

本資料は 年 月 日付けで登録区分、  
2007. 6. 6  
変更する。

[技術情報室]

# F B R 新 型 燃 料 評 価 研 究

## 第 2 ス テ ッ プ 最 終 報 告 書

1 9 9 4 年 5 月

動力炉・核燃料開発事業団

東 海 事 業 所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technical Cooperation Section,  
Technology Management Division,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184  
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)  
2001



# F B R 新 型 燃 料 評 価 研 究

## 第 2 ス テ ッ プ 最 終 報 告 書

作 成 燃料開発会議  
新型燃料分科会<sup>1)</sup>  
編 集 新型燃料分科会事務局<sup>2)</sup>  
責任者 新型燃料分科会主査<sup>3)</sup>

### 要 旨

事業団では昭和62年度よりFBR新型燃料（金属，炭化物，窒化物）の実用性評価研究を進めており，平成元年度末に終了した第1ステップでは，酸化物燃料に代わり得る燃料として窒化物燃料，次いで金属燃料が有望である，という結論が得られた。

これを受けて平成2年度から4年度にかけて第2ステップの評価作業を実施し，新型燃料炉心設計研究，窒化物燃料の照射試験準備と製造試験設備設計製作，<sup>15</sup>N濃縮コスト評価，金属転換試験，熔融塩電解基礎試験，そして窒化物燃料再処理プロセスの調査検討等を行った。

第2ステップの総合評価として，窒化物燃料の採用により経済性を大きく損なうことなしに安全性向上炉心を実現できる可能性があることを示すとともに，窒化物，金属の各燃料について原子炉，照射挙動，燃料製造，再処理，廃棄物の各分野において実施すべきC&Rの課題を整理した。それによって，第2ステップとしての窒化物燃料と金属燃料の経済性，安全性，実現性の各総合評価を行った。

---

1)付録1.「執筆者一覧」参照

2)東海)核燃料技術開発部プルトニウム燃料開発室 遠藤秀男

3)東海)核燃料技術開発部プルトニウム燃料開発室 上村勝一郎

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 海外における新型燃料開発の動向 .....	3
2.1 ヨーロッパ（旧ソビエト連邦を除く） .....	3
2.2 米 国 .....	9
2.3 旧ソビエト連邦及びインド .....	14
3. 我が国における新型燃料開発の動向 .....	15
3.1 日本原子力研究所 .....	15
3.2 電力中央研究所 .....	16
4. 新型燃料開発に関する業務の進捗状況 .....	19
4.1 炭・窒化物燃料の許認可取得，照射用リグの開発及び照射 .....	19
4.2 原研共研炭・窒化物燃料照射試験 .....	29
4.3 照射試験のための燃料設計 .....	32
4.4 動燃独自の窒化物燃料照射試験基本計画の作成 .....	37
4.5 窒化物燃料製造試験設備の整備 .....	39
5. 評価研究 .....	41
5.1 安全性向上炉心評価 .....	41
5.2 窒化物燃料のFCMI挙動評価 .....	73
5.3 窒化物燃料の高温分解から来る線出力限界の評価 .....	74
5.4 窒化物燃料製造技術評価 .....	75
5.5 ウラン窒化物の酸化特性試験 .....	79
5.6 $^{15}\text{N}$ 濃縮コスト評価 .....	82
5.7 窒化物燃料加工コスト評価 .....	93
5.8 窒化物燃料再処理プロセスの評価 .....	95
5.9 $^{14}\text{CO}_2$ 捕集，固定・固化技術評価 .....	102
5.10 金属転換技術評価 .....	107
5.11 乾式リサイクルプラントの運転操業におけるエンジニアリングの調査検討 .....	110
5.12 塩廃棄物前処理技術評価 .....	125
5.13 熔融塩電解精製基礎試験 .....	129

6. 総合評価	136
6.1 経済性	136
6.1.1 原子炉建設費	136
6.1.2 サイクル単価	140
6.1.3 発電コスト	141
6.2 安全性	149
6.2.1 炉心安全性	149
6.2.2 燃料サイクル安全性	150
6.3 実現性	152
6.3.1 原子炉実現性	152
6.3.2 燃料サイクル実現性	154
6.4 結論	158
7. 今後の新型燃料評価研究の進め方の基本的考え方	163
7.1 基礎研究課題	163
7.2 フィージビリティ研究課題	164
7.3 第3ステップについて	166
7.4 国内外との協力	167
付録1 執筆者一覧	168
付録2 新型燃料分科会委員名簿	169
別添 FBR新型燃料評価研究第2ステップ最終報告書要約	172

## 1. はじめに

新型燃料（金属、炭化物、窒化物）の研究開発は、酸化物燃料に主力を注ぎつつFBR開発のより広範な展開を図る先端的基盤技術開発として、「新型燃料を用いたFBRの研究開発基本計画」（昭和62年8月動力炉幹部会・核燃料幹部会）の下に開発がスタートし、第1ステップの最終年である平成元年より、本社核燃料サイクル技術開発部を中心に評価を行うこととなり、核燃料サイクル技術開発部を中心に設置された燃料開発会議の分科会の一つである新型燃料分科会を連絡調整機関として新型燃料評価研究を継続した。そして、平成元年度末に第1ステップが終了し、その成果として「FBR新型燃料評価研究報告書（第1ステップ）」（ZN8410 90-075）がまとめられた。第1ステップの評価を要約すると、

- (1) 窒化物燃料は、若干の課題が残るものの、発電コストは最も安く、安全性を追求した炉心設計が期待できる上に、既存技術がほぼ利用可能な点から、新型燃料の中で最も優れていると判断される。
- (2) 金属燃料は、発電コストが酸化物燃料より安く、炉心設計の観点から安全性の向上を図り得る可能性があり、魅力的な燃料であるが、高温乾式再処理技術の実用化には長期間の研究開発を要すると判断される。
- (3) 炭化物燃料は、燃料サイクルの実現性において、“再処理工程におけるプルトニウムの溶解性の問題”が大きな課題となる。

ということになり、酸化物燃料に代わり得る燃料として窒化物燃料、次いで金属燃料が有望である、という結論が得られた。

第2ステップ（平成2年4月～平成5年3月）では、評価対象を窒化物燃料及び金属燃料とし、「FBR新型燃料評価研究第2ステップ計画書」（PNC8020 91-003）を作成して、それに基づいて評価研究を進め、途中で、「FBR新型燃料評価研究第2ステップ中間報告書」（ZN8410 92-209）をまとめることにより、第2ステップ最終報告に向けての検討課題を整理した。本報告書は第2ステップ最終報告書であり、窒化物燃料と金属燃料の経済性、安全性、実現性について基礎試験等の成果を踏まえて評価を行い、さらに第3ステップの評価の進め方の考え方について分科会案を取りまとめた。

なお、新型燃料評価研究は第3ステップまで行われる予定であり、当初作成した全体スケジュールを図1.1に示す。

図1.1 新型燃料の研究開発スケジュール

項目	年度																
	昭和 G1	G2	G3	平成 1	2	3	4	5	6	7	8	9					
	第 1 ステップ				第 2 ステップ				第 3 ステップ								
全体計画	調査・設計				コールド試験 評価 許認可				コールド試験 照射試験の準備				照射試験・PIE 実用化見通し評価				
燃料製造	調査・設計				金属U転換 炭素燃焼元(MN) モックアップ製造以後等				金属Ce(Puの模擬)との転換(DOR法) 窒化物燃料製造ラインの整備				燃料製造試験 燃料ピン製造				
燃料照射	調査・設計				許認可・照射準備				照射試験(MN, MC)・PIE				照射試験				
燃料挙動	調査				解析コードの整備 予備評価(共晶等)				解析コードの整備				原研との共研 PNC MN 評価検討 詳細評価				
再処理	調査・設計				電解精製特性評価 全プロセス評価 試験等準備				熔融塩電解精製基礎試験(金属) 概念検討, 設計, コスト評価				U未照射燃料を用いた試験(窒化物)				
廃棄物	調査				プロセス評価				塩廃棄物処理技術法の検討 <sup>14</sup> C O <sub>2</sub> 捕集技術調査				工 学 試 験				
炉心・安全性評価 (FBR設計研究の一部)	調査				解析コード検証 パラメータ サーベイ 評価				最適炉心評価				最適炉心評価				
経済性評価	調査				データベースの 整備予備評価				経済性評価				詳 細 評 価				

## 2. 海外における新型燃料開発の動向

### 2.1 ヨーロッパ（旧ソビエト連邦を除く）

#### (1) 経緯及び現状

1950年代のFBR開発初期は金属燃料の使用が考えられた。最初はU-Pu合金が考えられたが、それが持つ強い異方性と多数の相転移のため冶金プロセスと照射挙動を複雑なものにした。その解決手段として、適当な金属を添加することが考えられた。研究開発はヨーロッパにおいては英国、仏国で行われた。

金属燃料に改良が加えられたにもかかわらず、FPガスによるスエリングの問題は、1960年代初頭になっても解決することはできなかった。また、低融点であるため熱的な制限があると予想され、そして非定常時に燃料と被覆管で共晶反応が危惧された。

そのため金属燃料の代替燃料として炭化物燃料と窒化物燃料が1960年代初頭に選定された。しかし、それらのセラミック燃料を高密度に焼結する技術はなくまた、照射挙動は未知の分野であった。それとは逆に、 $UO_2$ 燃料はすでに製造技術は確立し、照射挙動もよく知られていた。

したがって、RAPSODIEのドライバー燃料について1960年に行われた議論では、U-Pu-Mo合金、(U, Pu)C混合炭化物、(U, Pu) $O_2$ 混合酸化物の比較評価が成された。結論は酸化物燃料が選ばれ、炭化物燃料は将来の代替燃料として研究が行われるべきというものであった。

以上のような経過を経て1960年から1965年代にかけて、金属燃料の魅力が失われ、逆にセラミック燃料が評価されるようになった。そして、FBR開発に携わるすべての国々が炭化物燃料の研究を始めた。しかし、窒化物燃料の研究は始まることはなかった。その理由は、製造が困難であるということと、 $^{14}N(n, p)^{14}C$ 反応によって増殖率がわずかに低くなるためと $^{14}C$ が作り出されてしまうことである。酸化物燃料がその低い増殖率にもかかわらず使用されたのは、すでにその特性がよく知られており、炭化物燃料より開発期間が短くてすむと考えられたからである。

炭化物燃料開発は以下の前提条件で始められた。

- 1960年代初頭のエネルギー予想とその当時の既知のウラン埋蔵量より、燃料サイクル上の増倍時間は短かい方が望ましく(<15yr)、そのため燃焼度は100GWd/ton (U)以下とされ、合わせて高線出力 (~100kW/m)が必要であった。
- 炭窒化物燃料M-C-Nも考え、さらに不純物酸素量をできるだけ少なく (<500 ppm)するが高次化炭化物を認めるか、または不純物酸素量を~3000ppmまで許容するが高次化炭化物は認めない、のどちらかとする。



高密度炭化物燃料仕様をどこに設定すべきか不明であったため、数多くの試験パラメータの下に試験が行われ、1970年代末までに燃料仕様、製造技術、照射挙動について多くの知見が得られた。しかし、その進展はゆっくりしたものであった。それは、あくまで酸化物燃料が主流であったからだと思われる。

ヨーロッパ各国の炭化物燃料開発経緯を以下に述べる。

i) 仏

'69年新型燃料として、(U-Pu)C, (U-Pu)CN, (U-Pu)N, (U-Pu)CMo等をRapsodie炉で照射、'70年代に照射継続。

'80年に入って、炭化物燃料のNaボンド指向の開発を促進。'81年にCEAカダラッシュ研究所に新型燃料研究施設が建設されてから、炭化物から窒化物燃料へ開発目標が変更された。現在、Phenix炉による窒化物燃料の照射実験が継続されている。

ii) 英

'77年頃迄DFRで炭化物燃料の照射を行っている(≒200ピン)、内約130ピンが振動充填燃料。300~400W/cmで10at.%燃焼度、520W/cmで7.9at.%, 770W/cmで6.9at.%まで破損せず、ただし1470W/cmで5at.%で破損。

窒化物燃料の開発は行っていない。

iii) 独

'69年より共同開発(ベルギー、ノルウェー、スイス)に着手、'70年代にDFR, Rapsodieによる照射を開始し、'80年代にも照射を一部継続。

TUIで'81年はじめ、炭化物の硝酸への溶解性の困難性を明らかにした。

iv) スイス

'68年以来、球状(U, Pu)C燃料の製造とその特性試験、球状燃料の振動充填による燃料ピンの製作を行った。それらの燃料の照射試験を国外炉で行ってきた。

'81年迄に22本の球状燃料振動充填ピンの照射を行い、またFFTFで、'87年11月に3.6at.%燃焼度の情報を得ている。又Phenixでの照射が継続されている。

v) 各国の炭化物燃料の照射実績('88年頃までのもの)

(米国、インド、日本も含める。)

注1) 1974年以前に行われた炭化物燃料ピンのスクリーニング試験及びステンレス鋼以外の展性に乏しいPE-16被覆燃料ピンの破損を含んでいる。最近の低密度燃料ペレット-ステンレス鋼被覆燃料要素では8-10 a t. %燃焼度までほとんど破損は起こっていない。

注2) 燃料破損は1981年以前の照射で、FFTFによる米国との共同による集合体照射では3 a t. %まで破損は起こっていない。

注3) 西独はHeボンド指向で、フランスはNaボンド指向で開発を進めてきたが、1984年以降フランスもHeボンド指向に戦略を変更した。英国もHeボンド指向で開発を進めてきたが、現在は新型燃料の研究・開発は中断されている。

(以上 炭化物に関しては、PNC, S J 9500 88-001, 原研半田氏他調査依託調査 '88年3月 及びPNC職員の海外出張報告書による。)

1970年代末から1980年代初め頃になると、FBR開発を取り巻く状況は1960年代初めとは大きく変化してきた。それは、

- ・エネルギー需要増は過去に予想したものより下回った。
- ・U資源枯渇を短いスパンで考える必要がなくなり、当面ここしばらくの間、高増殖をFBR商業炉の目標とする必要はなくなった。

・FBR燃料サイクルの経済性向上には大きな努力が払われるべきであることがわかってきた。

というものであった。そのため、FBR燃料に要求される内容も1960年代のそれとは異なってきた。すなわち、製造加工費の低減化、70kW/m以下の線出力での高燃焼度化(>150 Gwd/t(U))であった。それによって、燃焼欠損反応度を小さくすること、つまり燃料中の重金属密度を大きくすることが求められるようになった。そこで1980年代に入って再び新型燃料が着目されるようになった。

新型燃料導入シナリオとして、以下の3つが考えられた。

- (A) 酸化物燃料サイクルのフレーム内で、炉設計、燃料製造、再処理に改良を加える。
- (B) 酸化物燃料サイクルをセラミックタイプの新型燃料に置き換える。
- (C) 新しい燃料サイクルを導入する。

ヨーロッパでは酸化物燃料サイクルとの適合性を重視したため、(A)または(B)を選定した。(米国は(C)。次節で詳述する。)その結果、炭化物燃料または窒化物燃料のどちらかを選ぶことになった。

増殖比の面では炭化物燃料の方が有利である。何故なら、窒化物燃料では $^{14}\text{N}$  (n, p)  $^{14}\text{C}$ 反応が生じるからである。しかし、燃料サイクルで両者を比較すると窒化物燃料は炭化物燃料をしのぎ、増殖比の不利な面を十分に補うとの評価が成された。すなわち、窒化物燃料は

- ・化学的に不活性であり、取扱いが容易である。
- ・硝酸によく溶け、PUREXプロセスと適合する。

という面で有利であると評価された。しかし、 $^{14}\text{C}$ 生成という問題はあるが、それは再処理時に $\text{CO}_2$ ガスとしてカバーガス中に放出され、容易に固化体にできるとの判断が行われた。

最終的に窒化物燃料が選定され、ヨーロッパでは1980年代半ばより開発が開始された。

以下に、現在までの窒化物燃料開発状況を述べる。

(2) 窒化物燃料研究機関

ヨーロッパでは窒化物燃料の評価を酸化物燃料との比較の基に1980年代半ばより進めている。研究は以下の3つの研究機関の共同研究である。

- C E A (フランス原子力エネルギー委員会)
- I T U (E C超ウラン元素研究所)
- P S I (スイス, ポール・シェラー研究所)

(3) 窒化物燃料開発項目

① 製造技術開発

- 乾式法 (機械混合法)                      - 湿式法 (ゾルゲル法)

② Phenixを用いた照射試験

- ペレット (製造法は①の2つの手法) の挙動評価
- 振動充填燃料の挙動評価

③ 硝酸への溶解性試験

(4) 窒化物燃料開発の主な結果

① 製造技術開発

- 3つの研究機関それぞれの製造プロセスは異なり、
- C E A : 伝統的な酸化物燃料製造法 + 炭素熱還元反応プロセス
  - I T U : 直接成型法 (炭素熱還元反応後粉碎工程を省略して直接プレスする)
  - P S I : ゾルゲル法

の3つの手法によって、それぞれ窒化物燃料ペレットを製造した。

② 窒化物燃料の再処理, 燃料加工に関して

M O X燃料ラインが、適用し得ることが明らかになった。

③ Phenixを用いた照射試験

(a) NIMPHE照射計画

照射計画は、NIMPHEと名付けられ試験が進められている。NIMPHE 1, 2はC E AとI T Uの製造法の違い、酸化物燃料, 炭化物燃料との比較の評価が目的である。NIMPHE 3ではゾルゲル法によるペレット燃料と振動充填燃料の評価も含まれている。NIMPHE計画のパラメータを下表に示す。なお、燃料はNIMPHE計画ではすべてH e ボンドである。

NIMPHE	1	2	3 Pellets: Dry Process	4 Pellets: Wet Process	5 Micro- spheres
PINS Number, type	11(UPu)N 8(UPu)O <sub>2</sub>	5(UPu)N 2(UPu)C	3(UPu)N	8(UPu)N	8(UPu)N
Diameter (mm)	5.65x6.55	7.37x8.5	5.65x6.55	5.65x6.55	5.65x6.55
Max. temperature (°C)	620	620			
Nitride PELLETS Diameter (mm)	5.40-5.45	7.11-7.17	5.40-5.45	5.40-5.45	0.8 and 0.07 microsphere
Density (% dth)	80-82	80-82	84	84	
Filling density (%)	75-77	75-77	78	78	78
Diametral gap (10 <sup>-3</sup> mm)	190-200	200-260	190-200	190-200	
Linear power rating (kw/m)	45	73	45	45	45
Temperature at beginning of life (°C)					
- surface	1205	1335	1205	1205	
- center	1440	1715	1440	1440	

(FR' 91, "European Collabarotion on Mixed Nitride Fuel" より)

#### (b) 試験結果

NIMPHE 1 は 63,000MWd/t まで燃焼させて、中間照射後試験を行った。その試験結果は以下のとおりであった。

- ピン径歪みは 30 μm 以下であった。
- MOX と同様にギャップは消失し、中心空孔ができた。
- 一部で第二相が析出したのを除いて、照射前の微視的構造と大きな違いは生じなかった。
- ポアは製造時にできた 2 ~ 8 μm 径のポアと、照射中にできた 1 μm 以下の径のポアの二種類が観察され、結晶粒も 5 ~ 10 μm と不規則であった。
- 被覆管腐食の跡はなかった。

#### ④ 硝酸への溶解性試験

未照射燃料の溶解性試験を行い、酸化物よりも溶解性はよかった。また、溶解中に発生するガスは、窒化物 1 g 当たり約 150cm<sup>3</sup> であり、主に N<sub>2</sub> ガスであった。

(5) 今後の窒化物燃料試験予定

① 照射試験

NIMPHE 1 を再装荷し、100,000MWd/tまで照射する。NIMPHE 2 は現在照射中であり、60,000MWd/tに達した時点で中間照射後試験を行う。最終的には150,000MWd/tまで照射する。

NIMPHE 3 はこれから照射を開始し、150,000MWd/tをねらっている。

② 硝酸への溶解性試験

照射後燃料の溶解性試験を計画している。それによって、 $^{14}\text{C}$ 生成も評価することになっている。

(6) I T Uにおける窒化物燃料開発の動向

I T Uにおける窒化物燃料開発状況の調査を関係者 (Dr. Koch, Dr. Sari, Dr. Richter) にインタビューすることによって行った。インタビュー結果をまとめて以下に報告する。

① ヨーロッパではF B R開発はスローダウンしてきており、そのためF B R燃料としての窒化物燃料開発のインセンティブは失われた。

② そのため、I T Uでこれまで行ってきた窒化物燃料の基礎研究はフェイズ・アウトして、近いうちにストップする。

③ 具体的に言えば、現在 (1990年) 実施中の照射試験が終了するまでの3～4年はストップはしないが、新しい照射試料を作ることはない。

④ それに伴って、C E Aとの共同研究も同じようにフェイズ・アウトすることになる。

⑤ ただし、C E Aは窒化物燃料の研究を継続する。

⑥ 窒化物燃料の問題は次の2つである。

・照射中の $^{14}\text{N}$  (n, p)  $^{14}\text{C}$ 反応による $^{14}\text{C}$ 発生

・照射中の高温分解

2.2 米国

(1) 概要

MOXに力を入れてきたが、'85年の末より、経済性、安全性、核不拡散の点から金属燃料に転換している。ANLが中心となって開発を進めており、Passiveな安全性を強調したP R I S M炉を中心として、金属燃料の乾式再処理、加工と廃棄物処理を統括したI F R Systemの開発を進めている。

一方E B R - IIに併設した、燃料サイクル施設 (再処理、加工) が75%完成 ('93年1月現在) 完成し、'93年末頃、一部コールド操業に入り、'94年2月頃にはH o t試験に入る予定である。予定は2年位遅れているが、実証試験の段階にはいる時期にある。

金属燃料に対して、最近混合窒化物燃料をP R I S M炉に装荷した場合の燃料の性能評価を行っているが、金属燃料より優れた結果を出している。また宇宙炉の燃料として、UNを選択し、燃料の製造法や照射挙動の研究も進められている。

## (2) 現 状

### ① 金属燃料

#### (a) '91～'95の優先項目

- i) Fuel Cycle Facility の完成。すべてのI F R燃料サイクルの原理的実証。
- ii) 廃棄物処理技術の開発とN R CからO Kが得られる確証されたプロセスの遂行。
- iii) 再処理され、リサイクルされた金属燃料が15a/o 燃焼度まで使用可能であることの燃料性能を実証する。
- iv) 安全性に関する許認可のためのデータベースの開発。

#### (b) 全体スケジュール

3つの大きな計画（図2.2.1参照，'93.2月の時点では、全体に遅れ込んでいる）

##### i) LWR使用済燃料からのActinideの分離回収実証試験

LWR使用済燃料（Oxide）を、まず金属に還元し、ANLで開発してきた電解精製法等により、Actinideを分離回収する技術を開発する。引き続いて、2005年頃250t/yのプロトタイプ、モジュール施設を操業し、ここで取出されたActinideは、I F Rのデモ・プラントに送られ燃料に加工され、炉で使用される予定である。

##### ii) 金属燃料サイクルの実証試験

'95年迄にプロトタイプの実証試験を行って、その結果をI F Rデモ・プラントの詳細設計に反映させる。

##### iii) I F R全体としての実証試験

炉を含めた燃料サイクル全体を統一したサイクルシステムの設計と建設を行い、2005年にはI F Rデモ・プラントを稼働させる。

以上は、すべて2010年からの実用化に役立てる。

iv) '93年よりクリントン政権に変わってから、予算節減の影響を受け、金属燃料サイクル技術はLWRの使用済燃料からアクチナイドを回収し、消滅する方向へ動き出しており、現状（'93.5月）では、予算の交渉中であり、内容は未確定である。

#### (c) 金属燃料サイクル技術に関する最近の開発状況

（ANL，平成5年1月の報告 於 電中研）

- i) 金属燃料サイクル技術（乾式処理法）開発については、初段階として、技術の成  
立性に関する基礎的な分野は略完了に近づいている。
- ii) 一方、これを足場として商業化へ向けての実証試験がE B R - IIに併設されてい  
るFuel Cycle Facility \*1 (F C F) でスタートされようとしている。現在F C F  
の改装と装置の据付、試運転を許認可関係の書類作りに追われている。・F C Fの  
改装 75%完成 '93年1月現在
  - ・装置の組立 90%位 '93年1月現在  
据付；一部据付中
  - ・Hot operation '94年2月スタート
  - ・'96年迄に、E B R - IIから出てきた使用済燃料を再処理-加工し、再び炉にも  
どすRecycle試験を実施する計画。
  - ・以上の成果に基づき、'96年迄にI F Rシステムの技術的、経済的側面から、商業  
化への実現可能性を判断する計画。
  - ・2010年にはCommercial IFR operationをスタートする。
- iii) 更に、LWRから生じた使用済燃料（酸化物）からTRUを分離回収し、これ  
を金属燃料に加工し、F B Rで消滅するプロジェクトが進行しており、3年前  
から基礎研究に入っている。

## ② 窒化物燃料

現在米国は改良された金属燃料の開発に力をそそいでいるが、今までに窒化物燃料の  
開発に2つのプログラムを進めてきた。

### (a) 改良型LMR燃料の開発

F B R用新型燃料として窒化物燃料の開発を進めてきた。このプログラムの中では、  
E B R - IIによる混合窒化物（P u - U - N）燃料の100ピンに近い照射試験を行っ  
ている。

また最近（FR '91 京都, '91年11月）、ウエスティングハウスハンフォード社  
が、金属燃料と比較して、窒化物燃料の優れた性能評価の結果が報告されている。

### (b) 宇宙原子炉の燃料としての開発

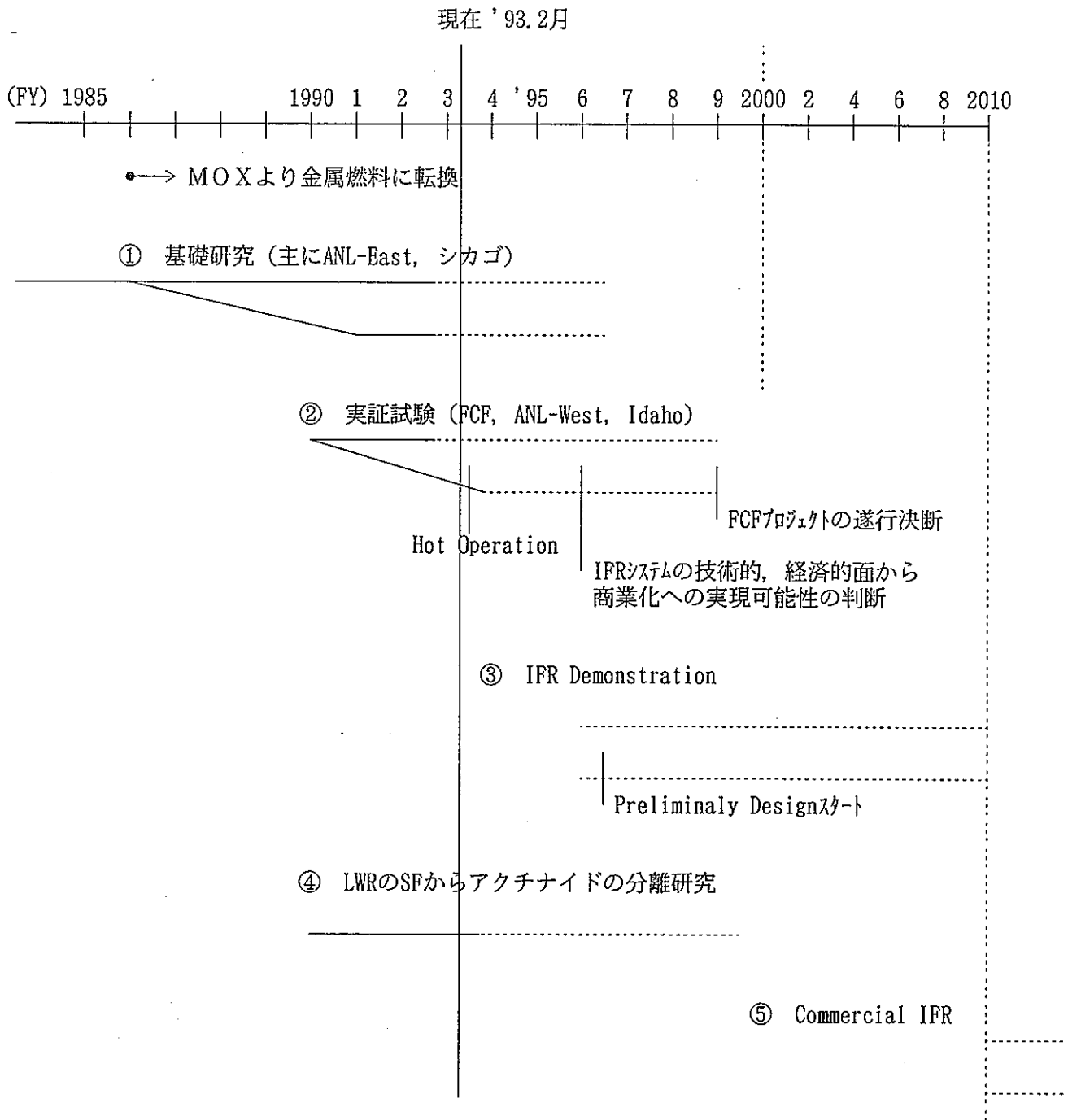
このプログラムは、'84年より始まり、宇宙原子炉（S P - 100）の燃料として窒化  
ウラン（UN）を燃料として選択し、燃料の製造試験や、照射試験がE B R - IIやF  
F T Fを用いて継続されている。（以上、世界における窒化物燃料開発の動向、P N  
Cサイクル部 平成4年1月、FR '91京都 '91年11月）ところが、最近の情報  
（平成5年2月、LANL研究者から入手）では、宇宙原子炉予算は'93年で0とな  
ったらしい。



(3) 要 点

米国は、'85年以来MOXから金属燃料に転換し、ANLを中心に集中的に開発を進めている。

- ① 特に再処理、加工については、EBR-IIに併設したFCFで、実証試験に入ろうとしている。スケジュールは遅れてはいるが、'93年末頃にはコールドテストに'94年はじめにホットテストに入れるだろう。
- ② 金属燃料の再処理、加工技術をいかして、LWRの使用済燃料からActinideを回収するプロジェクトを計画している。これは、蓄積していく膨大な使用済燃料からアクチナイドを回収、消滅し環境に適合した廃棄物処理・処分が米政府にとって極めて必要な状況にある。これは又、酸化物燃料への拡大展開であり、今後の動きが注目される。
- ③ 一方、窒化物燃料の優れた性能も評価されており、これからの研究成果が期待される。
- ④ クリントン政権による新しい政策と予算の裏付けが今後の大きな鍵になろう。



IFR Development Schedule.

『 '92年度第2回技術進捗検討会 (TPM) 平成5年1月末 於電中研  
でのANL側の報告に基づく 』

図 2. 2. 2

## 2.3 旧ソビエト連邦及びインド

## (1) 概要

旧ソビエト連邦（以後、旧ソ連）は、今までに幅広く新しいタイプの燃料の開発に力を入れて、窒化物、炭化物、燐化物（UP）等の照射試験を行っている。

インドは、炭化物燃料を中心に開発を進めてきたが、'91年、インドはその開発を断念し\*、金属燃料（ANLが開発してきた（Pu-U-Zr））の使用を調査中であり、また窒化物への研究を続ける意向である。（\*、Nuclear Engineering International' Feb. '91, P-4）

## (2) 現状

## ① 窒化物燃料

旧ソ連は、'83年頃よりBR-10（10MWT、実験炉）によるUN燃料集合体（約8体）を照射テストし、8.3at.%燃焼度に達している。さらに全炉にUN燃料集合体を装荷し、副広い実験を進めている。

TRUの消滅に関しては、窒化物での消滅が有望であり、デミトロフグレード原子炉研究所では、TRUの入った窒化物燃料を振動充填法で製造し、照射テストを計画している。（'92若林氏ロシア出張報告）

インドは、金属燃料に次いで、窒化物燃料に期待を寄せており、最近Bhabha原子力研究センターで、混合窒化物の製造と炉外での特性試験を進めている。

## ② 金属燃料

旧ソ連では、金属燃料の開発は、最近は行われていない。インドでは、2年位前にMOXとの比較において、金属、窒化物、炭化物燃料の比較がなされているが、米国にならって金属燃料に最も期待をよせている。

## ③ 炭化物燃料

旧ソ連では、'65年頃よりUCのBR-10による照射テストが進められており、燃焼度は6.1at.%に達している。又、BOR-60では10at.%までの照射試験が行われている。

最近（Pu, U）C燃料のBR-10炉による照射試験が予定されている。

## (3) 要点

- ① 旧ソ連の動向として、新型燃料に対して、どのように開発の力点をおいているのか、現状としては把握しにくい。
- ② インドは、今まで開発を進めてきた炭化物を、再処理（PUREX法）の困難性、燃焼度限界の点から、断念し、米国の進めている金属燃料への転換を期待し、また窒化物燃料の開発も進めている。

### 3. 我が国における新型燃料開発の動向

#### 3.1 日本原子力研究所

日本原子力研究所（以降、原研）では、ウラン窒化物の焼結試験を1970年代前半に東海研究所で行った実績はあるが、FBR新型燃料としての位置づけでのウラン・プルトニウム燃料の試験は大洗研究所において燃料研究棟が建設された1974年から始められた。当初は炭化物燃料の特性試験、調整が行われ、最初の炭化物燃料の照射試験はJRR-2により1983年より行われた。その試験では、燃焼度が低いため、被覆管への浸炭は観察されなかったが、1986年に開始したJMTRでの照射試験では被覆管内面近傍で浸炭がみとめられた。しかし、燃料ピンの照射健全性に影響するものではなかった。炭化物燃料のJMTR照射試験は終了し、現在動燃と原研との共研による「常陽」照射試験が計画されている。

一方、窒化物燃料の照射試験はJMTRにより1990年に開始しており、現在照射後試験が進行中である。窒化物燃料も炭化物燃料と同様に動燃・原研共研による「常陽」照射試験が計画されている。また、原研では未照射窒化物燃料の特性評価も行っている。これまでに炭素熱還元反応評価、焼結性評価、格子定数測定、蒸気圧測定、熱伝導度測定、等の各種データを蓄積してきており、それらのデータは海外でも発表され、燃料研究分野に貢献している。

原研がこれまでに実施してきた、また実施予定の照射試験を表3.1.1に示す。

1980年代末から1990年代初めにかけて、窒化物燃料と並行して金属燃料についての評価研究も実施しており、U-Zr合金の状態図研究を行っている。

以上の原研の新型燃料研究は大洗研究所のPu燃料研究室を中心にして進められてきたが、平成5年4月にTRU燃料研究室に名を改め、すでに英国ハーウェルよりNpを購入し、ネプチウム窒化物の調整を開始している。

表3.1.1 原研が実施した炭・窒化物燃料の照射試験

キャセル名	燃料種類	照射炉	照射時期	照射条件			PIE
				線出力 (W/cm)	燃焼度 (%FIMA)	ピン径 (cm)	
ICF-37H	MC <sub>1.0</sub> MC <sub>1.1</sub>	JRR-2	1983-84	420	1.2	6.5	1985
ICF-47H	MC <sub>1.0</sub> MC <sub>1.1</sub>	"	1985-86	640	1.6	9.4	1987
84F-10A	MC <sub>1.0</sub> MC <sub>1.1</sub>	JMTR	1986-89	590	3.0	9.4	1990
84F-12A	MC <sub>1.0</sub> MC <sub>1.1</sub>	"	1986-90	620	4.6	9.4	"
87F-2A	MC <sub>1.05</sub>	"	1988-92	660	(6.0)*	9.4	1992
88F-5A	MN	"	1990-93	660	(3.5)*	9.4	1993
89F-3A	MN	"	1991-94	660	(6.0)*	9.4	1995
——**	MC	常陽	1994-96	800	(5.0)*	8.5	1996
——**	MN	"	"	800	(5.0)*	8.5	"

\* : 目標燃焼度

\*\* : 動燃・原研共研

### 3.2 電力中央研究所

#### (1) 概要

電力中央研究所（以降、「電中研」）が金属燃料サイクルに関心を持ったのは、1985年のリヨン会議におけるANLの発表が最初である。その後米国電力研究所（EPRI）と金属燃料の評価を目的とする共同研究を開始した。これを契機にANLの研究者達との交流が始まり、金属燃料の持つ技術的及び経済的な魅力への理解が急速に深まった。

FBR金属燃料サイクルは21世紀にわたる革新技術と理解し、1986年度から国内の諸機関との3ヶ年共同研究をスタートした。炉心技術については、東芝、日立製作所、三菱重工業の各社と、またリサイクル技術やプロセスの検討については、東芝、神戸製鋼所、住友金属鉱山の各社との共同研究を実施した。日本原子力研究所とは金属燃料の冶金学的特性や炉心設計手法の検証に関する共同研究を行ってきた。

1986～1988年まで、EPRIとの共同研究により入手したIFR情報を適切に評価することを目的として、MFC（Metallic Fuel Cycle）研究会を開催し、国内の意見を取り入れている。

現在は、平成7年度を目途に、我が国における金属燃料サイクル技術の実用性を評価するための技術基盤を確立することを目的として、上述したように所内研究、国内諸機関との共同研究、さらに平成元年度より開始したDOEとの共同研究（ANLが実施するIFR計画への参画）を包含した研究開発を推進している。

(2) 主な研究成果

金属燃料・サイクル技術は、炉心の安全性と燃料挙動、乾式再処理、さらに燃料製造まで含めたリサイクルシステム等の課題で構成され、これらの技術全般にわたり試験と評価研究を実施してきた。その主要成果は次の通りである。

① 炉心特性の評価技術

- ・金属燃料挙動解析コードの開発
- ・炉心特性の評価
- ・被覆管材の開発（12Cr-8Mo-0.1Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>をベース）

② 乾式再処理技術

- ・電解精製技術の開発（ANLと共同研究も含む）
- ・廃棄物の処理技術

③ リサイクル施設の概念設計

施設規模は、湿式再処理/MOX燃料製造試験の約1/8と評価

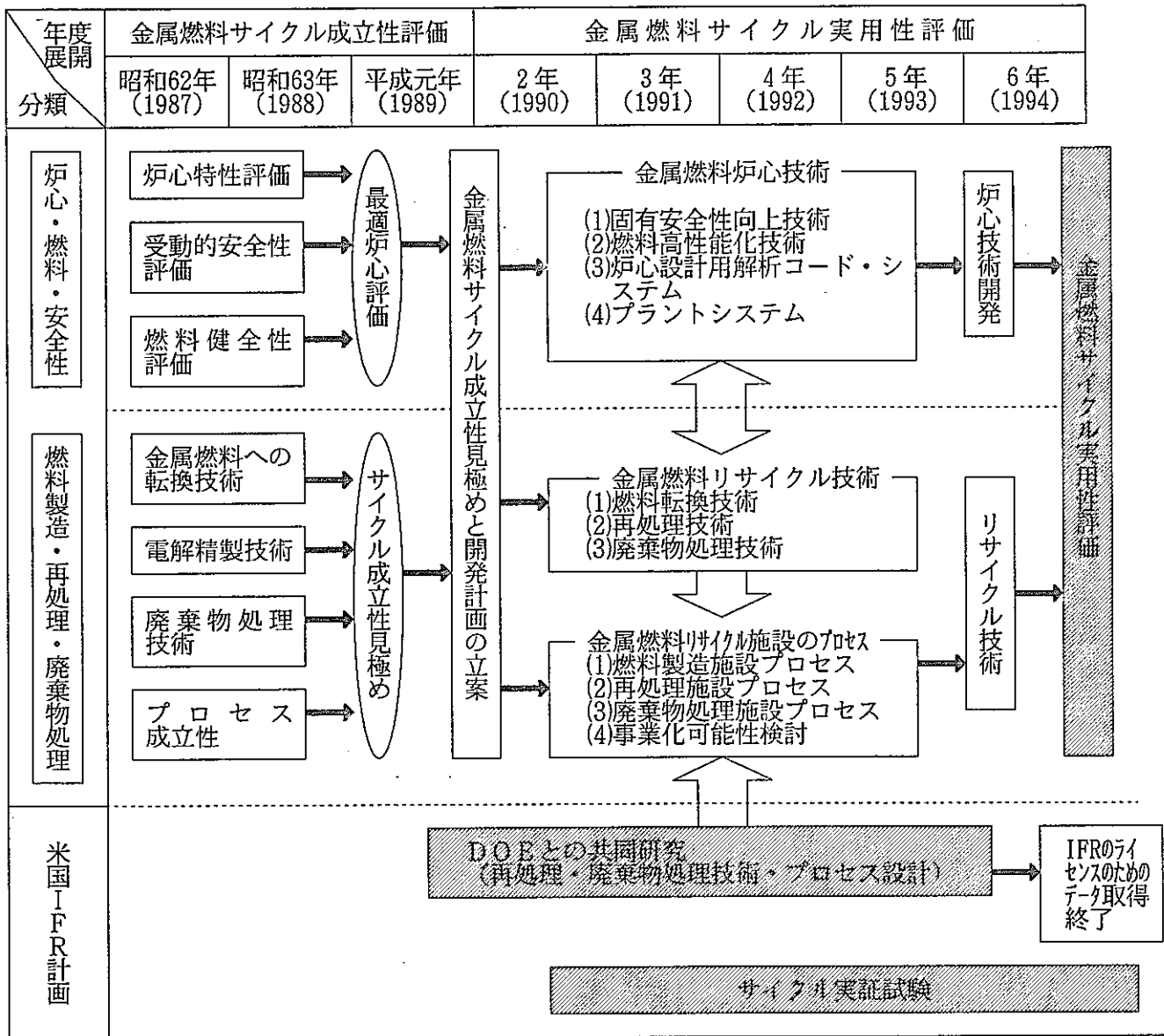
④ 燃料サイクル実証試験

- ・現在ANL（アイダホ）において、IFR計画の一環として、EBR-IIの実使用済燃料を用いて乾式再処理を行う燃料サイクル実証試験が進められている。日本原子力発電と共同で平成4年10月にこの試験に参画した。
- ・本試験は、平成7年度までの実施が計画されており、これにより金属燃料サイクルの実用性評価に不可欠な、燃料サイクル全体を通じての実証データや機器の運転、保守経験が蓄積されることが期待される。

