

J A E R I - M
89-123

T R U 消滅処理炉用燃料ならびに燃料
サイクルの成立性に関する検討

— T R U 消滅処理炉の設計研究 (IV) —

1 9 8 9 年 9 月

小川 徹・向山 武彦・高野 秀機
滝塚 貴和・鈴木 康文・刑部 真弘*

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）
あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1989

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 日立高速印刷株式会社

TRU消滅処理炉用燃料ならびに燃料サイクルの
成立性に関する検討
— TRU消滅処理炉の設計研究(IV) —

日本原子力研究所東海研究所燃料・材料工学部

小川 徹・向山 武彦[†]・高野 秀機[†]

滝塚 貴和⁺⁺・鈴木 康文・刑部 真弘*

(1989年8月15日受理)

TRU消滅処理炉の設計研究のなかで、Na冷却金属燃料専焼炉(M-ABR)及びHe冷却粒子燃料専焼炉(P-ABR)の2種の炉について、燃料の概念的構成について提案するとともに、それらの燃料型の成立性に係る問題点について検討した。また、高温化学再処理法に基づいて専燃炉と一体化したTRU燃料サイクル施設について、基礎化学の立場からの検討を行うとともに、工学上の問題点の抽出を行った。

東海研究所：〒319-11 次城県那珂郡東海村白方字白根2-4

+ 原子炉工学部

++ 高温工学部

* 茨城大学

Fuel Elements and Fuel Cycle Concepts of Actinide Burner Reactors
- Conceptual Study of Actinide Burner Reactors (IV) -

Toru OGAWA, Takehiko MUKAIYAMA⁺, Hideki TAKANO⁺, Takakazu TAKIZUKA⁺⁺
Yasufumi SUZUKI, Masahiro OSAKABE^{*}

Department of Fuels and Materials Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received August 15, 1989)

Concepts of fuel elements were proposed and problems related to their performance were investigated for the two types of actinide burner reactors, that is, (1) sodium-cooled actinide metal fuel reactor, M-ABR, (2) helium-cooled particle-bed reactor, P-ABR. In addition, feasibility of a compact fuel cycle facility based on pyrochemical processes was examined from both chemical and engineering point of views.

Keywords : Actinide, Waste, Metal Fuel, Coated Particle Fuel,
Fast Reactor, Pyrochemical Processing, Reprocessing

+ Department of Reactor Engineering

++ Department of High Temperature Engineering

* Ibaraki University

目 次

1. はじめに	1
2. TRU燃料の概念	4
2.1 金属燃料	4
2.1.1 燃料要素の構成	4
2.1.2 TRU合金系の選定	5
2.1.3 燃料の照射挙動の予測	6
2.1.4 ダクトレス型集合体の概念検討	9
2.2 粒子燃料	10
2.2.1 コールド・フェューエル・コンセプト	10
2.2.2 粒子燃料の構成	10
2.3 問題点と今後の研究課題	11
2.3.1 金属燃料	11
2.3.2 粒子燃料	12
3. TRU燃料サイクル	18
3.1 TRU金属燃料サイクル	18
3.1.1 群分離塩からのTRU金属の製造	18
3.1.2 高温化学再処理	19
3.1.3 照射済みTRU燃料の特性	19
3.2 金属燃料サイクル施設の工学的概念検討	20
3.2.1 検討の前提	20
3.2.2 施設の概略	21
3.2.3 工程の概要	21
3.2.4 遮蔽と臨界管理	22
3.3 粒子燃料の製造と再処理	23
4. まとめ	36
謝 辞	36
参考文献	37

Contents

1.	Introduction	1
2.	TRU fuel concepts	4
2.1	Metal fuel	4
2.1.1	Concept of fuel element	4
2.1.2	Selection of TRU alloys	5
2.1.3	Prediction of fuel performance	6
2.1.4	Concept of ductless fuel assembly	9
2.2	Particle fuel	10
2.2.1	Cold fuel concept	10
2.2.2	Particle fuel design	10
2.3	Problems and R&D issues	11
2.3.1	Metal fuel	11
2.3.2	Particle fuel	12
3.	TRU fuel cycle	18
3.1	TRU metal fuel cycle	18
3.1.1	TRU metal fabrication from group-separated salts	18
3.1.2	Pyrochemical processes	19
3.1.3	Characteristics of spent TRU fuel	19
3.2	Conceptual study of TRU metal fuel cycle facility	20
3.2.1	Assumed conditions	20
3.2.2	Facility	21
3.2.3	Process outlines	21
3.2.4	Shielding and criticality control	22
3.3	Fabrication and reprocessing of particle fuel	23
4.	Summary	36
	Acknowledgements	36
	References	37

1. はじめに

放射性廃棄物処理処分の1つのオプションとして、放射性物質の群分離・消滅処理によって廃棄物の隔離期間を短縮することが考えられている。高レベル放射性廃棄物（H L W）のうち核分裂生成物（F P）は極く限られた例外（⁹⁹Tc, ¹²⁹I等）を除いて、約1000年後には初期量の $1/10^9$ 以下に減衰してしまう。したがって、1000年以降の長期毒性は大部分が廃棄物中にまぎれ込む超ウラン元素（T R U）すなわちNp, Am, Cm等に支配されることになる。原子炉を用いてのT R U消滅処理は、これらの廃棄T R Uを²³⁵Uや²³⁹Puと同様に核分裂させることによって、より半減期の短い放射性核種および安定核種に変換することを目的とする。これによって、放射性廃棄物の隔離期間を、技術的に保証しやすい1000年程度に短縮しようというものである。

以下では、T R U消滅処理を目的とする原子炉、すなわち専焼炉の設計研究に係る作業のうち、燃料概念ならびに燃料サイクルの成立性にかかる検討について述べる。本研究をその一部とするT R U消滅処理炉の設計研究は、昭和62-63年度に原子炉工学部に設置された新型炉検討特別チームの1テーマとして行なわれた。同設計研究においては、燃料および燃料サイクルの成立性、炉心核特性、熱流動特性、さらに、専焼炉プラント概念の検討を行い、専焼炉システムの概念を構築するとともに、将来の研究課題の抽出を図った。検討の結果、(1)Na冷却金属燃料専焼炉（M-A B R），(2)He冷却粒子燃料専焼炉（P-A B R）の2種類の概念を提案した¹⁾。これら2種類の専焼炉の性能諸元をTable 1.1および1.2に示した。

Table 1.1 Selected Characteristics of Conceptual Design of Sodium-cooled Metal-fuel Actinide Burner Reactor (M-ABR).

燃料構成	ピン・バンドル
燃料組成 内側炉心	Np-22Pu-20Zr*
外側炉心	AmCm-35Pu-5Y**
ピレット直径, mm	4.0
ピン直径, mm	5.2
ピン間隔, mm	6.0
炉心 長さ, cm	内側炉心/外側炉心 34.0/26.1
半径, cm	内側炉心/外側炉心 32.3/43.6
TRU 初期装荷重量, kg	²³⁷ Np 255 Am and Cm 199 Pu <u>212</u> Total 666
熱出力, MW _{th}	170
出力密度, MW/m ³	第1サイクル 第10サイクル
内側炉心, ave./max.	938/1206 978/1279
外側炉心, ave./max.	1011/1299 961/1250
線出力, kW/m	内側炉心, ave./max. 3.3/4.2 3.4/4.5 外側炉心, ave./max. 3.5/4.5 3.4/4.4
燃料最高温度, °C	内側炉心 806 834 外側炉心 894 875
被覆材最高温度, °C	内側炉心 506 517 外側炉心 520 512
冷却材	ナトリウム
冷却材流速, m/s	8
冷却材入口温度, °C	300 300
冷却材出口温度(ホットチャンネル), °C	内側炉心 474 484 外側炉心 477 468
冷却材炉心出口温度	430 430
全中性子束(炉心平均), $10^{15} n/cm^2 \cdot s$	内側炉心 4.0 4.1 外側炉心 3.3 3.4
平均 反応エネルギー, keV	内側炉心 784 766 外側炉心 819 785
サイクル長, 全出力日	730 730
燃焼反応度変化, % $\Delta k/k$	-2.8 -2.7
1サイクル当たり燃焼率***, %	内側炉心 17.8 19.0 外側炉心 16.7 16.3

燃料許容温度 900°C

被覆管許容温度 650°C (HT-9)

*) 第2サイクル以降はNpのみ追加する。

**) 第2サイクル以降はAm, Cmのみ追加する。

***) 燃焼率=TRU追加量(kg)/666(kg)

Table 1.2 Selected Characteristics of Conceptual Design of Helium-cooled Particle-fuel Actinide Burner Reactor (P-ABR).

燃料構成	被覆粒子
粒子直径, mm	1.47
燃料組成	(66NpAmCm-34Pu) + N ₂ O *
被覆組成	TiN
被覆厚さ, mm	0.135
燃料要素	多孔質二重円筒内粒子燃料充填
直径, mm 外側/内側	42/14
燃料要素間隔, mm	44.1
炉心寸法, cm 高さ/半径	60/74
TRU 初期装荷重量, kg ²³⁷ Np	765
Am and Cm	598
Pu	702
Total	2065
熱出力, MWth	1200
出力密度, MW/m ³ ave./max.	第1サイクル 第10サイクル 1239/2154 1240/2179
冷却材	Helium
全流量, kg/s	1095 1088
入口圧力, MPa	10 10
圧力損失, kPa	13 13
燃料最高温度, °C	714 722
フリット最高温度, °C	554 560
冷却材温度, °C 入口/出口	127/338 127/340
全中性子束(炉心平均), 10 ¹⁵ n/cm ² ·s	8.4 8.4
平均反応エネルギー, keV	767 743
中性子割合(>1MeV), %	22 22
サイクル長, 全出力日	300 300
燃焼反応度変化, % Δk/k	-2.5 -2.4
1サイクル当り燃焼率**, %	16.9 17.3

燃料許容温度 727°C (=1000K)

フリット材許容温度 650°C (HT-9)

*) 第2サイクル以降はNp, Am, Cmのみ追加する。

**) 燃焼率=TRU追加量(kg)/2065(kg)

2. TRU燃料の概念

TRU専焼炉の燃料には以下が要求される。

1. 中性子スペクトルを硬くするために軽元素をできるだけ含まず、高いTRU金属密度が実現できること。
2. 高燃焼度が達成でき、燃焼ならびにリサイクルに関して安定であること。
3. 大きな出力密度がとれること。
4. 製造性に優れ、燃料サイクルからのTRUの漏れが最小であること。

これらの要件を満たし得る燃料として、TRU金属燃料を第一の候補として選んだ。TRU燃料は、発電炉燃料に比べて著しく大きな α 崩壊熱ならびに中性子放出率を有するので、燃料移送をできるだけ簡略化することが望ましい。金属燃料では、高温化学再処理法の採用によって、原子炉プラントと一体化した、コンパクトな燃料サイクル施設が成立する可能性がある。ここでは、燃料として適当なTRU合金組成を選定し、使用条件について考察すること、さらに、燃料としての成立性に係る問題点を検討することを課題とした。

調査・検討の結果、TRU金属燃料の燃焼速度は、TRU金属の比較的低い熱伝導度によって制約される可能性があることが分かった。そこで、1つの代替燃料概念として、窒化物被覆粒子燃料をヘリウムで直接冷却する、粒子直冷型燃料の概念を提出し、その設計に係る予備的な検討を行った。

2.1 金属燃料

2.1.1 燃料要素の構成

金属燃料の構成は、米国アルゴンヌ国立研究所（A N L）で開発されたU-Pu-Zr燃料²⁾をモデルとするものであって、燃料合金の棒（スラグ）をステンレス鋼被覆管に納めたものを燃料要素とする。被覆管と燃料スラグとの間には比較的大きなギャップを設け、ギャップには熱伝達を促進するためにNaが充填されている（Naポンディング）。スラグ上方にはF Pガス・プレナムが設けられる。このプレナム長は、設計燃焼率、被覆管肉厚、被覆管のクリープ損傷及び許容歪量などの関数として定められるものであるが、専焼炉の温度条件では燃料スラグ長のほぼ2倍となる。燃料要素にはピッチ保持のためにワイヤ・スペーサを巻きつけた後、束ねてラッパ管に納め、燃料集合体を構成する。

ダクトレス型（ラッパ管削除型）集合体（Fig. 2.1）を採用した場合には、グリッドスペーサで燃料要素間隔を保持し、集合体としての剛性は六角柱の隅に配したタイロッドによって与える。したがって、被覆管にはワイヤは巻きつけない。この型の集合体の概念については、2.1.4節で詳述する。

なお、集合体は、燃料要素より上方および下方に軸方向遮蔽体を組込んだ構造となる。また、被覆管および集合体構造材の材質としては、耐スウェーリング特性に優れるマルテンサイト／フ

エライト系のHT-9鋼を標準として検討している。

2.1.2 TRU合金系の選定

Table 2.1には、超ウラン元素の物理的性質をUのそれと比較してある³⁻⁵⁾。主要なTRUのうち、NpはPuと並んで融点が低く、熱伝導度も小さい。Am, Cmについては熱伝導度のデータは存在しないが、Amの熱伝導度については電気抵抗値からおおよその値を推定することができる。また、物理的性質の類似する希土類Prの高温熱伝導度のデータ⁶⁾からも類推できる。その結果、Amの熱伝導度はUのそれのたかだか1/2程度と推定される。ただし、U-Pu-Zr合金の熱伝導度は純Uのそれよりもかなり低く、例えばU-19wt%Pu-10wt%Zrでは純Uの約1/2にすぎない。

Npの融点が著しく低いことから、高い線出力密度を実現するためには、合金化によって融点（固相線温度）を上昇させることが必要である。合金化は、また、燃料スラグ中の重金属含量を下げることによって、所定の出力密度における燃焼速度を増大させる効果（熱希釈効果）を有する。しかし、一方で、合金元素の添加は中性子スペクトルを軟化させるうえ、熱伝導度の一層の低下を招くことに注意する必要がある。

しかし、TRU合金系についての実験的な情報は極めて限られる。そこで、まず、TRU相互間での、また、TRUと主要な遷移金属との間での合金化挙動を予測することから検討を開始した。すなわち、標準的な正則溶体近似法（Kaufmanの方法）⁷⁾を用いて各2元合金系の熱力学的性質を推定し、状態図の予測を行った。同法では、異種原子間相互作用を組成・温度に独立なパラメータとして与える。ここで必要な情報は、主に各構成金属の室温におけるモル体積、蒸発熱、原子価状態に係るものである。TRU元素についての必要な情報はTable 2.1に示してある。ただし、Puのモル体積についてはU-Pu-Zr系の状態図をもとに、純金属の密度から得られた値に対して、小さな補正を加えたものを計算に用いた。というのは、モル体積をUについて10%増し、Puについて10%減することによって、U-Pu-Zr系の固相線温度をKaufmanの方法の枠内で良く再現できることができたからである（Fig. 2.2）。これ以上の精度を出すには、原子間相互作用について組成と温度への依存性を知らなければならない。

