%及び 78.9%であった。一方、RE は HONTA にはほとんど抽出されず、ラフィネートへの RE の移行率として 99.9（Y）、99.9%（La）、83.5%（Nd）及び 96.7%（Eu）が得られ、MA 及び RE ともに想定にどおりの挙動を示した。

ラフィネート及び MA フラクションにおける Y、La、Nd、Eu、Am 及び Cm の濃度の実験値及び PARC コードで得た計算値をそれぞれ Table 2.1.3-1 及び Table 2.1.3-2 に示す。今回の MA/RE 相互分離試験では、RE 及び MA をラフィネート及び MA フラクションにそれぞれ回収することを目的としている。ラフィネートにおける RE 及び MA フラクションにおける MA の濃度の実験値と計算値はほぼ類似した値を示した。このことから、PARC コードの適用により HONTA を用いた MA/RE 相互分離プロセスの分離能力の見積もりが可能であることを示している。

一連の連続抽出試験において第三相や析出物の発生は観察されず、セトラ部における有機相と水相の界面の安定性も良好であり、抽出試験装置の運転は安定的に行われた。ホットセルでの実廃液試験において、MA と RE の相互分離ができる結果が得られており、MA/RE 相互分離プロセスにおける抽出剤として HONTA が適用性を持つことが示された。

参考文献

2.1.3-1) B. Moyer, G. Lumetta, B. Mincher, “Minor Actinide Separation in the Reprocessing of Spent Nuclear Fuels: Recent Advances in the United States. In Reprocessing and Recycling of Spent Nuclear Fuel”, Taylor, R., Ed., Woodhead Publishing, Oxford, (2015) pp.289-312.

2.1.3-2) D. Magnusson, A. Geist, R. Malmbeck, et al., “Flow-Sheet Design for an Innovative SANEX Process Using TODGA and SO_3-Ph-BTP. Procedia Chemistry”, vol. 7, (2012) pp.245-250.

2.1.3-3) Y. Sasaki, Y. Tsubata, Y. Kitatsuji, et al., “Novel Soft-Hard Donor Ligand, NTAamide, for Mutual Separation of Trivalent Actinoids and Lanthanoids”, Chem. Lett., vol. 42, (2013) pp.91-92.

2.1.3-4) Y. Sasaki, Y. Tsubata, Y. Kitatsuji, et al., “Novel Extractant, NTAamide, and Its Combination with TEDGA for Mutual Separation of Am/Cm/Ln”, Solvent Extra. Ion Exch., vol. 32, (2014) pp.179-188.

2.1.3-5) Y. Ban, H. Suzuki, S. Hotoku, et al., “Minor actinides separation by *N,N,N′,N′,N″,N″*-hexaoctyl nitrilotriacetamide (HONTA) using mixer-settler extractors in a hot cell”, Solvent Extra. Ion Exch., vol. 37, (2019) pp.489-499.

Table 2.1.3-1　ラフィネートにおける RE 及び Am の濃度の実験値及び計算値 [mol/L]

	Y	La	Nd	Eu	Am	Cm
実験値	5.2×10^{-5}	1.6×10^{-4}	3.4×10^{-4}	1.9×10^{-5}	3.6×10^{-6}	1.2×10^{-6}
計算値	5.6×10^{-5}	1.6×10^{-4}	4.4×10^{-4}	2.1×10^{-5}	4.0×10^{-7}	7.1×10^{-7}

Table 2.1.3-2　MA フラクションにおける RE 及び Am の濃度の実験値及び計算値 [mol/L]

	Y	La	Nd	Eu	Am	Cm
実験値	未検出	1.6×10^{-7}	7.2×10^{-5}	6.9×10^{-7}	7.5×10^{-5}	4.7×10^{-6}
計算値	2.2×10^{-10}	1.1×10^{-8}	7.6×10^{-5}	4.6×10^{-7}	7.7×10^{-5}	6.4×10^{-6}

2.1.4 PARC コードを用いたシミュレーション計算

MA 及び RE の分離挙動の観点から、MA 分離プロセスの技術的成立性の評価を行うため、PARC コードを使用しシミュレーション計算を行った。計算対象としたプロセスの構成は、DEHDMPA（*N,N*-ジ(2-エチルヘキシル)-2,2-ジメチルプロパンアミド）による U 選択的分離（ステップ 1）、DEHBA（*N,N*-ジ(2-エチルヘキシル)ブタンアミド）による U・Pu 回収（ステップ 2）、TDdDGA による MA・RE 回収（ステップ 3）及び HONTA による MA/RE 分離（ステップ 4）である。このプロセスのフローシートを Fig. 2.1.4-1 に示す。計算対象にした元素のフィード 1 における濃度を Table 2.1.4-1 に示す。なお、フィード 1 の酸濃度は 4.0 M である。

ステップ 1 のミキサセトラ 1 において、6 価の U に対する選択的抽出能力を持つ DEHDMPA 適用してフィード 1 に含まれる U の大部分を他の元素から分離する。DEHDMPA で抽出した U はミキサセトラ 2 で逆抽出し、U フラクションとして回収する。

ラフィネート 1 をステップ 2 のフィード液としてミキサセトラ 3 に供給する。ここでは 6 価の U 及び 4 価の Pu に対して抽出能力を持つ DEHBA を抽出剤として、他の元素から分離する。DEHBA で抽出した U 及び Pu はミキサセトラ 4 で逆抽出し、U-Pu フラクションとして回収する。ステップ 1 で U の全量を U フラクションとして回収せずに、U-Pu フラクションに移行させることにより、Pu の単離を回避する。

酸濃度調整のため 1.5 倍に希釈したラフィネート 2 をステップ 3 のフィード液としてミキサセトラ 5 に供給する。ここでは TDdDGA を抽出剤に用いて MA と RE のみを一括して抽出し、MA-RE フラクションに回収する。この MA-RE フラクションを酸濃度調整のため 2.7 倍に希釈し、ステップ 4 のフィード液としてミキサセトラ 7 に供給する。ここでは HONTA を抽出剤に用いて MA を抽出し、RE と分離する HONTA で抽出した MA をミキサセトラ 8 で逆抽出し、MA フラクションとして回収する。フィード 1 中の元素の各排出液への移行率を Table 2.1.4-2 に示す。U の U フラクション及び U-Pu フラクションへの移行率はそれぞれ 95.87%及び 4.13%であった。また、Pu の U-Pu フラクションへの移行率は 99.99%であった。U 及び Pu はいずれもほぼ全量が所定のフラクションに移行した。さらに、U-Pu フラクションにおける U と Pu の濃度比は 0.95 であり、Pu の単離も避けられている。MA 及び RE のステップ 1、ステップ 2 及びステップ 3 の排出液中の移行率はいずれも 0.01%未満であり、ほぼ全量がステップ 4 に入った。ステップ 4 の MA フラクションへの Am 及び Cm の移行率はそれぞれ 99.8%以上及び 89%であり、ラフィネート 4 への RE の移行率はいずれも 99.9%以上であった。

計算精度の向上を図るための基礎データの拡充及びそれに基づいたフローシートの改良は必要であるが、既存の知見に基づくシミュレーション計算により MA の分離回収の技術的成立性を支持する結果を得た。

Table 2.1.4-1　計算対象にした元素のフィード 1 における濃度［mol/L］

U	Pu	Am	Cm	Y	La	Nd	Eu
0.84	3.7×10^{-2}	3.8×10^{-3}	6.9×10^{-4}	7.3×10^{-4}	2.4×10^{-3}	7.2×10^{-3}	3.8×10^{-4}

Table 2.1.4-2　各排出液への移行率［%］

排出液の名称	U	Pu	Am	Cm	Y	La	Nd	Eu
U フラクション	95.87	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
逆抽出済溶媒 1	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
U-Pu フラクション	4.13	99.99	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
逆抽出済溶媒 2	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
ラフィネート 3	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
逆抽出済溶媒 3	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
ラフィネート 4	<0.01	<0.01	0.13	10.72	>99.99	>99.99	99.31	99.98
MA フラクション	<0.01	<0.01	99.86	89.28	<0.01	<0.01	0.69	0.02
逆抽出済溶媒 4	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01

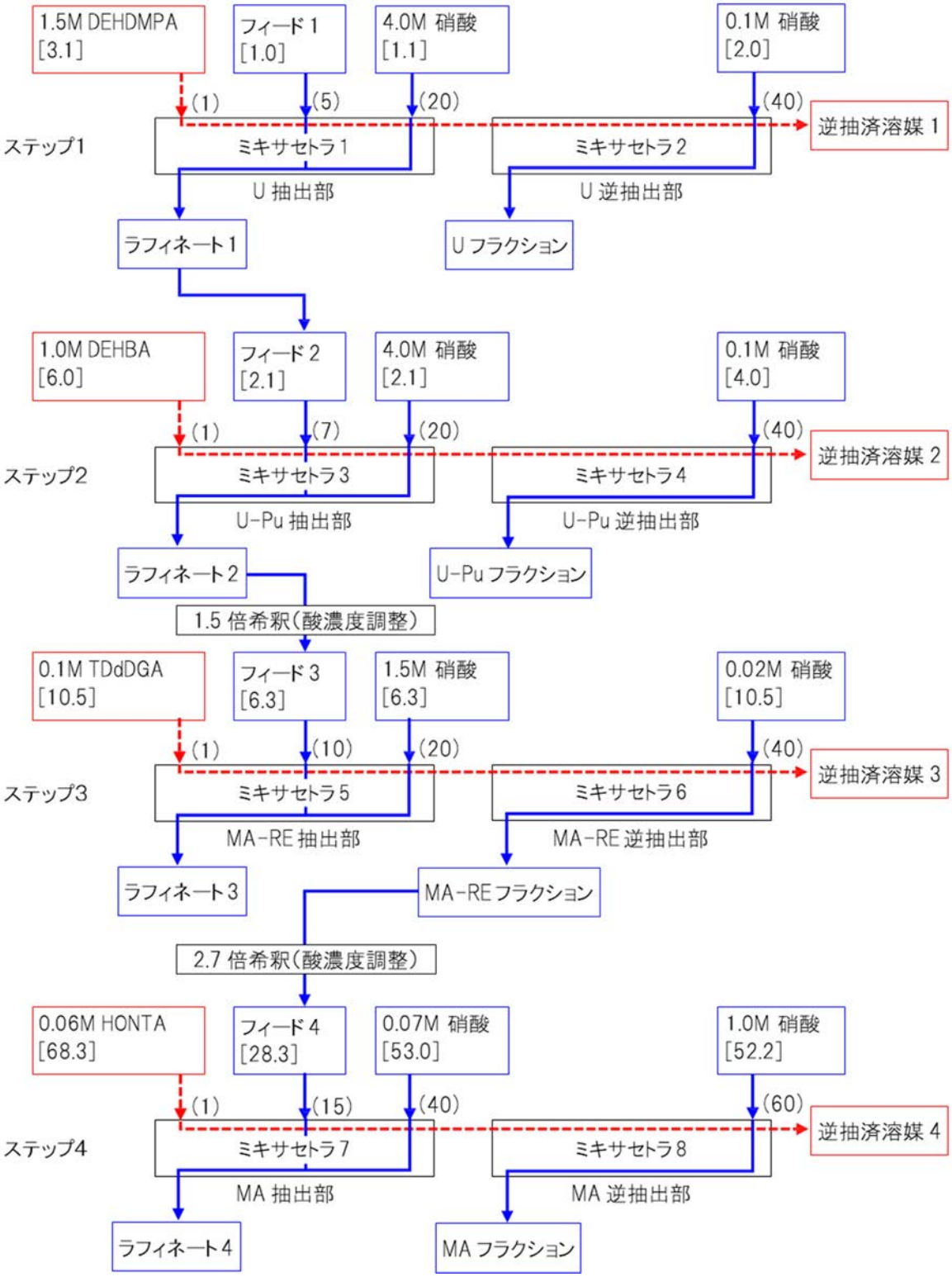


Fig. 2.1.4-1　PARC コードによるシミュレーション計算を行ったフローシート
破線は有機相の流れ、実線は水相の流れを示す。( )内の数字は段数を示す。[ ]内の数字はステップ 1 のフィードの流量を 1.0 とした場合の各溶液の流量を示す。

2.1.5 抽出溶媒の放射線影響評価

HLW から MA を分離回収するプロセスの工学規模への展開に向けて、放射線影響評価は必須である。その理由としては、抽出剤が放射線分解する、あるいは分解物が抽出反応を阻害することによる分離効率の低下が懸念されるためである。また分解物の影響により、水相や有機相に混ざらない第三相を形成すること、あるいは揮発性ガスが生成することは安全性の低下を招くことから、安全研究の一環としても MA 分離プロセスを対象とする放射線化学研究を進めてきた。

HLW は、使用済燃料の硝酸溶液等への溶解液であり、さらに PUREX（Plutonium Uranium Redox Extraction）法等によるウラン及びプルトニウムの再処理工程を経て排出される廃液であると想定される。つまり MA 分離プロセスで考慮する必要のある放射線は、この HLW に溶存する種々の放射性核種から放出される放射線である。よって、^{244}Cm（半減期: 18.1 y）や ^{241}Am（半減期: 433 y）等の MA から放出されるアルファ線の他に、核分裂生成物である ^{90}Sr（半減期: 28.8 y）やその娘核種である ^{90}Y（半減期: 64.0 h）、^{137}Cs（半減期: 30.1 y）等から放出されるベータ線、及び ^{137}Cs の娘核種である ^{137m}Ba（半減期: 2.55 min）や ^{154}Eu（半減期: 8.59 y）、^{134}Cs（半減期: 2.07 y）等から放出されるガンマ線といった様々な線質の放射線を取り扱う必要がある。線質やその初期エネルギーが異なれば、放射線の物質中での飛程が変化する。MA 核種から放出される 5 MeV 程度のエネルギーのアルファ線は、HLW や分離に用いる抽出溶媒中をおよそ 40 μm 程度しか透過しない。一方、ベータ線は、そのエネルギーに応じて、0.5–10 mm、ガンマ線はおよそ 1 m 程度、溶液中を進行する。したがって、放射線影響を明らかにするうえで鍵となる放射線量を評価するには、HLW 中の核種から放出される放射線エネルギーが、どのような割合で抽出溶媒に吸収されるかが重要であり、その割合を求めるには放射線の透過力を、抽出に用いる抽出器のサイズや形状、あるいは有機相と水相を攪拌混合時に生じるエマルションなどの局所構造と比較する必要がある。抽出工程での有機相と水相の攪拌状態の顕微観察から、機械攪拌型ミキサセトラ抽出器内でのエマルション中の液滴径は数十から数百 μm の分布を持つこと [2.1.5-1)]、パルスカラム型抽出器では数 mm サイズであること [2.1.5-2)]が報告されている。また分離に用いる抽出器のサイズは、試験研究に用いられるミリリットル処理スケールのミキサセトラ抽出器で数 cm 程度、プラントなどのリットル処理スケールのミキサセトラ抽出器で数十 cm 程度である。つまりこれらのサイズは、それぞれの放射線の飛程と同等であるといえる。しかし従来の解析的手法による線量計算では、特殊形状の溶媒抽出装置やエマルション構造に対する放射線の透過を考慮することが難しく、Tachimori らにより提案された①アルファ線はその線源が存在した相内にすべてのエネルギーを付与する、②ベータ線はエマルション内に均質にエネルギーを付与するが、抽出器からエネルギーは漏出しない、③ガンマ線は抽出器からすべてのエネルギーが漏出するという近似 [2.1.5-3)]がこれまで多くの線量評価にて用いられてきた。これに対し、本研究では、モンテカルロ法による粒子や光子の輸送計算が可能な PHITS コード [2.1.5-4)]を活用し、この近似を検証した。エマルション構造に対する放射線の透過力を検討するために、エマルション中に存在する単一の液滴に注目して、液滴周りは有機相と水相が均質に分散していると仮定する液滴モデルを用いた。単一の液滴に注目すると、液滴の吸収線量は、液滴内部から放出される放射線による寄与と、液滴外部からの放射線によ

る寄与の和から得られる。しかし液滴外部からの寄与を考慮するには放射線の飛程よりも十分に大きいサイズの計算領域を設ける必要がある。液滴径に対して放射線の飛程が非常に大きい場合、モンテカルロ法では、液滴内を透過する放射線の統計量を十分に得ることは困難であった。そこで計算コストを低減させるために、反射境界条件を用いる手法を考案した[2.1.5-5)]。Fig. 2.1.5-1 に考案した手法の概念図を示す。この手法では、放射線の飛程に関わらず、液滴を完全に内包する程度の領域を計算対象とした。この計算領域の外部から侵入する放射線については、あらかじめ計算領域より少し大きな領域の境界に反射壁を設置し、液滴のない条件で放射線輸送計算を行い、計算領域境界を内側へ侵入する放射線粒子の位置と運動量ベクトルを記録することで見積もった（Fig. 2.1.5-1 (a)）。液滴の吸収線量は、計算領域境界からの放射線（Fig. 2.1.5-1 (b)）、および計算領域内の液滴外（Fig. 2.1.5-1 (c)）、液滴内（Fig. 2.1.5-1 (d)）からの放射線の輸送計算を行うことで求めた。この手法を用いることで、効率的な計算が実現し、様々な核種や溶媒組成、液滴径をパラメータとする繰り返し計算が可能となった。この手法を用いてアルファ線を放出する核種が液滴内に存在する場合の線量値を求めたところ、機械攪拌型抽出器内で顕微観測された液滴径領域では、例えば液滴径が 100 μm であれば 23%のアルファ線エネルギーが滴外へ漏れることが分かった。つまり従来のアルファ線エネルギーが滴外にもれない前提で行われた線量評価が過大評価である可能性を示唆した。一方、ベータ線については、同様の液滴径領域であれば、エマルション内に均質にエネルギーを付与するという従来近似を支持する試算結果が得られた。しかし液滴径が、パルスカラム型抽出器にみられる mm サイズになると、液滴を透過しにくくなることも分かった。MA 分離プロセスにおける抽出溶媒の吸収線量は、ベータ線量がアルファ線量やガンマ線量に比べて高いことがこれまでに示されている。つまり、抽出溶媒が ^{90}Sr や ^{90}Y などのベータ線放出核種を抽出する場合、機械攪拌型よりもパルスカラム型抽出器の方が、吸収線量値が高くなることが示唆された。また抽出器サイズについても検討したところ、ミリリットル処理スケールの抽出器（攪拌部:1×1×6 cm）であれば、ほぼすべてのガンマ線エネルギーが漏出する従来近似が成り立つが、リットル処理スケールの抽出器（攪拌部:30×30×30 cm）では、ガンマ線エネルギーはおよそ 1/3 程度抽出器内に留まることも分かった。HLW 中から放出されるガンマ線エネルギー量は、ベータ線エネルギー量とほぼ同等である。つまり、MA の大量処理を行う上では、ガンマ線の考慮が不可欠であることを示している。これらの検討から、放射線影響を評価する上で抽出器のサイズや形状、攪拌方法などを考慮する重要性を示した。

抽出溶媒に放射線エネルギーが付与された際に、抽出剤が放射線分解する過程として、抽出剤分子そのものに直接エネルギー付与され抽出剤分子が電離/励起することによって分解に至る直接過程と、希釈剤として用いるドデカン分子などの電離/励起によって生じるラジカルが抽出剤と反応する間接過程が考えられる。この放射線分解メカニズムについて、パルスラジオリシス法[2.1.5-6)]による時間分解計測により検討した。MA 分離に用いる DGA や NTA アミド（ニトリロトリアセトアミド）抽出剤に直接放射線を照射した際に、ナノ秒時間領域において 300–400 nm の波長域に吸収をもつ放射線分解生成物が観測された。Sugo らは、TODGA 中で観測されたこの吸収について、カチオン生成溶媒であるジクロロメタン中では増大し、アニオン生成溶媒であるテトラヒドロフラン中では減少したことから、TODGA の放射線分解で観測され

た活性種がカチオン性であることを見出し、抽出剤のラジカルカチオンであると結論付けた [2.1.5-7]。一方、本研究では、ナノ秒時間領域で観測されたこの吸収には 2 つの成分が存在することを、特異値分解を用いたスペクトル解析結果から見出し、100 ns 程度の寿命で消滅するラジカルカチオンの他に、マイクロ秒以上の寿命を持つ長寿命種が存在することが分かった。この長寿命種は、酸素飽和化での照射実験において、酸素との反応による減衰速度の増加がみられたことから、抽出剤の三重項励起状態であることが示唆された [2.1.5-8]。ラジカルカチオンは、放射線による抽出剤分子の電離によって生じたものであり、三重項励起状態は、放射線による抽出剤分子の励起、もしくは電離によって生じたラジカルカチオンと電子の再結合反応によって生じたものである可能性が考えられる。またドデカン希釈溶液中においても、これら 2 種の活性種が観測され、ドデカンの電離由来の間接効果による生成が示唆された。またドデカンの電離によって生じるドデカンのラジカルカチオンの挙動解析結果から、ドデカンのラジカルカチオンは抽出剤分子と反応することが証明され [2.1.5-9]、その反応速度定数は、TODGA で 1×10^{10} $dm^3/mol/s$ [2.1.5-10]、HONTA で 8×10^9 $dm^3/mol/s$ [2.1.5-8]であると報告されている。つまり、SELECT プロセスの MA 分離工程で用いる溶媒中の抽出剤濃度が～0.1 M であることを考えると、ドデカンの電離で生じるラジカルカチオンの一部は、電子と再結合する前に抽出剤分子と反応することで、間接効果を引き起こすと考えられる。これらの検討から、抽出剤の放射線分解を明らかにするうえで、直接効果及び間接効果によって生じる抽出剤のラジカルカチオン及び三重項励起状態が重要な役割を担うことが示された。

SELECT プロセスで用いる溶媒中の抽出剤の線量当たりの放射線分解量や、分解生成物の収量、及びそれに伴う金属抽出能変化は、^{60}Co から放出されるガンマ線を用いて検討した。米国アイダホ国立研究所で開発された溶媒テストループ [2.1.5-11]を用いて、HONTA を用いる MA/RE プロセスを対象として、有機相（0.1 M HONTA/ドデカン溶液）と水相（0.1 M 硝酸水溶液）の攪拌混合下での放射線影響を調べたところ、溶媒中の HONTA の濃度は線量に対して指数関数的に減少する傾向が観測された。この指数関数的な減少は、単位放射線量当たりの HONTA の分解量が HONTA の濃度に比例することを表しており、パルスラジオリシス法から得られた直接効果及び間接効果に関する議論とも定性的に一致する。線量に対する指数関数的な HONTA の濃度減少を特徴づける線量定数 [2.1.5-12]は 4.5×10^{-3} kGy^{-1} と求められた [2.1.5-8]。TODGA を用いる MA+RE 一括回収プロセス条件における線量定数は 5.4×10^{-3} kGy^{-1} と報告されており [2.1.5-13]、両抽出剤の放射線耐性には大きな違いがないことがわかった。一方、HONTA の放射線分解によって、20 種類を超える様々な分解物が生じることが、液体クロマトグラフ質量分析（LC/MS 分析）結果からわかった [2.1.5-8]。このうち、最も多く観測されたジオクチルアミン（DOA）は、HONTA 分子中のアミド結合の切断による生成物と考えられる。DOA は、TODGA の放射線分解生成物であることも知られており [2.1.5-14]、TODGA とは異なる元素抽出挙動を示すことも報告されている [2.1.5-15]。つまり、DOA を含めた多様な分解物が、非目的元素を抽出する、もしくは HONTA による元素抽出を阻害することが懸念される。そこで実際にガンマ線照射された溶媒を用いて、Am 及び Eu のバッチ試験を実施したところ、低線量領域（<100 kGy）では分配比がほとんど変化せず、100 kGy を超えると分配比が減少する、“誘導期”のような現象が観測された [2.1.5-8]。これは線量に対する HONTA の濃度変化と異なる傾向であり、HONTA

の分解に対して、生成した分解生成物が Am や Eu と錯形成する、もしくは分解物が HONTA による元素抽出機構に協同効果をもたらす可能性を示唆した。

本研究では、分離プロセスにおける抽出溶媒の吸収線量及び放射線エネルギー付与に伴う抽出効率変化を定量化した。この結果、分離プロセスにおける放射線影響を、その分離プロセス条件に基づいて検討することが可能となった。

参考文献

2.1.5-1) T. Shimogouchi, H. Naganawa, T. Nagano, et al, “Size Distribution of Droplets in Two Liquid-phase Mixture Compared between Liquid Spraying and Mechanical Stirring”, Anal. Sci., vol. 35, (2019) pp.955-960.

2.1.5-2) A. Amokrane, S. Maass, F. Lamadie, et al., “On Droplets Size Distribution in a Pulsed Column. Part I: In-situ Measurements and Corresponding CFD-PBE Simulations”, Chem. Eng. J., vol. 296, (2016) pp.366-376.

2.1.5-3) S. Tachimori, H. Nakamura, “Radiation Damage of Organic Extractant in Partitioning of High-Level Liquid Waste, (II); Calculation of Radiation Dose Absorbed in Organic-Solvent in Extraction Process”, J. Nucl. Sci. Technol., vol. 16, (1979) pp.363-370.

2.1.5-4) T. Sato, Y. Iwamoto, S. Hashimoto, et al., “Features of Particle and Heavy Ion Transport Code System (PHITS) Version 3.02”, J. Nucl. Sci. Technol., vol. 55, (2018) pp.684-690.

2.1.5-5) T. Toigawa, Y. Tsubata, T. Kai, et al., “Re-evaluation of Radiation-Energy Transfer to an Extraction Solvent in a Minor-Actinide-Separation Process Based on Consideration of Radiation Permeability”, Solvent Extr. Ion Exch., vol. 39, (2021) pp.74-89.

2.1.5-6) K. Hata, M. Lin, Y. Katsumura, et al., ”Pulse Radiolysis Study on Free Radical Scavenger Edaravone (3-methyl-1-phenyl-2-pyrazolin-5-one). 2: A Comparative Study on Edaravone Derivatives”, J. Radiat. Res., vol. 52, (2011) pp.15-23.

2.1.5-7) Y. Sugo, Y. Izumi, Y. Yoshida, ”Influence of Diluent on Radiolysis of Amides in Organic Solution. Radiat”, Phys. Chem., vol. 76, (2007) pp.794-800.

2.1.5-8) T. Toigawa, D. R. Peterman, D. S. Meeker, et al., “Radiation-Induced Effects on the Extraction Properties of Hexa-n-octylnitrilo-triacetamide (HONTA) Complexes of Americium and Europium”, Phys. Chem. Chem. Phys., vol. 23, (2021) pp.1343-1351.

2.1.5-9) S. P. Mezyk, B. J. Mincher, S. B. Dhiman, et al., “The Role of Organic Solvent Radical Cations in Separations Ligand Degradation”, J. Radioanal. Nucl. Chem., vol. 307, (2016) pp.2445-2449.

2.1.5-10) C. A. Zarzana, G. S. Groenewold, B. J. Mincher, et al., “A Comparison of the γ-Radiolysis of TODGA and T(EH)DGA Using UHPLC-ESI-MS Analysis”, Solvent Extr. Ion Exch., vol. 33, (2015) pp.431-447.

2.1.5-11) D. Peterman, A. Geist, B. Mincher, et al., “Performance of an i-SANEX System Based on a Water-Soluble BTP under Continuous Irradiation in a γ-Radiolysis Test Loop”,

Ind. Eng. Chem. Res., vol. 55, (2016) pp.10427-10435.

2.1.5-12) B. J. Mincher, R. D. Curry, “Considerations for Choice of a Kinetic fig. of Merit in Process Radiation Chemistry for Waste Treatment”, Appl. Radiat. Isot., vol. 52, (2000) pp.189-193.

2.1.5-13) G. P. Horne, C. A. Zarzana, C. Rae, et al., “Does Addition of 1-octanol as a Phase Modifier Provide Radical Scavenging Radioprotection for *N,N,N’,N’*-tetraoctyldiglycolamide (TODGA)?”, Phys. Chem. Chem. Phys., vol. 22, (2020) pp.24978-24985.

2.1.5-14) Y. Sugo, Y. Sasaki, S. Tachimori, ”Studies on Hydrolysis and Radiolysis of N,N,N’,N’-tetraoctyl-3-oxapentane-1,5-diamide”, Radiochim. Acta, vol. 90, (2002) pp.161-165.

2.1.5-15) A. M. Al-Ani, F. M. Masoud, “A Comparison of the Extraction Capacity of Trioctylamine and Its Radiolytic Products Dioctylamine and Primary Octylamine for the Elements U(VI), Mo(VI), Zr(IV) and Sr(II)”, Hydrometallurgy, vol. 9, (1982) pp.211-214.

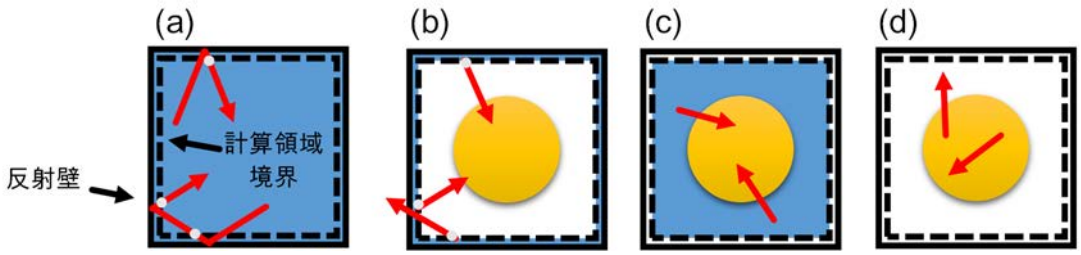


Fig. 2.1.5-1　反射境界壁を用いた液滴中の放射線量評価手法

2.1.6 遠心抽出器の適用

溶媒抽出の連続的な操作を可能とする代表的な装置として、ミキサセトラやパルスカラムがこれまで多くの再処理プラントで用いられてきた。これらの装置においては溶媒抽出における二相の分離が重力によって行われるが、遠心抽出器[2.1.6-1)]（Fig. 2.1.6-1）では二相の分離が遠心力により行われ素早い処理が可能となる。これにより小型化が可能で臨界安全性が高いといったメリットがあり、JAEA では Pu 濃度が高く臨界管理がよりシビアになる高速炉燃料の再処理に向けた開発が進められてきた。遠心抽出器は相分離性が高いことから、従来の再処理 PUREX 法において用いられてきた TBP（リン酸トリブチル）／硝酸系出だけでなく、相分離が困難な新たな抽出剤や、よりシビアな油水分離条件においても溶媒抽出操作を可能とするものと期待される。同様に、現在開発中の様々な溶媒抽出法による MA 分離時においても、遠心抽出器を適用することで、将来的なプラントにおける設置場面積の低減も期待される。

遠心抽出器による MA 分離に係る試験としては、SELECT プロセス[2.1.6-2, 2.1.6-3)]のうち MA+RE（希土類元素）を一括回収するために開発された TDdDGA 溶媒を対象とした試験を実施した[2.1.6-4, 2.1.6-5)]。模擬 HLLW としては、RE+FP（核分裂生成物）元素として代表的な RE（Y、La、Nd、Eu）及び FP（Sr、Zr、Mo、Ru、Rh、Pd、Cs、Ba）元素を使用した。本試験では、ロータ径 27 mm の小型遠心抽出器を対象に 16 段／1 バンクの多段型遠心抽出器を計 2 バンク使用した（Fig. 2.1.6-2）。

TDdDGA 溶媒を対象とした遠心抽出器による向流多段抽出／逆抽出試験では、相分離性に関する異常（エントレインメント）やオーバーフロー等は発生せず、溶媒抽出操作が可能であることを示した。Fig. 2.1.6-3 にフローシートの一例[2.1.6-4)]を示す。抽出、逆抽出性能としては、RE 元素のほとんどがプロダクト中に移行するとともに、FP 元素が除染される様子が確認された。また、ミキサセトラと比較した場合に遠心抽出器においても同等以上の RE 抽出性能が得られる一方、逆抽出性能については、条件によって低下する様子が確認された。Fig. 2.1.6-4 にフローシート試験結果一例[2.1.6-5)]を示す。これらは、溶媒抽出系における装置固有の混合状態（分散相の液滴径）や短い滞留（油水混合）時間の違いが要因と考えられた。

溶媒抽出法による MA 分離システムの確立に向けては、これらの違いを速度論的要因も踏まえて把握していくことが重要となる。溶媒抽出系における物質移動は一般に（2.1.6-1）式で示されることから、これに必要な値として物質移動係数 β の評価を単一液滴法により進めた[2.1.6-6)]。Fig. 2.1.6-5 に試験装置を示す。

$$\frac{dC_o}{dt} = \frac{A}{V_o}\beta(kC_w - C_o) \qquad (2.1.6\text{-}1)$$

C_o ：有機相中溶質濃度
A ：接触面積
V_o ：有機相体積
β ：物質移動係数
k ：分配係数
C_w ：水相中溶質濃度

得られた物質移動係数の値から（2.1.6-1）式を用いた計算により濃度プロファイルを求めた

ところ、実際の向流多段抽出／逆抽出試験の結果に対して概ね一致することが確認された。Fig. 2.1.6-6 に一例[2.1.6-6)]を示す。

以上のことから、物質移動係数を求めることによる評価も駆使していくことで、溶媒抽出法による MA 分離システムの確立を促進できるとともに、遠心抽出器を用いることでコンパクトなプラントを実現可能とするものと期待される。

参考文献

2.1.6-1）T. WASHIYA, M. TAKEUCHI, H. OGINO, et al., “Development of Centrifugal Contactor System in JNC”, Proceedings of GLOBAL 2005, Paper No. 305, (2005).

2.1.6-2）日本原子力研究開発機構, 「放射性のゴミを分別する「SELECT プロセス」の開発に成功～高レベル放射性廃液の有害度低減・減容化を目指す分離変換技術の開発に進展～」, 研究開発成果関連（2019 年度）プレス発表, https://www.jaea.go.jp/02/press2019/p19042401/,（accessed 2021/3/1）.

2.1.6-3）Y. Ban, H. Suzuki, S. Hotoku, et al., “Extraction of Trivalent Rare Earths and Minor Actinides from Nitric Acid with *N,N,N′,N′*-Tetradodecyldiglycolamide (TDdDGA) by Using Mixer-Settler Extractors in a Hot Cell”, Solvent Extr. Ion Exch., vol.37, (2019) pp.27-37.

2.1.6-4）木部智, 藤咲和彦, 安倍弘, 他, “遠心抽出器による TDdDGA 溶媒系での向流多段抽出／逆抽出試験”, JAEA-Research 2015-021, (2016), 40p.

2.1.6-5）木部智, 藤咲和彦, 坂本淳志, 他, “遠心抽出器による TDdDGA 溶媒系での向流多段抽出／逆抽出試験（2）－改良型 MA 回収フローシートを対象とした評価－”, JAEA-Research 2016-024, (2017), 40p.

2.1.6-6）坂本淳志, 木部智, 川野邊一則, 他, “MA 回収プロセスにおける物質移動係数評価試験－単一液滴法を用いた評価－”, JAEA-Research 2021-003, (2021), 30p.

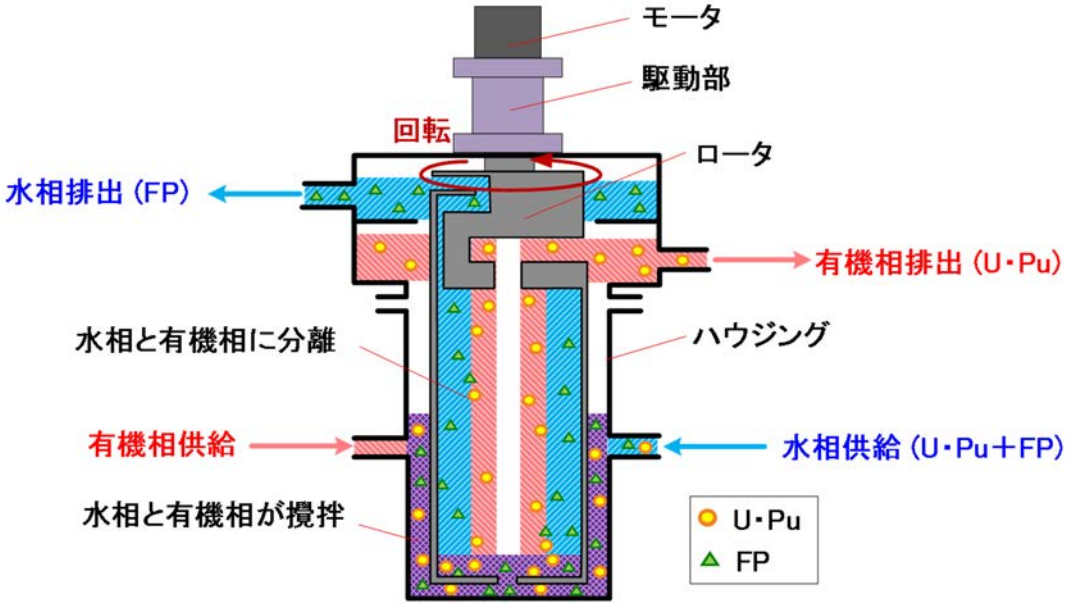


Fig. 2.1.6-1　遠心抽出器の構造（抽出時の概略）

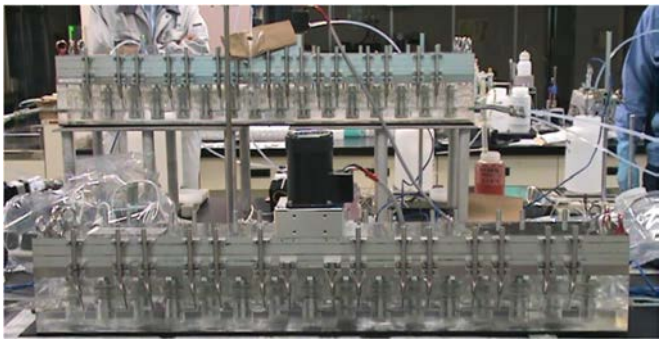


Fig. 2.1.6-2　試験に使用した小型遠心抽出器（16 段／1 バンク）計 2 バンク

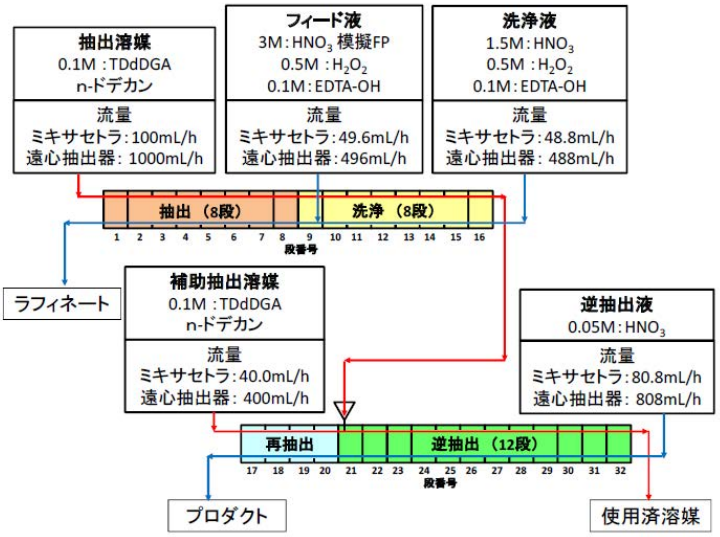


Fig. 2.1.6-3　TDdDGA 系溶媒における遠心抽出器フローシート条件 [2.1.6-3)]

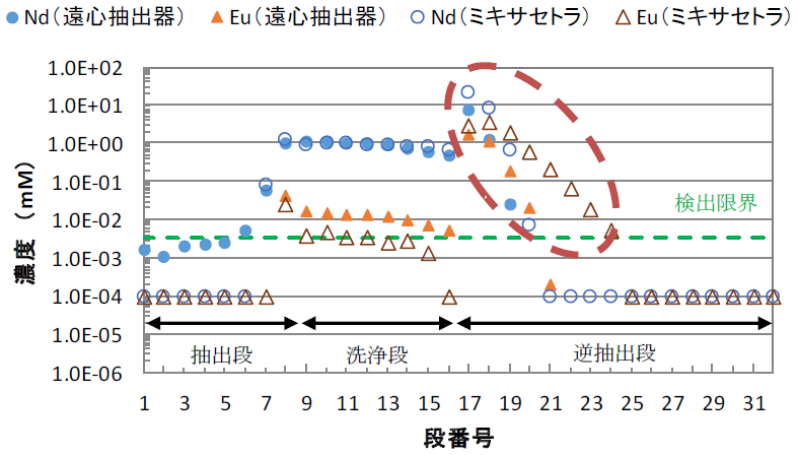


Fig. 2.1.6-4　TDdDGA 系溶媒における向流多段抽出／逆抽出試験結果の一例 [2.1.6-4)]

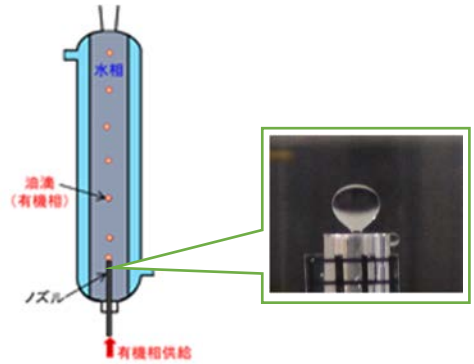


Fig. 2.1.6-5　単一液滴装置の概略

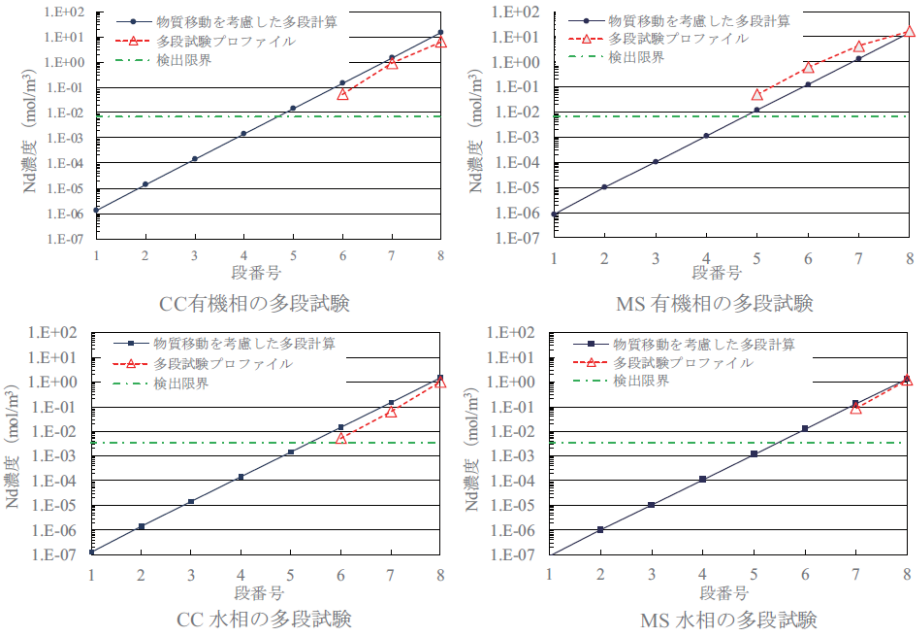


Fig. 2.1.6-6　単一液滴法により求めた物質移動係数による計算値と実験値との比較 [2.1.6-5)]
（TDdDGA 溶媒+2-EH 添加系の抽出段（CC：遠心抽出器、MS：ミキサセトラ））

2.2 抽出クロマトグラフ法による MA 分離

2.2.1 吸着材改良・吸着メカニズム評価

2.2.1.1 担体造粒技術開発

吸着材を充填相とする抽出クロマトグラフィの MA 分離は、工学規模の技術的成立性の観点から、分離塔内部の圧力損失と吸着材に含浸された抽出剤の分離性能をそれぞれ考慮する必要がある。従来のゾルゲル法による多孔質シリカ粒子（粒子径 50 μm）を母材とする吸着材は、分離性能が良好であるものの、分離塔内部の圧力損失により、送液ポンプの負担が増大するだけではなく、閉塞等の異常事象に対する安全性が懸念されていた。そこで、多孔質シリカ粒子の基本骨格に注目し、分離操作性の向上や圧力損失抑制に寄与する粒子径や細孔径の制御を目的とした造粒技術開発を行った。

すでに実績のある原料液組成を参考に、ナノスケールのシリカ微粒子を含む懸濁水溶液（日産化学株式会社製スノーテックス®）とリンやモリブデンを含む孔形成剤を原料として粒子成形後、焼成処理によるリンモリブデン酸塩等の形成およびシリカとの分相、さらには洗浄除去することで、シリカ粒子の多孔質化を行った。以下に基本的な粒子の製造手順を示す。

1. 所定重量比で混合したスノーテックス®と孔形成剤を含む水溶液を撹拌する。
2. ゲル状原料液を造粒装置に供給し、液滴生成後、乾燥によって粒子成形を行う。
3. シリカ粒子を焼成し、水や硝酸で洗浄することで多孔質シリカ粒子とする。

JAEA では、スノーテックスのシリカ微粒子径が粒子成形や微細構造に及ぼす影響を評価するとともに、ミリオーダーの比較的大きなシリカ粒子を製造可能にする液柱振動切断法の適用性検討を行った。

本章では、主に上記項目 2. に該当する「噴霧乾燥法」と「液柱振動切断法」の成果をまとめる。噴霧乾燥法は、原料液供給後の液滴の生成・乾燥・脱水が 1 つの工程で行われるため、製造時間の短縮や生産コストの削減等が見通せる。また、一般産業界ではセラミックや薬剤の粉末製造等に広く使われており、実績もあるため、速やかな大量生産のフェーズに移行できる。一方で、液柱振動切断法は、原料液供給における凍結液滴の捕集と乾燥・脱水を個別の工程で行うものの、液滴制御に係る装置の運転条件は振動数と送液速度だけでよく、目的とする粒子径の粒子が得られやすい点が特徴である。ただし、本装置は JAEA の独自開発のため、一般産業界では実例がなく、今後は大量生産を踏まえたシステムや装置設計等を行うものである。

また、液柱振動切断で新規製造した多孔質シリカ粒子に適した高分子被覆方法も合わせて検討し、吸着材調製後の評価結果も報告する。なお、「シリカ微粒子」はスノーテックスに含まれるナノスケールの粒子、「シリカ粒子」は液滴乾燥後の未焼成粒子、「多孔質シリカ粒子」は焼成後に孔形成剤を洗浄・除去した粒子とする。

(1) 噴霧乾燥法 [2.2.1-1, 2)]

原料液を調製後、回転ディスクを搭載した噴霧乾燥装置に供給・噴霧後、乾燥室内で乾燥したシリカ粒子を回収する。高速回転するディスクの中心部分から原料液を供給後、ディスク表面の液膜が遠心力に従って薄くなり、外周部のピンによってせん断・液滴となる。ここで、一定の遠心力がかかるため、均一径のシリカ粒子が期待できる。原料液に含まれるシリカ微粒子

が粒子物性に及ぼす影響評価に、スノーテックス N30-G（シリカ微粒子 12 nm、含有重量 30%）とスノーテックス N40（シリカ微粒子 22 nm、含有重量 40%）を使用し、①ディスク回転数に対する粒子径の変化、②多孔質シリカ粒子の粒子径と圧力損失、③粒子の物性変化についてそれぞれデータを取得した。

① ディスク回転数に対するシリカ粒子の粒子径

Fig. 2.2.1-1(a)にディスクの回転数に対するシリカ粒子の平均粒子径を示す。原料液 A はスノーテックス N-30G、原料液 B はスノーテックス N40 をそれぞれ用いた。どちらにおいてもディスク回転数の低下に伴い、粒子径の拡大傾向が認められた。これは、既報のとおり、液滴径とディスクの回転数が半比例する関係を示している [2.2.1-3]。

② 多孔質シリカ粒子の粒子径と圧力損失

①で得られたシリカ粒子を多孔質化後、カラムに充填し、所定流量の通液による圧力損失を数値化した。Fig. 2.2.1-1(b)に多孔質シリカ粒子の粒子径と圧力損失を示す。原料液の種類によらず、充填粒子の粒子径が大きくなれば圧力損失が低下する結果が得られた。粒子径の拡大で充填相に空隙が生じ、充填密度の低下によって、供給液の通過に係る単位断面積当たりの押し込む力が小さくなったためと考えられる。

③ 粒子の物性変化

粒子物性の観点からは、特徴的な違いが見られた。例えば、スノーテックス N-40 を原料液とした多孔質シリカ粒子は、スノーテックス N-30G に比べ、細孔径や細孔体積が小さく、比表面積は大きくなった。シリカ微粒子の大きさが原料液中で高分子化したシリカクラスターのサイズに影響を及ぼしたと考えられる。ただし、スノーテックス N-30G を使用した場合は中空粒子、N-40 を使用した場合は陥没粒子が発生しやすい傾向が認められ、今後、改善する必要がある。

(2) 液柱振動切断法 [2.2.1-4–6]

Fig. 2.2.1-2 に液柱振動切断装置の概要を示す。所定周期で振動させたノズルを介して原料液を供給すると、液柱がせん断され、液滴を生成する。その液滴を液体窒素で捕集し、成形後、凍結乾燥によって水を除去することでシリカ粒子を得る。本手法は、ノズルの振動数と供給液の流速を同期させることで均一径の液滴が可能であり、理想的には均一粒子の生成が期待できる。本項目ではスノーテックス N-30G を使用し、①原料溶液中のシリカ微粒子の濃度（重量濃度）と②孔形成剤である$(NH_4)_6Mo_7O_{24}$と NaH_2PO_4 の重量比を変更して得られた多孔質シリカ粒子の物性を比較評価した。

① 原料溶液中のシリカ微粒子の濃度（重量濃度）

Fig. 2.2.1-3 にシリカ微粒子の重量濃度を変更して製造した多孔質シリカ粒子外観の走査電子顕微鏡（SEM）画像を示す。シリカ微粒子の重量が少ないと粒子骨格が安定せず（e.g. (a) ～

(c))、細孔径ではない穴やヒビ割れを確認した。シリカ微粒子の重量増加によって粒子骨格が安定するとともに（e.g. (d) ～ (f)）、真球度の高い、破壊耐久性が向上した粒子を得ることができた。

② 原料液中孔形成剤の重量比

Fig. 2.2.1-4 に Mo と P のモル比に対する多孔質シリカ粒子の(a)細孔径、(b)比表面積、(c)圧縮破壊強度をそれぞれ示す。Mo と P のモル比で整理すると微細構造との相関が認められ、Mo と P が複合塩の形成に与える影響が明らかになった。例えば、Mo と P のモル比低下によって、細孔径が拡大し（又は比表面積が低下し）、圧縮破壊強度が向上した。

過去の文献[2.2.1-7]から、> 573 K の温度条件下で、$(NH_4)_6Mo_7O_{24}$ は MoO_3 に、NaH_2PO_4 は $NaPO_3$ にそれぞれ変化し、Mo と P の存在比に応じて複合塩の融点が決まることが報告されている。Mo と P のモル比が 1 以下では複合塩の融点低下により、シリカとの分相が促進され、細孔径が大きく（又は比表面積は小さく）なったと考えられる。また、$(NH_4)_6Mo_7O_{24}$ の添加重量低下により、原料液中のシリカ重量が相対的に多くなったことから、粒子の破壊強度が向上したと推測される。

(3) 高分子被覆方法[2.2.1-5, 8]

多孔質シリカ粒子だけでは抽出剤を担持できず、供給液との接触で溶出するため、分離性能を示すことはない。そこで、細孔表面にスチレンージビニルベンゼン共重合体の高分子膜をつくり、抽出剤を担持する。(2)で製造した多孔質シリカ粒子（粒子径 2 mm）は、ゾルゲル製多孔質シリカ粒子と比べて比表面積やかさ密度が小さく、従来の蒸着形式ではなく、これに適した高分子被覆方法を検討する必要がある。そこで、希釈剤の重量を増やし、粒子を反応試薬等に浸漬させることで、粒子ごとに濃度差が生じない反応環境下での重合を行うこととした。得られた有機無機複合担体に抽出剤である HDEHP を重量分率 33.3%で含浸し、改良吸着材の吸着性能を評価した。

Fig. 2.2.1-5 に、模擬 HLLW を用いて、従来の蒸着形式により高分子被覆した HDEHP 含浸吸着材と今回検討した浸漬法により高分子被覆した改良 HDEHP 含浸吸着材の(a)吸着分配係数（Kd）と(b)単位重量当たりの金属吸着量をそれぞれ示す。従来の蒸着形式に比べ、浸漬形式で被覆・調製した吸着材は吸着容量が増加した。浸漬形式では、重合反応が粒子それぞれで等しく進み、細孔表面が均一に被覆されることで、吸着材調製後、抽出剤とイオンの錯形成効率が向上したと考えられる。一部の希土類元素（e.g. Nd や Gd）が吸着されているが、これは 2 M 硝酸水溶液における抽出剤の抽出性能をそのまま反映している。

上記のとおり、圧力損失抑制で目的としていた多孔質シリカ粒子の粒子径制御について、「噴霧乾燥法」と「液柱振動切断法」のそれぞれで達成した。今後、多孔質シリカ粒子の微細構造制御に係る造粒条件を検討するとともに、高分子の被覆方法をさらに精査・改良を施すことで、吸着材の最適化を進め、分離操作で発生する廃液量低減を目指す予定である。

2.2.1.2 放射線劣化挙動評価

抽出クロマトグラフィは、吸着材を充填した分離塔に HLLW を供給し、MA を分離する技術である。吸着材は、高分子や抽出剤等の有機成分が粒子重量の約半分を占めるため、分離プロセスを構築する上で、放射線分解による各種劣化物の生成挙動を明らかにする必要がある。特に、劣化物の物理状態（e.g. 気体、液体）や化学的特性（e.g. 引火点、発火点、溶解度等）を踏まえ、機器・プロセスの安全性を考慮する必要がある。具体的には、吸着担体に残留する「難溶性劣化物」や供給液に溶出する「水溶性劣化物」の構造推定によって、前者は分離性能や熱的安定性等への影響評価による分離塔の充填相交換時期や安全管理、後者では溶融炉に供給する廃液の影響（e.g. 有機物混入による引火点の低下や残留有機物から発生するガスによるガラス固化体の性能低下等）をそれぞれ提示することとなる。また、これらの安全性評価は、使用済吸着材の保管やガラス固化プロセスへの導入にも密接に関わり、MA 分離技術でも特にチャレンジングな研究分野といえる。

本章では、HLLW から Ln と MA を共回収する CMPO（ノルマルオクチル(フェニル)-*N,N*-ジイソブチルカルバモイルメチルフォスフィンオキサイド）と TEHDGA（*N,N,N',N'*-テトラエチルヘキシルジグリコールアミド）、Ln と MA を相互分離する HONTA を含浸した吸着材の放射線劣化評価を報告する。

(1) CMPO 含浸吸着材 [2.2.1-1, 4, 5, 9]

量子科学技術研究開発機構（QST）高崎量子応用研究所（高崎研）Co60-γ線照射施設（以下、「γ線照射施設」という。）に、CMPO 含浸吸着材を 3 M 硝酸に浸漬した吸着材サンプル（固液比 1：20）を静置し、水換算で所定線量に到達後、取り出した。吸着材サンプルを固液分離したろ液を LC/MS 分析に、吸着材のアセトン洗浄で得られる有機物を GC/MS 分析（ガスクロマトグラフ質量分析）にそれぞれ供した。Eu^{3+}を吸着させた CMPO 含浸吸着材では、固液分離後のろ液を ICP（誘導結合プラズマ）分析に供し、Eu^{3+}の溶出率を評価した。

また、高崎量子応用研究所イオン照射研究施設（TIARA）で、3 M 硝酸と混合したスラリ状態の Eu^{3+}吸着済 CMPO 含浸吸着材（固液比 1：2）に対して He^{2+}イオン線を照射した。所定量の 3 M 硝酸で洗浄後、ICP 分析に供することで、Eu^{3+}の溶出率を評価した。

Table 2.2.1-1 に、浸漬液のクロマトグラムから推定した主要な水溶性劣化物を示す。ここで、水溶性劣化物は酸による加水分解物を含むことに留意する。CMPO そのものの結合解離だけではなく、一部に OH 基が付加されている。これは、吸着材の放射線分解機構が、γ線が CMPO に作用する「直接効果」と、水の放射線分解で発生する水和電子や OH ラジカルと反応する「間接効果」のそれぞれを示唆している。Table 2.2.1-2 には、γ線照射した CMPO 含浸吸着材から得た有機物のクロマトグラムから推定した主要な難溶性劣化物を示す。水溶性劣化物は OH 基が付加されているが、難溶性劣化物は中性分子であるため、プロトン化等による浸漬液への溶出量は少ないと考えられるが、溶解度の関係から検出されている。また、分子構造から、水の放射線分解物を介さない「直接効果」で、特にホモリシスによる分解機構が示唆される。

Fig. 2.2.1-6 に He^{2+}イオン線とγ線の照射による CMPO 含侵吸着材の Eu^{3+}溶出率をそれぞれ示す。He^{2+}イオン線では 1 MGy、γ線は 2 MGy でしきい線量を確認した。外部照射した He^{2+}

イオン線が当たる粒子層（e.g. イオン到達予想距離 50 μm）の領域で吸着材が劣化するものの、50 μm より深くにイオンが到達できないと仮定すれば、Eu^{3+}の溶出率にしきい値があることを説明できる。しきい値に到達するまでの Eu^{3+}溶出率に線量依存性が認められるが、これは照射面積と深さ 50 μm にある充填吸着材の抽出剤が分解し、有機金属錯体を維持できなくなったためと考えられる。今後、γ線照射前後の有機金属錯体の構造を明らかにする予定である。

γ線照射後の CMPO はイオン線照射後よりも Eu^{3+}の溶出率が高く、しきい線量も高い。到達距離の概念がないγ線は吸着材内部で局所的な反応場（e.g. スパー）をつくり、分解を促進するため、線量に応じて溶出率が増加すると予想されるが、実際はしきい値がある。これは、難溶性劣化物を伴う CMPO の有機金属錯体形成によって Eu^{3+}が吸着材に保持され、見かけ上、溶出率に線量依存性が見られていないと考えられる。

放射線による吸着元素の分布を評価するため、固液分離後の吸着材に対するマイクロ PIXE（粒子線励起 X 線）分析を行った。Fig. 2.2.1-7 (a)と(b)に、He^{2+}イオン線とγ線をそれぞれ照射した吸着材の Eu^{3+}吸着分布をそれぞれ示す。検出器の設置場所のため、粒子左側に信号強度が強く出ているが、放射線の種類によらず、Eu^{3+}は吸着材に均一に吸着されている。1～4 MGy の線量領域で同様の結果が得られており、抽出剤は粒子内部で局所的な放射線分解を起こすことはないことを明らかにした。

(2) TEHDGA 含浸吸着材 2.2.1-2)

酸濃度の異なる硝酸に浸漬した TEHDGA 含浸吸着材をγ線照射施設に静置し、水換算で 1 MGy 程度に照射後、取り出した。固液分離後のろ液を LC/MS 分析、アセトン洗浄後の吸着材から得られる有機物を GC/MS 分析にそれぞれ供した。

Table 2.2.1-3 に主要な水溶性劣化物を示す。アミン誘導体（No. 1～No. 8 - 1）が多数存在することから、アミド基の加水分解や、水の放射線分解で発生する OH ラジカルとの反応が主な劣化機構と考えられる。また、酸濃度によって、水溶性劣化物の生成挙動が異なる結果も得られている。酸濃度が高いと、酸濃度が低い場合よりも劣化物の種類が増加したため、酸による抽出剤の放射線分解の促進が示唆された。特に、高濃度の硝酸条件下ではエーテル酸素に酸が付加され、結合周辺の電子密度が変わり、反応サイトとして機能したと考えられる。結果として得られる分解物は NH 基や OH 基を有するため、浸漬液への溶出が顕著になっている。また、Table 2.2.1-4 には主要な難溶性劣化物を示す。劣化物の基本骨格から、中心にあるエーテル酸素周辺の結合が放射線の影響を受けやすいことが示唆された。また、水溶性劣化物と同様に、酸濃度が高いほど劣化物の種類増加傾向が認められた。

(3) HONTA 含浸吸着材 2.2.1-6, 10, 11)

2.2.1.1 節 (2)の液柱振動切断法によって製造・調製した HONTA 含浸吸着材を 0.1 M 硝酸に浸漬し、γ線照射施設に静置した。水換算で所定線量を照射後、取り出した吸着材サンプルを固液分離して、吸着材のアセトン洗浄で得られる有機物を GC/MS 分析に供した。

Table 2.2.1-5 に HONTA の主要な難溶性劣化物を示す。ここで、R は直鎖オクチル基（C_8H_{18}）である。基本的にどれも中性分子であり、水への溶解度が低いため、抽出剤分解後にも吸着担

体に残留したと考えられる。単結合が優先的に解離し、特に中心のアミン窒素周辺がγ線に弱い結果が得られている。これは、γ線による水の放射線分解等で生成するラジカルの水素原子引き抜きが起きたと推測できる。

上記のとおり、γ線による吸着材劣化物の構造推定を行い、引火点等の化学的特性が得られるようになった。今後、以下に示す 3 つの方向性により、放射線劣化挙動を評価するとともに、MA 分離プロセスの成立に向けて取り組む予定である。

①各種吸着材劣化物の化学的特性を数値化し、分離操作で発生する廃液等の安全な処理方法を検討する。これには、廃液の含有有機物を定性および定量するとともに、爆発下限値との比較によって、必要に応じた希釈や分離・分解等の検討を行う。

②放射線の線量に応じた吸着材の吸着溶離性能を数値化し、MA+Ln の共回収ならびに MA/Ln の相互分離を許容する積算線量を求める。例えば、吸着材劣化で分離性能が低下し、MA と Ln が相互分離できなくなるときの線量を充填相交換のタイミングとして、その線量における吸着材の熱的特性や水素発生等による分離塔の安全管理を提示する。

③溶媒抽出法で考えられている各種抽出剤の放射線分解機構を参考に、吸着材劣化物の種類や生成量を予測可能にするモデルを構築する。具体的には、分子構造の観点から、高分子層にある抽出剤のシミュレーションを行い、高分子層との相互作用を数値化するとともに、電離等による放出電子との再結合や結合解離に係る部位を選定する。

参考文献

2.2.1-1) 日本原子力研究開発機構, 平成 28 年度放射性廃棄物の減容化に向けたガラス固化技術の基盤研究事業「ガラス固化技術の基盤整備」事業報告書, (2016).

2.2.1-2) 日本原子力研究開発機構,令和元年度放射性廃棄物の減容化に向けたガラス固化技術の基盤研究事業「ガラス固化技術の基盤整備」事業報告書, (2019).

2.2.1-3) 松嶋景一郎, 蓑嶋裕典, 内山智幸, 他, “回転ディスク法による非ニュートン性スラリーの噴霧乾燥造粒”, 北海道立工業試験場報告, No. 299, pp. 59 - 66 (2000).

2.2.1-4) 日本原子力研究開発機構, 平成 29 年度放射性廃棄物の減容化に向けたガラス固化技術の基盤研究事業「ガラス固化技術の基盤整備」事業報告書, (2017).

2.2.1-5) 日本原子力研究開発機構, 平成 30 年度放射性廃棄物の減容化に向けたガラス固化技術の基盤研究事業「ガラス固化技術の基盤整備」事業報告書, (2018).

2.2.1.6) 日本原子力研究開発機構, 平成 30 年度文部学省国家課題対応型研究開発推進事業 原子力システム研究開発事業「合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発」成果報告書, (2019).

2.2.1.7) 山口辰男, 仲井俊顕, 浅沼直哉, 他, “形状制御としてのスピノーダル型凝集による微細粒子の内部構造制御”, 資源と素材, Vol. 115, pp. 475-480 (1999).

2.2.1-8) Y. Miyazaki, I. Goto, S. Watanabe, et al., “Adsorption evaluation of large-size HDEHP/SiO_2-P adsorbent investigated by micro-PIXE analysis”, Int. J. PIXE, vol. 29, (2019) pp.67-79.

2.2.1-9) Y. Miyazaki, S. Watanabe, H. Kofuji, et al., “Gamma-ray Irradiation Durability of

CMPO Adsorbent for MA(III) Recovery", QST Takasaki Annual Report 2017, Part 2, 1-46, p.73, (2017).

2.2.1-10) Y. Miyazaki, Y. Sano, N. Okamura, et al., "Part 2, 1-44, Study on Gamma-ray-degradation of Adsorbent for Low-Pressure-loss Extraction Chromatography", QST Takasaki Annual Report 2019, QST-M-29, p.72, (2019).

2.2.1-11) 日本原子力研究開発機構, 令和元年度文部学省国家課題対応型研究開発推進事業 原子力システム研究開発事業「合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発」成果報告書, (2020).

Table 2.2.1-1　CMPO の主要な水溶性劣化物

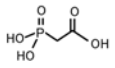
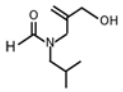
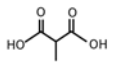
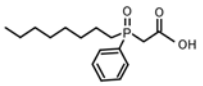
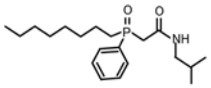
No	保持時間（min）	劣化物の組成式	推定構造	No	保持時間（min）	劣化物の組成式	推定構造
A	1.83	$[C_2H_5O_5P+H]^+$		E	8.69	$[C_9H_{17}NO_2+H]^+$	
B	3.40	$[C_4H_6O_4-H]^-$		F	10.55	$[C_{10}H_{21}NO+H]^+$	
C	3.92	$[C_8H_{19}NO+H]^+$		G	11.25	$[C_{16}H_{25}O_3P+H]^+$	
D	4.97	$[C_8H_{19}N+H]^+$		H	12.07	$[C_{20}H_{34}NO_2P+H]^+$	

Table 2.2.1-2　CMPO の主要な難溶性劣化物

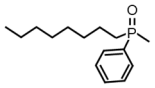
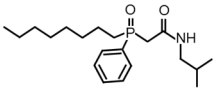
No	保持時間（min）	劣化物の組成式	推定構造
A	12.12	$C_8H_{19}NO$	
B	22.44	$C_{15}H_{25}OP$	
C	27.65	$C_{20}H_{34}NO_2P$	

Table 2.2.1-3　TEHDGA の主要な水溶性劣化物

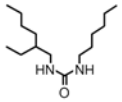
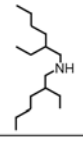
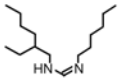
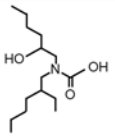
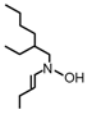
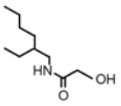
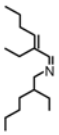
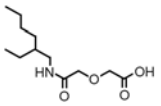
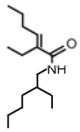
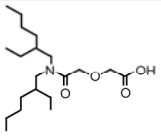
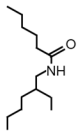
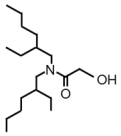
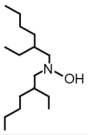
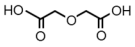
No	保持時間 (min)	劣化物の組成式	推定構造	No	保持時間 (min)	劣化物の組成式	推定構造
A	3.96	$C_{13}H_{28}ON_2$		H	6.29	$C_{16}H_{35}N$	
B	5.27	$C_{13}H_{28}N_2$		I	7.01	$C_{15}H_{31}O_3N$	
C	5.41	$C_{12}H_{25}ON$		J	7.73	$C_{10}H_{21}O_2N$	
D	5.54	$C_{16}N_{31}N$		K	9.78	$C_{12}H_{23}O_4N$	
E	5.68	$C_{16}H_{31}ON$		L	10.26	$C_{20}H_{39}O_4N$	
F	5.68	$C_{14}H_{29}ON$		M	12.06	$C_{18}H_{37}O_2N$	
G	5.68	$C_{16}H_{35}ON$		N	1.84	$C_4H_6O_5$	

Table 2.2.1-4　TEHDGA の主要な難溶性劣化物

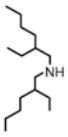
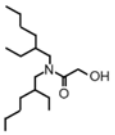
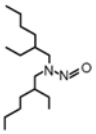
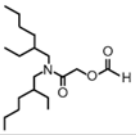
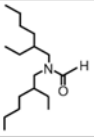
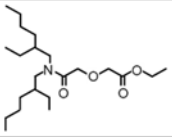
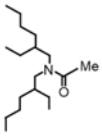
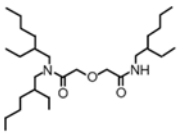
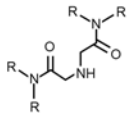
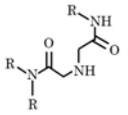
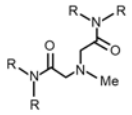
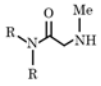
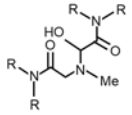
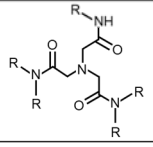
No	保持時間 (min)	劣化物の組成式	推定構造	No	保持時間 (min)	劣化物の組成式	推定構造
A	9.75	$C_{16}H_{35}N$		E	13.29	$C_{18}H_{37}NO_2$	
B	11.91	$C_{16}H_{34}N_2O$		F	13.64	$C_{19}H_{37}NO_3$	
C	12.17	$C_{17}H_{35}NO$		G	15.26	$C_{22}H_{43}NO_4$	
D	12.25	$C_{18}H_{37}NO$		H	18.54	$C_{28}H_{56}N_2O_3$	

Table 2.2.1-5　HONTA の主要な難溶性劣化物（R = オクチル基）

No	保持時間（min）	劣化物の組成式	推定構造	No	保持時間（min）	劣化物の組成式	推定構造
A	2.34	$C_{16}H_{35}N$		F	8.43	$C_{36}H_{73}N_3O_2$	
B	4.74	$C_{29}H_{59}N_3O_2$		G	16.11	$C_{37}H_{75}N_3O_2$	
C	4.86	$C_{19}H_{40}N_2O$		H	16.53	$C_{37}H_{75}N_3O_3$	
D	6.03	$C_{17}H_{35}NO$		I	20.37	$C_{46}H_{92}N_4O_3$	
E	6.12	$C_{18}H_{37}NO$					

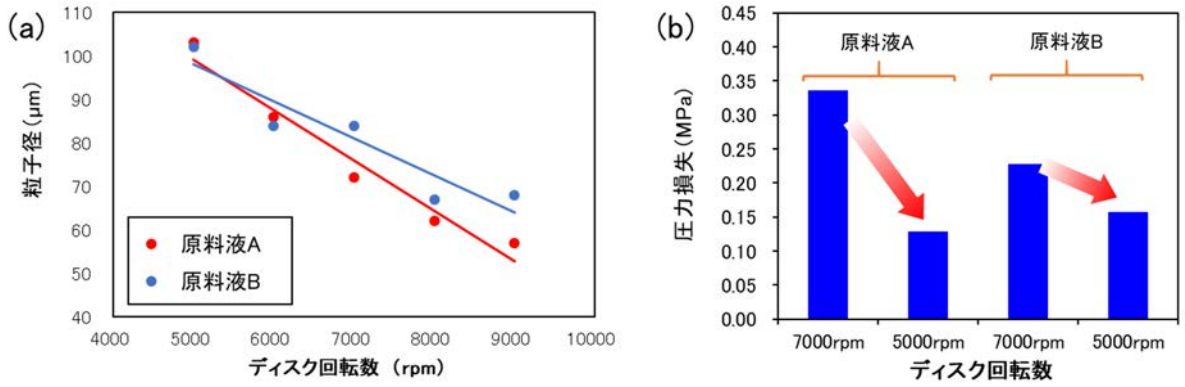


Fig. 2.2.1-1　(a) ディスク回転数に対するシリカ粒子の粒子径、(b) 所定の回転数で得られた多孔質シリカ粒子の圧力損失

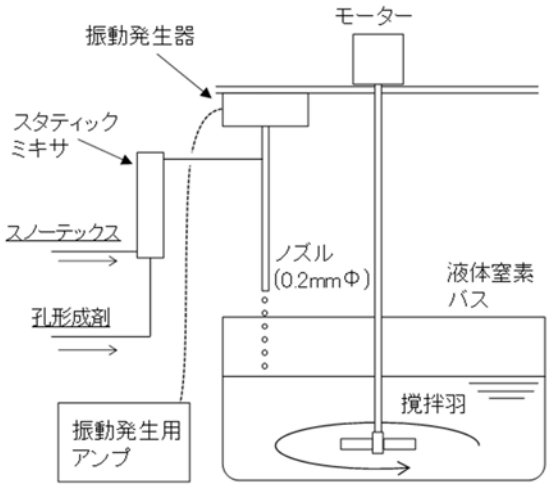


Fig. 2.2.1-2　液柱振動切断装置の概要

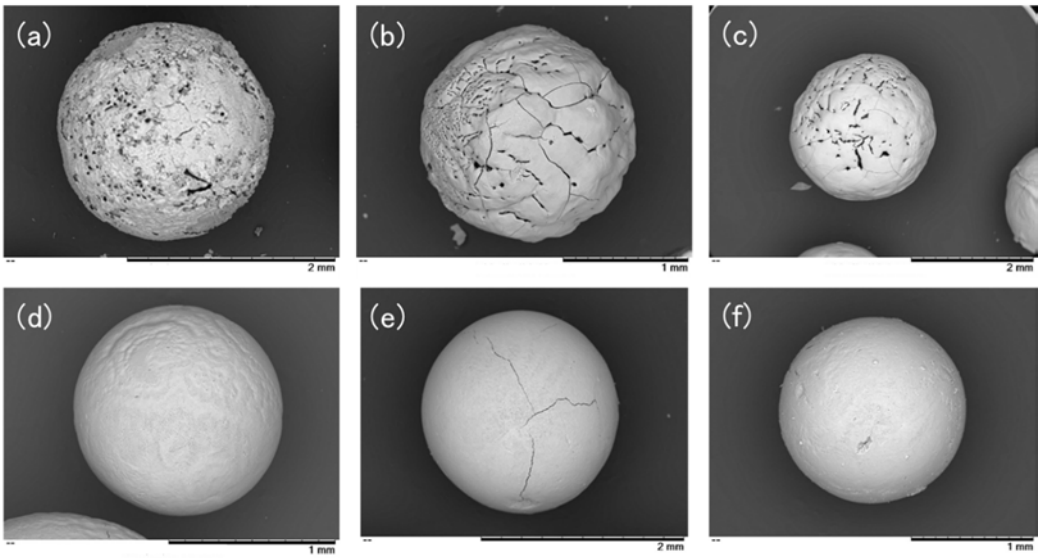


Fig. 2.2.1-3　原料液中シリカ微粒子の重量比に対する多孔質シリカ粒子の外観

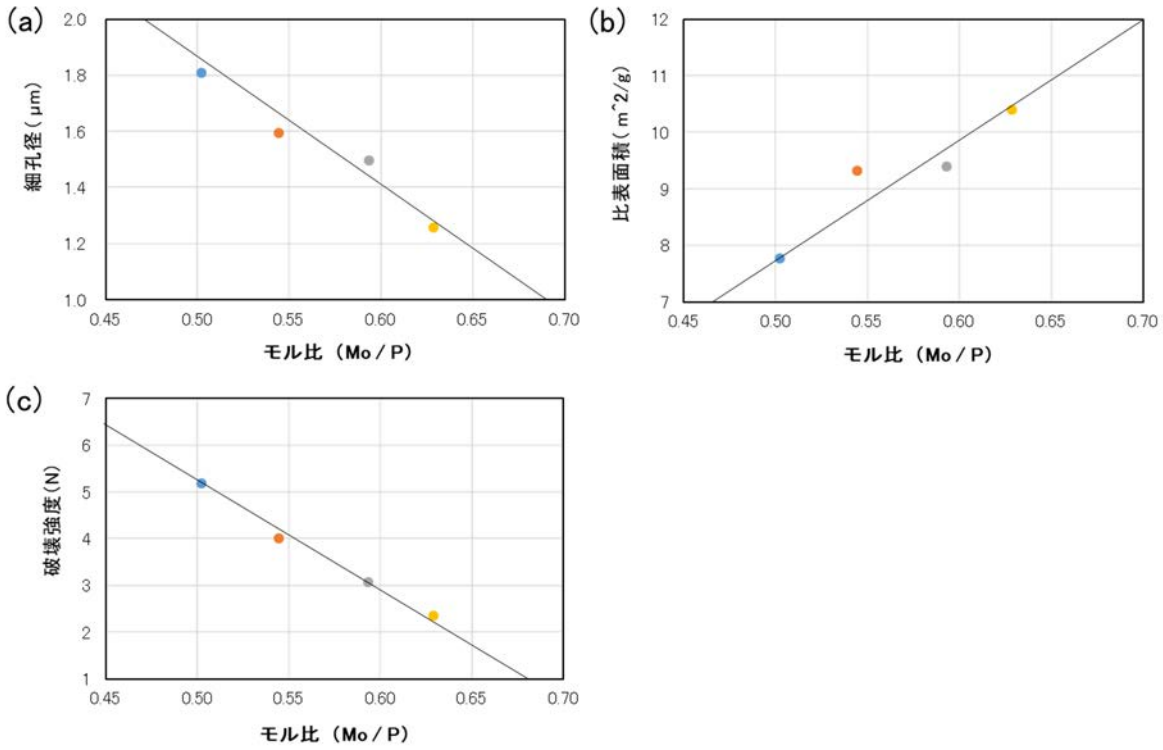


Fig. 2.2.1-4　原料液中孔形成剤の P と Mo のモル比で製造した粒子の物性評価
(a) 細孔径のサイズ, (b) 細孔形成による比表面積, (c) 粒子の破壊強度

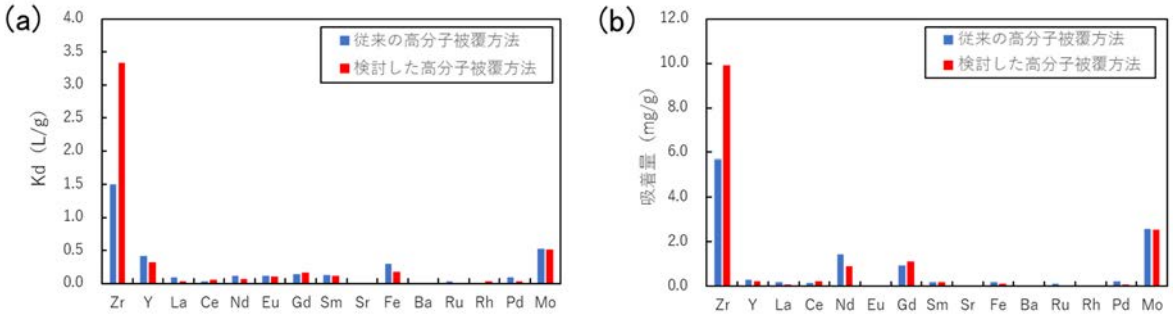


Fig. 2.2.1.5　被覆検討した改良 HDEHP 含浸吸着材の吸着試験結果
(a) 吸着分配係数 (b) 吸着材の単位重量当たりの金属吸着量

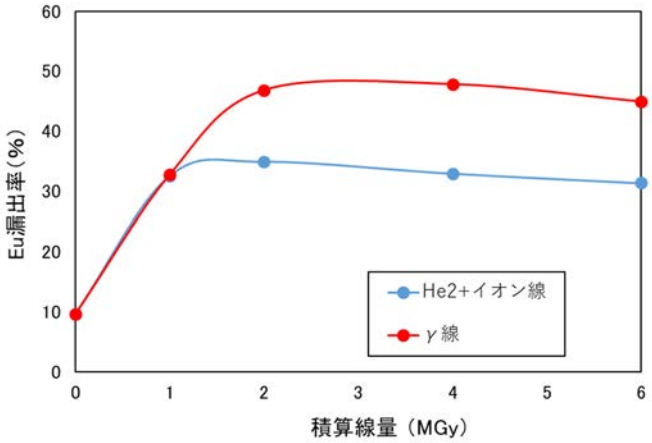


Fig. 2.2.1-6　He^{2+}イオン線とγ線を照射した Eu^{3+}吸着済 CMPO 含浸吸着材の溶出率

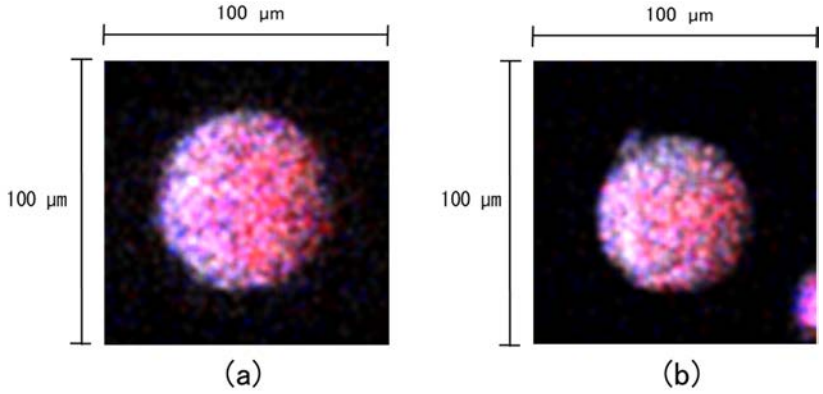


Fig. 2.2.1-7　(a) He^{2+}イオン線、(b) γ線をそれぞれ照射した CMPO 含浸吸着材の元素分布

2.2.2 分離フローシート評価

高速増殖炉サイクル実用化研究開発（FaCT）における分離フローシートの開発では、MA・RE 一括回収用抽出剤として CMPO、TODGA を、MA/RE 分離用抽出剤として HDEHP、iso-Hex BTP（2, 6－ビス(5, 6-ジイソヘキシル-1, 2, 4-トリアジン-3-イル)-ピリジン）、TOPEN（*N,N,N',N'*-テトラキス((5-オクチルオキシピリジン-2-イル)メチル)エチレンジアミン）を候補として選定し、吸着・溶離性能等を調査してフローシートを設計して、トレーサー量の MA を用いたフローシートの性能実証までを行った。暫定的に MA 回収率 99%以上、FP の除染係数（DF） 100 以上を目標として、分離性能に加え、安全性等の結果も踏まえて、MA・RE 一括回収工程に TODGA を、MA/RE 分離工程に iso-Hex BTP を採用したフローを結果として最適と選定した[2.2.2-1)]。照射済燃料溶解液から得られた HLLW を用いたフローシート性能確認試験の結果、MA の溶離率や吸着・溶離速度の向上といった吸着材性能の改良が必要と示唆された[2.2.2-2)]。これらの改良を実施するにあたり、抽出剤構造の改良が必要と考え、FaCT 終了後においては、新抽出剤の調査を進めるとともに、FaCT にて優れた性能を示した CMPO 及び HDEHP をそれぞれ MA・RE 一括回収工程、MA/RE 分離工程に利用したフローの改良に係る研究も合わせて実施してきた。CMPO 及び HDEHP を用いたフローについては、FaCT の結果をもとに、さらに MA 回収性能を高めるための研究を令和元年までに行い、結果を取りまとめるに至っている[2.2.2-5)]。新抽出剤の利用に関しては、TODGA 及び iso-Hex BTP の代替として TEHDGA および HONTA をそれぞれ用いることとして、2018 年より吸着材性能評価などの基礎研究を開始し、現在フローシートの設計研究を実施している段階である。下記では、それぞれの研究の成果の概要を記す。

2.2.2.1 CMPO、HDEHP を用いたプロセス[2.2.2-3~5)]

FaCT にて評価した CMPO 及び HDEHP を用いたプロセスでは、Fig. 2.2.2-1 に示すとおり、1 段目の CMPO カラムにて MA+Ln を共回収し、2 段目の HDEHP カラムで MA/Ln 分離を達成しようとするものであった。ホット試験において、1 段目の CMPO カラムには HLLW を供給して、純水を通液することによって MA+Ln の回収を達成することができた。2 段目のカラムでは pH3 の DTPA（ジエチレントリアミン五酢酸）水溶液にて溶離を行ったが、溶離率が不十分であり、MA 回収率が 50%未満にとどまった。

HDEHP カラムからの溶離率向上を目的として、溶離液の pH の最適化を行った。バッチ試験を通じて MA を選択的に溶離でき、かつ高い溶離率が期待できる pH=2.3 の DTPA 溶液を溶離液として選定した。選定した条件にて実施したカラム分離試験によって得られた溶離曲線を Fig. 2.2.2-2 に示す。ここで、第一段カラムである CMPO カラムの分離曲線も合わせて示した。CMPO カラムではフィード液と共に Cs がカラムから排出された。CMPO に対して非吸着性である Sr も同様の挙動を示すと考えられる。その後、4M 硝酸による洗浄と共に Ru、Sb がカラムから排出された。これらの元素はわずかに CMPO に親和性を示すため、Cs や Sr から遅れて洗浄液の通液によりカラムから排出するものと考えられ、Pd も同様の挙動を示すと推定される。その後の純水の通液により、MA+Ln がほぼ全量溶離回収された。ここで得られた MA+Ln 中間製品を HDEHP カラムに供給した。HDEHP カラムでは、微量の Ru, Sb, Cs がフィード

液と共にカラムから排出された。その後、pH=2.3 の DTPA 溶液の通液により選択的に MA が溶離された。ここでの MA の回収率は Am で 79.4%、Cm で 74.3%となり、残りは 1 M 硝酸の洗浄液により希土類元素と共にカラムから排出された。本フローで得られた MA 回収率は 73%で、MA の回収率は目標である 99%を下回っており、さらなる改良が必要である。代表的な FP の DF としては、Sb 以外の FP の DF は目標を上回った。Sb の除染については CMPO カラムにおける洗浄液量の追加によって目標を達成できる見込みである。以上より、回収率は目標を下回るが、高い純度の MA を回収可能なフローが達成できたと言える。

上記のフローは MA を高い純度で回収できるが、製品溶液に多量の DTPA を含む。後段の脱硝、燃料製造を考慮すると、製品溶液中の DTPA を除去するのが望ましいことが分かっている[2.2.2-6]。そこで上記フローを改良し、MA を錯形成剤等を含まない硝酸水溶液に回収するフローの開発を試みた。これは CMPO を用いた溶媒抽出プロセスである SETFICS（Solvent Extraction for Trivalent f-elements Intra-group Separation in CMPO-complexant System）を抽出クロマトグラフィに適用することで、第一段目カラムにより Cs や Sr と共に軽希土類元素（*l*Ln: La-Nd）を除染することで達成可能となる。第二段目の HDEHP カラムでは溶離液を硝酸水溶液とすることで MA と残りの重希土類元素（*h*Ln: Sm-Gd）を分離して溶離することができる。これらの案をもとに、コールド試験等による条件の設定を行い、Fig. 2.2.2-3 に示す改良フローシートを考案した。本フローに基づき実 HLLW を対象としたホット試験を実施した結果を Fig. 2.2.2-4 に示す。CMPO カラムでは、Cs 等の非吸着性の FP は改良前のフローと同様に除染され、DTPA 溶液を溶離液とすることで、狙いどおりに *l*Ln(Nd)を MA と hLn(Eu)から分離することができた。ここで、MA の溶離ピークと Nd の溶離ピークが一部重なっており、どの部分を中間製品として選定するかにより、MA 回収率と Nd の除染係数とがトレードオフの関係となる。これらのピークの分離は、カラム長を長くする、もしくは移動層の流速を低下させることで向上させることができる。ここでは、MA 回収率 98%以上となるよう中間製品のフラクションを選定した。この時、Nd と Eu の DF はそれぞれ 17 及び 10^3 以上となった（MA 回収率を 99%以上とした場合、Nd の DF = 6）。当該中間製品の硝酸濃度を 0.3 M に調製し、HDEHP カラムに供給した。本酸濃度条件であれば、DTPA 中のカルボン酸は解離しておらず、金属イオンとの錯形成能力は小さいと考えられる。供給した MA 及び希土類元素は HDEHP カラムに吸着し、0.8 M 硝酸の通液によって溶離した。この時、MA と微量の Nd が先に溶出し、その後で Eu の溶離が確認され、MA と *h*Ln(Nd)との分離が確認された。この時 MA の回収率は 98.3 %で、Eu の DF > 10^3 となった。2 段階のカラム操作を通じて、MA 回収率は 96.8 %、*l*Ln と *h*Ln の DF はそれぞれ 17 及び 10^3 以上と評価された。MA は 0.8 M の硝酸水溶液に回収され、本改良によって、錯形成剤を含まない水溶液に高い MA 回収率及び FP の除染係数で回収するフローシートができたと言える。

2.2.2.2 TEHDGA、HONTA を用いたプロセス [2.2.2-7~8)]

FaCT によって選定した TODGA 及び iso-Hex BTP 吸着材の代替として、TODGA についてはより抽出能の小さい抽出剤を選定することで溶離性能の向上を狙い、iso-Hex BTP についてはソフトドナーに加えてハードドナーを分子中に有するハイブリッドドナー抽出剤を選定する

ことで吸着溶離速度の向上を狙った。2017 年までの MA 回収技術開発における抽出剤開発に関する調査を踏まえて、TODGA の代替として TEHDGA を、iso-Hex BTP の代替として HONTA 抽出剤を選定し、これらを含浸した吸着材を用いたフローの開発に着手した。抽出剤合成方法の検討から、吸着材調製、吸着材性能評価、錯体構造解析等の基礎データを取得し、MA 分離のためのカラム分離フローシートの設計に反映させた。第 1 段目である TEHDGA カラムでは MA+Ln の共回収を、第 2 段目である HONTA カラムでは MA/Ln 分離を目指した。

TEHDGA 吸着材については、TODGA 吸着材と比較して吸着容量の点では劣るものの、溶離率が向上し、高い MA 回収率が期待できることが分かった。一方、Mo、Zr、Pd といった FP 元素の硝酸水溶液中への溶離が難しいことが明らかとなり、マスキング剤や錯形成剤を溶離液に添加することでカラムの繰り返し利用が可能なフローを設計することができた。本フローの基本性能は、トレーサ量の Am を模擬 HLLW に添加した溶液を対象としたカラム試験により確認しており、MA+Ln が HLLW から他の FP と分離して回収可能である見通しである。今後実廃液を用いた試験により性能の実証を行う予定である。

2 段目のカラムで用いる HOTNA 吸着材については、バッチ試験等の結果、フィード液の酸濃度を適切に調整することで、MA のみを選択的にカラムに吸着し、希土類元素を MA の溶離前にカラムから洗浄排出可能であると考えられた。トレーサ量の Am を模擬 HLLW に添加した溶液を対象としたカラム試験により、MA 回収率 99%以上、Ln の DF > 10^3 を達成可能である見通しを得た。TEHDGA カラムと同様、HOTNTA カラムについても今後実廃液を用いた分離試験を実施する予定である。

参考文献

2.2.2-1) 日本原子力研究開発機構 次世代原子力システム研究開発部門, 日本原電株式会社 研究開発室, “高速増殖炉サイクル実用化研究開発（FaCT プロジェクト）－フェーズ I 報告書－”, JAEA-Evaluation 2011-003, (2011), 303p.

2.2.2-2) S. Watanabe, T. Senzaki, A. Shibata, et al., “MA recovery experiments from genuine HLLW by extraction chromatography”, Proceedings of Global 2011, Paper 387433, (2011).

2.2.2-3) S. Watanabe, K. Nomura, S. Kitawaki, et al., “Flow-sheet study of MA recovery by extraction chromatography for SmART cycle project”, Procedia Chemistry 21, (2016) pp.101-108.

2.2.2-4) S. Watanabe, Y. Sano, H. Kofuji, et al., “Am, Cm recovery from genuine HLLW by extraction chromatography”, J. Radioanal. Nucl. Chem., 316, (2018) pp.1113-1117.

2.2.2-5) S. Watanabe, T. Senzaki, A. Shibata, et al., “Improvement in flow-sheet of extraction chromatography for trivalent minor actinides recovery”, J. Radioanal. Nucl. Chem., 322, (2019) pp.1273-1277.

2.2.2-6) M. Takeuchi, Y. Sano, S. Watanabe, et al., “MINOR ACTINIDES RECOVERY FROM IRRADIATED FUEL FOR SmART CYCLE TEST”, Proc. ICAPP2017, April 24-28, Paper No. 17392, (2017).

2.2.2-7) 日本原子力研究開発機構, 令和元年度放射性廃棄物の減容化に向けたガラス固化技術

の基盤研究事業「ガラス固化技術の基盤整備」事業報告書, (2019).
2.2.2-8) 日本原子力研究開発機構, 令和 2 年度放射性廃棄物の減容化に向けたガラス固化技術の基盤研究事業「ガラス固化技術の基盤整備」事業報告書, (2020).

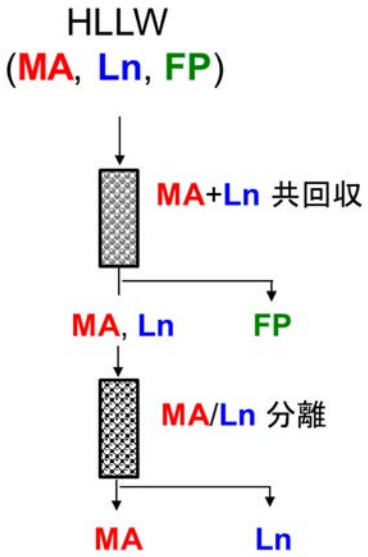


Fig. 2.2.2-1　分離フロー

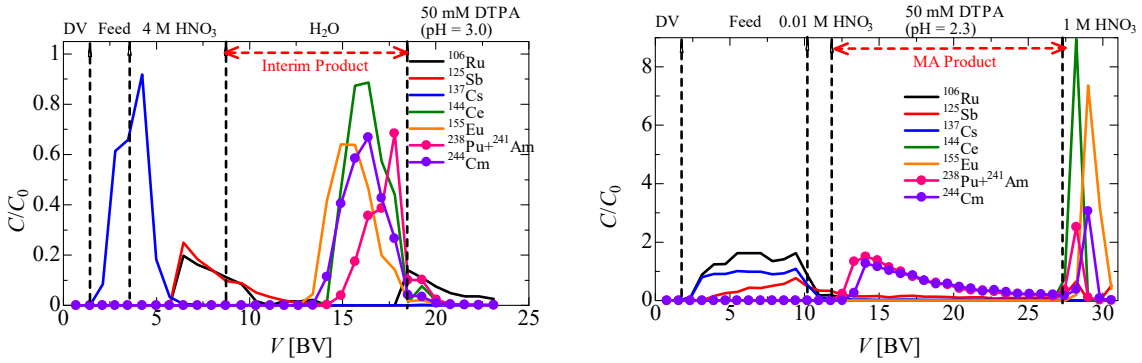


Fig. 2.2.2-2　CMPO 及び HDEHP を用いたフローによって得られた分離曲線
(左)CMPO カラム、(右)HDEHP カラム
（C : 排出液中金属濃度、C_0 : 供給液中金属濃度、BV : ベッドボリューム）

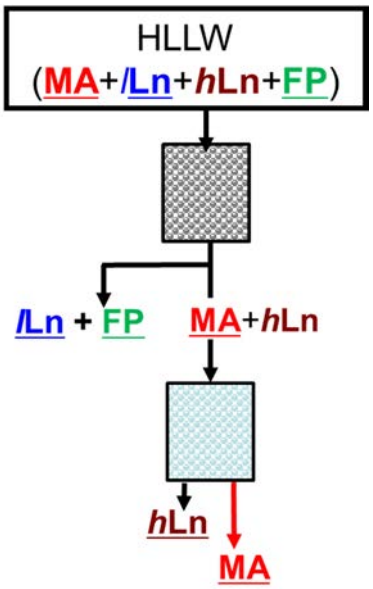


Fig. 2.2.2-3　改良した分離フロー

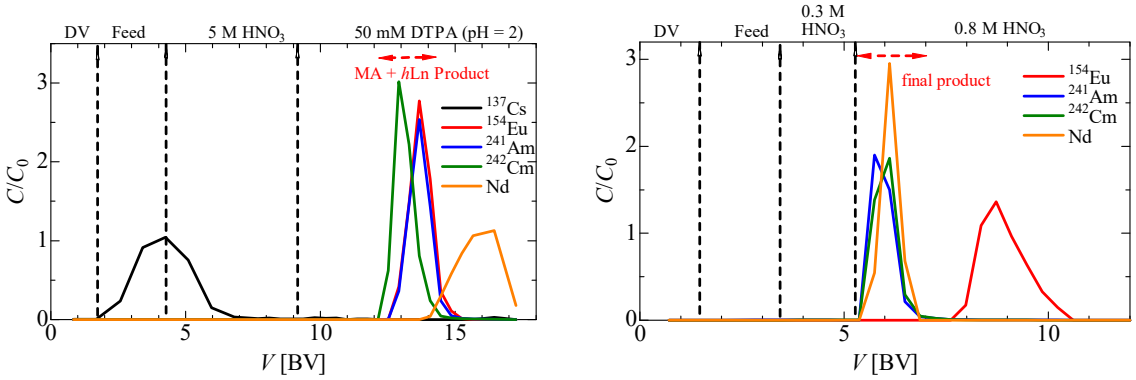


Fig. 2.2.2-4　CMPO 及び HDEHP を用いた改良フローによって得られた分離曲線

2.2.3 小規模 MA リサイクル試験（SmART）

MA 分離変換サイクルの小規模実証を目的として、照射済燃料中の MA を回収し、高速炉「常陽」で燃焼する一連のサイクル試験（Small Amount of Reused fuel Test（SmART）サイクル）計画を推進している。SmART サイクルは、高速炉燃料サイクルシステムにおける MA のリサイクルを検証するためのいくつかの研究開発課題から構成される（Fig. 2.2.3-1）。SmART サイクルの最初のステップでは、軽水炉や高速炉で照射された使用済燃料を高レベル放射性物質研究施設（CPF）等において再処理し、U、Pu、MA を原料溶液として回収する。溶液中の MA の総量は、DF と全運転での回収収率を考慮して、1～2 g が要求される。MA と Pu の含有量をそれぞれ約 5%と 30%程度に調整した後、原料溶液を脱硝して酸化物粉末とし、AGF（照射燃料試験施設）等の施設に輸送し、燃料製造とリグの組み立てを行う。製造後の燃料ピンはコンパートメント型のサブアッセンブリに装填し、常陽 Mk-III 炉心において照射を行う。照射後、一部のペレットを対象に FMF（照射燃料集合体試験施設）等において照射後試験を行い、その他のペレットは MA 回収のため CPF 等に輸送する。

本サイクルを通し、回収された MA が燃料製造プロセスや燃料照射に与える影響や MA の核変換挙動の評価を行う。特に、回収された MA に含まれる同位体や FP の影響やサイクル中の MA の物質収支は、照射済燃料を MA 原料としない一連の試験では得られない貴重なデータとなる。本項では CPF において 2014 年度から開始した常陽照射済燃料からの MA 回収試験の結果概要を記載する。

2.2.3.1 CPF におけるアクチノイド分離試験

SmART サイクルにおいて必要となる量の MA（～2g）を回収するため、CPF では常陽照射済燃料から MA を含むアクチノイドを回収する一連のホット試験を 2014 年度から実施した。本試験では 4 本の常陽照射済燃料ピンを機械的に 1.5 cm 又は 3.0 cm の長さにせん断し、7M 硝酸に 95 ℃で溶解させた後、溶解液を孔径 2.7 μm と 1 μm のガラスフィルタで濾過した。ろ過後の溶解液に含まれる主要成分の濃度を Table 2.2.3-1 に示す。溶液中の U, Pu, ^{241}Am + ^{242}Cm の総量は、それぞれ約 220g、69g、3g であった。

本溶液の金属濃度と硝酸濃度を調製した後、以下に示す①TBP を抽出剤として用いた単サイクル溶媒抽出フローシートによる U-Pu-Np 共回収、及び②CMPO 含浸吸着材及び HDEHP 含浸吸着材を用いた抽出クロマトグラフィによる溶媒抽出ラフィネートからの Am、Cm 回収によりアクチノイドの分離回収を行った。

①TBP を抽出剤として用いた単サイクル溶媒抽出フローシートによる U-Pu-Np 共回収 [2.2.3-1)]

U、Pu 及び Np の回収に際しては、FaCT プロジェクトにおいて開発を行った U-Pu-Np 一括回収プロセス [2.2.3-2)]、及びオークリッジ国立研究所（ORNL）において開発された Pu 非還元分配フローシート（acid split 法）に基づいた U-Pu 共回収プロセス [2.2.3-3)]を利用し、供給液の硝酸濃度を 6M 程度まで高めることで Np を U、Pu とともに TBP に抽出した後に、低温（16 ℃）に調整した 0.3M 硝酸により Pu、Np と一部の U を、高温（45℃）に調整した 0.02M 硝酸により残りの U をそれぞれ逆抽出した。抽出・逆抽出操作は、ロータ内径 27 mm を有する遠心

抽出器を用いた 16 段の U-Pu-Np 抽出段、13 段の Pu-Np-U（一部）逆抽出段、及び 13 段の U 逆抽出段により行った。

Table 2.2.3-2 に運転後の各吐出口における U 及び Pu の移行率を、Table 2.2.3-3 に主な核種の DF をそれぞれ示す。本操作により、若干量の Pu 及び Np がそれぞれ U 製品及びラフィネートへ移行したものの、Pu 及び Np のほぼ全量が U の一部とともに U-Pu-Np 製品として回収され、FP（全γ）に対する DF として 100 以上が得られた。抽出操作後に得られたラフィネートは抽出クロマトグラフィによる Am、Cm 回収プロセスに供給した。

②CMPO 含浸吸着材及び HDEHP 含浸吸着材を用いた抽出クロマトグラフィによる溶媒抽出ラフィネートからの Am、Cm 回収 [2.2.3-4, 5)]

Am、Cm の回収に際しては、FaCT プロジェクトにおいて開発を進めた CMPO 含浸吸着材を用いた MA+Ln 共回収プロセス、及び HDEHP 含浸吸着材を用いた MA/Ln 相互分離プロセスを利用した。SmART サイクル研究では、燃料製造や照射後試験に必要となる十分な量の MA の回収とともに、照射挙動に影響を及ぼす重希土元素、及び脱硝作業や燃料原料粉末の輸送に左右する放射能の除去が優先される。これらを踏まえ、軽希土元素の除染の優先度を下げ、MA/Ln 相互分離プロセスへのフィード液の酸濃度を pH = 1 未満とすることにより、重希土元素を優先的に吸着させ、MA をカラム外に排出させることで重希土元素との分離性能と MA 回収率の向上を図るフローを採用した。Table 2.2.3-4 に各プロセスの条件を示す。試験は 3 cm 径（容量 250 mL）のアルミ製カラムを用いて実施した。

試験より得られた MA 製品溶液中の各成分重量を Table 2.2.3-5 に示す。Am, Cm の回収量はそれぞれ 2.2 g 及び 2 mg となり、SmART サイクルにおいて必要となる量が回収された。また、重希土元素に対する DF として 1000 以上が得られた。

参考文献

2.2.3-1) M. Nakahara, Y. Sano, K. Nomura, et al., “Partitioning of Plutonium by Acid Split Method with Dissolver Solution Derived from Irradiated Fast Reactor Fuel with High Concentration of Plutonium”, J. Chem. Eng. Jpn., Vol. 5, No. 3, (2018) pp.237-242.

2.2.3-2) M. Nakahara, Y. Sano, “Uranium, plutonium and neptunium co-recovery with high nitric acid concentration in extraction section by simplified solvent extraction process”, Radiochim. Acta, Vol. 97, (2009) pp.727-731.

2.2.3-3) M. Nakahara, Y. Koma, Y. Nakajima, “Co-processing of uranium and plutonium for sodium-cooled fast reactor fuel reprocessing by acid split method for plutonium partitioning without reductant”, J. Nucl. Sci. Tech., Vol. 50, No. 11, (2013) pp.1062-1070.

2.2.3-4) S. Watanabe, K. Nomura, S. Kitawaki, et al., “Flow-sheet study of MA recovery by extraction chromatography for SmART cycle project”, Procedia Chemistry, Vol. 21, (2016) pp.101-108.

2.2.3-5) S. Watanabe, Y. Sano, H. Kofuji, et al., “Am, Cm recovery from genuine HLLW by extraction chromatography”, J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 316, (2018) pp.1113-1117.

Table 2.2.3-1　常陽照射済燃料溶解液中における主要元素・核種濃度

元素	濃度（g/L）	核種	濃度（Bq/ml）
U	170	^{125}Sb	9.8×10^{5}
Pu	53	^{137}Cs	1.13×10^{9}
		^{155}Eu	1.21×10^{7}
		^{237}Np	8.0×10^{3}
		^{241}Am	3.49×10^{8}
		^{242}Cm	5.55×10^{6}

Table 2.2.3-2　各吐出口における U, Pu 及び Np の移行率（%）

箇所	U	Pu	Np
ラフィネート	7.0×10^{-2}	$<6.4\times10^{-2}$	5.8×10^{0}
U/Pu 製品	5.6×10^{1}	9.8×10^{1}	8.1×10^{1}
U 製品	4.3×10^{1}	1.7×10^{0}	$<1.0\times10^{1}$
廃溶媒	2.5×10^{-1}	$<9.7\times10^{-4}$	$<2.7\times10^{0}$

Table 2.2.3-3　各製品に対する核種の DF

箇所	^{137}Cs	^{155}Eu	^{241}Am	^{244}Cm
U/Pu 製品	$>4.8\times10^{3}$	$>5.2\times10^{1}$	9.8×10^{1}	$>2.5\times10^{1}$
U 製品	$>1.2\times10^{5}$	$>1.2\times10^{3}$	$>2.7\times10^{3}$	$>7.8\times10^{3}$

Table 2.2.3-4　Am、 Cm回収条件

	CMPO 含浸吸着材充填カラム		HDEHP 含浸吸着材充填カラム	
	液温：50 ℃		液温：25 ℃	
	通液速度：4 cm/min		通液速度：4 cm/min	
	溶液	供給量	内容	供給量
コンディショニング液	4 M HNO_3	2 BV 以上	0.01 M HNO_3	2 BV 以上
フィード液	溶媒抽出工程より排出されるラフィネート	2 BV	CMPO カラムの H_2O による溶離フラクションの内、後半 8BV 分	8 BV（全て製品溶液として回収）
洗浄液①	4 M HNO_3	6 BV	0.01 M HNO_3	2 BV（全て製品溶液として回収）
溶離液	H_2O	10 BV（最初の 2BV は廃液とし、後半 8BV を中間製品とする）	50 mM DTPA 溶液（pH 2.3）	15 BV
洗浄液②	50 mM DTPA 溶液（pH 3）	5 BV	1 M HNO_3	5 BV

Table 2.2.3-5　回収した MA 製品溶液中の各成分重量

元素又は核種	各成分の重量（g）
^{241}Am	2.2
^{244}Cm	2.0×10^{-3}
^{106}Ru	$< 1.5\times10^{-7}$
^{134}Cs	$< 3.9\times10^{-7}$
^{137}Cs	1.3×10^{-4}
^{144}Ce	$< 6.5\times10^{-9}$
^{144}Pr	$< 4.0\times10^{-12}$
^{125}Sb	$< 4.8\times10^{-7}$
^{154}Eu	7.5×10^{-6}
^{155}Eu	5.2×10^{-6}
Zr	$< 5.0\times10^{-3}$
Mo	6.5×10^{-2}
Nd	2.2

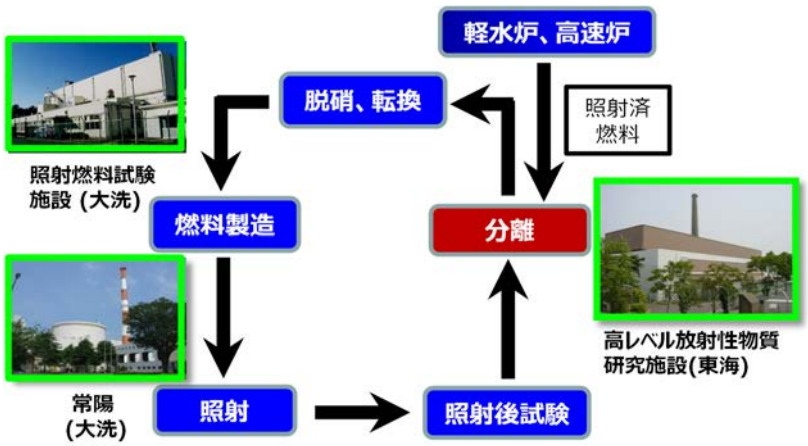


Fig. 2.2.3-1　SmART サイクル

2.2.4 ハイブリッド型プロセスによる MA 分離 [2.2.4-1~3)]

経済性・安全性に優れた実用性に富む MA 回収方法の提示を目標に、劣化物も含め取り扱いが確立されている安価な TBP 抽出剤と水相／有機相間の相分離性に優れる遠心抽出器を用いて、TBP 濃度の制御を行うことで MA と Ln の共回収を行う溶媒抽出工程と、圧力損失を低減させた吸着材を用いた低圧損抽出クロマトグラフィによる MA/Ln 分離工程を組み合わせたハイブリッド型の MA 回収プロセスの構築を進めている（Fig. 2.2.4-1）。

MA+Ln 共回収を行う溶媒抽出工程については、硝酸／TBP 系における MA、Ln 及びその他の FP の抽出・逆抽出挙動や速度を調査するとともに、遠心抽出器の構造や運転条件の改良・最適化を進め、これらをもとに TBP 濃度制御型溶媒抽出による共回収フローシートの設計・実証を行う。抽出クロマトグラフィによる MA/Ln 分離工程については、カラム操作時の圧力損失の抑制が可能な、均一径・大細孔径を有する吸着材担体の造粒条件を検討するとともに、分離性能の向上に向けて、担体に含浸させる NTA アミド抽出剤構造の最適化を図る。また、新たに合成する NTA アミド吸着材を用いて MA、Ln 及びその他 FP の吸着・溶離挙動や速度、錯形成状態を調査するとともに、劣化挙動や熱的安定性に係る安全性評価を進め、これらをもとに低圧損抽出クロマトグラフィによる分離フローシートの設計・実証を行う。

以下、各工程における研究開発概要を記載する。

①配位子数制御型溶媒抽出を用いた MA+Ln 回収プロセスの開発

模擬 FP（Ln、Pd、Zr、Mo、Ru、Cs、Sr）及び MA（Am、Cm）を含む硝酸溶液を対象とした、種々の TBP 濃度を有する TBP／n-ドデカン溶媒による抽出試験を実施し、得られた分配比についてフリーTBP 濃度と水相硝酸イオン濃度との関係式を整理するとともに、いずれの条件においても相分離性は良好であることを確認した。また、同系における FP 元素の抽出／逆抽出速度を評価し、Zr を除き、いずれの条件においても速やかに抽出／逆抽出平衡に達することや物質移動速度の硝酸濃度及び硝酸イオン濃度依存性を明らかにした。本工程で使用する遠心抽出器に関しては、処理量や分離性能向上の観点からロータ内水路流路寸法等の抽出器構造の見直しを図り、想定する抽出フローシート条件においてほぼ 100%の段効率が得られることを確認した。さらに、上記の分配比や抽出速度データをもとにしたに設定した MA+Ln 回収フローシート条件における連続多段試験を実施し、運転性能（相分離性、送液性）に問題ないことを確認した。以上の結果をもとに MA 及び主要 FP の抽出・逆抽出挙動を評価するための計算コードを整備するとともに、本計算コードにより設定した MA+Ln 共回収フローシート条件において模擬供給液を用いたコールド試験を実施し、所定の回収率及び除染係数が得られることを確認した（Fig. 2.2.4-2 及び Table 2.2.4-1 参照）。

②重力駆動型抽出クロマトグラフィによる MA/Ln 分離プロセスの開発

吸着材担体の造粒に際し、液柱振動切断と凍結乾燥を組み合わせた方法について、原料（スノーテックス）組成や凍結乾燥条件等の最適化を進め、原料に占めるスノーテックスの割合を高くすること等により、高い分離性能が得られるよう大きな細孔比表面積を有し、かつカラム充填時の圧力損失が極めて小さい多孔質シリカ粒子の合成方法を決定した。

また、担体に含浸する NTA アミド抽出剤に関しては、側鎖構造が異なる複数の抽出剤（HONTA、 H2EHNTA(*N N N′ N′ N″ N″*-ヘキサ-2-エチルヘキシルニトリロトリアセトアミド)、TOD2EHNTA (*N,N,N′,N*′-テトラオクチル-*N″,N″*-ジ 2-エチルヘキシルニトリロトリアセトアミド)) を対象に合成するフローの検討を行うとともに、合成した各抽出剤を含浸させた吸着材を対象に種々の模擬 FP 元素を含む硝酸溶液中における各元素の分配係数をコールド試験により取得した。いずれの吸着材においても、Zr や Pd が広い硝酸濃度領域において高い分配係数を示す一方、Ln は硝酸濃度の低下に伴い分配係数が上昇することが確認された。各吸着材からの抽出剤の溶出はいずれも顕著ではないことを確認した。この結果を踏まえ、模擬 FP 元素とともに MA を含む硝酸溶液を用いた RI 試験により各元素の分配係数を取得し、MA と他元素との分配係数の差が最も大きくなる条件を見出した。併せて、種々の硝酸濃度における模擬 FP 元素の吸着・溶離速度や物質移動速度を取得し、いずれの吸着材についても各元素は速やかに吸着平衡に達することを確認するとともに、物質移動速度の硝酸濃度及び硝酸イオン濃度依存性や抽出剤の違いによる影響等を明らかとした。

さらに、各吸着材を対象に硝酸溶液中でのγ線照射試験を実施し、γ線照射により各吸着材の発熱開始温度は上昇し、吸着溶離操作を行う上で熱的安全性に問題がないこと、及び劣化に伴い分配係数が低下する傾向を確認した。これらの結果から、Ln+MA 回収プロセスから得られる製品溶液を処理した際の吸収線量が約 1 MGy 到達前に充填相を交換する必要があることを明らかにするとともに、連続的な液供給であれば、分離塔内で溶解可能な水素ガスの発生に留まるため、水素を考慮した新たな安全管理対策は必要ないことを示した。

併せて、複数の Ln を保持させた上記吸着材を対象に Ion Beam Induced Luminescence（IBIL）測定及び Extended X-ray Absorption Fine Structure（EXAFS）測定により吸着材中にて形成される吸着種の錯体構造を調査した。IBIL 測定においては、発光スペクトル形状の担体依存性はなかったものの、抽出剤依存性が確認された。これは量子化学計算の結果、硝酸イオンの配向の違いによる最近接酸素原子数の差に起因していると考えられた。EXAFS 測定においては、各吸着材ともに Ln は類似の錯形成状態を示したものの、各元素が単独で吸着された場合と比較すると、低硝酸濃度側での酸素配位数に共存による低下が見られる元素が存在した。側鎖の枝分かれ効果については、一部枝分かれ構造導入により酸素配位数の硝酸濃度依存性が低下する傾向が認められた。以上の結果をもとに、配位数の変化について錯体の安定性の観点から議論を行い、溶離し易さやその差による元素分離を評価することで、構造解析がプロセス設計に寄与できる可能性を示した。

以上の結果をもとに MA 及び主要 FP の吸着・溶離挙動を評価するための計算コードを整備するとともに、本計算コードにより設定した MA/Ln 分離フローシート条件において模擬供給液を用いたコールド試験を実施し、所定の回収率及び除染係数が得られる見込みであることを確認した（Fig. 2.2.4-3 参照）。

参考文献

2.2.4-1）日本原子力研究開発機構, 平成 30 年度文部学省国家課題対応型研究開発推進事業 原子力システム研究開発事業「合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発」成果報告書, (2019).

2.2.4-2）日本原子力研究開発機構, 令和元年度文部学省国家課題対応型研究開発推進事業 原子力システム研究開発事業「合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発」成果報告書, (2020).

2.2.4-3）日本原子力研究開発機構, 令和 2 年度文部学省国家課題対応型研究開発推進事業 原子力システム研究開発事業「合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発」成果報告書, (2021).

Table 2.2.4-1　設定した MA+Ln 共回収フローシート条件における各元素の移行率及び DF

移行率 R*1／除染係数 DF*2	実験値	計算値
R（Gd*3）	99%	100%
R（Ce）	89%	100%
DF（Pd）	20	14
DF（Ru）	34	1.1
DF（Mo）	20	22
DF（Zr）	16	＞10^2
DF（Cs）	＞10^3	＞10^3
DF（Sr）	＞10^3	＞10^3

*1　移行率 R ＝（MA+Ln 製品中の各元素量）／（全排出液中の各元素の総量）

*2　除染係数 DF ＝（供給液中の各元素濃度／Gd 濃度）／（MA+Ln 製品中の各元素濃度／Gd 濃度）

*3　MA の模擬元素として設定

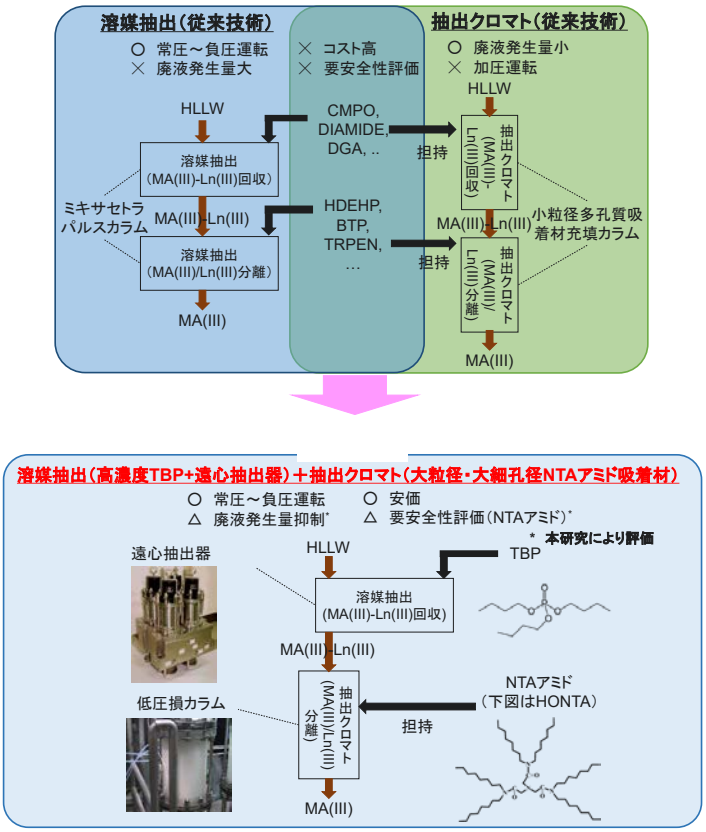


Fig. 2.2.4-1　溶媒抽出（高濃度 TBP+遠心抽出器）と抽出クロマトグラフィ（大粒径・大細孔径 NTA アミド吸着材）のハイブリッド型プロセスによる MA 分離

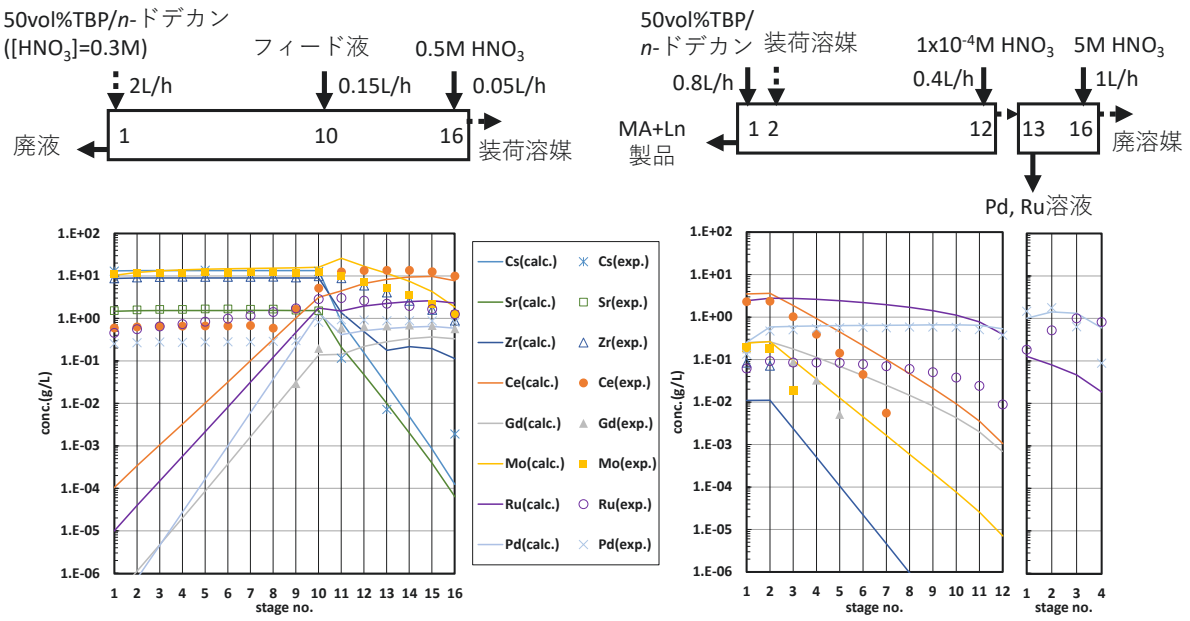
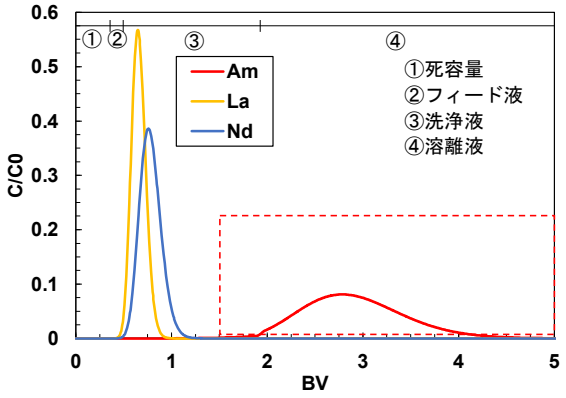


Fig. 2.2.4-2　設定した MA+Ln 共回収フローシート条件における水相濃度プロファイル



・カラム（充填層）寸法：φ0.9 cm×30 cm（HONTA 含浸吸着材を使用）
・フィード液組成（供給量）：Am, La：2 mM、Nd：7 mM、硝酸濃度 0.5 M（2ml）
・洗浄液組成（供給量）：0.5 M 硝酸（27ml）
・溶離液組成（供給量）：1 M 硝酸（76ml）

→　赤枠で囲った部分を MA 製品として分取することにより、Ln の DF として 1000 以上を確保しつつ 99%以上の MA を回収することが可能

Fig. 2.2.4-3　設定した MA／Ln 分離フローシート条件（一例）において得られるクロマトグラム（計算値）

3. 核変換サイクル技術

3.1 高速炉用 MA-MOX 燃料

3.1.1 簡素化法要素技術開発

JAEA では、将来のマイナーアクチノイド含有混合酸化物（MA-MOX）燃料製造技術として、製造プロセスの合理化により経済性に優れた簡素化ペレット法（簡素化法）の開発を進めている。第 3 期中長期計画においては、簡素化法の要素技術開発を目的とし、ダイ潤滑成型法による成型試験、O/M 比調整機能を有した焼結炉による焼結・O/M 比調整試験を行うとともに、ガス流動解析による O/M 比調整に最適な炉内構造の検討を行った。また、簡素化法の加速器駆動システム（ADS）用イナートマトリックス燃料製造への適用性について確認することを目的とし、イナートマトリックス燃料製造試験を行った。

簡素化法のフローを Fig. 3.1.1-1、現行の高速炉用 MOX 燃料製造プロセスと簡素化法（イナートマトリックス燃料製造工程を含む）プロセスの比較を Fig. 3.1.1-2 に示す。簡素化法は、溶液段階におけるプルトニウム（Pu）富化度調整、転動造粒法による原料粉末の流動性改良、ダイ潤滑成型法、焼結・O/M 比調整技術等の革新技術を導入することにより、粉末調整に係る多くの工程を削減できるため、工程の簡素化による経済性向上が期待される。

3.1.1.1 MOX 燃料製造に係る簡素化法要素技術開発

(1) ダイ潤滑成型法による成型試験

本試験では、Pu 富化度 18%の MOX 粉末を転動造粒法により造粒して得られた粉末（以下「転動造粒粉」という。）を用いて成型圧力をパラメータとしたダイ潤滑成型試験を実施した [3.1.1-1]。ダイ潤滑成型機の概略図を Fig. 3.1.1-3 に示す。ダイ潤滑成型機は、潤滑剤（ステアリン酸亜鉛）をダイ下方から、らせん状に進行するよう一定量噴霧し、ダイ壁面に潤滑剤を付着させる構造を有する。付着しなかった余剰な潤滑剤は、ダイ上方から吸引・回収され、その後、転動造粒粉は、自重により落下しダイへ充填される。

成型圧力と本試験で得られたペレット焼結密度の関係を Fig. 3.1.1-4 に示す。焼結密度はすべて目標とする焼結密度 95%±2%T.D.の範囲であることを確認した。焼結条件は次項(2)焼結・O/M 比調整試験に記述する。

また、その後の成型試験において、転動造粒粉末の保管期間中の経時変化により造粒状態が一部失われることでダイへの充填性が低下する事象が発生した。そこで、造粒状態の崩壊が充填性及び成型性等に与える影響について、UO_2 原料粉末及び UO_2 造粒粉末（粒径：212 μm～850 μm）を用いた充填性確認試験を実施した [3.1.1-2]。造粒粉末混合率と充填性の関係を Fig. 3.1.1-5 に示す。ここから、造粒粉末のみの場合は高い充填性が得られるが、造粒状態ではない粉末の混合率が約 50wt%以上になると充填性が著しく悪化することが分かった。この結果を踏まえ、造粒状態が一部失われた転動造粒粉末を、目開き 150 μm の篩で篩分したところ、アンダー品の割合は 40wt%程度であり、原料粉に近い充填性を有していたと考えられる。オーバー品のみを用いた成型試験では、得られた成型体は外観に異常等は観察されず、充填性が改善されていることを確認した [3.1.1-2]。さらに、これらの成型体を次項(2)焼結・O/M 比調整試験に記

述した焼結条件で焼結したところ、ペレットの焼結密度は 96.17%T.D.となり、外観及び金相観察を実施し、異常は観察されなかった。

今後、転動造粒粉の凝集力の改善や造粒後速やかに成型する等のプロセスの最適化、造粒状態を長期間保つ管理方法などの検討が必要と考えられる。

(2) 焼結・O/M 比調整試験

本試験では、前項(1)の成型試験で得られた成型体を用いて焼結・O/M 比調整試験を実施した。焼結条件は 5%H_2-95%Ar、水素水分比（P_{H2}/P_{H2O}）＝10 の加湿雰囲気下で 2023 K×4 hr とした。O/M 比調整条件は 5%H_2-95%Ar、水素水分比（P_{H2}/P_{H2O}）＝430～1075 の加湿雰囲気下で 2023 K×20 hr とし、雰囲気ガス流量はいずれも 10 L/min とした。また、焼結炉内への MOX ペレットの装荷量は 2.0 kgMOX/バッチとした。焼結・O/M 調整に使用した小型焼結炉の概略図 を Fig. 3.1.1-6 に示す。炉内には、MOX ペレットを積載するための 8 段重ねのメッシュ構造の焼結皿が吊り下げられており、雰囲気ガスは焼結炉内下部に設けたガス導入口から供給される構造となっている。

O/M 比調整の熱処理時間に対するペレットの O/M 比を Fig. 3.1.1-7 に、焼結皿各段の MOX ペレットの O/M 比を Table 3.1.1-1 に示す[3.1.1-3)]。O/M 比は、熱処理時間が増加するに従い、単調に減少する傾向が見られた。熱処理開始から 20 時間後において、最下段の焼結皿の MOX ペレットのみ O/M 比が 1.97 以下まで低下したが、それ以外の焼結皿では O/M 比が 1.97 よりわずかに高い値を示し、O/M 比は目標とする 1.97 に達しなかった。Takano ら[3.1.1-4)]は、1 kgMOX/バッチでの O/M 比調整試験において約 18 時間後で O/M 比が 1.97 以下に到達したと報告している。2.0 kgMOX/バッチとした本試験では、MOX ペレットの装荷量が増加したことにより炉内雰囲気ガスの流れが悪化し、ガスが十分に MOX ペレットに供給されなかったため、酸素ポテンシャルと平衡な O/M 比に達することができなかったと考えた。

(3) ガス流動解析

上述の O/M 比調整試験において、炉内雰囲気ガスの流動性に問題があると考え、炉内構造の改良も含め、炉内のガス流動解析を行った。

ガス流動解析に用いた小型焼結炉の解析モデルを Fig. 3.1.1-8 に示す。4 種類の炉内形状を解析対象として解析を行った。解析には流体解析ソフト STAR-CCM+®（ver.10.04）を使用した。

- Case No.1：既存の小型試験炉を模擬した解析モデルである。
- Case No.2：焼結皿吊り具から焼結炉内底部リフレクターまでの長さを有する金属円筒バッフルを Case No.1 のモデルに追加している。金属円筒バッフルにより、ガス供給口と多段焼結皿の外枠下部との間のクリアランスから漏出するガスを抑制することにより、焼結皿（メッシュ皿）へのガス流量を増加させることができる。
- Case No.3 : Case No.1 に対して多段メッシュ皿の中心を貫通する中空ロッドを追加する。中空ロッドには、各段にガスを直接的に供給する通気孔が設けられている。
- Case No.4 : Case No.3 の焼結皿をメッシュ皿からガスが通過しない板皿に変更し、板皿の

外周部にガスの流路となる隙間を追加した。

ガス流動解析結果を Fig. 3.1.1-9～Fig. 3.1.1-12 に示す。Fig. 3.1.1-9 の Case No.1 においては、ガスの大部分がガス供給口と多段焼結皿の外枠下部との間のクリアランスから漏洩し、焼結炉の側面を通過して炉外に排出されることを確認した。O/M 比調整試験においても、ガスが十分に MOX ペレットに供給されなかったため、O/M 比の低下が抑制されたと考えられる。Fig. 3.1.1-10 の Case No.2 においては、金属円筒バッフルを設置したことにより、Case No.1 に比べてメッシュ皿を通るガスの量はわずかに増加したが、ほとんど変化がみられなかった。Fig. 3.1.1-11 の Case No.3 においては、中心の中空ロッドから全ての段に直接ガスが供給されることを確認した。これにより、各段の MOX ペレットに新鮮なガスが供給され、O/M 比を低減することが可能になると期待される。一方、中空ロッドから供給されたガスがメッシュ皿を通過し上方に移動する様子が確認された。この結果は、下段のメッシュ皿の周縁部へのガスの供給が減少するのみならず、上部のメッシュ皿において、新鮮なガスが供給されにくくなることが示唆される。Fig. 3.1.1-12 の Case No.4 においては、板皿に変更したため、ガスが各焼結皿の周縁部を通過し炉外に排出されることを確認した。これにより、各板皿上の全ての MOX ペレットに対し、新鮮なガスが十分に供給され、O/M 比を低減することが可能になると期待される。

(4) まとめ

製造技術の要素技術開発を目的としたダイ潤滑成型法による成型試験、焼結・O/M 比調整試験及び数値シミュレーションによるガス流動解析を行った。

転動造粒粉を用いたダイ潤滑成型法による成型試験を実施し、焼結密度 95%±2%T.D.のペレットが得られることを確認した。また、転動造粒粉末の造粒状態が一部失われ、充填性が低下した場合であっても、篩分によりオーバー品のみを成型することで、充填性が改善されることを確認した。今後、転動造粒粉の凝集力の改善や造粒後速やかに成型する等のプロセスの最適化、造粒状態を長期間保つ管理方法などの検討が必要と考えられる。

2.0 kgMOX/バッチでの焼結・O/M 比調整試験を実施した結果、最下段の焼結皿の MOX ペレットのみ平均 O/M 比が 1.97 以下まで低下したが、それ以外では平均 O/M 比が 1.97 以下に達せず、炉内雰囲気ガスが十分に MOX ペレットに供給されなかったため、酸素ポテンシャルと平衡な O/M 比に達しなかったことが示唆された。

そこで、ガス流動解析を行い、以下の改善策を得た。多段焼結皿の中心にガス噴出孔を有する中空ロッドを設置することにより、ガス流路を改善でき、ガスが多段焼結皿の全体に拡散される結果が示された。さらに、メッシュの無い板皿を用いることにより、下段の MOX ペレットとの還元反応で消費されたガスが上段に流入せず、各焼結皿に新鮮なガスが供給できることを確認した。

本手法により、多段焼結皿上の全ての MOX ペレットの O/M 比を 1.97 未満に低減することが可能になると期待される。

3.1.1.2 簡素化法による ADS 用イナートマトリックス燃料製造技術開発

(1) イナートマトリックス燃料の仕様

本研究の適用先であるイナートマトリクス燃料の仕様を Table 3.1.1-2 に示す。検討したイナートマトリックス燃料の仕様としては、ZrO_2 マトリックス内に直径約 0.2 mm の $(Pu, Am)O_2$ が分散しているマクロ分散型と、マトリックス材である MgO と $(Pu, Am)O_2$ が混合されているミクロ分散型がある。

(2) 簡素化法のイナートマトリックス燃料製造試験への応用

本研究では、$(Pu, Am)O_2$ の模擬物質として CeO_2 を用いることとし、Fig. 3.1.1-13 に示すプロセスフローで試験を実施した [3.1.1-6]。マクロ分散型燃料の製造試験では、成型前にマトリックス材である ZrO_2 粒子との混合を行うが、ミクロ分散型燃料の製造試験では、Fig. 3.1.1-2 の簡素化法のプロセスフローをそのまま適用する。

(3) マイクロ波加熱脱硝法による原料粉の製造

マイクロ波加熱直接脱硝法は六ケ所の再処理施設で使用されている脱硝法である。本研究では、$Ce(NO_3)_3$ 溶液（マクロ分散型）、又は $Ce(NO_3)_3$ と $Mg(NO_3)_2$ の混合溶液（ミクロ分散型）、をマイクロ波（周波数 2.45 GHz、出力 3 kW）で脱硝し、Fig. 3.1.1-14 に示す脱硝体を得た。

(4) 転動造粒による流動性改良

転動造粒法は Fig. 3.1.1-15 に示すように、粉末に結合剤（本検討では結合剤として水を使用した）を添加することにより粉末凝集体の核を形成し、転動による核への粉末付着や圧密作用により造粒体を生成するものである。転動造粒装置は Fig. 3.1.1-16 のように、粉末を転動させるための攪拌羽根、大きく成長しすぎた造粒粉を解砕するための解砕羽根がある。

転動造粒法により、マイクロ波加熱脱硝法で製造した CeO_2 粉末（マクロ分散型）と CeO_2-MgO_2 粉末（ミクロ分散型）の流動性改良試験を実施した。転動造粒装置の運転条件を Table 3.1.1-3 に示す。

転動造粒試験で得られた CeO_2 造粒粉及び CeO_2-MgO_2 造粒粉の走査型電子顕微鏡（SEM）画像を Fig. 3.1.1-17 に示す。両造粒粉共に、粒子径は数百ミクロン、形状は球形であった。また、得られた造粒粉の流動性を Table 3.1.1-4 に示す。CeO_2 の Carr の流動性指数は 82（造粒前 21.0）、CeO_2-MgO は 86.5（造粒前 35.5）であり、金型への良好な充填に必要な目安である 60 以上を満足することができた。

(5) イナートマトリックスの混合

マクロ分散型燃料製造試験の場合には、転動造粒法で製造した CeO_2 造粒粉と市販品の ZrO_2 粒子（Carr の流動性指数 93.5）をボールミルに入れて、59 回転で 6 分間混合操作を実施した。

(6) ダイ潤滑成型法による成型試験

ダイ潤滑成型法は、前述の Fig. 3.1.1-3 で示したように、気流を用いて潤滑剤（ステアリン酸亜鉛）を金型に直接塗布することにより、造粒粉に潤滑剤を混合せずに成型可能とする技術である。ADS 燃料のような高発熱原料では、発熱によるステアリン酸亜鉛の溶融・劣化が懸念

されるため、燃料を今後量産するためには、ダイ潤滑成型法が必要になると考えられる。

ダイ潤滑成型法（プレス圧 300 MPa）により直径 10 mm、高さ 10 mm の成型体を製作した結果、Fig. 3.1.1-18 に示すような良好な外観であった。

(7) ペレット焼結試験

最後に、ダイ潤滑成型法で得られた成型体の焼結試験を実施した。成型体を空気雰囲気で 3 時間、1473 K（マクロ分散型）、又は 1923 K（ミクロ分散型）で焼結を実施した結果、90%T.D. 以上の焼結密度を得ることができた。

CeO_2-ZrO_2 ペレット（マクロ分散型）の中心を縦方向に切断・研磨し、SEM 観察した結果を Fig. 3.1.1-19 に示す。CeO_2 粒子がマトリックス内に均一に分散していることを確認するため、Fig. 3.1.1-19 に示す各領域について、エネルギー分散型蛍光 X 線装置（EDX）により CeO_2 粒子の占有割合を調べた結果を Table 3.1.1-5 に示す。各ペレットでの CeO_2 の平均占有割合は、CeO_2 成分割合とほぼ一致していることを確認した。

また、CeO_2-MgO ペレット（ミクロ分散型）の SEM 写真及び EDX による観察結果を Fig. 3.1.1-20 に示す。CeO_2 と MgO はそれぞれ数 μ m の領域を形成して分布しており、ミクロに均一に分散していることを確認した。

これにより、両種類のペレット共に、CeO_2 がマトリックス内に均一に分散していることがわかった。

(8) まとめ

高速炉 MOX 燃料製造用として開発してきた簡素化法による ADS 用のイナートマトリックス燃料製造の可能性に関して検討した。CeO_2 を模擬物質として用い、CeO_2-ZrO_2（マクロ分散型）及び CeO_2-MgO（ミクロ分散型）の製造試験を実施した結果、両タイプの燃料共に、焼結密度が 90%T.D.以上で、CeO_2 の分散性が均一であることを確認できたため、基本的な適用性を確認することができた。

参考文献

3.1.1-1）T. Segawa, M. Nishina, S. Nakamichi, et al., “Development of simplified fuel fabrication technologies for fast rector”, Proceedings of International Conference on Fast Reactors and Related Fuel Cycles (FR22) Apr., 19-22, 2022, Vienna, Austria, IAEA-CN-291, 10.