(3) 今後の展開

- ① 燃料挙動及び炉心特性の評価コードに関しては、その適用範囲を拡大し、検証・改良を通じて信頼性を高める。
- ② 乾式再処理技術に関しては、DOEとの共同研究とともに、機器およびプロセスの最適化に必要な試験および最適設計のための解析コードの開発を進める。
- ③ これらの研究により、金属燃料サイクルの実用性評価に必要な技術基盤の確立を図る。

図3.2.1 電中研の金属燃料サイクルに関する研究スコープ（1990年に示されたもの）



#### 4. 新型燃料開発に関する業務の進捗状況

##### 4.1 炭・窒化物燃料の許可取得、照射用リグの開発及び照射

###### (1) 担当部署

大洗工学センター 実験炉部 照射課

###### (2) 目的

「常陽」で炭・窒化物燃料の照射試験を実施するため。

###### (3) 内容

###### ① 設置変更

「常陽」設置変更（その14）として、V型特殊燃料要素（炭化物燃料）及びVI型特殊燃料要素（窒化物燃料）の追加を行う。

###### ② 原研共研

原研共研用の、炭・窒化物燃料照射用リグ（B9）の設計を終了させ、設置変更許可取得後、設工認を行い製作を行う。

###### (4) 実施状況

###### ① 設置変更

V型特殊燃料要素（炭化物燃料）及びVI型特殊燃料要素（窒化物燃料）として、平成4年5月22日付け4動燃（安）612にて設置変更許可申請を行った。

顧問会（一次審査）において、炭化物燃料及び窒化物燃料を特殊燃料要素とすることは時期尚早であるとの指摘を受けたことにより、炭化物試験用要素及び窒化物試験用要素として平成4年10月6日付け4動燃（安）660にて補正申請を行った。炭化物試験用要素の仕様を第4.1.1表に、窒化物試験用要素の仕様を第4.1.2表に示す。この補正申請により、燃料要素としての主な仕様に変更はないが、炉内への当該燃料要素の装荷本数が大幅に制限されることとなった。

現在、部会（二次審査）は終了しており、本件に係る許可は平成5年4月下旬になる見込みである。

###### ② 原研共研

燃料要素及び照射用リグ（B9）の詳細設計（燃料要素の詳細設計は東海炉心燃料設計室実施）を終了し、燃料要素部材及び照射用リグ部材の製作を開始した。また、詳細設計結果を受け設工認申請の準備を開始した。

なお、燃料要素の製作を日本原子力研究所で行うため、「常陽」の品質保証体制の整備（施設品質保証計画書の変更等）を実施中である。



## (4) 炭化物燃料及び窒化物燃料を特殊燃料要素から

試験用要素に変更した経緯、理由及び結果について

## ① 試験用要素となった経緯

平成4年5月22日、本件に係る設置変更許可申請を行ったが、申請後の顧問会に向けてのヒアリングにおいて、原子炉規制課より、窒化物燃料が分解しプルトニウムが飽和蒸気量以上発生すれば、このプルトニウムは溶融することがありえるため、特殊燃料要素の設計方針である「燃料ペレットが溶融せず」を満足せず、かつ、挙動が解明されていないこと及び被ばく評価の観点から試験用要素とすべきとの指導をうけた。また、平成4年8月27日の顧問会において、窒化物燃料が分解しプルトニウム蒸気が発生することに対する挙動等が解明されていないこと等から、特殊燃料要素とすることは時期尚早であるとの指摘をうけた。よって、平成4年10月6日、試験用要素として補正申請を行った。

## ② 試験用要素とした理由

混合炭化物燃料及び混合窒化物燃料は物性値データ及び照射挙動が明確でなく、特に窒化物燃料にあっては分解及び分解によるプルトニウムの挙動等が把握されていないため、特殊燃料要素の設計方針である「燃料ペレットが溶融せず」を満足しない。また、ガスプレナム中にプルトニウム蒸気が存在することから、被覆管の破損にともないこのプルトニウムが環境中へ放出されることが予想されるが、このプルトニウムの放出量が明確でないこと、すなわち、破損時の燃料挙動及びプルトニウムのカバーガスへの移行率が明確でないことから、被ばく評価の観点から照射本数等の条件がきびしくなる。したがって、燃料の一部溶融が認められ、照射本数が少数本に限定され、破損したならば即炉停止するとしている試験用要素に本燃料要素は合致する。

## ③ 試験用要素に変更した結果

行政指導を反映し、補正申請を行った結果、燃料要素としての主な仕様に変更はないが、

V型特殊燃料要素（炭化物） 最大186本（A、B、C型各3体）

→ 炭化物試験用要素 最大18本（B型1体）

VI型特殊燃料要素（窒化物） 最大204本（A、B、C型各3体）

→ 窒化物試験用要素 最大24本（B型1体）

に制限されることとなった。

したがって、「常陽」にて特殊燃料要素に準じて本格的に照射試験を行うためには、物性値データの拡充の他に、一次系のプラント汚染及び周辺公衆の被ばく等の観点から少なくとも以下のデータが必要と思われる。なお、参考資料として「窒化物試験用要素破損時の被ばく評価」を別添に示す。

i. 窒化物試験用要素の破損にともない放出されるプルトニウムの量

参考資料中の「2. 主な計算条件」の(2)(3)及び(5)に対応。被覆管の破損により窒素分圧が低下するため、燃料の分解が継続することから、この分解の速度が重要な因子となると考えられる。

ii. 窒化物試験用要素から放出されたプルトニウム蒸気のカバーガスへの移行率

参考資料中の「2. 主な計算条件」の(6)に対応。

第4.1.1表 炭化物試験用要素の仕様

項 目	仕 様
試 料	
種 類	プルトニウム・ウラン混合炭化物 焼結ペレット
プルトニウム混合比 [PuC/(PuC+UC)]	約2.5wt%以下
プルトニウム同位体組成比	原子炉級
ウラン濃縮度	約2.6wt%以下
試料ペレットの初期密度	約8.5%理論密度
試料ペレット直径	約7.4mm
試料ペレット長さ	約1.5mm以下
試料最高温度	
定格出力時	約1,930℃
過出力時	約2,140℃
被 覆 管	
材 料	オーステナイト系ステンレス鋼
外 径	約8.5mm
肉 厚	約0.45mm
最 高 温 度 (肉厚中心)	約700℃ (定格出力時)
試料ペレット-被覆管間隙 (半径)	約0.1mm
ガスプレナム長さ	約90cm以下
試験用要素有効長さ (試料部)	約5.5cm以下
最 高 燃 焼 度	約50,000MWd/t
その他の部品の材料	
熱遮蔽ペレット	ウラン炭化物焼結ペレット (天然ウランまたは劣化ウラン)
上部反射体ペレット	オーステナイト系ステンレス鋼
プレナムスプリング	SUS304相当ステンレス鋼
端 栓	オーステナイト系ステンレス鋼

第4.1.2表 窒化物試験用要素の仕様

項 目	仕 様
試 料	
種 類	プルトニウム・ウラン混合窒化物 焼結ペレット
プルトニウム混合比 [PuN/(PuN+UN)]	約30wt%以下
プルトニウム同位体組成比	原子炉級
ウラン濃縮度	約29wt%以下
試料ペレットの初期密度	約95%理論密度以下
試料ペレット直径	6.3mm~7.5mm
試料ペレット長さ	約15mm以下
試料最高温度	
定格出力時	約2,140℃
過出力時	約2,390℃
被 覆 管	
材 料	オーステナイト系ステンレス鋼
外 径	7.5mm~8.5mm
肉 厚	0.45mm~0.50mm
最 高 温 度 (肉厚中心)	約700℃ (定格出力時)
試料ペレット-被覆管間隙 (半径)	約0.1mm~約0.2mm
ガスプレナム長さ	約90cm以下
試験用要素有効長さ (試料部)	約55cm以下
最 高 燃 焼 度	約75,000MWd/t
その他の部品の材料	
熱遮蔽ペレット	ウラン窒化物焼結ペレット (天然ウランまたは劣化ウラン)
上部反射体ペレット	オーステナイト系ステンレス鋼
プレナムスプリング	SUS304相当ステンレス鋼
端 栓	オーステナイト系ステンレス鋼

参考資料「窒化物試験用要素破損時の被ばく評価」

## 1. 概要

窒化物試験用要素の破損時に、気体廃棄物処理系を通して大気中へ放出される可能性のある放射性物質質量及びそれによる周辺公衆の被ばく線量を計算する。

## 2. 主要な計算条件

- (1) 窒化物試験用要素 1 本の被覆管に破損が生じるものとする。
- (2) 窒化物試験用要素の破損は、燃料破損検出設備により検出され、原子炉は停止されるものとする。
- (3) 窒化物試験用要素の仕様は、破損事故時において放出される放射性物質質量が最大となるよう設定する。
- (4) 破損後の放射性物質の移行経路等は、通常運転時における気体廃棄物と同様とする。
- (5) 窒化物試験用要素内には、定格出力時の試料温度に相当する燃料の蒸気が存在し、被覆管破損時にその全量が放出されるものとする。
- (6) 冷却材中に放出された燃料の蒸気は、冷却材によって急速に冷却され、そのほとんどが微粒子状となって冷却材中に留まるが、放出量の  $1/10$  が蒸気のままカバーガスへ移行するものとする。また、冷却材中に放出された希ガスはその全量が、よう素はその  $10^{-5}$  がカバーガスへ移行するものとする。
- (7) 気体廃棄物処理系のフィルタによる除去効率は、希ガスに対しては考慮せず、よう素及びプルトニウムに対しては  $90\%$  とする。

## 3. 大気中へ放出される放射性物質質量の計算

### (1) 希ガス及びよう素

窒化物試験用要素の被覆管が破損した場合、試験用要素から漏洩した放射性物質を含むカバーガスは、ダンプタンク、圧力調整ヘッド、低圧タンクを経由し、廃ガスヘッド、廃ガス浄化用フィルタを通過した後放射線モニタで測定される。この時、廃ガス中の放射能濃度は  $1.1 \times 10^3$  Bq/cm<sup>3</sup> を超えるため、貯留タンクに圧縮貯留される。貯留タンクへの流入は 15 日間かかって完了し、その後 14 日間冷却され、チャコールフィルタを通して排気筒から間欠的に大気中へ放出される。

平常運転時の場合と同様の計算手法を用いて計算すると、窒化物試験用要素の破損時に大気中へ放出される放射エネルギーは、希ガス約  $1.4 \times 10^{12}$  Bq 及びよう素約  $2.1 \times 10^6$  Bq である。

## (2) 燃料物質

窒化物試験用要素の被覆管が破損した場合、試験用要素から漏洩した燃料物質は、希ガス及びよう素と同様に、ダンプタンク、圧力調整ヘッド、低圧タンクを経由し、廃ガスヘッド、廃ガス浄化用フィルタを通過した後放射線モニタで測定され、貯留タンクに圧縮貯留された後、14日間冷却され、チャコールフィルタを通して排気筒から間欠的に大気中へ放出される。ただし、気体廃棄物処理系を移行中の時間減衰効果は無視することとする。

計算の結果、表1に示すように、窒化物試験用要素の破損時に大気中へ放出される燃料物質の放射エネルギーは、約 $5.7 \times 10^5$  Bqである。

## 4. 被ばく評価

## (1) 希ガス及びよう素

大気中へ放出された希ガス及びよう素による周辺公衆の被ばく線量は、平常運転時の場合と同様に算出する。

計算の結果、大気中へ放出された燃料物質による周辺公衆の被ばく線量は、希ガスのガンマ線に起因する実効線量当量が約 $1.0 \times 10^{-3} \mu\text{Sv}$ 、よう素による実効線量当量が約 $1.2 \times 10^{-5} \mu\text{Sv}$ である。

## (2) 燃料物質

大気中へ放出されたプルトニウムによる周辺公衆の被ばく線量は、以下の式を用いて算出する。

$$D_{Pu} = \sum R \cdot D^i \cdot (\chi/Q) \cdot Q_{Pu}^i$$

ここで、 R : 人間の呼吸率 ( $3.33 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$ )  
 $D^i$  : 核種 i を 1 Bq 吸入した時の実効線量当量 (表 2 参照)  
 $\chi/Q$  : 相対濃度 ( $2.7 \times 10^{-6} \text{ s}/\text{m}^3$ )  
 $Q_{Pu}^i$  : 核種 i の大気中への放出量 (Bq)

計算の結果、大気中へ放出された燃料物質による周辺公衆の被ばく線量は、約 $4.5 \times 10^{-3} \mu\text{Sv}$ である。

表1 燃料物質の大気中への放出量

核種	試験用要素から放出される重量 (g)	比放射能 (Ci/g)	試験用要素から放出される放射能 (Bq)	大気中へ放出される放射能 (Bq)
$^{238}\text{Pu}$	$2.9 \times 10^{-6}$	17	$1.8 \times 10^6$	$1.8 \times 10^4$
$^{239}\text{Pu}$	$1.6 \times 10^{-4}$	0.062	$3.7 \times 10^5$	$3.7 \times 10^3$
$^{240}\text{Pu}$	$5.4 \times 10^{-5}$	0.23	$4.6 \times 10^5$	$4.6 \times 10^3$
$^{241}\text{Pu}$	$1.4 \times 10^{-5}$	103	$5.3 \times 10^7$	$5.3 \times 10^5$
$^{242}\text{Pu}$	$5.0 \times 10^{-6}$	0.0039	$7.2 \times 10^2$	$7.2 \times 10^0$
$^{241}\text{Am}$	$7.2 \times 10^{-6}$	3.4	$9.1 \times 10^5$	$9.1 \times 10^3$
合計	$2.4 \times 10^{-4}$	—	$5.7 \times 10^7$	$5.7 \times 10^5$



表2 単位放射能当たりの実効線量当量 (吸入摂取)

核種	実効線量当量 (Sv/Bq)
$^{238}\text{Pu}$	$1.0 \times 10^{-4}$
$^{239}\text{Pu}$	$1.1 \times 10^{-4}$
$^{240}\text{Pu}$	$1.1 \times 10^{-4}$
$^{241}\text{Pu}$	$2.3 \times 10^{-6}$
$^{242}\text{Pu}$	$1.1 \times 10^{-4}$
$^{241}\text{Am}$	$1.2 \times 10^{-4}$

出典： ICRP Pub. 48  
 “The Metabolism of Plutonium and Related  
 Element” (1986)  
 ICRP Pub. 30 Part 4  
 “Limits for Intakes of Radionuclides  
 by Workers : an addendum” (1988)

#### 4.2 原研共研炭・窒化物燃料照射試験

##### (1) 担当部署

大洗工学センター 燃料材料開発部 燃料材料技術開発室 (ADS)

##### (2) 研究内容

原研との共同研究（原研共研）による炭・窒化物燃料照射試験は、炭化物燃料ピン1本、窒化物燃料ピン2本の計3本を平成6年度半ば（第29サイクル）から照射する予定で進められている。動燃側の窓口として、動燃内部および原研との調整を行った。

平成2年度から平成4年度までの共同研究工程（実績）および平成5年度から平成9年度までの共同研究工程（計画）を表1に示す。

##### (3) 結果

###### ① 燃料仕様の選定

炭化物燃料ピン1本、窒化物燃料ピン2本の基本仕様を表2に示す。2本ある窒化物燃料ピンについて、燃料ペレット密度を同一とし、燃料ペレット外径を変えることで、スミア密度を照射試験パラメータとして設定した。これにより、窒化物燃料の照射挙動に及ぼすスミア密度の影響を評価する。

###### ② 照射後試験および未照射燃料ペレット試験の検討

動燃と原研の両者間での照射後試験の実施分担および照射後試験項目について検討した。また、動燃での未照射燃料ペレットの試験を検討した。

表1 共同研究工程

項目	2年度	3年度	4年度	5年度	6年度	7年度	8年度	9年度
燃料ピン詳細設計								
設計・評価用物性値の整備								
許認可準備								
「常陽」設置変更申請								
設工認								
燃料ピン製作設計								
燃料ピン製作								
燃料ピン輸送（原研→動燃）								
照射リグ設計製作								
「常陽」照射								
照射後燃料輸送（動燃→原研）								
照射後試験・評価								

表2 炭・窒化物燃料ピンの基本仕様

		炭化物燃料ピン	窒化物燃料ピンA	窒化物燃料ピンB
原研製作の短尺燃料ピンの全長 (mm)		800		
「常陽」照射時の燃料ピン全長 (mm)		1533		
被覆管	材質	PNC1520		
	外径 (mm)	8.5		
	肉厚 (mm)	0.45		
燃料ペレット	種類	MC <sub>1.075</sub>	MN	
	Pu富化度 (%)	21.35	19.26	
	<sup>235</sup> U濃縮度 (%)	19.5		
	理論密度 (g/cm <sup>3</sup> )	13.44	14.32	
	理論密度比 (%TD)	85		
	外径 (mm)	7.42		7.28
	直径ギャップ (mm)	0.18		0.32
	スミア密度 (%TD)	81		78
	スタック長 (mm)	200		
熱遮蔽ペレット	種類	UC <sub>1.075</sub>	UN	
	スタック長 (mm)	105 (上下合計)		

## 4.3 照射試験のための燃料設計

## (1) 担当部署

東海事業所 技術開発推進部 炉心・燃料設計室

## (2) 実施内容

新型燃料に関する動燃独自の照射試験及び原研との共同研究による照射試験の燃料設計を実施する。また、新型燃料設計コードの開発を行う。

## (3) 結果

窒化物燃料に関する設計研究の第2ステップでは、「常陽」での新型燃料の照射試験実施に向けての原子炉設置許可変更に必要な燃料ピンの設計評価及び設工認申請のための燃料ピンの設計評価を実施した。

また、新型燃料設計コードの開発を引続き実施したが、第2ステップではPCMI挙動モデルの妥当性検討に重点を置いた。

## ① 常陽設置許可変更に伴う燃料設計評価

常陽での新型燃料の照射試験実施に向けての原子炉設置許可変更に伴う燃料設計評価として温度評価、強度評価を実施し、許可範囲を検討した。その結果、燃料要素の主要目が以下の範囲にある場合、燃料融点以下、クリープ寿命分数和1.0以下等の設計基準を満足することを確認した。尚、原研共研では窒化物燃料だけでなく、炭化物燃料の照射も実施されるため、2種類の燃料許可範囲を検討した。

プルトニウム富化度	;	炭化物 : 2.2 wt %以下
		窒化物 : 3.0 wt %以下
ウラン濃縮度	;	炭化物 : 2.0 wt %以下
		窒化物 : 2.1 wt %以下
燃料密度	;	9.5 %以下
燃料ペレット径	;	炭化物 : 7.42 mmφ
		窒化物 : 7.28 ~ 7.42 mmφ
被覆管外径	;	8.5 mmφ
被覆管肉厚	;	0.45 mm以上
燃焼度	;	炭化物 : 50000 MWd / t 以下
		窒化物 : 75000 MWd / t 以下
最大線出力	;	炭化物 : 990 w / cm 以下
		窒化物 : 1200 w / cm 以下

## ② 原研共研照射試験に伴う燃料設計評価

平成6年度に原研との共同研究による炭・窒化物燃料の照射試験が計画されており、設工認申請のための燃料ピン設計評価を実施した。

## (a) 原研共研照射試験の基本仕様及び照射条件

原研共研照射試験の主な燃料仕様及び照射条件は以下のとおりである。

照射燃料本数	;	炭化物燃料1本, 窒化物燃料2本
線出力	;	800w/cm
燃焼度	;	4~5at. %
燃料ペレット径	;	炭化物: 7.42mmφ 窒化物: 7.42mmφ, 7.28mmφ
被覆管外径	;	8.5mmφ
燃料要素全長	;	800mm (スタック長: 200mm)
照射期間	;	4サイクル

## (b) 燃料ピン設計評価結果

以下に計算結果の最大値と設計基準の比較を示す。いずれの項目においても本評価結果は、燃料設計基準を下回っていることから、本燃料要素は予定使用期間中をととして健全性を維持すると考える。

## 炭化物燃料要素の計算結果と設計基準の比較

項目	単位	部位	計算結果	設計基準
一次応力	—	最高温度部	0.273	1.0
一次+二次応力	—	下部端栓部	0.563	1.0
CDF	—	最高温度部	$0.324 \times 10^{-2}$	1.0
疲労	—	最大発熱部	$3.04 \times 10^{-3}$	1.0
燃料中心温度	℃	最大発熱部	2070	2140
被覆管周方向応力	kg/mm <sup>2</sup>	スタック下部	13.6	47.3
被覆管外径増加	%	スタック上部	0.441	7

## 窒化物燃料要素の計算結果と設計基準の比較

項目	単位	部位	計算結果	設計基準
一次応力	—	最高温度部	0.277	1.0
一次+二次応力	—	下部端栓部	0.554	1.0
CDF	—	最高温度部	$0.355 \times 10^{-2}$	1.0
疲労	—	最大発熱部	$3.44 \times 10^{-3}$	1.0
燃料中心温度	°C	最大発熱部	2273	2390
被覆管周方向応力	kg/mm <sup>2</sup>	最大発熱部	24.1	39.6
被覆管外径増加	%	スタック上部	0.452	7

## ③ 新型燃料設計コードの開発（PIEデータによるコードの妥当性の確認）

窒化物（MN）燃料ピンのPIEデータを調査した結果、EBR-II炉で照射されたC-6-7ピン及びC-7-21ピンのPIEデータは、その照射条件が比較的明確に報告されている<sup>1)・2)</sup>ことが分かった。そこで、これらのデータに基づき、SIMPLEコードのMN燃料用バージョンにおける燃料のスエリングおよびクリープ挙動モデルの妥当性について検討した。

## (a) PIEデータ調査結果

表1に、C-6-7ピンとC-7-21ピンの照射条件とPIE結果を示した。照射量が低いので、被覆管のスエリングは小さい。また、燃焼度が低いので、ピン内のガス圧は十分小さいと考えられる。したがって、測定されたピン外径増加( $\Delta D/D$ )は、主に燃料ペレットと被覆管の機械的相互作用に起因する被覆管のクリープによるものと考えて良いと判断できる。

表1 C-6-7ピンとC-7-21ピンの照射条件とPIE結果

ピン	C-6-7	C-7-21
Pu含有率 (%)	20	20
ペレット密度 (% T.D.)	89.7	87.6
直径ギャップ巾 (mm)	0.13	0.14
スミア密度 (% T.D.)	86.3	84.1
被覆管材質	CW316(Core1)	CW316(N-lot)
被覆管外径 (mm)	φ7.87	φ7.87
被覆管肉厚 (mm)	0.51	0.51
ピーク被覆管外面温度 (°C)	494	576
ピークBOL線出力 (W/cm)	750	780
ピーク高速中性子束 ( $\times 10^{15} \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ )	1.4	1.4
ピーク高速中性子照射量 ( $\times 10^{22} \text{n/cm}^2$ )	2.9	2.3
ピーク燃焼度 (at.%)	4.4	3.8
全照射時間 (hr)	5758	4764
ピーク $\Delta D/D$ (%)	0.73	0.27

## (b) SIMPLEコードMNバージョンを用いた評価結果

主要な計算結果を以下に図示した。ピーク $\Delta D/D$ は、いずれの燃料ピンにおいても、約0.7%となった。

すなわち、C-6-7ピンのPIE結果(0.73%)とは良く一致したが、C-7-21ピン(PIE結果:0.27%)については計算値が過大となった。しかし、このピンについてのLIFE-3Cコードを用いた評価結果も、0.63%と大きめになるとの報告<sup>1)</sup>があり、この結果とほぼ一致している。尚、食い違いの原因は70~100°C程度の局所的な温度上昇と推定されている。<sup>1)</sup>

## (c) まとめ

MN燃料のスエリングおよびクリープ挙動モデルの妥当性について、ほぼ確認できた。しかし、照射データが少なく、今後さらにデータの収集が必要である。また、酸化物燃料の挙動との比較評価を実施することを通して、MN燃料に関する設計検討を実施する必要がある。



引用文献

[1]A. Boltax et al., "PERFORMANCE ANALYSIS OF HELIUM-BONDED CARBIDE AND NITRIDE FUEL PINS", Proc. Internatinal Conf. on FBR Fuel Performance, Monterey, California, pp. 842-852(1979).

[2]A. A. Bauer et al., "HELIUM-AND SODIUM-BONDED MIXED NITRIDE FUEL PERFORMANCE", Proc. International Conf. on FBR Fuel Performance, Monterey, California, pp. 827-841(1979)

#### 4.4 動燃独自の窒化物燃料照射試験基本計画の作成

##### (1) 担当部署

大洗工学センター 燃料材料開発部 燃料材料技術開発室 (ADS)

##### (2) 研究内容

原研との共同研究(原研共研)による炭・窒化物燃料照射試験は、炭化物燃料ピン1本、窒化物燃料ピン2本の計3本を平成6年度半ば(第29サイクル)から照射する予定で進められている。第2ステップでは、原研共研に続く、東海事業所で製造される窒化物燃料を用いた動燃独自の照射試験基本計画の検討を行った。

##### (3) 検討結果

窒化物燃料炉心設計による燃料仕様の選定は実施されておらず、照射試験用燃料の製造に関する見通しも不十分であるのが現状である。そのため、ここで検討した照射試験基本計画は照射試験を進めるにあたっての基本的考え方を示すにとどめた。今後さらに検討を加えていくことが必要である。

##### ① 基本方針

###### (a) 基礎照射試験および標準照射試験

動燃独自の照射試験は、MOX燃料開発に準拠して、「基礎照射試験」によって基本的照射挙動を把握していくこととし、設計研究で燃料仕様を選定できた段階で「標準照射試験」を開始する。なお、設計研究で窒化物燃料仕様を選定するためには基礎照射試験、海外での照射試験等による照射データが必要であり、現状では標準照射試験の開始時期は判断できない。

###### (b) 高燃焼度データの早期取得

中間検査および再装荷による継続照射を行うことによって15万MWd/t程度の高燃焼度域までの照射データをできるだけ早期に取得する。

##### ② 基礎照射試験

###### (a) 目的

基本的照射挙動を把握することにより、窒化物燃料炉心の設計研究、燃料設計手法の高度化、照射挙動解析コードの改良および検証等に反映する。

###### (b) 照射試験内容

###### ・ピン照射試験

燃料ピンによる照射試験を行い、ピン照射挙動を把握する。

###### ・物性値取得照射試験

あらかじめ試料形状とした燃料サンプルの照射によって、自由スエリング、燃料クリープ、熱伝導度等の燃焼度、照射温度依存性を求め、燃料設計コード、照射挙動

解析コードに必要な物性式を取得する。

(c) 試験パラメータの設定

原研共研で選定されている燃料仕様および照射条件は、海外での設計研究例、進行中の照射試験に対して実用化、成立性、照射挙動の把握の観点から現状最も妥当と判断される。したがって、基礎照射試験におけるパラメータは、原研共研を中心に設定する。

③ 標準照射試験

窒化物燃料炉心の概念設計段階で候補とされる燃料仕様を中心に照射試験条件を設定し、燃料設計に必要な物性式の作成、燃料製造仕様の緩和、窒化物燃料サイクルの評価等に利用できる照射データを取得する。なお、本計画作成にあたってはその試験内容の検討は実施していない。

④ 照射試験の工程（基礎照射試験）

照射試験用燃料の製造開始は平成7年度後半と見込まれており、動燃独自の照射試験は平成9年度照射開始を目標とする。表1に工程を示す。

表1 照射試験工程

		「常陽」運転工程						
		5年度	6年度	7年度	8年度	9年度	10年度	11年度
基礎 照射試験	原研共研		○	○	○	○	△	
	動燃独自 ・ピン照射 ・物性値	○	○	○	○	○	○	○
		基本計画 見直し	燃料仕様選定 詳細設計		燃料ピン製作		照射 ↓ PIE	照射 ↓ PIE
燃料製造			○	○				
			製造試験		照射試験用燃料ペレットの製造			

#### 4.5 窒化物燃料製造試験設備の整備

##### (1) 担当部署

東海事業所 核燃料技術開発部 プルトニウム燃料開発室

##### (2) 研究内容

プルトニウム燃料第一開発室R-130室の既設設備を撤去して得た室内スペースに窒化物燃料試験設備を新設する。

#### 4.5.1 進捗状況

##### (1) 許認可

R-130室の撤去は、平成3年6月に変更の許可を受け、同年11月から4年3月にかけて実施した。新設に関しては平成4年7月に許可を受けた。施設検査は、内装機器の整備が完了する平成5年度末にグローブボックスと内装機器を一括して行う予定である。

##### (2) アルゴン雰囲気グローブボックス製作

概念設計を平成2年度～3年度にかけて実施し、3年度に発注を行った。設計・製作は平成4年度に行い、5年2月に据付を完了した。

##### (3) 内装機器の整備

内装機器については、平成4年度から5年度にかけて整備を行う。平成5年5月現在、成型機、研削機の据付を完了、焼結炉、還元炉は設計承認を終えている。

#### 4.5.2 設備仕様

##### (1) アルゴン雰囲気グローブボックス

アルゴンガスの循環精製により、ボックス内のガス純度を $O_2$ 、 $H_2O \leq 10ppm$ に維持する。なお、窒化物の場合、雰囲気は窒素でもよいが、設備の汎用化を考慮してアルゴン雰囲気とした。

また、ガス純度については文献調査を行ったが、窒化物取扱専用のグローブボックスという例はなく、全て炭化物用であった。このため、窒化物は炭化物よりも酸化しにくい事から、ガス純度を余り厳しく管理する必要はないと考えられるが、相当安全側に設定したものである。尚、受入検査の結果では、 $O_2 \leq 4.87ppm$ 、 $H_2O \leq 2.14ppm$ を達成した。

グローブボックスの配置及び構造を図4.5.1、4.5.2に示す。

## (2) ライン製造規模

新設設備は、酸化物粉末を出発物質とし、窒化物ペレットの外周研削を行うまでに必要な一通りの機器をラインアップする。ラインとしての製造能力は、500g/バッチであり、これは「常陽」型燃料ピンを年間20～30本（スタック長換算）に相当する。

また、窒化物の粉末特性が製造条件に及ぼす影響や、酸化特性を定量的に把握するために、粉末物性（粒度分布、比表面積）測定装置を設置する。内装機器の内訳を表4.5.1に示す

表4.5.1 内装機器一覧

G. B. No.	内装機器	仕様
98A	熱処理炉	最高温度；200℃
98B	還元炉	最高温度；1900℃, バッチ；500g
	焼結炉	最高温度；1900℃, バッチ；500g
	ガスクロマトグラフ	TCD方式
	分析試料封入装置	——
98C	比表面積測定装置	BET法
98D	S型混合機	バッチ；500g
	ボールミル	バッチ；500g
98E	成形装置	油圧式、総圧；10ton
99	外周研削装置	湿式センタレス式

## 5. 評価研究

### 5.1 安全性向上炉心評価

担当部署 大洗工学センター 技術開発部 プラント工学室

#### 5.1.1 目的

新型燃料（窒化物燃料、金属燃料）の酸化物燃料に対する安全上の得失を明確にするため、また、新型燃料炉心間の固有安全性の比較評価を行うためには、安全性の向上に対して共通となる炉心特性の目標を設定して炉心設計研究を実施し、定量的な尺度でMOX燃料との比較および新型燃料間の比較を行う必要がある。本報告書では、この共通の目標を、最近の安全性評価で重要視されている「ATWS時の受動的炉停止能力」とした。従来の高信頼度・能動的メカニズムおよび工学的安全施設により安全性を確保する考え方も勿論有りうるが、新型燃料の得失を比較する観点から、高速炉が多数機稼働する実用化時代を念頭に置き、受動的安全性を追求した時の各燃料の得失を把握するものとした。

#### 5.1.2 受動的安全性の目標設定

次世代高速炉の安全性評価においては「ATWS事象」時の炉心挙動が重要視されている。本検討ではATWS事象の中から特にULOF（流量喪失スクラム失敗）事象に着目し、この時の受動的炉停止能力を確保することを炉心設計の目標とした。これまでの研究結果からULOHs（除熱源喪失スクラム失敗）事象では炉心挙動はよりマイルドであることが知られている。UTOP（過出力スクラム失敗）事象については、ULOF事象に対する受動的炉停止能力の付与を優先とし、設計対応を検討するものとした。受動的炉停止能力の具体的な判断基準を「ULOF事象については、冷却材沸騰を生ずることなく事象が推移し、崩壊熱レベルの炉心出力で整定すること」また「UTOP事象については制御棒1本の完全引き抜きを想定しても燃料溶融あるいは冷却材沸騰が生じないこと」とした。

#### 5.1.3 受動的安全炉心の炉心概念

##### (1) 基本的アプローチ

我が国は大型高速炉開発をその基本路線に置いており、本検討では、これに従って、大型炉心を前提とすることとした。前述したように、受動的安全性の強化をまず「ULOF事象における冷却材ナトリウムの沸騰防止」に置くものとした。ULOF事象時に受動的炉停止を達成しようとする場合に重要な反応度因子はドップラー反応度フィードバックと冷却材反応度フィードバックである。大型炉心においては冷却材温度係数は通常の設計では正であり、これまでの設計例ではULOF時の冷却材温度の上昇に従って

正の反応度フィードバックを与える。ドブラー係数は負であるが、ULOF時の反応度フィードバックについては、燃料温度が通常時よりも上がる場合と下がる場合では、その符号は逆になる。云いかえると、ULOF時に期待している炉心の整定状態よりも通常運転時の燃料温度が高い場合は正のフィードバック、低い場合は負のフィードバックを与えることになる。ここで「期待している炉心整定状態」は、少なくとも冷却材ナトリウムは沸点以下であり、また、炉出力が崩壊熱レベルに低下しているとの前提から燃料温度はその時の冷却材温度よりも僅かに高い温度である状態と考えることができる。通常運転時の燃料温度を決定する因子は燃料の熱伝導度と燃料の線出力および被覆管と燃料ペレット間のギャップコンダクタンスの3つである。MOX燃料は熱伝導度が小さいこと、ナトリウムとのFSI防止のためのヘリウムボンドの採用により、一般的に通常運転時燃料温度が高くなる。これに対して、窒化物燃料、金属燃料は熱伝導度に優れること、また、金属燃料、窒化物燃料はNaボンドを用いることが可能なことから、燃料温度は更に低く出来る。なお、金属燃料については、燃料融点が低いことから事実上ナトリウムボンドの選択しか有り得ない。窒化物燃料については、ナトリウムボンドとヘリウムボンドのどちらを選択することも可能であるが、ナトリウムボンドが燃料温度の点では有利である。本報告での窒化物燃料炉心では、検討の第1段階として製造側、再処理側への影響を最小化する観点からヘリウムボンド燃料を前提とした。ボンド方式と燃料構造は密接に関連し、次節に述べる炉心概念との関連も考慮する必要がある。

## (2) ナトリウムプレナム概念による冷却材温度係数の低減

いずれの燃料を用いた場合にも、これまでの大型炉心設計例では冷却材温度係数は正となっていた。冷却材温度係数を下げることは増殖特性を低下させることと密接に関連し、高増殖性を維持したまま冷却材温度係数を著しく低下することは高速炉炉心では本質的に困難であると考えられてきた。しかしながら、炉心周囲の冷却材密度変化による反応度フィードバックをULOF時に負にすることによって、正味の冷却材温度係数を低減する方法が有効であることが最近の研究で分かって来た。1990年の米国Snowbirdにおける安全性会議において、ナトリウムプレナムを炉心の上部に配置することによって炉心ナトリウムボイド反応度をゼロとする概念がロシアから提案された。ナトリウムボイド反応度自体は炉心崩壊過程においてのみ重要となるパラメータであり、これをゼロとすることのみでは受動的炉停止能力を付与することにはならない。本検討では、受動的炉停止能力達成のために、この概念を冷却材温度係数の低減に用いるものとし、炉心上部および炉心側部に配置することとした。

## (3) 炉心高さの低減および中心ブランケットの配置

従来からの設計検討例にもみられるが、炉心部の冷却材温度係数を低減する方法の一つは、冷却材密度が減少した時の中性子漏洩を促進することであり、炉心部の中性子束の曲率（バックリング）を大きくすることが効果がある。小型炉心で冷却材温度係数が小さくなるのはこの原理による。本検討では軸方向のバックリングを大きくするために炉心高さを低下すると共に、径方向のバックリングを大きくするために炉心中心にブランケット燃料を配置するものとした。

## 5.1.4 受動的安全炉心の炉心仕様、配置

## (1) 炉心配置

図5.1.1および図5.1.2に、各炉心の水平断面図および垂直断面図を示した。窒化物炉心と金属炉心は炉心形状を同一とした。これまでの設計研究例では、燃料スエリングを考慮して燃料スミヤ密度を金属燃料は75%TD、窒化物燃料は80%TDとしている。この条件では、燃料ピン径が同一の場合には、重元素密度がほぼ完全に一致することから、同一炉心形状、同一燃料仕様として比較することが可能であり、本検討でも燃料ガスプレナム位置、長さを除いて燃料仕様、燃料線出力条件等、全てを同一とした。MOX燃料炉心と窒化物燃料炉心、金属燃料炉心の炉心配置の考え方は同じであり、炉心上部および側部にナトリウムプレナムを配置するものとしている。金属燃料炉心については、ナトリウムボンド型燃料であることから、MOX燃料炉心、窒化物燃料炉心のよう上部ナトリウムプレナム構造はとれないが、上部軸ブランケットは削除して、炉心上部のガスプレナム部での流量喪失時冷却材密度減少の効果を期待する構造としている。

MOX燃料炉心の炉心径が、窒化物燃料炉心、金属燃料炉心に比較してかなり大きくなっているが、これは後述するULOF時の受動的炉停止達成のために燃料線出力を低下せざるを得ないことと、燃料の重元素密度が小さいために炉心の出力密度を上げると燃焼反応度が大きくなりすぎることによる。

## (2) 炉心燃料仕様

各燃料炉心の炉心燃料仕様を表5.1.1に比較して示した。MOX燃料の燃料ピン径は過去の検討例から、冷却材温度係数がゼロ近傍の時に受動的炉停止を達成するための条件として燃料平均線出力を180W/cm以下とし、3バッチ燃料交換で炉心取出平均燃焼度が約9万Mwd/tになるように設定した。炉心径が小さくなるようにピン径をさらに細くし、2バッチ燃料交換とする方法が考えられるが、燃焼欠損反応度の観点から実現不可能と判断した。窒化物燃料および金属燃料の炉心燃料仕様は重元素密度がほぼ同一となることから、燃料ピン外径を同一としている。燃料ピン仕様は、両炉心の核的ポテン



シャルの高さを考慮して365日サイクル、5バッチ燃料交換のもとで炉心平均取出燃焼度が約12万Mwd/tとなるように設定した。

MOX燃料炉心は集合体当たり燃料ピン本数が397本の大型集合体を用いた。窒化物燃料炉心および金属燃料炉心では271本としたが、集合体出力の観点からは331本の実選も可能と判断される。最終的には制御棒設計成立性も含めて決定する必要があるが、反応度特性を比較する場合にはこの影響は無視できる。燃料ピンの肉厚は、最近の大型炉設計で用いられているピン径/肉厚比を用いた。ガスプレナム長さは、文献に示されるFPガス放出率から、MOX燃料は100%、窒化物燃料は10%、金属燃料は60%として設定した。

### (3) 炉心燃料集合体寸法概略

図5.1.3には、各燃料について炉心燃料集合体の軸方向寸法の概略を比較して示した。同図に示されるように、FPガス放出率が小さい窒化物燃料の燃料ピン長が1520mmで最も短い。被覆管フープ応力の点からは、ガスプレナムは原理的には100mm程度で十分となるが、実績の少ないことを考慮して3倍の余裕をとっている。金属燃料については、FPガス放出率が低いもののガスプレナムを上とすることから燃料ピン全長はMOX燃料の場合と大差ない。燃料集合体長は、上下方向の中性子遮蔽、制御棒パーキング位置の確保を考慮して設定したが、窒化物燃料は燃料ピン全長が短縮された分だけMOX燃料、金属燃料よりも短縮されている(約500mm)。

### 5.1.5 受動的安全炉心の燃焼特性

表5.1.2には各炉心の燃焼特性を比較して示した。同表に示されるように、MOX炉心は最大線出力を320W/cm、窒化物燃料炉心、金属燃料炉心は450W/cmとしている。窒化物燃料はN-15を100%濃縮で用いるものとしている。窒化物燃料、金属燃料の場合には重元素密度が大きく、また、スペクトルが硬いことによりMOX炉心よりも増殖特性が良好となっている。上部ブランケットを削除したことによりMOX炉心では増殖比が1.05まで低下し、また、燃焼反応度も4% $\Delta k/kk'$ にまで増加しているが、窒化物燃料炉心、金属燃料炉心では炉心平均燃焼度を12万Mwd/tにまで増加しているのにもかかわらず増殖比1.2、燃焼反応度2.6% $\Delta k/kk'$ 程度と制御棒設計が容易な値となっている。