予測の結果をFig. 2.3にまとめた。要約すると以下のようである。

- ① NpとAmとでは、内圧（単位モル体積当たりの蒸発熱）の差が極めて大きいので、相互溶解度は極めて制約されるであろう。単純な予測手法の範囲内では、Np-Am系の状態図はU-希土類系のそれに似て、液体状態でさえ2相に分離する傾向を有するものと推定される（Fig. 2.4）。
- ② Am, Cmの熱希釈材としてはYが適当であろう。これら3元素は高温では互いに全率固溶すると考えられる。
- ③ Npの固相線温度はZrを固溶させることによって、有効に上昇させることができる。また、Puがこの系に混入しても、固相線温度にはあまり影響しないであろう（Fig. 2.5）。以上の検討に基づいて、Np-Zr系とAm-Cm-Y系との2つの合金系を選定した。なお、PuはNp, Amの双方と高温で全率固溶する⁸⁾ので、必要に応じて、いずれの合金系に

も添加することができると考えられる。ただし、PuとYとの相互溶解度が小さいことから、Am-(Cm)-Pu-Y系の固相線温度の正確な位置については測定を必要とする。

なお、Kaufmanの方法は、遷移金属一般の合金化挙動に関する近似的な取扱いである。遷移金属は、近接性が強く対称性の高いd軌道電子の結合への寄与が支配的であることを特徴とする。これに対して、対称性の低いf軌道電子の結合への関与が大きなNpや、f軌道電子の関与が曖昧で不安定なPuについては、Kaufmanの方法は実証された方法とは言い難い。特に、Puのように環境によってモル体積をめまぐるしく変化させる元素の合金化挙動を、正確に予測することは特別な困難を伴う。また、U、Pu、Npはいずれも高温では体心立方(bcc)構造を有するが、より低温では対称性の低い複雑な構造を有する。これら特殊な構造の格子安定性に係るパラメータはまだ得られていないので、これらの元素を含む合金の低温状態図は予測不可能に近い。さらに、また、Amのbcc相についてはモル体積も知られていない。

合金化挙動に関する上記の予測は実際に重要な意味を有することから、早期に実験的な検証が必要である。これについては、米国オークリッジ国立研究所(ORNL)との研究協力協定(Research Service Agreement: Japan/US Actinide Program)の中で近く実験が行われる予定である。

2.1.3 燃料の照射挙動の予測

被覆管温度を所与とするとき、燃料の最高燃焼度は、主として被覆管の内圧クリープに関する損傷および許容歪み量によって制限される。HT-9鋼を用いた場合、被覆管のボイド・スウェーリングは高速中性子照射量で $(3 \sim 4) \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$)程度までは問題とならない⁹⁾。HT-9鋼のスウェーリングは400°C付近で最大となるため、専焼炉では炉心燃料軸方向中央より上部にスウェーリング歪みの極大が現れる。しかし、燃焼期間2年(約 $3 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$)で、スウェーリングによる被覆管外径増加率は1%未満と評価される。

被覆管内面に作用するのは、FPガスによるプレナム圧力と、スウェーリングした燃料スラグによる接触圧である。燃料スラグのスウェーリングは、圧縮性と非圧縮性との2つの項からなる。これらスウェーリングの効果については以下に検討した。

最大許容線出力は、主として燃料合金の融点(固相線温度)と高温熱伝導度とによって定められる。異なった合金系によって線出力を変えることをしない限り、固相線温度はNp-(Pu)-Zr合金系のそれ(Fig. 2.5)によって代表しておけば保守的であろう。TRU合金の高温熱伝導度がU-Pu-Zr合金より低いことは確かであるが、正確な推定は困難であり、将来の測定が必要である。

また、燃料スラグと被覆管との反応は、燃料合金の固相線温度と並んで燃料の使用条件を制限する重要な因子である。さらに、U-Pu-Zr系燃料について、挙動解析上重要な現象として注目されているものに、物質再分布現象がある。これは、照射下の大きな径方向温度勾配の結果、径方向に亘り組成を異にする3つの領域(層)が形成され、特に中間層ではZrが欠乏して固相線温度が低下する現象である¹⁰⁾。これらについても予備的な検討を加えた。

(1) 燃料スラグのスウェーリング

圧縮性スウェーリング

U系合金は比較的低い燃焼率 ($\sim 1 \text{ at\%}$)においてブレークアウェイ・スウェーリングを示す²⁾。しかし、約30%スウェーリングの時点で、F Pガス・バブルは相互に連結して表面に達するネットワークを形成する。そして、それ以後は燃料スラグからのF Pガス放出速度は生成速度とほぼ等しくなり、適度な機械的拘束がスラグに加えられる限り、スウェーリングはほぼこの水準で飽和してしまう。スポンジ状になった燃料合金は十分柔らかいので、被覆管にほとんど損傷を与えることなく、被覆管との接触圧によって拘束される。

もう一つ重要な特徴は、スウェーリングにおける見掛けの異方性である。すなわち、少なくともU系合金に関する限り、径方向のスウェーリングが主に生じ、軸方向のスウェーリングは小さい。この異方性の原因はまだ十分理解されていないが、スラグ外周部のクリープ変形が関与していることが推測されている¹⁰⁾。

以上から、最近のU系金属燃料の設計では、燃料スラグのスマア密度を75%に設定し、30%までのスウェーリングを許容して、ガス・バブルのネットワーク形成を積極的に助長するようにしてある。

理論上は、スウェーリングが約30%の時点でガス・バブルが相互に連結してネットワークを形成する現象は、燃料の物性に依存しない。むしろ、ガス・バブルを任意の母材中に導入するときの幾何学的条件によって、不可避的に生じるものと考えられている¹¹⁾。したがって、T R U金属燃料についても、U系金属燃料と同様に、約30%スウェーリングにおいてガス・バブルのネットワーク形成が生じると仮定して良いであろう。

超ウラン元素の機械的性質については断片的なデータしか存在しない。体積弾性率を比較すると、N pはUに近いが、A m、P uはUよりもかなり小さい。スウェーリングに伴う被覆管との機械的相互作用を考察する上では、また、燃料スラグの高温における塑性変形が重要である。金属としての結合性の考察に基づいて、ごく定性的には、A mはUよりもさらに軟らかいといって良いであろう。このことは、被覆管に損傷を与える可能性が小さくなるという意味では好ましい。が、軸方向の変形が大きくなつて、炉心の反応度に影響するかもしれないという意味では、問題となることも考えられる。

非圧縮性スウェーリング

スポンジ状になった燃料合金からのガス状および揮発性F Pの放出割合を希ガスとほぼ等しく80%²⁾とすると、非圧縮性スウェーリングはU、N p、P uについて $1.5\%/\text{at\% burnup}$ 、A mについて $0.5\%/\text{at\% burnup}$ と計算される。A mについての値が小さいのは、A mのモル体積が大きいためである。

したがって、スマア密度75%とした設計では、20at%以下の燃焼率では非圧縮性スウェーリングが問題となることはないであろう。

(2) 化学的な挙動

燃料スラグと被覆管の反応

U系合金とS U Sとの共融開始温度はほぼ725°Cである。T R U元素とFeとの間での共融開始温度を正確に予測するためには、これらの異種原子間に作用する電気陰性度の項を正

しく評価しなければならない。これは現時点ではほとんど不可能であって、上記 Japan/U.S. Actinide Program の中で実験が予定されている。したがって、ここでは定性的な考察にとどめる。

Pr - Fe 系および Y - Fe 系の状態図を参照すると、Am - Cm - Y 合金と Fe との接触では、反応生成物 (Am, Cm, Y) Fe₂ と燃料合金との間で共融が生じることが予測されるが、共融点は比較的高いと考えられる。参考までに、YFe₂ と Y の共融点は 900°C である。なお、Beahm¹²⁾ は AmFe₂ と Fe との間にもう一つの金属間化合物 Am₂Fe₁₇ の存在を予測している。この場合、後者と Fe との共融点は相当高い (1300°C 以上) ことが考えられ、燃料スラグと被覆管との共融反応を制限するうえで重要な役割を果すであろう。

一方、Np と Fe との接触では、反応生成物 Np₆Fe と Np との間で共融が生じ、共融点は Pu - Fe⁸⁾ 系同様に 400°C 近くまで低下する可能性が大きい。この共融点が Np の Zr との合金化によってどこまで上昇するかは、実験にまたなければならない。

燃料スラグ中の物質再分布

U - Pu - Zr 燃料で見出されたこの現象については、まだ十分理解されていないが、基本的には多元系の熱拡散の問題として捉えられるであろう。

系におけるエントロピーの生成を dS とするとき、非等温系の定常状態では $dS = 0$ となる。いま、合金のある構成元素に着目したとき、非等温系のモルエントロピー s の生成は、

$$ds = - d(\mu/T) + (Q^* + h) d(1/T)$$

となる。ここで、 μ は化学ボテンシャル、 Q^* は輸送熱、 h はモル・エンタルピーである。 $ds = 0$ となるための条件は、 x を成分の原子分率として、

$$\nabla \mu = (\partial \mu / \partial x) \nabla x = -(Q^*/T) \nabla T$$

あるいは、

$$dx/dT = -(Q^*/T) / (\partial \mu / \partial x)$$

である。多元系への拡張は上式中で x と Q^* を、それぞれ、成分に関するベクトルで置き換える、 $(\partial \mu / \partial x)$ を関連する行列とすることによって可能である¹³⁾。単相領域にある合金の定常組成分布は、この式にしたがって比較的なだらかに変化する。

Fig. 2.6 に、金属燃料挙動解析（原研／電中研共同研究）のためにモデル化した U - Zr 系の状態図を示した²³⁾。2 元系では 2 相共存領域 (3 元系では 3 相共存領域) で $\partial \mu / \partial x = 0$ となるので、2 相共存層 (3 元系では 3 相共存層) は定常状態では消失して厚さを持たない境界となる。すなわち、初期にこれらの組成領域にあった合金は、やがて、異なった温度領域で、はっきりと異なった組成を有する 2 つの層に分離することになるであろう。すなわち、U - (Pu) - Zr 系では、950 K 付近を境に高温側の Zr 過剰な層 (γ 相主体) と、低温側の U 過剰な層 (β/α 相主体) とに分離する。さらに低温で再び Zr 濃度が増大する原因は今のところまだ不明であるが、887 K 以下の金属間化合物 δ 相の生成と関係していることが考えられる。

以上の簡単な考察から、とりあえず燃料使用温度付近での $Np - (Pu) - Zr$, $Am - (Pu) - Y$ 系の状態図データさえ入手できれば、これらの系における物質再分布の可能性と、その燃料挙動への影響に関しておおよそのことが言えるものと期待される。

2.1.4 ダクトレス型集合体の概念検討

ダクトレス型集合体の概念 (Fig. 2.1) については、(株) 東芝への委託調査として検討した。検討条件は Table 2.2 にまとめてある。

燃料集合体は 85 本の燃料要素と 6 本のタイロッドとを正 3 角形状に配列し、軸方向 5 段のグリッドスペーサーによってピッチを保ちつつ束ねている。燃料要素はまた下部で支持部材に固定される。グリッド素子形状は低圧損が期待できるリングタイプであり、素子同士は点溶接となる。グリッド・ディンプルと被覆管との間には 0.1 mm の間隙を残す。グリッド軸方向配列ピッチは 30 cm であり、燃料要素の歪みが極大となる部分を避けている。グリッドの外縁は隣接する集合体の同一部位と、必要最小の間隙を残して嵌合するようになっている (Nested 配置)。このように嵌合させることによって、冷却材の有効流量を確保するとともに、中性子スペクトルの軟化を防ぐことができる。

ハンドリングヘッドは上部遮蔽体を組込み、タイロッド上端に固定される。ハンドリングヘッドと燃料要素上端の間には、燃料要素の膨張を見込んで間隙が設けられている。また、ハンドリングヘッドには集合体間ギャップ保持のためのスペーサパッドを設ける。下端のエントラスノズルには流量調節のための内部オリフィスを設ける。

冷却材の有効流量を確保して、ホットチャンネル冷却材出口温度を 496°C 以下に抑えるには、集合体間ギャップ (グリッド間) は 0.7 mm 以下であることを要する。これを 0.5 mm として、被覆管内面最高温度は約 550°C になるものと評価される。被覆管応力及びクリープ累積損傷和の制限からは、最小プレナム部長さは 650 mm となるが、ここではグリッド部の被覆管外径増加率の制限から 800 mm が選ばれている。これからブランケットおよび端栓部を含めて、燃料要素全長は 1650 mm となる。そして、燃料集合体は上下軸方向遮蔽体を収めて全長約 3.4 m である。ピンバンドル部圧損は 5.7 kg/cm² であり、うち 1.2 kg/cm² がグリッド部の寄与である。

ダクトレス型集合体は、燃料サイクルでの移送、解体および製造に際しての α 崩壊熱の冷却除去の点で有利である。一方、炉心における流量配分が困難になること、集合体としての剛性がラップ管型集合体に比べて劣ることなどが短所になる。Fig. 2.1 の例では、タイロッドは燃料交換時の引張応力として 9 kg/mm²、挿入時荷重 1.5 t に十分対処できる。金属燃料専焼炉は小型モジュラー炉であり、全炉心燃料を 1 バッチとして交換してしまうので、隣接する集合体の照射変形からの干渉に関しては有利である。しかし、集合体間ギャップについては、許容湾曲変形量や装荷引抜き性の観点も含めて、さらに詳細な検討がなされなければならない。また、この型の集合体では、ある割合の冷却材が集合体周囲に流れてしまって、有効流量が相対的に小さくなるという欠点も有する。しかし、専焼炉のナトリウム温度は発電用高速炉よりもかなり低く設定できるので、このこと自体はそれ程大きな欠点にはならない。TRU 消滅処理では、燃料サイクルが円滑確実に行われることが重要であるから、ダクトレス型集合体についてはさらに詳細な検討を進めていく必要があろう。

2.2 粒子燃料

極めて大きな燃焼速度を実現しえる燃料として、TRU窒化物微小球に高融点材料を被覆し、その表面を直接ヘリウムで冷却する方式の燃料（Fig. 2.7）を提案した。この場合、被覆燃料粒子を同心円筒型の金属網（フリット）の間に充填したものを燃料要素とする。この燃料要素の構成については、別報¹⁹⁾で熱流力的な立場から詳しく検討されている。ここでは、被覆燃料粒子の構成について解説する。