3.1.1-2）髙藤清人，仁科匡弘，土持亮太，他, “簡素化ペレット法による燃料製造技術開発と実証に向けた取り組み (2) 転動造粒粉末を用いたダイ潤滑成型技術開発”，日本原子力学会 2022 年春の年会, 2I02.

3.1.1-3）仁科匡弘，髙藤清人，中道晋也，他, “簡素化ペレット法による燃料製造技術開発と実証に向けた取り組み (3) 焼結・O/M 調整技術開発とガス流動解析”，日本原子力学会 2022 年春の年会, 2I03.

3.1.1-4）T. Takano, K. Sudo, K. Takeuchi, et al., “Development of oxygen-to-metal ratio of

MOX pellet adjustment technology for the simplified MOX pellet fabrication method in the FaCT project", Proc. GLOBAL 2011, Makuhari, Japan (2011), Paper No. 392244.

3.1.1-5）K. Sudo, T. Takano, K. Takeuchi, et al., "Development of pressing machine with a die wall lubrication system for the simplified MOX pellet fabrication method in the FaCT project", Proc. GLOBAL 2011, Makuhari, Japan (2011), Paper No. 387512.

3.1.1-6）Y. Yamada, K. Kawaguchi, T. Segawa, et al., "Technological investigation of the simplified MA-bearing fuel fabrication process for accelerator driven systems", 14th OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation (IEMPT-14), San Diego, U.S.A. (2016)

Table 3.1.1-1 焼結皿各段の MOX ペレットの O/M 比

焼結皿 No.※	O/M 比
1	1.968
2	1.973
3	1.975
4	1.977
5	1.977
6	1.979
7	1.977
8	1.979

※最上段が No.8、最下段が No.1 となる。

Table 3.1.1-2　イナートマトリックス燃料の仕様

燃料／ターゲット	MA 含有酸化物ターゲット
特性	マクロ分散型／ミクロ分散型
化学形態（組成）	$(Pu,Am)O_{2\pm x}$ + ZrO_2 or MgO
イナートマトリックス	ZrO_2, MgO 等
イナートマトリックスの体積割合	～50 vol%
^{241}Am:Pu	1:1
密度	≧90%T.D.
ペレット直径	9 mm

Table 3.1.1-3　転動造粒装置の運転条件

条件	数値
回転速度（rpm）	650（撹拌羽根） 1600（解砕羽根）
水分添加量（wt.%）	約 11（CeO_2） 約 22（CeO_2-MgO）
混合時間（min）	1.5～3.0

Table 3.1.1-4　造粒粉の Carr の流動性指数

	造粒前	造粒後
CeO_2 粉末	21 (Very poor)	82 (Good)
CeO_2-MgO 粉末	35.5 (Very poor)	86.5 (Good)

Table 3.1.1-5　EDX により得られた CeO_2-ZrO_2 ペレットの成分分析

CeO_2-ZrO_2 ペレット	成分	領域 A～I 平均値（%）	標準偏差（%）
CeO_2-70wt.%ZrO_2	CeO_2 (wt.%)	30.66	2.3
	ZrO_2 (wt.%)	69.34	2.3
CeO_2-44.6wt.%ZrO_2	CeO_2 (wt.%)	54.48	2.4
	ZrO_2 (wt.%)	45.52	2.4

*領域 A～I は Fig.3.1.1-19 に示すとおり。

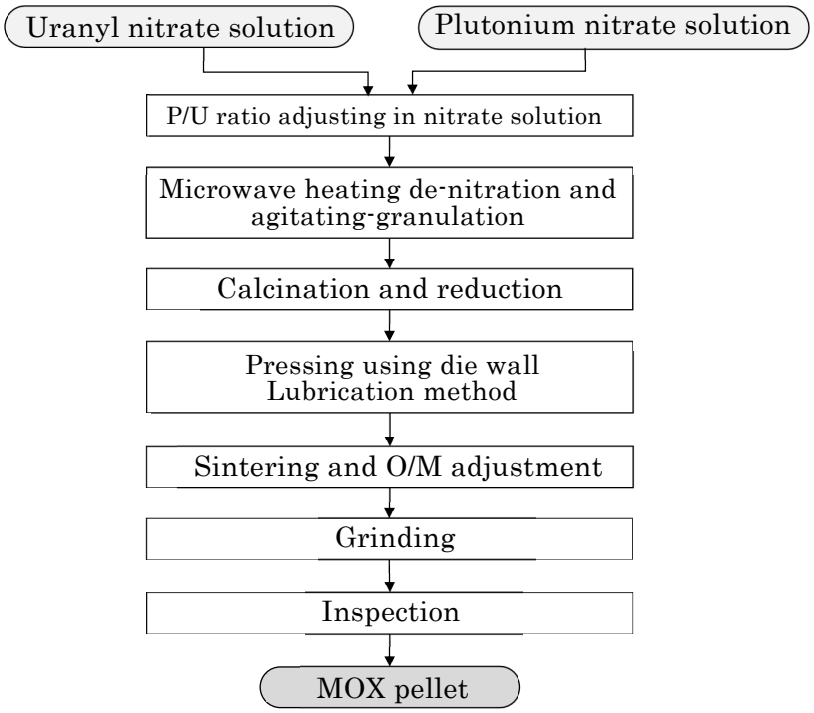


Fig. 3.1.1-1 簡素化法プロセスのフロー

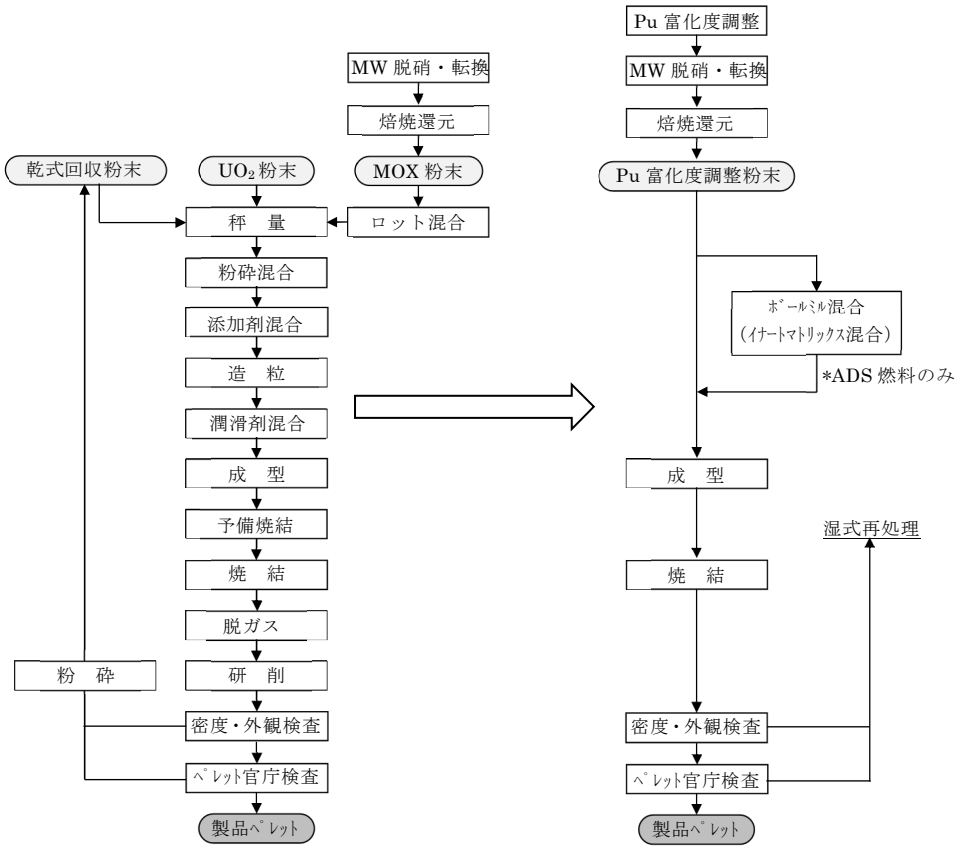


Fig. 3.1.1-2　現行の高速炉用 MOX 燃料製造プロセスと簡素化法製造プロセス

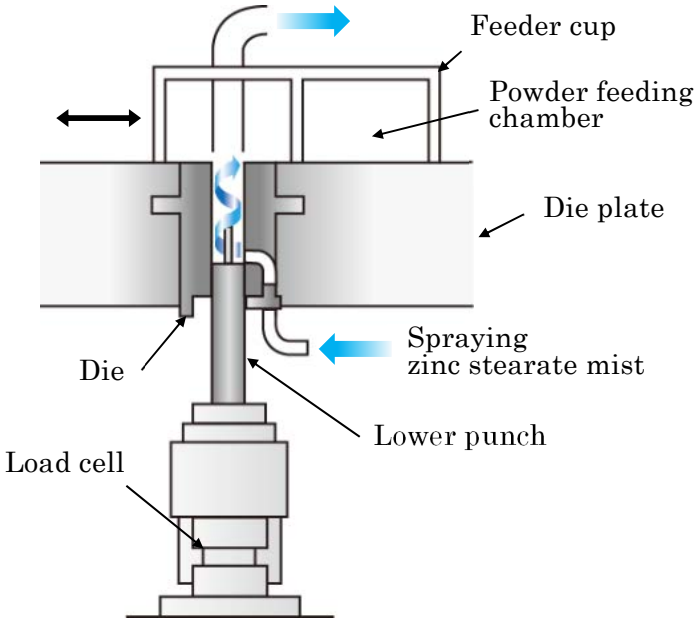


Fig. 3.1.1-3　ダイ潤滑成型機の概略図

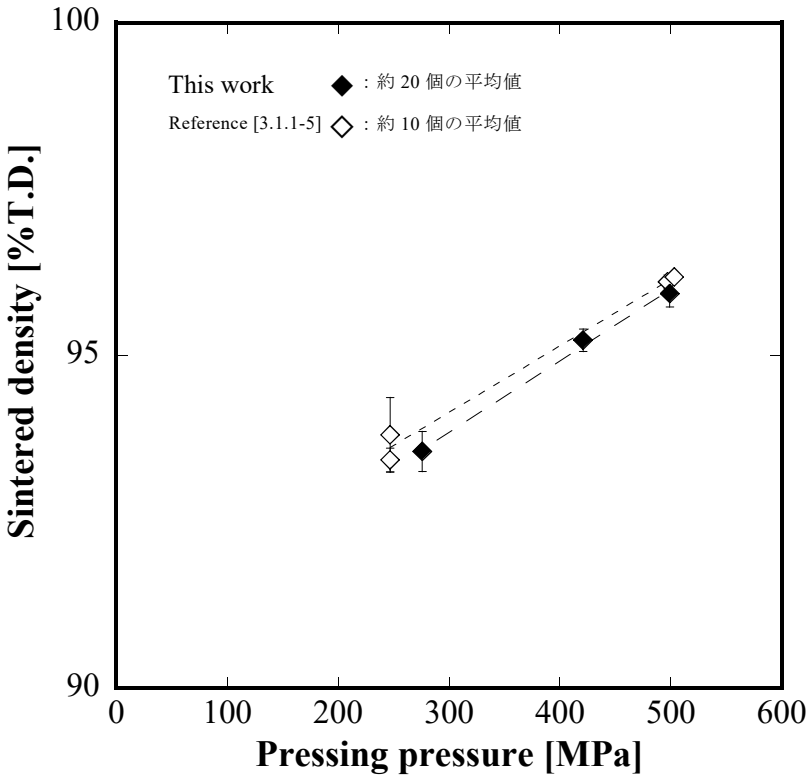


Fig. 3.1.1-4　成型圧力とペレットの焼結密度の関係

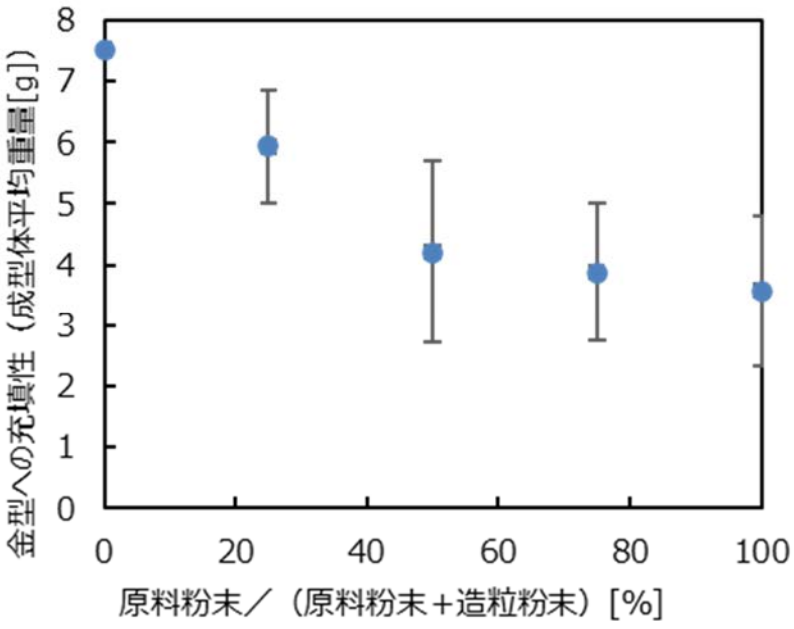


Fig. 3.1.1-5　造粒粉末混合率と充填性の関係

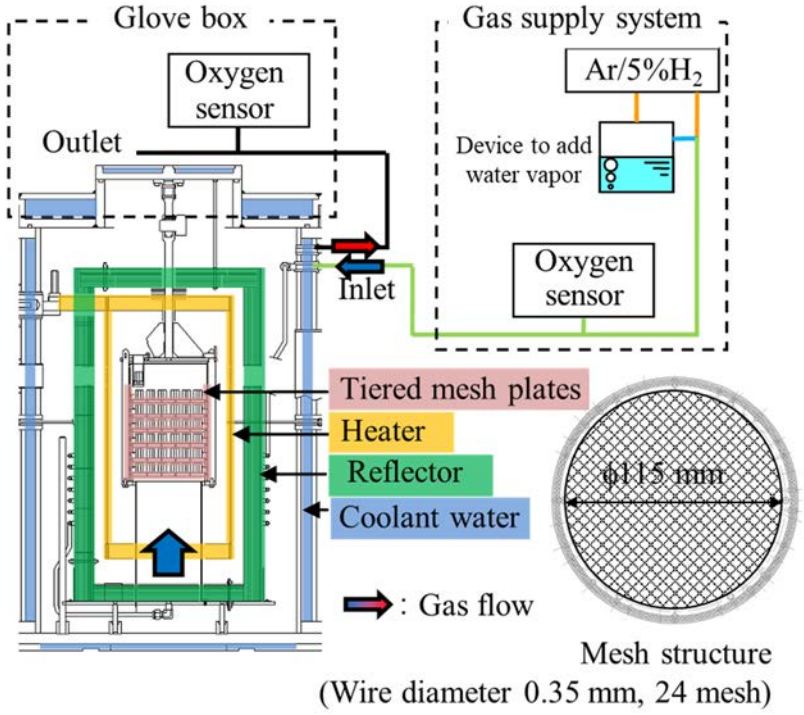


Fig. 3.1.1-6　小型焼結炉の概略図

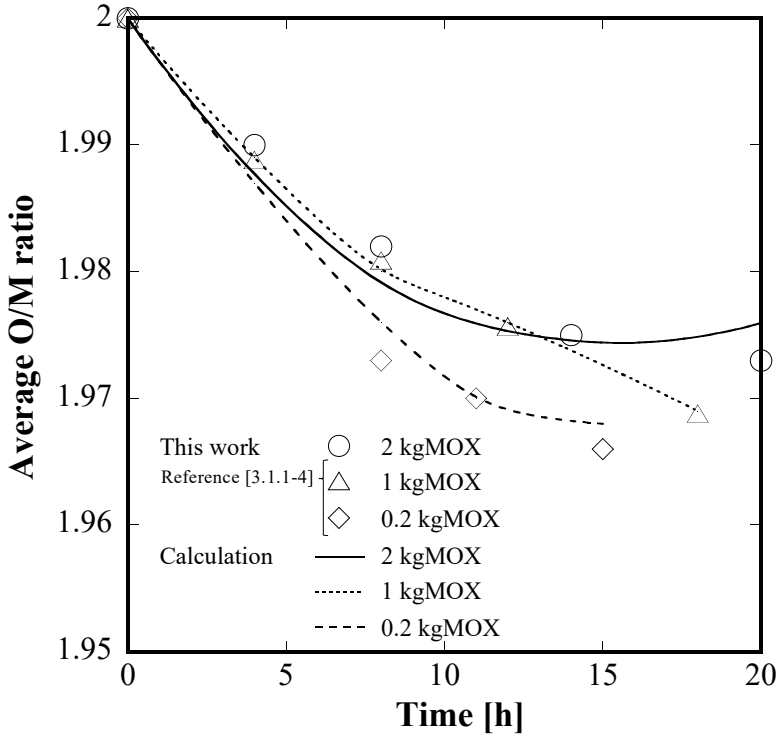


Fig. 3.1.1-7　熱処理時間に対する O/M 比の変化

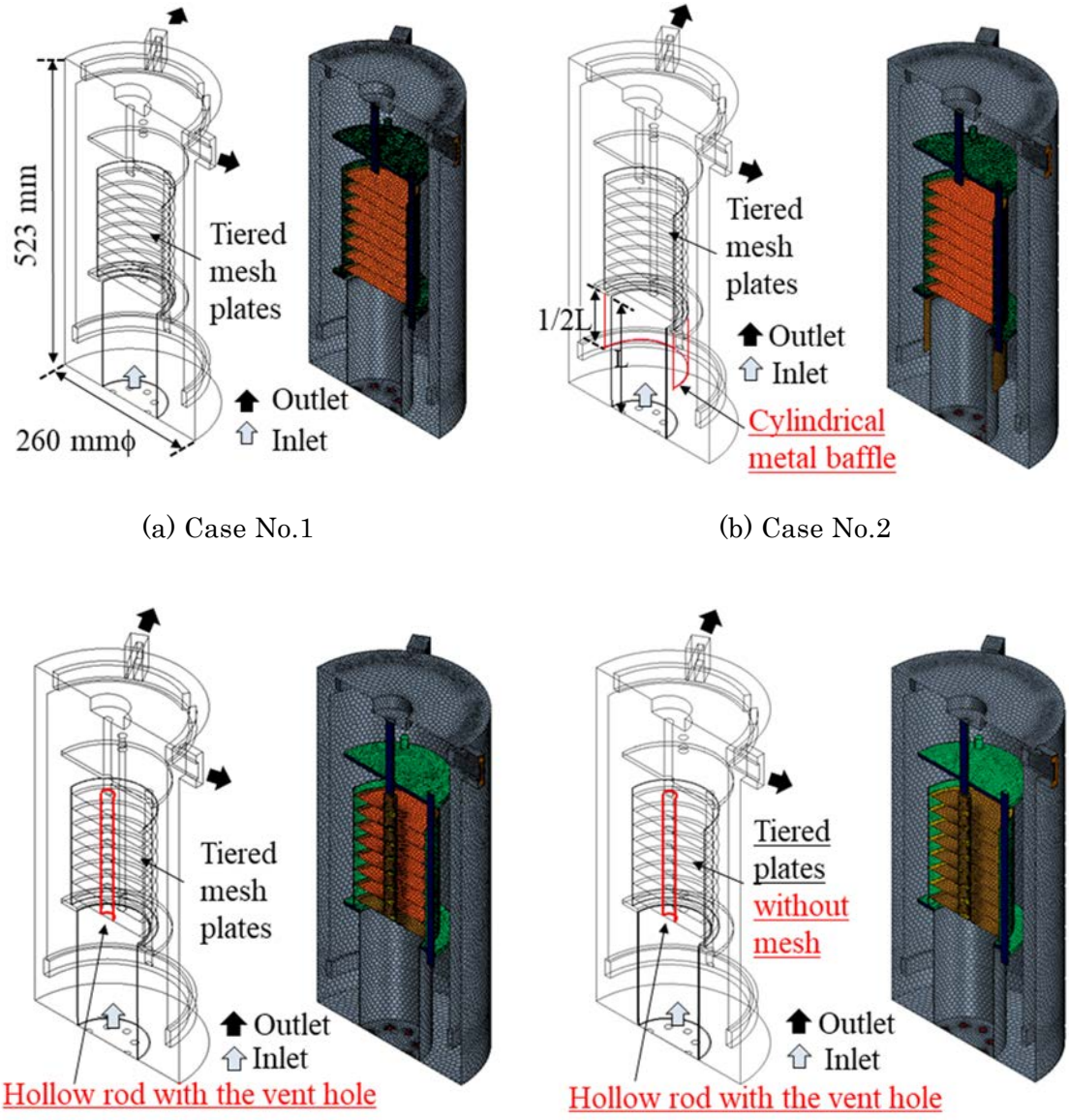
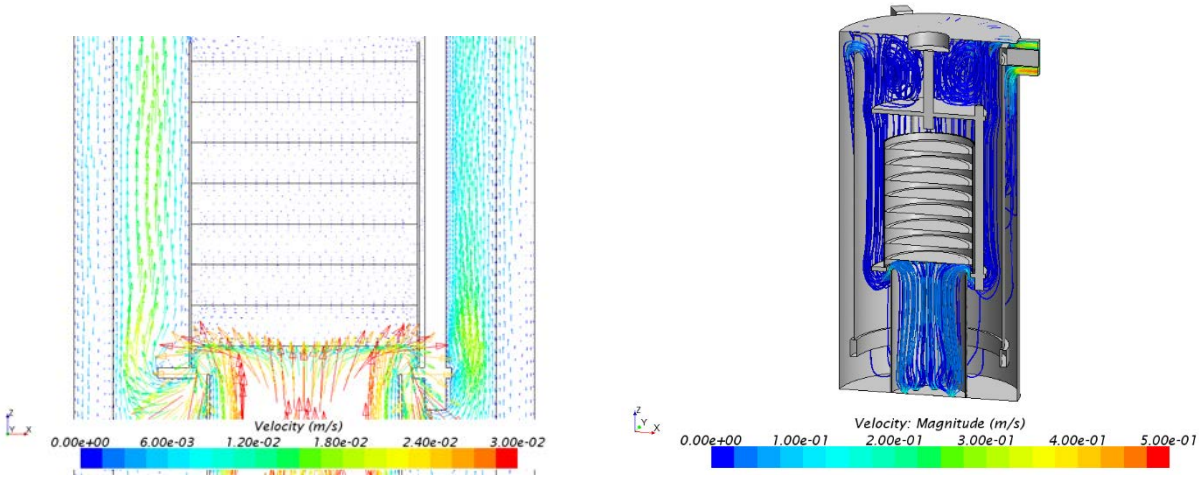
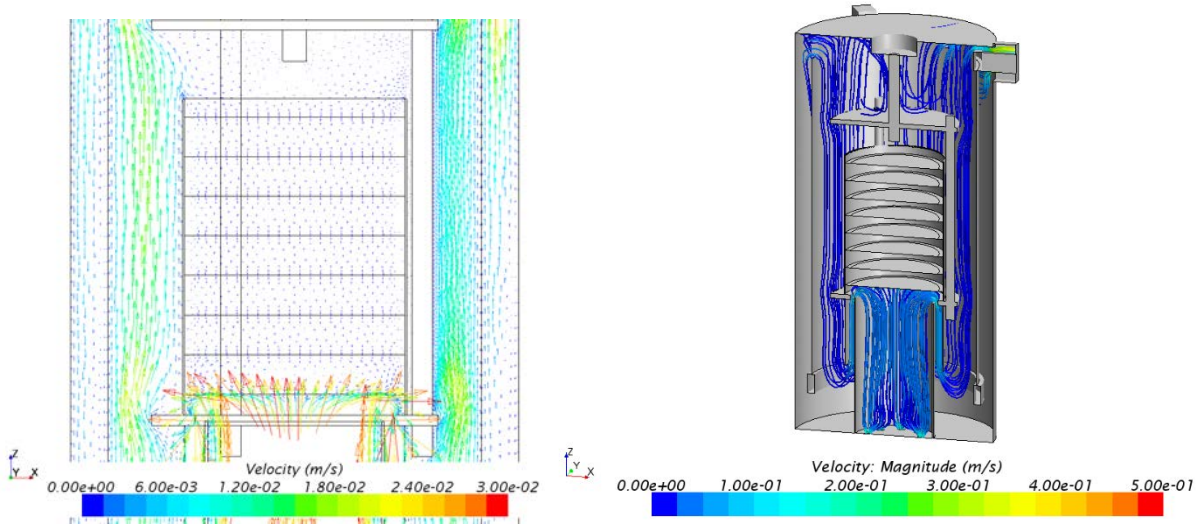


Fig. 3.1.1-8　小型焼結炉の解析モデル



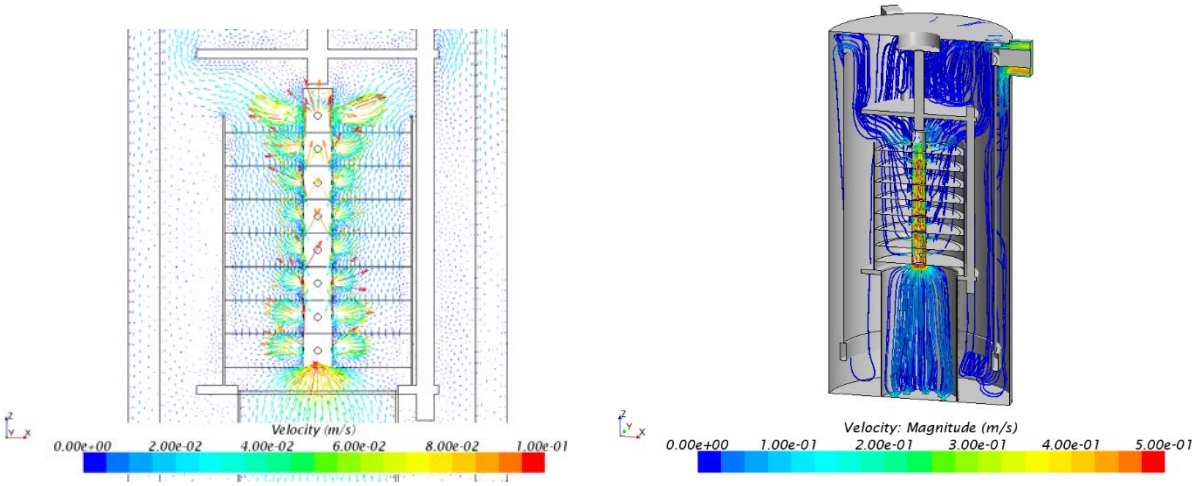
(a) 速度ベクトル　　(b) ガス流動

Fig. 3.1.1-9　ガス流動シミュレーション結果（Case No.1）



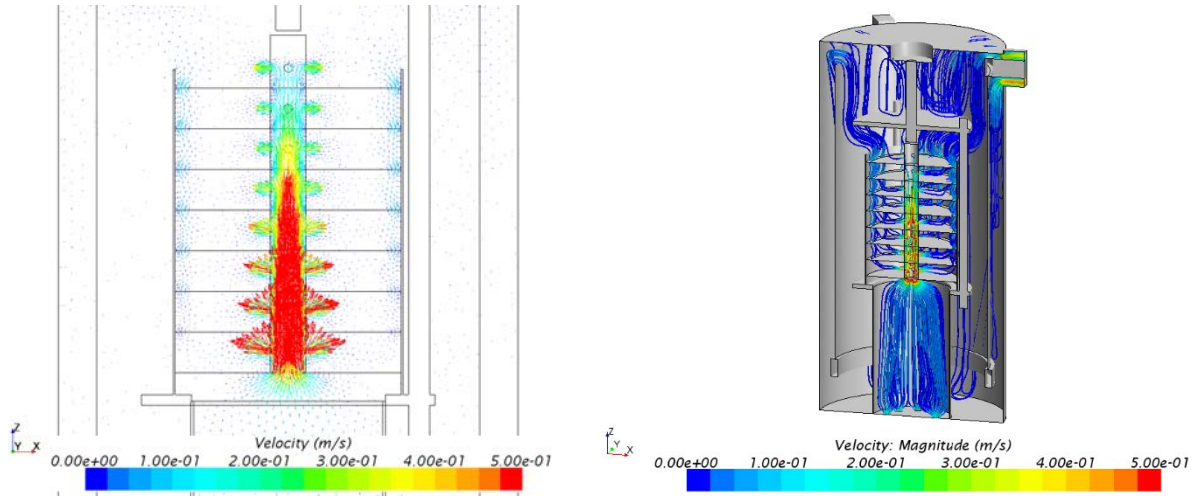
(a) 速度ベクトル　　(b) ガス流動図

Fig. 3.1.1-10　ガス流動シミュレーション結果（Case No.2）



(a) 速度ベクトル　　(b) ガス流動図

Fig. 3.3.1-11　ガス流動シミュレーション結果（Case No.3）



(a) 速度ベクトル　　(b) ガス流動図

Fig. 3.1.1-12　ガス流動シミュレーション結果（Case No.4）

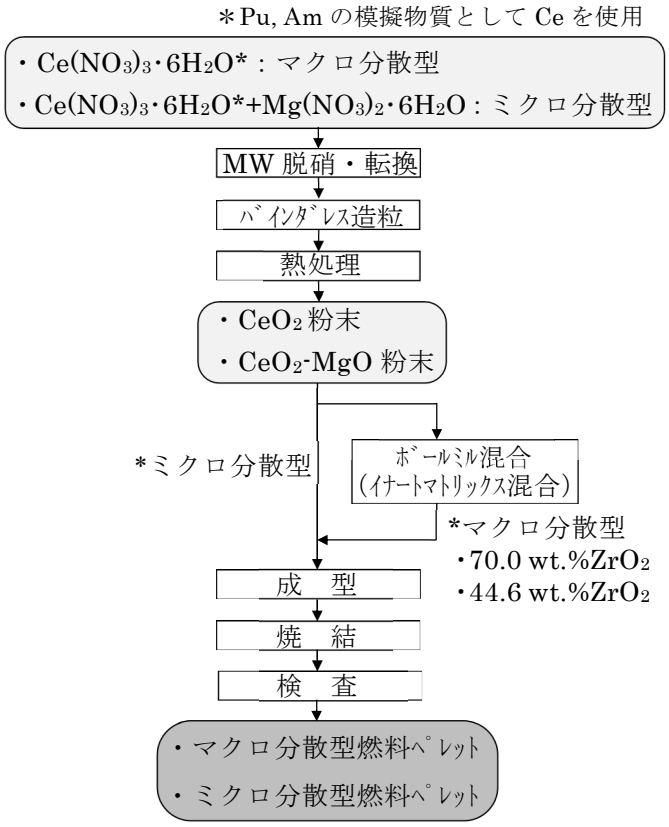


Fig. 3.1.1-13　イナートマトリックス燃料の製造プロセス

(a) $Ce(NO_3)_3$ 溶液の脱硝体　　(b) $Ce(NO_3)_3$ と $Mg(NO_3)_2$ 混合溶液の脱硝体

Fig. 3.1.1-14　マイクロ波加熱により得られた脱硝体の外観

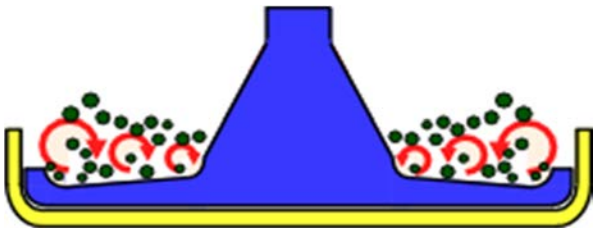


Fig. 3.1.1-15　転動造粒法の原理

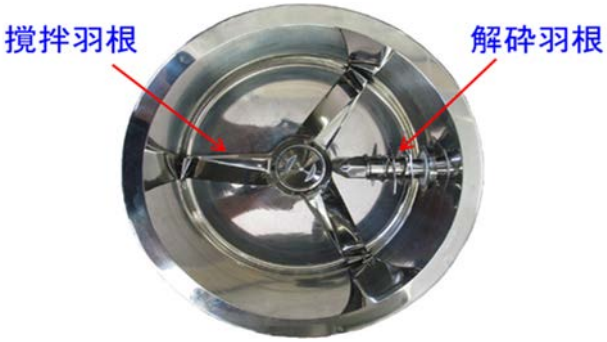
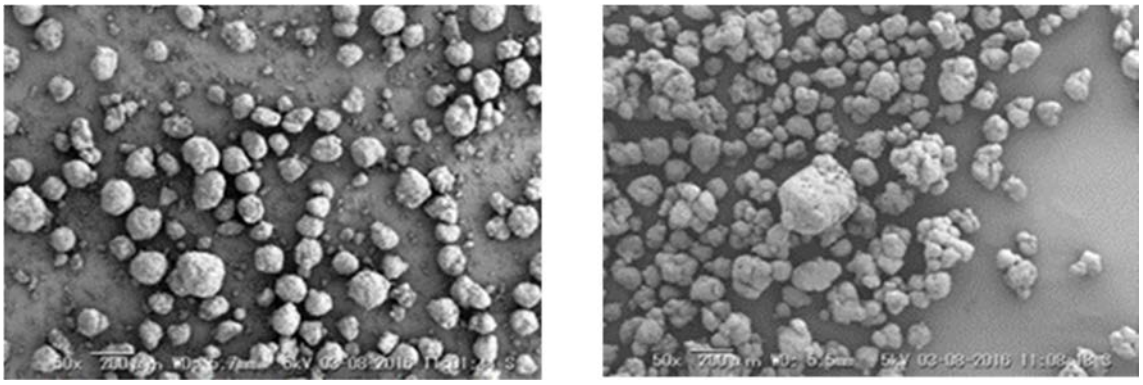
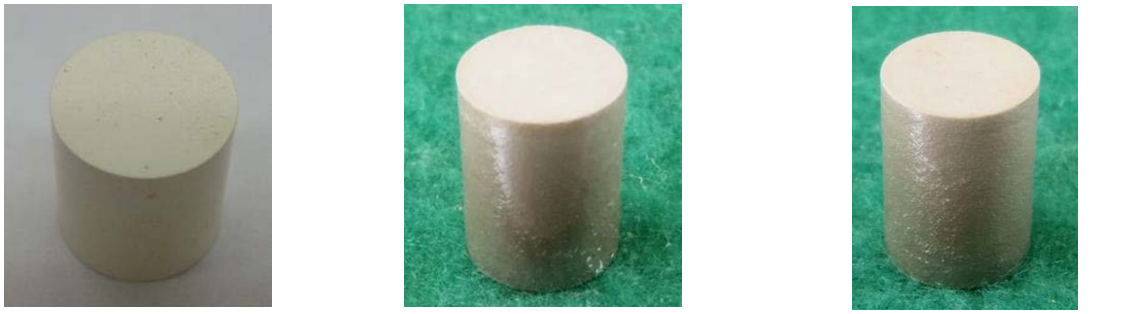


Fig. 3.1.1-16　転動造粒装置の構造



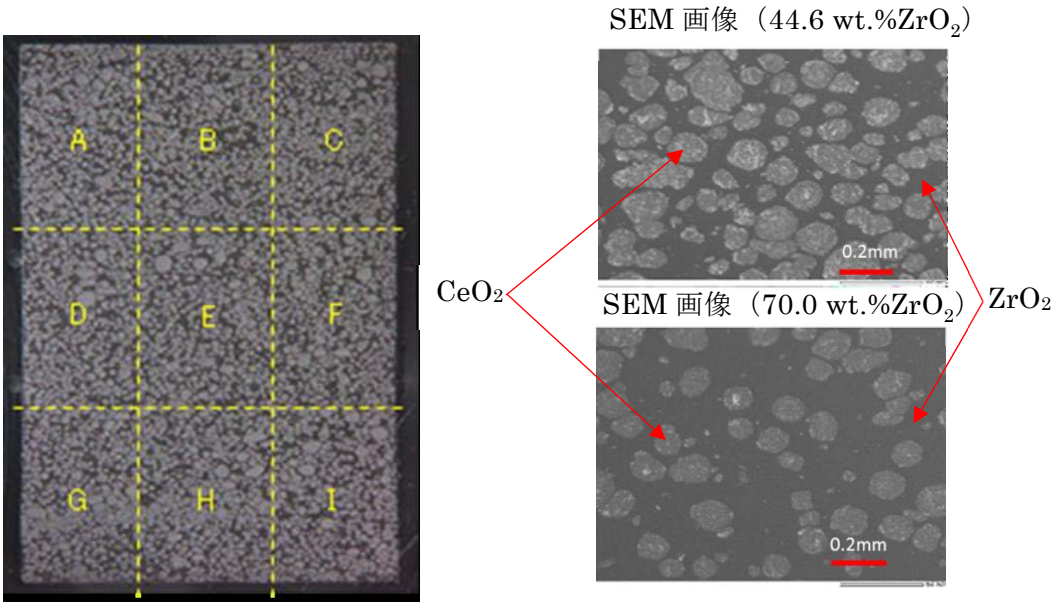
(a) CeO_2 造粒粉　　(b)CeO_2-MgO 造粒粉

Fig. 3.1.1-17　転動造粒試験で得られた造粒粉



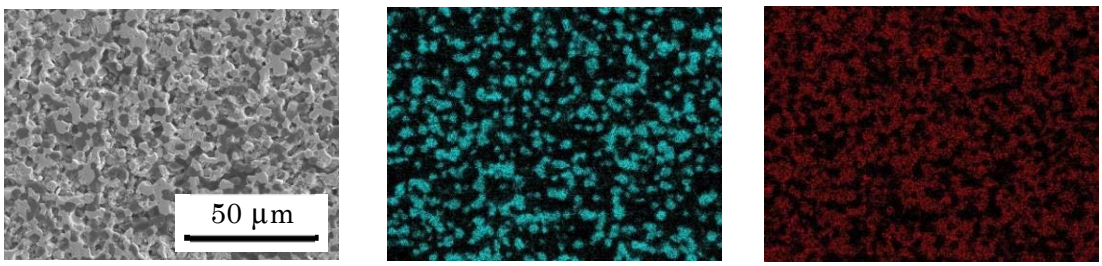
(a) CeO_2-MgO　(b) CeO_2-70.0 wt.%ZrO_2　(c) CeO_2-44.6 wt.%ZrO_2

Fig. 3.1.1-18　試験で得られた成型体の外観



(a) 全体画像　(b) 拡大画像

Fig. 3.1.1-19　CeO_2-ZrO_2 焼結ペレットの軸方向断面の SEM 観察写真



(a) SEM　(b) Mg　(c) Ce

Fig. 3.1.1-20　CeO_2-MgO 焼結ペレットの SEM/EDX 分析結果

3.1.2 革新的燃料製造技術

3.1.2.1 粉末付着防止技術

(1) 目的

混合酸化物（MOX）燃料製造工程においては、核燃料物質である多量の MOX 粉末を取扱うため、グローブボックス（以下 G.B.という。）内への MOX 粉末の付着や滞留が問題となっており、放射線の影響による外部被ばく線量の増加やパネル劣化による内部の視認性の低下が懸念される。第 3 期中長期計画では、G.B.における MOX 粉末の付着・滞留並びに外部被ばく線量の低減等を目的とし、G.B.構成材へのナノ粒子コーティングおよび表面微細加工による粉末付着防止効果の測定・評価を行った。

(2) ナノ粒子コーティングによる粉末付着力低減効果の評価 [3.1.2-1, 2)]

ナノ粒子コーティングによる粉末付着力低減効果を確認するため、ナノ粒子分散液の塗布・乾燥によるナノ粒子コーティングを施した G.B.構成材であるアクリル試験片について、原子間力顕微鏡（AFM）による表面測定および遠心法による粉粒体の付着力評価を実施した [3.1.2-1,2)]。Fig. 3.1.2-1 にアクリル試験片の AFM 測定結果を示す。アクリル試験片にシリカナノ粒子コーティングを施すことにより、微細な凹凸が表面に形成される。Fig. 3.1.2-2 に付着力測定に係る遠心法の概略図を示す。アクリル試験片を取り付けた治具全体を回転させ、遠心力によりアクリル試験片表面に付着した UO_2 粒子に試験片から脱離する方向に力を加えた。回転速度を 0 rpm から 5000 rpm まで 1000 rpm ずつ回転速度を増加するとともに、都度、試験片表面に残留した UO_2 粒子をマイクロスコープにより観察した。測定結果を Fig.3.1.2-3 に示す。UO_2 粒子の粒子径が約 10 μm よりも小さい場合は、付着力に対してファンデルワールス力が支配的と考えられる。最も小さい粒子径約 5 μm の UO_2 粒子に働く最小付着力が約 10 分の 1 に低下することを確認した。ナノ粒子コーティングにより微細な凹凸が表面に形成されることで、粉末と表面に働くファンデルワールス力が減少し、粉末付着力が低下したと考えられる。

(3) ナノ粒子コーティングによる粉末付着量低減効果の MOX 粉末を用いた評価

ナノ粒子コーティングによる MOX 粉末付着防止効果を確認するため、アクリル試験片を用いて単位面積当たりの MOX 粉末の平均付着量評価を実施した [3.1.2-2)]。MOX 粉末の付着量測定試験を Fig. 3.1.2-4 に示す。ナノ粒子コーティングにより、単位面積当たりの MOX 粉末の平均粉末付着量が約 10 分の 1 に低減しており、ナノ粒子コーティングが MOX 粉末に対しても高い粉末付着低減効果が得られることを確認した。

(4) ナノ粒子濃度の粉末付着低減効果への影響の評価 [3.1.2-3)]

ナノ粒子濃度が粉末付着低減に及ぼす影響の評価に係り、ナノ粒子コーティングにおける最適な濃度を確認するため、0.1~1.0 mass%までコーティング剤中のナノ粒子濃度を変化させ、酸化物燃料粉末の模擬物質としてアルミナ粉末を用いて、G.B.構成材へのアルミナ粉末の表面被覆率を計測する試験を実施した [3.1.2-3)]。アクリル試験片表面の AFM 測定結果を Fig. 3.1.2-5

に、試験結果を Fig. 3.1.2-6 に示す。Fig. 3.1.2-6 において、アクリル試験片、ステンレス試験片およびポリカーボネート試験片において、ナノ粒子濃度 0.5 mass%の処理面では、アルミナ粉末の表面被覆率が最も低くなる傾向にあることを確認した。Fig. 4.1.3-5 (b)0.1 mass%および(d)1.0 mass%においては、少数の大きな凸部が偏在する一方、(c)0.5 mass%においては、比較的小さな凸部が測定領域全体に一様に分布しており、ナノ粒子コーティングの均一性が、粉末付着低減に大きく影響を及ぼすと考えられる。本結果は、ナノ粒子濃度を最適化することにより、粉末付着低減効果を向上可能であることを示唆している。

(5) ステンレス表面の微細加工による粉末付着性低減効果の評価

ステンレス表面の微細加工による粉末付着性低減効果および粉末の付着力を定量的に評価するため、未加工のステンレス（SUS304, #400）とその表面に微細加工（不二製作所による Gemini 加工）を施したステンレス試験片の AFM による付着力測定を実施し、微細加工により平均付着力が低下することを明らかにした [3.1.2-4]。粉末付着防止のため、G.B.構成材のステンレス表面に微細加工を行い、粉末付着防止効果に係る AFM 測定および付着力測定試験を実施した。未加工のステンレス試験片の AFM 測定および付着力測定結果を Fig. 3.1.2-7 に、微細加工を施したステンレス試験片の結果を Fig. 3.1.2-8 に示す。平均付着力は、未加工では平均約 2.0 nN であった一方、微細加工面では、平均約 1.2 nN に低下することを明らかにした。

(6) まとめ

G.B.構成材へのナノ粒子コーティングおよび表面微細加工による粉末付着防止効果の評価を行った。G.B.構成材にナノ粒子コーティングを塗布することにより、G.B.における核燃料物質の付着・滞留並びに外部被ばく線量の低減が可能となる。また、核燃料物質からの放射線によるパネルの劣化を抑制することにより、内部の視認性が従来よりも向上することが可能になると見込まれる。さらに、設備の廃止措置や除染作業時のゴーグル等への粉塵付着低減による視認性の向上に対しても有効な手法と期待できる。

ステンレス表面の微細加工については、MOX 粉末の場合においても、想定される粒子径約 2 μm に対して適切な間隔と深さの凹凸を調整することにより、粉末付着力を低減することが期待できる。また、ステンレスの微細加工は、ナノ粒子コーティングに比べ、高い耐久性を有すると考えられ、長期の粉末付着力防止効果の保持が期待できる。そのため、G.B.のステンレス缶体のみならず、燃料製造設備や粉末保管用ステンレス缶等の粉末付着防止に対しても有用な手法であると見込まれる。

3.1.2.2 三次元積層造形、放電プラズマ焼結

酸化物燃料ペレットの製造技術は、粉末冶金法をベースとして日本を含む各国で開発されており、その製造工程は、原料粉末混合、成形、焼結及び加工（研削）から構成される [3.1.2-5]。JAEA では次世代の燃料製造プロセスとして簡素化ペレット法を開発しており、従来型の燃料製造プロセスと比較して工程数の大幅な削減が可能となっている [3.1.2-6]。上記プロセスにおけるペレット成形工程では、一軸加圧成形法が共通して採用されているが、成形体内部の不均一

な応力分布に起因して焼結時にペレットの変形や割れが生じること、金型充填性の高い原料粉末が必要なことといった課題がある。また、焼結工程については、従来型の燃料製造プロセス及び簡素化ペレット法のどちらも間接加熱による常圧焼結法が採用されているが、焼結が完了するまでに長時間を要することが課題として挙げられる。さらに、自動化により燃料ペレットの連続生産を行う場合、一連の設備は大型化するため、これらを収納する G.B.等も大きな容積を必要とし、設計・製作コストが増大することも課題として挙げられる。

これらの課題を解決するために、ファインセラミックスの新たな製造技術として研究開発が進められている 3D プリンターを用いた三次元積層造形技術[1]（以下「積層造形技術」という。）及び SPS（放電プラズマ焼結）法に着目した。積層造形技術は、金型が不要なため、成形体内部に不均一な応力分布が発生しないこと、焼結時の変形をフィードバックした成形が可能となること [3.1.2-8]、一軸加圧成形法と比較して設備を小型化できること等の利点を有している。SPS 法は、従来の焼結手法と比較して焼結時間を 1/20～1/100 に短縮可能であり、微細組織の制御が容易という利点を有している [3.1.2-9]。

しかし、上記の技術は一般的なファインセラミックスに対して適用できることが報告されているものの [3.1.2-9,10]、核燃料物質への適用性に関しては先行研究が少ないため不明な部分が多い。そこで本研究では核燃料模擬物質（CeO_2 等）を用いて基礎的な試験を行い、各手法の核燃料製造技術への適用性を検討した。

(1) 三次元積層造形

本研究では、紫外線硬化樹脂にセラミックス粉末を添加・混合してスラリーとし、そこへ紫外線レーザーを照射して硬化・造形していく手法を採用した。CeO_2 を用いた光硬化試験の結果から、スラリーの硬化は 405 nm のレーザーで生じやすいことが判明した。これは CeO_2 が 405 nm のレーザーに対して透過率が高く、硬化反応に必要なエネルギーを効率よく紫外線硬化樹脂に付与できたためと考えられる。従って、セラミックス含有スラリーを光硬化させるためには、セラミックス粉末のレーザー波長に対する光学特性を把握する必要があるといえる。この結果をもとに、CeO_2 スラリーの積層造形試験を実施し、Fig. 3.1.2-9 に示す造形体を得ることに成功した。

(2) 放電プラズマ焼結

Fig. 3.1.2-10 に放電プラズマ焼結法で作製した各種セラミックスの焼結体を示す。本図に示すように一般的なファインセラミックスであれば、非常に短時間で高密度の焼結体を得ることが可能である。一方、UO_2 や MOX のような酸素不定比性の酸化物の場合、焼結中に還元が生じるとともに、電極間で酸素の再分布が起こるため、O/M 比がペレット軸方向に変化することが知られている [3.1.2-11]。従って、焼結中の還元及び O/M 比再分布を抑制した手法が必要となる。この手法については長岡技術科学大学との共同研究によって基礎的な検討を行い、焼結中

[1] 従来は RP（Rapid Prototype）と呼ばれていたが、近年は AM（Additive Manufacturing）とも呼ばれている [3.1.2-7]。

の通電を一方向とせずに一定の間隔で極性を反転させる手法を導入した。Fig. 3.1.2-11 に本手法による CeO_2 の焼結結果を示すが、通常の SPS では焼結温度の上昇に伴い、試料上下の色が変化しているが、極性反転焼結の場合は上下の色に違いが見られないことがわかった。従って、焼結中の O/M 比再分布挙動が一定程度抑制されたと考えられる。

3.1.2.3　添加物フリー乾式造粒技術

(1)　目的

簡素化ペレット法の造粒技術として転動造粒法による造粒技術開発を進めている。Fig. 3.1.2-12 の簡素化ペレット法プロセスに示すように、転動造粒法では、バインダとして水を使用する一方、近年、バインダを使用しない乾式造粒法が開発されており [3.1.2-12, 13]、乾燥系の臨界管理が求められる燃料製造工程において適合性の高い技術と見込まれている。本研究では、添加剤フリーの乾式造粒法による粉末の造粒を行い、作製された顆粒を測定し、その造粒性を評価する。

(2)　CeO_2 粉末の調製

使用済燃料の再処理工程においては、硝酸ウラニル・硝酸プルトニウム混合水溶液をマイクロ波加熱脱硝法により MOX 粉末へ転換していることから、MOX 粉末の模擬物質として、硝酸セリウム水溶液からマイクロ波加熱脱硝法により調製した CeO_2 粉末を使用した。Fig. 3.1.2-13 に CeO_2 粉末の粒度分布を示す。CeO_2 粉末の平均粒子径は 1.36 μm であり、MOX 粉末の平均粒子径 0.5 μm に近い微細な粒子である [3.1.2-14]。

(3)　湿度が造粒性に及ぼす影響評価

乾式造粒においては、雰囲気中の湿度が造粒性に大きく影響を及ぼすと考えられることから、湿度をパラメータとし、手動振とうによる造粒試験を実施した [3.1.2-15]。本試験の機器構成を Fig. 3.1.2-14 に示す。湿度調整機構により、室温 25 ℃において、湿度 10%～90%の範囲で調整した G.B.内で、ポリメチルペンテン（PMP）樹脂製容器を用いて手動振とうにより造粒を行った。造粒粉の粒度分布はレーザー回折散乱式粒度分布測定器（LMS-2000e, セイシン企業製）により観察を行った。

G.B.内の湿度と造粒粉の平均粒子径の関係を Table 3.1.2-1 に示す。造粒粉の平均粒子径はいずれの湿度においても約 300 μm～400 μm の粒度範囲であり、金型への充填に適した粒子径の造粒粉が得られた。また、湿度 30%の条件で作製した造粒粉の粒度分布および SEM 写真を Fig. 3.1.2-15 に示す。良好な性状の造粒粒子が得られることを確認した。CeO_2 粒子の凝集には、粒子内の水分や粒子間のファンデルワールス力が作用している。湿度が高い場合は、CeO_2 粒子内の水分により、凝集が起こりやすくなると考えられる。しかしながら、造粒においては核となる造粒粉が微細な CeO_2 粒子を取り込みながら数百 μm の顆粒に成長するため、湿度の高い雰囲気下において、CeO_2 粒子が一定程度の大きさの凝集粉となった場合、造粒粉の成長が抑制される可能性が考えられる。

(4) 添加剤フリー造粒法の機械化に向けた検討

添加剤フリー乾式造粒法の機械化に向けた基礎試験として、CeO_2 粉末を模擬粉末として用い、容器材質や外力付加方法が造粒性に及ぼす影響評価を実施した [3.1.2-16]。試料として、Fig. 3.1.2-16 に示す平均粒子径 0.61 μm の CeO_2 粉末（CE005PB, 高純度化学研究所製）を使用した。Fig. 3.1.2-14 の G.B.内に振動装置（PET05-05AM, IMV 製）を設置し、Table 3.1.2-2 に示す試験条件でそれぞれ造粒試験を実施した。容器材質として、PMP 樹脂および SUS304 を用い、外力として周波数 50 Hz、振幅 0.5 mm の垂直振動および水平振動を 60 秒間付加した。試験 No.4 の条件で作製した造粒粉の粒度分布および外観写真を Fig. 3.1.2-17 に示す。粒子径 1 μm～10 μm、10 μm～100 μm、100 μm～1000 μm にそれぞれピークが見られ、三峰性の粒度分布を示す傾向が見られた。粒子径 1 μm～10 μm は、一次粒子が弱く凝集した状態であると考えられる。また、粒子径 10 μm～100 μm の粒子については、十分な粒子径の造粒粒子に成長できなかったことが示唆される。試験条件 No.1 の手動振とうにより作製した造粒粉も同様に三峰性の粒度分布であったことから、マイクロ波加熱脱硝法により調製した CeO_2 粉末に比べて、市販の CeO_2 粉末の凝集性が低いことが原因と考えられる。

造粒粉は金型への充填性の観点から、粉末流動性指数（Carr の流動性指数）60 以上が要求される。そのため、流動性が良いと考えられる粒子径約 100 μm～900 μm の粒子を造粒粒子と定義し、その収率を評価した。各試験条件の造粒粒子の収率を Fig. 3.1.2-18 に示す。試験条件 No.1 の手動振とうにより作製した造粒粒子の収率に対して、No.4（垂直振動）の造粒粒子の収率は同程度であった。また、容器材質による収率の差はほとんど見られなかった。水平振動よりも垂直振動の方が、造粒粒子の収率が高くなる傾向が見られた。垂直振動は水平振動に比べて、粒子全体に振動が加わりやすく、造粒粒子が成長しやすいため、造粒粒子の収率が向上したと考えられる。

(5) まとめ

添加剤フリーの乾式造粒法の適用性評価のため、MOX 粉末の模擬物質としてマイクロ波加熱脱硝法により調製した CeO_2 粉末を用いて、湿度が造粒性に及ぼす影響評価を実施した。湿度 10%～90%において、造粒粉の平均粒子径は約 300 μm～400 μm の粒度範囲であり、金型への充填に適した粒子径の造粒粉が得られた。湿度 30%の条件で作製した造粒粉の平均粒子径は最も大きく、良好な性状の造粒粒子が得られることを確認した。MOX 粉末はマイクロ波加熱脱硝法により製造されており、粒子は微細であることから、添加剤フリー乾式造粒技術が適用可能であると考えられる。

また、添加剤フリー乾式造粒法の機械化に向けた基礎試験として、CeO_2 粉末を模擬粉末として用い、容器材質や外力付加方法が造粒性に及ぼす影響評価を実施した。造粒試験の結果、垂直振動の方が水平振動に比べて、造粒粒子の収率がわずかに高くなる傾向が見られた。また、SUS304 製容器により作製した造粒粒子の収率は、手動振とうと同程度であり、容器材質による収率の差はほとんど見られなかった。MOX 燃料製造工程へ添加剤フリー乾式造粒法を適用する上では、容器材質として耐久性や耐放射線性に優れた SUS304 が望ましいと考えられる。

機械振動による外力付加により、良好な造粒性が得られたことから、乾式造粒プロセスの機械化の見通しを得ることができた。

参考文献

3.1.2-1) 瀬川智臣, 川口浩一, 石井克典, 他, “ナノ粒子コーティングによる二酸化ウラン粉末付着防止効果の評価”, 日本原子力学会 2019 年秋の大会予稿集, 1E12.

3.1.2-2) T. Segawa, K. Kawaguchi, K. Ishii, et al., “Preventing nuclear fuel material adhesion on glove box components using nanoparticle coating”, Mechanical Engineering Journal, 8, 3, (2021) 21-00022.

3.1.2-3) 尾見昂洋, 瀬川智臣, 川口浩一, 他, “ナノ粒子コーティング方法の検討と粉末付着防止効果の評価”, 日本原子力学会 2020 年秋の大会予稿集, 3E03.

3.1.2-4) 瀬川智臣, 川口浩一, 石井克典, 他, “微細加工およびナノ粒子コーティングによる粉末付着防止技術開発”, 日本原子力学会 2020 年春の年会予稿集, 1A13.

3.1.2-5) T. Abe, K. Asakura, “Uranium Oxide and MOX Production”, Comprehensive Nuclear Materials, (2012), pp.393-422.

3.1.2-6) 日本原子力研究開発機構、日本原子力発電株式会社, 高速増殖炉サイクル実用化研究開発(FaCT プロジェクト); フェーズ I 報告書, JAEA-Evaluation 2011-003, (2011), 303p.

3.1.2-7) 日本塑性加工学会, 粉末成形 , 粉末加工による機能と形状のつくり込み, コロナ社 (2018).

3.1.2-8) 株式会社矢野経済研究所, 平成 25 年度製造基盤技術実態等調査（ファインセラミックス産業技術戦略策定基盤調査）報告書, 2014.

3.1.2-9) 鴇田正雄, 放電プラズマ焼結 (SPS) 法によるセラミックス焼結の現状と将来性 (特集焼成), セラミックス, bulletin of the Ceramic Society of Japan 49(2), (2014), pp.91-96.

3.1.2-10) J. Deckers, J. Vleugels, J.P. Kruthl, “Additive Manufacturing of Ceramics, A Review”, Journal of Ceramic Science and Technology 5(4), (2014), pp.245-260.

3.1.2-11) V. Tyrpek, M. Cologna, “Chapter 11 - Asymmetrical microstructures and compositions, new phases, and improved metal-ceramic bonding by DC electric fields, A review with new insights from $CeO_{2-\nu}$, in, G. Cao, C. Estournès, J. Garay, R. Orrù (Eds.), Spark Plasma Sintering, (2019), pp.257-279.

3.1.2-12) 名取ゆり, 池本憲弘, 米原和男, 他, “固体トリチウム増殖材セラミックス微小球の静電造粒焼成法-セラミックス粉末の乾式造粒条件の検討-”, 日本原子力学会 2019 年秋の大会予稿集, 2L10.

3.1.2-13) Y. Natori, N. Ikemoto, K. Yonehara, et al., “New Sphere Granulation and Sintering Method of Tritium Breeding Solid-ceramics”, 14 ISFNT, 22-27, Budapest, Hungary, (2019).

3.1.2-14) M. Koizumi, K. Ohtsuka, H. Ohshima, et al., “Development of a process for co-conversion of Pu-U nitrate mixed solutions to mixed oxide powder using microwave

heating method", Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 20, No. 7, (1983), pp.529-536.

3.1.2-15) K. Ishii, T. Segawa, K. Kawaguchi, et al., "Study on development of additive-free dry granulation technology and evaluation of granulation characteristics", Nuclear Materials Conference 2020 (NuMat 2020), 26‐29, Online, (2020).

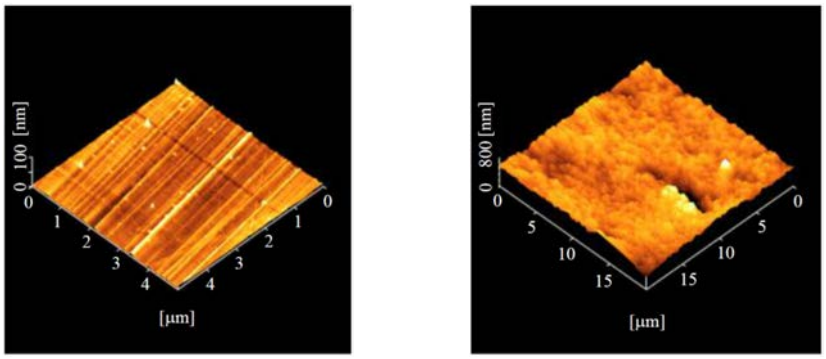
3.1.2-16) 瀬川智臣, 川口浩一, 石井克典, 他, "高速炉燃料製造のための添加剤フリー乾式造粒法に係る造粒性確認試験", 日本原子力学会 2021 年春の年会予稿集, 3K08.

Table 3.1.2-1　湿度と造粒粉の平均粒子径の関係

No.	Relative humidity (%)	Median diameter of granulated powder (μm)
1	10	300
2	30	400
3	50	290
4	90	310

Table 3.1.2-2　造粒試験条件

No.	加振方法	容器材質	振動方向	周波数 [Hz]	振幅 [mm]	加速度（目標値） [m/s²]	加速度（測定値） [m/s²]	振動時間 [s]
1	手動振とう	PMP 樹脂	-	-	-	-	-	60
2	振動装置	PMP 樹脂	垂直	50	0.5	25	27	60
3	振動装置	PMP 樹脂	水平	50	0.5	25	26	60
4	振動装置	SUS304	垂直	50	0.5	25	25	60
5	振動装置	SUS304	水平	50	0.5	25	25	60



(a) ナノ粒子コーティング無し　　(b) ナノ粒子コーティング有り

Fig. 3.1.2-1　アクリル試験片表面の AFM 測定結果

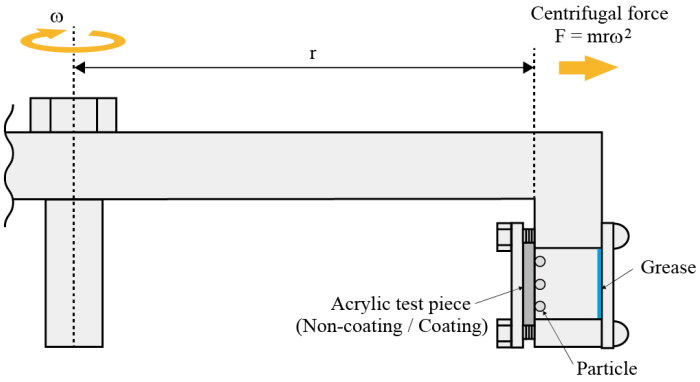


Fig. 3.1.2-2　付着力測定に係る遠心法の概略図

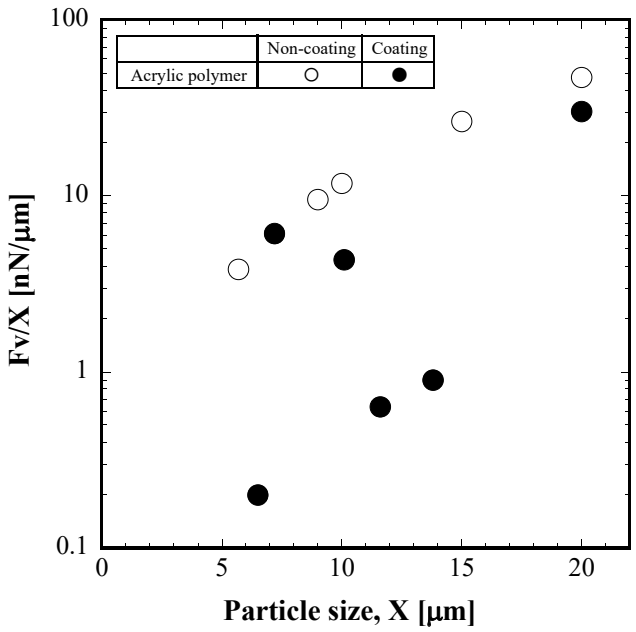


Fig. 3.1.2-3　UO_2粒子の粒子径と規格化した付着力の関係

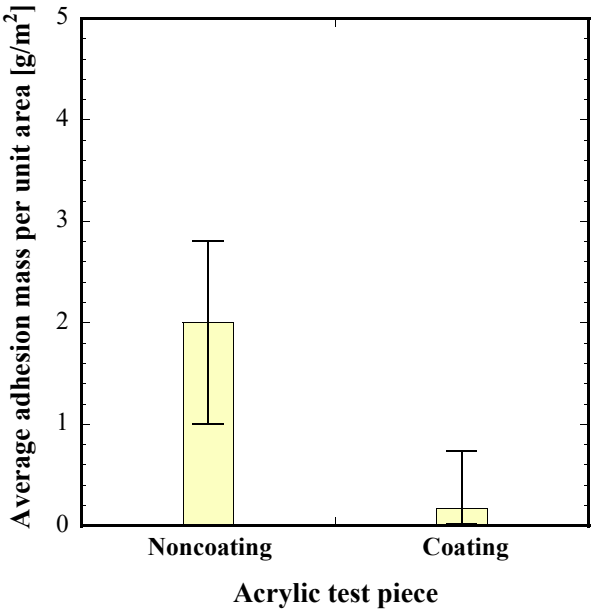
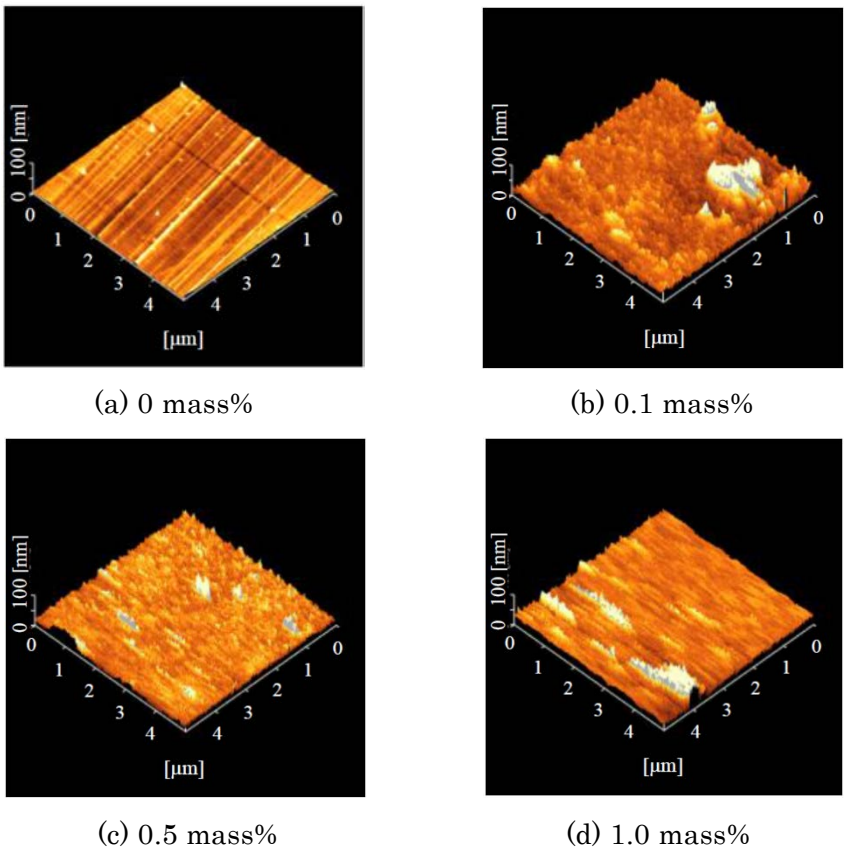


Fig. 3.1.2-4　アクリル試験片に対する MOX 粉末の単位面積当たりの平均付着質量



(a) 0 mass%　(b) 0.1 mass%

(c) 0.5 mass%　(d) 1.0 mass%

Fig. 3.1.2-5　各ナノ粒子濃度におけるアクリル試験片表面の AFM 測定結果

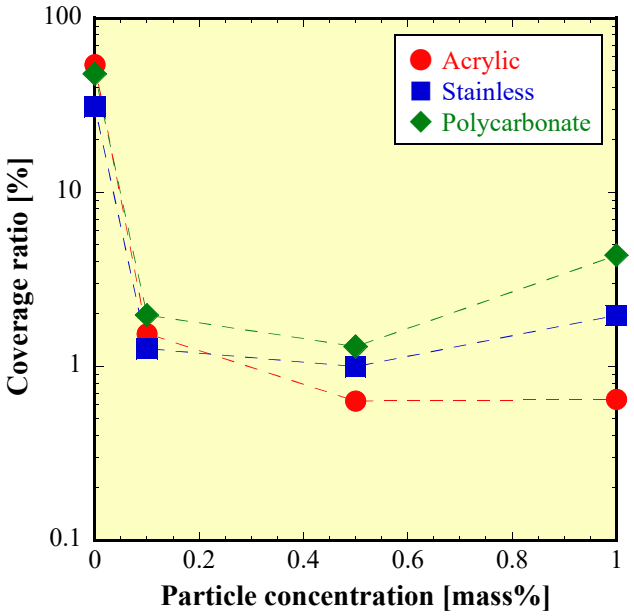
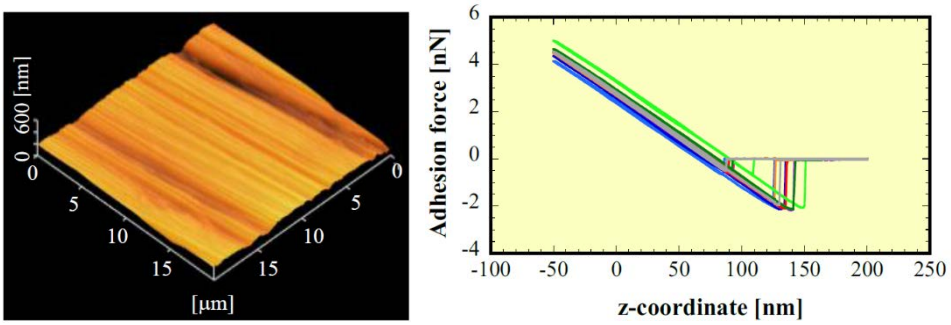
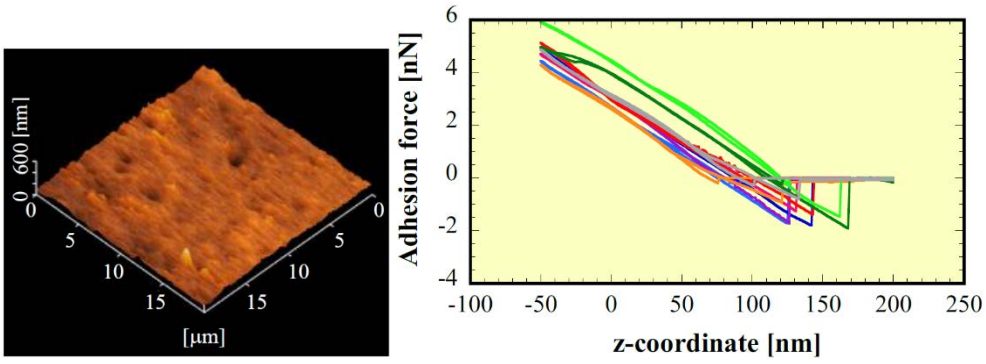


Fig. 3.1.2-6　各ナノ粒子濃度における G.B.構成材へのアルミナ粉末の表面被覆率



(a) ステンレス表面（未加工）　　(b) 付着力測定結果

Fig. 3.1.2-7　ステンレス試験片の AFM 測定および付着力測定結果



(a) 微細加工面　　(b) 付着力測定結果

Fig. 3.1.2-8　微細加工を施したステンレス試験片の AFM 測定および付着力測定結果

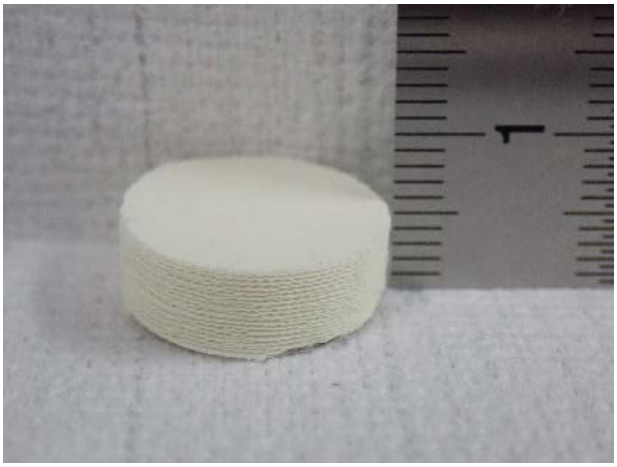


Fig. 3.1.2-9　3D プリンターによる CeO_2 の造形結果

Fig. 3.1.2-10　SPS 法で作製した各種セラミックスの焼結体

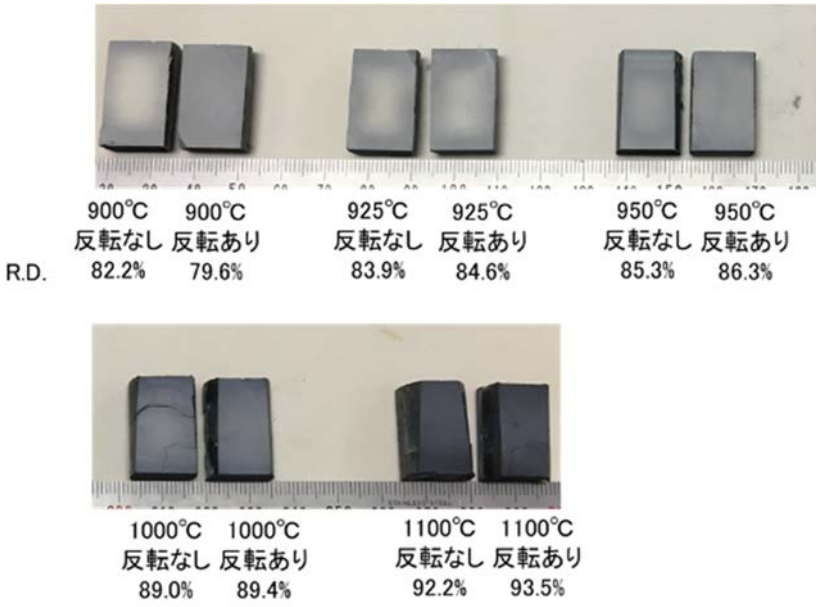


Fig. 3.1.2-11　CeO_2 焼結体の断面写真（図中の R.D.は相対密度を表す。）

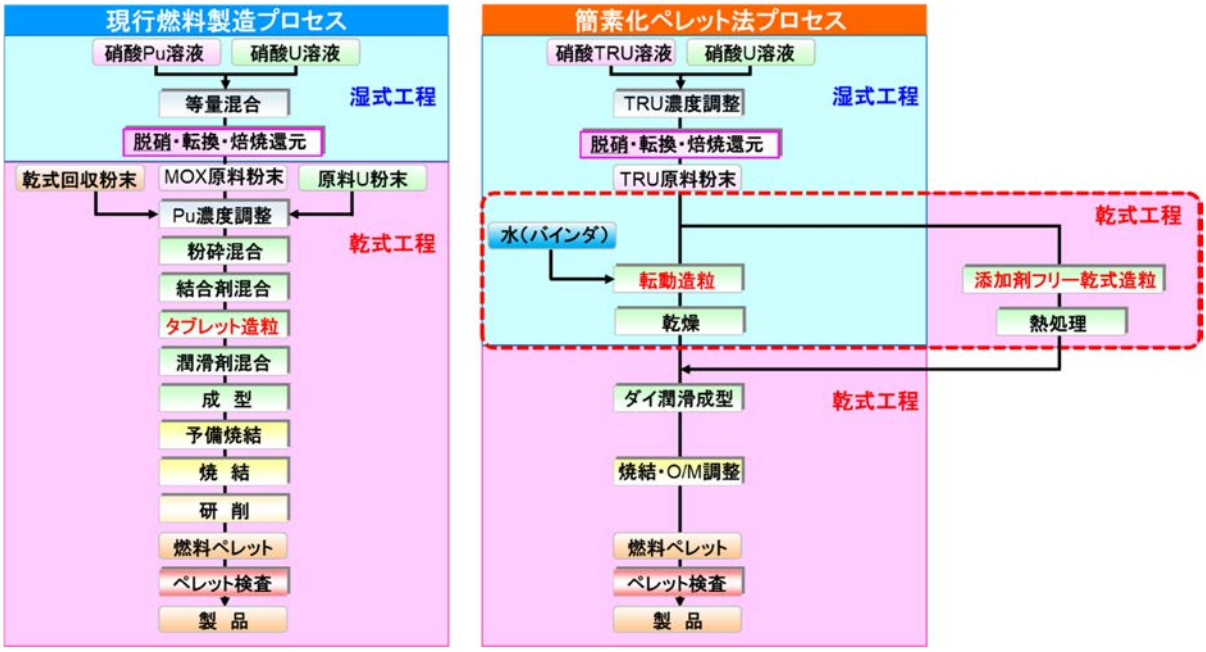


Fig. 3.1.2-12　現行燃料製造プロセスおよび簡素化ペレット法プロセスのフロー

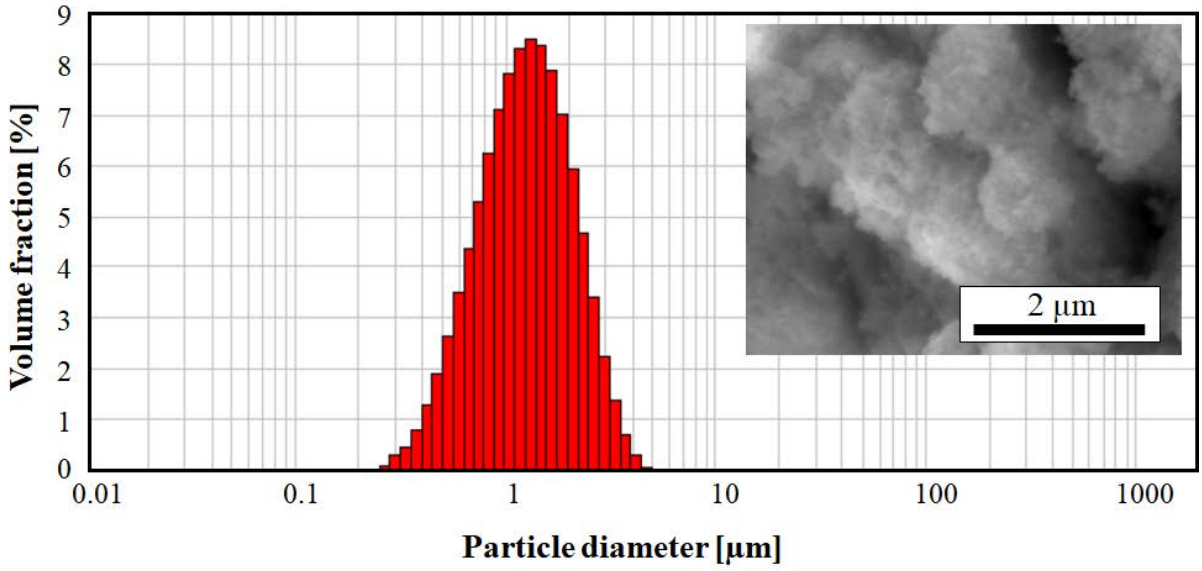


Fig. 3.1.2-13　マイクロ波加熱脱硝法により調製した CeO_2 粉末の粒度分布および SEM 写真

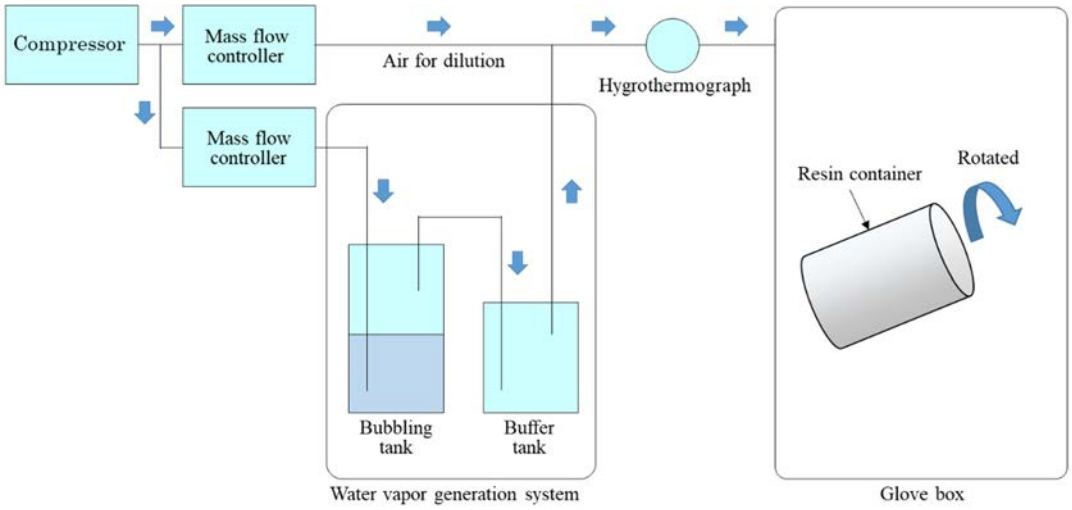


Fig. 3.1.2-14　添加物フリー乾式造粒試験の試験機器構成

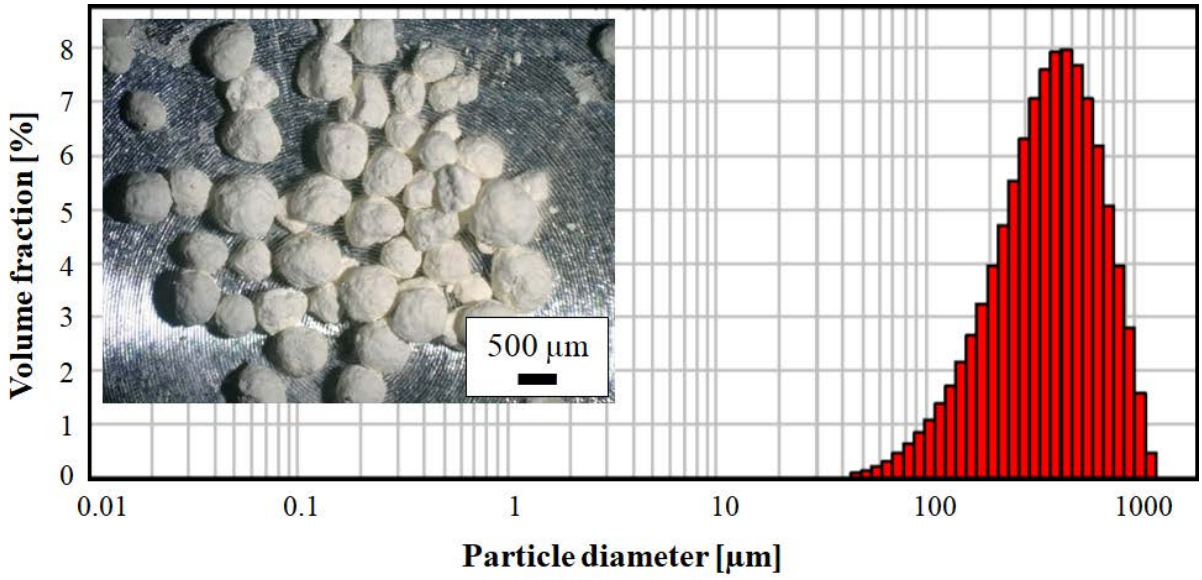


Fig. 3.1.2-15　造粒粉の粒度分布および外観写真（試験 No.2）

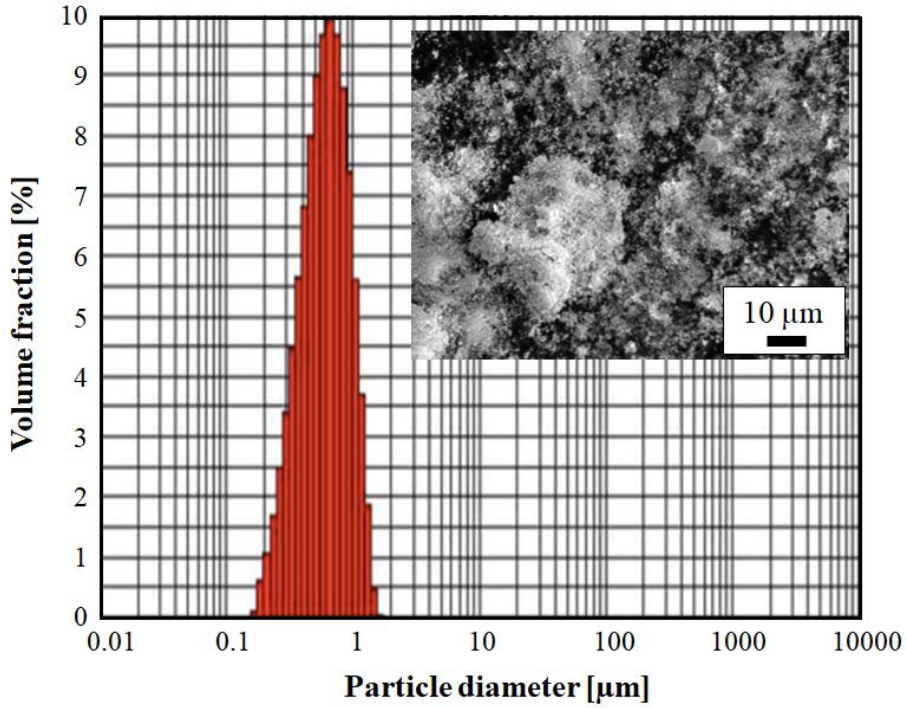


Fig. 3.1.2-16　CeO_2 粉末の粒度分布および SEM 写真

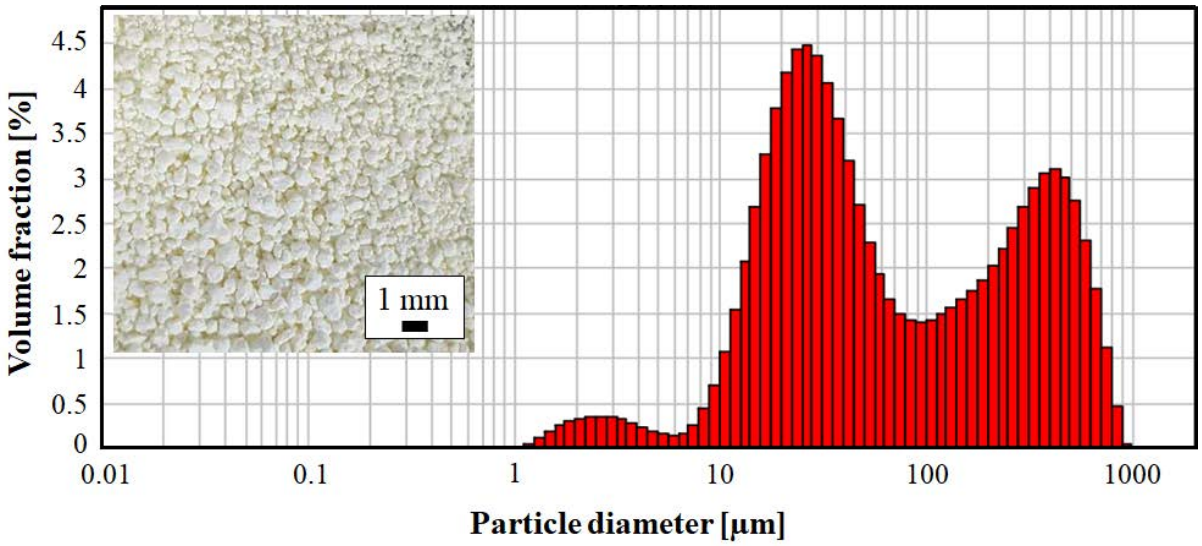


Fig. 3.1.2-17　造粒粉の粒度分布および外観写真（試験 No.4）

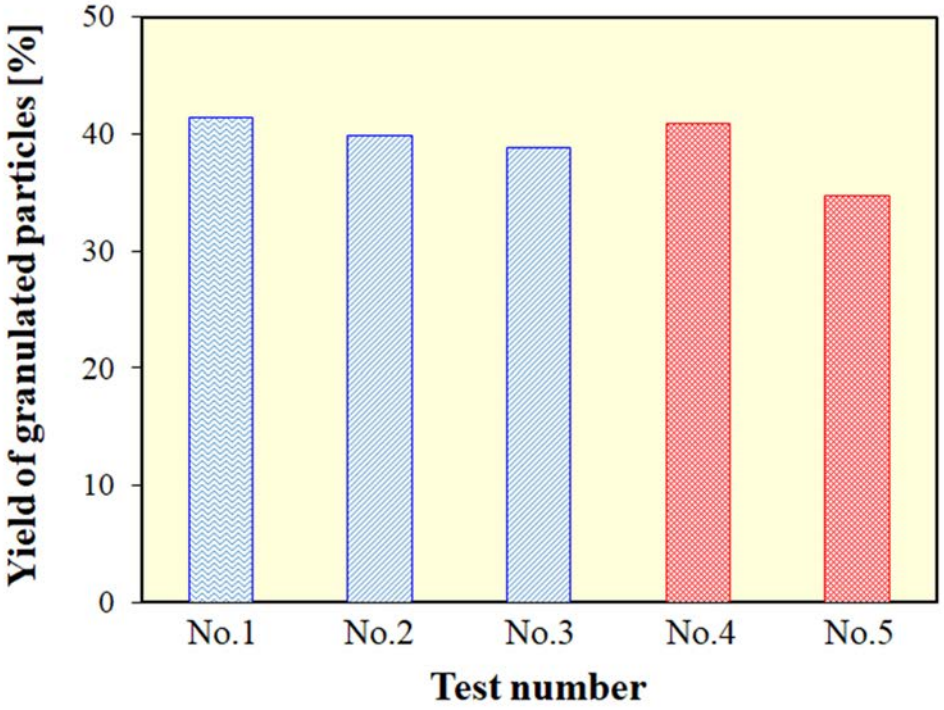


Fig. 3.1.2-18　各試験における造粒粒子の収率

3.1.3　燃料物性

3.1.3.1　MOX 燃料の基礎物性

MOX 燃料の基礎物性のデータは照射中の安全解析において重要となる。過度な安全尤度を見込むことのない合理的な燃料設計を行い、照射条件を設定する上では、より信頼性の高い物性データが必要となる。特に、高速炉用 MOX 燃料は、冷却されているペレット表面は 1000 K 程度であるが、最も高温となる中心では 2000 K を超えるため、ペレット径方向に対して急峻な温度勾配が付与され、物質の拡散が顕著に進む。このため、温度、密度、O/M、Pu 及び MA 含有率に関して幅広い物性データが必要となる。しかしながら、MOX 燃料の物性データは世界的に少なく、得られるデータは限られたパラメータについてのみであった。このため、核燃料サイクル工学研究所のプルトニウム燃料第一開発室において MOX 燃料の物性を系統的に取得し、必要なパラメータを機構論的にモデル化した物性式を作成した。これにより、温度や組成等のパラメータを連続的に取り扱ったシミュレーションを可能とし、より正確な安全解析を可能とした。

(1) 酸素ポテンシャル

MOX の酸素ポテンシャルを評価することで、O/M、温度、Pu 及び MA 含有率、酸素分圧の平衡関係が得られる。この平衡関係を用いることで、O/M や酸素分圧を他のパラメータから計算することが可能となり、物性測定を行う上で重要なパラメータである O/M のコントロールや、照射中のポア移動を計算する上で必要な酸素分圧を評価することが可能となる。熱天秤と酸素センサーを用いた気相平衡法により MOX の酸素ポテンシャル測定を実施し、これまでに Pu 含有率 12～30%の MOX、Am 含有 MOX、Am 及び Np 含有 MOX のデータを取得してきた[3.1.3-1~5]。横軸を酸素分圧、縦軸を$|2-x|$としてプロットした結果を Fig. 3.1.3-1 に示す。図に示すように直線関係が得られ、酸素に関する欠陥の生成反応の平衡定数をフィッティングすることで、以下の平衡関係の式を得た。

$$O/M = 2 - \left\{ \left(\frac{K_{\mathrm{Vo}}}{K_{\mathrm{i}}} \cdot {P_{O2}}^{-\frac{1}{2}} \right)^{-5} + \left({K_{\mathrm{Re,n=-4}}}^{\frac{1}{2}} \cdot {P_{O2}}^{-\frac{1}{4}} \right)^{-5} + \left(2{K_{\mathrm{Re,n=-3}}}^{\frac{1}{3}} \cdot {P_{O2}}^{-\frac{1}{3}} \right)^{-5} + \left(\frac{1}{2} C_{Ac} \right)^{-5} \right\}^{-1/5} + \left\{ \frac{K_{\mathrm{Oi}}}{K_{\mathrm{i}}} \cdot {P_{O2}}^{\frac{1}{2}} \right\} \tag{3.1.3-1}$$

P_{O2}は酸素分圧であり、$\frac{K_{\mathrm{Vo}}}{K_{\mathrm{i}}}$、$K_{\mathrm{Re,n=-4}}$、$K_{\mathrm{Re,n=-3}}$及び$\frac{K_{\mathrm{Oi}}}{K_{\mathrm{i}}}$は以下に示す欠陥反応の平衡定数である。

$$\frac{K_{\mathrm{Vo}}}{K_{\mathrm{i}}} = \exp\left(\frac{44.0 + 55.8 C_{Ac}}{R} \right) \exp\left(-\frac{376000}{RT} \right) \tag{3.1.3-2}$$

$$K_{\mathrm{Re,n=-4}} = \exp\left(\frac{68.8 + 13.1.3 C_{Ac}}{R} \right) \exp\left(-\frac{515000}{RT} \right) \tag{3.1.3-3}$$

$$K_{\mathrm{Re,n=-3}} = \exp\left(\frac{153.5 - 96.5C_{Ac} + 331.0{C_{Ac}}^2}{R}\right)\exp\left(-\frac{891000}{RT}\right) \quad (3.1.3\text{-}4)$$

$$\frac{K_{\mathrm{Oi}}}{K_{\mathrm{i}}} = \exp\left(\frac{-22.8 - 84.5C_{Ac}}{R}\right)\exp\left(\frac{105000}{RT}\right) \quad (3.1.3\text{-}5)$$

Rは気体定数、Tは温度であり、C_{Ac}は、含有率C_{Pu}、Am 含有率C_{Am}、Np 含有率C_{Np}を用いて以下の式で現される。

$$C_{Ac} = C_{Pu} + 2.5C_{Am} + 0.6C_{Np} \quad (3.1.3\text{-}6)$$

(2) 酸素拡散係数

酸素の拡散速度は、焼結等の熱処理における O/M 変化や、照射中の O/M 再分布と関連する重要な物性である。熱天秤と、酸素の同位体である ^{18}O を利用した測定手法により、MOX ペレットにおける酸素の自己拡散係数を取得した [3.1.3-6]。取得したデータと文献値を用いて、酸素の自己拡散を以下の式でフィッティングし、係数である頻度因子及びマイグレーションエネルギーを得た。

$$D^* = D_{Vo}^0[V_O]\exp\left(-\frac{\Delta H_{Vo}^m}{RT}\right) + 2D_{Oi}^0[O_i]\exp\left(-\frac{\Delta H_{Oi}^m}{RT}\right) \quad (3.1.3\text{-}7)$$

D_{Vo}^0とD_{Oi}^0は頻度因子、ΔH_{Vo}^mとΔH_{Oi}^mはマイグレーションエネルギーである。これらの評価結果を Table 3.1.3-1 に示す。また、$[V_O]$は酸素空孔濃度、$[O_i]$は余剰酸素濃度であり、酸素ポテンシャルの解析から得られる。Fig. 3.1.3-2 に測定結果及びフィッティングの結果を示す。マイグレーションエネルギーは Pu 含有率の依存性を持たず、酸素の自己拡散係数においては$[V_O]$及び$[O_i]$が Pu 含有率の影響を強く受けることが確認された。

(3) 熱膨張

MOX ペレットの高さ方向の熱膨張について、Pu 含有率と O/M をパラメータとして最高 1923K までの測定を行い、これらをパラメータとして以下の関係式を作成した [3.1.3-7~9]。

$$\Delta L/L_0 = a_0 + a_1T + a_2T^2 + a_3T^3 \quad (3.1.3\text{-}8)$$

温度に対する係数a_iは以下の多項式で定義される。

$$a_i = b_0 + b_1C_{Pu} + b_2x + b_3C_{Pu}^2 + b_4x^2 + b_5C_{Pu}x \quad (3.1.3\text{-}9)$$

C_{Pu}は Pu 含有率、xは O/M=2 からの差であり、係数b_iを以下の Table 3.1.3-2 に示す。

Fig. 3.1.3-3 に 30%Pu-MOX の熱膨張を示す。僅かであるが、O/M が低い方が熱膨張は大きい。熱膨張は昇温に伴う変化であるが、一定の雰囲気のまま MOX を昇温すると O/M が変化するため、O/M をパラメータとしたデータが取得できない。このため、酸素ポテンシャルのデータをもとに、雰囲気の酸素分圧を連続的に変化させながら昇温することで、O/M を一定に保ちながら熱膨張を測定した。

(4) 音速

MOX ペレット内を伝播する縦波と横波の音速のデータは、ヤング率等の機械的性質の評価に用いることができる。超音波パルスエコー法により、密度、Pu 含有率、O/M をパラメータとして室温における MOX ペレットの音速測定を行い、Pu 含有率が高いほど音速は大きく、また、密度が高く、O/M が 2 に近いほど音速は大きい結果を得た[3.1.3-10]。これらをパラメータとして実験データを再現する以下の式を作成した。

$$v_L = 5358(1 - 1.3172p)(1 - 0.7279x)(1 + 0.040C_{Pu}) \quad (3.1.3\text{-}10)$$

$$v_T = 2750(1 - 0.8945p)(1 - 1.0545x)(1 + 0.043C_{Pu}) \quad (3.1.3\text{-}11)$$

v_Lは縦波の音速、v_Tは横波の音速、pはポロシティである。

(5) 模擬物質を用いた物性研究

固体の物性は結晶構造に強く依存する。同じ結晶構造を持つ物質の物性が似た挙動を示すことに着目し、MOX と同じ蛍石型の結晶構造を持つ CeO_2、CaF_2、SrF_2、$(Ca,Sr)F_2$ を利用した研究を実施した。CeO_2 については、PuO_2 との比較の観点で酸素ポテンシャル測定及び密度汎関数理論（Density Function Theory、DFT）計算を実施し、欠陥平衡の評価と Brouwer diagram の作成を行った[3.1.3-11]。これにより、定比組成近傍において、PuO_2 は電子電導性を示し、CeO_2 はイオン電導性を示すことが予測された。フッ化物については、MOX と比べて低融点（～1500 K）であることに着目し、融点付近までの広い温度領域の比熱測定を行った。UO_2 や MOX では 2000 K で起こることが報告されている比熱の急上昇が、フッ化物では 1000 K 程度で観察することができた。さらに、固溶体である$(Ca,Sr)F_2$ は、個々の CaF_2 や SrF_2 と比べて低い温度で比熱の急上昇が起こることを発見した（Fig. 3.1.3-4）。さらに、分子動力学（Molecular Dynamics、MD）計算により、比熱の上昇はアニオンの欠陥濃度の上昇と連動していることを確認した。

(6) 競争的資金による物性研究

大学等の外部機関と連携した競争的資金の取得にも成功しており、2016 年度に採択された文部科学省の英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業及び 2020 年度に採択された原子力システム研究開発事業では、東北大学、福井大学、産業技術総合研究所と共同で、高速パルス通電加熱による超高温核燃料物性測定技術の開発を進めている（Fig. 3.1.3-5）。

2019 年度に採択された文部科学省の原子力システム研究開発事業では、福井大学、九州大学と共同で、マイナーアクチノイド含有低除染燃料による高速炉サイクルの実証研究を実施している。物性研究では、模擬 FP を含有した MOX の焼結特性のデータを取得し（Fig. 3.1.3-6）、固溶元素である Sm の影響を評価した。Sm の含有率の上昇に伴い収縮曲線が高温側にシフトする傾向が見られたが、3 mol%程度の Sm の含有では焼結後の到達密度に有意な影響は現れないことを確認した。

また、日立 GE ニュークリア・エナジーからの受託研究として、Pu 含有率が 50%及び 70%の高 Pu 含有 MOX の焼結試験を実施し、クラック等のない健全なペレットの作製条件について評価を行った。

3.1.3.2 高 MA 含有燃料の基礎物性

MOX 燃料の基礎物性における MA 含有率の影響評価は、データの少ない MOX 燃料においては、既存データの外挿をもとにした評価に頼らざるを得ず、合理的な燃料設計を行うためにも、実験データの拡充とその評価が必要であった。基礎物性値の中でも、熱伝導率は照射時の燃料温度評価に必要不可欠であることから、高 MA 含有による影響を十分に把握する必要がある。従って、これまでに熱伝導率が取得されたことがない Am 含有率 10%、Pu 含有率 30%の MOX 燃料（以下「10%Am 含有 MOX」という。）の熱伝導率の測定・評価を実施した。

Am 含有 MOX 燃料は酸素ポテンシャルが高いため、一般的な真空下での熱拡散率測定手法を適用すると、測定中に O/M 比が変化し、データの信頼性が大きく低下する。そこで、本研究では雰囲気制御が可能な熱伝導率測定装置を用いるとともに、炉内の酸素分圧を H_2/H_2O 平衡反応を利用して精密に制御することで、O/M 比を保持したままの測定を可能とした。

測定した 10%Am 含有 MOX の熱伝導率を文献値とともに Fig. 3.1.3-7 に示す。Am 含有量の増加とともに熱伝導率は低下する傾向が見られた。本データと文献値を古典的フォノン輸送モデルにて解析したところ、係数 A は Am 含有量とともに直線的に増加し、係数 B は Am 含有量にほとんど依存しないことが判明した。また、Pu 含有率 30%の MOX の熱伝導率における Am 含有率の影響を以下のように定式化することができた。

$$\lambda = (A + BT)^{-1} \quad (3.1.3\text{-}12)$$

$$A = 8.67 \times 10^{-3} C_{Am} + 0.012 \ (\mathrm{mK/W}) \quad (3.1.3\text{-}13)$$

$$B = 2.4 \times 10^{-4} \ (\mathrm{m/W}) \quad (3.1.3\text{-}14)$$

Fig. 3.1.3-8 に 30%Pu-MOX の熱伝導率に対する Am 及び Np の影響を示す。Am 及び Np の増加に伴い、熱伝導率が低下することがわかった。Np よりも Am が熱伝導率の低下量が大きいが、これは両者のイオン半径と質量に起因した影響と考えられる。

参考文献

3.1.3-1) M. Kato, T. Tamura, K. Konashi, “Oxygen potentials of mixed oxide fuels for fast reactors”, Journal of Nuclear Materials, 385, (2009) pp.419-423.

3.1.3-2) M. Kato, K. Takeuchi, T. Uchida, et al., “Oxygen potential of $(U_{0.88}Pu_{0.12})O_{2\pm x}$ and $(U_{0.7}Pu_{0.3})O_{2\pm x}$ at high temperatures of 1673–1873 K”, Journal of Nuclear Materials, 414, (2011) pp.120-125.

3.1.3-3) S. Nakamichi, M. Kato, T. Tamura, “Influences of Am and Np on oxygen potentials of MOX fuels”, CALPHAD, Computer Coupling of Phase Diagrams and Thermochemistry, 35, (2011) pp.648-651.

3.1.3-4) M. Kato, M. Watanabe, T. Matsumoto, et al., “Oxygen potentials, oxygen diffusion coefficients and defect equilibria of nonstoichiometric $(U,Pu)O_{2\pm x}$”, Journal of Nuclear Materials, 487, (2017) pp.424-432.

3.1.3-5) S. Hirooka, T. Matsumoto, M. Kato, et al., “Oxygen potential measurement of $(U,Pu,Am)O_{2\pm x}$ and $(U,Pu,Am,Np)O_{2\pm x}$”, Journal of Nuclear Materials, 542 (2020) 152424.

3.1.3-6) M. Watanabe, M. Kato, T. Sunaoshi, “Oxygen self-diffusion in near stoichiometric

(U,Pu)O_2 at high temperatures of 1673–1873 K", Journal of Nuclear Materials, 542, (2020) 152472.

3.1.3-7) T. Uchida, T. Sunaoshi, M. Kato, et al., "Thermal properties of UO_2 by molecular dynamics simulation", Progress in Nuclear Science and Technology, 2, (2011) pp.598-602.

3.1.3-8) T. Uchida, T. Sunaoshi, K. Konashi, et al., "Thermal expansion of PuO_2", Journal of Nuclear Materials, 452, (2014) pp.281-284.

3.1.3-9) M. Kato, Y. Ikusawa, T. Sunaoshi, et al., "Thermal expansion measurement of (U,Pu)O_{2-x} in oxygen partial pressure-controlled atmosphere", Journal of Nuclear Materials, 469, (2016) pp.223-227.

3.1.3-10) S. Hirooka, M. Kato, "Sound speeds in and mechanical properties of (U,Pu)O_{2-x}", Journal of Nuclear Science and Technology, 55, (2018) pp.356-362.

3.1.3-11) M. Kato, H. Nakamura, M. Watanabe, et al., "Defect chemistry and basic properties of non-stoichiometric PuO_2", Defect and Diffusion Forum, 375, (2017) pp.55-70.

Table 3.1.3-1　酸素自己拡散に関するパラメータ

パラメータ	値
D_{Vo}^0	3.1×10^{-8} (m²/s)
D_{Oi}^0	8.6×10^{-6} (m²/s)
ΔH_{Vo}^m	60 (kJ/mol)
ΔH_{Oi}^m	112.5 (kJ/mol)

Table 3.1.3-2　係数b_i

	b_0	b_1	b_2	b_3	b_4	b_5
$a_0(\times 10^{-3})$	−2.8809	0.0301	−4.3954	0.0156	−15.1759	2.5642
$a_1(\times 10^{-6})$	9.5024	−0.1864	15.8173	−0.0229	7.6258	−7.5789
$a_2(\times 10^{-10})$	2.0894	2.9483	−19.9227	−1.0355	73.8931	11.6442
$a_3(\times 10^{-13})$	4.4096	−1.4263	23.5638	0.0251	−54.751	−14.418

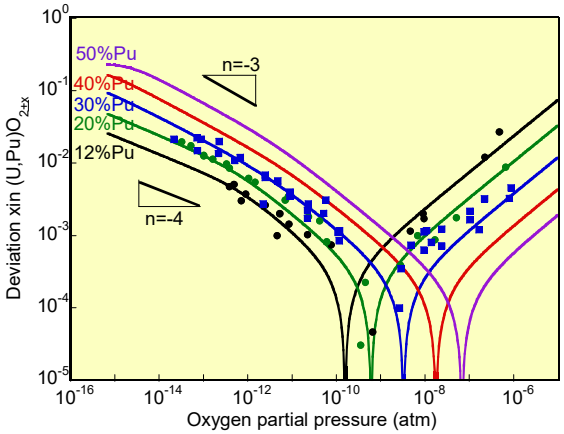


Fig. 3.1.3-1　酸素分圧と$|2-x|$の関係（1773K）

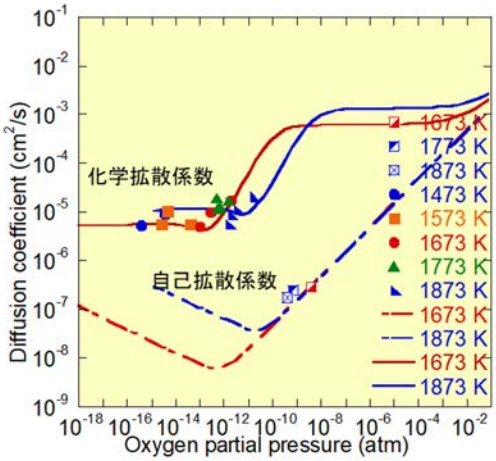


Fig. 3.1.3-2　20%Pu-MOX における酸素の自己拡散係数及び化学拡散係数

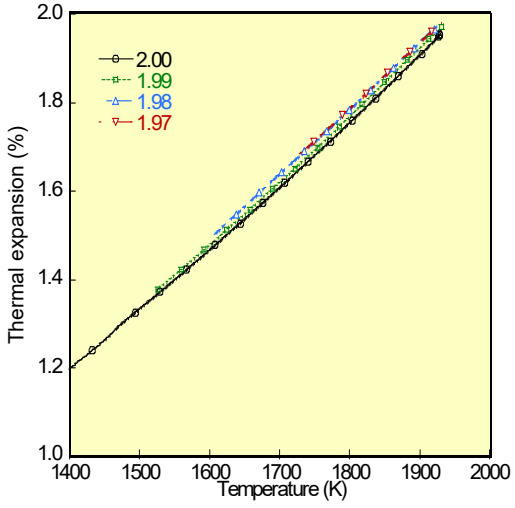


Fig. 3.1.3-3　30%Pu-MOX の熱膨張

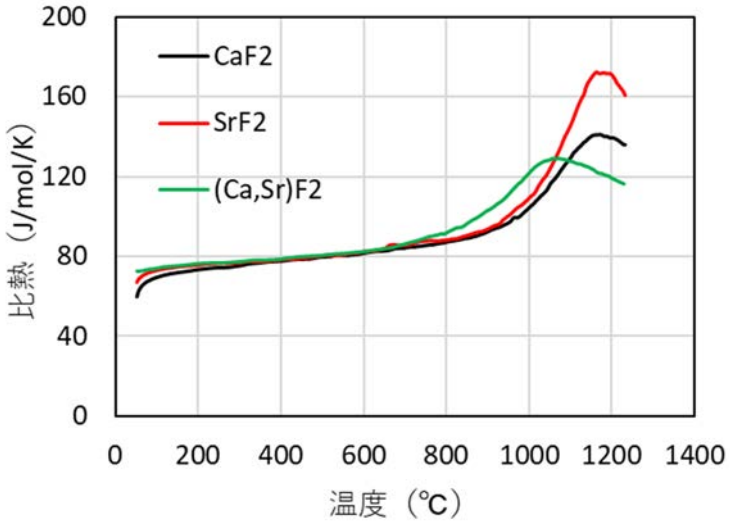


Fig. 3.1.3-4　CaF_2、SrF_2 及び$(Ca_{0.582}Sr_{0.418})F_2$ の比熱

Fig. 3.1.3-5　高温パルス通電加熱物性測定装置

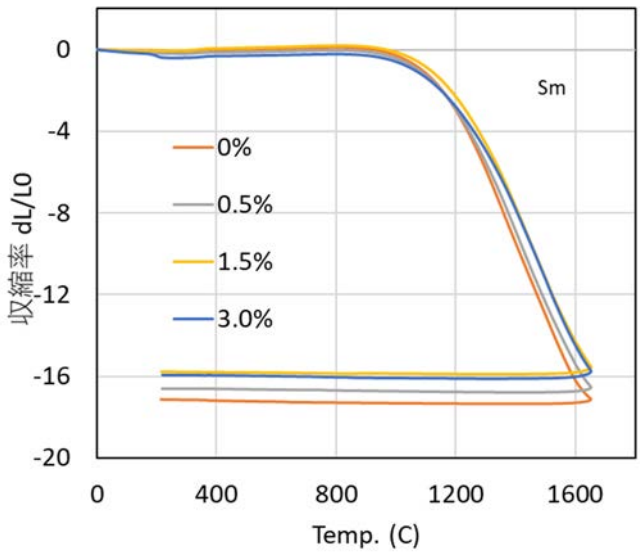


Fig. 3.1.3-6　Sm_2O_3 含有 MOX ペレットの焼結中の収縮率

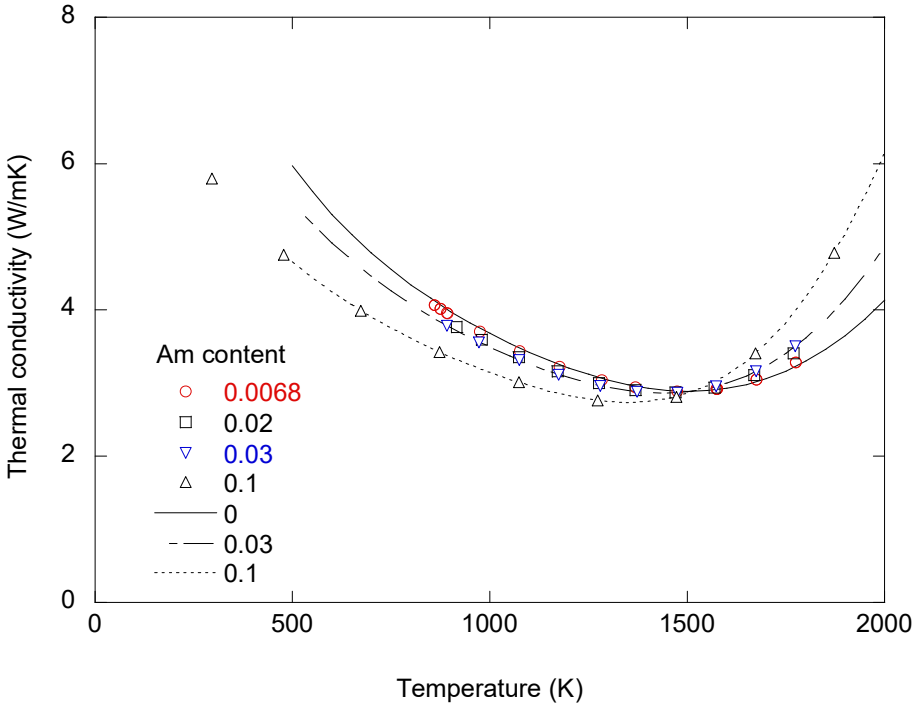


Fig. 3.1.3-7　30%Pu-MOX の熱伝導率に及ぼす Am の影響

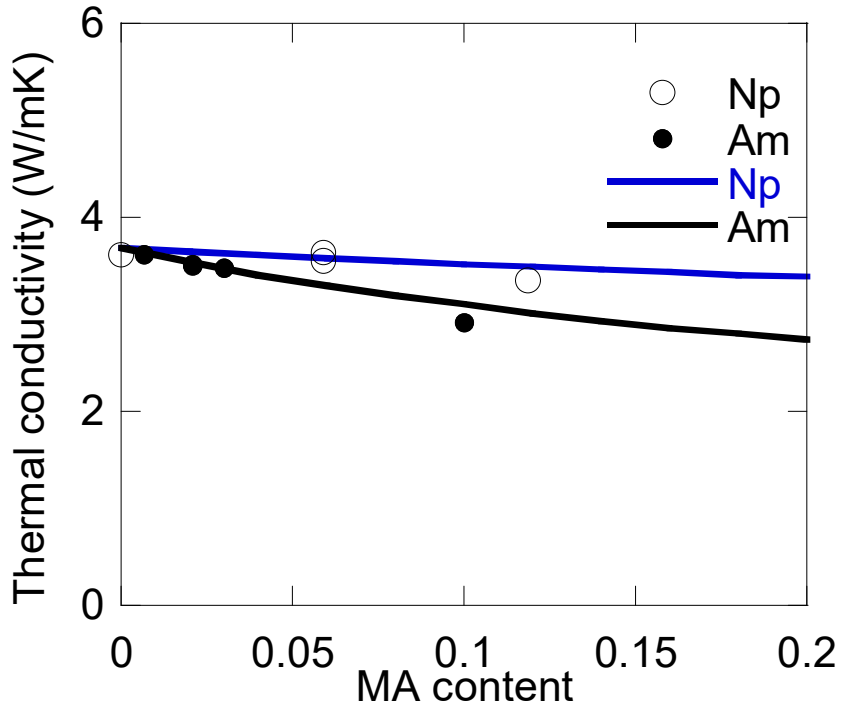


Fig. 3.1.3-8　MOX 燃料の熱伝導率に及ぼす MA の影響（図中のデータは全て 970 K）

3.1.4　データベースと機構論モデルの開発 [3.1.4-1)]

(1)　基礎特性データベース

高速炉燃料の燃料技術として、燃料の性能評価をする技術を開発するためには、照射中の燃料温度の評価に加え、様々な燃焼挙動を評価する必要がある。燃料性能を解析するためのコードの開発を行うためには、燃料の基礎データを整備することが不可欠である。本研究では、蛍石型結晶構造を有する酸化物の基礎データのデータベースの構築を進めた。研究対象の材料として、UO_2、PuO_2、$(U,Pu)O_2$、$(U,Pu,Np,Am)O_2$ に加えて、模擬物質として使われる CeO_2 について調べた。実験では、試料の均質性と O/M 比の高精度の調整に注意を払って試料を調整し、実験を行った。取得したデータの詳細を前述に示したように、格子定数、酸素ポテンシャル、融点、熱膨張率、比熱、熱拡散率、音速、酸素拡散係数、金属相互拡散係数について測定を行った。これらのデータは、O/M 比、密度、温度をパラメータとして取得され、定式化された。

(2)　機構論モデル

燃料性能評価に必要とする様々な基礎データについて、組成や温度に対して内・外挿性を有するモデルを作成することによって、これまで考慮されていなかった Pu 含有率依存性が評価可能となるだけではなく、新しい組成の燃料についても性能評価が可能となる。高い信頼性をもって外挿性を確保するためには、単なるフィッティングではなく、機構論的に説明性のある物性モデルが必要であり、様々な物性データの関係性を保持したうえで推定することが必要である。特に重要なのは、実験データがほとんどない、2000 K 以上の温度領域をどのように評価するかである。本研究では欠陥化学の理論を導入することによって評価を進めた。

酸素ポテンシャルの実験データを用いて、定比組成からのずれ x を酸素欠陥濃度又は格子間酸素濃度として評価することによって、Brouwer の図を作図することによって欠陥生成エネルギーを決定することができる。Fig. 3.1.4-1 に CeO_2 と PuO_2 について作成した Brouwer の図を示す。定比組成近傍の欠陥平衡によって、2 種類の図が作成できることが知られている。図中では赤線で酸素欠陥濃度を青線で電子欠陥の濃度を示した。定比組成近傍において、CeO_2 は酸素のフレンケル欠陥濃度が高く、PuO_2 は電子的欠陥濃度が高く、真正イオン化が支配的であり、それぞれ、イオン電気伝導及び電子的電気伝導が期待できる。電気伝導のメカニズムは実験結果と良く整合した。UO_2 や$(U,Pu)O_2$ などの酸化物燃料の Brouwer の図は、PuO_2 と同様な真正イオン化が支配的な電子的欠陥が支配的な図を描くことができる。Fig. 3.1.4-2 には $(U_{0.7}Pu_{0.3})O_2$ の Brouwer の図を示した。図からフレンケル欠陥及び電子-ホール欠陥の生成エネルギーを、それぞれ、271 及び 278 kJ/mol と得た。MOX の Brouwer の図から、O/M 比、酸素分圧、温度、Pu 含有率の関係を次式として得た。

$$
\begin{aligned}
O/M =& 2- \ x \ = 2+ \ [O_i] \ - \ \ [V_O] \\
&= 2 + [\exp((-22.8-84.5 \cdot (C_{Pu})) /R) \cdot \exp (105000/(RT)) \cdot P_{O2}^{1/2}] \\
&-[(\exp((44.0+55.8 \cdot (C_{Pu})) / R) \cdot \exp(-376000/(RT)) \ \cdot P_{O2}^{1/2})^{-5} \\
&+ ((\exp((68.8+13.1.3 \cdot (C_{Pu})) / R) \cdot \exp(-515000/(RT)))^{1/2} \ \cdot P_{O2}^{1/4})^{-5} \\
&+((2 \cdot \exp((153.5-96.5 \cdot (C_{Pu})+331.0 \cdot (C_{Pu})^2)/ R) \cdot \exp(-891000/ (RT)))^{1/3} \cdot P_{O2}^{1/3})^{-5} \\
&+ ((\exp((111.2-20.0 \cdot (C_{Pu}))/ R) \cdot \exp(-445000/ (RT)))^{1/2} \ \cdot P_{O2}^{1/4})^{-5} + ((C_{Pu})/2)^{-5}]^{-1/5}
\end{aligned}
\qquad (3.1.3\text{-}15)
$$

Brouwer の図から評価される欠陥濃度と酸素分圧の関係を用いると、酸素の自己拡散係数(D^*)及び化学拡散係数($\tilde{D}$)を次式によって記述できる。

$$D^* = D_{Vo}^{O}[V_O] \cdot \exp\left(-\frac{\Delta_m H_{VO}}{RT}\right) + 2 \cdot D_{Oi}^{O}[O_i] \cdot \exp\left(-\frac{\Delta_m H_{Oi}}{RT}\right) \qquad (3.1.3\text{-}16)$$

$$\tilde{D} = -\frac{2-x}{x} D^* \left(\frac{\partial log P_{O2}}{\partial log x}\right) \qquad (3.1.3\text{-}17)$$

Fig.3.1.4-3 に$(U,Pu)O_2$ の酸素拡散係数の実験データと計算結果を示す。定比組成より少しずれた O/M=1.999 において、自己拡散係数は最小値を示し、化学拡散係数は、O/M 比が高い側に向かって急に大きくなる。これは、酸素空孔に比べて侵入酸素の拡散係数が大きいことに起因している。次に、比熱の温度依存性を評価した。アクチノイド酸化物の比熱は、次式で表わすことができる。

$$C_p = C_l + C_d + C_{sch} + C_{exe} \qquad (3.1.3\text{-}18)$$

C_p：定圧比熱　C_l:格子比熱、C_d：熱膨張項、C_{sch}：ショットキー比熱及びC_{exe}：高温励起項

C_lは、デバイ比熱とする。C_{sch}は、5 f 電子に関係した比熱で、第一原理計算から得た。C_{exe}は、高温で励起される比熱で、フレンケル欠陥と電子-ホール対の生成に関した比熱が提案されている。Brouwer の図でしめしたように、MOX はフレンケル欠陥よりも電子-ホール対が支配的であるため、C_{exe}は、電子的な欠陥に寄与した比熱として、次式で与えた。

$$C_{exe} = \frac{\Delta H_i^2}{2RT^2} \exp\left(\frac{-\Delta H_i}{2RT}\right) \exp\left(\frac{\Delta S_i}{2R}\right) \qquad (3.1.3\text{-}19)$$

上式で得られた比熱を Fig. 3.1.4-4 に示す。500 K～1500 K では、UO_2 及び MOX に比べ PuO_2 の比熱の方がわずかに高く、この差はショットキー比熱に寄与している。また、高温では 1500 K 以上で急激に比熱が上昇し、電子-ホール対濃度の増加による比熱の寄与として評価した。UO_2 などで報告されているブレディック転移を評価するためには、2000 K 以上のさらに高温の物性値の実験データが必要である。熱伝導率は、フォノン伝導と電気伝導項の和から次式により求めた。

$$\lambda = \lambda_p + \lambda_e = \ \ 1/(A + BT) + \left(\frac{\Delta H_i}{e}\right)^2 \cdot \sigma/(4T) \qquad (3.1.3\text{-}20)$$

フォノン伝導は、Slack の式を適用し、電気伝導項はスモールポーラロンを仮定した。Fig. 3.1.4-5 に O/M 依存性を評価した。O/M 比の低下により熱伝導率が低下することを再現した。Fig. 3.1.4-6 に UO_2、MOX、PuO_2 を比較した。高温の熱伝導率は、MOX の方が高くなり、電気伝導率の上昇に起因した変化が観察された。

各物性データは、欠陥化学をベースとして相互に関係性を評価し、Pu 含有率、MA 含有率、O/M 比、温度をパラメータとして評価できることを確認した（Fig. 3.1.4-7）。各物性関係式は、メカニズムに沿って記述したため、内・外挿性のある式となっている。

参考文献

3.1.4-1) M. Kato, & M. Machida, (Eds.). Materials Science and Fuel Technologies of Uranium and Plutonium Mixed Oxide (1st ed.). CRC Press, (2022). https://doi.org/10.1201/9781003298205

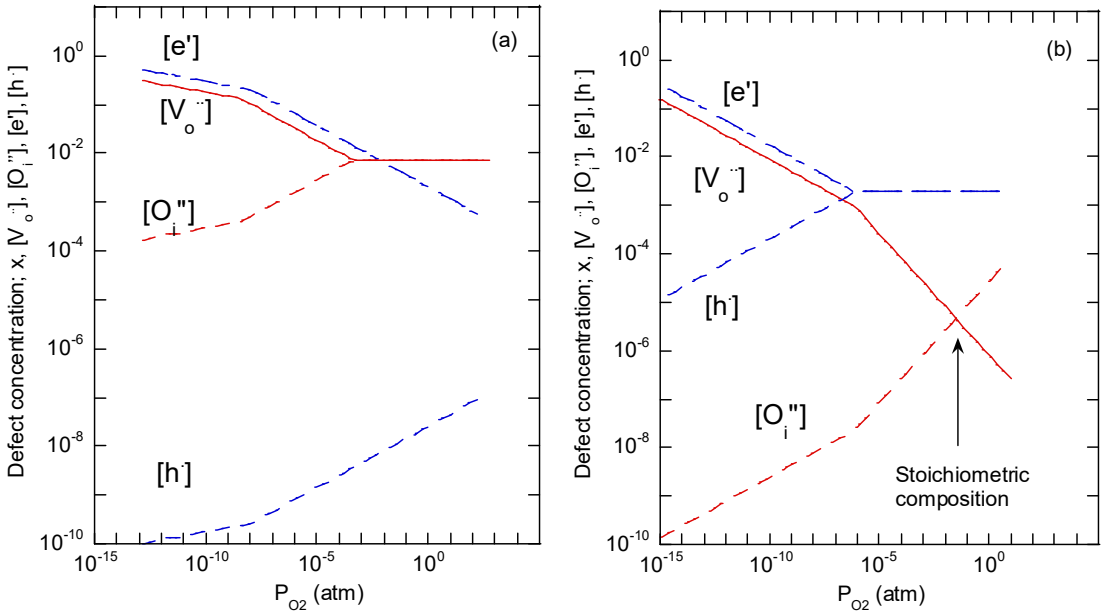


Fig. 3.1.4-1 1673 K における(a)CeO_2 及び (b)PuO_2 の Brouwer 図

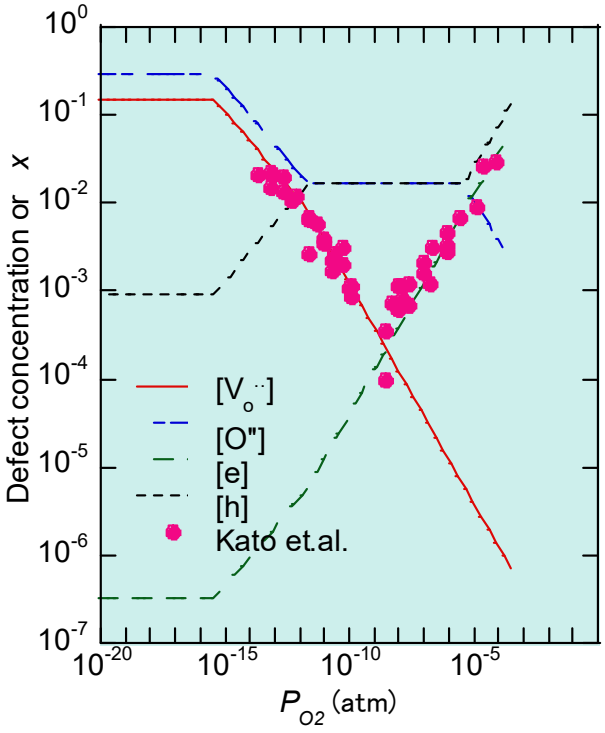


Fig. 3.1.4-2　1773 K における MOX の Brouwer 図

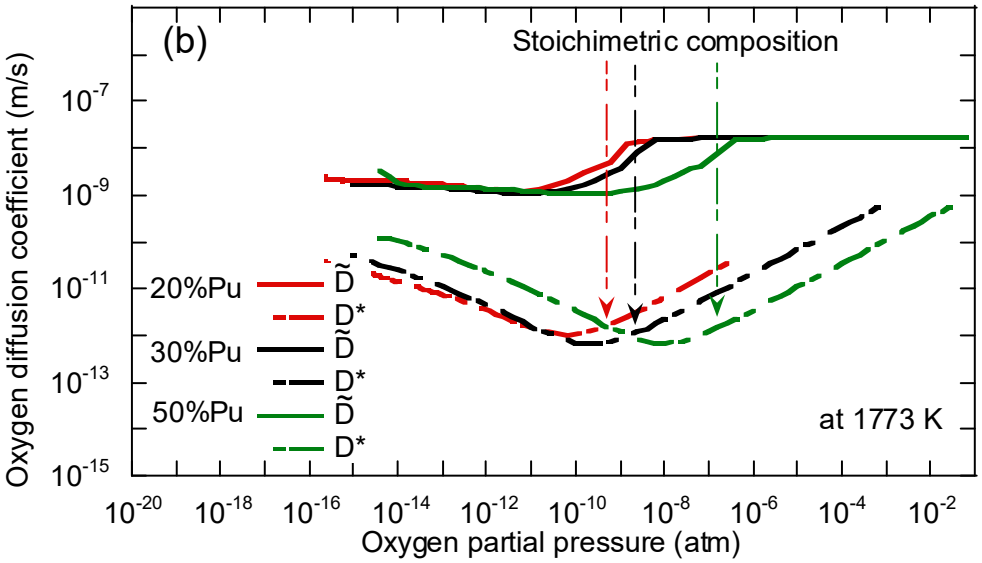


Fig. 3.1.4-3　$(U,Pu)O_2$ の酸素自己拡散係数(D^*)と化学拡散係数($\tilde{D}$)

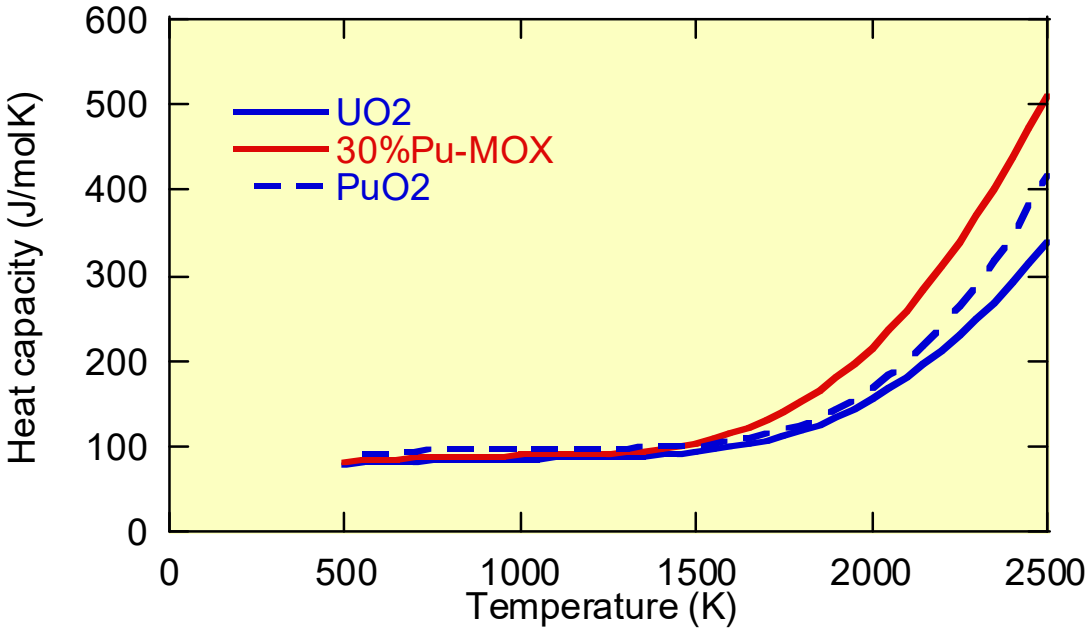


Fig. 3.1.4-4　比熱の計算結果の比較

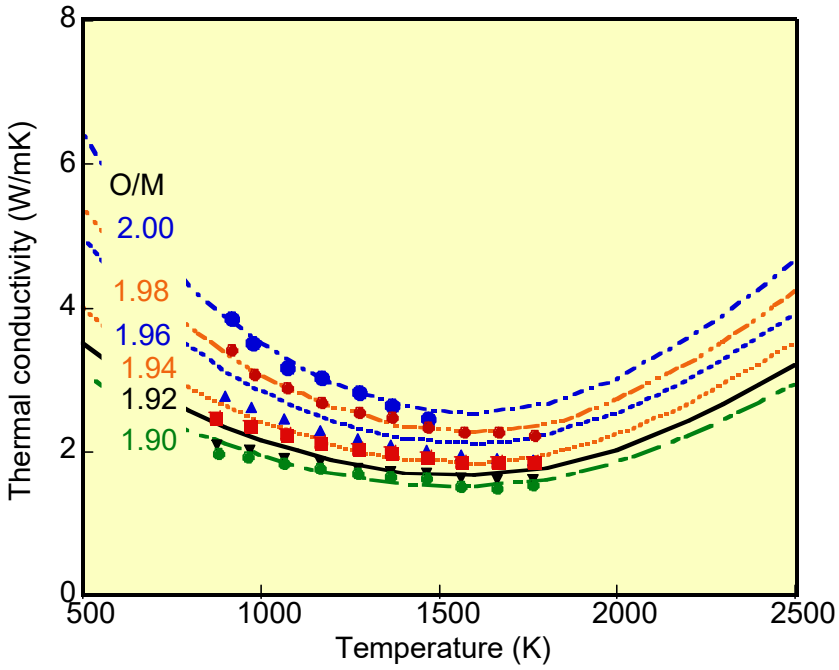


Fig. 3.1.4-5　MOX の熱伝導率の O/M 比依存性

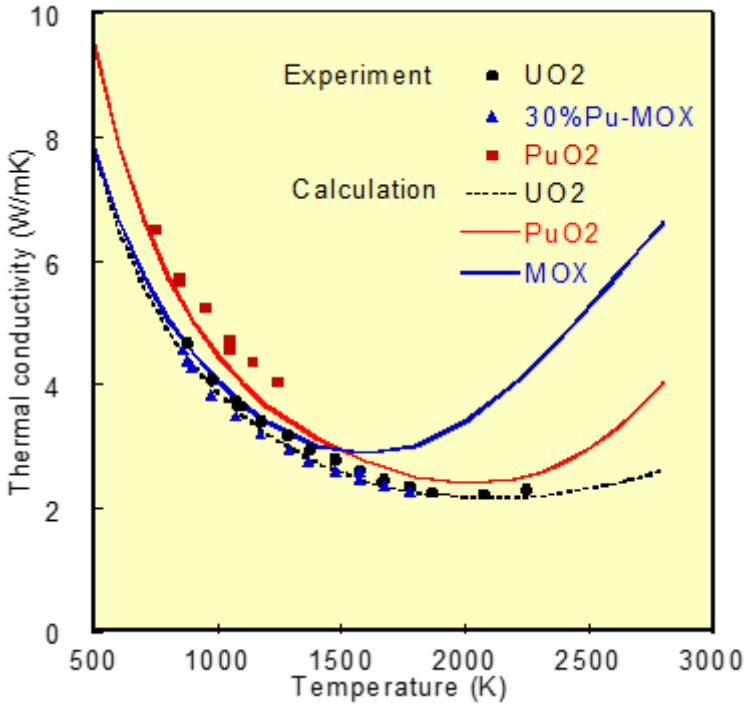


Fig. 3.1.4-6　UO_2、MOX、PuO_2 の熱伝導率

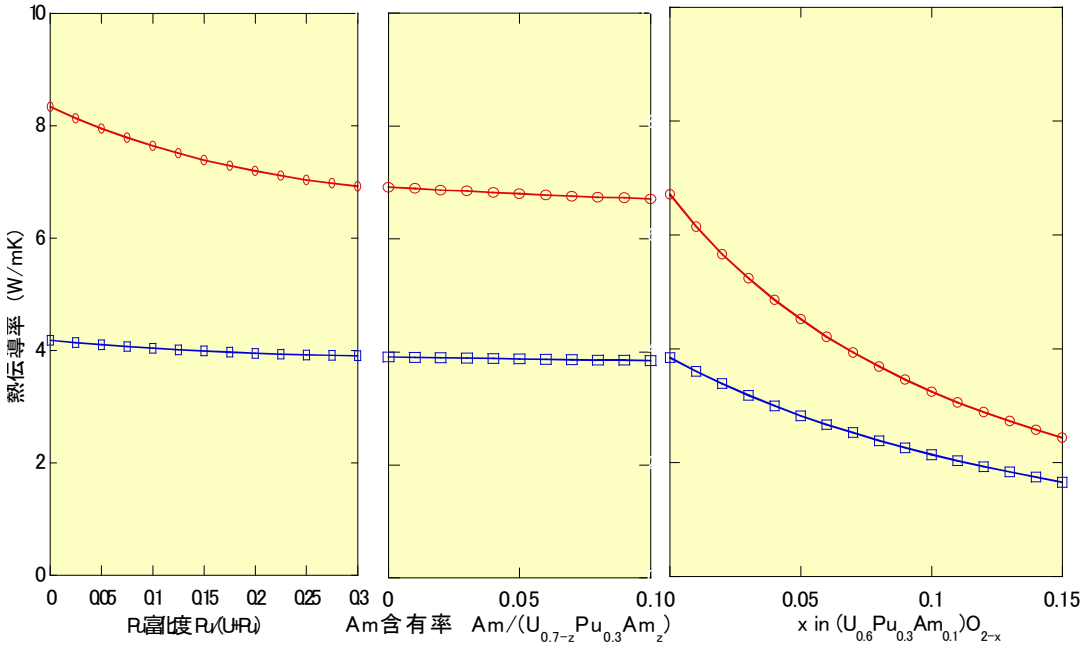


Fig. 3.1.5-7　熱伝導率に及ぼす Pu、Am 及び O/M の影響

3.2　ADS 用 MA 窒化物燃料

3.2.1　燃料概念と想定する実燃料製造プロセス

3.2.1.1 燃料概念と特徴

ADS 用窒化物燃料の最大の特徴は、MA（Np、Am、Cm）の生成源となる U を含まず、TRU（超ウラン元素：MA と Pu）の窒化物を中性子に対して不活性な物質（不活性母材）で希釈したセラミック燃料という点である。MA 生成源の観点からは Pu も含まないことが望ましいが、ADS 炉心に装荷した燃料の燃焼初期から末期にかけての大きな反応度低下を緩和するために、Pu の添加が必要となる。不活性母材の候補は、高融点かつ高熱伝導率の遷移金属窒化物である窒化ジルコニウム（ZrN）及び窒化チタン（TiN）である。TRU 窒化物と母材窒化物はいずれも NaCl 型面心立方晶で相変態がなく、膨張が等方的で、金属原子充填密度が蛍石型面心立方晶より高いという特長を持つ。また、TRU 窒化物は相互に全率固溶するため元素組成の自由度が高いことに加え、窒素/金属原子比の不定比組成領域がかなり小さい。このことは、例えば MOX 燃料に高温で 3 価が安定な Am や Cm を高濃度に添加した際には、酸素の不定比性が物性やふるまいに大きな影響を与えるが、窒化物燃料ではこれを考慮する必要がほとんどないことを意味する。これらのことから、MA 添加濃度が必然的に高い ADS 用燃料には、窒化物が適した一形態と言える。

不活性母材に ZrN を適用する場合は、TRU 窒化物との“単相固溶体型”ペレットとする。原料粉末の微粉砕、成型、焼結といった一連の従来技術の応用で製造可能なことと、ZrN と固溶体化することで TRU 窒化物の化学的安定性が向上すること、蒸気圧の高い Am の高温揮発が抑制されること等の利点[3.2.1-1,2)]から、現状はこれを ADS 用燃料の第一候補（主概念）に位置付けている。一方、ZrN より格子定数の小さい TiN には TRU 窒化物の固溶度がわずかしかないため、TiN 母材中に TRU 窒化物固溶体の粒子（直径数百 μm の球状）を分散させて焼結した“粒子分散型”ペレットとする。この形態は工学的にチャレンジングな製造技術であるため将来のオプションとして位置付けているが、後述の製造工程におけるゲル化法の利点を最大限に活かせることに加え、照射損傷を TRU 窒化物粒子内に留めることで、単相固溶体型燃料より高燃焼度に対応しやすい可能性がある。

燃料中の TRU 組成は、発電炉使用済燃料中の MA 組成に依存するとともに、初装荷燃料から平衡サイクルにかけて徐々に変化するものの、Pu/MA 比で 3/7～4/6 程度である。また、TRU 窒化物/ZrN 比は炉心の装荷位置で変化させるが、平均で 40/60mol%程度を想定している。TiN 母材については詳細な検討を行っていないが、mol%換算での母材含有率は ZrN の場合と大きくは変わらないと推測している。

いずれの母材であっても、燃料は円柱形状のペレットに焼結し、鉄基合金の被覆管に封入する。現状の ADS 炉心設計において、燃料ピンは 1 気圧の He ガスボンドで、燃料ペレット部とガスプレナム部がそれぞれ 1 m となっており、被覆管材料は炉心に入射する陽子ビーム窓材と同じ T91 フェライト鋼（9Cr1Mo）を暫定的な候補としている。

3.2.1.2 想定する実燃料製造プロセス

想定される実燃料製造フローを Fig. 3.2.1-1 に示す。MA の高線量γ線と中性子線及び高 α

放射能のため、全工程を気密性の高いα核種対応ホットセル内で遠隔操作にて行う必要があるとともに、雰囲気中の水分に活性な窒化物を扱うため、一部の工程を除いてセル内を Ar（高純度アルゴン）ガス雰囲気に保つ必要がある。窒化物の酸化抑制の観点からは、より安価な高純度窒素ガス雰囲気でも取り扱い可能であるが、後述のとおり燃料製造に ^{15}N 同位体濃縮窒素ガスを用いるため、天然窒素混入による濃縮度低下や、^{15}N 窒化物と雰囲気中 ^{14}N 間の同位体交換反応の可能性を考慮すると、セル内は Ar 雰囲気が望ましい。

商用発電炉燃料の湿式再処理で抽出分離された MA（+Pu）は、硝酸溶液の形態で窒化物燃料製造に供される。窒化物への転換は、TRU 酸化物に炭素を加えて窒素気流中で高温加熱する炭素熱還元反応により行われるが、その過程で放射性粉塵の発生源となる粉末を取り扱う必要がないゲル化法を適用する。外部ゲル化法では、TRU 硝酸溶液にナノ炭素粉末を分散させた水と、ゲル化剤の水溶性樹脂（ポリビニルアルコール：PVA）及び安定化剤のテトラヒドロフルフリルアルコール（THFA）を所定の濃度で添加し、この混合液（滴下液）をアンモニア水中に滴下針で振動滴下することでゲル粒子が生成する。ゲル粒子を洗浄・乾燥後に Ar 気流中 800 ℃程度で加熱することにより、有機物成分が熱分解して気体で除去され、TRU 酸化物とナノ炭素が均質に混合した粒子（焜焼粒子）が得られるので、これを窒化原料とする。窒化反応の詳細は 3.2.2 項で述べるが、焜焼粒子を ^{15}N 同位体濃縮窒素（以下、$^{15}N_2$ と表記する）気流中で加熱して炭素熱還元により TRU 窒化物粒子が得られる。一方、ゲル化法を適用しない場合は（粉末混合プロセスと呼ぶ）、まず硝酸溶液中の TRU をシュウ酸塩として沈殿回収し、空気中焙焼により TRU 酸化物粉末を得る。これにナノ炭素粉末を添加、機械混合してペレット状に成型し、粒子の場合と同様に炭素熱還元により TRU 窒化物を得る。微細な TRU 粉末を取り扱う工程が多いことに加えて、粉末混合プロセスで得られる TRU 窒化物中の不純物酸素濃度は、酸化物と炭素の接触面積の違いにより、ゲル化法で得られる窒化物より高い（品質が低い）と予想される。

ZrN 母材燃料の場合、TRU 窒化物と ZrN を固溶体化する工程が必要となるため、TRU 窒化物粒子と別途高純度金属から合成した ZrN 粉末を混合粉砕し、ペレット形状に成型した上で $^{15}N_2$ 気流中 1500 ℃～1600 ℃で 6 時間程度加熱保持する。これにより(Np, Pu, Am, Cm, Zr)N で表される単相固溶体が得られる。この固溶体化加熱時には焼結が進行しない（収縮しない）ため、得られた固溶体を再度遊星ボールミル等の高速粉砕装置を用いて微粉砕する。この微粉末に気孔率制御のための気孔形成材を添加してペレット形状に成型し、$^{15}N_2$ 気流中 1650 ℃～1700 ℃で 6 時間程度焼結することで燃料ペレットを得る。ZrN 母材燃料では、外部ゲル化法で得られた TRU 窒化物粒子を粉砕してしまうため、窒化物粒子の化学的品質（不純物酸素、炭素濃度）が担保されていれば良く、粒子の物理的品質（形状や密度、亀裂の有無等）は要求されない。一方、TRU 窒化工程をゲル化法で簡素化しても、ZrN との固溶体化のために窒化物粒子を粉砕してしまうことと、さらに焼結のために微粉砕が必要なため TRU 粉末取扱工程を排除できないことから、ゲル化法適用の利点を活かしきれない概念である。

TiN 母材燃料の場合は、予め遊星ボールミルで微粉砕した TiN 粉末に、外部ゲル化法経由で得た TRU 窒化物粒子を分散混合し、ペレット形状に成型して ZrN 母材の場合と同様に焼結する。窒化からペレット焼結までに TRU 粉末を扱う工程が一切なく、外部ゲル化法の利点を最

大限活かせる理想的な概念である。一方、TRU 窒化物粒子の形状（真球度、直径制御、亀裂のないこと）や密度、TiN 母材中への均質分散性等への要求レベルが高く、工学的な技術開発要素が多い。

いずれの母材の場合にも、被覆管とのギャップ（隙間）を厳密に調整するため、燃料ペレット外周の研削は必要と考える。この工程では必然的に TRU 微粉末が生じるため、粉塵が広範囲に広がらないような取り扱いと回収方法を考案する必要がある。研削後のペレットとスプリングを被覆管に挿入し、内部を He ガスで置換して端栓を溶接し、燃料ピンとする。表面除染と検査（He リーク、X 線透過撮影等）合格後に燃料集合体に組み上げ、炉心装荷まで冷却保管する。

ADS 炉心での燃焼（核変換）後に、乾式再処理により TRU-Cd 合金として回収された TRU は、高温真空蒸留（Cd 粗分離）及び $^{15}N_2$ 気流中加熱により TRU 窒化物固溶体粉末として再び燃料製造に供される。ZrN 母材の場合、外部ゲル化法で得た TRU 窒化物粒子とともに ZrN との固溶体化の際に混合する。TiN 母材の場合には、TRU 窒化物全量を粒子にする必要があることから、乾式再処理で回収した TRU 窒化物を硝酸に溶解し、ゲル化の際の滴下液に混合する。この場合、TRU-Cd 合金の窒化には天然の窒素ガスを用いる。

ADS 炉心に装荷した燃料中の全 MA のうち、一度の燃焼サイクルで核変換されるのは 2 割程度の想定のため、平衡サイクル時には燃料製造に供される TRU の約 8 割が乾式再処理由来の TRU 窒化物粉末で、残り 2 割が商用発電炉燃料由来の TRU 硝酸溶液となる。ZrN 母材と TiN 母材で燃料製造工程を相対的に比較すると、前者では ZrN 粉末との混合・固溶体化及び微粉砕の負担が重く（TRU 粉末取扱量が多い）、後者では外部ゲル化による粒子作製の負担が重い（液体取扱量が多い）ことになる。なお、乾式再処理で回収される TRU 中には、化学的性質の似た希土類の核分裂生成物（FP）が数 at%含まれることが想定され、低除染燃料となる。希土類も TRU と同様に単窒化物となり、TRU と窒化物単相固溶体を形成する。

参考文献

3.2.1-1) M. Takano, A. Itoh, M. Akabori, et al., Study on the stability of AmN and (Am, Zr)N, proc. Global 2003, Nov. 16-20, New Orleans, USA,(2003) pp. 2285-2291.