## 5.1.6 受動的安全炉心の反応度特性

表5.1.3には、ATWS事象時の炉心挙動を支配する炉心の反応度特性を比較して示した。

## (1) ドップラー係数

スペクトルの柔らかいMOX炉心が最も大きく、金属燃料炉心が最も小さい。窒化物燃料はその中間となる。

## (2) 燃料密度係数

3つの炉心で有意な差はみられない。このことから燃料ペレットの膨張による反応度フィードバックは燃料物性のみによって決まることになる。線膨張率の大きな金属燃料では比較的大きな反応度因子となる。

## (3) 構造材密度係数

3つの炉心で特に大きな差はない。金属燃料炉心でナトリウムプレナム部の密度係数が大きい、これは金属燃料炉心はガスプレナムとなっているため構造材の割合が大きいことによる。

## (4) 冷却材温度係数

炉心部の冷却材温度係数についてみると、スペクトルの硬い金属燃料炉心が最も大きく、次いで窒化物燃料炉心、MOX燃料炉心の順となる。ナトリウムプレナム部の冷却材温度係数は中性子漏洩成分のみであるため、炉心の中性子スペクトルの影響を殆ど受けないと考えられる。金属燃料炉心のナトリウムプレナム部の負の反応度効果が他の2炉心に比べて1/2程度となっているが、これは炉心上部にFPガスプレナムを設置せざるを得ず、その部分の負の反応度効果がMOX炉心、窒化物燃料炉心の1/3程度となってしまうためである。

### 5.1.7 受動的安全炉心のA T W S 事象解析

前節に求めた炉心反応度特性に従って、3炉心についてのA T W S 事象解析を実施した。解析は、1次冷却系を模擬したフローネットワーク付きの多チャンネル炉心動特性コードにより行っている。

A T W S 事象解析におけるプラント条件は以下のように設定した。

- ①原子炉出入口温度..... 380℃/530℃
- ②1次主ポンプ流量半減時間..... 10秒
- ③ポニーモーター流量..... 10%
- ④制御棒微分反応度..... 10φ/℃
- ⑤制御棒延長管伸び時定数..... 10秒
- ⑥集合体パッド間ギャップ..... 0mm
- ⑦制御棒引き抜き速度（U T O P 事象）..... 3φ/sec

#### (1) U L O F 事象解析

U L O F 事象のシナリオは、定格運転状態から1次主ポンプが流量半減時間10秒でコストダウンし、ポニーモーター運転に引き継がれるものとし、制御棒によるスクラムがないものとして、この時の炉心の出力、各部温度変化を解析している。解析モデルとしては、冷却材温度の上昇による集合体パッド部の膨張による炉心の径方向膨張の反応度効果と、炉心上部プレナムの温度上昇による制御棒延長管の膨張効果を考慮している。また解析においては、対象とする時間範囲が短いことから、I H X の2次系ナトリウム温度は一定であるとしている。

##### (i) M O X 炉心

図5.1.4(1/2)には、U L O F 時の各部最高温度の履歴、図5.1.4(2/2)には各反応度因子毎の時間変化を示した。図に示されるように、M O X 燃料は通常運転時の燃料温度が高く初期最高温度の1700℃程度から時間と共に低下する。これに従って、正のドップラー反応度が入ることになる。表3に示したように、ナトリウムプレナム部の負の冷却材温度係数が炉心部の正の冷却材温度係数を上回っており、正味の冷却材温度反応度は-15φ程度もの負のフィードバックを与えている。結果として、冷却材最高温度は900℃となっており、沸騰防止の目安温度である920℃以下となった。

##### (ii) 窒化物燃料炉心

図5.1.5(1/2)および図5.1.5(2/2)に、U L O F 時の各部最高温度履歴、各反応度因子毎の時間変化を示した。ヘリウムボンド型燃料を用いているため、基本的な挙動はM O X 炉心の場合と同様であるが、燃料の熱伝導度が良いことにより初期燃料最高温度は1000℃と低く、このことにより正のドップラー反応度はM O X 炉心の場合よりも

小さくなっている。また、MOX炉心と同様にナトリウムプレナムの効果により、冷却材温度反応度は10 $\phi$ 程度の負値となっている。冷却材最高温度は860 $^{\circ}$ C程度であり、沸騰防止の目安温度920 $^{\circ}$ C以下となった。

### (iii) 金属燃料炉心

図5.1.6(1/2)および図5.1.6(2/2)に、ULOF時の各部最高温度履歴、各反応度因子毎の時間変化を示した。燃料の熱伝導度が高く、かつ、ナトリウムボンド型燃料として用いられる金属燃料炉心の挙動は、上記のMOX炉心、窒化物燃料炉心の場合とかなり異なる。図5.1.6(1/2)に見られるように、初期の燃料最高温度が730 $^{\circ}$ C程度と低いことにより、ULOF事象でも燃料温度が上昇する方向で推移する。従って、図5.1.6(2/2)に示されるように、-10 $\phi$ 程度と負のドップラー反応度フィードバックが生じている。また、ナトリウムプレナムの効果により、冷却材温度反応度も殆どゼロとなっている。冷却材最高温度は900 $^{\circ}$ Cであり、沸騰防止の目安温度920 $^{\circ}$ C以下となっている。

## (2) UTOP事象解析

詳細なUTOP事象解析を行うためには、制御棒設計について3次元解析を実施し、制御棒の誤引き抜きによる出力歪み効果も考慮する必要がある。本検討においては、1点近似動特性の範囲で、添加反応度と燃料最高温度、冷却材最高温度の関係を解析し、それぞれの炉心について許容できる反応度を求めるものとした。解析においては、運転操作上の最大値と想定できる反応度添加速度3 $\phi$ /secで制御棒が引き抜かれる時の燃料最高温度、冷却材最高温度を評価し、燃料溶融防止、冷却材沸騰防止の観点から許容できる添加反応度を求めるものとした。

### (i) 添加反応度と燃料最高温度

図5.1.7にはUTOP時添加反応度と燃料最高温度の関係を3炉心について比較して示した。燃料溶融防止の観点からの制限目安温度について、MOX燃料については2650 $^{\circ}$ C、窒化物燃料については2400 $^{\circ}$ C、金属燃料については1100 $^{\circ}$ Cとして示した。図に示されるように燃料溶融防止の観点からの許容投入反応度は、MOX炉心で1 $\phi$ 程度、窒化物燃料炉心で2 $\phi$ 程度、金属燃料炉心で80 $\phi$ 程度となっている。

### (ii) 添加反応度と冷却材最高温度

図5.1.8にはUTOP時添加反応度と冷却材最高温度の関係を3炉心について比較して示した。冷却材沸騰防止の観点からの許容投入反応度は図に示されるように、MOX炉心1.7 $\phi$ 、窒化物燃料炉心1.5 $\phi$ 、金属燃料炉心1 $\phi$ となった。

以上の結果をまとめると、UTOP時許容投入反応度について、MOX炉心と金属燃料炉心は燃料溶融防止が制限となっており、MOX炉心については約1%、金属燃料炉心については約80%が制限となる。一方、窒化物燃料炉心については、冷却材の沸騰防止が制限となっており、許容投入反応度は約1.5%となった。なお、金属燃料については急速な燃料と被覆管の共晶反応を避けるためには、更に投入反応度を制限する必要があると考えられる。

### (3) ATWS事象解析結果のまとめ

ULOF事象、UTOP事象に対する解析結果をまとめると以下の通りである。

- ① 受動的安全性強化のために採用したナトリウムプレナムの効果は大きく、ULOF事象時の冷却材温度反応度をゼロあるいは負とすることが可能である。
- ② MOX燃料、窒化物燃料、金属燃料共に炉心の径方向膨張を考慮することによりULOF時の受動的炉停止を達成することが可能となる。
- ③ 金属燃料炉心の解析例に見られるように金属燃料あるいは窒化物燃料をナトリウムボンド型として用いることにより、ULOF時のドップラー反応度フィードバックを負とすることができる。
- ④ UTOP事象における許容投入反応度についてMOX炉心、金属燃料炉心は燃料溶融防止が制限となるが、窒化物燃料炉心では冷却材沸騰防止が制限因子となっている。また、許容投入反応度の観点からは、窒化物燃料が最も裕度大きい。

### 5.1.8 新型燃料比較結果のまとめ

以上に示したようにどの燃料についてもULOF事象時に受動的炉停止能力を有する大型炉心を構成することが可能なことが示された。一方、

- ・ MOX炉心では、核的な点から平均燃焼度が上げられない。増殖性の低下も著しい。
- ・ MOX炉心では燃料線出力を大きく低下しなければならないため、炉心の総燃料ピン本数は、窒化物燃料および金属燃料の場合の、33%増しとなる。
- ・ MOX炉心の炉心径は窒化物燃料炉心、金属燃料炉心の16%増となる。
- ・ 窒化物燃料炉心、金属燃料炉心はほぼ同じ炉心燃焼特性、ULOF時受動的炉停止能力を示すが、UTOP事象については、融点の違いにより窒化物燃料の優位性が示された。
- ・ 更に、窒化物燃料はナトリウムボンド型で用いることにより、ULOF時のドップラー反応度フィードバックを負とする余地があるので、炉心の径方向膨張等の不確かさの大きな反応度効果に依存しない高度な受動的安全性を得られる可能性がある。

### 5.1.9 窒化物燃料炉心における<sup>15</sup>Nと<sup>14</sup>Nの反応度特性の差について

本報告における新型燃料間の比較検討では、<sup>15</sup>Nを100%に濃縮した窒化物燃料を用いることを前提としている。一方、<sup>15</sup>Nの濃縮コストによっては<sup>14</sup>Nを使用せざるを得ない場合があり得るので、本節では<sup>15</sup>Nが100%の場合と<sup>14</sup>Nが100%の場合について、100万kWe級の従来型の均質炉心（径ブランケットなし）で比較した例を示し、その影響について述べる。

#### (1) 炉心燃焼特性

表5.1.4及び表5.1.5には、それぞれ、<sup>15</sup>N-100%と<sup>14</sup>N-100%の場合について、炉心高さの変化と増殖比等の燃焼特性の変化を示した。両表に示されるように、同一の炉心形状、炉心燃料仕様の場合、<sup>14</sup>N-100%の場合には同核種による(n, p)反応での無駄吸収によって、Pu富化度を10%程度<sup>15</sup>N-100%の場合よりも高くする必要が生ずる。従って、増殖比は<sup>14</sup>Nの場合には<sup>15</sup>Nの場合よりも0.1程度減少し、燃焼反応度も1%Δk/kk'程度増加する。一方、高速フルエンスについては、Pu富化度の増加に対応して若干減少している。

#### (2) 反応度特性

表5.1.6には、<sup>15</sup>N-100%と<sup>14</sup>N-100%の場合のそれぞれについて、ドップラー係数と冷却材温度係数等を炉心高さとともに示した。同表に示されるように、同一炉心形状、炉心燃料仕様では、ドップラー係数については<sup>14</sup>Nの場合の方が10%程度絶対値が大きく、冷却材温度係数については<sup>14</sup>Nの場合の方が20～25%小さいという傾向を示している。次節に示すがナトリウムボンド型窒化物燃料により受動的安全性の強化を図る場合には、<sup>14</sup>Nの方が反応度特性の調整幅が小さくてよいことになる。

#### (3) まとめ

受動的炉停止を達成するためにドップラー係数、冷却材温度係数を調整しようとする場合には、炉心の扁平化等により冷却材温度係数を下げるか、スペクトルシフトによりドップラー係数絶対値を大きくするのが一般的な方法であるが、これらいずれの方法をとっても、増殖比は下がり、燃焼反応度は大きくなる。<sup>15</sup>Nで受動的炉停止を達成する時には、<sup>14</sup>Nの場合よりも反応度特性の調整幅を大きくしなければならないことが(2)節から明らかであり、(1)節における<sup>15</sup>Nの燃焼特性上の有利さはその分減少することになる。つまり、同一の受動的安全性を得ることを前提とする場合には、<sup>15</sup>Nと<sup>14</sup>Nの炉心燃焼特性もほぼ同等になると判断できる。

### 5.1.10 ナトリウムボンド型窒化物燃料による受動的安全性の抜本的強化

5.1.8節にまとめたように、燃料としてナトリウムボンド型の窒化物燃料を用いた場合には、ドップラー反応度フィードバックを負とすることが可能であり、これと冷却材温度係数の低減を組み合わせることにより、ULOFとUTOPの両方に対して受動的安全性の高い高速炉炉心を構成することが出来る可能性がある。本節では、新型燃料間の比較に用いたナトリウムプレナム付き扁平炉心にナトリウムボンド型窒化物燃料を採用した場合の受動的安全性をATWS事象解析により評価した結果を述べるとともに、サーベいの視点を変えて、ドップラー係数絶対値を大きくし、かつ、冷却材温度係数の低減を図るために水素化ジルコニウムを僅かに添加したスペクトルシフト炉心による受動的安全性のサーベイ結果について述べる。

#### (1) Na プレナム付き扁平炉心へのNa ボンド型窒化物燃料の適用

##### (i) 炉心形状

金属燃料の場合と同様に、ナトリウムボンド型窒化物燃料を用いる場合には、FPガスプレナムを燃料ピン上部に設置することになるので上部ナトリウムプレナムの反応度効果は余り期待できない。炉心側部のNa プレナム集合体については、下ガスプレナムとすることが出来る。図5.1.9には炉心水平断面と垂直断面を示した。

##### (ii) 燃料仕様、炉心燃焼特性、反応度特性

表5.1.7には炉心燃料仕様、炉心燃焼特性、反応度特性を示した。受動的な安全特性を抜本的に強化する観点から、燃料線出力は最大381W/cm にまで低減している。従って、燃料ピン径は7.0mm と前述の窒化物燃料炉心よりも更に細径としている。また、このことにより炉心等価直径は20cm程度増加している。増殖比は前述の炉心よりも幾分低下している。反応度特性については大きな変化はないが、炉心上部ガスプレナム部の冷却材密度係数が前述の炉心の1/3程度となっているので、全Na プレナム部の冷却材密度係数は減少している。

##### (iii) ULOF事象解析

図5.1.10にはULOF事象に対する解析結果例を示した。同図に示すように、この解析例では、原子炉出入口温度 380℃/530℃、流量半減時間15秒、ポニーモーター流量15%を条件としている。5.1.8節までの新型燃料の比較のための解析条件と大きく異なるのは、フィードバック反応度として、炉心径方向膨張および制御棒延長管の伸びを全く考慮していないことである。図に示されるように、この保守的な解析条件でもドップラー反応度と冷却材温度反応度、さらに50秒位からは炉心支持板膨張反応度が負に働き、冷却材沸騰に至らずに冷却材温度が安定することが分かる。このULOF時の挙動は原子炉出入口温度条件、流量半減時間等の条件により影響を受ける。

図5.1.11はULOF時の冷却材最高温度に対するこれらのパラメータの感度を解析することにより受動的炉停止が達成可能なドップラー係数と冷却材温度係数の組み合わせをセーフティマップとして示したものであり、炉心径方向膨張が期待できないとした場合のものである。図に示す実効冷却材温度係数は炉心出口温度変化に対して規格化したものであり、通常の定義の冷却材温度係数の1/2程度の値となる。Naプレナムのように炉心上部に負の温度係数の領域がある場合には実効冷却材温度係数は更に小さくなる。セーフティマップに示されるように、原子炉出入口温度を低下することにより達成可能領域は拡大される。また、この炉心の特徴として制御棒延長管の伸びによる反応度効果の感度が大きいことが示されている。図中に示した制御棒の微分反応度、延長管伸びの時定数は非常に保守的に見積もったものであり、炉心上部構造に若干の工夫を施すことにより達成できるものと判断される。

## (2) スペクトルシフトとの組合せによる高度な受動的炉停止の可能性検討

### (i) 炉心概念

図5.1.11から、前述のNaプレナム付き扁平炉心のように、主に冷却材温度係数の低減により受動的炉停止を達成する方法の他に、ドップラー係数絶対値を大きくする方法も有効であることが分かる。ドップラー係数絶対値を大きくする方法としては減速材により中性子スペクトルを軟化する方法が考えられる。このスペクトルシフトは、通常、炉心の増殖性の低下を引き起こし、燃焼反応度の増加を伴うが、その程度によっては、受動的安全性の強化方策として採用できる可能性がある。この観点から、従来型の100万kWe級Pu富化度2領域均質炉心（径ブランケットなし）に減速材として水素化ジルコニウム（ZrH<sub>1.6</sub>）を封入したピンを添加した場合の燃焼特性、反応度特性をサーベイするものとした。図5.1.12には、サーベイの対象とした均質炉心の水平断面、垂直断面および水素化ジルコニウムを添加した燃料集合体の概念を示す。

### (ii) 水素化ジルコニウム添加による燃焼特性、反応度特性の変化

表5.1.8には水素化ジルコニウム封入ピンを内側炉心に添加する時の添加割合と炉心燃焼特性の変化を示した。添加割合が増加するに従って、増殖比は減少し、9%では1.04となっている。また、燃焼反応度も1.46%Δk/kk'から3.48%Δk/kk'へと増加している。高速フルエンスについては30%近くも減少しており、高燃焼度化の達成には有利な面がある。一方、反応度特性については、図5.1.13に示したが、9%の添加に対してドップラー係数絶対値は約2倍、冷却材温度係数は約30%減少している。図5.1.11に9%添加の場合の反応度特性を追加したのが図5.1.14であるが、前述のNaプレナム付き扁平炉心と同等の受動的安全性が得られることが分かる。炉心径、炉心配置のシンプルさを考慮すると、より望ましい炉心概念である。



## (3) まとめおよび今後の展開

ナトリウムボンド型窒化物燃料を用いることにより受動的安全性を抜本的に強化できることが示された。本節の検討で、特に炉心径方向膨張を期待しない受動的炉停止を目標としたのは、大型炉心では、炉心径方向膨張による反応度効果は不確かさが大きいと考えられること、また、耐震設計に基づく従来からの炉心拘束法では大きな効果が期待できないこと、更には大型炉心での複雑な炉心湾曲挙動の予測精度を実証することには大きな困難が予想されることを考慮したからである。PRISM設計等これまでの受動的安全性を強調した炉心設計例では炉心湾曲反応度が期待できることを前提に受動的炉停止が達成できるとしており、原型炉プラントでの実証が前提となっている。これまでの検討結果に示されたように 100万kWe クラスの大型炉心でPRISMのような小型炉心でも達成していない高度な受動的安全性を得る可能性が示されている訳であり、ナトリウムボンド型窒化物燃料炉心は、今後、更に重点的に検討を深めるべき対象であることが分かった。

表5.1.1 100万kWe受動的安全炉心 - 燃料仕様比較

項目	MOX 炉心燃料	MN 炉心燃料	Metal 炉心燃料
ボンド形式	Heボンド	Heボンド	Naボンド
ペレット形状	中実	中実	中実
ピン径	7.0mm	7.5mm	←
燃料ペレット径	6.02mm	6.46mm	5.73mm
ペレット間ギャップ	0.18mm	0.16mm	0.89mm
燃料ペレット密度	92%TD	84%TD	100%TD
燃料スミア密度	86.7%TD	80.0%TD	75.0%TD
被覆管肉厚	0.40mm	0.44mm	←
ワイヤ径	1.05mm	1.00mm	←
燃料ピン配列ピッチ	8.10mm	8.60mm	←
ワイヤ巻ピッチ	200mm	165mm	←
ガスプレナム長さ (上/下)	(mm) 20/700	(mm) 20/300	(mm) 800/0
端栓部長さ (上/中間/下)	(mm) 30/20/50	(mm) 30/20/50	(mm) 30/0/50
燃料ピン全長	2020mm	1520mm	1980mm
集合体当り燃料ピン数	397本	271本	←
内対面間距離	163.6mm	152.0mm	←
ラッパ管板厚	4.5mm	4.0mm	←
ラッパ管間ギャップ	5.8mm	4.4mm	←
集合体配列ピッチ	178.4mm	156.4mm	←
実効燃料体積比	37.4%	35.2%	33.0%

表5.1.2 100万kWe受動的的安全炉心 - 燃焼特性比較

	MOX 炉心	MN 炉心	Metal 炉心
原子炉熱出力	2,600MW	2,600MW	←
運転サイクル	365day	365day	←
炉心燃料交換バッチ	3	5	←
最大線出力	320W/cm	450W/cm	←
炉心平均線出力	180W/cm	260W/cm	←
炉心高さ	80cm	70cm	←
炉心等価直径	431cm	369cm	←
軸ブランケット厚さ	40cm	40cm	←
内部ブランケット等価直径	180cm	100cm	←
径ブランケット厚さ	33cm	30cm	←
炉心取出平均燃焼度	85,000MWd/t	125,000MWd/t	←
増殖比	1.05	1.19	1.21
燃焼欠損反応度	4.0% $\Delta k/kk'$	2.6% $\Delta k/kk'$	2.7% $\Delta k/kk'$
Pu富化度 (内側炉心/外側炉心)	(w/o) 20.2/25.0	(w/o) 15.7/19.0	(w/o) 15.0/19.0
ピーク高速フルエンス	$2.3 \times 10^{23}$	$4.5 \times 10^{23}$	$5.3 \times 10^{23}$

表5.1.3 100万kWe受動的的安全炉心 - 反応度特性比較 (拡散計算値)

	MOX 炉心	MN 炉心	Metal 炉心
ドップラー係数( $Tdk/dT$ ) 炉心部	$-6.145 \times 10^{-3}$	$-5.377 \times 10^{-3}$	$-4.282 \times 10^{-3}$
燃料密度係数( $\Delta k/kk'/\Delta\rho/\rho$ ) 炉心部 内部ブランケット部	$3.496 \times 10^{-1}$ $-4.588 \times 10^{-4}$	$3.158 \times 10^{-1}$ $-2.449 \times 10^{-4}$	$3.552 \times 10^{-1}$ $-2.154 \times 10^{-4}$
冷却材密度係数( $\Delta k/kk'/\Delta\rho/\rho$ ) 炉心部 Naプレナム部	$-1.098 \times 10^{-2}$ $1.577 \times 10^{-2}$	$-1.573 \times 10^{-2}$ $1.452 \times 10^{-2}$	$-1.712 \times 10^{-2}$ $8.195 \times 10^{-3}$
構造材密度係数( $\Delta k/kk'/\Delta\rho/\rho$ ) 炉心部 Naプレナム部	$-5.072 \times 10^{-2}$ $5.460 \times 10^{-3}$	$-5.162 \times 10^{-2}$ $5.018 \times 10^{-3}$	$-4.972 \times 10^{-2}$ $1.336 \times 10^{-2}$
冷却材温度係数( $\Delta k/kk'/^\circ\text{C}$ ) 炉心部 Naプレナム部	$3.323 \times 10^{-6}$ $-4.773 \times 10^{-6}$	$4.460 \times 10^{-6}$ $-4.210 \times 10^{-6}$	$4.865 \times 10^{-6}$ $-2.379 \times 10^{-6}$
形状係数( $\Delta k/kk'/\Delta X/X$ ) 径方向 軸方向	0.1039 0.2057	0.0796 0.1662	0.0933 0.2142
Naボイド反応度( $\Delta k/kk'$ ) 炉心部 Naプレナム部	$1.324 \times 10^{-2}$ $-3.403 \times 10^{-2}$	$1.512 \times 10^{-2}$ $-2.459 \times 10^{-2}$	$2.167 \times 10^{-2}$ $-1.227 \times 10^{-2}$
実効遅発中性子割合 $\beta_{\text{eff}}$	$3.72 \times 10^{-3}$	$3.79 \times 10^{-3}$	$3.67 \times 10^{-3}$
即発中性子寿命 (sec)	$4.08 \times 10^{-7}$	$3.23 \times 10^{-7}$	$2.84 \times 10^{-7}$

表5.1.4 100万kWe級MN炉心の炉心高さ と 燃焼特性(15N-100%ケース)

	炉心高さ 50cm	炉心高さ 70cm	炉心高さ 90cm
炉心等価直径(cm)	413	349	309
Pu富化度(w/o) (内側炉心/外側炉心)	17.4/24.6	14.0/21.9	12.0/21.0
燃焼反応度 (% $\Delta k/kk'$ )	2.77	1.97	1.33
増殖比 (平衡サイクル平均)	1.212	1.205	1.191
出力分担率 (平衡サイクル平均) (炉心/軸ブランケット)	86.8/13.2	90.0/10.0	92.5/7.5
炉心平均燃焼度 (MWd/t)	113400	118000	121000
ピーク高速フルエンス (nvt)	$3.70 \times 10^{23}$	$4.26 \times 10^{23}$	$4.67 \times 10^{23}$

表5.1.5 100万kWe級MN炉心の炉心高さ と 燃焼特性(14N-100%ケース)

	炉心高さ 50cm	炉心高さ 70cm	炉心高さ 90cm
炉心等価直径(cm)	413	349	309
Pu富化度(w/o) (内側炉心/外側炉心)	19.5/26.5	16.1/23.5	14.0/22.6
燃焼反応度 (% $\Delta k/kk'$ )	3.35	2.88	2.47
増殖比 (平衡サイクル平均)	1.120	1.113	1.098
出力分担率 (平衡サイクル平均) (炉心/軸ブランケット)	87.7/12.3	90.7/9.3	93.0/7.0
炉心平均燃焼度 (MWd/t)	115100	119400	122100
ピーク高速フルエンス (nvt)	$3.50 \times 10^{23}$	$4.02 \times 10^{23}$	$4.40 \times 10^{23}$

表5.1.6  $^{15}\text{N}$ と $^{14}\text{N}$ による反応度特性比較(100万kWe均質炉心)

	計算ケース名	ドブラー係数 ( $Tdk/dT$ )	Naボイド反応度 (炉心部) ( $\% \Delta k/kk'$ )	Na密度係数 (炉心部) ( $\% \Delta k/kk' / \Delta \rho / \rho$ )	冷却材温度係数 (炉心部) ( $d/\text{°C}$ )*
$^{15}\text{N}$ ケース	炉心高さ 50cm	$-4.39 \times 10^{-3}$	1.59	-1.49	0.094
	炉心高さ 70cm	$-5.47 \times 10^{-3}$	2.04	-1.91	0.120
	炉心高さ 90cm	$-6.17 \times 10^{-3}$	2.30	-2.17	0.137
$^{14}\text{N}$ ケース	炉心高さ 50cm	$-4.78 \times 10^{-3}$	1.18	-1.11	0.070
	炉心高さ 70cm	$-5.95 \times 10^{-3}$	1.61	-1.54	0.097
	炉心高さ 90cm	$-6.72 \times 10^{-3}$	1.87	-1.79	0.113

\*  $\beta = 0.0038$ として換算した

表5.1.7 Naプレナム付きNaボンド型MN炉心主要目

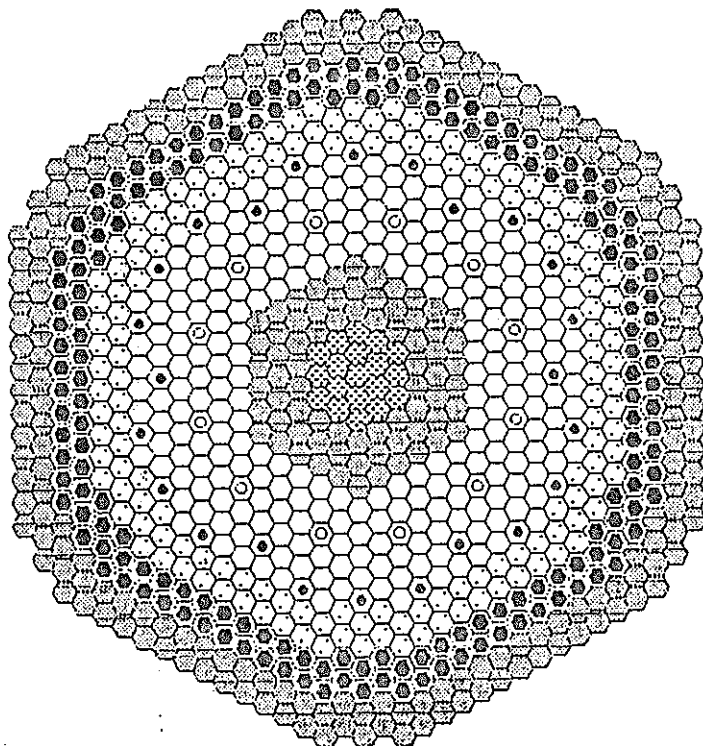
燃料仕様		燃焼特性		反応度特性	
ボンド形式	Naボンド	原子炉熱出力	2,600MW	ドップラー係数	(Tdk/dT) -5.23 × 10 <sup>-3</sup>
ペレット形状	中実	運転サイクル	365day	燃料密度係数 炉心部	(Δk/kk'/Δρ/ρ) 3.73 × 10 <sup>-1</sup>
ピン径	7.0mm	炉心燃料交換バッチ	5	冷却材密度係数 炉心部	(Δk/kk'/Δρ/ρ) -1.39 × 10 <sup>-2</sup>
燃料ペレット径	5.65mm	最大線出力	381W/cm	Naプレナム部	1.14 × 10 <sup>-2</sup>
ペレット間ギャップ	0.51mm	炉心平均線出力	228W/cm	構造材密度係数 炉心部	(Δk/kk'/Δρ/ρ) -5.09 × 10 <sup>-2</sup>
燃料ペレット密度	95%TD	炉心高さ	70cm	Naプレナム部	9.03 × 10 <sup>-3</sup>
燃料スミア密度	80%TD	炉心等価直径	393cm	形状係数 径方向	(Δk/kk'/ΔX/X) 0.122
被覆管肉厚	0.42mm	軸ブランケット厚さ	40cm	軸方向	0.214
ワイヤ径	1.00mm	内部ブランケット 等価直径	132cm	Naボイド反応度 炉心部	(Δk/kk') 1.41 × 10 <sup>-2</sup>
燃料ピン配列ピッチ	8.05mm	径ブランケット厚さ	30cm	Naプレナム部	-1.54 × 10 <sup>-2</sup>
ワイヤ巻ピッチ	200mm	炉心取出平均燃焼度	128,000MWd/t	実効遅発中性子割合 β <sub>eff</sub>	3.72 × 10 <sup>-3</sup>
ガスプレナム長さ (上/下)	(mm) 300/0	増殖比	1.14	即発中性子寿命 (sec)	2.68 × 10 <sup>-7</sup>
端栓部長さ (上/中間/下)	(mm) 30/0/50	燃焼欠損反応度	3.2% Δk/kk'		
燃料ピン全長	1480mm	Pu富化度 (内側炉心/外側炉心)	(w/o) 18.7/21.3		
集合体燃料ピン数	331本	ピーク 高速フルエンス	(nvt) 4.7 × 10 <sup>23</sup>		
内対面間距離	148.5mm				
ラッパ管板厚	4.0mm				
ラッパ管間ギャップ	4.5mm				

表5.1.8 ZrH<sub>1.6</sub>を内側炉心のみに一様に添加した時の燃焼特性  
(100万kWeクラス炉心、炉心高さ90cm、径ブランケットなし)

ZrH <sub>1.6</sub> 添加割合	0%	3%	6%	9%
炉心等価直径(cm)	309	312	314	317
Pu富化度(w/o) (内側炉心 / 外側炉心)	12.0/21.1	13.6/21.3	14.7/21.4	15.5/21.9
燃焼反応度(% $\Delta k/kk'$ )	1.46	2.34	2.90	3.48
増殖比(平衡サイクル)	1.185	1.122	1.081	1.040
炉心平均燃焼度(MWd/t)	121300	121300	120900	120300
ピーク高速フルエンス (nvt; $E \geq 0.1\text{MeV}$ )	$4.70 \times 10^{23}$	$4.06 \times 10^{23}$	$3.67 \times 10^{23}$	$3.40 \times 10^{23}$