2.2.1 コールド・フェューエル・コンセプト

被覆燃料粒子は比表面積が大きく、熱流束が小さくなるという長所を有する反面、燃料の体積含有率が低くなってしまうという短所を有する。通常は燃料核に対して被覆層を十分厚くして、燃焼に伴って発生するガス内圧に耐えるように設計しなければならない。例えば、現在、高温ガス炉燃料の標準として採用されている、いわゆる Triso 型被覆燃料粒子では、燃料核の周囲の低密度熱分解炭素層がガス・プレナムとして機能し、さらに外側の高密度熱分解炭素と炭化ケイ素とからなる3重の層が圧力容器として機能している。しかし、このような構成の場合、炉心の重金属含有量が著しく小さくなってしまい、硬い中性子スペクトルを必要とする専焼炉には適当ではない。

この短所を克服するために、ここではコールド・フェューエル・コンセプトを採用した。すなわち、燃料温度をその融点（絶対温度）の1/3以下に保つことによって、燃料核内での FP ガス原子等の物質の移動を制限する。その結果、燃料のガス・バブル・スウェーリングも、燃料からのガス放出も、ともに無視できるほど小さくなることが期待される¹⁴⁾。その結果、被覆層の厚さを最小限に切詰めた設計が可能になる。燃料核と被覆とを高融点セラミックスで構成し、その表面をヘリウムで直接冷却することによって、このコールド・フェューエル条件を実現する。

2.2.2 粒子燃料の構成

(1) 燃料核

燃料核としては窒化物を選んだ。酸化物では軽元素の含有量が大きくなりすぎる。炭化物は窒化物に比べて融点が低いといえ、Am, Cmについて二三炭化物 (M_2C_3)しか報告されていない。これに対して、アクチノイドの一窒化物 (MN) はいずれも岩塩型の構造を有し、格子定数も互に接近しており、均質な混合窒化物を形成することが期待される。密度はUN, NpN, PuNで $14.2 - 14.3 \text{ g/cm}^3$, AmNで 13.7 g/cm^3 である¹⁶⁾。結合性の点では、金属としてはU～PuとAm以降の元素とでは大きく異なることが知られているが、窒化物では互に良く似ていると考えられている。すなわち、金属と窒素とは強く共有結合し、金属元素は3価として存在していると推定されている¹⁵⁾。

融点はNpNで3103 Kである¹⁶⁾。ここでは、燃料核の温度を1000 K以下に保つことを制限として採用した。ガス・バブル・スウェーリングは無視できるとしても、非圧縮性のスウェーリングが $1.7\% / \text{at\% burn}_{\text{NP}}$ 程度に達すると評価されるので、燃料核密度は約75% T.D. に設定した。

(2) 被覆層

被覆層は2層として、内側の低密度層には外側の層を核分裂片による損傷から保護する役割を、外側の高密度層にはガス・シール層としての機能を担わせる。ボイド・スウェーリング対策から被覆層も高融点材料で構成する。高融点(3220 K)¹⁷⁾であること、TRU窒化物ならびに金属材料との両立性に優れること、中性子吸収断面積の小さいこと、そして、製造性に優れることから、ここでは暫定的にTiNを採用した。第1層は亀裂伝播の起りにくく多孔質(50%T.D.)とした。このときの核分裂反跳原子飛程が10~15 μmであるので、余裕をみて厚さ30 μmとした。

被覆層には圧力容器としての機能は期待しない。しかし、狭い空間に充填された粒子の熱膨張とともに、粒子間での機械的相互作用による弾性破壊が懸念される。そこで、粒子各部の寸法は、室温で2 kg程度の静荷重に耐えることを一応の目安として決定した。これはHTTR(高温工学試験研究炉)の被覆燃料粒子と同程度の破壊強度である¹⁸⁾。

(3) フリット

高速中性子照射量が大きいことから、やはりHT-9材のような低スウェーリング鉄を用いるべきである。フリットの網目あるいはスリットは粒子による自づまりを防ぐために特殊な形状なものとなるが、これについては高温ガス炉用被覆燃料粒子の製造管理に用いられているノウハウを活用することが可能である。金属円環に微細なスリットを加工することは、経済性はともかく技術的には可能であると考えられる。

2.3 問題点と今後の研究課題

2.3.1 金属燃料

高速炉用U系金属燃料の構成をモデルとして、TRU金属燃料の成立性について基礎的な検討を行った。

状態図予測結果に基づいて、TRU合金系としてはNp-(Pu)-Zrと、Am-Cm-(Pu)-Yとの2つの系統を選定した。しかし、ここで用いた状態図予測手法は粗い近似にすぎないので、早期に実験的な検証を必要とする。金属燃料の挙動解析における合金状態図の重要性は極めて大きい。

TRU金属燃料要素の概念的な設計では、機械的な効果としてプレナム・ガス圧の作用を主に考慮すれば良いであろう。燃料スラグのスウェーリングに伴う被覆管との機械的相互作用は、U系合金と比べてNp系合金では同程度、Am系合金ではより小さいことが予想される。専焼炉条件では、最大出力集合体においてもナトリウム出口温度は500°C未満にすぎないので、プレナム長をスラグ長の2倍程度にとることにより、燃焼期間2年、燃焼率約18%に対して、クリープ累積損傷和、被覆管外径増加率ともに十分に低く抑えることは可能であろう。ただし、言うまでもなく、このことは、TRU燃料の挙動解析のための種々の基礎データの取得を不要とするものではない。例えば、TRU金属燃料においては、U系金属燃料同様にスウェーリングに伴う軸方向伸びが小さくなるという保障はない。これに関して、TRU合金のクリープ特性のデータを必要とするであろう。あるいは、また、軸方向伸びを拘束する機構をピン設計に組

込むことが必要になるかもしれない。また、Np系合金では、被覆管との共融反応がかなり低い温度で開始することが懸念される。

性能評価上の最も大きな問題は、TRU金属及び合金の高温熱伝導度のデータが存在しないことである。しかし、TRU金属の熱伝導度がUのそれよりも小さいことは間違いない、これが燃焼速度を制限する大きな要因となり得る。

2.3.2 粒子燃料

粒子燃粒の製造に関する課題は別に3章に述べ、ここでは挙動評価に関する問題点を要約する。この型の燃料概念は従来存在する燃料形態と比べて余りにも異質であり、多くの研究項目を挙げることができる。なかでも、その成立性は、第1にコールド・フェューエル・コンセプトの実現しえる温度・出力密度条件の如何にかかっている。最近まとめられたUNおよび(U, Pu)NからのFPガス放出予測式²⁰⁾では、75%T.D.の燃料からは温度1000K、燃焼率17at%において、FPガス放出割合は約9%となる。Fig.2.7の粒子において、燃料核中の気孔が固体FPによって埋ってしまってプレナムとしては機能しないと仮定しても、被覆層引張り応力は約30MPaにすぎないであろう。TiNの強度としては約200MPaが期待できると考えられる²¹⁾。しかし、この点をさらに正しく評価するには、ここで想定しているような極めて高い出力密度における、窒化物燃料中の希ガスおよび遊離窒素の拡散放出挙動の十分な理解が必要である。一般に出力密度が高くなると、温度依存性の小さな照射促進拡散の寄与が大きくなるので、注意が必要である²²⁾。また、炉の過渡状態において、それまで低温で燃料マトリックス中に保持されていた希ガスがどのように振舞うかを評価する必要がある。

個々の燃料要素の剛性は低いので、これをどのように集合体として炉心内に配置するかについて今後の検討を必要とする。また、フリットの歪変形に伴う被覆粒子との機械的相互作用に関する、被覆層の健全性も問題となるであろう。このような機械的相互作用に関しては、ヤング率が極めて大きく応力集中の大きなTiNは必ずしも最適とは言えない。被覆材については更に広く候補を探すとともに、TiNの外側にさらに、応力集中とヘリウム中不純物による酸化防止のための、薄い被覆を施すことも検討すべきであろう。

しかし、上記に係る試験研究においては、TRU窒化物をU窒化物で代用させることで効率良く行なうことが可能である。燃料合金では個々の合金の個性が著しいが、アクチノイドの窒化物は互いに良く似た性質を有しているからである。TRU窒化物の特異性は、その高い α 崩壊熱に関連して、むしろ製造法の開発において際立つ現れるであろう。

なお、U, Puが燃料として実用化される以前において、既に相当広範な物理、化学的データが存在していたことを忘れてはならないであろう。TRUを燃料とする技術が十分な成熟に達するまでには、長期的な視野のもとで、アクチノイドに関する幅広い基礎研究が行われることが必要不可欠である。基礎研究の充実は、また膨大な開発努力を節約するうえでも最も効果的であろう。TRU燃料の照射データ・ベースを完備することは至難であろうから、燃料の照射挙動についての基礎的な理解に基づいたコンピュータ予測技術をさらに発展させることが重要である。

Table 2.1 Selected Physical Properties of Transuranium Elements Compared with Uranium.

元素	U	Np	Pu	Am	Cm
結晶型	α 斜方晶 (Cmcm) β 正方晶 (P4 ₂ nmm) γ bcc	α 斜方晶 (Pnma) β 正方晶 (P4 ₂ 12) γ bcc	α 单斜晶 (P2 ₁ /m) β 体心单斜晶 (I2/m) γ 斜方晶 (Fdd) δ fcc δ' bct ϵ bcc	α dhcp β fcc γ bcc	α dhcp β fcc γ bcc
密度 (Mg/m ³)	α 1.9 . 05 β 1.8 . 11 γ 1.8 . 06	α 2.0 . 45 β 1.9 . 36 γ 1.8 . 00	α 1.9 . 86 β 1.7 . 70 γ 1.7 . 14 δ 1.5 . 92 δ' 1.6 . 00 ϵ 1.6 . 51	α 1.3 . 67 β 1.3 . 65 γ -	α 1.3 . 51 β 1.2 . 66
変態点 (K)	α/β 941 β/γ 1049	α/β 553 β/γ 848	α/β 398 β/γ 488 γ/δ 593 δ/δ' 736 δ/ϵ 756	α/β 1042 β/γ 1350	α/β 1550
融点 (K)	1408	185	913	913	1618
融解熱 (Kcal/mol)	2.	1.85	1.240	0.675	3.300
蒸発熱 (Kcal/mol) *	127	111	82.5	67.9	92.6
電気抵抗 ($\mu\Omega/cm$) *	31	123	150	69	86
熱伝導度 (W/m·K) *	24.6	7.7	8.3	-	-
体積弾性率 (GPa)	1.13	1.18	5.2	4.5	3.3
原子価状態 ^b	f ² d ³ s ~ f ⁴ d ⁴ s	f ³ d ³ s	f ⁵ d ^{1.5} s p ^{0.5}	f ⁶ d ¹ s p	f ⁷ d ¹ s p

a) 298 K
b) U, Np, Puについてはbcc構造、Am, Cmについてはdhcp構造についての推定。

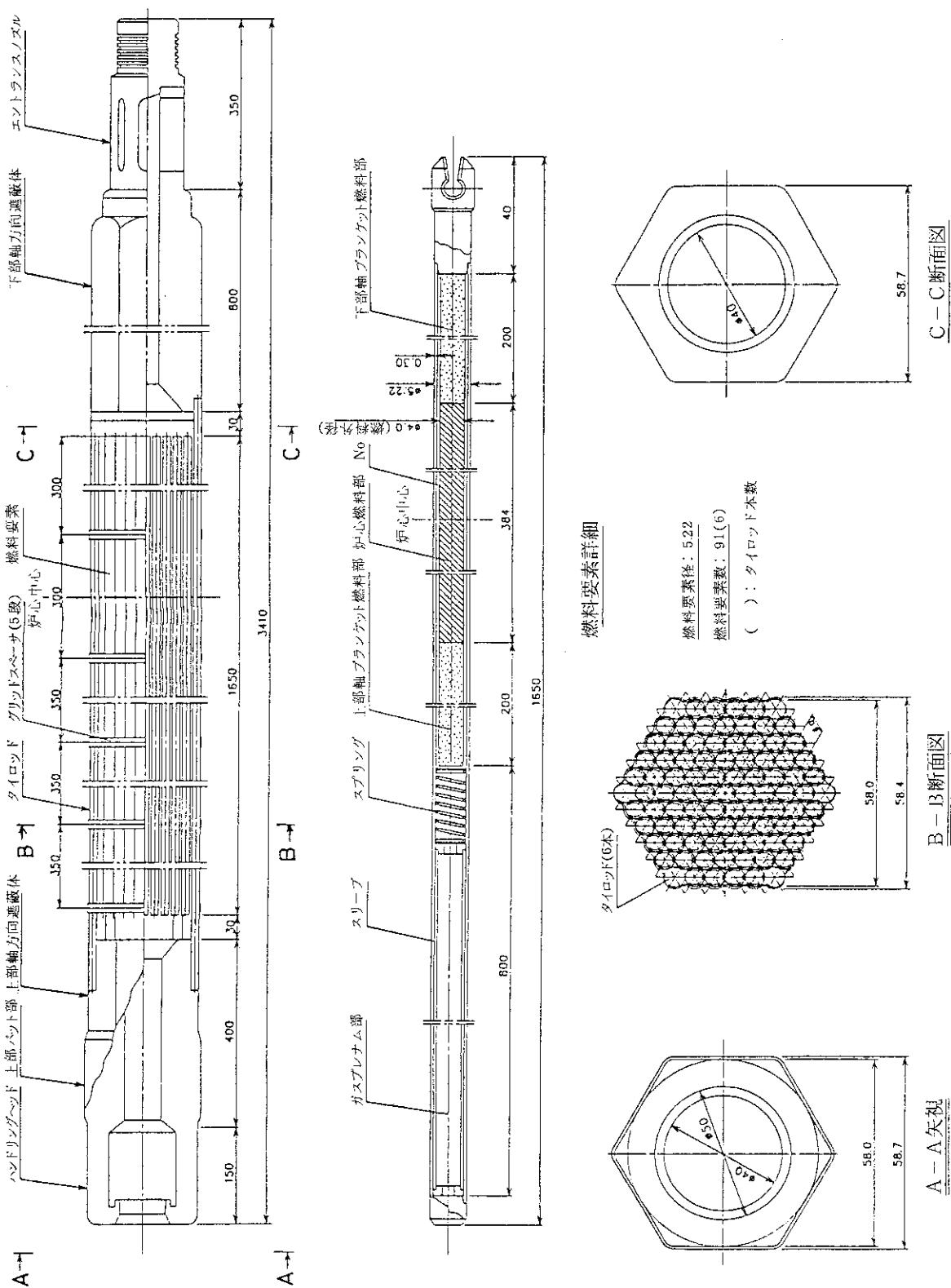


Fig. 2.1 Ductless TRU Metal Fuel Assembly.