3.2.1-2) M. Takano, A. Itoh, M. Akabori, et al., “Hydrolysis reactions of rare-earth and americium mononitrides”, J. Phys. Chem. Solids, Vol. 66, (2005) pp.697-700.

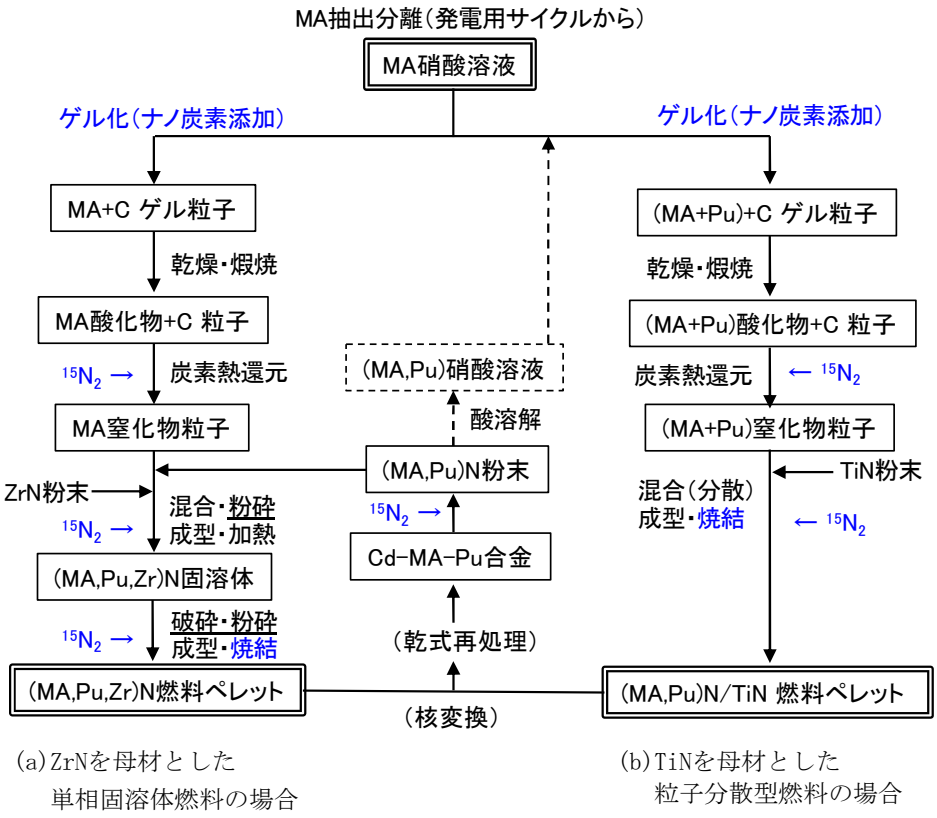


Fig. 3.2.1-1　想定される実機 ADS 用窒化物燃料の製造フロー

3.2.2 燃料製造要素技術の研究開発状況

TRU 元素を用いた窒化物燃料の研究開発は、原子力科学研究所の廃棄物安全試験施設（WASTEF）とバックエンド研究施設（BECKY）の両施設において展開してきた。WASTEF では、1990 年代末に酸化アメリシウムの窒化を実証したことを皮切りに、順次 Ar 雰囲気グローブボックスと内蔵装置類の整備を進め、窒化物調製・焼結用小型電気炉、分析装置類（窒素・酸素分析装置、炭素分析装置）、物性測定装置類（投下熱量計、レーザーフラッシュ法熱拡散率測定装置）を用いて研究を展開してきた。一方、乾式再処理も含めた研究範囲と取扱試料規模拡大のため、Ar 雰囲気の鉄遮蔽セル 3 基とグローブボックスからなる TRU 高温化学試験設備（TRU-HITEC）[3.2.2-1)]を BECKY の実験室内に建設し（2003 年竣工）、2004 年からホット運用を開始した。TRU-HITEC には種々の形式の高温電気炉、高温 X 線回折装置、示差熱重量分析装置（TG-DTA）、SEM に加え、乾式再処理研究のための電気化学測定装置類、Cd 陰極処理装置、酸化物研究のための酸素ポテンシャル測定装置等が内蔵されている。なお、TRU 試験を行うためには主に希土類で模擬した基礎的な技術開発等のコールド試験が必須であり、これらは第 4 研究棟（ウラン施設）の豊富な加熱装置類、分析装置類、物性測定装置類を駆使して行ってきた。以下に燃料製造の要素技術として、窒化技術、ゲル化技術、ペレット焼結技術、^{15}N 同位体濃縮窒素ガス関連技術の研究開発状況について述べる。

3.2.2.1 窒化技術

酸化物からの炭素熱還元による窒化技術は、高速炉用(U,Pu)N 混合窒化物燃料の研究開発で確立された技術であり、原料二酸化物 MO_2 に対して反応式は以下のように表される。

$$MO_2 + 2C + 1/2N_2 \rightarrow MN + 2CO \qquad (3.2.2\text{-}1)$$

実際には、窒化物中に固溶して残存する酸素と炭素を極力低濃度に減らすため、炭素を理論当量比（上式の場合 C/M モル比=2）よりも数十%過剰に添加して残存酸素を低減し、引き続き N_2-H_2 混合気流中で加熱して残存炭素を HCN あるいは C-H 系のガスとして除去する。この反応は以下のように表される。

$$2C + N_2 + H_2 \rightarrow 2HCN \qquad (3.2.2\text{-}2)$$

この窒化技術を MA、特にそれまで前例のなかった Am や Cm の超プルトニウム元素に適用するにあたって改良した点は以下の 2 点である。第一に、TRU のうち特に Am は高温で蒸気圧が高いため、炭素熱還元時に揮発損失が起こりやすいことから、(3.2.2-1)式の窒化反応時の保持温度を可能な限り低く抑えた点である。電気炉からの排出窒素気流中の CO 濃度を連続的にモニタすることで窒化反応の進行状況を確認でき、その結果十分な反応速度を確保できる下限温度を 1300 ℃と定めた。また、(3.2.2-2)式に示した余剰炭素除去反応が進行するには 1500 ℃以上の温度が必要となるが、Am の揮発が起こりやすいのは窒化反応時であり、1300 ℃保持で大部分が窒化物になった後は、1500 ℃で保持しても問題ないことを明らかにした。第二の改良点は、添加炭素濃度である。アクチノイドの酸化物、炭化物、窒化物は周期表上で Pu を境に相対的な熱力学的安定性の傾向が変化する。Pu 以下の元素は炭素熱還元しやすい反面、単炭化物（MC）も安定なため、炭素添加量を多くすると固溶して残存する炭素濃度も

高くなる。一方、Am 以上の元素は希土類元素と同様に酸化物が非常に安定で窒化物中に固溶酸素が多く残りやすいことから、窒化時に添加する過剰炭素を多くする必要があるが、炭化物が不安定で生成しにくいため、N_2-H_2 混合気流中加熱により余剰炭素を容易に除去可能なことを見出した。

以上のような改良により、1999 年に世界で初めて炭素熱還元による AmO_2 からの AmN 合成を実証し[3.2.2-2]、以後 MA 単成分系から順次(Pu, Cm)N[3.2.2-3]、(Pu. Am, Cm)N[3.2.2-4]、(Np, Pu, Am, Cm)N[3.2.2-5]等の多成分系についても合成可能なことを実証した。一例として、NpO_2/AmO_2/(Pu, Cm)O_2 混合粉末を窒化した際のプロセス時間に対する温度と電気炉排出窒素ガス中 CO 濃度の推移を Fig. 3.2.2-1 に示す。原料酸化物重量は約 30 mg と少量ではあるが、N_2 気流中で昇温して 1300 ℃（1573 K）到達時に CO 放出の大きなピークが見られ、1.5 時間の保持で窒化反応は大部分進行している。その後 1500 ℃（1773 K）へ昇温する過程でわずかに未反応だった酸化物の窒化に伴う CO が見られる。さらに 1500 ℃到達後に N_2 気流から N_2-4%H_2 気流に切り替えた際にも小さな CO 濃度の上昇がある。これは、炭素除去時に発生した HCN ガスが強力な還元剤として作用し、窒化物中に固溶していた酸素を還元したことを示唆している。グラフでは N_2-4%H_2 気流中 1500 ℃保持が 2 時間強となっているが、炭素除去は窒化反応より時間がかかるため、翌日に再加熱して 1500 ℃で合計 7 時間程度保持している。なお、原料酸化物が多成分系の混合物であっても、得られる TRU 窒化物は単相固溶体である。TRU 酸化物の窒化は、これまで粉末混合プロセスでしか行っていないが、炭素を理論当量比より 50%前後過剰に添加することにより、残存酸素濃度 0.1wt%前後、炭素濃度 0.05wt%未満の窒化物が得られることを実証済みである。実験時の物量は、Pu 及び Np については数 g 規模で、Am 及び Cm を含む場合は数十～百 mg 規模での豊富な窒化実績がある。今後、ゲル化法で得られる TRU 酸化物/炭素混合粒子を窒化する際には、より少ない過剰炭素添加量で、より低酸素濃度の窒化物が得られると期待される。

ZrN 母材燃料の場合、TRU 酸化物と ZrO_2 の混合粉末を窒化して TRU 窒化物と ZrN の固溶体を直接得ることも可能であるが、Zr の単炭化物が熱力学的に非常に安定なため、ZrO_2 の N_2 気流中炭素熱還元で得られるのは Zr(N, C)で表される炭窒化物（ZrN と ZrC の固溶体）となる。炭素固溶による燃料物性への影響はそれ程大きくないかもしれないが、固溶炭素濃度が高いと TRU 窒化物の ZrN 中への固溶度が低下する傾向が確認されている[3.2.2-6]ことと、乾式再処理時の TRU 回収率への影響も懸念されることから、母材の ZrN は別途高純度金属から水素化物を経て窒化する方針としている。塊状金属のままでは表面しか窒化しないため、Ar-H_2 混合気流中 400 ℃強で加熱して水素化物（ZrH_{2-x}）とし、脆化により破砕・粉末化が可能となるので、水素化物粉末を N_2 気流中 1300 ℃程度で加熱することで高純度な ZrN 粉末が得られる。TiN 粉末についても同じ手法で金属から合成できる。

ZrN 母材中への TRU 窒化物の固溶度は、以下のとおり希土類窒化物とともに実験で確認済みである[3.2.2-6]。ZrN とアクチノイド窒化物及び主要な希土類窒化物について、比較的高純度な（固溶酸素及び炭素濃度が低い）ものの格子定数一覧を Table 3.2.2-1 に示す。TRU 及び希土類窒化物に対して、ZrN の格子定数は小さく、これらの相対差（Relative Lattice Parameter Difference: RLPD）が ZrN 中への固溶度を決定付けている。ZrN を溶媒（格子定数 a_{ZrN}）、TRU

及び希土類窒化物を溶質（格子定数 a_{MN}）とし、RLPD は以下の式で表される。

$$\mathrm{RLPD}\ (\%) = 100 \cdot (a_{MN} - a_{ZrN})/a_{ZrN} \qquad (3.2.2\text{-}3)$$

RLPD 値をパラメータとして、TRU 及び希土類窒化物の固溶度曲線を実験により取得した。ZrN と溶質窒化物の固溶体化は相互拡散により進行するので、格子定数の小さい ZrN 中への溶質窒化物の固溶度が全率固溶するか否かの決定因子となり、固溶度が 50 mol%あれば全率固溶すると考えて良い。また、実験の結果、溶質窒化物が多成分固溶体の場合は、これを構成する単成分窒化物の格子定数から Vegard 則で計算した格子定数を溶質窒化物の格子定数として適用可能であることを確認済みである。その結果、1600 ℃で全率固溶する条件として、RLPD 値が 8.7%以下であることを明らかにした。単成分 TRU 窒化物の場合、NpN と PuN は RLPD 値が十分小さいため ZrN と全率固溶するが、AmN と CmN は RLPD 値が 8.7%を超えているため、ZrN 中への固溶度は限られ、ZrN が高濃度な相と Am もしくは Cm が高濃度な相の 2 相に分離することとなる。しかし、実際の燃料は Np から Cm までの 4 元素の TRU 窒化物固溶体と ZrN を固溶させるため、例えば実燃料の平衡サイクル時を想定した TRU（+希土類）窒化物の組成として、Np/Pu/Am/Cm/Nd = 9.6/41.4/36.4/7.6/5.0 at%（希土類 FP を Nd で代表）を例にとると、溶質窒化物固溶体の格子定数は Vegard 則で 0.4956 nm と算出され、RLPD 値は 8.3%となり、比較的余裕を持って ZrN と単相固溶体が得られる。

3.2.2.2 ゲル化技術

前述のとおり、TRU 硝酸溶液にナノ炭素分散液（炭素熱還元の炭素源）、PVA、THFA を添加して滴下液とし、アンモニア水中へ振動滴下することでゲル粒子となり、これを焜焼することで TRU 酸化物に炭素がナノレベルで均質混合した粒子が得られる。これを窒化した際には、粉末混合法に比べて酸化物と炭素の接触面積が大きいために窒化反応の効率が良く、不純物酸素の少ない高純度な窒化物が得られると期待される。また、窒化物粒子を得るまでに混合や成型等の TRU 粉末取扱いがないことから、工程数が少なく、セル内の α ダスト（汚染）蓄積も抑制できる。

窒化物燃料製造へのゲル化法の適用は、過去にスイスのポールシェラー研究所（PSI）で研究実績がある。Pu 専焼用の(Pu, Zr)N 固溶体燃料の作製において、内部ゲル化法経由で $PuO_2/ZrO_2/C$ 混合粒子を得てこれを炭素熱還元で窒化し、(Pu, Zr)N 粒子を直接ペレット形状に加圧成型して焼結するという概念である。しかし、前述のとおり ZrO_2 の炭素熱還元による窒化では固溶炭素が多く残存することから、Am 等の MA を高濃度に添加する燃料には適した方法ではないことと、窒化物粒子をそのまま TiN 母材に分散させるという点で、ADS 用窒化物燃料の概念は異なる。

原子力科学研究所では、外部ゲル化法による窒化物粒子作製の基礎研究として、希土類の Dy を TRU の模擬とした試験を、ゲル粒子作製の設備とノウハウを有する原子燃料工業株式会社への外注で行ってきた。滴下の様子と粒子外観写真を Fig. 3.2.2-2 に示す。ここでは、TiN 母材への分散を考慮し、亀裂がなく良好な球形状の粒子を直径の再現性良く安定して得られる諸条件を定めることを目的とした。主要なパラメータは、滴下液の粘度に直結する混合組成と温

度、送液圧と速度（ディスペンサ設定)、滴下針内径と振動数・振幅等である。各パラメータ間の相関関係の一例を Fig. 3.2.2-3 に示す[3.2.2-7]。図中の丸で囲んだ条件により、直径の再現性よく良好な球形状のゲル粒子を得ることが可能となった。現状、ゲル粒子の直径は約 0.47 mm、焜焼後の粒子の直径は 0.33 mm である。

焜焼粒子を炭素熱還元で窒化し、同様の加熱条件で粉末混合プロセス（Dy_2O_3 粉末+C 粉末）により窒化した DyN と不純物酸素濃度を比較した。粉末混合プロセスでは C/Dy 混合モル比 2.10（理論混合比 1.50 の+40%）で酸素濃度 0.29wt%であるのに対し、粒子では混合比 1.76（+13%）という少ない過剰炭素量で酸素濃度 0.14wt%という低い値であった。酸化物と炭素がナノレベルで均質に混合され、少ない過剰炭素添加量で高純度窒化物が得られるというゲル化法の利点を実証した。なお、不純物炭素濃度は両者ともに 0.01wt%未満で有意な差はなかった。

窒化した粒子の平均直径は 0.27 mm であり、相対密度は約 50%TD であった。実際の燃料に適用する際には、直径 0.2 mm 程度、相対密度 60%TD 以上を想定しており、今後粒子の作製条件や窒化時の加熱条件を改良する必要がある。これまで外注で行っていたゲル粒子作製を今後は自ら行い、技術習得と粒子作製条件改良を進めるとともに、さらにはグローブボックス内設置型の TRU 実証装置検討のため、フード内設置型のゲル化装置を 2021 年度に構築した。希土類や U を用いた粒子作製試験を開始予定である。

3.2.2.3 ペレット焼結技術

一般的に核燃料は FP 保持と高い熱伝導率確保のため、緻密な組織（理論密度に対して高い相対密度）にする必要があるが、窒化物は酸化物に比べて難焼結性のため、制限された焼結温度で密度を高めるためには微粉砕過程が重要となる。一方で、窒化物燃料の燃焼中のスウェリングによる被覆管との機械的相互作用緩和のため、焼結したペレットの相対密度を理論密度（TD）の 85%程度に制御する必要がある。焼結時の保持温度を下げればペレットの相対密度を下げるのは容易であるが、その場合結晶成長が少ないため FP 保持に必要な緻密な組織が得られない。そこで、単相固溶体の ZrN 母材燃料の焼結については、可能な限り高い相対密度（90%TD 以上）が得られる微粉砕条件を確立した上で、有機系の気孔形成材を添加することにより、緻密な組織と気孔率制御を両立する一連の手法をパラメトリックな試験により開発した。

微粉砕は、比較的短時間で比表面積の大きい微粉末が得られる高速回転の遊星ボールミルを用いた。TRU の模擬として Dy を用いた $Dy_{0.3}Zr_{0.7}N$ 固溶体粉末の微粉砕・焼結試験により、粉砕時間と粉末比表面積及び焼結体相対密度の相関データを取得し、窒素気流中 1700 ℃での焼結により最高で 94%TD 程度の相対密度が得られることが分かった。また、粉砕容器とボールの材質は、高比重の WC（タングステンカーバイド、粉砕時公転速度 400 rpm）と低比重の Si_3N_4（窒化ケイ素、同 600 rpm）の 2 種類を比較した結果、前者の方が粉砕効率は高く比較的短時間の粉砕で焼結体相対密度が上昇するものの、粉砕時間を伸ばしても到達密度は頭打ちとなり、後者の方が粉砕時間は長く要するが到達可能な相対密度が高いこと、さらには焼結後の結晶粒径も大きいことが分かった。この違いには、高比重のボール粉砕による結晶格子歪み

の蓄積が影響していることが示唆される。

気孔形成材として、ステアリン酸系（A)、ポリエステル系（B)、ポリエチレン系（C）の 3 種類の有機ポリマー球状微粒子（平均直径 10～20 μm）を試みた。微粉砕した $Dy_{0.3}Zr_{0.7}N$ 粉末にこれらを添加し、示差熱重量測定（TG-DTA）により気孔形成材の液化温度と熱分解温度を調べた上で焼結試験を行った。A については、ペレット成型時にスプリングバック作用で微細な亀裂が生じ、適さないことが分かった。B と C については、添加濃度に対して相対密度が直線的に低下するとともに、ペレット断面組織も良好なことから、適用可能と判断した。

上記で定めた微粉砕と気孔形成材添加の条件に基づき、$Np_{0.3}Zr_{0.7}N$、$Pu_{0.3}Zr_{0.7}N$ 及び $Pu_{0.4}Zr_{0.6}N$ の 3 種類の固溶体粉末を調製し、それぞれ数グラム規模で実証試験を行った[3.2.2-7]。その結果、(Pu, Zr)N では気孔形成材無添加で 90～91%TD の相対密度が得られ、添加濃度（g/mol-窒化物）に対して(Dy, Zr)N の場合とほぼ同じ傾きで相対密度が直線的に低下し、所定の気孔率に制御可能であることを実証した。気孔形成材を添加した(Pu, Zr)N ペレットの外観と断面組織の例を Fig. 3.2.2-4 に示すとおり、緻密な組織に球状の気孔がランダムに分散している様子が分かる。一方、(Np, Zr)N は気孔形成材無添加でも 85%TD 程度であり、同等の微粉砕条件でも TRU 元素の種類により焼結性に大きな違いがあることが分かった。実燃料は Np から Cm までの 4 元素が含まれるため、今後多元素系での焼結性を明らかにする必要がある。

TiN 母材燃料の焼結に関しては、外部ゲル化法経由で作製した DyN 粒子を、微粉砕した TiN 粉末と混合・成型し、ZrN 母材燃料と同様の焼結条件で基礎的な試作試験を行った段階である。DyN 粒子を 30 mol%添加した試作ペレット外観と断面観察像の例を Fig. 3.2.2-5 に示す[3.2.2-7]。DyN 粒子の均質分散性を考慮し、TiN 微粉末との混合時に無水ヘプタンに浸して超音波で加振する手法を試みたが、粒子の分散状態は改善の余地が多く、粒子が密集した付近の TiN 母材組織には焼結時の歪みで発生したと考えられる微細な亀裂が見られる。TiN 微粉末のみをペレットに成型して焼結すると約 95%TD の高密度が得られる粉末を用いたが、DyN 粒子を分散させたペレットの母材相対密度は最高で 84%TD 程度であった。粒子分散型ペレットの暫定的な相対密度目標は、TiN 母材が 90%TD、TRU 窒化物粒子が 70%TD 程度を考えており、燃焼中のスウェリングを比較的低密度な粒子で緩和することを想定している。ペレット中の DyN 粒子の相対密度は現状で 60%TD 程度であり、これを高めるための粒子作製条件改善も必要である。TiN 母材燃料については、今後も継続して粒子均質分散性向上のための工学的基礎技術の検討を進める。なお、外部ゲル化で作製した粒子ではなく、焼結した DyN 及び(Pu, Am)N ペレットをそれぞれ破砕・分級した粒子を TiN 粉末と混合・焼結し、粒子含有率に対する母材密度変化の基礎データ[3.2.2-8]を取得済みである。

3.2.2.4 ^{15}N 同位体濃縮窒素ガス関連技術

天然の窒素同位体は ^{14}N が大部分であり、^{15}N はわずか 0.365%しか含まれない。^{14}N に中性子を照射すると(n, p)反応により放射性の ^{14}C が生じて燃料中に蓄積し、燃料物性への影響以上に乾式再処理過程への諸影響や、放射性廃棄物としての管理の負担が大きいことが予想される。そのため、実機 ADS 用の窒化物燃料製造には中性子との反応断面積の小さい ^{15}N を高濃度に同位体濃縮した窒素ガスの使用を想定している。現状でも 98%程度の濃縮 $^{15}N_2$ ガスが流通し

ているが、研究用途需要に限られ、世界市場規模が年間 10 kg 程度と小さいため、非常に高価であるとともに、主要な濃縮原理は爆発性のある液体一酸化窒素（NO）の深冷蒸留で行われている。ADS 炉心 1 基あたり約 8 トンの窒化物燃料が装荷され、そのうち窒素の重量は ^{15}N 換算で約 0.7 トンである。燃焼サイクルが 2 年間であるので、炉心 1 基分の燃料を 2 年間で製造する場合、ロスも考慮すると年間 0.5 トン程度の $^{15}N_2$ ガスが必要となるが、そのような大規模プラントは国内外に存在しない。

環境への負荷が少なく安全に運転可能な大規模濃縮プラントの実現性について、ガスプラントメーカである大陽日酸株式会社の協力を得て検討した結果、分離係数は低いものの、N_2（液体窒素）の深冷蒸留に基づく濃縮プラントが最も実現性が高いことが分かった。この濃縮方法は、空気分離器で大気から分離した天然 N_2 ガス分子の同位体による平衡蒸気圧のわずかな差を利用し、多段の蒸留塔をカスケード状に組んで濃縮した $^{15}N_2$ ガスを製品として取り出すものであり、濃縮の過程で有毒性や腐食性の副産物が生じない。同様の原理を用いた ^{18}O（製品は $H_2{}^{18}O$）の商用濃縮プラント 3 基（年産量各 100、200、300 kg）が国内ですでに稼働しており、これらの技術や機器類の多くが $^{15}N_2$ プラントに流用可能であることから、技術的にも経済的にもハードルは低い状況にある。^{15}N 濃縮度 99%、年産 1 トン規模の濃縮プラントの概念、仕様、運転コストについて、濃縮シミュレーションに基づき検討した詳細を報告書 [3.2.2-9] にまとめてあるので参照願いたい。

実機 ADS の窒化物燃料製造に $^{15}N_2$ ガスを用いる際は、これを可能な限り損失なく経済的に利用する技術が必要である。天然の N_2 ガスを用いて実験室規模で窒化物を調製する際には、電気炉に流通したガスはそのまま廃棄する（ワンススルー）が、実際に窒化反応に使用される窒素原子は流通したガスのうちのわずかである。したがって、$^{15}N_2$ ガスを用いて窒化する際には、電気炉から排出された窒素ガスを廃棄するのではなく、炭素熱還元反応で生じた CO ガスを除去し、再度電気炉へ流通する閉じた系での循環精製利用が必須となる。この技術を実験室規模で実証するため、Ni 触媒を充填した吸着カラムからなる CO 除去ユニットと、消費された正味の N_2 ガスを自動で補充しながら一定流量で電気炉に循環供給するユニットからなる窒素循環精製システムを試作した [3.2.2-10]。システム構成概念図と外観写真を Fig. 3.2.2-6 に示す。

この試作機を窒化物調製用電気炉に接続し、MA 酸化物窒化の模擬として、希土類酸化物と炭素の粉末混合物成型体の窒化をワンススルー系と循環精製系でそれぞれ行い、結果を比較検証した。試作機の CO 除去性能については、炭素熱還元反応が始まる温度に達すると電気炉から排出される N_2 気流中の CO 濃度は数千 ppm に達するが、CO 吸着カラム出口での CO 濃度はほぼ 0 ppm を維持し、吸着帯理論に基づく設計どおりの高性能を実証した。また、得られた窒化物中の不純物酸素濃度は、ワンススルー系と循環精製系で同等であり、循環利用による品質への影響はないことを確認した。現状のカラムの吸着容量は 0.5 mol-CO（50 g の Dy_2O_3 の窒化で発生する CO 量に相当）であり、これを 2 系統備えて切り替えながら使用可能であるとともに、1 系統を使用中にもう一方に $Ar+H_2$ 混合ガスを流通しながら加熱することで触媒を再生可能である。実機 ADS の燃料製造に対しては、処理量に対して容易にスケールアップが可能である。

以上の成果により、実機の燃料製造でこれまで大きな課題であった同位体濃縮 $^{15}N_2$ ガス供給

の技術的・経済的実現性に目処をつけることと、その経済的利用技術の確立に向け大きく前進した。

参考文献

3.2.2-1) 湊和生，赤堀光雄，坪井孝志ほか”,TRU 高温化学モジュール（TRU-HITEC）の整備”，JAERI-Tech 2005-059, 2005, 61p.

3.2.2-2) M. Takano, A. Itoh, M. Akabori, et al., “Synthesis of americium mononitride by carbothermic reduction method”, proc. Global’99, Wyoming, USA, (1999) paper No. 195 (CD-ROM).

3.2.2-3) M. Takano, A. Itoh, M. Akabori, et al., “Carbothermic synthesis of (Cm, Pu)N”, J. Nucl. Mater., Vol. 293.(2001) pp.23-27.

3.2.2-4) M. Takano, A. Itoh, M. Akabori, et al., “Fabrication of minor actinide nitrides”, JAERI-Conf 2004-015, (2004) pp.35-40.

3.2.2-5) Y. Arai, M. Akabori, K. Minato, “Progress of nitride fuel cycle research for transmutation of minor actinides”, proc. Global 2007, Idaho, USA, (2007) pp.980-988 (CD-ROM).

3.2.2-6) M. Takano, “Experimental evaluation of solid solubility of lanthanide and transuranium nitrides into ZrN matrix”, J. Nucl. Mater., Vol. 440, (2013) pp.489-494.

3.2.2-7) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構, 文部科学省原子力システム研究開発事業「安全性・経済性向上を目指した MA 核変換用窒化物燃料サイクルに関する研究開発」成果報告書，令和 2（2022）年 3 月.

3.2.2-8) M. Takano, “Preparation of nitride fuel pellet with TiN inert matrix for transmutation of minor actinides”, proc. Global 2011, Makuhari, Japan, (2011) paper No. 383.200, 6p.

3.2.2-9) 高野公秀, “窒化物燃料製造用 ^{15}N 同位体濃縮プラントとコストに関する調査”, JAEA-Review 2020-080, (2021) 24p.

3.2.2-10) 岩佐龍磨，高野公秀, “窒化物燃料製造用窒素循環精製システム試作機の設計・製作と性能評価”，JAEA-Technology 2020-023,(2021) 29p.

Table 3.2.2-1 ZrN とアクチノイド窒化物及び主要な希土類窒化物の室温格子定数と RLPD 値 [3.2.2-6)]

窒化物	格子定数 (nm)	RLPD (%)	ZrN 中への固溶度（mol%）
ZrN（母材）	0.4576	–	–
UN	0.4889	6.84	全率固溶
NpN	0.4896	6.99	全率固溶
PuN	0.4905	7.19	全率固溶
AmN	0.4991	9.07	17
CmN	0.5207	13.78	<1（推測）
NdN	0.5130	12.09	2.3
SmN	0.5049	10.35	11.0
GdN	0.4986	8.98	23.8
DyN	0.4902	7.12	全率固溶
$Dy_{0.64}Nd_{0.36}N$	0.4984	8.92	41.6
$Dy_{0.68}Nd_{0.32}N$	0.4975	8.72	全率固溶
$Dy_{0.72}Nd_{0.28}N$	0.4966	8.52	全率固溶

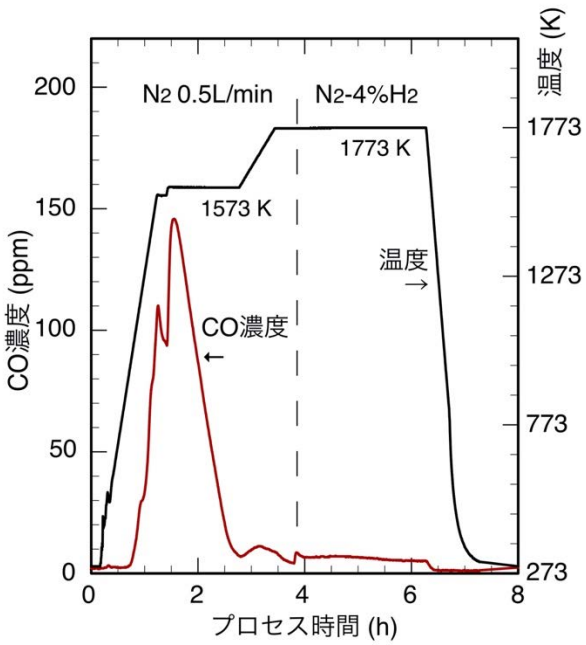


Fig. 3.2.2-1　炭素熱還元による窒化時の加熱温度と窒素気流中 CO 濃度の関係の例（$NpO_2/AmO_2/(Pu,Cm)O_2$ 混合酸化物窒化時の例）

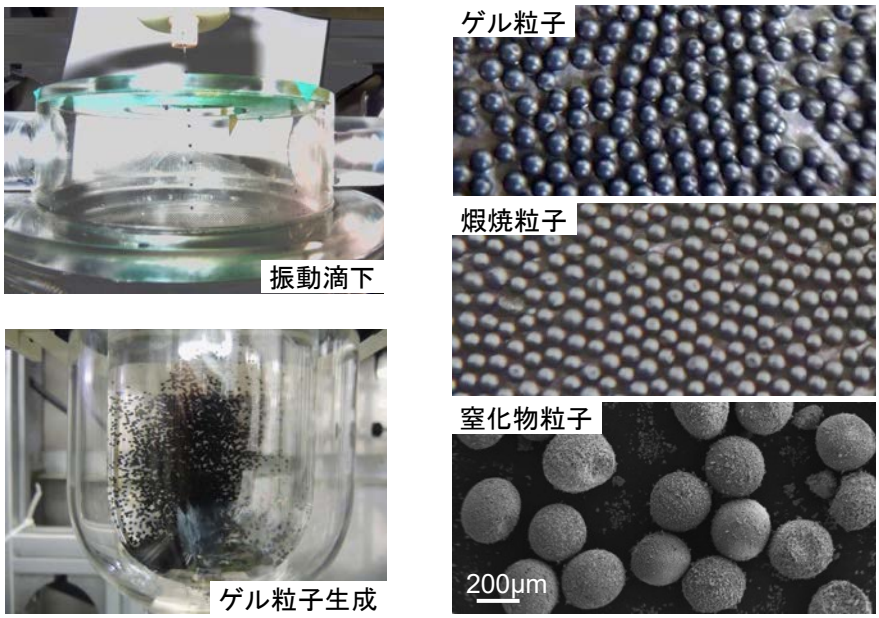


Fig. 3.2.2-2　外部ゲル化法による粒子作製の様子と粒子の外観写真（Dy）

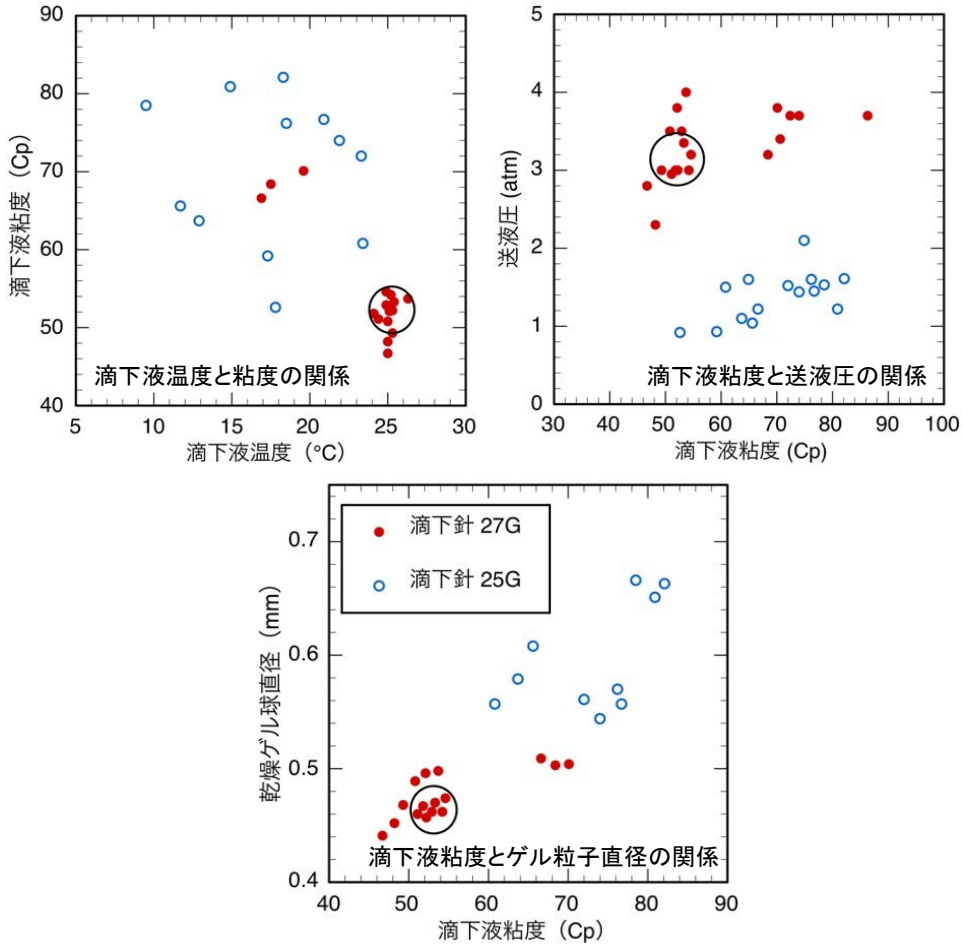


Fig. 3.2.2-3　ゲル粒子作製時の各種パラメータの相関関係の例

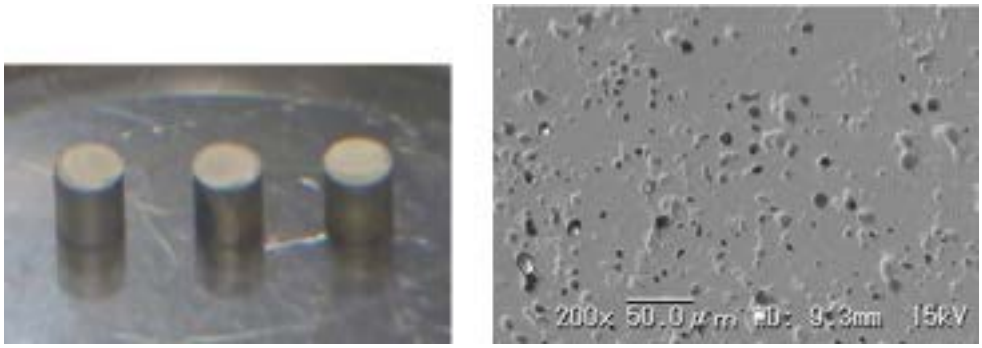


Fig. 3.2.2-4　気孔形成材を添加して焼結した(Pu,Zr)N ペレット外観と断面組織の例

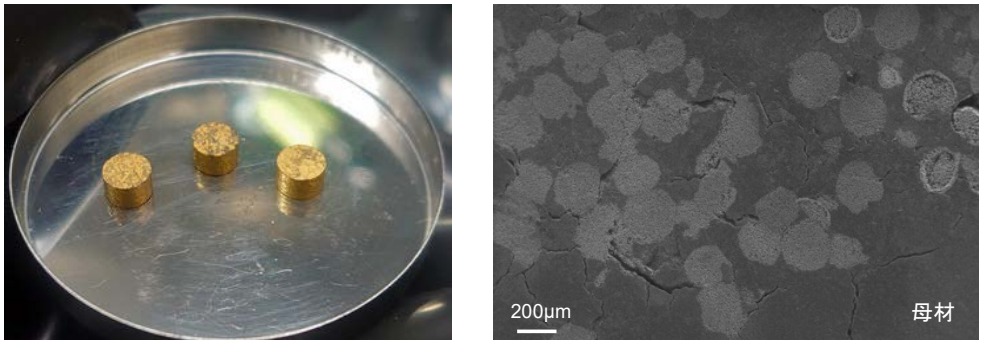


Fig. 3.2.2-5　DyN/TiN 粒子分散型ペレット試作品の外観と断面組織の例

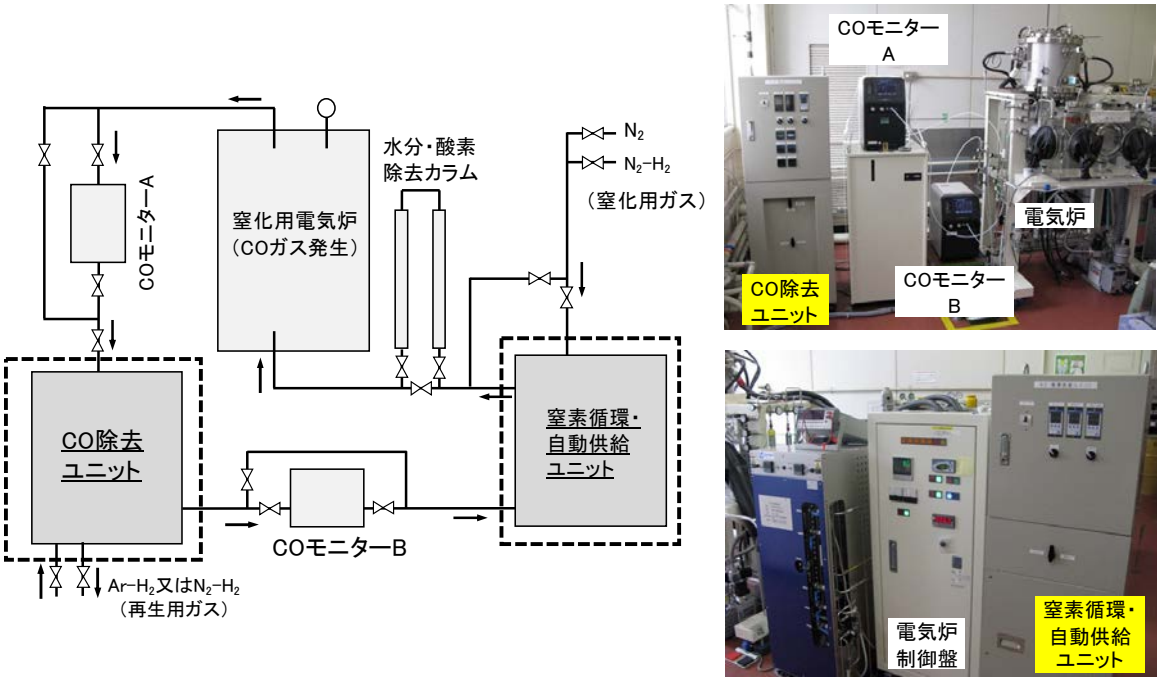


Fig. 3.2.2-6　窒素循環精製システム試作機の構成概要と外観

3.2.3　燃料物性データの取得状況

3.2.3.1 物性データ取得状況

窒化物燃料の性能やふるまいを理解する上で必須な TRU 窒化物の諸物性データについて、これまでに数十 mg～100 mg 規模の小試料片を調製し、高温 X 線回折測定による結晶格子の熱膨張、投下熱量計によるエンタルピー測定と比熱の評価、レーザーフラッシュ法による熱拡散率測定と熱伝導率評価を中心に進めてきた。なお、熱伝導率は熱拡散率に比熱と試料密度を乗じて得られる。TRU 単元素窒化物から多元素系固溶体へと展開し、さらには ZrN 母材との固溶体についてもデータを取得してきた。物性データの温度依存性と固溶体の組成依存性についても評価して関数で定式化し、関連する文献データも含めてこれらをデータベース化した [3.2.3-1)]。データの取得状況を Table 3.2.3-1 に示す。具体的なデータについては表中に付した参考文献を参照願いたい。また、アクチノイド窒化物の物性全般については書籍 [3.2.3-2)]に詳述してある。

結晶格子の線熱膨張は、高温安定性（熱分解温度の高低）を反映しており、その大小関係は AmN>PuN>CmN>NpN～UN>ZrN の順となっている。すなわち熱分解温度の最も低い AmN の熱膨張が大きい。固溶体の格子定数は概ね Vegard 則に従い、平均線熱膨張係数は成分窒化物の値の線形和（モル分率を乗じた和）で近似できることをこれまでに確認した [3.2.3-5)]。焼結したペレットの熱膨張データは未取得であるが、これを測定すべく BECKY の G.B.内に高温熱膨張計を設置予定である。

窒化物の熱伝導率は高温になる程高くなり、電子電導の寄与が支配的であることを示している。単元素窒化物の熱伝導率の大小関係は、ZrN>>UN>NpN>PuN>AmN の順である。アクチノイド窒化物で元素番号が大きくなるほど低下傾向にあるのは、電気伝導率が低下傾向にあるためと推測される。TRU–Zr 系窒化物固溶体の熱伝導率は、両者の値の線形和とならず、それよりも低い値を示すことが分かっている [3.2.3-11)]。(Dy, Zr)N 系模擬燃料物質で電気伝導率と熱伝導率の組成依存性を測定した結果、電気伝導率の組成依存性がほぼそのまま熱伝導率の組成依存性に反映されていることが分かった。

熱機械特性の代表的データとして、高温での熱クリープ速度とヤング率が挙げられるが、TRU を含有した窒化物のデータはまだ得られていない。模擬燃料物質として(Dy, Zr)N のヤング率を測定して組成・温度依存性を評価したほか、(U, Zr)N について熱クリープ速度が断片的に得られている。ZrN 母材燃料の熱クリープ速度はかなり低いことが分かっており、照射中の燃料のスウェリングによる被覆管との機械的相互作用が課題になると予想される。

MA 高含有燃料で懸念される課題の一つに、燃料製造後から炉心装荷までの保管中にペレット内の α 崩壊数が多いことから、α 線自己照射損傷による格子欠陥と He 原子の蓄積が速く進むことが挙げられる。格子欠陥の蓄積は室温での結晶格子膨張とそれに連動したペレットの膨張という現象として現れる。一方、He 原子の蓄積は燃焼時の高温下で拡散、ガス化、放出により FP ガスに類似したペレットのガススウェリングを引き起こす可能性がある。燃料ペレット中の α 崩壊に最も寄与する主要核種は ^{244}Cm（半減期約 18 年）である。上記の現象を検証するため、^{244}Cm を含有した(Pu, Cm, Zr)N の小型ペレットを焼結し、室温保管中の結晶格子とペレット寸法変化の相関と、高温焼鈍による回復挙動を実験により調べ [3.2.2-7)]、過去に類似の

実験を行った(Pu, Cm)O_2 二酸化物ペレットの挙動[3.2.2-21]と比較した。その結果、室温では結晶格子膨張に同期してペレットも膨張する点では二酸化物と同様であるが、結晶格子膨張が飽和した後もペレット膨張は続き、室温でボイドスウェリングが起こることが分かった。一方、焼鈍時には、結晶格子の膨張は 1200 ℃程度までの加熱で完全に回復する点では両者で共通であったが、二酸化物では 800 ℃以上の温度で結晶粒界への He ガスバブル形成によるガススウェリングが顕著であるのに対し、窒化物では結晶粒径が小さいこともあり、粒界でのガスバブル形成は認められず、比較的スムーズに He が放出されていることが示唆された。一方、室温で進行したボイドスウェリングは 1300 ℃までの焼鈍でも回復はあまり進まず、多く残存することが分かった。これらの挙動は、後述の燃料ふるまい解析コードに現象モデルをコーディングする上で貴重な基礎データとなる。

α 線自己照射損傷による物性への影響として熱伝導率の低下が懸念され、これを検証するために(Pu, Cm, Zr)N 焼結体の比較的低温（300 ℃）での熱伝導率を室温保管時間の関数として測定・評価した[3.2.3-15]。その結果、格子膨張（欠陥蓄積）と同期して熱伝導率は低下し、格子膨張が飽和した状態では未損傷状態の半分程度になることが分かった。この試料を 1200 ℃で焼鈍して欠陥を除去した状態では未損傷状態の熱伝導率に回復したが、前述のような長期保管によりボイドスウェリングが進行した状態では未損傷の状態の熱伝導率に回復しないことが予想される。

燃料の被覆管については、ADS の陽子ビーム窓材と同じ T91 フェライト鋼（9Cr1Mo）を候補材としている。窒化物燃料との化学的な高温両立性を確認するため、模擬燃料物質の(Dy, Zr)N ペレットと T91 鋼を密着させ、通常運転条件（500 ℃）での長時間加熱、過渡条件（～800 ℃）での数日間の加熱、さらには模擬 FP 化合物（CsI、Sr_3N_2、Mo-Ru-Rh-Pd 合金）をペレットに添加した系でも同様の加熱保持試験を行なったが、被覆管とペレットの癒着や相互拡散、新たな合金相生成等の痕跡は認められず、未照射下の試験ではあるが両立性が良好であることを示す結果が得られている[3.2.3-22]。

燃料の安全性評価や事故時挙動の推測には融点データが必須となる。窒化物 MN の調和溶融（MN の化学形のまま溶融）が起こるのは高圧の窒素雰囲気下のみであり、通常は窒素飽和の金属液相と窒素ガスに熱分解する。この熱分解温度は窒素分圧に強く依存し、UN[3.2.3-23]、NpN[3.2.3-24]、PuN[3.2.3-25]と母材の ZrN[3.2.3-26]、TiN[3.2.3-27]については文献データがある。これらの熱分解温度の窒素分圧依存性のグラフを Fig. 3.2.3-1 に示す。AmN については、線熱膨張係数と熱分解温度の関係からの予測値[3.2.3-3]である。Am や Cm を含有した試料の融点測定には小さい試料サイズが求められ、なおかつ高融点のため試料容器（通常はタングステンを使用）との反応の影響も避けなければならない。このような課題を解決できる近年の先進的な融点（液相生成温度）測定手法として、試料表面に高出力のレーザー光を照射して局所的に溶融させ、その部位の放射スペクトル変化を高速の分光器で記録して解析することで液相生成温度を評価する方法がある。これを近い将来に TRU 窒化物燃料に適用すべく、測定システムを第 4 研究棟に構築した。システムの概要と外観写真を Fig. 3.2.3-2 に示す。Mo、Ta 等の高融点金属に適用して放射スペクトルの解析手法を改良し、数十℃程度の誤差で解析できるようになっている[3.2.3-28]。この手法の利点は、無容器法であることと微小サイズの試料に適用しやすいことに加えて、

測定時間がわずか 0.1 秒程度と短いことである。これを(Er, Zr)N 等の模擬燃料物質に適用し、液相生成温度の組成依存性と窒素分圧依存性データを得ているところであり、熱力学的解釈を加えた上で TRU 含有試料測定用のグローブボックス内蔵型装置の検討を進める予定である。

参考文献

3.2.3-1) T. Nishi, Y. Arai, M. Takano, et al., “Property database of TRU nitride fuel”, JAEA-Data/Code 2014-001, (2014), 45p.

3.2.3-2) M. Uno, T. Nishi, M. Takano, “7.05 Thermodynamic and thermophysical properties of the actinide nitrides”, Comprehensive Nuclear Materials 2nd Ed., Vol. 7, Elsevier, (2020) pp.202-231.

3.2.3-3) M. Takano, M. Akabori, Y. Arai, et al., “Lattice thermal expansions of NpN, PuN and AmN”, J. Nucl. Mater., Vol. 376, (2008) pp.114-118.

3.2.3-4) M. Takano, Hayashi, H., Minato, K., “Thermal expansion and self-irradiation damage in curium nitride lattice”, J. Nucl. Mater., Vol. 448, (2014) pp.66-71.

3.2.3-5) M. Takano, M. Akabori, Y. Arai, et al., “Thermal expansion of TRU nitride solid solutions as fuel materials for transmutation of minor actinides”, J. Nucl. Mater., Vol. 389, (2009) pp.89-92.

3.2.3-6) T. Nishi, M. Akabori, M. Takano, et al., “Heat capacities of NpN and AmN”, J. Nucl., Mater., Vol. 377, (2008) pp.467-469.

3.2.3-7) F. L. Oettin, “The chemical thermodynamic properties of nuclear materials III. Plutonium mononitride”, J. Chem. Thermodynamics, Vol. 10, (1978) pp.941-948.

3.2.3-8) Y. Arai, K. Nakajima, Y. Suzuki, “Thermal conductivity of actinide mononitride solid solutions”, J. Alloys Compd., Vol. 271-273, (1998) pp.602-605.

3.2.3-9) T. Nishi, M. Takano, A.Itoh, et al., “Thermal conductivities of (Np,Am)N and (Pu,Am)N solid solutions”, ICP Conf. Series: Materials Science and Engineering, Vol. 9, (2010), 012017, 8p.

3.2.3-10) M. Pukari, M. Takano, T. Nishi, “Sintering and characterization of (Pu, Zr)N”, J. Nucl. Mater., Vol. 443, (2014), pp.3.21-3.27.

3.2.3-11) T. Nishi, M. Takano, K. Ichise, et al., “Thermal Conductivities of Zr-based Transuranium Nitride Solid Solutions”, J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 48, (2011) pp.359-365.

3.2.3-12) Y. Arai., Y. Okamoto, Y. Suzuki, “Thermal conductivity of neptunium mononitride from 740 to 1600 K”, J. Nucl. Mater., Vol. 211, (1994), pp.248-250.

3.2.3-13) T. Nishi, M. Takano, A. Itoh, et al., “Thermal conductivities of neptunium and americium mononitrides”, proc. 10th OECD/NEA International Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, (2008), Mito, Japan (CD-ROM).

3.2.3-14) Y. Arai, Y. Suzuki, T. Iwai, et al., “Dependence of the thermal conductivity of (U, Pu)N on porosity and plutonium content”, J. Nucl. Mater., Vol. 195, (1992) pp.37-43.

3.2.3-15) T. Nishi, H. Hayashi, T. Sato, M.Takano, “Self-irradiation effect on thermal conductivity of $Zr_{0.70}Pu_{0.25}Cm_{0.05}N$ solid solution”, J. Nucl. Mater., Vol. 486, (2017), pp.167-171.

3.2.3-16) Y. Okamoto, A.Maeda, Y. Suzuki, “Self-irradiation damage in PuN”, J. Nucl. Mater., Vol. 206, (1993) pp.94-96.

3.2.3-17) E. V. Shimbarev, L. V. Sudakov, “Synthesis and study of binary compounds of actinides and lanthanides”, V. Influence of internal irradiation on crystal lattice of americium-241 nitride, Radiokhimiya, Vol. 26 (5), (1984) pp.643-645.

3.2.3-18) K. Nakajima, Y. Arai, Y. Suzuki. “Vaporization behavior of neptunium mononitride”, J. Nucl. Mater., Vol. 247, (1997), pp.33-36.

3.2.3-19) Y. Suzuki, A. Maeda, Y. Arai, “Vaporization behavior of uranium-plutonium mixed nitride”, J. Nucl. Mater., Vol. 188, (1992), pp.239-243.

3.2.3-20) K. Nakajima, Y. Suzuki, “Vaporization behavior of (Np, Pu)N”, J. Alloys Compd., vol. 271-273, (1998) pp.666-669.

3.2.3-21) M. Takano, M. Akabori, Y. Arai, “Annealing behavior of $(Pu,Cm)O_2$ lattice and bulk expansion from self-irradiation damage”, J. Nucl. Mater., Vol. 413, (2011), pp.174-178.

3.2.3-22) 日本原子力研究開発機構，文部科学省原子力システム研究開発事業「安全性・経済性向上を目指した MA 核変換用窒化物燃料サイクルに関する研究開発」成果報告書，令和 2（2022）年 3 月.

3.2.3-23) W. M. Olson, R. N. R. Mulford, “The decomposition pressure and melting point of uranium mononitride”, J. Phys. Chem., Vol. 67, (1963) pp.952-954.

3.2.3-24) W. M. Olson, R. N. R. Mulford, “The melting point and decomposition pressure of neptunium mononitride”, J. Phys. Chem., Vol. 70, (1966) pp.2932-2934.

3.2.3-25) W. M. Olson, R. N. R. Mulford, “The decomposition pressure of plutonium mononitride”, J. Phys. Chem., Vol. 68, (1964), pp.1048-1051.

3.2.3-26) M. A. Eron’yan, R. G. Avarbe, et al., “How the pressure of nitrogen affects the melting point of ZrN_x”, Izvestiya Akademii Nauk SSSR, Neorganicheskie Materialy, Vol. 12(2), (1976) pp.247-249.

3.2.3-27) M. A. Eron’yan, R. G. Avarbe, et al., “Effects of equilibrium nitrogen pressure on the melting points of TiNn and HfNn”, Teplofizika Vysokikh Temperatur, Vol. 14(2), (1976) pp.398-399.

3.2.3-28) 岩佐龍磨，有馬立身，“レーザー局所加熱による高融点試料の融点測定技術開発”, JAEA-Technology 2021-036, (2022), 23p.

Table 3.2.3-1 TRU 窒化物及び燃料の物性データ取得状況

窒化物	格子 熱膨張	比熱	熱伝導率	自己照射損傷	その他
NpN	◯3.2.3-3)	◯3.2.3-6)	◯3.2.3-11.13)	-	平衡蒸気圧 3.2.3-18)
PuN	◯3.2.3-3)	◯3.2.3-7)	◯3.2.3-14)	◯3.2.3-15)	平衡蒸気圧 3.2.3-19)
AmN	◯3.2.3-3)	◯3.2.3-6)	◯3.2.3-13)	◯3.2.3-17)	揮発速度 3.2.1-1)
CmN	◯3.2.3-4)	-	-	◯3.2.3-4)	
(Np, Pu)N	-	◯3.2.3-8)	◯3.2.3-8)	-	平衡蒸気圧 3.2.3-20)
(Np, Am)N	◯3.2.3-5)	◯3.2.3-9)	◯3.2.3-9)	-	
(Pu, Am)N	◯3.2.3-5)	◯3.2.3-9)	◯3.2.3-9	-	
(Pu, Am, Cm)N	-	-	-	◯3.2.3-4)	
(Np, Pu, Am, Cm)N	◯3.2.3-5)	-	-	◯3.2.3-4)	
(Pu, Zr)N	-	◯3.2.3-10)	◯3.2.3-10)	-	電気電導率 3.2.3-10)
(Am, Zr)N	-	-	-	-	揮発速度 3.2.1-1)
(Pu, Am, Zr)N	◯3.2.3-5)	◯3.2.3-11)	◯3.2.3-11)	-	
(Pu, Cm, Zr)N	-	-	◯3.2.3-15)	◯3.2.2-7, 3.2.3-15)	
(Np, Pu, Am, Cm, Zr)N	-	◯3.2.3-11)	◯3.2.3-11)	-	

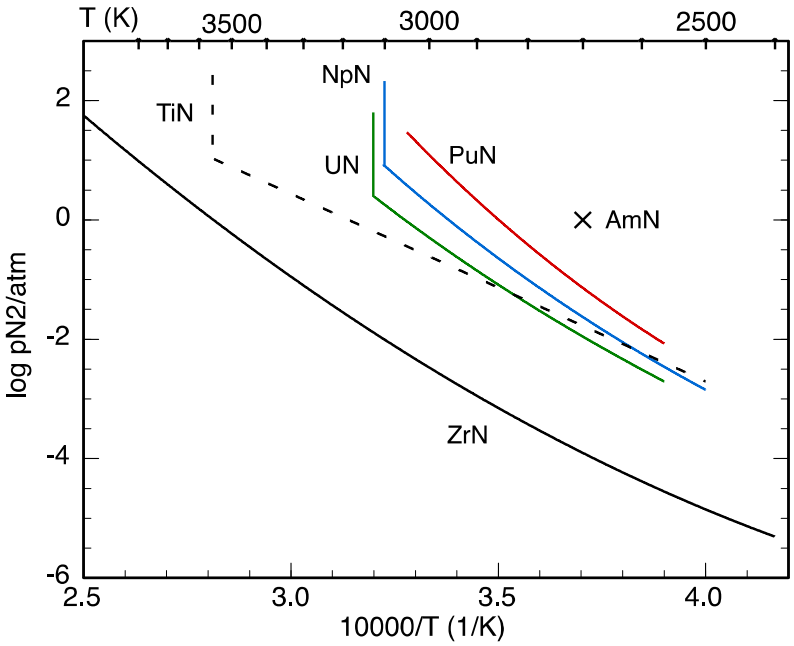


Fig. 3.2.3-1 窒化物の熱分解温度の文献データ

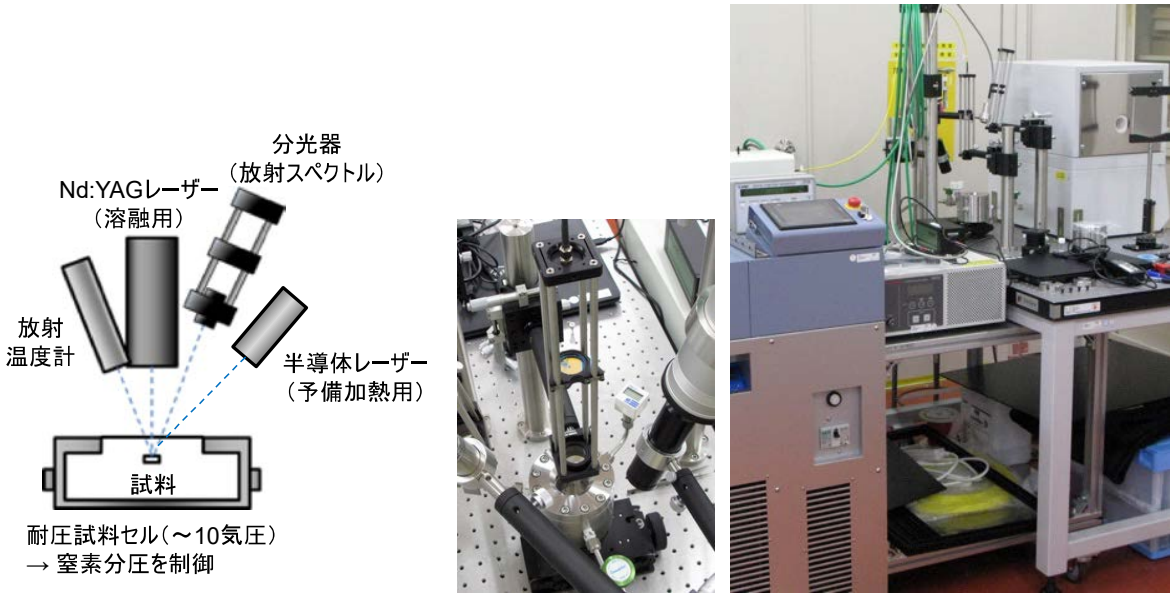


Fig. 3.2.3-2　レーザー局所加熱による融点測定システムの概略と外観

3.2.4　照射試験データ及び燃料ふるまい解析コードの整備状況

ZrN 又は TiN を不活性母材とした窒化物燃料の照射実績は、国内だけでなく世界的に見ても限られているのが現状である。Table 3.2.4-1 に照射試験例の概要を示す。国内では、低濃度の Pu を添加した(Pu, Zr)N と PuN/TiN（粉末混合焼結）ペレットの照射を大洗研究所の JMTR（Japan Materials Testing Reactor）で行った実績がある [3.2.4-1,2]。国外では、スイスの PSI がオランダの HFR で照射した実績 [3.2.4-3]や、日本も参加した国際共同プロジェクト Futurix-FTA において、米ロスアラモス国立研究所（LANL）が作製した(Pu, Am, Zr)N を仏 Phénix で軽照射した実績 [3.2.4-4]、その他ロシアでも(Pu, Zr)N の照射実績 [3.2.4-5]がある。燃料ペレットのスウェリング量や FP ガス放出率は個々の照射試験により若干の差があるが、いずれも熱伝導率が良好なことから燃料温度が低く保たれ、固体 FP の移動が少ないことが示唆されている。

燃料のふるまいや性能理解のためには照射後試験データの蓄積が不可欠であるが、国内で有望な高速中性子照射場である常陽が、2007 年以降停止している。常陽の再稼働を待ちつつ窒化物燃料の照射試験に向けた準備として、3.2.2 項に示したペレット焼結技術（気孔率制御）を確立するとともに、セル内で遠隔操作可能な短尺ピンの端栓溶接装置の基本設計や検査機器の検討を進めてきた。Pu 添加濃度を増やしたペレットや Pu とともに Am を添加したペレットの照射試験に向けた取り組みを今後も継続して実施する。

これらと並行して、照射時のふるまい理解の一助のため、核分裂片を模擬した重イオンをタンデムブースター加速器で模擬燃料物質(Dy,Zr)N に照射し、格子欠陥の生成 [3.2.4-6]や微細構造変化を透過型電子顕微鏡で調べているほか、SPring-8 の放射光を利用して局所構造を明らかにする [3.2.4-7]など、基礎科学的な見地からもデータ収集を進めている。

照射試験に向けた取り組みの一環として、燃料仕様検討のための強力なツールとなる、ZrN 母材の核変換用窒化物燃料ふるまい解析モジュールを開発した [3.2.4-8]。国内で軽水炉燃料の解析に実績のある FEMAXI 上で使用する解析モジュールであり、ADS 炉心環境（Pb-Bi 冷却材、T91 鋼被覆管）の物性データと、3.2.3 項で示した窒化物燃料物性データベースを反映するとともに、専用の現象記述モデル（ギャップ熱伝達、被覆管クリープ、α 崩壊による He 生成・放出、被覆管腐食等）を考案してコーディングしてある。実際の照射後試験データがごく限られているため暫定的に定めている部分もあり、今後の照射試験に基づく V&V（検証・妥当性確認）やモデル追加等により完成度を高めていく必要があるものの、現状で燃料温度、ペレット寸法変化、燃料ピン内圧、被覆管接触圧、被覆管周方向応力等の燃焼度による変化が解析可能であり、少なくとも照射試験燃料のふるまいの傾向を把握できるようになっている。解析結果の例を入力パラメータとともに Fig. 3.2.4-1 に示す。種々の感度解析の結果、先述のとおり燃料ペレットの熱クリープ速度が低いため、スウェリングによりペレットと被覆管が接触し、被覆管周方向応力増大が燃料の使用限界を決定付ける主要因子になることが予想されている。

参考文献

3.2.4-1）中島邦久，岩井孝，菊地啓修,他",JMTR 照射用イナートマトリックス含有窒化物燃料ピンの製作"，JAERI-Research 2005-027, (2005), 41p.

3.2.4-2）岩井孝，中島邦久，菊地啓修，他",JMTR 照射イナートマトリクス窒化物燃料の照射

後試験”, JAEA-Research 2007-026, (2007), 75p.
3.2.4-3) P. R. Hania, F. C. Klaassen, B. Wernli, et al., “Irradiation and post irradiation examination of uranium-free nitride fuel”, J. Nucl. Mater., Vol. 466, (2015), pp.597-605.
3.2.4-4) J. M. Harp, H. J. M. Chichester, L. Capriotti, “Baseline postirradiation examination of the FUTURIX-FTA experiments”, INL/EXT-20-40088 revision 1, Idaho National Laboratory, (2020), 60p.
3.2.4-5) B. D. Rogozkin, N. M. Stepennoya, Yu. E. Fedorov, et al., “Post-reactor studies of plutonium mononitride and oxide fuel with an inert matrix and burnup of about 19%h.a. in BOR-60”, Atomic Energy, Vol. 109, (2011) pp.369-374.
3.2.4-6) S. Takaki, M. Takano, N. Ishikawa, “Lattice expansion in ZrN and $Dy_{0.3}Zr_{0.7}N$ irradiated by 200 MeV Xe ions”, Prog. Nucl. Sci. Technol., Vol. 5, (2018), pp.203-207.
3.2.4-7) Y. Yoneda, T. Tsuji, D. Matsumura, et al., “Local Structure Analysis of ZrN, and $Dy_{0.5}Zr_{0.5}N$ surrogate materials for fast reactor nitride fuel”, Trans. Mat. Res. Soc. Japan, Vol.42 (2017) pp.23-26.
3.2.4-8) 柴田裕樹, 齋藤裕明, 林博和, 他, “ADS 用窒化物燃料ふるまい解析モジュールの開発”, JAEA-Data/Code 2019-023, (2020), 138p.

Table 3.2.4-1　国内外における不活性母材窒化物燃料の照射試験例

プログラム	JAERI 01F-51A	CONFIRM （欧州 FP5）	FUTURIX-FTA （国際プログラム）	ロシア
ペレット	$Pu_{0.1}Zr_{0.9}N$ 0.06PuN/0.94TiN 87～90 %TD	$Pu_{0.2}Zr_{0.8}N$ $Pu_{0.3}Zr_{0.7}N$ ～80 %TD	$Pu_{0.27}Am_{0.05}Zr_{0.68}N$	$Pu_{0.2}Zr_{0.8}N$
作製施設	大洗研究所 燃料研究棟	スイス PSI	米 LANL	-
被覆材	SUS316 He-bond	15-15Ti He-bond	AIM1	ChS-68
照射炉	JMTR	オランダ HFR	仏 Phénix	露 BOR-60
照射時期	2002～2004	2007～2008	2008 （4 ヶ月）	～2005
線出力	平均 408 W/cm	440 W/cm	-	450 W/cm
燃焼度	Zr: 132 GWd/t-Pu （14.7 %FIMA-Pu） Ti: 153 GWd/t-Pu （17.0 %FIMA-Pu）	88 GWd/t-Pu （9.7%FIMA-Pu）	4.1 %FIMA	～19.4 %FIMA
照射後試験施設	原子力科学研究所 燃料試験施設	オランダ NRG 及び PSI	米 INL	-
参考文献	3.2.4-1), 3.2.4-2)	3.2.4-3)	3.2.4-4)	3.2.4-5)

（入力パラメータ）

燃料ペレット：$Np_{0.14}Pu_{0.11}Am_{0.13}Cm_{0.02}Zr_{0.60}N$, 85 %TD

初期直径ギャップ：0.2 mm

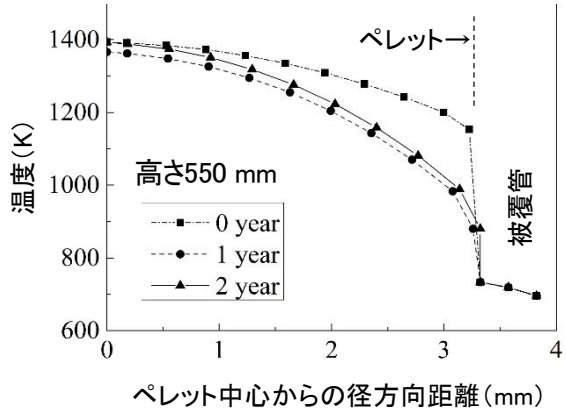
ペレットスタック/ガスプレナム長：1000/1000 mm

ボンドガス：He 0.1 MPa

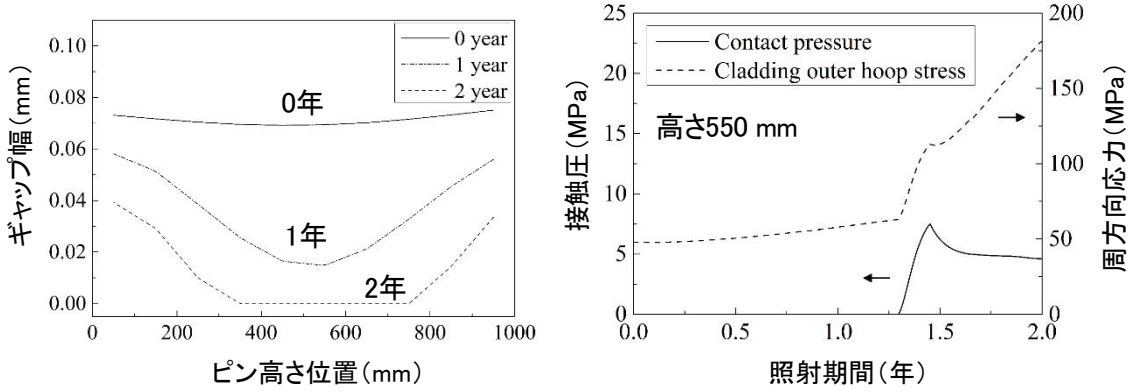
被覆管：T91, 外径/内径：7.65/6.65 mm

冷却材：液体 Pb-Bi （LBE）, 入口温度：573 K, 流速：2 m/s

平均線出力：389 W/cm（最大 500）



(a) 燃料径方向温度分布



(b) 被覆管/ペレットギャップ幅の変化　　(c) 被覆管接触圧と周方向応力の変化

Fig. 3.2.4-1　ADS 窒化物燃料のふるまい解析の例

3.2.5　今後の研究開発課題

燃料製造の枢要技術である外部ゲル化法、焼結密度（気孔率）制御、$^{15}N_2$ 関連技術については基本的な原理を実証したところであり、ZrN 母材燃料については現状の技術と設備で照射試験用ペレットが作製可能な状態にある。今後は特に外部ゲル化法を用いた TRU 窒化物粒子作製のホット実証に向けて技術蓄積と装置検討を進めることが課題であるとともに、粒子分散型 TiN 母材燃料の作製技術向上を継続して進める。また、製造プロセス全般については、ホットセル内での遠隔操作に対応した工学機器の概念検討が必要であり、メーカーの協力が不可欠である。

燃料の物性については、レーザー局所加熱による融点測定技術の TRU 試料への適用を目指すとともに、TRU 試料での測定データが不足している熱機械特性について測定手法の検討を進める必要がある。

最も重要な直近の課題は、照射試験を実現し照射後試験データを蓄積するとともに、これを燃料ふるまい解析コードに反映して精度を向上することである。照射試験は常陽の再稼働を前提に準備を進めているが、国外の研究機関に保管されている照射済試料の有効活用も視野に入れている。

3.3 ADS 用 MA 窒化物燃料の乾式再処理

JAEA では、階層型燃料サイクル概念に基づき、ADS を用いて、長寿命核種である MA を核変換する技術に関する研究開発を行っている（Fig. 3.3-1） [3.3-1)]。MA 核変換用燃料については、ウラン（U）を含まない高濃度 MA 含有窒化物燃料に関する研究開発を進めている。燃焼による反応度の変化を抑制するための Pu、及び熱出力を調整する不活性母材である ZrN を含んだ固溶体である(Zr,Pu,MA)N を第一候補、不活性母材として TiN を用い、TiN 母材中に(Pu,MA)N を分散させた燃料を第二候補としている。窒化物燃料は、燃料中に高濃度の MA を多様な組成で安定な状態で共存させられるという MA 核変換燃料に適した性質を持つ。

これまでの ADS の炉心設計研究において、1 燃焼サイクル当たりの MA 核変換率は総装荷量の約 20 %としている。MA をより多く核変換するため、MA 核変換後の使用済燃料中に残存する TRU（Pu+MA）を分離回収して次サイクルにおいて燃料として使用するための再処理技術に関する研究開発を実施している [3.3-1)]。

窒化物燃料の再処理には、硝酸へ溶解し、抽出剤を用いて有機溶媒中にアクチノイド（An）を分離回収する湿式法 [3.3-2)]の他に、金属燃料の再処理技術として開発されている溶融塩電解などの乾式法が適用できることが知られている [3.3-3)]。液体 Cd 陰極を用いる溶融塩電解法は、陰極中に TRU を一括回収することができるため、原理的に核拡散抵抗性が大きいという利点がある。

窒化物燃料の乾式再処理に関する研究は、旧日本原子力研究所が 1993 年に開始し、2005 年の JAEA への改組後も含めて、An 窒化物の溶融塩電解技術及び液体 Cd 陰極中に回収した An から窒化物を製造する技術を中心に、基礎基盤研究を実施した [3.3-4,5)]。2008 年に実施した前回のとりまとめまでの研究開発においては、不活性雰囲気 G.B.において UN、NpN、PuN、(U,Pu)N などの溶融塩電解試験を実施し、An の電解回収が可能であることを示した。また、液体 Cd 陰極に回収された TRU を窒化物に転換する再窒化工程について、窒素ガス気流中で TRU-Cd 合金を 973 K 程度で加熱する「蒸留窒化法」を開発した [3.3-5~7)]。さらに、2004 年に、Am 及び Cm を含む TRU の使用が可能な不活性ガス雰囲気ホットセル設備「TRU-HITEC」において、Am 試料を用いた試験を開始し、AmN の溶融塩電解及び液体 Cd 陰極への Am の回収、回収物中の Am の再窒化に関する試験を実施し、Am 系においてもこれらの技術が原理的に適用可能であることを示した [3.3-5~7)]。一方、ロシアでは、U-Pu 窒化物燃料を鉛冷却高速炉で使用する燃料サイクルの研究開発を行っている。短い冷却期間で使用済燃料を再処理することが可能な技術として乾式再処理法が選択されており [3.3-3,8,9)]、今後の技術開発が注目される。

Fig. 3.3-2 に、これまでの研究成果、及び先行する金属燃料乾式再処理の研究開発の成果を踏まえて、JAEA が提案している MA 核変換用窒化物燃料の乾式再処理プロセスの概要を示す [3.3-1)]。本項では、ADS 用 MA 窒化物燃料の乾式再処理技術開発について、2008 年以降の成果を中心に紹介する。その内容は、溶融塩電解、化学溶解、分離回収プロセスの目標、溶融塩電解プロセスにおける物質収支評価、Cd 陰極回収物の再窒化挙動、前処理、及び基礎物性データの取得についてである。

(1) 溶融塩電解

不活性母材含有窒化物中の An の熱力学的安定性を評価するため、下に示す電池の起電力測定を実施した（Fig. 3.3-3） [3.3-10,11]。

$$(An,Zr)N\,|\,LiCl\text{-}KCl\text{-}AnCl_3(0.5\ wt\%)\,|\,AnN\ (An=U,Pu) \quad (3.3\text{-}1)$$

$$AnN\text{-}TiN\,|\,LiCl\text{-}KCl\text{-}AnCl_3(0.5\ wt\%)\,|\,AnN\ (An=U,Pu) \quad (3.3\text{-}2)$$

固溶体である(An,Zr)N 試料では、Zr 濃度が大きくなるほど起電力が大きく、An が熱力学的に安定である。一方、固溶体を生成しない AnN-TiN 試料では、An の熱力学的安定性は TiN 濃度には関係しない。また、ZrN 含有窒化物のサイクリックボルタモグラム（Fig. 3.3-4）では、ZrN 濃度の増加によって、An の溶解が阻害されることが示された [3.3-10,11]。

使用済窒化物燃料の溶融塩電解プロセスの確立を目指した研究開発として、ペレット試料破砕物又はペレット試料を用いた溶融塩電解プロセスに関する試験を実施し、各元素の挙動評価を行った。本試験では、陽極において窒化物試料中の An を溶融塩中に溶解し、陰極において An を回収できること、及び陰極での回収において熱力学データ及びプロセス基礎データと矛盾なく元素分離が行われることを示すことが目標である。

溶融塩電解プロセス基礎試験では、U や Pu を含む窒化物試料（約 0.1 g）を Mo 又は W 製のメッシュ内に包み金属線リードを取り付けたものを陽極とし、アルミナ容器（内径 0.9 cm）に入れた Cd（約 5 g）に金属線リードを取りつけたものを陰極（電極面積 0.65 cm^2）として用いた。Ag/AgCl 参照電極は、AgCl を 5 mol%含む LiCl-KCl を多孔質ムライト管に入れ、銀線を浸したものを使用した。塩浴試料は U 又は Pu の塩化物を少量含んだ LiCl-KCl 共晶塩（110 g）をアルミナ容器に入れて使用し、773 K において試験を行った（Fig. 3.3-5） [3.3-11~14]。主な試験条件及び試験結果を Table 3.3-1 に示す。

UN に FP 模擬元素（Mo, Pd, Nd）を加えた試料については、液体 Cd 陰極に U 及び Nd が回収され、Pd と Mo は回収されなかった。代表的な例として UN+Mo 試料の定電位電解時の電流値及び陰極電位の測定結果を Fig. 3.3-6 に示す。電解終了後の Cd 陰極での U の回収率は 90%以上、電流効率は 90 %以上であり、Cd 陰極中の U と Nd の比率は、熱力学データに基づく計算値、及び陽極に液体 Cd 電極を用いた基礎試験の結果に近い値であった [3.3-12,13]。

ZrN 不活性母材含有試料のうち、$U_{0.4}Zr_{0.6}N$ を用いた試験では、陽極電位を U のみが溶解する-0.5 V(vs Ag/AgCl)にした場合は、U のみが Cd 陰極に回収された（回収率 1.7%）。一方、陽極電位を+0.5 V(vs Ag/AgCl)にした場合は、Cd 陰極での U の回収率は 86%、Zr の回収率は 23%であった。これらの結果より、ZrN を不活性母材とする場合に、実用的な速度で電解を行うためには、陽極電位を AnN の電解の場合よりも高くすることが必要であることが示された。また、陽極電位を高くすることに伴い An だけではなく Zr も溶解すること、及び Zr の還元電位が An と同程度であるため、陰極に同時に回収されることが示された [3.3-11,14]。$Pu_{0.4}Zr_{0.6}N$ を用いた試験では、陽極電位-0.5 V(vs Ag/AgCl)にした場合は、Pu のみが Cd 陰極に回収された（回収率 2.4%）。一方、$Pu_{0.1}Zr_{0.9}N$ を用い、陽極電位を+0.5 V(vs Ag/AgCl)にした場合、Cd 陰極での Pu の回収率は 37%、Zr の回収率は 5.6%であった。これらの結果は、$U_{0.4}Zr_{0.6}N$ を用いた試験と同様の傾向を示した。$Pu_{0.1}Zr_{0.9}N$ 電解試験において各元素の Cd 陰極での回収率が小

さかったのは、電解に伴い小さな粒状になった試料が、試料保持用に使用した金属メッシュの隙間から脱落したためと考えられる[3.3-11,14]。

TiN 不活性母材含有試料のうち、0.4UN-0.6TiN を用いた試験では、陽極電位-0.5 V（vs Ag/AgCl）での定電位電解によって、U のみが Cd 陰極に回収された（回収率 32%、84%）。0.4PuN-0.6TiN 及び 0.06PuN-0.94TiN を用いた同様の試験では、陽極電位-0.5 V（vs Ag/AgCl）での定電位電解によって、Pu のみが Cd 陰極に回収された（回収率 39%、15%）。Cd 陰極での回収率が小さかったのは、電解に伴い小さな粒状になった試料が、試料保持用に使用した金属メッシュの隙間から脱落したためと考えられる[3.3-11,14]。

上記の溶融塩電解プロセス基礎試験において、陽極とした窒化物試料は、ペレット試料を破砕し、その一部を金属製メッシュ内に包み、それにリード線をつけたものであった。工学的な溶融塩電解プロセスを目指すためには、上記のような基礎試験用電極とは異なり、容易な方法で窒化物ペレットへの導通を確保する必要がある。そこで、陽極構造を工学的な機器においても採用可能な形状を目指して変更した溶融塩電解プロセス試験を実施した。

$U_{0.2}Pu_{0.8}N$ ペレット（1~2.4 g、6 mmϕ、85%TD）を Mo 製容器に入れたものを陽極、アルミナ容器（内径 1.4 cm）に入れた液体 Cd（約 10 g）を陰極として用いた溶融塩電解試験の主な試験条件及び試験結果を Table 3.3-2 に示す。Mo 製容器は、ペレット 1 個が入る程度の大きさで、側面に穴が 60 個程度等間隔で開けられてあり、容器にペレットを入れて陽極として使用した。塩浴試料は LiCl-KCl-$PuCl_3$（1.10～1.18 wt%）-UCl_3（0.31～0.44 wt%）110 g を用いた[3.3-15]。

陽極電位-0.6～-0.55 V(vs Ag/AgCl)での定電位電解試験において、液体 Cd 陰極に U 及び Pu が回収された。電解時の電流値及び陰極電位の測定結果を Fig. 3.3-7 に示す。液体 Cd 陰極の電位は、Cd 相への U 及び Pu の還元を示す-1.37～-1.50 V を示した。3 回実施した試験において、電流がほぼ 0 になるまで電解を行った結果、Cd 陰極での U+Pu の回収率は 32～50%、電流効率は 90%以上であった。また、Cd 陰極中の U、Pu、及び Pu-241 の娘核種である Am の比率は、熱力学データに基づく計算値、及び陽極に液体 Cd 電極を用いた基礎試験の結果に近い値であった。なお、Cd 陰極への U の回収率が Pu の回収率よりも大きく、塩浴中の Pu 濃度が電解試験中に上昇したのは、U が選択的に陰極に回収されたためである。電解試験後の Cd 陰極及び塩浴試料を Fig. 3.3-8 に示す。電解試験終了後、陽極容器中には窒化物試料は見られず、塩浴底部に $U_{0.2}Pu_{0.8}N$ 粉末試料が見られた。陰極での An の回収率が 50%以下と小さかったのは、電解試験中に粉末となった窒化物試料が陽極用 Mo 容器の穴から外にこぼれ落ちたためと考えられる[3.3-15]。

これらの試験によって、窒化物ペレット試料の溶融塩電解においては、電解中に窒素ガスを放出するとともに粉末になる窒化物を電極として作用させるため、リードとの接触を保つこと、及び陽極容器内に電解中に生成する粉末を保持することが可能な構造とすることが求められることが示された。

そこで、2 種類の陽極構造を持つ試験装置を製作し、これらを用いて溶融塩電解試験を実施した[3.3-16~18]。試験 1 では、側面に穴がなく浅型のタングステン製容器（内径 1.26 cm 高さ 0.6 cm）に DyN ペレットを入れたものを陽極として用いた。塩浴試料は $DyCl_3$ を 1.65 wt%含んだ

LiCl-KCl 共晶塩（132 g）をアルミナ容器に入れて使用し、アルミナ容器の底の液体 Cd（157 g）を陰極（電極面積 19.6 cm^2）としたもので、溶融塩電解試験を 773 K において実施した（Fig. 3.3-9）。陽極電位-0.35 V（vs Ag/AgCl）で 11.7 時間行った定電位電解試験において、窒化物中の Dy の 30%が溶解するのに相当する電流が流れた（Fig. 3.3-9）。試験 2 では、内径 7 cm 高さ 10.5 cm のグラファイト容器に DyN ペレットを入れたものを陽極とした。グラファイト容器の内側に設置したジルコニア容器（内径 2.2 cm）に入れた液体 Cd（40 g）を陰極（電極面積 3.8 cm^2）として溶融塩電解試験を実施した。塩浴試料は $DyCl_3$ を 1.63 wt%含んだ LiCl-KCl 共晶塩（428 g）を上述のグラファイト容器に入れて使用し、773 K において実験を行った（Fig. 3.3-10）。陽極電位-0.35～-0.20 V（vs Ag/AgCl）で 6.6 時間行った定電位電解試験において、窒化物中の Dy 全てが溶解するのに相当する電流が流れた（Fig. 3.3-11）。2 種類の試験について、陽極電位-0.35 V（vs Ag/AgCl）での定電位電解における電流密度（ペレット表面積当たりの電流値）を Fig. 3.3-12 に示す [3.3-16]。内径 7 cm 高さ 10.5 cm のグラファイト容器を用いた試験 2 の方が、電流密度が大きいことから、こちらの構造の装置を用いて、Gd 含有窒化物ペレット試料を用いた電解プロセス試験を実施した [3.3-19]。塩浴試料は $GdCl_3$ を約 1.5 wt%含んだ LiCl-KCl 共晶塩（約 400 g）を上述のグラファイト容器に入れて使用し、773 K において実験を行った [3.3-19]。GdN ペレット 2 個（約 2 g）を用い、Cd 陰極を 2 個使用（電極面積 7.6 cm^2）して実施した定電流電解試験（150 mA）時の陽極電位は約-0.1 V（vs Ag/AgCl）で安定し、3 時間の電解で GdN 中の 64 %の Gd を溶解するのに相当する電流が流れた。実験後の Cd 陰極には、陽極で溶解した Gd と同量の Gd が回収されたことを確認した。Cd 陰極では、Cd 相の上に Gd 濃度の高い上部析出相が生成した [3.3-19]。$Gd_{0.25}Zr_{0.75}N$ ペレット 4 個（約 4 g）を用い、Cd 陰極を 1 個使用（電極面積 3.8 cm^2）して実施した定電流電解試験時の陽極電位は、100 mA での電解では約 0.8 V（vs Ag/AgCl）、150 及び 200 mA での電解では約 1.0 V（vs Ag/AgCl）に達し、GdN と ZrN の溶解が同時に起こることを示唆する結果であった。GdN-TiN（GdN=40 mol%）ペレット 2 個（約 2 g）を用い、Cd 陰極を 1 個使用（電極面積 3.8 cm^2）した定電流電解試験（100 mA）では、電解時の陽極電位は、GdN 60%電解に相当するまでは約-0.4 V（vs Ag/AgCl）で安定しており、GdN のみが溶解したと推測された。それ以降は、徐々に電位が上昇して約 0.4 V（vs Ag/AgCl）まで達し、GdN だけではなく TiN も溶解したことが示された。陽極残渣は TiN であり、電解途中までは GdN が選択的に溶解し、Cd 陰極に回収されていたと考えられる。

(2) 化学溶解

使用済金属燃料の溶融塩電解においては、使用済燃料全てを陽極溶解することは困難であり、ある程度の量の陽極残渣が生じることが知られている [3.3-20]。窒化物燃料についても、金属燃料の場合と同様に $CdCl_2$ を含んだ溶融塩中に陽極残渣を浸漬し、残渣中に含まれている An を塩化物として回収する方法を提案した [3.3-1]。これは、再処理における MA 損失率を極力低減することが必要な MA 核変換燃料の再処理においては、特に重要な技術である。

残渣中に含まれる TRU 含有物質の大部分を占めるのは、TRU を含む窒化物であると考えられる。これまでに、TRU 窒化物の溶解に適した塩素化剤として、$CdCl_2$ （塩化カドミウム）を

使用する方法を提案し、コールド模擬物質である窒化ランタノイド（LnN）及び UN について溶解挙動を報告した [3.3-21,22]。ここで窒化物と $CdCl_2$ の化学反応は式(3.3-3)で表される。

$$MN+3/2CdCl_2=MCl_3+3/2Cd+1/2N_2\uparrow \quad (3.3\text{-}3)$$

一方、不活性母材として使用される ZrN 及び TiN の溶解は、TRU 窒化物の溶解よりも高い温度での加熱が必要であることが、実験及び熱力学的考察によって示されている [3.3-21~23]。

不活性母材（ZrN 又は TiN）を含有した窒化物燃料模擬物質試料粉末について、窒化物 0.1g 及び溶融塩 10 g 規模の $CdCl_2$ による溶解試験を実施した [3.3-24,25]。その結果、723 K～823 K での 10 時間以下の反応によって、Pu 及び TRU 模擬物質であるランタノイド（Ln）を溶解できることを示した。また、この条件において、不活性母材である ZrN は微量溶解、TiN は溶解しないことがわかり [3.3-24,25]、化学溶解によって不活性母材元素と TRU を分離できることを示した（Fig. 3.3-13～15）。

これらに引き続き上記の試験の 10 倍の規模で実施した、窒化物燃料模擬試料 $Dy_{0.4}Zr_{0.6}N$ 1 g 及び溶融塩 100 g を用いた $CdCl_2$ による溶解試験では、TRU 模擬物質である Dy のみが溶融塩中に溶解し、Zr は塩中に溶解しないという結果が得られた。しかし、823 K～973 K において 888 時間加熱後の Dy の溶解率は 65%程度であり、反応速度向上のため、試験装置の改良が課題であることが示された（Fig. 3.3-16） [3.3-26]。なお、本試験では、溶融塩試料を硝酸中に溶解して誘導結合プラズマ発光分光（ICP-AES）測定により化学分析を実施した。サンプリング試料に混入する可能性のある $Dy_{0.4}Zr_{0.6}N$ は室温の 1 及び 8 mol/L 硝酸中に容易に溶解する [3.3-27]ため、本分析試験では溶解速度が小さい 0.1 もしくは 0.3 mol/L 硝酸をサンプリング試料の溶解に使用した。

一方、TRU を含有した陽極残渣となる可能性がある物質として、TRU 窒化物と反応し、金属間化合物を生成すると考えられる白金族元素 [3.3-12]に着目し、TRU-Pd 系に関する基礎試験を開始した。コールド模擬物質である GdN 及び NpN と Pd の反応によって生成する MPd_3（M=Gd, Np）化合物は $CdCl_2$ との固相反応によって MCl_3 になること、及び $GdPd_3$ 中の Gd は $CdCl_2$ との反応で溶融塩中に溶解することから、$CdCl_2$ による化学溶解処理が可能であることが示唆された [3.3-26,28]。他の白金族元素の挙動、及び不活性母材を含んだ系における反応挙動の解明が今後の課題である。

また、$CdCl_2$ を用いた化学溶解工程による溶解が難しい TRU 含有物質として、窒化物中に不純物として 0.1 %程度含まれる TRU 酸化物がある。TRU 及び Ln の酸化物を溶融塩中に溶解する方法として、$ZrCl_4$ （塩化ジルコニウム）を塩素化剤として使用する方法が提案され、酸化物の溶解が可能であることが確認されている [3.3-29]。また、次の分離工程に影響を与える Zr 及び Cd をあらかじめ溶融塩中から取り除くための電解回収方法が、電中研との協力において考案された [3.3-30]。

(3) 乾式再処理による分離回収プロセスの目標

MA の分離変換技術では、発電用原子炉燃料の再処理によって発生した高レベル廃棄物中に含まれる長半減期の MA を核変換することによって、高レベル廃棄物の長期毒性を低減するこ

とを目標としている。これまでに、高レベル廃棄物中の MA を 99%以上除去することによって、8000 年程度とされている潜在的有害度が天然 U 程度になるまでの期間を、300 年程度に短縮できることを示している [3.3-31]。

一方、これまでの ADS を用いた核変換に関する検討においては、ADS 用 MA 核変換燃料の約 2 年間の使用期間中に燃料中の MA の約 20 %を核変換できるとしている [3.3-31]。MA をより多く核変換するためには、使用済 MA 核変換燃料中に残存する MA を分離回収し、再び燃料として使用して核変換する「核変換燃料サイクル」を繰り返すことが必要である。

高レベル廃棄物に含まれる MA の 99 %以上を「核変換燃料サイクル」において核変換することを目標とすると、MA 分離回収、MA 燃料製造、MA 燃料処理の各工程における MA の損失率が同じであると仮定した場合には、それぞれの工程での MA 損失率は 0.1 %以下にする必要があることを示した [3.3-32,33]。そこで、ADS 用 MA 窒化物燃料の再処理においては、MA 損失率を 0.1 %以下にすることを目標とした [3.3-33]。

一方、ADS 用 MA 窒化物燃料の再処理における MA の化学分離では、MA と化学的性質がよく似た希土類元素（RE）が混入する。RE には中性子を吸収する核種が含まれるため、その混入率を下げる必要がある。ADS 炉心への RE 混入の炉物理的な影響に関する評価結果では、MA 元素に対して 5 wt%までの RE の混入が許容されることが示されている [3.3-34]。ADS 用 MA 窒化物燃料の再処理では、この値を MA への RE 混入割合限度の目標値とした。

(4) 溶融塩電解プロセスにおける物質収支評価

前記の MA 核変換用燃料再処理プロセスの目標値を達成するために必要な条件を明らかにするため、現在想定されている燃料組成を用いた燃焼計算によって導出した使用済燃料の組成、及び各プロセスでの元素挙動に関する文献情報を基に、溶融塩電解プロセスにおける物質収支評価を実施した [3.3-35,36]。

溶融塩電解プロセスでは、Cd 陰極における還元電位が An と近い RE が不純物として含まれる。塩浴中の RE を除去する塩再生工程を付加した溶融塩電解プロセスについて、回収 MA 中の RE 不純物濃度及び An 回収率の目標値（5wt%以下及び 99.9%以上）を満たすための塩再生工程の条件を明らかにした。また、処理条件をパラメータとして物質量及び発生廃棄物量への影響を評価した [3.3-36]。

(5) Cd 陰極回収物の再窒化挙動

10 mg～10 g 規模の Pu-Cd、U-Pu-Cd、U-Pu-Ln-Cd、Am-Cd 合金を用いた基礎試験により、「蒸留窒化法」による再窒化工程の原理的成立性を確認している [3.3-15,37,38]。これを踏まえて、今後の工学機器の開発に必要な、より大きな規模での試験データの取得のため、Cd 合金 200 g を用いた実験が可能な装置を設計製作し、不活性ガス雰囲気の G.B.内に設置した（Fig.3.3-17） [3.3-18]。この装置を使用して、TRU の模擬物質として Gd を用いた Gd-Cd 合金（約 100 g）からの Cd の蒸留分離及び蒸留　窒化法による GdN の調製試験を実施した。反応生成物を粉砕して、再度蒸留窒化加熱を行うことで、残留 Cd 濃度を約 0.07 wt%まで低減することができた。また、蒸発した Cd の約 99 %を回収できることを確認した [3.3-39,40]。さらに、溶融塩電解

プロセスにおいて Cd 陰極に An とともに回収される可能性がある Zr の再窒化挙動について、Zr-Cd 合金は Ln-Cd 合金と同様の条件で ZrN に転換されることを明らかにした [3.3-41]。

蒸留窒化法においては、加熱中に徐々に Cd が蒸発除去されることに伴い、An-Cd 金属間化合物が中間化合物として生成する。この化合物を窒化物へ転換するためには、窒素気流中での 973 K 以上での加熱が必要である。中間化合物である An-Cd 金属間化合物の安定性評価のための基礎試験として、TRU 模擬物質として Ce を用いた Ce-Cd 系の電気化学測定試験を実施し、6 種類の金属間化合物の生成自由エネルギーを導出した [3.3-42]。Gd-Cd 系について同様に実施した試験の結果 [3.3-43,44] も踏まえ、金属間化合物の中では、MCd_2 型の化合物が最も安定であることを確認した。

(6) 前処理

使用済燃料ピンの前処理工程であるピン剪断の操業条件と得られる物質の性状の相関に関する知見を得ることを目標として、窒化物燃料ピン模擬体を用いた剪断試験を実施した [3.3-45,46]。T91 製の燃料被覆管模擬体内に模擬燃料ペレットとして(Dy,Zr)N 焼結体（5.6mmφ、高さ 8.0～8.1mm、84～85%TD）を装荷して、窒化物燃料ピン模擬体とした。不活性ガス雰囲気のグローブボックス内で金属燃料ピン模擬体用剪断装置を用いて剪断試験を実施し、窒化物燃料ピン模擬体の剪断が可能であること及び剪断幅を小さくするほど粒径の小さい破砕片の割合が増加することを確認した（Table 3.3-3, Fig. 3.3-18） [3.3-46]。

(7) 基礎物性データの取得

これまでに、AmN と $CdCl_2$ の固相反応による $AmCl_3$ の調製方法を確立し [3.3-47,48]、$AmCl_3$ を用いた溶融塩電気化学試験を実施した [3.3-38,49]。2008 年以降には、NaCl-2CsCl 溶融塩中の Am の酸化還元挙動データを報告した [3.3-50]。また、溶融塩と液体金属を用いる還元抽出において、MA と希土類元素を分離する性能が高いと予想される液体金属である Ga について、分離基礎データ測定 [3.3-51~53]、及び液体 Ga 中の Ce 及び Am の活量測定 [3.3-54] を行い、その分離性能を評価した。

さらに、分離精製後 40 年程度経過した Cm-244 酸化物試料を原料として、純度の高い $CmCl_3$ 試料を調製した。その際、原料酸化物を硝酸に溶解し、Cm-244 の娘核種である Pu-240 を陰イオン交換法で、不純物として含まれていた Am-243 を、3 級ピリジン樹脂を用いたクロマトグラム法で除去して得られた Cm 溶液から、約 10 mg の Cm シュウ酸塩を調製した [3.3-55]。シュウ酸塩の焙焼で得られた酸化物を原料として炭素熱還元法によって調製した窒化物を経て、$CmCl_3$ を調製した [3.3-56]。この試料を用いて、$CmCl_3$ の融解温度測定 [3.3-56]、及び溶融 LiCl-KCl 中での Cm の酸化還元電位測定 [3.3-57] を実施した。同様に、NpO_2 を原料として窒化物経由で調製した $NpCl_3$ を用いて、これまでに測定例がなかった融解温度を測定した [3.3-58]。

(8) まとめと今後の課題

2008 年の前回とりまとめ以降の研究開発においては、Pu 及び MA を含んだ窒化物を用いて実験室規模の乾式処理法要素技術に関する試験を実施し、その原理的成立性を確認した。また、

「文部科学省　原子力科学技術委員会　群分離・核変換技術評価作業部会」の「中間的論点の取りまとめ」（2013 年 11 月）では、「（燃料サイクル技術を含めた各技術分野について）技術成熟度の検討を行った結果、概ね、概念開発段階から原理実証段階に移行することが可能な研究開発段階にあり、工学規模の次のステージに移行することが適当である」と評価された[3.3-59)]。

これを踏まえ、近年は、使用済 MA 核変換用窒化物燃料の乾式再処理技術の技術成熟度を原理実証段階まで引き上げることを目指し、窒化物の陽極溶解に適した陽極や工学規模を目指した再窒化試験装置の開発とそれを用いたコールド試験、乾式処理プロセスの詳細検討と物量評価などを実施している。今後は、使用済 MA 核変換用窒化物燃料模擬物質を用いた小規模試験による元素挙動評価とともに、燃料ピン剪断等の前処理工程、電解残渣の化学溶解、塩からの FP 除去及び廃棄体化などの周辺工程も含めた技術開発をさらに進める予定である。

参考文献

3.3-1) 「放射性廃棄物の分離変換」研究専門委員会, “分離変換技術総論” (2016) pp.106-109.

3.3-2) Hj. Matzke, “Science of Advanced LMFBR Fuels”, North-Holland, Amsterdam (1986) pp.622-641.

3.3-3) 林博和, “（2）窒化物燃料の処理技術の現状 乾式再処理に関する国内外の研究開発の現状”, 日本原子力学会 2019 年春の年会予稿集 3D_PL02, (2019).

3.3-4) 大井川宏之, 西原健司, 湊和生, 他, “原研における長寿命核種の分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方”, JAERI-Review 2005-043 (2005), 193p.

3.3-5) 原子力基礎工学研究部門, 次世代原子力システム研究開発部門, J-PARC センター, “日本原子力研究開発機構における長寿命核種の分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方”, JAEA-Review 2008-074 (2009), 246p.

3.3-6) H. Hayashi, T. Sato, H. Shibata, et al., “Pyrochemical treatment of spent nitride fuels for MA transmutation”, Science China; Chemistry, Vol.57 (2014), pp.1427-1431.

3.3-7) 林博和, “マイナーアクチノイド核変換用窒化物燃料の乾式再処理研究の現状 ADS による核変換用 MA 燃料再処理技術の最新動向”, 日本原子力学会 2015 年秋の大会予稿集 TN21, (2015).

3.3-8) Yu. P. Zaikov et al., “Research and development of the pyrochemical processing for the mixed nitride uranium-plutonium fuel”, Journal of Physics, Conf. Series 1475 (2020) 012027, doi:10.1088/1742-6596/1475/1/012027.

3.3-9) A. Potapov et al., “Opening of nitride spent nuclear fuel”, in IV Congress “Fundamental research and applied developing of recycling and utilization processes of technogenic formations”, KnE Materials Science (2020) pp.438-445, doi:10.18502/kms.v6i1.8122.

3.3-10) 佐藤匠, 岩井孝, 阿部治郎, 他, “アクチノイド窒化物の電解精製における不活性マトリックス濃度の影響”, 日本原子力学会 2009 年春の年会予稿集 C02, (2009).

3.3-11) T. Satoh, H. Hayashi, H. Shibata et al., “Recent results of study on pyrochemical process for spent nitride fuel”, Proceedings of Japan-Korea Workshop on Nuclear

Pyroprocessing 2011 (NUPYRO 2011), Jan. 11-12, 2011, Kyoto, KURRI-KR(CD)-36 (2011) pp.94-103.

3.3-12) T. Satoh, T. Iwai, Y. Arai, "Electrolysis of burnup-simulated uranium nitride fuels in LiCl-KCl eutectic melts", J. Nucl. Sci. Technol., 46(6) (2009) pp.557-563.

3.3-13) 佐藤匠, 岩井孝, 荒井康夫, "複数の FP 元素(Mo,Nd)を添加した模擬照射済みウラン窒化物の溶融塩電解試験", 日本原子力学会 2008 年春の年会予稿集 D46, (2008).

3.3-14) T. Satoh, T. Iwai, Y. Arai, "Electrolysis of burnup-simulated uranium nitride fuels and actinide nitrides containing inert matrix materials in a molten LiCl-KCl eutectic", Proceedings of 10th OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, Oct. 6-10, 2008, Mito, CD-ROM (2010).

3.3-15) T. Satoh, T. Iwai, Y. Arai, "Nitridation of U and Pu recovered in liquid Cd cathode by molten salt electrorefining of (U,Pu)N", Proceedings of GLOBAL 2009, (2009), Paris, pp.1278-1286.

3.3-16) T. Satoh, H. Hayashi, T. Nishi, et al., "An innovative anode concept for improving anodic dissolution rate of nitride fuel in electrorefining process", Proceedings of GLOBAL 2015 - 21st International Conference on Nuclear Fuel Cycle for a Low-carbon Future, (2015) pp.1234-1239.

3.3-17) 佐藤匠, 林博和, "窒化物燃料の溶融塩電解精製試験装置の開発", 第 48 回溶融塩化学討論会, (2016).

3.3-18) H. Hayashi, T. Sato, H. Shibata, et al., "Research and development on pyrochemical treatment of spent nitride fuels for MA transmutation in JAEA", Fourteenth International Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation (14IEMPT), NEA/NSC/R(2017)3 (Internet), pp.427-432 (2017).

3.3-19) 佐藤匠, 林博和, private communication.

3.3-20) T. Koyama, M. Iizuka, "Pyrochemical fuel cycle technologies for processing of spent nuclear fuels, Developments in Japan", in R. Taylor Ed., "Reprocessing and Recycling of Spent Nuclear Fuel", Elsevier Ltd. (2015) pp.457-519.

3.3-21) F. Kobayashi, T. Ogawa, M. Takano, et al., "Dissolution of metal nitrides in LiCl-KCl eutectic melt", Proc. Global'99, Jackson Hole, Wyoming, USA, CD-ROM (1999).

3.3-22) H. Hayashi, F. Kobayashi, T. Ogawa, et al., "Dissolution of uranium nitrides in LiCl-KCl eutectic melt", J. Nucl. Sci. Technol., Sup. 3 (2002) pp.624-627.

3.3-23) H. Hayashi, T. Ogawa, K. Minato, "Thermochemical consideration for pyrochemical reprocessing of nitride fuels", Proceedings of Japan-Korea Workshop on Nuclear Pyroprocessing, (2002) pp.301-314.

3.3-24) T. Satoh, K. Nishihara, M. Takano, "Reprocessing of spent nitride fuel by chemical dissolution in molten salt; Preliminary results on rare-earth mononitride", Proceedings of International Conference on Toward and Over the Fukushima Daiichi Accident (GLOBAL 2011) CD-ROM (2011).

3.3-25) T. Satoh, K. Nishihara, M. Takano, “Reprocessing of spent nitride fuel by chemical dissolution in molten salt, results on plutonium nitride containing inert matrix materials”, Proc. OECD/NEA 12th OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, September 24-27, 2012, Prague, Czech Republic (2013) pp.199-208.

3.3-26) 林博和, 佐藤匠, 「安全性・経済性向上を目指した MA 核変換用窒化物燃料サイクルに関する研究開発(18) 溶融塩中における模擬窒化物燃料粉砕試料の化学溶解試験」, 日本原子力学会 2020 年秋の大会予稿集,2E12, (2020).

3.3-27) H. Hayashi, R. Chiba, “Dissolution and chemical analysis of Zr-based lanthanide nitrides”, Progress in Nuclear Science and Technology 5 (2018) pp.196-199.

3.3-28) 林博和, 柴田裕樹, 音部治幹, “安全性・経済性向上を目指した MA 核変換用窒化物燃料サイクルに関する研究開発(20) Np-Pd 合金の調製及び塩化反応試験”,日本原子力学会 2021 年春の年会予稿集 3H13, (2021).

3.3-29) Y. Sakamura, T. Inoue, T. Iwai, et al., “Chlorination of UO_2, PuO_2 and rare earth oxides using $ZrCl_4$ in LiCl-KCl eutectic melt”, J. Nucl. Mater. 340 (2005) pp.39-51; 坂村義治, 他, “$ZrCl_4$ を用いた UO_2,PuO_2,および希土類酸化物の塩化物への転換”, 電中研研究報告 T00054 (2001).

3.3-30) T. Murakami, H. Hayashi, Electrochemical recovery of Zr and Cd from molten chloride salts for reprocessing of used nitride fuels, J. Nucl. Mat. 558, (2022) 153330.

3.3-31) H. Oigawa, K. Tsujimoto, K. Nishihara, et al., “Role of ADS in the back-end of the fuel cycle strategies and associated design activities, the case of Japan”, J. Nucl. Mat., 415 (2011) pp.229-236.

3.3-32) 原子力科学技術委員会, 群分離・核変換技術評価作業部会(第 3 回)資料 3、平成 25 年（2013）9 月 13 日.

3.3-33) H. Hayashi, T. Nishi, M. Takano, et al., “Recent progress and future R&D plan of nitride fuel cycle technology for transmutation of minor actinides”, 13th OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation Proceedings of 13th OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, (2015) pp.370-377.

3.3-34) T. Sugawara, R. Katano, K. Tsujimoto, “Impact of impurity in transmutation cycle on neutronics design of revised accelerator-driven system”, Ann. Nucl. Energy 111 (2018) pp.449-459.

3.3-35) T. Satoh, K. Nishihara, H. Hayashi, et al., “Development of the process flow diagram of the pyrochemical reprocessing of spent nitride fuel for ADS”, Proc. OECD/NEA 11th OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, San Francisco, USA, CD-ROM (2012) .

3.3-36) H. Tateno, T. Sato, Y. Tsubata, et al., “Material balance evaluation of pyroprocessing for MA transmutation nitride fuel”, J. Nucl. Sci. Technol. 57 (2020) pp.224-235.

3.3-37) Y. Arai, T. Iwai, M. Akabori, et al., “Synthesis of actinide nitrides in molten cadmium”, Nuclear Technology, 162 (2008) pp.244-249.

3.3-38) H. Hayashi, H. Shibata, M. Akabori, et al., “Electrolysis of AmN in LiCl-KCl eutectic melts and renitridation of Am in liquid Cd cathode”, Electrochemistry, 77(8) (2009) pp.673-676.

3.3-39) 佐藤匠, 林博和, 高野公秀, “安全性・経済性向上を目指した MA 核変換用窒化物燃料サイクルに関する研究開発(2) コールド模擬物質を用いた TRU-Cd 合金の溶媒金属除去・再窒化試験”, 日本原子力学会 2018 年春の年会予稿集, (2018).

3.3-40) T. Sato, H. Hayashi, “Nitridation of dysprosium and gadolinium dissolved in liquid cadmium”, 7th International Pyroprocessing Research Conference (IPRC 2018), Tokai (poster) P9, Japan.

3.3-41) T. Sato, H. Hayashi, H. Nakamura, et al., “Nitridation of dysprosium and zirconium metals in liquid cadmium”, NuMat 2016, The Nuclear Materials Conference, Montpellier, France O8.15.

3.3-42) H. Shibata, H. Hayashi, M. Akabori, et al., “Evaluation of Gibbs free energies of formation of Ce-Cd intermetallic compounds using electrochemical techniques”, Journal of Physics and Chemistry of Solids, Vol. 75 (2014) pp.972-976.

3.3-43) 明石信, 柴田裕樹, 佐藤匠, 他, “Gd-Cd 金属間化合物の熱力学的安定性”,日本原子力学会 2018 年春の年会予稿集, (2018).

3.3-44) S. Akashi, H. Shibata, T. Sato, et al., “Measurement of Gibbs free energy of formation of $GdCd_6$”, 7th International Pyroprocessing Research Conference (IPRC 2018) P6, Tokai (poster), Japan.

3.3-45) 佐藤匠, 林博和, “安全性・経済性向上を目指した MA 核変換用窒化物燃料サイクルに関する研究開発,7; (Dy,Zr)N ペレットを装荷した燃料ピン模擬体の剪断試験”,日本原子力学会 2018 年秋の大会予稿集 1D17, (2018).

3.3-46) 日本原子力研究開発機構, 平成 30 年度文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業原子力システム研究開発事業, ”安全性・経済性向上を目指した MA 核変換用窒化物燃料サイクルに関する研究開発”, 成果報告書,平成 31（2019）年 3 月.

3.3-47) H. Hayashi, M. Takano, M. Akabori, et al., “Synthesis of americium trichloride by the reaction of americium nitride with cadmium chloride”, Journal of Alloys and Compounds, 456 (2008) pp.243-246.

3.3-48) 林博和,他, “金属窒化物のハロゲン化物への転換方法”(平成 23（2011）年 4 月 22 日登録) , 特許第 4724859 号.

3.3-49) H. Hayashi, M. Akabori, K. Minato, “Cyclic voltammetry behavior of americium at a liquid cadmium electrode in LiCl-KCl eutectic melts”, Nuclear Technology, Vol. 162 (2008) pp.129-134.

3.3-50) H. Hayashi, M. Akabori, K. Minato, “Electrochemical behavior of americium in NaCl-2CsCl melt”, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 303 (2015)

pp.1331-1334.

3.3-51) T. Toda, T. Maruyama, K. Moritani, et al., “Separation factor of americium from cerium in molten chloride-liquid gallium reductive extraction system”, Electrochemistry 77 (2009) pp.649-651.

3.3-52) H. Moriyama, K. Moritani, T. Toda, et al., “Effect of oxide ions on separation factors of actinides from lanthanides in reductive extraction”, Radiochimica Acta, Vol. 97 (2009) pp.233-236.

3.3-53) T. Toda, T. Maruyama, K. Moritani, et al., “Thermodynamic properties of lanthanides and actinides for reductive extraction of minor actinides”, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 46 (2009) pp.18-25.

3.3-54) 林博和, 蔵本賢一, 赤堀光雄, 他, “液体ガリウム中の Am 及び Ce の活量測定”, 日本原子力学会 2008 年秋の大会 P14, (2008).

3.3-55) H. Hayashi, H. Hagiya, S.-Y. Kim, et al., “Separation and recovery of Cm from Cm-Pu mixed oxide samples containing Am impurity”, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 296 (2013) pp.1275-1286.

3.3-56) H. Hayashi, M. Takano, H. Otobe, et al., “Syntheses and thermal analyses of curium trichloride”, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 297(1) (2013) pp.139-144.

3.3-57) H. Shibata, H. Hayashi, T. Koyama, “Evaluation of apparent standard potentials of curium in LiCl-KCl eutectic melt”, Electrochemistry, Vol. 83 (7) (2015) pp.532-536.

3.3-58) H. Hayashi, M. Takano, M. Kurata, et al., “Synthesis of neptunium trichloride and measurements of its melting temperature”, Journal of Nuclear Materials Vol. 440(1-3) (2013) pp.477-479.

3.3-59) 文部科学省　科学技術・学術審議会　研究計画・評価分科会　原子力科学技術委員会群分離・核変換技術評価作業部会, “「群分離・核変換技術評価について」の中間的な論点のとりまとめについて”(2013).