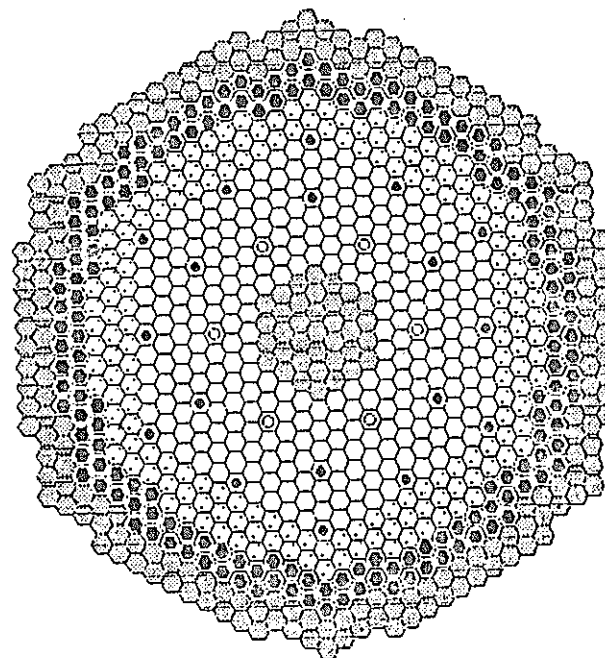


MOX炉心



内側炉心集合体	252
外側炉心集合体	150
内部ブランケット	72
径ブランケット	198
主系統制御棒	24
後備系統制御棒	12

MN, Metal 炉心



内側炉心集合体	270
外側炉心集合体	174
内部ブランケット	37
径ブランケット	198
主系統制御棒	18
後備系統制御棒	6

図5.1.1 100万kWe受動的的安全炉心 - 水平断面比較

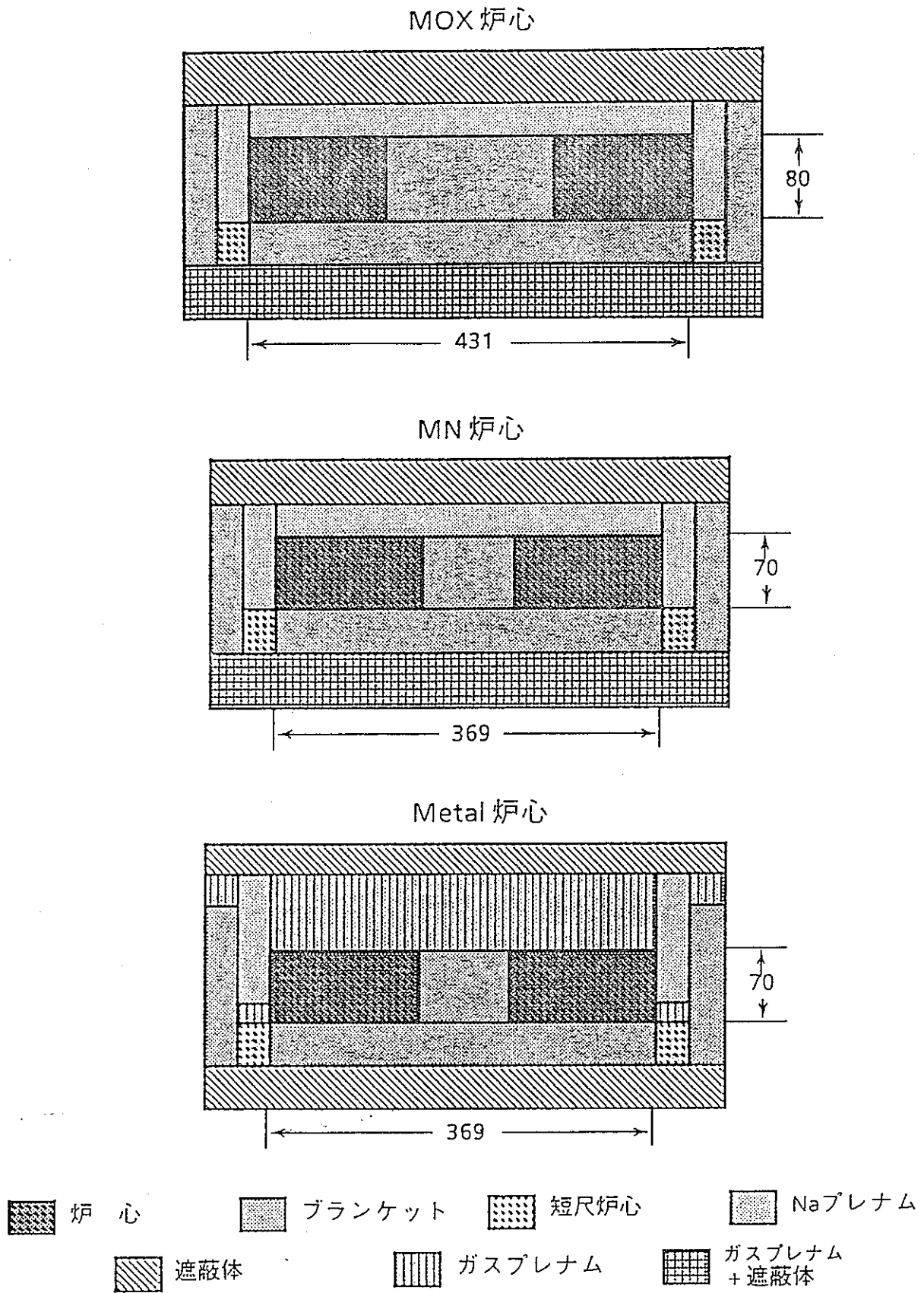


図5.12 100万kWe受動的的安全炉心 - 垂直断面比較

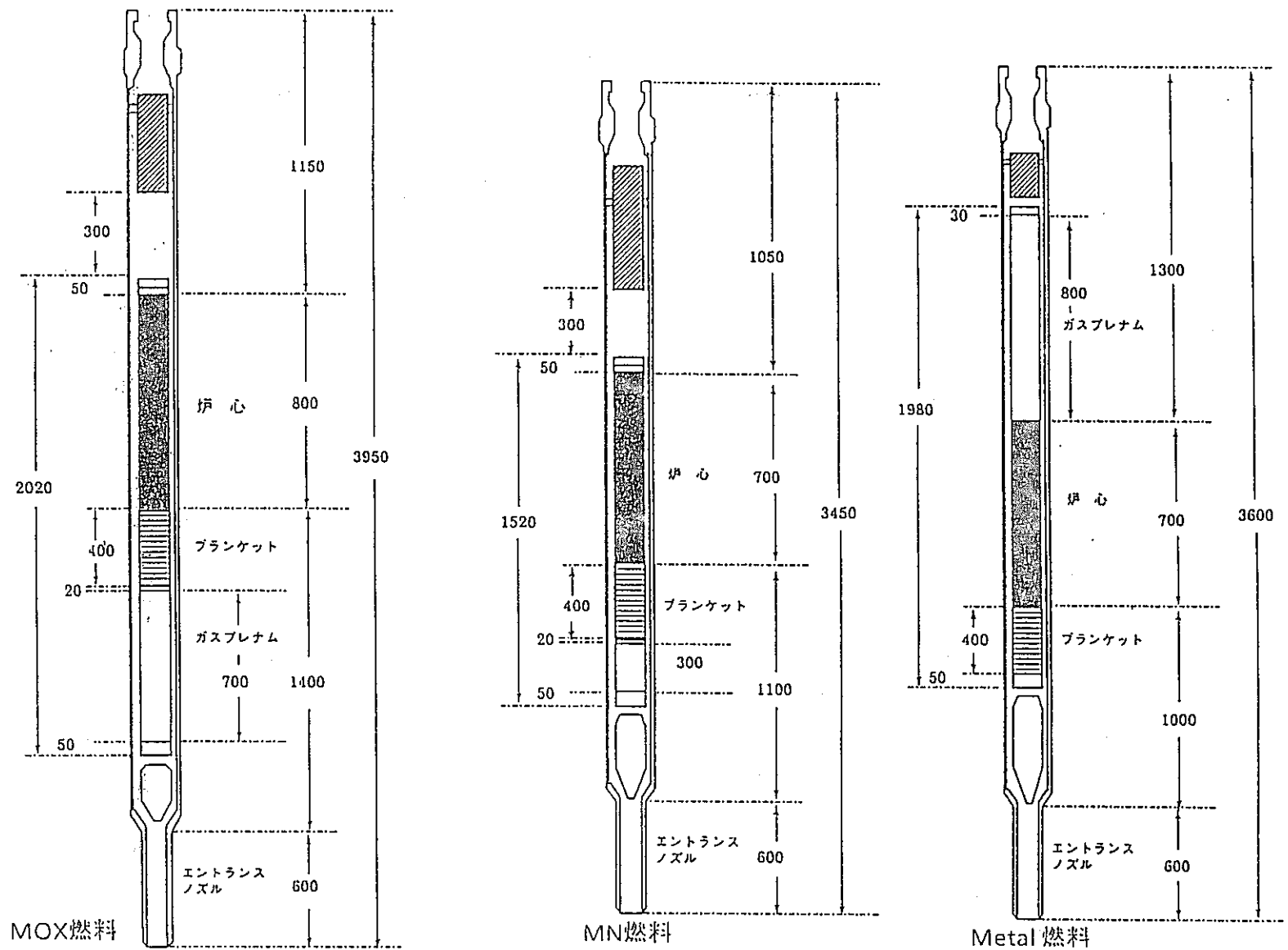


図5.1.3 100万kWe受動的的安全炉心 - 燃料集合体寸法概略比較

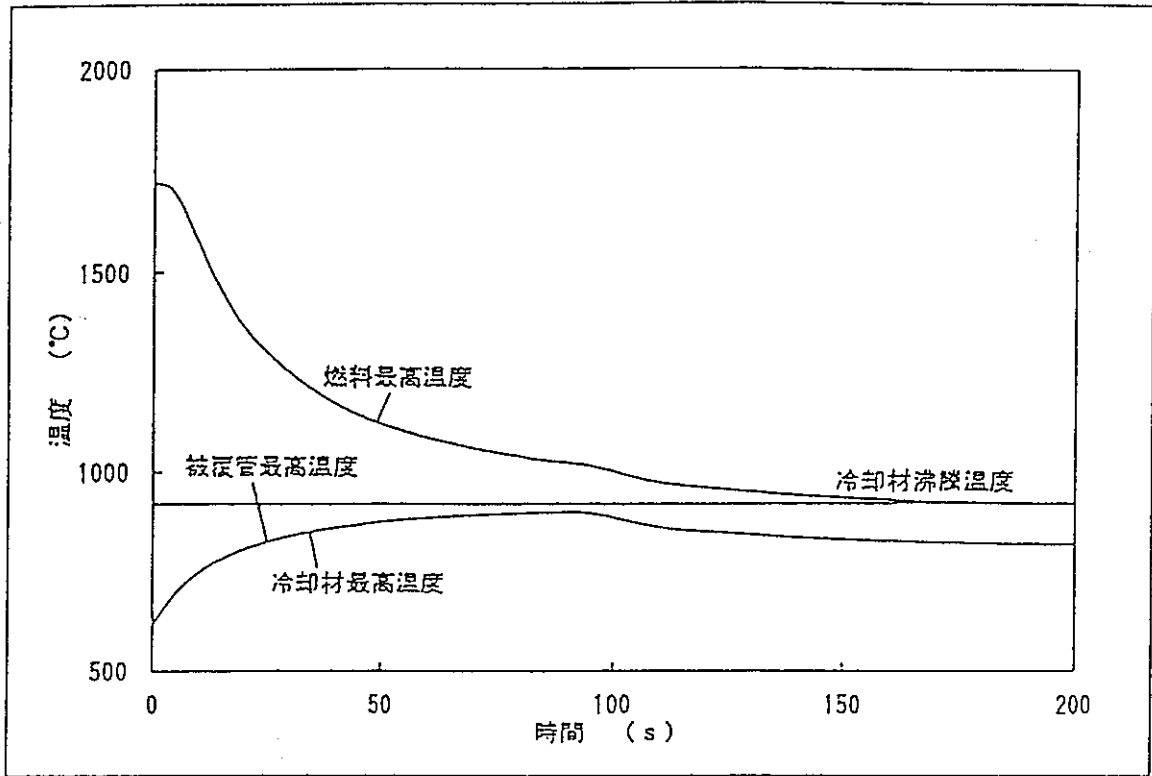


図5.1.4 (1/2) MOX炉心ULOF時温度変化

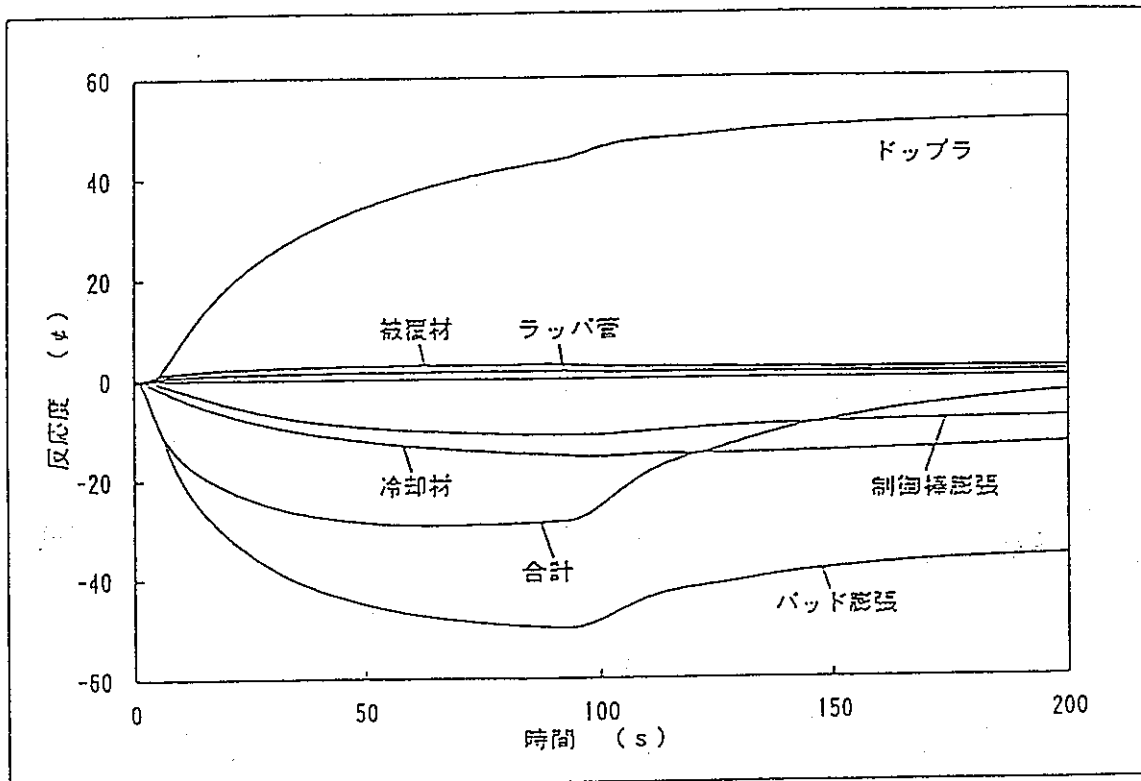


図5.1.4 (2/2) MOX炉心ULOF時反応度変化

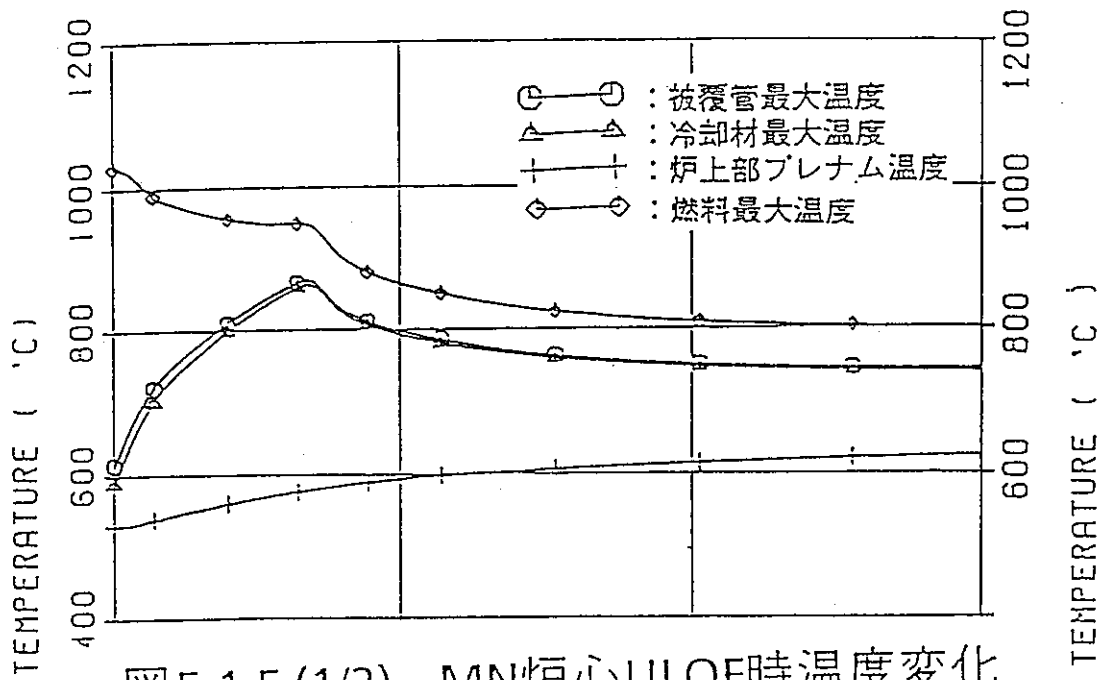


図5.1.5 (1/2) MN炉心ULOF時温度変化

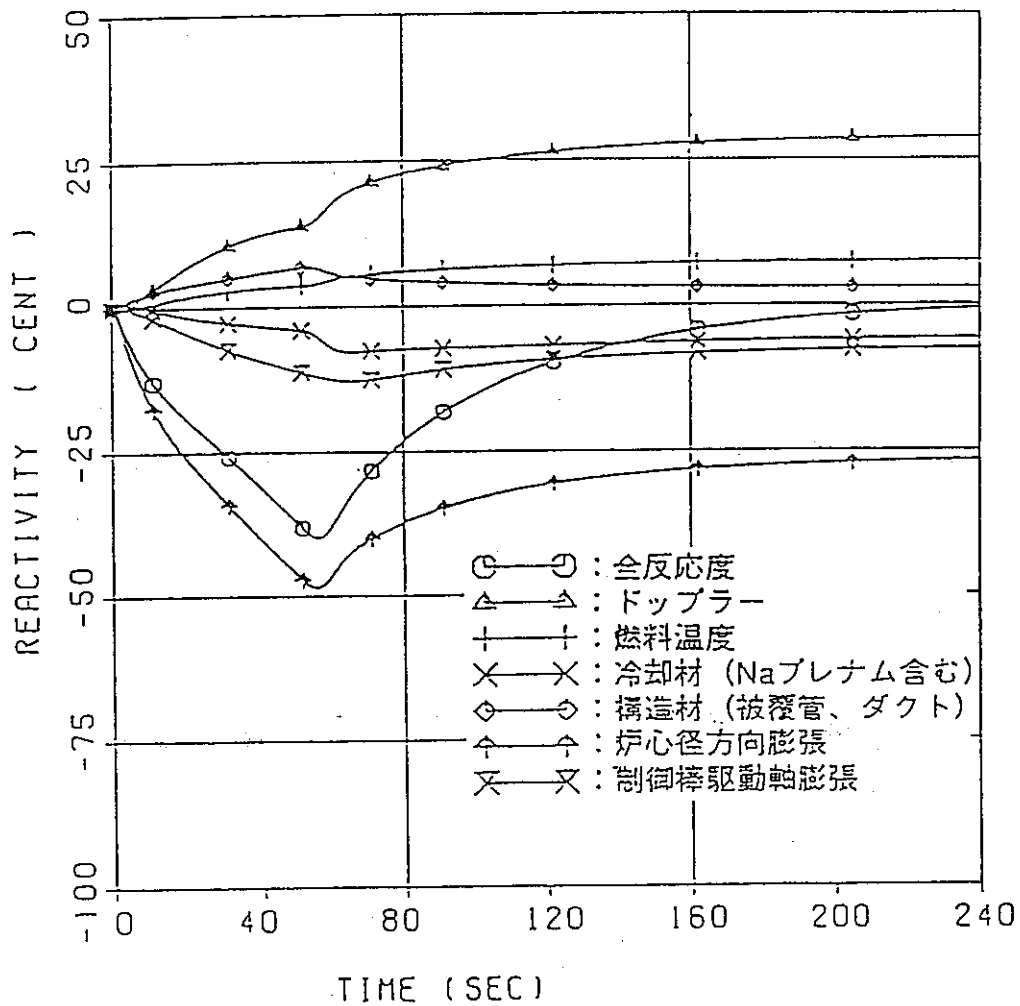


図5.1.5 (2/2) MN炉心ULOF時反応度変化

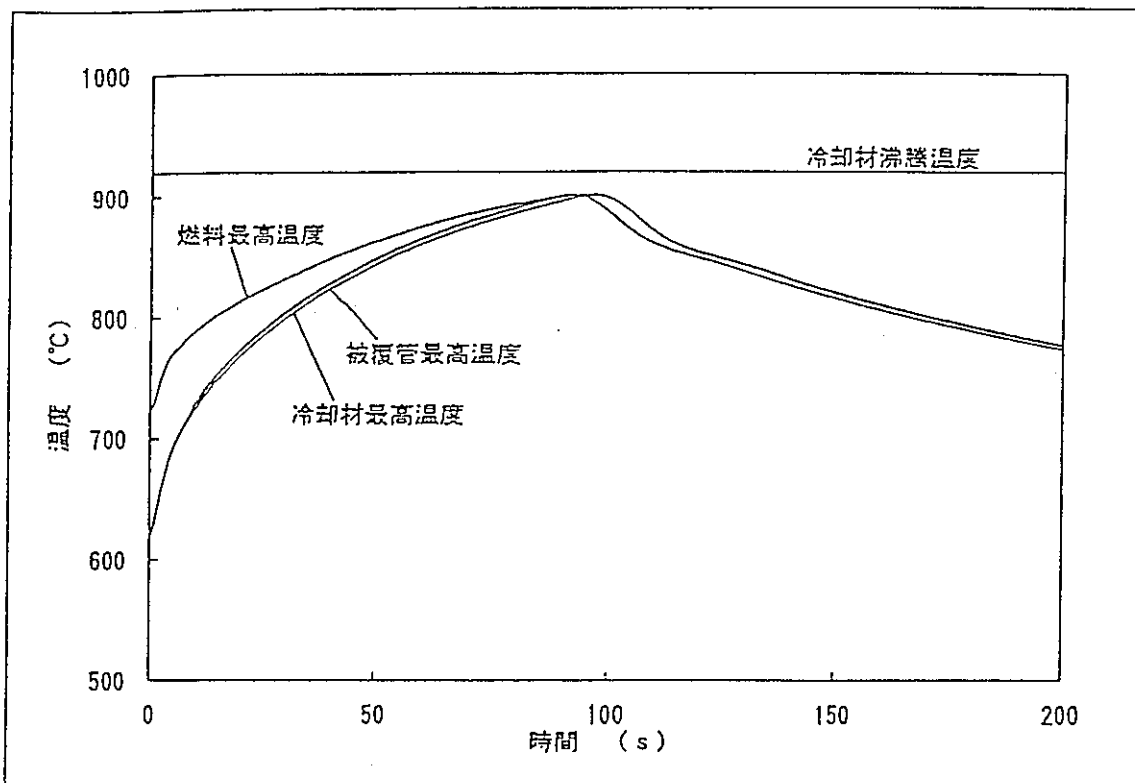


図5.1.6 (1/2) Metal炉心ULOF時温度変化

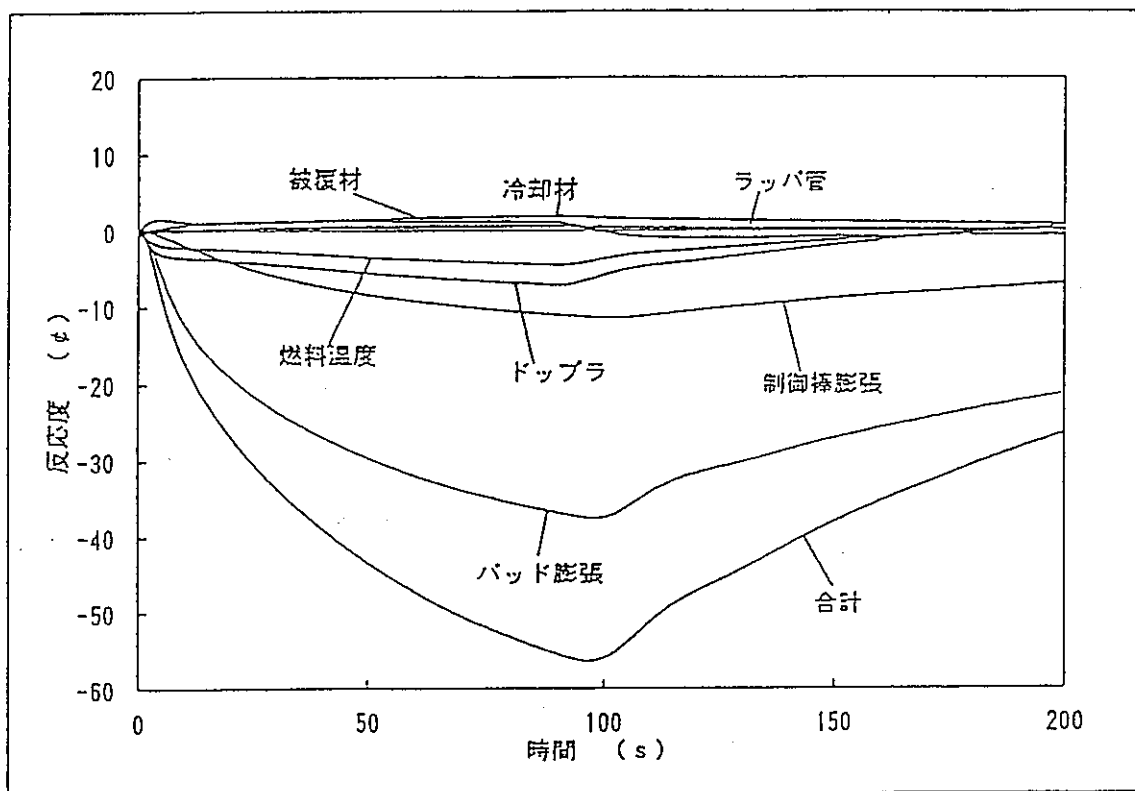


図5.1.6 (2/2) Metal炉心ULOF時反応度変化

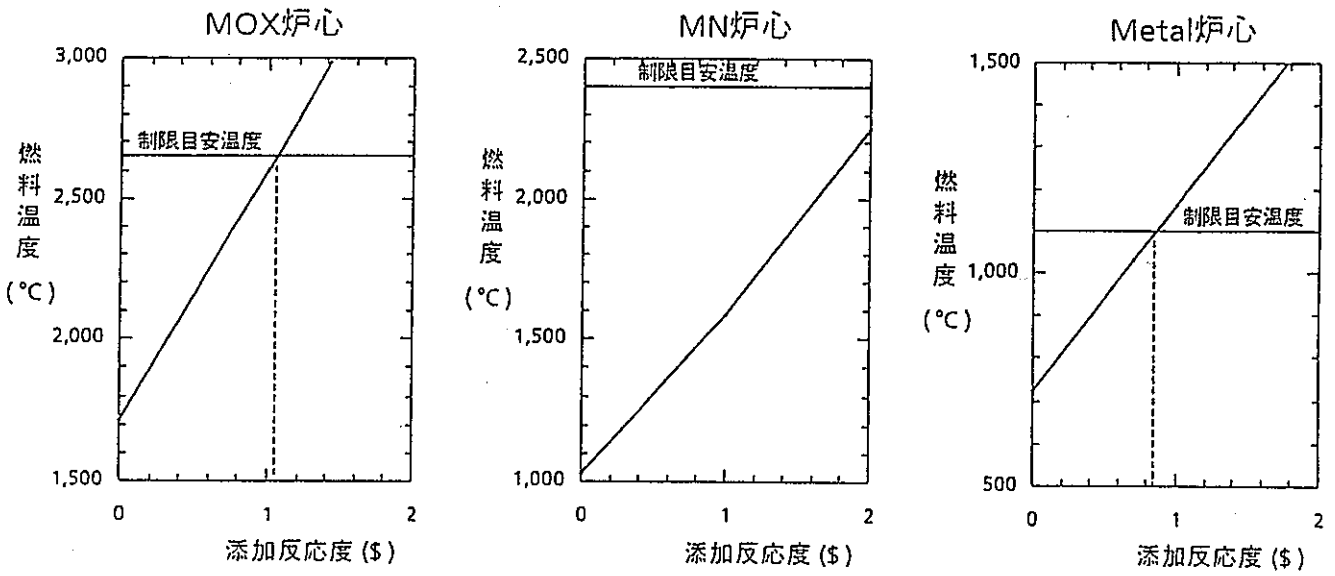


図5.1.7 UTOP時の添加反応度と燃料最高温度

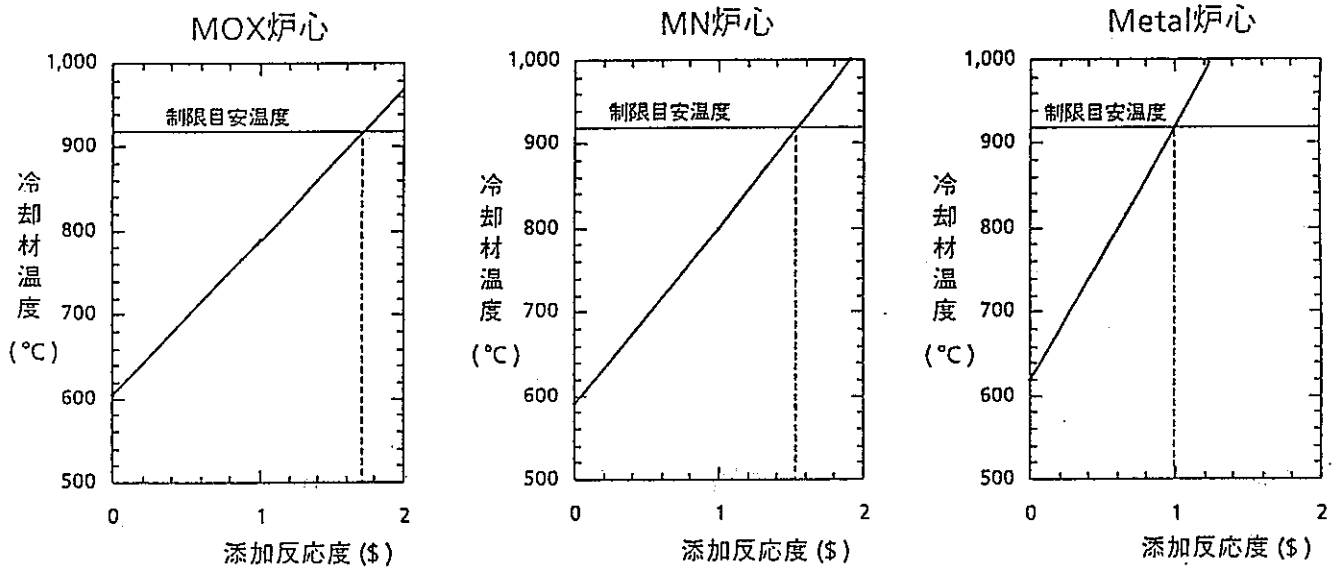
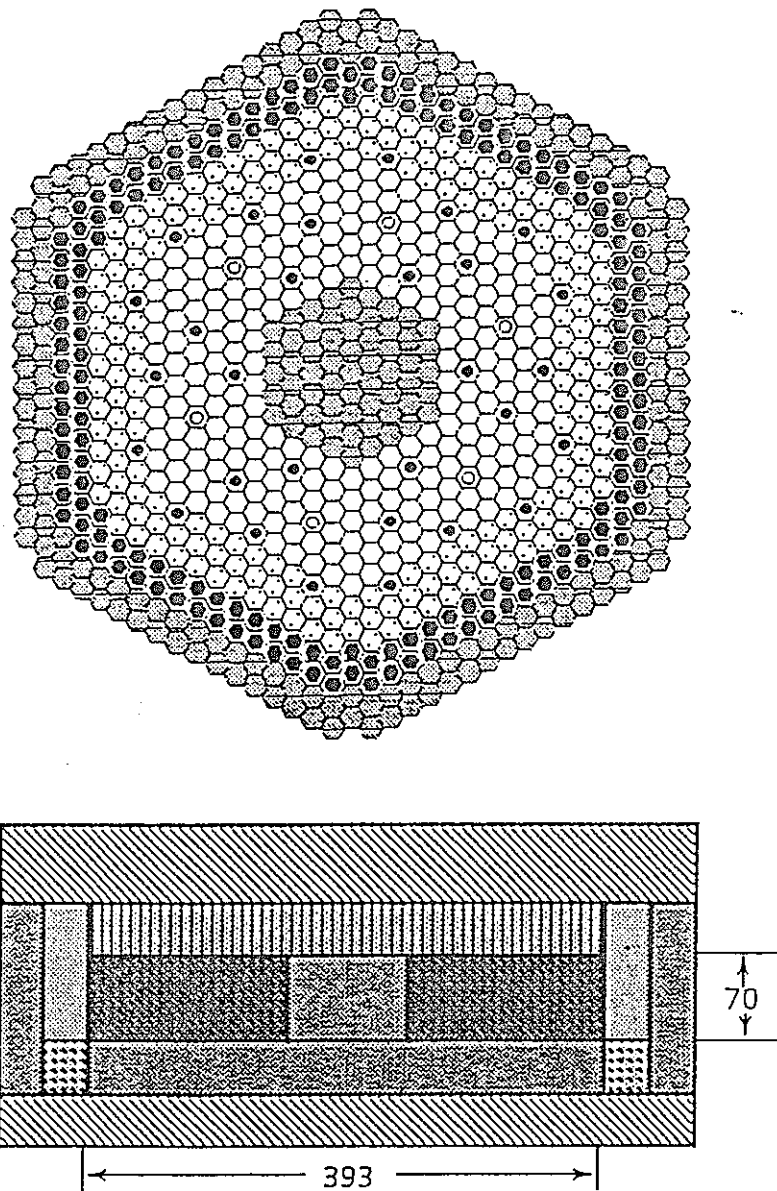








図5.1.8 UTOP時の添加反応度と冷却材温度

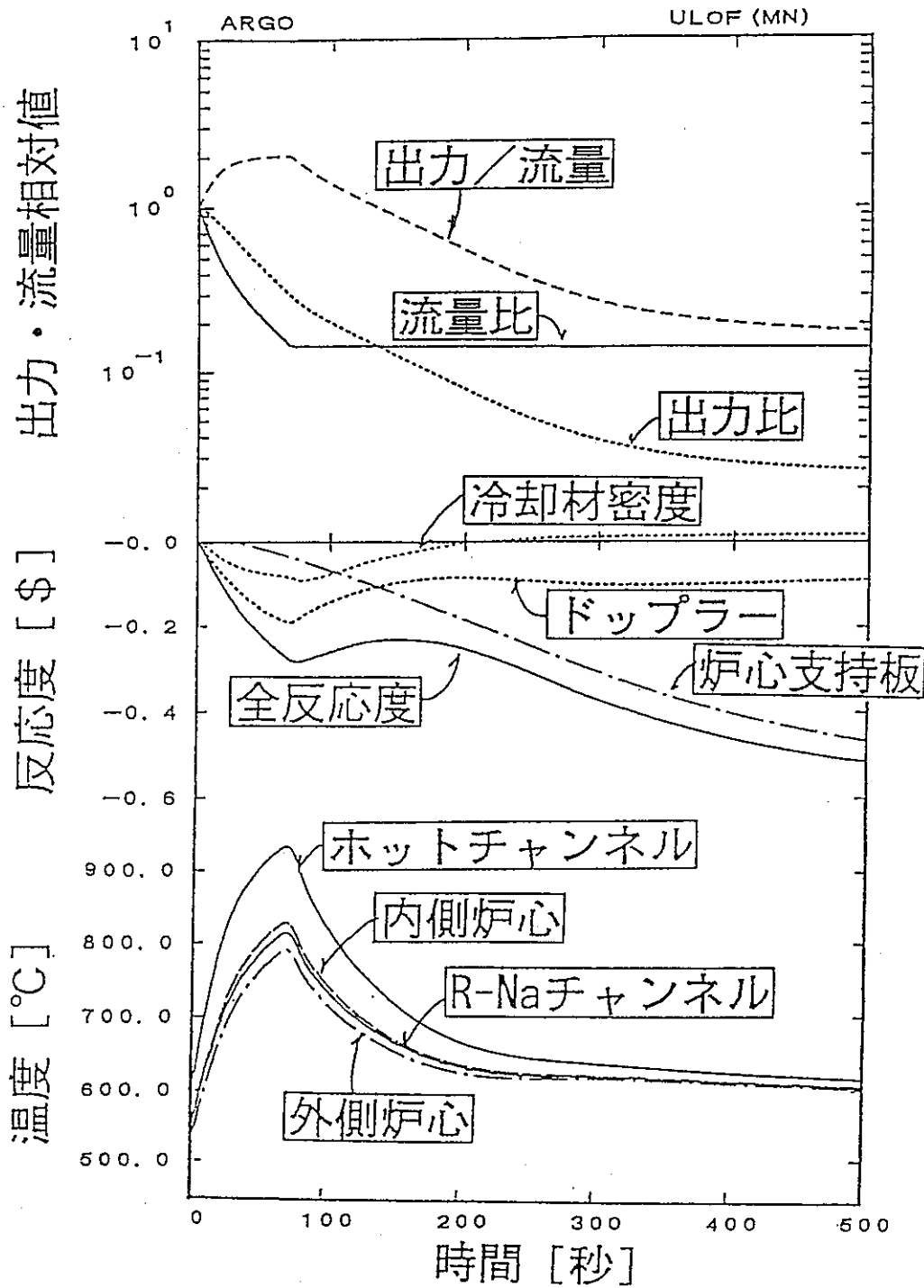


-  炉心
-  短尺炉心
-  遮蔽体
-  ブランケット
-  Naプレナム
-  ガスプレナム

内側炉心集合体	246
外側炉心集合体	198
内部ブランケット	61
径ブランケット	198
主系統制御棒	30
後備系統制御棒	6

図5.1.9 Naプレナム付きNaボンド型MN炉心断面





原子炉出入口温度 380°C / 530°C  
 フローコースト半減時間 15秒  
 ポニーモーター流量 15%

図5.1.10 Naボンド型MN炉心ULOF時挙動  
 (Naプレナム付き扁平炉心)

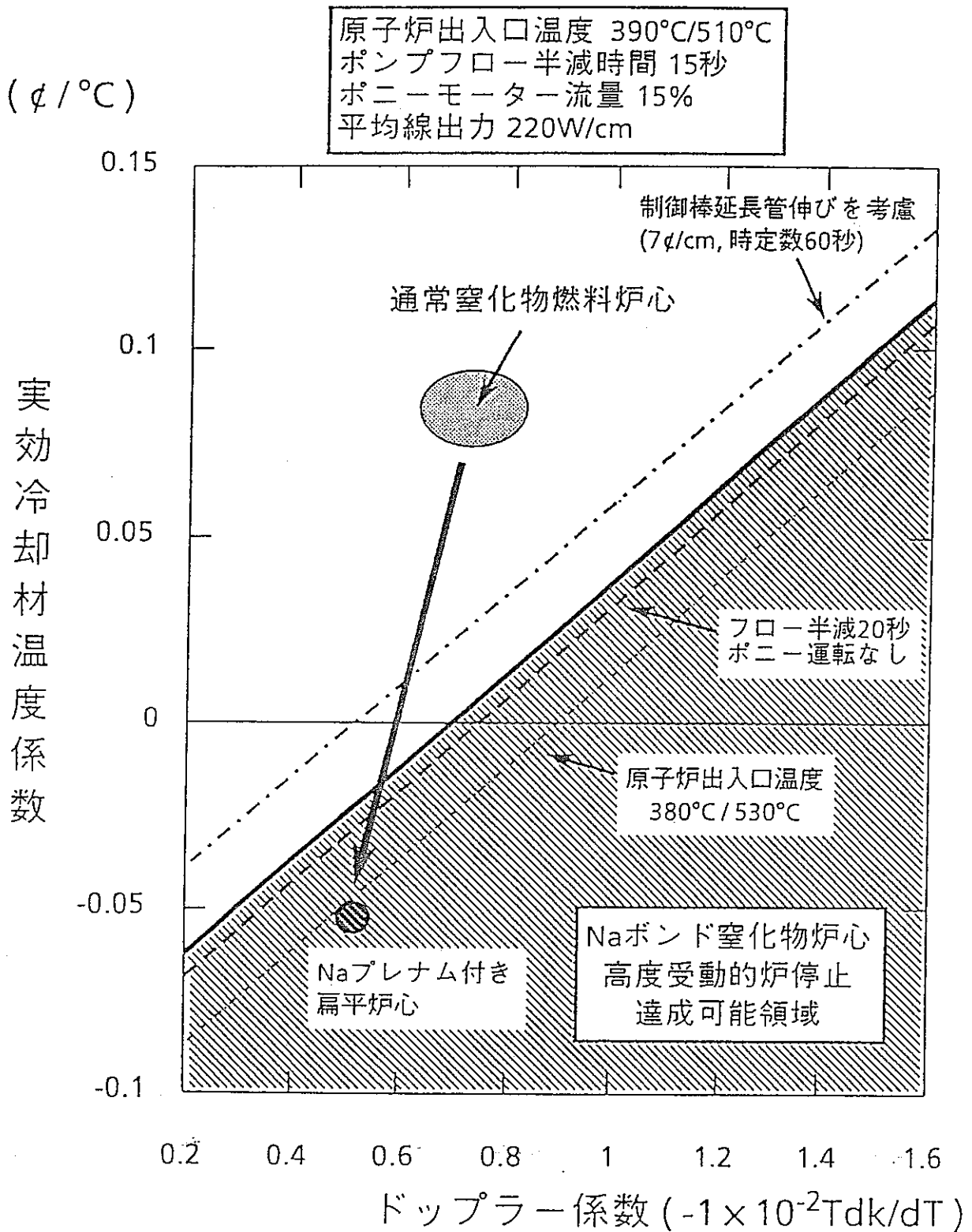


図5.1.11 ULOF時高度受動的炉停止達成可能領域

-70-

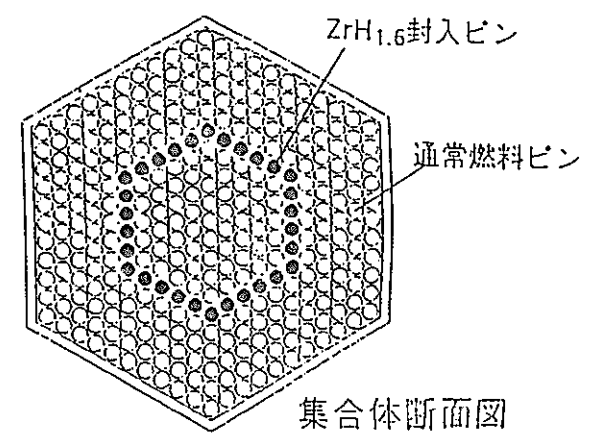
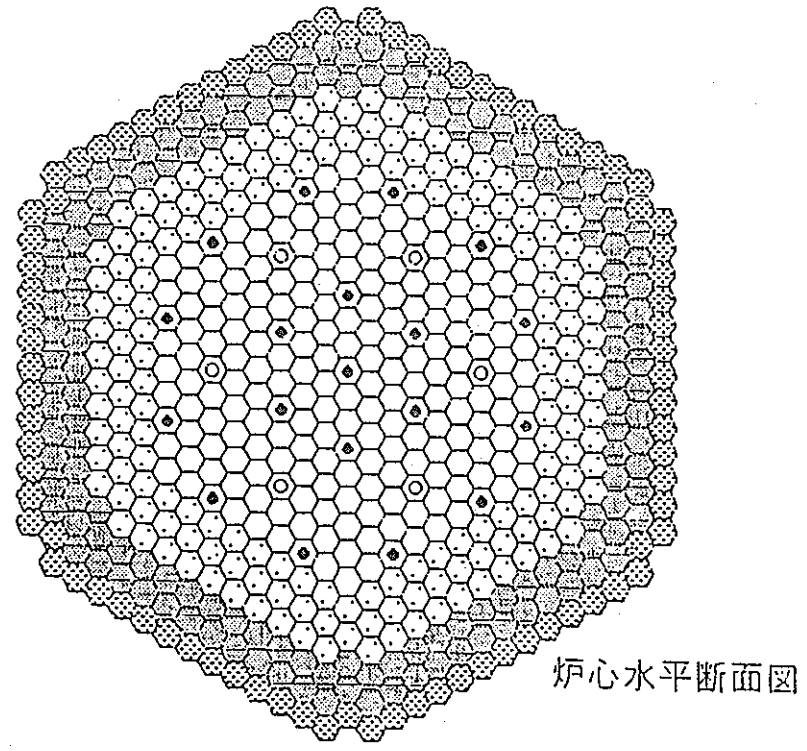
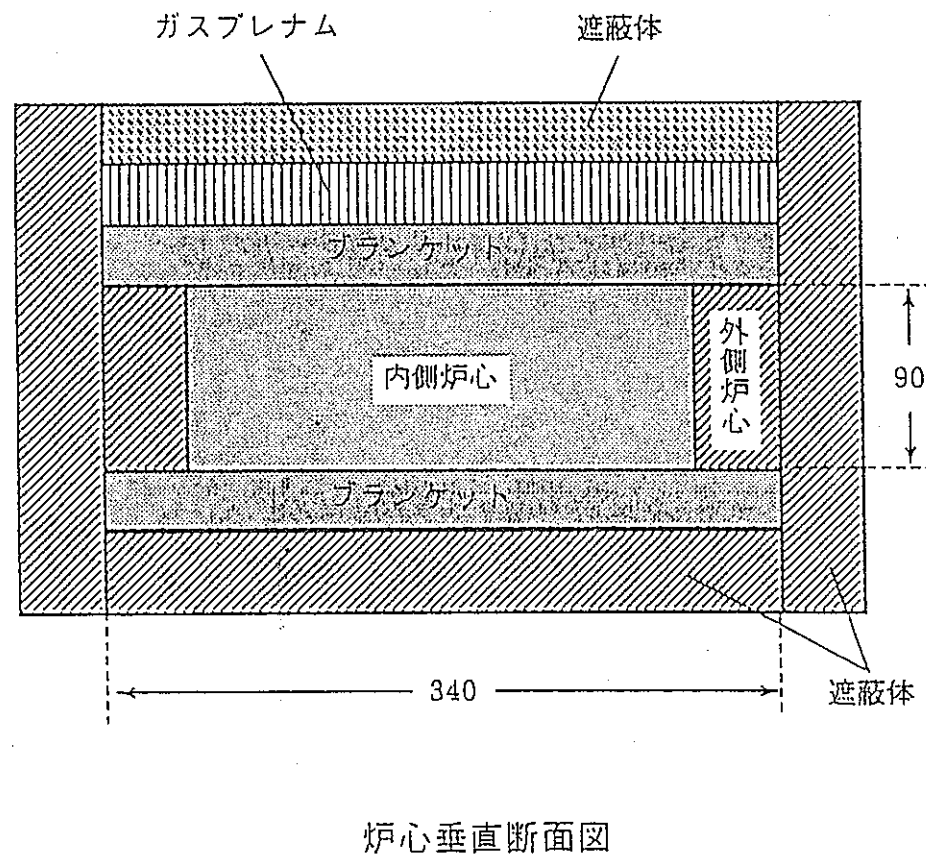


図5.1.12 100kWeスペクトルシフト型MN炉心概念

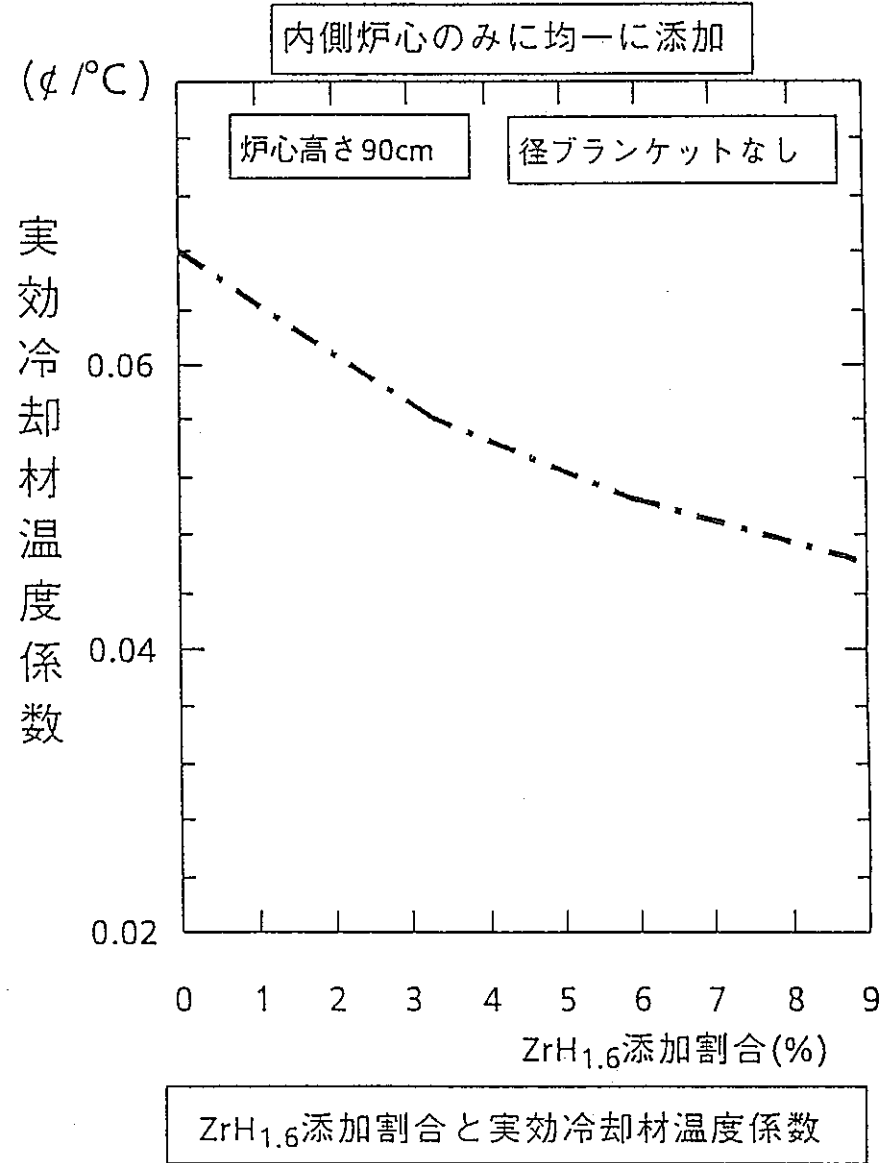
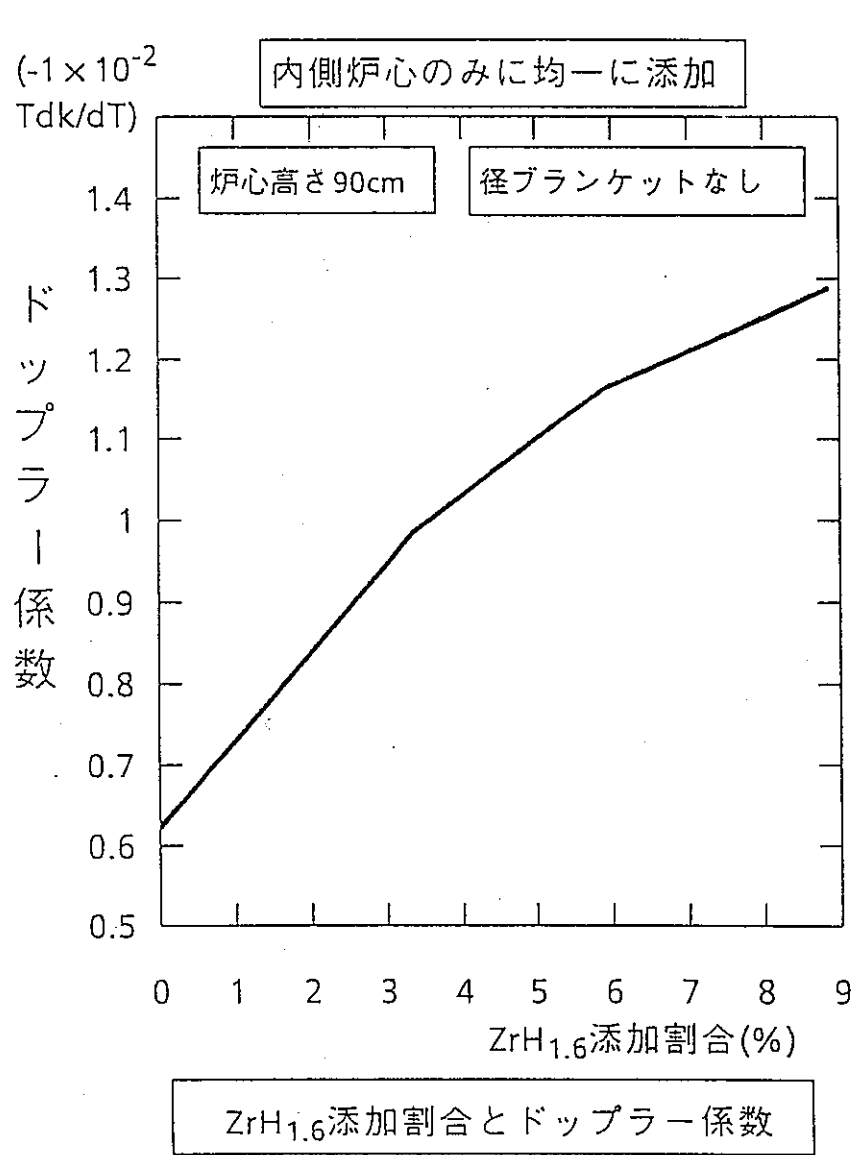