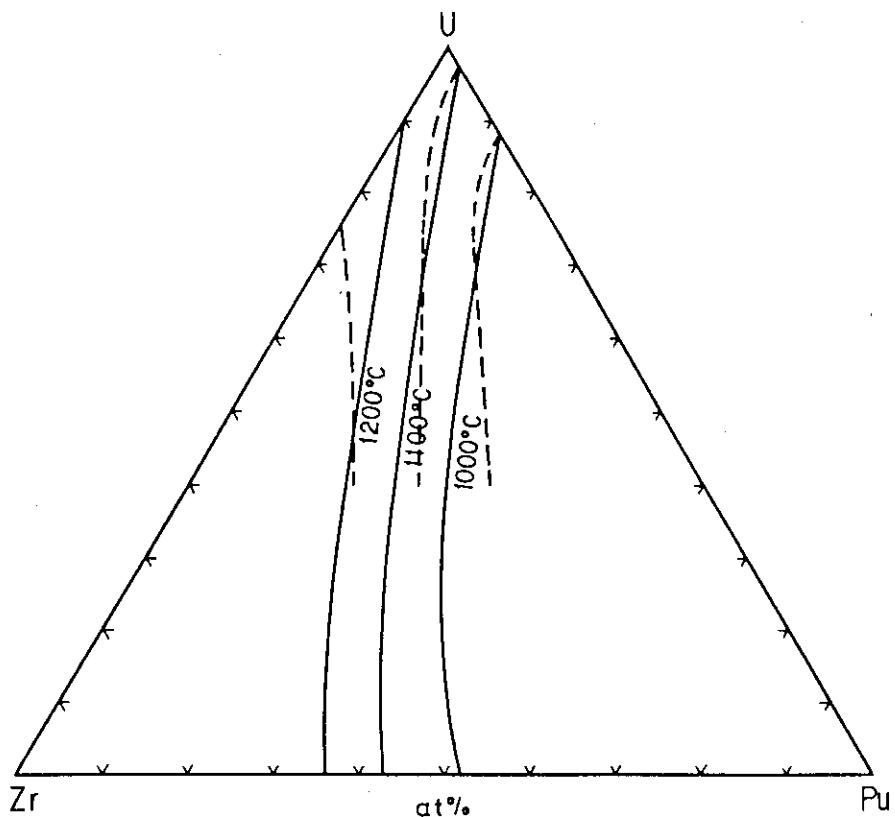


Fig. 2.2 Ternary Isotherm of U-Pu-Zr System Showing Calculated (Solid Line) and Experimental (Dashed Line) Solidus.

	T i	V	C r	F e	N i	Y	Z r	N p	A m
A m	液相不溶	固溶せず	金属間化合物	全率固溶	液相不溶	—			
N p	全率固溶	固溶せず	固溶せず	金属間化合物	液相不溶	全率固溶	—	液相不溶	

Fig. 2.3 Predicted Alloying Behavior of TRU and Transition-metal Binaries.

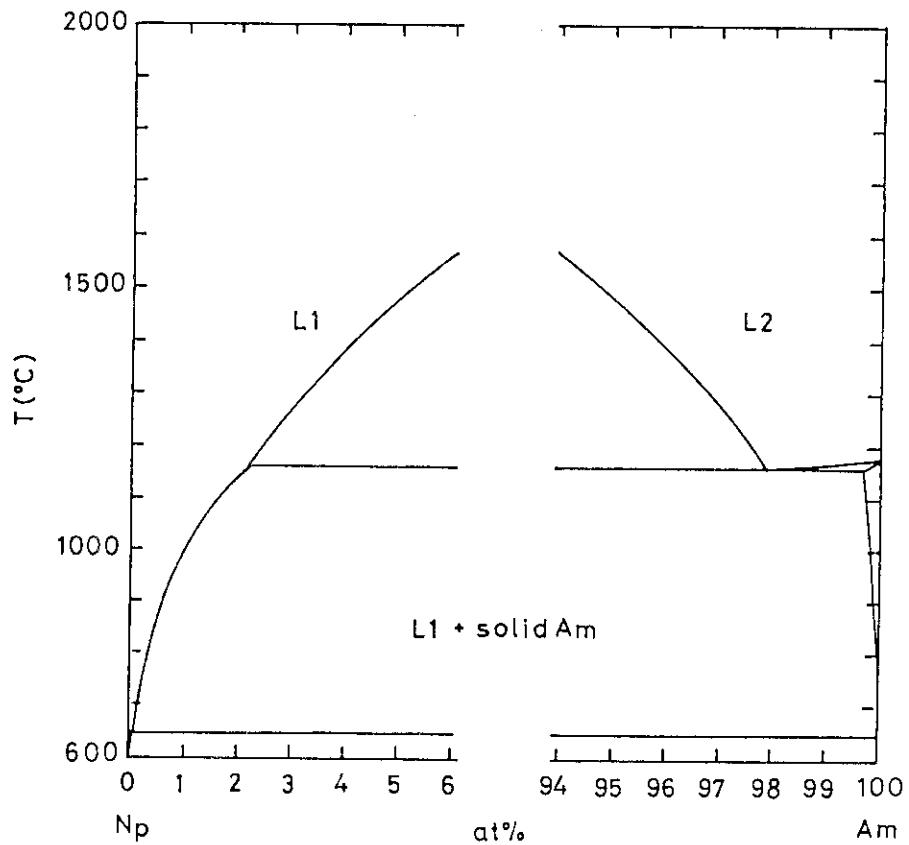


Fig. 2.4 Predicted Constitution of Np-Am Binary Alloys.

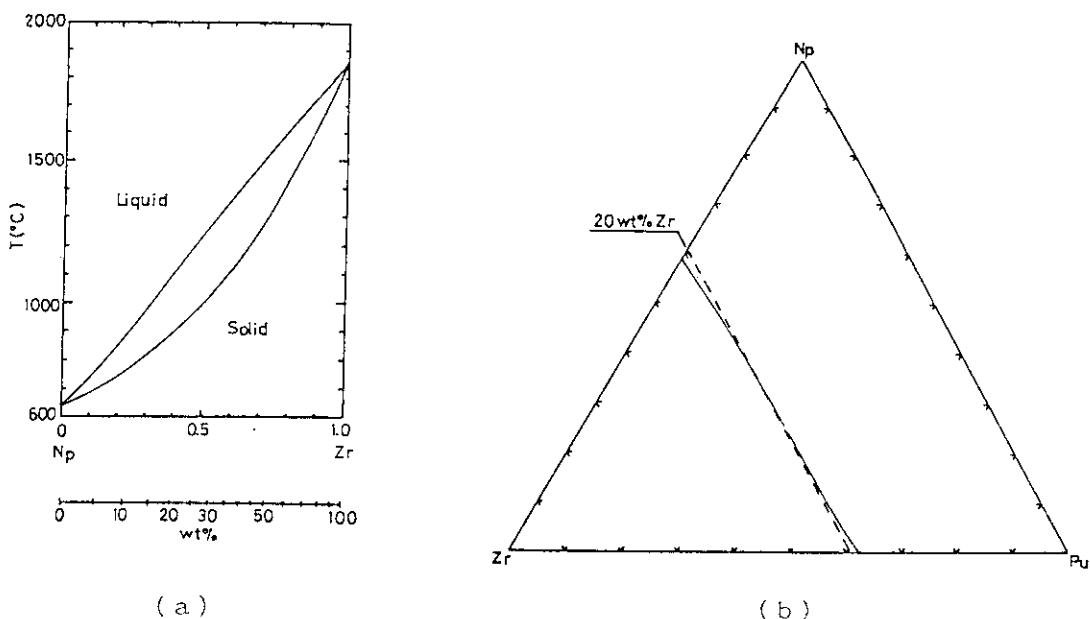


Fig. 2.5 Predicted Binary and Ternary Phase Diagrams. (a) Solid-Liquid Equilibrium in Np-Zr System. (b) Calculated Solidus (Solid Line) Lies along 20 wt% Zr Composition Line (Dashed Line) in Np-Pu-Zr System at 900°C.

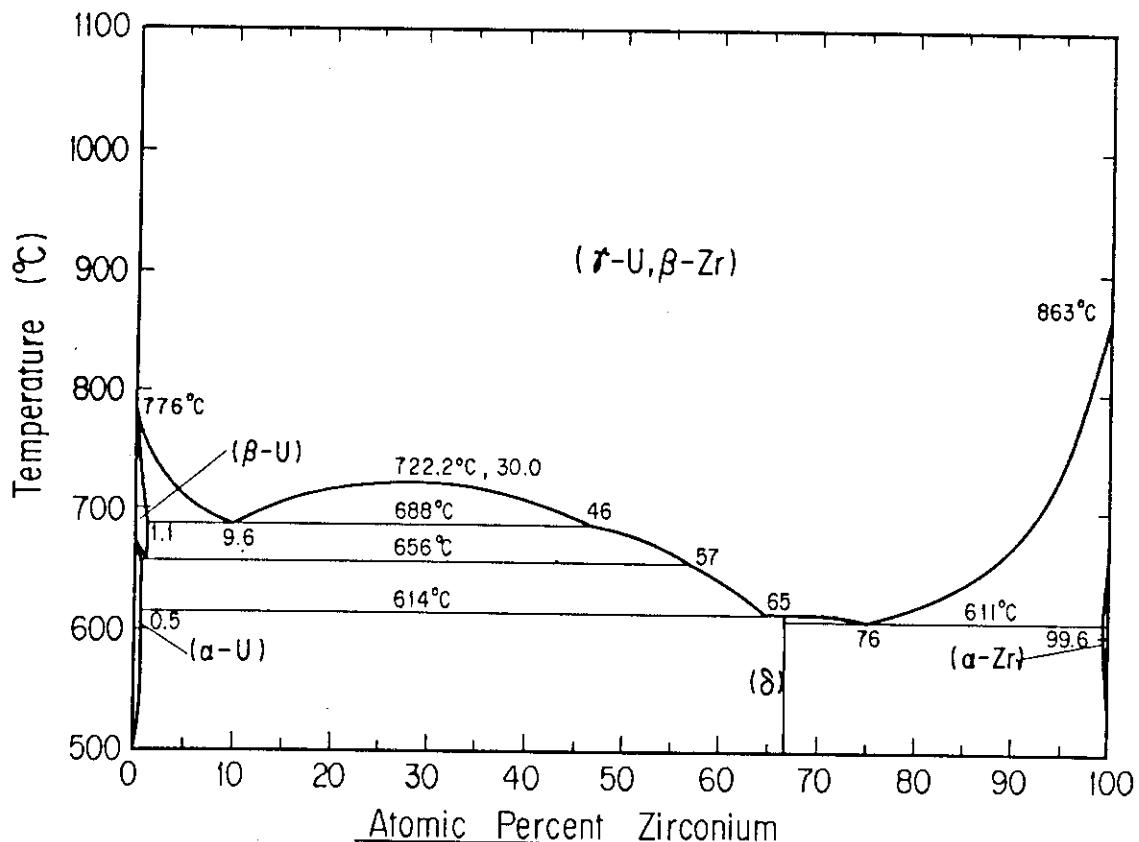


Fig. 2.6 Phase Diagram of U-Zr System Modelled for Metal Fuel Performance Analysis.

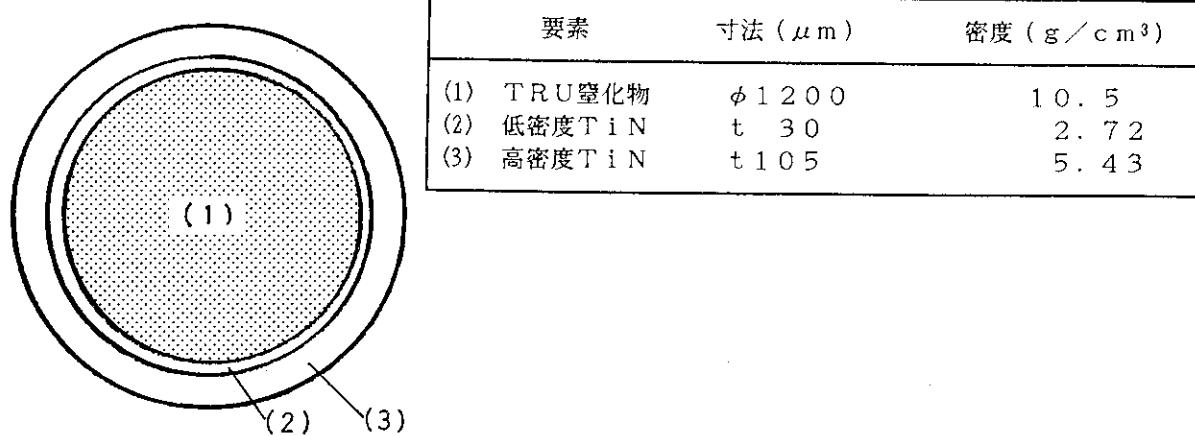


Fig. 2.7 Cross Section of TRU Particle Fuel.