Table 3.3-1 窒化物試料の溶融塩電解プロセス基礎試験条件及び試験結果

番号	試料 化学形	試料 重量 (g)	電解前 塩中 濃度 (wt%)	陽極 電位 (V vs Ag/AgCl)	最大 電流 (mA)	電解 時間 (h)	陰極 回収率 (%)	電流効 率 (%)	文献
1	UN+Mo	0.168	0.54 (UCl_3)	-0.65 ～ -0.60	12.5	25	91(U)	90	3.3-11 ,12 ,14
2	UN+UPd_3	0.205			20	20	93(U)	90	
3	(U,Nd)N	0.175			10	20	93(U) 3(Nd)	82(U) 0.4(Nd)	
4	(U,Nd)N+ Mo	0.220	0.48 (UCl_3)	-0.60 ～ -0.55	18	7.5	92(U) 1(Nd)	82(U) 0.1(Nd)	3.3-13
5	$U_{0.4}Zr_{0.6}N$	0.271	0.46 (UCl_3)	-0.5	8	1	1.7(U)		3.3-10 ,11
6		0.257	0.51 (UCl_3)	+0.5	80	12	86(U) 23(Zr)		3.3-11 ,14
7	$Pu_{0.4}Zr_{0.6}N$	0.225	0.53 ($PuCl_3$)	-0.5		1	2.4(Pu)		3.3-10 ,11
8	$Pu_{0.1}Zr_{0.9}N$	0.104	1.10 ($PuCl_3$)	+0.5			37(Pu) 5.6(Zr)		3.3-11 ,14
9	0.4UN- 0.6TiN	0.256	0.48 (UCl_3)	-0.5	15	10	32(U)		3.3-10 ,11
10		0.325	0.48 (UCl_3)		28	20	84(U)		3.3-14
11	0.4PuN- 0.6TiN	0.275	0.51 ($PuCl_3$)				39(Pu)		3.3-10 ,11
12	0.06PuN- 0.94TiN	0.119	1.10 ($PuCl_3$)		12	2.6	15(Pu)		3.3-14

Table 3.3-2 窒化物試料の溶融塩電解プロセス試験条件及び試験結果

番号	試料 化学形	試料 重量(g)	電解前 塩中濃度 (wt%)	陽極 電位 (V vs Ag/AgCl)	最大 電流 (mA)	電解 時間 (h)	陰極 回収率 (%)	電流 効率 (%)	文献
1	$U_{0.2}Pu_{0.8}N$	2.39	0.4 (UCl_3) 1.1 ($PuCl_3$) 0.03 ($AmCl_3$)	-0.60 ～ -0.55	40	17	50 (U+Pu) *118(U)* *37(Pu)*	92	3.3-15
2		2.15					32 (U+Pu) *67(U)* *25(Pu)*	90	
3		1.09					47 (U+Pu) *88(U)* *40(Pu)*	92	

Table 3.3-3 窒化物燃料ピン模擬体剪断試験後の窒化物燃料模擬物質 $Dy_{0.4}Zr_{0.6}N$ の粒径分布 [3.3-46)]

粒径(mm)	$Dy_{0.4}Zr_{0.6}N$ 破断片の割合(%)		
	剪断幅 10 mm	剪断幅 5 mm	剪断幅 2.5 mm
>4.0	95.3	88.8	25.8
2.0～4.0	0.0	0.2	1.6
1.0～2.0	0.3	1.0	14.6
0.50～1.0	1.0	2.6	21.4
0.30～0.50	0.8	2.2	14.8
0.15～0.30	0.5	2.3	8.4
0.10～0.15	0.3	1.0	3.4
0.045～0.10	0.3	0.9	3.8
<0.045	0.1	0.3	1.7
回収物合計	98.6	99.2	95.5

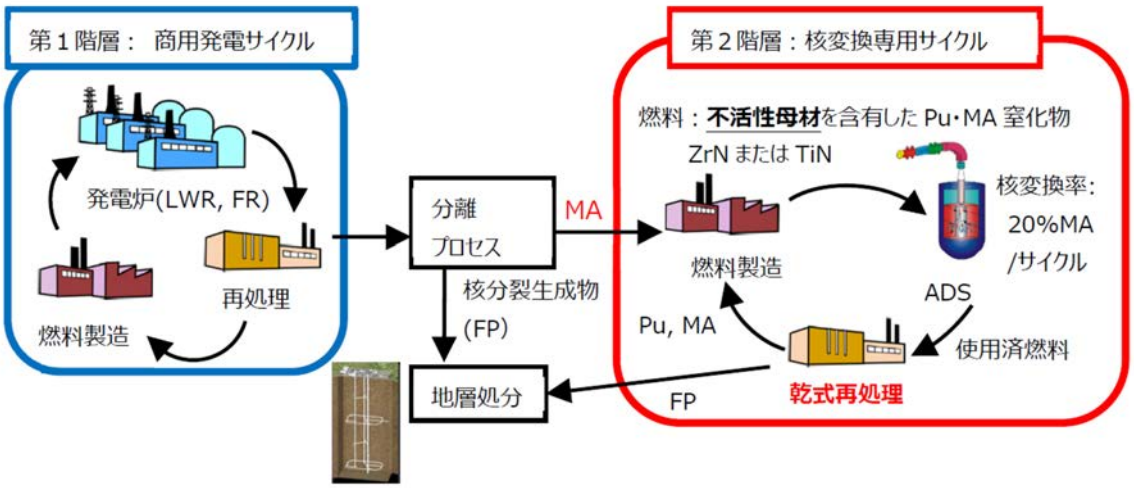


Fig. 3.3-1 階層型燃料サイクル概念の概要 [3.3-1)]

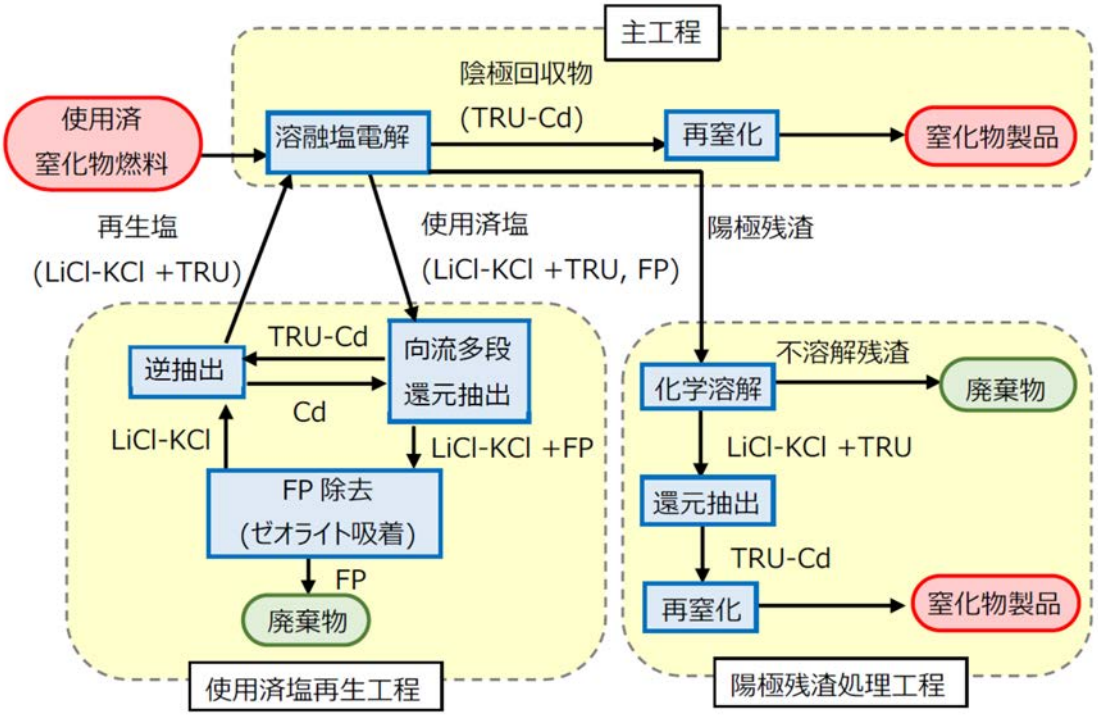


Fig. 3.3-2 MA 核変換用窒化物燃料の乾式再処理プロセスの流れ [3.3-1)]

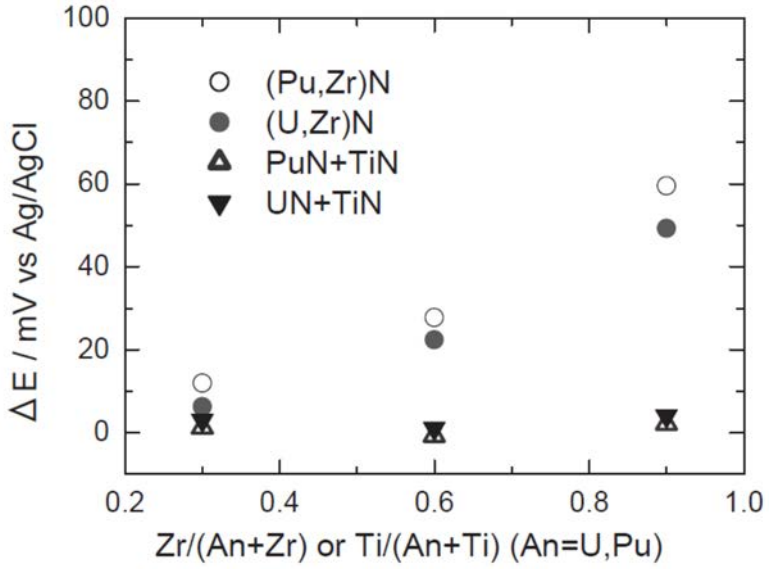


Fig. 3.3-3 不活性母材含有窒化物試料の起電力測定結果 [3.3-11)]

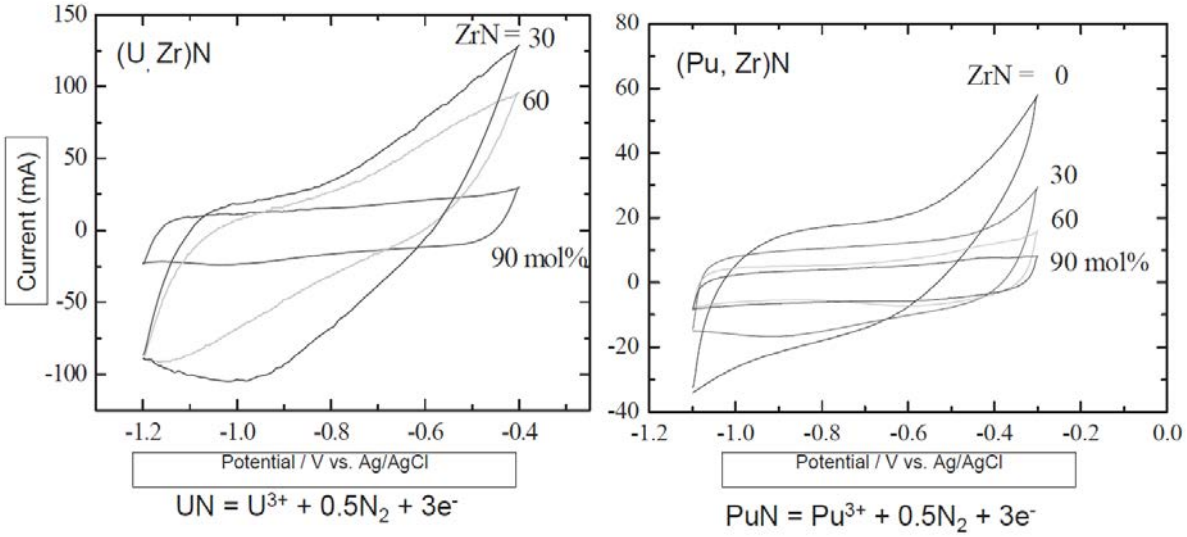


Fig. 3.3-4 (An,Zr)N 試料のサイクリックボルタモグラム [3.3-11)]

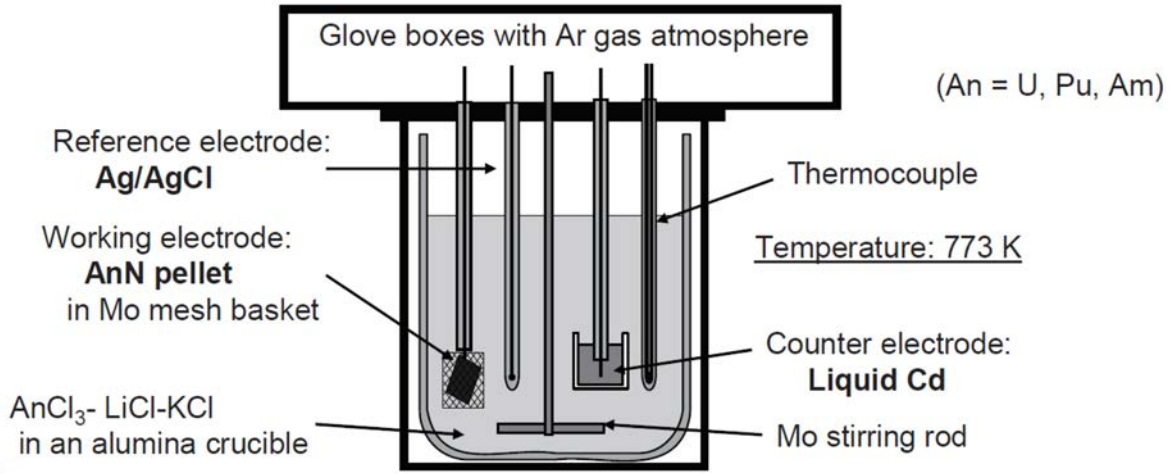


Fig. 3.3-5 窒化物試料溶融塩電解試験装置の模式図 [3.3-11)]

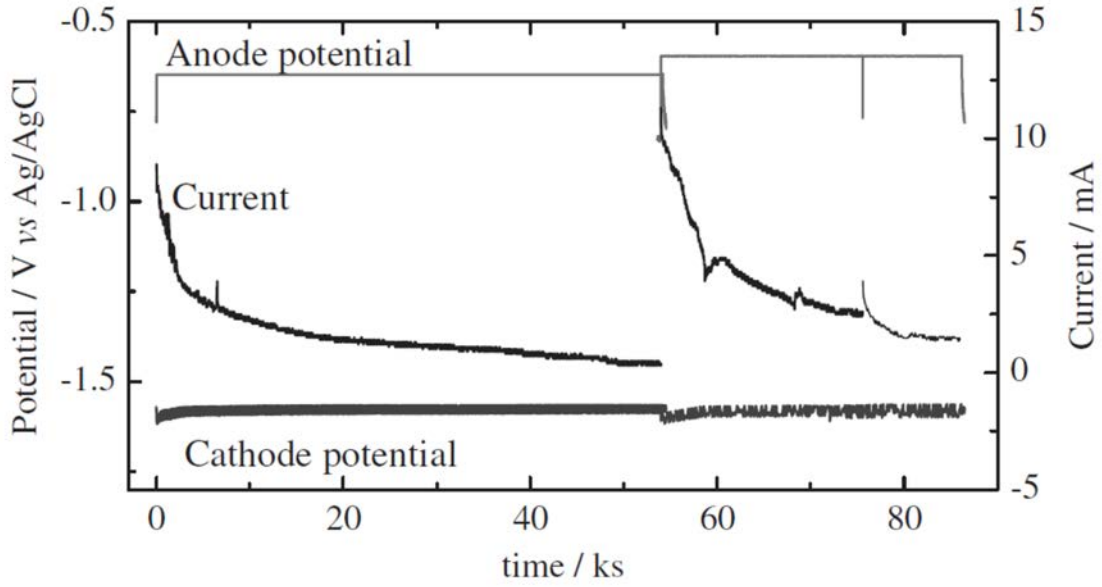


Fig. 3.3-6 UN+Mo 試料の定電位電解試験における電流及び電位の変化 [3.3-12)]

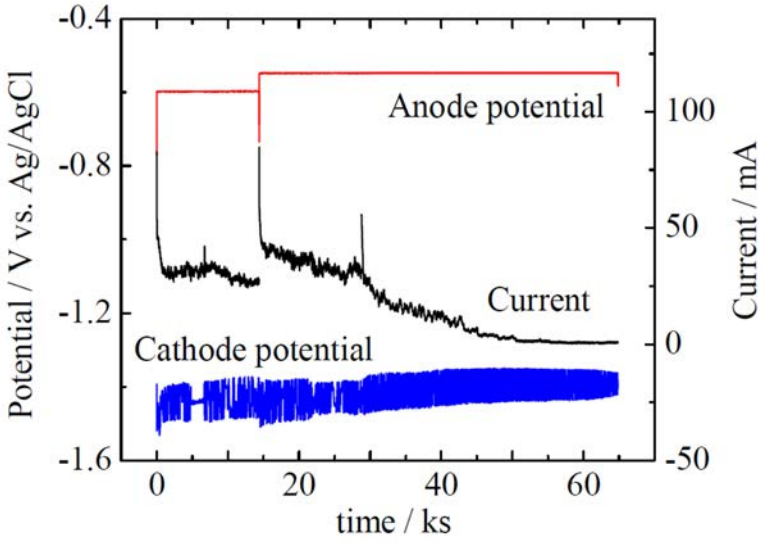


Fig. 3.3-7 $U_{0.2}Pu_{0.8}N$ 試料の定電位電解試験における電流及び電位の変化 [3.3-15)]

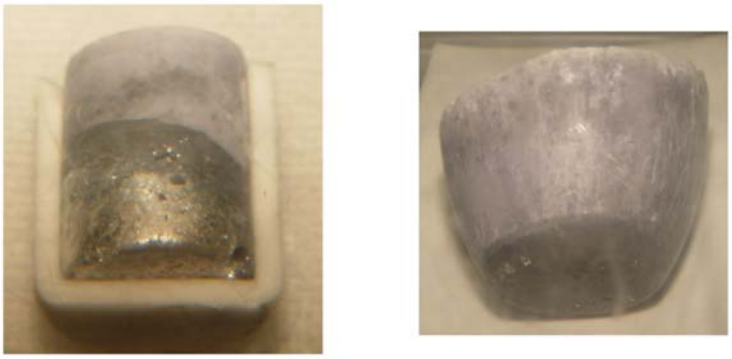


Fig. 3.3-8 $U_{0.2}Pu_{0.8}N$ 試料溶融塩電解試験後の Cd 陰極（左）及び固化した塩（右） [3.3-15)]

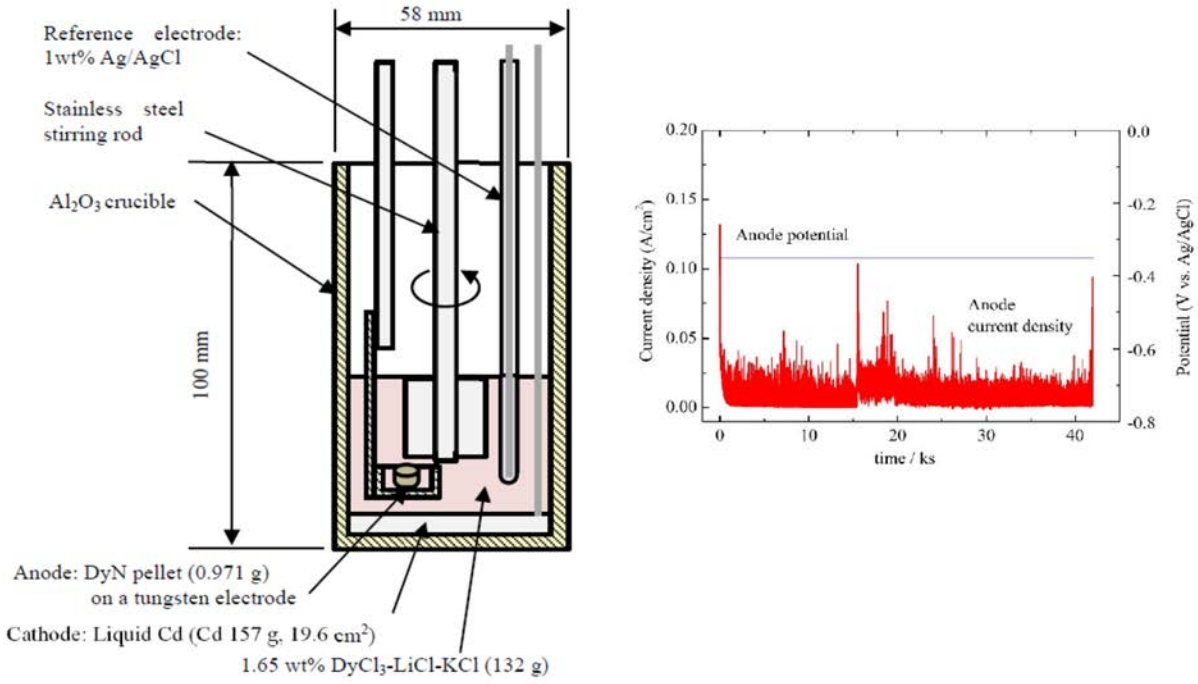


Fig. 3.3-9 試験 1 で使用した従来型窒化物試料溶融塩電解試験装置の模式図及び DyN 試料の-0.35 V(vs Ag/AgCl)での定電位電解試験における電流密度及び電位の変化 [3.3-16)]

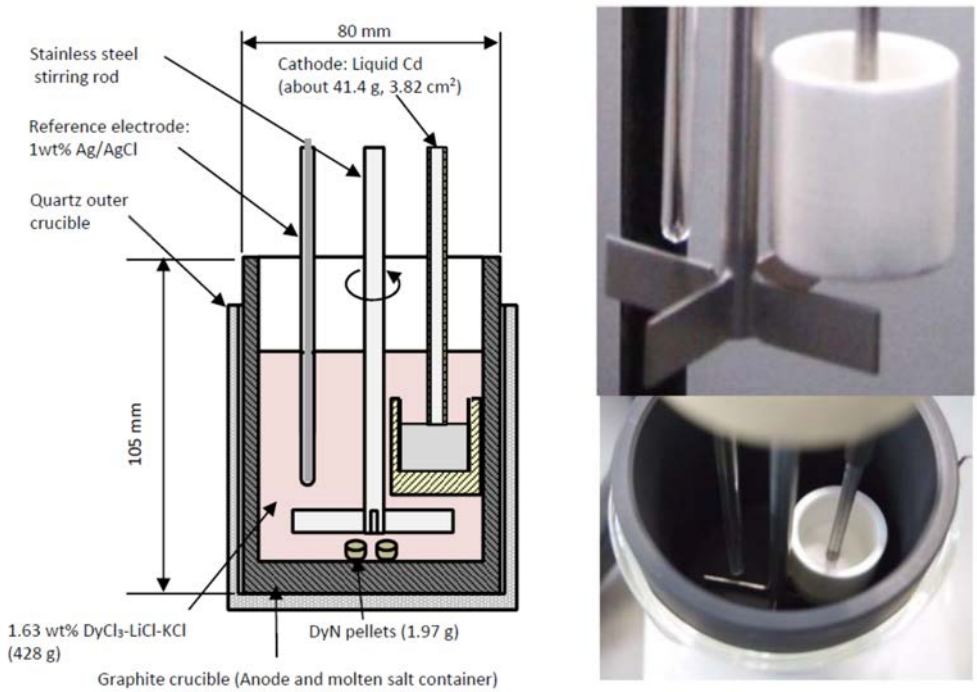


Fig. 3.3-10 試験 2 で使用した新しく開発した構造の溶融塩電解試験装置の模式図及び外観 [3.3-18)]

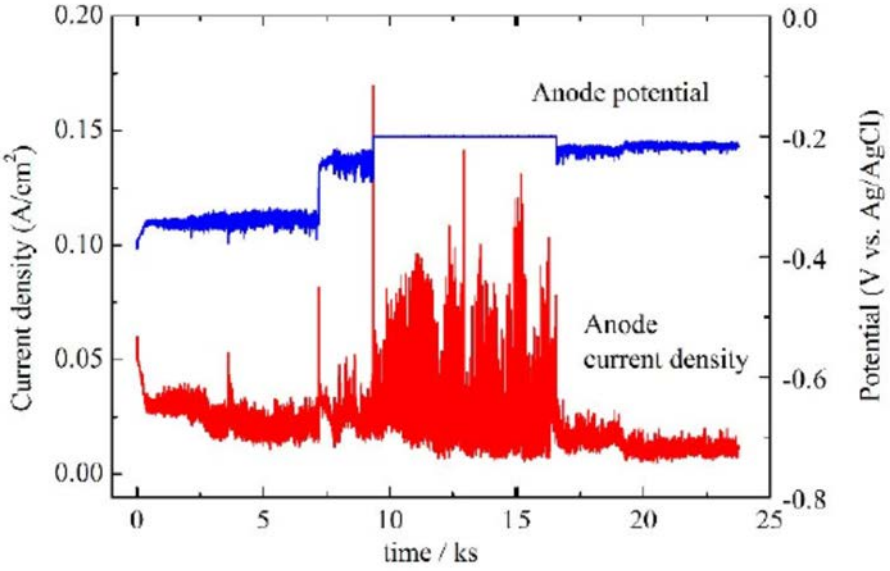


Fig. 3.3-11 DyN 試料の定電位電解試験における電流密度及び電位の変化 [3.3-16)]

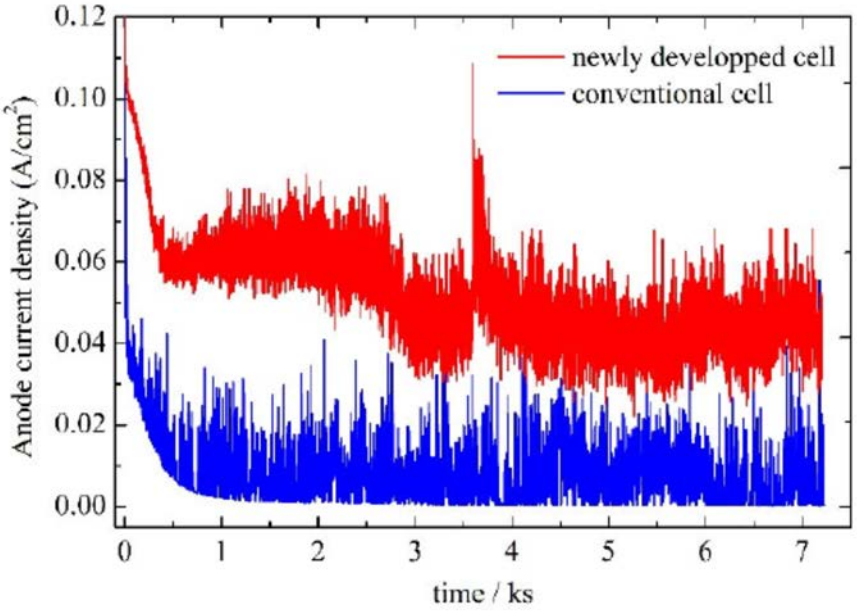


Fig. 3.3-12 DyN 試料の-0.35 V(vs Ag/AgCl)での定電位電解試験における電流密度の比較 [3.3-16)]

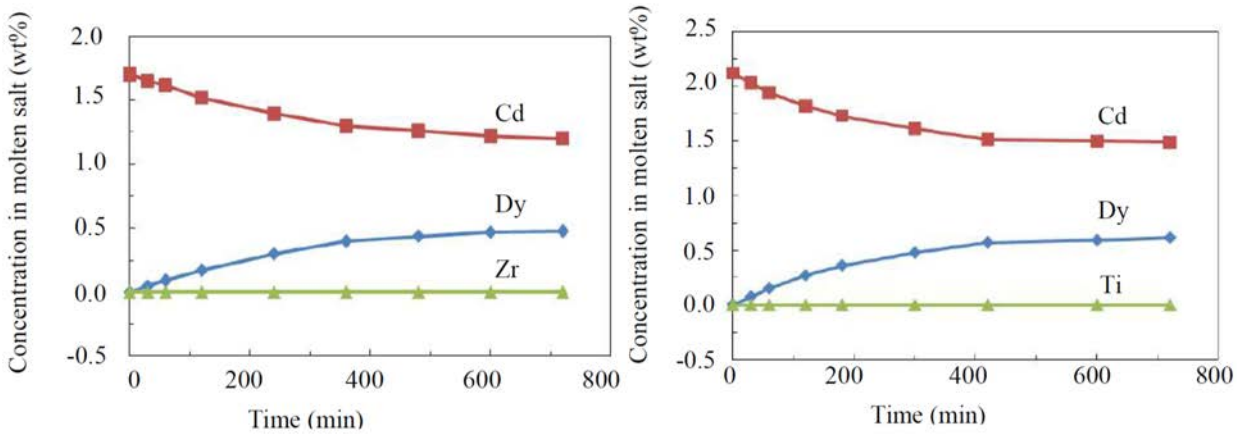


Fig. 3.3-13 $Dy_{0.4}Zr_{0.6}N$ （左）及び DyN-TiN （DyN=40 mol%） （右)の化学溶解試験（823 K）における溶融塩中の元素濃度 [3.3-24)]

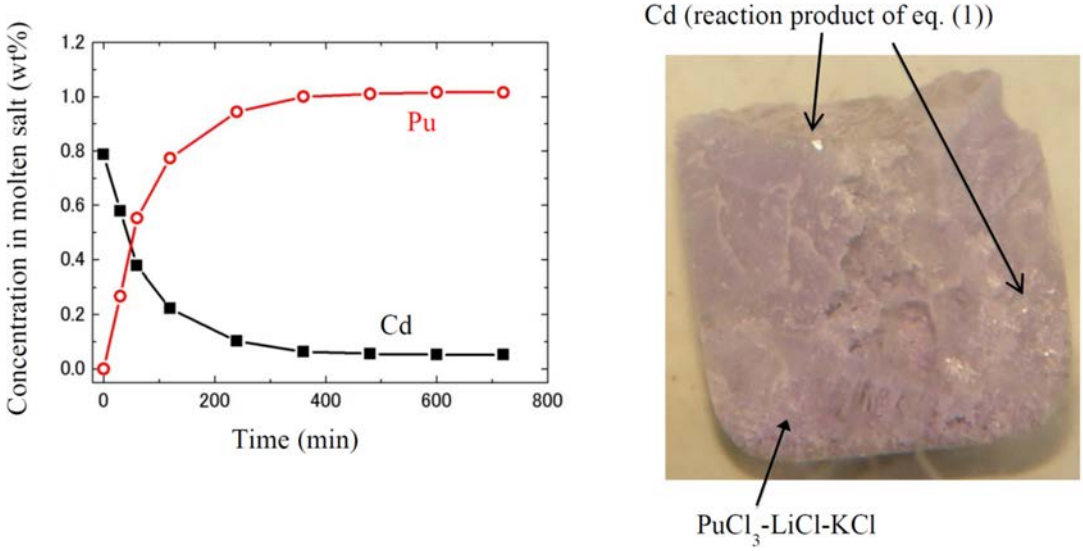


Fig. 3.3-14 PuN の化学溶解試験（823 K）における溶融塩中の元素濃度（左）、及び化学溶解試験後の塩試料の外観 （右） [3.3-25)]

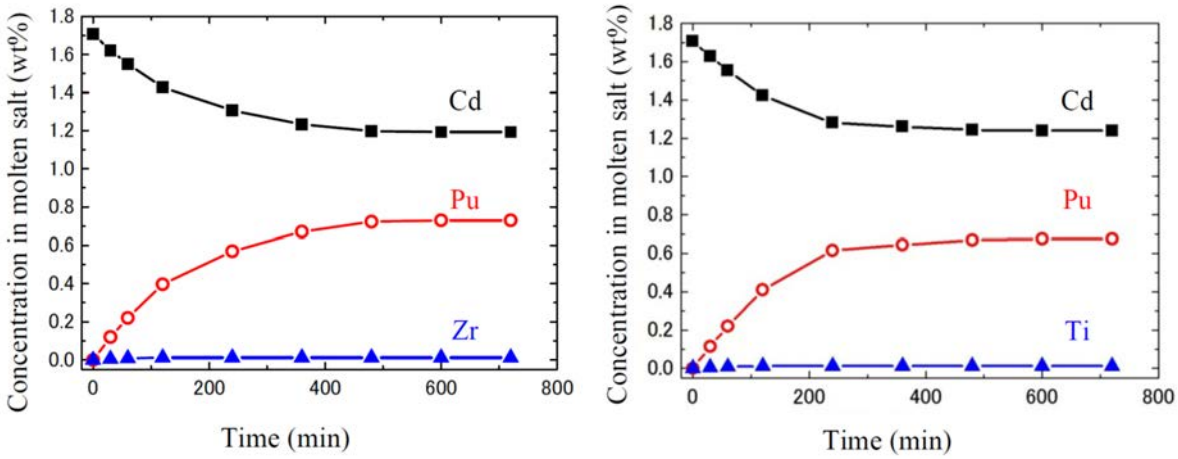


Fig. 3.3-15 $Pu_{0.4}Zr_{0.6}N$ （左）及び PuN-TiN （PuN=40 mol%） （右） の化学溶解試験（823 K）における溶融塩中の元素濃度 [3.3-25)]

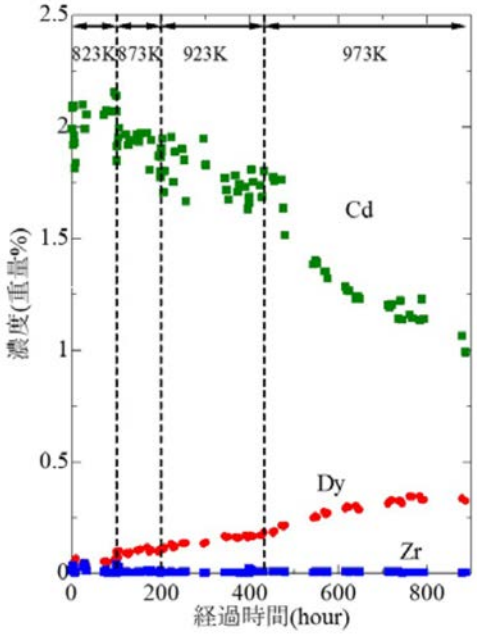


Fig. 3.3-16 $Dy_{0.4}Zr_{0.6}N$ 試料の化学溶解試験における溶融塩中の元素濃度 [3.3-26)]

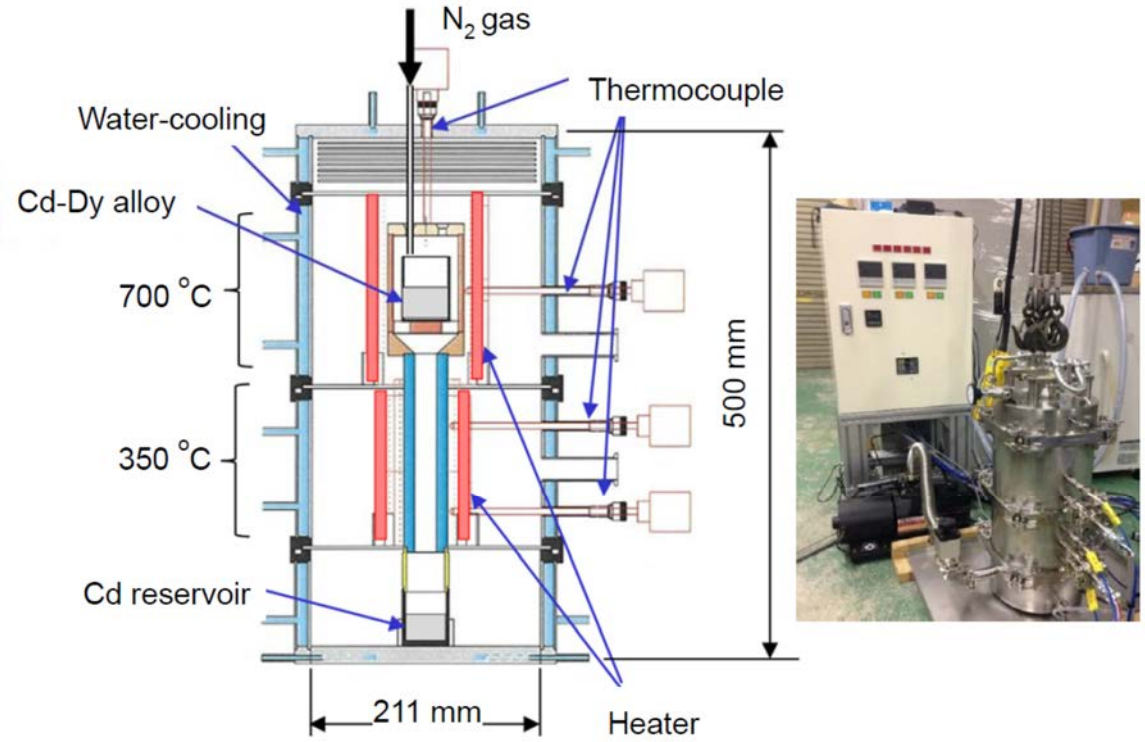


Fig. 3.3-17 大型化した再窒化試験装置の模式図及び外観 [3.3-18)]

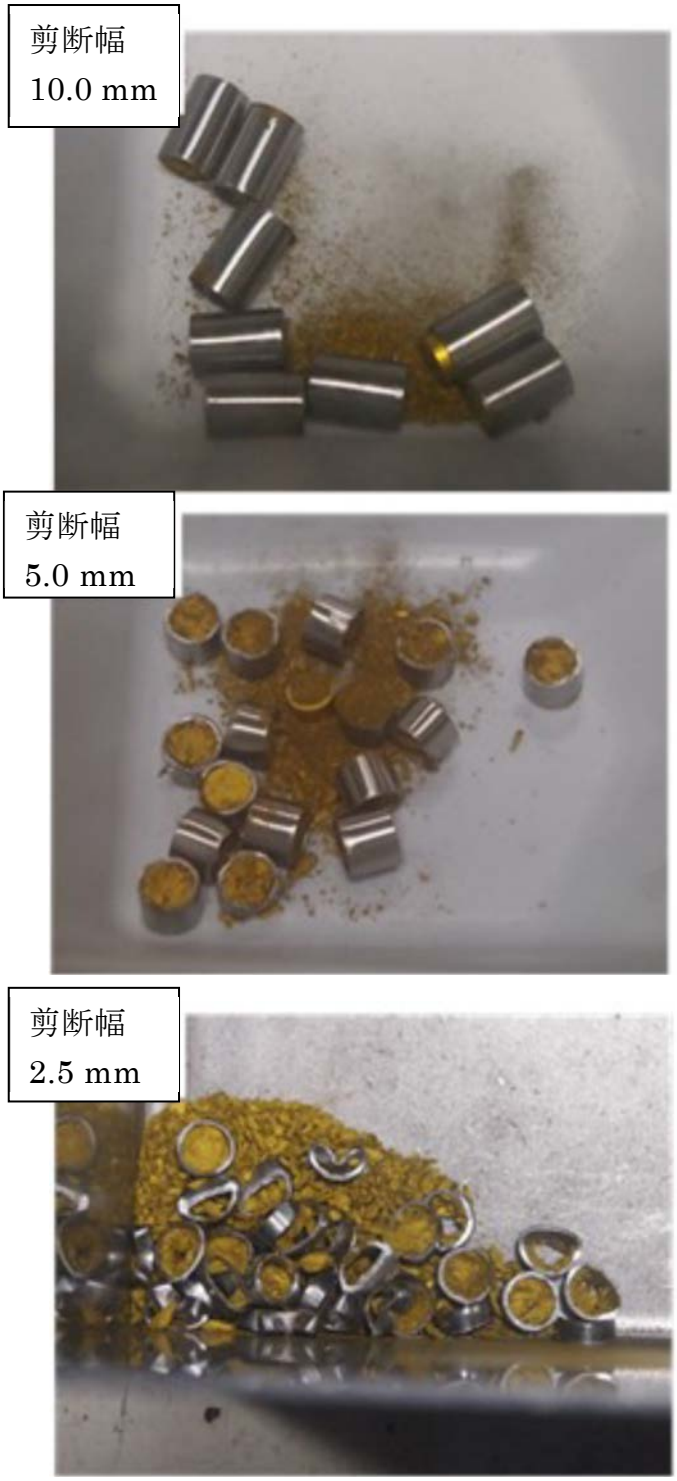


Fig. 3.3-18 剪断試験後の窒化物燃料ピン模擬体（T91 管及び $Dy_{0.4}Zr_{0.6}N$ ペレット） 3.3-46)

4. 核変換技術

4.1 高速炉

4.1.1 炉心設計

放射性廃棄物の減容化・有害度低減のための技術開発の一環として、プルトニウム（Pu）・マイナーアクチノイド（MA）燃焼炉心の概念検討を実施した。これは、増殖だけでなく燃焼の機能を高速炉に持たせることで、Pu 需給バランス調整に柔軟な対応を可能とすることを狙ったものである。また、炉物理研究では、既存施設である常陽、もんじゅ、さらには国際協力を最大限活用して高次 Pu や MA に関する炉物理実験解析データを可能な限り収集し、炉心設計手法への反映を実施した [4.1.1-1)]。

4.1.1.1 Pu・MA 燃焼炉心の検討

次世代高速炉では Pu の増殖・持続的利用や MA 核変換による廃棄物減容・有害度低減を重要な開発目的としている。一方、昨今の原子力を取り巻く情勢の変化により、軽水炉での Pu 利用が長期化し、導入期の高速炉の受け入れる Pu 組成が従来想定よりも高次化[2]する可能性や、Pu 受給バランスの調整のため増殖だけなく Pu の燃焼機能も必要となる可能性が出てきている。また、高速炉の主要エネルギー源としての役割が終わった後の遠い将来のフェーズアウトモードを考えると、高速炉サイクルシステム内に存在する Pu 及び MA のインベントリを最小化できることを示しておく必要がある。これらの観点から従来の増殖モードに加えて、燃焼モードの炉心検討を行った（Fig. 4.1.1-1 参照）。

高速炉導入期において、高次化 Pu の受け入れや Pu の燃焼が可能な炉心を、我が国の次世代ナトリウム冷却高速炉（JSFR, Japan Sodium-cooled Fast Reactor）[4.1.1-2~4)]の炉心設計と炉心構成要素のサイズや配置、プラントとの取合条件が同一となる条件で検討した [4.1.1-5)]。本炉心は、典型的な軽水炉使用済燃料から回収した Pu（^{239}Pu 同位体組成比 58%）から高次化した Pu（同 37%～39%）や MA の受け入れが可能であり、Pu と MA を合わせた超ウラン元素（TRU）の変換量として 64 kg/GWe-y～134 kg/GWe-y を達成、ブランケットの増設により増殖比を 1.0 以上とすることも可能である。ただし、炉心部取出平均燃焼度を JSFR の約 80%に制限され、さらに高次化組成では一部 MA の積み残しが発生（後段のリサイクルで使用）するデメリットが生じ、追加の MA 核変換対策が必要となった。なお、JSFR から炉心配置を変えることを許容すれば、高次化組成でも燃料重金属中の MA 含有率 3.5wt%を確保でき、TRU 変換量として 202 kg/GWe-y～280 kg/GWe-y を達成可能であることを示した [4.1.1-6)]。

フェーズアウトモードについては、150 万 kWe 実用炉を多数基運転するリサイクル平衡状態から、75 万 kWe、30 万 kWe の燃焼炉を用いて、段階的な炉心サイズの小型化と基数減少により TRU インベントリを減少させる可能性を検討した [4.1.1-7)]。燃焼とともに進む Pu・MA の高次化に伴う反応度係数の悪化に対応するため、燃焼度の縮小あるいは SiC（炭化ケイ素）構

[2] 高次化、核変換が進み、^{240}Pu や ^{242}Pu など核分裂を起こしにくい核種の組成比が増えることをいう。

造材による中性子スペクトル調整を取り入れた。炉心コンパクト化と TRU 変換量最大化の観点から燃料ピン径について JSFR の 10.4 mm に替わって 8.0 mm を選択することにより、350 kg/GWe-y～370 kg/GWe-y の TRU 変換量を達成できることを示した。簡易リサイクル計算によるフェーズアウトの評価（Fig. 4.1.1-2）によると、75 万 kWe 燃焼炉では後半期に 60 GWd/t までの燃焼度縮小で高次化に対応し、TRU インベントリを 1/5 まで低減可能。その後を引き継いだ 30 万 kWe 燃焼炉心（SiC 構造材使用）により TRU インベントリをさらに低減できる。SiC には TRU 高次化の抑制効果（Pu 同位体組成比の安定化（^{239}Pu 同位体組成比 30%程度）、MA 蓄積の抑制（MA 含有率 6～7 wt%））があり、TRU 核種組成平衡状態を実現し、最後の 1 基分になるまで Pu と MA のバランスをとりながら TRU インベントリを減少可能であることを示した。

4.1.1.2 高次 Pu・MA 核データに着目した実験解析

(1) MA サンプル照射試験解析

MA の中性子捕獲反応断面積評価値の妥当性確認のための有効な手段の一つが、高純度核種サンプルの照射及び照射後試験における核種組成分析である。我が国では常陽を用いた MA サンプル（^{237}Np, ^{241}Am, ^{243}Am, ^{244}Cm）の照射試験解析の実績を有していたが、英国原型炉 PFR や仏国原型炉 Phénix において実施された同様のサンプル照射試験解析を公開情報に基づき実施し、3 つの炉の照射試験の解析結果を比較、相互の整合性を確認した。Fig. 4.1.1-3 に示すように、炉定数調整計算により MA 捕獲反応断面積の不確かさを 2%～4%（1σ）まで低減可能な見通しが得られた。独立に実施された 3 つの実験により、系統的な誤差や異常データを排除することができ、大幅な信頼性向上を図ることができた [4.1.1-8]。

(2) もんじゅ性能試験解析

もんじゅは長期の炉停止期間を経て 2010 年に臨界を達成したが、^{241}Pu の β 崩壊が進んだ結果として炉心燃料平均で重金属あたり約 1.5 wt%の ^{241}Am が蓄積しており、MA 核変換炉心の設計精度検証の観点から貴重な実験データを得ることができた。1994 年と 2010 年のそれぞれの炉心に対して、燃料組成が異なるにも係わらず、同程度の解析値と実験値の一致性が得られている [4.1.1-9]。常陽等のサンプル照射試験から示唆される核データ改善傾向との整合性も良好である。

(3) 高次 Pu 実験解析

高次 Pu についての実験解析は、従前は MASURCA の Pu ベクター置換反応度測定等の限られたものしか行われていなかったため、国内外の実験データベースを調査することでその拡充を図った。具体的には、常陽における MA サンプル照射試験の ^{241}Pu/^{240}Pu 原子数比、ZEBRA の ^{241}Pu/^{239}Pu 核分裂反応率比、ZPPR の ^{241}Pu/^{235}U 核分裂反応率比、^{240}Pu サンプル反応度、PFR のサンプル照射試験より ^{241}Pu/^{240}Pu、^{242}Pu/^{241}Pu、^{243}Am/^{242}Pu 各原子数比、BFS-1 の ^{240}Pu サンプル反応度等を取り上げ、実験解析を行った [4.1.1-10]。炉定数調整法により核設計精度の改善効果を評価した例を Fig. 4.1.1-4 に示す。これは高次化 Pu を燃料とした炉心の取出

燃料中の核種インベントリの不確かさである。MA については常陽サンプル照射試験解析結果の反映によって不確かさが低減されていた（2012 年時点）が、高次 Pu 実験解析の追加により、さらに顕著な不確かさ低減効果を得ることができた [4.1.1-11]。

(4) 統合炉定数 ADJ2017 の作成

以上の高次 Pu・MA の炉物理実験や照射試験の解析結果を反映した統合炉定数 ADJ2017 を作成した [4.1.1-12]。その後、核特性間の相関係数の設定に関する修正を実施し、2022 年 3 月に修正版の公開手続きを完了した [4.1.1-13]。高速炉体系での核変換研究や炉心設計への適用が期待される。

4.1.1.3 新たな方向性

(1) 高速炉の魅力追求

高速炉の実用化時期が従来よりも後年度にシフトし、時間的な余裕が生まれる一方、民間を中心とした原子力イノベーションの追求が始まっている。これらを踏まえ、核変換炉研究についても柔軟な発想でより魅力的な炉概念の創出に取り組むことが重要となりつつある。

その一環として、金属燃料炉心による MA 燃焼法の研究では、金属燃料の優れた中性子経済と SiC/SiC 複合材集合体の中性子減速により、発電炉ではこれまでにない MA 核変換量 461 kg/GWe-y を達成する炉心概念を構築することに成功した [4.1.1-14]。これは JSFR の 10 倍の MA 核変換量であり、ADS のそれに匹敵する特筆すべきものである。

ナトリウム冷却 MOX 燃料炉心の既存技術をベースとした早期導入の可能な Pu マネジメント用の炉心概念検討では、再処理における硝酸溶解条件の高度化による Pu 富化度上限の増加を前提として、最大 Pu 富化度を 40%に高めることで高次化 Pu の受け入れと燃焼性能の最大化を図り、Pu 変換量 400 kg/GWe y 以上を達成する炉心設計が成立する見通しを示した。

この他にも、Pu 増殖性能を最大化した炉心の検討や、固有安全性を高めた小型モジュール型の Pu 燃焼炉心の検討にも着手している。

(2) 国際協力による実験データの拡充

高次 Pu や MA に関する炉物理実験解析データの収集については、既存データで入手可能なものについて完了した。今後も常陽や国際協力を活用して更なる実験データの拡充を目指していきたい。もんじゅ出力運転における測定データを活用しようと計画していた炉心燃焼特性の妥当性確認についても、代替方法を工夫しなければならない。

このため、日米民生用原子力研究開発ワーキンググループ（CNWG）において、常陽と EBR-II の使用済燃料の照射後試験データを交換し、燃料の燃焼や放射能の特性評価を行う新たな協力を 2022 年 5 月より正式開始する。これらの取り組みにより、高速炉の炉物理実験解析データベースを更に充実させ、次世代高速炉の炉心核設計手法に反映させていきたい。

参考文献

4.1.1-1) 大木繁夫, 他, “核変換炉研究の動向 (1) 高速炉,” 日本原子力学会 2019 年春の年会予稿集, 2J_PL01 (2019).

4.1.1-2) T. Okubo, et al., “Conceptual Design for a Large-Scale Japan Sodium-Cooled Fast Reactor (3) Core Design in JSFR,” Proc. Int. Conf. ICAPP 2011, May 2-5, 2011, Nice, France (2011).

4.1.1-3) S. Ohki, et al., “Core Performance Requirements and Design Conditions for Next-Generation Sodium-Cooled Fast Reactor in Japan,” Proc. Int. Conf. ICAPP 2017, April 24-28, 2017, Fukui and Kyoto, Japan (2017).

4.1.1-4) T. Kan, et al., “Core Design of the Next-Generation Sodium-Cooled Fast Reactor in Japan,” Proc. Int. Conf. ICAPP 2017, April 24-28, 2017, Fukui and Kyoto, Japan (2017).

4.1.1-5) 大木繁夫, 他, “高次化 Pu・MA 管理のための高速炉炉心の検討 (1) 概要,” 日本原子力学会 2018 年春の年会予稿集, 3F05 (2018).

4.1.1-6) S. Ohki, “Core Design Study on Actinide-Burning Fast Reactors,” Proc. Int. Conf. Global 2015, September 20-24, 2015, Paris, France (2015).

4.1.1-7) 曽我彰, 他, “高次化 Pu・MA 管理のための高速炉炉心の検討 (2) 高次化 Pu・MA 燃焼炉心,” 日本原子力学会 2018 年春の年会予稿集, 3F06 (2018).

4.1.1-8) K. Sugino and T. Takeda, “Development of a Fast Reactor for Minor Actinides (MAs) Transmutation (III) -Evaluation of Measurement Data with MA Transmutation-,” Proc. Int. Conf. Global 2015, September 20-24, 2015, Paris, France (2015).

4.1.1-9) T. Hazama, et al., “Criticality Evaluation for the Monju Restart Core,” Nucl. Technol., 179, 250 (2012).

4.1.1-10) 沼田一幸, 他, “高次化 Pu・MA 管理のための高速炉炉心の検討 (3) 高次 Pu の炉物理実験解析,” 日本原子力学会 2018 年春の年会予稿集, 3F07 (2018).

4.1.1-11) 杉野和輝, 他, “高次化 Pu・MA 管理のための高速炉炉心の検討 (4) 高次化 Pu 燃料炉心の核設計精度評価,” 日本原子力学会 2018 年春の年会予稿集, 3F08 (2018).

4.1.1-12) 横山賢治, 他, “高速炉用統合炉定数 ADJ2017 の作成,” JAEA-Research 2018-011, (2019).

4.1.1-13) 横山賢治, 他, “高速炉用統合炉定数 ADJ2017R の作成,” JAEA-Data/Code 2021-019, (2022).

4.1.1-14) K. Ohgama, et al., “A Design Study on a Metal Fuel Fast Reactor Core for High Efficiency Minor Actinides Transmutation by Loading Silicon Carbide Composite Material,” J. Nucl. Sci. Technol., 59, (2022) pp. 735-747.

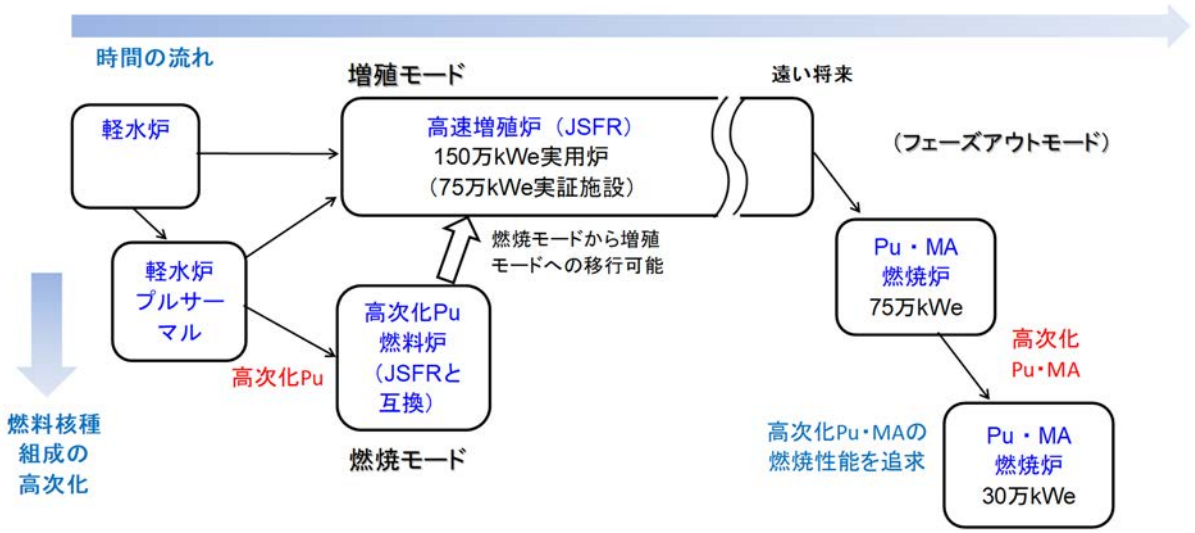


Fig.4.1.1-1　高速炉の増殖モードと燃焼モード

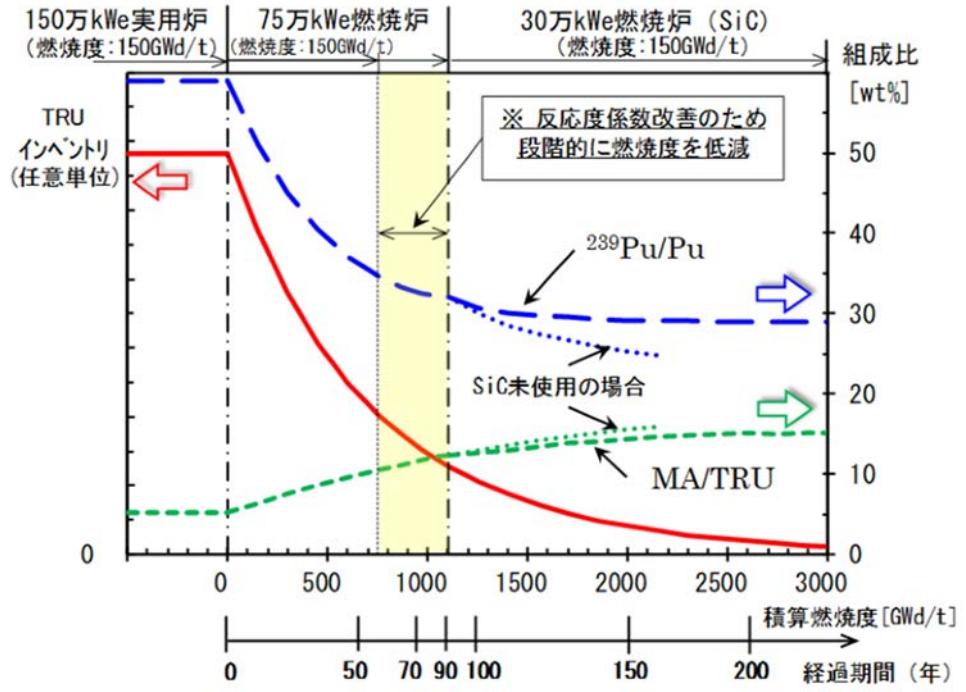


Fig.4.1.1-2　フェーズアウトの簡易評価例

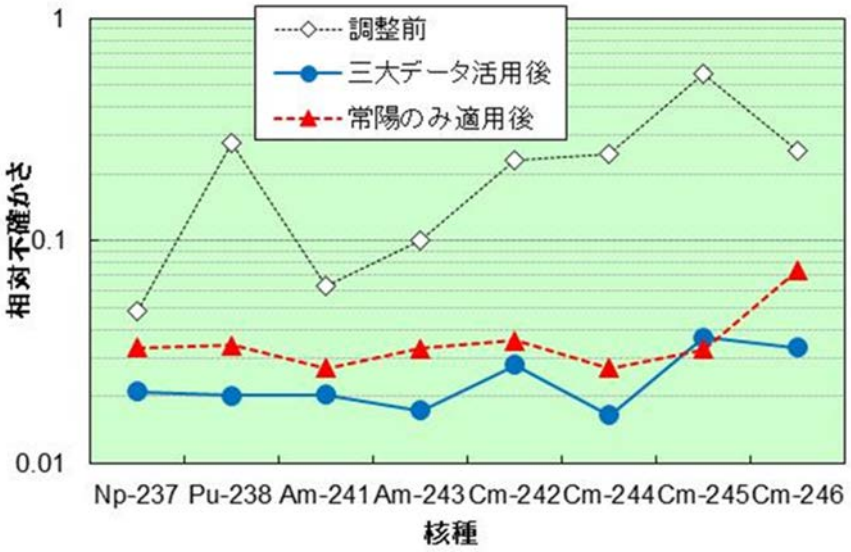


Fig.4.1.1-3　三大 MA サンプル照射試験（常陽、PFR、Phénix）による MA 捕獲反応断面積の不確かさの低減

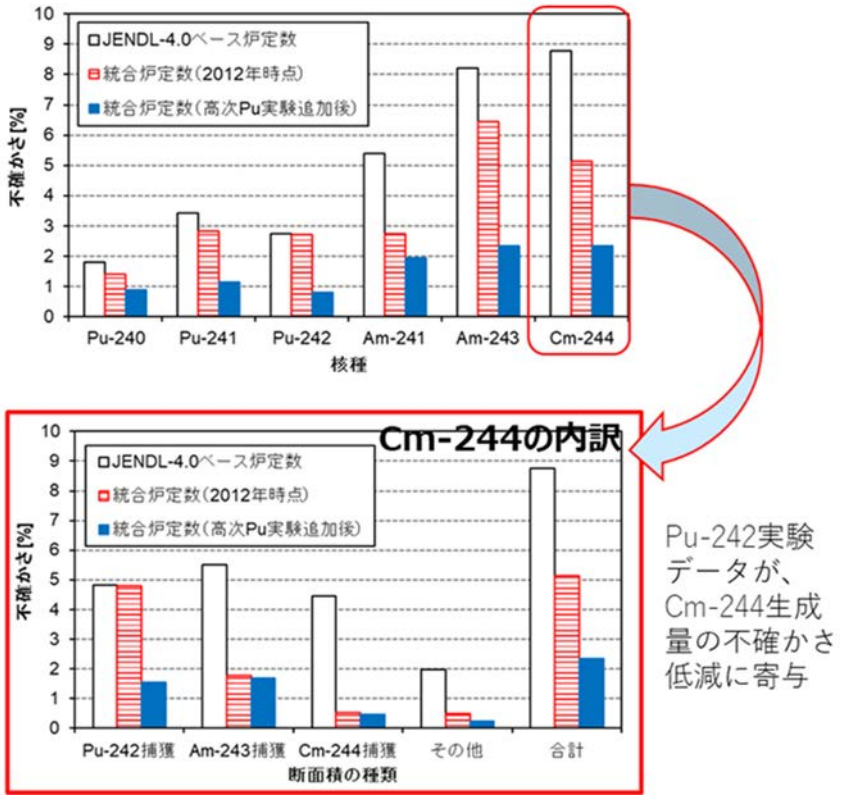


Fig.4.1.1-4　高次 Pu 実験解析による燃焼後核種組成の不確かさの低減

4.1.2　MA 含有 MOX 燃料の照射挙動

MA 含有 MOX 燃料の照射挙動を把握するために、MA を含有させた MOX 燃料を高速実験炉「常陽」で照射し、照射後試験として金相試験を実施した。また、照射後試験技術を高度化し、非破壊で燃料ペレットの組織変化を定量化する技術開発を行った。

「常陽」で照射された MA 含有 MOX 燃料集合体としては、これまで PFB110(B11)[4.1.2-1~3]及び PFB140(B14)[4.1.2-4]が照射後試験に供されている。その後、PFB140(B14)については、エッチングを用いて柱状晶等の領域測定を実施した。さらに、新たに導入した電界放射走査型電子顕微鏡/波長分散型 X 線分析装置（FE-SEM/WDX）を用いて、U、Pu 及び Am に関して定量分析を実施[4.1.2-5]し、径方向の元素分析を実施した[4.1.2-6]。

測定された Am 含有 MOX 燃料の U、Pu、Am の径方向分布を Fig.4.1.2-1 に、測定された Am 含有 MOX 燃料の中心空孔系分布を Fig.4.1.2-2 に示す。径方向の元素分析の定量化データの結果から、Am は Pu と同様に中心空孔付近で濃度が高くなる傾向があること、その分布に関係する中心空孔径は O/M 依存性があることが確認された。この結果については、定量的な解析・評価を実施した結果、再分布挙動の違いは O/M 比の差異による蒸気圧の変化に起因していることを確認した[4.1.2-7]。

また、これらの照射挙動をより詳細に把握するために、照射後試験技術の高度化を継続的に検討している。前述の FE-SEM/WDX を用いた定量的な元素分布データの取得を実施した。集合体全体の燃料ピンの内部状況を確認することができる X 線 CT において、径方向の CT 値の分布を測定し、クラックや中心空孔などの低密度部位を自動検出できる手法を開発し、燃料カラム全体の燃料組織の可視化処理技術を開発した[4.1.2-8]。Fig.4.1.2-3 に可視化した例を示す。これらの結果により、燃料集合体における燃料ピン全体の組織変化の状況を感覚的に把握することが可能となった。

照射挙動解析技術開発として、MA 含有 MOX 燃料の自己照射による熱伝導度への影響を次式のように定式化した[4.1.2-9~10]。

$$k_0 = \frac{1}{0.01595 + 2.713 \cdot x + 0.3583 \cdot C_{Am} + 0.06317 \cdot C_{Np} + A_{irr} + (2.493 - 2.625 \cdot x) \times 10^{-4} \cdot T} + \frac{1.541 \times 10^{11}}{T^{2.5}} exp\left(-\frac{15220}{T}\right) \quad (4.1.2\text{-}1)$$

$$A_{irr} = A_{irr0} \cdot \tau \cdot h(T) \quad (4.1.2\text{-}2)$$

$$\tau = \{1 - exp(-12{,}000 \times \lambda t_S)\} \quad (4.1.2\text{-}3)$$

$$\lambda = C_{Pu} \sum \lambda_i C_i + C_{Am241} \cdot \lambda_{Am241} \quad (4.1.2\text{-}4)$$

$$h(T) = \frac{1}{1 + \beta \cdot exp(-\gamma / T)} \quad (4.1.2\text{-}5)$$

ここで、k_0：熱伝導度(100%TD)、A_{irr}：自己照射の影響係数、T：温度(K)、C_{Pu}：Pu 含有率(-)、λ_i：Pu 同位体 i の崩壊定数(s^{-1})、C_i：Pu 同位体 i の組成比、C_{Am241}：Am 含有率(-)、λ_{Am241}：Am241 の崩壊定数(s^{-1})、t_S：製造時からの経過時間(s)、A_{irr0}, β, γ：定数である。

Am 含有率と自己照射による燃料中心温度の関係を Fig. 4.1.2-4 に示すが、MA 含有 MOX 燃料の自己照射による熱伝導度低下が、照射中における燃料中心温度に及ぼす影響は約 10℃の上昇で軽微であることを確認した。

また、燃料組成、O/M 比及び燃料温度による蒸気圧や酸素ポテンシャルの変化を燃料組織変化や再分布挙動等の解析で再現するため、燃料設計コードである CEPTAR において、燃料組成、O/M 比及び燃料温度による蒸気圧や酸素ポテンシャルの変化を考慮できるようコード改良した [4.1.2-11]。Fig. 4.1.2-5 に蒸気圧の O/M 比依存性を示し、CEPTAR を用いた MOX 燃料ピン内の燃料密度分布解析結果を Fig. 4.1.2-6 に示す。さらに、Fig. 4.1.2-7 に示すように、O/M 比やギャップ幅をパラメータとした Am 含有 MOX 燃料の Pu 及び Am 径方向再分布挙動を再現できることを確認した [4.1.2-12]。ここで Pu 再分布挙動の解析に適用する Pu 相互拡散係数には O/M 比の関数として、低 O/M 燃料における実測データ [4.1.2-13]に基づき、次式のように定式化した。Fig. 4.1.2-8 に Pu 相互拡散係数の O/M 比依存性を示す。

1.976＜O/M

$$D_{Pu} = \left\{-0.7854 \cdot (2.0 - OM) + 0.0236\right\} \cdot \exp(-Q/RT) \quad (4.1.2\text{-}6)$$

O/M≦1.976

$$D_{Pu} = \left\{-0.7854 \cdot (2.0 - 1.976) + 0.0236\right\} \cdot \exp(-Q/RT) \quad (4.1.2\text{-}7)$$

ここで、D_{Pu}：Pu 相互拡散係数(m^2/s)、OM：O/M 比(-)、Q：活性化エネルギー(kJ/mol)、R：気体定数(=8.314J/(mol·K))である。

多次元解析コード BISON に、酸素ポテンシャルの関係式を用いた蒸気圧の O/M 依存性とともに、燃料組織変化挙動解析のためのポア移動モデルを適用し、「常陽」で照射した Am 含有 MOX 燃料（B14）の組織変化について O/M 比依存性の評価を行った。Fig. 4.1.2-9 に断面金相位置での燃料温度分布及び Porosity 分布の 2 次元解析結果を示す [4.1.2-14]。

高次化 Pu を用いた高 Pu 含有 MOX 燃料の照射試験に向け、従来の適用範囲（Pu 含有率 20%～40%）を超える Pu 含有率に適用可能な燃料物性モデルの燃料設計への適用性について、Pu や MA 含有率といった燃料組成、O/M 比及び燃料密度の依存性を統一的に表現する機構論的物性モデルの燃料熱伝導度を燃料設計コードに適用し、Fig. 4.1.2-10 に示すように、「常陽」照射やハルデン照射で得られた Pu 含有率 5～30wt%の燃料温度計装値に対して、30wt%までの Pu 含有率の範囲において約 10%（1σ）の解析精度で燃料中心温度の解析が可能であることを確認した [4.1.2-15]。

参考文献

4.1.2-1) K. Maeda, S. Sasaki, M Kato, Y. Kihara, “Behavior of Si impurity in Np–Am–MOX fuel irradiated in the experimental fast reactor Joyo, J. Nucl. Mater., 385 (2009) pp.178-183.

4.1.2-2) K. Maeda, S. Sasaki, M Kato, Y. Kihara, “Radial redistribution of actinides in irradiated FR-MOX fuels”, J. Nucl. Mater., 389 (2009) pp.78-84.

4.1.2-3) K. Tanaka, S. Miwa, I, Sato, T. Hirosawa, H. Obayashi, S. Koyama, H. Yoshimochi, K. Tanaka, “Microstructure and elemental distribution of americium-containing uranium plutonium mixed oxide fuel under a short-term irradiation test in a fast reactor”, J. Nucl. Mater., 385 (2009) pp.407-412.

4.1.2-4) K. Maeda, K.Katsuyama, Y.Ikusawa, S. Maeda, “Short-term irradiation behavior of low-density americium-doped uranium–plutonium mixed oxide fuels irradiated in a fast reactor”, J. Nucl. Mater., 416 (2011) pp.158-165.

4.1.2-5) S.Sasaki, T. Tanno, K. Maeda, “Application of FE-SEM to the measurement of U, Pu, Am in the irradiated MA-MOX fuel”, Proc. HOTLAB 2017 54th annual meeting, I-07 (2017).

4.1.2-6) S.Sasaki, K. Maeda, “Irradiation behaviour of Am-bearing MOX fuel”, Proc.15th OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation (IEMPT-15) (2018).

4.1.2-7) Y. Ikusawa, K. Maeda, M. Kato, M. Uno, “Oxide-Metal Ratio Dependence of Central Void Formation of Mixed Oxide Fuel Irradiated in Fast Reactors”, Nucl. Technol., 199 pp.83-95 (2017).

4.1.2-8) 蔡典修、佐々木新治、勝山幸三、前田宏治、“「常陽」照射済燃料集合体の X 線 CT 画像解析　―燃料組織変化状況の可視化―”　日本原子力学会　2021 春の年会予稿集, 3K07 (2021).

4.1.2-9) Y. Ikusawa, S. Hirooka, M. Uno, “Oxygen Potential and Self-Irradiation Effects on Fuel Temperature in Am-MOX”, Proc. 2018 GIF Symposium, pp. 321-327 (2018).

4.1.2-10) Y. Ikusawa, K. Morimoto, M. Kato, K. Saito, M. Uno, “The Effects of Plutonium Content and Self-Irradiation on Thermal Conductivity of Mixed Oxide Fuel”, Nucl. Technol., 205, pp.474-485 (2019).

4.1.2-11) T. Ozawa, "Analysis of Fast Reactor Fuel Irradiation Behavior in the MA Recycle System", Proceedings of the 2017 25thInternational Conference on Nuclear Engineering, ICONE25, July 2-6, 2017, Shanghai, China.

4.1.2-12) 亀井美帆, 他, “高速炉 MOX 燃料の機構論的統合モデルを用いた燃料挙動の評価；Pu,Am 再分布の評価”, 日本原子力学会 2018 年秋の大会予稿集, 1D11 (2018).

4.1.2-13) T. Matsumoto, M. Kato, K. Morimoto, “Temperature Dependence on Inter-diffusion Coefficient of Actinide Elements in MOX Fuel”, Actinide2017, July 9-14, 2017 at Tohoku University, Japan.

4.1.2-14) T. Ozawa, S. Hirooka, M. Kato, S. Novascone, P. Medvedev, “Development of fuel performance analysis code, BISON for MOX, named Okami, Analyses of pore migration behavior to affect the MA-bearing MOX fuel restructuring”, J. Nucl. Mater., 553 (2021) 153038.

4.1.2-15) Y. Ikusawa, T. Ozawa, M. Kato, “Development of mechanistic fuel property model and irradiation behavior analysis code for oxide fuel”, Nuclear Materials Conference (2020).

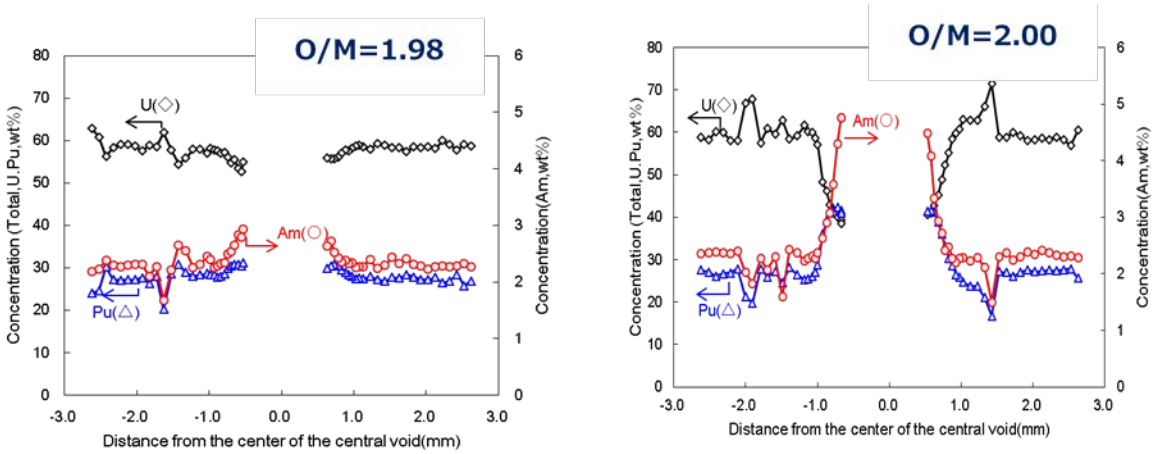


Fig.4.1.2-1　Am 含有 MOX 燃料の U, Pu, Am の径方向分布

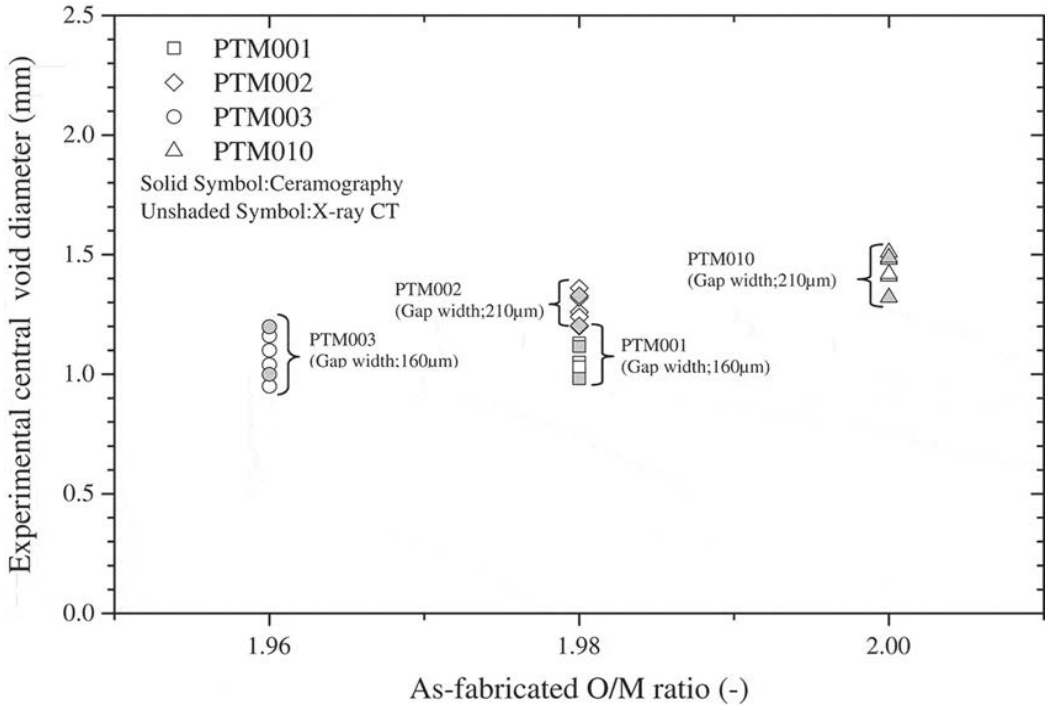


Fig.4.1.2-2　Am 含有 MOX 燃料の中心空孔径分布

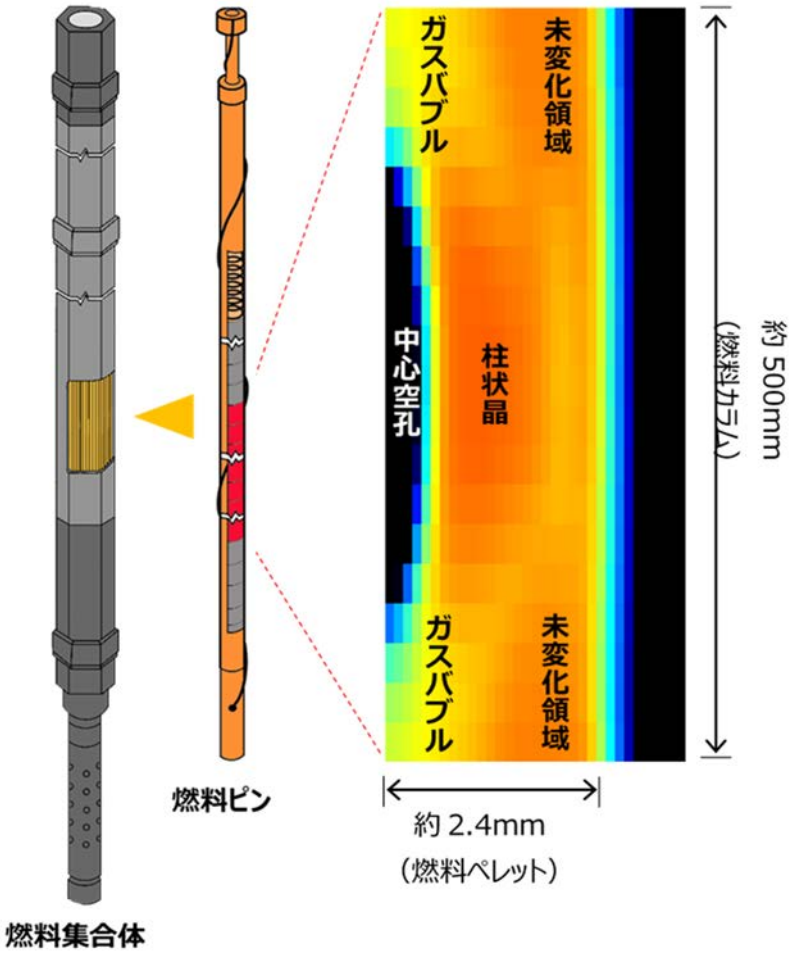


Fig.4.1.2-3　X 線 CT による燃料組織変化の可視化例

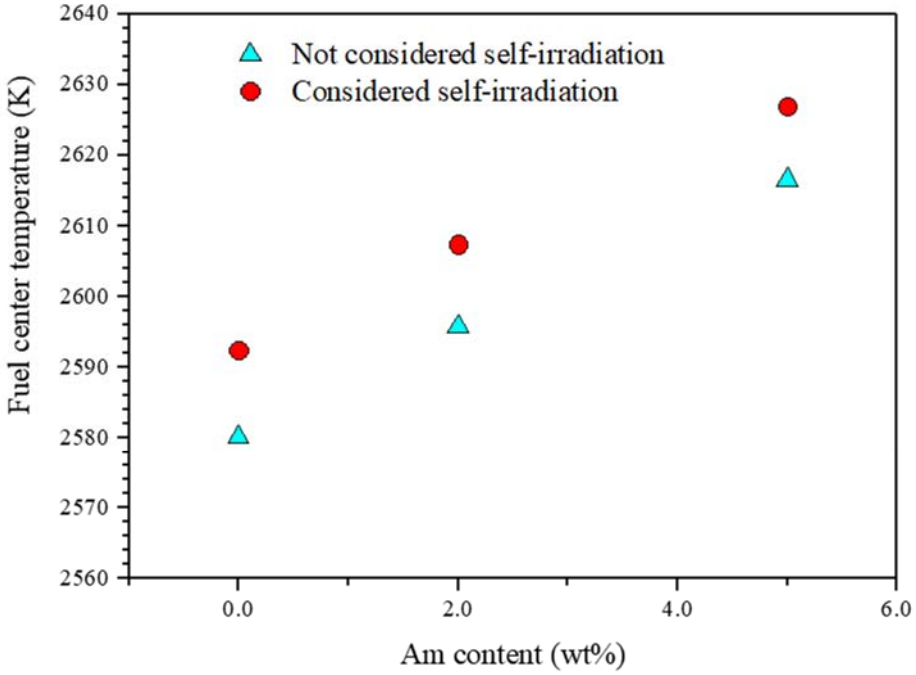


Fig. 4.1.2-4　自己照射による燃料中心温度への影響

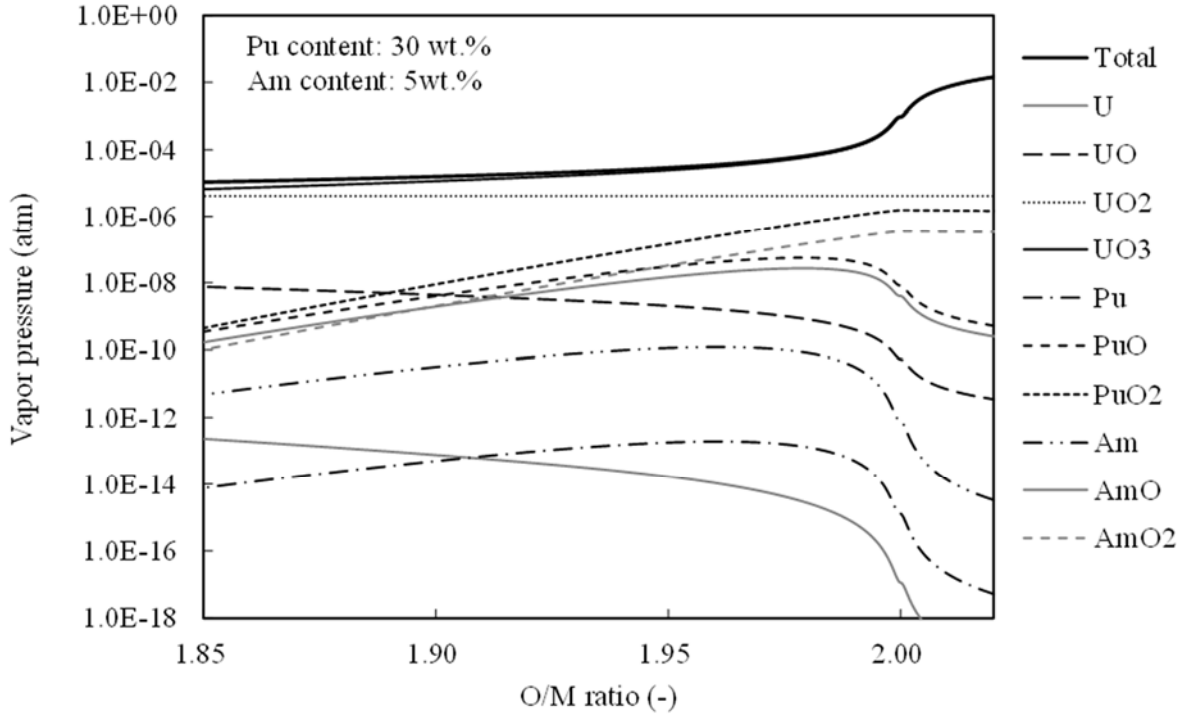


Fig. 4.1.2-5　蒸気圧の O/M 比依存性（2,273K）

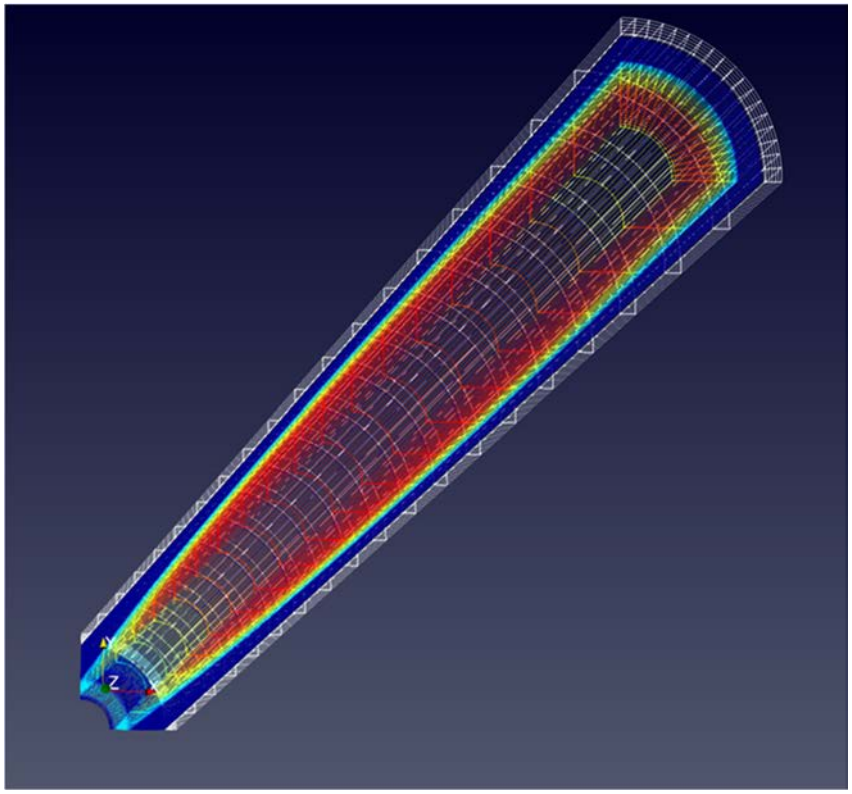


Fig. 4.1.2-6　MOX 燃料ピン内の燃料密度分布解析結果

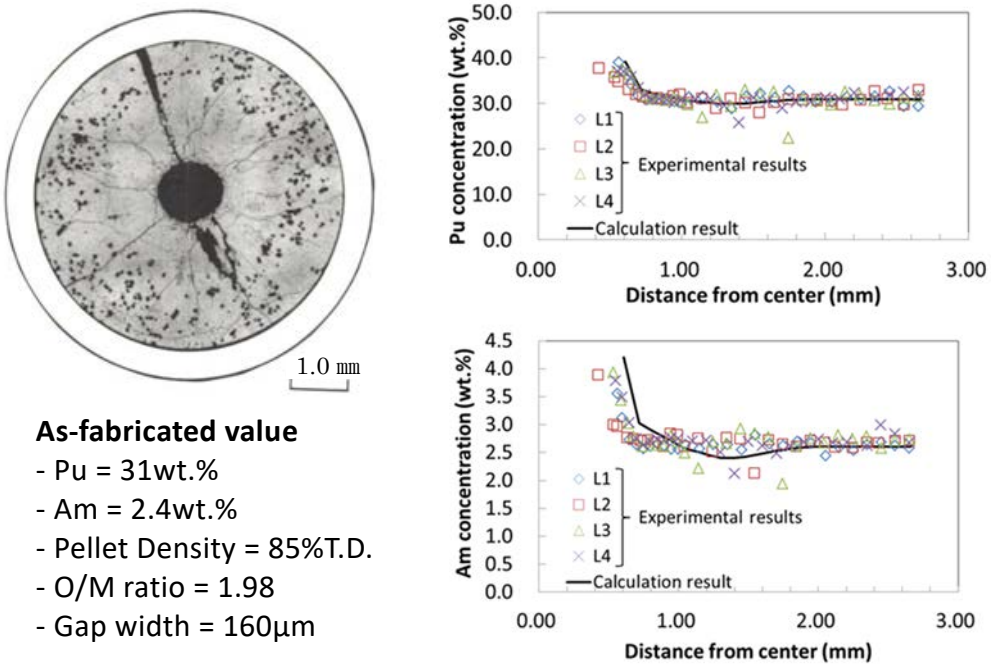


Fig. 4.1.2-7　Am 含有 MOX 燃料の Pu 及び Am 再分布解析結果

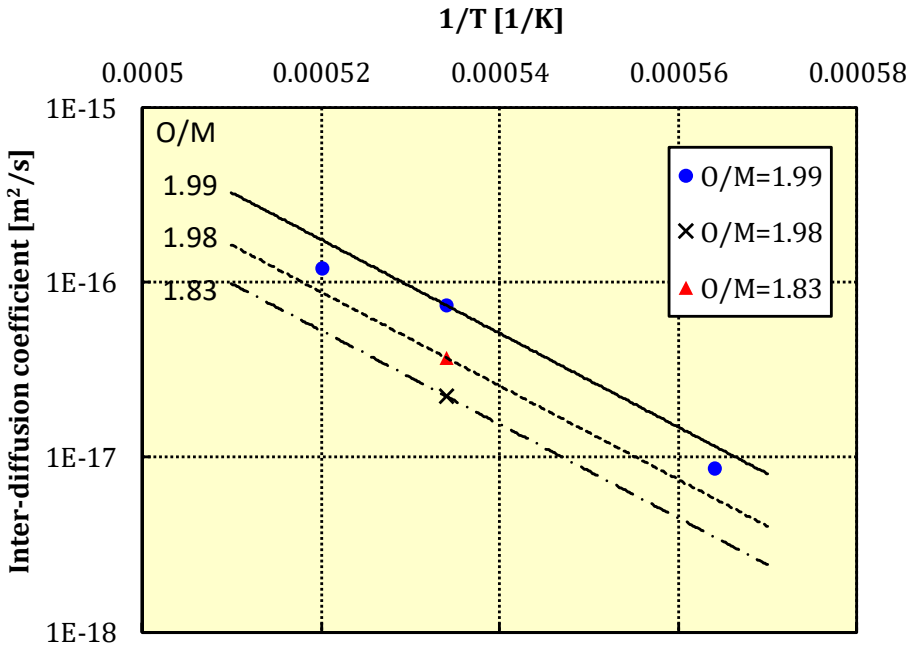


Fig. 4.1.2-8　Pu 相互拡散係数の O/M 比依存性

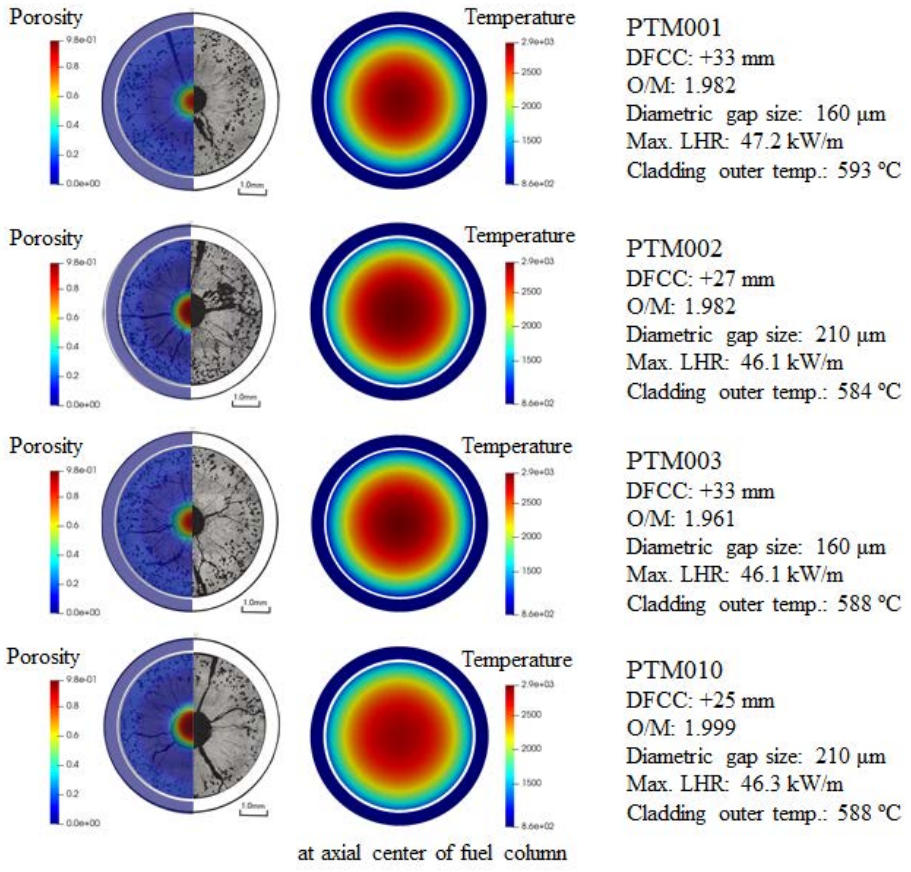


Fig. 4.1.2-9　「常陽」照射 Am 含有 MOX(B14)の組織変化解析結果

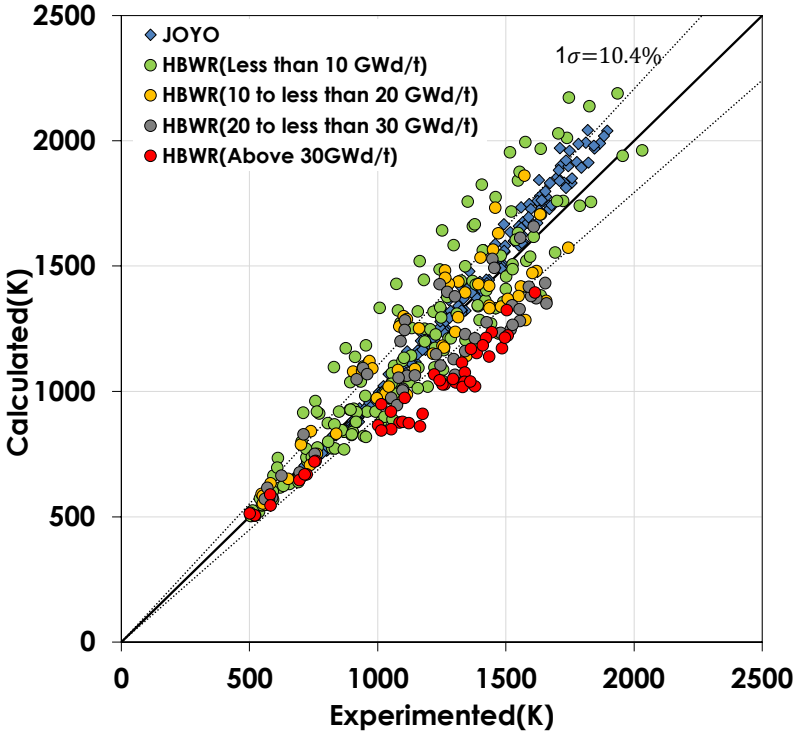


Fig. 4.1.2-10　機構論的物性モデルを適用した燃料中心温度解析結果

4.1.3 長寿命炉心材料開発

4.1.3.1 開発の経緯

高速炉燃料の長寿命化は、燃料サイクルコスト低減（燃料費の低減）に有効であり、主に高速炉サイクルシステムの経済性向上を主目的として開発を進めてきた。一方、燃料を長寿命化することで、燃料サイクル 1 回あたりの MA 核変換量が増加し、高速炉を用いた MA 核変換の効率が向上する。これを達成するためには、高温と中性子照射が重畳する炉内環境での耐照射性（耐スウェリング性、照射下での機械的特性）に優れた被覆管やラッパ管（Fig. 4.1.3-1）の開発が不可欠である。JAEA では、SUS316 オーステナイト鋼の規格範囲内で化学成分や熱処理条件を最適化することで耐照射性を向上させた SUS316 相当鋼（PNC316）[4.1.3-1)]を開発した。PNC316 は「常陽」や「もんじゅ」の被覆管及びラッパ管としての使用実績を有するが、耐スウェリング性の観点で長寿命化には限界がある。この PNC316 を超える耐照射性を有する長寿命炉心材料として、耐スウェリング性に優れる焼き戻しマルテンサイト相を主母相とする炉心材料の開発を進めている。ラッパ管材料としては、工業的な技術基盤が確立したフェライト系耐熱鋼をベースに耐照射性及び高温強度を高めるために材料仕様（化学組成、熱処理条件等）を改良した高強度フェライト/マルテンサイト鋼（PNC-FMS）[4.1.3-2)]を開発している。燃料被覆管としては、特に高温での強度が必要とされることから、母相に熱的安定性の高い酸化物（Y_2O_3）を緻密に分散することで飛躍的に高温強度を向上させた酸化物分散強化型（ODS, oxide dispersion strengthened）鋼を開発している。これらを高速炉燃料に適用することで MA 核変換率の向上、燃料サイクルコストの低減が可能となる。また、高温強度に優れた ODS 鋼被覆管の適用により、異常過渡時及び事故時の燃料破損抵抗性の向上（安全性の向上）が期待できる。

ODS 鋼を大別すると、焼き戻しマルテンサイト相を主母相とするマルテンサイト系 ODS 鋼とフェライト相を主母相とするフェライト系 ODS 鋼がある。ここで、焼き戻しマルテンサイト相とは、相変態点（Ac3）以上の温度に加熱すると BCC（体心立方構造）のフェライト相から FCC（面心立方構造）のオーステナイト相に相変態し、その後急冷することで形成するマルテンサイト相（BCT）に靭性を付与するための熱処理を加えた相のことである。一方、フェライト相とは、高温で熱処理しても上述のような相変態を経ない相のことである。JAEA ではマルテンサイト系の 9Cr-ODS 鋼とフェライト系の 12Cr-ODS 鋼の開発を進めてきたが、1999 年から 2005 年に実施した実用化戦略調査研究（FS, Feasibility Study）[4.1.3-3)]において、9Cr, 12Cr-ODS 鋼被覆管の強度、耐照射性、耐食性、製造性等を総合的に評価した結果、被覆管材料としては耐照射性と製造性が優れる 9Cr-ODS 鋼が有望と判断した。FS に引き続き FaCT（Fast reactor cycle technology development）プロジェクトフェーズ I [4.1.3-4)]において、実証炉の高燃焼度炉心用の革新技術として 9Cr-ODS 鋼被覆管の実用化見通しを得るための研究開発を進めた。FaCT フェーズ I は 2010 年度に終了したが、9Cr-ODS 鋼被覆管の評価は 2015 年度まで継続し、将来の実用炉用の革新技術として採用可能と判断した。この際、耐照射性に加えて、燃料-被覆管化学的相互作用（FCCI, Fuel Cladding Chemical Interaction）[4.1.3-5)]、再処理時の硝酸溶解特性及び Na 腐食 [4.1.3-6~8)]についても検討し、高燃焼度被覆管としての適用見通しを得た。

一方、被覆管開発には長期を要することから、不確実性に対応可能な柔軟性のある材料開発を進めることが重要である。引き続き 9Cr-ODS 鋼の開発を主として進めるが、9Cr-ODS 鋼の Cr 含有量は 9wt%であり、被覆管として実績のある PNC316 の Cr 含有量（16～18wt%Cr）よりも低いことに着目し、9Cr-ODS 鋼よりも耐食性が期待できる ODS 鋼に係る研究開発を強化することとした。具体的には、従来から進めてきた 12Cr-ODS 鋼被覆管に関わる研究開発に加えて、11Cr-ODS 鋼被覆管に関わる研究開発を開始することとした [4.1.3-9～11]。「4.1.3.2(3) 11Cr-ODS 鋼の開発」で後述するように、11Cr-ODS 鋼の Cr 濃度は 11wt%とステンレスの範疇に分類される材料であるが、フェライト組織を母相とする 12Cr-ODS 鋼とは異なり 9Cr-ODS 鋼と同等の組織（主母相：焼き戻しマルテンサイト）を有する。このため、9Cr-ODS 鋼用に開発を進めている製造技術をそのまま適用可能であり、強度データ取得等に係る最低限の研究開発資源の投入のみで研究を継続できる利点がある。さらに、より Cr 濃度の高い 14Cr-ODS 鋼（主母相は、焼き戻しマルテンサイト相ではなく 12Cr-ODS 鋼と同じフェライト相）の開発が仏国及び米国で進められていることに着目し、日仏 SFR 協力（The SFR development collaboration between the French commissariat a l'energie atomique et aux energies alternatives, Framatome, Japan Atomic Energy Agency, Mitsubishi Heavy Industries, LTD., and Mitsubishi FBR Systems, INC.）、日米 CNWG（日米民生用原子力研究開発ワーキンググループ）の枠組みを活用して、14Cr-ODS 鋼被覆管の強度特性、熱時効特性、照射特性等に関する技術情報を拡充することとした。

ラッパ管は、燃料集合体のエントランスノズルおよびハンドリングヘッドとの接合が必要となるが、ハンドリングヘッドは地震時の集合体間の衝突を受け止めるために靭性に優れた SUS316 製とすることが想定されている。エントランスノズルもオーステナイト鋼製の炉心支持板との熱膨張差による冷却材リークを防ぐため、SUS316 製とすることが想定されている [4.1.3-12, 13]。このため、PNC-FMS と SUS316 を電子ビーム（EB）溶接法で接合する技術を開発した [4.1.3-12]。ここで、高温長時間使用後の靭性低下の要因となるδフェライト相が溶接部に形成しない EB 溶接条件を見出した。PNC-FMS ラッパ管の製造技術開発は一定のレベルに達しており、母材部及び異材溶接部の高温熱時効及び照射環境下での健全性評価が重要課題として残っている。異材溶接部については、設計上、照射量の低い上部及び下部側に配置され、高温で使用されるものの照射量は 1dpa 未満となることが想定されるため、高温長時間熱時効効果の評価が特に重要である。

第 3 期中長期計画（2015.4～2022.3）では、分離変換システムの性能向上に有効な基盤技術開発として、9Cr-ODS 鋼被覆管の製造技術開発（製造コスト低減に向けた量産技術開発を含む）、9Cr, 11Cr-ODS 鋼被覆管の強度基準整備に向けた研究開発を継続した。PNC-FMS ラッパ管については、既に製造技術開発は完了しており、炉内性能実証と材料強度基準整備に向けたデータ拡充を進めた。また、炉心材料開発のためには、照射材等の強度試験技術の高度化が必要であり、国際協力（日仏 SFR 協力、日米 CNWG 協力）を活用して、ミニチュア強度試験技術に関する研究を進めた。以下に第 3 期中長期計画期間を中心とした長寿命炉心材料に関わる研究開発の進捗を示す。なお、国際協力で取得した 14Cr-ODS 鋼に係る研究成果については、ここでは記載しない。

4.1.3.2 ODS 鋼被覆管の開発

(1) 製造技術開発（品質安定化技術）

9Cr-ODS 鋼の製造には、工業的基盤の豊富な溶解法ではなく、粉末冶金法を用いるため、目標性能の被覆管を安定的に製造するための製造技術の高度化が不可欠である。非原子力・高温用途の Fe 基及び Ni 基の ODS 合金自体は、工業的な製造の実績があり、既に国内外のメーカーにより生産・販売されているものの、炉心材料として使用するためには、高い品質要求に対応可能な製造技術の開発が必要となる。JAEA では、国内メーカーとの協力のもと 1980 年代後半から ODS 鋼被覆管の製造技術開発を進め、既にラボレベルの基本製造技術の開発を完了している [4.1.3-14]。一方、炉心材料に要求される品質安定性には達していなかったため、被覆管の均質性を改善するための製造技術の改良（品質安定化技術開発）を進めた。この研究開発は、2015 年度末まで進めた実証炉用の革新技術採否判断の一環として実施した。第 3 期中長期計画期間の初年度である 2015 年度は、2010 年度から開始した本技術開発のまとめを実施した。

Fig. 4.1.3-2 に ODS 鋼被覆管の製造プロセスの模式図を示す。優れた強度特性を有する ODS 鋼を製造するためには、Y_2O_3 を母相にナノスケールで緻密に分散させる必要がある。この組織制御のためには固溶と再析出のプロセスが必要であることから、熱力学的に Fe 基母相に固溶し得ない Y_2O_3 を強制的に Fe 基母相に強制固溶させるため、メカニカルアロイング法 [4.1.3-15] を用いた粉末冶金プロセスを用いる。一方、2002 年度に試作した 9Cr-ODS 鋼被覆管（Mm14）の受け入れまま材及び BOR-60 等での照射試験材の組織観察結果等から、この粉末冶金技術の最適化が十分でない場合、被覆管の超音波探傷検査で検知できない金属系の介在物が被覆管中に生じて、被覆管の品質安定性に重大な問題が生じることが明らかとなった [4.1.3-16, 17]。Fe 及び Cr を主体とする金属介在物は、ODS 鋼母相と音響インピーダンスが同等であり、超音波探傷検査により検知することができない [4.1.3-16, 18]。Mm14 は、製造コスト低減のために原料粉末として単体元素粉末（Fe, Cr, C, W, Ti）と酸化物粉末（Y_2O_3）を用いたプレミックス法を適用して製造したが、製造途中での粉末の取り扱いやメカニカルアロイング装置の構造最適化が不十分であったため、Cr 等の金属介在物が発生した。JAEA では、このプレミックス法以外にも予め溶解法により合金化したプレアロイ粉末と Y_2O_3 粉末を主原料とするが、化学組成の微調整のため、単体元素を微量添加する部分プレアロイによる製造も実施していた。いずれの製造手法でも、製造プロセス内で単体金属元素粉末を取り扱うことから、金属系介在物を完全に抑制することは難しいと判断し、以下(ⅰ)～(ⅴ)のとおり、製造プロセスと製造要領の改訂を行った（Fig. 4.1.3-2 参照）。

（ⅰ）原料粉末としてプレアロイ粉末と酸化物（Y_2O_3）粉末のみ使用し、単体元素粉末を製造プロセス内から排除する。

（ⅱ）製品への異物混入防止のための対策をプロセス全体に渡って実施する。原料粉末とメカニカルアロイング後粉末の取り扱い別室化、工具・作業員衣服等の清掃を含む現場レベルの作業要領の整備等。

（ⅲ）メカニカルアロイング不良粉末排除のための対策を実施する（アトライター内部の形状、

内部部品の交換目安等)。

(ⅳ) 被覆管の品質安定性を抜き取りで検査する際の評価結果の代表性を確保するため、複数バッチのメカニカルアロイング粉末を均一化するための工程を追加する。

(ⅴ) 非金属介在物を低減するための対策を実施(カプセル封入・真空脱気プロセス)。

この中で(ⅰ)と(ⅳ)が新たに追加した項目で、その他については従来の試作試験を実施する中で継続的に改良を重ねてきたものである。以上の対策を施した製造手法を「完全プレアロイ」法と称する。この手法では、製造プロセス内で Cr 等の単体原料粉末を用いないため、金属系介在物は原理的に生じ得ない。但し、試作材の組織調査を詳細に実施した結果、プレミックス材(Mm14)で確認された Cr 等の金属系介在物は確認されなかったものの、Y_2O_3 が分散していない微小領域(Y_2O_3 非分散部)がゼロに近いレベルではあるが一部確認された。この Y_2O_3 非分散部は、エッチング後の光学顕微鏡観察において、焼き戻しマルテンサイト相中に白色の微細な相として確認され、EPMA(Electron Probe Micro Analyzer)による Y のマッピング像で Y が存在しない相として明瞭に識別することができる。試作した被覆管中の微細な Y_2O_3 非分散部の割合を光学顕微鏡観察で評価した結果を Table 4.1.3-1 に示す。ここで、MP23, MP24, 15P は Table 4.1.3-2 に示す化学組成を有する 9Cr, 11Cr-ODS 鋼であり、いずれも完全プレアロイ法で製造された ODS 鋼である。また、メカニカルアロイング粉末に 0.05 vol%, 0.5 vol%及び 5 vol%のプレアロイ粉末を添加して固化した 9Cr-ODS 鋼の欠陥模擬材の評価結果も比較のため示している。任意の断面にある第 2 相の面積率の期待値は、第 2 相の体積分率と等しくなるが [4.1.3-19]、Table 4.1.3-1 より実際に欠陥模擬材の面積率と体積率はほぼ一致しており、光学顕微鏡による Y_2O_3 非分散部の評価は適切に行われていると判断できる。完全プレアロイ 9Cr, 11Cr-ODS 鋼の評価結果を見ると、Y_2O_3 非分散部が存在するが、その割合は極めて低い(< 0.003 vol%)。Fig. 4.1.3-3 に欠陥模擬材(MP23)の強度試験結果を示す。ここで、欠陥模擬材は、被覆管の加工プロセスを模擬した板圧延により薄板状とし、横断面(T)方向から採取した試験片を用いた。ここで、各圧延の圧延率は約 45%とし、以下のプロセスで実施した。

1 回目圧延 → 1 回目焼鈍 → 2 回目圧延 → 2 回目焼鈍 → 3 回目圧延 → 最終熱処理

焼鈍熱処理及び最終熱処理の条件は、それぞれ 1050 ℃×1h、炉冷(500 ℃までの冷却速度約 70 ℃/h)と焼きならし・焼き戻し(1050 ℃×1h、800 ℃×1h)とした。Fig. 4.1.3-3 より、Y_2O_3 非分散部の割合が 0.05 vol%以下であれば、機械的特性に及ぼす有意な影響は認められない。材料中のミクロな弱化部が機械的特性に影響を及ぼすためには、弱化部を起点とする破壊が互いに連結して、マクロな破壊に至る必要があることから、この結果は Y_2O_3 非分散部を 0.05 vol%以下とすることで、Y_2O_3 非分散部を起点とする破壊の連結(マクロな破壊への発展)を防げることを示唆している。

完全プレアロイ法及びプレミックス法で製造した ODS 鋼被覆管の組織を走査型電子顕微鏡(SEM, scanning electron microscope)で観察し、エネルギー分散型 X 線分析(EDX, energy dispersive X-ray spectroscopy)で分析した結果の代表例を Fig. 4.1.3-4 と Table 4.1.3-3 に示

す。なお、9Cr-ODS 鋼被覆管プレミックス材（Mm14）については、視野毎の組織のバラツキが大きく、Fig. 4.1.3-4 では特に不均一の大きな部分を示している。各被覆管について、縦サイズ約 45μm、横サイズ約 65μm の SEM 像 10 視野の画像解析を行い、非金属介在物のサイズ分布を定量化した結果を Fig. 4.1.3-5 に示す。これより、完全プレアロイ法の採用により、金属 Cr 介在物や Y_2O_3 非分散部だけでなく、非金属介在物を低減し、材料の清浄度を向上できることがわかる [4.1.3-11]。

また、内圧クリープ試験を実施した結果、完全プレアロイ法で製造した 9Cr-ODS 鋼被覆管は従来の部分プレアロイ法及びプレミックス法で製造した 9Cr-ODS 鋼に比べて優れたクリープ破断強度を有することがわかった。試験結果の詳細は、後述する（「(4)材料強度基準用のデータ拡充」）。この優れたクリープ強度は、完全プレアロイ法により、破壊の起点となる金属介在物、Y_2O_3 非分散部及び非金属介在物が低減したためである。

(2) 量産技術開発

ODS 鋼被覆管の実用化のためには、品質安定性に優れ、低コストの製造技術を整備することが不可欠である。これまでの研究開発により、ラボレベルでは高強度の 9Cr, 11Cr-ODS 鋼被覆管を安定的に製造可能な技術を確立しているが、商業規模での生産量を実現し、製造コストを低減する必要がある。Table 4.1.3-4 に 9Cr-ODS 鋼の量産技術開発に関わる課題を示す。技術課題は大きく分けて、(ⅰ)メカニカルアロイングプロセスの大型化、(ⅱ)大型素管製造プロセス及び (ⅲ)長尺被覆管製造プロセスの 3 つに分類することができるが、品質安定性の観点から特に重要なプロセスは、固化体の均質性への影響が大きなメカニカルアロイングプロセスである。このプロセスに関する技術開発のため、第 3 期中長期計画期間である 2016 年度より、外部資金（METI 高速炉の国際協力等に関する技術開発委託事業等）を活用し、大型アトライターの整備を開始した。現状のラボプロセスでは、1 バッチあたり 10kg の原料粉末を処理する 10D 型アトライターを適用しているが、新たに 1 バッチあたり 30kg の原料粉末を処理可能な 30D 型アトライターを製作した。この大型アトライターの設計・製作では、既存 10 型アトライターの運転・改造経験に基づく品質安定化に必要な技術知見を反映した。本アトライターは、ODS 鋼の強度に大きな影響を及ぼす酸素および窒素濃度を安定的に制御するため、メカニカルアロイング中の容器内雰囲気を高精度で制御しつつ、高エネルギーで粉末を撹拌・粉砕することにより、均質なメカニカルアロイング粉末を製造する設計となっている（Fig. 4.1.3-6）[4.1.3-20]。

製作した大型アトライターの据え付け・調整運転を実施した後、メカニカルアロイング条件の最適化を目的として、2017 年度から 9Cr-ODS 鋼の試作試験を開始した。大型アトライターで前述の完全プレアロイ法によりメカニカルアロイング粉末を製造し、熱間押出により棒材（外径約 20 mm、長さ約 600 mm）を製造した。このようにして製造した 1 次試作材について、高温強度に大きな影響を及ぼす酸素及び窒素濃度 [4.1.3-21, 22]を評価したところ、従来の小型プロセス材（10 kg/バッチ）と同レベルに制御できていることが確認できた。また、1 次試作材について、透過型電子顕微鏡（TEM, transmission electron microscope）によるナノスケールの酸化物粒子の分散状態の観察、高温引張強度（700 ℃）及び高温クリープ破断強度（700 ℃）の評価を行い、従来の小型プロセス材と同等の組織と高温強度を有することを確認した。一方、光

学顕微鏡でマクロなスケールで組織観察を行うと、Y_2O_3 非分散部が概算で 1 vol%未満であるが存在することが確認された。前述のとおり、製造プロセスを最適化した小型プロセス材の Y_2O_3 非分散部の体積率は 0.003 vol%未満であり、これと同レベルの品質安定性を確保するため、アトライター構造を改良するためのシミュレーションと試作試験によるメカニカルアロイング条件の最適化を継続中である。

大型アトライター整備に係る技術開発後には、大型素管製造のための技術開発を開始する予定である。このための基礎データを取得するため、メカニカルアロイング粉末を固化して大型素管を製造する熱間固化プロセス（熱間静水圧加圧法、熱間押出法）で ODS 鋼のナノスケール組織を制御するための研究を進めている [4.1.3-23]。

(3) 11Cr-ODS 鋼の開発

9Cr-ODS 鋼よりも耐食性に優れる高燃焼度燃料用 ODS 鋼被覆管として、9Cr-ODS 鋼と同等のフェライト/マルテンサイト複相組織を維持しつつ、Cr 濃度を約 11wt%まで高めた 11Cr-ODS 鋼被覆管の開発を 2011 年度から本格的に開始した。第 3 期中長期計画期間の初年度である 2015 年度は、9Cr-ODS 鋼被覆管との各種基本特性の比較（高温強度、耐食性等）のもと、11Cr-ODS 鋼の高燃焼被覆管への適用性について総合評価を実施した [4.1.3-9, 10, 24~28]。以下に総合評価結果の概要を示す。

11Cr-ODS 鋼の基本組成は、熱力学計算及び試作試験による微細組織の確認 [4.1.3-9, 10, 24]に基づき、9Cr-ODS 鋼と同等に微細組織を制御するため、Fe-0.13wt%C-11Cr-0.4Ni-1.4W-0.2Ti-0.35Y_2O_3 と暫定的に定めた。具体的には、Cr 濃度を 11wt%以上とすることで、ステンレス鋼の範疇となり耐食性の向上が見込まれるが [4.1.3-29]、Cr はフェライト生成元素であるため Cr 濃度を過度に増やすと、焼き戻しマルテンサイト相中のフェライト相が過度に生成し、9Cr-ODS 鋼と同等のフェライト/マルテンサイト複相組織とすることができない。9Cr, 11Cr-ODS 鋼中におけるフェライト相は強化相であり [4.1.3-9, 10, 21, 22]、高温強度の向上に有効であるが、過度に生成すると高温・照射環境での使用後の靭性低下が生じるリスクがある。また、被覆管加工時に強度異方性が顕著となり周方向強度が低下するリスクがある。この問題を解決するため、以下の方針に基づき、熱力学計算及び試作試験を行い、化学組成の最適化を行った。

- Cr 濃度の増量により過度なフェライト生成を抑制するため、フェライト生成元素である W を低下させた。ここで、W は固溶強化元素でもあり、W 添加量を下げすぎると、高温強度が低下するので、9Cr-ODS 鋼の高温強度の W 添加量依存性に関するデータ [4.1.3-30]に基づき、W の添加量は 9Cr-ODS 鋼では 2wt%であるのに対して 11Cr-ODS 鋼では 1.4wt%とした。
- 更に、オーステナイト生成元素である Ni を添加することで Cr 増量に伴うフェライト割合の増加を抑制し、フェライト/マルテンサイト複相組織を 9Cr-ODS 鋼と同等とした。
- 燃料被覆管温度は、異常過渡時に 830 ℃まで上昇することを想定する設計が考えられ、この観点から、被覆管の相変態点（Ac1）は、850 ℃以上とすることが材料設計要件として考えられる。Ni 添加は相変態点の低下をもたらすため、Ac1 点が 850 ℃以上となること

を満足可能な範囲で Ni を添加した。
・ナノスケール組織の組織も 9Cr-ODS 鋼と同等するため、11Cr-ODS 鋼の Ti と Y_2O_3 の添加量は 9Cr-ODS 鋼と同量とした。

実際に、Table 4.1.3-2 に示す化学組成の 11Cr-ODS 鋼を試作し、組織（フェライト/マルテンサイト複相組織、ナノスケール酸化物分散組織）は 9Cr-ODS 鋼と同等となっていることを確認した [4.1.3-10]。また、クリープ強度及び引張強度は、700 ℃では 9Cr-ODS 鋼よりも低めであった。11Cr-ODS 鋼の強度が低めとなった要因として、固溶強化元素である W 濃度を低減したことが考えられる。強度評価結果の詳細は後述する（「(4)材料強度基準用のデータ拡充」）。一方、耐食性については、Cr 濃度の増加による向上を確認している [4.1.3-25, 26]。具体的には、11Cr-ODS 鋼の耐酸化性は SUS316 と同等レベル以上であり、優れた FCCI 特性が期待できる見通しを得た。また、使用済燃料の再処理時に問題となる耐硝酸溶解特性についても 9Cr-ODS 鋼に比べて大きく向上することを確認した [4.1.3-25]。以上より、9Cr-ODS 鋼をベースに耐食性の向上を図った 11Cr-ODS 鋼被覆管は、9Cr-ODS 鋼よりも強度は低めであるが、高速炉の高燃焼度被覆管としての適用可能性があると判断し、強度基準整備のための長時間クリープ強度データを拡充中である。

(4) 材料強度基準用のデータ拡充

9Cr, 11Cr-ODS 鋼被覆管の実用化のためには、量産技術の開発に加えて、炉内外での材料特性データを取得し、燃料設計に用いるための信頼性の高い材料強度基準の整備を行う必要がある。高速炉の被覆管は高温で長時間にわたり、核分裂生成物（FP）ガスによる内圧上昇に晒される。このため、優れた高温長時間クリープ破断強度が要求される。燃料寿命は被覆管のクリープ強度に依存することから [4.1.3-31, 32]、材料強度基準の整備においても信頼性の高いクリープ強度式の導出は重要である。

第 3 期中長期計画開始時点で、9Cr-ODS 鋼被覆管については既に「常陽」での材料照射試験（最大照射量約 30dpa）や炉外での長時間クリープ試験等を実施し、被覆管としての性能について一定の見通しを取得していた [4.1.3-14, 33～36]。また、材料強度基準の暫定案を整備済みであった [4.1.3-37]。第 3 期中長期計画期間では、「常陽」の運転再開後に効率的に高照射量までの照射データを取得するための試験技術開発や炉外での高温・長時間クリープデータの拡充を進めた。9Cr, 11Cr-ODS 鋼被覆管について長時間クリープ試験データを拡充した結果を Fig. 4.1.3-7 に示す [4.1.3-38]。ここで、比較のため、PNC316 と PNC-FMS のクリープ強度（平均曲線）も示す。PNC316 等のオーステナイト鋼や PNC-FMS 等のフェライト系耐熱鋼では、高温・長時間側で熱的影響による組織の劣化が進行する結果、クリープ強度の大幅な低下（腰折れ）が生じるが、JAEA で開発した 9Cr, 11Cr, 12Cr-ODS 鋼被覆管は、いずれも高温・長時間側まで腰折れなく優れた強度が維持されることがわかった。Fig. 4.1.3-7 に示すデータの他、650 ℃で最長 10.7 万時間、700 ℃で最長 9.8 万時間のクリープ試験が未破断で進行中であるが、いずれの試験片でも腰折れは確認されていない。また、事故時の被覆管健全性に関わるデータとして、9Cr-ODS 鋼の 1000 ℃近傍でのクリープ強度データも取得し、耐熱性に優れた高温用オーステナイト鋼

AH5[4.1.3-39]に比べて格段にクリープ強度が優れることを明らかにした。9Cr-ODS 鋼の高温強度が優れるメカニズムを明らかにするため、長時間クリープ試験後の組織安定性を TEM で観察した結果、700 ℃で 46,503 h もの長時間クリープ試験した後でもナノスケールの酸化物粒子は安定に分散していることを明らかにした。これより、ODS 鋼の長時間側での優れた強度特性は、ナノ組織の安定性によるものであることがわかった（Fig. 4.1.3-8）[4.1.3-40]。Fig. 4.1.3-9 に 9Cr, 12Cr-ODS 鋼の高温引張強度を示す[4.1.3-41]。通常運転時の被覆管最高温度は、FaCT プロジェクト等での設計研究では 700 ℃（ホットスポット温度）であるが、異常過渡時及び事故時における燃料健全性に係る基礎データ取得の観点から、最高 1350 ℃までの引張特性データを取得した。これにより、異常過渡時及び事故時高温環境において、ODS 鋼は優れた強度を有することを明らかにした。

ODS 鋼被覆管の優れた高温強度は、母相にナノスケールで緻密に分散した酸化物粒子によるものであり、強度への照射影響を検討する上で、照射下でのナノスケール酸化物分散組織の安定性把握が重要である。そこで、QST 高崎研にあるイオン照射研究施設（TIARA）で 9Cr-ODS 鋼への 10.5 MeV の Fe^{3+}イオンの照射試験を実施した。照射温度は、通常運転時の被覆管最高温度に対応する 700 ℃とした。観察位置とした試料表面から深さ 1.3 μm の位置での照射量は 236 dpa である。イオン照射により、ODS 鋼中のナノスケール酸化物粒子が粗大化もしくは微細分散化するとの報告が国内外でされているが[4.1.3-42～47]、今回 700 ℃で 236 dpa までイオン照射した範囲では、JAEA で開発した 9Cr-ODS 鋼のナノ組織は極めて安定であることがわかった（Fig. 4.1.3-10)[4.1.3-48]。加えて、ODS 鋼の高照射量環境下での耐スウェリング性を把握するため、同じく QST の TIARA を用いて、10.5 MeV の Fe^{3+}イオンと 1.2 MeV の He^{+}イオンのデュアルイオンビーム照射後に TEM による組織観察を実施した結果を Fig. 4.1.3-11 に示す[4.1.3-49, 50]。照射温度は 470 ℃とし、照射損傷量は表面からの深さ 1.3 μm にて約 95 dpa である。He は高速炉で想定される 0.2 appmHe/dpa に対し、スウェリングをより促進するため 1.0 appmHe/dpa の割合が深さ 1.3 μm にて得られるように照射した。Fig. 4.1.3-11 より、9Cr-ODS 鋼（焼きならし・焼き戻し仕上げ）との比較材として、12Cr-ODS 鋼（再結晶仕上げ）、PNC-FMS（焼きならし・焼き戻し仕上げ）と PNC316（20%冷間抽伸仕上げ）を用いることで、耐スウェリング性の相対比較を行った。これより、9Cr-ODS 鋼は、12Cr-ODS 鋼、PNC-FMS 及び PNC316 よりも優れた耐スウェリング性を有する見通しを得ることができた。この優れた耐スウェリング性は、9Cr-ODS 鋼の母相が耐スウェリング性に優れる焼き戻しマルテンサイト組織が主体であることと、微細に分散した酸化物粒子と母相の界面が照射欠陥のシンクサイトとして機能しスウェリングを抑制していることによると考えられる。

以上より、9Cr-ODS 鋼被覆管は、高温、長時間環境での組織安定性及びクリープ強度が極めて高く、また、イオン照射試験結果によると、高照射量域まで優れた耐照射性が期待できる見通しを得ることができた。今後、更にデータの拡充を継続し、2023 年度を目途に材料強度基準（暫定案）[4.1.3-37]の更新を行う計画である。

4.1.3.3 PNC-FMS ラッパ管の開発

PNC-FMS ラッパ管母材及び PNC-FMS/316 異材溶接部の健全性確認及び材料強度基準整備に必要なデータ拡充を行うため、「常陽」で照射した PNC-FMS 母材の照射後強度試験、熱時効した母材及び異材溶接材の強度試験を実施した。PNC-FMS 母材の「常陽」材料照射材（455 ℃～835 ℃、20 dpa～33 dpa）の引張特性データ及びシャルピー衝撃特性データ [4.1.3-51]、熱時効材（400 ℃～800 ℃、45,000 時間）の引張特性データ [4.1.3-52]を拡充した。これらのデータに基づき、既存強度式 [4.1.3-53, 54]で採用している Larson-miller パラメータ [4.1.3-55]により熱時効効果を評価する考え方の妥当性を確認した。また、PNC-FMS の受け入れまま材について、異常過渡時及び事故時の健全性評価用のデータを取得するため、最高 1400 ℃までの高温引張特性データを拡充した（Fig. 4.1.3-9）[4.1.3-52]。

PNC-FMS/316 異材溶接材の 400 ℃～600 ℃、30,000 時間までの熱時効後の引張試験を実施し、高温熱時効後も溶接部が母材と同等以上の強度を有することを確認した（Fig. 4.1.3-12）[4.1.3-56]。ここで、熱時効前後の溶金部の微細組織観察及びビッカース硬さ測定を実施し、溶金部は少量の残留オーステナイト相を含む微細な焼き戻しマルテンサイト組織となっていること、熱時効により溶金部には Cr リッチ相（α'相）と G 相が析出することで硬化が生じていることが明らかとなった。このため、熱時効後の溶接部の破壊靭性評価が今後の課題である。

4.1.3.4 試験技術開発

長寿命炉心材料の炉内性能実証及び材料強度基準整備のためには、照射データの取得が不可欠であるが、国内のみならず国際的にも中性子照射場は限られており、照射データの取得は容易ではない。そこで、「常陽」運転再開後に、炉内性能実証や材料強度基準整備に必要なデータを効果的に取得するためのミニチュア強度試験技術の開発を国際協力の枠組み等を活用しつつ進めた。炉心材料の強度特性としてクリープ特性、引張特性及び破壊靭性を評価する必要があり、これら特性を評価するため、以下の技術開発を進めた。

・クリープ特性：リングクリープ試験技術（日仏 SFR 協力を活用）
・引張特性　　：シェアパンチ試験技術（日米 CNWG 協力を活用）
・破壊靭性　　：ミニチュア 3 点曲げ試験技術（東北大学金属材料研究所・大洗の施設共同利用）[4.1.3-57]

ここで、ミニチュア破壊靭性試験技術の開発は、「4.1.3.3 PNC-FMS ラッパ管の開発」で課題として挙げた異材溶接部等の局所領域の破壊靭性評価のためにも必要である。

さらに、文部科学省公募原子力システム研究開発事業で「次世代原子力システム用事故耐性被覆管の照射特性評価技術の開発」を 2019 年 10 月から開始し、ODS 鋼のナノスケール組織を定量的に評価する手法並びに定量化したナノ組織情報から中性子照射後の強度特性を定量評価する方法について研究開発を進めた。一般に鋼材の機械的特性は、材料組織と一定の相関があるものの、その相関は複雑である。JAEA では、9Cr-ODS 鋼の高温強度と微細組織データの拡充を進め、熱的安定性の高いナノ組織を主要な強化因子とし、介在物等の不均一性を低減し

た 9Cr-ODS 鋼の場合、ナノスケールの酸化物分散組織と工学的に重要な機械的特性（クリープ強度、引張強度、硬さ）が比較的単純な一対一の関係にある可能性を明らかにしてきた [4.1.3-58]。本事業では、この技術知見に基づき、照射後の 9Cr-ODS 鋼のナノスケールを含む微細組織を定量評価し、照射による強度変化を明らかにするための手法整備を進めている [4.1.3-58~63]。現在、9Cr, 11Cr-ODS 鋼について、通常運転時（700 ℃以下）の温度だけでなく、700 ℃～1000 ℃での炉外クリープ特性とその微細組織定量データの相関性評価、並びに 9Cr, 11Cr-ODS 鋼と同じ Y-Ti-O 系のナノスケール酸化物が分散した 14Cr-ODS 鋼（MA957、米国材）の中性子照射後の組織データ等の取得を進めている。

参考文献

4.1.3-1) 立石嘉徳, 他, “高速炉炉心材料用改良 SUS 316 ステンレス鋼の開発”, 日本原子力学会誌, 30 (11) (1988) pp.1004-1019.

4.1.3-2) 鹿倉, 野村, 鵜飼, 瀬下, 加納, 桑島, 伊藤, 蔦木, 藤田, “高速炉炉心材料としての高強度フェライト/マルテンサイト鋼の開発”, 日本原子力学会誌, Vol.33, Issue 12 (1991) pp.1157-1170.

4.1.3-3) 日本原子力研究開発機構 次世代原子力システム研究開発部門, 日本原子力発電株式会社 研究開発室, “高速増殖炉サイクルの実用化戦略調査研究－フェーズ II 最終報告書－”, JAEA-Evaluation 2006-002 (2006), 191p.

4.1.3-4) 日本原子力研究開発機構 次世代原子力システム研究開発部門, 日本原子力発電株式会社 研究開発室, “高速増殖炉サイクル実用化研究開発（FaCT プロジェクト）－フェーズ I 報告書－”, JAEA-Evaluation 2011-003 (2011), 303p.

4.1.3-5) T. Kaito, Y. Yano, S. Ohtsuka, M. Inoue, K. Tanaka, A. E. Fedoseev, A. V. Povstyanko and A. Novoselov, “ODS cladding fuel pins irradiation tests using the BOR-60 reactor”, J. Nucl. Sci. Technol., 50(4) (2013) pp.387–399.

4.1.3-6) 井上賢紀, 他, “酸化物分散強化型フェライト鋼の硝酸溶解特性評価－マルテンサイト系 9Cr-ODS 鋼の評価－”, JAEA-Research 2011-057 (2012), 100p.

4.1.3-7) 井上賢紀, 他, “酸化物分散強化型フェライト鋼の硝酸溶解特性評価,第 2 報－溶解工程の硝酸濃度等に対応した溶解量の検討－”, JAEA-Research 2013-009 (2013), 78p.

4.1.3-8) S. Ohtsuka, T. Tanno, H. Oka, Y. Yano, S. Kato, T. Furukawa, T. Kaito, “Model calculation of Cr dissolution behavior of ODS ferritic steel in high-temperature flowing sodium environment”, J. Nucl. Mater., 505 (2018) pp.44-53.

4.1.3-9) S. Ohtsuka, T. Kaito, T. Tanno, Y. Yano, S. Koyama, K. Tanaka, “Microstructure and high-temperature strength of high Cr ODS tempered martensitic steels”, J. Nucl. Mater., 442 (2013) pp.S89-S94.

4.1.3-10) T. Tanno, S. Ohtsuka, Y. Yano, T. Kaito, Y. Oba, M. Ohnuma, S. Koyama, K. Tanaka, “Evaluation of mechanical properties and nano-meso structures of 9-11%Cr ODS steels”, J. Nucl. Mater., 440 (2013) pp.568-574.

4.1.3-11) T. Asayama and S. Ohtsuka, “Development of core and structural materials for

fast reactors", Proceedings of FR17, IAEA-CN245-077.

4.1.3-12) Y. Yano, T. Kaito, T. Tanno and S. Ohtsuka, "Weldability of dissimilar joint between PNC-FMS and Type 316 steel under electron beam welding", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.52, No.4 (2015) pp.568-579.

4.1.3-13) T. Narita, S. Ukai, T. Kaito, S. Ohtsuka, M. Fujiwara, "Development of Manufacturing Process of PNC-FMS Wrapper Tube with SUS316 Short Joint", J. Nucl. Sci. Technol., 42 (9) (2005) pp.825-832.

4.1.3-14) T. Kaito, S. Ohtsuka and M. Inoue, "Progress in the R&D Project on Oxide Dispersion Strengthened and Precipitation Hardened Ferritic Steels for Sodium Cooled Fast Breeder Reactor Fuels", Global2007 (Sep., 9-13, 2007, Boise, Idaho) No.175716, pp.37-42.

4.1.3-15) C. Suryanarayana, "Mechanical alloying and milling", Progress in Materials Science 46 (2001) pp.1-184.

4.1.3-16) S. Ohtsuka, T. Kaito, Y. Yano, S. Yamashita, R. Ogawa, T. Uwaba, S. Koyama and K. Tanaka, "Investigation of the cause of peculiar irradiation behavior of 9Cr-ODS steel in BOR-60 irradiation tests", J. Nucl. Sci. Technol., 50 (5), (2013) pp.470-480.

4.1.3-17) S. Ohtsuka, Y. Yano, T. Tanno, T. Kaito, K. Tanaka, "Microstructure Characterization of Oxide Dispersion Strengthened Steels Containing Metallic Chromium Inclusions after High-Temperature Thermal Aging", Mater. Trans., 54 (10) (2013) pp.2018-2026.

4.1.3-18) P. Bastien "The possibility and limitations of ultrasonics in the non-destructive testing of steel", NDT Int., 10 (1977) pp.297-305.

4.1.3-19) R. T. DeHoff, F. N. Rhines 著, 牧島邦夫・篠原靖忠・小森尚志訳, "計量形態学ーミクロ組織をはかるー", 内田老鶴圃 (1983), 470p.