図5.1.13 ZrH<sub>1.6</sub>添加割合と反応度係数変化

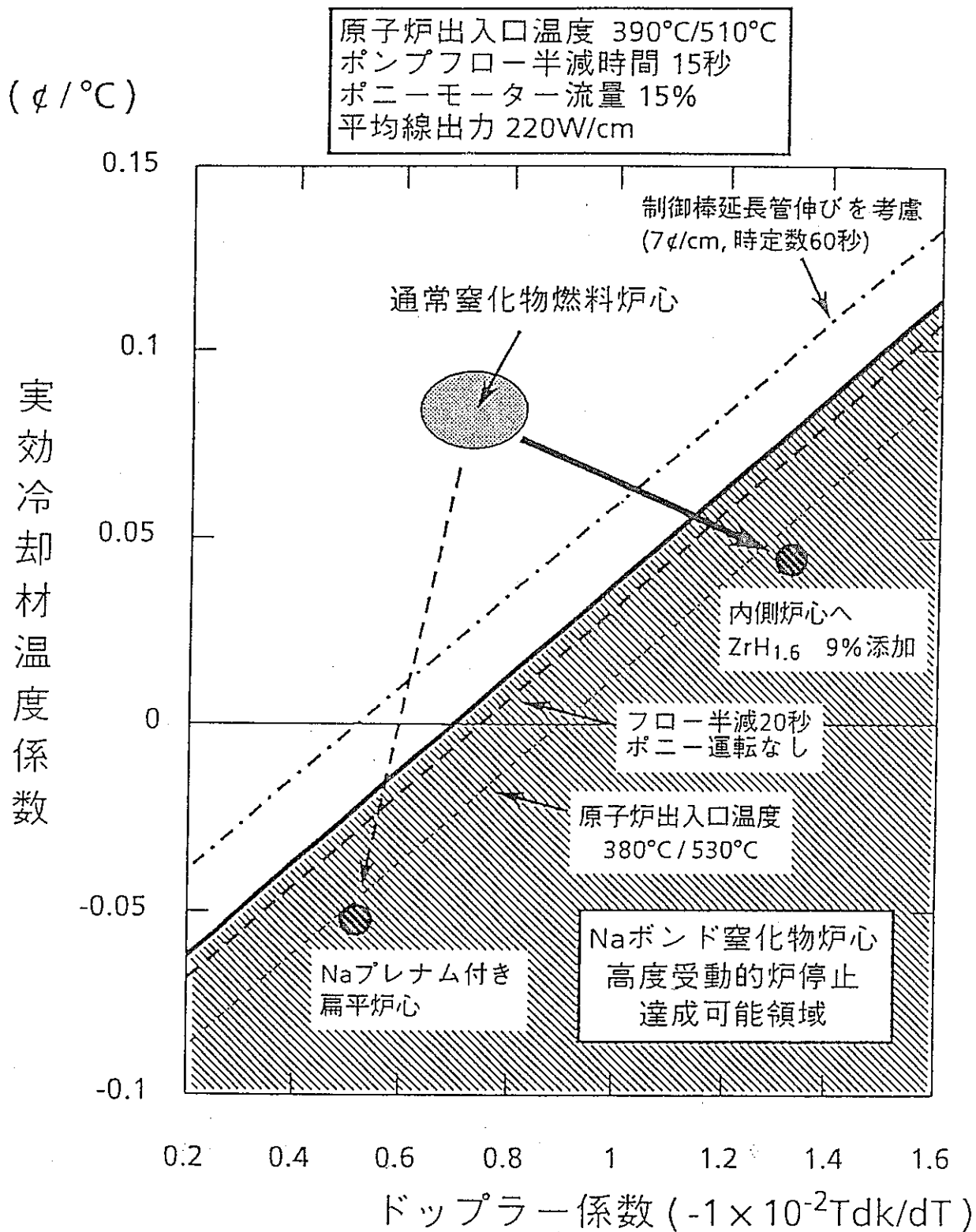


図5.1.14 ULOF時高度受動的炉停止達成可能領域

## 5.2 窒化物燃料のFCMI挙動評価

### (1) 担当部署

大洗工学センター 燃料材料開発部 燃料材料技術開発室(ADS)

### (2) 研究内容

窒化物燃料の照射挙動評価および照射挙動予測に必要な照射挙動解析コードの整備を行った。

### (3) 結果

平成4年度からMOX燃料の照射挙動解析コード「CEDAR」をベースとした窒化物燃料版「CEDAR-MN」の開発に着手した。基本物性値である燃料密度、熱伝導度、熱膨張係数、ヤング率、ポアソン比、燃料クリープ速度、固体FPスエリングを入れ換える作業については終了した。照射挙動モデルはMOXのままとした条件で、EBR-IIでの照射試験結果を参考とした予備解析に着手した。

### 5.3 窒化物燃料の高温分解からくる線出力限界の評価

#### (1) 担当部署

大洗工学センター 燃料材料開発部 燃料材料技術開発室 (A D S)

#### (2) 研究内容

窒化物燃料の高温分解によって問題となる照射挙動および線出力限界の評価方法を検討した。

#### (3) 結果

##### ① はじめに

窒化物燃料を高線出力条件で照射した場合、高温分解反応によって燃料ピンの健全性上問題となる照射挙動の発生が危惧されている。K. Richter らは、窒化物燃料の高温分解による悪影響を防止するため、燃料中心温度を2000K以下に抑えるべきと提唱している。燃料中心温度に制限値があるならば、燃料中心温度の支配因子である線出力には限界値が存在することになる。そこで、窒化物燃料の高温分解によって問題となる照射挙動および線出力限界の評価方法を検討した。

##### ② 高温分解によって問題となる照射挙動

燃料ピン内には、径方向および軸方向に温度勾配が存在する。高温分解によって問題となる照射挙動として、高温部から低温部へのP u移動が考えられる。P u移動によって局所的なP u濃度の上昇が生じた場合、局所的な線出力の上昇および燃焼の進行、燃料外周領域での温度上昇等の問題が生じる。線出力限界は、問題となる量のP u移動が生じる温度条件（燃料温度の最高値、温度勾配）を発生する線出力の値になる。

##### ③ 線出力限界の評価方法

評価にあたっては、蒸発・凝縮、気相輸送、固相拡散の3プロセスを組み合わせた評価モデルを構築する必要があると考えられる。しかし、現状では、気相輸送（移動）経路となるポア、クラック、ペレット間ギャップの生成、成長、消失、移動に関する照射挙動、平衡条件で温度勾配が存在した場合の蒸発・凝縮速度等のP u移動挙動の把握ができていない。このため、評価モデルの構築には、文献調査および照射中の温度条件、雰囲気模擬した炉外試験を実施し、P u移動挙動を把握する必要がある。

##### ④ おわりに

P u移動挙動の把握が不十分なため、評価モデルに基づくP u移動挙動の定量的評価は現状では困難である。今後、P u移動挙動の把握を目的とした炉外試験等を検討する必要がある。

## 5.4 窒化物燃料製造技術評価

### (1) 担当部署

東海事業所 核燃料技術開発部 プルトニウム燃料開発室

### (2) 研究内容

- ① 平成6年度に開始する事業団の窒化物燃料製造試験を円滑に立ち上げるため、ウラン窒化物燃料の研究経験と必要な設備を保有する三菱マテリアル㈱に $UO_2$ を出発物質とする窒化物への転換試験、量産化に向けての製造技術上の問題点の抽出を依頼する。依頼期間は平成3年度から5年度までである。
- ② 窒化物燃料の高温分解に限界があれば、窒化物の熱伝導度という特性を活かせなくなるおそれがある。その欠点が生じた場合に補う方法としてNaボンドの採用があり、Naボンド型燃料の製造評価を行う。

#### 5.4.1 ウラン窒化物燃料製造に関する委託試験

##### (1) 試験内容

- ① 炭素熱還元反応による窒化物転換プロセスの最適化
- ② ①で得られた粉末を用いた窒化物ペレットの試作
- ③ 直接成形法による焼結ペレットの試作

##### (2) 結果

- ①  $N_2$ -5% $H_2$ 雰囲気下 $1600^{\circ}C \times 10hr$ の炭素熱還元反応によって得られた窒化物中の不純物は、出発物質の炭素混合比C/Uを2.6~3.0としたとき炭素が0.3wt%、酸素が0.1wt%であった。
- ② 焼結ペレットの密度は、ボールミル粉碎粉を用い $1800^{\circ}C$ で4時間焼結した場合84.2%TD、8時間焼結の場合で85.9%TDであった。
- ③ 還元で得られた塊状窒化物を粉碎することなく直接再成形した場合、 $1800^{\circ}C \times 4hr$ の焼結によって76.7%TDの密度となった。

##### (3) 今後の計画

本委託試験は平成5年度まで継続するが、5年度は次項の作業を行う。

- ① C/U比及び還元雰囲気条件を最適化することにより、酸素・炭素不純物量を低減する。
- ② 粉碎条件の検討を行い、焼結ペレットの高密度化を図る。



#### 5.4.2 Na ボンド型燃料の製造技術についての評価

He ボンド型燃料はHe ガス雰囲気中でペレット充填を行えば良いが、Na ボンド型燃料は工夫が必要である。Na ボンドは金属燃料で用いられており、米国ANLでの製造手法が参考になる。ANLでは、あらかじめ必要重量となるように切断されたNa ワイヤを被覆管に挿入し、次に金属棒を充填した後、Na が溶融して下に流れるように250 °Cに温められる。その後溶接工程に送られ、垂直方向にして溶接される。以上の一連の作業はすべてホットセル内で行われる。一方、Na ボンド型炭化物燃料では米国及びヨーロッパにおいて照射実績があることから、グローブボックス内でのNa ボンド型燃料の製造が行われたのは間違いない。したがって、Na ボンド型燃料の製造は技術的には可能であろう。しかし、それは照射用であるから製造規模は小さく、Na ボンド型窒化物燃料製造の成立性評価は実用化における技術的評価、すなわち大規模製造の実現性評価を行うべきである。大規模製造では取扱うNa の量は多くなり、安全上のリスクが大きくなるため安全対策の必要が生じ、結果としてNa ハンドリング技術やNa 充填技術は複雑化する（例えば、Na を溶融して被覆管内に充填させる工程では、一括処理と燃料要素長さを勘案すると、巨大な加熱槽が必要となると思われ、安全対策まで含めるとその機構はたいへん複雑なものになる。）と考えられる。そして、同じ理由から包蔵設備概念まで変化するであろう。また、加工プラントからはNa 廃棄物が発生し、その処理についても新たな課題が生じる。したがって、Na ボンド型窒化物燃料を大量に製造する場合の技術的困難は大きく、実現するとしてもコストアップは避けられないであろう。

一方、我が国の現状の許認可体制を考慮してみても、実際にNa ボンド型燃料を製造しようとする場合様々問題が摘出できる。すなわち、炉規制法、毒物劇物取締法、消防法のそれぞれの法体系の下にNa の取扱いに当たって規制が行われることになると考えられるためであり、以下に紹介する。

##### (1) 炉規制法

固体Na は通常の状態では、空気中の酸素、水蒸気、炭酸ガスと反応し、酸化Na、水酸化Na、炭酸Na等からなる暗灰色の表面皮膜を生ずる。この表面皮膜により固体Na が空気と隔離されるので、常温では急激な反応は起こらない。しかし、温度を上昇させて表面皮膜が融解すると空気との反応によって活発な反応を起こし、条件次第で発火に至る。（以上、「高速増殖炉技術読本、PNC9520 91-006」より。）したがって、Na ボンド型燃料製造では、Na 及び燃料ペレットの充填と端栓溶接はすべて不活性雰囲気グローブボックスで行われなければならない。核物質を取扱うことから不活性雰囲気グローブボックスは炉規制法の適用を受ける。使用施設許可に関わる許認可に当たり、安全対策書を添付することになっており、その中に爆発事故対策が記載されなければな

らない。Pu燃料第一開発室の使用変更許可申請書では、爆発事故の可能性が考えられる設備として、Ar-H<sub>2</sub>(又はN<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>)混合ガスを使用する電気炉、雰囲気制御装置用グローブボックス、可燃性有機溶媒を使用するPu回収用溶媒抽出系の3つを挙げており、前者2つではH<sub>2</sub>濃度が最小爆発限界に達することはないこと、そして後者では火気の使用と昇温がないことで爆発が起こり得ないと説明している。また、火災事故についても記載されており、可燃性物質の持込みを最低限にすること、高温の金属表面がグローブボックス内で露出しないようにしてある旨謳っている。ところが、Naの充填工程ではNaを溶解させるために昇温が必要になると考えられ、不活性雰囲気が破られることがあれば、Naと空気の直接接触が起こり、活発な反応が起こることになる。したがって、不活性雰囲気が破れることはないという担保を取らない限り爆発及び火災事故に対する対策とはならないと規制当局に認定されるならば、グローブボックスでのNa取扱いは不可能になる。なぜなら、グローブ破損もしくは不活性ガス循環精製系の故障がないとは言えないからである。

なお、大洗実験炉部技術課のNa分析棟では、不活性雰囲気グローブボックス(O<sub>2</sub><1ppm, H<sub>2</sub>O<1ppm, ブチルグローブ使用)で「常陽」冷却材Naの分析作業を行っているが、それは炉規制法ではなくRI法の規制であり、RI法では許可申請において安全対策の具体的内容を記述する義務はなく、したがって具体的安全対策が審査されることはない。

## (2) 毒物劇物取締法

Naは劇物と定義され、所有権が変わらない運搬は「業務上取扱者の届出」が必要であり、所有権が変わるならば「販売業者の登録」が必要である。したがって、東海事業所で製造したNaボンド型燃料を大洗工学センターまで輸送しても所有権は動燃で変更はないから業務上取扱者になる。ただし、毒物劇物の取扱(貯蔵、運搬を含む)上の基準に業務上取扱者と販売業者に差はない。動燃での毒物劇物の取扱いはUF<sub>6</sub>で経験しており、東海事業所と人形峠事業所間のUF<sub>6</sub>の輸送も行われている。また、法の中で取扱施設での飛散・流出の防止を要請されているのは当該施設外への飛散・流出であり、施設内への飛散・流出についてはふれられていない。したがって、Naの事業所間の輸送及びグローブボックス内取扱いの許可を取得するのは可能であろう。

## (3) 消防法

指定数量（Naは10kg）以上の危険物（Naは第3類危険物）を取扱う場合は消防法は多くの条件を設けているため、Naの取扱量は10kg未満が望ましい。しかし、指定数量未満と言えども市町村条例によりその技術の基準が定められており、届出が必要である。東海村の火災予防条例では、指定数量の5分の1未満の危険物（Naならば2kg未満）ならば、整理整頓、もれ防止等の精神条項となっており、許可取得は不可能ではない。しかし、取扱量が2kg以上に増えると厄介である。

以上のNaの取扱いに関わる規制状況を勘案すれば、Naボンド型燃料の製造は少規模と言えども、現状の概念のグローブボックスでは相当な困難を伴うことが予想される。あるいは不可能な場合も有り得ると考えられる。したがって、窒化物燃料の照射試験は当面はHeボンド型燃料でのみ考えるべきであろう。そして、前述した法体系をより詳しく吟味するとともに、必要な技術課題の整理とそれらの困難度の評価を行い、Naボンド型燃料の実用化についての実現性とそのコスト評価を行った上で、Naボンド型燃料の照射試験の実施の是非について決定すべきである。

## 5.5 ウラン窒化物の酸化特性試験

### (1) 担当部署

東海事業所 核燃料技術開発部 プルトニウム燃料開発室

### (2) 研究内容

委託研究によって得られる窒化物についての酸化特性試験を行う。

#### 5.5.1 目的

窒化物と酸化物の違いの一つに、空気中の水分や酸素によって比較的容易に酸化されることが挙げられる。

文献調査の結果から、酸化物を転換して得られた窒化物ペレットの発火温度は 300～450℃、粉末の場合は250℃近辺であると考えられるが、これらの文献に於ては粉末の粒径や比表面積は明らかにされていない。他方、金属ウランを出発物質とする窒化物の場合、室温で発火する等の報告も見られ、酸化物から得た窒化物であっても微粉末の場合、室温で相当酸化されることが考えられる。従って、窒化物の粉末物性と酸化特性を定量的に評価しておくことは、窒化物の品質管理、保安、及び取り扱い設備のスペックを決定する上で非常に重要である。

このため、三菱マテリアル㈱に依託する窒化物ウランの転換試験に於てUNの酸化特性試験を併せて行う。

#### 5.5.2 試験方法

還元後の塊状窒化物について室温及び高温下での酸化試験を行った。

- ① 乳鉢粉碎粉（空气中及びアルゴン中）、サンプルミル粉碎粉（アルゴン中）、ボールミル粉碎粉（アルゴン中）の4種類の粉末を常温の空气中に放置し、重量変化を調べると共に、X線回折による相同定を行う。
- ② 還元後の未粉碎粉、乳鉢粉碎粉、サンプルミル粉碎粉について熱重量測定を行う。  
また、加熱前後の試料についてX線回折試験を行う。

### 5.5.3 結果

#### (1) 室温試験

- ① 試料を室温で空気中に6時間放置したが、重量増加率は0.1wt%以下であった。
- ② X回折の結果、乳鉢粉碎粉、サンプルミル粉碎粉はUN単相であったが、ボールミル粉碎粉には $UO_2$ 及び $U_2N_3$ が認められた。

#### (2) 高温試験

- ① 還元後の塊状窒化物、乳鉢粉碎粉、サンプルミル粉碎粉の重量増加開始温度は、300~350℃であり、径が小さいと考えられる粉末程低かった。
- ② 上記の試験に用いた試料を動燃プルトニウム燃料開発室に受け入れ、熱重量試験を行ったところ、粗い粉末の重量開始温度は300~350℃となり、①と同様の結果となった。
- ③ 熱重量曲線は、約530℃のピーク（ピーク重量増加率；15.8~16.0%）を持ち、700℃近辺で飽和（飽和重量増加率は全て11.4%）した。
- ④ X回折の結果、ピーク温度（500℃）でクエンチした試料には $UO_3$ のみが、飽和した試料には $U_3O_8$ 相のみが認められた。

#### (3) 粉末物性

粉末の比表面積を調べたが、ばらつきが大きく信頼性は低いものであった。

SEM写真から判断すると1 m<sup>2</sup>/g以下、粒径は数μm程度であると考えられる。

### 5.5.4 考察

- (1) 高温試験における重量増加開始温度が300~350℃というのは、発火温度250℃という文献値に比べて高いが、これが発火温度に相当すると考えられる。しかし、粉末の粒が小さい方が、より増加開始温度低かったことから、本試験に用いた試料が、粒径が大きく比表面積の小さい不活性な粉末であったためと考えられる。従って、BET等の粉末物性と絡めた評価を改めて行う必要があるが、それには4.5章で述べた窒化物試験設備の完成を待たなくてはならない。
- (2) 室温における酸化試験の結果については、急激に酸化することはないという結果となり、文献報告と一致した。なお、ボールミル粉碎粉に酸化物相が生じたのは、粉末の装荷はアルゴン中で行ったが、粉碎を空気中で行ったためにポット内に空気が侵入して酸化したためと考えられる。
- (3) 重量増加率の飽和値（11.4%）は理論値と良く一致した。

## 5.5.5 結 論

ウラン窒化物の粉末は常温の空气中で急激に酸化されることはなく、発火温度は 250℃ 以上であるという文献報告を裏付ける結果が得られた。しかし、発火温度は粉末性状の影響を大きく受けるので、粉末物性との相関について定量的に評価する必要がある。

表 5.5.1 サンプル調製条件

サンプル状態	条 件
塊状窒化物	還元後の窒化物を破碎
乳鉢粉碎	5分間乳鉢粉碎
サンプルミル粉碎	SUS製サンプルミルで90秒粉碎
ボールミル粉碎	アルゴン中でポットに装荷した後、 空气中で40時間アルミナボール粉碎

5.6  $^{15}\text{N}$ 濃縮技術評価

## (1) 担当部署

東海事業所 核燃料技術開発部 プルトニウム燃料開発室

## (2) 研究内容

MOX粉末を窒化物粉末に転換する際には窒素ガスが必要である。この窒素として天然窒素を使用した場合、炉内での $^{14}\text{N}$ の(n, p)反応による $^{14}\text{C}$ の発生と増殖比の低下を招くことになることから、窒化物燃料としての特性を生かすためには、 $^{15}\text{N}$ を使用する必要がある。ただし、 $^{15}\text{N}$ は需要が限られていることから、年産20kg程度生産されている程度であり、その価格も11万円/gと非常に高価なものとなっている。そこで、年産量を工業的規模にした場合の濃縮コストに関する評価を行う。

## (3) 評価結果

$^{15}\text{N}$ 濃縮技術については、量産規模の設備は国内外を問わず存在しないのが現状であるが、 $^{15}\text{N}$ 濃縮技術に関してはNew York州立大学Stony Brook 校の石田孝信教授と米国科学アカデミー顧問のWilliam Spindel 博士が第一人者であることから委託研究をお願いした。(委託研究責任者は石田教授) 研究内容としては、プラント建設費、操業費、副生成物の量等に関するものである。

## ① 委託研究内容

## (a) 濃縮度

濃縮度90, 99, 99.7%の3ケースについて実施する。

## (b) 生産規模

- ・500kg/y (「もんじゅ」×1基相当分)
- ・1,400kg/y (100万MWe級実証炉×1基相当分)
- ・4,500kg/y (100万MWe級実証炉×3基相当分)

濃縮度及び生産規模の設定根拠は「FBR新型燃料評価研究第2ステップ中間報告書」(ZN8410 92-209)参照のこと。ただし、当初99.9%濃縮について評価する予定だったが、酸化物燃料のN不純物仕様200ppmに相当するように $^{14}\text{N}$ を低減させるのに必要な $^{15}\text{N}$ 濃縮度である99.7%に変更した。

なお、ブランケット燃料用 $^{15}\text{N}$ 及び濃縮プラントでのロス分は考えていないので、実際の生産規模はもっと大きい。

## (c) 評価項目

- ・プラント建設費
- ・操業費
- ・副生成物の量

- ・全濃縮コスト
- ・プラントをスケールアップするときの問題点の整理

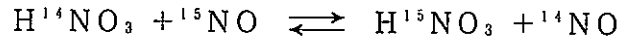
② 委託研究結果

(a) プロセス

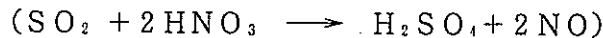
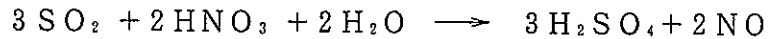
<sup>15</sup>Nの大規模生産手法の選定が米国で2回行われた。1回目は35～6年前に行われ、ガス拡散法、化学交換法、イオン交換法、遠心法の中から、NO-HNO<sub>3</sub>交換反応に基づく化学交換法(Nitrox法)が最も経済的であると考えられた。2回目は約15年前であり、LMFBR燃料における窒化物燃料で<sup>15</sup>Nを使用するとポテンシャルが高くなると考えられたために手法選定が行われた。化学交換法、低温蒸留法、レーザー法、電磁気分離法、熱拡散法、質量拡散法、ガス遠心法、ガス拡散法の中から、またもNitrox法が最も低コストと評価された。そのため、委託研究はNitrox法に基づいて行われた。

Nitrox法の主反応は以下のとおりである。

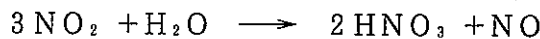
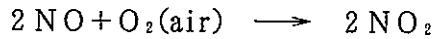
濃縮交換反応：



製品還流反応：



廃棄物還流反応：



濃縮交換反応の分離係数は、10モルHNO<sub>3</sub>、25℃、1気圧のときに1.055である。製品還流反応は、<sup>15</sup>Nを濃縮されたHNO<sub>3</sub>溶液をSO<sub>2</sub>ガスを用いてNOガスに転換する反応である。廃棄物還流反応は、<sup>15</sup>Nが減損したNOガスを廃棄する前に空気(または酸素)と水によりHNO<sub>3</sub>溶液に戻す反応である。

Nitrox法の2つの濃縮塔から成るシステムの概念を図5.6.1に示す。製品還流部で転換されたNOガスは濃縮部に戻される。ストリッピング部では、廃棄物還流部を出た減損HNO<sub>3</sub>を再び供給HNO<sub>3</sub>として使用できるようにする。つまり、ストリッピング部によって供給HNO<sub>3</sub>量を節約することができる。

Nitrox法による濃縮プラントのフローダイアグラムを図5.6.2と図5.6.3に示す。図5.6.2は500kg/yプラント、図5.6.3は1,500kg/yプラントである。500kg/yプラントの分離部(2つの濃縮部(製品還流部を含む)と1つのストリッピング部から成る。)を3つ重ねると1,500kg/yとなり、コスト評価作業が容易に行えるため当初予定では1,400



kg/yだったのを1,500kg/yに変更した。

(b) コスト評価の前提条件

コスト評価は以下の前提条件の下に行った。

- HNO<sub>3</sub>のコスト0
- 土地取得, サイト開発のコスト0
- 人件費0
- 年利8% (年当り減価償却の70%に適用)

なお, HNO<sub>3</sub>のコストを0としたのは, <sup>15</sup>Nが減損したHNO<sub>3</sub>が得られるが, 化学性質に変わりはないため再売却が可能だからである。

(c) コスト評価の進め方

図5.6.2, 3からわかるように, プラントは交換塔, 製品還流塔, 廃棄物還流塔の他にも, 多くのポンプ, タンク, 熱交換器等からなる。これらプラント構成機器のコストは米国メーカーの見積りにより決定した。

化学薬品SO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>の価格は米国の現在の価格を採用した。

プラントコスト(配管類, 建屋, 機械室, ユーティリティ, メンテナンス, 金利, 間接費, 等)は化学産業界で用いられている乗数を用い, プラント構成機器コストにかけて求めた。

交換塔のコストは, 図5.6.1に示したフローの流量及びテーパーポイント濃縮度(Y<sub>p1</sub>), 廃棄物濃縮度(Y<sub>w</sub>)に大きく依存するため, それらをパラメータとして計算し, 最適コストを求めた。なお, 流量については, 濃縮部1, 2それぞれに還流されたガス流量を製品流量で割った還流比(R)という概念を用いている。図5.5.1より,

$$R_1 = \frac{G_1 - G_2}{P_1}, \quad R_2 = \frac{G_2}{P_2}$$

である。

(d) コスト評価結果

100 kg/y規模の予備的なコスト評価(ただし, 濃縮度は90.0, 99.0, 99.9%)も行っているため, その結果も含めてコスト評価結果を表5.6.1に示す。ただし, 4,500 kg/yプラントは1,500kg/yプラントを3基建設することとしたため, コストは同じである。

結果は, プラント規模に関係なく, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>売却利益を入れなければ約\$20, 入れれば約\$15となった。このうちSO<sub>2</sub>コストの占める割合は極めて高い。また, 濃縮度による大きな差も生じなかった。このように, スケールメリットが得られなかった理由として次の5つが挙げられる。

- ・廃棄物処理（減損NOガス， $H_2SO_4$ ）コストの増加
- ・濃縮部を建屋に包蔵したこと。
- ・濃縮規模が大きくなると，プラント構成機器の材料を高価なものに変更せざるを得ないこと。
- ・モジュラータイプ（500kg/yプラント×3=1,500kg/yプラント）を採用したこと。
- ・濃縮規模が大きくなると化学薬品 $SO_2$ の使用量も増大すること。

また，濃縮度による差がない理由は，濃縮度を上げて交換塔の塔長を増やすだけで済み，そのコストは小さいこと，そして化学薬品の使用量も大差ないこと，による。

#### (e) 化学薬品使用量

濃縮度99.0%，生産量500kg/yプラントのモル流量を図5.6.4に示す。1,500kg/yの場合は，単に3倍すればよく，濃縮度99.7%の場合でもわずかに流量が増加するだけで大差はない。同図より， $HNO_3$ ， $SO_2$ の使用量はそれぞれ1.73t/d，50t/dであり，また $H_2SO_4$ 生成量は76t/dである。昭和62年における我が国の $HNO_3$ と $H_2SO_4$ （濃硫酸）の生産量は584,998tと5,713,621tであるため，プラントを年間フル稼働すれば， $HNO_3$ 使用量と $H_2SO_4$ 生成量は我が国の生産量に対してそれぞれ0.1%，0.5%となる。4,500kg/yプラントの場合でも1桁上がるだけである。

一方， $SO_2$ の生産量は，我が国のものは不明であるが，1980年の米国の $SO_2$ 生産キャパシティーは278,000t（1985年の西ドイツの生産量は約65,000t）であり，500kg/yプラントで使用する $SO_2$ 量はその約7%を占め，4,500kg/yプラントでは約70%にも達する。

#### (f) 人件費，土地取得費の計算

表5.6.1のコスト評価結果は人件費，土地取得費ともに考慮していないため，窒化物燃料経済性評価を行う上では不十分なものである。委託研究では，プラント操業に必要な人員数等についても評価しているので，人件費，土地取得費を付加したコストの評価を行う。

プラント操業に必要な人員数の評価結果を表5.6.2に示す。表5.6.2には5シフトとした場合の合計人数も記した。

一方，土地取得費は，米国ではプラント構成機器コスト（500kg/y規模で\$3,200,000程度で濃縮度による差はほとんどなく，プラント規模と比例する。）の15%である。

したがって，人件費，土地取得費ともに計算でき，1人当りの人件費を700万円/人，換算レートを110円/\$としたときの結果を表5.6.3に示す。土地取得費は米国の経験に則れば約\$1の増加で済むが，人件費によるコスト増は大きく，500kg/yでは60~80

%, 1,500kg/yでは35~50%, 4,500kg/yでは15~20%増加する。

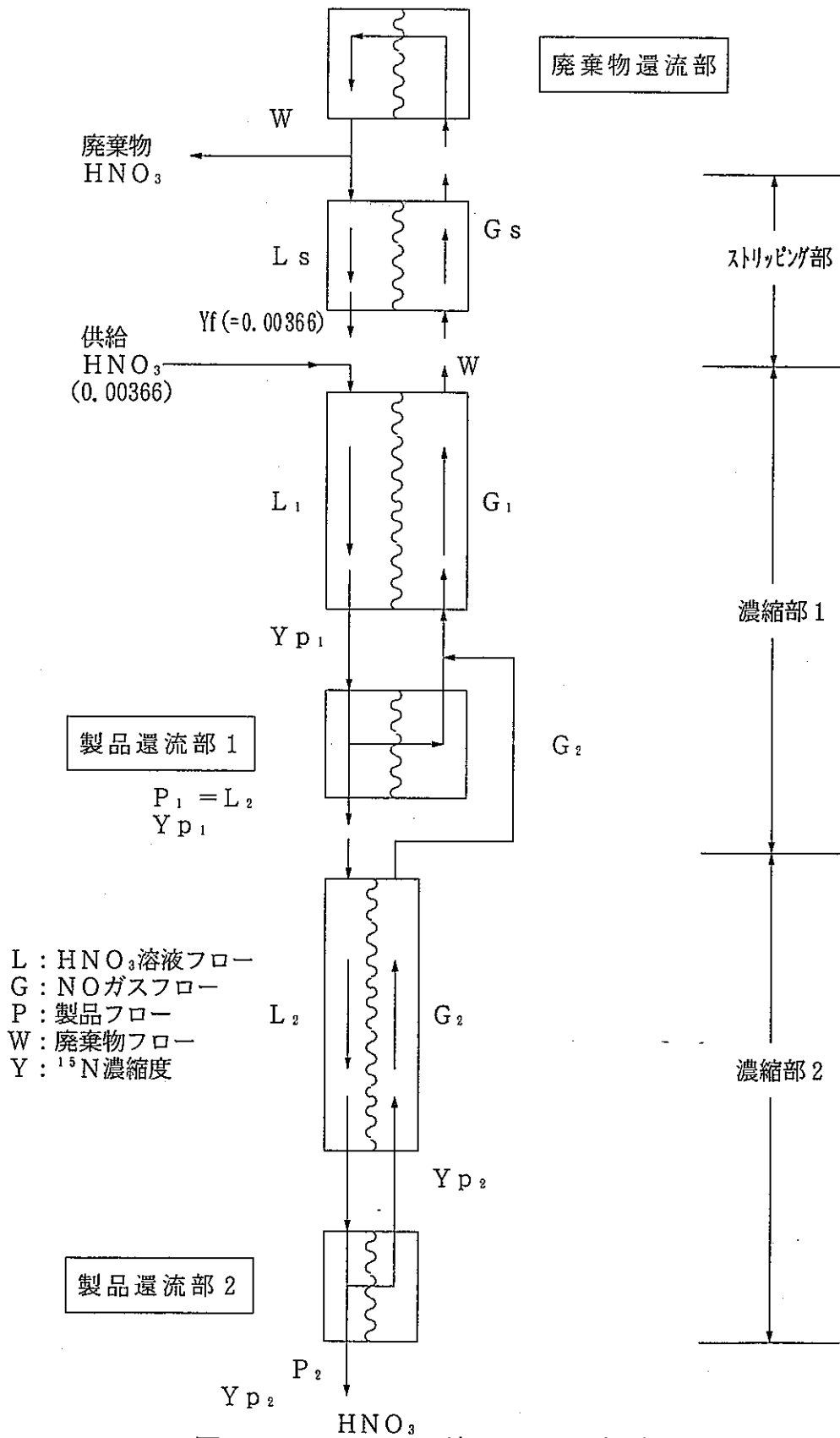
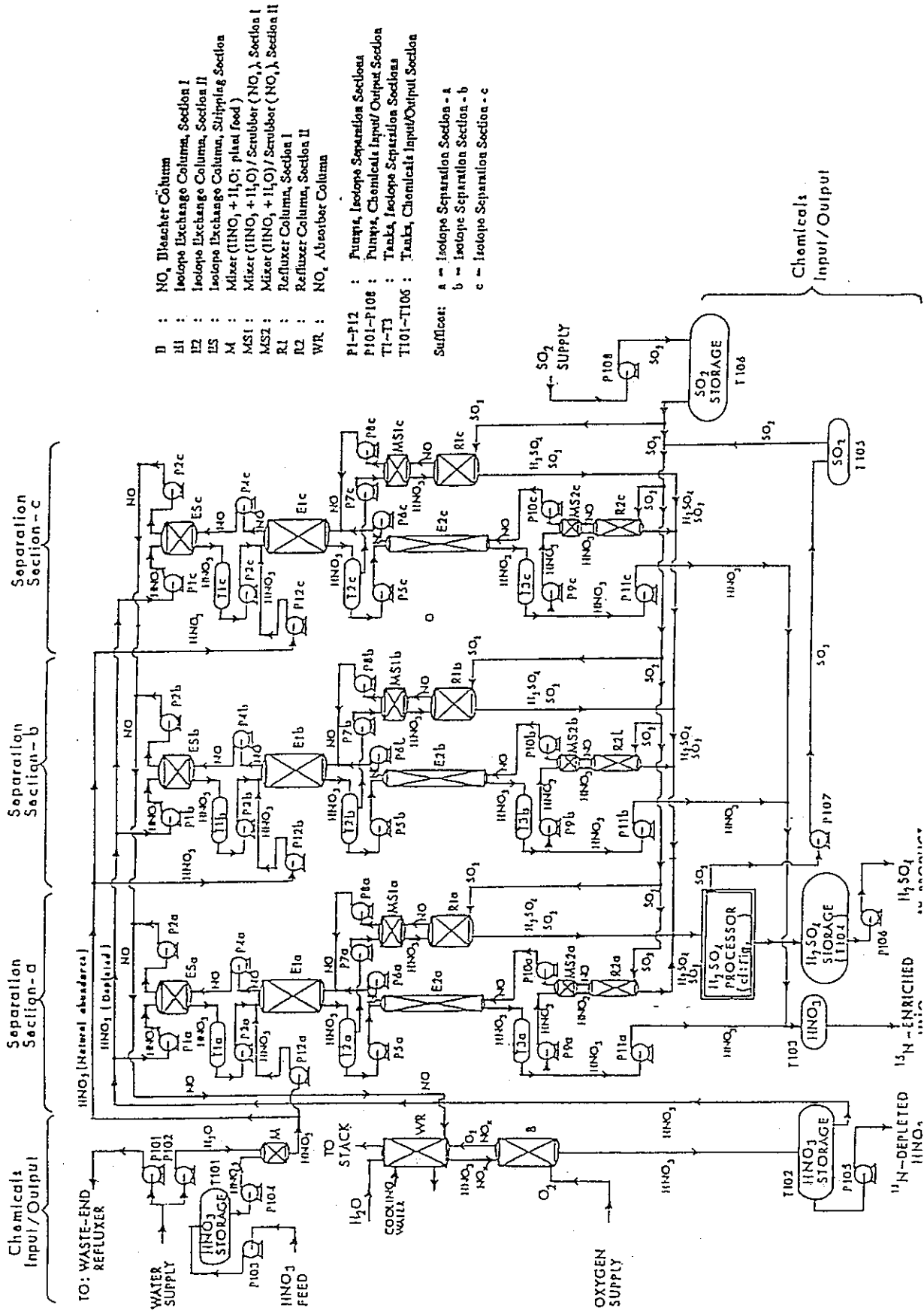