3. TRU燃料サイクル

TRU燃料は高い α 崩壊熱と中性子放出率とを有するので、長距離の輸送は非常に困難になるであろう。したがって、燃料サイクル施設は専焼炉と一体化しえるコンパクトなものとなることが望ましい。ここでは高温化学再処理法を採用することを前提として、燃料の製造・再処理・再加工の各工程の成立性と問題点とを検討した。TRUを酸化物燃料として発電炉にリサイクルした場合の燃料サイクルについては、既に欧米における検討がある²⁴⁾。しかし、専焼炉についてのこの種の検討は、ここにおける作業が初めてのものであろう。発電炉へのリサイクル法としては、燃料全般に低濃度でTRUを含ませる均質リサイクルと、限られたターゲット燃料要素あるいは特定の炉心のみに高濃度で含ませる非均質リサイクルとがある。ここでの検討事項の多くは、発電炉への非均質リサイクルにも多分に共通するものと考えられる。

3.1 TRU金属燃料サイクル

大型発電炉10基からの廃棄TRUの消滅処理を想定して、TRU燃料サイクルの概略をFig. 3.1にまとめた。TRU燃焼率を仮に15at%とすると、設備の実質稼働率を低めに30%としても、燃料サイクル施設が処理しなければならないTRU金属は日量15kg、容積にして約1000ccに過ぎない。したがって、アクチノイドを合金や高温融体として扱う高温化学再処理法²⁵⁾を用いると、施設はかなり小規模なものとなる可能性がある。言い換えれば、TRU消滅処理の経済性は、高温化学再処理法の成立性に大きく依存している。一方、どのような再処理法を用いても、ある割合のTRUが廃棄物とともに系から漏洩することは避けることができない。この廃棄物中に混入するTRUは、専焼炉の中を通過しているために、初期のTRUとは異なって比較的半減期の短い²³⁸Pu等を多く含んでいる。この漏洩量を極めて低く抑えないと、消滅処理に伴って廃棄物からの短期リスクが増大することになる。これらの問題については、基礎化学の立場から原理的な検討を行った。

3.1.1 群分離塩からのTRU金属の製造

現在主に考えられている群分離プロセスでは、Npと(Am, Cm)とはそれぞれ別々に取出される²⁶⁾。Np金属の製造に関しては、最適化可能と考えられるプロセスが幾つか存在するのでここでは特に検討しない。例えば、フッ化物のボム還元法によって1バッチ400gの還元がなされている²⁷⁾。これは既にFig. 3.1で想定している日処理量にほぼ対応している。

しかし、Am, Cmについては、現在実験室的に行われている還元プロセス²⁷⁾はいずれも、スケールアップが容易ではない。(1) フッ化物のボム還元はフッ素の(α , n)反応が問題となる。(2) 酸化物をLaやThで還元する方法は大きな発熱を伴うので、1バッチ50g以上の試料の処理には適さない²⁸⁾。(3) 白金を触媒として酸化物を水素還元する方法は高温と大量の水素の取扱いとを必要とする。ただし、(3)の方法は、もし白金を再使用できれば廃棄物量低減化と

いう意味で魅力的である。

米国では軍用 Pu 金属の量産に、酸化物の Caによる直接還元法を用いている²⁹⁾。同法では、Caとともに CaCl₂を系内に添加しておき、反応副成物の CaOを溶融塩化物中に溶解除去する。この方法は TRU一般について適用可能性があるであろう。もう 1つの可能性は炭化物の溶融塩電解である。TRU酸化物をまず熱炭素還元法によって炭化物に転換し、炭化物を電解して TRU金属を陰極に析出する。炭化物の溶融塩電解はウランについては実験室規模での実施例が存在する³⁰⁾。群分離からの Am, Cmは Eu 等の希土類 FPを相当量含み得るが、これら希土類 FPは高エネルギー γ線源として作用する。還元工程では、この希土類の分離がある程度行われることが望ましく、この意味からも溶融塩電解法の応用が期待される。ただし、直接還元法も溶融塩電解法も、廃棄溶融塩からの微量の TRU の回収を大きな課題とする。

3. 1. 2 高温化学再処理

経済性の問題の他にも、Na ボンドの存在、大きな α崩壊熱、臨界管理等の要素を考えたとき、合金燃料の再処理法としては高温化学法が適している。高温化学的な方法のうち U 合金燃料の再処理法としては溶融塩電解法が最も有望と考えられている²⁵⁾。

Pu を除く TRU の高温化学処理に関してはほとんどデータが存在しない。が、AmがFPの希土類と良く似た化学的性質を有していることから、両者の分離可能性が特に懸念される。溶融塩電解において重要な因子は分離係数 (SF) である。ある対象元素 A が陰極上に電解析出する過程では、不純物 M の Aに対する分離係数が 1より大きいほど、M は A から分離されて溶融塩中にとどまる可能性が大きくなる。逆に、分離係数が 1より小さいほど、不純物 M は陽極中に取残される可能性が大きい。

ここでは、液体 Cd と LiCl-KCl 溶融塩とからなる系について、分離係数を予測した。この系が必ずしも最適な系というわけではなく、熱力学的なデータが比較的良くそろっていることから検討の対象とした。Table 3.1 では、Uを標準物質として分離係数を表示してある。Amについては不確実性が大きいが、Uに対する分離係数は 0.04-30である。これに対して希土類の分離係数は 50-4000 程度である。すなわち、希土類の Amに対する分離係数は、少なくとも Nd について約 2 から Prについて約 100 程度と予測される。

これらの分離係数が持つ具体的な意味は、Table 3.2 に例示されている。燃焼率 20% の Am を電解処理するとして、希土類の Am からの分離係数が平均 40 あれば、回収 Am 中の希土類含有量は 2 at% 程度まで低下する。すなわち、十分許容できるであろう程度の量まで低下する。しかし、このときの Am 回収率は 98% であって、不足分の 2% は溶融塩中に残留する。希土類の除染係数を著しく劣化させることなく、この回収率を上げること、また、溶融塩中に残留する Am の回収が、将来の重要な研究課題となる。

3. 1. 3 照射済み TRU 燃料の特性

TRUの中では、半減期 163 日の ²⁴²Cmが 120 W/g と極めて大きな α崩壊熱を有する。このため、照射済み TRU 燃料の再処理は、2 年程度の冷却を経なければまず不可能である。しかし、その後も Am-Cm-Y 燃料では主に半減期 18 年の ²⁴⁴Cm の存在のために、0.5 W/g 程度

の発熱が長期にわたって持続する。

ここで検討の基礎としたTRUならびにPuの組成をTable 3.3に示す。これは、濃縮度3.3wt%のUO₂をPWRで33GWd/Tまで燃焼させ、3年冷却後再処理して99.5%のU、Puを回収し、さらに5年冷却後TRU(Np, Am, Cm)を群分離した場合の組成に対応している。このTRU組成に臨界調整のためのPuを添加して第1サイクルの装荷燃料組成とし、第2サイクル以後は燃焼による重金属減損分だけ新たに同表の組成のTRU(Puを除く)で補うものとした。なお、燃焼計算の詳細は別報²⁶⁾に述べてある。

Table 3.4に燃焼率約17%，冷却2年におけるTRU燃料の特性をまとめた。また、Table 3.5には、同燃料中のアクチノイド組成を、Table 3.6には放射能の構成を示した。

γ 線強度はFPによって支配されるが、Am-Cm系燃料ではTRU自体からの γ 線もかなり強くなる。2年冷却前後における発熱は、Am-Cm系では主として²⁴⁴Cmによって、また、Np系では²³⁸Puによって支配される。表から、Np系燃料の発熱も平衡サイクルでは決して小さくないことが分かる。言うまでもなく、照射直後ではFPの β/γ 崩壊熱が圧倒的に大きい。しかし、TRUの α 崩壊熱とFP崩壊熱とは、Am-Cm系では照射後数10日で、Np系では照射後約1年で逆転する。中性子放出率はいずれの合金系においても、²⁴⁴Cmの自発中性子が大部分を占める。

3.2 金属燃料サイクル施設の工学的概念検討

燃料サイクル施設としての工学的成立性に関しては、過去のEBR-IIならびに最近のIFR概念²⁴⁾の燃料再処理・再加工に関して調査するとともに、三菱重工業㈱、三菱原子力工業㈱への委託調査結果をもとに検討を行った。3.1節で論じたように、TRUの高温化学再処理を始めとしてプロセスの詳細については、今後の研究に待たなければならない点が多い。ここでは、U系合金燃料と同様な手法がTRU燃料にも適用できるものと仮定し、ANLで開発された高速炉用金属燃料サイクル概念をモデルとして適用した。そして、その際にTRUの特殊性から来る問題点に関して注意を払った。特に、各プロセスの工学的な問題の焦点となるのは、TRUの大きな α 崩壊熱の存在である。

3.2.1 検討の前提

上部燃料サイクルを3410MWt PWR 10基、平均燃焼度33GWd/T HMとする。

TRU専焼炉インベントリーは約800kgHM/炉心とし、うち、約370kgがAm-Cm系、約430kgがNp系合金である。重金属組成等の特性はTable 3.4～6に示してある。燃料集合体は91ピンから成り、181体/炉心とした。プラントは専焼炉5モジュールから成るものと仮定し、燃料は0.5年毎に1炉心をそっくり交換する。TRU燃料の炉内滞在期間は2.5年とし、稼働率80%で燃焼率約17%とする。再処理は2年冷却後を行い、再処理・再加工能力としては1.6tHM/年(2炉心分/年)を要する。燃料サイクル施設の稼働率は50%を仮定する。Table 3.7に1日の処理量を示した。

なお、再処理工程ではアクチノイド間の化学分離は必要としないが、現時点での状態図予測

結果（2.1節）に基づいて、Am-Cm系とNp系との2系列の合金燃料は終始別々に取扱われるものとする。ただし、群分離塩からの金属の製造と、ブランケットの劣化ウランの処理との2つについては、今回の施設の内容には含めていない。プロセス機器の取扱いには高度な自動化を想定しつつ、通常のマニピュレータによる操作性も確保することを前提とする。しかし、自動化に関する具体的検討は将来の課題として残している。

3.2.2 施設の概略

プラントは専焼炉プラントに隣接して設置し、別に廃棄物建家を附設する。照射済燃料は専焼炉プラント側の燃料貯蔵プールから移送し、燃料サイクル施設側で付着Naを除去したのち、キャスク受入れセルを通して解体・剪断セルに搬入する。建家は主要構造を地下1階、地上2階の鉄筋コンクリート（一部鉄骨鉄筋コンクリート）構造とし、プロセス・セルは地階に置く。地上階には、プロセス機器補修、化学分析、空調、電気、その他の関連設備を配する。Fig. 3.2に、基本的な工程の流れを、また、Fig. 3.3にこの施設における物流動線図を示した。

配置計画および以下に述べる工程、遮蔽等の概念的な検討に基づいて、建屋体積は約7万m³と割出された（廃棄物建屋は含まない）。なお、同様なプロセス概念に基づく金属燃料高速炉の燃料サイクル施設の建屋体積は1万m³/100万kWe程度と推定されている。検討の成熟度合いを考えると、両者の単純な比較はあまり意味をなさないであろう。しかし、TRU合金燃料が大きな崩壊熱と中性子放出率とを有すること、おそらくはAm-Cm系とNp系との2つの系列に分けて扱う必要があると予想されることから、相対的に施設規模が大きくなってしまう傾向がある。

3.2.3 工程の概要

工程は大きく分けて、高温化学再処理工程（Fig. 3.4）と燃料集合体製造工程（Fig. 3.5）とから成る。燃料ピン封入までは高純度アルゴン雰囲気とし、封入後も乾燥窒素雰囲気を要する。以下には、高速炉用金属燃料と共通する部分は省略し、同様なプロセス上でTRUを扱うことによく特殊性を中心に述べる。

燃料移送 Naポット移送方式もしくはArガス循環冷却方式により、強制冷却しつつ移送する。なお、1960年代のEBR-IIにおける高温冶金再処理法の実証試験³¹⁾では、燃焼率約2at%の燃料体を照射後15日で付属の再処理建家に搬入していた。燃焼率2at%，照射後15日の照射済みU合金燃料の発熱は、ここで考えているTRU合金燃料の発熱とほぼ等しい。崩壊熱は燃料を溶かすのに十分だったので、搬出には特殊な移送容器を用いていた。移送容器は燃料体1体を収め、バッテリ駆動型Arガスプロワと、緊急冷却用の水銀注入装置とを備えている。近い将来におけるIFR概念の実証試験でもこの同じ移送容器の使用が予定されている。

解体・剪断 溶融塩電解のための前処理では、被覆管と燃料とを分離する必要はない。しかし、Naの飛散を防ぎつつ燃料の冷却を確保するための工夫を必要とする。これはトラップ付きの吸引プロワ冷却によって行うことができる。

高温化学再処理 高温化学再処理工程（Fig. 3.4）では、Am-Cm系とNp系との2種類の燃料の処理を、2系列に分離して行う。電解槽は各系列2基ずつ設置し、1基で1集合体分の燃

料（4～5 kgHM）を処理できる。Am-Cm系では α 崩壊熱により約2 kW／槽の発熱があるので、電解槽容器壁を500°C程度に保つためにArガス強制循環冷却を必要とする。陰極は液体Cdを耐火物ルツボに収めたものを用いる。TRUの発熱から、1つの電解槽あたり陰極は少なくとも2個を並置することが必要である。崩壊熱のために、電解後にルツボを適当な温度まで冷却して、固化したCdの上面に残った溶融塩を流し落とすことは不可能である。これについて新たな工夫を必要とする。一方、ルツボからのCdの蒸留分離は崩壊熱を利用して行うことが可能である。電解槽1基の寸法は直径40cm程度にすぎないであろう。また、溶融塩装荷量は1槽当たり40～50kgと予測される。

鋳造 鋳造（インジェクション・キャスティング）工程に入るまでのTRU金属インゴットはルツボに入れたまま、冷却しつつ固体状態を保って移送・保管する。が、十分な冷却を行うことは、1集合体分の重金属を1つのルツボに収めた状態では容易ではない。合理化策として、溶融塩電解、Cd蒸留からキャスティングまでを1体化したユニットで扱う方法を開発すべきである。1つ1つの工程は単純であるので、これは技術的に不可能ではないであろう。

インジェクション・キャスティングに関するもう1つの問題は、鋳型として用いられる石英ガラス上のTRU残渣の回収である。これについては、金属燃料高速炉でも計量管理にかかわる問題として意識されているが、完全には解決されていないようである。ZrやYの金属鞘に鋳込み、鞘付きのまま被覆管に装荷するという方法も考えられるが、寸法・形状管理は石英ガラス型の場合に比べて困難になるであろう。

燃料集合体製造 Fig.3.5に燃料集合体製造工程の概念図を示す。TRU燃料スラグおよびボンドNa装荷後の工程では、燃料要素は縦置きとして扱われる。というのは、崩壊熱のためにボンドNaは溶融してしまい、燃料スラグがピンの中で偏芯する恐れがあるからである。完成了燃料要素1本については、自然循環と幅射とによって十分に冷却できる。

完成了燃料要素を集合体に組み上げ、さらに検査終了までに要する時間は約4時間／体と評価される。集合体取扱い時の熱除去の問題は別報¹⁹⁾で検討されている。集合体の冷却にはArガスプロワによる強制冷却を必要とする。冷却喪失から被覆管の破損開始までは2分程度の余裕があるので、それ以内に補助電源を立上げれば良い。しかし、全電源喪失時を考慮すれば、溶解した燃料体を保持するメルトダウンカップをセル床面に用意する必要がある。集合体組立て・検査時には既に揮発性核分裂生成物は燃料内には存在しないが、Amの比較的高い蒸気圧については警戒する必要がある。

廃棄物処理 主要な廃棄物をFig.3.6に分類した。トリチウムは90%が炉内で冷却材に移行していると仮定すると、約6,000 Ci/y、⁸⁵Krは約60,000 Ci/yの施設発生量となる。

高温化学再処理の弱点として、使用済み塩化物の廃棄法が確立されていないことが挙げられる。塩化物からのTRUの回収にはCd-Li液体合金による還元が考えられている。しかし、TRU回収後もFPの大半を含む塩化物をどのように貯蔵・処理・処分すべきかは今後の課題である。