4.1.3-20) 岡弘, 他, "9Cr-ODS 鋼の量産技術開発；ODS 鋼量産用大型アトライター（PATTRIODS）の開発と ODS 鋼試作試験", 日本金属学会 2020 年春期（第 166 回）講演大会予稿集（2020）.

4.1.3-21) S. Ohtsuka, S. Ukai, M. Fujiwara, T. Kaito, T. Narita, "Improvement of 9Cr-ODS martensitic steel properties by controlling excess oxygen and titanium contents", J. Nucl. Mater., 329-333 (2004) pp.372-376.

4.1.3-22) H. Oka, T. Tanno, S. Ohtsuka, Y. Yano, T. Kaito, "Effect of nitrogen concentration on nano-structure and high-temperature strength of 9Cr-ODS steel", Nucl. Mater. Energy, 16 (2018) pp.230-237.

4.1.3-23) H. Oka, T. Tanno, S. Ohtsuka, Y. Yano, T. Uwaba, T. Kaito, M. Ohnuma, "Effect of thermo-mechanical treatments on nano-structure of 9Cr-ODS steel", Nucl. Mater. Energy, 9 (2016) pp.346-352.

4.1.3-24) S. Ohtsuka, T. Tanno, H. Oka, Y. Yano, Y. Tachi, T. Kaito, R. Hashidate, S. Kato, T. Furukawa, C. Ito, T. Yoshitake, "Development of ODS tempered martensitic steel for high

burn up fuel cladding tube of SFR", GIF 2018 Symposium proceedings (2020) pp.305-314.
4.1.3-25) T. Tanno, M. Takeuchi, S. Ohtsuka, T. Kaito, "Corrosion behavior of ODS steels with several chromium contents in hot nitric acid solutions", J. Nucl. Mater., 494 (2017) pp.219-226.
4.1.3-26) 丹野, 大塚, 矢野, 皆藤, 田中, 中井, 天野, "耐食性、靭性および高温機械的特性に優れた酸化物分散強化型焼き戻しマルテンサイト鋼およびその製造方法", 公開特許公報(A) 特開 2015-992 (P2015-992A).
4.1.3-27) T. Tanno, S. Ohtsuka, Y. Yano, T. Kaito, K. Tanaka, "Effects of manufacturing process on impact properties and microstructures of ODS steels", J. Nucl. Mater. 455 (2014) pp.480-485.
4.1.3-28) T. Tanno, Y. Yano, H. Oka, S. Ohtsuka, T. Uwaba, T. Kaito, "Strength anisotropy of rolled 11Cr-ODS steel", Nucl. Mater. Energy, 9 (2016) pp.353-359.
4.1.3-29) 梶村治彦, "ステンレス鋼活用の基礎知識－歴史、特性、耐食性－3. ステンレス鋼の耐食性", 材料, Vol.60, No.9 (2011) pp.862-867.
4.1.3-30) T. Narita, S. Ukai, S. Ohtsuka, M. Inoue, "Effect of tungsten addition on microstructure and high temperature strength of 9CrODS ferritic steel", J. Nucl. Mater., 417 (2011) pp.158-161.
4.1.3-31) T. Uwaba, Y. Yano, S. Ohtsuka. M. Naganuma, T. Tanno, H. Oka, S. Kato, T. Kaito, S. Ukai, A. Kimura, S. Hayashi, T. Torimaru, "Evaluation on tolerance to failure of ODS ferritic steel claddings at the accident conditions of fast reactors", Proceedings of 2017 International Congress on Advances in Nuclear Power Plants (ICAPP 2017) (CD-ROM).
4.1.3-32) H. Oka, T. Kaito, Y. Ikusawa, S. Ohtsuka, "Evaluation of breach characteristics of fast reactor fuel pins during steady state irradiation", Nucl. Eng. Design, Vol.370 (2020) 110894.
4.1.3-33) T. Asayama and T. Kaito, "Development of Structural Materials for JSFR - Overview and Current Status", Proceedings of International Conference on Fast Reactors and Related Fuel Cycles; Safe Technologies and Sustainable Scenarios (FR-13) (USB Flash Drive).
4.1.3-34) T. Kaito, S. Ohtsuka, Y. Yano, T. Tanno, S. Yamashita, R. Ogawa, K. Tanaka, "Irradiation Performance of Oxide Dispersion Strengthened (ODS) Ferritic Steel Claddings for Fast Reactor Fuels", Proceedings of International Conference on Fast Reactors and Related Fuel Cycles; Safe Technologies and Sustainable Scenarios (FR-13) (USB Flash Drive).
4.1.3-35) Y. Yano, R. Ogawa, S. Yamashita, S. Ohtsuka, T. Kaito, N. Akasaka, M. Inoue, T. Yoshitake, K. Tanaka, "Effects of neutron irradiation on tensile properties of oxide dispersion strengthened (ODS) steel claddings", J. Nucl. Mater., 419 (2011) pp.305-309.
4.1.3-36) T. Kaito, S. Ohtsuka, M. Inoue, T. Asayama, T. Uwaba, S. Mizuta, S. Ukai, T. Furukawa, C. Ito, E. Kagota, R. Kitamura, T. Aoyama, T. Inoue, "In-pile creep rupture

properties of ODS ferritic steel claddings", J. Nucl. Mater., 386-388 (2009) pp.294-298.
4.1.3-37) 皆藤威二, 他, "ODS フェライト鋼被覆管の材料強度基準（暫定案）", JNC TN9400 2005-015 (2005), 117p.
4.1.3-38) Y. Yano, Y. Sekio, T. Tanno, S. Kato, T. Inoue, H. Oka, S. Ohtsuka, T. Furukawa, T. Uwaba, T. Kaito, S. Ukai, "Ultra-high temperature creep rupture and transient burst strength of ODS steel claddings", J. Nucl. Mater., 516 (2019) pp.347-353.
4.1.3-39) 山本晋也, 他, "耐熱用オーステナイトステンレス鋼", 新日鉄住金技報 vol. 396, (2013) pp.99-105.
4.1.3-40) H. Oka, T. Tanno, Y. Yano, S. Ohtsuka, T. Kaito, Y. Tachi, "Microstructural stability of ODS steel after very long-term creep test", J. Nucl. Mater., 547 (2021) 152833.
4.1.3-41) Y. Yano, T. Tanno, H. Oka, S. Ohtsuka, T. Inoue, S. Kato, T. Furukawa, T. Uwaba, T. Kaito, S. Ukai, N. Oono, A. Kimura, S. Hayashi, T. Torimaru, "Ultra-high temperature tensile properties of ODS steel claddings under severe accident conditions", J. Nucl. Mater., 487 (2017) pp.229-237.
4.1.3-42) P. Dubuisson, Y. DeCarlan, V. Garat, M. Blat, "ODS Ferritic/martensitic alloys for Sodium Fast Reactor fuel pin cladding", J. Nucl. Mater., 428 (2012) pp.6-12.
4.1.3-43) S. Yamashita, N. Akasaka, S. Ukai, S. Ohnuki, "Microstructural development of a heavily neutron-irradiated ODS ferritic steel (MA957) at elevated temperature", J. Nucl. Mater., 367-370 (2007) pp.202-207.
4.1.3-44) T. R. Allen, J. Gan, J. I. Cole, M. K. Miller, J. T. Busby, S. Shutthanandan, S. Thevuthasan, "Radiation response of a 9 chromium oxide dispersion strengthened steel to heavy ion irradiation", J. Nucl. Mater., 375 (2008) pp.26-37.
4.1.3-45) S. Yamashita, Y. Yano, S. Ohtsuka, T. Yoshitake, T. Kaito, S. Koyama, K. Tanaka, "Irradiation behavior evaluation of oxide dispersion strengthened ferritic steel cladding tubes irradiated in JOYO", J. Nucl. Mater., 442 (2013) pp.417-424.
4.1.3-46) M. J. Swenson, J. P. Wharry, "Nanocluster irradiation evolution in Fe-9%Cr ODS and ferritic martensitic alloys", J. Nucl. Mater., 496 (2017) pp.24-40.
4.1.3-47) N. A. Bailey, E. Stergar, M. Toloczko, P. Hosemann, "Atom probe tomography analysis of high dose MA957 at selected irradiation temperatures", J. Nucl. Mater., 459 (2015) pp.225-234.
4.1.3-48) 岡弘, 他, "約 240dpa まで照射した高速炉被覆管用 ODS 鋼のナノ粒子安定性", QST 高崎サイエンスフェスタ 2019 予稿集（2019 年 12 月 10 日・11 日, 高崎シティギャラリー） p.61.
4.1.3-49) T. Tanno, Y. Yano, S. Ohtsuka, T. Kaito, "Irradiation Behavior of ODS Steels for Fuel Cladding Tube of Fast Reactor", QST Takasaki Annual Report 2019 (March 2021) p.73.
4.1.3-50) 丹野敬嗣, 他, "高速炉燃料被覆管用 ODS 鋼の耐スウェリング性評価", 日本原子力学会 2021 年春の年会予稿集, (2021).

4.1.3-51) T. Tanno, Y. Yano, H. Oka, Y. Sekio, S. Ohtsuka, T. Kaito, Y. Tachi, “Tensile Property Changes of 11Cr Ferritic/Martensitic Steel Irradiated in Fast Reactor Joyo”, presented in the 19th international conference on fusion reactor materials (ICFRM-19).
4.1.3-52) Y. Yano, T. Tanno, Y. Sekio, H. Oka, S. Ohtsuka, T. Uwaba, T. Kaito, “Tensile properties and hardness of two types of 11Cr-ferritic/martensitic steel after aging up to 45,000h”, Nucl. Mater. Energy, 9 (2016) pp.324-330.
4.1.3-53) 上平明弘, 他, “高強度フェライト/マルテンサイト鋼（PNC-FMS 鋼）の短時間強度特性の評価”, JNC TN9400 99-024 (1999), 86p.
4.1.3-54) 上平明弘, 他, “高強度フェライト/マルテンサイト鋼（PNC-FMS）の衝撃特性評価”, JNC TN9400 2000-035 (2000), 164p.
4.1.3-55) F. R. Larson and J. Miller, “A time-temperature relationship for rupture and creep stresses”, Trans. ASME, 74 (1952) pp.765-775.
4.1.3-56) Y. Yano, T. Tanno, H. Oka, S. Ohtsuka, T. Kaito, “Tensile properties on dissimilar welds between 11Cr-ferritic/martensitic steel and 316 stainless steel after thermal aging”, J. Nucl. Mater., 555 (2021) 153105.
4.1.3-57) T. Tanno, H. Oka, Y. Yano, H. Kurishita, “Development of miniature fracture toughness test technique for thin martensitic steel wrapper tube of fast reactor”, presented at GIMRT Joint International Symposium on Radiation Effects in Materials and Actinide Science, Sep. 30-Oct. 3, 2020, Sendai, Japan.
4.1.3-58) 大塚, 大沼, 光原, 中島, 外山, 矢野, 橋立, 皆藤, “次世代原子力システム用事故耐性被覆管の照射特性評価技術の開発－全体概要－”, 日本金属学会 2021 年春期（第 168 回）講演大会予稿集, (2021).
4.1.3-59) 今川, 橋立, 鬼澤, 加藤, 大塚, 大沼, 中島, 外山, “ODS 鋼被覆管の超高温クリープ特性評価”, 日本金属学会 2021 年春期（第 168 回）講演大会予稿集, (2021).
4.1.3-60) 矢野, 丹野, 皆藤, 大塚, 大沼, 中島, 外山, “SFR 用 ODS 鋼被覆管の事故模擬超高温加熱試験”, 日本金属学会 2021 年春期（第 168 回）講演大会予稿集, (2021).
4.1.3-61) 山崎, 大沼, 大塚, 丹野, 外山, 光原, 中島, “クリープによる ODS 鋼のナノ組織変化”, 日本金属学会 2021 年春期（第 168 回）講演大会予稿集, (2021).
4.1.3-62) 外山, 柴原, 丹野, 矢野, 大塚, 光原, 中島, 大沼, “ODS 鋼被覆管中の酸化物粒子の 3 次元アトムプローブ分析”, 日本金属学会 2021 年春期（第 168 回）講演大会予稿集, (2021).
4.1.3-63) 光原, 栗野, 中島, 矢野, 大塚, 大沼, 外山, “SEM と STEM による ODS 鋼被覆管の微細組織評価”, 日本金属学会 2021 年春期（第 168 回）講演大会予稿集, (2021).

Table 4.1.3-1　完全プレアロイ 9Cr-ODS 鋼被覆管の均質性評価結果

材　料		観察総面積	Y_2O_3 非分散部の数	単位面積当たりの不均一数	Y_2O_3 非分散部の割合 (%)			
					体積率	面積率 標本平均, X	X+2SE ※1	X-2SE ※1
完全ﾌﾟﾚｱﾛｲ 9Cr-ODS 鋼	MP23	60 cm^2	19	0.3 個/cm^2	N.A.	0.0011	0.0016	0.00055
	MP24	60 cm^2	72	1.2 個/cm^2	N.A.	0.0023	0.0033	0.0014
完全ﾌﾟﾚｱﾛｲ 11Cr-ODS 鋼	15P	3.5 cm^2	2	0.6 個/cm^2	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.
欠陥模擬材	0.05%ﾌﾟﾚｱﾛｲ粉末添加	6 cm^2	43	7.2 個/cm^2	0.05	0.037	0.047	0.027
	0.5%ﾌﾟﾚｱﾛｲ粉末添加	2 cm^2	115	58 個/cm^2	0.5	0.38	※2	※2
	5%ﾌﾟﾚｱﾛｲ粉末添加	0.36 cm^2	423	1175 個/cm^2	5	3.7	4.0	3.4

※1　95%信頼区間（SE, 標準誤差 (Standard error)）
※2　1 断面のみの観察

Table 4.1.3-2　9 Cr,11Cr,12Cr-ODS 鋼被覆管の化学組成

材料	ロット	製造方法	化学分析値（wt%）											計算値（wt%）	
			C	Si	Mn	Ni	Cr	W	Ti	Y	O	N	Ar	Y_2O_3 [a)]	Ex.O [b)]
9Cr-ODS [c)]	MP23	完全プレアロイ	0.13	0.08	0.05	<0.20	9.16	1.94	0.21	0.28	0.15	0.010	0.004	0.36	0.075
	MP24	完全プレアロイ	0.11	0.04	0.05	0.01	9.07	1.95	0.21	0.27	0.15	0.004	0.0048	0.34	0.073
	M11	部分プレアロイ	0.13	0.05	0.044	0.021	9.00	1.95	0.20	0.29	0.14	0.013	0.0025	0.37	0.062
	Mm14	プレミックス	0.13	0.01	<0.01	<0.01	8.83	1.97	0.20	0.28	0.17	0.012	0.0053	0.36	0.094
11Cr-ODS [c)]	15P	完全プレアロイ	0.14	0.04	0.05	0.40	10.82	1.28	0.22	0.27	0.13	0.006	0.004	0.34	0.057
12Cr-ODS [d)]	F14	部分プレアロイ	0.044	0.052	0.09	0.08	11.39	1.87	0.26	0.18	0.10	0.010	0.0045	0.23	0.051

a)　Y分析値より、Yが全てY_2O_3の形態で存在する場合の含有量を算出

b)　過剰酸素量：Ex.O = [Total O] - [O in Y_2O_3]

c)　最終熱処理条件 ：　焼きならし・焼き戻し（1050 °C x 1h, AC => 800 °C x 1h, AC）

d)　最終熱処理条件 ： 再結晶仕上げ（1150 °C x 1h, AC）

Table 4.1.3-3　完全プレアロイ法およびプレミックス法で製造した 9Cr-ODS 鋼の被覆管の走査型電子顕微鏡像（Fig.4.1.3-4）における EDX による半定量分析結果

分析点	半定量分析結果（wt%）					備考
	Cr-K	W-L	Ti-K	Y-K	Si-K	
SP1	8.9	2.2	0.25	-	-	母相
SP2	9.1	2.4	0.66	-	-	介在物
SP3	9.2	2.2	0.5	-	5.8*	介在物の脱落部
SP4	10.1	2.9	3.2	3.9	-	介在物

*Si の検出は、研磨材の残存によるものと考えられる。

Table 4.1.3-4 量産技術開発における主要課題

No.	プロセス	課題	対応策
(1)	メカニカルアロイング	**<u>コスト低減のため、アトライターの大型化（1 バッチあたりの処理量拡大）が必要</u>** ①大型アトライターの整備 ・十分な投入エネルギーが見込まれる 10D 型アトライタ（10kg/バッチ）を 30D 型（30kg/バッチ）にスケールアップする。 ②メカニカルアロイング条件の最適化 ・大型アトライターを用いたメカニカルアロイングの最適条件を見出し、均質性に優れた合金粉末を製造する技術を確立する。	・10D 型アトライターの運転管理、構造改良で培った知見に基づき 30D 型アトライターの設計・製作を行う。 ・製作した 30D 型アトライターを用いた ODS 鋼（熱間押出棒材）の試作試験を行い、スケールアップがメカニカルアロイング粉末の品質（金属粉末中への Y_2O_3 強制固溶の均質性、不純物ガス元素（O、N）濃度等）、ODS 鋼の均質性（Y_2O_3 分散の均質性、介在物等）及び高温強度に及ぼす影響を評価する。これに基づき、メカニカルアロイング粉末の品質向上および ODS 鋼の性能向上のためのアトライター構造の改良およびメカニカルアロイング条件の最適化を行う。 ・検討結果に基づき、大型アトライター用の製造要領、作業標準を整備する。
(2)	大型素管製造*	**<u>コスト低減および大型炉用長尺被覆管製造に必要な大型素管製造プロセスの開発</u>** ①大型素管製造プロセスの設計 ②素管製造条件の最適化 ・高温強度等の目標性能を達成するための、加工熱処理条件の最適化	・量産時の作業性、安全管理、品質安定性、歩留まり、ロットサイズ等の要求事項及び既存の粉末固化・加工技術、下工程（長尺被覆管製造）に係る制約条件を整理し、大型素管の製造プロセスを設計する。 ・試作試験により、最適組織の検討と組織制御にかかるパラメータの最適化（固化温度、押出温度、押出比（加工度）等）を図る。 ・検討結果に基づき、大型素管用の製造要領、作業標準を整備する。
(3)	長尺被覆管製造	**<u>長尺被覆管製造技術開発</u>** ①製管プロセスの設計 ②製管条件の最適化 ・目標品質を達成するための製管条件の最適化	・ODS 鋼の加工性、製管の歩留まり、被覆管に必要な品質（内外面性状、寸法精度等）を考慮し、製管プロセスを設計する（圧延方法、熱処理条件、内外面処理等）。 ・大型素管を用いた圧延試験に基づき、製管プロセスの最適化を図る（圧延方法・条件、熱処理条件、内外面処理等）。検討結果に基づき、長尺被覆管用の製管要領、作業標準を整備する。

＊ 現状の製造工程で製造できる素管は外径 18.0 mm×肉厚 3.0 mm×長さ約 180 mm （小型素管）であり、この素管から製造できる被覆管は、外径 8.5 mm、肉厚 0.5 mm の場合、長さ 2000 mm が 1 本のみとなる。大型炉である JSFR の設計例では、燃料被覆管の寸法は、外径 10.4 mm、肉厚 0.71 mm、長さ 2640 mm であり、このサイズの管を製造するためには、素管の大型化が必要。

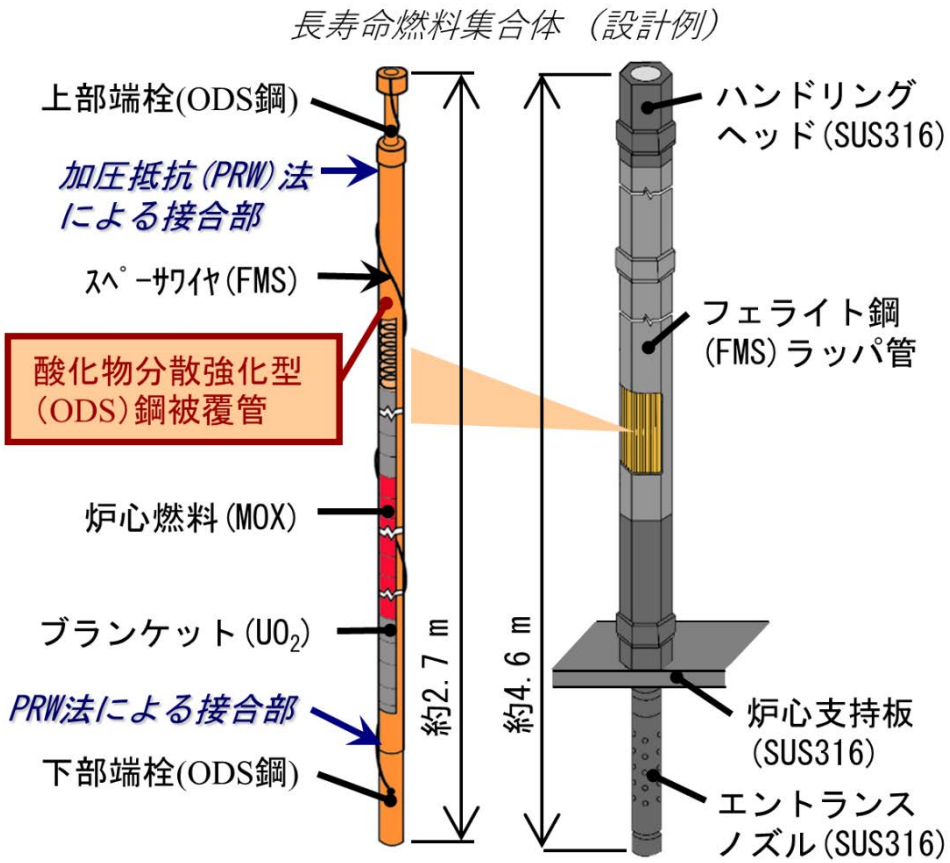


Fig. 4.1.3-1 高速炉燃料集合体の例(模式図)

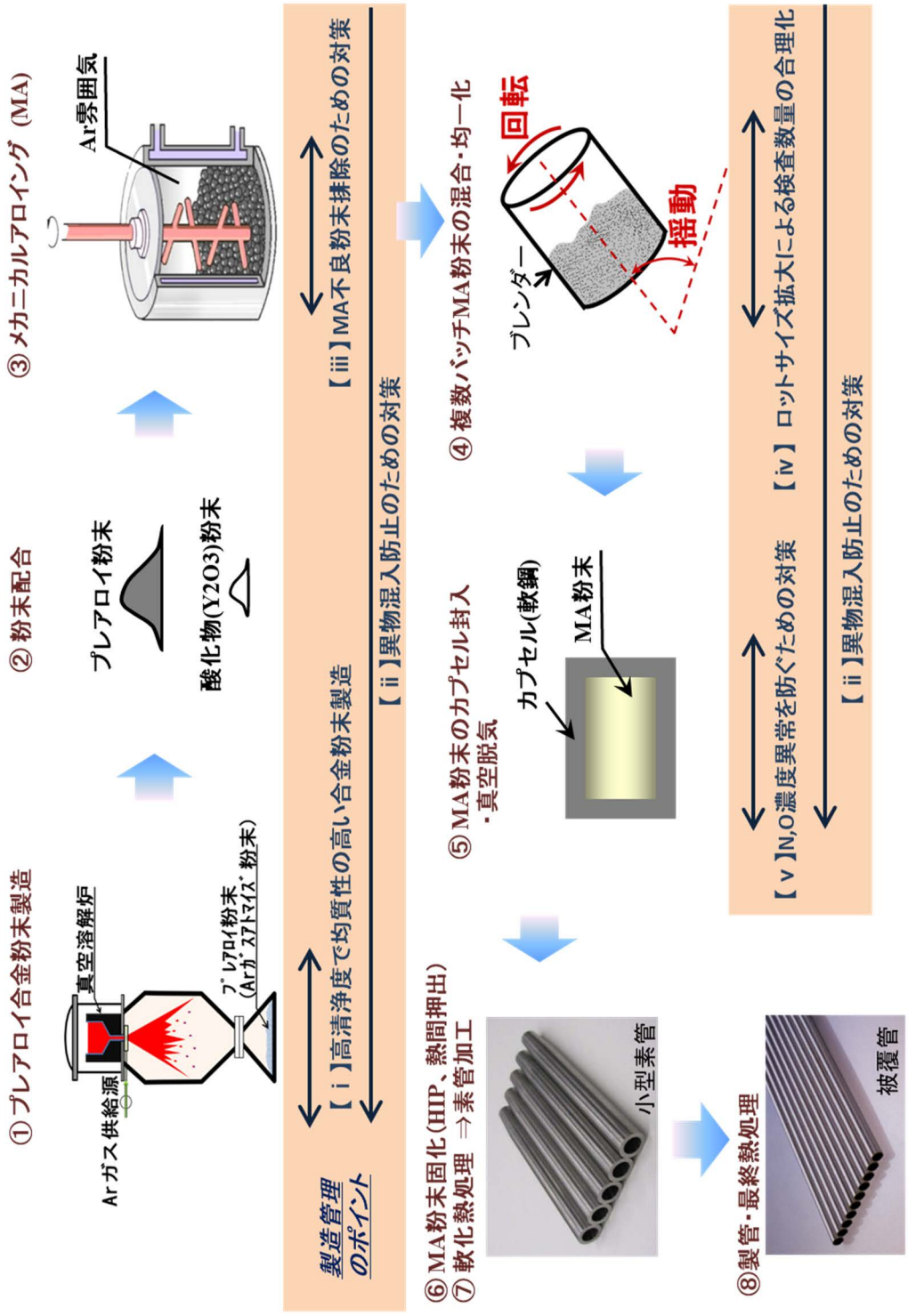


Fig. 4.1.3-2 粉末冶金法による ODS 鋼被覆管の製造プロセス（模式図）

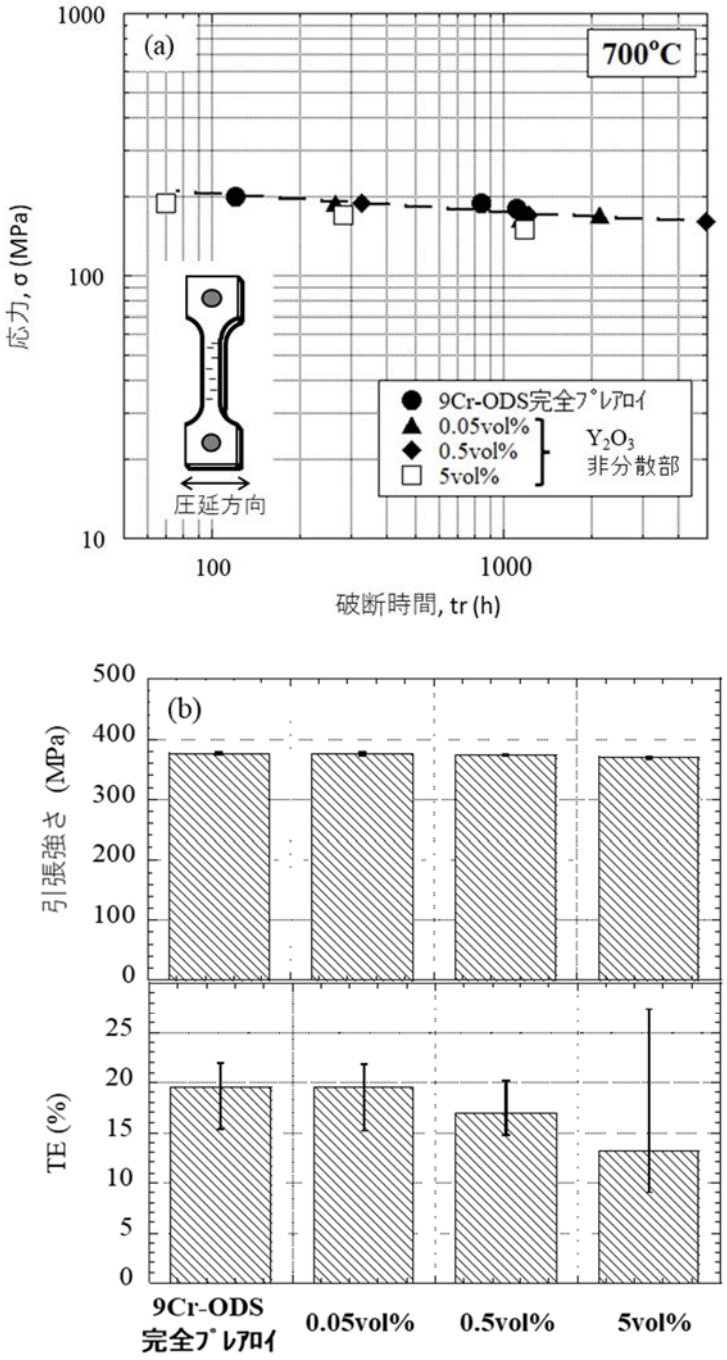


Fig. 4.1.3-3　9Cr-ODS 鋼の強度特性に及ぼす Y_2O_3 非分散部の影響評価結果（製管模擬板圧延材の評価結果）、(a) 700℃でのクリープ破断強度（T 方向試験）、(b) 700℃での引張特性（T 方向試験）

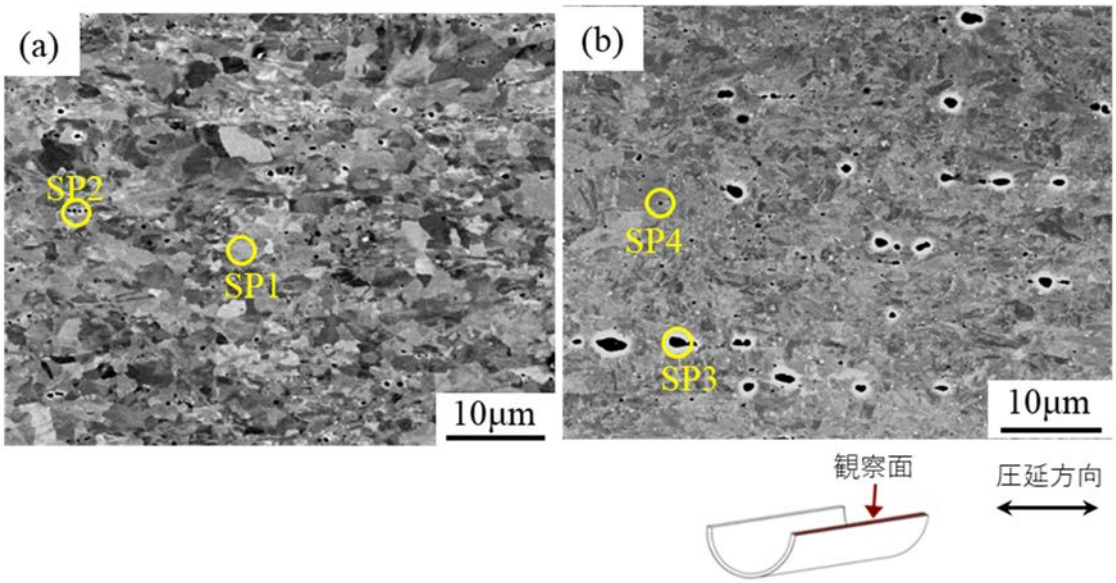


Fig. 4.1.3-4 完全プレアロイ法およびプレミックス法で製造した 9Cr-ODS 鋼の被覆管の SEM（走査型電子顕微鏡）による観察結果、(a) 完全プレアロイ法で製造した 9Cr-ODS 鋼被覆管（MP23)、(b) プレミックス法で製造した 9Cr-ODS 鋼被覆管（Mm14）

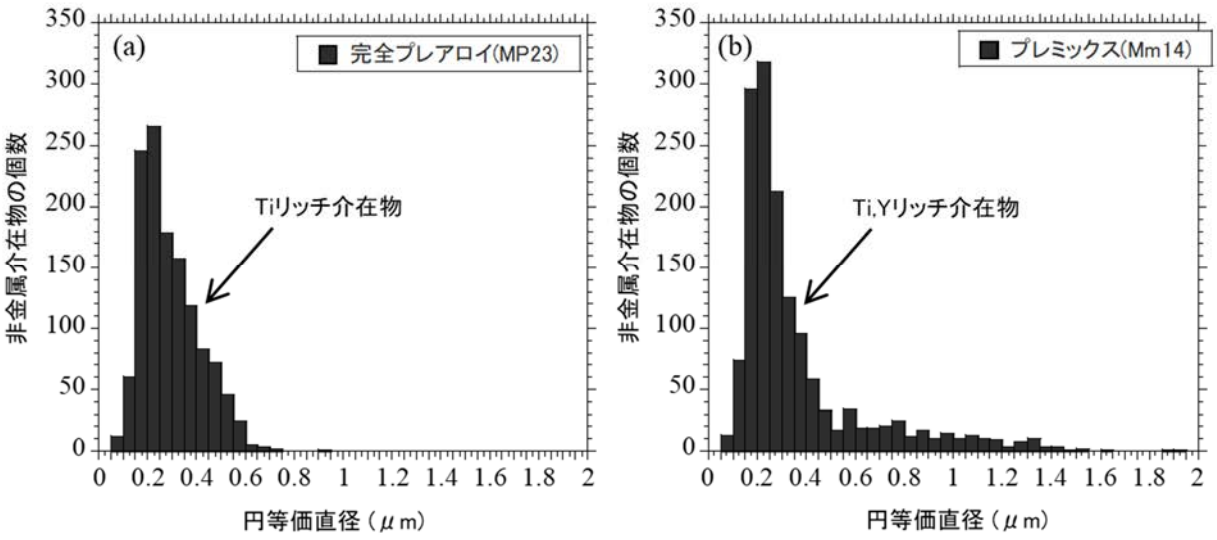


Fig. 4.1.3-5　9Cr-ODS 鋼被覆管の SEM 像の画像解析結果
（縦サイズ約 45μm、横サイズ約 65μm の SEM 像 10 視野の画像解析結果)、(a) 完全プレアロイ法で製造した 9Cr-ODS 鋼被覆管（MP23)、(b) プレミックス法で製造した 9Cr-ODS 鋼被覆管（Mm14）

設計のポイント	狙い
アジテータ動力の確保	・Y_2O_3 粉末と金属粉末の均一な合金化に必要な撹拌投入エネルギーを確保する。
アトライタ内容器の密閉性	・介在物形成の要因となるメカニカルアロイング後粉末中のガス元素（酸素、窒素）の濃度を低減するため、メカニカルアロイング中、容器内の高純度 Ar ガス雰囲気を維持する。
メンテナンス性	・原料粉末の投入、メカニカルアロイング後粉末の取り出し作業、機器メンテナンスを円滑に実施する。

Fig. 4.1.3-6　新たに整備した大型アトライター（30D 型、1 バッチあたりの処理量, 30kg）の外観写真と設計のポイント

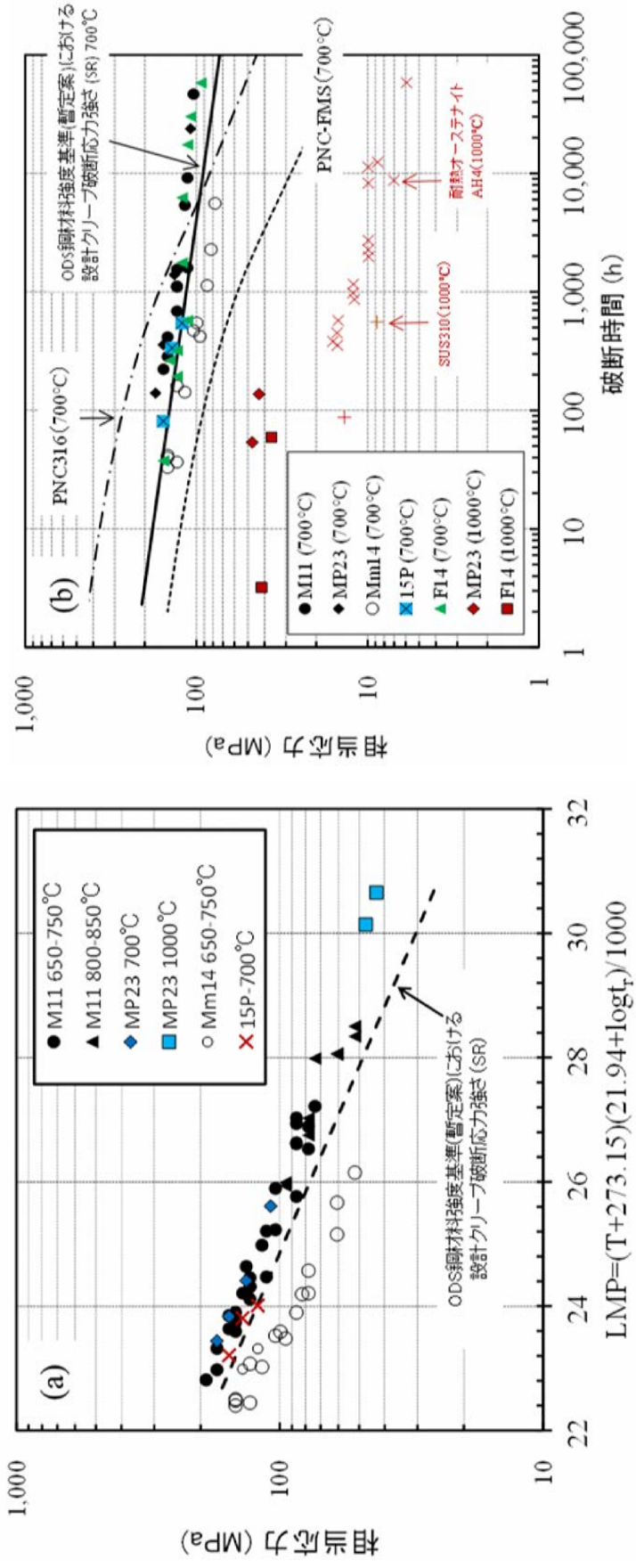


Fig. 4.1.3-7 9Cr, 11Cr-ODS 鋼の内圧クリープ破断強度、(a)相当応力-LMP、(b)相当応力-破断時間 4.1.3-38,39)

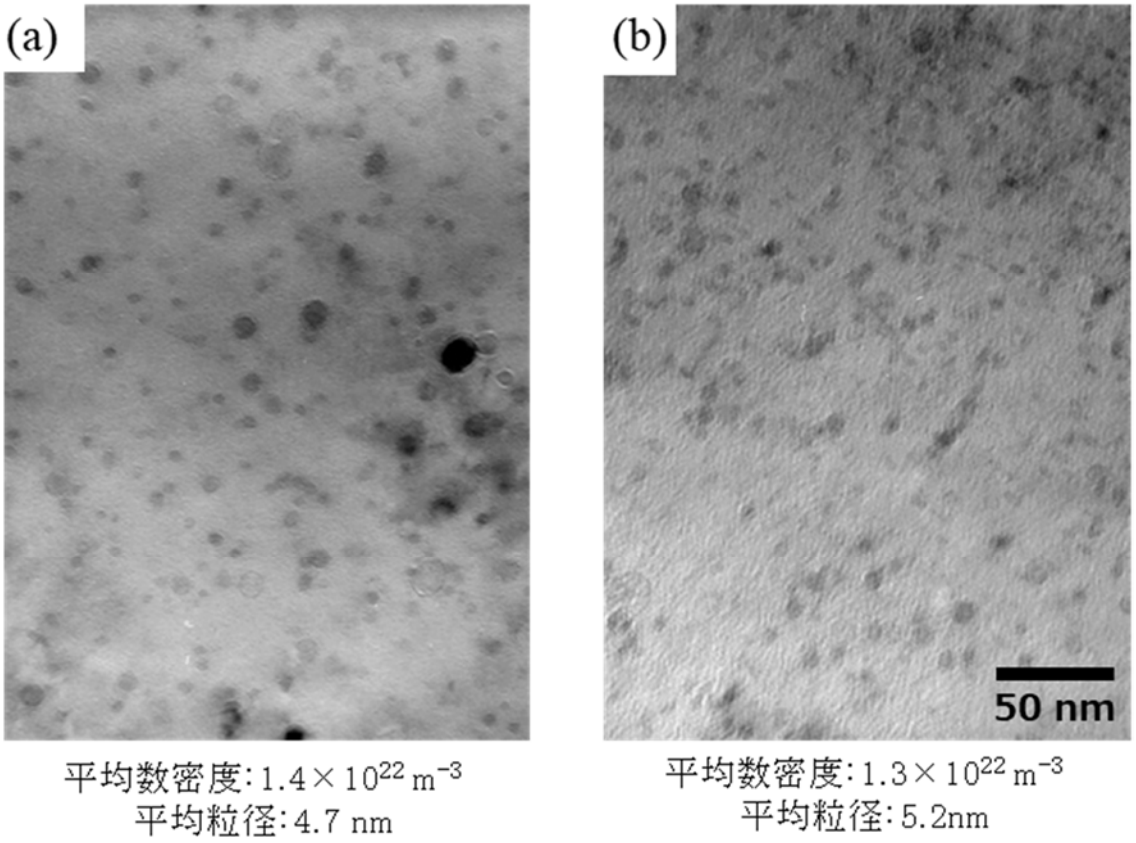


Fig. 4.1.3-8　9Cr-ODS 鋼被覆管の長時間クリープ試験後のナノスケール組織安定性評価結果 [4.1.3-40]、(a)受け入れまま材、(b)長時間内圧クリープ破断材（700 ℃×120 MPa×46,503 h）

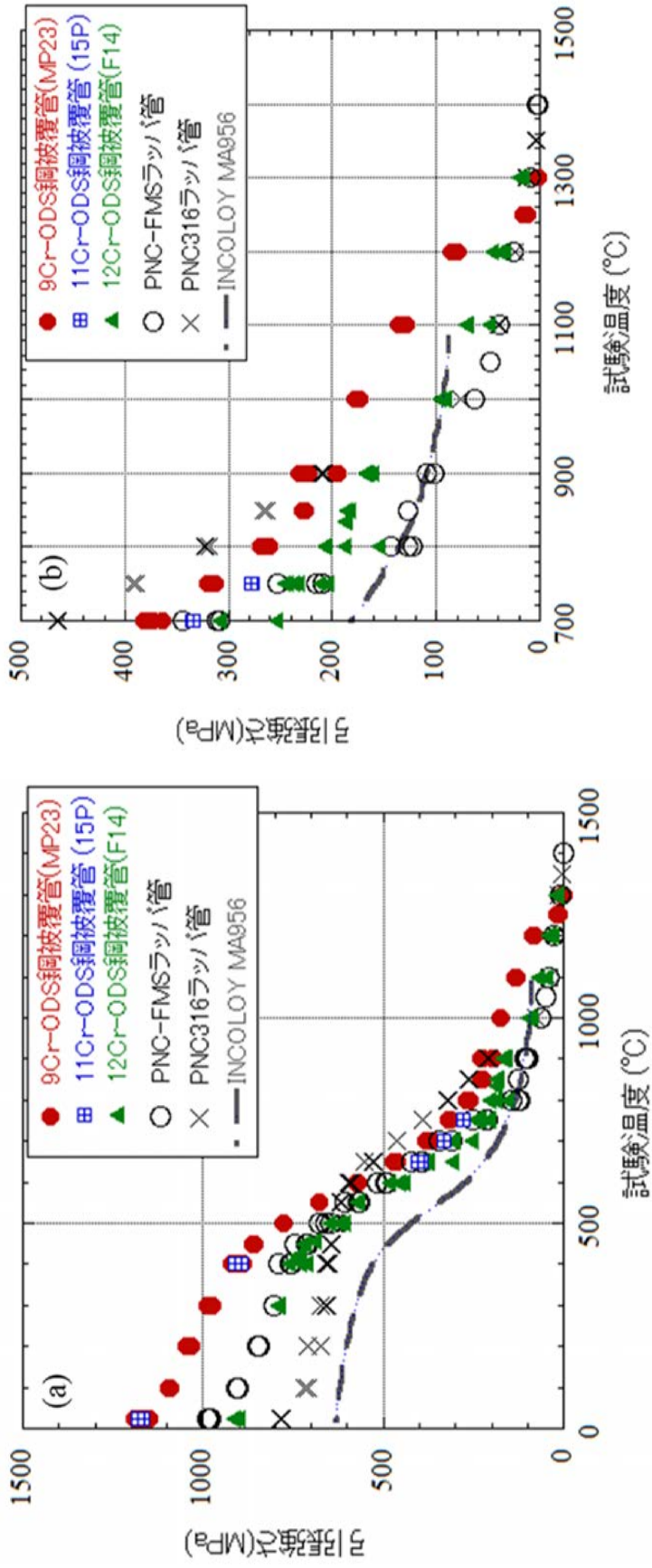


Fig. 4.1.3-9　9Cr,11Cr,12Cr-ODS 鋼の高温引張特性、(a)引張強さの温度依存性(室温～1350 ℃)、(b)700 ℃～1350 ℃の拡大図 [4.1.3-41,52]

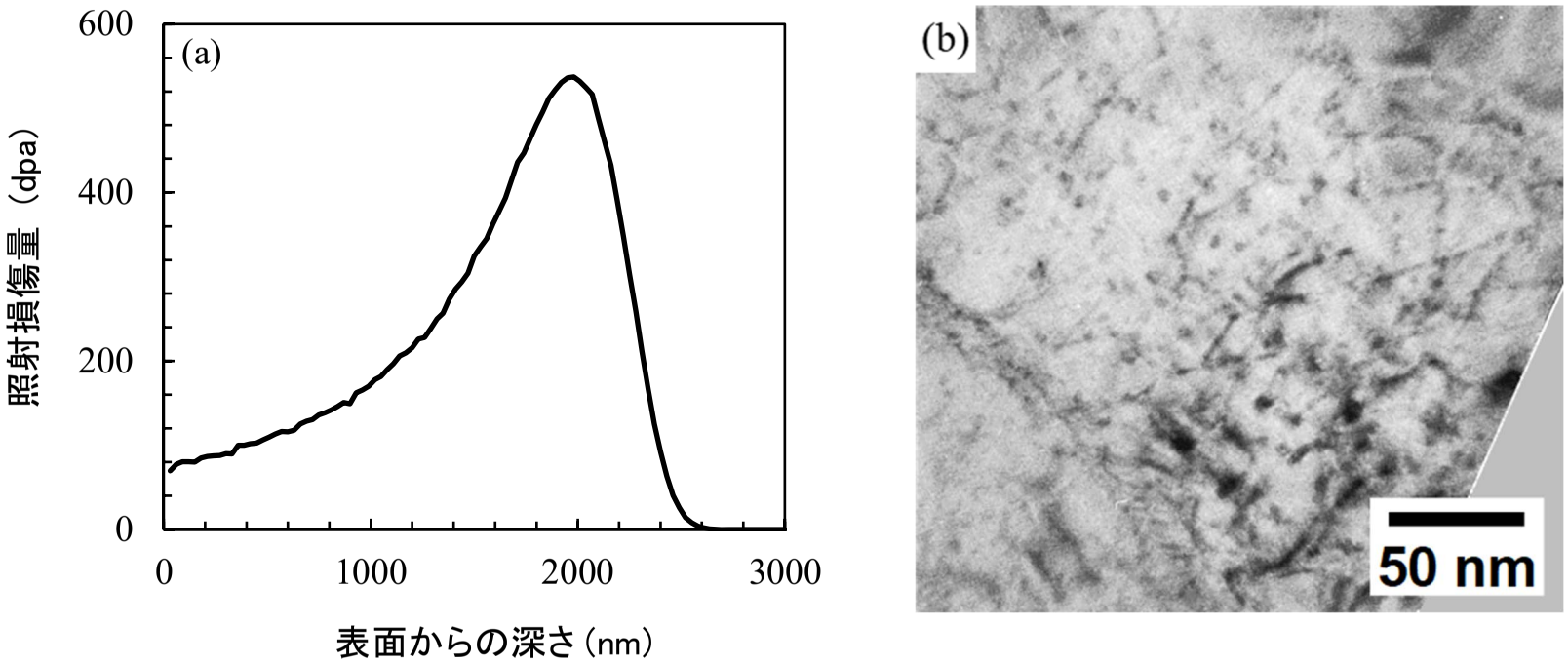


Fig. 4.1.3-10　イオン照射による 9Cr-ODS 鋼の照射下組織安定性評価結果 [4.1.3-48]、
(a) SRIM コードで計算した Fe イオン照射による損傷プロファイル、(b)Fe^{3+}イオン照射後（236 dpa）の透過型電子顕微鏡組織

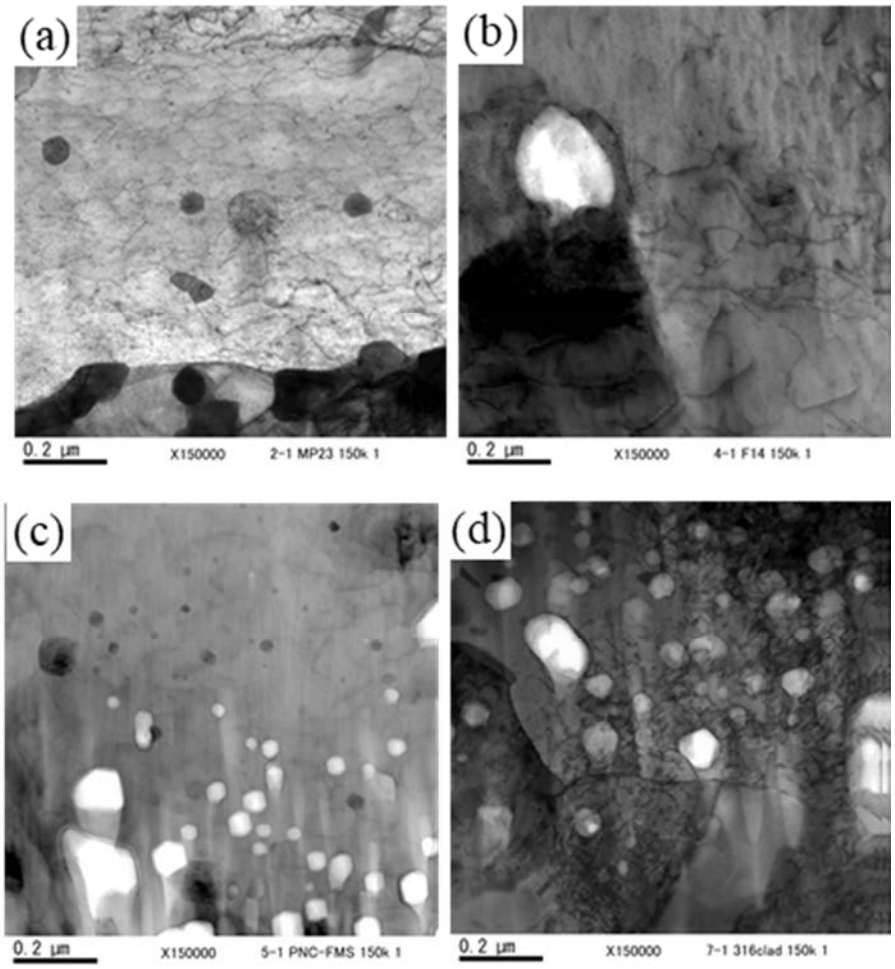


Fig. 4.1.3-11　デュアルイオン照射後の微細組織 [4.1.3-49, 50]

(a) 9Cr-ODS 鋼被覆管、(b)12Cr-ODS 鋼被覆管、(c) PNC-FMS 板材、(d) PNC316 被覆管

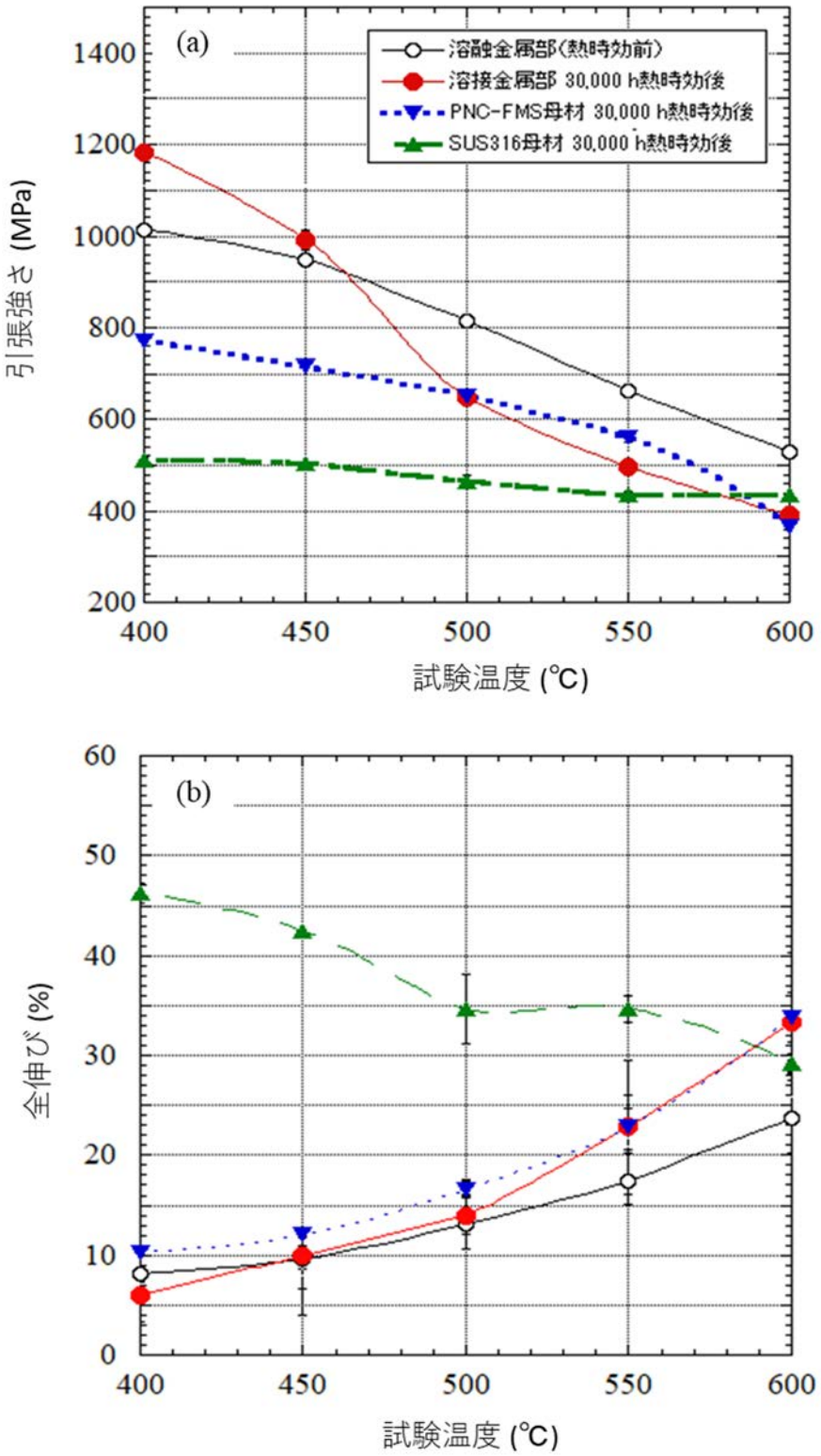


Fig. 4.1.3-12　高温長時間熱時効後の PNC-FMS/316 異材溶接部の引張試験結果 [4.1.3-56)]

4.1.4　まとめと今後の計画

炉心設計では、Pu・MA 燃焼を目標とした次世代高速炉の炉心検討が進展するとともに、高次 Pu や MA に関する炉物理実験・照射試験データの収集と解析は既存データ入手可能なものについて完了した。今後、柔軟な発想でより魅力的な炉心概念の創出とともに、高精度の解析手法や妥当性確認のための実験データベースといった技術基盤の整備を、国際協力を活用して進める計画である。

MA 含有 MOX 燃料の照射挙動では、「常陽」で照射した PFB110（B11）及び PFB140（B14）の照射後試験により、U, Pu, Am の再分布挙動を評価し、Am は Pu と同様に中心空孔付近で濃度が高くなる傾向があること、その分布に関係する中心空孔径は O/M 依存性があることが確認された。ただし、これらの照射試験は照射時間 24 時間までの短期照射試験である。「常陽」運転再開後には、燃焼に伴う Am の再分布挙動等の照射挙動データの取得や燃料健全性実証データの取得を目的とした照射試験を実施する計画である。あわせて、「2.2.3 小規模 MA リサイクル試験（SmART）」に記載したとおり、軽水炉や高速炉で照射された使用済燃料から回収した MA が燃料照射に与える影響や MA の核変換挙動の評価を行うための照射試験を実施する計画である。また、照射試験の実施に向けて「3.1.3　燃料物性」や「3.1.4　データベースと機構論モデルの開発」の成果も反映した燃料設計手法の高度化を進めるとともに、照射挙動を把握するための照射後試験技術や解析技術の高度化を継続して実施する。

長寿命炉心材料開発では、高速炉燃料の高燃焼度化により MA 核変換効率の向上に寄与する ODS 鋼被覆管及び PNC-FMS ラッパ管の開発を進めた。ODS 鋼被覆管については、実用化に不可欠な量産技術の確立に向けた大型アトライターの整備、材料強度基準の策定に向けた高温・長時間強度データ等の取得を着実に進めた。特に、高温・長時間強度データの取得では、実用化段階の高速炉で想定される燃料の使用時間を超えるクリープ破断強度データを取得し、高速炉燃料被覆管としての適用見通しを得た。「常陽」運転再開後には速やかに材料照射試験を開始し、スウェリングや強度特性に及ぼす照射の影響を評価する計画である。また、続けて実施する燃料照射試験により燃料との共存性等に関するデータを取得し、材料強度基準を策定するとともに、照射環境下での性能を実証する計画である。

4.2 ADS

加速器駆動システム（ADS）は階層型核燃料サイクルにおいてMAの核変換を担う施設である。2008～2009年に内閣府原子力委員会で行われた議論では[4.2-1)]、「階層型概念は、高速増殖炉サイクルによるMAの均質リサイクル技術が所定の性能目標を満足することができないと判断されたとき、あるいは、階層型概念に基づく分離変換技術を導入した原子力発電システム体系の実現を目指すほうが技術的成立性や開発に係る費用対効果の点で勝っていると判断されたときには、開発対象として採用が検討される可能性がある。」とされており、この判断に向かって着実に推進すべき、とされている。文部科学省に設置された原子力科学技術委員会群分離・核変換技術評価作業部会が2013年にとりまとめた「群分離・核変換技術評価作業部会中間的な論点のとりまとめ」[4.2-2)]でも、「我が国の原子力発電システムへの群分離・核変換技術の本格導入について検討する段階では、「発電用高速炉利用型」のサイクル概念と、ADSによる「階層型」サイクル概念について、技術的成立性や費用対効果の点に関し、相互比較評価を行った上で判断されることが適当である。」と、同様の記載がなされている。

これらを受け、JAEAではADSを用いた階層型分離変換システムの実現性、実用性等の判断に向けて、システムを構成する各要素に対する技術基盤の確立を目指して研究開発を実施している。

ADSの研究開発は大きく以下の4個の技術分野に跨っている。それぞれ、対応する節を示した。

- 炉物理・核データ　4.2.1項、4.2.2項
- プラント機器開発・安全　4.2.3項
- 鉛ビスマス技術・材料　4.2.4項、4.2.5項
- 加速器　4.2.6項

炉物理・核データ分野では、陽子・中性子輸送計算によるMAを主成分とする炉心設計、未臨界度管理技術、核データ不確かさ評価および精度向上などを行ってきた。これらの開発は、ADSが従来の臨界炉と異なり、陽子と結合されて未臨界で運転されること、また、MAの核データには不確かさの影響が大きいことから、ADS独自であり、炉物理実験、核データ実験と解析コードの開発を組み合わせて実施している。

プラント機器開発・安全の分野では、流動・構造解析により炉内機器の設計や過渡事象の予測を行っている。特にビーム窓の設計では、流速の大きい液体金属によって、高発熱の薄板が冷却される設計となっており、陽子輸送・流動・構造の連成解析が必要となる。その他、除熱機能喪失などの過渡事象における液体金属の流動など、大規模な解析による研究開発を行っている。

鉛ビスマス技術・材料では、これまで国内原子炉では用いられたことのない鉛ビスマス共晶合金（LBE）を用いるために、LBEループを用いた取り扱い経験の蓄積、流量計・酸素濃度計などの計測制御技術の開発、熱流動試験などを行っている。腐食性の高い鉛ビスマスを、高照射下で用いるための材料開発はADSの成立性を左右する開発要素であるため、既存施設を活用した腐食試験、照射試験などを行っている。また、材料開発を効率的に進めるために、計算科学による腐食メカニズムの解明などを行っている。

加速器開発においては、エネルギー効率と信頼性の向上のために、全エネルギー領域で超伝導化した設計を行っている。これまで高エネルギー領域のみを超伝導した設計であり、加速空洞の試作も高エネルギー領域のみで実施していたため、新たに、低エネルギー領域に対応した加速空洞の試作を進めている。また、ADS の安定的な運転に必要となるビーム形状の監視技術を開発している。

これらの ADS の研究開発をより効率的に進めるため、計算科学を活用した PSi（Proton accelerator-driven Subcritical virtual system）プロジェクトを立案した。このプロジェクトでは、ADS の実現に向けて、最小限の実験で合理的な設計を目指し、ADS を仮想的にシミュレートし「Design by Analysis」を実現することを目的としている。Fig. 4.2-1 に PSi プロジェクトの概念図を示す。プロジェクトは、PSi -D、PSi -X そして実験から構成される。PSi-D（Design）では、設計の効率化、合理化を目指し、解析システムを整備し、これを用いて解析、検討を進める。PSi-X（eXperiment）では、実験が難しい課題に対して、その代替を目指す大規模・高精度な計算を行う。また、PSi-D で整備された解析システムの検証にも役立てる。また実際に実験を実施することで、各コードの V&V を行うとともに、物性値などの基礎データを供給する。

PSi の概念は ADS の様々な研究開発分野に用いられる。例えばビーム窓の開発においては、PSi-D として効率的な設計検討に資する粒子輸送・熱流動・構造の連成解析システムを構築しているが、これは、ユーザーインターフェースが成熟されている商用コードを中心とし、解析コストが低い時間平均の解析手法を用いている。一方、PSi-X として、多相多成分詳細熱流動解析コード JUPITER[4.2-3)]コードを用いて核破砕ターゲット内の LBE 流れを時間依存で詳細に解析し、上述のビーム窓連成解析システムとの比較によって信頼性を高めようとしている。このように、本来、大規模な実験を通じて得られるデータを、計算科学を駆使して得ることにより、大規模実験施設等の建設を極力避け、合理的・効率的な研究開発を進めている。

参考文献

4.2-1) 原子力委員会 研究開発専門部会 分離変換技術検討会, 分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方, 平成 21 (2009) 年 4 月 28 日, http://www.aec.go.jp/jicst/NC/senmon/bunri/houkokusho-090428.pdf (accessed 2022/7/15).

4.2-2) 文部科学省 科学技術・学術審議会 研究計画・評価分科会 原子力科学技術委員会 群分離・核変換技術評価作業部会, 群分離・核変換技術に係る研究開発の今後の進め方について, 平成 25（2013）年 11 月, https://www.mext.go.jp/component/b_menu/shingi/toushin/__icsFiles/afieldfile/2014/01/28/1341663_2.pdf (accessed 2022/7/15).

4.2-3) S. Yamashita, T. Ina, Y. Idomura, et al., “A numerical simulation method for molten material behavior in nuclear reactors”, Nucl. Engineering and Design, 322, (2017) pp.301-312.

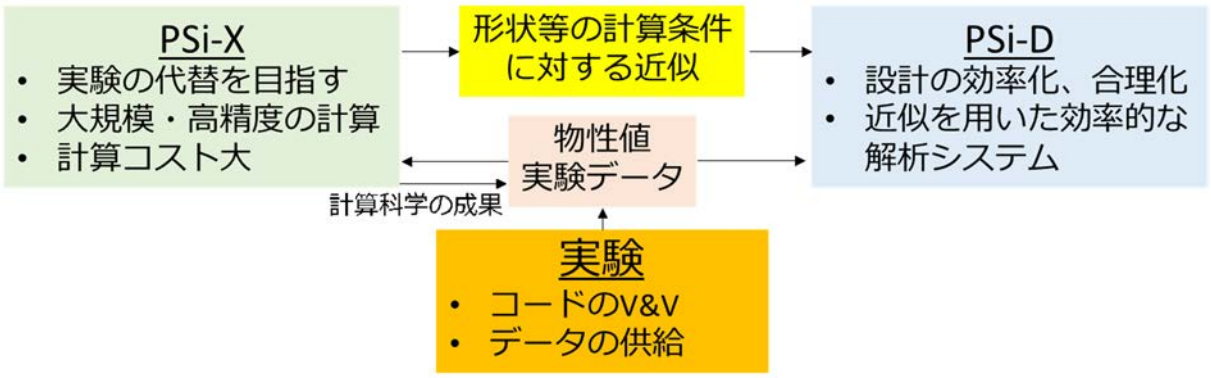


Fig. 4.2-1　PSi プロジェクトの概念図

4.2.1 炉心設計

4.2.1.1 最大実効増倍率の再検討

ADS は未臨界状態で運転することから、実効増倍率の値を適切に保つ必要がある。特に実効増倍率の最大値については､安全性の点から決して臨界に到達しない値を設定する必要がある。一方で、実効増倍率を低く設定すると、出力を保つために体系内の中性子の数を増やす必要があり、これを補償するために陽子ビーム電流値を増やす必要がある。陽子ビーム電流値の増加はビーム窓の設計条件を厳しくすることから、実効増倍率はできるだけ 1 に近い値にすることが望ましい。

これまでの ADS 炉心設計では、最大実効増倍率を 0.97 と設定して検討を進めてきた。これは様々な事故事象で投入される反応度、測定や解析の不確かさを評価し、これらを考慮しても実効増倍率 k_{eff} が 1 に達しない裕度を考慮して以下のように設定された。

$$k_{eff} < 1 - \delta k_{eff}^{TD} - \delta k_{eff}^{AC} - \delta k_{eff}^{UM} - \delta k_{eff}^{UC} \ , \qquad (4.2.1\text{-}1)$$

ここに δk^{TD}_{eff} は起動時の出力変化に伴う反応度変化、δk^{AC}_{eff} は事故時に投入される反応度変化、δk^{UM}_{eff} は反応度測定の不確かさ、δk^{UC}_{eff} は反応度解析の不確かさである [4.2.1-1)]。本検討では、過去の検討例をもとにして反応度の再計算および不確かさを再評価し、最大実効増倍率の設定に反映させた [4.2.1-2)]。

再検討した各反応度を Table 4.2.1-1 に示す。過去の検討との大きな違いは、反応度解析の不確かさの値である。過去の検討ではこの値を 1000 pcm としていたが、本検討では文献 4.2.1-3) で検討した MA 炉物理実験の効果を考慮し、MA 核種の核データ起因不確かさを低減できるものとして評価した。その結果、実効増倍率は 0.989 以下であれば臨界に達しないことが示された。この結果をもとに、0.989 を最大実効増倍率として設定し、さらに裕度を見込んだ 0.98 を第 1 サイクル BOC（Beginning of Cycle）の実効増倍率として設定した。

4.2.1.2 分離変換サイクルと整合の取れた ADS 炉心の検討

これまでの ADS 炉心設計では、PWR 45 GWd/t 燃焼使用済燃料を対象とし、7 年冷却後の組成を用いていた。このとき、TRU は Pu と MA（Np, Am, Cm）に分けられ、最初のサイクルのみ Pu と MA の混合物とし、第 2 サイクル以降は MA のみが、燃焼した分だけ追加されるという想定となっていた。またこれらの組成は、理想的な条件が想定され、ウランやその他の不純物が含まれていなかった。しかし実際には、軽水炉使用済燃料の分離の過程において、ウランや不純物、特に希土類元素（RE）が含まれることが考えられる。また、ADS 使用済燃料の再処理の過程においても、RE が随伴することが考えられる。本検討では、JAEA で開発された高レベル放射性廃液から放射性核種を分離する SELECT プロセス [4.2.1-4)]に基づき、より現実的な MA 燃料組成を検討した [4.2.1-5, 6)]。

Table 4.2.1-2 に SELECT プロセスに基づき検討した Pu および MA の組成を示す。Pu には約 15%のウランが混入する。また MA については、Np を含む場合（Case1）と含まない場合（Case2）について検討したが、どちらのケースについても約 4%の RE が混入する結果となった。Case1 は Np を約 20%含む一方で、Case2 は Am が 9 割を占めている。

検討した組成を用いて、ADS 炉心設計を行った。解析には ADS3D コード [4.2.1-7)]を用い、核

データライブラリには JENDL-4.0 を用いた。解析に用いた計算モデルを Fig. 4.2.1-1 に示す。このモデルを使用して、1 サイクル 600 日、10 サイクル運転時の燃焼計算を行った。解析結果の例として、実効増倍率および陽子ビーム電流値の変化を Fig. 4.2.1-2 に示す。解析の結果、Case1、2 ともに、設定した 5 つの制限値（実効増倍率上限[3]、陽子ビーム電流値上限、MA 核変換量下限、被覆管表面温度上限、MA 燃料製造に関するパラメータ）をすべて満足する結果を得た。

以上の結果から、SELECT プロセス由来の燃料組成で、Np ありなしの 2 概念を検討し[4]、全ての制限値を満足する結果を得た。これらの概念は、これまで検討されてきた概念と異なり、ウランや RE が含まれるものの、核変換性能は悪化せず、成立性の見込まれる炉心概念である。この ADS 概念の主要なパラメータを Table 4.2.1-3 および Table 4.2.1-4 にまとめる。

参考文献

4.2.1-1) Y. Kim, W.S Park, R.N. Hill, “An investigation of subcriticality level in accelerator-driven system”, Proc. PHYSOR-2002. Seoul, Korea (2002).

4.2.1-2) T. Sugawara, R. Katano, K. Tsujimoto, “Impact of impurity in transmutation cycle on neutronics design of revised accelerator-driven system”, Annals of Nuclear Energy, 111 (2018) pp.449-459.

4.2.1-3) H. Iwamoto, K. Nishihara, T. Sugawara, et al., “Sensitivity and uncertainty analysis for an accelerator-driven system with JENDL-4.0”. J. Nucl. Sci. Technol. 50, (2013) pp.856–862.

4.2.1-4) Y. Ban, H. Suzuki, S. Hotoku, et al., “Extraction of trivalent rare earths and minor actinides from nitric acid with *N,N,N',N'*-tetradodecyldiglycolamide (TDdDGA) by using mixer-settler extractors in a hot cell”, Solv. Extr. Ion Exch., 37, 1, (2019) pp. 27-37.

4.2.1-5) T. Sugawara, Y. Ban, R. Katano, et al., “Design of accelerator-driven system consistent to partitioning technology”, Proceedings of International Conference on the Management of Spent Fuel from Nuclear Power Reactors 2019 (Internet).

4.2.1-6) 菅原隆徳, 森口大輔, 伴康俊, 他,“加速器駆動核変換システムの MA 燃料組成およびその除熱に関する再検討”, JAEA-Research 2021-008 (2021), 63p.

4.2.1-7) T. Sugawara, K. Nishihara, H. Iwamoto, et al., “Development of three-dimensional reactor analysis code system for accelerator-driven system, ADS3D and its application with sub- criticality adjustment mechanism”, J. Nucl. Sci. Technol., 53, 12, (2016) pp. 2018-2027.

[3] 4.2.1.1 節で設定した最大実効増倍率 0.989 を上限として設定した。

[4] 文献 4.2.1-6) における議論では、Np ありの方が 1000 年後の潜在的放射性毒性の低減効果が大きい。

Table 4.2.1-1　再検討した各反応度効果（単位,pcm）

	第 1 サイクル BOC	第 10 サイクル BOC
δk^{TD}_{eff}, システムダウン時*1	223	257
δk^{AC}_{eff}, ビーム窓破損	114	130
LBE 温度上昇*2	386	333
δk^{UM}_{eff}, 測定の不確かさ	200	200
δk^{UC}_{eff}, 解析の不確かさ*3	400	400
Total*4	1100	1063
k_{eff} (=1-total)	0.98900	0.98937

*1　定格運転状態からシステムダウン時に移行した時の反応度

*2　LBE 温度 500 ℃上昇を仮定

*3　文献 4.2.1-3)で検討された MA を伴う炉物理実験が行われた場合

*4　事故時（δk^{AC}_{eff}）と同時に起こらない、かつ δk^{AC}_{eff} より値が小さいことから δk^{TD}_{eff} を除く

Table 4.2.1-2　SELECT プロセスに基づく Pu および MA の組成（単位,at%）

核種	Pu	核種	MA(Case1)	MA(Case2)
U-235	0.18	Np-237	18.95	0.00
U-236	0.09	Am-241	57.10	71.11
U-238	14.71	Am-242m	0.11	0.14
Np-237	0.25	Am-243	15.05	18.75
Pu-238	2.12	Cm-243	0.05	0.06
Pu-239	48.88	Cm-244	4.23	5.26
Pu-240	19.18	Cm-245	0.39	0.49
Pu-241	9.42	Cm-246	0.03	0.04
Pu-242	5.17	RE	4.09	4.14

Table 4.2.1-3　ADS プラントの主要なパラメータ

熱出力	800 MW
冷却材	LBE
冷却材入口温度	300 ℃
冷却材流速	2.0 m/s
実効増倍率（1st BOC）	0.98
1 サイクル	600 EFPDs
核変換量	500 kgMA/cycle
陽子ビームエネルギー	1.5 GeV
陽子ビーム電流値/出力	15 mA/22.5 MW

Table 4.2.1-4　ADS 炉心の主要なパラメータ

燃料集合体（FA）	タイプ	六角形ダクトレス
	FA 数	276
	ピッチ	134.5 mm
	幅	133.5 mm
	燃料ピン数/FA	121
	タイロッド数/FA	6
燃料ピン	被覆管材料	T91 鋼
	ピンピッチ（P）	11.76 mm
	ピン外径（D）	7.65 mm
	ピン内径	6.65 mm
	P/D	1.54
	発熱部長さ	1000 mm
	全体の長さ	2930 mm

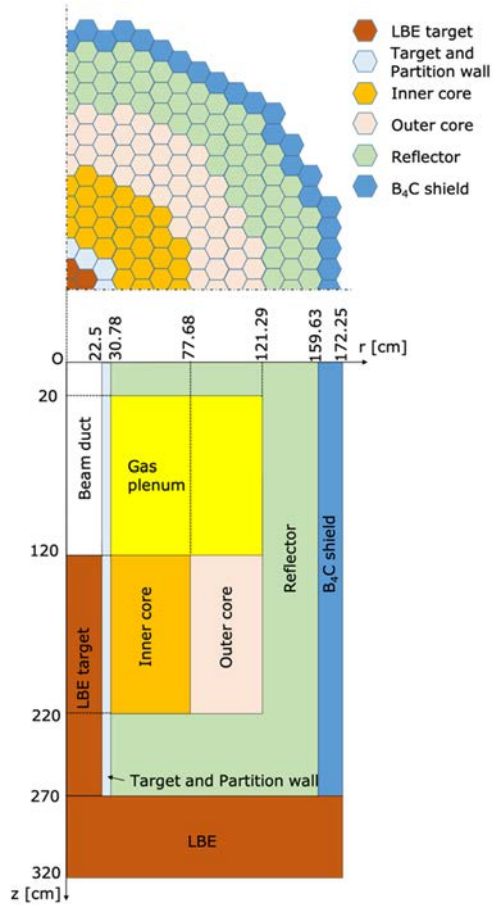
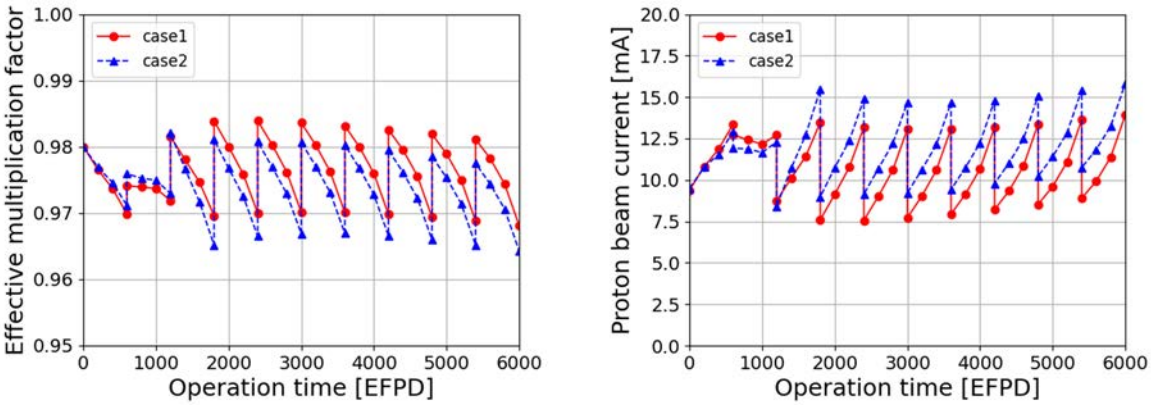


Fig. 4.2.1-1　ADS3D 解析用計算モデル



(a) 実効増倍率の変化　　(b) 陽子ビーム電流値の変化

Fig. 4.2.1-2　ADS3D による 10 サイクルの解析結果

4.2.2 炉物理および核データ

4.2.2.1 未臨界度測定手法の開発

MA を多量に装荷した原子炉では、実効遅発中性子割合が小さく（200 pcm 未満）即発臨界までの余裕が小さくなるうえ、ドップラー反応度が小さいことから、臨界状態の運転では実用的な制御を行うことが困難である。そこで ADS は炉心を未臨界とすることで安全性を高めている。一方で、一般に炉心の未臨界度は浅いほど中性子源から発生した中性子の利得が良く、同じ中性子源強度でもより効率的に核変換が可能となる。ADS では MA の高速中性子による核分裂反応を利用した中性子経済の効率化を加味した核変換を狙っているため、安全性と経済性を考慮した未臨界度（現在の設計では実効増倍率で 0.98）が設定される。したがって、ADS が常に未臨界であること、また所定の未臨界度であることを測定によって確かめられなければならない。本研究では、高精度な未臨界度測定に向けて新たに線形結合法 4.2.2.1-1-3)を開発した。また、運転前段階において決して臨界に達することなく安全に所定の未臨界度へ近接させる手法を考案した。さらに、ADS のオンライン未臨界度監視の実現可能性検討として、京都大学臨界集合体（KUCA）で実施したオンライン未臨界度測定実験を行った 4.2.2.1-4)。

(1) 線形結合法の開発

本研究ではパルス中性子源法に分類される α-fitting 法（又は Simmons-King 法）4.2.2.1-5)の高度化に向けて、線形結合法を考案した。

パルス中性子源法は、加速器を用いて中性子パルスを発生させ、測定対象の未臨界体系の中性子計数を観察することによって未臨界度を推定する。α-fitting 法では、中性子計数率の減衰を指数関数でフィッティングし、求められる時定数 α（即発中性子減衰定数）を未臨界度に換算し測定を行う。しかし、特にパルス入射直後の中性子計数率は単一の指数関数で表現できず、中性子計数率の減衰の速さは検出器の位置に応じて異なって測定されることが知られている。通常、α-fitting 法では、パルス入射直後のデータをある時間までマスキングすることで中性子源と検出器の位置の効果の低減を図るが、単一の指数関数で減衰する準定常状態に至るまでの時間が検出器位置によって異なるため、位置依存性による不確実性が残る。線形結合法は、複数の検出器から得られる中性子計数率の線形結合を取って合成し、中性子源と検出器の位置関係の効果を相殺させることによって単一の指数関数を抽出し、未臨界度測定の高精度化を図る手法である 4.2.2.1-1)。

線形結合法の妥当性を実験的に確認するために、京都大学臨界集合体（KUCA）の A 架台（KUCA-A 架台）での FFAG（Fixed Field Alternating Gradient）加速器を用いたパルス中性子源実験を行った 4.2.2.1-3)。本実験体系の実効増倍率および即発中性子減衰定数の連続エネルギーモンテカルロ計算コード MCNP-6.2 と JENDL-4.0 による解析値はそれぞれ約 0.97 および 1200 [1/s]である。

Fig. 4.2.2.1-1 に炉内の異なる場所に配置された 6 個の検出器からの中性子計数を、Fig. 4.2.2.1-2 に従来の α-fitting 法よる α の測定結果を示す。Fig. 4.2.2.1-2 に示されるとおり、測定結果は検出器位置に大きく依存していることがわかる。マスキングする時間を大きくすると位置依存性は小さくなるが、中性子計数が減衰してしまっているため、統計的不確かさが大き

くなっている。

Fig. 4.2.2.1-3 および Fig. 4.2.2.1-4 にそれぞれ線形結合法によって合成された中性子計数とα の測定結果を示す。Fig. 4.2.2.1-3 から分かるとおり、合成された中性子計数は元の中性子計数と異なり、単一の指数関数で減少していることがわかる。このことから、期待どおり中性子源と検出器の位置関係の効果が相殺されていることが確認できる。また Fig. 4.2.2.1-4 から従来のα-fitting 法と異なり、マスキング時間の依存性も大きく低減されていることが確認できた。

ただし、KUCA-A 架台はウラン燃料とポリエチレン減速/反射体を用いた熱中性子体系である。これは MA が多量に装荷された、鉛ビスマス冷却の高速体系である ADS とは大きく異なっている。したがって、より実機に近い条件での実験的妥当性確認が将来の課題である。また、線形結合法では α の推定時に従来の α-fitting 法に比べてより複雑な非線形反復計算を要することから、オンライン監視に必要な即時性が課題となる可能性がある。

(2) 未臨界近接手順の考案

ADS は常に未臨界であることが必要であるため、運転前段階においては未臨界度を監視しながら所定の未臨界度へ安全に近接するよう、追加すべき燃料集合体数を決めることが必要である。前述のパルス中性子源法は未臨界度の絶対値測定が可能な手法であることから、ADS の未臨界度監視手法として実用的である。しかし、パルス中性子源法は加速器が必要であり、陽子を導入するビームダクトと燃料交換機との案内筒が共通している ADS に対しては、毎回の燃料集合体装荷操作後の適用は実用的ではない。

そこで、本研究では、燃料装荷中の未臨界度監視手法として、MA の自発核分裂源を用いた中性子源増倍（NSM）法を併用することで、効率的にかつ安全に目標未臨界度へ近接させる手順を考案した。本手順は、臨界体系での臨界近接で広く用いられる手順を参考にしている。Fig. 4.2.2.1-5 に本手順の概念図を示す。まず、炉心中心付近のみに燃料集合体の一部が装荷された十分深い未臨界度の初期状態において炉心にビームダクトを挿入し、加速器をパルスモードで運転し、パルス中性子源法によって未臨界度の絶対値測定を行う。続いて、燃料集合体をいくつか装荷し、MA 自発核分裂源のみを用いて NSM 法によって装荷後の未臨界度を推定する。現在のステップの未臨界度と一つ前のステップの未臨界度を各ステップの燃料集合体数に対してプロットし、線形外挿によって目標とする未臨界度へ達すると予測される集合体数を求める。安全に近接を行うため、臨界体系での臨界近接と同様に、次のステップで装荷される燃料集合体数は外挿による予測値と現在の集合体数との差の半分以内とする。この操作を繰り返し、所定の未臨界度へ近接させる。なお、現在提案されている ADS は制御棒を持たないことから、未臨界近接は燃料集合体の装荷を以って行う。

本手順の妥当性評価を行うため、MCNP-6.2 による数値実験を行った。本検討での ADS 燃料は、燃料集合体数が 276 体の時に実効増倍率がおよそ 0.98 となるものであり、十分深い未臨界度の初期状態として 102 体装荷されている状態を選んだ（この時の実効増倍率はおよそ 0.82）。この初期状態炉心においてパルス中性子源法のシミュレーションを行った。中性子源には運転状態と同じ 1.5 GeV の陽子入射による核破砕中性子源を仮定し、別途 PHITS によって

中性子源分布を求めた。高速中性子に対して高い感度を有する U-238 核分裂計数管の使用を想定し、U-238 の微視的核分裂反応率タリーを取ることで検出器をモデル化した。続く NSM 法のシミュレーションでは、燃料ピン内に一様に MA の自発核分裂源が分布していると仮定した。なお、中性子源強度（単位時間当たりの自発核分裂源から発生する中性子数）は集合体数に対して線形に増加する。また、手順からわかるとおり、初期状態でのパルス中性子源法による未臨界度測定不確かさが後段の NSM 法によって求められる未臨界度へ伝播する。本研究では初期状態の未臨界度測定不確かさとして未臨界度で 20%、実効増倍率で約 2800 pcm を見込んだ。この値は、KUCA で実施されたパルス中性子源法のベンチマーク実験 4.2.2.1-6)の解析値と実験値の差のテーブルから実効増倍率 0.82 の時の差を外挿によって予測した値である。Fig. 4.2.2.1-6 に未臨界度近接中の、固有値計算で得られた実効増倍率の参照解、NSM 法で予測された実効増倍率、および初期状態のパルス中性子源法実験から伝播する不確かさを示す。NSM 法による予測値は参照値と最大でも 550 pcm の範囲で一致することを確認した。また、初期状態では 2800 pcm であったパルス中性子源法不確かさも、最終状態では約 400 pcm に縮小することが確認された。本研究では、NSM 法不確かさとパルス中性子源法不確かさを考慮して、最終状態で 1000 pcm の測定不確かさがあると見込んだ。なお、この不確かさはあくまで燃料装荷中には初期状態を除いて一度もパルス中性子源法を用いない場合の値である。運転を行うためにはビームダクトが挿入されることから、最終状態においてパルス中性子源法を実施することが可能であるため、最終状態の未臨界度はより高い精度で求められる可能性がある。

本研究では、初期状態のパルス中性子源法の不確かさを KUCA のベンチマーク実験をもとに評価したが、ADS と KUCA では条件が大きく異なっていること、また実験値と解析値の差はパルス中性子源法による測定値と真値との差と等しいとは言えず、厳密性に欠ける評価であり、より ADS に近いパルス中性子源法の実験的検証が今後の課題である。また、本検討ではパルス中性子源法を行うための具体的な加速器パラメータについては考慮していない。今後、詳細な加速器パラメータの決定が課題となる。検出器の詳細な仕様の決定も今後の課題である。本研究では運転前の未臨界度測定について検討を行ったが、運転中の具体的な未臨界度測定シナリオの決定も望まれる。

(3) オンライン未臨界度測定手法の開発

従来、パルス中性子源法による外部中性子源を用いた未臨界度測定は、もっぱら DT 反応で生成される 14 MeV 中性子源が使用されてきた。2009 年より、京都大学において FFAG 加速器と KUCA A 架台を結合することで、核破砕パルス中性子を用いた本格的な未臨界測定実験を行える環境が世界で初めて整った 4.2.2.1-7, 8)。一方、ADS における未臨界度測定手法の課題の一つとして、炉心の未臨界度をオンラインで測定し、監視できる手法（オンライン未臨界度測定手法）の確立が重要である。この手法の測定結果に対する正確性、頑健性及び即時性の 3 つをすべて満たすことが要求される。本研究では、パルス中性子源法の中でも、特に有望とされる面積比法と α-fitting 法に着目し、京都大学の KUCA において核破砕パルス中性子源を用いたオンライン未臨界度測定実験を開始した 4.2.2.1-4)。

未臨界度測定実験は、未臨界度の浅い炉心と深い炉心の 2 つの炉心で行い、パルス陽子ビー

ムを炉心中心部の固体鉛ビスマス標的に照射し、未臨界度の指標となる反応度 ρ 及び即発中性子減衰定数 α を、それぞれ面積比法及び α -fitting 法によって測定した。測定の結果、面積比法は、オンライン測定結果に対して頑健であるものの、検出器位置によって測定結果にばらつきが観測された。一方で、α -fitting 法は、検出器位置による測定結果のばらつきは抑えられるものの、未臨界度が深くなるほどフィッティングに失敗する傾向を示し、頑健性を保証できないことが分かった。そこで本研究では、従来の最小二乗法によるフィッティング手法を改良し、ポアソン分布に基づくフィッティング手法を提案するとともに、オンライン未臨界度測定に適用した。Fig. 4.2.2-7 に、提案手法による炉心 B における未臨界度測定結果を示すように、提案手法により α -fitting 法によるオンライン測定結果に対する頑健性を高めることに成功した。なお、ADS が高速中性子体系である一方で、KUCA-A 架台は熱中性子体系であるので、今後は、ADS への適用性検討に向けて、高速中性子体系を用いた未臨界度オンライン測定の実証実験が行われることが望ましい。

参考文献

4.2.2.1-1) R. Katano, et al., “Estimation Method of Prompt Neutron Decay Constant Reducing Higher Order Mode Effect by Linear Combination,” Nucl. Sci. Eng., vol.193, no.4, (2019) pp. 431-439.

4.2.2.1-2) R. Katano, et al., “Application of Linear Combination Method to Pulsed Neutron Source Measurement at Kyoto University Critical Assembly,” Nucl. Sci. Eng., vol.193, no.12, (2019) pp. 1394-1402.

4.2.2.1-3) R. Katano, et al., “Measurement of prompt neutron decay constant with spallation neutrons at Kyoto University Critical Assembly using linear combination method,” J. Nucl. Sci. Technol., vol.57, no.2, (2020) pp. 169-176.

4.2.2.1-4) H. Iwamoto, et al., “On-line subcriticality measurement using a pulsed spallation neutron source,” J. Nucl. Sci. Technol., vol.54, no.4, (2017) pp.432-443.

4.2.2.1-5) B. E. Simmons, et al., “A Pulsed Neutron Technique for Reactivity Determination,” Nucl. Sci. Eng., vol. 3, no. 5, (1958) pp. 595-608.

4.2.2.1-6) C. H. Pyeon, et al., “Experimental Benchmarks on Kinetic Parameters in Accelerator-Driven System with 100 MeV Protons at Kyoto University Critical Assembly,” Ann. Nucl. Energy, vol. 105, (2017) pp. 346-354.

4.2.2.1-7) C. Pyeon, et al., “First injection of spallation neutrons generated by high-energy protons into the Kyoto University Critical Assembly,” J. Nucl. Sci. Technol. vol.46, no. 12, (2009) pp.1091-1093.

4.2.2.1-8) C. Pyeon, et al., “Preliminary study on the thorium-loaded accelerator-driven system with 100 MeV protons at the Kyoto University Critical Assembly,” Ann. Nucl. Energy, vol. 38, no.10, (2011) pp. 2298-2302.

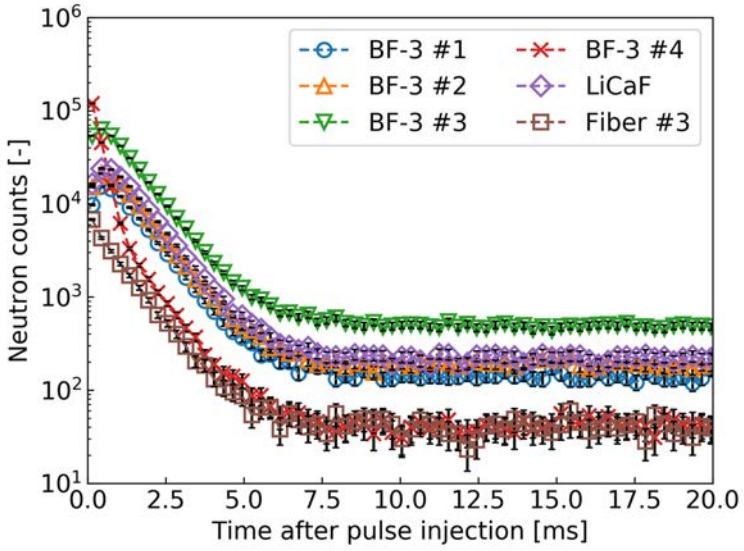


Fig. 4.2.2.1-1 中性子計数測定結果

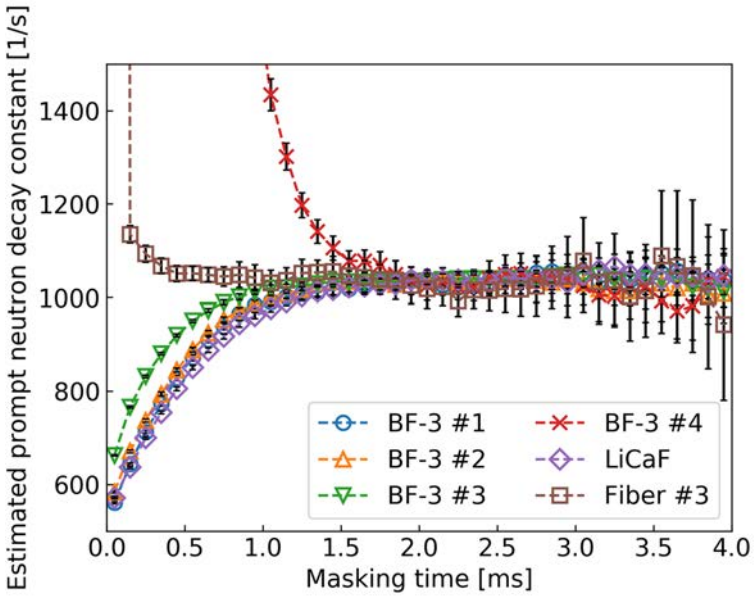


Fig. 4.2.2.1-2 α-fitting 法による即発中性子減衰定数の測定結果

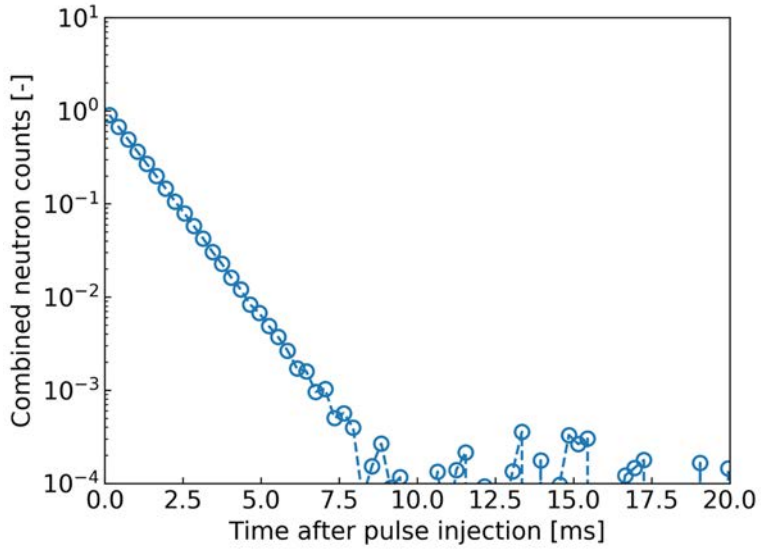


Fig. 4.2.2.1-3 線形結合法によって合成された中性子計数（切片を 1 に規格化）

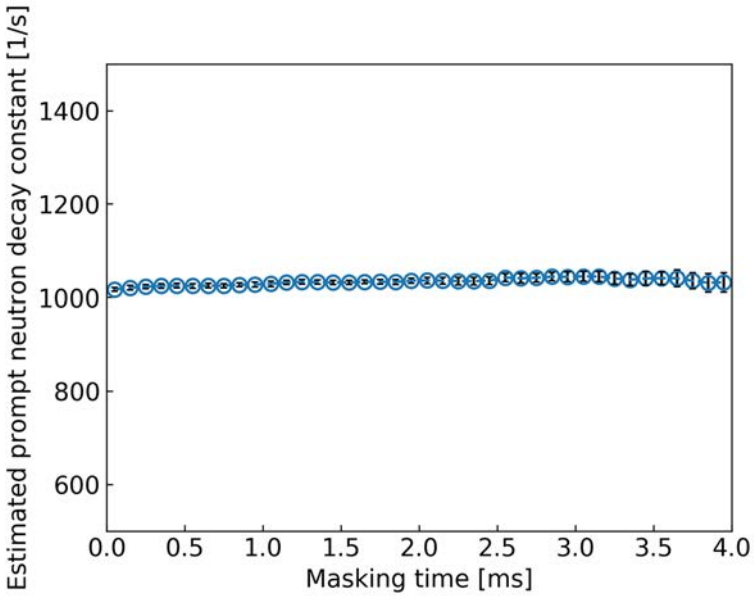


Fig. 4.2.2.1-4 線形結合法による即発中性子減衰定数の測定結果

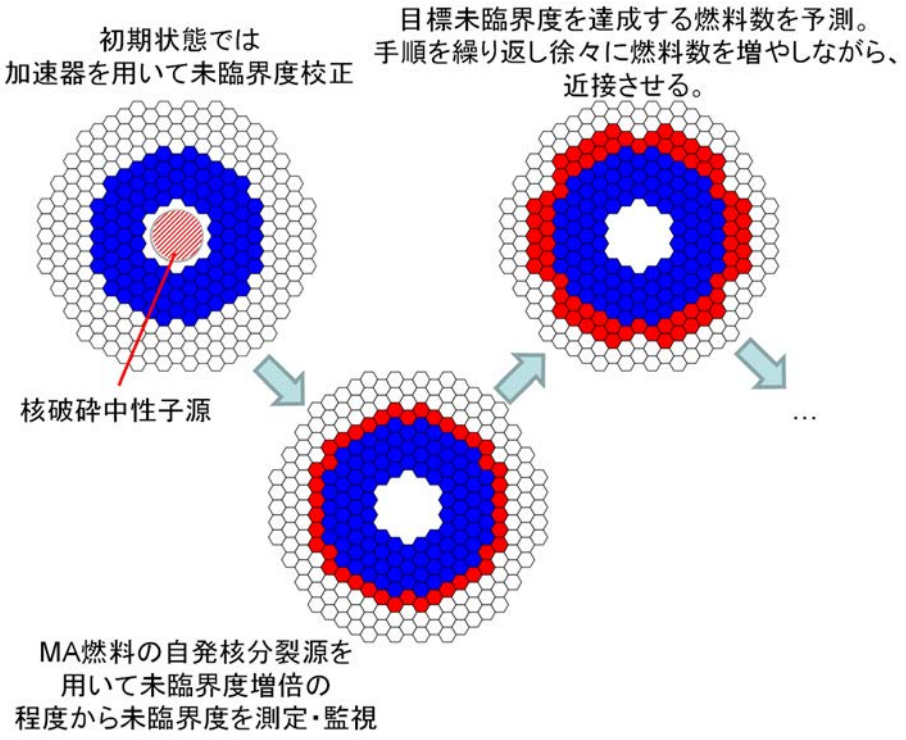


Fig. 4.2.2.1-5 未臨界度近接手順の説明
（青色: 初期状態集合体位置、赤色: 追加される集合体、白色: 集合体装荷予定位置）

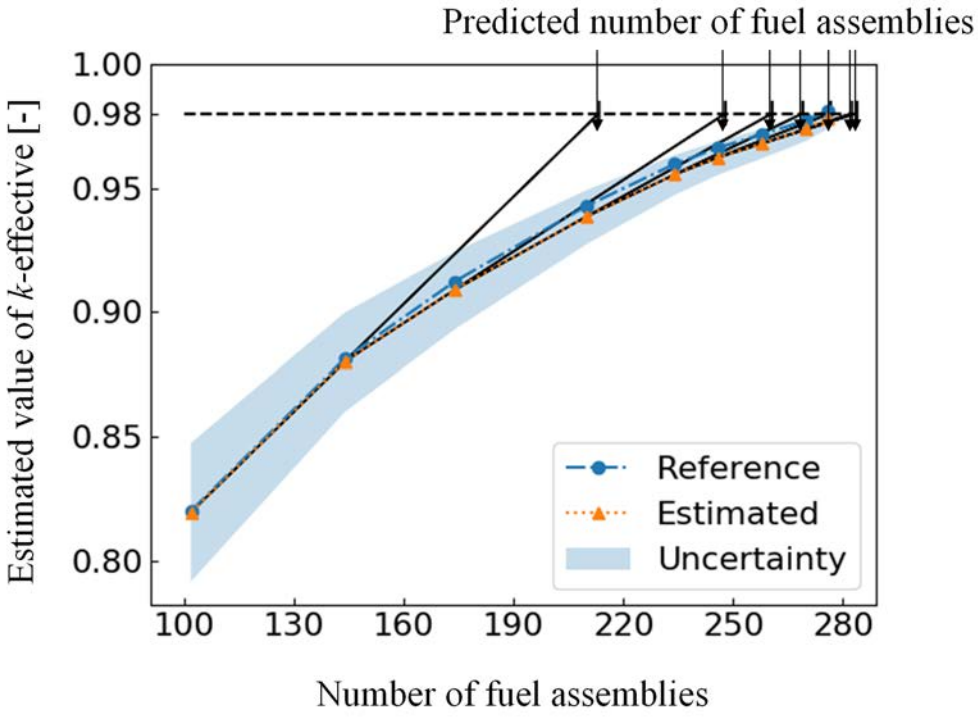


Fig. 4.2.2.1-6 未臨界度近接の数値実験結果

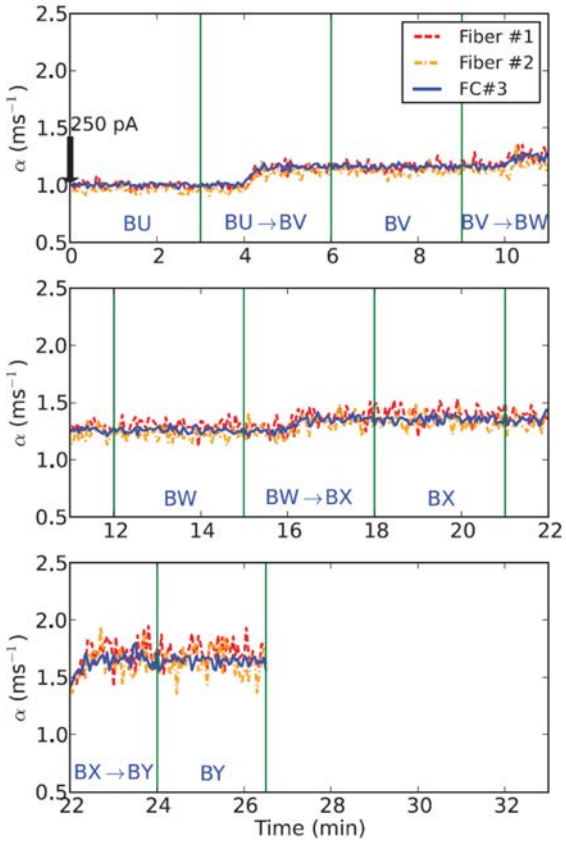


Fig. 4.2.2.1-7　深い未臨界炉心 B に対する即発中性子減衰定数の測定結果

4.2.2.2 ADS 核設計精度の検討

ADS 実機の核設計では、中性子実効増倍率（k_{eff}）や核破砕中性子収量等の核特性を、核データに起因する不確かさ（uncertainty）を含めて把握し、設計に反映することが重要である。2011 年に公開された評価済み核データライブラリ JENDL-4.0 では、核データの不確かさを表す共分散データが大幅に拡充された。さらに近年では、汎用炉心解析コードシステム MARBLE の開発及びモンテカルロ粒子輸送計算コードシステム PHITS の高度化研究が精力的に行われている。本検討ではこれらの評価済み核データライブラリ及び計算コードシステム等を用いて ADS 実機の核特性値に対する感度解析及び不確かさ解析を実施した。

(1) ADS 実機の感度解析・不確かさ解析

本解析で対象とする ADS 実機の核特性は、最も基本的な炉物理量である実効増倍率、冷却材ボイド反応度、ドップラー反応度とした。Table 4.2.2.2-1 に、JENDL-4.0 及び JENDL-3.3 を用いて得られた ADS 実機の臨界性（k_{eff}）、冷却材ボイド反応度及びドップラー反応度の解析値を示す。ここで、冷却材ボイド反応度価値及びドップラー反応度は、それぞれ燃料領域が 100%ボイド化及び 500 ℃上昇することを仮定した。解析の結果、臨界性及び冷却材ボイド反応度の評価値に、核データライブラリ間の極めて大きな差異が見られた。ADS 実機では未臨界状態で運転することを想定するため、k_{eff} の核データライブラリ間の差異は特に重大である。感

度解析の結果、鉛同位体の ^{206}Pb 及び ^{207}Pb の非弾性散乱が解析対象のすべての核特性の差異に寄与し、^{241}Am の非弾性散乱、中性子捕獲反応及びν値が臨界性の差異に寄与していることが分かった。感度解析の結果、^{206}Pb と ^{207}Pb の非弾性散乱断面積については、第一励起準位及び第二励起準位の評価値に核データライブラリ間の差異があり、これが ADS 実機の核特性の差異に起因していることが分かった。さらに、^{241}Am の中性子捕獲反応については、1 keV から数百 keV のエネルギー領域における断面積評価値の差異が臨界性の差異に起因していることが分かった [4.2.2.2-1)]。感度解析で得られた感度係数データと評価済み核データライブラリに格納された共分散データを用いて、ADS 実機の不確かさ解析を実施した。Table 4.2.2.2-2 に、JENDL-3.3 及び JENDL-4.0 の共分散データを用いて得られた ADS 実機核特性の核データに起因する不確かさを含む解析結果の比較を示す。この結果より、臨界性及び冷却材ボイド反応度に対する JENDL-3.3 及び JENDL-4.0 との差異は、1 標準偏差（1σ）の不確かさの幅を大きく超えることが明らかとなった [4.2.2.2-2)]。Fig. 4.2.2.2-1 に、ADS 実機の臨界性不確かさの反応別内訳と核種別内訳を示す。MA 核種の中性子捕獲断面積σ_{cap}及び核分裂に関するパラメータ（核分裂断面積σ_{fis}、核分裂中性子多重度（ν値）及び核分裂中性子スペクトルχ）、続いて冷却材の鉛及びビスマス、ならびに構造材の鉄の非弾性散乱断面積σ_{inl}が臨界性不確かさに大きく寄与していることが分かった。一方、冷却材ボイド反応度の不確かさに対しては、鉛、ビスマス及び鉄の寄与が比較的大きく、特にこれらの核種のσ_{inl}が ADS 実機の冷却材ボイド反応度不確かさに大きく寄与することが分かった [4.2.2.2-3)]。

ADS 実機の、燃焼初期（第 1 サイクル）及び燃焼平衡期（第 10 サイクル）に対する燃料組成における燃焼反応度に対する炉心解析及び感度解析・不確かさ解析を行った。Table 4.2.2.2-3 に、JENDL-3.3 及び JENDL-4.0 による ADS 実機の燃焼反応度解析値の比較を示す。臨界性及び冷却材ボイド反応度と同様に、燃焼反応度に対して燃焼初期で約 400 pcm、燃焼平衡期で約 600 pcm の比較的大きな核データライブラリ間の差異が見られた。感度解析の結果、ADS 実機の燃焼反応度解析値の核データライブラリ間の差異は、様々な核種・反応パラメータの評価値の差異に起因しており、特に燃焼初期では ^{238}Pu 及び ^{241}Am が、燃焼平衡期では ^{238}Pu、^{241}Am、^{244}Cm、^{206}Pb 及び ^{207}Pb が ADS 実機の燃焼反応度に比較的大きく寄与することが分かった。JENDL-4.0 共分散データを用いた不確かさ解析の結果、燃焼初期では ^{238}Pu（特に核分裂断面積及びν値）の評価値が燃焼反応度の不確かさに支配的に寄与するが、燃焼平衡期では ^{238}Pu とともに ^{237}Np、^{241}Am 及び ^{244}Cm 等の MA 核種及び冷却材の寄与も増大することが分かった [4.2.2.2-4)]。

今後は、本解析で得られた重要核種・反応の核データ検証を重点的に実施していく。

(2) ADS 感度・不確かさ解析に関する SCK CEN との共同研究

(a) XT-ADS の感度・不確かさ解析

ベルギー原子力研究センター（SCK CEN）が ADS 研究の枠組み（IP-EUROTRANS FP6）で研究を進めている実験炉級 ADS（XT-ADS）を対象に、感度解析及び不確かさ解析を実施した。感度解析により、計算体系の違いで中性子捕獲反応及び核分裂反応に対する感度係数の評価値に差異が現れることを示した。不確かさ解析の結果、XT-ADS の核データに起因する不確

かさの核種別及び反応別内訳は使用する計算コード及び計算体系によって大きく異なることが明らかとなり、共分散データのさらなる拡充と関連する積分実験の必要性を指摘した [4.2.2.2-5]。

(b) ゼロ出力高速中性子実験炉 VENUS-F の臨界性不確かさ解析

SCK CEN が ADS 研究用に開発したゼロ出力高速実験炉 VENUS-F を対象に、核特性解析、感度解析及び不確かさ解析を実施した。核特性解析の結果、評価済み核データライブラリ間で臨界性の解析値に大きな差異があることがわかった。感度解析により、その差異はライブラリ間の ^{235}U の核分裂断面積の評価値の差異に起因していることを示した。不確かさ解析により、VENUS-F 臨界性解析値の核データに起因する不確かさを評価し、その不確かさに起因する主な核種及び反応を明らかにした [4.2.2.2-6]。

(c) 実効遅発中性子割合β_{eff}の不確かさ評価手法の開発及び実機炉心への適用

実効遅発中性子割合β_{eff}は、原子炉の動特性や制御棒価値等を評価するうえで重要な原子炉に固有のパラメータであるが、この核データに起因する不確かさを、MCNP 等を用いて十分な統計精度で評価する手法は確立されていなかった。そこで、従来手法を改良し、β_{eff}不確かさ評価の計算コストを大幅に削減できる手法を提案した。Fig. 4.2.2.2-2 に、従来手法による VENUS-F 臨界炉心のβ_{eff}に対する不確かさ評価結果と提案手法による評価結果の比較を示す。これにより、JENDL-4.0 共分散データを用いた VENUS-F 臨界炉心のβ_{eff}の核データに起因する不確かさは 2.7%となることを十分な統計精度で評価できることを示すとともに、その大部分は ^{235}U のおよび ^{238}U 遅発中性子収率に起因することを示した [4.2.2.2-7]。さらに、本評価手法を、欧州各国で研究開発を進めている多目的鉛ビスマス冷却実験炉心 MYRRHA に適用し、β_{eff}に対する核データに起因する不確かさを評価するとともに、MYRRHA の核設計で重要となる核種及び反応を明らかにした [4.2.2.2-8]。

(3) 核反応モデルの変更による ADS 実機核特性解析結果の影響調査

ADS 実機の高エネルギー粒子輸送解析では、モンテカルロ粒子輸送解析コード PHITS を用いていたが、PHITS の標準仕様の核反応モデルが Bertini INC/GEM モデルから INCL4.6/GEM モデルに変更されたため、これまで旧モデルを用いて実施していた ADS 核設計の結果に影響することが懸念された。そこで本検討では、これらの核反応モデルの変更による ADS 実機の核特性解析結果の影響を調査した。Table 4.2.2.2-4 に核反応モデル間の燃焼初期 ADS 実機核特性パラメータの比較を示すように、INCL4.6/GEM と Bertini INC/GEM 間で核破砕中性子収量の評価値に 14%の差異が見られ、その結果として、陽子ビーム窓及び核破砕生成物の核特性パラメータの評価結果に影響することがわかった。核破砕中性子の計算に関する核反応モデルの妥当性を検証するため、過去に行われた 3 つの実験結果を用いてベンチマーク解析を行ったが、ベンチマーク解析結果から、核破砕中性子収量の観点でどの核反応モデルが優れているかを判断することができなかった。すなわち、核反応モデルによる核破砕中性子収量の解析結果には核反応モデル間の差異程度の不確かさを含んでいることが示唆され、ADS の核設計ではこの不確かさを考慮すべきであることが分かった [4.2.2.2-9]。今後は、J-PARC 等の加速器を利用して、核破砕中性子収量に関する実験を実施していく予定である。

(4) 感度解析手法の高度化

高速炉の炉心解析では、炉心核特性の核反応断面積に対する感度係数評価において従来では摂動論・一般化摂動論に基づいて行われてきた。しかし、摂動論では対象とする核特性毎に定義された随伴方程式を解く必要があり、燃焼や燃料交換を含む複雑な解析への実装は多大な労力を要し、また炉心核特性以外のパラメータへの適用は困難である。一方、断面積データに直接摂動を与え解析結果の変化量を求めることで感度係数を評価する直接法は実行が容易であるが、forward の解析を考慮する断面積の数だけ実行する必要があり、多群微視的断面積に対しては計算コストが大きくなる。そこで、forward 解析のみを用い、かつ直接法より少ない計算コストで感度係数を評価する adaptive smooth-lasso を提案した。本手法は、ランダムサンプリングで得られる断面積摂動と解析結果の変化量との罰則化線形回帰分析を通じて感度係数を評価する手法で、少ないサンプル数で大きな感度を有する断面積を自動で特定し、かつ感度係数のエネルギーに対する連続性と巨大共鳴や閾値反応等の不連続性を同時に考慮することで高精度に感度係数を推定する手法である。提案手法を ADS の 2 次元 RZ モデルの実効増倍率の感度係数評価に適用した。一例として、Fig 4.2.2.2-3 にサンプル数 750 の提案手法の感度係数と直接法による参照値の比較を Pu-239 のν値について示す。本手法は統計的手法に基づいているため統計誤差が生じているが、元の断面積数の 10 分の 1 以下の計算コストでおおむね感度係数を再現できることを確認した [4.2.2.2-10]。

参考文献

4.2.2.2-1) 岩元大樹, 他, “JENDL-4.0 を用いた核変換システムの解析”, JAEA-Research 2011-036 (2012), 64p.

4.2.2.2-2) H. Iwamoto, et al., “Sensitivity and uncertainty analysis for an accelerator-driven system with JENDL-4.0,” J. Nucl. Sci. Technol., vol.50, no.8 (2013) pp. 856-862.

4.2.2.2-3) H. Iwamoto, et al., “Sensitivity and Uncertainty Analysis for a Minor-actinide Transmuter with JENDL-4.0,” Nucl. Data Sheets, vol.118, no.8 (2014) pp. 519-522.

4.2.2.2-4) H. Iwamoto, et al., “Sensitivity and Uncertainty Analysis of Burnup Reactivity for an Accelerator-Driven System,” Proc. Int. Conf. on Physics of Reactors (PHYSOR 2014), Sep. 28-Oct. 3, 2014, Kyoto, Japan; JAEA-Conf 2014-003 (2014).

4.2.2.2-5) T. Sugawara, et al., “Nuclear data sensitivity/uncertainty analysis for XT-ADS,” Ann. Nucl. Energy, vol.38, no.5 (2011) pp.1098-1108.

4.2.2.2-6) H. Iwamoto, et al., “Sensitivity and uncertainty analysis of the VENUS-F critical core,” Energy Procedia, vol.71 (2015) pp.33-41.

4.2.2.2-7) H. Iwamoto, et al., “Monte Carlo uncertainty quantification of the effective delayed neutron fraction,” J. Nucl. Sci. Technol., vol.55, no.5 (2018) pp. 539-547.

4.2.2.2-8) H. Iwamoto, et al., “Sensitivity and uncertainty analysis of β_{eff} for MYRRHA using a Monte Carlo technique,” EPJ Nuclear Sci. Technol., vol.4 (2018) p.42.

4.2.2.2-9) H. Iwamoto, et al., “Impact of PHITS spallation models on the neutronics design of an accelerator-driven system,” J. Nucl. Sci. Technol., vol.53, no.10, (2016) pp. 1585-1594.

4.2.2.2-10) R. Katano, et al., “Estimation of sensitivity coefficient based on lasso-type penalized linear regression,” J. Nucl. Sci. Technol., vol.55, no.10 (2018) pp.1099-1109.

Table 4.2.2.2-1　JENDL-4.0 及び JENDL-3.3 による ADS の核特性解析結果

	JENDL-3.3	JENDL-4.0	差異（pcm）
臨界性（k_{eff}）	0.971	1.000	2936
冷却材ボイド反応度 (pcm)	5331	3876	-1456
ドップラー反応度 (pcm)	-15	-13	2

Table 4.2.2.2-2　JENDL-3.3 及び JENDL-4.0 共分散データを用いて得られた核データに起因する不確かさを含む ADS 実機の解析値の比較

	JENDL-3.3	JENDL-4.0
臨界性（k_{eff}）	0.971±0.013 (1.3%)	1.000±0.011 (1.1%)
冷却材ボイド反応度 (pcm)	5331±362 (6.79%)	3876±312 (8.06%)
ドップラー反応度 (pcm)	−15±1.0 (6.65%)	−13±0.82 (6.30%)

†各不確かさの値は信頼区間 1σ を表し、括弧内は相対誤差を表す

Table 4.2.2.2-3　ADS 実機の JENDL-3.3 及び JENDL-4.0 による燃焼反応度解析値ρの比較

	燃焼初期			燃焼平衡期		
	k_{BOC}	k_{EOC}	ρ† (pcm)	k_{BOC}	k_{EOC}	ρ† (pcm)
JENDL-4.0	0.99393	0.95616	3974	0.99005	0.97374	1692
JENDL-3.3	0.96581	0.93365	3567	0.96323	0.95322	1089
Δρ (pcm)‡	-2928	-2522	407	-2812	-2211	602

†　$\rho = -(1/k_{BOC} - 1/k_{EOC})$

‡ Δρ, JENDL-3.3 解析結果に対する JENDL-4.0 解析結果の差

Table 4.2.2.2-4　核反応モデル間の燃焼初期 ADS 実機核特性パラメータの比較

	Bertini INC/GEM	INCL4.6/GEM	相対差異
カットオフ中性子数（*n*/*p*）	45.25	38.94	-13.9%
陽子ビーム電流			
I_{BOC} （mA）	10.59	12.10	14.3%
I_{EOC} （mA）	19.92	22.82	14.6%
炉心			
燃焼反応度（pcm）	－2800	-2808	0.3%
ピーキングファクター	1.723	1.714	-0.5%
^{237}Np 核変換量（kg）	-367.4	-367.4	0.0%
核破砕標的			
^{210}Po インベントリ（Bq）	1.873×10^{17}	1.874×10^{17}	0.0%
^{127}Xe インベントリ（Bq）	4.636×10^{13}	3.555×10^{13}	-23.3%

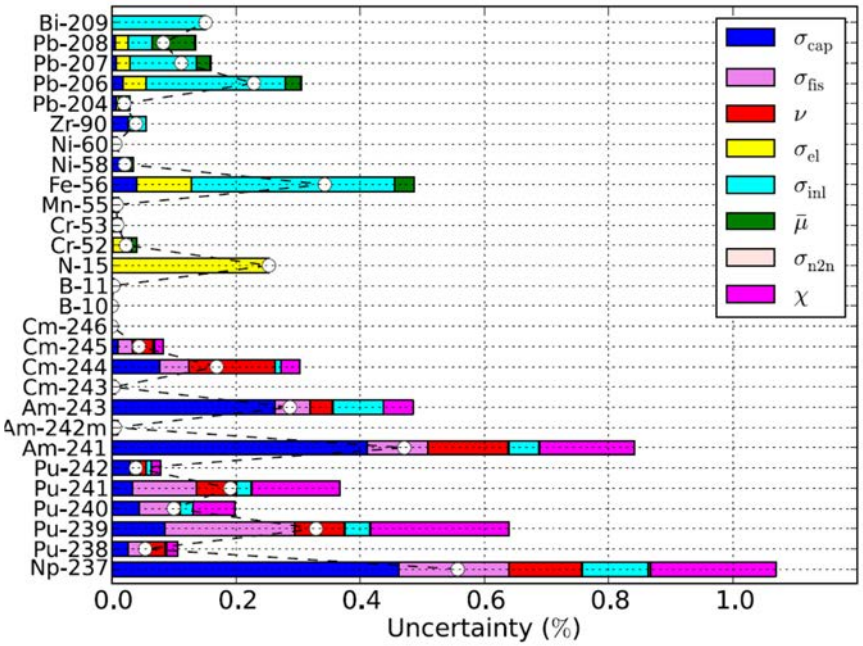


Fig. 4.2.2.2-1　ADS 実機の臨界性不確かさの反応別内訳（棒）及び核種別内訳（白丸）（凡例,σ_{cap}，中性子捕獲反応、ν, ν値、σ_{fis}，核分裂反応、σ_{el}，弾性散乱、σ_{inl}，非弾性散乱、$\bar{\mu}$，弾性散乱中性子平均方向余弦、σ_{n2n}, (n,2n)反応、χ，核分裂スペクトル）

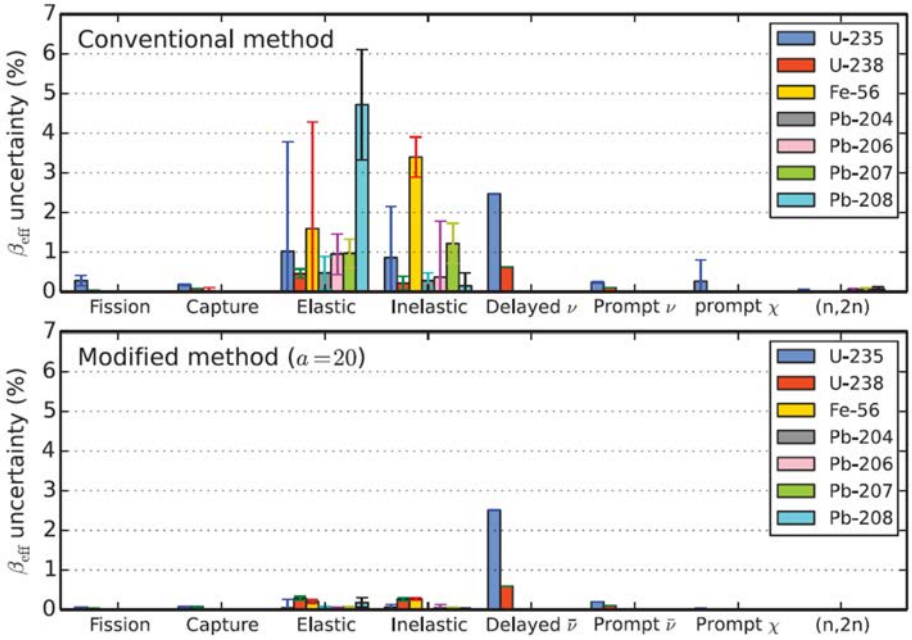


Fig. 4.2.2.2-2　従来手法による VENUS-F 実効遅発中性子割合に対する不確かさ評価結果（上）と提案手法による評価結果（下）

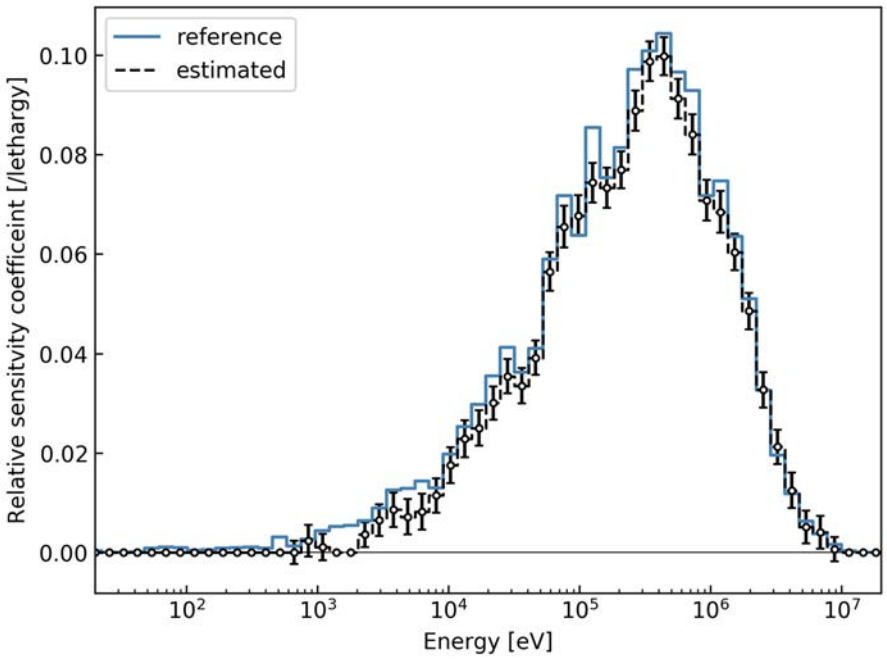


Fig. 4.2.2.2-3　ADS 実効増倍率の adaptive smooth-lasso による Pu-239/v 値の感度係数評価結果

4.2.2.3 核データ検証実験

4.2.2.2 節で記載されているとおり、ADS 実機の核設計の精度向上には、ADS の冷却材兼核破砕ターゲット材の候補である Pb と Bi、及び未臨界炉心の燃料の約半分を占める MA 核種の

核データを検証する必要がある。本検討では、国内外の臨界実験装置を用いて積分実験データを取得し、計算コードによって得られた解析値と比較することで、核データの検証を実施した。

(1) 米国の臨界実験装置を用いた鉛の核データ検証

2015 年から 2019 年にかけて米国ロスアラモス国立研究所との共同研究を実施し、米国の国立臨界実験研究センター（NCERC）の臨界実験装置 Comet を用いて、鉛ボイド反応度価値を系統的に測定した。中性子インポータンスを系統的に変化させるために、高濃縮ウラン/鉛（HEU/Pb）炉心、低濃縮ウラン/鉛（LEU/Pb）炉心及びプルトニウム/鉛（Pu/Pb）炉心の 3 つの炉心を構築した。3 炉心の入射中性子のエネルギー別中性子インポータンスを比較した図を Fig.4.2.2.3-1 に示す。図中のピンクの点線で示す、鉛核データの検証に重要なエネルギー領域内において、紫色の矢印で示す通り、3 炉心で中性子インポータンスの傾向が異なることが確認できる。核分裂断面積に閾値を持つ ^{238}U が多く装荷されている LEU/Pb 炉心では、中性子インポータンスが高エネルギー側に行くほど大きくなる傾向にある。これらの 3 つの炉心で、炉心の中央付近の鉛を段階的にアルミスペーサーに置換していくことで、鉛ボイド置換反応度を測定した。

取得した鉛ボイド反応度価値の実験データを Fig.4.2.2.3-2 に示す。3 炉心とも±3 cents 以下の実験精度で鉛ボイド反応度を系統的に測定することに成功した。高エネルギー側で中性子インポータンスが大きい LEU/Pb 炉心では、鉛をボイド化するほど中性子が減速されにくくなるため、ボイド反応度は正の値を示した。一方、高エネルギー側で中性子インポータンスが小さい HEU/Pb 炉心及び Pu/Pb 炉心では、LEU/Pb 炉心とは逆の傾向を示した。

中性子輸送解析コード MCNP 6.1 を用いて、評価済み核データライブラリ JENDL（JENDL-4.0 及び一世代前の JENDL-3.3）及び ENDF/B-VIII.0 による測定値の予測精度検証を行った。その結果、ENDF/B-VIII.0 は、全ての炉心で測定値をよく再現することが分かった [4.2.2.3-1]。一方、Fig.4.2.2.3-3 に示すように、JENDL は、バージョン 3.3 から 4.0 の改訂で測定値の予測精度は向上したものの、JENDL-4.0 は、HEU/Pb 炉心と LEU/Pb 炉心における実験データを再現する一方で、Pu/Pb 炉心では実験値を 20%以上過大評価した。詳細な分析の結果、この過大評価の原因は ^{239}Pu の評価値に起因していることが分かった [4.2.2.3-2]。ADS の燃料は ^{239}Pu を多く含む。そのため、ADS 実機の核設計の精度向上には、^{239}Pu 核データの改善が必要である。

(2) 京都大学の臨界実験装置を用いた鉛とビスマスの核データ検証

2013 年から 2020 年にかけて、京都大学の臨界実験装置 KUCA の A 架台を用いて鉛及びビスマスのボイド反応度価値測定を実施した。KUCA の A 架台はポリエチレンを用いた固体減速熱中性子体系であるが、ADS 実機の高速中性子体系に近づけるため、中央の集合体 5 体からポリエチレンを除き、熱中性子の影響を極力減らした。同領域に装荷した鉛やビスマスをアルミニウムと置換することで、置換反応度価値を測定した。

初期の実験では、鉛とアルミニウム板の置換 [4.2.2.3-3,4]及びビスマスとアルミニウム板の置換 [4.2.2.3-5]によってボイド反応度価値を測定し、鉛とビスマスの核データを検証することを試みたが、想定よりもアルミニウムの影響が大きいことが課題となった [4.2.2.3-6,7]。そこで、アルミニ

ウム板の代わりに、中空のアルミニウム製スペーサーを用いて測定を実施した。さらに、HEU 体系及び LEU 体系による反応度価値の差を調査するため、測定は、置換領域には HEU を装荷したものと HEU と天然ウラン（NU）を組み合わせた LEU を装荷した 2 つの体系で行った。

測定結果を JENDL-4.0 及び ENDF/B-VII.1 の 2 つの評価済み核データライブラリを用いた解析値と比較した。その結果、両ライブラリとも、HEU 体系では鉛とビスマスの反応度価値を過大評価する一方、LEU 体系では、ビスマス反応度価値をよく再現するが、鉛反応度価値を過大評価することが分かった [4.2.2.3-8,9]。本測定により、鉛及びビスマスに関する貴重な積分実験データを得ることに成功した。ビスマスについては依然として積分データが不足しており、今後は特に高速炉体系での測定を実施する必要がある。

(3) 京都大学の臨界実験装置を用いた MA の核データ検証

2017 年から 2020 年にかけて、KUCA の A 架台を用い、未臨界体系と臨界体系で MA の核分裂反応率測定実験を実施した。未臨界体系での測定は、同大学の FFAG 加速器からの陽子ビームを鉛-ビスマスターゲットに照射することで生成された核破砕中性子源で運転した炉心で行った。KUCA の標準的なポリエチレン固体減速体系の中心に、^{235}U と MA を同時に封入可能な BTB 核分裂計数管を装荷した。^{237}Np/^{235}U 及び ^{241}Am/^{235}U の同時測定をそれぞれ行い、0.048±0.001 及び 0.035±0.003 の核分裂率比を得た [4.2.2.3-10~12]。臨界体系での実験では、2016-2018 年に NUCEF で製作した [4.2.2.3-13]核分裂計数管を用い、Pb ボイド置換反応度測定実験と同様に HEU 炉心と LEU 炉心で測定を行った。HEU 体系では、^{237}Np/^{235}U 及び ^{243}Am/^{235}U の核分裂率比がそれぞれ 0.048±0.003 及び 0.042±0.004 となり [4.2.2.3-14]、JENDL-4.0 を用いた解析では ^{237}Np/^{235}U 核分裂比をよく再現するが、^{243}Am/^{235}U 核分裂比を過小評価することが分かった。一方、LEU 体系の ^{243}Am/^{235}U 核分裂比は 0.0422±0.0019 となり [4.2.2.3-15]、JENDL-4.0、ENDF/B-VIII.0 及び JEFF-3.3 による解析はいずれも実験値を過小評価することが分かった [4.2.2.3-16]。今後、得られた MA の反応率比の測定結果を用いて、最新の評価核データライブラリ JENDL-5 の改良及び精度検証に用いる。

(4) JAEA の高速臨界実験装置 FCA を用いた MA の核データ検証

1980 年代に高速炉臨界実験装置 FCA において 7 つのウラン炉心（FCA-IX 炉心）が構築され、MA を含む 7 つの TRU 核種（^{237}Np, ^{238}Pu, ^{239}Pu, ^{242}Pu, ^{241}Am, ^{243}Am, ^{244}Cm）の炉心中心における核分裂率比が測定された [4.2.2.3-17,18]。FCA-IX 炉心では、燃料プレート及び希釈材プレート（グラファイト又はステンレス）の単純な組合せにより燃料領域が構成され、その混合割合の調整により炉心中心の中性子スペクトルが系統的に変化させている。本研究ではこれらの実験結果をベンチマーク問題として整備し [4.2.2.3-19,20]、上記 TRU 核種に対する、主要な核データライブラリ（JENDL-4.0、 ENDF/B-VII.1 及び JEFF-3.2）の精度評価を行い、核分裂比解析値の傾向を系統的に示すことに成功した [4.2.2.3-21,22]。今後、これらの知見を JENDL-5 の改良及び精度検証に活用する。

参考文献

4.2.2.3-1) M. Fukushima, et al., “Systematic measurements and analyses for lead void reactivity worth in a plutonium core and two uranium cores with different enrichments,” Nucl. Sci. Eng., vol.194, no.2, (2020) pp.138-153.

4.2.2.3-2) M. Fukushima, et al., “Lead Void Reactivity Worth in Two Critical Assembly Cores with Differing Uranium Enrichments,” Nucl. Sci. Eng., vol.189, no.1, (2017) pp.93-99.

4.2.2.3-3) T. Sugawara, et al., “Neutronic characteristics of lead-bismuth in KUCA A core for accelerator-driven system,” KURRI Progress Report 2013, CO2-5, (2014).

4.2.2.3-4) C.H. Pyeon, et al., “Validation of Pb Nuclear Data by Monte Carlo Analyses of Sample Reactivity Experiments at Kyoto University Critical Assembly University Critical Assembly,” J. Nucl. Sci. Technol., vol.53, no.4, (2016) pp. 602-612.