図 5. 6. 1 Nitrox法システム概念





5. 6. 3 1,500kg/yプラントのフローダイアグラム

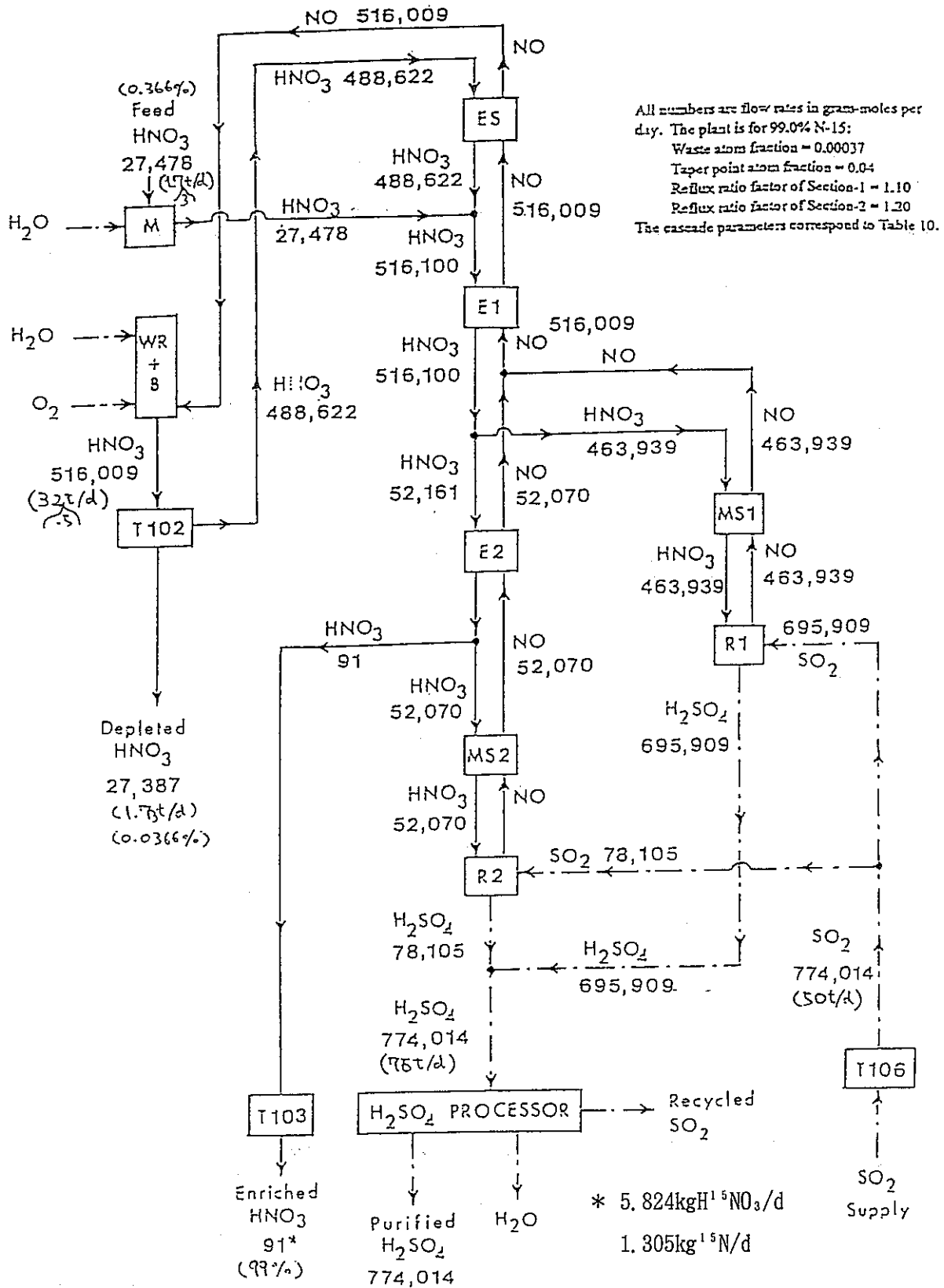


図 5. 6. 4 濃縮度99.0%, 500kg/yプラントの化学薬品のモル流量

表 5. 6. 1  $^{15}\text{N}$ 濃縮コスト評価結果 ( $\$/\text{g}^{15}\text{N}$ )

100kg/y				
$^{15}\text{N}$ 濃縮度	10-year 減価償却		15-year減価償却	
	Without*	With*	Without	With
90.0%	19.75	15.65	18.60	14.45
99.0%	20.95	16.40	19.80	15.25
99.9%	21.10	16.50	19.90	15.30

500kg/y				
$^{15}\text{N}$ 濃縮度	10-year 減価償却		15-year減価償却	
	Without	With	Without	With
90.0%	20.10	15.95	19.05	14.90
99.0%	21.15	16.60	20.10	15.55
99.7%	21.25	16.70	20.20	15.65

1,500kg/y and 4,500kg/y				
$^{15}\text{N}$ 濃縮度	10-year 減価償却		15-year減価償却	
	Without	With	Without	With
90.0%	19.75	15.60	18.75	14.60
99.0%	20.80	16.30	19.80	15.30
99.7%	20.95	16.35	19.95	15.35

\* Without :  $\text{H}_2\text{SO}_4$ 売却利益を入れない場合With :  $\text{H}_2\text{SO}_4$ 売却利益を入れる場合



表 5. 6. 2 プラント操業に必要な人員数の評価

職 種	500kg/y	1,500kg/y	4,500kg/y
オペレーター	8/shift	12/shift	18/shift
班 長	2/shift	3/shift	4/shift
運転管理者	1/day	1/day	1/day
監督補助	1/day	2/day	3/day
試 験	4/day	7/day	7/day
保 守	2/shift	4/shift	6/shift
保 安	5/shift	10/shift	15/shift
合計 (5 シフト)	91	155	226

表 5. 6. 3 人件費, 土地取得費の評価結果 ( $\$/g^{1.5}N$ )

コ ス ト	500kg/y	1,500kg/y	4,500kg/y
人件費	11.58	6.58	3.20
土地取得費	0.96	0.96	0.96
合 計	12.54	7.54	4.16

## 5.7 窒化物燃料加工コスト評価

### (1) 担当部署

東海事業所 核燃料技術開発部 プルトニウム燃料開発室

### (2) 研究内容

窒化物燃料のサイクルコスト評価の一環として、炉心燃料加工コストについて評価を行う。

### (3) 評価結果

窒化物燃料成形加工費（円/KgHM）の評価に当たっては、以下の前提条件を考慮した。

- ・基本的にはMOX燃料の製造工程と同様であるが、窒化物転換炉を増設する。
- ・粉末工程～焼結工程までは、グローブボックス内の雰囲気をコントロールする必要があるため、Arガス雰囲気グローブボックスとする。
- ・Pu第3開発室FBRラインを基準とする。
- ・<sup>15</sup>Nの濃縮コストを付加する。

#### ① 建設費

建設費の内、工程設備費分として、Arガス精製設備及び窒化物転換炉を敷設することにより、1.05倍の増加となる。

#### ② 操業費

Arガス雰囲気グローブボックス用のArガス<sup>\*1</sup>代が増加することにより操業費としては、1.07倍となる。

<sup>\*1</sup> Arガス雰囲気用として必要なガス量としては、

・再生用Arガス (0.95-Ar-0.05H <sub>2</sub> ) ;	3.8 万m <sup>3</sup>
・立ち上げ、運転用Arガス ;	<u>13.0 万m<sup>3</sup></u>
	16.8 万m <sup>3</sup> が増量となる

#### ③ 部材費

部材費については、5.1節で報告した安全性向上炉心評価におけるHeボンド窒化物燃料による受動的安全炉心設計研究結果に基づいて算出する。集合体長さの短縮により従来型の100万kWeのMOX燃料高増殖炉心燃料と比較して集合体の長さは0.80倍、集合体当りのピン本数は1.25倍、集合体当りの燃料ミート重量は0.88倍程度であることから単位H.M.重量当りの部材費は $0.80 \times 1.25 / 0.88 = 1.14$ 倍となる。一方、100万kWeのMOX燃料による受動的安全炉心と比較すると、単位H.M.重量当りの部材費は $0.87 \times 0.68 / 0.90 = 0.66$ 倍となる。

- ・窒化物燃料製造に要するアップ分をまとめると以下ようになる。

- (a) 建設費           ×1.05
- (b) 操業費           ×1.07
- (c) 部材費           ×1.14 (対100万kWe MOX高増殖炉心) ,  
                          ×0.66 (対100万kWe MOX受動的安全炉心)

④ 加工コスト

以上①～③の結果を基に建設費35%，操業費25%，部材費40%として燃料成形加工コストを算出するとMOX高増殖炉心燃料（約25万円/kgHMと見積られる）より約1割高くなり，またMOX受動的炉心燃料より約1割安くなるとの結果であった。

窒化物燃料の成形加工コスト	
対100万kWe MOX高増殖炉心	$=0.35 \times 1.05^{*1} + 0.25 \times 1.07^{*2} + 0.4 \times 1.14^{*3} \approx 1.09$
対100万kWe MOX受動的安全炉心	$=0.35 \times 1.05^{*1} + 0.25 \times 1.07^{*2} + 0.4 \times 0.66^{*3} \approx 0.90$
*1	; 還元炉(MOX⇒窒化物)増設分
*2	; Arガス増加分
*3	; 部材費増加分

以上の計算に，<sup>15</sup>N濃縮コスト分を付加した評価を行う。窒化物燃料1kg当たり，<sup>15</sup>Nは約60g必要となる。したがって，H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>売却利益を入れない場合でかつ人件費と土地取得費も考えたときのコスト増分は以下のように求まる。なお，換算レートを110円/\$とした。

- 500kg/y   : 21.5万円/kgHM
- 1,500kg/y : 18万円/kgHM
- 4,500kg/y : 16万円/kgHM

したがって，<sup>15</sup>N濃縮コストを考慮せずに評価した窒化物燃料加工コストに匹敵する増分となる。しかし，この評価では<sup>15</sup>N濃縮に当たり濃縮プラントでのロス分，つまり収率は考えていないので，実際のコストはもっと高くなる。さらに，評価で用いた<sup>15</sup>N濃縮手法のプロダクトはHNO<sub>3</sub>であるため，実際に窒化物燃料製造に適用するにはHNO<sub>3</sub>溶液をN<sub>2</sub>ガスに転換しなければならず，そのコスト増分も積み重ねられる。

## 5.8 窒化物燃料再処理プロセスの評価

## (1) 研究テーマ

東海事業所 再処理技術開発部 プラント設計開発室

## (2) 目的

窒化物燃料の溶解時における窒素化合物の挙動及び抽出工程におけるそれらの挙動に関する調査検討、更に、ボンド材としてナトリウムを使用した燃料に対応できる再処理プロセス（ナトリウム除去工程を持つ再処理プロセス）についての調査検討を行い、課題を整理する。

## (3) 研究内容

窒化物燃料再処理については、PUREX法を大幅な改造を必要とせずに適応できるものと考えられる。しかし、詳細なプロセス検討を行うためには、溶解時の窒素化合物の生成挙動及び抽出工程での挙動等を明確にしておく必要がある。更に、ボンド材としてナトリウムを使用した燃料に対応できる再処理プロセスについて調査検討をする必要がある。従って、以下の項目について調査検討を行った。

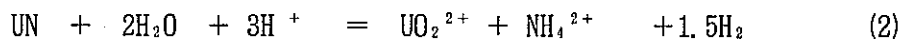
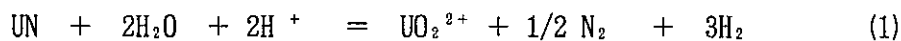
- ・ アンモニウムイオンの生成及び分解挙動
- ・ アンモニウムイオンの抽出工程での挙動
- ・ ナトリウム除去プロセス

以下に各項目ごとに調査検討結果を記す。

## ① アンモニウムイオンの生成及び分解挙動

窒化物燃料再処理にPUREX法を適用するためには酸化物燃料再処理と同様に燃料を硝酸溶液に溶解する工程が必要となる。窒化物燃料の溶解工程については燃料を直接硝酸に溶解する「直接溶解法」と燃料を酸化してから溶解する「酸化溶解法」が考えられている。

「直接溶解法」での反応について、窒化ウラン燃料の溶解反応式をもとに検討する。反応式として下記のもの考える。



各反応式のギブスの自由エネルギーは

$$\Delta G = -51.026 \text{ kcal}$$

$$\Delta G = -69.996 \text{ kcal}$$

であり、 $p[\text{H}_2]=1$   $p[\text{N}_2]=1$  と仮定すると (1) (2)式に対応して各々

$$\log [\text{UO}_2^{2+}] = 39.02 - 2 \text{ pH}$$

$$\log [\text{UO}_2^{2+}] = 52.93 - \log [\text{NH}_4^{2+}] - 3 \text{ pH}$$

となる。

酸化物燃料の場合と比較すると、酸化物燃料の溶解反応式



より計算すると ( $\text{p}[\text{H}_2]=1$  と仮定して)

$$\log [\text{UO}_2^{2+}] = -13.71 - 2 \text{pH}$$

となる。

水素イオンの活量が1の酸性条件で、また、 $\log [\text{NH}_4^{2+}] \ll 0$  なので

$$(3) \ll (1) < (2)$$

となる。

以上より熱力学的には窒化物燃料は酸化物燃料と比較しても非常に硝酸に溶けやすく、かつ、アンモニウムイオンを生成する反応のほうが窒素を生成する反応より優先するため「直接溶解法」では溶解時にアンモニウムイオンが発生することは十分考えられる。

窒化物燃料の溶解挙動やアンモニウムイオンの発生については実験結果も報告されている。以下にこれらの文献の概要を記すとともに、表-1に項目別にまとめた。

窒化ウラン燃料 (UN) は0.5~15.8 Nの硝酸と反応し、溶解する。溶解時間は80℃で、0.5Nで90時間、4Nで0.5時間である。また、35℃でも4Nで24時間、それ以上の硝酸濃度では6時間以内で溶解するという実験結果が報告されている。反応開始までの誘導時間が炭化物や酸化物のウラン燃料より長い、溶解時間はこれらの半分である(4N 70℃の条件)との報告もある。

また、混合窒化物燃料 (MN) の溶解については、UNより早く完全に溶ける(80℃6Nで1時間以内)、8N80℃が溶解の最適条件であり、炭化物の場合の倍の溶解速度であるとの報告がある一方、MNの溶解時間はUNより非常に長いとの報告もある。

溶解時のガス発生量については、150 120 ~146mlSTP/gMNという値が報告がされている。

ガス組成は  $\text{N}_2$   $\text{N}_2\text{O}$   $\text{NO}$   $\text{NO}_2$  であり、割合としてはNOが支配的、 $\text{N}_2$ が支配的という両方の報告がある。いずれにしても、 $\text{N}_2$ の発生がMN溶解の特色である。 $\text{N}_2$ の発生量は硝酸濃度に影響され、濃度が高いほどその量は減少する。発生パターンとして溶解初期に支配的との報告や溶解終了後も持続するとの報告がある。溶解終了後も続くのは溶解液中のアンモニウムイオンの生成・分解と関係づけられると考えられる。

溶解時に溶解液中にアンモニウムイオン ( $\text{NH}_4^+$ ) が生成することについては、その量はほとんど無視しうる程度である、また、ある実験条件でしか生成せず、実際上その全量は水に溶けており、コンデンサを通り抜けオフガス処理系に移行するのはその1%以下であるとの報告がある。その報告ではアンモニウムは燃料中の窒素が窒素ガスに酸化される途中の中間生成物であると考えられ、その存在量は溶解終了5時間後で1.2g/gUNであるが、

7 日後には無視しうる量になったと報告されている。一方、UNで燃料中の窒素の15%、MNで17%がアンモニウムイオンになり、その量は硝酸濃度、温度によらずほぼ一定であるとの報告や、また、UN中の窒素の10~19%が  $\text{NH}_4^+$  になり、数時間溶液のリフラックスを行ってもその濃度は変化せず、一旦生成後はその破壊は困難であるとの報告もある。この場合、アンモニウムイオンを分解除去する方法として溶解液を過剰の亜硝酸イオンと共に沸騰処理する方法が研究されている。

溶解液に亜硝酸ナトリウムを添加すると激しい反応で  $\text{NO}_2$  ガスが発生する。大部分の添加物は硝酸と反応するが、アンモニウムイオン発生量の20倍までの過剰の量を添加することにより、アンモニウムイオンは検出限界 ( $0.25\text{m-mol/gUN}$ ) 以下の濃度まで除去できると報告されている。ただし、本方法はオフガス処理工程への負担を増加させたり、液体廃棄物量を増加させる懸念があり、その採用には工学的検討が必要となる。

以上より、「直接溶解法」については、溶解すること自体は確認されている。本方法は酸化物燃料の溶解工程に追加すべき設備はなく、コスト的には後述する「酸化溶解法」（溶解前に酸化設備が必要）より有利と考えられる。しかし、MNの溶解速度やアンモニウムイオンの生成・分解について文献間で記載内容に相違があり、これらの点でさらなる調査が必要である。また、アンモニウムイオンの生成についてはたとえその分解が容易であっても、溶解槽内に一時的にでも存在することとなり、溶解設備に安全上の問題を生じることとも考えられる。「直接溶解法」のもう1つの問題点としては、燃料中の窒素として  $^{15}\text{N}$  が用いられその回収を再処理工程で行う必要がある場合、それへの対応が難しいことである。 $^{15}\text{N}$  の使用は  $^{14}\text{C}$  の低減策として考えられている。窒化物燃料中にNは 58000ppm含まれており、天然 Nは  $^{14}\text{N}$  99.63%  $^{15}\text{N}$  0.37% である。 $^{14}\text{N}$  (n, p)  $^{14}\text{C}$  で生成する  $^{14}\text{C}$  は燃焼条件により異なるがその量は、「燃焼度 10000 MWD/tで燃料1トあたり 0.3kg」「燃焼度 20%で炉心あたり11kg」等の計算結果がある。一方、酸化物燃料中のNの含有量は不純物の上限として200ppmであり、この上限値が混入していても  $^{14}\text{C}$  の発生量は「燃焼度 10000MWD/tで燃料1トあたり0.001 kg」と計算される。これより概略、窒化物燃料再処理工程では  $^{14}\text{C}$  のDF（除染係数）は1000程度要求されると考えられる。炭素（炭酸ガス）の吸収、安定化の方法については各種炭酸塩にすることが提案されているが天然の  $^{12}\text{C}$  の存在のため経済的な方法とはなっていない。 $^{15}\text{N}$  燃料の使用はこの問題を根本的に解決するものである。（ $^{15}\text{N}$  についても  $^{15}\text{N}$  (n, d)  $^{14}\text{C}$  により  $^{14}\text{C}$  が発生するという懸念があるがこの反応が起こるのは中性子エネルギー14~15 MeV であり、炉内での発生は無視できると考えられる）

しかし、 $^{15}\text{N}$  の製造コストが高いことより再処理工程での回収が期待される。しかし、海外の研究施設での試験（ $^{15}\text{N}$  の窒化物燃料ペレットを用いた溶解試験）では  $^{15}\text{N}$  は溶液

中のアンモニウムおよびオフガス中の  $N_2$ 、 $N_2O$  に  $^{15}N$ - $^{14}N$  のペアーとして移行 ( $NONO_2$  には移行しない) し、その回収は困難とされている。この点、「酸化溶解法」が有利であることも考えられる。

酸化溶解法は燃料せん断ピンを溶解前に酸化させて酸化物としてから溶解する方法であり、酸化の1つの方法として、酸化物燃料再処理の技術開発の中で検討されてきた「ボロキシレーション法」の応用が考えられる。これは 450～600℃で酸素ガスで燃料を酸化する方法であるが、610℃以上でPuに富む  $MO_{2+x}$  相とPuの割合が減少した  $M_3O_8$  相に分離し、 $MO_{2+x}$  相の溶解性が悪くなる。

したがって、窒化物燃料の酸化方法としてはより酸化の進行をコントロールしやすい  $CO/CO_2$  ガスによる方法の採用が考えられる。 $CO/CO_2$  の比は10/1～1/100 の範囲に維持すればよくその調整に敏感になる必要はない。800℃で8～13時間で  $UO_2$  単一相に酸化できたとの報告がある。ただし、この方法の欠点は燃料中に炭素が混入残留し、燃料溶解以降に悪影響を及ぼす可能性が考えられることである。この他、 $Ar-30\%O_2$  ガスによる方法もある。この方法で590℃で23時間でUNを  $UO_2$  単一相に酸化できたとの報告もある。ただし、630℃で  $M_3O_8$  相も生成し、Puの溶解性が悪くなるとの報告もある。

「直接溶解法」では溶解反応中に燃料中の  $^{15}N$  が硝酸中の  $^{14}N$  と同位体交換し、その回収が困難となるが、「酸化溶解法」では燃料中の  $^{15}N$  を同位体希釈することなくオフガスとして放出させることができる。オフガス処理系でトリチウムやクリプトン等の放射性ガスを除去した後、これを原料に  $^{15}N$  を回収すれば、通常の空気を原料とした  $^{15}N$  濃縮より経済的と考えられる。

なお、再処理施設において「直接溶解法」を採用しかつ  $^{15}N$  を回収する極端な方法として再処理工程で使用する硝酸を構成する窒素を全て  $^{15}N$  にし、燃料中の  $^{15}N$  が溶解工程で同位体希釈されるのを防ぐことが考えられる。酸化物燃料の再処理施設の設計研究の結果を用いると、処理能力 50 トン/Y 相当の施設規模で工程中の硝酸の総量はオーダー的に約 100000 mol 液体廃棄物として施設外に流出する硝酸の量は燃料 1 トン処理当たり 1000 mol と見積もられる。一方、燃料 1 トン中の窒素量は mol 換算で 2000 である。すなわち、本方法で回収することはその一方で約半分の量が流出することとなり、回収率を考慮すると経済的な方法とは考えられない。

## ② アンモニウムイオンの抽出工程での挙動

溶解工程で発生するアンモニウムイオンは亜硝酸ソーダの添加により分解除去される。したがって、アンモニウムイオンが抽出工程に移行する可能性は少ないと考えられる。

万一、アンモニウムイオンが抽出工程に移行した場合の挙動について検討するため、関係する文献の調査を行った。その結果、酸化物燃料再処理の抽出工程に関する実験室規模の試験として硝酸アンモニウムや水酸化アンモニウムを試薬として用いた例がある。例えば、硝酸アンモニウムの存在により、3 価のアクチニド、ランタニド核種の TBP への抽出が容易になる、低酸濃度の供給液でのウランの分配係数を向上させるのに硝酸アンモニウムの添加が効果がある等の報告がある。アンモニウムイオン自体の挙動については水相に留まると報告されている。このため、抽出挙動上はアンモニウムイオンが抽出工程に存在しても特に問題を生じないと考えられる。しかし、硝酸アンモニウムは有機物の混入や機械的衝撃により爆発する可能性があり、その存在は好ましくないと考えられる。

## ③ ナトリウム除去プロセス

ボンド材としてナトリウムが用いられる場合、燃料溶解前に除去する必要がある。窒化物燃料集合体の寸法、形状をもんじゅ燃料集合体と同じとし、ボンド材は燃料と被覆管の間に充填されている（プレナム部にはない）とした場合、集合体 1 体当たりのナトリウム量は 500ml 程度と試算できる。

ナトリウム除去法として、①項に記したボロキシレーション法や水蒸気洗浄法の採用が考えられる。しかし、ナトリウムボンド材の窒化物燃料は酸化物燃料と比較して再処理施設に搬入されるナトリウム量が多いためこれを除去するには更なる工夫が必要である。

図 5.8.1 はそのような方法のひとつの案を示すもので、燃料せん断ピンを不活性ガス雰囲気内の容器内に収納し、約 150℃まで加熱し、燃料に付着しているナトリウムを完全に熔融させた後、減圧しピン内のナトリウムを吸引し外部へ排出するものである。いずれにせよナトリウムの存在が前提となる場合、再処理工程に及ぼす影響は大きく、前処理工程の強化・回収ナトリウムの処理工程追加など技術開発及びコストアップは避けられないものと考えられる。従って、ナトリウムボンドの採用に当たっては、燃料サイクル全体を通した評価を充分に行うことが重要である。



表 窒化物燃料「直接溶解法」に関する文献記載内容一覧

文献番号	燃料	溶解速度	オフガス	アンモニウムイオンの発生・分解	文献名
①	未照射MN燃料	80℃ 6N で1時間以内 (UNやUO <sub>2</sub> 燃料より早い) (UとPuの溶解速度は同じ)	発生量 150cm <sup>3</sup> /g MN (UO <sub>2</sub> 燃料と同じ) 組成 N <sub>2</sub> が支配的	(記載なし)	C. PRUNIER et al "EUROPIAN COLLABORATION ON MIXED FUEL" (FR-91 1991)
②	未照射UN燃料	80℃ 0.5N で 90時間 4N で 0.5時間 35℃ 4N で 24時間 4N以上 で 6時間以内	発生量 120~146cm <sup>3</sup> /g UN 組成 N <sub>2</sub> , N <sub>2</sub> O, NO, NO <sub>2</sub> (NO <sub>2</sub> は6N以上で発生) (硝酸濃度増加するとN <sub>2</sub> は減少、N <sub>2</sub> Oは微増、NOは6Nで最大)	発生量は無視しうる。	L. M. FERRIS "REACTION OF URANIUM MONONITRIDE, THORIUM MONOCARBIDE AND URANIUM MONOCARBIDE WITH NITRIC ACID AND OTHER AQUEOUS REAGENTS" (J. OF INORG. CHEM. 1968)
③	未照射UN燃料	80℃ 0.5N で 1~2日間 4N で 0.5時間以内 35℃ 4N で 3時間 8N で 0.5時間	発生量 80~125cm <sup>3</sup> /g UN 発生は反応終了後 数日間続く。 組成 N <sub>2</sub> , N <sub>2</sub> O, NO, NO <sub>2</sub>	溶解終了後5時間 1.2mmol/g UN 7日 無視しうる量	M. B. SEARS "REACTION OF URANIUM CARBONITRIDES AND URANIUM NITRIDE WITH AQUEOUS SOLUTIONS OF HYDROCHLORIC, SULFURIC, AND NITRIC ACID"
④	未照射UN燃料 未照射MN燃料	UN燃料は溶解開始までの誘導時間がUO <sub>2</sub> 燃料より長い が溶解時間はその半分。 MN燃料の溶解時間はUN燃料の20倍。	N <sub>2</sub> も発生する。	UN燃料中の窒素の10~19%がアンモニウムイオンとなる。 数時間の溶液リフラックスでも濃度変わらず。	J. P. GLATZ "DISSOLUTION OF DIFFERENT TYPES OF NUCLEAR FUELS IN NITRIC ACID"
⑤	照射後MN燃料 (7.8% 燃焼)	溶解反応は早い (80℃ 8N が最適)	発生量 330cm <sup>3</sup> /g MN N <sub>2</sub> 発生量; 80℃ 6Nで燃料中の窒素の8%		H. BOKELUND "HEAD-END PROBLEMS OF REPROCESSING OF NITRIDE FUELS CONTAINING <sup>14</sup> N OR <sup>15</sup> N"
⑥	照射後MN燃料 (8.0% 燃焼)	2N~12Nの硝酸に溶解  UN燃料は70℃ 4NでUC燃料の半分の溶解時間。 MN燃料はより長い溶解時間	NOが支配的 N <sub>2</sub> は反応初期に支配的。また、反応終了後も放出は続く。	UN燃料中の窒素の15%、MN燃料では17%がアンモニウムイオンとなる。 (温度、酸濃度によらずほぼ一定)	TUI 年報

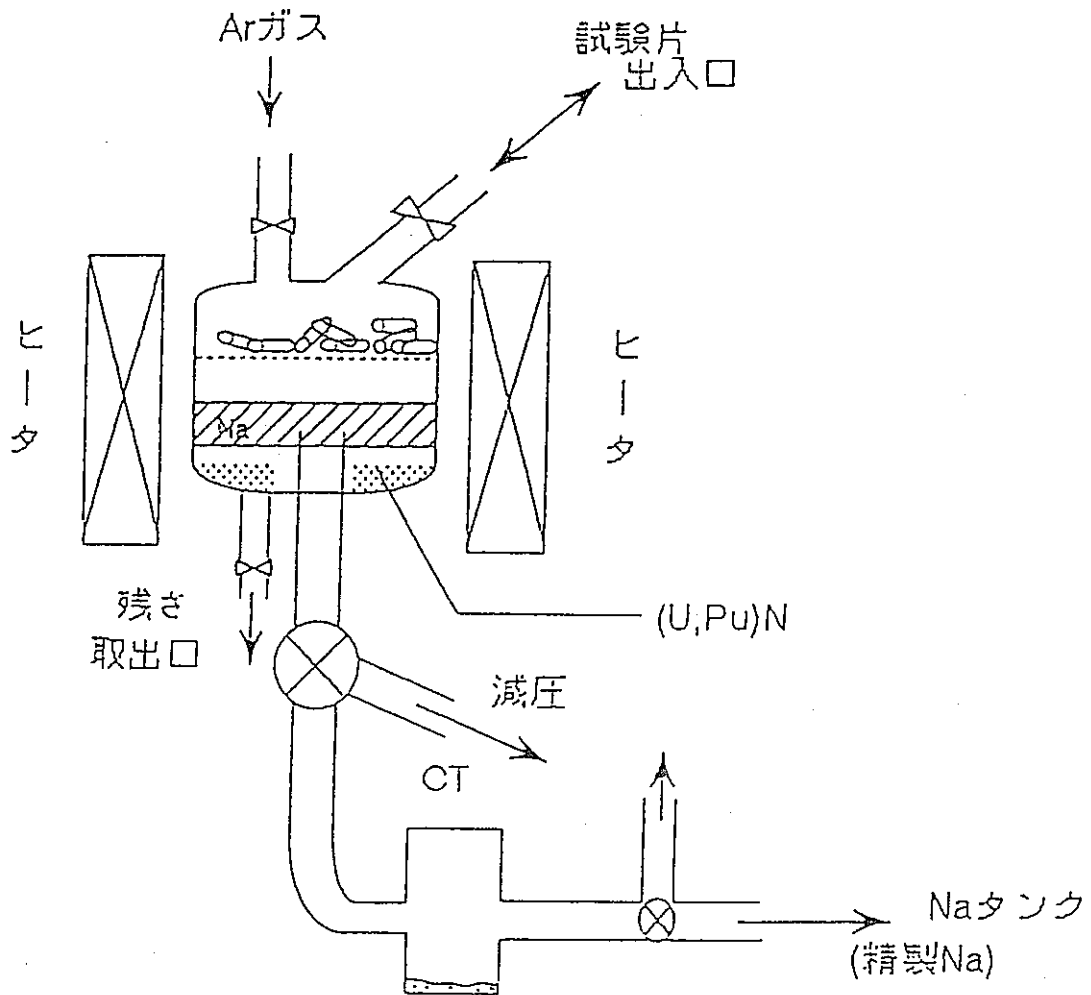


図5.8.1 ナトリウムの減圧加熱装置

5.9  $^{14}\text{CO}_2$  補集, 固定・固化技術評価

## (1) 担当部署

東海事業所 環境技術開発部 環境技術第二開発室

## (2) 研究内容

窒化物燃料再処理オフガスの $^{14}\text{CO}_2$ を除去する新しい方法として、ゼオライトの一種で結晶構造中にCaを持つトバモライトへの吸収プロセス。(反応式： $\text{Ca}(\text{OH})_2 + ^{14}\text{CO}_2 \rightarrow \text{Ca}^{14}\text{CO}_3 + \text{H}_2\text{O}$ )の研究を行っている。トバモライトを用いた $^{14}\text{CO}_2$ の固定・固化法は、アルカリ法によって生成する炭酸塩( $\text{CaCO}_3$ 等)とは異なり、 $\text{CaCO}_3$ が結晶構造中に組み込まれるため、他の固化物質(一般的にはセメント)を用いることなく圧縮成形でき減容効果が高く、貯蔵及び処分負担の軽減が期待できる。

前回は、本方法と従来法の比較検討を行い本方法の有用性等の検討を行った。今回は、本方法の技術的評価を行うため、トバモライトへの $\text{CO}_2$ の吸収固定基礎試験を及び炭酸化トバモライトの固化方法として、圧縮成形及び水熱固化(高温高圧下の水の性質を利用して、常温では溶けない廃棄物を溶解・反応させ安定な固化体とすること。)基礎試験を実施した。また、本方法を用いた再処理オフガス工程での $\text{CO}_2$ の固定・固化プロセスの概要を検討し、今後の研究課題の抽出等を行った。まとめると以下のように列挙できる。

① トバモライトを用いた $\text{CO}_2$ の吸収固定基礎試験

(a) トバモライトの炭酸化速度に関する基礎試験

(b) 炭酸化トバモライトの性質

## ② 炭酸化トバモライトの固化基礎試験

③ トバモライトを用いた $^{14}\text{CO}_2$ 固定・固化プロセスの検討

## (3) 評価結果

① トバモライトを用いた $\text{CO}_2$ の吸収固定基礎試験<sup>1)</sup>

(a) トバモライトの炭酸化速度に関する基礎試験

## ① 反応温度の影響

反応温度30, 50, 60°Cの条件で炭酸化試験を行った結果、反応温度の上昇にともないトバモライトと $\text{CO}_2$ の反応は速くなったが、50°C~60°Cの間ではそれほど反応率に変化はみられない。

## ② 供給ガス濃度の影響

5%, 10%, 30%の各条件で炭酸化を行った結果、 $\text{CO}_2$ ガス濃度の上昇につれ反応が速くなる。

㉓ スラリー比の影響

スラリーと蒸留水の比を12.5g/l, 50.0g/lに調整した時の反応率と時間を比較した結果、スラリー比を大きく（固体成分を大）するとCO<sub>2</sub>ガスの反応量は増大し、反応率は小さくなる。

㉔ 液性状の影響

蒸留水及び水酸化ナトリウム溶液各々のトバモライトスラリーにおける炭酸化の比較を行った結果、水酸化ナトリウム溶液のスラリーにおける反応（強アルカリ）のほうが炭酸化が遅い。

これらの試験結果から、トバモライトの炭酸化は水相へ溶解したCO<sub>2</sub>ガスとの反応により起きることが示唆されるが、アルカリ領域での炭酸化速度は遅くなる。これは、アルカリ領域においては、溶解したCO<sub>2</sub>は主にCO<sub>3</sub><sup>2-</sup>として存在し、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は低いことから、トバモライトスラリーの炭酸化は、主にHCO<sub>3</sub><sup>-</sup>との反応により起こると考えられる。

(b) 炭酸化トバモライトの物理・化学的性質

炭酸化トバモライトの性質、特に熱的安定性及び炭酸化度にともなう結晶形態の変化についての検討を行った。熱安定性については、炭酸化度0%、100%のトバモライトの熱重量測定(TG)、示差熱量測定(DSC)の結果、炭酸カルシウムの分解は、700℃付近から生じており、貯蔵及び処分時の安定性に問題はないと考えられる。

結晶形態の評価については、赤外スペクトル(IR)及びX線回折(XRD)により、炭酸化の進行にともないバテライト→アルゴナイト→アルサイトへと変化する結晶形態の様子を観察するとともに、炭酸化条件の違いと結晶形態との関係について評価した。

② 炭酸トバモライトの固化基礎試験<sup>2)</sup>

炭酸化したトバモライトを固化方法として、圧縮形成法及び水熱固化法を選定し、固化基礎試験を実施した。

直接圧縮形については、水を添加剤として加え、直接プレス機で約100から約250kg/cm<sup>2</sup>で圧縮形成した。緻密の固化体を得られ圧縮強度は30~49kg/cm<sup>2</sup>であった。

次に水熱固化法については、水及びNaOH溶液を加え、約250kg/cm<sup>2</sup>、300℃で90分保持し水熱固化体を作製した。緻密の固化体を得られ固化体の密度は、約1.3kg/cm<sup>3</sup>、圧縮強度は約500kg/cm<sup>2</sup>であった。

これらの結果、炭酸化したトバモライトは、圧縮形成法及び水熱固化法により容易に緻密な固化体を形成することが可能であり、トバモライトの固化法として適用の可能性が十分あることが確認できた。

### ③ トバモライトを用いた $^{14}\text{C}\text{O}_2$ 固定・固化プロセスの検討

再処理オフガス工程におけるトバモライトを用いた $^{14}\text{C}\text{O}_2$  固定・固化プロセスの検討を実施した。

図5.9.1に再処理オフガス工程における $^{14}\text{C}\text{O}_2$  固定・固化プロセスの概要を示す。再処理オフガスには、 $^{129}\text{I}$ 及び $\text{NO}_x$ が存在しておりこれらを除去した後、 $^{14}\text{C}\text{O}_2$ の処理を行う必要がある。本プロセスでは、 $^{129}\text{I}$ を疎水性銀添吸着剤により除去し、続いて、 $\text{NO}_x$ を酸処理された天然ゼオライトに吸着し、加熱脱着し硝酸として回収する。次に $^{14}\text{C}\text{O}_2$ トバモライトにより固定し、 $^{14}\text{C}\text{O}_2$ を吸収したトバモライトは固化処理する。なお、トバモライトの炭酸化速度は、 $\text{CO}_2$ 濃度が高いほど速いため、オフガスからの $^{14}\text{C}\text{O}_2$ を吸着分離した後、トバモライトに固定する方法も考えられる。

図5.9.2に $^{85}\text{Kr}$ を除去する場合の $^{14}\text{C}\text{O}_2$ の固定プロセスの概要を示す。 $^{85}\text{Kr}$ の除去は液化蒸留法で行われ、クリプトン精留工程の前段で $\text{CO}_2$ は、モレキュラシーブを用いた低温吸着工程で除去される。<sup>3)</sup> よって、この低温吸着工程の脱着ガスを対象にトバモライトを用いた $^{14}\text{C}\text{O}_2$ 固定法の適用が考えられる。脱着ガスは、高い濃度で $\text{CO}_2$ が存在すること、 $\text{CO}_2$ と窒素の2成分系であることなどプロセス適用にあたっての好条件がそろっている。

### (4) 結論

トバモライトへの $\text{CO}_2$ 吸収固定試験及び炭酸化トバモライトの固化試験の結果、トバモライトは水分存在化でかなりの速さで炭酸化し、炭酸化トバモライトは、600℃までは極めて安定であることが確認され、トバモライトを利用した $^{14}\text{C}\text{O}_2$ の固定・固化の技術的適用の可能性が確認できた。

次に、トバモライトを用いた再処理オフガスからの $^{14}\text{C}\text{O}_2$ 除去プロセスを検討し、オフガス処理全体の概要を明らかにした結果、オフガス中に含まれる他の放射性物質等との処理との整合性を図ることが重要であることが分かった。

### (5) 今後の課題

トバモライトへの $\text{CO}_2$ の吸収固定試験及び炭酸化トバモライトの固化試験の課題として以下のことが考えられる。

- (1) トバモライトの炭酸化条件の最適化検討及び炭酸化機構の解明
- (2) 固化処理条件の最適化及び固化体の性質、安定性の評価

また、再処理オフガス処理へのトバモライトを用いた $^{14}\text{C}\text{O}_2$ 除去プロセスの適用にあたっては、オフガス処理における他の放射性物質等の処理ケースを考え、各ケースの技術的、経済性の検討を行う必要がある。技術的には、 $^{129}\text{I}$ 及び $\text{NO}_x$ の除去との整合性検討、また、経済性の観点からは、オフガス工程での天然の $\text{CO}_2$ の混入を防ぐことで発生廃棄物量を低減することが可能となることから、これらも考慮したオフガス処理工程全体の評価を行う必要がある。

(参考資料)

- 1) FBR新型燃料サイクルにおける廃棄物に関する調査研究(Ⅱ) PNC ZJ1564 91-001
- 2) 結晶性ケイ酸塩廃棄物の固化法 特願平3-190620
- 3) 動燃技法 N055.1985.9「再処理特集」 11.1 クリプトン回収技術開発施設

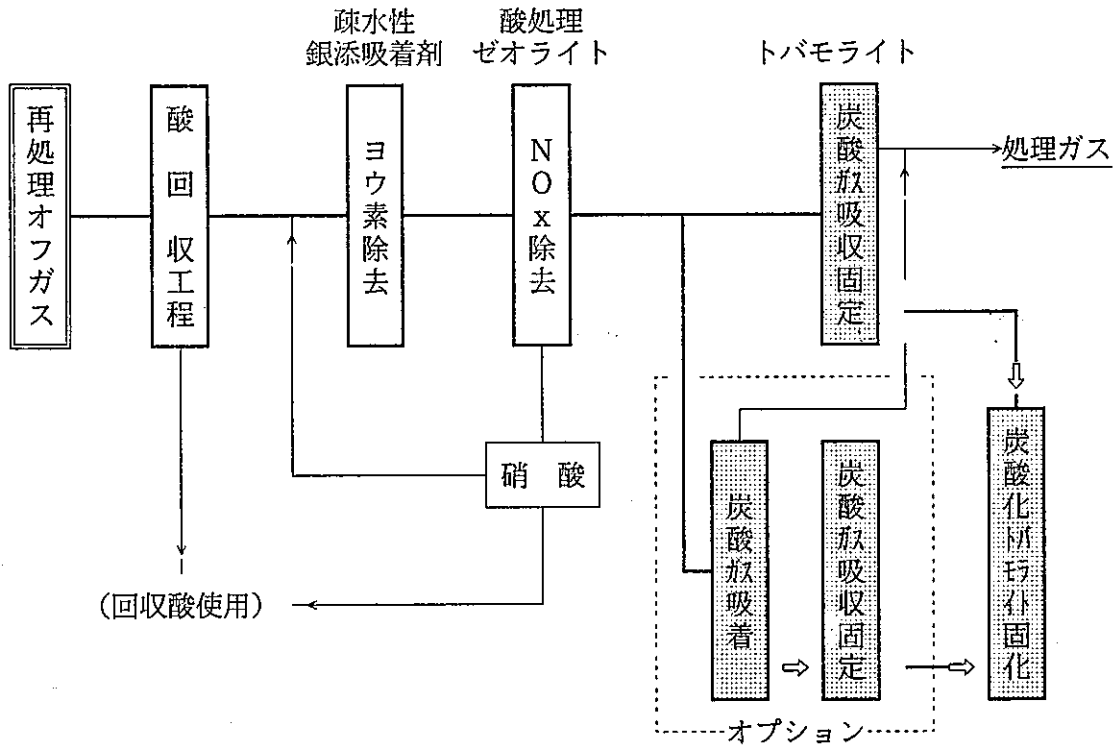


図 5.9.1 再処理オフガス処理プロセスの概要

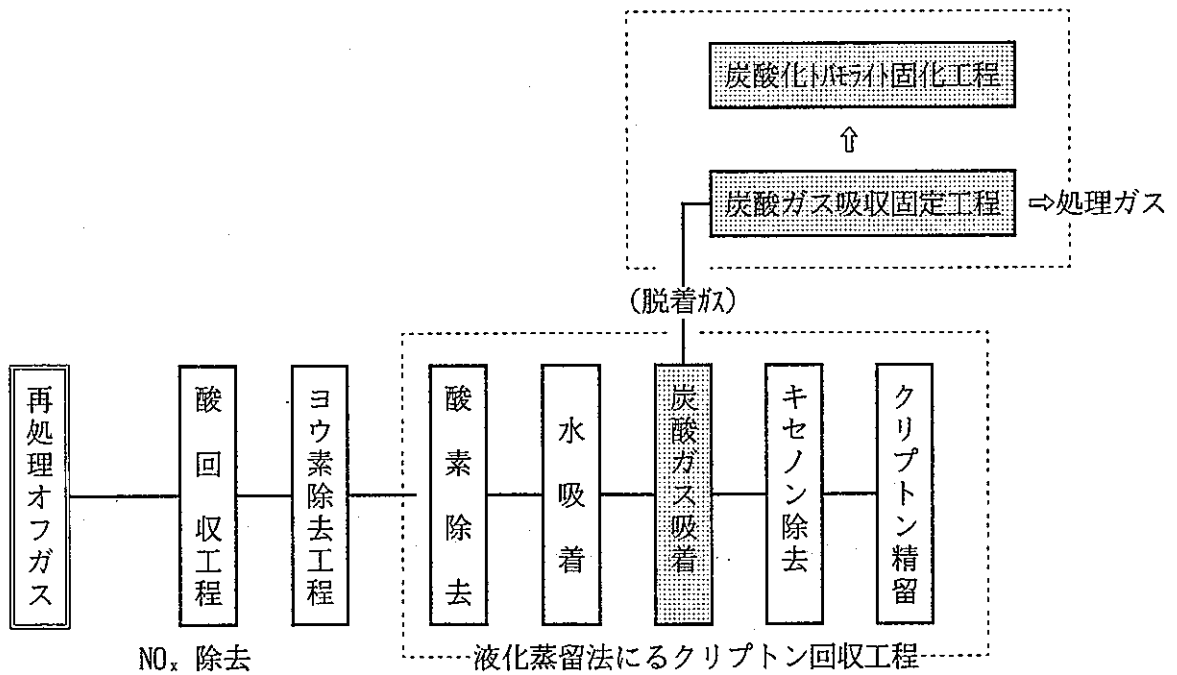


図 5.9.2 クリプトン回収工程を利用した<sup>14</sup>Cの除去プロセスの概要

## 5.10 金属転換技術評価

## (1) 担当部署

東海事業所 核燃料技術開発部 転換技術開発室

## (2) はじめに

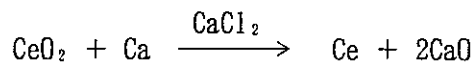
プルトニウム酸化物を金属に直接還元する酸化物直接還元法(Direct Oxide Reduction method)について、現在(平成5年5月末)までにセリウムの酸化物を用いて行われた試験等から評価する。