3.2.4 遮蔽と臨界管理

遮蔽 再処理施設の先行例にならって、目標線量率を非管理区域で0.178 mrem/h以下、管理

区域内セル周辺の作業エリアで 0.625 mrem/h 以下とする。比重 2.15 程度の普通コンクリートを用い、1 セル内取扱い量として TRU 燃料 2 体分を想定する。結果を Table 3.8 および 3.9 に示した。決定線源と必要遮蔽厚は、Am-Cm 系の場合は中性子線で約 2 m, Np 系の場合は γ 線で約 1.6 m である。U 合金燃料を用いた高速炉燃料サイクル施設でも、高温化学再処理の除染率が低いために、ほぼ全工程を厚さ約 1.5 m のコンクリートを介して遠隔で行うことになる。したがって、TRU が大きな中性子放出率を有するとは言え、生体遮蔽に関しては特別大きな困難を生じるとは考えられない。しかし、中性子照射場における種々の遠隔操作機器の信頼性に関しては、新しい問題が発生する可能性は考えられる。

臨界管理 TRU 燃料の臨界未満質量については別報³⁶⁾で計算されている。臨界管理の点では、熱中性子核分裂断面積の極めて大きな^{242m}Am を多く含む Am-Cm 系の方で厳しい値となる。極めて保守的に、水と平衡サイクル TRU との均質混合を仮定した場合には、臨界未満質量は 3.5 kg 重金属となる。しかし、重金属インゴットの周囲を、単に反射体が取巻いた条件では約 12 kg 重金属である。Am-Cm 系燃料集合体 1 体（燃料ピン 91 本）の重金属量は約 4 kg である。また、高温化学再処理に基づく施設ではセル内では冷却水の類は一切用いない。したがって、各工程取扱い量を 1 ~ 2 集合体に限るとともに、装置配置やインゴットの形状管理を適切に行うことによって臨界安全は確保できると考えられる。工程取扱い量は α 崩壊熱の方から厳しい制限が加わるので、高温化学再処理法による限りは臨界安全性は制限因子として副次的であろう。

3.3 粒子燃料の製造と再処理

高温ガス炉用被覆燃料粒子の遠隔製造技術については、Th-²³³U サイクルに関して ORNL で開発されている³²⁾。同技術の相当部分は TRU 粒子燃料の製造にも応用できるであろう。TiN 被覆は約 1000 °C で化学蒸着によって製造でき、高温ガス炉燃料の SiC 層の蒸着（1500 °C 以上）よりむしろ低温で優良な被覆が得られる。ただし、TRU 窒化物微小球の製造技術は新たに開発される必要がある。UN 微小球は従来からのゾル・ゲル法を基礎として試作されている^{33,37)}。しかし、ゾル・ゲル法による微小球の製造では、原液中の重金属含有量として~2 mol / l 程度が必要である。このとき TRU の大きな α 崩壊熱は原液を著しく不安定にする要因となる。

窒化物燃料についても、溶融塩電解を基礎とする高温化学再処理法は適用可能であると考えられる。被覆を機械的に破壊した後、例えば ZnCl₂ を酸化剤として TRU 窒化物燃料核だけを選択的に溶融塩中に取込むことが可能である。このとき、TiN 被覆層は酸化されずに残される（Fig. 3.7）。

窒化物製造に天然窒素を用いた場合、¹⁴N の (n, p) 反応によって生成する¹⁴C は半減期 5745 年であり、それ自体が環境上の問題となりえる。¹⁵N の濃縮に伴う核エネルギー経済上の利得は高速炉用混合窒化物燃料に関して検討されているが、現状の濃縮能力はたかだか 10 kg¹⁵N / 年程度であると言われている。したがって、¹⁵N (99% 濃縮) の価格も約 70,000 \$ / kg (1975 年) と著しく高い³⁴⁾。ただし、上記のような溶融塩電解法を用いると、¹⁴C は FP の Zr と結合して化学的に安定な ZrC として残留する可能性がある。

なお、窒化物は酸化物や炭化物と異なり (α , n) 反応をほとんど起こさない³⁵⁾。 ^{14}N の (α , n) 反応は吸熱であり、そのしきい値は 6 MeVである。 ^{15}N の (α , n) 反応は不可能である。T R U 燃料では ^{244}Cm の自発中性子が圧倒的であるので、このことは実用上大きな意味を持つない。しかし、必ずしも Cm の取扱いを要さないような関連基礎研究の場では意味を持ってくるであろう。

Table 3.1 Prediction of Separation Factors (SF) Referring to Uranium.
(liquid Cd and LiCl-KCl eutectic melt at 773K.)

元素	K	γ_{MCl_3}	γ_M	分離係数
Yおよび希土類				
Y	9.9×10^7	9.0×10^{-6}	$(7 \times 10^{-9} - 5 \times 10^{-7})$	9 0 - 6 0 0 0
La	6.3×10^{12}	0.26	3.5×10^{-9}	1 0 0
Ce	2.0×10^{11}	(0.02)	1.1×10^{-8}	1 0 0
Pr	3.3×10^{11}	(0.002)	2.0×10^{-8}	4 0 0 0
Nd	2.2×10^9	0.001	2.3×10^{-8}	5 0
アクチナイド				
U	1	(0.1)	88	1
Np	140-260	(0.02)	(0.002-0.05)	0. 0 2 - 0. 7
Pu	9×10^5	(0.005)	1.3×10^{-4}	3 0
Am	$(2-3) \times 10^7$	(6×10^{-4})	$(1 \times 10^{-9} - 5 \times 10^{-7})$	0. 0 4 - 3 0

$$\text{分離係数 (SF)} = K \left(\frac{\gamma_{\text{UCl}_3}}{\gamma_U} \right) \left(\frac{\gamma_{\text{MCl}_3}}{\gamma_M} \right)$$

$$K = e \times p \left(\frac{(\Delta G^\circ_{\text{UCl}_3} - \Delta G^\circ_{\text{MCl}_3})}{RT} \right)$$

ΔG° : 塩化物の生成の自由エネルギー

γ_{MCl_3} : 溶融塩中の塩化物の活量係数

γ_M : 液体 Cd 中の金属の活量係数

Table 3.2 Prediction of Recovery Yield of Am and Separation of Rare Earths.
(Am-metal anode initially contains 10.5 at% rare earths; cathode
is 50 mol liquid Cd. The 10 at% of initial metal is oxidized
into fused chloride.)

陽極	溶融塩浴	陰極
不純物 $S F \ll 1$	不純物 $S F \gg 1$	アクチナイド

分離係数	Am回収率 (%)	希土類含有量 (at%)
2.5	9.4	6.1
10	9.6	3.5
40	9.8	1.8
100	9.8	1.1

Table 3.3 TRU and Plutonium Composition Assumed in this Study.

T R U 組成		P u 組成	
核種	含有率	核種	含有率
^{237}Np	56.18(w%)	^{238}Pu	1.57(w%)
^{241}Am	26.40	^{239}Pu	49.51
^{243}Am	12.00	^{240}Pu	35.78
^{242}Cm	0.0	^{241}Pu	8.49
^{243}Cm	0.03	^{242}Pu	4.65
^{244}Cm	5.11		
^{245}Cm	0.28		
重量	25.82kg	重量	1.79kg

注) 初期装荷時のみ P u
を混ぜる。

Table 3.4 Some Characteristics of Irradiated TRU Fuel at 17.3 at% Burnup after 2 Years Cooling.

	(Am, Cm, Pu)-Y		(Np, Pu)-Zr	
	第1サイクル	第8サイクル	第1サイクル	第8サイクル
γ 線強度 (MeV/s · gHM)				
FP	$5.3 \cdot 10^{10}$	$5.2 \cdot 10^{10}$	$6.2 \cdot 10^{10}$	$6.6 \cdot 10^{10}$
Actinide	$2.7 \cdot 10^9$	$3.1 \cdot 10^9$	$2.0 \cdot 10^8$	$4.4 \cdot 10^8$
Structural Material	$8.8 \cdot 10^8$	$1.0 \cdot 10^9$	$1.3 \cdot 10^9$	$1.5 \cdot 10^9$
熱出力 (W/gHM)				
FP	0.029	0.028	0.033	0.035
Actinide	0.47	0.62	0.066	0.15
Structural Material	$1.6 \cdot 10^{-4}$	$1.8 \cdot 10^{-5}$	$2.3 \cdot 10^{-4}$	$2.7 \cdot 10^{-4}$
中性子放出率 (n/s · gHM)	$1.2 \cdot 10^6$	$1.8 \cdot 10^6$	$3.9 \cdot 10^3$	$1.7 \cdot 10^4$

Table 3.5 Actinide Composition in Irradiated TRU Fuel at 17.3 at% Burnup after 2 Years Cooling. (Unit: Atomic Fraction)

	(Am, Cm, Pu)-Y		(Np, Pu)-Zr	
	第1サイクル	第8サイクル	第1サイクル	第8サイクル
U - 2 3 4			0.003	0.039
- 2 3 5				0.004
N p - 2 3 7	0.002	0.007	0.625	0.569
P u - 2 3 8	0.061	0.134	0.113	0.264
- 2 3 9	0.150	0.039	0.114	0.068
- 2 4 0	0.157	0.174	0.106	0.038
- 2 4 1	0.025	0.013	0.019	0.004
- 2 4 2	0.033	0.069	0.015	0.007
A m - 2 4 1	0.306	0.232	0.004	0.003
- 2 4 2 m	0.019	0.033		
- 2 4 3	0.130	0.094		
C m - 2 4 2	0.0007	0.0006		
- 2 4 3	0.0008	0.0001		
- 2 4 4	0.107	0.154	0.0001	0.001
- 2 4 5	0.008	0.023		
- 2 4 6	0.0001	0.0024		

Table 3.6 Radioactivity (Ci/gHM) of Irradiated TRU Fuel at 17.3 at% Burnup after 2 Years Cooling, Excluding that from Actinides. (Values after 8th Cycle)

	(Am, Cm, Pu)-Y	(Np, Pu)-Zr
H - 3	0. 0 0 3 3	0 . 0 0 4 1
C - 1 4	6 . 4 x 1 0 ⁻¹⁰	7 . 8 x 1 0 ⁻¹⁰
K r - 8 5	0 . 0 2 9	0 . 0 3 6
I - 1 2 9	2 . 5 x 1 0 ⁻⁷	3 . 0 x 1 0 ⁻⁷
Z r / N b - 9 5	0 . 0 0 8 6	0 . 0 1 0
Y + R E *	2 . 7 9	3 . 3 8
Structural Material	0 . 0 4 2	0 . 0 6 3
T o t a l	7 . 4 2	9 . 0 7

* Rare earths

Table 3.7 Required Plant Capacity for Treating TRU from Ten 1000MWe-PWR.

成 分 組 成	AmCm系燃料（2体分）	Np系燃料（2体分）
TRU	6.90 kg	7.76 kg
F P	1.41 "	1.58 "
Z r or Y	0.44 "	2.34 "
N a	0.75 "	0.63 "
Clad等	32.79 "	27.87 "

Table 3.8 Source Strength of Irradiated TRU and Required Shielding.

燃料種類量	項目	線源強度		0.625mrem/hに対する必要遮蔽厚(普通コンクリート)	
		点線源強度	線源強度	点線源	線線源
Am-Cm系 燃料部長29cm 2体分 (HM:8.138Kg)	中性子線源*	$1.5 \times 10^{10} \text{n/s}$	$5.2 \times 10^8 \text{n/s} \cdot \text{cm}$	130cm	195cm
	全ガンマ線源**	$6.2 \times 10^4 \text{Ci}$	$2.1 \times 10^3 \text{Ci/cm}$	136cm	156cm
	アクチノイド以外	$6.2 \times 10^4 \text{Ci}$	$2.1 \times 10^3 \text{Ci/cm}$	136cm	156cm
	アクチノイド***	$9.9 \times 10^1 \text{Ci}$	3.4 Ci/cm	83cm	98cm
Np系 燃料部長38.4cm 2体分 (HM:9.346Kg)	中性子線源*	$1.2 \times 10^8 \text{n/s}$	$3.0 \times 10^6 \text{n/s} \cdot \text{cm}$	90cm	120cm
	全ガンマ線源**	$8.6 \times 10^4 \text{Ci}$	$2.2 \times 10^3 \text{Ci/cm}$	140cm	157cm
	アクチノイド以外	$8.5 \times 10^4 \text{Ci}$	$2.2 \times 10^3 \text{Ci/cm}$	140cm	156cm
	アクチノイド***	$7.8 \times 10^2 \text{Ci}$	$2.0 \times 10^1 \text{Ci/cm}$	100cm	114cm

* 未臨界増倍は考慮していない(概略評価のため)。

** (アクチノイドを除くCi)/(gHM値)に下記の値を加算して求めたもの。

*** ギ線エネルギーを1MeVとして求めたもの。

Table 3.9 Limiting Dose and Required Shield (Normal Concrete) Thickness.

燃料種類	量	必要遮蔽厚(普通コンクリート)					
		50mrem/h		0.625mrem/h		0.178mrem/h	
		点線源	線線源	点線源	線線源	点線源	線線源
Am-Cm系	1体		122cm		185cm		205cm
	2体		131cm	136cm	195cm		215cm
Np系	1体				148cm		160cm
	2体			140cm	157cm		

注・空欄は未評価を示す(主要壁厚評価上は不要な為)。

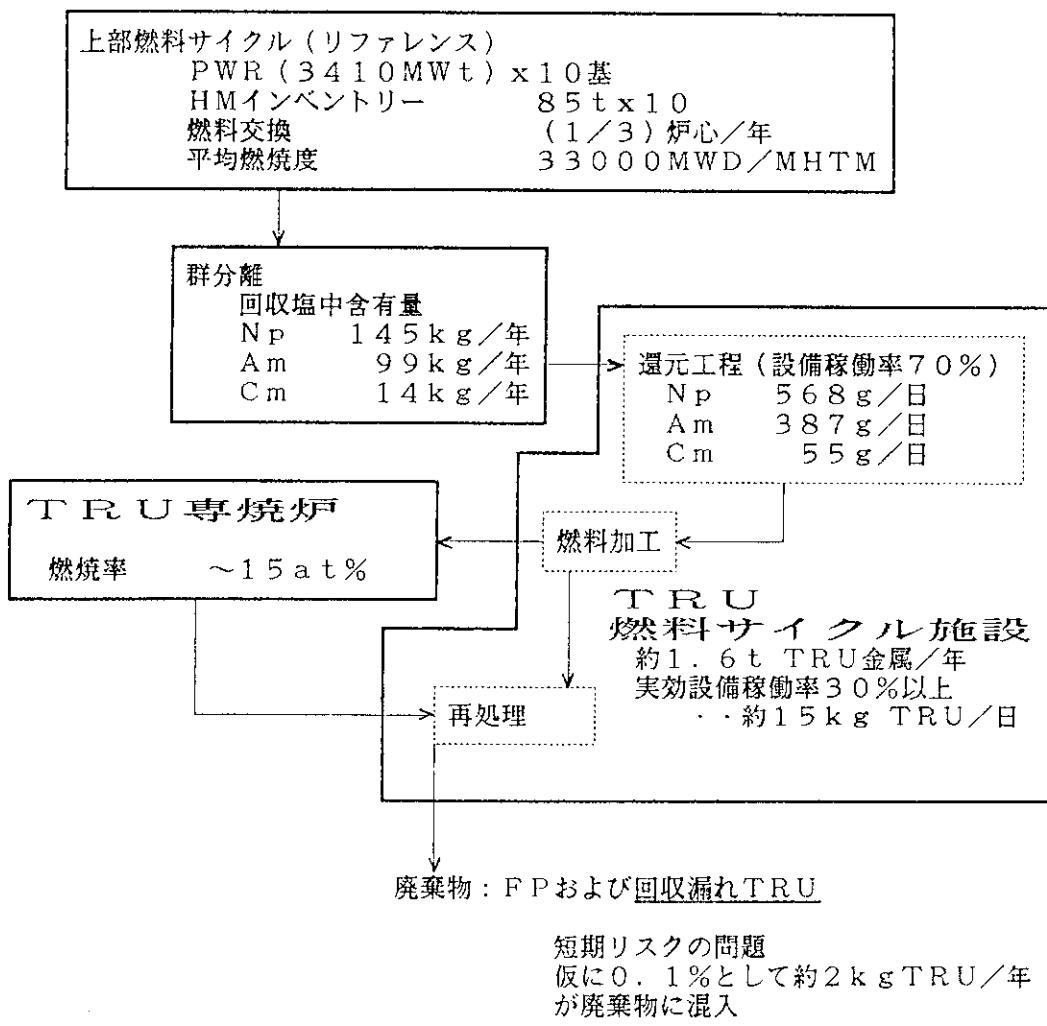


Fig. 3.1 Outline of TRU Fuel Cycle.