4.2.2.3-5) C.H. Pyeon, et al., “Experimental analyses of bismuth sample reactivity worth at Kyoto University Critical Assembly,” J. Nucl. Sci. Technol., vol.55, no.11, (2018) pp. 1324-1335.

4.2.2.3-6) C.H. Pyeon, et al., “Sensitivity and Uncertainty Analyses of Lead Sample Reactivity Experiments at Kyoto University Critical Assembly,” Nucl. Sci. Eng., vol.185, no.3, (2017) pp. 460-472.

4.2.2.3-7) M. Fukushima, et al., “Sample worth measurements with systematically changed mixing ratios of lead and bismuth in A-core of KUCA for ADS,” KURNS Progress Report 2018, P.143 (2019).

4.2.2.3-8) R. Katano, et al., “Void reactivity measurements of Lead and Bismuth in highly-enriched uranium region at A-core of KUCA for ADS,” KURNS Progress Report 2020 (2021).

4.2.2.3-9) M. Fukushima, et al., “Sample worth measurements of lead and bismuth in low-enriched uranium region at A-core of KUCA for ADS,” KURNS Progress Report 2019, p.143 (2020).

4.2.2.3-10) A. Oizumi, et al., “Measurement of MA reaction rates using spallation neutron source,” KURRI Progress Report 2017, p.50 (2018).

4.2.2.3-11) C.H. Pyeon, et al., “First nuclear transmutation of ^{237}Np and ^{241}Am by accelerator-driven system at Kyoto University Critical Assembly,” J. Nucl. Sci. Technol., vol.56, no.8, (2019) pp. 684-689.

4.2.2.3-12) A. Oizumi, et al., “Measurement of MA reaction rates under sub-critical condition with spallation neutron source in A-core of KUCA for ADS,” KURNS Progress Report 2018, p.38 (2019).

4.2.2.3-13) 中村聡志, 他, “電着法を用いたマイナーアクチノイド線源の製作”, JAEA-Technology 2020-009 (2020), 22p.

4.2.2.3-14) A. Oizumi, et al., “Measurement of ^{237}Np and ^{243}Am fission reaction rates in lead

region at A-core of KUCA," KURNS Progress Report 2020 (2021).
4.2.2.3-15) A. Oizumi, et al., "Measurement of ^{243}Am fission rates in low-enriched uranium region at A-core of KUCA," KURNS Progress Report 2019, p.14 (2020).
4.2.2.3-16) C.H. Pyeon, et al., "Experimental analyses of ^{243}Am and ^{235}U fission reaction rates at Kyoto University Critical Assembly," Nucl. Sci. Eng., vol. 195, no.11, (2021) pp.1144-1153.
4.2.2.3-17) T. Mukaiyama, et al., "Actinide Integral Measurements in FCA Assemblies," Proc. of Int. Conf. on Nuclear Data for Basic and Applied Science, Santa Fe, USA (1985) pp.483-488.
4.2.2.3-18) S. Okajima, et al., "Benchmark test for TRU nuclear data by analysis of central fission rate ratios measured at FCA cores", Proceedings of International Conference on the Physics of Reactors (PHYSOR2008) (CD-ROM), September 14-19, 2008, Interlaken, Switzerland (2008).
4.2.2.3-19)福島昌宏, 他, "FCA-IX 炉心における TRU 核種の核分裂率比に関するベンチマーク問題の整備", JAEA-Data/Code 2014-030 (2015), 50p.
4.2.2.3-20) M. Fukushima, et al., "Benchmark models for criticalities of FCA-IX assemblies with systematically changed neutron spectra," J. Nucl. Sci. Technol., vol.53, no.3, (2016) pp. 406-424.
4.2.2.3-21) M. Fukushima, et al., "Fission rate ratios of FCA-IX assemblies as integral experiment for assessment of TRU's fission cross sections," EPJ web Conf., vol.111, (2016) pp. 07002_1-07002_5.
4.2.2.3-22) M. Fukushima, et al., "Analyses with latest major nuclear data libraries of the fission rate ratios for several TRU nuclides in the FCA-IX experiments," J. Nucl. Sci. Technol., vol.54, no.7, (2017) pp. 795-805.

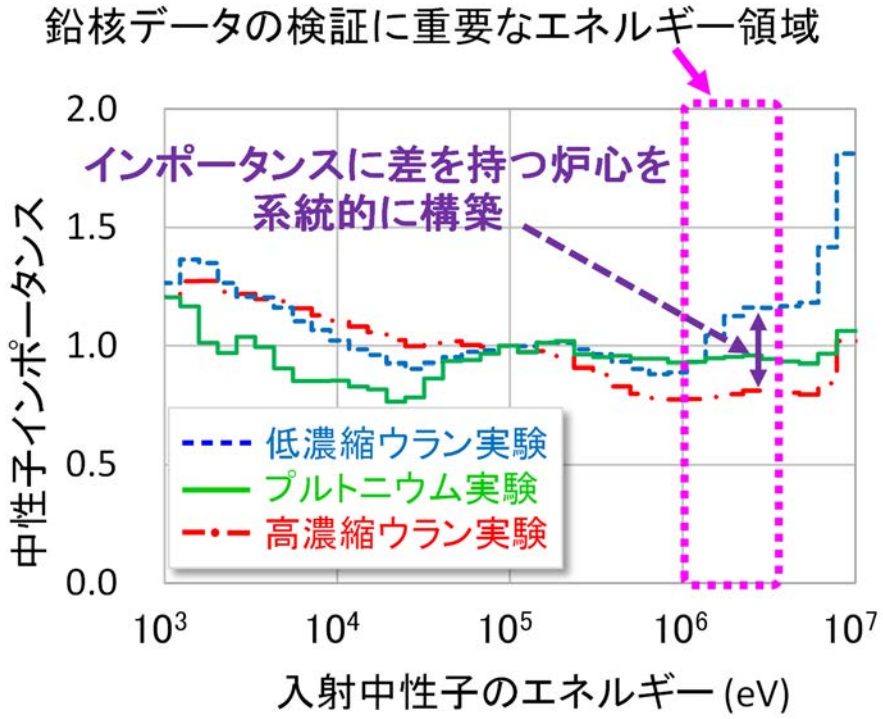


Fig. 4.2.2.3-1　Comet で構築した 3 炉心の入射中性子エネルギー別中性子インポータンスの比較

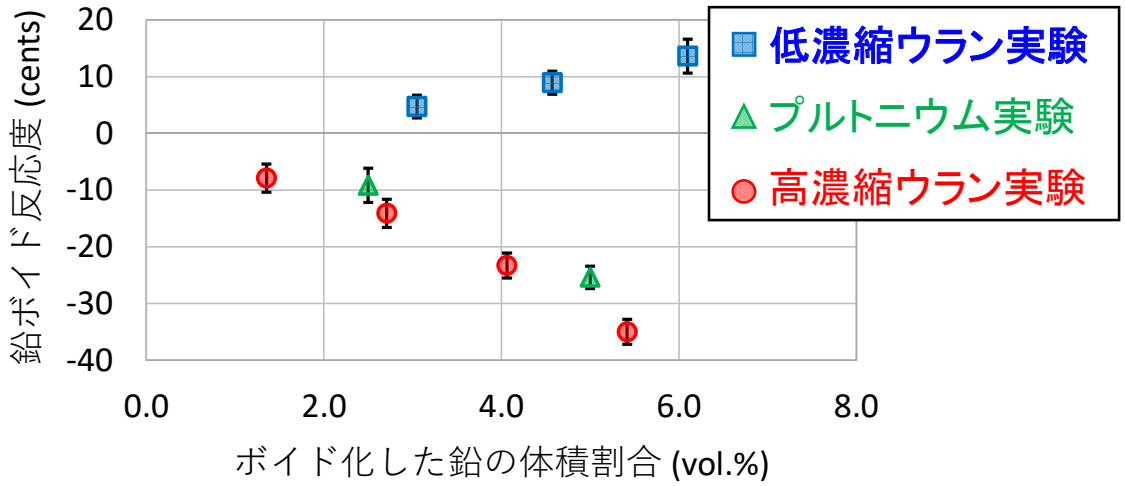


Fig. 4.2.2.3-2　Comet で測定した鉛ボイド反応度価値

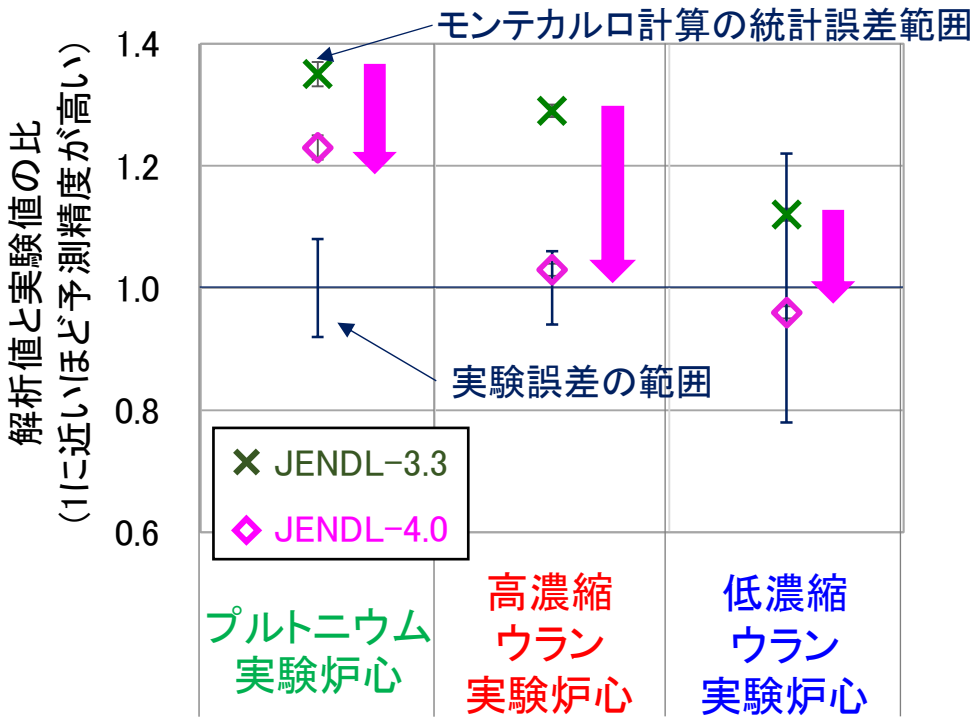


Fig. 4.2.2.3-3　Comet で測定した鉛ボイド反応度価値とその解析値との比較

4.2.2.4 高エネルギー核データ測定実験および核反応モデルの改良

(1) 180 度中性子測定実験

ADS の研究開発や高エネルギー加速器施設や核破砕中性子源施設の遮蔽設計では、核破砕反応によってビーム進行方向から 180 度方向に放出される中性子（180 度中性子）が施設の遮蔽設計に大きなインパクトを与える。しかし、数 GeV の高エネルギー陽子入射による 180 度中性子に関する実験データは存在せず、180 度中性子に対する核反応モデルの予測精度に関する実験的な検証が強く望まれていた。そこで、大強度陽子加速器施設 J-PARC の 3 GeV シンクロトロン加速器で加速された 3 GeV 陽子ビームを用いて、物質・生命科学実験施設（MLF）に設置された水銀標的から核破砕反応によって放出される 180 度中性子のエネルギースペクトルを測定し、加速器施設の遮蔽解析に用いられる放射線挙動解析コード PHITS に組み込まれた最新の核反応モデルの予測精度の検証を行った。

Fig. 4.2.2.4-1 に本測定体系を示す。本実験では、J-PARC において、3 GeV に加速された陽子ビームを MLF の水銀標的に照射し、核破砕反応によって 180 度方向に放出される中性子を飛行時間（TOF）法によって測定した。中性子検出器には小型の液体有機シンチレーションカウンタを用い、水銀標的先端部から 126.4 m 離れた位置に中性子検出器を設置した。さらに、TOF 法により求めた中性子エネルギースペクトルの妥当性検証のために、インジウム箔およびニオブ箔を中性子検出器付近に設置して、それぞれの箔に対する中性子入射反応率を放射化法により求めた。

測定で得られたエネルギースペクトルを、放射線挙動解析コード PHITS に組み込まれてい

る現標準仕様の最新の核反応モデル INCL4.6/GEM と旧標準仕様の核反応モデル Bertini/GEM による解析結果と比較した（Fig. 4.2.2.4-2）。INCL4.6/GEM による解析値は、実験値とよく一致する一方で、Bertini/GEM はエネルギースペクトルを過大に評価することがわかった。これらの結果は、放射化法によって得られた ^{115}In(n,n')^{115m}In、^{93}Nb(n,2n)^{92m}Nb、^{93}Nb(n,4n)$^{90m+g}$Nb 反応率の測定値と計算値との比較結果とも、測定および核データの不確かさの範囲内で整合することが明らかとなった。これらの結果より、GeV 領域における 180 度中性子のエネルギースペクトルに関する信頼性の高いデータを取得でき、PHITS に組み込まれている核反応モデルによる予測結果の妥当性を示すことができた [4.2.2.4-1)]。

今後は、陽子ビームのエネルギーを変えて 180 度中性子の収量およびスペクトルを測定するとともに、本実験では十分に測定できなかった 1 MeV 以下の低エネルギー中性子のエネルギースペクトルを測定することで、核破砕反応で発生する 180 度中性子のふるまいを明らかにしていくことが課題である。

(2) 高エネルギー核分裂モデルの改良

2010 年頃における初期の PHITS の核反応モデルは、核破砕反応による核種の生成量を精度よく予測できないことが、過去に実施されたベンチマークテストにより指摘されていたため、核種生成量の予測精度向上を目的として核反応モデルの改良を実施した。

過去に実施されたベンチマークでは、INCL4.6/GEM は、高エネルギー核分裂で生成される核種（核分裂片）の生成を大幅に過小評価することが指摘された。高エネルギー核分裂は、核破砕反応のプロセスの一つであり、脱励起プロセス計算コード GEM により記述される。核分裂片生成量の過小評価は、脱励起プロセス計算における核分裂確率の記述に問題があると考え、核分裂確率の記述の改良を試みた。核分裂確率の記述の改良では、核破砕反応のプロセスの一つである核内カスケードプロセスで生じた高励起原子核の情報を核内カスケードプロセス計算コード INCL4.6 によって求め、これと Prokofiev が提案した核分裂断面積系統式を組み合わせることで、核分裂確率を入射粒子および標的核に対して統一的に記述できることを提案し、このモデルを GEM に組み込んだ。

Fig. 4.2.2.4-3 に、本研究で提案した手法と従来手法による高エネルギー核分裂断面積の解析値の比較を実験値とともに示す。従来手法では核分裂断面積を大幅に過小評価していたが、提案手法は広範囲の入射エネルギーおよび標的核にわたって、核分裂断面積の実験値を再現でき、核分裂片収量予測の過小評価も大幅に改善できることを示した。さらに解析により、予測精度のさらなる向上には、核内カスケードプロセスにおける高励起核種の記述の改良が重要であることを示した [4.2.2.4-2)]。

(3) 核種生成断面積測定実験

ADS 等の研究開発では、核破砕反応によって生成される核破砕生成物に起因する放射能、発熱量およびガンマ線量を定量的に把握しておくことが重要である。これらは核破砕反応を記述する核反応モデルに基づいて評価されるが、核破砕生成物の核種生成断面積に対する核反応モデルによる解析値と実験値との間に大きな乖離があり、核反応モデルの高度化が望まれていた。

核反応モデルの高度化では、核種生成断面積データを入射エネルギーおよび標的核種に対して系統的に取得することが重要である。そこで本研究では、J-PARC において様々な標的核試料を用いて、核種生成断面積測定実験を開始した[4.2.2.4-3,4]。本実験では 3 GeV 陽子シンクロトロン加速器のビーム調整用に設置されたビームダンプへ向かうビームライン上に、標的試料駆動装置が搭載された真空チェンバを設置し、0.4 GeV、1.3 GeV、2.2 GeV および 3.0 GeV の陽子ビームを標的に照射した。照射後の試料の崩壊ガンマ線スペクトルを高純度ゲルマニウム半導体検出器で測定し、放射化法により断面積を導出した。

Fig. 4.2.2.4-4 に、測定で得られたニッケルおよびジルコニウムに対する核種生成断面積の測定値を、他の文献による測定値、核反応モデル（INCL4.6/GEM、Bertini/GEM、JAM/GEM、INCL++/ABLA07）による解析値および評価済み核データライブラリ JENDL/HE-2007 による解析値とともに示す。J-PARC の精度の高いビーム制御技術により、他の文献よりも、断面積を高精度で測定できることを確認した。測定値と核反応モデルによる解析値との比較の結果、それぞれの核反応モデルの不一致の傾向を把握することができた。これまで、ADS 構造材として重要なアルミニウム[4.2.2.4-5]、鉄[4.2.2.4-6]、銅[4.2.2.4-6]、ニッケル[4.2.2.4-7]、ジルコニウム[4.2.2.4-7]、鉛[4.2.2.4-8]およびビスマス[4.2.2.4-8]標的に対する核種生成断面積データを取得した。今後、核反応モデルの高度化に資するデータとして標的核種および生成核種断面積データを拡充していくとともに、測定不確かさの評価手法を確立することが課題である。

(4) 弾き出し断面積測定実験

原子力施設の構造材の放射線損傷の評価手法として、原子当たりの弾き出し数（dpa, displacement per atom）が広く用いられている。現状では、dpa の評価基準となる弾き出し断面積は、20 MeV 以上のエネルギー領域において測定データが数例しかなく、弾き出し断面積の計算に用いるモデルの評価・検証を行うのが困難であった。特に主要な構造材として用いられる鉄の弾き出し断面積は、20 MeV 以上の実験データがなかった。鉄は ADS のビーム窓の主要な構成要素であり、ADS の研究開発を進めるためには鉄の弾き出し損傷断面積を得ることは重要な課題の一つであった。そこで本研究では、J-PARC の 3 GeV 陽子シンクロトロン加速器施設において、0.4 – 3 GeV に対する弾き出し断面積を測定した[4.2.2.4-9~11]。

Fig. 4.2.2.4-5 に本測定体系を示す。実験では、照射試料を真空チェンバ内に設置し、照射に伴う損傷の温度による拡散を防止するため、極低温冷凍機により試料を極低温（数 K）に冷却した。その後、3 GeV シンクロトロン加速器により加速された陽子ビームを試料に照射し、陽子ビーム入射に伴う試料の抵抗率変化を測定し、抵抗率変化と断面積との関係式により弾き出し断面積を導出した。

Fig. 4.2.2.4-6 に、測定で得られた鉄に対する弾き出し断面積を、Jung による過去の実験値と PHITS による計算値およびドイツ・カールスルーエ工科大学（KIT）による評価値とともに示す。一般的な弾き出し断面積の計算に用いられる Norgertt 等による NRT モデルは、20 MeV 以下の他の実験結果をよく再現するものの、本実験のエネルギー範囲では約 3 倍程度過大評価することが明らかになった。一方、分子動力学計算に基づく非熱的な再結合補正モデル（arc モデル）による計算結果は、本実験および他の実験結果と測定の不確かさの範囲で一致し、20 MeV

以上の dpa の計算には arc モデルの適用が必要であることを示した。

(5) 機械学習による核反応断面積の推定

(3)節で示したように、現状の核反応モデルは、核破砕反応のメカニズムをよく記述できるが、核種生成断面積を精度よく予測するためには、さらなるモデルの高度化が必要である。 しかしながら、核反応モデルの高度化は、モデルの組み込みやモデルパラメータの最適化などに多大な時間と労力を要する。そこで本研究では、機械学習技術の一つであるガウス過程モデルに着目し、この技術を応用して、実験データから断面積を直接推定する手法を提案した。Fig. 4.2.2.4-7 に、提案手法によって得られた ^{nat}Ni(p,x)^{7}Be 反応断面積の推定結果を、核反応モデル INCL4.6/GEM および評価済み核データライブラリ JENDL/HE-2007 の評価値とともに示す。Fig. 4.2.2.4-7 のように、最新の理論モデルでも核種生成断面積を精度よく予測することは難しく、計算値と実験値との間に乖離が存在する。一方、提案手法は、実験データを学習しながら断面積を推定するため、推定値と実験値との大幅な乖離は原理的に起こらない。提案手法を用いることで、最新の理論モデルでは評価が困難な断面積を推定できることを示した [4.2.2.4-12)]。さらに、提案手法を発展させ、実験データと理論による解析データを組み合わせて学習しながら断面積を推定する手法を提案し、断面積データをより合理的に推定できることを示した [4.2.3.4-13)]。今後は提案手法をさらに発展させ、高エネルギー核反応データベースの開発に適用していく予定である。

参考文献

4.2.2.4-1) H. Matsuda, et al. “Measurement of thick target neutron yield at 180° for a mercury target induced by 3-GeV protons,” Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B, 483 (2020) pp.33-40.

4.2.2.4-2) H. Iwamoto, “Unified description of the fission probability for highly excited nuclei,” J. Nucl. Sci. Technol., vol.56, (2019) pp.160-171.

4.2.2.4-3) S. Meigo, et al., “Target test facility for ADS and cross-section experiment in J-PARC,” IOP Conf. Series, Journal of Physics, Conf. Series, vol.1021 (2018) 012072.

4.2.2.4-4) S. Meigo, et al., “Cross section measurement in J-PARC for neutronics of the ADS,” Proc. 13th International Topical Meeting on Nuclear Applications of Accelerators (AccApp ’17), (2017) pp.396-402.

4.2.2.4-5) H. Matsuda, et al., “Proton-induced activation cross section measurement for aluminum with proton energy range from 0.4 to 3 GeV at J-PARC,” J. Nucl. Sci. Technol., vol.55, no.8, (2018) pp.955-961.

4.2.2.4-6) H. Takeshita, et al., “Nuclide Production Cross Sections of Ni and Zr Irradiated with 0.4-, 1.3-, 2.2-, and 3.0-GeV Protons,” JPS Conf. Proc. vol.33, (2021) 011045.

4.2.2.4-7) H. Matsuda, et al., “Measurement of Nuclide Production Cross-Sections of ^{nat}Fe for 0.4–3.0 GeV Protons in J-PARC,” JPS Conf. Proc. vol.33, (2021) 011047.

4.2.2.4-8) H. Matsuda, et al., “Measurement of nuclide production cross section for lead and bismuth with proton in energy range from 0.4 GeV to 3.0 GeV,” EPJ Web of Conf. vol.239, (2020) 06004.
4.2.2.4-9) H. Matsuda, et al., “Measurement of displacement cross-sections of copper and iron for proton with kinetic energies in the range 0.4–3 GeV,” J. Nucl. Sci. Technol., vol.57, no.10, (2020) pp.1141-1151.
4.2.2.4-10) Y. Iwamoto, et al., “Estimation of reliable displacements-per-atom based on a thermal-recombination-corrected model in radiation environments at nuclear fission, fusion, and accelerator facilities”, J. Nucl. Mater., 538 (2020) 152261.
4.2.2.4-11)日本原子力研究開発機構, 平成 28 – 令和元年度文部科学省国家課題対応型研究開発推進事業 原子力システム研究開発事業 「J-PARC を用いた核変換システム(ADS) の構造材の弾き出し損傷断面積の測定」成果報告書 (2019).
4.2.2.4-12) H. Iwamoto, “Generation of nuclear data using Gaussian process regression,” J. Nucl. Sci. Technol., vol.57, no.8, (2020) pp.932-938.
4.2.2.4-13) H. Iwamoto, et al., “G-HyND, a hybrid nuclear data estimator with Gaussian processes,” J. Nucl. Sci. Technol. vol.59, no.3, (2022) pp.334-344.

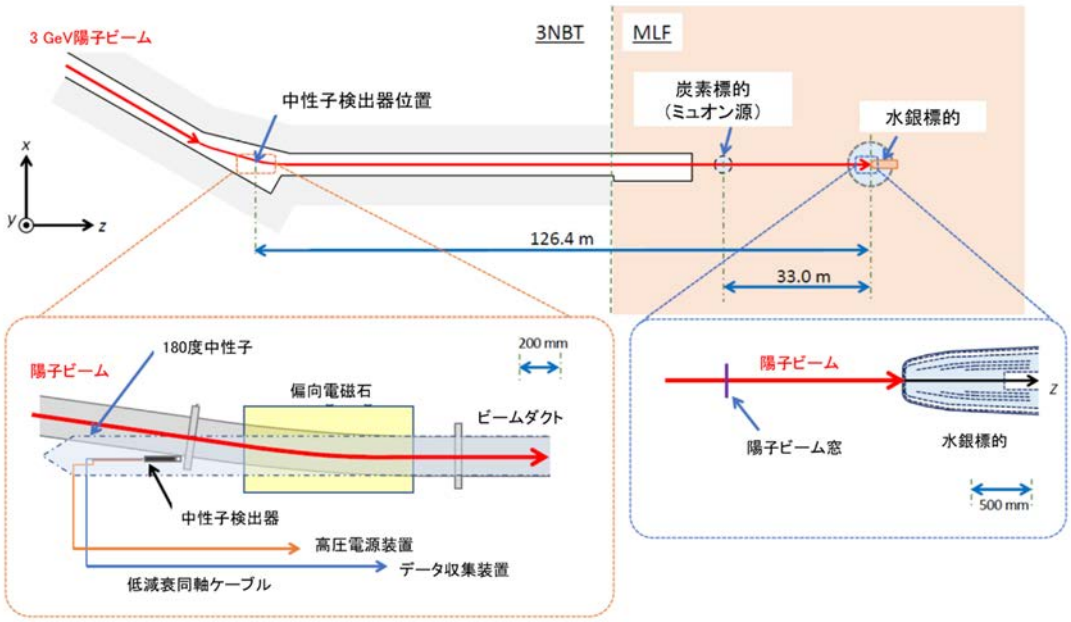


Fig. 4.2.2.4-1　180 度中性子測定実験測定体系

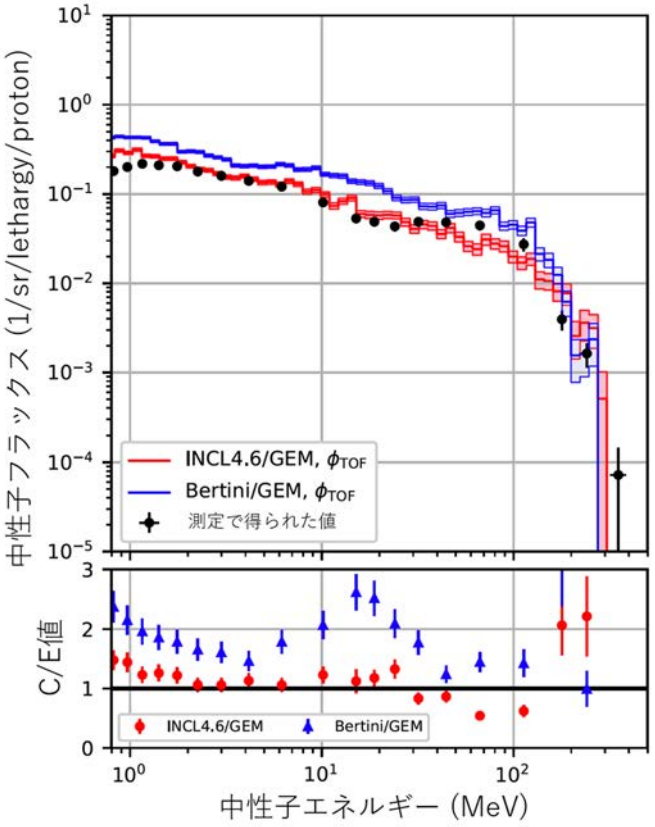


Fig. 4.2.2.4-2　測定および解析により得られた中性子エネルギースペクトルの比較

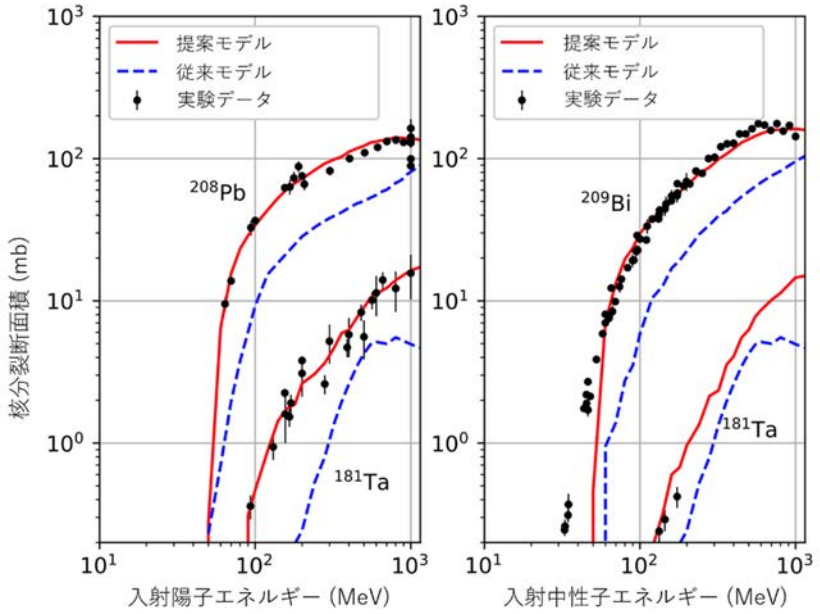


Fig. 4.2.2.4-3　陽子入射および中性子入射核分裂断面積の比較

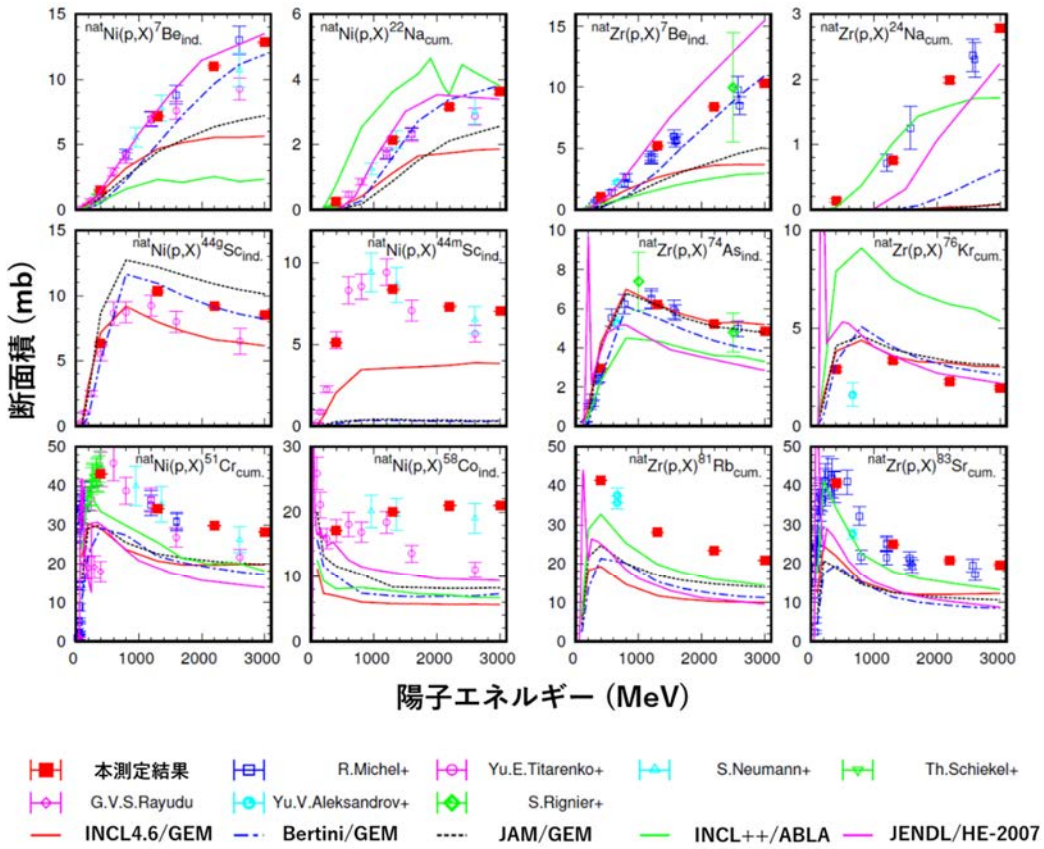


Fig. 4.2.2.4-4 ニッケルおよびジルコニウムに対する核種生成断面積の測定値と実験値の比較

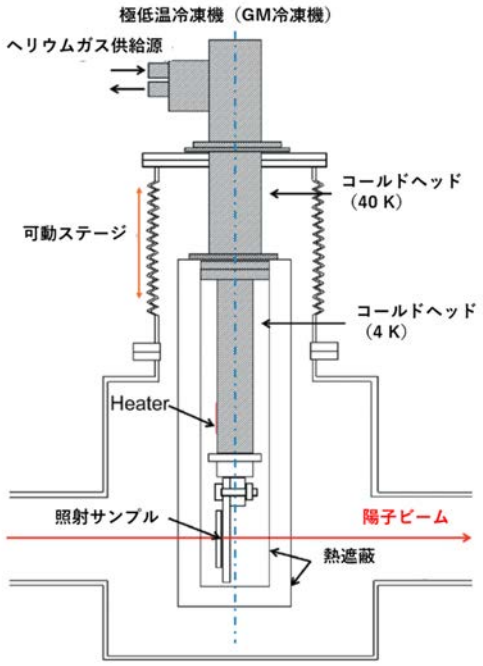


Fig. 4.2.2.4-5　弾き出し断面積測定体系

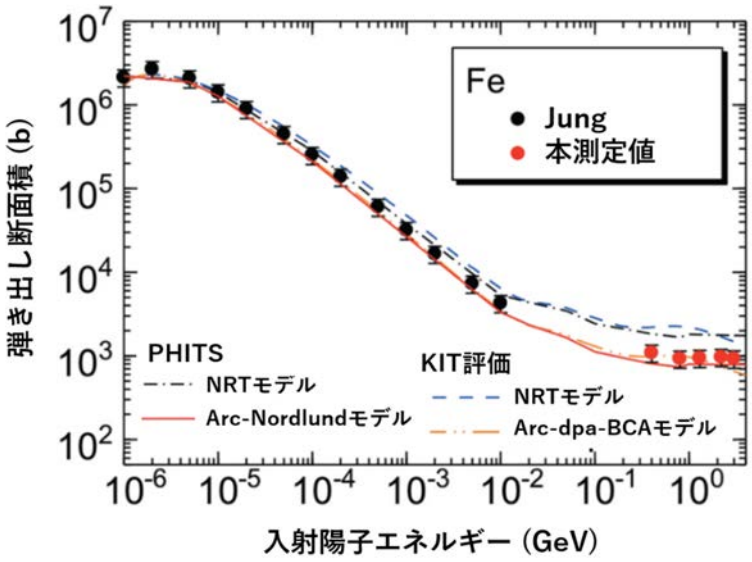


Fig. 4.2.2.4-6　鉄に対する弾き出し断面積の測定値と解析値の比較

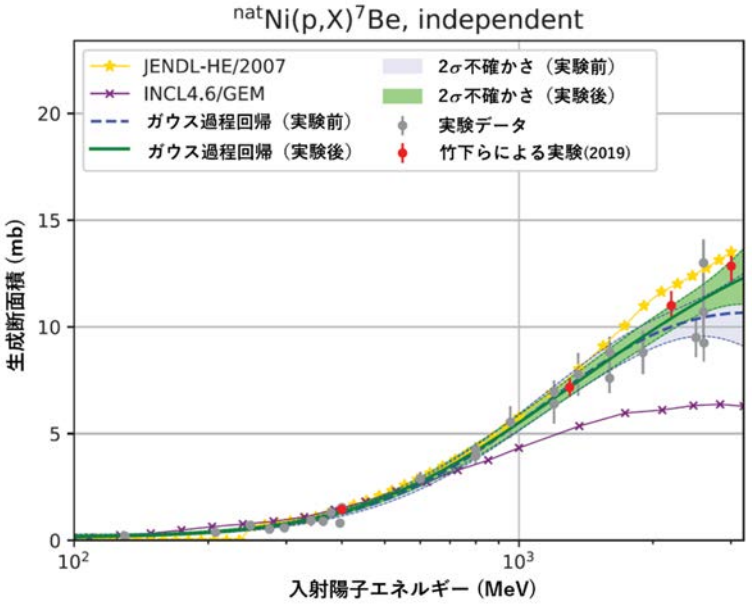


Fig. 4.2.2.4-7　^{nat}Ni(p,x)^{7}Be 反応断面積

4.2.3 機器設計

4.2.3.1 ビーム窓の設計検討

ADS ビーム窓は加速器と未臨界炉心の境界を成す構造物であり、その成立性が ADS そのものの成立性に関わる。ビーム窓は、陽子・中性子による発熱、照射損傷、高温クリープ、LBE からの外圧、LBE による腐食といった非常に過酷な環境で用いられる。そこで、簡易的な包括検討を行ってどのような現象が課題になるか検討し、そこで抽出された座屈という破壊モードに対して成立性の高いビーム窓概念を創出するため、粒子輸送・熱流動・構造の連成解析を実施した。

包括検討では、単純な中空半球モデルを用いて発電用原子力設備規格に基づく評価を実施した[4.2.3-1)]。その結果、座屈評価以外のすべての項目について、制限値を満足する結果を得た。さらに有限要素法による初期不整を考慮した座屈解析を実施し、ビーム窓の安全率として 3 を見込めば、構造健全性を確保するのに十分であることを確認した。

次に、粒子輸送・熱流動・構造の連成解析を行い、ビーム窓概念の検討を行った[4.2.3-2~4)]。粒子輸送解析には PHITS、熱流動解析には STAR-CCM+、構造解析には ANSYS を用いた。このうち、熱流動解析の 2 次元解析モデルを Fig. 4.2.3-1 に示す。ビーム窓は半球形状であり、その先端にノズルから 300 ℃/2.0 m/s の LBE を吹きつけて冷却する体系となっている。解析では、ビーム窓の外半径、厚みをパラメータとして複数ケースの解析を行い、座屈圧力およびビーム窓温度の点から評価を行った。座屈圧力 3 MPa 以上、ビーム窓温度 550 ℃以下が成立条件である。

連成解析で得られたビーム窓最高温度と座屈圧力の関係を Fig. 4.2.3-2 にまとめる。ビーム窓の厚さが増すことで構造物としての強度が上がる反面、窓の温度が上昇し、成立しなくなる。また窓の半径が小さくなると、構造物としての強度が上がるが、陽子ビームによる発熱密度が上昇するため、窓の温度が上昇する。今回検討した条件下では、ビーム窓先端厚さは 1.5～3.5 mm、窓外半径 180～235 mm の範囲で成立性が見込まれることを示した。なお今回の解析は、非照射材のデータを用いており、今後、陽子・中性子照射の材料データを蓄積し、これらの影響を考慮した解析が望まれる。

連成解析を通じ、ビーム窓の形状として薄肉半球が求められることがわかった。一方で、このような薄肉の構造物が T91 鋼で製作可能であるかどうか検討例がなかったことから、1/4 スケールのビーム窓小型模型の製作を実施した。T91 鋼のブロックから切削加工によって製作し、工程、製作精度そして形状測定の方法について検討を行った[4.2.3-5)]。製作物の一例を Fig. 4.2.3-3 に示す。本製作で頂点の壁厚に生ずる加工誤差は約 0.1 mm であり、加工調整により一層の加工誤差抑制が可能であると考えられることから、T91 鋼による ADS ビーム窓の製作実現性が示された。

4.2.3.2 JUPITER によるビーム窓周りの非定常熱流動解析

ビーム窓周りの熱流動解析はこれまでに、定常流れを仮定した計算しか行われていないが、代表的な流速、長さ、LBE の物性値からレイノルズ数を求めると数百万程度に達し、流れ場は非定常な乱流状態であることから、ビーム窓周りの温度分布には依然として不確かさが存在す

る。従って、信頼性の高い ADS 設計を行うために、流れの非定常性を考慮した詳細な流動場解析が重要である。本検討は、JAEA が開発する、過酷事故時炉内溶融物移行挙動解析コードである JUPITER を用いて、ADS ビーム窓周りの詳細な熱流動場計算をビーム窓やノズル形状などをパラメータとして行い、ビーム窓周りの流動場と温度分布に関する詳細な解析を実施することにより信頼性の高い ADS 設計に貢献することを目的とする。

非定常かつ詳細なビーム窓周りの三次元流動場解析を目的として、Fig. 4.2.3-4 に示すように、縦横高さそれぞれ 620 mm × 685 mm × 1,100 mm の領域長に対し、格子点数を 776 × 864 × 1,380 = 925,240,320 点の格子を用いた。LBE の発熱分布は PHITS による解析結果を与え、t = 0 から 2.4 秒まで発熱なしで流れ場を発達させ、その後から発熱を与えて温度場を計算した [4.2.3-6]。Fig. 4.2.3-5 は、加熱開始後からおよそ 1.6 秒経過した時点での Fig. 4.2.3-4 における a, b, c, d における水平断面温度分布である。図より断面位置がノズル先端領域に近づくにつれ、強い三次元性が現れていることが分かる。即ち、径方向だけでなく周方向の時空間的な温度変動の影響も考えられるため、従来の二次元を仮定した解析では不十分であることを示唆するものである。

本解析は、直交直線等間隔格子を用いた解析であり、約 10 億点を用いた解析は大型計算機 ICE-X で 10,368 コアを用いた計算でも t = 4.0 s までの計算で半月程度を要した。このような解析は、平均値や乱流統計量を算出するために、長時間平均をする必要があるため、高速な計算手法が重要となる。また、着目する対象としては、ビーム窓先端部が主であるため、計算時間の短縮ならびに効率的な計算のために、ビーム窓周囲のみに格子を集中させることができる局所細分化格子の導入や GPU による高速計算が有効であると考えられる。また、三次元の詳細な熱流動場により得られたビーム窓周りの温度履歴を用いた熱変形解析を実施し、本解析が熱変形にどの程度影響を与えるかを評価していく準備を進めている。

4.2.3.3 異常事象の検討と過渡解析

ADS は未臨界状態で外部中性子源により運転されることから、一般的な臨界炉に比べて安全性が高いと考えられている。この点について定量的な検討を行うため、ADS で起こりうる異常な事象を系統的に整理し、炉心損傷に至る可能性がある事象がないか、レベル 1PSA により検討を行った [4.2.3-7]。その結果、ビーム窓の破損（BWB, Beam Window Breakage）と除熱源喪失事象（PLOHS, Protected Loss of Heat Sink）が、安全評価上、想定除外できる足切り頻度（10^{-6} /炉・年）を上回ることを確認した。一方で ADS に特有な事象であるビーム過出力（BOP, Beam Over Power）等は、設計基準外事象と評価された。

この結果を踏まえ、設計基準事象である BWB、PLOHS と、設計基準外事象ながら代表的な事故事象である BOP、流量喪失事象（ULOF, Unprotected Loss of Flow）、燃料集合体閉塞事象（UBA, Unprotected Blockage Accident）を対象に過渡解析を実施し、炉心損傷の可能性について評価した [4.2.3-8]。その結果、PLOHS で崩壊熱除去系が作動しなかった場合にのみ、炉心損傷の可能性があることを示した。

以上の結果から、より安全な ADS を実現するためには、信頼性の高い崩壊熱除去系が必要であるため、蒸気発生器と熱交換器が一体となった DRACS（Direct Reactor Auxiliary Cooling

System）を提案した（Fig. 4.2.3-6）[4.2.3-9]。起動失敗確率については、空冷ダンパーを多重化することで、10^{-6}/（炉・年）以下となり、設計基準外事象とみなすことができた。また、外部電源喪失により強制流量が行われない場合の原子炉容器内の熱流動解析を実施し、自然循環時の場合であっても、DRACS によって定格運転時の約 4.3%の流量が確保され、崩壊熱が適切に除熱されることを確認した。

4.2.3.4 ビームトリップ頻度評価

ADS では大電流の陽子を連続ビームで効率良く加速できる超伝導線型加速器が用いられる。超伝導線型加速器では、通常の加速器と同様に放電等によるビームの不意の停止（ビームトリップ）が発生し、その都度、未臨界炉の出力が下がるため、未臨界炉の構成機器が熱サイクル疲労で損傷するおそれがある。また、5 分を超えるようなビームトリップにはタービン発電系も含めて ADS プラントの再起動が必要となり、頻度によってはプラント稼働率が極端に悪くなるおそれがある。そこで、これらの影響を考慮して許容されるビームトリップ頻度を評価した。

熱サイクル疲労の評価では代表的な四カ所の部位、すなわち、ビーム窓、燃料被覆管、内筒、原子炉容器を対象とした熱過渡解析を実施した。その結果、許容ビームトリップ頻度はビームトリップ時間に依存し、Table 4.2.3-1 に示すように年間 2×10^{3}～2×10^{4} 回となった [4.2.3-10,11]。また、ADS プラントの年間稼働率を 70%と仮定すると、5 分を超えるビームトリップの許容頻度は年間 42 回となった。

次に、J-PARC リニアック（ビームエネルギー400 MeV、常伝導加速器、パルスモード運転）の 4 年分の運転データから ADS 用陽子加速器のビームトリップ頻度を推測した（Fig. 4.2.3-7）。ヒストグラムで示した ADS 用陽子加速器のビームトリップ頻度と、実線で示した許容ビームトリップ頻度を比較すると、ビームトリップ時間が 10 秒以下のビームトリップ頻度は許容値以下となるが、他方、10 秒を超えるビームトリップ頻度は許容値を 1.1～5.4 倍上回っていることが明らかとなった。

そこで、ビームトリップ頻度の改善を行うため、多重加速器概念を提案した（Fig. 4.2.3-8）[4.2.3-9]。この概念では、1 つの加速器が出力の 50%を持ち、2 台の運転により定格出力 100%で未臨界炉の運転を行う。1 つの加速器がビームトリップを起こしたとしても、出力変化は 100%→50%になるため、100%→0%のビームトリップ頻度が大幅に減少する。また、100%→50%時の温度変化による熱応力自体は小さいため、許容ビームトリップ頻度は緩和される。この多重加速器概念について、許容ビームトリップ頻度およびトリップ頻度を評価した（Table 4.2.3-2）。その結果、10 秒以上 5 分以下のビームトリップ間隔では許容頻度を満たしたが、5 分を超えるビームトリップ頻度は許容値を満たさない結果となった。しかし、5 分を超える頻度は、Fig. 4.2.3-7 に比べて大幅に減少しており、多重加速器概念がビームトリップ頻度を低減する上で有効であることを示した。なお、多重加速器概念の場合、コスト増の懸念があることから、機器や建屋の共有化などを図り、可能な限りコストを抑える方策が必要となる。

参考文献

4.2.3-1) 菅原隆徳, 鈴木和彦, 西原健司, 他, “加速器駆動未臨界システムのビーム窓構造の設計検討; 簡易的な包括検討及び座屈に関する詳細検討”, JAEA-Research 2008-026 (2008), 91p.

4.2.3-2) T. Sugawara, K. Kikuchi, K. Nishihara, et al., “Investigation of beam window buckling with consideration of irradiation effects for conceptual ADS design”. J. Nucl. Mat., 398, (2008) pp.246-250.

4.2.3-3) T. Sugawara, K. Nishihara, H. Obayashi, et al., “Conceptual design study of beam window for accelerator-driven system”, J. Nucl. Sci. Technol., 47 (10), (2010) pp. 953-962.

4.2.3-4) T. Sugawara, Y. Eguchi, H. Obayashi, et al., “Conceptual design study of beam window for accelerator-driven system with subcriticality adjustment rod”, Nucl. Engineering and Design, 331, (2018) pp.11-23.

4.2.3-5) 渡辺奈央, 菅原隆徳, 大久保成彰, 他, “T91 鋼の切削加工による ADS ビーム窓小型模型の製作”, JAEA-Technology 2020-026 (2021), 59p.

4.2.3-6) S. Yamashita, T. Sugawara, H. Yoshida, “Development of numerical simulation method to evaluate detailed thermal-hydraulics around beam window in ADS”, Proceedings of 27th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE-27) (Internet) (2019).

4.2.3-7) 菅原隆徳, 西原健司, 辻本和文, 他,“加速器駆動未臨界システムの安全性検討;異常事象の検討と事故事象の安全解析”, JAEA-Research 2009-024 (2009), 83p.

4.2.3-8) T. Sugawara, K. Nishihara, K. Tsujimoto, “Transient analyses for lead-bismuth cooled accelerator-driven system”, Annals of Nuclear Energy, 55 (2013) pp.238-247.

4.2.3-9) T. Sugawara, H. Takei, K. Tsujimoto, “Investigations of accelerator reliability and decay heat removal for accelerator-driven system”, Annals of Nuclear Energy, 125 (2019) pp.242-248.

4.2.3-10) 武井早憲, 西原健司, 辻本和文, 他,“加速器駆動未臨界システム用加速器における許容ビームトリップ頻度の評価と現状との比較”, JAEA-Research 2009-023 (2009), 114p.

4.2.3-11) H. Takei, K. Nishihara, K. Tsujimoto, et al., “Estimation of acceptable beam-trip frequencies of accelerators for accelerator-driven systems and comparison with existing performance data”, J. Nucl. Sci. Technol., 49 (4), (2012) pp. 384-397.

Table 4.2.3-1　文献 4.2.3-11)で評価されたビームトリップ頻度

ビームトリップ間隔	許容ビームトリップ頻度
0～10 sec	20,000
10 sec ～5 min	2,000
> 5 min	42

Table 4.2.3-2　多重加速器概念のビームトリップ頻度

ビームトリップ間隔	許容ビームトリップ頻度	トリップ頻度 100%→50%	トリップ頻度 50→0%	Total
0～10 sec	25,000	496	148	644
10 sec ～5 min	25,000	20,886	2,066	22,952
> 5 min	30	N/A	48	48

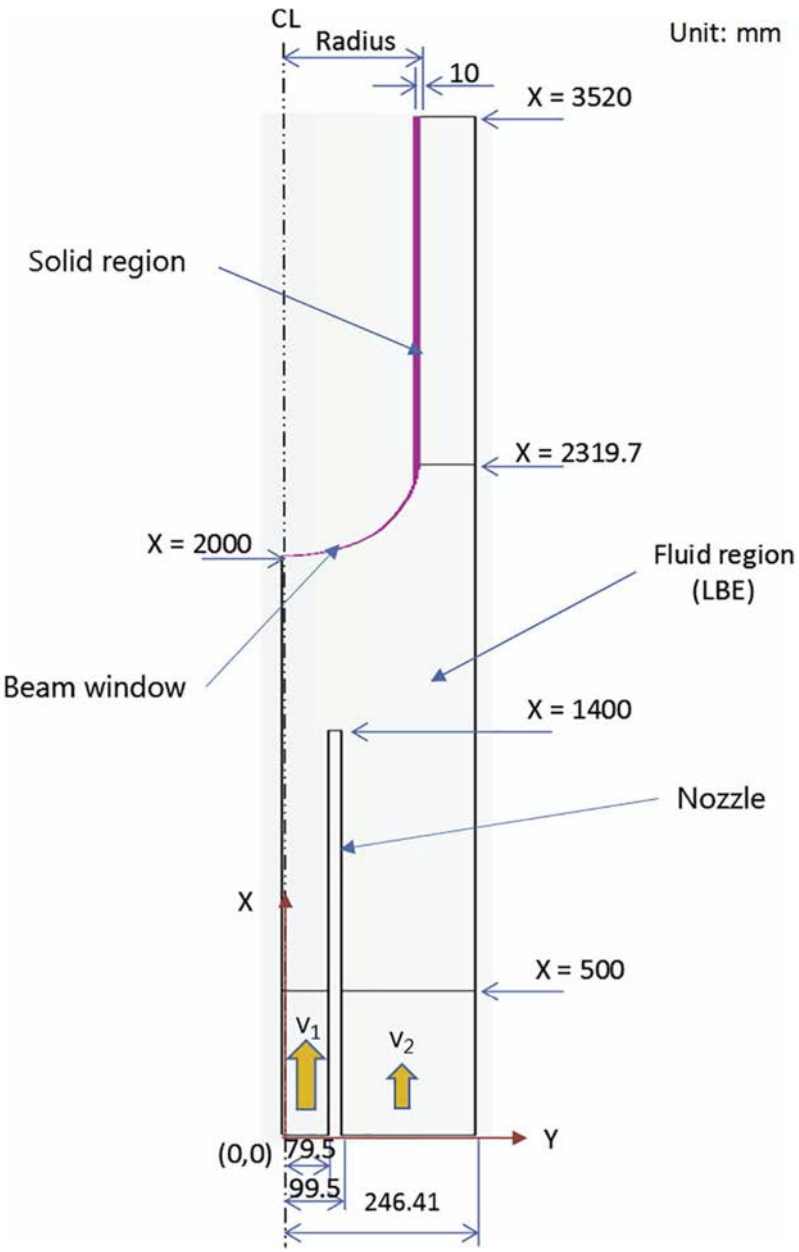


Fig. 4.2.3-1　熱流動解析におけるビーム窓および核破砕ターゲット領域の解析モデル

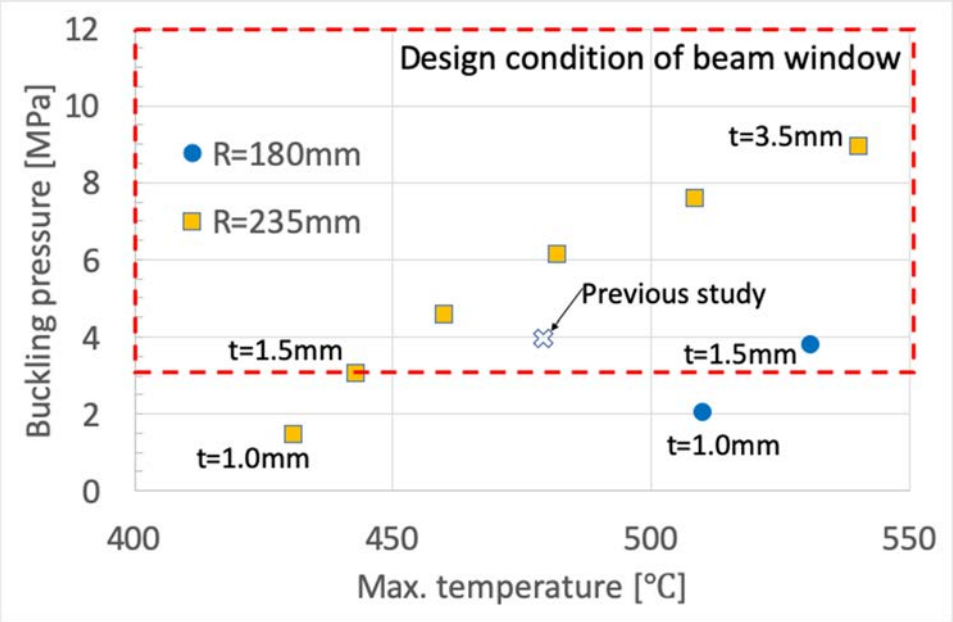


Fig. 4.2.3-2　連成解析により得られた窓最高温度と座屈圧力の関係（t はビーム窓の厚さ、R はビーム窓外半径）

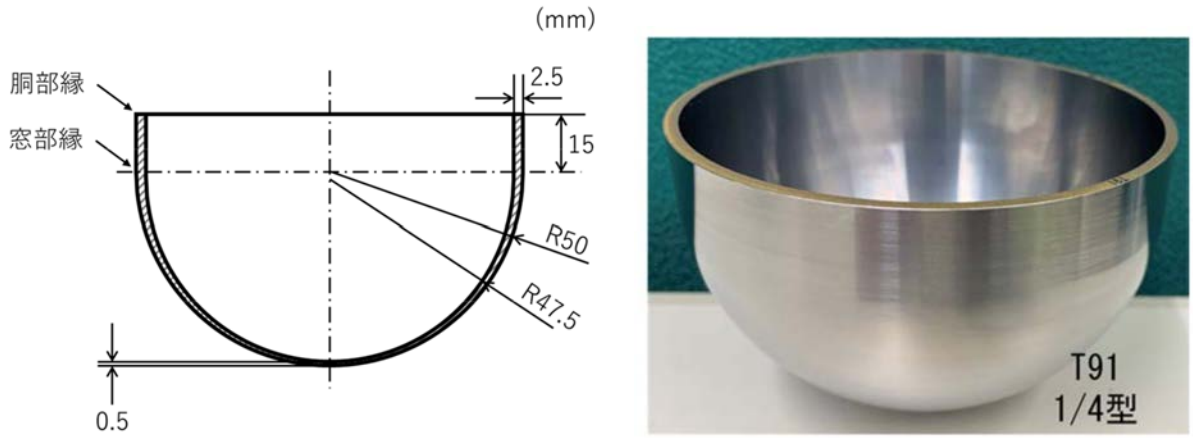


Fig. 4.2.3-3　1/4 ビーム窓の設計形状（左）と製作物の外観（右）

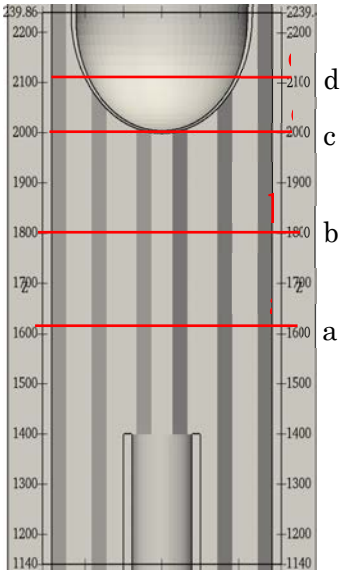


Fig. 4.2.3-4　JUPITER 解析における水平断面位置

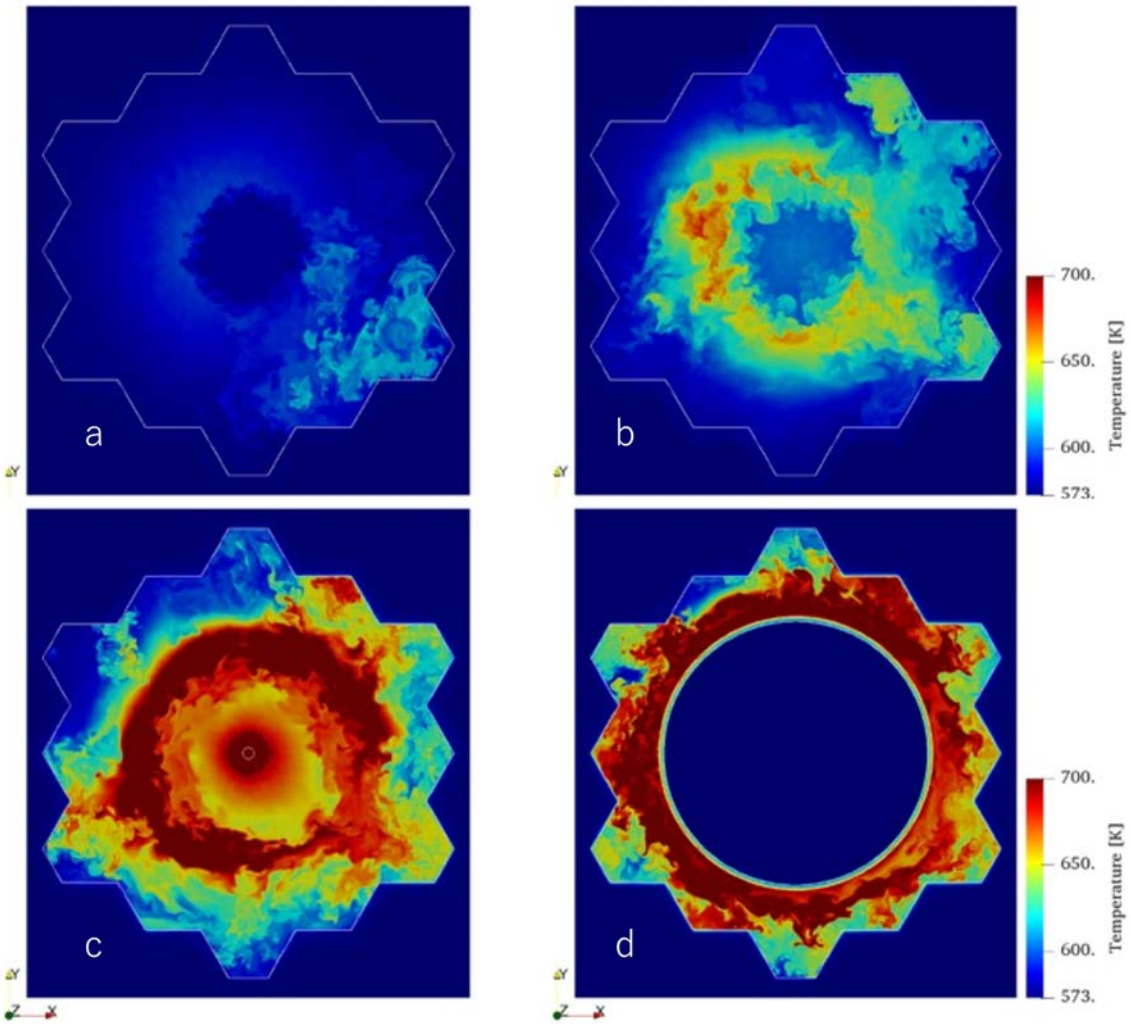


Fig. 4.2.3-5　t = 4 s における各位置の水平断面温度分布
（a, b, c, d は Fig. 4.2.3-4 の高さ位置）

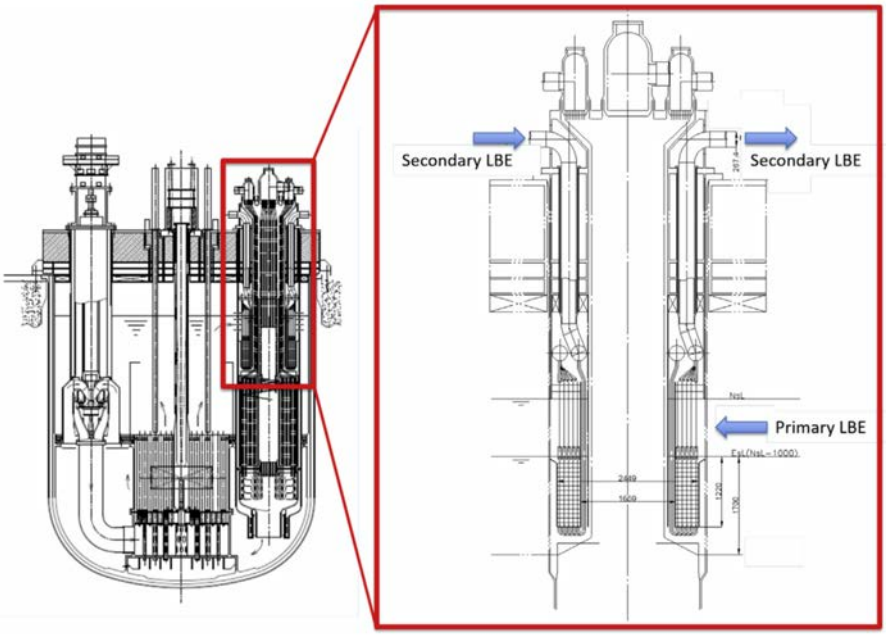


Fig. 4.2.3-6　蒸気発生器と熱交換器を一体化した DRACS の概念図

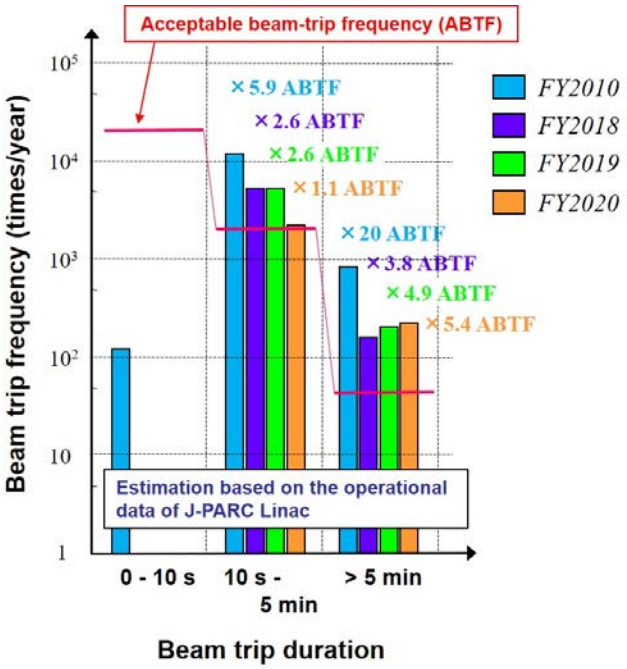


Fig. 4.2.3-7　JAEA-ADS 用加速器のビームトリップ頻度（赤い線は許容頻度、凡例はトリップ頻度評価に用いた J-PARC ライナックの運転年）

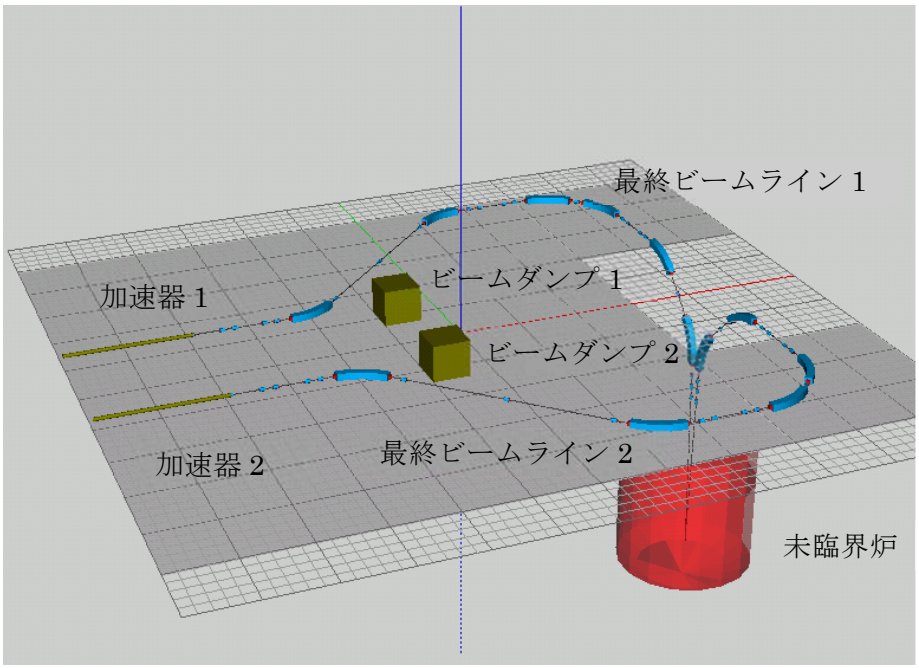


Fig. 4.2.3-8　多重加速器概念の概念図

4.2.4　LBE 取扱い技術開発

JAEA では、ADS 用核破砕ターゲットを構成する機器類の設計と、ビーム窓等の材料寿命評価の精度向上に資する陽子ビーム照射データを取得するため、出力 250 kW の LBE 核破砕ターゲットを J-PARC 施設に設置することを計画している。

核破砕ターゲットおよび炉心冷却材として LBE を用いるためには、高温運転対応、液体金属の純度管理、核破砕反応等に伴う生成物の液体金属中での挙動など、液体金属の取扱技術の確立が必要となる。本節では、J-PARC 施設の実現に向けた技術開発の一環として確立を目指す LBE 取り扱い技術に関し、ループ構成機器の要素技術開発、計装類の開発とともに、それら開発機器のモックアップ試験、LBE ループの運転特性検証データの取得、経験の蓄積を目的としたループの運転などの開発項目の検討状況について説明する。

4.2.4.1 流量計測技術の開発

LBE ループを安全に運転するためには、ループ各部での LBE の温度、流量、酸素濃度等を知るための信頼性の高い計測機器類が必要となる[5]。流量計測では、羽根車式に代表される、流体が直接接触することにより計測を行う方法があるが、高温かつ金属類への腐食性が高い LBE の特性を考慮し、伝播時間差式超音波流量計の開発を進めた。超音波流量計は、初期設定後の校正が不要であること、しゅう動部を伴わないため腐食に伴う破損の可能性が低いこと、センサ自体が流れを阻害する要素が少ないことなどの特長を有し、ナトリウム冷却高速炉向けに実用レベルのセンサが開発されている。JAEA では、流路中にセンサのプラグを挿入して計測する接液型センサの開発 [4.2.4-1)]を経て、配管外部にセンサを設置し、流れを乱さない上にセンサが腐食しない非接液型センサの開発にも成功した。Fig. 4.2.4-1 に示すように、非接液型超音波流量計を用いて設定流量に比例した流速の測定値が得られた。このようにセンサの計測信頼性を確認するとともに、長時間の運転性により安定性を実証した。

4.2.4.2 酸素センサの開発

高速炉の構造材として汎用性が高いステンレス鋼や高クロム鋼と LBE との共存性を確保するには、LBE 中の酸素濃度を 10^{-5} wt%～10^{-7}wt%の濃度に調整し、鋼材表面に酸化皮膜を形成する必要があるため、溶存酸素濃度の状態を監視し、適切に管理する技術が不可欠である。このため，Fig. 4.2.4-2 に示す酸素センサ校正試験装置を製作し、酸素センサの開発および、センサ特性の把握と性能評価試験 [4.2.4-2)]を行っている。

酸素濃度を計測する手法として、一般にガルバニ電池式等の複数の手法があるが、LBE 中の酸素濃度を計測するセンサには、固体電解質としてイットリア安定ジルコニア（YSZ）を用いたジルコニア式が多く採用されている。ジルコニア式は、高温中で YSZ を介して酸素イオンが酸素濃度の高い箇所から低い箇所へ移動することによって電位差が生じ、発生した起電力と温度を計測することでネルンストの式から媒体の酸素濃度を導出するものである。LBE 用酸素セ

[5] 計測機器類のうち系統圧力は、圧力センサの適用温度範囲と耐腐食性、故障時の対応措置を含めた開発を予定している。また、温度計測では熱電対が利用可能であり、大きな開発要素はない。

ンサの YSZ 内部に封入する参照極として、ベルギーでは Bi/Bi_2O_3 型が、ドイツでは Pt/Air（プラチナ塗布・大気参照）型が用いられている。Bi/Bi_2O_3 型は密閉構造であり、YSZ 破損時に系統からの LBE の外部漏洩のリスクが少ないことが利点として挙げられる反面、JAEA が想定している LBE 循環系の温度条件ではビスマスが溶解するため、センサの設置方向に制約がある他、使用中に Bi_2O_3 が徐々に消費されるため、センサの寿命が Bi_2O_3 の封入量に依存することがデメリットとなる。Pt/Air 型は、Bi/Bi_2O_3 型よりも出力が高く、参照極が気体（空気）であるため設置方向に制約が無く、継続的に空気を導入することにより、長期間の計測が可能である。一方、センサケーシングの空気導入孔から、YSZ 破損時に LBE が外部へ漏洩する恐れがある。このため、JAEA では、YSZ 破損時に放射化した LBE が外部に漏洩しない独自の構造を有する新しい Pt/Air 型センサを開発し、流動 LBE 中の酸素濃度制御技術の開発を進めている。JAEA で開発した Pt/Air 型酸素センサの外観を Fig. 4.2.4-3 に示す。本センサは、Fig. 4.2.7-2 で示すように SCK CEN 製のセンサとの比較で性能を確認した。

4.2.4.3 LBE 中酸素濃度自動制御技術

酸素センサの開発とともに、ループの自由液面上にあるカバーガスを介して酸素ガス・水素ガスを適宜添加して LBE 中酸素濃度を制御するシステムの開発を進め、高温鉛ビスマス流動腐食試験装置（OLLOCHI, Oxygen-controlled Lbe LOop for Corrosion studies in HIgh-temperature）での自動制御を実証してきた。Fig. 4.2.4-4 に装置の外観と系統概略を示す。最高運転温度は、実用 ADS の運転温度を包含する 550 ℃としており、加熱器～熱交換器間の高温部には改良 9Cr-1Mo 鋼（T91）や 2-1/4Cr-1Mo 鋼（SFVAF22）等を使用している。

膨張タンクの自由液面からカバーガスに混合した制御ガス（酸化時,Ar-2%酸素ガス、還元時,Ar-5%水素ガス）により LBE 中酸素濃度を自動制御する技術を開発し、Fig. 4.2.4-5 に示すように、100 ℃の温度差運転期間中、酸素濃度を安定して制御することに成功した。これにより、LBE 中での OLLOCHI における長時間の材料腐食挙動試験を実施可能な見通しが得られた。

4.2.4.4　LBE ループ運転実証試験

(1) IMMORTAL ループ

超音波センサをはじめとするループ構成機器類の開発を含め、実際の LBE ループを適正かつ安全に運転する技術を実証するため、核破砕標的循環試験装置（IMMORTAL, Integrated Multi-purpose Mockup for Real-scale TArget Loop）を製作した。IMMORTAL は、J-PARC LBE ターゲットの一次冷却系（LBE）および二次冷却系（加圧水）の実証試験を行うためのモックアップ試験装置である。将来的な計画として、陽子ビーム照射下で運転される J-PARC LBE ターゲットと同一の流量・温度・酸素濃度条件で運転することで、照射試験との比較に資する非照射環境下での材料挙動データの取得が可能な設計としている。

IMMORTAL の装置外観と系統図を Fig. 4.2.4-6 に示す。本装置で、LBE ループの最高温度 500 ℃での運転、温度差を付与した非等温運転、J-PARC 施設の 1 サイクルを想定した 30 日間の連続運転などの運転実証を段階的に進めた。

(2) IMMORTAL ループの熱流動システム解析

IMMORTAL には、予熱ヒータ制御、温度監視を含め総数 40 本以上の K 型熱電対が設置されているほか、LBE 中の酸素濃度を監視・制御するために後述する Pt/Air 型酸素濃度計を加熱器～熱交換器の間の高温側，熱交換器～加熱器の低温側の 2 ヶ所に設置することができる。今後、これらの計測システムを活用し、将来の ADS 設計に資するため、LBE ループシステム解析コードの検証のための実験データの取得等が進められている。

新型炉設計においては、炉全体の熱流動挙動を包括的に評価するために STH（System Thermal Hydraulics）コードを用いる[4.2.4-3)]。STH コードが計算する質量や熱の輸送は基本的に一次元方向のみであるため、渦の発生やその影響など現象論的な挙動についてはあらかじめ定式化されたものを入力する必要がある。STH コードにはナトリウム高速炉に対する Super-COPD コード[4.2.4-4)]、軽水炉に対する RELAP シリーズ[4.2.4-5)]、TRAC シリーズ[4.2.4-6)]等が挙げられる。特に、RELAP5-3D コードでは、液体 LBE の熱流動計算を行う機能が標準で組み込まれているため、IMMORTAL の試験データを用いて RELAP5-3D コードの検証を行っている。

IMMORTAL の解析モデルのノード図を Fig. 4.2.4-7 に示す[4.2.4-7)]。加熱器（MH）による入熱量 56950 W、二次系加圧水流量 60 lpm、LBE 流量 46.2 又は 32.8 lpm の条件で解析を行った結果、各計測点における LBE 温度が約 20℃高く評価された。同時に二次系加圧水の温度上昇幅が試験結果の 1/2 未満で評価されていたため、実機での二次系加圧水の流量条件が適切でないことを示唆する結果となった。そのため、今後、IMMORTAL に二次系流量計を新たに導入し、精度の高い流量条件で改めて試験および解析を行う予定である。

参考文献

4.2.4-1) H.Obayashi, et al., “Development of Plug-in Type Ultrasonic Flowmeter for Lead-Bismuth Spallation Target System”, Proceedings of 11th International Topical Meeting on Nuclear Thermal Hydraulics, Operation and Safety (NUTHOS-11), N11P0107, 10p., in USB Flash Drive.

4.2.4-2) T. Sugawara, et al., “液体鉛ビスマス共晶合金中の酸素濃度測定実験; 基礎試験とガンマー線照射の影響評価”, JAEA-Technology 2018-008 (2018), 26p.

4.2.4-3) F. Roelofs ,“Thermal Hydraulics Aspects of Liquid Metal Cooled Nuclear Reactors”. Woodhead Publishing, Cambridgeshire, pp.162-165 (2019).

4.2.4-4) 仲井悟, 岩崎隆, 保田仁司, 島川佳郎, 丹治幹雄, “モジュール型プラント動特性解析コード Super-COPD コードシステム解説書”, PNC TN9520 88-019 (1988).

4.2.4-5) INL, RELAP5-3D, https://relap53d.inl.gov/SitePages/Home.aspx, (accessed 2021/8/22).

4.2.4-6) LANL, TRACE 3-D, https://laacg.lanl.gov/laacg/services/download_trace.phtml, (accessed 2021/8/22).

4.2.4-7) N. Watanabe, H. Obayashi, T. Sugawara, et al., “IMMORTAL experimental loop at JAEA - post-process and validation”, Proceedings of 18th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH-18) (USB) (2019).

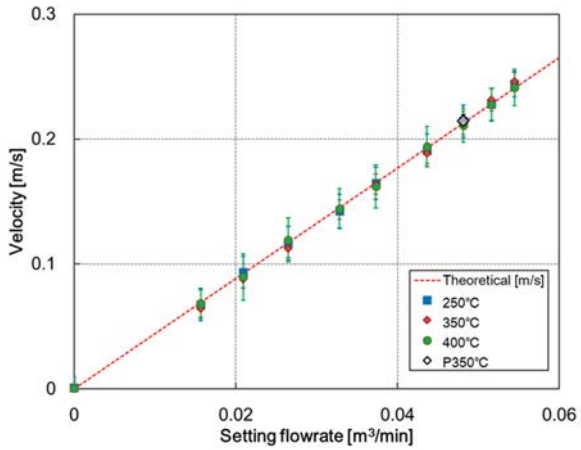


Fig. 4.2.4-1 非接液型超音波流量計による流量計測結果

Fig. 4.2.4-2 酸素センサ校正試験装置

Fig. 4.2.4-3 JAEA で開発した Pt/Air 型酸素センサ

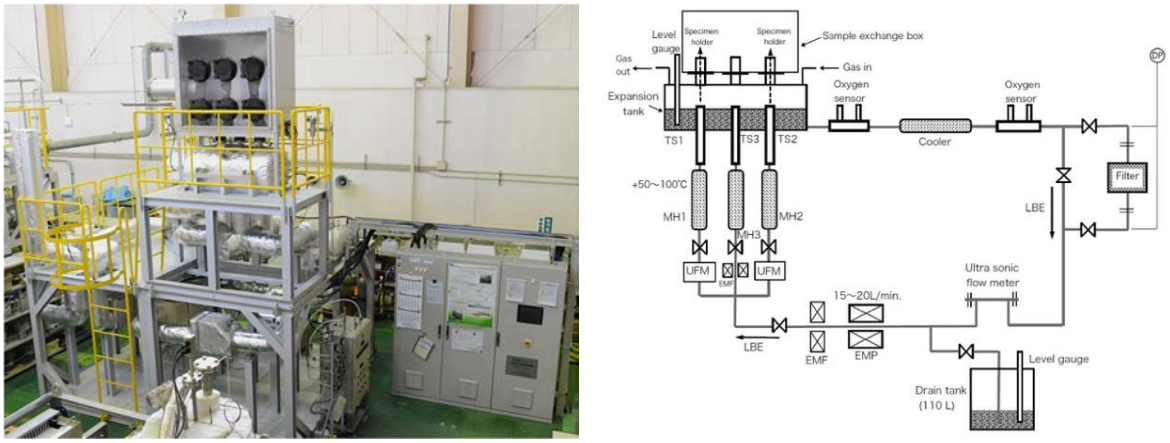


Fig. 4.2.4-4 高温鉛ビスマス流動腐食試験装置 OLLOCHI　外観及び系統概略

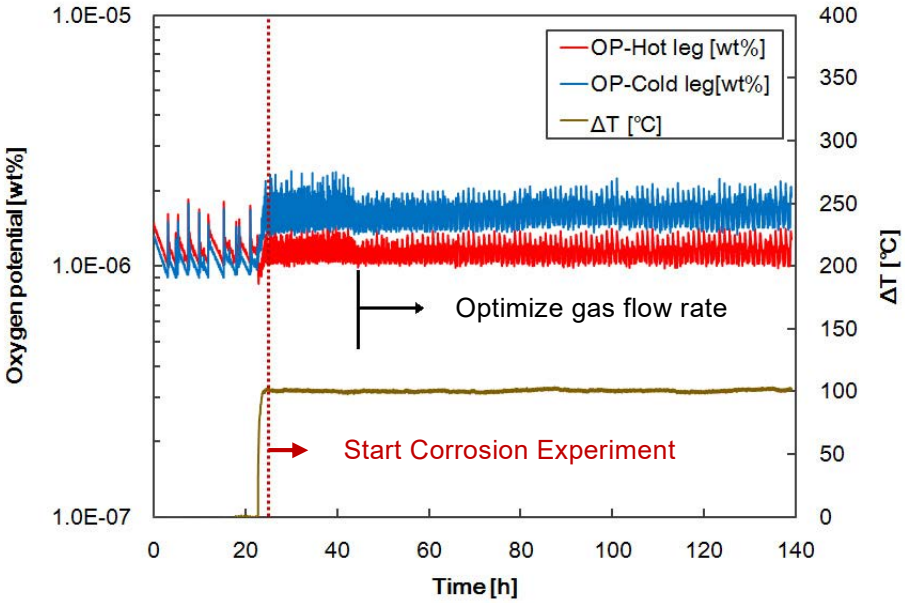


Fig. 4.2.4-5 OLLOCHI での酸素濃度自動制御トレンド

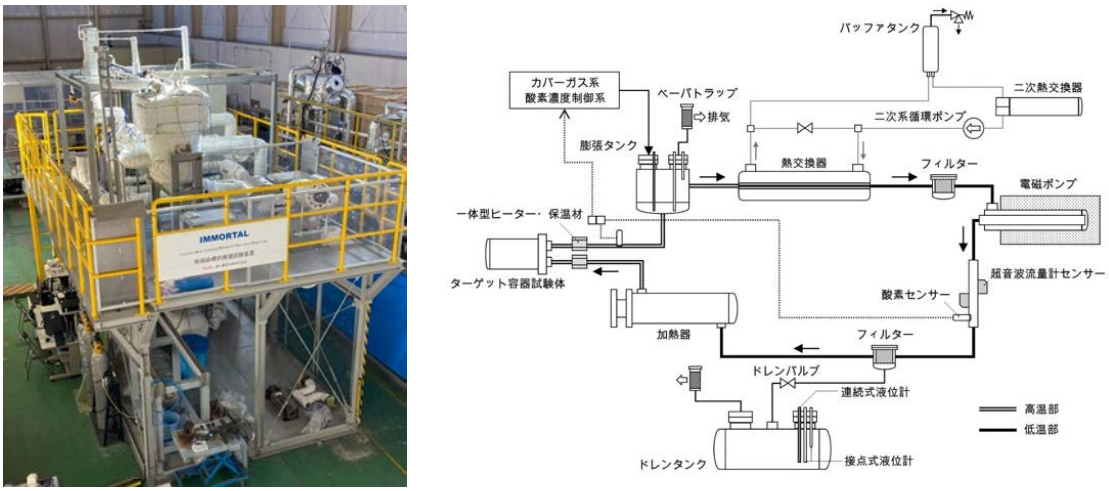


Fig. 4.2.4-6 核破砕標的循環試験装置 IMMORTAL　外観及び系統概略図

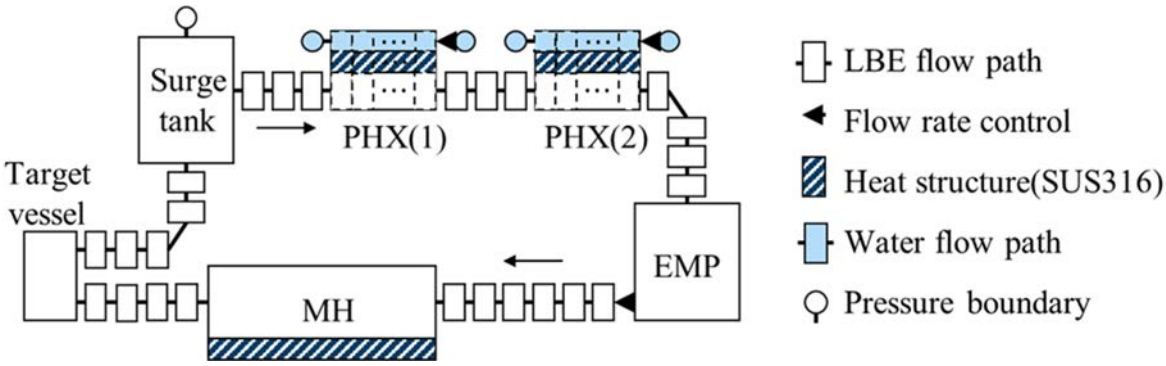


Fig. 4.2.4-7　RELAP5-3D コード用 IMMORTAL 解析モデル

4.2.5　ADS 材料

本節では、陽子ビーム窓材を中心とした炉内機器の寿命評価や設計・許認可に必要となる、LBE 中材料腐食挙動及び照射挙動評価に関して最近の研究成果についてまとめた。本節では、4.2.5.1 で材料腐食挙動に関する成果について示し、4.2.5.2～4.2.5.4 でイオンビームを用いた ADS 核破砕中性子の模擬照射により、材料への照射影響（スウェリング（体積膨張）、照射硬化及び LBE 中腐食挙動へ及ぼす照射の影響）に関して得られた結果についてまとめ、ADS への適用性評価を行う。4.2.5.5 では海外の材料照射試験を紹介し、最後に、4.2.5.6 で計算科学的手法を用いた液体金属脆化（LME）に関する基礎的な解析について述べる。

ADS では炉心部の冷却材と核破砕ターゲットとして、化学的に安定な液体 LBE を用いる。LBE 中の鉄鋼材料の腐食挙動（例,酸化皮膜の生成速度）の把握は、炉内機器の設計検討に不可欠であり、陽子加速器側の高真空と炉心部を隔てる安全上重要な機器の一つである陽子ビーム窓や、MA 燃料を閉じ込める燃料被覆管の健全性（寿命）を左右するため、ADS 実現に向けた重要な研究課題の一つである。ADS 炉心部の材料課題を Fig. 4.2.5-1 にまとめた。次節以降、図中の下線部への取り組みを説明するが、特に、ビーム窓は、他の原子力システムにはない、ADS 特有の照射環境、すなわち、LBE 流動下にて、高エネルギーの陽子線照射及び核破砕中性子照射を同時に受ける環境で使用される。材料中では、照射損傷と高濃度の核変換生成ガス（水素、ヘリウム）がミクロ的には重畳影響し、同時に生じる LBE 中材料腐食や LME といったマクロな材料挙動とも微細組織発達を介して連動する。そのため、Fig. 4.2.5-1 に示した各材料挙動の把握や機構解明が重要となる。

一般的な炉内機器材料として使用されるステンレス鋼やフェライト鋼は、LBE 中では温度や溶存酸素濃度によっては腐食(ここでの腐食とは酸化や溶解である)することが知られている。LBE 中の酸素濃度が高い場合、鉄鋼材料表面では酸化皮膜が成長し、液体金属の流れによりある程度成長した表面酸化皮膜（スケール）が剥がれ落ち浸食がすすみ、これらが炉心部の LBE 流路を閉塞する恐れがある。また鉛も酸化し、酸化鉛は機器の可動部を制限（固着等）する。一方、酸素濃度を低くした場合、表面保護のための酸化皮膜が還元・消失することになり、LBE 中に溶解度を持つ、ニッケル、鉄、クロムは高温部分で溶出、材料表面は減肉し、さらに溶解成分が低温部へ再析出することにより配管閉塞を引き起こす場合もある。よって、LBE に対しては最適な酸素濃度範囲内に制御する必要がある。

LBE 中の材料腐食挙動に及ぼす酸素濃度の影響については多く調べられているが、未照射の実験データが多く、腐食挙動に及ぼす中性子照射の影響はあまり調べられていない。例えば、LBE 中において、鉄鋼材料表面の酸化皮膜の長時間に亘る厚さ変化は、放物線則に従うことが知られているが、現在は、未照射材を用いた数千から最大数万時間の腐食データから、ADS 実機の運用期間である数十年の酸化挙動を外挿し、材料の健全性を評価している [4.2.5-1)]。しかし、照射の影響は現状考慮されておらず、中性子実験照射炉を用いた LBE 中での長時間の中性子照射の困難さ故に照射材の研究が進んでいないのが現状である。Fig. 4.2.5-2 に、各国が過去に行った、LBE 封入キャプセルを用いた中性子照射 [4.2.5-2~4)]や、LBE 流に陽子線を照射 [4.2.5-5, 6)]することにより、LBE と材料とを接触させた状態で行った照射研究をまとめた（MEGAPIE は例えば [4.2.5-3)]）。

これらの LBE 中での照射実験では、照射温度が比較的低いため、主に LME に着目した研究が多く、材料腐食に及ぼす照射の影響評価はほとんど行われていない。Fig. 4.2.5-2 に、JAEA にて現在進めている各材料照射（核破砕中性子、熱中性子、核破砕中性子模擬イオン）についても合わせて示すが、特に、QST 高崎研 TIARA の 3 つのイオン加速器を同時に照射する ADS 核破砕模擬照射と LBE 中腐食試験を組み合わせる手法により、LBE との共存性（腐食挙動）に着目した照射実験を進めている [4.2.5-7]。

4.2.5.1 材料腐食試験

候補となる鉄鋼材料の LBE 中腐食挙動を把握するためには、まず、制御性の良い静的な腐食試験を行い、次に、実機に近い LBE 流速を持つループでの材料腐食試験による腐食データの蓄積が必要である。本節では、最近の腐食試験装置の変遷及び各試験結果の概要を示すとともに、腐食試験において留意すべき初期酸化被膜の影響について説明する。

(1) 静的腐食

石英ポットを用いた静的腐食試験は前報 [4.2.5-8]以降引き続き実施された。フェライト・マルテンサイト鋼やオーステナイト鋼など各種鋼材の腐食量の温度依存性 [4.2.5-9]、表面にアルミコーティングした鋼材の腐食試験 [4.2.5-10,11]、この時点での JAEA における静的腐食試験に関するレビュー[4.2.5-12]、SUS316L と T91 に約 1 wt%のシリコンを添加した鋼材の腐食試験 [4.2.5-13]を実施した。本 Si 添加鋼については、現在、(4)に示す LBE ループを用いた腐食試験や照射試験に供している。

(2) JLBL-1

鉛ビスマス試験ループ 1 号（JLBL-1）を用いた腐食試験は、前報以降も引き続き実施された。低温部での析出物の分析 [4.2.5-14]、粒界制御材（GBEM）の腐食試験 [4.2.5-15]、JPCA 冷間加工材の腐食試験 [4.2.5-16]、流れが収縮、拡大する部分での腐食を、流れ加速腐食（FAC）の観点で解析 [4.2.5-17]を実施した。なお、JLBL-1 は 2015 年にその役割を終え、解体された。

(3) MES ループ

MES ループを用いた腐食試験結果は前報にて報告したが、その内容を論文にまとめて報告した [4.2.5-18]。さらに、高クロム鋼の HCM12A 製試験片ホルダに形成された酸化物層について、その特性を調べる研究がなされた。HCM12A 製試験片ホルダの酸化物層の機械的強度評価 [4.2.5-19]、酸化物層の微細構造観察 [4.2.5-20]を実施した。なお、MES ループは 2008 年に解体されている。

(4) OLLOCHI ループ

4.2.4.3 節で紹介したとおり、酸素濃度制御された LBE 流動下における ADS 候補材料の腐食データを、広範囲の温度・流量条件下で取得することを目的として、OLLOCHI を製作した。

本装置の特長として、3 本の腐食試験用流路が設けられている。（Fig. 4.2.4-4）それぞれの流路に独立したバルブ、流量計、加熱器が設置されており、異なる流量、温度条件下での材料腐食試験を同時に行うことができる。流動下腐食試験で重要となる試験片近傍の LBE 流速は、内挿管型試験片ホルダの形状を調整することで、最大 1 m/s～2 m/s に設定できる。試験片ホルダは、膨張タンクを介して各試験用流路に設置する構造となっており、一次系に充填した LBE をドレンすることなく試験片ホルダの交換が可能である。

実際のターゲットの運転環境では、陽子・中性子照射のほかに熱応力、循環 LBE による動圧等が印加された状態で構造材料が LBE の流動に晒される。高温かつ LBE 流動条件下で試験片に応力を負荷した状態での腐食試験は世界的にもごく稀であり、極めて重要な実験データである。このため、本装置の中央の試験流路には、材料試験機を設置することで試験片の LBE 流動下での応力負荷試験を行うことができる機構が採用されている。Si 添加鋼や新たに開発している ODS 等も含め、候補材料の腐食試験を進める予定である。

(5) 初期酸化被膜の影響を抑えた条件での腐食試験

材料腐食を低減するには LBE 中の酸素濃度を適切に調整することが重要であり、従来研究から約 10^{-7}wt%～10^{-5}wt%が用いられることが多い。しかし、試験開始直後の LBE は酸素が飽和しており、酸素濃度が目的の値まで低下するには数十～数百時間を要するため、試験開始直後の高酸素濃度時に生成した初期酸化被膜がその後の腐食に影響している可能性がある。そこで、試験温度より 100 ℃低い温度で酸素濃度を調整した後に本試験を開始することで、初期酸化被膜の影響を低減した腐食試験を実施した。

Fig. 4.2.5-3 に 400 ℃で酸素濃度を 10^{-7}wt%に調整し、その後 500 ℃で 1034 時間浸漬した T91 試験片（初期酸化無、左図）の断面写真と、比較として 500 ℃の酸素飽和 LBE 中で 113 時間保持した後に酸素濃度を 10^{-7}wt%に調整し、891 時間浸漬した T91 試験片（初期酸化有、右図）の断面写真を示す。初期酸化有りの試験片では明確な酸化物が確認できたのに対して、初期酸化無しの試験片では酸化物がほとんど確認できず、酸化被膜による材料の保護が期待できない可能性がある。そのため材料腐食について考えるには、最終的な酸素濃度だけでなく、それ以前の濃度履歴や温度履歴なども考慮する必要があると考えられる。

4.2.5.2 材料への照射影響、スウェリング

炉内機器の第一候補材である T91 鋼のスウェリング挙動を加速器照射により調べた。Fig. 4.2.5-4 は、単独照射（鉄イオンのみ、Single、 弾き出し損傷のみ）、2 重照射（鉄+ヘリウムイオン、Dual、 弾き出し損傷+核変換生成 He ガス）及び 3 重照射（鉄+ヘリウム+水素イオン、Triple、弾き出し損傷+核変換生成 He+H ガス→核破砕中性子照射条件）した T91 鋼の深さ約 1.0 μm～1.6 μm 付近の断面 TEM（透過型電子顕微鏡）写真である。深さ 1 μm における弾き出し損傷量（dpa、1 個の入射イオンあたり格子点からはじき出される原子の数、照射損傷の指標）、He と H の注入割合を、それぞれ 40 dpa、15 appm He /dpa と 150 appm H / dpa、照射温度を 500℃とした。

単独照射の場合、空孔の集合体であるキャビティの形成は 500 ℃、40 dpa の照射量でも観察されなかった。更に、100 dpa の深さ領域においても単独照射ではキャビティが観察されなかった。一方、2 重及び 3 重照射の場合、つまり ADS 照射環境で核変換ガスとして生成する He や H が同時に照射された場合、多くのキャビティ形成が観察され、スウェリングが顕著に生じた。Fig. 4.2.5-5 に複数の高倍率 TEM 写真から求めた、2 重及び 3 重照射の場合のキャビティの数密度及び平均サイズの深さ分布を示す。定量的な解析結果と促進機構の考察に関しては、文献 4.2.5-7 に述べたが、核変換ガスである He と H は共にキャビティ形成を促進するため、He の影響だけではなく H の影響評価も重要である。本照射条件、つまり ADS では比較的高温の 500 ℃における 40 dpa の 3 重照射の場合、平均スウェリング量は 2.0%であった。一方、加速器照射では、照射損傷量は深さ分布を持つため、最大約 7%（深さに応じて照射損傷量が変化する。ここでは 50 dpa）のスウェリングも観察された。

ADS 実機では、運転開始初期から最大出力で定常運転を開始するのではなく段階的に出力上昇していくと考えられるため、各種材料挙動における照射温度依存性データを取得しておくことが重要である。そこで ADS の想定平均温度である 450 ℃を中心に、スウェリングにおける温度依存性を評価した結果について示す。照射損傷量は、10 dpa、H 及び He 照射割合はそれぞれ 15 appm He /dpa と 150 appm H / dpa、照射温度は、350、450 及び 550℃一定にて 3 重照射を実施した。Fig. 4.2.5-6 に、各照射温度における断面 TEM 写真及び、キャビティの数密度及び平均サイズから求めたそれぞれのスウェリング量の深さ分布を示す。本実験により、450℃でスウェリング量が最大となり、10 dpa 照射において、最大約 1.65%のスウェリング量であった。本挙動は、微細組織発達における温度の観点から説明できる。450 ℃という温度は、ADS 照射条件において、空孔集合体（キャビティ）の形成によるスウェリングと同時に、次節に述べる格子間原子の集合体である転位ループの形成による照射硬化の両方が生じる温度である。そのため、空孔が格子間原子との再結合により対消滅することなく安定化されるためにスウェリング量が大きくなるものと考えられる。

スウェリング挙動が重要な設計要素である燃料被覆管の場合、高速炉の基準値を参考に ADS 照射条件（本核破砕中性子模擬照射）での簡易的な評価を行う。被覆管における許容可能な最大直径歪は 7%であり [4.2.5-21]、これはスウェリングとクリープによる両方の歪を含む。最大直径歪の半分（3.5%）をスウェリングが占めると仮定すると、被覆管のスウェリングの最大値は体積換算で 3 倍の 10.5 %となる。本研究では、450℃、10 dpa の時の 3 重照射のスウェリングが 1.65%であるため、単純外挿して、約 64 dpa が本設計クライテリアにおける損傷限界となる可能性がある。ただし、3 重照射では陽子照射を模擬しているのに対し、ADS 被覆管材料中には実際にはそれほど多くの水素が生成されることはなく、かつスウェリングによる体積歪みは等方性であり [4.2.5-22]、スウェリング率はこの実験より低くなることが予想されるため、過大評価されている可能性がある。例えば、Fig. 4.2.5-6 の 450℃の平均値を 1%とすると、損傷限界は 105 dpa となる。

4.2.5.3 材料への照射影響、照射硬化

次に、3 重照射による照射硬化挙動について示す。T91 鋼のようなフェライト/マルテンサイ

ト鋼（FMS）における照射硬化（脆化）挙動は、核融合構造材料で大きな問題となることから盛んに研究されており、主に照射による格子間原子集合体（転位ループ）の形成により 300℃付近で照射硬化が顕著になり、同時に脆化することが知られている。ここでの脆化は、例えば、延性脆性遷移温度（DBTT）の上昇であり、照射前はマイナス 50 ℃程度で脆性破壊する鉄鋼材料が中性子照射により本遷移温度が上昇し、室温～プラス 100 ℃程度でも脆性破壊してしまうため、特に自重の大きな構造物等で問題となる。構造物ではないが、ADS におけるビーム窓や燃料被覆管も 400 ℃以下の比較的低温での照射は避けられず、物理的な衝撃に対する評価も必要であるため、3 重照射を用いた加速器照射において評価可能な照射硬化について検討を行った。

イオン照射の場合、照射損傷深さは 2 μm 程度に限定されるため、照射硬化評価手法としては、ナノインデンターにより計測可能な、マイクロ硬さを用いた。その結果、10 dpa の照射損傷の場合、Fig. 4.2.5-7 に示すように、照射温度とともに照射硬化率は下がる挙動を示し、350 ℃照射では約 1.5 倍の硬化率、450 ℃では、1.2 倍の照射硬化が生じるとともに、先に述べたように、スウェリング挙動が最大を示し、550 ℃と比較的高温での照射では、照射前後でほぼ硬さに変化がないことが明らかとなった。

ここで、スウェリングに引き続き照射硬化に関して、ADS への適用性評価を行う。先に述べたように、FMS 鋼の照射による材料特性変化として、DBTT シフトといった、中性子照射が脆化を引き起こすことはよく知られている。ADS の現状の概念設計では、LBE 温度約 230 ℃以上 [4.2.5-23] で運転する必要があるため、照射後の DBTT は、230 ℃以下に抑える必要がある。

照射された FMS 鋼に対するビッカース硬さ（H_v）とマイクロ硬さ（H_m）の間の経験的相関関係は、以下のように Ando らの文献 [4.2.5-24] によって報告されている、 $H_v = 60 \times H_m$ （ここで、H_v は kg/mm^2　H_m は GPa の単位である）。また、引張強度（σ_y）とビッカース硬さの相関関係は、$\sigma_y = 3.3\ H_v \times (0.1)^{0.05}$（ここで、$\sigma_y$ は MPa、H_v は kg/mm^2 の単位である）と報告されている。本 450 ℃での 3 重照射の場合、Fig. 4.2.5-7 のようにマイクロ硬さは 3.72 GPa であることから、σ_y は、上記の関係式を用いると 656 MPa となる。室温での非照射 T91 の σ_y は別途実験結果やデータベース [4.2.5-25] から 500 MPa 程度であることから、$\Delta\sigma_y$ は約 150 MPa となる。さらに、FMS に対して HFIR にて照射した後の DBTT シフトと σ_y の経験的相関関係 [4.2.5-26] から、DBTT シフトは+50 ℃と見積もられることから、10 dpa 照射後の DBTT は室温以下であると評価された。また、照射硬化率の高かった 350 ℃での照射後の DBTT も評価した結果、DBTT は 25 ℃となり、230 ℃未満の十分に低い温度であることが分かった。

以上、スウェリング（前節）及び照射硬化に関して ADS への適用性評価を行ったが、イオンと中性子照射間で材料の照射損傷挙動を比較する場合、前者の損傷速度が 2～3 桁大きい点（イオン照射は照射損傷速度が高いため、中性子照射下の微細組織発達過程では、温度が少し（プラス 20 ℃程度）高い場合の事象を見ていることになる）は常に考慮する必要がある。

4.2.5.4 材料への照射影響、LBE 中腐食挙動

ADS ビーム窓候補材の一つである T91 鋼に 3 重イオン照射を行い、照射が LBE 中材料腐食挙動に及ぼす影響を調べた。照射温度は 450 ℃とし、試料表面にて 8 dpa の照射損傷量とし

た。試料の半面を Al フォイルでマスクすることにより、同一試料上にて、照射及び未照射領域を設けた。3 重イオン照射後、溶存酸素濃度を 10^{-9} wt%程度（低酸素濃度）に制御し、照射温度と同温度である 450 ℃の LBE 中にて約 330 時間の浸漬試験を行った。Fig. 4.2.5-8 に、今回用いた腐食試験装置の模式図を示す。浸漬試験後、XRD による表面酸化膜の同定を行い、LBE を溶解除去及び樹脂埋め研磨の後、走査型電子顕微鏡（SEM）により試料表面腐食層の断面組織を観察した。また、エネルギー分散型 X 線分光器（EDS）により、断面の元素分析を実施した。

その結果、3 重照射が腐食（表面酸化皮膜形成）に及ぼす照射効果を初めて見出した[4.2.5-7)]6。Fig. 4.2.5-9 に示すように、未照射エリアでは、薄い酸化皮膜が観察され 2 層酸化膜が形成していないのに対し、照射エリアは、およそ 2 倍の厚さの酸化皮膜であり、表面が Fe 系酸化物 Fe_3O_4、その内側にスピネル系酸化物$(Fe,Cr)_3O_4$ の 2 層酸化皮膜が形成した。照射部の皮膜厚さは、未照射の数千時間の LBE 中浸漬試験結果[4.2.5-27)]に匹敵する。

照射部の酸化皮膜形成が促進された理由としては、450 ℃の照射により導入されて残留したボイド等の空孔集合体が、450 ℃の LBE 中にて空孔に熱分解した空孔、あるいは、H や He に捕獲された空孔の存在によって、空孔機構を介して Fe や Cr、格子間機構により O の拡散が促進されることによって、低い酸素濃度でも効率的に酸化反応が進んだためと考えられる。10^{-9} wt%という、Fe_3O_4 が形成するかしないかの低酸素濃度においても酸化皮膜が形成した理由としては、Fig. 4.2.5-10 に腐食試験中の LBE 中の溶存酸素濃度を示すが、試験開始直後（70～100 時間）の比較的高い濃度の溶存酸素が、照射により導入された欠陥によって拡散し、効率的に酸化反応に寄与したためと考えられる。

本試験では照射後の腐食試験にも関わらず照射影響が見られた。一方、照射中の腐食に対しては、過渡的に存在する空孔や格子間原子が非平衡に存在することから、現在、照射下の腐食挙動解明へ向けた、東海タンデム加速器を用いた高エネルギー加速器照射実験を進めている。また、イオン照射後の腐食試験においては、照射損傷深さの制限から、腐食時間が制約されるため、深さ制限のない中性子照射材を用いた、長時間の LBE 中腐食試験の検討を進めている。これにより、現状コールドの腐食試験データによる外挿ではなく、照射影響も含んだより実機に近い、放物線則が得られることを期待している。

4.2.5.5 海外の材料照射試験

(1) STIP

前報[4.2.5-8)]に引き続き、スイスのポールシェラー研究所（PSI）の加速器中性子源施設（SINQ）ターゲットにおける材料照射プログラム（STIP）の陽子照射試料の照射後試験を実施した。STIP-I において照射量 5.7～11.8 dpa、照射温度 130 ℃～380 ℃で照射した F82H の母材、溶接材の引張り試験と曲げ疲労試験を行った[4.2.5-28)]結果、脆性破壊する試料は見られなかった。STIP-II で照射量 7.1～19.5 dpa、照射温度 100 ℃～430 ℃で照射した JPCA の引張り試験を

6 T91 鋼の弾き出し損傷のみの場合では、照射による酸化皮膜形成への影響はみられず、また照射量依存性も観察されなかった。

行い [4.2.5-29]、20 dpa 近く照射した試料でも延性を保持していることを明らかにした。同じく STIP-II で照射量 7.0 dpa～19.3 dpa、照射温度 120 ℃～350℃で照射した JPCA と Alloy800H の曲げ疲労試験を行った [4.2.5-30]結果、どちらの材料も照射後の疲労寿命に変化が無いことが分かった。

STIP 試験全体として、材料特性に対して照射影響は見られるが、照射後も十分な延性を示していた。しかし、450 ℃以上のデータは少なく、かつ LBE との共存性における照射データもほとんどないため、今後 450 ℃以上の比較的高温での核破砕中性子照射試験が望まれる。

(2) MEGAPIE

MEGAPIE（MEGAwatt PIlot Experiment）は、スイス PSI を中心に国際共同で実施した LBE 流動下での陽子照射試験である。MEGAPIE の目標は、

・高出力中性子源や ADS に用いる液体金属ターゲットの実現可能性の実証
・核破砕ターゲットの構造材の評価
・核破砕生成物や腐食生成物の分布、放出挙動の評価

などである。Fig. 4.2.5-11 に示すようなターゲット容器から試験片を切り出し、参加各国で分担し照射後試験を行った。JAEA に輸送した試料の照射条件は、照射量が 0.16 dpa～1.74 dpa、照射温度 250 ℃～340 ℃であった。ビーム入射部から採取した T91 鋼やフローガイド管から採取した SUS316L 試料について引張り試験を行った [4.2.5-31]結果、MEGAPIE の照射条件では LBE 流動下の照射によって材料の脆化は生じないことが分かった（Fig. 4.2.5-12）。また、引張り試験片の厚さ依存性も調べ、特殊形状の試験片で引張り特性を評価出来ることを示した。

MEGAPIE での照射温度は ADS の想定である最高 550 ℃に比べて低温かつ低照射量であり、今後高温で高照射量までの同様の実証試験が必要となる。

4.2.5.6 液体金属脆化メカニズムに関する計算科学研究

ADS ターゲット窓材候補である T91 鋼は、鉛ビスマス中で LME を生じる [4.2.5-32]。T91 鋼を用いて鉛ビスマス中で通常のひずみ速度による引張試験を行うと、鉛ビスマス中の溶存酸素濃度にも大きく依存するが、大気中試験に比べて伸びが大幅に低下することが知られている。割れは主にラス界面割れと言われているが、ラス界面なのか界面に沿った結晶面なのかは明らかではない。部分的には旧オーステナイト粒界でも破面が生じるが、その割合は少ない。

引張試験は数百秒のオーダーで行われるものであるため、そこで観察される脆化は溶解現象や腐食現象が関与するものではないと考えられる。一方、大角度粒界である旧オーステナイト粒界への鉛ビスマス原子の侵入が観察された例はなく、ラス界面は低角度粒界であるため鉛ビスマス原子の侵入は考えられない。このため脆化は、鉛ビスマスが引張試験中にできた鉄鋼の新生表面に触れることによって生じていると考えられる。

このような液体金属メカニズム解明の一助として、第一原理計算による研究を行った。液体金属原子が鉄の破面を安定化する効果、粒界や格子中に侵入しやすいかどうかを調べるため、溶解エネルギー、粒界吸着エネルギー、破面吸着エネルギーを計算し、脆化のしやすさと比較した。計算は低融点金属 13 種に対して行ったが、Fig. 4.2.5-13 にはその結果の一部を示した。

In が最も脆化を起こしやすく次に Pb, Bi と続き、Na と Ga は脆化を起こしにくいことが知られている [4.2.5-33]。表面吸着エネルギーが（負の方向に）大きいほど破面生成しやすいと思われるので、脆化の強弱の決定に関与しそうに思われるが、Fig. 4.2.5-13 (a)の結果はその推測を否定している。In は粒界への侵入が観察されており、Pb, Bi よりも脆化を起こしやすいことが知られている [4.2.5-34]。13 種の液体金属元素の計算結果から、脆化を起こしやすい元素ほど Fig. 4.2.5-13 (b)のゼロエネルギー付近に集まることが分かった。このことから、格子や粒界への侵入のしやすさが脆化の強さを決定づけている傾向が見られ、脆化メカニズムの重要な要素の一つではないかと考えられる。

4.2.5.7 ADS 材料のまとめ

LBE 中の腐食挙動を把握するために、これまで実施してきた静的腐食試験および LBE ループでの動的腐食試験についてまとめた。静的腐食試験では、様々な候補材の腐食挙動を調べるとともに、シリコン添加材などの新たな鋼材の開発を行ってきた。その知見に基づき、JLBL-1 などの単純な LBE ループでの腐食観察が行われ、現在は、LBE 中酸素濃度や流量を高精度で制御し、材料試験に特化した OLLOCHI ループを用いた流動下・応力下での材料腐食データの取得を計画している。また、腐食挙動には初酸化加被膜の形成が影響することが見いだされており、今後の腐食試験で考慮する必要がある。

次に、ADS 材料特有の照射環境が材料に及ぼす影響を調べるために、Fe イオン、He および H の 3 重照射を行った。照射結果から ADS 被覆管のスウェリング量を予備的に評価した結果、損傷が過大評価されている可能性があるが、約 64 dpa が損傷限界となった。また、ビーム窓材の DBTT シフトを評価した結果、脆性破壊を起こす温度は室温程度以下であり、ADS の最低運転温度 230 ℃に比べて十分な余裕があることが分かった。また、3 重照射を行った後に LBE 中腐食試験を行うことによって照射が材料腐食に与える影響を調べ、T91 鋼に対する照射で酸化反応が促進されることを初めて見出した。

このように、実環境がない現状に置いて、3 重照射は材料スクリーニングのみならず、ADS 機器の概念設計検討にも重要なデータを提供可能である。その一方、3 重照射等の加速器照射では中性子照射に比べて損傷速度が大きい点や照射損傷の深さに制限があることを考慮する必要がある。そこで、Fig. 4.2.5-2 に照射計画として示したように、加速器を用いた核破砕模擬イオン照射による微視的な材料挙動機構の解明を進めるとともに、現在海外炉を用いて進めている中性子照射後のマクロな材料特性評価を進める予定である。

また、計算科学的手法を新たに用いた LME に関する基礎的な解析について示したが、今後は LBE 中の各種材料強度特性（引張、疲労、クリープ）についてのデータに基づき、照射損傷挙動や腐食挙動に関して、計算機シミュレーションによるミクロ・マクロ相関モデル等との比較・検証を進め、ADS 材料挙動予測モデルの構築を目指す。

一方で、ADS 基本設計や許認可取得に向けては、J-PARC 線形加速器による陽子線照射を用いた核破砕中性子照射による LBE 環境中照射場による実証試験は不可欠であり、材料照射場の観点からは、軽水炉の安全性研究や、高速炉、核融合システム等他の炉型にも活用しつつ、段階的かつ戦略的に ADS 実現へ向けた成果が積み上がるように進める。

参考文献

4.2.5-1) A. Weisenburger, et al., “Oxygen for protective oxide scale formation on pins and structural material surfaces in lead-alloy cooled reactors”, Nucl. Eng. Des, 273 (2014) pp.584-594.

4.2.5-2) E. Stergar, et al., “Influence of LBE long term exposure and simultaneous fast neutron irradiation on the mechanical properties of T91 and 316L”, J. Nucl. Mater., 473 (2016) pp.28-34

4.2.5-3) M.J. Konstantinovic, et al., “Comparison of the mechanical properties of T91 steel from the MEGAPIE, and TWIN-ASTIR irradiation programs”, J. Nucl. Mater., 468 (2016) pp.228-231

4.2.5-4) A.J. Magielsen, et al., “Irradiation of structural materials in contact with lead bismuth eutectic in the high flux reactor”, J. Nucl. Mater. 415, (2011) pp.311-315

4.2.5-5) H. Glasbrenner, et al., “LiSoR irradiation experiments and preliminary post-irradiation examinations”, J. Nucl. Mater., 343 (2005) pp.267-274

4.2.5-6) Y. Dai, et al., “FeCrAlY and TiN coatings on T91 steel after irradiation with 72 MeV protons in flowing LBE”, J. Nucl. Mater. 431 (2012) pp.66-76

4.2.5-7) N. Okubo and Y. Fujimura, “Irradiation Influence on Swelling and Corrosion Behavior of ADS Beam Window Materials, T91 Steels, in Lead Bismuth”, JPS Conf. Proc. 28, 071001 (2020).

4.2.5-8) 原子力基礎工学研究部門, 他,“日本原子力研究開発機構における長寿命核種の分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方”, JAEA-Review 2008-074 (2009), 246p.

4.2.5-9) Y. Kurata, et al., “Temperature Dependence of Corrosion of Ferritic/Martensitic and Austenitic Steels in Liquid Lead-Bismuth Eutectic”, Materials Transactions, Vol. 50, No. 10 (2009) pp.2410-2417.

4.2.5-10) Y. Kurata, et al., “Applicability of Al-powder alloy coating to corrosion barriers of 316SS in liquid lead bismuth eutectic”, Mater. Trans., Vol.52, No.5(2011) pp.1033-1040.

4.2.5-11) Y. Kurata, et al., “Development of aluminum-alloy coating on type 316SS for nuclear systems using liquid lead-bismuth”, JNM 424(2012) pp.237-246.

4.2.5-12) Y. Kurata, “Corrosion experiments and materials developed for the Japanese HLM systems”, JNM 415(2011) pp.254-259.

4.2.5-13) Y. Kurata, et al., “Corrosion behavior of Si-enriched steels for nuclear applications in liquid lead-bismuth”, JNM 437(2013) pp.401-408.

4.2.5-14) K. Kikuchi, et al., “Ni-rich precipitates in a lead bismuth eutectic loop”, JNM 398(2010) pp.104-108.

4.2.5-15) S. Saito, et al., “Corrosion-erosion test of SS316L grain boundary engineering material (GBEM) in lead bismuth flowing loop”, JNM 431(2012) pp.91-96.

4.2.5-16) Abu Khalid Rivai, et al., “Effect of cold working on the corrosion resistance of JPCA

steel in flowing Pb-Bi at 450℃", JNM 431(2012) pp.97-104.

4.2.5-17) T. Wan, et al., "Flow-Accelerated Corrosion of Type 316L Stainless Steel Caused by Turbulent Lead–Bismuth Eutectic Flow", Metals 8, 627, pp. 1-22 (2018/8). https://doi.org/10.3390/met8080627.

4.2.5-18) K. Kikuchi, et al., "Corrosion rate of parent and weld materials of F82H and JPCA steels under LBE flow with active oxygen control at 450 and 500℃", JNM 377(2008) pp.232-242.

4.2.5-19) E. Yamaki, et al., "A stability of oxide layers formed in LBE on HCM12A to external loading", JNM 398(2010) pp.153-159.

4.2.5-20) K. Kikuchi, et al., "Nano-structure investigation of HCM12A oxide layer", JNM 431(2012) pp.120-124.

4.2.5-21) T. Uwaba, M. Sogame, M. Ito, T. Mizuno, T. Donomae and K Katsuyama, "Evaluation of Creep Damage and Diametral Strain of Fast Reactor MOX Fuel Pins Irradiated to High Burnups", J. Nucl. Sci. Technol., 47, 8, pp. 712-720, (2010).

4.2.5-22) IAEA Nuclear Energy Series, No. NF-T-4.2, Structural Materials for Liquid Metal Cooled Fast Reactor Fuel Assemblies —Operational Behaviour, 2012

4.2.5-23) 辻本 和文, 他, "鉛ビスマス冷却加速器駆動システムを用いた核変換技術の成立性検討", JAEA-Research 2010-012, (2010) 59p.

4.2.5-24) 安堂 正巳, 他, "照射された低放射化フェライト鋼の引張強度特性-硬さの相関", 日本金属学会誌, 72, 10, (2008) pp. 785-788.

4.2.5-25) NIMS, Metallic Material Database, Kinzoku.

4.2.5-26) M.A. Sokolov a, H. Tanigawa, G.R. Odette, K. Shiba and R.L. Klueh, "Fracture toughness and Charpy impact properties of several RAFMS before and after irradiation in HFIR", J. Nucl. Mater., 367 (2007) pp.68-73.

4.2.5-27) A. Heinzel et al. "Corrosion behavior of austenitic steels in liquid lead bismuth containing 10^{-6} wt% and 10^{-8} wt% oxygen at 400–500 °C", J. Nucl. Mater., 448 (2014) pp.163-171

4.2.5-28) S. Saito, et al., "Proton irradiation effects on tensile and bend-fatigue properties of welded F82H specimens", J. Nucl. Mater., 398, 49-58, (2010).

4.2.5-29) S. Saito, et al., "Tensile mechanical properties of a stainless steel irradiated up to 19 dpa in the Swiss spallation neutron source", J. Nucl. Mater., 431, (2012) pp.44-51.

4.2.5-30) S. Saito, et al., "Bend-fatigue properties of JPCA and Alloy800H specimens irradiated in a spallation environment", J. Nucl. Mater., 450, (2014) pp. 27-31.

4.2.5-31) S. Saito, et al., "Experimental validation of tensile properties measured with thick samples taken from MEGAPIE target", J. Nucl. Mat. 534 (2020) 152146.

4.2.5-32) A. Legris, G. Nicaise, J.-B. Vogt, J. Foct, "Liquid metal embrittlement of the martensitic steel 91, influence of the chemical composition of the liquid metal. Experiments and electronic structure calculations", J. Nucl. Mater. 301, (2002) pp. 70-

76.

4.2.5-33) M. G. Nicholas, “A survey of literature on liquid metal embrittlement” in Embrittlement by Liquid and Solid Metals, M. H. Kamdar, Ed., (The Metallurgical Society of AIME, 1983), pp. 27-50.

4.2.5-34) M. L. Martin, T. Auger, D. D. Johnson, I. M. Robertson, “Liquid–metal-induced fracture mode of martensitic T91 steels”, J. Nucl. Mater., 426, (2012) pp.71-77.