本試験は、まだ完全な収率(約100%)を安定して得るまでに至っておらず、試験としては継続中のものであるが、本試験の結果等を基に酸化物直接還元法の実証性、安全性及び経済性を評価したものを以下に述べる。

## (3) 実証性

酸化物直接還元法に関する試験は、東海事業所・核燃料技術開発部・転換技術開発室に於いてプルトニウムを模擬する物質としてセリウム(CeO<sub>2</sub>)を選定して行われた。

本試験は、Caを還元剤、CaCl<sub>2</sub>を溶剤として用いて800℃以上での以下に示す反応を利用することにより行われた。



全ての攪拌翼からではないが、特定の攪拌翼を用いた場合、本試験の結果からは約91%の比較的高い収率を得ている。収率を上げるための試験は現在もさらに継続しているものであるが、セリウムとプルトニウムの物性の違い(金属Ce及び金属Puそれぞれ、比重;約6.7g/cm<sup>3</sup>及び約16g/cm<sup>3</sup>, 融点;約800℃及び約640℃)や1回当たりの取扱量がまだ小さいこと等を考慮し、また、米国に於いてプルトニウムの酸化物直接還元法に関する文献<sup>1) 2) 3) 4) 5) 6)</sup>が、様々な年代の種々の研究所及び研究者によって開示されており、そのいずれもが約100%近い収率(99.5%以上)を示していることを考慮する。

これらを総合的に考慮するとプルトニウムを用いた場合、文献に見られる収率99.5%以上を得ることは十分可能であると考えられる。

なお、酸化物直接還元法に関する最近の報告は余り見られない(研究開発の段階がほぼ終了しているためと思われる。)が、米国においては、酸化物直接還元法の後処理工程であるスラグの回収・再利用工程、アメリシウムの除去工程、プルトニウムの電解精製工程等を経て金属燃料を製造し、金属燃料の炉及びサイクル処理を含めて、許認可取得のためのデータ取りをしている段階にある<sup>7)</sup>。

したがって、米国における金属燃料製造は、実験室規模を終了し実証規模に至る前の段階にあると思われる。



## (4) 安全性

## ① 臨界安全性

我が国に於けるPuメタル-水減速系での取扱い制限値は260g・Puがある。

一方、米国の文献に見られる酸化物直接還元法でのプルトニウムの取扱い量は最大約700g・Puである。

酸化物直接還元法では水を用いないように設計すれば、減速材として考えられるのは試薬として用いるCa, Cl, O並びにこれらの試薬中に含まれる水分等の不純物である。

そこで系内のH/M比を5以下に保つことは可能であり、この時の臨界質量は約5.5kg・Puであるので<sup>8)</sup>、安全係数を考慮しても取扱い制限値は約2.5kg・Puまで上げることが可能である。

酸化物直接還元をバッチ式で実施する場合には、このように質量管理を適用することが良いと思われる。

## ② 放射線遮へい

酸化物直接還元法の場合、bomb method等のフッ化物還元法を実施した時に起こるフッ素による( $\alpha$ , n)反応がないため、放射線遮へいは比較的容易である。

プルトニウム中に含まれるアメリシウム等の影響もあるので上記臨界上の取扱い制限値の範囲内であれば、重遮へいのグローブボックス内で十分取り換える量である。

## ③ その他の安全

プルトニウムの金属を得る場合、主にPu-238及びAm-241による発熱に留意しなければならない。現状の軽水炉再処理から得られるプルトニウムの発熱量は、約10watt/kg・Puであるので上記の取扱い量程度であれば、金属温度を約100℃以下に保つことが可能である。

その他発火や過剰反応の恐れは余りないと考えられる。

## (5) 経済性

以上の考慮から、また、米国に於ける実績から、酸化物直接還元法によってバッチ式で1回当たり約1kg・Puの還元を実施するものと仮定する。

使用するグローブボックスは1~2m<sup>3</sup>程度の重遮へいグローブボックスがあればこの酸化物直接還元のための装置を導入することは可能である。

したがって、酸化物直接還元だけを考慮すれば、装置に約0.15億、グローブボックスに約0.25億、これらの耐用年数を10年、その他運転費を年間約0.1億として年間約100バッチ行くと仮定すると、kg・Pu当たりの処理費は約150千円となる。

ただし、スラグの回収及びプルトニウムの電解精製等に要するコストをこれに追加することを考慮しなければならない。

(参考文献)

- 1) R. E. Felt, "A Pyrochemical Process for the Reduction of Plutonium Dioxide to Metal", ARH-1198, (1970).
- 2) L. J. Mullins, C. L. Foxx, "Direct Reduction of  $^{238}\text{PuO}_2$  and  $^{239}\text{PuO}_2$  to Metal", LA-9073-MS, (1982).
- 3) L. J. Mullins, D. C. Christensen, B. R. Babcock, "Fused Salt Processing of Impure Plutonium Dioxide to High-Purity Plutonium Metal", LA-9154-MS, (1982).
- 4) D. C. Christensen, L. J. Mullins, "Present Status of Plutonium Metal Production and Purification at Los Alamos-1982", LA-9674-MS, (1983).
- 5) R. V. Bynum, J. D. Navratil, "Pyrochemical Separations Chemistry of Plutonium", RFP-3963, (1986).
- 6) K. W. Fife, D. F. Bowersox, C. C. Davis, E. D. McCormick, "Direct Oxide Reduction (DOR) Solvent Salt Recycle in Pyrochemical Plutonium Recovery Operations", LA-10891-MS, (1987).
- 7) R. G. Paul, D. L. Porter, D. C. Crawford, L. C. Walters, "Irradiation Behavior of Metallic Fast Reactor Fuels", US DOE Rep, ANL-CP-73323, (1991).
- 8) "Nuclear Safety Guide TID-7016 Revision 2", NUREG/CR-0095.

5.11 乾式リサイクルプラントの運転操業におけるエンジニアリングの調査検討

(1) 担当部署

東海事業所 再処理技術開発部

(2) 研究内容

金属燃料リサイクルプラントにおける物質収支の検討を行った。供用物質質量としてはORIGEN-IIの計算結果を用い、年間の再処理量を48 t HMとした施設を想定し、物質収支図を作成した。

(3) 評価結果

① 金属燃料リサイクルプラントの主要仕様

金属燃料リサイクルプラントの主な仕様を表5.11.1に示す。又、図5.11.1に本検討で想定するブロックフローを示す。

② 収支計算条件

計算は年間の処理単位で行った。

(a) 金属燃料リサイクルプラントの供用量

使用済み燃料の年間再処理量は、重金属分について、以下のように設定する。

年間再処理量 48 HM t / y

③ 増殖炉と基数

上記再処理量は100万KWe級の金属燃料高速増殖炉2.36基分相当である。

④ 使用済燃料の種類と、1基あたり集合体発生数

種 類	装荷集合体数	年間交換体数
炉心燃料	370	124
軸方向ブランケット燃料	370	124
径方向ブランケット燃料	75	19

⑤ 集合体部材・被覆管重量（1集合体）

種 類	重量 (kg)
放射化被覆管材	37.3
放射化集合体部材	40.7
非放射化部材	57.0

⑥ 使用済燃料1集合体中の放射性元素

表5.11.1に示した処理対象燃料条件に基づいて行った1集合体当たりのORIGEN-II計算結果を表5.11.2に示す。この結果は以下における物質収支計算の基本データとして使用した。

⑤ 元素別年間供用量（処理対象元素発生量）の計算

処理する放射性元素 = 1 集合体中の元素量  $\times$  年間処理集合体数  $\times$  炉基数

- ・ 炉心燃料と軸方向ブランケット燃料は同時に処理する。
- ・ 径方向ブランケット燃料は別に処理する。
- ・ 構造部材、被覆管などは前処理量から計算する。

表5.11.3に年間再処理量48t HMの場合における年間の元素毎のリサイクルプラント供用量を示す。

(b) 集合体部材廃棄物・被覆管片廃棄物の発生

② 集合体部材の発生量は以下の式で求める。

非放射化構造部分 = 非放射化構造部材全量  $\times$  年間集合体交換本数  $\times$  炉基数

各放射性元素量 = ORIGINの結果  $\times \alpha \times$  年間集合体交換本数  $\times$  炉基数

ここで  $\alpha$  = 放射化集合体部材 / (放射化集合体部材 + 被覆管片)

③ 電解相中のCd陽極中に、不溶解固形物として被覆管片廃棄物が発生する。

被覆管片等廃棄物発生量 = ORIGINの結果  $\times (1 - \alpha)$

$\times$  年間集合体交換本数  $\times$  炉基数

(c) オフガス発生量

再処理対象燃料の供用量中の全てのガス状FPが、Ar純化系により、全量廃棄物として捕収されるものとする。ガスの発生は80%が解体・せん断過程から、残量が電解槽からと考える。オフガス廃棄物としては合計量が捕収され、処理が行われると考えられるため、発生箇所の区別は考えない。

(d) 年間バッチ処理回数

年間処理量に対し、U、Puの電解析出時の臨界条件や、種々の電解条件を勘案し、以下のように処理バッチ数を設定する。

② 電解槽中に投入するU、Pu処理量の上限

(イ) Pu 3.0Kg以内

(ロ) ヘビーメタル量が以下を越えない範囲

炉心+軸ブランケット 30Kg

径方向ブランケット 14Kg

第一の制限は、Pu析出量を臨界量の1/2以下とするため。第二の制限は、臨界を考慮し、電解時間が15～16時間となった場合でも、析出量が臨界量を越えないようにするためである。

⑥ バッチ回数

バッチ回数を次のようにして定める。

炉心+軸ブランケットのバッチ回数＝

$$[(U+Pu) / 30 \text{ kg}、(Pu \text{ 量}) / 3 \text{ kg}] + 1$$

径方向ブランケットのバッチ回数＝

$$[(U+Pu) / 14 \text{ kg}、(Pu \text{ 量}) / 3 \text{ kg}] + 1$$

但し、[ ]の中は回数のため、整数とする。これによって定まるバッチ回数、また1バッチあたりの使用済燃料装荷量は以下のとおり。

燃料種類	延べバッチ回数	装荷量 (kg)
炉心+軸ブランケット燃料	1 3 5 4	3 4. 5
径方向ブランケット燃料	6 4 7	1 5. 8

(e) 電解析出量の計算

実験的に求められた元素別の回収量または除染係数をもとに、電解析出量を推定する。電解装置は固体陰極と溶融Cd陰極を有するDual Cathod法を用いる事とする。すなわち、電解の第一段階で固体陰極にUを主に析出させ、次いでCd陰極にUとPuを同時に析出させるものとする。

① 回収率・除染係数

文献調査の結果に基づき、元素毎の除染係数を設定した。表5.11.4に示す。U、Puには回収率を、そのほかの元素には除染係数を用いる。I、Teは析出しないものとする。また、PuはCd陰極にのみ析出するものとする。

$$\text{回収率} = \text{析出量} / \text{供用量}$$

$$\text{除染係数} = \text{供用物中対象元素濃度} / \text{析出物中元素濃度}$$

これら回収率もしくは除染係数の値は、当然陰極の種類・塩浴の種類などで異なるものであるが、ここでは便宜的に電解析出量全量に対し表4の回収率もしくは除染率が適用できるものとする。更に、TRU、FPなどもU、Puの電析量合計に比例して析出するものとする。

② 析出量の計算 (固体陰極とCd陰極の合計)

$$(U+Pu \text{ 析出量}) = (U+Pu \text{ の供用量}) \times (\text{回収率})$$

$$\text{析出物全量} = (U+Pu \text{ 析出量}) / \{1 - \Sigma (\text{析出物の} U+Pu \text{ 以外の元素濃度})\}$$

$$(U+Pu \text{ 以外の各析出量}) = (\text{析出物中各元素濃度}) \times (\text{析出物全量})$$

但し、析出物中各元素濃度＝供用量中対象元素濃度／除染係数

(f) Cd蒸留後の製品中Cd残留量

Cd中に溶存する物質の種類や、量によってCd残留量や蒸留に要する時間が異なると考えられるが、十分な情報がないためここでは、ZnやCdの乾式精錬の経験から100ppmと仮定する。

(g) 塩使用量

電解槽に装荷する塩の種類と量については、大きな自由度があるため、ここではつぎのように設定する。

② 塩組成 ANLのレポート1)で報告された組成を用いる。また電解精製のためUとPuの塩化物を添加する。添加量は塩化ウラニウム4.7m%、塩化プルトニウム1.4m%と仮定する。この条件における組成をつぎに示す。

種類	分子量	比重	mol比	mol%	重量%
LiCl	42.4	1.547	0.37	34.74	11.34
NaCl	58.4	1.716	0.08	7.51	3.38
CaCl <sub>2</sub>	111.0	2.44	0.19	18.31	15.65
BaCl <sub>2</sub>	208.2	3.42	0.35	33.33	53.44
UCl <sub>3</sub>	344.4	5.44		4.70	12.46
PuCl <sub>3</sub>	345.5	5.44		1.40	3.72

③ 初期塩

電解槽の大きさから塩の容量を192.92リットルと設定する。これを体積比で比例配分し、各塩の容量、重量を決定する。

種類	容積 (L)	重量 (kg)
LiCl	41.22	63.77
NaCl	11.07	19.00
CaCl <sub>2</sub>	36.06	87.99
BaCl <sub>2</sub>	87.84	300.40
UCl <sub>3</sub>	12.88	70.07
PuCl <sub>3</sub>	3.85	20.94
合計	192.92	562.16

④ 塩浴の使用限界、塩交換回数

塩浴の使用限界をFP, TRUによる発熱量25mW/gとする。これは発熱による温度制御の限界から来ており、文献2)にもとづくものである。このほか、熱シンク材として被覆管に封入されているNaの蓄積も塩の使用限界を決定する要因の一つであると考えられているが、ここでは考慮しないものとする。

この設定限界に対し、炉心燃料+軸方向ブランケット燃料の場合は塩の使用限界が発生し、径方向ブランケット燃料には限界が発生しない事になるが、ここでは双方同時に使用限界がくるものと仮定する。実際には、径方向ブランケット燃料の1バッチあたりの使用量は半分であるため、この仮定は相当過大となっているが、十分な情報がないためあえて前述の条件を採用するものとする。物質収支の計算では使用済燃料由来の元素と、塩浴由来の元素を分けて考えるものとするまた、塩の交換回数は簡単のため端数も使用する。以上の条件で塩浴に蓄積するFP増加量、発熱増加量、塩浴量から塩浴の使用限界回数を求める。

M：塩の初期装荷量 (Kg)

m：バッチあたりの塩浴へのFP増加量 (Kg)

ΔH：バッチあたりの塩浴の発熱増加量 (w)

α：使用限界の発熱量は仮定より 25 mW/g とすると、

使用限界回数、 $n = \alpha \times M / (\Delta H - \alpha \times m)$

年間延べ交換回数=年間延べバッチ回数/n

燃料種類	塩浴限界使用回数	年間交換回数
炉心+軸ブランケット燃料	55	24.62
径方向ブランケット燃料	55 (仮定より)	11.76

④ 塩の付着、回収、年間塩浴使用量

塩の付着は固体陰極にのみ起こり、その量は析出Uの体積の5%と仮定する。付着した塩は全量が回収されるものとする。

塩使用量=装荷時の塩浴量x年間延べ交換回数

種類	重量kg	放射能Ci	発熱量w
LiCl	2.32E3	—	—
NaCl	6.91E3	—	—
CaCl <sub>2</sub>	3.20E3	—	—
BaCl <sub>2</sub>	1.09E4	—	—
UCl <sub>3</sub>	2.55E3	9.32E-4	1.69E-5
PuCl <sub>3</sub>	7.62E2	1.39E2	1.23E0
合計	2.05E4	1.39E2	1.23E0

ここでのU、Puは電解精製のため添加したUCL<sub>3</sub>とPuCL<sub>3</sub>によるものであり、その放射能、発熱量は便宜的に径方向ブランケット燃料と同じとする。

## (h) Cd、使用量

## ① 陽極Cd

Cd中のU溶解度から、装荷量を溶かし切るだけの量として、1500kg/電解槽とする。陽極バスケットへの付着による損失を0.01%と仮定する。但し、物質収支上は付着CdによるFPの移動は無視する。1年間使用したCdはCd蒸留により溶存するFPを分離回収するものとする。その際Cdの劣化は考えないので何回も再使用が可能であるものとする。1年間という期間は便宜的なものであり、実際には、陽極Cd中に蓄積するFP元素量によって使用可能期間が決まるものと考えられる。

## ② 陰極Cd

陰極Cdは68kg/電解槽と仮定した。これはCd中にPuCd6が生成するために十分な量である事(Puが3kgに対し、Cdがおよそ8.29kg)と、析出するUを沈めるだけのCd体積(炉心+軸ブランケットで約7.5kg)がある事の条件を充分満たす事を考慮し、2条件のうち大きい方の約8倍と設定したものである。陰極蒸留工程でのCdの損失は0.5%バッチとする。損失量はその都度補充されるものとする。以上の設定による年間Cdの使用量はつぎの通りである。

種類	初期装荷量kg	補充量kg/y
陽極Cd	16500	0
陰極Cd	748	680

尚、使用済陽極Cdの年間蒸留処理量はつぎの通りとする。

種別	重量kg/y
陽極Cd発生量	19810
蒸留回収分	16500
再利用 余剰量	3211
FP中への残留	0.66

以上の条件に基づいて作成した金属燃料リサイクルプラントケミカルフローシートを図5.11.2に示す。又、電解精製工程からの塩、Cdについての年間収支図を図5.11.3に示す。



表 5.11.1 金属燃料リサイクルプラント仕様

仕 様	記 事	
1. リサイクルプラント主要仕様		
(1) 処理能力	240KgHM/d	処理容量 240KgHM/dX200日/年
(2) 稼働日数	200日/年	
(3) 年間処理量	48tHM/年	
2. 燃料条件		
(1) 炉心燃料		
① 平均燃料組成	U-13Pu-10Zr	
② 平均燃焼度	93700MWd/t	
③ 燃焼期間	3年	1年サイクル3バッチ
④ 冷却	2年	
⑤ 集合体本数	370本	
⑥ 集合体中のピン数	370本	
⑦ 集合体中燃料重量	158Kg	炉心燃料は軸方向ブランケット燃料を含む
(2) ブランケット燃料		
① 燃料組成	U-10Zr	
② 燃焼期間	4年	1年サイクル4バッチ
③ 集合体体数	75体	
④ 集合体中のピン数	271本	
⑤ 集合体中燃料重量	228Kg	
(3) ボンド材	Na	
(4) 被覆管材	ODS鋼	MA 957鋼
(5) 燃料スミヤ密度	75%	
(6) 全燃料合金重量	76.6ton	

表5.11.2(1) ORIGEN計算結果

炉心燃料組成 (集合体)				方向ブランケット組成表 (集合体)			
元素	g	C i	W	元素	g	C i	W
U	5.67E4	1.79E0	4.23E-3	U	6.24E4	3.10E-2	5.91E-4
Pu	1.14E4	7.34E4	5.65E1	Pu	2.41E3	5.29E2	5.63E0
Zr	9.08E3	5.66E3	2.87E1	Zr	7.30E3	3.13E2	1.58E0
Np	3.58E1	1.74E1	4.33E-2	Np	5.47E0	4.28E-3	1.19E-4
Am	2.22E2	5.41E2	1.56E1	Am	3.86E-1	1.33E0	4.37E-2
Cm	1.91E1	7.48E3	2.73E2	Cm	7.04E-4	2.03E0	7.48E-2
Cs	8.78E2	4.27E4	2.22E2	Cs	5.26E1	1.80E3	5.73E0
Rb	4.77E1	3.17E-3	1.43E-5	Rb	3.55E0	5.00E-5	2.25E-7
Na	2.78E3	2.63E-2	3.72E-4	Na*	0.0	0.0	0.0
Sr	1.09E2	9.43E3	1.26E1	Sr	8.23E0	6.92E2	8.91E-1
Ba	3.26E2	2.22E4	8.72E1	Ba	1.90E1	1.31E3	5.14E0
Mg	2.16E0	0.0	0.0	Mg	0.0	0.0	0.0
La	2.68E2	8.82E-4	1.48E-5	La	1.64E1	4.12E-5	6.91E-7
Pr	2.50E2	9.36E4	6.08E2	Pr	1.58E1	4.38E3	3.19E1
Ce	5.08E2	8.28E4	5.50E1	Ce	3.11E1	4.34E3	2.88E0
Nd	7.96E2	1.49E-5	3.59E-8	Nd	5.07E1	6.70E-7	1.61E-9
Sm	2.33E2	7.90E2	9.26E-2	Sm	1.33E1	5.40E1	6.33E-3
Pm	3.78E1	3.52E4	1.36E1	Pm	2.90E0	2.69E3	9.76E-1
Y	5.72E1	1.07E4	5.54E1	Y	4.39E0	7.56E2	3.99E0
Gd	2.52E1	1.27E1	1.15E-02	Gd	1.12E0	5.05E-2	4.56E-5
Eu	2.94E1	4.53E3	1.48E1	Eu	1.64E0	2.03E2	4.82E-1
Tb	1.85E0	3.10E1	2.52E-1	Tb	8.32E-2	3.91E-1	3.18E-3
Nb	3.27E-1	1.28E4	6.12E1	Nb	1.81E-2	7.70E2	3.38E0
Rh	2.00E2	1.10E5	1.05E3	Rh	1.23E1	4.89E3	4.67E1
Pd	5.54E2	5.42E-2	3.21E-6	Pd	2.61E1	2.55E-3	1.51E-7
Ru	6.98E2	1.10E5	8.64E0	Ru	3.98E1	4.90E0	3.79E-1
Ag	5.62E1	1.03E3	1.70E1	Ag	2.62E0	8.20E0	1.36E-1
Tc	1.82E2	3.08E0	1.55E-3	Tc	1.16E1	1.97E-1	9.86E-5
Mo	7.47E2	0.0	0.0	Mo	5.22E1	0.0	0.0
Cd	5.22E1	3.65E1	6.66E-2	Cd	2.96E0	1.91E0	3.47E-3
Sn	4.53E1	2.51E2	6.84E-1	Sn	3.50E0	1.32E1	3.60E-2
Se	9.15E0	8.82E-2	2.20E-5	Se	6.82E-1	6.28E-3	1.57E-6
Te	1.44E2	2.17E3	1.93E0	Te	9.18E0	1.37E2	1.21E-1
I	8.01E1	1.03E-2	4.75E-6	I	5.34E0	6.69E-4	3.10E-7
Kr	5.63E1	1.35E3	2.02E0	Kr	4.12E0	9.51E1	1.42E-1
Xe	1.04E3	1.71E-4	3.09E-7	Xe	6.23E1	4.71E-7	6.83E-10

表5.11.2(2) ORIGEN計算結果

径方向ブランケット組成表 (集合体)			
元素	g	C i	W
U	1.94E5	1.03E-1	1.86E-3
Pu	7.05E3	1.84E3	1.64E1
Zr	2.26E4	3.58E2	1.81E0
Np	1.67E1	1.38E-2	3.65E-4
Am	2.36E0	8.12E0	2.68E-1
Cm	2.54E-3	7.22E0	2.66E-1
Cs	1.22E2	3.67E3	8.82E0
Rb	8.03E0	4.16E-5	1.86E-7
Na	2.79E3	8.15E-3	1.15E-4
Sr	1.82E1	1.48E3	1.82E0
Ba	4.48E1	2.98E3	1.17E1
Mg	6.78E-1	0.0	0.0
La	3.77E1	4.60E-5	7.71E-7
Pr	3.78E1	5.50E3	4.00E1
Ce	7.06E1	5.44E3	3.62E0
Nd	1.16E2	7.49E-7	1.81E-9
Sm	3.10E1	1.27E2	1.48E-2
Pm	5.35E0	4.96E3	1.79E0
Y	9.78E0	1.56E3	8.93E0
Gd	2.71E0	8.69E-2	7.85E-5
Eu	3.65E0	4.02E2	7.96E-1
Tb	2.07E-1	3.35E-1	2.73E-3
Nb	2.07E-2	8.07E2	3.86E0
Rh	2.86E1	6.84E3	6.53E1
Pd	6.28E1	6.22E-3	3.68E-7
Ru	8.89E1	6.84E3	5.05E-1
Ag	6.42E0	1.20E1	1.98E-1
Tc	2.68E1	4.55E-1	2.28E-4
Mo	1.20E2	0.0	0.0
Cd	5.68E0	3.28E0	5.83E-3
Sn	6.31E0	1.51E1	4.13E-2
Se	1.45E0	1.33E-2	3.30E-6
Te	2.04E1	1.99E2	1.73E-1
I	1.19E1	1.51E-3	6.98E-7
Kr	9.08E0	2.00E2	2.99E-1
Xe	1.44E2	4.01E-7	5.36E-10

表 5.11.2(3) ORIGEN 計算結果

被覆管等組成表 (集合体)						
炉心燃料被覆管*				径方向ブランケット燃料被覆管		
元素	g	C i	W	g	C i	W
Fe	6.75E4	4.35E3	1.60E-21	6.76E4	8.63E2	3.01E-2
Cr	1.12E4	1.14E0	2.44E-4	1.12E4	7.35E-2	1.58E-5
Ni	7.49E-4	3.71E-11	3.74E-15	1.51E-4	1.12E-13	1.12E-17
Mn	4.34E0	2.13E4	1.06E2	7.40E-1	9.12E2	4.54E0
V	3.87E0	1.37E-13	1.51E-15	9.03E-1	1.60E-14	1.76E-16
W	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
Mo	2.08E3	1.33E-2	1.24E-6	2.11E3	4.03E-3	3.78E-7
Co	1.52E-1	2.94E0	4.53E-2	4.63E-2	3.23E-1	4.98E-3
Si	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
Re	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
C	5.52E-3	2.66E-4	7.79E-8	6.04E-4	3.50E-5	1.03E-8
Ti	8.00E2	0.0	0.0	8.00E2	0.0	0.0
Y	7.81E1	0.0	0.0	7.86E1	0.0	0.0
Zr	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
Nb	1.10E-1	0.0	0.0	1.40E-4	0.0	0.0

\*軸方向ブランケット燃料被覆管も同じ

表 5.11.3 年間使用済燃料供用量 (48 t HMベース)

		炉心・軸方向ブランケット燃料			径方向ブランケット燃料		
分類	元素	Kg	Ci	W			
燃料成分	U	3.49E4	5.34E2	1.41E0	8.69E3	4.60E0	8.32E-2
	Pu	4.06E3	2.17E7	1.82E4	3.15E2	8.24E4	7.31E2
	Zr	4.80E3	1.75E6	8.88E3	8.94E-1	1.41E1	7.16E-2
TRU	Np	1.21E1	5.11E3	1.27E1	1.46E-1	1.21E-1	3.19E-3
	Am	6.51E1	1.59E5	4.59E3	2.06E-2	7.10E1	2.34E0
	Cm	5.59E0	2.19E6	8.01E4	2.22E-5	6.31E1	2.33E0
アルカリ	Cs	2.73E2	1.30E7	6.67E4	3.21E-3	9.68E1	2.33E-1
	Rb	1.50E1	9.45E-1	4.26E-3	2.12E-4	1.10E-6	4.91E-9
	Na	8.16E2	7.71E0	1.09E-1	7.34E-2	2.15E-4	3.04E-6
アルカリ土類	Sr	3.43E1	2.97E6	3.96E3	3.59E-4	2.93E1	3.60E-2
	Ba	1.01E2	6.89E6	2.71E4	1.18E-3	7.85E1	3.08E-1
	Mg	6.34E-1	0.0	0.0	1.79E-5	0.0	0.0
希土類	La	8.33E1	2.71E-1	4.54E-3	1.49E-3	1.82E-6	3.05E-8
	Pr	7.79E1	2.58E7	1.88E5	1.50E-3	2.18E2	1.58E0
	Ce	1.58E2	2.55E7	1.70E4	1.12E-2	8.61E2	5.72E-1
	Nd	2.48E2	4.56E-3	1.10E-5	3.06E-3	1.97E-8	4.76E-11
	Sm	7.22E1	2.47E5	2.90E1	1.23E-3	5.00E0	5.87E-4
	Pm	1.19E1	1.11E7	4.27E3	2.12E-4	1.96E2	7.09E-2
	Y	1.81E1	3.36E6	1.74E4	3.87E-4	6.15E1	3.32E-1
	Gd	7.72E0	3.74E3	3.38E0	1.07E-4	3.44E-3	3.11E-6
	Bu	9.09E0	1.39E6	4.49E3	1.44E-4	1.59E1	3.15E-2
Tb	5.66E-1	9.19E3	7.49E1	8.19E-6	1.32E-2	1.08E-4	
貴金属	Nb	1.01E-1	3.96E6	1.89E4	8.18E-7	3.19E1	1.53E-1
	Rh	6.23E1	3.37E7	3.22E5	1.13E-3	2.70E2	2.58E0
	Pd	1.70E2	1.66E1	9.86E-4	2.48E-3	2.46E-4	1.46E-8
	Ru	2.16E2	3.38E7	2.65E3	3.55E-3	2.70E2	2.00E-2
	Ag	1.72E1	3.04E5	5.04E3	2.54E-4	4.73E-1	7.84E-3
	Tc	5.67E1	9.62E2	4.82E-1	1.06E-3	1.80E-2	9.01E-6
	Mo	2.34E2	0.0	0.0	4.75E-3	0.0	0.0
	Cd	1.62E1	1.13E4	2.05E1	2.25E-4	1.30E-1	2.31E-4
	Sn	1.43E1	7.76E4	2.11E2	2.50E-4	5.98E-1	1.63E-3
	Se	2.88E0	2.77E1	6.89E-3	5.75E-5	5.25E-4	1.31E-7
Te	4.49E1	6.77E5	6.02E2				
ハロゲン	I	2.51E1	3.20E0	1.48E-3			
貴ガス	Kr	1.77E1	4.23E5	6.34E2			
	Xe	3.24E2	5.02E-2	9.08E-5			
合計		4.70E4	1.89E8	7.90E5	9.00E3	8.47E4	7.42E2

表 5.11.4 回収率・除染係数  
(U, P u 以外は除染係数)

分類	元素	率・係数	備考
燃料成分	U	0.9951	Burris 等
	Pu	0.9956	Burris 等
	Zr	1000	ANL
TRU	Np	4.52	=Am
	Am	4.52	原子力工業
	Cm	4.52	=Am
アルカリ	Cs	1500	=Ba
	Rb	1500	=Ba
	Na	1500	=Ba
アルカリ 土類	Sr	2000	ANL
	Ba	1500	ANL
	Mg	1500	=Ba
希土類	La	1000	=Y
	Pr	1000	=Y
	Ce	250	ANL
	Nd	1500	ANL
	Sm	1000	=Y
	Pm	1000	=Y
	Y	1000	ANL
	Gd	1000	=Y
	Eu	1000	=Y
Tb	1000	=Y	
貴金属	Nb	1000	=Zr
	Rh	1000	=Zr
	Pd	1000	=Zr
	Ru	1000	=Zr
	Ag	1000	=Zr
	Tc	1000	=Zr
	Mo	1000	=Zr
	Cd	1000	=Zr
	Sn	1000	=Zr
	Se	1000	=Zr
	Te		
ハロゲン	I		

除染係数 = 供用物中元素濃度 / 析出物中元素濃度  
I, Te は析出しないと仮定する。

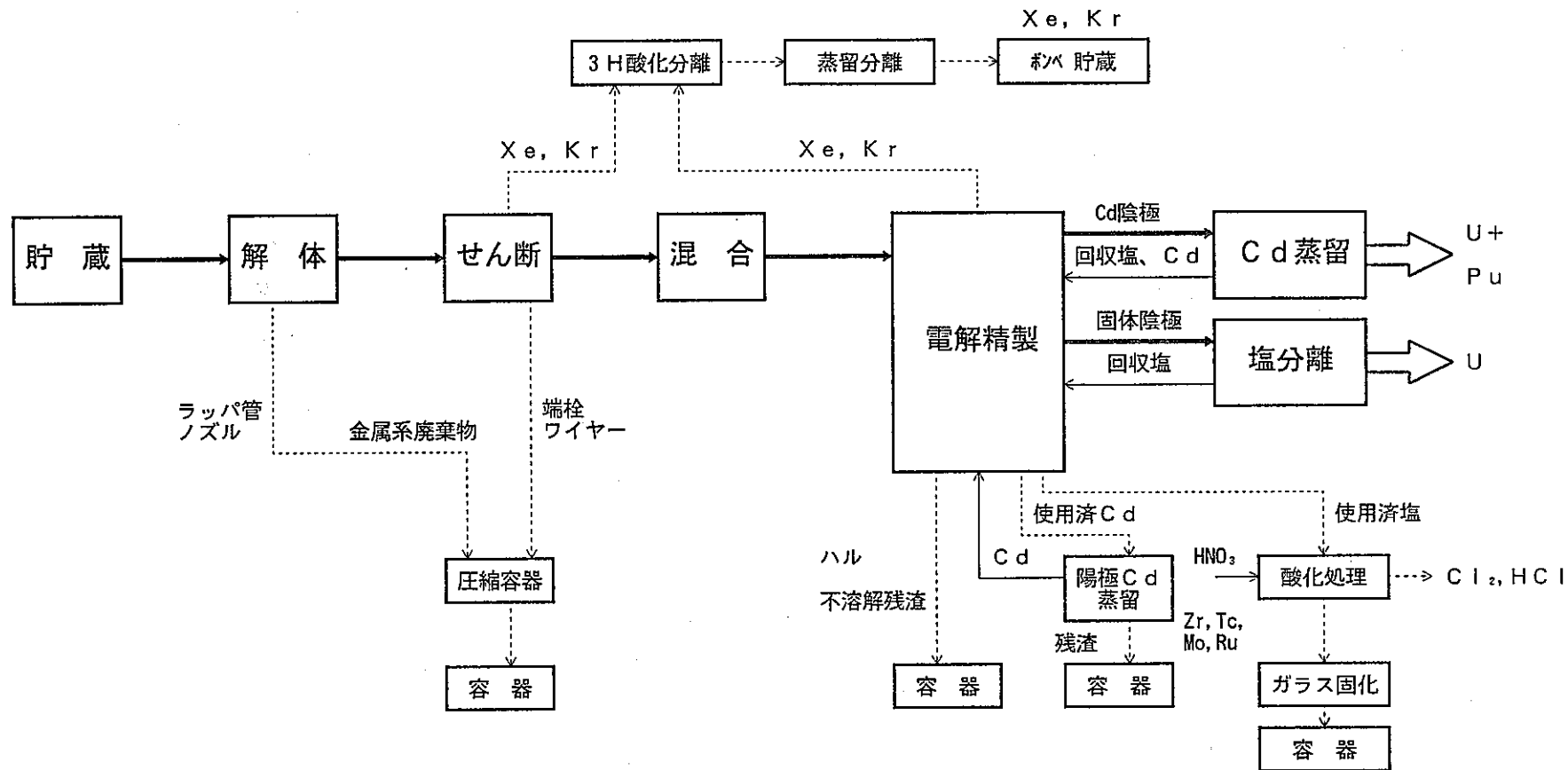
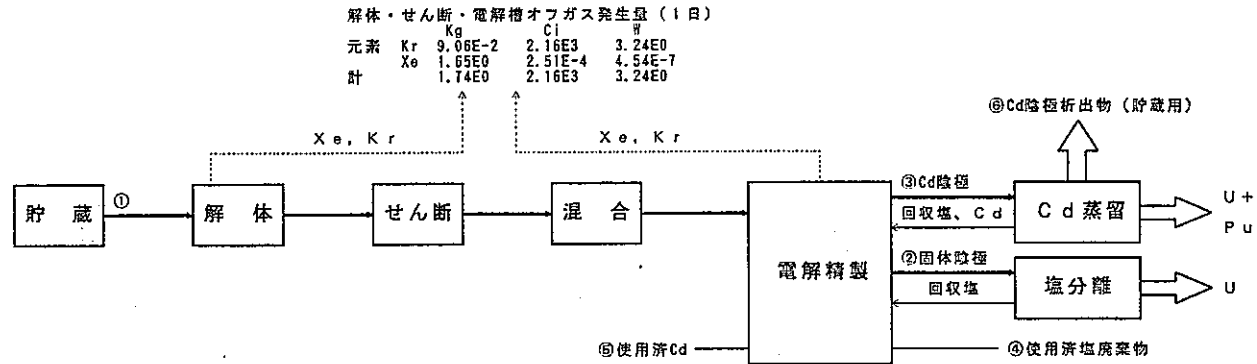