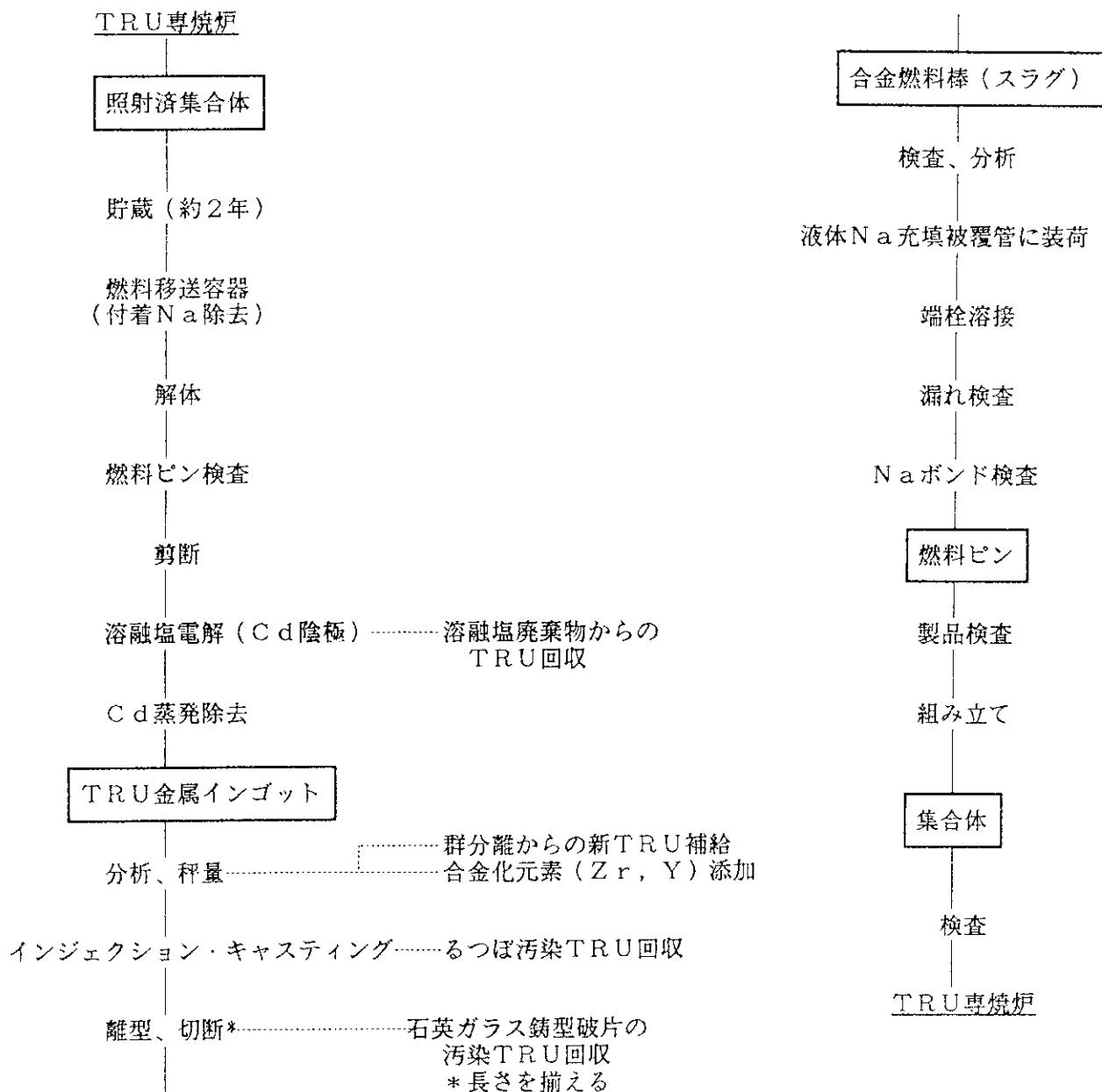
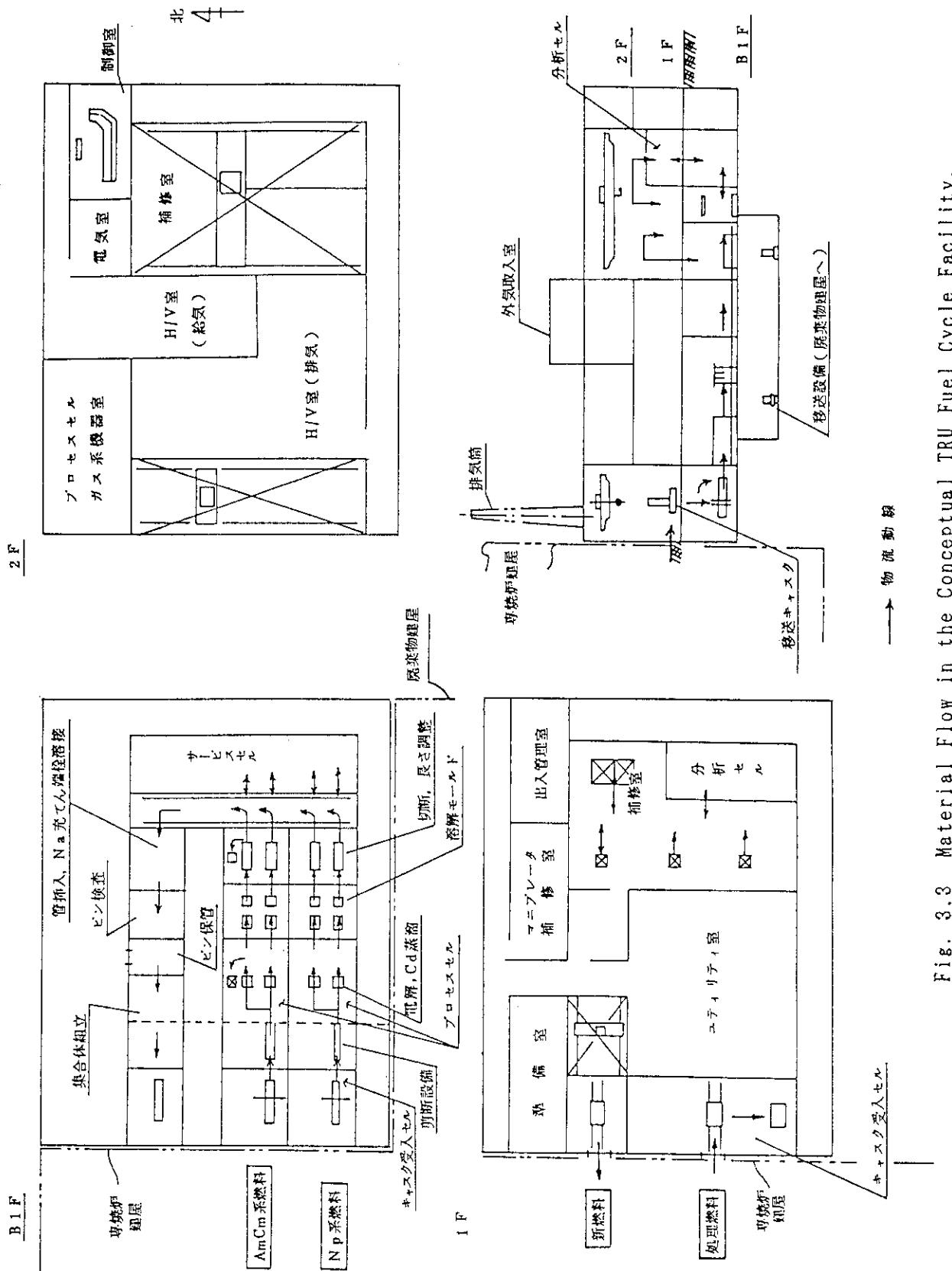


Fig. 3.2 Process Flow from Reprocessing to Refabrication of TRU Fuel.



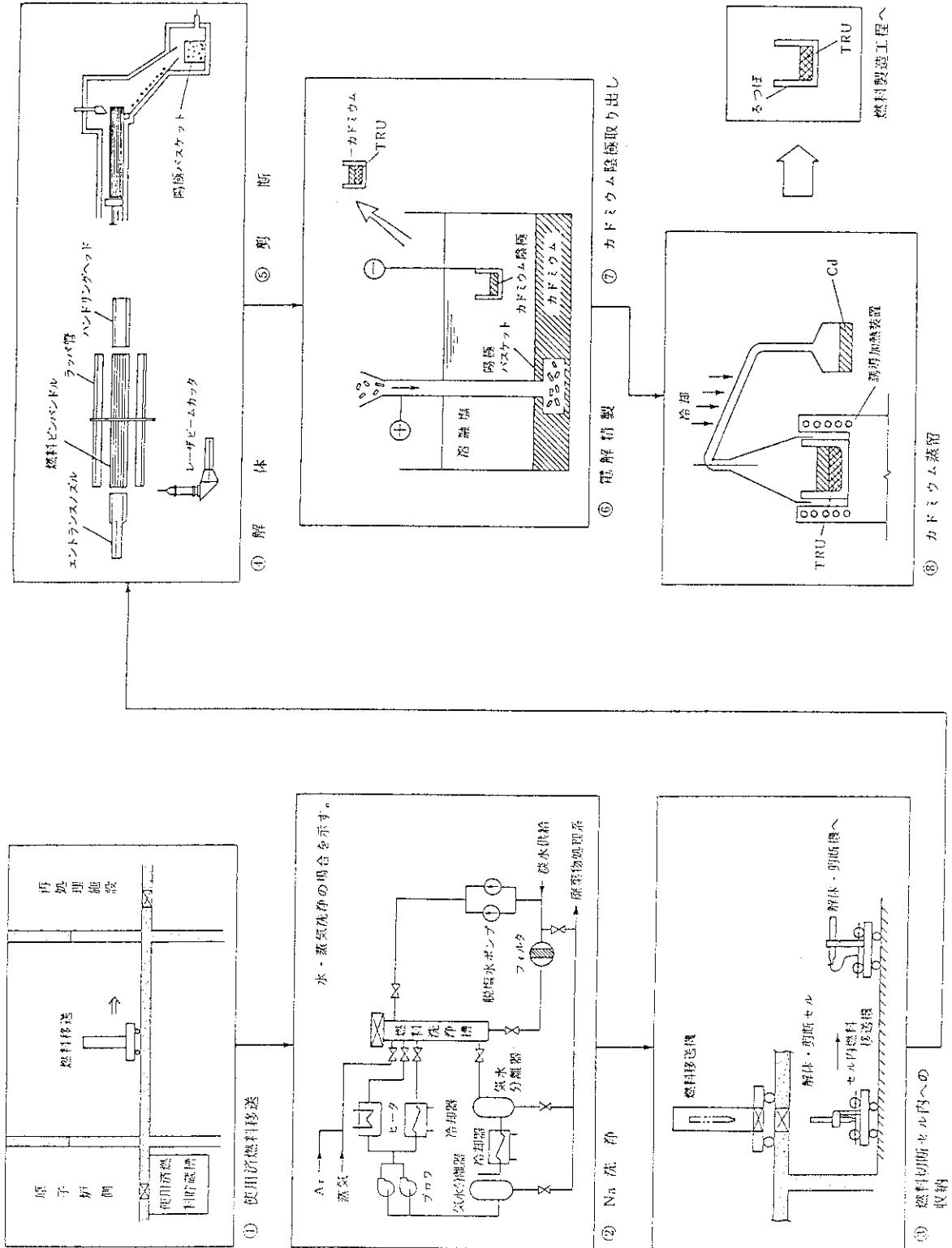


Fig. 3.4 Conceptual Drawing of Pyrochemical Reprocessing of TRU Metal Fuel.