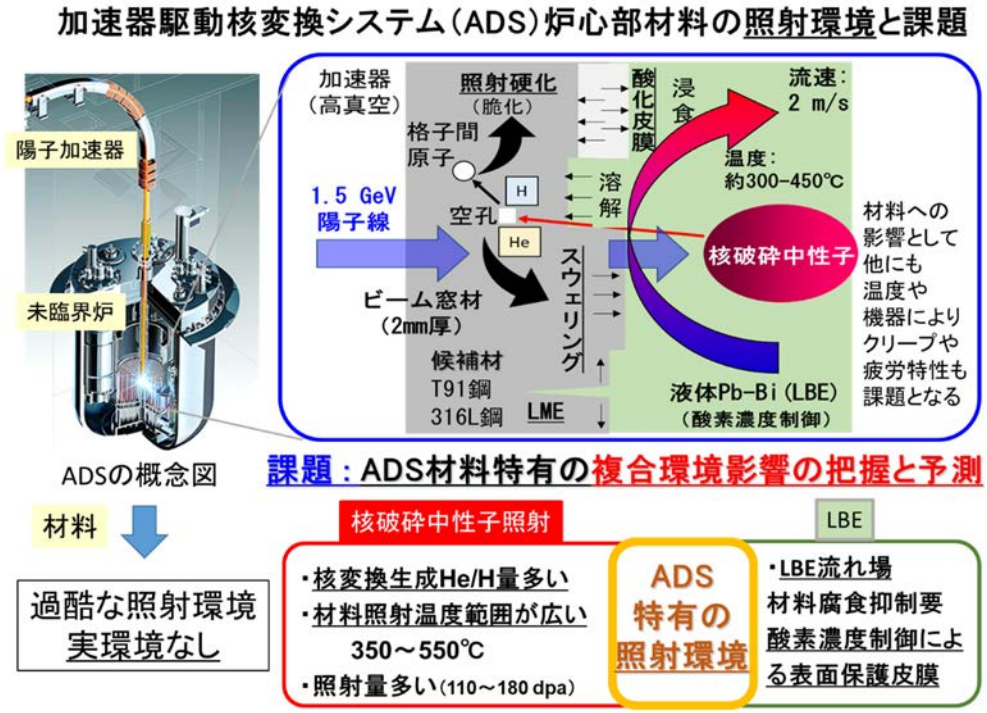


Fig. 4.2.5-1　ADS 炉心部材料の照射環境と課題

➢ 過去の鉛ビスマス中照射研究　　LBE（鉛ビスマス共晶合金）

主機関	プロジェクト	照射施設	照射量dpa	照射温度（℃）	備考
SCK・CEN	LEXUR-Ⅱ	BOR-60	6	350 [2]	高速中性子 LBE封入キャプセル
SCK・CEN	Twin-ASTIR	BR-2	1.5	200,350,450[3]	熱中性子 LBE封入キャプセル
NRG	IBIS	HFR	1.3/2.3	300/500 [4]	熱中性子 LBE封入キャプセル
PSI	MEGAPIE	SINQ	0.8～3.9	250～350	陽子+核破砕中性子 流動LBE
PSI	LiSoR	SINQ	～2.5	400 [5,6]	72MeV陽子、流動LBE

➢ JAEAにおける照射計画

- PSI　核破砕中性子照射　1～2 dpa, 250℃ LBEなし⇒　照射中　2018.6～2021.12
- SCK・CEN　熱中性子照射　3～4 dpa 450℃ LBEなし⇒　照射中　2021、2022
- TIARA　核破砕模擬イオン照射　～20 dpa 350～550℃　照射後LBE中腐食試験

Fig. 4.2.5-2　LBE 中材料照射研究

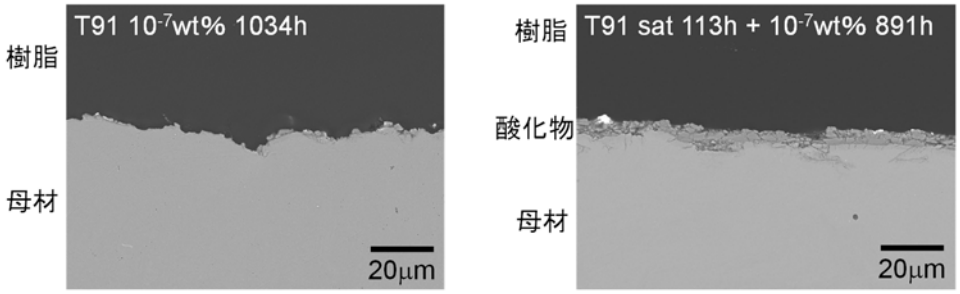


Fig. 4.2.5-3　500℃の LBE 中に浸漬した T91 試験片の断面観察結果

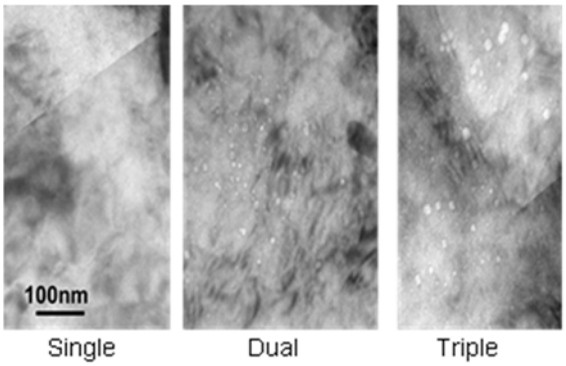


Fig. 4.2.5-4　単独照射（Single）、2 重照射（Dual）及び 3 重照射（Triple）した T91 鋼の断面 TEM 写真。Dual と Triple に見られる白点がキャビティ（空孔の集まった空孔集合体）

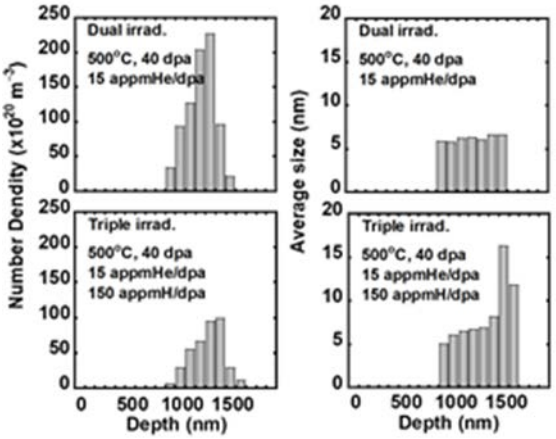


Fig. 4.2.5-5　空孔集合体（キャビティ）の数密度（左列）及び平均サイズ（右列）の深さ分布。2 重照射（上行）及び 3 重照射（下行）した断面 TEM 写真から求めた。

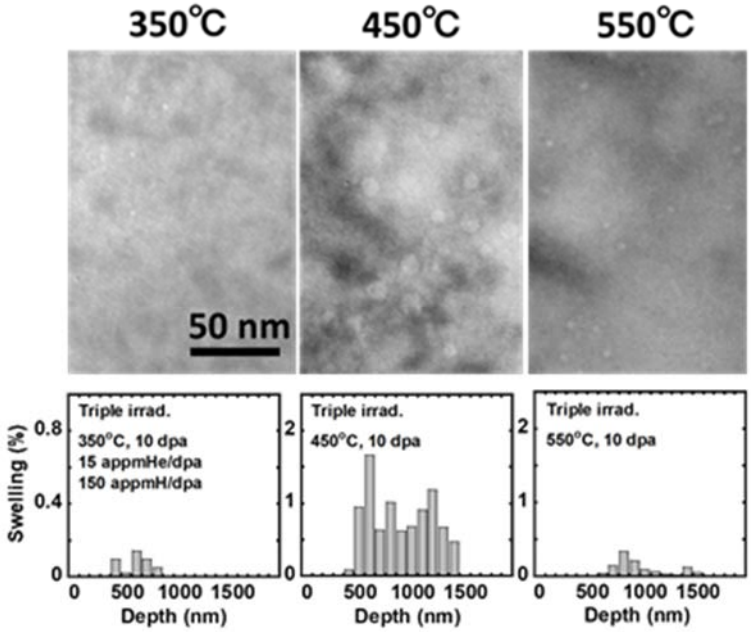


Fig. 4.2.5-6　T91 鋼の各照射温度における断面 TEM 写真及び、スウェリング量の深さ分布。キャビティの数密度及び平均サイズからスウェリングを求めた。

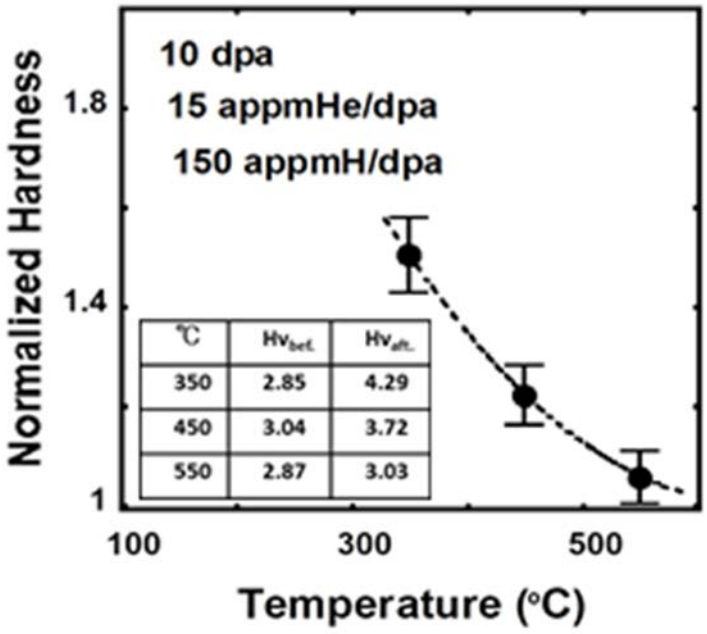


Fig. 4.2.5-7　3 重照射した T91 鋼の各照射温度における照射硬化率。縦軸は、照射後硬さを照射前硬さで除した値。

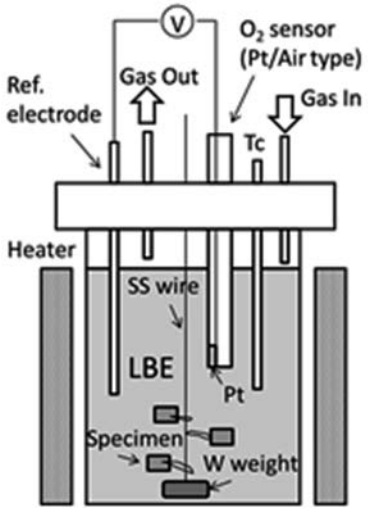


Fig. 4.2.5-8　静的 LBE 中腐食試験装置模式図

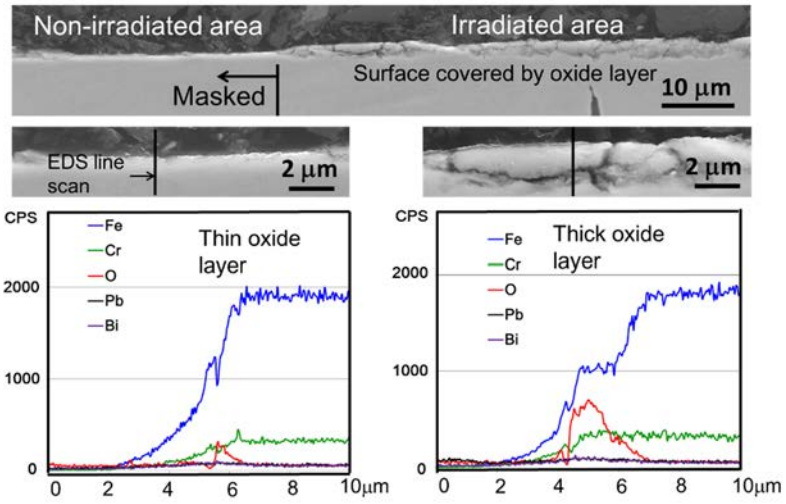


Fig. 4.2.5-9　3 重照射した T91 鋼の静的 LBE 中腐食試験後の断面 SEM 像及び EDS 線

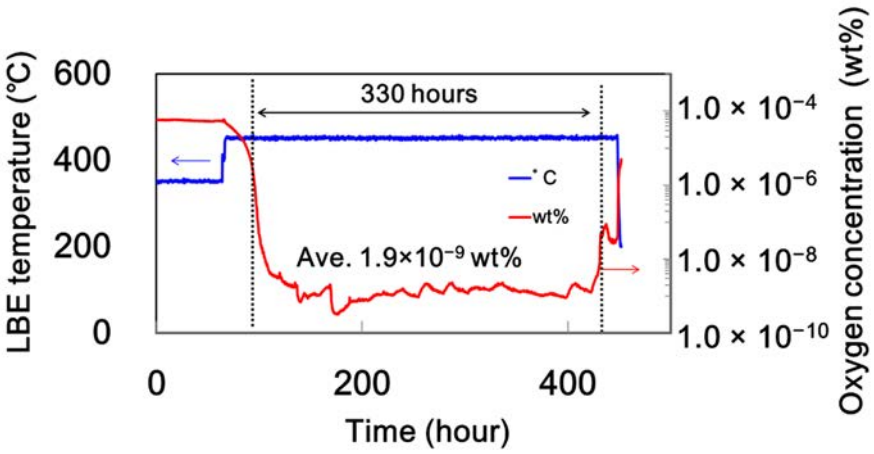


Fig. 4.2.5-10　静的腐食試験における LBE 温度及び酸素センサの起電力

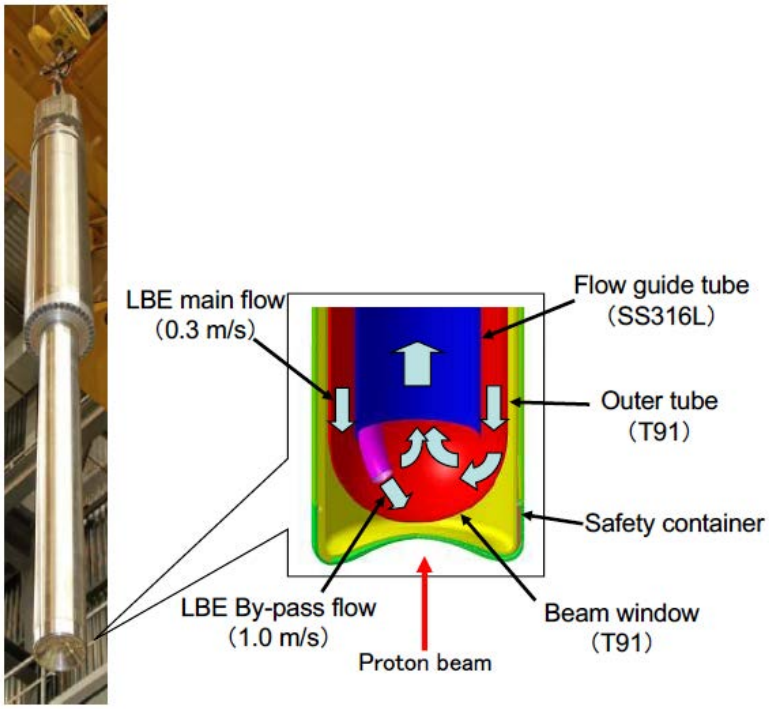


Fig. 4.2.5-11　MEGAPIE のターゲット

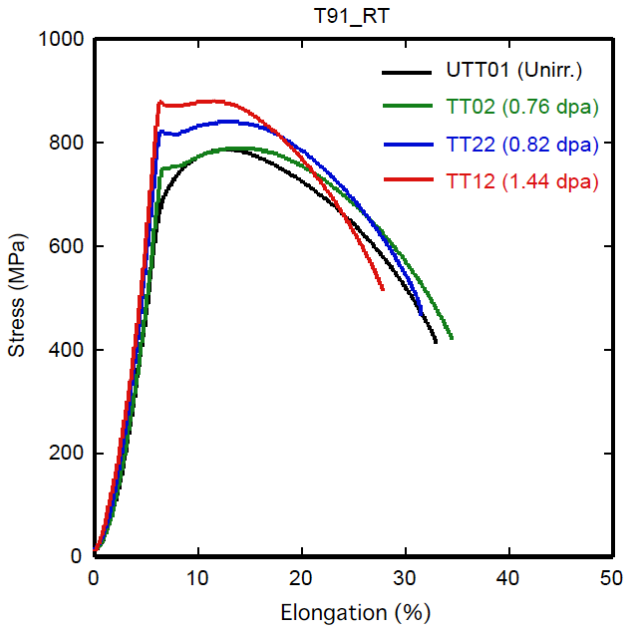
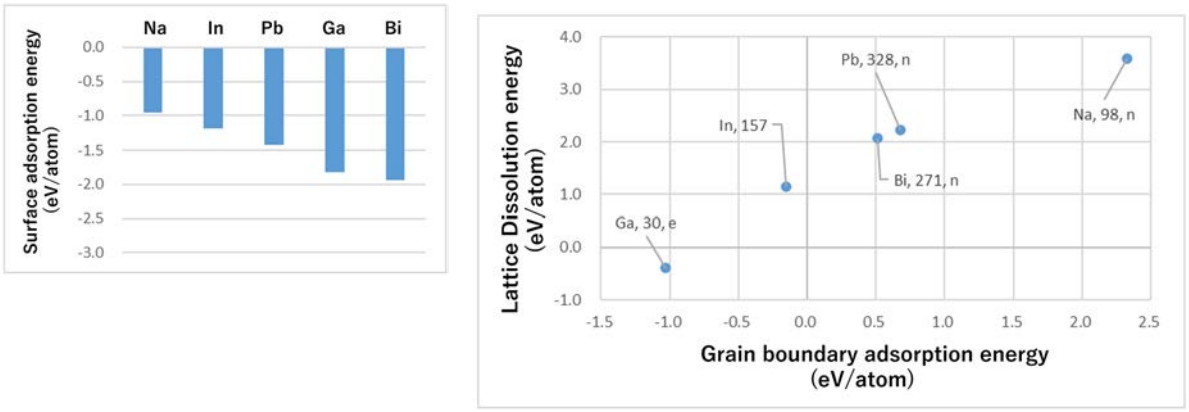


Fig. 4.2.5-12　MEGAPIE 試料の引張り試験結果（室温）



(a) (b)

Fig. 4.2.5-13 (a) 液体金属元素の鉄(111)表面吸着エネルギー、(b) 液体金属元素の鉄中溶解エネルギーと粒界吸着エネルギー。図中の数字は液体金属の融点温度（℃）、e は鉄との化合物が存在すること、n は化合物が存在しないことを示す。

4.2.6 ADS 用加速器開発

4.2.6.1　ADS 用 Linac の設計

JAEA では 1990 年代以降、Table 4.2.6-1 に示す ADS の要求仕様を満たすリニアックの開発を進めてきており、旧日本原子力研究所における中性子科学研究計画（NSP）での建設を前提として、2000 年代初頭までに Fig. 4.2.6-1 に示すリファレンス設計を完成させた[4.2.6-1)]。現在実用化されている大強度陽子加速器のビーム出力をさらに一桁向上させるような大強度リニアックには、消費電力や安定度、さらにはビーム口径を大きく出来ることからビーム損失に対する裕度の大きい超伝導加速空洞の採用が必須であると考えられている。しかしながら、NSP のリファレンス設計時点では高ベータ（光速で規格化した粒子の速度、$\beta = v/c$）用の超伝導加速空洞しか実用化されておらず、100 MeV 以下の低ベータ部には常伝導のドリフトチューブリニアック（DTL）を採用していた。DTL では、ドリフトチューブ内に電磁石を内蔵することに起因する構造の複雑さから、CW 運転における安定性が懸念されていた。

その後、2004 年の国際将来加速器委員会（ICFA）による国際リニアコライダー（ILC）の超伝導技術の採用の決定も契機となり世界中で低ベータ用も含めた超伝導加速空洞の技術開発が加速度的に進展したことをふまえ、2013 年度から 2016 年度の原子力システム研究開発事業「加速器駆動未臨界システムによる核変換サイクルの工学的課題解決に向けた研究開発」（H25 公募事業）において低ベータ部の超伝導化の検討を行った[4.2.6-2)]。この時点で、NSP リファレンス設計時の加速周波数の 200 MHz および 600 MHz を、J-PARC リニアックの高周波系をある程度流用できるように、324 MHz および 648 MHz に変更した。2017 年度以降、さらに ADS 用リニアックの設計を推し進めている。

RFQ については、その複雑な構造から超伝導化が難しく、残された唯一の常伝導空洞となっている。これまで想定していた加速周波数 324 MHz においては、一般的に最大表面電界が 30 MV/m 程度となり、常伝導空洞で安定な CW 運転には高すぎるため、ADS 用リニアックに要求される信頼性を満たせない懸念がある。このため、低ベータ部の加速周波数を半分の 162 MHz とすることで、RFQ の最大表面電界をおおむね半分にすることにした[4.2.6-3)]。これにともない、10 MeV 以下の低ベータ部の加速周波数 162 MHz で再設計が必要となった。Fig. 4.2.6-2 に 2020 年までに得られた ADS 用リニアックの構成を示す[4.2.6-4)]。

162 MHz の超伝導空洞として半波長型共振空洞（HWR）、324 MHz の 200 MeV までの中ベータ部にシングルスポーク型共振器（SSR）を採用したのに加え、高ベータ部の楕円型超伝導空洞の種類も従来の 8 種類から 2 種類に減らした。これは近年の、空洞がトリップした場合周りの空洞の電圧を上げることで補償するスキーム（異常補償運転）に対応するためである。ビーム力学設計および粒子シミュレーションは、最近の大強度 CW リニアックの設計で事実上の標準として使用されている、フランス原子力庁（CEA）で開発された TraceWin[4.2.6-5)]を用いた。Table 4.2.6-2 に得られた加速空洞のパラメータを示す。空洞内の最大電場 E_{pk} は、ADS に要求される高い安定性や、異常補償に対する余裕を考慮に入れて、超伝導加速空洞としては保守的な 30 MV/m に設定した。この表から、ADS にはおよそ 300 台の超伝導加速空洞が必要となることが分かる。また、Fig. 4.2.6-3 に、ビームシミュレーション結果を示す。電磁石の整列誤差などを考慮すると、誤差の無い理想的な場合（ideal machine）、ビームパイプ内いっぱいまで

ビームエンベロープが広がってしまう（SEWOCS）が、ビーム調整時に行う静的軌道補正を考慮する（SEWCS）と、静的補正では補正できない高周波電力の変動（動的誤差）を考慮しても（DE）ビームパイプに対して十分余裕があり、ビーム損失を起こさないことが確認され、ADS用リニアックのリファレンスデザインを完成させた。

今後は、異常補償運転の具体的検討や、原子炉起動、停止の過渡状態に対応するためのビーム出力可変運転方法などの、実際に即した運転スキームの検討を行う。

4.2.6.2　超伝導加速空洞の試作

言うまでもなく超伝導加速空洞は ADS 用リニアックで最も重要な要素技術である。それぞれの型の超伝導加速空洞について、その製造技術を確立し、Table 4.2.6-2 に示される、ビーム力学設計で要求される加速電圧を、ADS に要求される安定度で、想定される消費電力以内で達成できることを実証しておくことは必須の技術開発である。そのため、2002 年度から 2004 年度の革新的原子力システム技術開発公募事業「加速器駆動核変換システムの技術開発等」において、100 MeV 以上のエネルギー領域で使用する高ベータ用楕円型超伝導加速空洞の技術開発および性能実証を行った [4.2.6-6]。前項で示したリニアック再設計にともない新たに採用したシングルスポーク空洞については、一部の実証用加速器で運転されている例をのぞけば、利用運転されている加速器での長時間運転の実績もなく、最も実証試験が必要な加速空洞である。このため 2017 年度以降、このシングルスポーク空洞試作機の開発を進めている。

試作スポーク空洞の電磁場設計 [4.2.6-7]は、CST Studio Suite[4.2.6-8]を用いて行った。Fig. 4.2.6-4 にシミュレーションによって得られた電磁場分布を Table 4.2.6-3 に試作スポーク空洞のパラメータを示す。本試作は、前項のビーム力学設計が完了する以前に開始されたので、Table 4.2.6-2 のパラメータと試作空洞のパラメータには差異があるが、本試作は製作方法の確立に主眼を置いているので問題ない。電磁場設計により得られた形状を、Fig. 4.2.6-5 に示すように部品分割し、スポークおよび空洞外形の主要部品については、残留電気抵抗比（RRR, Residual Resistance Ratio）250 以上の 3.5 mm 厚の純ニオブ材をプレス成型して製作した。ドリフトチューブについてはバルクの純ニオブ材、真空フランジについてはニオブチタン材をそれぞれ切削加工して製作した。各部品は電子ビーム溶接によって接合され、加速空洞の形状が完成される。2020 年までに、Fig. 4.2.6-6 に示すようにすべての部品の製作が完了している。今後、電子ビーム溶接による空洞の組み立て後、内面の化学研磨処理、熱処理、超純水による高圧水洗浄といった表面処理を行い、空洞単体を冷却しての性能測定を行う予定である。

4.2.6.3　陽子ビームモニタ開発

ADS の安定な運転には、標的に大強度陽子が常に問題なく輸送されている状態の確認が重要となる。J-PARC/MLF では、標的におけるビーム形状をビームプロファイルモニタにより常時確認し、ビームの位置、幅およびピーク電流密度に異常が発生した場合には、直ちにビームを停止する [4.2.6-9]。同様なシステムは ADS においても必要となると考えられ、陽子ビームモニタの開発は ADS においても重要となる。

MLF では SiC ワイヤの二次電流によりビームプロファイルを観測している [4.2.6-10]。水銀標

的から 1.8 m 上流にある陽子ビーム窓の位置に、SiC ワイヤ（直径 0.1 mm）を水平および垂直方向分布測定のために垂直 32 本と水平 14 本張ったモニタを設置し、ビームプロファイルに異常がある場合には直ちに機器保護システム（Machine Protection System, MPS）によりビームを停止する。SiC は極めて強い耐放射線性を有しているものの、数 GeV 陽子に対する耐放射線性は明確ではない。MLF のこれまでの使用実績では、3 年間の約 500～700 kW ビーム出力運転や 1 MW の 3 日間のビーム運転において、特に問題は発生していない。MLF では水銀標的容器の保護の観点により、モニタ位置におけるビーム電流密度を非線形光学によるビーム整形 [4.2.6-11]により 8 μA/cm² に抑え運転している。一方、ADS や J-PARC で計画を進めている材料試験のための新施設では、ピーク電流密度は最大で約 30 μA/cm² に達するため、MLF に対し約 4 倍の電流密度となる。このため、ADS で用いる数 GeV 陽子入射における SiC ワイヤの劣化が重要な課題となる。

SiC ワイヤの劣化を効率的に測定するため、線エネルギー付与（LET）の高い低エネルギーの重イオンビームを用いた試験を QST の TIARA において行った。SiC ワイヤなどの材料の損傷は、原子あたりの弾き出し数（dpa）により特徴づけられ、dpa の評価の基準となる弾き出し断面積測定を J-PARC の加速器施設において進め、この結果 dpa 評価が高い信頼性で行えるようになった [4.2.6-12~14]。数 GeV 陽子および重イオン入射における、SiC 試料中の深さ方向における dpa の計算結果を Fig. 4.2.6-7 に示す [4.2.6-15]。Ni （10.5 MeV）イオンビーム入射の場合には、0.4 ～ 3 GeV 陽子入射の場合と比較し、入射表面において約 10^5 倍の損傷を与えることがわかり、Ni イオンを用いることにより効率的に弾き出し損傷を生じることができる。TIARA のタンデム加速器において、Fig. 4.2.6-8 に示す体系を用いて測定を行った結果 [4.2.6-15]、SiC ワイヤは Ni イオンビーム入射に伴って、徐々に 2 次電子の読出し電流が低下することを確認したが、約 3.3 dpa の照射量に対し僅か 6%の低下であった。3.3 dpa の照射量は、ADS において約 2 年間の照射量に相当し、SiC ワイヤの放射線損傷による劣化はほとんど影響ないことが確認できた。

ワイヤで測定するビームプロファイルは、ワイヤの張る方向に対し並行し電流を積分し、ワイヤ方向に直角となる 1 次元分布を得る。ADS において標的に入射するビームは、非線形光学を用いピーク形状を平坦に整形することや、通常の場合に楕円形となるビーム形状が変形する可能性があるため、プロファイル測定では 1 次元のみならず 2 次元分布の測定が望まれる。スイス PSI の SINQ では、真空ダクト内に設置したタングステンワイヤの温度分布により 2 次元のビームプロファイルを測定する VIMOS[4.2.6-16]を開発した。ADS ではビーム窓温度の観測により可能であると考えられ、我々も温度分布による 2 次元分布測定の開発に着手した。

温度を読み出すセンサ部は、高放射線場になることが予想されるため、2 MGy 以上の耐放射線性の優れたキャピラリチューブを用いた赤外線画像伝送器を試作した [4.2.6-17]。この模式図を Fig. 4.2.6-9 に示す。キャピラリチューブは 144 本用い、12×12 の格子状の画素を伝送する。本機器の試験のため、ヒータを用いた温度分布の測定を Fig. 4.2.6-10 に示す装置を用いて行った。試験結果を Fig. 4.2.6-11 に示す。図中の赤点がキャピラリチューブによる観測点を示し、黄色は非測定点の値となる。ヒータの温度上昇と共に観測された温度が上昇し、一様な分布を得ることが確認できた。ADS のビーム窓の使用温度（350 ℃以上）より低い温度でも、赤外線

の観測により分布が測定できることが明らかになった。なお、本実験で使用した伝送器は、試作器のため 12×12 の粗い画素としたが、実際にモニタとして使用する際には画素数を増し対応する予定である。

米国のオークリッジ国立研究所（ORNL）の核破砕中性子源（SNS）では標的容器にアルミナおよびクロムを用いた蛍光体を塗付し、これらの蛍光により 2 次元のビームプロファイルを測定している。蛍光の観測場所も高放射線場になるため、耐放射線性を有するファイバスコープを用いて光を伝搬し、可視光カメラによりプロファイルの測定を行っている。SNS のビーム運転において、放射線による蛍光体の劣化のために明確なビーム形状を測定するのが困難となっており、さらなる耐放射線に優れた蛍光体の開発が必要となる。SiC ワイヤと同様に試料の照射損傷の加速のため、TIARA のサイクロトロン加速器施設において、重イオン（Ar）ビーム入射による蛍光体を用いたビームプロファイルモニタの試験を行った。

数種類の実験体系 [4.2.6-15]を Fig. 4.2.6-12 に示す。候補となる数種類の蛍光体試料に対し、ビーム照射中の発光強度の振舞いを分光器により測定した。蛍光体試料には、アルミナ（Al_2O_3）に Cr 等を添加したものを用い、アルミニウム製の母材に溶射した。照射中の発光状態の確認のためカメラおよび 2 MGy の耐放射線性を有するファイバスコープを用いた。入射ビームには、107 MeV の Ar を用い、発光強度のビーム位置依存性の抑制のため、非線形光学により一様な強度分布となるようビーム整形を行った [4.2.6-18]。ビーム電流は、ファラデーカップをビームライン中に挿入し測定した。試料照射中のビーム電流はファラデーカップでは測定できないため、試料の上流側に SiC ワイヤを設置し照射中のビーム電流を測定した。試料の発光量の振舞いを、Fig. 4.2.6-13 に示す [4.2.6-15]。図の上側に Al_2O_3 に Cr を 0.5%wt ドープした試料の発光状態、発光スペクトル強度、およびピーク強度の時間的な振舞いを示す。Cr をドープした試料は、Cr により励起した波長 700 nm 付近の鋭いピークと橙色の発光を観測した。発光強度はカメラで明確に確認でき、十分であるものの、照射量と共にピーク強度が減衰し、6,000 秒の照射により照射開始時より 50%減衰した。この試料へのビーム照射量は 3.8×10^{-2} dpa となり、ADS の 30 MW ビーム運転において 170 時間に相当するものとなった。微量な不純物を含ませた Al_2O_3 試料 [4.2.6-15]の結果を、Fig. 4.2.6-13 の下側に示す。Cr をほとんど含まないため明確なピークは観測されず、連続的なスペクトルとなる白色光を観測した。図中の右下に短波長領域（350 nm 付近）の発光強度の振舞いを示す。Cr を含む試料に比べ、発光強度は著しく小さくなるものの、照射による減衰は 30%に抑えられた。以上の成果を踏まえて、今後は照射による発光量の減衰を抑えた試料に関する研究をさらに進めるとともに、数 GeV 陽子に対する発光強度を J-PARC 加速器施設において測定する予定である。

参考文献

4.2.6-1) M. Mizumoto et al., “A high intensity proton linac development for the JAERI neutron science project”, Proc. LINAC98, (1998) pp.349-353.

4.2.6-2) 平成 25～28 年度 文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業 原子力システム研究開発事業「加速器駆動未臨界システムによる核変換サイクルの工学的課題解決に向けた研究開発」成果報告書, (2018).

4.2.6-3) Y. Kondo et al., “Reference design of the RFQ for JAEA ADS linac”, JPS Conf. Proc. 33, 011015 (2021).

4.2.6-4) B. Yee-Rendon et al., “Error studies for the JAEA-ADS linac”, 日本加速器学会　第 17 回年会プロシーディングス, (2020) pp.33-37.

4.2.6-5) CEA, TraceWin https://irfu.cea.fr/en/Phocea/Page/index.php?id=780(accessed 2022/7/15).

4.2.6-6) 日本原子力研究開発機構, 平成 14～16 年度　文部科学省　革新的原子力システム技術開発公募事業「加速器駆動核変換システムの技術開発等」成果報告書, (2005).

4.2.6-7) J. Tamura et al., “RF design of the prototype spoke cavity for the JAEA-ADS linac”, JPS Conf. Proc. 33, 011049 (2021).

4.2.6-8) Dassault Systems , CST Studio Suite https://www.cst.com/ (accessed 2022/7/15)

4.2.6-9) 明午伸一郎, 他, “大強度陽子加速器のための標的上のプロファイルモニタの開発”, 日本加速器学会　第 15 回年会プロシーディングス, pp. 1035-1039 (2018).

4.2.6-10) S. Meigo, et al., “Beam Instruments for High Power Spallation Neutron Source and Facility for ADS”, Proc. of the Advanced Beam Dynamics Workshop on High-Intensity and High-Brightness Hadron Beam HB2018, TUP1WE03, Daejon, Korea (2018).

4.2.6-11) S. Meigo, et al., “Two-parameter model for optimizing target beam distribution with an octupole magnet”, Phys. Rev. Accel. Beams 23, 062802 (2020).

4.2.6-12) H. Matsuda, et al., “Measurement of displacement cross-sections of copper and iron for proton with kinetic energies in the range 0.4 – 3 GeV”, J. Nucl. Sci. Technol., 57, (2020) pp. 1141-1151.

4.2.6-13) Y. Iwamoto, et al., “Estimation of reliable displacements-per-atom based on athermal-recombination-corrected model in radiation environments at nuclear fission, fusion, and accelerator facilities”, J. Nucl. Mater., 538, 152261 (2020).

4.2.6-14) 日本原子力研究開発機構, 平成 28 - 令和元年度文部科学省国家課題対応型研究開発推進事業 原子力システム研究開発事業 「J-PARC を用いた核変換システム(ADS) の構造材の弾き出し損傷断面積の測定」成果報告書 (2019).

4.2.6-15) 明午　伸一郎, 他, “SiC ワイヤにおける二次電子放出の大強度ビームに対する耐久性”, 日本加速器学会　第 18 回年会プロシーディングス, pp. 296-301 (2021).

4.2.6-16) K. Thomsen, “VIMOS, near-target beam diagnostics for MEGAPIE”, Nucl. Instr. Meth. A 575, 347-352 (2007).

4.2.6-17) 核変換ディビジョン, 「J-PARC 核変換実験施設 技術設計書 ― ADS ターゲット試験施設（TEF-T）－」、JAEA-Technology 2017-003 (2017), 539p.

4.2.6-18) Y. Yuri et al., “Uniformization of the transverse beam profile by means of nonlinear focusing method”, Phys. Rev. Accel. Beams 10, 104001 (2007).

Table 4.2.6-1 ADS 用リニアックの要求仕様

エネルギー	1.5 GeV
ピーク電流	20 mA
デューティーファクタ	100% (CW)
ビーム出力	30 MW

Table 4.2.6-2 超伝導加速空洞のパラメータ。表中、β_{opt} は、通過時間係数 (transit time factor T) が最大になる粒子のβである。

	HWR	SSR1	SSR2	EllipR1	EllipR2	合計
共振周波数 f_0 (MHz)	162	324		648		
幾何学的ベータ β_g	0.08	0.16	0.43	0.68	0.89	
セル数 N_{cell}	2			5		
ビーム口径 (mm)	40			80	94	
最大加速電界 E_{acc} @β_{opt} (MV/m)	4.2	6.6	8.5	14	14	
台数	25	66	72	60	70	293

Table 4.2.6-3 試作スポーク空洞のパラメータ

f_0	324 MHz
β_g	0.188
β_{opt}	0.224
ビーム口径	40 mm
空洞長	300 mm
空洞径	500 mm
幾何学係数 $G = Q_0R_s$	90 Ω
通過時間係数 $T(\beta_{opt})$	0.806
R/Q	240 Ω
最大表面電場/加速電場比 E_{pk}/E_{acc}	3.84
最大表面磁場/加速電場比 B_{pk}/E_{acc}	6.64 mT/(MV/m)

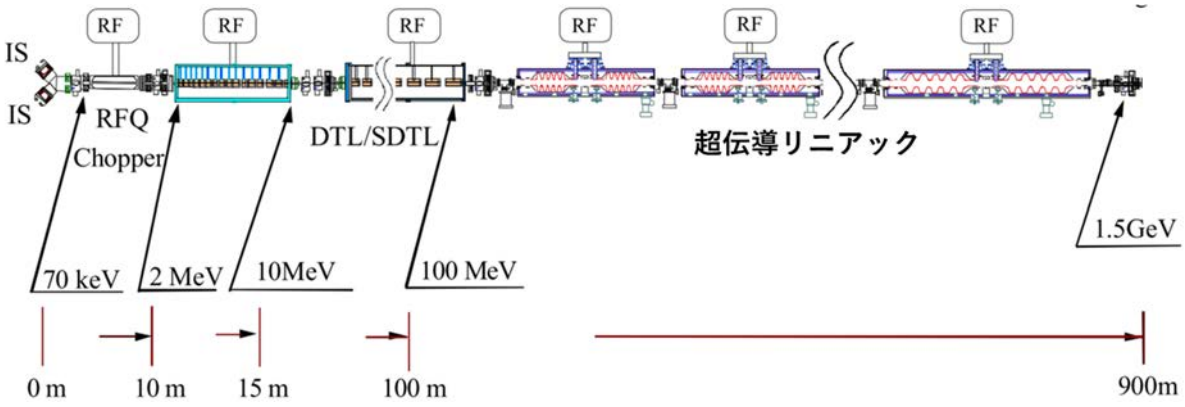


Fig. 4.2.6-1 中性子科学計画におけるリニアックリファレンス設計

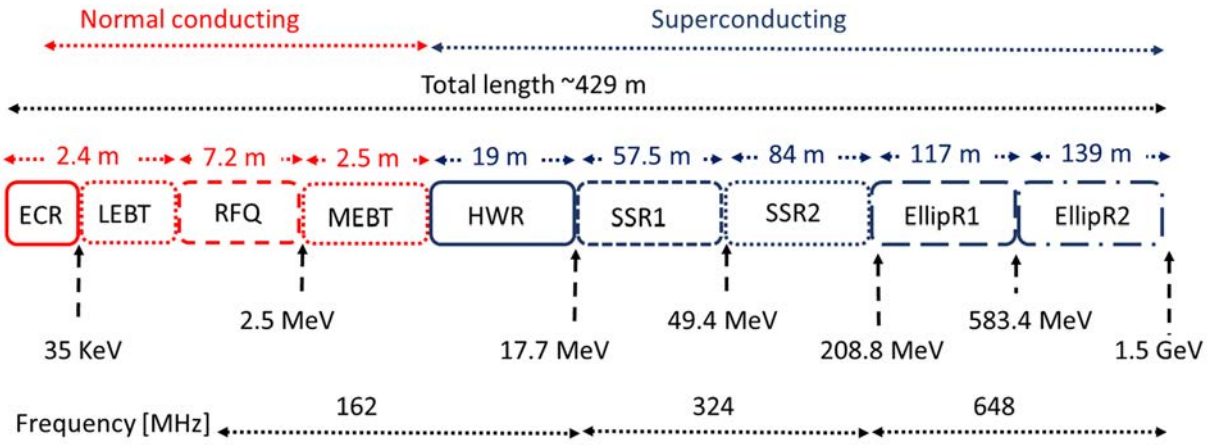


Fig. 4.2.6-2 再設計した ADS 用リニアックのレイアウト。ECR, 電子サイクロトロンレゾナンスイオン源 LEBT, 低エネルギービーム輸送系 RFQ, 高周波四重極加速空洞 MEBT, 中エネルギービーム輸送系 HWR, 半波長型共振空洞 SSR, シングルスポーク共振空洞 EllipR, 楕円型共振空洞

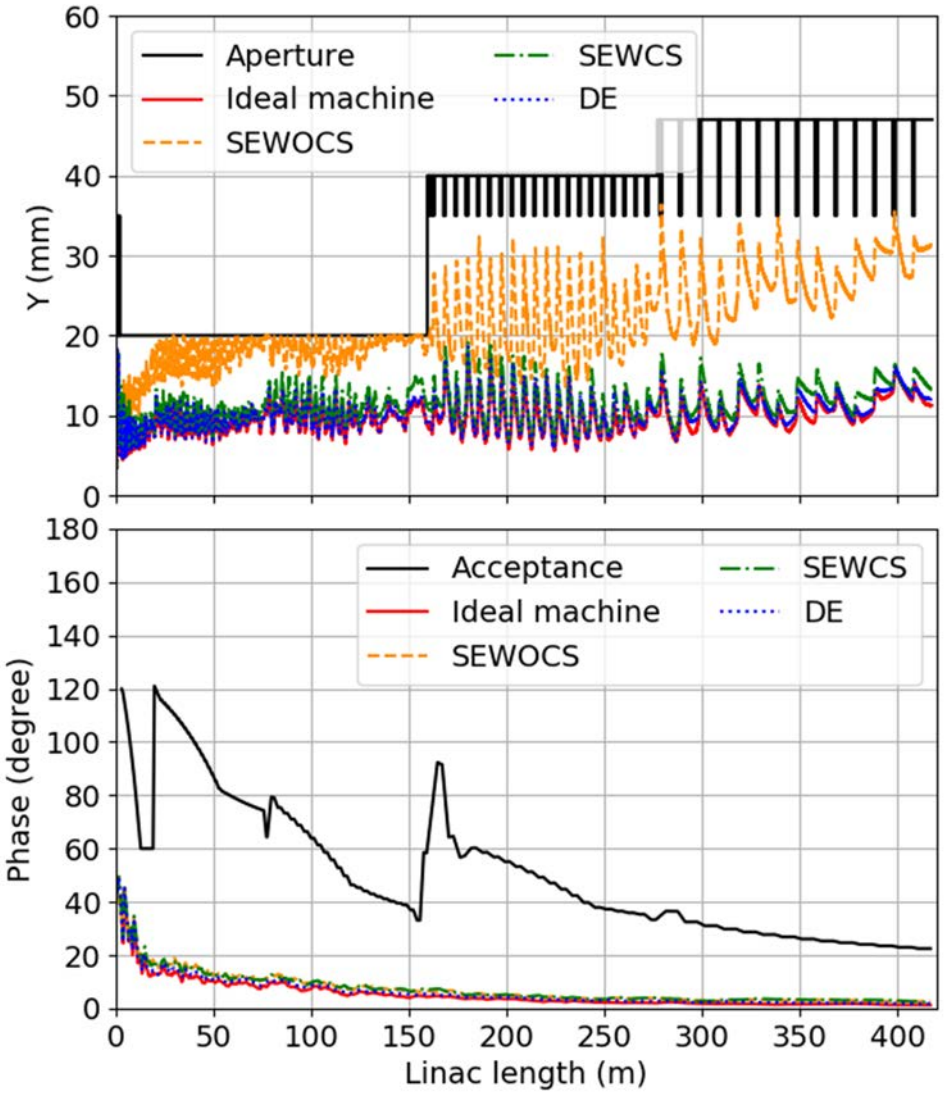


Fig. 4.2.6-3 リニアック全長にわたるビームエンベロープ。上はビーム進行方向に対して垂直方向のビームエンベロープ、下はビーム進行方向のビームエンベロープ（位相分布）。Aperture と Acceptance は、それぞれビームパイプ系と位相方向のアクセプタンス。その他の記号は本文参照。

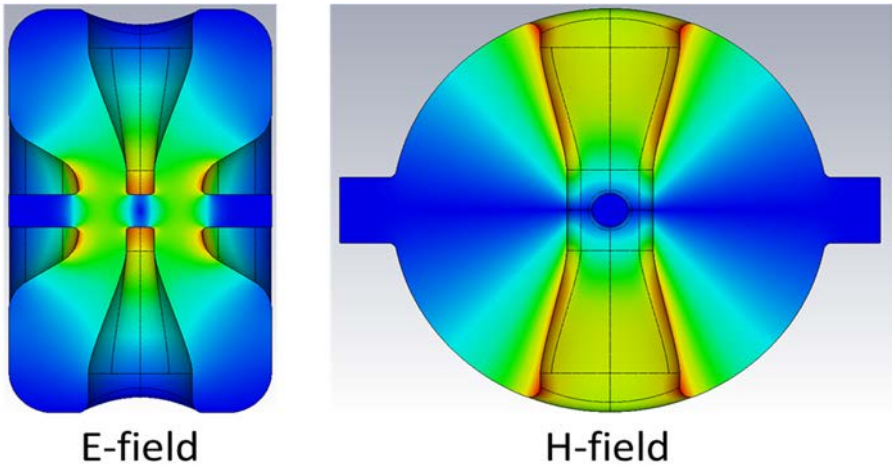


Fig. 4.2.6-4 試作スポーク空洞の電磁場シミュレーション。
左が表面電場、右が表面磁場を示す。

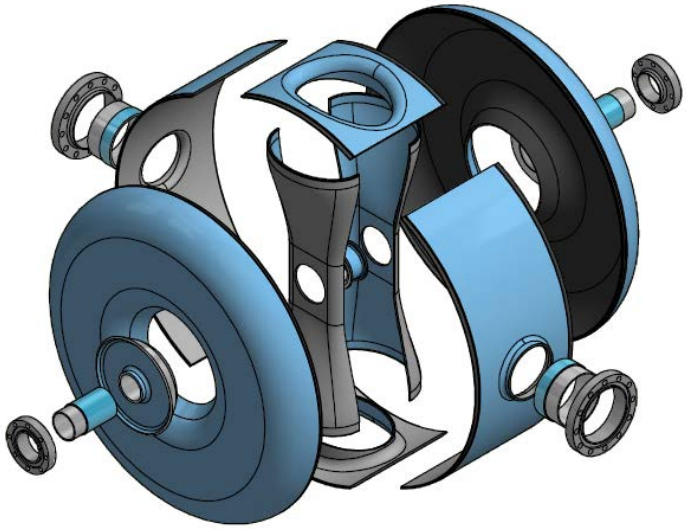


Fig. 4.2.6-5 試作スポーク空洞展開図

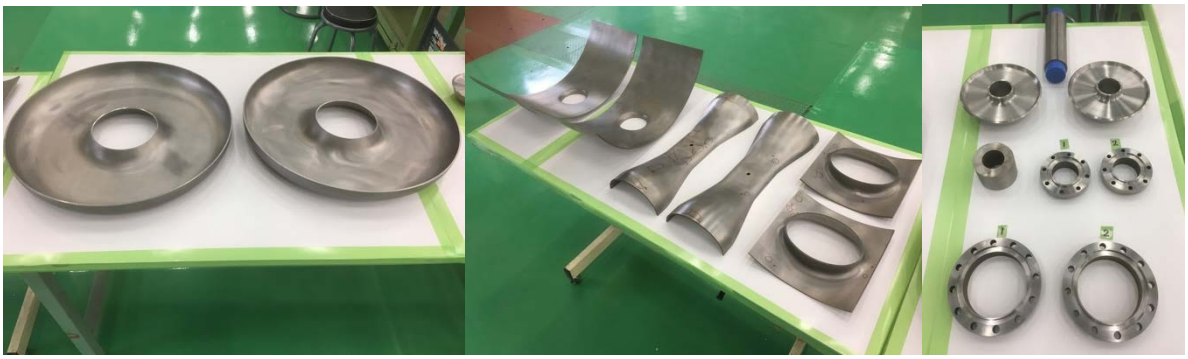


Fig. 4.2.6-6 製作が完了したニオブ製部品

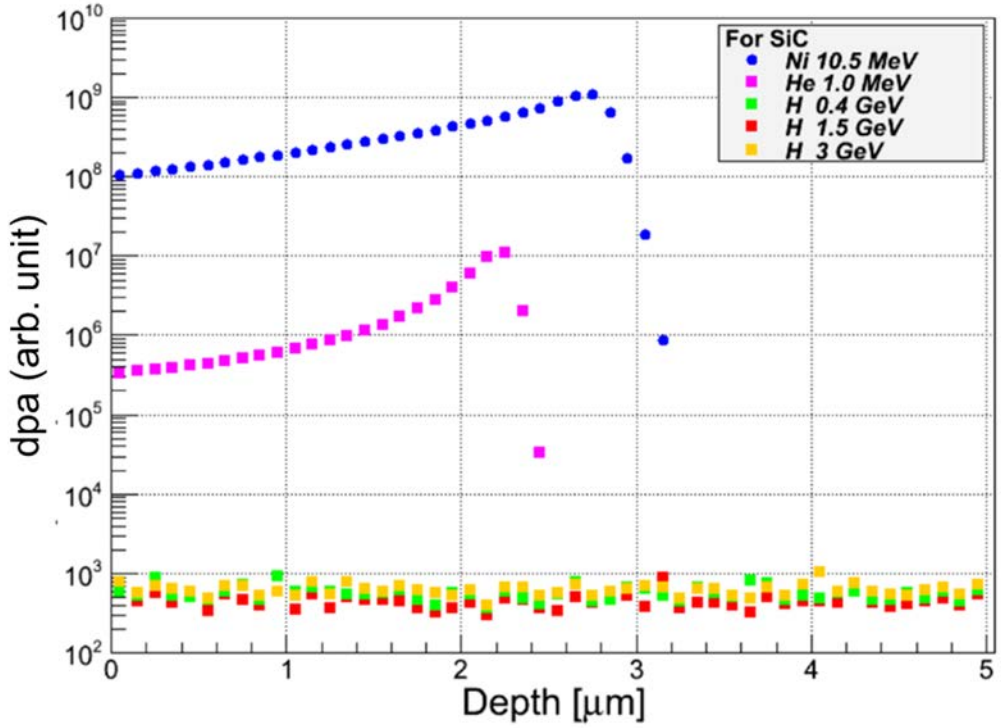


Fig. 4.2.6-7 10.5 MeV のニッケル、1.0 MeV のヘリウム及び 0.4 – 3 GeV の陽子の照射による SiC の dpa 分布。dpa の計算には PHITS の NRT モデルを用いた [4.2.6-15)]

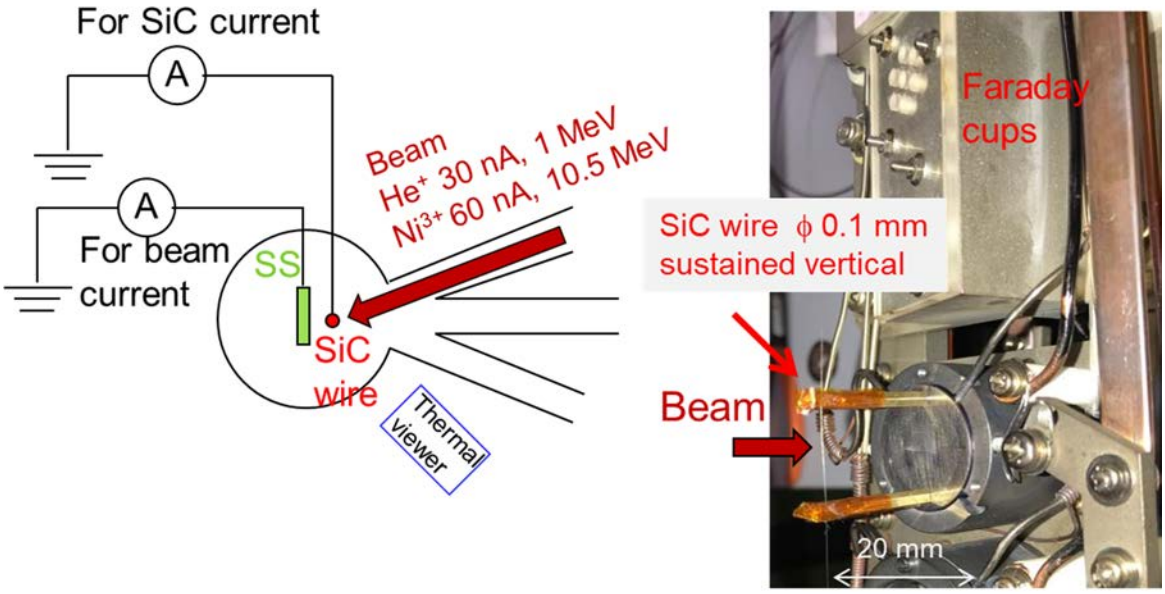


Fig. 4.2.6-8 TIARA タンデム加速器施設における He 及び Ni イオンビームを用いた SiC ワイヤに対する実験体系（左）及び標的アセンブリの写真（右） [4.2.6-15)]

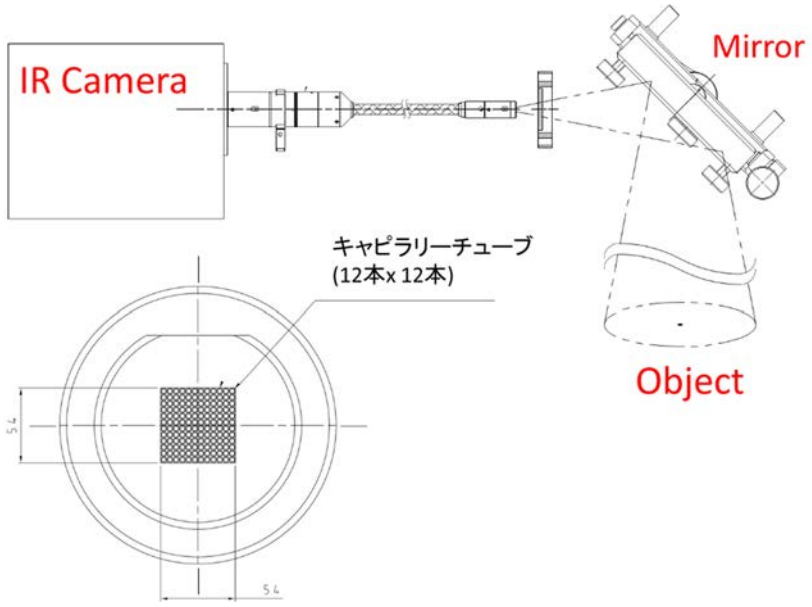


Fig. 4.2.6-9 キャピラリチューブによる赤外線画像伝送器を用いたビームプロファイルモニタ試作器の模式図

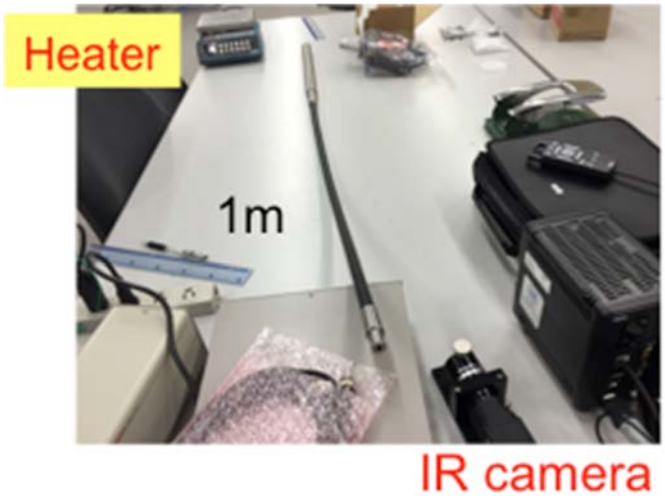


Fig. 4.2.6-10 熱式ビームプロファイルモニタ試作機による温度分布試験のためのセットアップ。ヒータ表面の温度分布を本モニタで転送し、赤外線（IR）カメラで観察した。

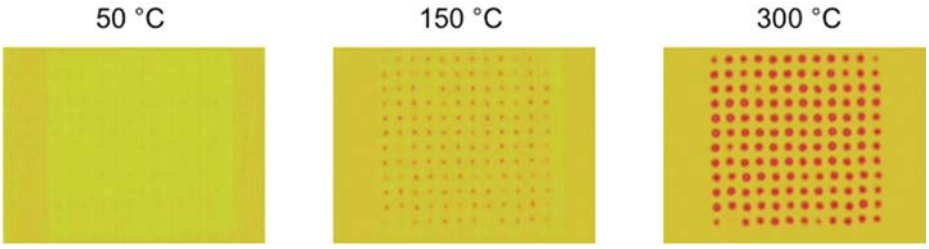


Fig. 4.2.6-11 熱式ビームプロファイルモニタによる 50、150 および 300℃における温度分布測定結果

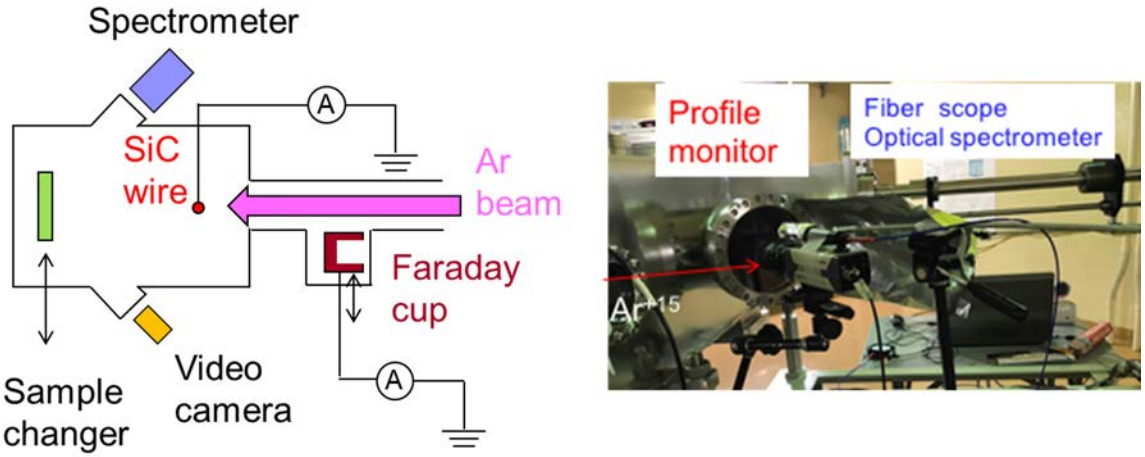


Fig. 4.2.6-12 TIARA サイクロトロンにおける Ar^{+15} 107 MeV ビームを用いた蛍光式ビームプロファイルモニタの実験セットアップ [4.2.6-9, 15]。左図は実験装置の概略を示し、右図は真空機器周辺の様子を示す。

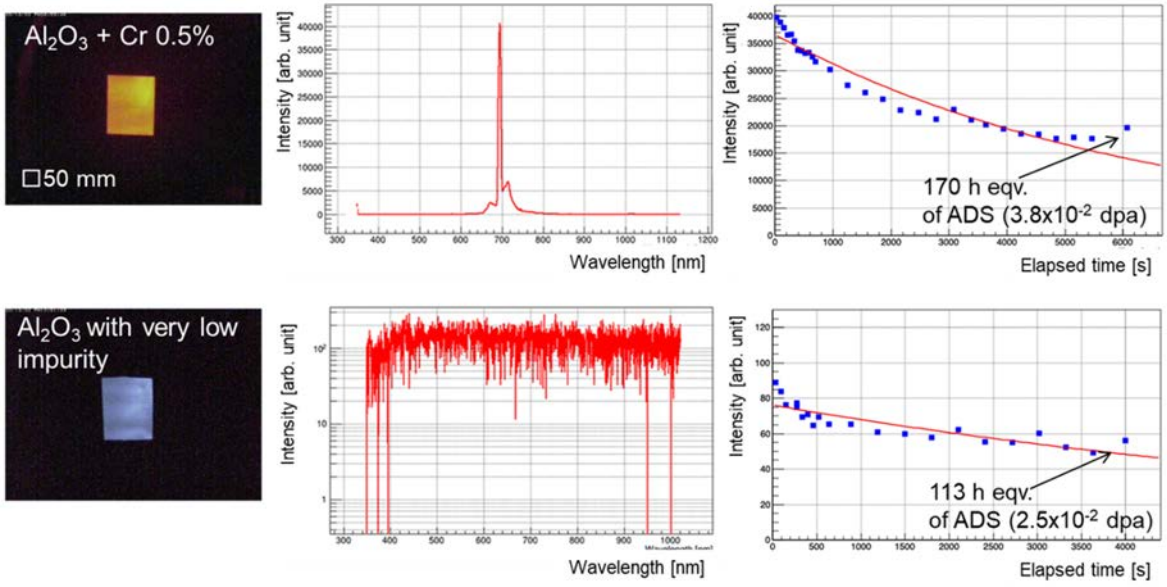


Fig. 4.2.6-13 Cr（0.5%wt）を添加した Al_2O_3（上段）および不純物が非常に少ない Al_2O_3（下段）の蛍光 2 次元プロファイルモニタの実験結果 [4.2.6-15]。照射中のカメラの映像、発光スペクトルの波長依存性、および発光強度の照射時間依存性をそれぞれ左、中央、右に示す。.

4.2.7　ADS に関する国際協力

ADS に関連する研究開発は世界各国で行われており、JAEA では海外研究機関との共同研究により研究開発を加速している。本節では、SCK CEN との鉛ビスマス技術、核設計技術などの協力研究、ドイツ・KIT との LBE 技術の協力研究、米国エネルギー省（DOE）との炉物理実験協力、ならびに、スイス・PSI における材料照射試験について説明する。

4.2.7.1 SCK CEN

SCK CEN では実験炉級 ADS である MYRRHA 炉（熱出力 100 MW）を、JAEA では実機 ADS（熱出力 800 MW）の研究開発を行っている。MYRRHA 炉は熱出力が小さく、また、燃料に MOX 燃料を用いるなどの違いがあるが、両者ともタンク型の鉛ビスマス冷却炉であり高エネルギー陽子用いて核破砕中性子を発生させるため共通点が多い。

これまで、4.2.2.2 節で示した ADS 感度・不確かさ解析に関する研究などを協力して実施してきたが、2016 年 11 月に締結された原子力の研究開発分野における研究協力取り決めにおいて、特定課題の一つとして ADS を定め、現在はこの枠組みで研究開発を実施している。

具体的な共同研究テーマについて、文献 4.2.7-1)で検討を行った結果、核設計に関する技術、鉛ビスマス関連技術、および加速器技術を特定し、それぞれについて、以下に述べるような共同研究を行っている。

(1) 核設計技術

2016 年に締結された原子力の研究開発分野における協力取り決めの下、関連する技術も含めて Table 4.2.7-1 に示す 12 のテーマを設定し、共同研究を実施している。

テーマ 1～5 では、JAEA が開発している PHITS を用いた高エネルギー粒子輸送計算に関連して、高エネルギー核データ、放射化計算、遮蔽計算、後方散乱実験などの検証が行われている。一例としてテーマ 3 では、高エネルギー中性子の遮蔽計算の精度が ADS 設計において重要となるため、PHITS コードの精度検証を行った。検証では、遮蔽積分実験ベンチマーク・アーカイブデータベース（SINBAD）の中で、陽子加速器施設の中性子遮蔽実験に関するデータを用い、中性子源に用いる陽子のエネルギーが 43, 52, 500, 590 及び 800 MeV の条件で、遮蔽体透過後の中性子スペクトル及び反応率を計算した。Fig. 4.2.7-1 に、43 MeV 陽子-リチウム核反応による中性子源を用いた鉄遮蔽体透過後の中性子スペクトルの実験値と計算値の比較を示す [4.2.7-2)]。全ての条件において、PHITS の核反応モデルを用いた計算結果は 100 MeV 以下で実験値を再現しなかった一方、高エネルギー核データライブラリ JENDL-4.0/HE を用いた場合では実験値を良く再現した。本検証により、ADS の中性子遮蔽設計における有効な技術に関する情報を JAEA と SCK CEN 双方が得ることができた。

テーマ 7，8 の未臨界度の監視技術に対して、JAEA では 4.2.2.1 節で示した線形結合法を開発した。本手法に関する情報提供並びに、SCK CEN で実施した高速炉体系での実験データへの適応を検討している。その他、過去に FCA で取得した MA 核分裂反応率測定の情報提供による MA 核データ検証（テーマ 9）、システム熱流動解析コード RELAP5-3D による鉛ビスマスループ実験の解析協力（テーマ 10）、両機関が独自に開発している核燃料サイクルコードの

相互比較（テーマ 11）などを実施している。

(2) 鉛ビスマス技術

SCK CEN との研究協力のうち、LBE の利用技術に関しては、酸素センサ及び酸素濃度制御技術、溶解不純物監視システムの開発、LBE 中のポロニウムの挙動に関する研究、流量計開発、LBE 洗浄手法の開発について、それぞれ進めてきた。以下に各項目の概要を記載する。

酸素センサ及び酸素濃度制御技術については、SCK CEN 側より PbO 質量交換技術および電気化学的酸素ポンプシステム、酸素センサ本体の情報や運用経験、MYRRHA 炉内の酸素消費シミュレーションに関する知見を、JAEA からは酸素センサのガンマ線照射試験及び酸素濃度制御の性能試験の結果がそれぞれ提供された。Fig. 4.2.7-2 に、SCK CEN 製センサと JAEA センサを JAEA の材料腐食試験ループ OLLOCHI に導入し、LBE 流動場での酸素濃度計測を実施した結果を示す。高温側に設置した両機関のセンサが良い一致を示している。薄青で示した低温側の JAEA センサは、実験温度条件の違いから低い起電力を示している。本結果から、両機関とも技術的に遜色ないレベルに至っていることが示された。

ステンレス鋼から LBE 中へ溶出する腐食生成物（Fe, Cr, Ni）は、沈殿や閉塞を引き起こしうる固体を形成することにより、ADS の安全や運転に重大な結果をもたらしうることから、溶解不純物監視システムの開発に関する情報交換を進めてきた。SCK CEN では、LBE 中の溶解 Ni のオンライン監視の可能性の検討を実施した。JAEA は LBE 用の酸素センサの開発と改良を実施し、構造材料の腐食に由来する LBE 中の不純物の影響を実験的に評価するための検討を行い、自然循環試験ループ LAPIN（Lbe Apparatus for Purification of Impurity in Natural convection）を製作し、装置の基礎的な性能の検証を進めている。Fig. 4.2.7-3 に LAPIN の外観を示す。

LBE 利用の主要課題の一つが、放射性毒性の高いポロニウム（Po）同位体の生成とそれらの環境への放出の可能性である。Po は崩壊過程でアルファ粒子を放出するとともに揮発性であるため、LBE 中に生成した Po は慎重に管理・制御されなければならないが、Po の放出ならびに揮発した Po の捕集に関する実験データは限られている。SCK CEN は MYRRHA のライセンシングのため、LBE 中の Po の化学挙動を研究してきた。SCK CEN からは、室温から 1000℃までの空気を含む様々な雰囲気における LBE からの Po の蒸発に関する実験結果、LBE から Po が放出される際の LBE 中の酸素濃度の果たす役割、Po 化合物に関するデータ、LBE からの水銀の蒸発に関するデータが提供された。JAEA からは、LBE から Po の蒸発率の実験結果及び、600℃以下の複数の温度点におけるステンレスメッシュの Po 除染係数が提供された。

LBE 用流量計の開発では、SCK CEN 側から、最新の試験ループに設置した、広範囲の流量をカバーする様々なタイプ（渦流、コリオリ、差圧式）の産業用流量計の適用例、可視化を目的とした高温超音波センサの開発の結果について情報が提供された。JAEA からは計装技術開発の一環として、既存の試験ループへ超音波流量計の適用試験として実施した流量計測結果、及び電磁流量計との比較試験結果が提供された。

LBE 洗浄手法の検討では、SCK CEN が定常的に実施している過酸化水素と酢酸からなる溶液による LBE 除去の知見が、JAEA からは付着した LBE を洗浄する様々な手法の試験結果と

して、高温のシリコンオイル、酸や過酸化水素を用いる手法の試験結果に関する情報が提供された。

(3) 加速器技術

MYRRHA 加速器は 600 MeV の CW（連続波）陽子リニアックであり、2026 年までの計画として 100 MeV までの加速器機器の開発が進められている。2020 年の 1 年間、J-PARC リニアックの専門家 1 名が SCK CEN に派遣され、15 MeV までの入射器の開発に参加した。これにより、MYRRHA 最初の高周波ビーム加速の成功に貢献した。その後も継続して、周波数チューナーを含めた CH（Cross-bar H-type）型常伝導加速空洞の電磁場解析や、CH 型常伝導バンチャー空洞の高周波設計を共同で行った。また、現在 JAEA で開発を進めている超伝導スポーク空洞の試作においては、MYRRHA 100 MeV リニアックの主加速部を構成する超伝導スポーク空洞と共通する技術が多いことから、密に情報交換を行った。その他、ADS 用の加速器には高い信頼性が求められることから、この要求をクリアするための Fault tolerant と呼ばれる加速器構成機器の故障を他の機器の運転パラメータの変更で補う技術の実現や、J-PARC リニアックの運転実績から得られる加速器の安定度についての情報交換を行った。

4.2.7.2 KIT

JAEA では、LBE の ADS での安全な利用技術について、KIT と研究協力取り決めを 2020 年 6 月に締結し、情報交換を進めている。KIT では、熱流動試験ループ THEADES、計装機器開発ループ THESIS 及び材料試験ループ CORRIDA を運転するとともに、腐食試験装置 COSTA、腐食・クリープ試験装置 CRISLA、フレッティング試験装置 FRETHME、高速回転腐食試験装置 CORELLA などの試験装置群を用い、ベルギーMYRRHA 炉や太陽熱利用などに向けた研究開発を実施している。2020 年 10 月に特定課題を取り交わして研究協力項目を新たに設定し、LBE の利用に関する構造材の腐食挙動試験、腐食抑制に資する酸素濃度制御とセンサ技術及び、LBE 中の反応生成物の振舞いについて情報交換を進めていくこととした。

4.2.7.3 DOE

2014 年 3 月に行われた第 3 回核セキュリティ・サミットにおける、核物質の保有量の最小化に向けた日米首脳の共同声明を受け、FCA で用いていた高濃縮ウラン等の燃料を米国へ引き渡した。一方、ADS の研究開発では、引き続き高濃縮ウラン等を用いた炉物理実験が必要であったため、2014 年 3 月に DOE-文部科学省の間で交わされた核セキュリティおよび使用済燃料における協力についての主旨書に基づいて、2015 年に実施機関である DOE-JAEA 間の研究協力体制を構築し、米国ロスアラモス国立研究所で共同研究を実施した。詳細な結果は、4.2.2.3 節で示したが、高エネルギー中性子領域で、様々なインポータンスを有する炉心を系統的に構築し、鉛ボイド反応度価値に関する貴重な実験結果を得た。一連の日米共同炉物理実験の完遂の功績が認められ、2017 年には、米国ロスアラモス国立研究所において「Distinguished Performance Award」を受賞（Fig. 4.2.7-4）するとともに、2020 年に JAEA における令和 2 年度理事長表彰 研究開発功績賞を受賞（Fig. 4.2.7-5）した。また、米国からは、一連の実験成功を

祝し、記念メダルが贈呈された（Fig. 4.2.7-6）。

4.2.7.4 PSI

PSI の SINQ では、STIP プログラムとして、1998 年から 580 MeV、0.75 MW の陽子ビームを利用した一連の材料照射プログラムが実施されてきた。最近では、8 回目となる STIP-8 として 2018～2020 年にわたり照射が行われた。また 2006 年には、世界 8 ヶ国が参加した MEGAPIE として、世界初の LBE 流動下における材料照射後試験が行われた。JAEA もこれらのプログラムに参加し、材料試験片の照射および照射後試験を実施してきた。これらの成果については、4.2.5.5 節で述べられている。

参考文献

4.2.7-1) Working Group for Collaboration between SCK・CEN and JAEA for Partitioning and Transmutation through Accelerator-Driven System, “Collaboration between SCK・CEN and JAEA for Partitioning and Transmutation through Accelerator-Driven System”, JAEA-Review 2017-003 (2017) 44p.

4.2.7-2) Y. Iwamoto, S. Hashimoto, T. Sato, et al., "Benchmark study of particle and heavy-ion transport code system using shielding integral benchmark archive and database for accelerator-shielding experiments" J. Nucl. Sci. Technol., 59, (2021) pp.665-675.

Table 4.2.7-1　SCK CEN との核設計技術に関する共同研究テーマ

1. Validation of cross section data for high energy
2. Validation of activation calculation with PHITS
3. Validation of shielding of high energy neutrons
4. Validation of back-scattering of high energy particles
5. Improvement of PHITS for ADS calculations
6. Validation of microscopic cross sections for depletion analysis
7. Subcriticality monitoring of ADS
8. Validation of subcriticality measurements
9. Minor actinide nuclear data in low energy range
10. Benchmarking of system thermal-hydraulics code RELAP5-3D
11. Benchmarking of fuel cycle analysis code

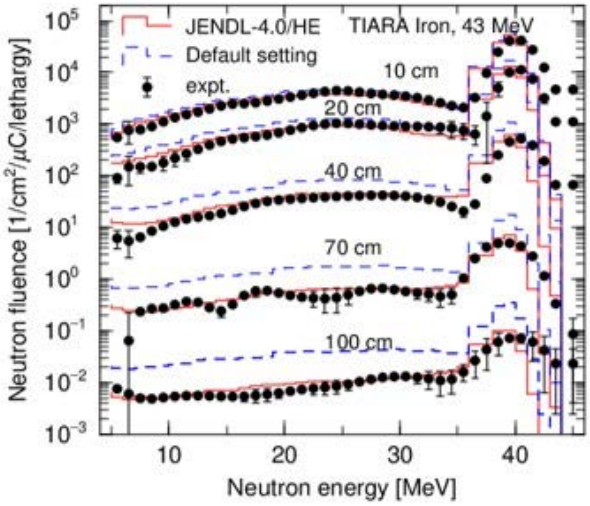


Fig. 4.2.7-1　43 MeV 陽子-リチウム核反応による中性子源を用いた鉄遮蔽体透過後の中性子スペクトル。実線は JENDL-4.0/HE による計算値、破線は PHITS の物理モデルによる計算値を示す。

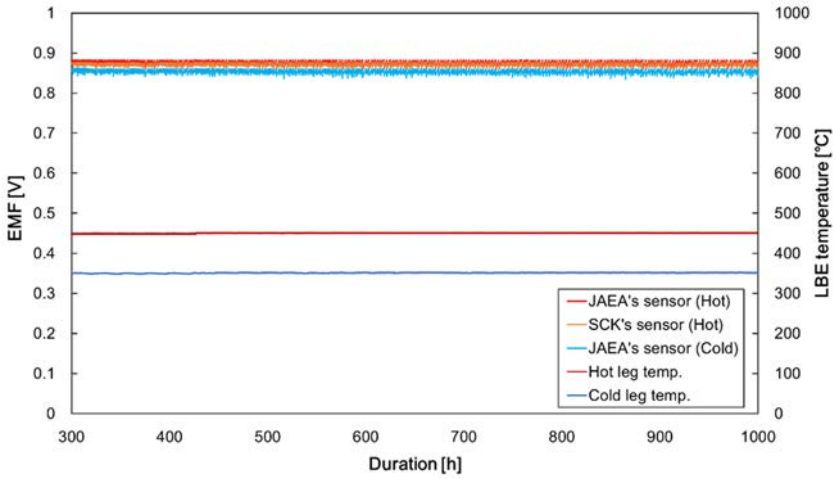


Fig. 4.2.7-2 OLLOCHI ループでの酸素センサの性能比較

Fig. 4.2.7-3 自然循環試験ループ LAPIN

Fig. 4.2.7-4 米国ロスアラモス国立研究所 Distinguished Performance Award の盾

Fig. 4.2.7-5 JAEA 令和 2 年度理事長表彰 研究開発功績賞の賞状

Fig. 4.2.7-6 米国から贈呈された記念メダル

4.2.8 ADS 研究開発のまとめ

ADS に係る 4 つの技術分野に対して研究開発を行ってきた。まず、炉物理・核データ分野では、MA 分離の研究で開発された SELECT プロセスを反映した炉心設計の見直しを行い、参照炉心を提示した。今後も、各技術分野の進捗を反映して炉心設計の改善を続ける必要がある。ADS の未臨界度管理技術として、パルス中性子法に基づく新しい未臨界度測定手法を考案するとともに、未臨界炉心構築の手順を提示した。今後は、これまでに開発した未臨界度管理技術の高速中性子臨界集合体での検証と、連続モードの加速器に対応した新たな未臨界度監視概念の構築が必要である。ADS の炉心設計に必要な核データの精度検証を行い、鉛の非弾性散乱反応断面積など、現状精度に課題がある核データを特定した。また、高エネルギー核反応モデルに起因して、加速器出力の設計値に影響を与える核破砕中性子収率の不確かさが大きいことを示した。鉛および MA の一部の核反応に対して臨界集合体を用いて核データの検証実験を行い、JENDL-4.0 は鉛を用いた実験結果をより精度よく計算することや、^{243}Am の核分裂断面積が過小評価することを示した。高エネルギー核反応の予測精度向上を目的とし、J-PARC の加速器施設を用いて、後方散乱中性子測定、核破砕生成核種測定、および弾き出し断面積測定を実施した。それぞれに対して、再現性の高い計算モデルを明らかにした。今後は、対象核種及び対象エネルギーを拡充して断面積測定及び中性子測定を継続して実施するとともに、広範な核種及び入射陽子エネルギーにも対応可能な高エネルギー核データの開発を実施する必要がある。

次に、プラント機器開発・安全の分野では、粒子輸送・熱流動・構造の連成解析によりビーム窓の設計検討を行い、非照射条件で成立する設計範囲を明らかにした。合わせて、これまで、実績がなかった T91 鋼によるビーム窓試作を行い、製作実現性を示した。熱流動の解析では定常流れを仮定した高速な解析手法を用いていたが、ビーム窓周り流動場の Reynolds 数は数百万程度であり、流れ場は非定常な乱流状態であることから、定常流れを仮定することの妥当性を検証した。JUPITER コードで非定常解析を行った結果、乱流の特徴である強い三次元性と時間依存性が確認されたため、引き続き乱流統計平均処理などによる評価を通じて、参照解を得るための詳細計算手法の開発を実施する必要がある。

安全設計として、レベル 1 PSA（確率論的安全評価）を行い 2 つの炉心損傷に至る可能性のある設計基準事象を特定した。1 つ目のビーム窓破損については、過渡解析により炉心損傷に至らないことを確認し、2 つ目の除熱源喪失に対しては、気発生器と熱交換器が一体となった DRACS を導入することにより発生確率を低減した。J-PARC の実績から、ADS 加速器のビームトリップ頻度を評価し、5 分を超えるビームトリップの頻度が 5 倍程度過大であることを示した。今後、外的事象の影響検討/設計対応、設計基準外事象の選定/影響評価/設計対策を、高速炉を参考にして検討する必要がある。

LBE 取り扱い技術の開発では、LBE の流量・酸素濃度センサを開発し、長期信頼性・安定性を確認した。また、酸素濃度の自動制御に成功し、今後行う LBE 流動化での腐食試験を実施可能とした。また、LBE ループでの温度差定常試験を行い、ADS 設計で用いるシステム熱流動コードの検証を開始した。今後、ループの改良を行い、過渡状態を含めた検証を実施する計画である。

ADS 材料の開発では、非照射条件での静的腐食試験や単純な LBE ループでの腐食観察を行った。腐食挙動には初酸化加被膜の形成が影響するため、今後の腐食試験で考慮する必要があることなどが見いだされた。今後は材料試験に特化したループを用いて、流動下・応力下での材料腐食データの取得を行う必要がある。ADS 材料への照射影響を調べるために、加速器 3 重照射で ADS の照射環境を模擬した試験を行った。照射結果から ADS 被覆管の損傷限界を約 64 dpa と予備評価した。また、ビーム窓材の照射による DBTT シフトは問題とならないことが分かった。また、3 重照射を行った後の LBE 中腐食試験で、T91 鋼に対する照射で酸化反応が促進されることを初めて見出した。今後は、引き続き加速器照射を進めるとともに、海外炉を用いた中性子照射を行う必要がある。また、計算科学的手法を新たに用いた液体金属脆化（LME）に関する基礎的な解析について示したが、今後は ADS 材料挙動予測モデルの構築を目指す。このように既存施設や計算科学を用いた開発を進めるが、ADS 基本設計や許認可取得に向けては、陽子線照射を用いた LBE 環境中照射場による実証試験は不可欠であり、J-PARC の加速器を活用した実証施設の検討を継続する必要がある。

最後に、加速器開発においては、これまでの高エネルギー部分のみが超伝導化された加速器を改良し、低エネルギー部の超伝導化設計を提示するとともに、低エネルギー部の加速空洞の試作に着手した。今後は、異常補償運転の具体的検討など、実際に即した運転スキームの検討を行うとともに、加速空洞を完成し性能測定を行う必要がある。加速器の運転制御に必須となるビーム強度・プロファイル測定の技術開発を、様々な手法（SiC ワイヤの電流測定、ビーム窓に塗布した蛍光体の発光測定）に対して行った。開発では照射損傷の影響が重要となるため、イオン照射場での試験を実施し、実機 ADS への適用の見通しを得てきたが、今後は J-PARC などにおける陽子照射場での試験を行う必要がある。

4.2 節冒頭で述べた「ADS を用いた階層型分離変換システムの実現性、実用性等の判断に向け、システムを構成する各要素に対する技術開発・技術基盤の確立する」ために、上記で挙げた研究開発を引き続き実施する。

5. 研究開発に必要な施設

5.1 分離研究に関する研究インフラ

5.1.1 核燃料サイクル研究所の状況

マイナーアクチノイド（MA）分離研究の推進にあたっては、他の再処理主工程開発と同様、プロセス・機器の両面から進める必要があり、分離プロセス開発では使用済燃料の取扱が可能なホット試験施設やコールド試験施設、機器開発についてはウラン試験やコールド試験用の工学試験施設を活用して技術開発を進めている。

核燃料サイクル工学研究所で進めている MA 分離技術開発については、抽出クロマトグラフィを利用した分離技術を中心に、高レベル放射性廃液を利用した分離フローシートの評価や小規模 MA リサイクル試験（SmART 研究）を高レベル放射性物質研究施設（CPF）で実施している。

一方、吸着剤の担体造粒技術開発や放射線劣化挙動評価は、コールド試験施設である第二応用試験棟や実規模開発試験施設を試験や分析施設として利用しており、さらに溶媒抽出法と抽出クロマトグラフィのハイブリッド技術開発に必要な遠心抽出器の開発に関しては、ウラン工学試験施設である応用試験棟の他、コールド試験施設である実規模開発試験施設を利用して技術開発を進めている。

上記のとおり、核燃料サイクル工学研究所では各種試験施設を活用して、MA 分離技術開発を進めているが、今後、技術の実用化に向けて継続して開発を進めるには、ホット試験施設を中核とした設備インフラの維持が極めて重要である。その観点から CPF の利用は今後も不可欠であり、将来的に廃止措置が必要となる場合に備えて、早期に後継施設の検討を進めておくことも重要である。

MA 分離技術に係る当面の開発目標としては、準工学規模で成立性を実証し、実用化の見通しを得ることが必要と認識される。そのためには工学規模で同様なシステムを現実的な環境において検証する試験フィールドが必要である。以上の点を考慮した場合、将来的に必要な CPF の後継施設に関しては、さらに MA 分離処理量を向上させたスケールアップについても検討の視点として重要と考えられる。

5.1.2 原子力科学研究所の状況

原子力科学研究所では、燃料サイクル安全工学研究施設（NUCEF）のバックエンド研究施設（BECKY）において溶媒抽出法によるマイナーアクチノイド（MA）分離の研究開発を行っている。

トレーサー濃度の放射性同位元素（RI）を用いた一段のバッチ抽出試験をフードで実施し、抽出剤の分離能力の評価に必要な基礎データを取得している。バッチ試験の結果に基づいて分離プロセスのフローシートを構築し、グローブボックス内に設置したミキサセトラ型抽出器を用いた連続多段抽出試験を行い、プロセスの分離能力を評価している。さらに、コンクリートセル内に設置したミキサセトラ型抽出器に実廃液を適用した連続多段抽出試験を実施し、分離プロセスの実証試験を行っている。このように段階的に実験の規模を拡大するとともに取り扱

う元素の種類を増やし、再処理及び MA 分離を統合した溶媒抽出プロセスとして SELECT プロセスの開発を進めた。

技術開発のレベルを評価する指標の一つに技術成熟度レベル（TRL; Technical Readiness Level）があり、OECD/NEA のレポートでは分離プロセスの TRL をレベル 1（初期コンセプトの提案及び基本概念の確立）からレベル 9（工学スケールによる数年間の運転並びに MA 燃料及びターゲットの処理及びリサイクル）に至るまでの 9 段階に分類している [5.1.2-1)]。SELECT プロセスについては使用済燃料を用いたホット試験によるプロセスフローシートの実証試験を実施しており、これは TRL の 6 に相当している。

溶媒抽出法による分離プロセスの成立性を準工学規模で実証するには、実廃液から数グラムの MA の回収試験を BECKY のコンクリートセルで継続する必要がある。さらに、プロトタイプの分離システムを構築し、数十キログラム程度の使用済燃料を用いて再処理から MA 分離までの一連のプロセスの成立性を工学規模で実証することにより、TRL を 7 にまで高めるには新規施設の建設が必要である。なお、NUCEF にはコールド環境の実験室スペースが不足しているため、コールド試験を制約の多い放射線管理区域内で行っている。研究開発を効率的に進めるにはコールド実験室の充実化も必要である。なお、BECKY のコンクリートセルは抽出分離プロセスの研究だけでなく、1F 廃炉の推進に必要な燃料デブリの溶解分析に関する研究開発等でも利用されており、外部ニーズに応じるという意味でも維持は必要である。

抽出分離プロセスで使用する溶媒は放射線で劣化するため、その劣化機構の解明も不可欠である。今は所外の施設を使用して照射試験を行っているが、設備の老朽化やマシンタイムの都合等の制約もあるため、より効率的に研究開発を進めるには照射施設の充実化もインフラの課題の一つとして挙げられる。

長期的な原子力の利用及び廃棄物の処理の方向性が定まらない状況にあるため、大型施設の導入は容易には進まないことが予想される。インフラ整備への依存性が高いスケールアップを指向した研究開発に特化するのではなく、既存の施設を活用した基礎基盤研究に着実に取り組み、実験データに基づいた複数の溶媒抽出プロセスの開発を進め、将来の状況の変化に対応できるようにしておく必要がある。

参考文献

5.1.2-1) OECD, “State-of-the-Art Report on the Progress of Nuclear Fuel Cycle Chemistry”, NEA 7267(2018), pp.241-242.

5.2 燃料研究に関する研究インフラ

5.2.1 FR/ADS 共用燃料製造施設の概念検討

JAEA では使用済燃料中に含有される長寿命核種の MA を分離し、高速炉（FR）及び加速器駆動システム（ADS）を用いて安定な核種へ変換することにより、廃棄物の減容・有害度低減等、環境負荷低減に資する技術開発を進めている。分離変換の実現には MA 含有燃料製造技術の実用化が必須であることから、これまで検討を進めてきた FR 及び ADS へ燃料を供給するための共用燃料製造施設の検討内容について報告する。

5.2.1.1 検討方針

FR 及び ADS の燃料はともに MA を取扱うことから高線量下での製造となるため、燃料製造機器はセル内に収納し、遠隔保守を可能とした設備構造としなければならない。また、JAEA が掲げる研究開発計画に基づき、燃料形態については、FR は酸化物、ADS は酸化物（分散型を含む）又は窒化物として、以下に記す基本検討方針を設定した。

(1) 基本プロセス：燃料ペレットの製造プロセスは簡素化ペレット法を採用し、燃料要素組立及び集合体組立工程は、実績のあるプルトニウム（Pu）第三開発室で採用しているプロセスとした。

(2) 遮へい設計：原料粉末量の設定に基づき、それに係る線量評価及び遮へい検討を行った。研究開発計画に基づいて FR 及び ADS で想定される装荷燃料の全種類について線源強度を計算し、最も強度が大きかった TEF-P 向け燃料組成で遮へい設計を行った。

(3) 生産能力：施設の年間稼働日数を 200 日（原則、日勤操業）とし、原料粉取扱量は年間 80 kgMOX とした。この取扱量は、燃料製造工程における製品歩留まりを 80%とした場合、常陽用燃料集合体数が年間 5 体、あるいは TEF-P 用燃料ピンで 800 本となる。

(4) 設備設計：遠隔保守時は MS マニプレータによる操作で行うこととする。そのため、平面的な配置とするとともに、設備はユニット単位で保守・補修及び交換作業が可能なようにする。（保守・補修及び交換作業時にアクセスするボルト等は、MS マニプレータ稼働範囲内に設ける。）

5.2.1.2 燃料製造フロー

前項「5.2.1.1 検討方針」で述べたように、FR/ADS 共用の燃料製造プロセスでは簡素化ペレット法を採用した。分散型の ADS 燃料については、造粒・整粒工程の後に不活性母材（希釈材）との混合工程を付加する。また、窒化物燃料の場合は、原料粉末に炭素を加えることで炭素熱還元反応により燃料ペレット製造を行うことが可能となるが、本検討では酸化物燃料についての報告とする。

原料の受入から、粉末混合、燃料ペレット工程、燃料要素組立及び集合体組立工程までの製造フローを Fig. 5.2.1-1 に示す。

(1) 粉末混合：粉末混合プロセスは、分散型の ADS 燃料製造時にのみ適用される処理である。混合機により ADS 用原料と希釈材（MgO 等）粉末を混合し、マトリックス内に希釈材を均一に分散するものである。前項「3.1.1　簡素化法要素技術開発」にて報告したよう

に、混合機にて希釈材が均一に分散することはコールド試験にて確認済みである [5.2.1-1)]。

(2) 燃料ペレット工程：燃料ペレット工程では、前処理となる脱硝工程で造粒された原料粉末を受入れ、グリーンペレットの成型、焼結、焼結ペレットの検査・研削（研削処理はペレット径大品のみ）を行う。

(3) 燃料要素組立工程：燃料要素組立工程は、燃料ペレット工程から製品ペレットを受入れ、スタック調整後にペレットと部材を被覆管へ挿入し端栓溶接を行い、被覆管にワイヤ巻き付け、燃料要素を組み立てるものである。

(4) 集合体組立工程：燃料要素組立工程から燃料要素を受入れ、バンドル組立、ラッパ管組立後に勘合部の溶接を行い、燃料集合体を組立てる工程である。燃料集合体は最終検査を行った後、製品として製品保管設備に保管する。

5.2.1.3 線量評価・遮へい設計

(1) 鉄セル

遮へい設計基準線量については、原子炉等規制法に基づき 1 mSv/週間（1 週間の立ち入り時間を 40 時間とし 25 μSv/h）を設計基準とした。また ALARA の観点から、この線量の 1/2 となる 12.5 μSv/h を遮へい設計の目安とした。線源がセルに接しているケースとして計算コード ANISN（中性子束、γ 線束）、遮へい計算用ライブラリ CASK-F を用いて計算した結果、鉄 6 cm+ポリエチレン 8 cm の遮へい厚さで作業位置（セル表面から 50 cm）線量は 3.6 μSv/h となり、鉄 6 cm+ポリエチレン 8 cm が構造として適切と判断した。Fig. 5.2.1-2 に鉄 6 cm+ポリエチレン 8 cm 構造での線量分布図を示す。

(2) 検査機器

燃料製造設備では、焼結後ペレットの重量、外径、中空径、高さ及び外観を測定検査するが、これら検査機器（電子機器）について放射線の影響評価（使用可能期間評価）を行った。

検査機器で許容される放射線量については各報告書等 [5.2.1-2,3)]から安全側の評価となる数値 30 Gy を採用し、各検査機器の使用可能期間について評価をしたところ 1.5 年となった。

5.2.1.4 遠隔保守を可能とした設備設計

セル内遠隔保守を可能とした燃料製造設備設計については、次項に示す設備構成機器について保守項目を検討して保守操作をマニプレータ作業で行うことが可能となるよう MS マニプレータ稼働範囲内に保守範囲を収めるよう設計するだけでなく、これまでの燃料製造運転実績から設備を構成する各機器の故障データを整理し、故障個所に対する補修方法及び部品交換作業方法を MS マニプレータ作業で処置できるよう検討した。この検討結果に基づき、主要設備についてモックアップ試験機を設計・製作し、セル内の操作性及び遠隔保守の評価を実施し、燃料製造のセル内遠隔保守が成立することを確認した [5.2.1-4)]。

一例として、遠隔保守評価試験として実施した MS マニプレータによる成型機のパンチ交換時の写真を Fig. 5.2.1-3 に示す。

5.2.1.5 設備構成

各設備は鉄セル内に格納することを基本とし、遠隔自動化運転を前提として運転員の介在が最小限になるように設備構成検討を行った。プルトニウム燃料第三開発室における MOX 燃料製造運転の知見より、設備構成検討においては以下に記す項目を取り入れた。

(1) 分散型 ADS 燃料製造時に必要となる混合処理は、粉末缶が混合容器を兼ねるものとすることで、粉末缶から混合容器への粉末詰替処理を省略することとした。これにより製造フローの簡素化及びセル内への粉末飛散発生を抑制することが可能となる。
(2) プルトニウム燃料第三開発室での製造ラインではペレットの全数研削を実施しているが、本ラインでは焼結後のペレットは径大品のみを研削するようにし、研削を最小限とすることで研削粉の飛散によるセル内汚染を抑えることが可能となる。

設備構成は以下のとおり。

(1) 粉末缶開缶設備：原料粉末の入った粉末缶の蓋を開けるための設備であり、粉末缶を開けるための開缶装置、開缶前後の重量を計測する秤量装置と搬送装置から構成される。
(2) 混合設備：分散型 ADS 燃料製造時に使用する設備であり、原料粉末の入った粉末缶を混合容器に移し替えるとともに、希釈材を加え、容器を回転させることで原料粉末と希釈材を混合する。混合装置、希釈材投入装置及び搬送装置から構成される。
(3) 成型設備：原料粉末又は原料粉末と希釈材を混合した粉末混合粉を受入れ、ペレットへ圧縮成型する設備であり、成型機、粉末を貯蔵するためのホッパ、ホッパへの粉末投入装置、粉末投入前後の重量を計測する秤量装置及び搬送装置から構成される。
(4) 焼結設備：成型ペレットを受入れ、焼結炉を用いて約 1800 ℃で焼成する設備であり、焼成するための焼結炉（バッチ式）、焼結炉前後の搬送を行う搬送装置から構成される。
(5) ペレット検査設備：焼結後ペレットを受入れ、焼結後ペレット外径、高さ、外観検査及び重量（密度）を測定し、良品と不良品を振り分ける設備であり、検査装置、搬送装置から構成される。
(6) 研削設備：ペレット検査設備で径大と判定されたペレット外周を研削し、再度ペレット検査設備へ送る設備であり、研削装置、研削粉を回収する粉末回収装置、搬送装置から構成される。
(7) スタック調整・配列編成設備：製品ペレットを受取り、スタック長測定・調整及びスタック重量の測定を行う設備であり、ペレット単位に切り出す機能、スタック長さ調整機能、スタック重量測定機能、ペレット・充填部材を充填配列皿に配列する機能を有する。
(8) 充填・端栓溶接設備：充填配列皿に配列されたペレットおよび充填部材を受け入れ、下部端栓付被覆管内にペレットを充填した後、上部端栓の溶接を行う設備であり、充填部材を充填するための充填装置と端栓を溶接するための端栓溶接装置が主たる機器であり、管口部除染装置と前後の搬送を行うための搬送装置から構成される。
(9) He リーク検査設備：端栓溶接が完了した燃料ピンについて、基準とする密閉状態にあるかを検査するための設備である。He リークチャンバ、チャンバ内を真空にするための真空排気装置およびリークガスを検出するためのリークガスディテクタが主たる装置であ

り、真空保持のためのゲートバルブ、燃料ピン搬送のための搬送装置から構成される。

(10) 燃料ピン除染・検査設備：燃料ピン全体を除染するとともに、燃料ピン表面の汚染度検査、燃料ピンの外観を検査し、さらに X 線照射により燃料ピン内のペレットや挿入部材の位置および長さを検査し、その検査結果を基にγスキャナを用いてペレットの濃縮度を検査するための設備である。

(11) ワイヤ巻付・検査設備：FR 用燃料ピンにワイヤを巻き付けるためのワイヤ巻付、ワイヤ巻付後の外観検査、寸法検査（ピン長、ワイヤピッチ、ワイヤ隙間）、重量測定、曲がり度を検査するための設備である。ワイヤ巻付装置、各検査装置及び燃料ピンを搬送するための搬送装置から構成される。

(12) 集合体組立・検査設備：FR 用燃料ピンを集合体へ組み込むための組立装置と組立後の集合体検査を行う設備である。集合体組立装置は、燃料ピン受入機能、エントランスノズルに燃料ピンを組み込む機能、ラッパ管を受入れエントランスノズルに勘合させる機能、勘合部を溶接する機能、溶接後の外観検査機能を有する。また、集合体検査装置は集合体受入機能、各種検査（全長測定、外観検査、曲がり・ねじれ検査、六角対面幅検査）機能を有する。

5.2.1.6 全体鳥瞰図

遠隔保守を可能とした設備を合わせた全体鳥瞰図、及び鉄セルに格納した全体鳥瞰図を Fig. 5.2.1-4 ~7 に示す。燃料ペレット工程ライン 11800 mm(L)*2450 mm(W)*2850 mm(H)、燃料要素組立工程ラインは 22200 mm(L)*2650 mm(W)*2800 mm(H)となった。また、燃料製造建屋鳥瞰図を Fig. 5.2.1-8 に示す。

5.2.1.7 設備運転システム

各設備運転は、プルトニウム燃料第三開発室と同様に、運転監視室における遠隔全自動運転としている。設備制御システム構成は、設備制御用計算機、運転監視端末及び制御機器（シーケンサ等）とし、計量管理計算機等の上位管理システムと LAN にて接続する。運転制御システム図を Fig. 5.2.1-9 に示す。

5.2.1.8 まとめ

FR/ADS 共用となる遠隔自動化による燃料製造ラインについて検討を行い、以下に挙げる成果を得た。

(1) MA 含有燃料における放射線量を推定し、設備を格納する鉄セルに必要となる遮へい厚さを明らかにした。

(2) 上記で計算した放射線量の結果から検査機器の使用可能期間を算出し、約 1.5 年使用可能であることを確認した。

(3) 各機器について MS マニプレータでの保守範囲となるよう鉄セル内の配置を検討し、遠隔保守を可能とした設備設計検討を行い、各工程の設備構成や配置等の概念を明らかとした。

参考文献

5.2.1-1） T. Segawa, M. Nishina, S. Nakamichi, et al., “Development of simplified fuel fabrication technologies for fast rector”, Proceedings of International Conference on Fast Reactors and Related Fuel Cycles (FR22) Apr., 19-22, 2022, Vienna, Austria, IAEA-CN-291, 10.

5.2.1-2) K. Obara, S. Kakudate, K. Oka, et al., “High Gamma-Rays Irradiation Tests of Critical Components for ITER In-vessel Remote Handling System”, JAERI-Tech 99-003 (1999), 312p.

5.2.1-3) 対災害ロボティクス・タスクフォース　リモートコントロール化プロジェクトチーム, 「汎用重機やロボットにおける耐放射線性評価と管理方法の基本的な考え方」, http://roboticstaskforce.files.wordpress.com/2011/05/20110427-rcpt-radiation.pdf, (accessed 2022/12/7)

5.2.1-4) Y. Yamada, T. Segawa, M. Kato, “Conceptual Design of an Engineering-scale Plant applying the Simplified MA-bearing Fuel Fabrication Process”, International Conference on Fast Reactors and Related Fuel Cycles (FR-17), Yekaterinburg, Russia, (2017).

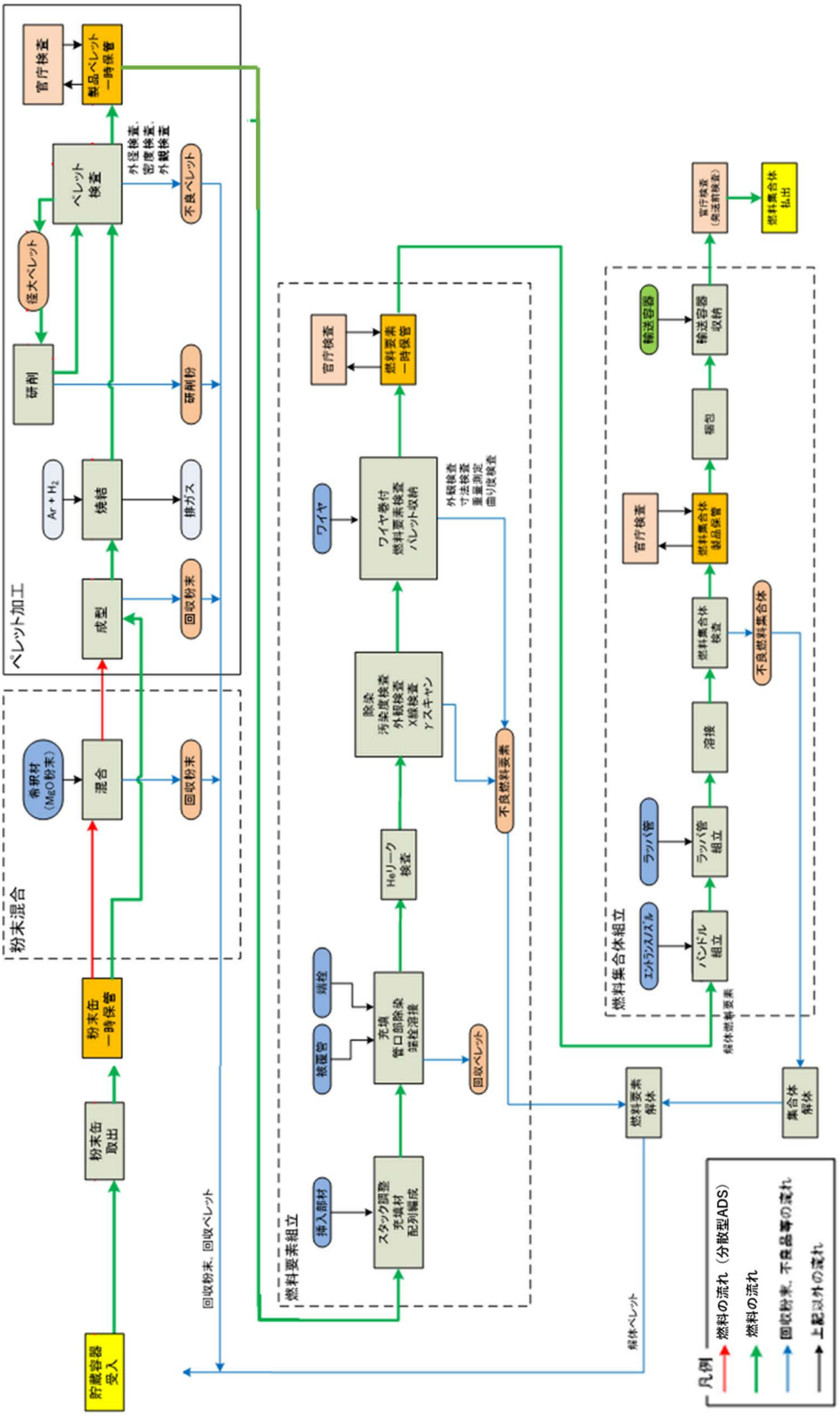


Fig. 5.2.1-1　燃料製造フロー

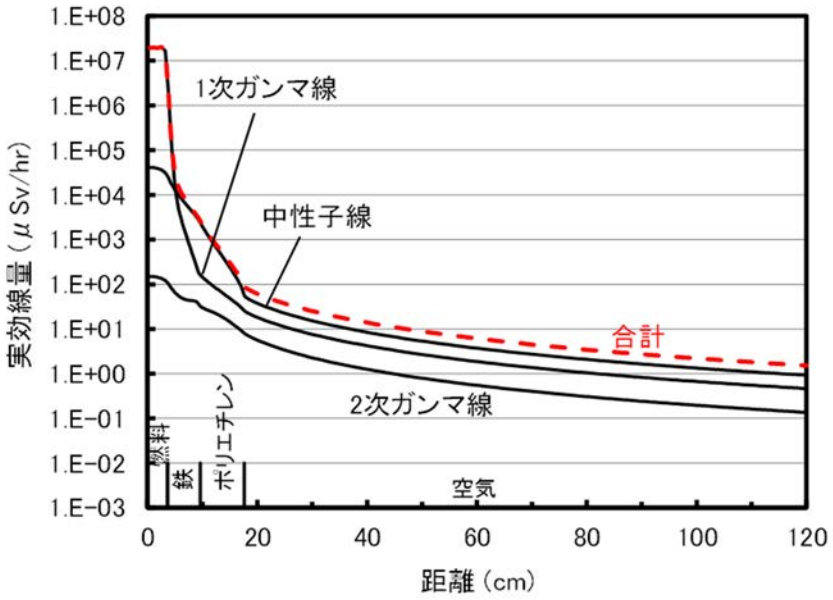


Fig. 5.2.1-2 線量分布

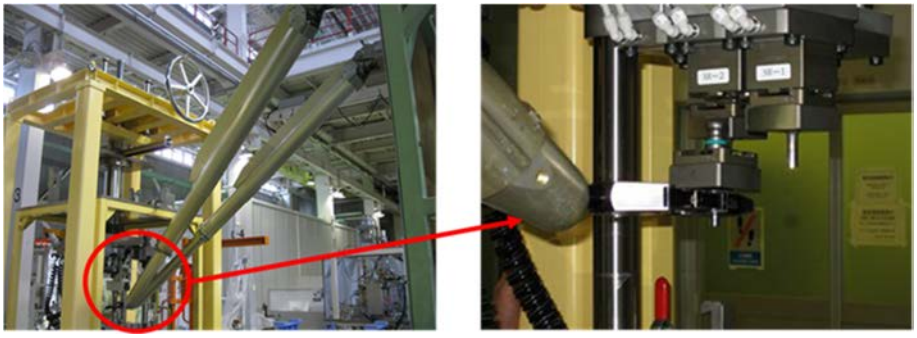


Fig. 5.2.1-3　MS マニプレータによる成型機上パンチ交換試験

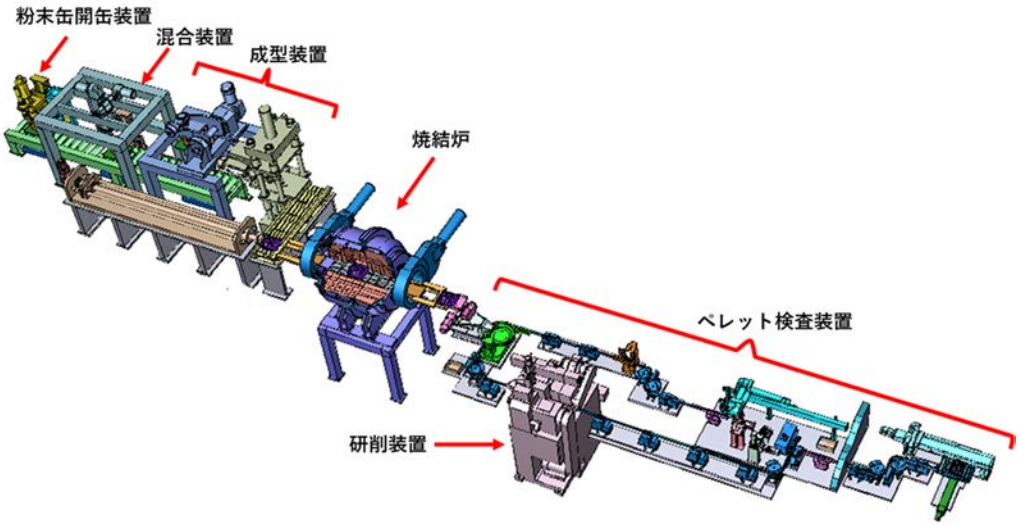


Fig. 5.2.1-4　燃料ペレット工程全体鳥瞰図

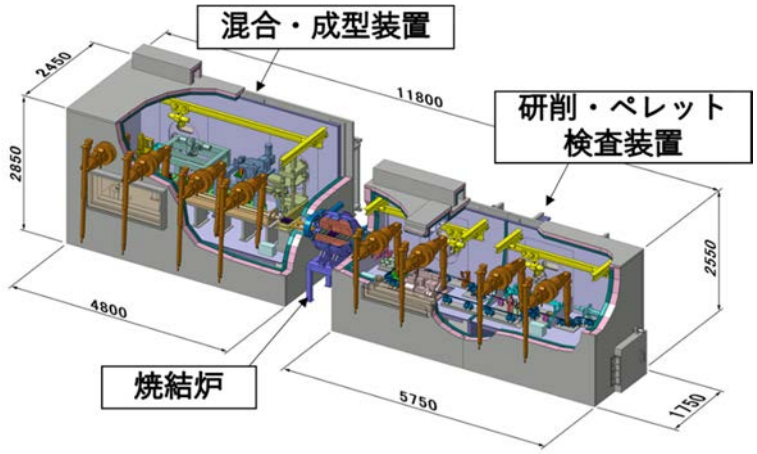


Fig. 5.2.1-5　燃料ペレット工程全体鳥瞰図（セル格納図）

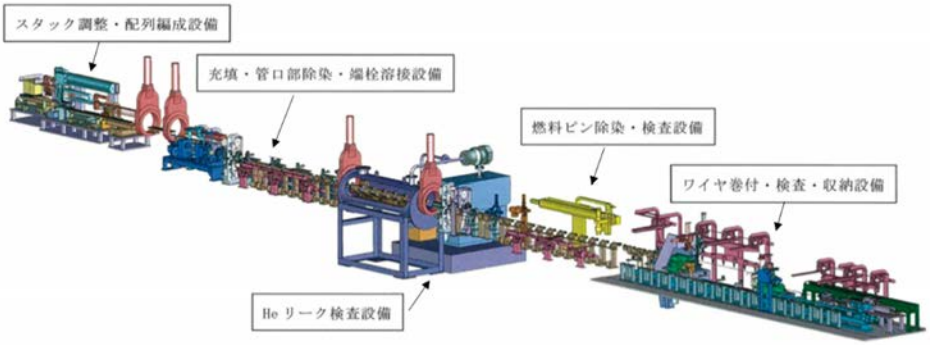
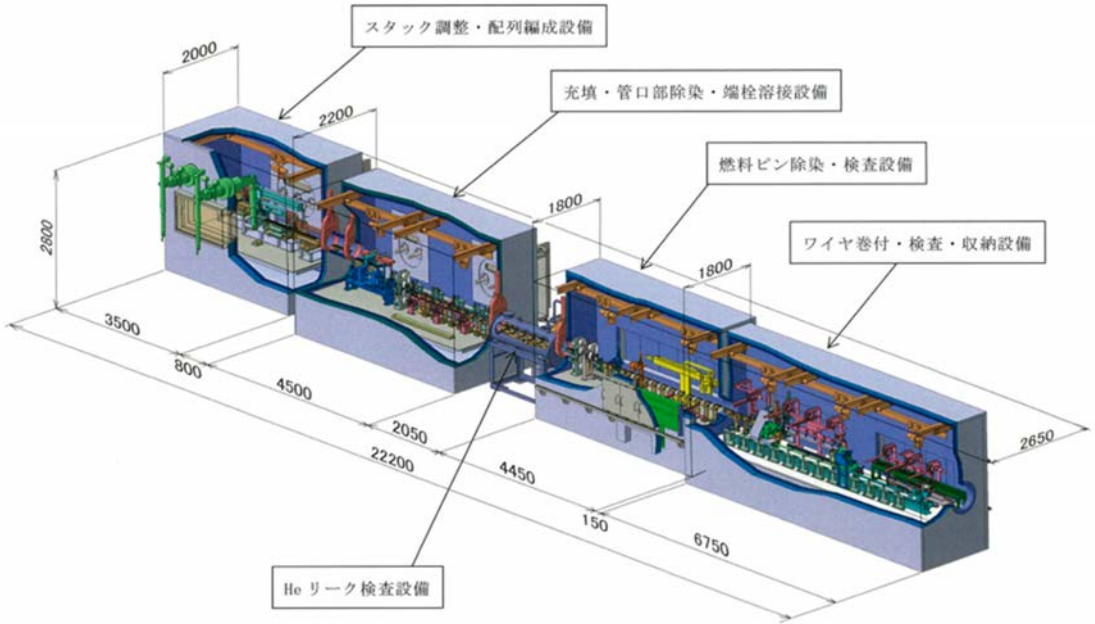


Fig. 5.2.1-6　燃料要素組立工程全体鳥瞰図



F

Fig. 5.2.1-7　燃料要素組立工程全体鳥瞰図（セル格納図）

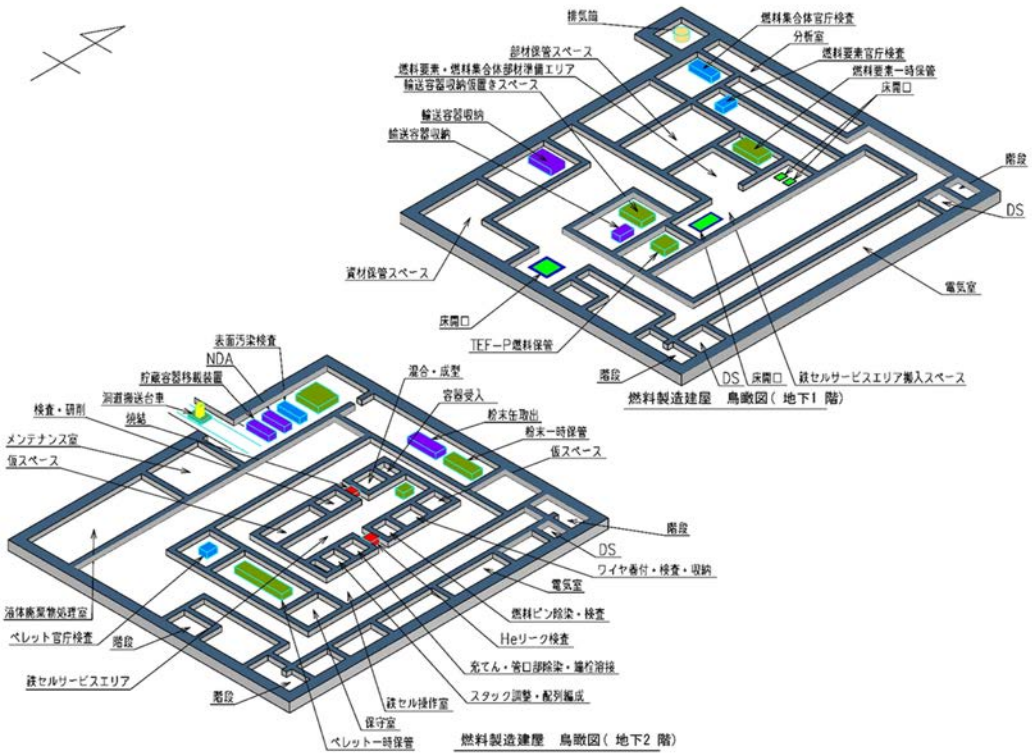


Fig. 5.2.1-8　燃料製造建屋鳥瞰図

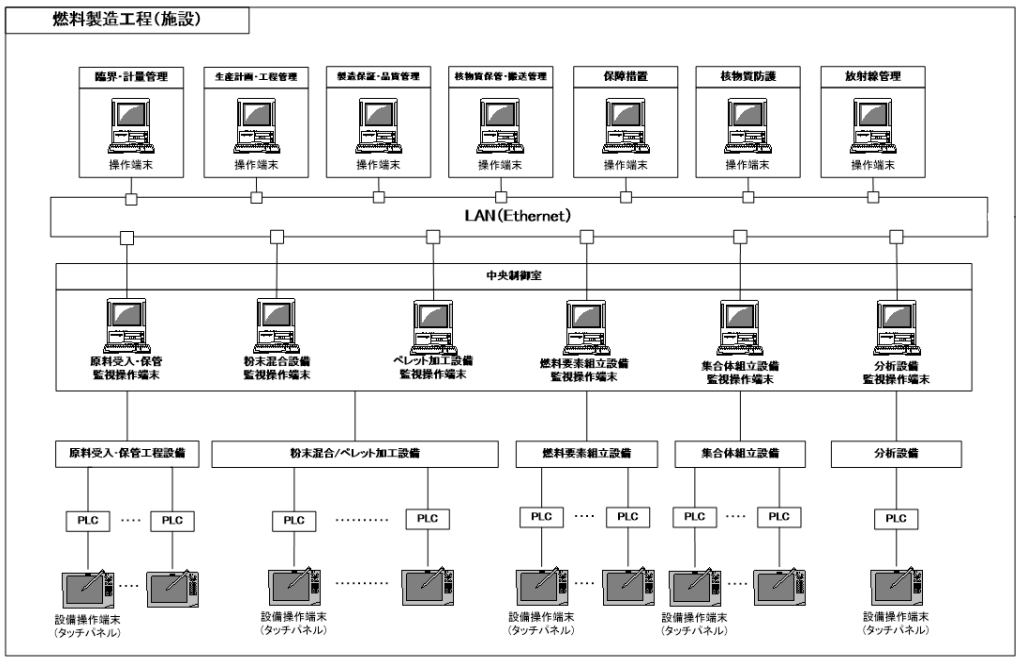


Fig. 5.2.1-9　運転制御システム図

5.2.2 高速炉用酸化物燃料試験施設

Pu を含む MOX 燃料はグローブボックスやホットセルの中で取り扱われる必要がある。このため、多くの試験装置がこれらの中に設置されている。プルトニウム燃料第一開発室では、ボールミル、成型機、焼結炉といった試料調製用の設備、熱天秤、熱膨張計、比熱測定装置等の様々な熱物性の測定装置、X 線回折装置、光学顕微鏡、SEM、EPMA 等の分析装置がグローブボックス内に設置されており、世界でも類を見ない MOX 燃料の物性研究に特化した設備が整備されている。これらを利用して、Am（アメリシウム）や Np（ネプツニウム）を含有する MOX 燃料の酸素ポテンシャル、融点、熱伝導率等の様々な熱物性に関する研究成果が挙げられており、今後も継続的な研究成果の創出が期待される。また、過去には常陽における照射試験用燃料が製造された実績があり、一部の設備はリプレイスが必要ではあるものの、照射試験用燃料製造のノウハウが蓄積されている。

Am などの、MA を含有する低除染 MOX 燃料の作製においては、作業者の被ばく量を抑制するために、ホットセル内における遠隔での製造試験が実施されている。大洗研究所の照射燃料試験施設（AGF）は、照射済プルトニウム燃料を取り扱い可能な密封型（α-γタイプ）ホットセルを有する照射後試験施設として操業を開始した後、3 及び 5%の Am を含む MOX 燃料ピンの照射試験に供するため、ホットセル内に遠隔燃料製造設備を整備し、原料粉末の混合、ペレット成形、焼結、品質保証分析及び燃料ピン製造を実施している[5.2.2-1)]。また、平成 28（2016）年度には、これらの設備を用いて、MA 含有 MOX 燃料の製造性に関する基礎データを取得し、多段温度パターンの採用による焼結体密度の上昇を確認している。今後は、SmART サイクル研究の一環として、MA 含有 MOX 燃料ペレットの製造を検討している。現状、ペレット製造に直接関与する焼結炉等の性能については、その機能が維持されていることを確認しており、施設中長期計画[5.2.2-2)]に基づき、今後の研究開発においても活用することが可能である。

参考文献

5.2.2-1) H. Yoshimochi et al., “Fabrication Technology for MOX Fuel Containing AmO_2 by an In-cell Remote Process.”, J. Nucl. Sci. Technol., 41(8), (2004) pp. 850-856.

5.2.2-2) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構, 施設中長期計画（改定：令和 3（2021）年 4 月 1 日）, https://www.jaea.go.jp/about_JAEA/facilities_plan/keikaku.pdf (accessed 2021-07-19).

5.3 ADS による核変換研究に関する研究インフラ

大強度陽子加速器施設 J-PARC においては、ADS を中心とする核変換概念の研究開発のために、核変換実験施設（Transmutation Experimental Facility, TEF）がかねてより計画されている。文部科学省における大強度陽子加速器計画評価作業部会（2006 年 12 月～2007 年 6 月）の大強度陽子加速器計画中間評価報告書（2007 年 6 月）[5.3-1)]では、「核変換技術については、重要な基盤技術として引き続き研究開発を進める必要があるが、核変換実験施設の整備については、原子力政策全体の中で検討していく必要があり、今後、原子力委員会等の評価を踏まえて進めていくことが適当である」とされた。

これを受けて原子力委員会で行われた分離変換技術検討会（2008 年 8 月～2009 年 3 月）では、分離変換技術の位置づけについて議論が行われ、「分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方について」（2009 年 4 月）[5.3-2)]として取りまとめられた。分離変換の効果および意義については、潜在的有害度の低減、処分場要求の軽減、処分場設計自由度の増大が認められ、ADS を用いた階層型の分離変換概念については、ビーム窓の工学的成立性を確証すること、未臨界炉心の制御等の炉物理的課題を高い信頼度で解決することなどが技術的課題として指摘された。これらの課題を解決し、工学的・経済的な面からの ADS の成立性を確認する段階に移行するために、核変換実験施設の整備の必要性と有効性についても検討するべきとされた。

JAEA の第 2 期中期計画期間（2010 年 4 月～2015 年 3 月）[5.3-3)]では、低出力の臨界集合体を中心とする核変換物理実験施設（Transmutation Physics Experimental Facility, TEF-P）と高出力の鉛ビスマスターゲットである ADS ターゲット実験施設（ADS Target Test Facility, TEF-T）からなる核変換実験施設の概念を提示することを目標として研究開発を進めた。

それに対し、文部科学省に設置された原子力科学技術委員会／群分離・核変換技術評価作業部会（2013 年 3 月～2015 年 8 月）では研究開発の評価等を実施し、「群分離・核変換技術に係る研究開発の今後の進め方について」（2015 年 8 月）[5.3-4)]として取りまとめた。そこでは、両施設に対する研究開発を含んで、「JAEA における研究開発が順調に進展している」と評価された。その一方で、TEF-P の開発課題として、落下防止機構の付加などの MA 燃料に対する対策や、新規制基準の考え方に沿い TEF-P の異常又は損傷の影響を考慮した安全検討を進めることが指摘された。また、TEF-T に対しては、運転・保守の作業手順検討やモックアップ試験などを行い、システム技術としての検証・詳細な機器設計を検討する必要性、および、欧州などの鉛ビスマス取り扱い技術を参考にするべきとされるなど、引き続き、研究開発を行うべき項目が示された。

上記の作業部会の指摘を受け、第 3 期中長期計画期間（2015 年 4 月～2022 年 3 月）[5.3-5)]では、核変換実験施設の建設に向けて必要な要素技術開発、施設の検討や安全評価等に取り組み、「ADS ターゲット試験施設に関しては、早期に施設整備に必要な経費の精査や技術課題解決の見通し等について外部委員会による評価を受けた上で、目標期間半ばを目途に同施設の建設着手を目指す。核変換物理実験施設に関しては、施設の設計・設置許可に向けた技術的課題解決の見通し等について外部委員会による評価を受けた上で、目標期間内に設置許可を受けて建設着手を目指す」こととしていた。5.3.1 節および 5.3.2 節に詳細を述べるが、両施設に対する研究開発により、TEF-P については安全設計書 [5.3-6)]、TEF-T については技術設計書 [5.3-7)]が完

成し、それぞれ、設置許可申請の準備および、技術的課題解決の見通しを得た。

参考文献

5.3-1) 大強度陽子加速器計画評価作業部会 大強度陽子加速器計画中間報告書, 平成 19（2007）年 6 月, http://www.aec.go.jp/jicst/NC/iinkai/teirei/siryo2007/siryo27/siryo27-1-2.pdf (accessed 2022/7/15).

5.3-2) 原子力委員会 研究開発専門部会 分離変換技術検討会, 分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方, 平成 21（2009）年 4 月 28 日, http://www.aec.go.jp/jicst/NC/senmon/bunri/houkokusho-090428.pdf (accessed 2022/7/15).

5.3-3) 日本原子力研究開発機構, 独立行政法人日本原子力研究開発機構の中期目標を達成するための計画(中期計画), https://www.jaea.go.jp/01/pdf/keikaku22.pdf (accessed 2022/7/15).

5.3-4) 文部科学省 科学技術・学術審議会 研究計画・評価分科会 原子力科学技術委員会 群分離・核変換技術評価作業部会, 群分離・核変換技術に係る研究開発の今後の進め方について, 平成 27（2015）年 8 月, https://www.mext.go.jp/component/b_menu/shingi/toushin/__icsFiles/afieldfile/2018/07/11/1406972_1.pdf (accessed 2022/7/15).

5.3-5) 日本原子力研究開発機構, 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の中長期目標を達成するための計画(中長期計画), https://www.jaea.go.jp/01/pdf/keikaku27.pdf (accessed 2022/7/15).

5.3-6) 原子力基礎工学研究センター分離変換技術開発ディビジョン, "J-PARC 核変換物理実験施設(TEF-P)安全設計書", JAEA-Technology 2017-033 (2017), 383p.

5.3-7) J-PARC センター 核変換ディビジョン, "J-PARC 核変換実験施設技術設計書 —ADS ターゲット試験施設(TEF-T)—", JAEA-Technology 2017-003 (2017), 539p.

5.3.1 核変換物理実験施設（TEF-P）

5.3.1.1 TEF-P の目的

MA の核変換を目的として、MA を多量に装荷した原子炉はこれまでに運転されたことがなく、原子炉の型や炉心設計によって程度の違いはあれ、中性子特性の検証が必要となる。これまでに、MA 核種を対象として、J-PARC などの加速器を用いた微視的な断面積測定が行われてきており、評価済み核データへの反映が行われている。その一方で、臨界集合体で MA を用いた試験による積分的な評価済み核データの検証が、炉心設計の核計算精度を保証するために必要である。これまで、既存の高速炉臨界実験装置 FCA で系統的に中性子スペクトルを変化させて MA の核分裂計数管とグラムオーダーの MA サンプル反応度測定が行われ、得られたデータは貴重な核データ検証用データとして利用されているが、MA の核データの精度向上に向けて更なる検証実験が望まれる。

TEF-P は、Fig. 5.3.1-1 に示すように、FCA 施設と同様な水平 2 分割型の臨界実験装置である。各 1/2 格子管集合体は四角柱の格子管を直方体状（35 行×35 列）に積み重ねたもので、一方が移動側 1/2 格子管集合体として移動テーブル駆動機構に接続されている。ウラン燃料板及び模擬板が装填された炉心物質装填用引出し等を各々の格子管に装荷して炉心を構築すること

により、実験目的に応じて柔軟な炉心構築が可能な概念である。

TEF-P で MA 核データの検証のための積分実験を行うことで、ADS 実機の不確かさがどの程度減少するかを評価する研究[5.3.1-1~8]が行われ、Table 5.3.1-1 に示す不確かさ低減効果が見積もられた。ADS 実機で重要となる臨界性およびボイド反応度を JENDL-4.0 で計算した場合の核データ評価に起因する不確かさは、各々1%（1σ）と 9%（1σ）程度である。それに対し、過去に行われてきた積分実験データベース（ADJ2010）の結果を用いてデータ同化することで、それぞれ、0.7%（1σ）と 8%（1σ）程度に低減される。さらに、TEF-P で 30 kg の MA 燃料を用いた実験を実施すると、それぞれ、0.3%（1σ）と 4%（1σ）程度にまで低減される結果を得た。

また、ADS は未臨界状態で大出力を生じる初めての原子炉となるため、未臨界度の監視、未臨界状態での出力分布の予測などの未臨界炉物理に関する項目や、加速器を用いた出力制御などが、実験的に検証すべき課題である。これらの実験課題に対する実験計画を Fig. 5.3.1-2 のように策定した。TEF-P の運転当初（0～5 年）は FCA から継承する低濃縮ウランでの実験を行い、MA 燃料の製造後（6～14 年）は部分的な MA 燃料領域を持つ炉心を用いて実験を行う計画である。その後は、ADS 以外の新型炉に資する MA 燃料を活用した実験を実施する。

5.3.1.2　TEF-P 安全設計

過去に TEF-P 施設に対して、施設の概略仕様[5.3.1-9]、臨界実験装置仕様と陽子ビーム導入機構[5.3.1-10]、基本的な安全設計方針[5.3.1-11]についての検討が行われてきた。それらを踏まえ、2011 年の東京電力福島第一原子力発電所事故以降に強化された新たな規制基準に対応すると共に、FCA 施設の一部燃料の米国への移送や、MA 燃料取扱概念の検討結果を反映し、安全設計を実施した結果を安全設計書[5.3-6]として取りまとめた。

TEF-P 施設は試験研究用原子炉施設であり、「試験研究の用に供する原子炉等の設置、運転等に関する規則」に基づく設置許可申請においては、「試験研究の用に供する原子炉等の位置、構造及び設備の基準に関する規則」（2013 年 12 月 6 日 原子力規制委員会規則第 21 号）及び、「試験研究の用に供する原子炉等の位置、構造及び設備の基準に関する規則の解釈」（2013 年 11 月 27 日 原規研発第 1311271 号 原子力規制委員会決定）に適合することが要求される。本安全設計書は、これらに対する適合を示す原子炉施設の安全設計に関する説明書並びに、原子炉施設において事故が発生した場合における当該事故に対処するために必要な施設及び体制の整備に関する説明書に相当するものである。

原子炉施設の安全設計に関する説明書に相当する部分では、法律・法令・規則の要求に適合するための安全設計方針、安全機能の機能別重要度分類、並びに、耐震設計上の重要度分類を示した。

炉心停止機能・冷却機能喪失時の平衡に至るまでの温度評価を実施し、MA 燃料の発熱による核燃料の健全性への影響がないため、TEF-P 施設では、燃料の多量の破損を引き起こすおそれがなく、敷地外への著しい放射性物質の放出のおそれがないことを示した。このことから、安全重要度クラス 1 に該当する構築物、系統及び機器はなく、クラス 2 又はクラス 3 に分類した。

耐震設計上の重要度分類を行うために、通常運転中に地震が発生し、停止機能の喪失により臨界状態が継続し、かつ閉じ込め機能が喪失した場合の敷地境界外の一般公衆被ばく線量の評価を行った。TEF-P 施設が最大出力 500 W で運転され、10 W 陽子ビームが入射された状態が継続した場合の西側 250 m の敷地境界における線量率は、9.1 μSv/h であった。外部被ばくが過大な被ばく線量（5 mSv）に至るまでに少なくとも 24 日の時間余裕があることから、周辺公衆に過度の放射線被ばくを及ぼす恐れはないことを示した。また、地震によって金属ウラン燃料板、および金属被覆管に封入された MA 燃料中の運転により生成された気体状核分裂生成物全量が炉室に放散された場合、敷地境界外における一般公衆の外部被ばく並びに吸入摂取による内部被ばくの実効線量は 1.4 mSv となり、これも過大ではないことを示した。以上のことから、TEF-P の耐震重要度分類は B クラスであることを示した。耐震 B クラスの場合想定するべき津波の遡上高さ T.P.+約 6 m に対して、TEF-P 施設は T.P.+約 15 m に位置するため、津波の影響を受けない。

重要度分類に続いて、施設・設備（建屋、原子炉本体、燃料貯蔵、燃料取り扱い、計測制御、実験、廃棄物、放射線管理、換気、補助）のそれぞれに対して、安全上の設計方針と構成する主要設備を述べた。

最後に、運転時の異常な過渡変化および設計基準事故の抽出と、各々に対する外部への影響などの安全評価を実施した。それにより、反応度印加、過大な陽子ビーム導入、冷却機能喪失などの異常な過渡変化時に、炉心の健全性が損なわれず、通常運転時の状態に移行できることを示した。また、複数の誤操作・誤作動を想定した反応度印加、臨界体系へのビーム導入、MA 燃料破損などの設計基準事故時でも、周辺公衆に対して著しい被ばくのリスク（5 mSv）を与えないことを示した。

安全設計を実施した結果､安全評価の精度向上や設計詳細化などの 16 個の課題を抽出した。これらについては、今後検討を行っていく必要があるものの、安全上の重要度は小さいと考えられ、TEF-P 施設の安全設計は現在の許認可に適合する見通しを得た。

安全設計と関連して、原子炉設置場所としての適格性を確認するため、TEF-P 敷地の地盤調査を実施した。調査では、Fig. 5.3.1-3 に示すように、原子炉直下（図中 TEF-1）の深度 350 m および、建家の辺縁部（図中 TEF-2～TEF-4）の深度 40 m までボーリングを行った。その結果、TEF-P 建設予定地の地盤は、地下 344 m 以深に非常に強固な岩盤層を有することが分かった。周辺の過去のボーリング調査と合わせて、この岩盤層は大きな高低差がなくほぼ水平に広く分布しており、著しい風化を受けていないと判断される事から、建設予定地が原子炉施設設置に適格であることを確認した。

5.3.1.3　TEF-P の要素技術開発

(1) MA 燃料製造

TEF-P 用 MA 含有燃料の製造に必要なプロセス概念の検討を実施した。核データ起因の不確かさ解析から､Am-241 が最も不確かさが大きく検証が必要な核種である。Cm については、中性子放出量が大きく、取り扱いが困難になることから、燃料に含まないことが求められた。そこで、経年化により Pu-241 の崩壊が進み、Am-241 を多く含有した経年化 MOX 粉末から

Am-241 を抽出することとし、抽出工程と燃料製造工程を検討した。

粉末調整プロセスでは、Fig. 5.3.1-4 に示すように MOX 粉末を溶解し TBP 抽出法で U と Pu を抽出する。その後、TDdDGA 抽出剤を用いて Am を抽出後、Am と Pu を 1:1 で混合し、脱硝・粉末化する。

燃料製造工程では、Fig.5.3.1-5 に示すように、不活性母材として MgO 粉末を加えて粉砕・混合・造粒し、燃料ペレットに焼結する（Fig.5.3.1-6）。燃料ペレットを燃料ピンに封入して（Fig.5.3.1-7、燃料ピンを得る。TEF-P で想定されている MA 燃料ピン本数は 600 本であるが、燃料製造工程では、年間で 600 本以上の製造能力を有するものとして設計した。

(2) TEF-P での MA 燃料の取扱い

MA 燃料は、核分裂性物質を含んでいるため、臨界を起こさないようにするほか、高線量であるため、手作業で取り扱うことができない。また、高発熱であるため、冷却を行い高温にならないように注意する必要がある。TEF-P で使用を想定している MA 燃料の貯蔵、移送、装荷の各段階に対して、取扱い概念を検討し、臨界性、線量率、冷却性を評価した [5.3.1-12)]。

臨界性については、貯蔵、移送、装荷の各段階で十分に低い実効増倍率となることがわかった。

線量率に関しては、被ばく線量の高い作業を抽出し、これらの作業に遠隔操作を取り入れることで、十分に作業者の被ばく線量を低減できる見通しを得た。貯蔵庫および炉心燃料装荷時の遠隔操作が必要であり、そのための遠隔操作機器の概念設計を実施した。

冷却性については、貯蔵室および、炉心における通常運転時の冷却に必要な設備を示した。炉心装荷時の冷却は、MA 領域専用のブロワにより、MA 燃料と案内管の間隙に空気を流すことで行う。一方、貯蔵室空調あるいは炉心冷却ブロアが長期間停止した場合には燃料組成によっては燃料破損の恐れがあり、それに対する対策が必要なことを明らかにした。この課題に対し、5.3.1.2 節で述べた安全設計書では、MA 燃料の総発熱量を 2.25 kW 以下になるように組成を制限することで、炉心の健全性を維持できることを示した。

MA 燃料の遠隔操作においては、特に、炉心燃料装荷時に誤装荷や燃料破損を起こさない信頼性の高い装置が必要となる。そこで、燃料装填装置で要求される基本機能を模擬した試験装置（Fig. 5.3.1-8）を製作し、模擬炉心に対する MA 燃料ピン模擬体の装荷、取出し試験を実施した [5.3.1-13)]。製作、試験により、MA 燃料を取扱う燃料装填装置設計の成立性を確認した。

MA 燃料は目視による個体識別が出来ないため、誤装荷防止や核物質防護の観点から遠隔識別が必要となる。低線量の板状燃料については目視が可能であるが、信頼性向上及び個体識別による実験精度向上のために、板状燃料でも自動識別を実施する。識別法として、カメラによる 2 次元コードの読み取りを選定し、燃料識別試験装置で成立性・信頼性を実証した（Fig.5.3.1-9）。MA 燃料を模擬したピン表面に刻印した極小 2 次元コードで、周方向の位置によらず識別可能な見込みを得た。また、板状燃料に対しても識別可能な見込みを得た。

MA 燃料領域専用のブロワを用いた通常運転時の MA 燃料冷却では、狭い流路に空気を流すため、圧力損失が過大になった場合に十分に冷却がされなくなる恐れがあるため、設計を確認するための冷却模擬試験を行った [5.3.1-14)]。試験により TEF-P の設計に用いる圧力損失（Fig.

5.3.1-10）及び温度上昇（Fig. 5.3.1-11）の評価式が妥当であることが確認され、冷却設計の成立性を示した。

炉心冷却ブロアが異常事象・事故により長期間停止した場合の炉心の温度上昇には、炉心格子管の等価熱伝導率が大きく影響する。炉心格子管は、角管を束ねて溶接したもので、内部は空気のみの空であったり、引き出しや角柱形状の模擬物質が装填されたりする。自然対流であることや、間隙が多く熱伝導の評価の不確かさが大きいため、試験によって等価熱伝導率を測定した[5.3.1-15]。これにより、実際の空の格子管内部の等価熱伝導率は密閉流体層の自由対流モデルよりも大きいことを明らかにした（Fig. 5.3.1-12）。また、空格子管内部にアルミニウムブロックを充填することにより等価熱伝導率を向上させた条件での測定を行った（Fig. 5.3.1-13）。アルミニウムブロック充填による熱伝導率向上など、この試験で得られた知見は、安全設計書における炉心冷却機能喪失時の炉心温度評価に反映した。

安全設計書では、冷却機能喪失時でも炉心温度が 320 ℃未満であることが示されているが、仮想的に、MA 燃料の崩壊熱により燃料が高温となった場合に、内部ガス圧力によって被覆管がどの程度まで破損しないかを試験した[5.3.1-16]。被覆管破裂試験は、PNC316 鋼を用いて、MA 燃料製造後 30 年及び 50 年後を想定して被覆管内の内圧条件を設定し、温度上昇率 0.04 ℃/s、0.004 ℃/s、0.0004 ℃/s の 3 ケースで実施した（Fig. 5.3.1-14）。その結果、最も厳しい結果では約 660℃で試料が破損した（Fig. 5.3.1-15）。また、PNC316 鋼の Larson-Miller パラメータをもとに評価を行った結果、600 ℃でクリープ破断に至るまでに約 100 日の猶予があることを示した。

(3) レーザ荷電変換の開発

(a) 概要

TEF-P 施設では安定で微弱な陽子ビーム（最大 10 W）が必要になるため、ビーム輸送系では大強度 H^- ビーム（250 kW）から 2 万 5 千分の 1 に相当する陽子ビームを安定かつ安全に取り出す技術が必要とされ、物理的に大強度 H^- ビームが TEF-P 施設へ入射することを防止する機能も必要となる。この取り出し方法として、1 パルスの取り出し、正負イオンの同時加速、ビーム輸送ライン中にあるフォイルでの取り出し、レーザ荷電変換による取り出しを検討した[5.3.1-17]。このうち、取り出された陽子ビームの品質を劣化させないレーザ荷電変換が最も実現性が高いと考えた。

レーザ荷電変換の原理を Fig. 5.3.1-16 に示す。レーザ光を H^- ビームに照射することにより、H^- ビームを中性水素（H^0）ビームに荷電変換する。H^- イオンの第 2 電子は 0.755 eV という低いエネルギーで H^0 に結合しているため、赤外線から可視光程度の波長を持つレーザ光で容易に電子を引き離すことができる。一方、H^0 の場合、第 1 電子の結合エネルギーは 2.3 eV と、第 2 電子と比較して高いため、レーザ光で第 1 電子を引き離すことは難しい。

よって、H^0 の第 1 電子を剥ぎ取るため（ストリッピング）、H^0 ビームを荷電変換フォイル、すなわち数百 μg/cm^2 の金属箔に入射させ、H^+ ビームに荷電変換する。この時、荷電変換フォイルに入射する H^0 ビームの電流は H^+ ビームとほぼ等しく、僅か数ワットであるため、荷電変換フォイルにおけるビームの散乱は問題とならない。さらに、何かしらの要因で大電流ビーム

が荷電変換フォイルに入射してもそれが溶融し、大強度陽子ビームが TEF-P 施設に入射することを未然に防ぐことが可能となる。

ところで、レーザ光を H^- ビームに照射しなくても、H^- ビームが真空中の残留ガスとの相互作用により H^0 ビームに荷電変換され、TEF-P 施設に入射する。この成分はバックグランドになり得るため、極力取り除く必要がある。TEF-P 施設へのビーム輸送ラインは、偏向電磁石による曲線部分とそれ以外の直線部分から成り立っているが、直線部分にレーザ荷電変換部を設置することは望ましくない。すなわち、残留ガスとの相互作用で中性化された H^0 は、レーザで中性化された H^0 と区別されず、TEF-P 施設に輸送される。このため、レーザ荷電変換部を偏向電磁石内に設置する（Fig. 5.3.1-16(b)参照）。この方法によって、偏向電磁石より上流の直線部で残留ガスとの相互作用で生じた H^0 は偏向電磁石内を直進することになり、TEF-P 施設へ輸送されるレーザ荷電変換された H^0 ビームのバックグランド成分が減少する。

(b) 3 MeV リニアックを用いたレーザ荷電変換試験

レーザ荷電変換技術の検討にあたり、荷電変換された H^+ ビームの強度やその安定性を評価することは、TEF-P 施設における臨界集合体の熱出力を一定に保つために必要不可欠である。そこで、新たに構築した J-PARC 3 MeV リニアックを用いて、H^+ ビーム強度などを測定するレーザ荷電変換試験を実施した。3 MeV リニアックは、負水素イオン源、低エネルギービーム輸送系（Low Energy Beam Transport）、高周波四重極型リニアック（RFQ）、RFQ 下流の MEBT（Medium Energy Beam Transport）、及び、ビームダンプで構成される。Fig. 5.3.1-17 に 3 MeV リニアックの RFQ、MEBT、及びレーザ荷電変換部を示す。また、Fig. 5.3.1-18 にレーザ荷電変換部の機器配置を示す。

レーザ荷電変換試験では、RFQ からピーク電流 30 mA、マクロパルス幅 50 μs の H^- ビームを MEBT へ輸送し、偏向電磁石で曲げられながら、高出力レーザからのレーザ光（波長 1064 nm）と衝突させた。レーザ光と衝突しない H^- ビームは、偏向角が 23 度のビームラインにあるビームダンプで停止する。また、レーザ光は偏向電磁石の磁極中心に入射するため、荷電変換した H^0 ビームは、偏向角が 11.5 度のビームラインに輸送され、荷電変換フォイルによって H^+ ビームに変換される。その後、ビーム位置モニタ（BPM）、SCT（slow current transformer）を通過した後、ビームダンプを兼ねたファラデーカップ（FC）で停止する。

ところで、3 MeV リニアックを用いたレーザ荷電変換試験では、時間幅の異なる H^+ ビームを取り出すため、二種類のレーザ（高出力パルス発振レーザと高出力連続発振レーザ）を使用した。

まず、時間幅が短い（数ナノ秒）H^+ ビームを取り出すため、高出力パルス発振レーザ（1 パルス当たり 1.6 ジュール）を用いて実験を行った。その結果、H^+ ビーム出力の変動を約 2%以内に抑えながら、出力が約 3 万分の 1 だけの H^+ ビームを取り出すことに成功した [5.3.1-18]。この取り出し割合は J-PARC の出力 250 kW の H^- ビームから約 8 W の H^+ ビームを取り出すことに相当している。

次に、時間幅が長い（数十マイクロ秒）H^+ ビームを取り出すために、高出力パルス発振レーザを高出力連続発振レーザ（出力 196 W）に置き換えて実験を行い、時間幅が約 50 マイクロ

秒で、出力が約 36 万分の 1 だけの H^+ビームを取り出すことに成功した[5.3.1-19]。この取り出し割合は J−PARC の出力 250 kW の H^-ビームから約 0.7 W の H^+ビームを取り出すことに相当している。

また、取り出されたこれらのビームの出力が理論的な予測値と一致した。従って、理論どおりに H^+ビームを取り出すことができたため、安定かつ正確に所定の出力と時間構造を有する H^+ビームの取り出しが原理的に可能であることがわかった。

参考文献

5.3.1-1) 菅原 隆徳, 他, “Improvement effect of neutronics design accuracy by conducting MA-loaded critical experiments in J-PARC, Proceedings of International Conference on the Physics of Reactors”, Nuclear Power; A Sustainable Resource (PHYSOR 2008) (CD-ROM).

5.3.1-2) 菅原 隆徳, 他, “核変換システムの核設計精度検討と MA 装荷実験の効果”, JAEA-Research 2009-033 (2009), 102p.

5.3.1-3) T. Sugawara, et al., “Importance of reactor physics experiment using MA-bearing fuel”, Proceedings of 10th OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation (CD-ROM).

5.3.1-4) K. Nishihara, et al., “Investigation of nuclear data accuracy for the accelerator-driven system with minor actinide fuel”, Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, Eleventh Information Exchange Meeting, OECD NEA No. 6996 (2012) pp.315-327.

5.3.1-5) T. Sugawara, et al., “Research and development activities for transmutation physics experimental facility in J-PARC”, Proceedings of International Conference on the Physics of Reactors; The Role of Reactor Physics toward a Sustainable Future (PHYSOR 2014) (CD-ROM).

5.3.1-6) H. Iwamoto, et al., “Reactor physics experiments using transmutation physics experimental facility for research and development of accelerator-driven system”, Proc. Of 12th International Workshop on Asian Network for Accelerator-Driven System (ADS) and Nuclear Transmutation Technology (NTT) (ADS+NTT 2014).

5.3.1-7) 岩元大樹, 他, “J-PARC 核変換物理実験施設を用いたマイナーアクチノイド燃料装荷炉物理実験による加速器駆動核変換システム炉物理パラメータの不確かさの低減効果”, 日本原子力学会 2015 年春の年会 (2015).

5.3.1-8) 岩元大樹, 他, “核変換物理実験施設を用いた炉物理実験による加速器駆動核変換システム炉物理パラメータの不確かさの低減効果”, JAEA-Research 2014-033 (2015), 82p.

5.3.1-9) 大井川宏之 他, “核変換実験施設の概念検討(1)核変換物理実験施設の概要” , JAERI-Tech 2000-062 (2000), 64p.

5.3.1-10) 大井川宏之 他, “核変換実験施設の概念検討(3)核変換物理実験施設の検討” , JAERI-Tech 2002-037 (2002), 220p.

5.3.1-11） 辻本和文 他, “核変換実験施設の概念検討(4)核変換物理実験施設の安全性検討”, JAERI-Tech 2003-085 (2003), 158p.

5.3.1-12) 菅原 隆徳, 他, “核変換実験施設の概念検討,5; MA 燃料取扱いに関する検討”, JAEA-Technology 2014-044 (2015), 59p.

5.3.1-13) 田澤 勇次郎, 他, “MA 燃料遠隔取扱試験設備の製作及び試験結果,3; 燃料装填試験装置”, JAEA-Technology 2016-029 (2016), 52p.

5.3.1-14) 西原 健司, 他, “MA 燃料遠隔取扱試験設備の製作及び試験結果,1; 燃料冷却試験装置”, JAEA-Technology 2015-051 (2016), 47p.

5.3.1-15) 江口 悠太, 他, “MA 燃料遠隔取扱試験設備の製作及び試験結果,2; 格子管の熱通過パラメータの評価”, JAEA-Technology 2015-052 (2016), 34p.

5.3.1-16) 菅原 隆徳, 他, “核変換物理実験施設用 MA 燃料被覆管を想定した被覆管破裂試験”, JAEA-Research 2017-011 (2017), 35p.

5.3.1-17) 明午 伸一郎, 長谷川 和男, 池田 裕二郎, 大井川 宏之, 青木 延忠, 中川 敏, “YAG レーザを用いた H^- ビーム取出し法の概念検討”, JAERI-Technology 2002-095 (2002), 40p.

5.3.1-18) H. Takei, K. Hirano, K. Tsutsumi, et al., “Beam Extraction by the Laser Charge Exchange Method Using the 3-MeV LINAC in J-PARC”, Plasma Fusion Res. 13, 2406012 (2018).

5.3.1-19) H. Takei, K. Tsutsumi and S. Meigo, “Low-power proton beam extraction by the bright continuous laser using the 3-MeV negative-hydrogen linac in Japan Proton Accelerator Research Complex”, J. Nucl. Sci. Technol., 58(5), (2021) pp. 588-603.

Table 5.3.1-1　ADS 実機の核特性不確かさの低減 [5.3.1-8)]

	調整前	調整後（単位：%）	
	JENDL-4.0	+R488（ADJ2010）	+TEF-P（参照炉心 B）
臨界性	1.041	0.727 (0.724)	0.326 (0.314)
ボイド反応度	9.436	8.394 (8.314)	4.054 (3.973)

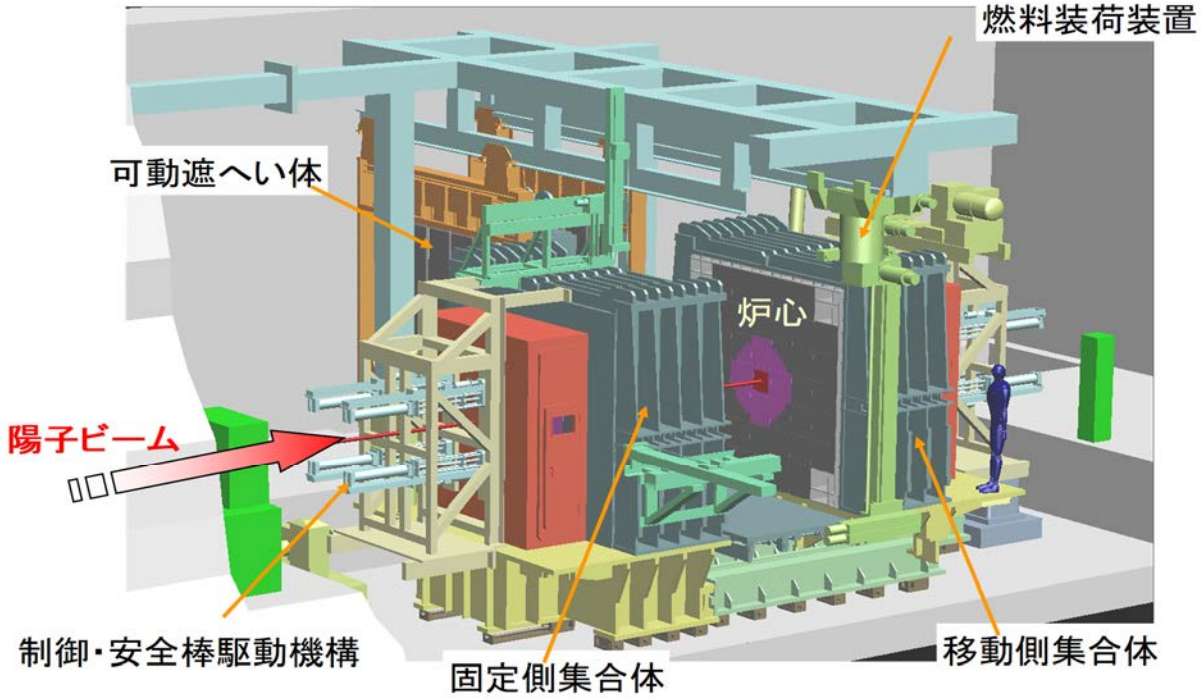


Fig. 5.3.1-1　TEF-P の炉心部概念図

Operation year	-1	0-2	3-5	6-8	9-11	12-14	15-19	20-24	25-29
Mile-stone	Component test	▲First critical		▲MA fuel supply to TEF-P					
Core		LEU*1 core		Partial mock-up of MA core			Other reactors		
1. Nuclear data for ADS		Measurement by FC*2, foil and sample							
				Criticality	Safety parameters				
2. Reactor physics of ADS			Source eff., power dist.			Mock-up of LLFP			
		Subciriticality monitoring							
3. Operation of ADS		Control by accelerator							
			Accident test						

*1 LEU: low-enriched uranium (~20%)　*2 FC: Fission chamber

Fig. 5.3.1-2　TEF-P の実験計画

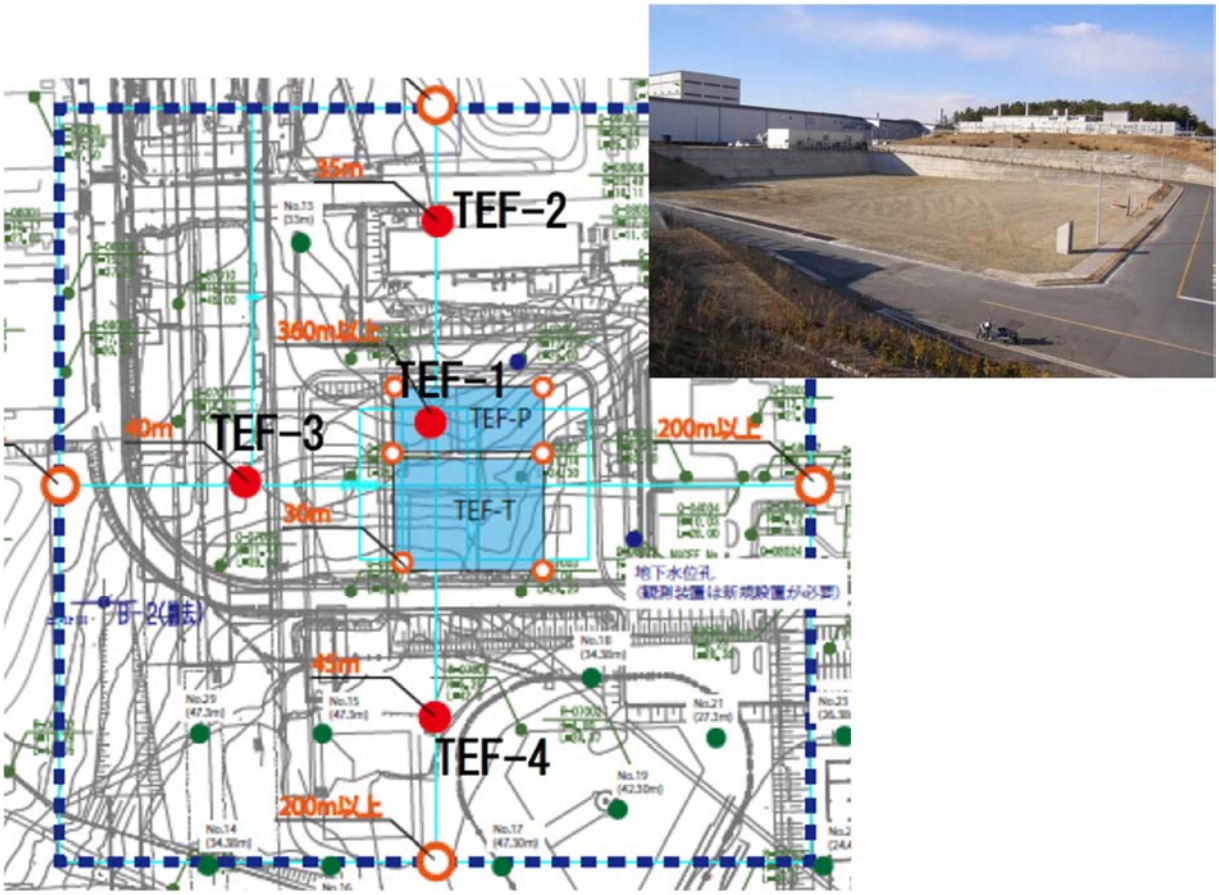


Fig. 5.3.1-3　TEF-P の地盤調査

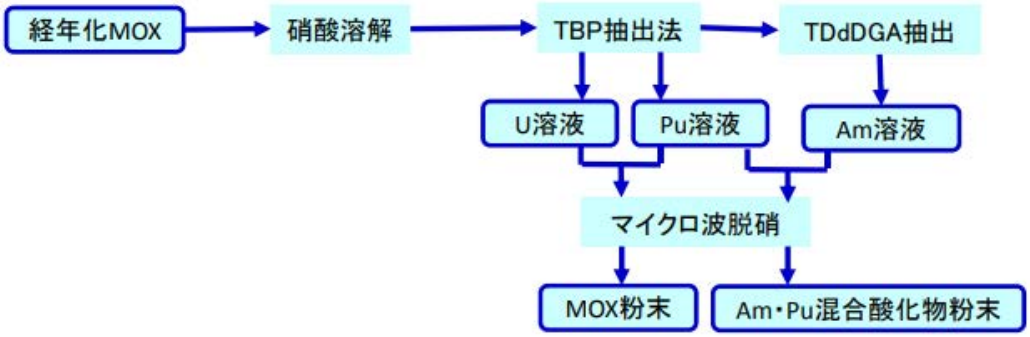


Fig. 5.3.1-4 Am・Pu 混合酸化物粉末の調製プロセス概念

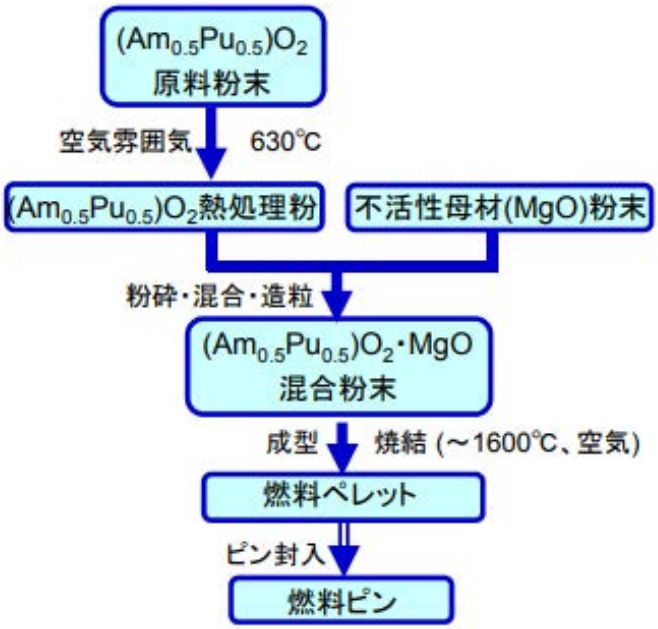


Fig. 5.3.1-5 MA 燃料ピンの製造プロセス概念

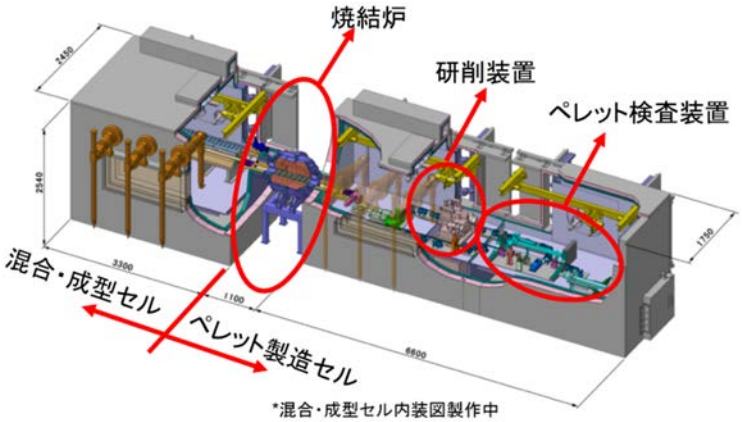


Fig. 5.3.1-6 燃料ペレット製造工程

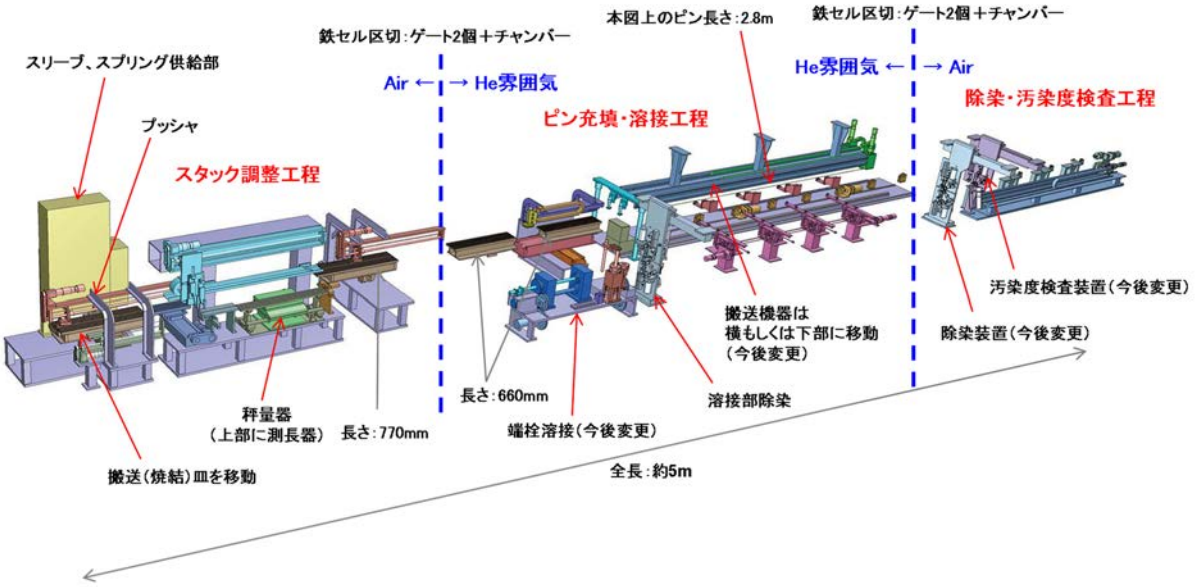


Fig. 5.3.1-7 燃料ピン製造工程

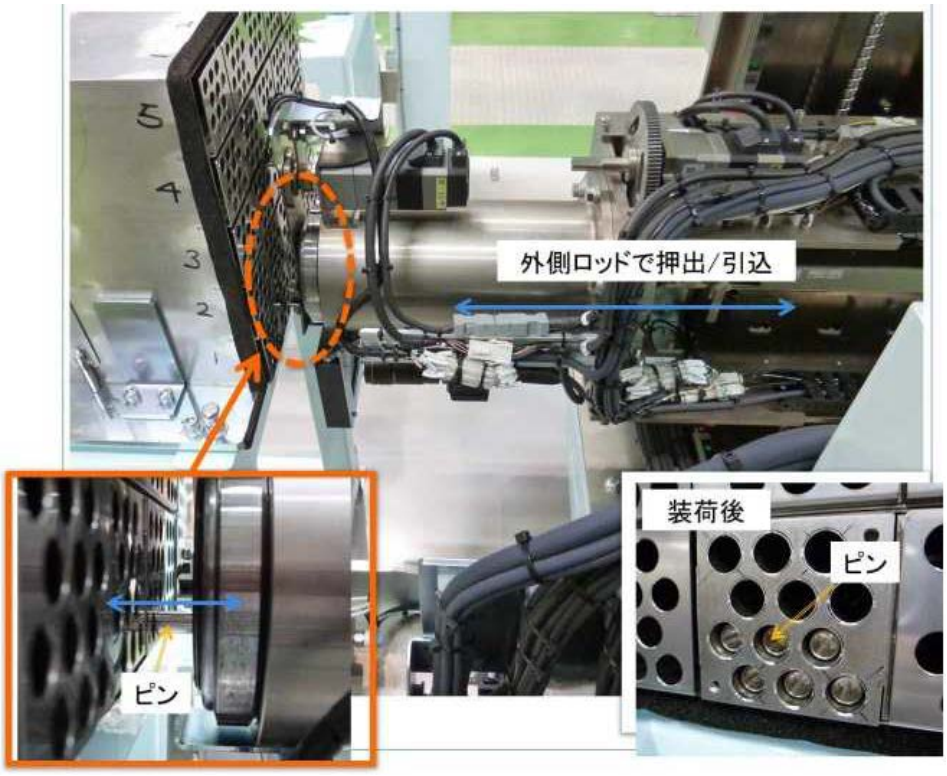


Fig. 5.3.1-8 MA 燃料装填試験装置

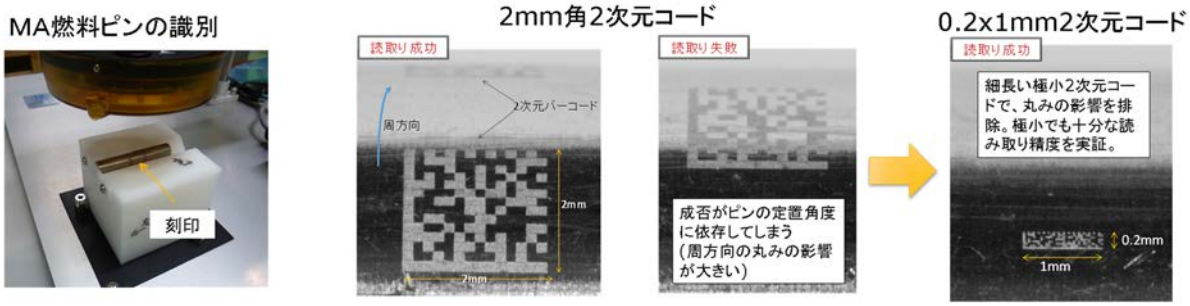


Fig. 5.3.1-9　燃料識別試験装置

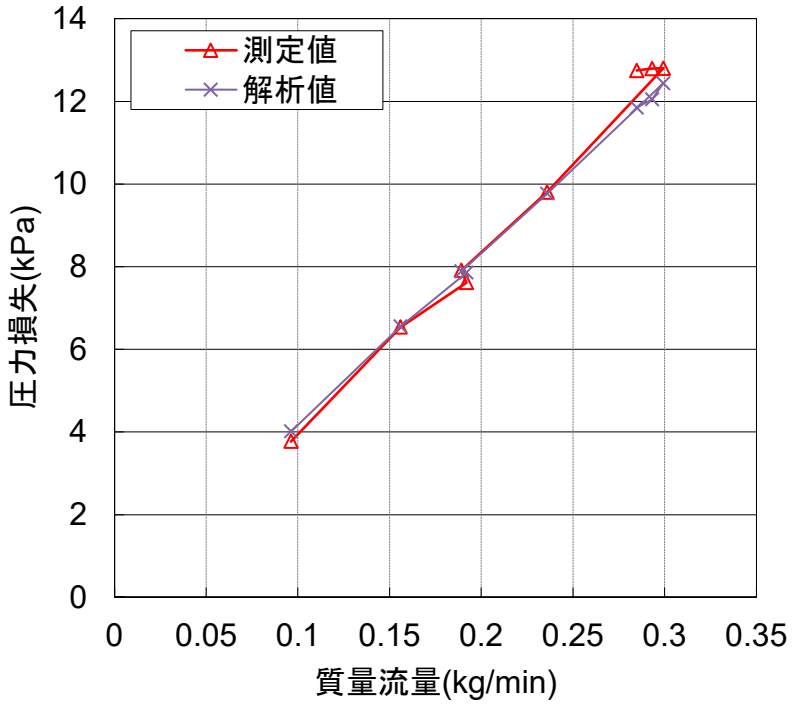


Fig. 5.3.1-10　出入口圧力差[7]

[7] 文献 5.3.1-14)の p.31 図 4.4 を見直した結果を示した。文献では、MA ピン外径/案内管内径に設計値（9.0/10.29 mm）を用いていたため過大評価となっていたが、実測値（8.968/10.413 mm）を用いることで、よく一致する結果が得られた。

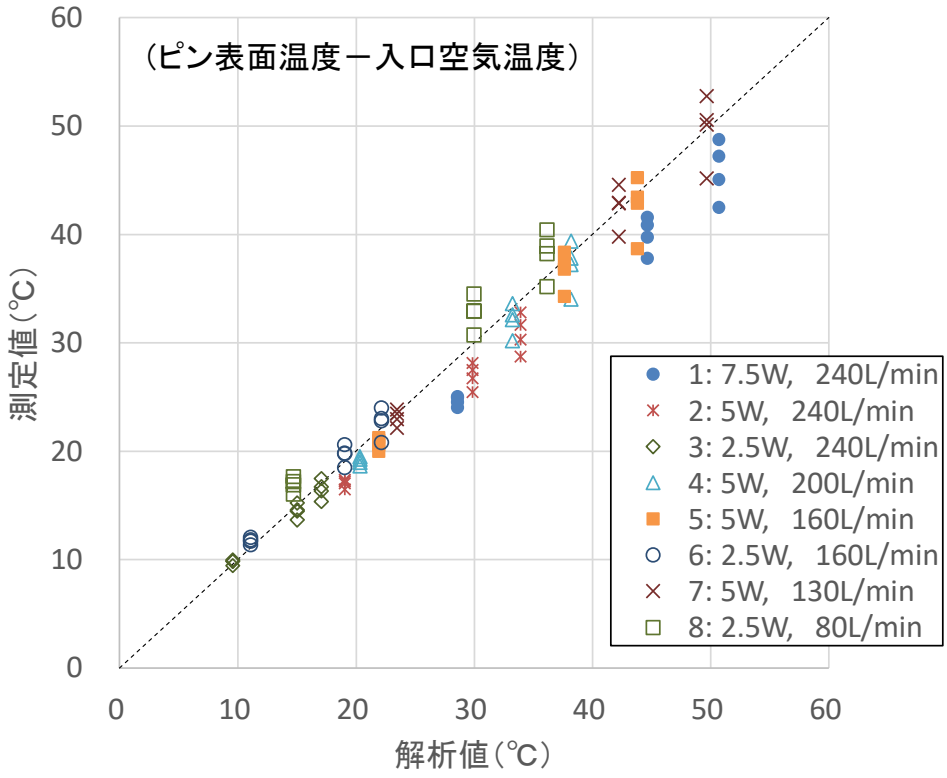


Fig. 5.3.1-11　燃料ピン表面温度の測定値と解析値[8]

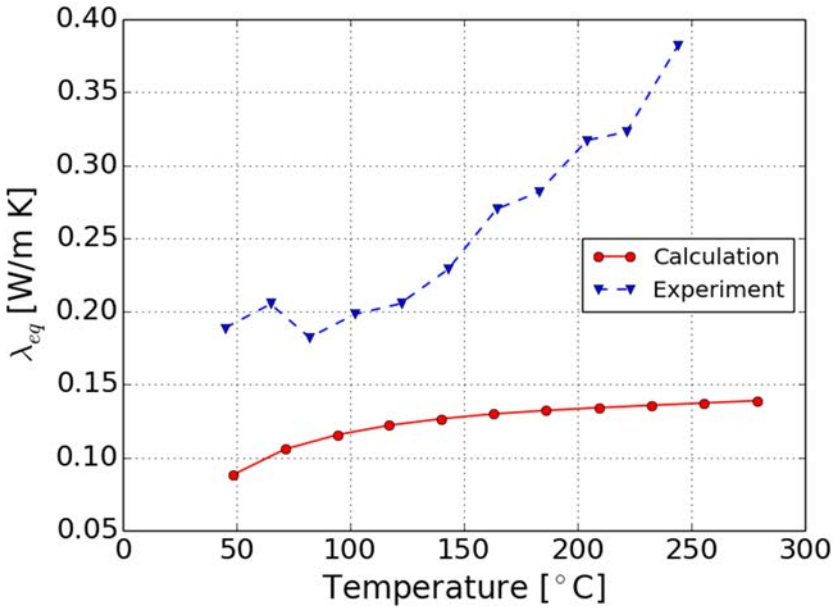


Fig. 5.3.1-12　空格子管の等価熱伝導率λeq。実験値は計算値よりも大きく、保守側である。

[8] 文献 5.3.1-14)の p.39 図 4.9 を実測値を用いて見直した。

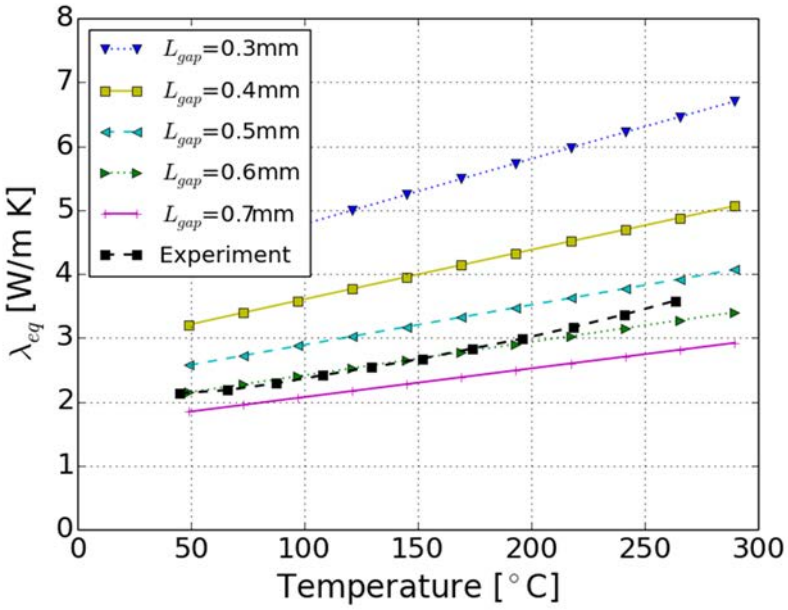


Fig. 5.3.1-13　アルミニウムブロック充填格子管の等価熱伝導率 λ_{eq}[W/mK]。図中の L_{gap} はアルミニウムブロックと格子管の両側隙間。設計値は 0.44mm である。

サンプル外観

サンプル破裂後の外観

Fig. 5.3.1-14　被覆管破裂試験のサンプル外観

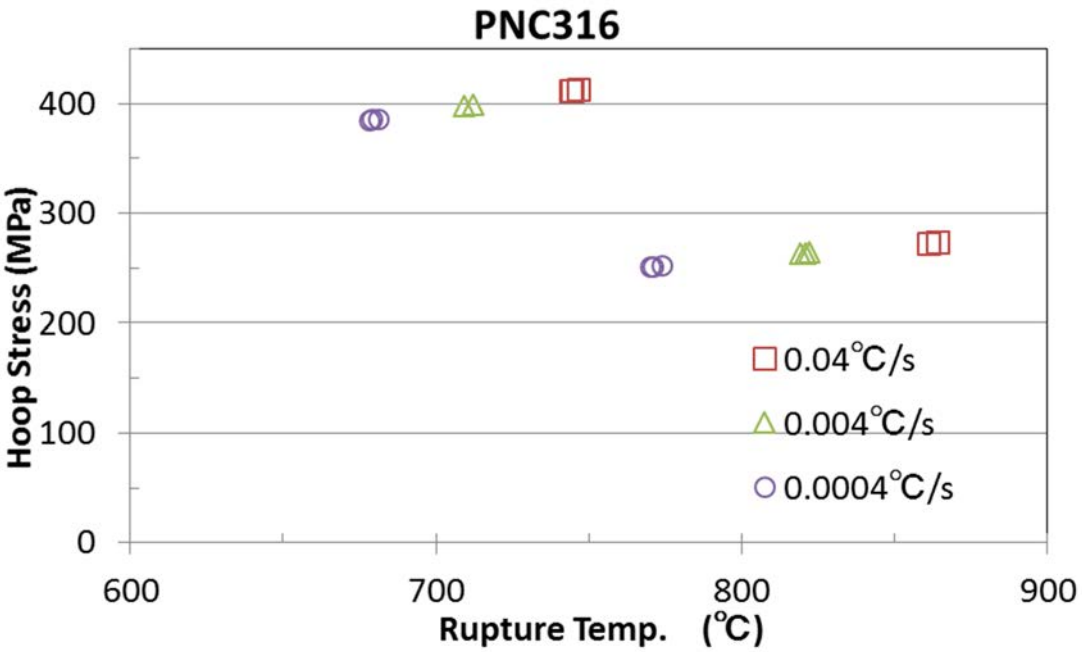


Fig. 5.3.1-15　破裂温度とフープ応力の関係。フープ応力が 250MPa 付近の点は 30 年冷却、400MPa 付近の点は 50 年冷却を想定したものである。

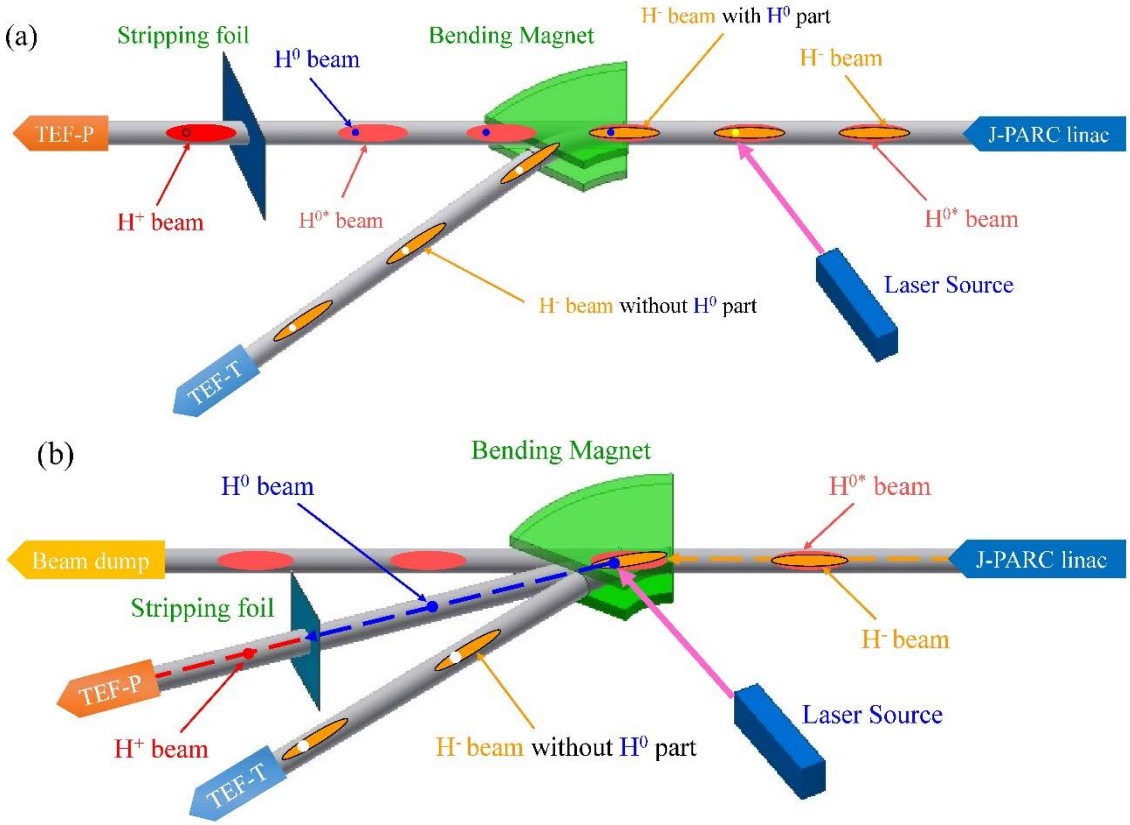


Fig. 5.3.1-16　レーザ荷電変換の原理［参考文献 5.3.1-19）の Fig. 2 を転載］

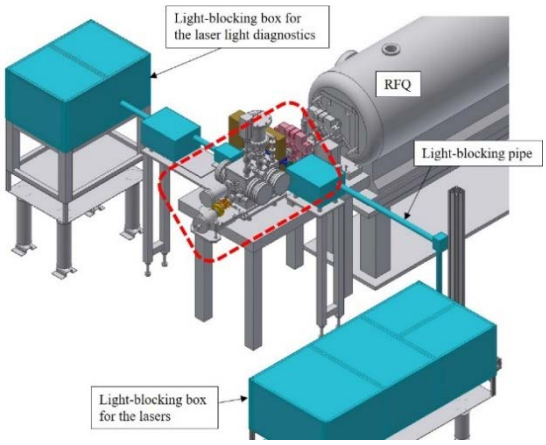


Fig. 5.3.1-17 3 MeV リニアックの RFQ、MEBT、及びレーザ荷電変換部の配置（青緑色部分がレーザシステム）[参考文献 5.3.1-18）の Fig. 3 を転載]

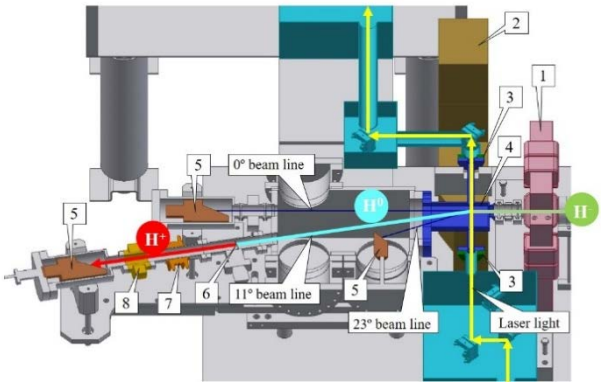


Fig. 5.3.1-18 レーザ荷電変換部の機器配置（1-四重極電磁石、2-偏向電磁石、3-石英窓、4-真空容器、5-ビームダンプ、6-荷電変換フォイル、7-ビーム位置モニタ、及び 8-SCT）[参考文献 5.3.1-18）の Fig. 4 を転載]

5.3.2 ADS ターゲット試験施設（TEF-T）

5.3.2.1 TEF-T 基本設計

液体の鉛ビスマス共晶合金（LBE）標的に大強度陽子ビームを入射し、ビーム窓のモックアップ試験や材料照射試験を行うことを目的とする TEF-T の概念は、1990 年代終わり頃の大強度陽子加速器計画の検討[5.3.2-1)]の中で生まれた。その後、施設概念が具体化され、その結果が報告書[5.3.2-2)]にまとめられた。さらに JAEA の第 3 期中長期計画（2015～2021 年度）において「TEF-T の建設着手を目指す」とされたことを受け、施設設計が詳細化され、その結果が 539 ページに及ぶ技術設計書[5.3-7)]としてまとめられ、2017 年に出版された。本節では、この技術設計書に記載された TEF-T 基本設計の概要について述べる。

(1) TEF-T の目的

ADS を構成する機器の中でも、加速器のビームラインと核破砕ターゲットの間の境界をなす陽子ビーム入射窓は、大強度の陽子ビーム照射下に置かれ、陽子の通過に伴う発熱と陽子及び核破砕中性子による照射損傷を受ける上に、真空に保たれた加速管と LBE 運転圧力との圧力差による荷重を受ける。また、腐食性を有する LBE による腐食を受ける。このため、陽子ビーム入射窓の構造検討及び寿命予測を含む健全性の評価には、実用プラント運転条件に近い環境で取得した照射試験結果に基づく材料設計データベースを構築することが必要である。また、液体金属である LBE の取扱技術を確立する必要がある。以上の状況を踏まえ TEF-T では、(1) LBE 中での構造材料照射データの取得と核破砕ターゲットの工学的成立性の検証、(2) 施設の運用を通してシステム制御・運転技術の確立、及び (3) 放射化 LBE の取扱技術に関する経験の蓄積を目的とする。

Fig. 5.3.2-1 に、米国ロスアラモス国立研究所の加速器中性子源 LANSCE[5.3.2-3)]、スイス・ポールシェラー研究所の加速器中性子源 SINQ における STIP （SINQ Target Irradiation Program）[5.3.2-4～6)]および MEGAPIE（MEGAwatt PIlot Experiment）[5.3.2-7)]、ベルギー MYRRHA 計画[5.3.2-8)]における照射条件を、実用 ADS の照射条件とともに示す。STIP では照射量 20 dpa までのデータがあるが、照射温度が 400 ℃以下で、LBE 流動下のデータも少ない。MEGAPIE は唯一の LBE 流動下で行われた照射であるが、照射量は最大でも 7 dpa 程度、照射温度も 350 ℃程度と低い。また、MYRRHA では流動 LBE での照射となるが、照射温度 400 ℃以下、照射量 10 dpa 以下である。このように、過去に行われた照射および MYRRHA で行われる予定の照射は、照射温度が低い、照射量が少ない、流動 LBE 下ではないなどの理由により、実用 ADS の照射条件を満足しない。このため、ADS の照射環境下における LBE に対する材料の健全性評価には、腐食が顕著となる 450 ℃以上かつ流動する LBE 環境下において、様々な鋼種、酸素濃度に対する系統的な照射試験データの取得が極めて重要になる。

そこで TEF-T では、これまでに得られたデータと ADS プラント条件を繋ぐ Fig. 5.3.2-1 の破線で囲まれた領域、すなわち STIP データ、MEGAPIE データ、将来得られるであろう MYRRHA データと ADS 条件を繋ぐデータを系統的に取得することを目指す。特に、MEGAPIE 条件と ADS プラント条件を繋ぐ横線ハッチの長円で示した領域を重点領域とし、重点的にデータを取得する計画である。

(2) TEF-T の全体像

Fig. 5.3.2-2 に TEF-T の全体像を示す。建家は地上 2 階、地下 3 階構造であり、地下 2 階に LINAC より分岐された陽子ビームラインとトンネルが接続する。

地下 2 階の施設中央付近に、陽子ビームを受けるターゲットシステムが配置されている。ターゲットシステムは、ターゲット容器、真空ベッセル、溶融鉛ビスマス循環系、2 次冷却系、ターゲット台車等で構成される。ターゲットシステムを中心とする直径約 7 m の範囲がターゲットステーションであり、インナーベッセル、水冷遮へい体、鉄鋼製遮へい体等で構成される。ターゲットステーションの下流（東側）には、ターゲット容器等の放射化した機器を交換し、またターゲット容器から照射済みの試験板を取り出すためのホットセル（放射化機器取扱室）が配置されている。ホットセル内には、インセルクレーン、パワーマニピュレータ、照射試験板から試験片を切り出し照射後試験に供するための各種の照射後試験設備が設置されている。地下 1 階には気体廃棄物処理設備、地下 2 階には液体廃棄物のための排水設備、また地下 1 階等に固体廃棄物保管のためのスペースが設けられている。ターゲットステーションの北側には、中性子ビーム等を利用できる多目的利用室が配置されている。

LINAC 加速器と TEF-T 本体設備との間には、LINAC で加速された陽子ビームを LBE ターゲット等に輸送するためのビーム輸送系が設置されている。LINAC で分岐された陽子ビームは、TEF-T 建家に入るとすぐに、レーザ荷電変換法により TEF-P 向け 10 W ビームが切り出される。残りの 250 kW ビームはほぼ直進し、LBE ターゲットに入射する。その直前で陽子ビームの一部（例えば 1 Hz 程度）を分岐し、多目的利用のための第 2 ターゲットに入射する検討を進めている。ビーム輸送系には、これらに必要な電磁石、電源、ビームモニタ、真空機器、陽子ビーム窓、レーザ荷電変換装置等が設置されている。

建家には、冷却系設備、空調換気設備、揚重設備等の機械系設備、電源設備、非常用発電機、UPS 系、測定器専用系等の電気設備、ネットワーク設備、統括制御設備、機器保護システム、タイミングシステム、人員保護システム等の制御設備、放射線モニタや放射線管理区域への入退域設備等の放射線管理設備が設置されている。

Table 5.3.2-1 に TEF-T に入射する陽子ビームの諸元、Table 5.3.2-2 に陽子ビームを受ける LBE ターゲットの諸元を示す。

(3) 核特性評価

核特性解析は、鉛ビスマスターゲット及びその周辺機器の構造成立性及び健全性を評価するうえで基本となる主要な核特性を与える。ここでは 400 MeV、250 kW の陽子ビームが LBE ターゲットに入射することを条件として、LBE ターゲット及びその周辺機器に対する各種核特性値を評価した。具体的には、総発熱量、発熱密度分布、中性子照射場（中性子束・中性子エネルギースペクトル）、陽子照射場、吸収線量、放射線損傷量（弾き出し損傷量（dpa）、ヘリウムガス生成量、水素ガス生成量）、誘導放射能、崩壊熱である。

本評価では、J-PARC 等の加速器施設の核特性解析に実績のある粒子・重イオンモンテカル

ロ輸送計算コード PHITS[5.3.2-9] を用い、20 MeV 未満の中性子の相互作用については、核データライブラリ JENDL-4.0[5.3.2-10]を用いた。誘導放射能の計算には PHITS に付属の DCHAIN-SP2001[5.3.2-11]を使用した。以下、主な計算結果を示す。

まず初めに、照射施設としての TEF-T の性能にあたる、LBE ターゲットとその周辺の中性子束強度の垂直断面分布を Fig. 5.3.2-3 に示す。LBE 中における 400 MeV 陽子の飛程は約 15 cm であり、陽子ビームが左方向からターゲットに入射し、そこから深さ 15 cm までの中性子束が高く 10^{14} n/cm^2･s 以上に達している。また、ターゲット容器内に挿入して 5,000 時間照射した T91 製照射試験板（40 mm × 100 mm）の dpa、He 生成量および H 生成量分布を Fig. 5.3.2-4 に示す。それぞれ最大値で 11 dpa、900 appm He および 8,000 appm H であり、He/dpa 比は約 80 である。

次に、ターゲット容器等の設計に必要な LBE ターゲットとその周辺の核発熱量の垂直断面分布を Fig. 5.3.2-5 示す。やはり、陽子ビームがターゲットに入射して停止するまでの深さ 15 cm までの領域で発熱が特に高く、100 W/cm^3 以上に達している。出力 250 kW ビーム入射時の総発熱量は約 244 kW であり、そのうち約 80%にあたる 197 kW が LBE 循環系への熱負荷、残りが周辺機器への熱負荷となる。

(4) 本体設備

ターゲットシステム

TEF-T のターゲットシステムは、LBE を循環させたターゲット容器内に照射試験版（試験用材料）を装荷し、これに陽子ビームを入射して陽子及び核破砕反応によって発生した中性子を照射する装置である。ターゲットシステムを構成する主な機器は、ターゲット容器、バキュームベッセル、溶融鉛ビスマス循環設備（一次冷却系）、一次系冷却用加圧水循環設備（二次冷却系）およびターゲット台車である。

ターゲット容器の構造図を Fig. 5.3.2-6 に示す。容器内部には照射試験板（40 mm × 100 mm）計 8 枚が装荷されている。内径 150 mm の外筒と内径 105 mm の内筒の 2 重管構造で、外筒と内筒の間隙を通って LBE がビーム窓部に流入し、そこで反転して内筒内を流れ下る構造である。陽子ビームが入射するビーム窓はビーム入射時の熱的影響はもちろんのこと、照射による材料の脆化、鋼材への腐食性が高い LBE の流動に伴うエロージョン／コロージョンによる損耗など、非常に厳しい条件にさらされるため、ビーム窓の成立性が装置性能及び健全性確保に極めて重要である。このため、ターゲット容器全体の LBE 熱流動解析や構造強度解析を行い、ビーム窓の健全性が確保出来る容器構造を決定した [5.3.2-12]。ターゲットの諸元は Table 5.3.2-2 のとおりであり、これに加え LBE の流量は定格 85 L/min、最大 120 L/min、容器の設計圧力は 0.5 MPa である。

Fig. 5.3.2-7 にバキュームベッセルの構造図を示す。ターゲット容器をバキュームベッセル内に導入し、バキュームベッセル内を減圧した状態でビーム運転を行う。ターゲット周辺を真空に近い環境下に置き、施設内で最も高い負圧環境下に置くことで、万一のターゲット破損に伴う放射性物質の拡散を抑制する機能を有する。バキュームベッセル内を減圧することにより

ターゲット近傍の空気を排除し、空気の放射化に伴うターゲット容器の腐食を抑制することも、ターゲットベッセルの重要な役割である。

Fig. 5.3.2-8 にターゲット台車、台車先端に取り付けたターゲット容器、および台車に搭載した溶融鉛ビスマス循環設備を示す。溶融鉛ビスマス循環設備は、①ターゲット容器、②主要配管、③ターゲット容器に核破砕ターゲット材及び冷却材（LBE）を循環供給する循環ポンプ、④ターゲット容器へ流入する LBE の温度調整・管理を行うモジュールヒータ（加熱器）、⑤陽子ビーム入射による系統内への入熱を除去する熱交換器、⑥LBE の温度変化による圧力変動を抑制し、体積変動を吸収する膨張タンク、⑦運転停止時や系統漏えい発生時等の緊急ドレンの際に全 LBE を収容するドレンタンク、⑧系統監視機器を含めたその他附帯設備で構成される

一次系冷却用加圧水循環設備（二次冷却系統）は、熱交換器を介して一次冷却系統側からターゲット容器の発熱分である約 200 kW の排熱を受け取り、二次冷却系の冷却器を用い、三次冷却系設備へ排熱する。

照射後試験設備

TEF-T では、陽子ビーム及び核破砕中性子によって照射されたターゲット容器や陽子ビーム窓を解体し、試験片を作製する。これらの試験片は TEF-T 内および原子力科学研究所内のホットラボに輸送して照射後試験を行い、材料の照射後試験データを取得する。また、照射量を増やすため、一部の照射試験板については、新しいターゲットに再装荷・組立てて再照射を行う。各機器の取外し、解体から照射後試験への概略フローを Fig. 5.3.2-9 に示す。

照射後試験を行う対象は、ターゲット内に設置された照射試験板とターゲット容器先端のビーム入射部、並びにターゲットの前方に設置される陽子ビーム窓である。照射終了後、各機器を取外し、解体して照射後試験対象部の切り出し、LBE の分離・洗浄と試験片製作を行う。また、再照射を実施する場合は試験板ホルダを再装荷したターゲットを溶接により組立てる。製作された試験片は、番号刻印、写真撮影、重量、寸法及び放射能測定などの工程を経て、RI 登録の手続き終了後、輸送容器に収納して廃棄物安全試験施設（WASTEF）、燃料試験施設（RFEF）など照射後試験を実施する施設へ輸送する。また、これらの工程で発生する放射性廃棄物の処理、保管と搬出などの作業も行う。照射後試験設備は、これらの作業をホットセル（放射化機器取扱室、試料作製室及び小型セル）内で遠隔操作により行うための設備である。

ターゲットステーション

ターゲットステーションの概念を平面図（Fig. 5.3.2-10）及び垂直断面図（Fig. 5.3.2-11）に示す。TEF-T の中心には LBE ターゲット、バキュームベッセルとこれらを搭載したターゲット台車等のターゲットシステムが置かれる。ターゲットステーションは、LBE ターゲットを中心とするターゲットシステムの外側の機器であり、インナーベッセルとその内部の遮へい体、アウターベッセルとその内部の鉄鋼製遮へいブロック、アウターベッセルを取り囲むコンクリート製の生体遮へい体と上部の天井ハッチをその範囲とする。

ターゲットステーションのベースライナは TEF-T 地下 2 階のレベルに設置される。その上

に鉛ビスマスターゲット（第 1 ターゲット）と多目的利用ターゲット（第 2 ターゲット）を配置し、それぞれを独立したインナーベッセルで囲み、さらに両ターゲットの周囲をアウターベッセルで囲む構造である。各ターゲットの周囲には鉄遮へい体が設置される。アウターベッセルの周囲にはコンクリート遮へい体（建家構造と一体）が設置される。また、陽子ビームを各ターゲットへ入射するためのビーム用真空ダクトがビームラインレベルに設置される。さらに、ビームラインの最下流に陽子ビーム窓がそれぞれ設置される。アウターベッセル内には、中性子ビーム利用実験のため中性子シャッタが設置される。アウターベッセルの周辺には、放射化機器取扱室、L-TEF BT トンネル、多目的利用室及び中性子照射室が配置される。第 1 ターゲット及び第 2 ターゲットは、それぞれターゲット台車の先端に配置され、メンテナンス時にはそれぞれのメンテナンス用のホットセルへ移動できる構造である。

廃棄物処理設備

大強度陽子ビームを受け入れるターゲット施設では、核反応により多量の放射性物質が生成される。施設の安全かつ安定した運転のためには、生成した放射性物質を安全かつ確実に処理することが求められ、気体廃棄物、液体廃棄物、固体廃棄物の各処理設備を設置する。

TEF-T では、陽子ビームと LBE との核破砕反応や核破砕中性子による放射化などで様々な放射性核種が生成される。これらの核種のうち、ガス状の核種（トリチウム、希ガス）並びに揮発性の高い核種（ヨウ素、水銀、ポロニウム）は、LBE 循環系のカバーガス（アルゴン）へ移行する。これらの放射性ガスの量は非常に多く、TEF-T の排気量による希釈だけでは基準となる放出濃度を下回ることができない恐れがある。その他、ヘリウムガス系や冷却水系の気相にはトリチウムが含まれ、放射化機器取扱室の局所排気装置からの排気にはターゲット解体時の放射化した粉塵や揮発性の高い放射性核種が含まれる。気体廃棄物処理設備は、これら放射性核種を含むガスの回収、除去並びにタンクでの減衰等によって放射能濃度をスタックから放出できる程度まで低減する設備である。

液体廃棄物処理系は、放射化した冷却水の貯留・排水を行う設備である。排出される液体の放射能レベルに応じて低レベル系及び高レベル系の排水設備に分けられる。低レベル系排水の放射性物質濃度は一般的に極めて低いレベルとなるため、低レベル用 DP タンクが満水になった時点で放射線を計測し、基準値以下であれば一般排水溝より排水を行う。高レベル系排水は高レベル用 DP タンクに貯留・保管する。ここから一部を別の高レベル用 DP タンクに移送し、放射性物質濃度が規定の 1,200 Bq/cm^3 以下に下がるまで希釈した後、タンクローリーで処理場に引き渡す。

固体廃棄物保管設備は放射化した機器類を保管するための設備であり、固体廃棄物保管庫、放射化機器取扱室一時保管ピットおよび試料作製室一時保管ピットで構成される。

多目的利用設備

TEF-T は ADS による核変換のための材料照射を第一の目的とした施設であるが、これとともに、LBE ターゲットで発生する高速・高エネルギー中性子を有効利用し、また陽子ビームの一部を分岐して利用し、広く基礎科学および応用研究に供することを目的として、LBE ターゲット

の周囲に多目的利用設備として気送管設備、中性子ビームポートおよび ISOL（Isotope Separator On-Line）設備を併設することを検討した。

気送管設備は、医療用 RI 製造、材料照射及び放射化分析の研究開発に資するため、ターゲット付近へ試料を搬送して中性子照射を行い、照射後に試料を回収するものである。試料はターゲット中心から 55 cm の位置に搬送され、その場の全中性子束は 7×10^{12} n/cm²･s である。

中性子ビームポートは主に半導体デバイスのソフトエラー試験を目的にターゲットで発生した高エネルギー中性子をビーム状に引き出すポートである。照射位置におけるビーム寸法は直径 200 mm、中性子束は 2.1×10^{7} n/cm²･s であり、世界最高強度のソフトエラー試験環境になる。

ISOL 設備は、陽子ビームの一部を切り分けて標的に入射することにより短寿命不安定核を生成し、これを核物理、核化学、材料物性分野の研究に利用するための設備である。

(5) 陽子ビーム輸送系

陽子ビーム輸送系は、J-PARC の LINAC で加速された 400 MeV の H^-ビームを取り出し、TEF-T 内に設置された鉛ビスマスターゲット、ISOL 用の第 2 ターゲット及び TEF-P 内に設置された炉心に安定に陽子ビームを輸送する系統である。TEF-T へはピーク電流 50 mA、パルス幅 500 μs、出力 250 kW の H^-ビームを、TEF-P へはピーク電流 50 mA、パルス幅 5 ns、最大出力 10 W の H^+ビームを輸送する。

陽子ビーム輸送系の全体像を Fig. 5.3.2-12 に示す。LINAC の出口から TEF-T までの長さは 132 m であり、TEF-P まではレーザ荷電変換部から 174 m である。TEF-T へのビーム輸送に必要な四極電磁石、偏向電磁石等の電磁石は計 74 台である。また、ビーム強度、プロファイル等を測定するための各種ビームモニタ、ビームダクト内の真空を維持する各種真空機器、ビーム調整時に使用する 3 台のビームダンプ等で構成される。

陽子ビーム輸送系の末端、バキュームベッセルとの境界には、陽子ビーム輸送系側の高真空を維持するために陽子ビーム窓（Fig. 5.3.2-13）を設置する。陽子ビーム窓のビームが通過する部分は厚さ 1.5 mm のアルミニウム板を 2 枚用いており、その間の 3 mm の空隙に冷却水を流して冷却する。陽子ビーム窓は遠隔操作で交換可能であり、ピローシールと呼ばれる薄い金属をフランジに押し付けて気密を確保する構造を有する。窓部には大強度陽子ビームが通過することから、温度解析及び応力解析を行って構造を決定した。

現在、LINAC では 3 GeV シンクロトロン（RCS）に陽子ビームを供給するために 25 Hz のパルス運転が行われているが、TEF にビームを輸送する際には LINAC を 50 Hz に増強し、そのうちの 25 Hz を RCS に、残りの 25 Hz を TEF に輸送する。このため、50 Hz のパルス陽子ビームを交互に TEF 向けと RCS 向けに振り分けるパルス偏向電磁石が必要である。パルス偏向電磁石の試作については、5.3.2.2(1)で述べる。LINAC は当初から 50 Hz 化を見込んで設計されているが、実際の 50 Hz 化にあたっては電源や冷却水系統の増強や各種機器の調整・試験が必要となる。

TEF-P では安定で微弱な陽子ビーム（最大 10 W）が必要になるため、大強度 H^-ビーム（250 kW）の 40 ppm に相当する陽子ビームを安定かつ安全に取り出す技術が必要とされ、物理的に

大強度 H^- ビームが TEF-P へ入射することを防止する機能が必要となる。この取り出しには、レーザ荷電変換技術を適用し、その詳細は 5.3.1.3(3)で既に述べた。

(6) 建家関連

TEF-T は Fig. 5.3.2-2 に示すとおり、海面レベル TP+15.0 m を基準として地上 2 階、地下 3 階構造の施設であり、地下 2 階に LINAC より分岐された陽子ビームライントンネルが接続され、施設の中央部分に設置したターゲットステーションに陽子ビームを導入する構造となっている。TEF-T 建家は東西方向最大 110 m、南北方向最大 42 m、高さ方向地下部 20 m、地上部 12 m、建家面積約 4,600 m^2、延床面積約 13,000 m^2 の鉄筋コンクリート製の構造である。建家のほぼ中心にターゲットステーションを配し、ターゲットステーションより西側にビームライントンネル、東側にはターゲットステーション機器のメンテナンス用の放射化機器取扱室（ホットセル）やその他機械室等を配する。

TEF-T 建家は放射性物質を取扱う施設として建設されるため、放射性物質の閉じ込め及び放射線の遮へい機能が重要であり、施設外の一般公衆および放射線作業従事者に対し、法令に規定された線量限度以上の放射線被ばくを与えない設計となっている。放射性物質による汚染の可能性及び放射線レベルに応じて、施設内に 2 種類の放射線管理区域を設定し、管理基準を設けることで、放射性物質の閉じ込め及び被ばくの低減を図る。管理区域内の圧力を外部の圧力に対して低く設定（負圧管理）することで、放射性物質の閉じ込めを図る。負圧管理値の設定は、放射性物質を内包する装置、ホットセル等を中心として段階的に区域を設定し、内側、また汚染レベルの高いエリアになるほど圧力を低く保持することにより施設外部への汚染の拡大を防止する。放射線レベルに関しては、法令等の基準を満たすよう、建家構造等に適切な遮へい能力を持たせることとする。

TEF-T の運転に必要な建家機械系設備として、冷却設備、ヘリウム循環設備、空調換気設備、揚重設備を設置する。揚重設備には、遠隔操作作業のためにホットセルに設置する天井走行型パワーマニピュレータシステムおよびマスタースレーブマニピュレータ（MSM）が含まれる。また、電気系設備、制御設備、放射線安全管理設備を設置する。制御設備には、J-PARC と共通の機器保護システム（Machine Protection System; MPS）、人員安全保護システム（Personnel Protection System; PPS）およびターゲット保護システム（Target Protection System; TPS）が含まれる。

(7) 安全性評価

TEF-T の安全上の基本方針は以下のとおりである。

- 通常運転時において、施設外の一般公衆および放射線作業従事者に対し、法令に規定された線量限度以上の放射線被ばくを与えないこと。
- 周辺の一般公衆等の安全性を確保するため、「放射性同位体元素等による放射線障害の防止に関する法律」をはじめ、関連法令の要求を満足する施設設計を実施すること。
- 施設および設備は、設計、製作、試験、検査を通じて高い信頼性を確保し、運転員の誤操作、機器の誤作動等による異常に対しては警報により運転員が対処可能とするとともに、対処

できない場合においても安全保護回路により重大な事故に発展しないように設計すること。
- 万一、事故が発生しても施設周辺の一般公衆の安全を十分に確保すること。
- 施設内に、安全避難通路、避難用照明、通信連絡設備を設け、異常時の安全確保を図ること。

TEF-T 主要設備の各機器について、故障影響評価（FMEA）を実施した。最も大きい影響を与える事象は、250 kW 出力ビーム運転時に溶融鉛ビスマス循環設備から放射化した多量の LBE 合金が系外に漏えいする事象であることが分かった。本事象が与える影響は、「有意量の放射性物質を環境に放出する結果に至るもの」および「相当高価な系統・機器の損傷を引き起こすもの。あるいは、運転再開までに 1 週間以上要するもの」に相当する影響「大」に分類された。

本事象が発生し、放射性物質が排気筒から外部へ放出された場合の事業所境界における公衆が受ける被ばく線量について評価した。その詳細は参考資料 5.3.2-13)にまとめられている。その結論を述べると、様々な保守的な想定をおいたものの、事業所境界における被ばく線量は約 660 μSv であり、その大部分は LBE 合金から核破砕生成物として発生する水銀、希ガスおよびヨウ素による寄与であることがわかった。被ばく量の合計は一般公衆が受ける年間被ばく量よりも低い値であり、本施設が放射性物質の漏えいに対して十分な安全裕度を持つことが示された。

最大 250 kW の陽子ビームが入射する LBE ターゲットは、本施設における最も強力な放射線源であり、この他に多目的利用に使用する第 2 ターゲット、ビーム調整用ダンプ及び電磁石等も放射線の発生源となる。したがって施設を安全に利用するためにはこれらの発生源を適切な遮へい材を用いて遮へいし、作業者の被ばく線量を法令等が定める基準値以下に抑えることが重要である。そこで、施設全体の遮へい性能が要求される部位について、主に PHITS コードを用いて遮へい評価を行った。設計基準には、障防法（現 RI 法）に基づき J-PARC が定めた線量基準値を用いた。評価を行ったのは、鉛ビスマスターゲットを取り囲む生体遮へい体、放射化したターゲット容器が置かれた放射化機器取扱室の遮へい壁、陽子ビーム輸送系周りの遮へい壁、陽子ビームダンプ周りの遮へい壁、スカイシャインによる敷地境界線量等である。これらの遮へい評価結果に従い、TEF-T の全ての遮へい壁厚さを決定した。

5.3.2.2　TEF-T の要素技術開発

TEF-T では LBE 標的に陽子ビームを入射することから、大型 LBE 試験ループを用いた LBE 循環試験や LBE 用の各種センサの開発など、様々な LBE 標的に関連した要素技術開発が行われている。これら LBE に係る要素技術については 4.2.4 節で記述されているので、そちらを参照されたい。本節では、TEF-T に係る LBE 関連以外の要素技術開発について述べる。

(1) パルス偏向電磁石

LINAC を 50 Hz に増強後、50 Hz のパルス陽子ビームを交互に TEF 向け 25 Hz と RCS 向け 25 Hz に振り分けるパルス偏向電磁石である。TEF の成立性に関わる重要な機器であるため、本電磁石については設計のみならず、試作を行って性能測定を行った。Fig. 5.3.2-14 に全体像を示す。空色部分の電磁石本体に励磁と消磁を繰り返すことにより、それぞれ TEF 向け

と RCS 向けのパルスを振り分ける。ただし、消磁した場合でも残留磁場により完全に消磁をすることは出来ず、ビーム軌道を歪めてしまう。そこで電磁石本体の前後に補正電磁石を付加し、残留磁場の影響を補正することとした。

本電磁石製作後 DC 励磁を行い、ホールプローブを用いて磁場測定を行った。電流と磁場強度の関係では、飽和等の兆候はなく良い直線性が確認された。通電後の残留磁場については、補正電磁石により電磁石全体で積分磁場をゼロにすることが達成できることが確認された。また、通電時の磁場分布について計算値と実測値が非常に良く一致したことから、磁場計算が高い精度を有することが確認された。

(2) LBE ターゲット遠隔保守技術開発

LBE ターゲット容器は、高温の LBE の循環による腐食に加え、材料照射を目的として電流密度を高めた陽子ビームを照射するため、1 年間毎の交換を想定している。交換時には、最も放射化している LBE 自体はドレンタンクに収容されるものの、系統内に僅かに残留する上、ターゲット容器及び容器周辺部が放射化しているため、ターゲット容器の交換・保守作業には遠隔操作が必須となる。しかしながら、同様に定期交換を実施する J-PARC の水銀ターゲットで採用する遠隔操作用フランジを介した接続では、接続ボルト・ナットの熱による固着が発生するため、高温で運転する LBE ターゲットには採用できないことが確認された。そこで、配管の切断・溶接によるターゲットの完全遠隔操作での交換手法を考案し、実用に向けたモックアップ試験を実施した。なお、手法の考案にあたり、可能な限り既存技術を活用することにより、技術的不確定性を低減するように配慮した。

水平駆動する台車に搭載した LBE ターゲット概念図を Fig. 5.3.2-15 に示す。ターゲット容器は運転時には台車の遮へい体先端部に懸架・固定されており、外側はバキュームベッセル（VV）に覆われている。具体的なターゲットの脱着手順は、技術設計書[5.3-7]に詳細に記載しているが、おおよそ以下の手順に沿って実施する。

1. ターゲット台車を照射位置からメンテナンス位置へ移動する（台車が自走）
2. VV 及び配管切断部位の生体遮へい体を取り外す
3. ターゲットに繋がる一次系配管を切断する
4. ターゲットに繋がる計測制御用ケーブルを取り外した後、ターゲットを取り外す
5. 新規ターゲット接続位置の一次系配管内面を清掃する
6. 新規ターゲットを台車に懸架・固定する
7. 円周自動溶接機で一次系配管と新規ターゲットを溶接接続する
8. 溶接部の非破壊検査後、気密検査を行い、溶接品質を確認する
9. 接続確認後、遮へい体・VV 等を復元し、台車を照射位置に移動する

(3) ターゲット交換要素技術開発

(a)ターゲット容器配管切断用ジグ

ターゲット容器は 40A Sch20S の配管二本（LBE 入口配管及び出口配管）で一次系に接続

される。これらの配管の切断は、市販のパイプカッタを MSM 用に加工したジグを用いて実施する。市販のパイプカッタに小加工を施すだけで利用できるため、比較的安価かつ容易に調達が可能である。パイプカッタの特長として、切断面が平滑なため溶接に際して開先加工が不要となること、切り子がほぼ発生せず切り子の飛散による作業エリアの汚染を大幅に抑制できること、電気・水などの供給が不要であることなどが挙げられ、本作業手順に適した工具であると考えている。また、予備的な試験から数回の使用であれば切断用の回転刃の交換が不要であることがわかっており、交換ごとに新品のカッターを用意することで、カッターの除染や汚染された刃の交換といった安全性や作業効率の低下を招く手順を省略できることも特長と言える。Fig. 5.3.2-16 に MSM 用に加工を施したパイプカッタの外観を示す。

(b)ターゲット容器–配管接続用円周溶接機

ターゲットと配管のフランジ接続は難しいため、溶接による接続を実施する。溶接には、市販の円周自動溶接機を使用する。選定した溶接機は、母材を溶解して接続するアーク溶接方式であり、溶加材を使用しないため、LBE による溶接部の腐食は起きにくいと考えられる。溶接機は、溶接ヘッドとコントローラから構成され、ケーブルにより接続して使用する。このため、放射線に弱いコントローラを作業員の作業エリアに配置することが可能であり、操作性、耐久性を高めることができる。40A Sch20S の SUS 配管の溶接を実施したところ、適切なパラメータを設定することにより、良好な溶接を実施できることが確認された。

(c) 遠隔溶接検査装置

ターゲット容器を溶接後は、溶接部の非破壊検査を実施する必要がある。当該検査も遠隔操作で実施する必要があるため、遠隔かつ非破壊で実施可能な手法のうち、40A Sch20S の肉厚に適用可能な手法として、放射線透過試験（RT: Radiographic Testing）法を採用した。同様の方法に超音波探傷試験（UT: Ultrasonic Testing）法があるが、使用する配管の肉厚では、配管の内外面からの反射波の弁別が困難なためである。試験に際しては、発信側となる放射線源と受信機を常に適切に配置し、周方向に検査を実施する必要があるため、配管外周に沿って機器を回転して検査を行うジグに搭載した。試験的に配管に生成した欠陥を RT 試験装置で検出した例を Fig. 5.3.2-17 に、溶接検査ジグを含む遠隔溶接検査装置を Fig. 5.3.2-18 に示す。

(d) 予熱用パッケージヒータ

LBE の融点は 125 ℃であり、液相に保つためには予熱を行う必要がある。通常はシースヒータを配管に直接巻き付けて溶接することで配管部の予熱を行うが、遠隔交換部でヒータの着脱を遠隔操作で実施することは困難である。そこで、高速増殖原型炉もんじゅで採用されたパッケージヒータを応用した。パッケージヒータは、断熱材を充填した同心円筒容器の内側にシースヒータを固定してパッケージ化し、配管を挟み込むことで予熱系を簡易に施工で可能なシステムである。ただし、もんじゅでは、施工性向上のために開発されており、交換は想定されていなかった。そこで、MSM の操作で繰り返し脱着が可能なパッケージヒータを開発した。

これをターゲット交換部の配管に装着することで、容易に予熱システムを取り扱うことを可能にした。

(4) 遠隔溶接モックアップ試験

前節で示した要素機器を搭載し、基本動作の確認と課題の摘出を実施するため、可動台車上に設置されたターゲット一次系配管部を模擬したモックアップ試験装置 RHYTON（Remote Handling sYstem for Target exchange OperatioN）を製作し、試験を実施した。RHYTON の外観を Fig. 5.3.2-19 に示す。試験装置及び遮蔽窓を含む MSM の配置は建家配置図に準拠している。

RHYTON には、パイプカッタ及び円周溶接機を、交換を実施する切断面に設置するための設置ジグが搭載されており、ジグに配管を固定した後、パイプカッタで配管を切断して使用済みターゲットを離断し、新ターゲット設置後にジグを 180 度水平回転することでカッターと溶接機と入れ替えて接続作業ができる構造を設けた。

試験装置上に設置された仮想 LBE 配管を用い、切断・溶接・検査の動作を模擬的に複数回実施し、基本動作が遠隔操作により実施可能であることを確認するとともに、実施の際に必要となるカメラシステムの配置などについて検討した。今後、試験を通して得られた改善点を適宜反映し、より安全かつ確実にターゲット交換が可能なシステムへと性能を向上していく。

参考文献

5.3.2-1) 日本原子力研究所・高エネルギー加速器研究機構共同推進チーム, “大強度陽子加速器計画”, JAERI-Tech 2000-003 (2000), 99p.

5.3.2-2) 佐々敏信, 他, “核変換実施設の概念検討　(2) ADSターゲット試施設の概念検討”, JAERI-Tech 2005-021 (2005), 114p.

5.3.2-3) S. A. Maloy, et al., “The accelerator production of tritium materials test program”, Nucl. Technol., 132, (2000) pp. 103-114.

5.3.2-4) Y. Dai, et al., “Status of the first irradiation experiment, STIP-I”, J. Nucl. Mater., 296, (2001) pp. 43-53.

5.3.2-5) Y. Dai, et al., “The second SINQ target irradiation program, STIP-II”, J. Nucl. Mater., 343, (2005) pp. 33-44.

5.3.2-6) Y. Dai, et al., “The fourth SINQ Target Irradiation Program, STIP-IV”, J. Nucl. Mater., 431, (2012) pp. 2-9.

5.3.2-7) W. Wagner, et al., “MEGAPIE at SINQ – The first liquid metal target driven by a megawatt class proton beam”, J. Nucl. Mater., 377, (2008) pp. 12-16.

5.3.2-8) H. Abderrahim, et al., “The MYRRHA ADS programme in Belgium: A multi-national demonstration programme for incineration of spent nuclear fuel wastes”, Proc. 1st Workshop on Technology and Components of Accelerator-driven Systems (TCADS-1), (2011) pp. 33-42.

5.3.2-9) T. Sato, K. Niita, N. Matsuda, S. Hashimoto, Y. Iwamoto, S. Noda, T. Ogawa, H.

Iwase, H. Nakashima, T. Fukahori, K. Okumura, T. Kai, S. Chiba, T. Furuta and L. Sihver, “Particle and Heavy Ion Transport Code System PHITS, Version 2.52”, J. Nucl. Sci. Technol., 50(9), (2013) pp. 913-923.

5.3.2-10) K. Shibata, O. Iwamoto, T. Nakagawa, N. Iwamoto, A. Ichihara, S. Kunieda, S. Chiba, K. Furutaka, N. Otuka, T. Ohsawa, T. Murata, H. Matsunobu, A. Zukeran, S. Kamada, and J. Katakura, “JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering”, J. Nucl. Sci. Technol., 48(1), (2011) pp. 1-30.

5.3.2-11) 甲斐哲也, 他, “DCHAIN-SP 2001: 高エネルギー粒子誘導放射能計算コード”, JAERI-Data/Code 2001-016 (2001), 82p.

5.3.2-12) H. Obayashi, H. Takei, T. Wan, et al., “TEF Beam Window Design and Evaluation of Structural Integrity”, Journal of the Physical Society of Japan (2014).

5.3.2-13) 岩元大樹, 前川藤夫, 松田洋樹, 明午伸一郎, “J-PARC 核変換実験施設・ADS ターゲット試験施設における鉛ビスマス漏洩事象時の影響評価”, JAEA-Technology 2017-029 (2017), 39p.

Table 5.3.2-1 TEF-T に入射する陽子ビームの諸元

ビーム入射方向	水平入射
エネルギー / 電流	400 MeV / 0.625 mA
出力	250 kW
周波数	25 Hz
パルス幅	約 500 μs
ビーム形状	ガウス分布（半値幅 4 cm 程度）
ピーク電流密度	最大 30 μA/cm^2

Table 5.3.2-2 陽子ビームを受ける LBE ターゲットの諸元

ターゲット材料	LBE（鉛ビスマス共晶合金）
構造	二重管型
寸法	内管径 105 mm、外管径 150 mm、全長 800 mm 肉厚 2 mm（ビーム入射部）～5 mm（胴部）
使用温度	250 ℃～500 ℃（鋼材）
運転温度	250 ℃～450 ℃（LBE）
想定寿命	5,000 hours/year 又は 10 dpa
構造材（450℃以下）	SUS316L
構造材（450℃以上）	T91（改良 9Cr-1Mo 鋼）
カバーガス	アルゴンガス
二次冷却系	加圧水

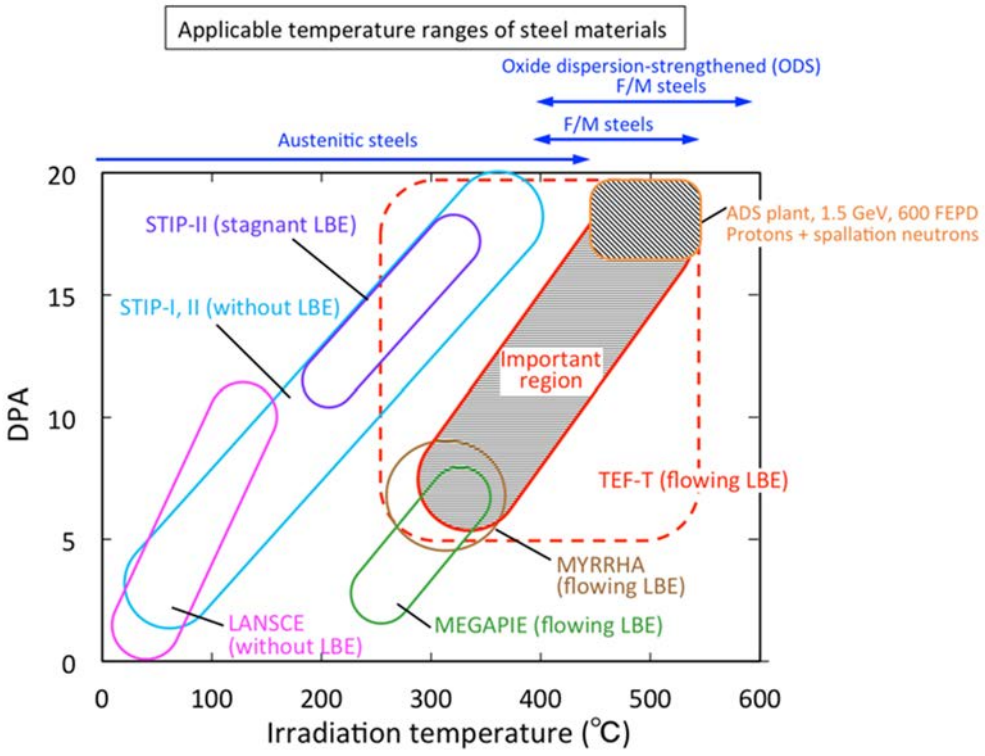


Fig. 5.3.2-1 照射温度-dpa 2 次元図における、利用可能な核破砕環境での材料照射データの範囲と、ADS プラント、MYRRHA および TEF-T の照射条件

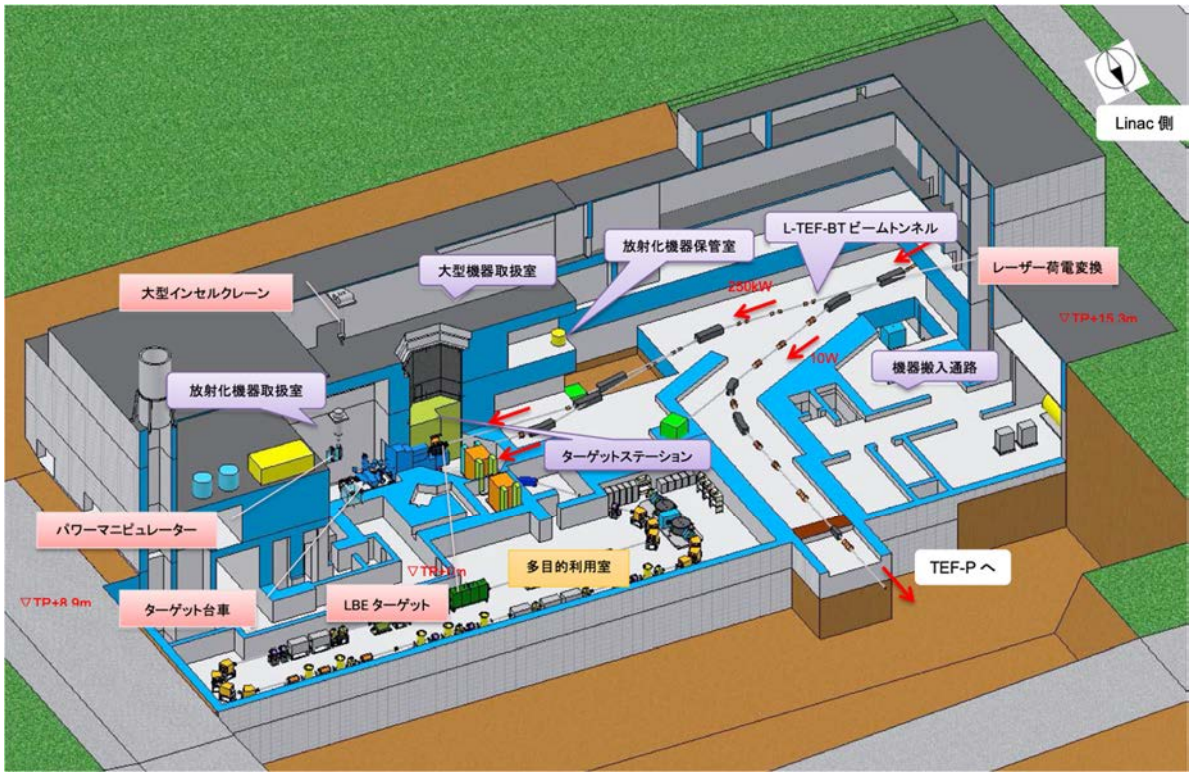


Fig. 5.3.2-2 TEF-T の全体像

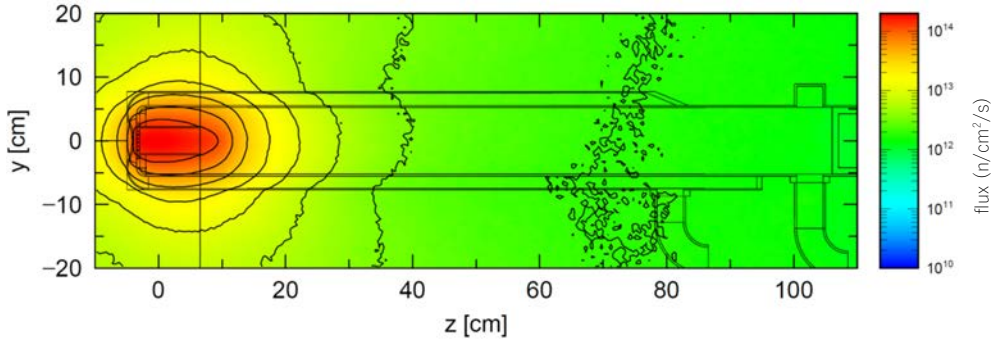


Fig. 5.3.2-3 LBE ターゲットとその周辺の中性子束強度の垂直断面分布

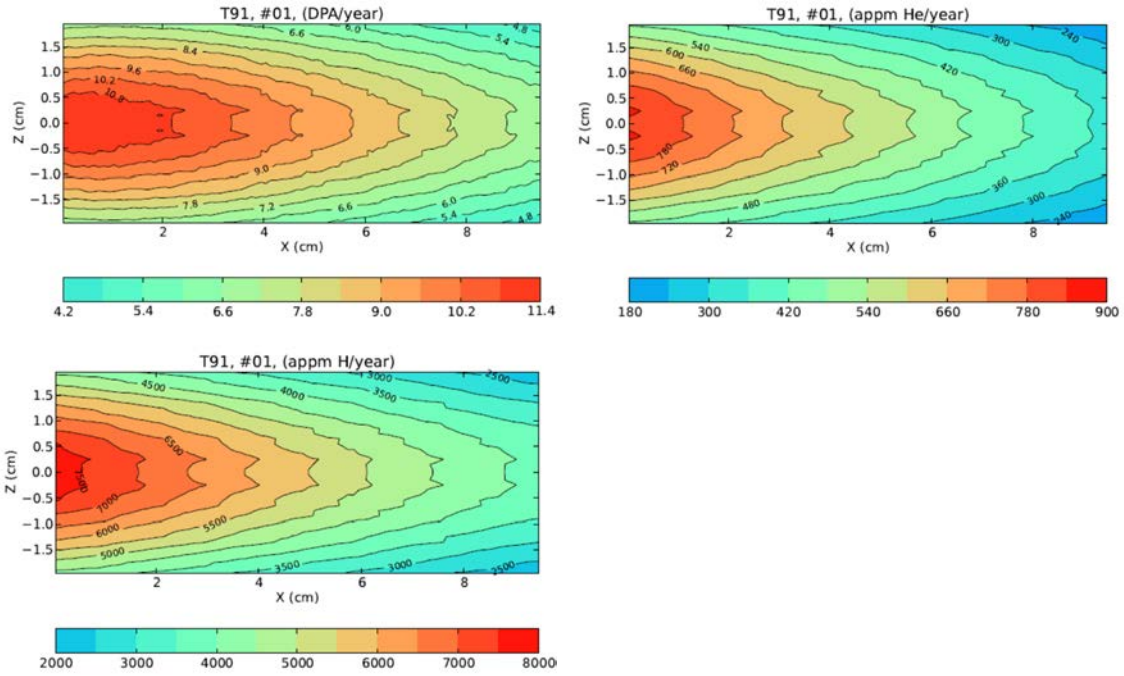


Fig. 5.3.2-4 5,000 時間照射した T91 製照射試験板の dpa、He 生成量および H 生成量分布

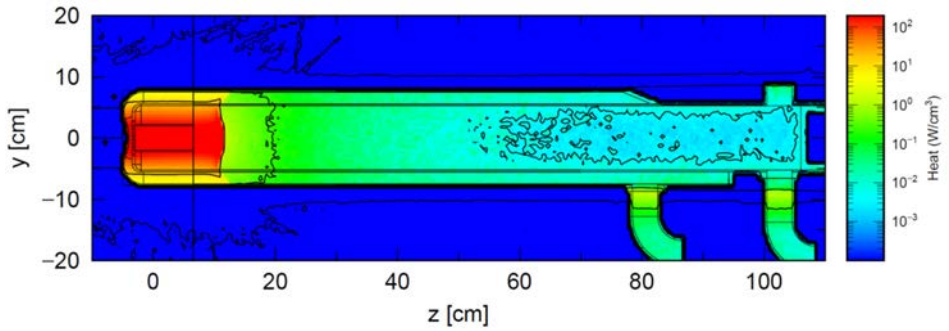


Fig. 5.3.2-5 LBE ターゲットとその周辺の核発熱量の垂直断面分布

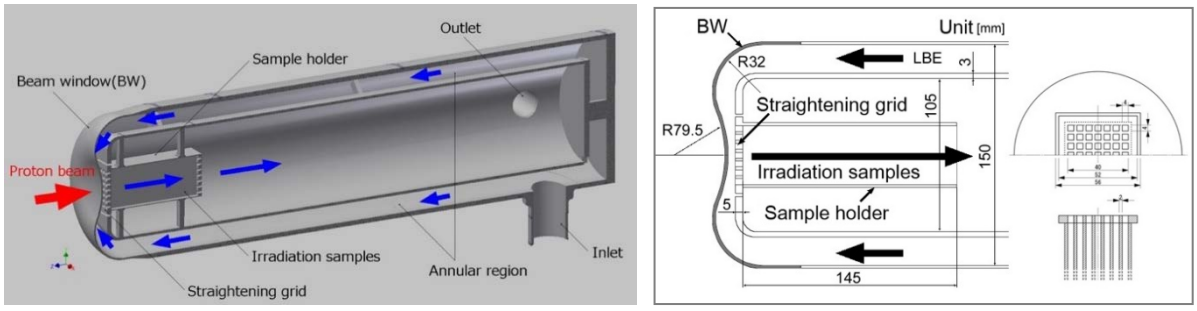


Fig. 5.3.2-6 ターゲット容器の構造図

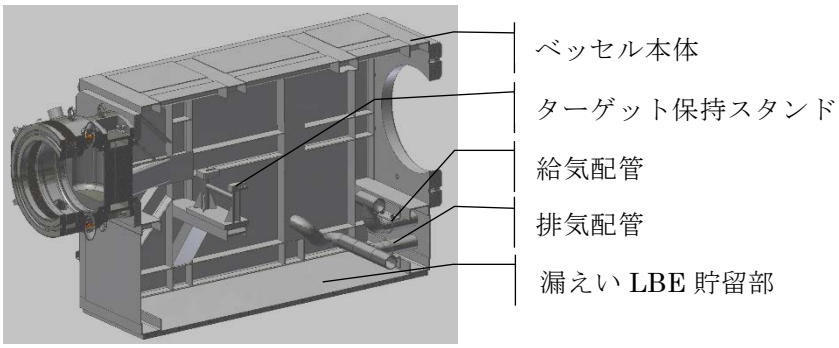


Fig. 5.3.2-7 バキュームベッセルの構造図

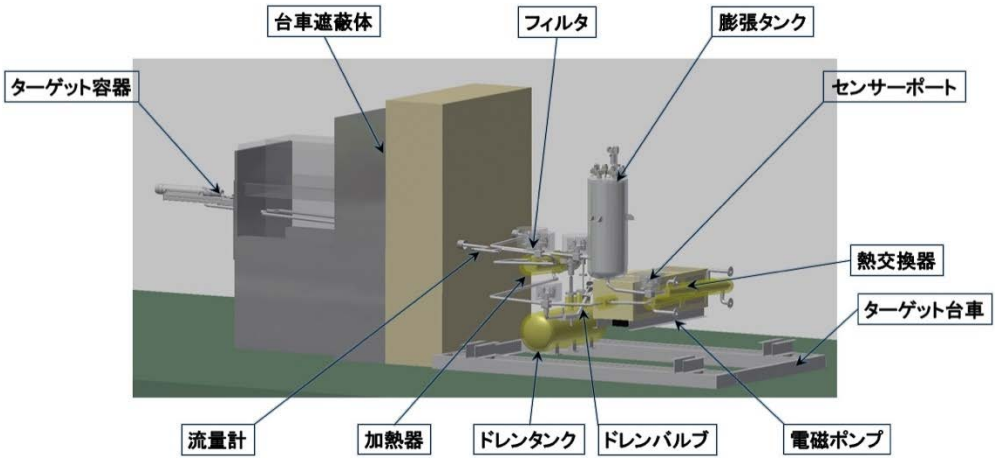


Fig. 5.3.2-8 ターゲット台車、台車先端に取り付けたターゲット容器、および台車に搭載した溶融鉛ビスマス循環設備

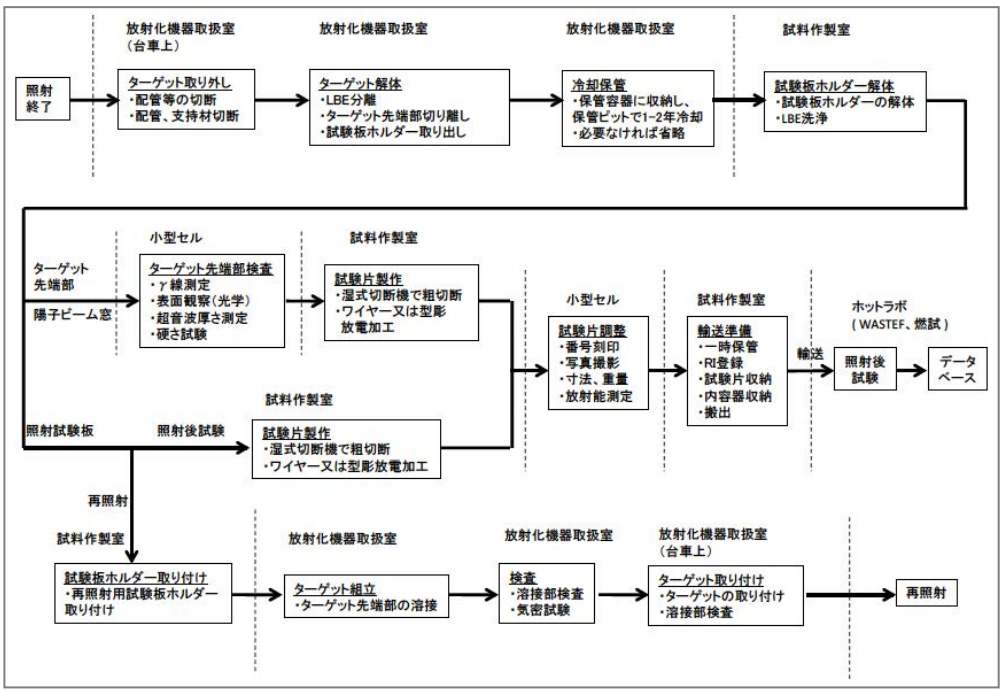


Fig. 5.3.2-9 照射後試験の概略フロー

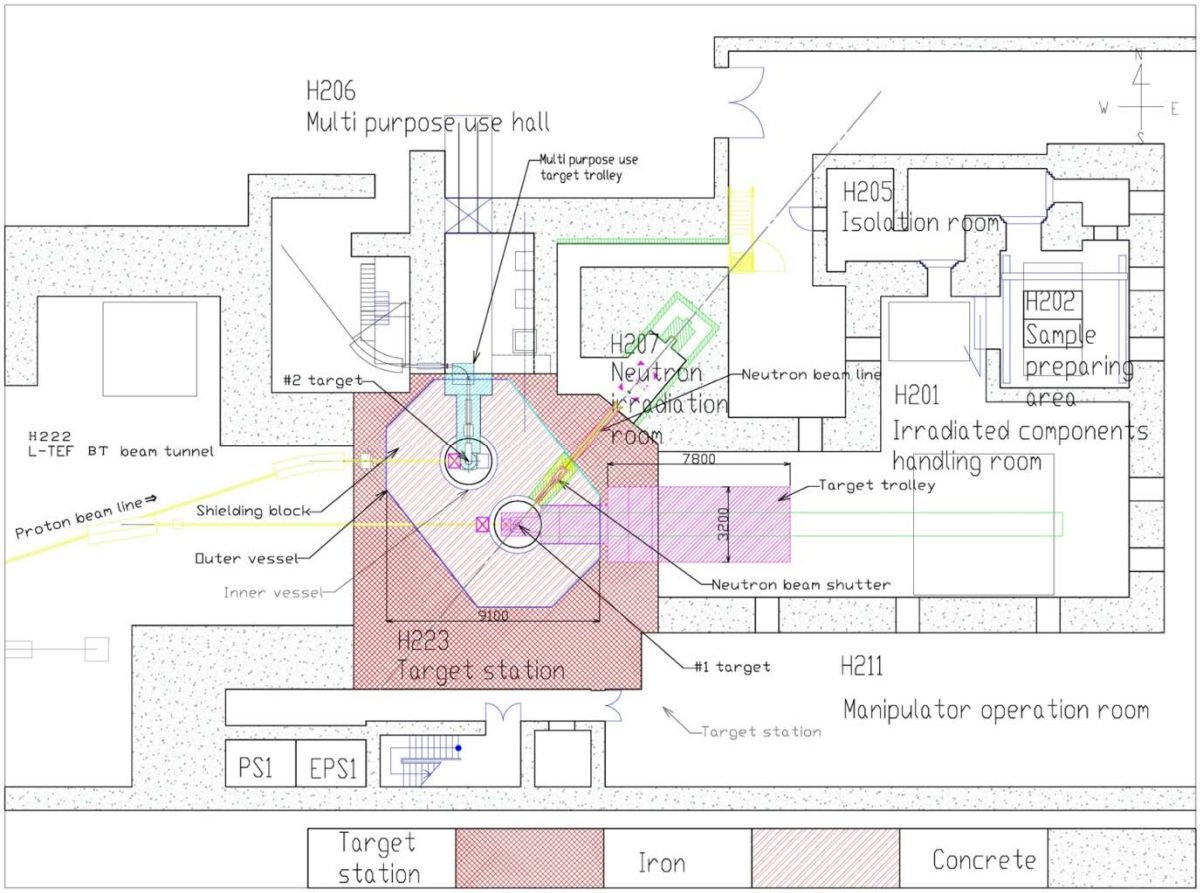


Fig. 5.3.2-10 ターゲットステーション概念の平面図

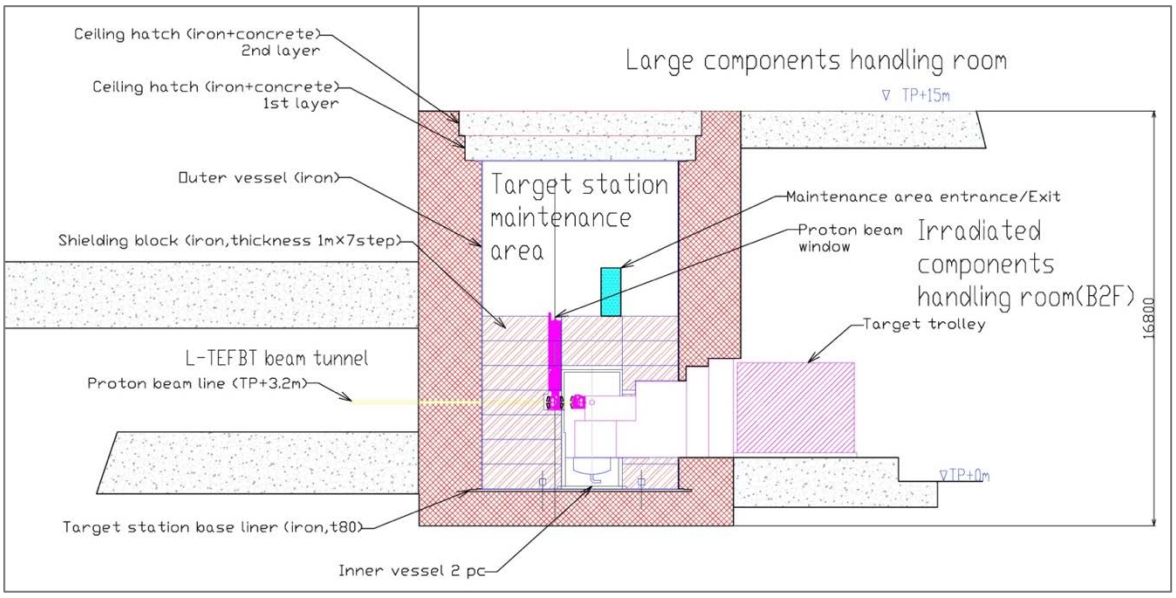


Fig. 5.3.2-11 ターゲットステーション概念の垂直断面図

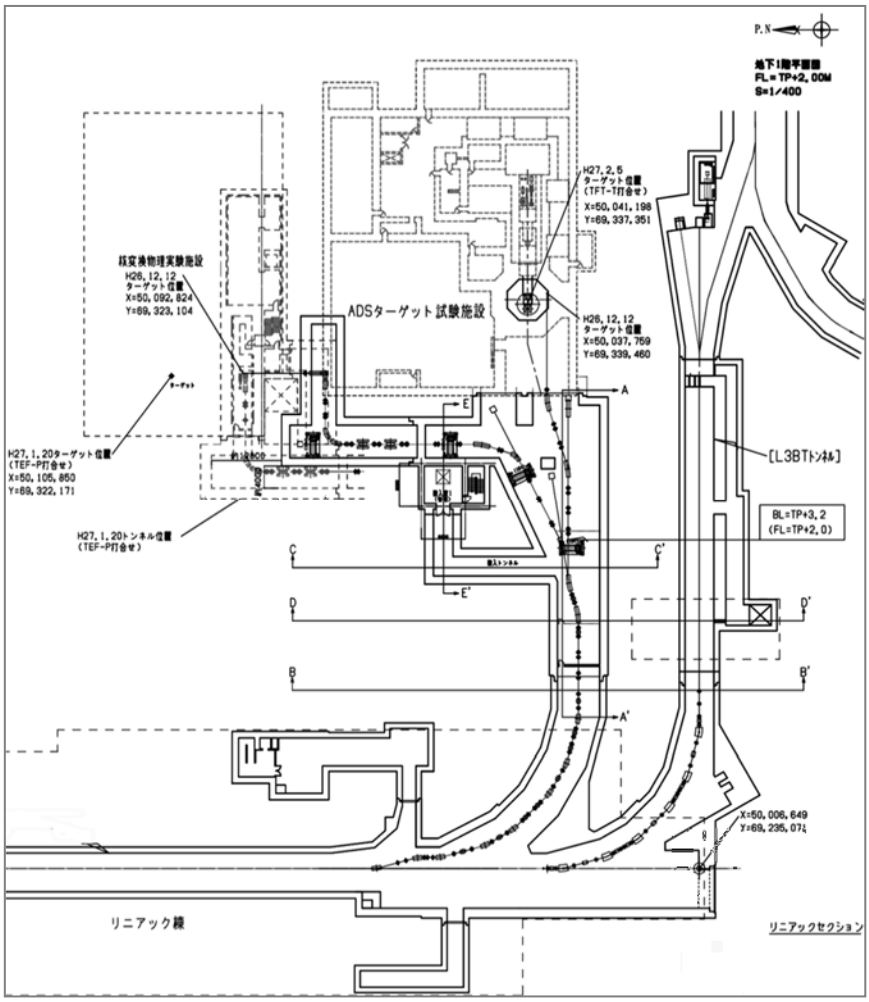


Fig. 5.3.2-12 陽子ビーム輸送系の全体像

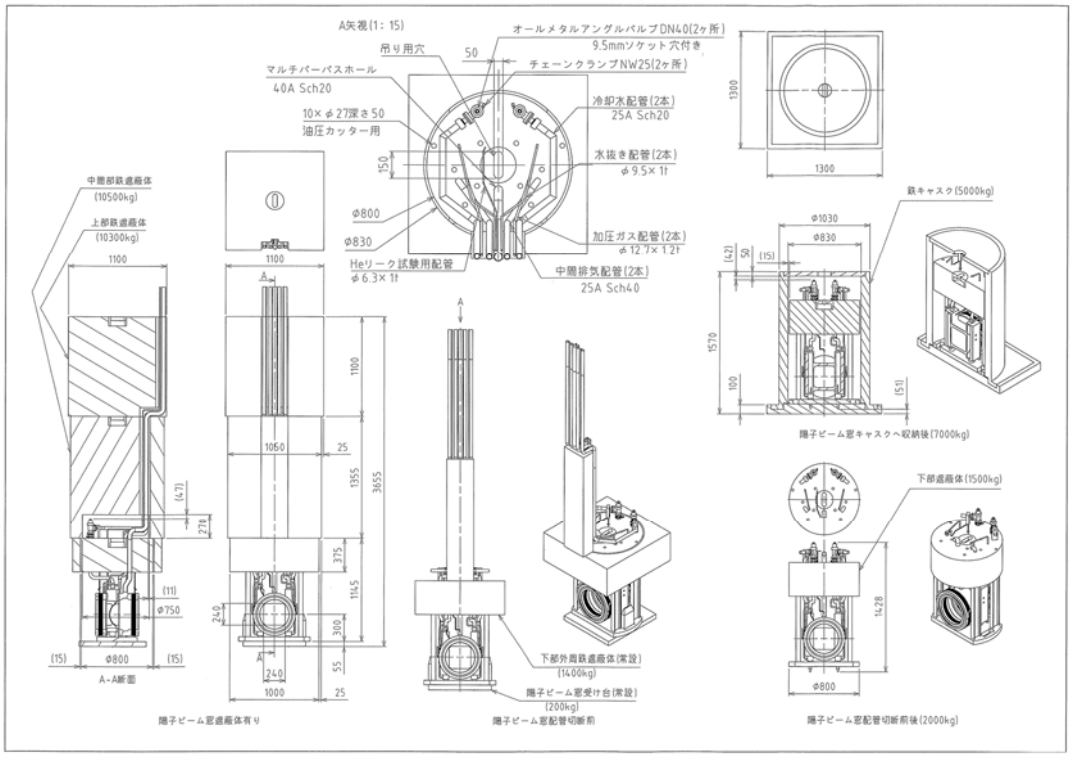


Fig. 5.3.2-13 陽子ビーム窓の構造図

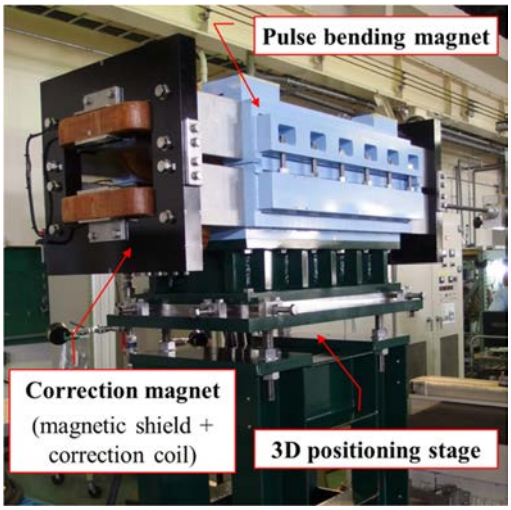


Fig 5.3.2-14 試作したパルス偏向電磁石

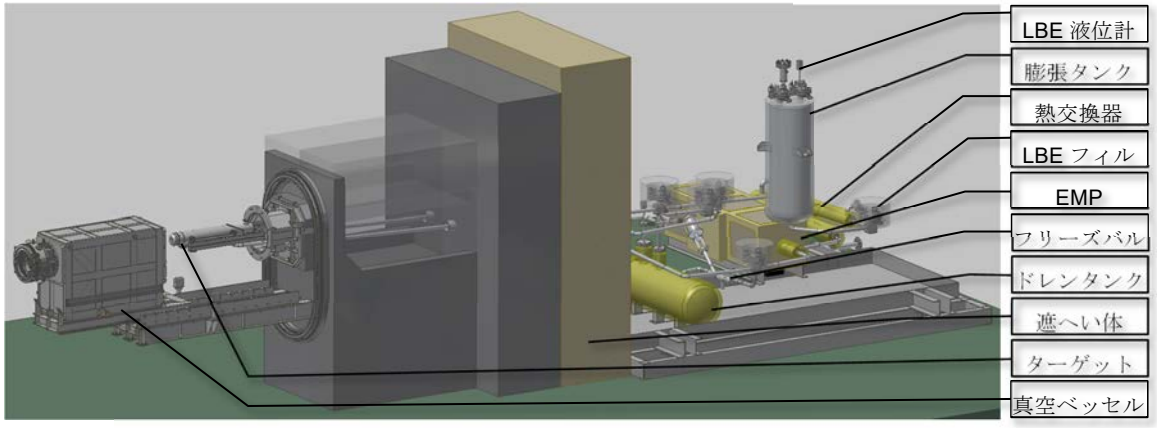


Fig. 5.3.2-15 ターゲット台車概念図

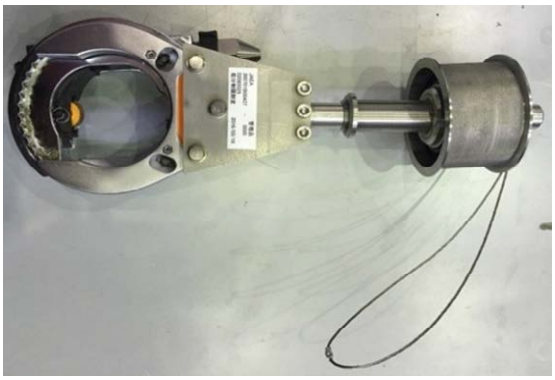


Fig. 5.3.2-16 遠隔操作用パイプカッタ

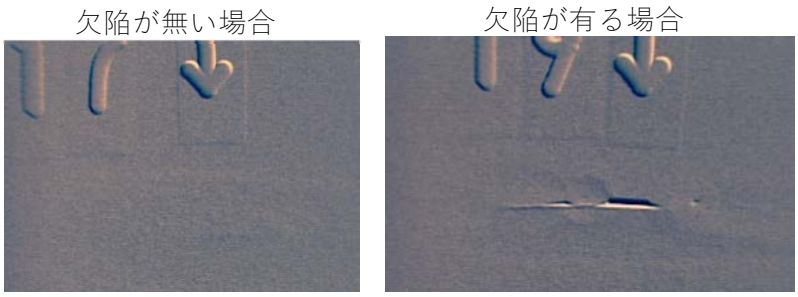


Fig. 5.3.2-17　RT 検査装置による欠陥の検出例

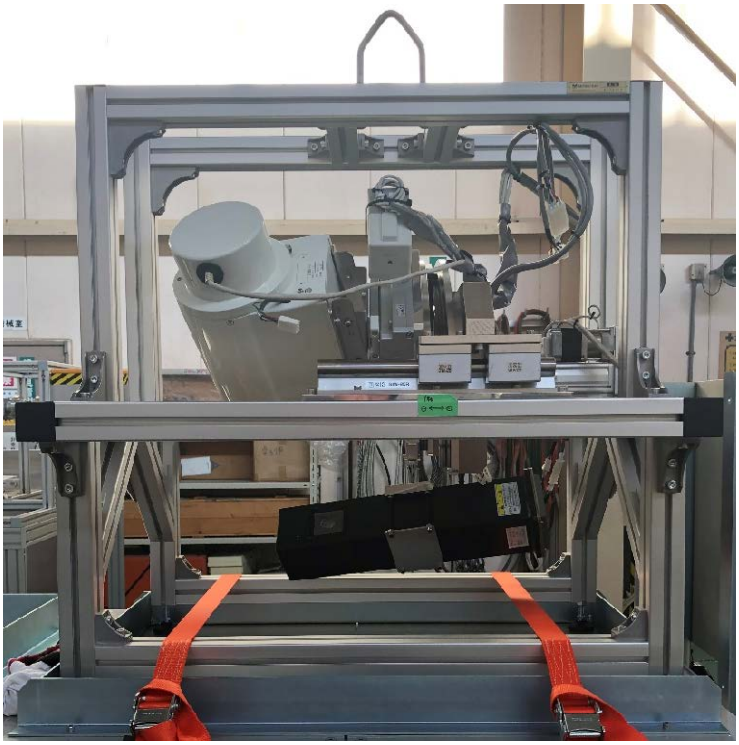


Fig. 5.3.2-18　遠隔溶接検査装置外観

Fig. 5.3.2-19　ターゲット交換システム試験装置 RHYTON 外観

5.3.3　J-PARC 核変換実験施設テクニカルアドバイザリー委員会（T-TAC）

J-PARC 国際諮問委員会 [5.3.3-1]の専門部会の 1 つとして、核変換実験施設の設計、建設及び試験に関すること、これに必要な技術開発に関すること等について討議することを目的とし、「核変換実験施設テクニカルアドバイザリー委員会（T-TAC)」[5.3.3-2]が 2014 年 6 月に設置された。その後、T-TAC は毎年度 1 回の頻度で、2020 年度までに計 7 回開催された。委員一覧を Table 5.3.3-1 に示す。

T-TAC ではまず、J-PARC センタースタッフが TEF の設計や関連した R&D 等について報告を行い、その報告について質疑応答が行われた。一連の報告が終了した後、各委員が助言案を作成し、T-TAC の最後に委員長がまとめて助言案を報告した。T-TAC 後、助言案を元に正式な報告書が取りまとめられ、委員長から J-PARC センター長に提出された。

毎回の T-TAC では以下 3 点を“mission”と定め､J-PARC の取組みについて助言いただいた。

- 核変換技術開発に貢献するというTEFの主目的に、基本パラメータが合致しているかどうかの妥当性
- 陽子ビーム輸送並びにTEF-Tの鉛ビスマスターゲットシステムおよび関連システムに関する安全方針、運転および保守計画を含めた実現可能性
- 計画の適切さ（資源と工程）

また、施設設計や R&D 活動に関する通常の勧告に加え、各回で“charge”としてテーマを決め、施設設計や R&D 活動の方向性や TEF 設計の進捗等について助言いただいた。これら助言については報告書 [5.3.3-2]に記載されているのでここでは省略するが、TEF に関する助言のうち重要なものを、以下に抜き出して示す。

- 第 3 回 T-TAC（2016 年 12 月）

  ADS ターゲット試験施設（TEF-T）及びマイナーアクチノイド燃料を用いた炉物理を研究する未臨界炉 TEF-P の建設に向けた課題について、関係する J-PARC チームにより見事に取り組まれていると T-TAC は確信する。両システムは世界の中でも傑出し、かつユニークであり、高レベル廃棄物を大規模に核変換処理できる ADS の建設に必要な物理、材料そして工学データの開発に大いに貢献するであろう。
- 第 4 回 T-TAC（2018 年 2 月）

  T-TAC は、よくまとめられた TEF-P の安全設計書が刊行されたことに注目する。
- 第 5 回 T-TAC（2019 年 2 月）

  T-TAC は、良くまとめられた英語版の TEF-T 技術設計書が準備され、また TEF-T の概念設計が完結するとともに基本設計が順調に進捗したと考える。

参考文献

5.3.3-1) J-PARC, International Advisory Committee (IAC) ,https://j-parc.jp/c/en/forum-and-committee/iac-e.html (accessed 2021/6/21).

5.3.3-2) J-PARC, Transmutation Experimental Facility Technical Advisory Committee (T-TAC), http://j-parc.jp/c/en/forum-and-committee/t-tac-e.html（原文（英語））, 核変換実験

施設テクニカルアドバイザリー委員会(T-TAC), https://j-parc.jp/c/forum-and-committee/t-tac.html（和訳版）(accessed 2021/6/21).

Table 5.3.3-1 T-TAC 委員

2014～2017 年度

氏名	所属	専門分野
Marc Schyns (議長)	ベルギー原子力研究センター	ADS技術
Yacine Kadi	欧州原子核共同研究機構	ADS及び核破砕ターゲット技術
鬼柳 善明	名古屋大学	核破砕ターゲット技術
Jürgen Konys	ドイツ カールスルーエ工科大学	鉛ビスマス応用技術
Eric Pitcher	欧州核破砕中性子源	ADS及び核破砕ターゲット技術
高橋　実	東京工業大学	鉛ビスマス応用技術
竹田 敏一	福井大学	原子炉工学

2018～2020 年度

氏名	所属	専門分野
Marc Schyns (議長)	ベルギー原子力研究センター	ADS技術
Michael Butzek	ドイツ ユーリッヒ研究所	ADS及び核破砕ターゲット技術
鬼柳 善明	名古屋大学	核破砕ターゲット技術
Georg Müller	ドイツ カールスルーエ工科大学	鉛ビスマス応用技術
Michael Wohlmuther	スイス ポールシェラ−研究所	鉛ビスマス応用技術
近藤 正聡	東京工業大学	鉛ビスマス応用技術
坂本 慶司	量子科学技術研究開発機構	加速器技術

5.3.4 J-PARC 陽子照射施設構想 [5.3.4-1)]

2017 年に TEF-P 安全設計書 [5.3-6)]および TEF-T 技術設計書 [5.3-7)]が完成し、それぞれ、設置許可申請の準備および、技術的課題解決の見通しを得た。これらの成果に対して、J-PARC に設置されている核変換実験施設テクニカルアドバイザリー委員会 (T-TAC) [5.3.3-2)]において 5.3.3 節に述べた外部評価を受け、「T-TAC は、良くまとめられた TEF-P 安全設計書が刊行されたことに注目する。」（2018 年 2 月）、「T-TAC は、良くまとめられた英語版の TEF-T 技術設計書が準備され、また TEF-T の概念設計が完結するとともに基本設計が順調に進捗したと考える。」（2019 年 2 月）などの評価を得た。

一方、JAEA では、研究インフラの維持・老朽化対策のために、施設中長期計画 [5.3.4-2)]に基づいて施設の①集約化・重点化、②新規制基準対応などの安全確保、および、③廃止措置などのバックエンド対策を実施しており、新たな施設整備のための資源確保が困難な状況となっている。また、核セキュリティサミット（2014 年 3 月、オランダ・ハーグ）で高速炉臨界実験装置 FCA 施設が保有する燃料を米国に返還することが宣言され [5.3.4-3)]、2016 年にプルトニウム燃料および高濃縮ウラン燃料の輸送が実施された。TEF-P では当初から FCA の燃料を継承することが想定されており、現在も FCA に残る 20%濃縮以下の低濃縮ウランのみを用いた実験計画への変更を余儀なくされた。

これらの状況から、ADS の工学的課題解決に加えて、陽子・中性子照射場として多様なニーズを受け入れることが可能な陽子照射施設として新たな構想を進めることとした。陽子照射施設の概念はまだ検討段階であるが、現時点における施設概念を Fig. 5.3.4-1 に示す。施設の主な目的は TEF-T と同様に、ADS の陽子ビーム窓等の候補材料の照射、および照射下における液体 LBE 合金の取扱技術の確立である。従って、TEF-T の設計が陽子照射施設のベースラインの設計となる。

LBE 標的中における ADS 候補材料の照射に加え、LBE 標的の直上流には陽子ビームで他の材料を照射できる場を設ける。J-PARC 等の大強度加速器施設ではビーム窓や標的材料がビームの照射を受けているが、使用済み材料の照射後試験（PIE）を実施できる環境が限られ、十分な PIE がなされていない。そこで本施設でビーム窓や標的材料の照射及び PIE を行うことにより、ビーム窓や標的の照射影響を調べ、それら機器の長寿命化や施設の安全性向上に資することが出来る。

また、LBE 標的で核破砕反応により発生する多数の中性子により、核融合炉や原子炉材料の照射を行う。高エネルギー加速器施設、核融合炉、原子炉では照射を与える粒子のエネルギーが大きく異なる。このエネルギーの違いが材料の照射効果に与える影響を示す指標が、材料の弾き出し損傷量（dpa）に対する材料中の He 生成量の比（He/dpa 比）である。Fig. 5.3.4-2 左に示すとおり、He/dpa 比は高エネルギー加速器施設では約 100、核融合炉では 10～15、原子炉では範囲が広いが 1 近傍である。Fig. 5.3.4-2 右は、LBE 標的とその周辺の He/dpa 比を示す。陽子ビームが入射する LBE 標的内は、He/dpa 比が 100 程度である。一方、標的外の中性子照射場を見ると、陽子ビーム入射方向に対し斜め前方角では He/dpa 比が核融合炉材料照射に適した 10～15 になり、そこから後方に向かうにつれて He/dpa 比が小さく変化し、原子炉

材料照射に適した He/dpa 比が 1 程度の照射も可能になる。このように、LBE 標的外の中性子場を利用することにより核融合炉材料や原子炉材料の照射も可能となる。照射量は LBE ターゲット容器表面で約 1 dpa/y とそれほど高くはないが、世界的に照射環境が不足している中、貴重な照射場であると考えられる。

TEF-T では Fig. 5.3.2-9 に示したように、TEF-T 内のホットセルで照射試験片の加工を行った後、原子力科学研究所内のホットラボ施設である WASTEF および RFEF に試験片を輸送し、PIE を行う計画であった。しかし、RI 施設で発生した放射化物である照射試験片を核燃料取扱施設である両ホットラボ施設に持ち込むには、法的に難しい問題がある。また、両ホットラボ施設ともに使用開始から約 40 年が経過し、今後数十年にわたり陽子照射施設の試験片の PIE を行うには老朽化の懸念がある。そこで、陽子照射施設に隣接して、RI 施設としてのホットラボ施設建設を検討している。隣接してホットラボ施設があれば、試験片の輸送を容易に行うことができ、効率的な PIE が可能となる。また現在、J-PARC の既存実験施設で照射されたビーム窓・標的材料は、先に述べた法的制限によりほとんど PIE が行われていないが、本ホットラボ施設でそれらビーム窓・標的材料の PIE が可能になれば、J-PARC 既存実験施設の機器の長寿命化や寿命の予測精度向上により、より効率的かつ安全な運転に貢献できると考えられる。

TEF-T では、Fig. 5.3.4-1 に示すように、LBE 標的で発生した中性子や一部の陽子ビームを有効活用する多目的利用の計画があった。陽子照射施設でも、陽子・中性子照射場として多様なニーズを受け入れる方針の下、多目的利用の考え方を継承、発展させる。多目的利用の中でも有望なテーマが、LBE 標的から高エネルギー中性子ビームを引き出して半導体デバイスに照射し、ソフトエラー試験を行うものである。Fig. 5.3.4-3 に、宇宙線の中性子スペクトルと、TEF-T を含む国内外の照射施設の中性子スペクトルの比較を示す。TEF-T は宇宙線スペクトル形状をよく模擬しているとともに、他照射施設よりも 1 桁以上強度が高く、効率的な試験実施が期待される。また、LBE 標的の高エネルギー中性子場を利用し、^{100}Mo(n,2n)^{99}Mo 反応を利用した医療用 ^{99}Mo 製造を初めとする RI 製造への応用も考えられる。その他、LBE 標的に向かう陽子ビームの一部を分岐して、陽子ビームを利用した各種研究開発や、ADS 用超伝導加速器開発の実施が考えられる。

TEF-T では、エネルギー400 MeV、ピーク電流 50 mA、パルス幅 500 μs、25 Hz で 250 kW（$=400\times10^{6}\times50\times10^{-3}\times500\times10^{-6}\times25$）の陽子ビームを利用する計画であった。一方、2020 年の J-PARC LINAC の試験により、ピーク電流とパルス幅をそれぞれ 1.2 倍に増強した 60 mA、600 μs での運転に成功した。もしこの陽子ビームが陽子照射施設で利用可能となれば、ビーム出力が 250 kW の 1.44 倍の 360 kW になる。これにより、250 kW では 3 年が必要であった照射が 2 年強で済むことになり、照射施設として極めて望ましいことである。

参考文献

5.3.4-1) F. Maekawa, “A Plan of Materials Irradiation Facility at J-PARC for Development of ADS and High-power Accelerator Facilities”, JPS Conf. Proc. 33, 011042 (2021).

5.3.4-2) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構, “施設中長期計画”, https://www.jaea.go.jp/about_JAEA/facilities_plan/ (accessed 2021/6/21).

5.3.4-3) Nuclear Security Summit 2014 National Progress Report Japan, https://www.mofa.go.jp/mofaj/files/000135982.pdf (accessed 2021/6/21).

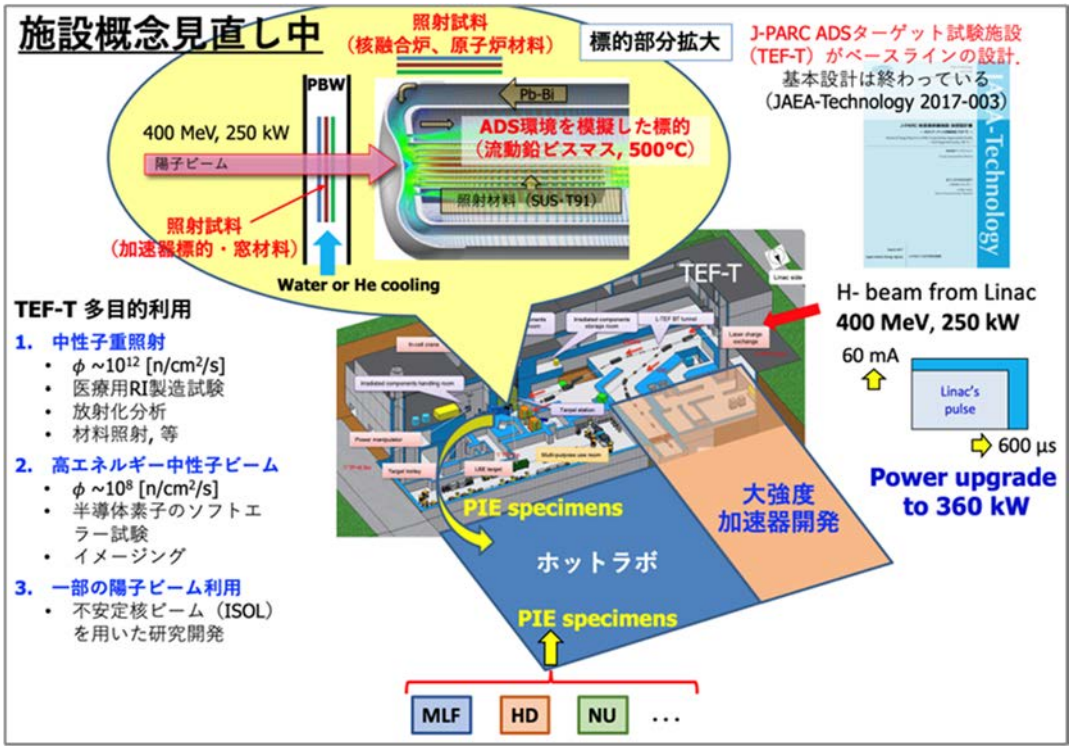


Fig. 5.3.4-1 陽子照射施設の概念

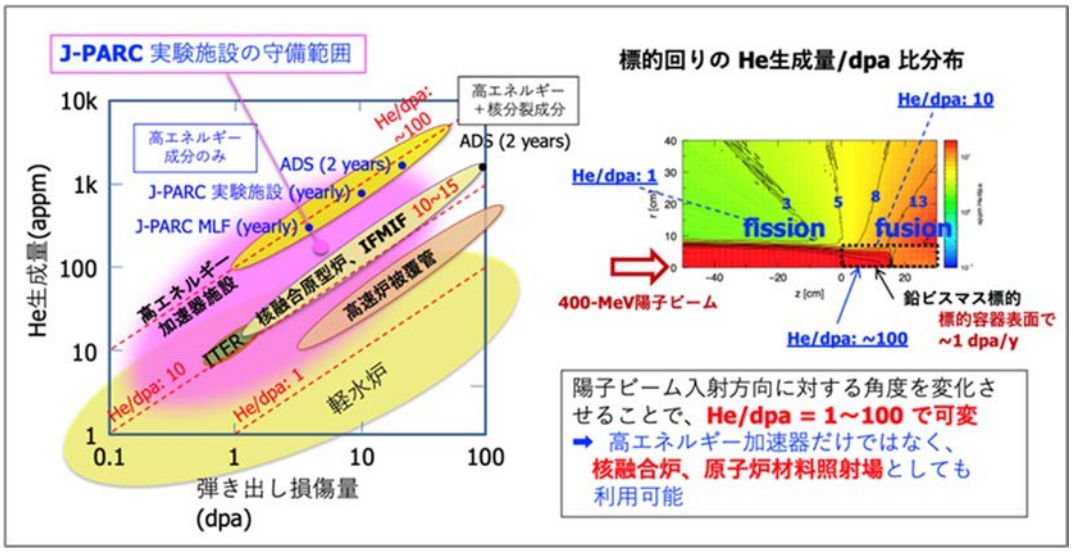


Fig. 5.3.4-2 高エネルギー加速器施設、核融合炉、原子炉の dpa と He 生成量の関係（左）および鉛ビスマスターゲット周辺の He/dpa 比分布（右）

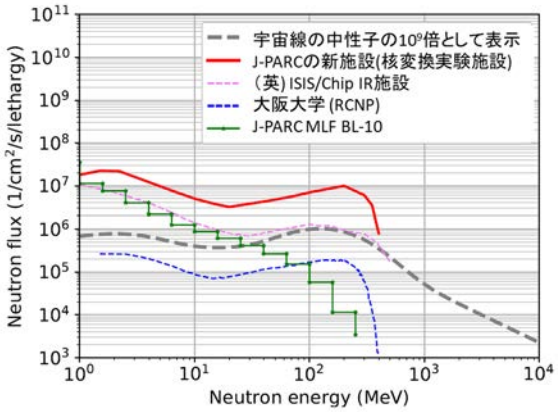


Fig. 5.3.4-3 宇宙線の中性子スペクトル（比較のため、強度を 10^9 倍して表示）と、TEF-T を含む国内外の照射施設の中性子スペクトル強度の比較

6. まとめ

本報告書は、JAEA が実施してきた分離変換技術に関する研究開発の現状について、特に第 3 期中長期計画期間（2015～2021 年度）における研究開発成果を中心としてまとめたものである。

分離技術については、より効率的で高性能な分離工程を目指して、主に溶媒抽出法と抽出クロマトグラフ法による MA 分離の研究開発を実施し、どちらも主工程については小規模実廃液試験まで実施し、グラムスケールでの MA 回収に成功した。具体的には、溶媒抽出法では新たに開発に成功した抽出剤を用いて二次廃棄物の発生量が低い新たな分離技術である SELECT（Solvent Extraction from Liquid-waste using Extractants of CHON-type for Transmutation）プロセスを開発し、実廃液試験の実施及びフローシートの構築を行い、プロセスの技術的成立性を示した。また、抽出クロマトグラフ法では、実廃液試験により約 2 g の MA を回収することに成功するとともに、溶媒抽出法における新規抽出剤の成果を反映した分離フローシートの検討やカラム内の安全評価を実施した。

核変換用 MA 含有酸化物燃料の製造技術に関しては、高速炉酸化物燃料の製造技術として開発を進めていた簡素化ペレット法について、ダイ潤滑成型法による成型試験、O/M 比調整機能を有した焼結炉による焼結・O/M 比調整試験を行うとともに、ガス流動解析による O/M 比調整に最適な炉内構造の検討を行い、燃料製造プロセスへ適用性を評価して技術的成立性を有すると判断する成果を得た。

ADS 用 MA 含有窒化物燃料の製造技術については、枢要技術である外部ゲル化法による粒子作製と窒化、ZrN 母材燃料の焼結密度制御、$^{15}N_2$ ガスの経済的利用技術を試験で原理実証し、主概念の ZrN 母材燃料製造については技術的に成立すると評価する結果を得た。また、MA 含有酸化物と MA 含有窒化物に関して性能評価に必要となる基礎物性データを取得・評価するとともに、照射挙動解析コードに適用して性能評価を進めた。さらに、MA 含有窒化物燃料の乾式再処理技術に関しては、再処理プロセス目標（99.9%回収、希土類元素濃度 5%以下）を満たすプロセスフローを提示するとともに、各工程に関する試験を実施した。

高速炉を用いた核変換技術の研究開発については、国内外の高次 Pu・MA 実験データを可能な限り集め、統合炉定数として炉心設計に利用可能な形に整備するとともに、炉心設計研究を着実に実施し、Pu 及び MA を高速炉で柔軟かつ効果的に利用する見通しを得た。また、高速炉燃料の高燃焼度化を目的に新規に開発した ODS 鋼被覆管について、長寿命炉心材料としての適用見通し評価に不可欠な強度データ取得等を着実に進め、フェライト系耐熱鋼として世界最高レベルのクリープ強度を長時間維持することを試験データと強化機構（強度維持に必要な微細組織の安定性）の観点から実証し、MA 核変換効率の大幅な向上が可能な ODS 鋼被覆管の実用化への見通しを得た。

ADS を用いた核変換技術の研究開発として ADS 概念設計を行い、加速器のリファレンス設計、加速器要素機器開発、燃焼サイクルを考慮した未臨界炉心の燃料設計、未臨界度監視概念、中性子低エネルギー核データ検証、統合解析システムによるターゲット概念設計の最適化、および、崩壊熱除去系の設計などの成果を得た。また、重要課題である ADS のターゲット窓材について、静的腐食試験の結果から新たな腐食モデルおよび腐食予測式を構築し、静的条件では腐食量が小さいという評価結果を得るとともに、ADS 環境を模擬した照射試験により、スウェリングの影響が大きい可能性、照射による酸化被膜形成の促進などの評価結果を得た。

研究開発に必要なインフラ整備については、MA 分離プロセスの実用化に向けた工学規模試験が可能な施設の整備、MA 燃料の製造・処理試験が可能な施設の整備の必要性について言及した。J-PARC の第 2 期計画である核変換実験施設については、ADS ターゲット試験施設（TEF-T）および核変換物理試験施設（TEF-P）について、必要な要素技術開発を実施して施設設計を進め、TEF-T 技術設計書および TEF 安全設計書を取りまとめ、それぞれ技術的課題解決の見通し、および原子炉設置許可申請の準備を整えた。一方、JAEA では、研究インフラの維持・老朽化対策のために、施設の集約化・重点化などを実施しており、新たな施設整備のための資源確保が困難な状況となっている。また、TEF-P で継承予定であった高速炉臨界実験装置 FCA 施設が保有する燃料が米国に返還され、現在も FCA に残る 20%濃縮以下の低濃縮ウランのみを用いた実験計画への変更を余儀なくされた。これらの状況から、ADS の工学的課題解決に加えて、陽子・中性子照射場として多様なニーズを受け入れることが可能な陽子照射施設として新たな構想を進めることとした。

謝 辞

本報告書の執筆にあたり、原子力基礎工学研究センター、燃料サイクル設計室、プルトニウム燃料技術開発センター、プラント技術イノベーション推進室、高速炉サイクル研究開発センター、J-PARC センターの関係課室の方々にご協力いただいたことを深く感謝致します。

本報告書は、文部科学省の原子力システム研究開発事業による委託業務として、JAEA が実施した以下に列挙する事業の成果を含みます。

平成 17～18 年度 「液体 Ga を用いた高効率マイナーアクチノイド分離回収技術の開発」
平成 18～20 年度 「窒化チタンを不活性母材とした MA 含有窒化物燃料製造技術に関する研究開発」
平成 19～21 年度 「MA リサイクルのための燃料挙動評価に関する共通基盤技術開発」
平成 25～28 年度 「加器駆動未臨界システムによる核変換サイクルの工学的課題解決に向けた研究開発」
平成 25～28 年度 「「もんじゅ」データを活用したマイナーアクチニド核変換の研究」
平成 28～令和元年度 「柔軟性の高い MA 回収・核変換技術の開発」
平成 28～令和元年度 「安全性・経済性向上を目指した MA 核変換用窒化物燃料サイクルに関する研究開発」
平成 30～令和 2 年度 「合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発」
令和元～4 年度 「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」
令和元～4 年度 「次世代原子力システム用事故耐性被覆管の照射特性評価技術の開発」

また、本報告書は、文部科学省の原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブによる委託業務として、JAEA が実施した以下に列挙する事業の成果を含みます。

平成 20～22 年度 「広域連携ホットラボ利用によるアクチノイド研究」
平成 22～23 年度 「化学溶解を用いた窒化物燃料の革新的乾式再処理プロセスの研究」

また、本報告書は、経済産業省資源エネルギー庁の委託業務として、JAEA が実施した以下に列挙する事業の成果を含みます。

平成 28～30 年度 「放射性廃棄物の減容化に向けたガラス固化技術の基盤研究事業（ガラス固化技術の基盤整備）」
平成 28 年度 「高速炉国際協力等技術開発」
平成 29～31 年度 「高速炉の国際協力等に関する技術開発」
平成 31～令和 2 年度 「放射性廃棄物の減容化に向けたガラス固化技術の基盤研究事業（ガラス固化技術の基盤整備）（JPJ010599）」
令和 2～4 年度 「高速炉に係る共通基盤のための技術開発」

また、本報告書は、旧電源開発促進対策特別会計法に基づく文部科学省からの受託事業として、JAEA（旧日本原子力研究所）が実施した平成 14～18 年度革新的原子力システム技術開発公募事

業「窒化物燃料と乾式再処理に基づく核燃料サイクルに関する技術開発」の成果、並びに文部科学省の原子力システム研究開発事業による委託業務として電力中央研究所が実施した平成 21～23 年度「実用化に向けた金属燃料サイクルの工学技術実証に関する研究開発」の成果を含みます。

また、本報告書は、文部科学省・核変換技術研究開発補助事業で得られた成果を含みます。