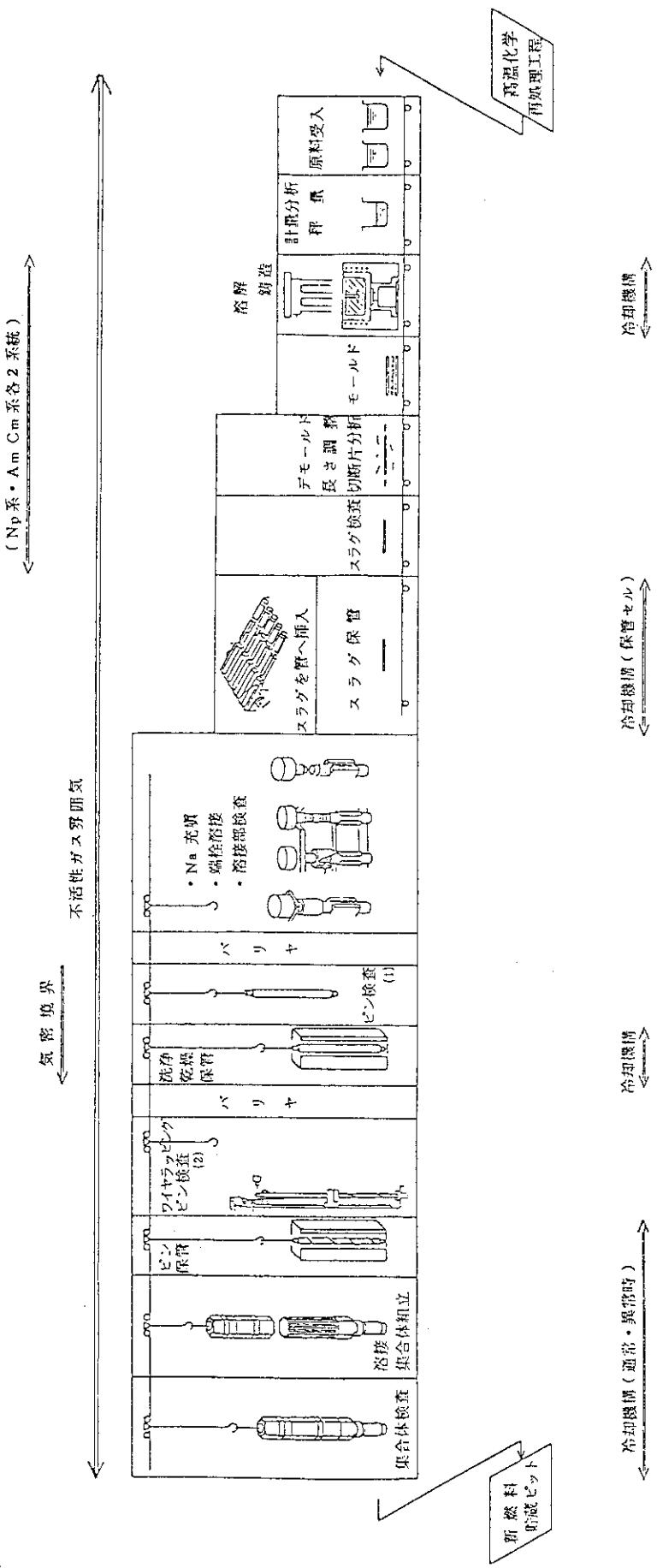


Fig. 3.5 Conceptual Drawing of TRU Metal Fuel Refabrication.

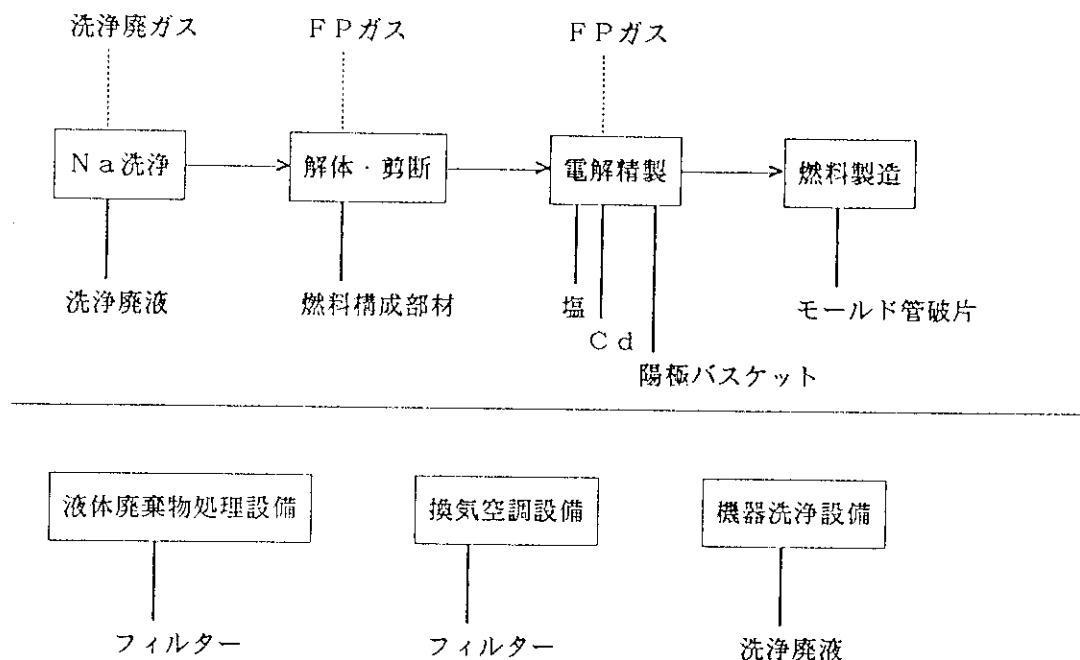


Fig. 3.6 Wastes from TRU Fuel Cycle Facility.

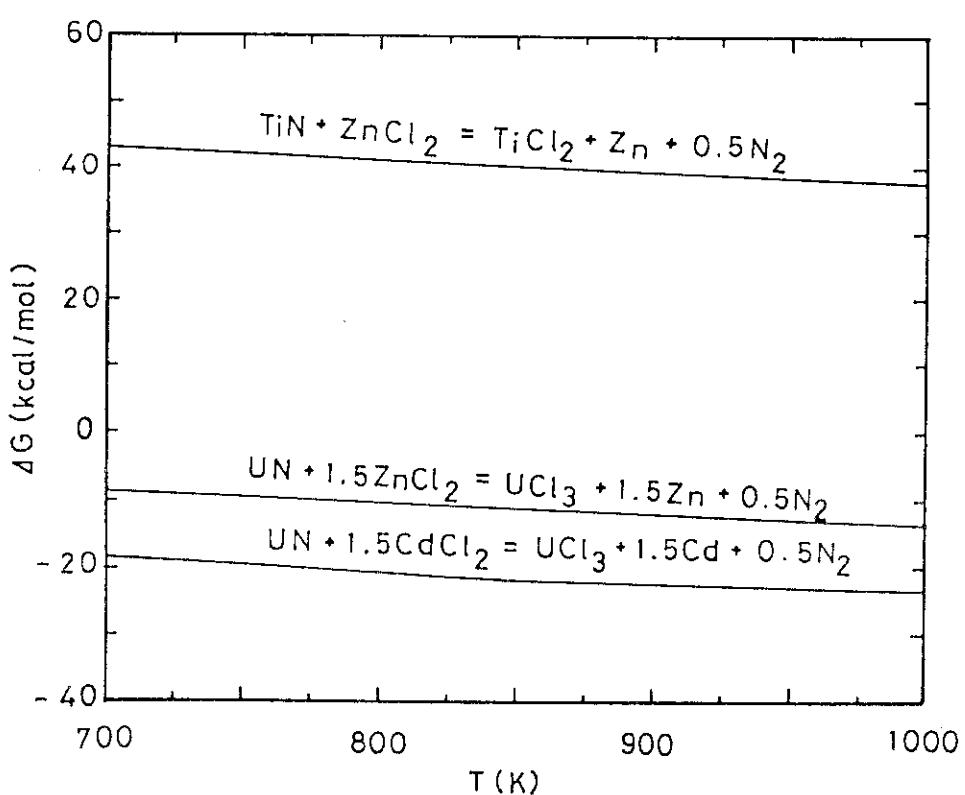


Fig. 3.7 Free Energy of Reactions of Nitrides with Chlorides.

4. ま　と　め

Na 冷却金属燃料専焼炉 (M-A B R) および He 冷却粒子燃料専焼炉 (P-A B R) の 2 種の炉について、燃料の概念について提案するとともに、それらの燃料型の成立にかかる問題点について検討した。

T R U 金属燃料に関しては、既存の状態図予測手法を用いて合金系の選定を行った。また、高速炉用 U 系金属燃料の構成をモデルとし、T R U 金属燃料要素の挙動について概略の予測を行った。この型の燃料については、T R U 金属の U に比べて低い熱伝導度が燃焼速度を制限する大きな要因となりえる。そこで、代替燃料概念として、T R U 窒化物被覆粒子燃料をヘリウムで直接冷却する、粒子直冷型燃料の概念を提出し、その成立性に関して予備的な検討を行った。

発電炉燃料サイクルからの T R U を受け取り、また、専焼炉からの未燃焼 T R U をリサイクルするための、T R U 燃料サイクル施設について、基礎化学の立場からの検討を行うとともに、工学上の問題点の摘出を行った。溶融塩電解を基礎とした高温化学再処理を応用した場合には、A m と希土類との分離効率ならびに T R U の回収率をどこまで上げることができるかが、重要な課題となる。また、再処理から燃料集合体製造までの各工程において、工学上の問題の焦点となるのは T R U の大きな崩壊熱の存在である。そのため、各工程の基本は高速炉用金属燃料と同様としても、新規の技術開発を要する課題が少なくない。

U, Pu と比べて、T R U に関する我々の知識の範囲は極めて限られている。T R U の消滅処理を真に可能にするためには、長期的な視野に立った基礎研究の充実によって、アクチノイドの物理・化学に関する理解をさらに深めることが必要であろう。

謝　　辞

本研究の遂行に当っては、平岡徹リーダー始め新型炉検討特別チームのメンバー諸兄との討論から、数々の有益な示唆を得ることができました。軍司康義氏（カナザワ・コンピューター・サービス）には燃料サイクル検討に係る種々の計算を行っていただきました。また、高速炉用金属燃料について、プルトニウム燃料研究室半田宗男室長から最新の情報を提供していただきました。

ダクトレス燃料集合体の概念については株式会社東芝、燃料サイクル施設の工学的検討については三芝原子力株式会社の御協力をいただきました。T R U 合金系の挙動については、オークリッジ国立研究所の Dr. E. C. Beahm から、「原研・ORNL アクチノイド研究共力協定」の中で行われた予測作業の結果について情報をいただきました。これら所外からの寄与ならびに入手した情報については、論文中において出所を明示するように努めました。

以上の諸氏の御協力に深く感謝致します。

4. ま　と　め

Na 冷却金属燃料専焼炉 (M-A B R) および He 冷却粒子燃料専焼炉 (P-A B R) の 2 種の炉について、燃料の概念について提案するとともに、それらの燃料型の成立にかかる問題点について検討した。

T R U 金属燃料に関しては、既存の状態図予測手法を用いて合金系の選定を行った。また、高速炉用 U 系金属燃料の構成をモデルとし、T R U 金属燃料要素の挙動について概略の予測を行った。この型の燃料については、T R U 金属の U に比べて低い熱伝導度が燃焼速度を制限する大きな要因となりえる。そこで、代替燃料概念として、T R U 壱化物被覆粒子燃料をヘリウムで直接冷却する、粒子直冷型燃料の概念を提出し、その成立性に関して予備的な検討を行った。

発電炉燃料サイクルからの T R U を受け取り、また、専焼炉からの未燃焼 T R U をリサイクルするための、T R U 燃料サイクル施設について、基礎化学の立場からの検討を行うとともに、工学上の問題点の摘出を行った。溶融塩電解を基礎とした高温化学再処理を応用した場合には、A m と希土類との分離効率ならびに T R U の回収率をどこまで上げることができるかが、重要な課題となる。また、再処理から燃料集合体製造までの各工程において、工学上の問題の焦点となるのは T R U の大きな「崩壊熱」の存在である。そのため、各工程の基本は高速炉用金属燃料と同様としても、新規の技術開発を要する課題が少なくない。

U, Pu と比べて、T R U に関する我々の知識の範囲は極めて限られている。T R U の消滅処理を真に可能にするためには、長期的な視野に立った基礎研究の充実によって、アクチノイドの物理・化学に関する理解をさらに深めることが必要であろう。

謝　　辞

本研究の遂行に当っては、平岡徹リーダー始め新型炉検討特別チームのメンバー諸兄との討論から、数々の有益な示唆を得ることができました。軍司康義氏（カナザワ・コンピューター・サービス）には燃料サイクル検討に係る種々の計算を行っていただきました。また、高速炉用金属燃料について、プルトニウム燃料研究室半田宗男室長から最新の情報を提供していただきました。

ダクトレス燃料集合体の概念については株式会社東芝、燃料サイクル施設の工学的検討については三芝原子力株式会社の御協力をいただきました。T R U 合金系の挙動については、オークリッジ国立研究所の Dr. E. C. Beahm から、「原研・ORNL アクチノイド研究共力協定」の中で行われた予測作業の結果について情報をいただきました。これら所外からの寄与ならびに入手した情報については、論文中において出所を明示するように努めました。

以上の諸氏の御協力に深く感謝致します。

参 考 文 献

1. T. Mukaiyama et al., "Conceptual study of actinide burner reactors", 1989 International Reactor Physics Conference, Jackson Hole, Wyoming, September 18--22, vol. 4, p. 369--378.
2. L. C. WALTERS, Nucl. Technol., 65, 179--231 (1984).
3. J. J. KATZ et al., "The Chemistry of the Actinide Elements", 2nd ed., Chapman & Hall (1986).
4. A. J. FREEMAN & C. KELLER eds., "Handbook on the Physics and Chemistry of the Actinides", Elsevier Science Publishers (1986).
5. L. BREWER, LBL-3720 (1975).
6. G. KIRSCHSTEIN ed., "Gmelin Handbuch der Anorganischen Chemie, Seltenerdelemente, Teil B3 : Sc, Y, La and Lanthanide, Physikalische Eigenschaften der Metalle", Springer-Verlag (1974).
7. L. KAUFMAN & H. BERNSTEIN, "Computer Calculation of Phase Diagrams", Academic Press (1970).
8. J. H. KITTEL et al., Nucl. Eng. Design, 15, 373--440 (1971).
9. D. J. SHERWOOD et al., Nucl. Technol., 78, 83--89 (1987).
10. R. G. PAHL et al., Conf-860931-9 (1986).
11. R. S. BARNES, J. Nucl. Mater., 11, 135--148 (1964).
12. E. C. BEAHM, ORNL Technical Letter Report (January 1989).
13. S. A. AKBAR et al., J. Phys. Chem. Solids, 48, 579--586 (1987).
14. H. BLANK, J. Less-Common Metals, 121, 583--603 (1986).
15. S. IMOTO, J. Less-Common Metals, 133, 111--123 (1987).
16. G. KOCH et al., "Gmelin Handbuch der Anorganischen Chemie, Transurane, Teil C : Die Verbindungen", Springer-Verlag.
17. L. E. TOTH, "Transition Metal Carbides and Nitrides", Academic Press (1971).
18. K. MINATO et al., J. Nucl. Mater., 119, 326--332 (1983).
19. 滝塚 貴和 他, JAERI-M 89-091 (1989).
20. E. K. Storms, J. Nucl. Mater., 158, 119--129 (1988).
21. ゲ・ウェ・サムソノフ, ア・ベ・エピック, 「高融点被覆」, 日ソ通信社 (1975).
22. Hj. Matzke, Ann. Chim. Fr., 14, 133--147 (1989).
23. 小川 徹, 岩井 孝, JAERI-M 89-063 (1989).
24. IAEA Technical Reports Series No 214, "Evaluation of Actinide Partitioning and Transmutation", 1982.