図 5.11.1 金属燃料リサイクルプラントブロックフロー



分類	①使用済燃料(1日)			②固体陰極電析量(1日)			③Cd陰極電析量(1日)			④塩相中のF.P発生量(1日)			⑤陽極Cd中残存元素(1日)			⑥Cd陰極電析量(1日)					
	元素	Kg	Ci	W	Kg	Ci	W	Kg	Ci	W	Kg	Ci	W	元素	Kg	Ci	W	Kg	Ci	W	
燃料成分	U	2.18E2	2.69E0	7.48E-3	9.58E1	8.48E-1	2.58E-3	1.21E2	1.83E0	4.86E-3	UC13	1.55E0	1.32E-2	3.67E-5	U	1.58E0	8.34E-4	1.51E-5	1.58E0	4.12E-2	3.66E05
	Pu	2.19E1	1.09E5	9.47E1				2.18E1	1.08E5	9.43E1	PuCl3	1.38E-1	4.79E2	4.17E-1	Pu	3.13E-4	4.95E-3	2.51E-5			
TRU	Zr	2.91E1	8.84E3	4.48E1	9.70E-3	2.09E0	1.06E-2	1.47E-2	5.26E0	2.66E-2				Zr	2.91E1	8.88E3	4.48E1				
	Np	6.43E-2	2.56E1	6.37E-2	3.77E-3	1.31E0	3.27E-3	8.08E-3	3.39E0	8.44E-3	NpCl3	7.59E-2	2.09E1	5.20E-2	Np	5.11E-5	4.24E-5	1.12E-6			
	Am	3.26E-1	7.97E2	2.30E1	1.67E-2	4.10E1	1.18E00	4.32E-2	1.06E2	3.04E0	AmCl3	3.82E-1	6.50E2	1.88E1	Am	7.23E-6	2.49E-2	8.21E-4			
	Cm	2.80E-2	1.10E4	4.01E2	1.43E-3	5.61E2	2.05E1	3.71E-3	1.45E3	5.31E1	CmCl3	3.27E-2	8.95E3	3.27E2	Cm	7.78E-9	2.21E-2	8.15E-4			
	Cs	1.39E0	6.61E4	3.36E2	2.25E-4	1.05E1	5.25E-2	5.46E-4	2.61E1	1.33E-1	CsCl	1.76E0	6.60E4	3.35E2	Cs	1.12E-6	3.39E-2	8.15E-5			
アルカリ	Rb	7.69E-2	4.73E-3	2.14E-5	1.26E-5	7.33E-7	3.31E-9	3.01E-5	1.89E-6	8.52E-9	RbCl	1.09E-1	4.73E-3	2.14E-5	Rb	7.41E-8	3.84E-10	1.72E-12			
	Na	4.71E0	4.04E-2	5.71E-4	9.70E-4	6.94E-6	9.81E-8	1.66E-3	1.55E-5	2.19E-7	NaCl	1.20E1	4.03E-2	5.71E-4	Na	2.57E-5	7.52E-8	1.06E-9			
アルカリ土類	Sr	1.76E-1	1.52E4	2.02E1	2.15E-5	1.85E0	2.46E-3	5.16E-5	4.46E0	5.95E-3	SrCl2	3.18E-1	1.52E4	2.02E1	Sr	1.26E-7	1.03E-2	1.26E-5			
	Ba	5.15E-1	3.51E4	1.38E2	8.33E-5	5.67E0	2.23E-2	2.02E-4	1.38E1	5.42E-2	BaCl2	7.81E-1	3.51E4	1.36E2	Ba	4.14E-7	2.75E-2	1.08E-4			
	Mg	3.32E-3	0.0	0.0	5.72E-7	0.0	0.0	1.27E-6	0.0	0.0	HgCl2	1.30E-2	0.0	0.0	Mg	6.26E-9	0.0	0.0			
	La	4.25E-1	1.36E-3	2.29E-5	1.03E-4	3.21E-7	5.39E-9	2.50E-4	8.12E-7	1.36E-8	LaCl3	7.50E-1	1.36E-3	2.28E-5	La	5.22E-7	6.37E-10	1.07E-11			
	Pr	3.98E-1	1.30E5	9.47E-2	9.69E-5	3.08E1	2.24E-1	2.34E-4	7.74E1	5.63E-1	PrCl3	6.98E-1	1.30E5	9.46E2	Pr	5.24E-7	7.62E-2	5.54E-4			
	Ce	8.06E-1	1.29E5	8.57E1	7.82E-4	1.22E2	8.11E-2	1.90E-3	3.07E2	2.04E-1	CeCl3	1.41E0	1.28E5	8.54E1	Ce	3.91E-6	3.02E-1	2.00E-4			
希土類	Nd	1.27E0	2.30E-5	5.54E-8	2.05E-4	3.60E-9	8.69E-12	4.97E-4	9.12E-9	2.20E-11	NdCl3	2.20E0	2.29E-5	5.54E-8	Nd	1.07E-6	6.91E-12	1.67E-14			
	Sm	3.68E-1	1.27E3	1.48E-1	8.91E-5	3.09E-1	3.63E-5	2.17E-4	7.44E-1	8.72E-5	SmCl3	6.28E-1	1.26E3	1.48E-1	Sm	4.29E-7	1.75E-3	2.06E-7			
	Pm	6.09E-2	5.66E4	2.17E1	1.48E-5	1.37E1	5.26E-3	3.59E-5	3.33E1	1.23E-2	PmCl3	1.06E-1	5.66E4	2.17E1	Pm	7.41E-8	6.87E-2	2.48E-5			
	Y	9.25E-2	1.71E4	8.90E1	2.27E-5	4.17E0	2.17E-2	5.43E-5	1.01E1	5.23E-2	YCl3	2.03E-1	1.71E4	8.89E1	Y	1.35E-7	2.15E-2	1.16E-4			
	Gd	3.92E-2	1.87E1	1.69E-2	9.42E-6	4.33E-3	3.92E-6	2.32E-5	1.12E-2	1.01E-5	GdCl3	6.57E-2	1.87E1	1.69E-2	Gd	3.76E-8	1.20E-6	1.09E-9			
	Eu	4.63E-2	7.03E3	2.26E1	1.12E-5	1.68E0	5.34E-3	2.73E-5	4.17E0	1.35E-2	EuCl3	7.86E-2	7.03E3	2.26E1	Eu	5.05E-8	5.57E-3	1.10E-5			
	Tb	2.88E-3	4.60E1	3.75E-1	6.92E-7	1.07E-2	8.70E-5	1.70E-6	2.76E-2	2.25E-4	TbCl3	4.80E-3	4.60E1	3.75E-1	Tb	2.87E-9	4.64E-6	3.78E-8			
貴金属	Nb	5.10E-4	2.00E4	9.56E1	1.21E-7	4.72E0	2.26E-2	3.03E-7	1.19E1	5.68E-2				Nb	5.10E-4	2.00E4	9.55E1				
	Rh	3.18E-1	1.70E5	1.62E3	7.72E-5	4.02E1	3.84E-1	1.87E-4	1.01E2	9.66E-1				Rh	3.17E-1	1.70E5	1.62E3				
	Pd	8.65E-1	8.45E-2	5.01E-6	2.08E-4	2.04E-5	1.21E-9	5.11E-4	4.99E-5	2.96E-9				Pd	8.64E-1	8.45E-2	5.01E-6				
	Ru	1.10E0	1.70E5	1.33E1	2.66E-4	4.03E1	3.15E-3	6.50E-4	1.01E2	7.94E-3				Ru	1.10E0	1.70E5	1.33E1				
	Ag	8.77E-2	1.52E3	2.52E1	2.11E-5	3.53E-1	5.85E-3	5.18E-5	9.11E-1	1.51E-2				Ag	8.76E-2	1.52E3	2.52E1				
	Tc	2.80E-1	4.91E0	2.46E-3	7.04E-5	1.19E-3	5.99E-7	1.70E-4	2.89E-3	1.45E-6				Tc	2.89E-1	4.91E0	2.46E-3				
	Mo	1.20E0	0.0	0.0	2.93E-4	0.0	0.0	7.04E-4	0.0	0.0				Mo	1.20E0	0.0	0.0				
	Cd	8.22E-2	5.70E1	1.04E-1	1.97E-5	1.36E-2	2.48E-5	4.86E-5	3.38E-2	6.17E-5				Cd	8.21E-2	5.70E1	1.04E-1				
	Sn	7.29E-2	3.91E2	1.07E0	1.77E-5	9.24E-2	2.52E-4	4.30E-5	2.33E-1	6.34E-4				Sn	7.29E-2	3.91E2	1.06E0				
	Se	1.47E-2	1.41E-1	3.52E-5	3.60E-6	3.44E-5	8.57E-9	8.66E-6	8.32E-5	2.07E-8				Se	1.47E-2	1.41E-1	3.52E-5				
	Te	2.89E-1	3.43E3	3.05E0							Te	2.29E-1	3.43E3	3.05E0							
ハロゲン	I	1.28E-1	1.64E-2	7.57E-6							I	1.28E-1	1.64E-2	7.57E-6							
オフガス	Kr	9.06E-2	2.16E3	3.24E0																	
	Xe	1.65E0	2.51E-4	4.54E-7																	
合計		2.86E2	9.55E5	3.99E3	9.58E1	8.82E2	2.25E1	1.43E2	1.11E5	1.53E2		2.36E1	4.70E5	2.01E3	計	3.31E1	3.71E5	1.80E3	3.15E0	4.13E2	3.66E0

図 5.11.2 金属燃料リサイクルラント物質収支



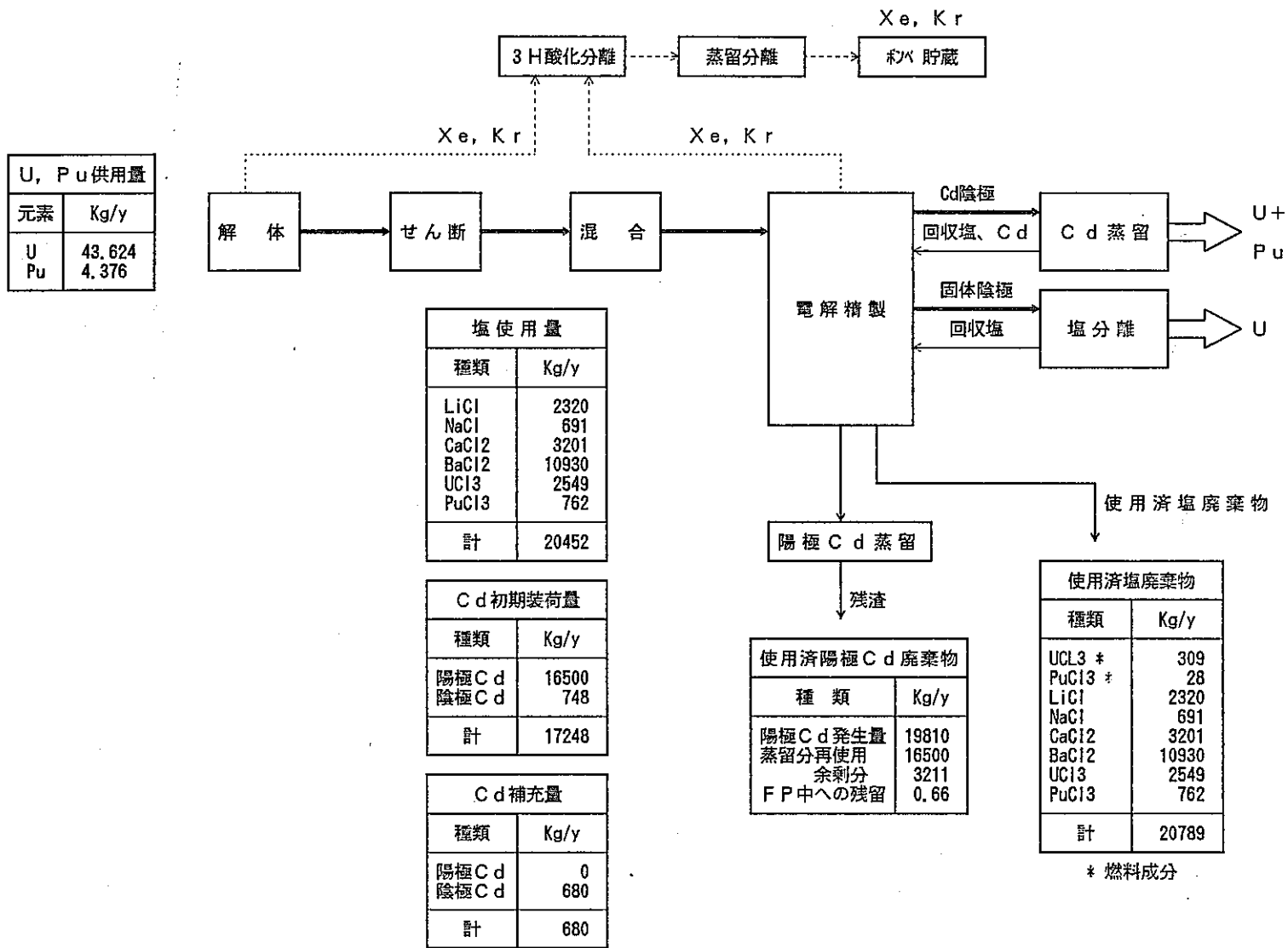


図 5.11.3 金属燃料リサイクルプラント物質収支

## 5.12 金属燃料廃棄物処理技術評価（塩廃棄物前処理技術評価）

## (1) 担当部署

東海事業所 環境技術開発部 環境技術第一開発室

## (2) 研究内容

金属燃料再処理の電解精製工程から発生するF、P等を含んだ塩廃棄物（LiCl、NaCl、KCl等）は、処分を行う上で現状ではガラス固化が最も有効な手段である。しかし、塩化物は、その熱力学的安定性のために直接ガラス固化することが難しい。そのため、ガラス固化のための前処理技術として、ホウ酸による酸化物化処理について、財）産業創造研究所に委託し研究評価を行った。

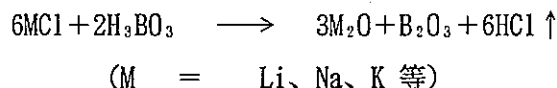
試験では、ホウ酸による塩化物の酸化物化処理法を確認するため、Li、Na、Kの塩化物およびF、P成分として、Cs、Sr、Ba、Ceの各塩化物について単独系と混合系の酸化物の反応率を評価するとともに、反応温度条件について確認した。

## (3) 評価結果

## ① 試験方法

## (a) ホウ酸による酸化物化試験

一般にアルカリ金属等の塩化物は、次式に示すように、ホウ酸と反応して酸化物になることが知られている。



本試験では、

- ・ 1 価の金属塩化物として、LiCl、NaCl、KCl
- ・ 2 価の金属塩化物として、BaCl<sub>2</sub>・2H<sub>2</sub>O、SrCl<sub>2</sub>
- ・ ランタニドおよびアクチニドの代表として、CeCl<sub>3</sub>・6H<sub>2</sub>O

を選択し、塩化物とホウ酸との混合割合（モル比）を変えて酸化物化試験を行い、反応率を測定することにより、酸化物化に最適な混合条件について評価・検討を行った。

## a) 方法

- ・ 塩化物とホウ酸との混合割合が1：1、1：2、1：3、に調製したサンプルを作る。
- ・ 約3g正確に秤取し、白金ルツボに入れ、電気炉にて加熱溶融した。

加熱条件：・室温より1時間で1000℃に昇温

- ・ 1時間保持
- ・ 白金ルツボを取り出し、水にて急冷

- ・冷却後、デシケータにて恒量になるまで乾燥し、重量を測定した。
- ・加熱前後の重量変化と上記の反応式から計算される理論減少量から反応率を求めた。

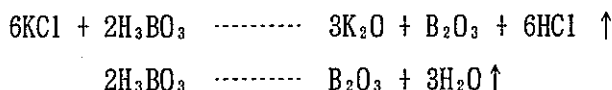
## (b) 酸化物化反応温度条件の確認試験

これまでの試験結果からわかるように、塩化物をホウ酸とそのモル比が1 : 2以上になるように混合し、1000℃において1時間反応させることにより、完全に酸化物にすることが可能であることが明らかになった。しかし、エネルギー効率等の面からは、なるべく低温で酸化物化できることが望まれる。

そこで、ここでは加熱温度、加熱時間をパラメータとして反応率を測定し、酸化物化の最適加熱処理条件について検討した。

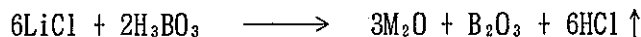
## a) 方法

- ・KCl とホウ酸との混合割合が1 : 1あるいは、1 : 2に調整したサンプルを用意した。
- ・約3 g正確に秤取し、白金ルツボに入れ、電気炉にて加熱溶融した。  
保持温度：800、900、1000℃  
保持時間：1時間
- ・白金ルツボを取り出し、水にて急冷した。
- ・冷却後、デシケータにて恒量になるまで乾燥し、重量を測定した。
- ・加熱前後の重量変化と以下に示す反応式から見積もられる理論減少量から反応率を求めた。



## (c) 理論減少量の求め方

例を以下に示す。



$$\text{LiCl} : a \text{ g} \quad \text{M.W} = 42.39$$

$$\text{H}_3\text{BO}_3 : b \text{ g} \quad \text{M.W} = 61.83$$

$$\text{HCl 分} : (a/42.39) \times 34.46 \text{ g}$$

$$\text{未反応H}_3\text{BO} : b - 61.83 \times (a/42.39)/3$$

$$\text{H}_2\text{O 分} : (\text{未反応H}_3\text{BO}_3)/61.83 \times (3/2) \times 18.0$$

$$\text{理論減少量} = \text{HCl分} + \text{H}_2\text{O分}$$

- (d) 熱溶解後の生成物の同定  
生成物は、以下の分析法により同定した。  
結晶質：XRD測定  
非晶質：IR スペクトル（拡散反射法）

② 試験条件

- (a) ホウ酸による酸化物化試験
- a) LiCl とH<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> との混合系
  - b) NaCl とH<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> との混合系
  - c) KCl とH<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> との混合系
  - d) (LiCl+KCl) とH<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> との混合系
  - e) (LiCl+NaCl+KCl) とH<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> との混合系
  - f) (LiCl+KCl+SrCl<sub>2</sub>) とH<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> との混合系
  - g) (LiCl+KCl+ BaCl<sub>2</sub>・2H<sub>2</sub>O) とH<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> との混合系
  - h) (LiCl+KCl+ CeCl<sub>3</sub>・6H<sub>2</sub>O) とH<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> との混合系
- それぞれについて1000°C、1 hrで反応させた。

(b) 酸化物化反応温度条件の確認試験の条件

- a) KCl:H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> の1 : 1系
  - b) KCl:H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> の1 : 2系
- それぞれについて800 ~1000°C、1 hrで反応させた。

③ ホウ酸による酸化物化試験結果

(a) LiCl、NaCl、KCl とH<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> との混合系

H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> が塩化物より過剰の条件で、酸化物化される。塩化物とホウ酸の混合比が1 : 3で100%酸化物化され、非晶質の M<sub>2</sub>O・2B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (M=Li、Na、K)系ガラスが形成される。また、LiCl および(LiCl+KCl)とH<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> の1 : 3混合系の生成物の組成分析を行った結果、反応率からの予想値と一致した。

(b) CsClとH<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> との混合系

1 : 1、1 : 2、1 : 3のすべての混合系において、反応率は見掛上100%を超えた。生成物の組成分析から、その理由としてCs<sub>2</sub>Oの蒸発が考えられる。

(c) (LiCl+KCl+SrCl<sub>2</sub>)とH<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> との混合系

H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> が塩化物より過剰の条件において酸化物化されるが、塩化物中のSrCl<sub>2</sub> の割合が多いとSr<sub>2</sub>B<sub>5</sub>O<sub>9</sub>Cl と M<sub>2</sub>O・2B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 系ガラスとの混合物が生成される。塩化物中のSrCl<sub>2</sub> の割合が10%位以下であれば完全に酸化物化される。

(d) (LiCl+KCl+BaCl<sub>2</sub>・2H<sub>2</sub>O) とH<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> との混合系

H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> が塩化物より過剰の条件で酸化物化される。生成物は(M<sub>2</sub>O+MO)・2B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (M= Li、K、Ba) 系ガラスと考えられる。

(e) (LiCl+KCl+CeCl<sub>3</sub>・6H<sub>2</sub>O) とH<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> との混合系

H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> が塩化物より過剰の条件でより容易に酸化物化される。生成物はCeO<sub>2</sub>と M<sub>2</sub>O・2B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (M=Li、K)系ガラスの混合物と考えられる。

④ 酸化物化反応温度条件の確認試験結果

KCl とH<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> との混合系について試験を行った。その結果、混合比が1:2の条件では、800℃においても完全に酸化物になることがわかった。

(4) 結論

それぞれの評価結果から判断し、ホウ酸による酸化物化処理は、塩廃棄物のガラス固化にいたる前処理技術として有効かつ最適な技術と考えられる。

(5) 研究課題

これまでの評価結果により、本プロセスの「実現性」、「安全性」、「経済性」に関して、十分な適用性を見通しを得ることができたと考える。

今後、さらに燃料サイクルにおける「経済性」等について評価精度を高める要求があるとすればその時点で必要と予想される検討課題を以下に示す。

① 物質収支の詳細検討

揮発性元素の反応率評価の精度向上を図るため、定量分析により物質収支の詳細を検討する。

② 放射性揮発元素の処理方法の検討

セシウム、ヨウ素等の揮発性元素の処理方法について検討し、開発課題を抽出する。

③ ガラス化条件の検討

多成分系でのガラス化領域について検討し、開発課題を抽出する。

④ 固化体の安定性

ガラス固化体の耐浸出性等について検討・評価する。

⑤ 装置材料の検討

高温での塩化水素に対する耐食性材料について検討し、材料開発の課題を抽出する。

⑥ 処理システム全体の検討

ホウ酸との反応により酸化物化した後、ガラス固化するという一連のシステムについて概念設計を行うとともに、開発課題を抽出する。

### 5.13 溶融塩電解精製基礎試験概要

#### (1) 担当部署

人形峠事業所 環境資源開発部 転換技術開発課

#### (2) 研究内容

試験は、まず基礎試験装置の設計及び製作を行い、更に同装置の性能確認、周辺技術の確立を行ったのち、乾式再処理における種々元素の挙動を正確に予測するため、各種基礎データを収集することとした。

具体的には、電解精製の温度500℃付近における還元電位、電流効率、カドミウム及び共晶塩中のウラン、イットリウムの溶解状況とその活量係数等を取得することとした。また、動燃独自の技術開発として、窒化物燃料への溶融塩電解精製法の適用について理論の検討及び概念の構築を行い、窒化イットリウムの電解試験を試みて電解精製状況の確認、ボルタンメトリーによる還元電位の測定を行った。(表5.13.1～5.13.2)

この他、溶融塩系での電極反応の理論的解析を行うための基礎的研究を京都大学に委託し、回転リング・ディスク電極法を中心にポテンシャルスイープ法等の測定法を組み合わせた測定・試験を実施した。

#### (3) 評価結果

##### ① 溶融塩電解基礎試験装置の性能評価

- (a) 装置は、試験温度(500℃)で安定運転することができる。
- (b) グローブボックス内雰囲気は、水分： $< 0.53\text{ppm}$  酸素： $< 0.01\text{ppm}$ を保持可能である。
- (c) 電解セル材質について、低炭素鋼製は、
  - ・混合塩中の微量水分により腐蝕をうける。
  - ・絶縁性が悪く、電流漏れを生じる。
 等の事象が観察されたため、高純度アルミナを用いたところ、良好な結果が得られた。しかし、高純度アルミナ製電解セルは、カドミウムを充填した場合、昇降温の際、割れを生じる欠点がある。
- (d) 本装置での1バッチあたりのウラン電析量は、約7gであった。この量はウラン結晶の成長状態に規制されるものであり、今後、陰極形状の改良により増量できる可能性がある。しかしながら、根本的な解決策としては、電解セルの大型化が必要である。

##### ② 試薬及び器具の前処理

- (a) 電解セル、固体陰極、攪拌羽根等の低炭素鋼製器具の表面酸化物除去は、希硝酸による洗浄が効果的である。
- (b) 金属カドミウムの表面酸化物除去は、希塩酸による洗浄が効果的である。

- (c) 金属ウランの表面酸化物除去は、希硝酸による洗浄が効果的である。
- (d) KCl-LiCl混合塩の脱水方法として、真空乾燥を試みたが、完全な脱水は不可能であった。現在、塩化水素等による脱水精製を実施中である。
- ③ 熔融金属カドミウム及び共晶塩のサンプリング  
 パイレックスガラス細管による、吸引サンプリング法が効果的である。
- ④ 熔融金属カドミウムへの金属ウランの溶解速度  
 500℃において、熔融カドミウムへの金属ウランの溶解速度は、極めて緩慢であり飽和濃度まで溶解するには、30時間以上を要する。
- ⑤ 三塩化ウラン生成反応  
 塩化カドミウムと熔融金属カドミウム中のウランとの反応による、三塩化ウランの生成反応（約145g-U）は、500℃において約5時間で終了する。
- ⑥ ウランの還元電位  
 ウランの還元電位は、500℃において、基準電極（Ag<sup>+</sup>/Ag）に対し、-1.39~-1.45 V（文献値：-1.496 V）であることを確認した。
- ⑦ ウラン電解精製における回収率  
 ウラン電解精製における通電量に対する回収率は、約70%であった。今後、回収率向上のために電流の漏洩防止、精製後のウラン回収方法についての検討が必要である。
- ⑧ カドミウム中のウランの活量係数  
 (a) 温度:450~550℃、ウラン濃度:約0.2~1.1 mol% の範囲で測定を行ったところ、カドミウム中のウランの活量係数は6.2~10.1 [電中研:88 (500℃)]であった。  
 (b) カドミウム中のウランの活量係数は、ウラン濃度が高くなるにつれて、ほぼ直線的に高くなる。また、温度に対しても正の相関がある。
- ⑨ カドミウム中のイットリウムの活量係数  
 カドミウム中のイットリウムの飽和濃度付近における活量係数は、450℃において約 $5 \times 10^{-7}$ 、500℃において約 $1 \times 10^{-6}$  [電中研:  $1 \times 10^{-7}$  (450℃, 0.2mol%Y)]であった。今後は、ウランと同様に温度と濃度をパラメータとした測定を行う必要がある。
- ⑩ LiCl-KCl共晶塩中の塩化イットリウムの活量係数  
 下記のセルを用いてYCl<sub>3</sub>濃度と温度をパラメーターとして共晶塩中の塩化イットリウムの活量係数測定試験を実施中である。
- $$Y \mid YCl_3, (in LiCl-KCl) \parallel AgCl (in LiCl-KCl) \mid Ag$$
- ⑪ 窒化物燃料への熔融塩電解精製法の適用の検討  
 窒化物の電解精製の特長把握の観点から、図-5.13.1に示す装置により、窒化イット

リウム及び窒化イットリウムの対照として金属イットリウムによる電解精製試験を試みた。

- (a) 試験の結果、基準電極 ( $\text{Ag}^+ / \text{Ag}$ ) に対する還元電位は、窒化イットリウムでは  $-2.05 \sim -2.20 \text{ V}$  に、金属イットリウムでは  $-2.04 \sim -2.20 \text{ V}$  付近に観察された。  
(文献値： $450 \text{ }^\circ\text{C}$  の標準電極電位、 $-2.11 \text{ V}$ )

また、陰極-陽極間の電位差については、窒化イットリウムの場合  $0.11 \sim 0.58$ 、金属イットリウムの場合、 $0.07 \sim 0.16$  の還元電位が観察された。この電位差のバラツキは、オキシ塩化物等の副反応、熔融塩の拡散層抵抗等が考えられるため、電極間距離を変えた試験を必要とする。

- (b) 窒化イットリウム及び金属イットリウムの電解精製において、陰極上に析出物を得ることができた。窒化イットリウムの電解精製における析出物は微量であり、陰極表面のほか、攪拌羽根等にも固体の析出物が観察された。陰極析出物組成については、現在分析中である。

なお、試験の詳細については、『熔融塩電解精製基礎試験報告書V-窒化物電解試験-』を取りまとめ中である。

⑫ 委託研究 (京都大学, 『電気化学プロセスに関する基礎的研究』 PNC ZJ1604 93-02)

回転リング・ディスク電極法を中心にポテンシャルスイープ法等の測定法を組み合わせ、タングステン酸イオンの挙動、ヨウ化物イオンの挙動、イットリウムイオンの還元挙動について、測定解析を実施し、各イオンの挙動を把握するとともに熔融塩系において定量的で信頼性の高いデータを得るための回転電極法の有用性及び測定系での電極材料及び絶縁材料等について以下のような知見を得た。

- (a) 回転リング電極法は、タングステン酸イオン等の多原子価イオンの還元経路の究明に有効であり、ウラン、ジルコニウム等の挙動解析に応用ができる。
- (b) 回転リング電極法は、ヨウ素等アニオンの挙動解析に有効であり、熔融塩中のオキシアニオンの挙動解析に応用できる。
- (c) ウラン等の多原子価イオン及び酸化反応の測定の際の電極材料は、耐腐食性が高い酸化反応の測定の際、電極の溶解ピークを排除できる等の理由から、グラッシーカーボンが有効である。



⑬ まとめ

これまでの試験検討により種々基礎データを得るとともに、測定解析技術の向上を図って来た。その成果は以下の報告書にとりまとめた。

PNC PN 6430 91-001 『熔融塩電解精製基礎試験装置試運転結果報告書』

PNC PN 6430 91-039 『熔融塩電解精製基礎試験報告書－ウラン電解精製試験－』

PNC PN 6430 91-64 『熔融塩電解精製基礎試験報告書Ⅲ－ガドミウム中ウランの活量測定試験－』

PNC PN 6430 92-003 『熔融塩電解精製基礎試験報告書Ⅳ－ガドミウム中ウランの活量測定試験Ⅱ－』

PNC ZN 8410 92-209 『FBR 新型燃料評価研究 第2 ステップ報告書』

⑭ 研究課題

(a) 窒化物の電解精製

データのとりまとめ及び再現性試験等必要な試験を実施する。

(b) 混合塩に蓄積するFPの群分離における挙動解析（模擬試料利用）

現在得られている熱力学的データをもとに、各種元素の挙動を予測するとともに、模擬試料により試験を実施する。

(c) 熔融塩の脱水精製法の確立。

(d) 理論的解析（京大委託）

等であるが、試験を行っていくにあたって必要な装置の改良（スケールアップ、サンプリング機構、電気化学的測定系）を順次行っていく必要がある。

また、試験と併行して、

(e) 計量管理に関する基礎データとして、各試験における物質収支の把握

(f) 熔融塩及び熔融カドミウム中の元素分析の精度向上化

等をはかっていく必要がある。

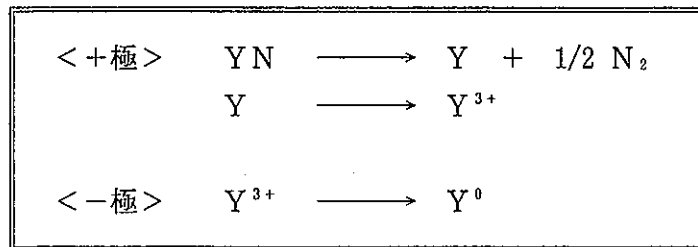
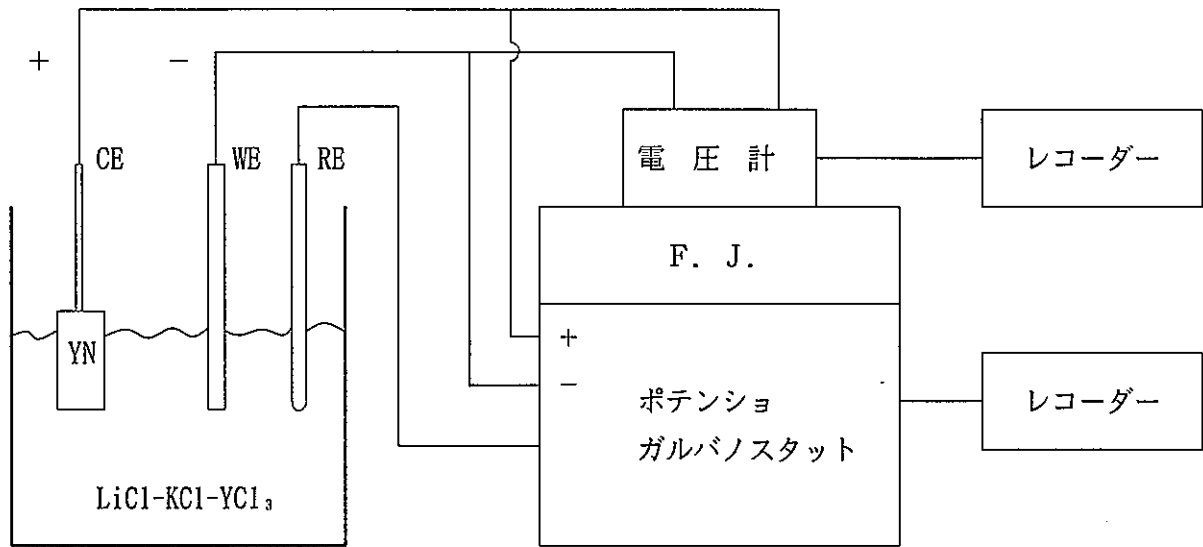


図 5.13.1 YN 電解精製試験装置概要

表 5.13.1 熔融塩電解精製基礎試験実施内容概要(1)

試験・検討項目	① 装置の性能評価及び周辺技術の確立 (カドミウムへのウラン溶解試験)	② ウラン電析確認試験	③ カドミウム中のウランの活量係数測定 (ウラン濃淡電池のEMF測定)
目的	製作した試験装置の性能を確認するとともに、器具及び試薬の処理方法、サンプリング方法等周辺技術についてのデータを収集する。	熔融金属カドミウムへの金属ウラン溶解から固体陰極上への金属ウラン回収までの一連の試験を行い、その過程で観察される、諸現象についてのデータを収集する。	電気化学的データの理論的解析、及び熔融塩電解精製による再処理後の混合塩中に蓄積した元素の群分離プロセスの理論的解析の基礎データの一つとして、カドミウム中のウランの活量係数を測定する。
方法	製作した基礎試験装置の試運転として、熔融した金属カドミウムに金属ウランを溶解する試験を行う。 (試験温度：500℃)	各種試薬を用い、カドミウムへのウラン溶解、三塩化ウランの生成のプロセスを経て、ウランの電析試験を行う。また、ウラン電析に先立ち、ポテンショスタットを用いたボルタンメトリーにより、ウランの還元電位測定を試みる。	金属ウランを溶解した熔融金属カドミウム及び金属ウランを極としてウランの濃淡電池を形成し、その起電力(EMF)よりカドミウム中のウランの活量係数を算出する。
取得データ	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. 試験装置の性能評価 <ul style="list-style-type: none"> <li>・装置の昇温、温度保持機能</li> <li>・電解セル材質の耐食性</li> <li>・雰囲気調整機能</li> </ul> </li> <li>2. 器具及び試薬前処理 <ul style="list-style-type: none"> <li>・電解セル表面の酸化物除去法</li> <li>・金属カドミウム及び金属ウランの表面酸化物除去法</li> <li>・KCl-LiCl混合塩の脱水法</li> </ul> </li> <li>3. 熔融カドミウム及び混合塩のサンプリング方法</li> <li>4. カドミウム及び混合塩中の不純物分析法</li> <li>5. カドミウムへのウラン溶解速度</li> </ol>	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. カドミウムへのウラン溶解速度</li> <li>2. 三塩化ウラン生成状況</li> <li>3. ウランの還元電位測定法</li> <li>4. 熔融塩におけるボルタンメトリー測定法</li> <li>5. ウランの還元電位</li> <li>6. ウラン電解精製における、電流効率 混合塩組成の経時変化</li> </ol>	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. 起電力測定方法</li> <li>2. カドミウム中のウランの活量係数</li> <li>3. 活量係数とウラン濃度との相関関係</li> <li>4. 活量係数と温度との相関関係</li> <li>5. 混合塩組成の経時変化</li> </ol>

表 5.13.2 溶融塩電解精製基礎試験実施内容概要(2)

試験・検討項目	④ カドミウム中のイットリウムの活量係数測定 (イットリウム濃淡電池のEMF測定)	⑤ 共晶塩中の塩化イットリウムの活量係数測定	⑥ 溶融塩電解精製法の窒化物燃料への適用検討
目的	電気化学的データの理論的解析, 及び溶融塩電解精製による再処理後の混合塩中に蓄積した元素の群分離プロセスの理論的解析の基礎データの一つとして, カドミウム中のイットリウムの活量係数を測定する。	電気化学的データの理論的解析, 及び溶融塩電解精製による再処理後の混合塩中に蓄積した元素の群分離プロセスの理論的解析の基礎データの一つとして, 共晶塩中の塩化イットリウムの活量係数を測定する。	燃料組成の多様化への対応を目的とし, 基礎データ取得の前段階として, 窒化物燃料への溶融塩電解精製法の適用の可能性について検討を行う。
方法	金属イットリウムを溶解した溶融金属カドミウム及び金属イットリウムを極としてイットリウムの濃淡電池を構成し, その起電力(EMF)よりカドミウム中のイットリウムの活量係数を算出する。	銀-塩化銀標準電極及び金属イットリウムを極として電池を構成し, 電解質(LiCl-KCl)中の塩化イットリウム濃度及び温度をパラメーターとして, その起電力(EMF)を測定することにより, 共晶塩中の塩化イットリウムの活量係数を算出する。	溶融塩電解精製システムの概念を構築し, そのシステムについて, 熱力学的データ等をもとにシミュレーションを行う。窒化イットリウムを用いて窒化物電解精製試験を実施する。
取得データ	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. カドミウムへのイットリウム溶解速度</li> <li>2. カドミウムへのイットリウムの飽和溶解量</li> <li>3. 三塩化イットリウム生成状況</li> <li>4. 起電力測定方法</li> <li>5. カドミウム中のイットリウムの活量係数</li> <li>6. 活量係数とイットリウム濃度との相関関係</li> <li>7. 活量係数と温度との相関関係</li> <li>8. 混合塩組成の経時変化</li> <li>9. イットリウムの酸化還元電位</li> </ol>	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. 起電力測定方法</li> <li>2. 共晶塩中の塩化イットリウムの活量係数</li> <li>3. 活量係数と塩化イットリウム濃度との相関関係</li> <li>4. 活量係数と温度との相関関係</li> <li>5. イットリウムの酸化還元電位</li> </ol>	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. 溶融塩電解精製システムの概念</li> <li>2. ウラン及びイットリウムの析出電位 (理論)</li> <li>3. 窒化物電解精製状況の確認</li> <li>4. イットリウムの析出電位 (実験値)</li> </ol>

## 6. 総合評価

### 6.1 経済性

#### 6.1.1 原子炉建設費

5章に示したように本報告書で取り上げたMOX燃料炉心、窒化物燃料炉心および金属燃料炉心はATWS事象時の受動的炉停止能力という観点からほぼ同一の判断条件のもとに炉心燃料仕様および炉心形状を決定したものである。よって、受動的安全性を獲得するための炉心燃料仕様、炉心形状が原子炉構造等を通じて原子炉建設費に与える影響度を比較することにより新型燃料とMOX燃料、あるいは新型燃料間の経済性を同一の尺度で比較評価することが出来る。

炉心設計の建設コストへの影響は、概ねその炉心サイズの原子炉容器サイズへの影響によって決定される。本検討では第2ステップ中間報告で設定した従来型の100万kWe級MOX燃料炉心を基準として、今回新に設定した受動的安全性を強化したMOX燃料炉心、窒化物燃料炉心および金属燃料炉心のそれぞれについて原子炉容器サイズを決定し、原子炉建設費への影響を概略評価した。

#### (1) 原子炉容器サイズの考え方

本検討における原子炉容器サイズの考え方は、第2ステップ中間報告書と同様である。

##### (a) 炉心槽径

プラント工学室における設計検討例（平成3年度60万kWeプラント設計研究）に合わせて、最外周中性子遮蔽体から炉心槽までの距離は出力規模に依存せず一定であり、77cmとした。

##### (b) 炉心槽と炉容器間の距離

上部流入方式の原子炉構造では、炉心槽炉容器間距離はホットレグ配管直径で決定されている。取付け構造等の必要距離により60万kWeプラントではホットレグ配管径120cmφ+65cm(185cm)となっている。100万kWeプラントでは、4ループ構成が考えられるので、配管内ナトリウム流速を同等とするためには、ホットレグ配管径は134cmφとなる。従って、上記の取付け構造を考慮し、数値を丸めて炉心槽炉容器間距離を100万kWeプラントでは2mと設定した。

##### (c) 炉容器軸長

- 1) 定格時ナトリウム液面～炉容器フランジ…………… 2 m
- 2) 定格時ナトリウム液面～炉心集合体頂部  
(集合体長さ+1.7m(燃料交換時シュリンク分+α))
- 3) 集合体頂部～鏡板部  
(集合体長さ-エントランスノズル+1.8m)

4) 鏡板部 (20%皿型) ..... 炉容器径×0.26

上記の内、集合体長さにより変化するのは2)と3)、炉容器径により変化するのは4)である。

表6.1.1に、上記の考え方により求めた原子炉構造寸法を各炉心について比較して示した。

(2) 原子炉建設費比較

表6.1.2に、建設コストの内訳を従来型MOX燃料炉心を基準に比較して示した。建設コストの内訳は第2ステップ中間報告書と同様とし、炉心形状、集合体寸法の変更によって影響すると考えられる項目のみを見直した。同表に示されるように、受動的安全性を強化する場合、MOX燃料炉心は炉心径が増加することにより原子炉容器径へのインパクトが大きく、窒化物燃料炉心、金属燃料炉心に比較すると、2%程度建設コストが増加するという傾向を示している。一方、従来型MOX燃料炉心との比較では、1%程度の増加に止まっているが、これは、上部ブランケットを削除し、また、炉心高さを低減して集合体長さを短くしたことにより、炉心径の増加によるマイナスを相殺した結果である。本検討の結果は、受動的安全性を追求する場合の建設コストへの影響があまり大きいものとはならないことも同時に示唆している。

表6.1.1. 原子炉構造への炉心サイズの影響

	100万kWe 高増殖炉心 (従来型炉心)	100万kWe MOX燃料 受動的安全炉心	100万kWe MN燃料 受動的安全炉心	100万kWe Metal燃料 受動的安全炉心
集合体全長	4.3m	3.95m	3.45m	3.60m
集合体配列ピッチ	16.07cm	17.84cm	15.64cm	←
炉心集合体数	410体	402体	444体	←
制御棒本数	31本	36本	24本	←
炉心等価直径	3.54m	4.31m	3.69m	←
径ブランケット数	162体	270体	235体	←
径遮蔽体数	208体	241体	222体	←
全炉心構成要素数	811体	949体	925体	←
全炉心等価直径	4.81m	5.77m	4.99m	←
炉心槽直径	5.58m	6.54m	5.76m	←
炉容器直径	9.58m	10.54m	9.76m	←
炉容器軸長	16.0m	13.56m	12.36m	12.66m

表6.1.2 受動的安全性強化プラントの建設費内訳(100万kWeプラント)

	MOX燃料 従来型炉心	MOX燃料 受動的安全炉心	MN燃料 受動的安全炉心	Metal燃料 受動的安全炉心	備考
[1]土地	2.8	2.8	2.8	2.8	
[2]建物	9.9	10.15	9.95	9.95	炉容器断面積に比例
1. 原子炉建屋	1.2	1.45	1.25	1.25	
2. 原子炉補助建屋	3.6	3.6	3.6	3.6	
3. 燃料取扱建屋	0.6	0.6	0.6	0.6	
4. サービス建屋	0.5	0.5	0.5	0.5	
5. タービン建屋	1.3	1.3	1.3	1.3	
6. その他	2.7	2.7	2.7	2.7	
[3]構築物	7.6	7.6	7.6	7.6	
[4]原子炉	60.7	61.71	59.69	59.86	炉容器径×高さに比例 炉容器断面積に比例 炉容器断面積に比例 制御棒及び遮蔽体総重量に比例
1. 原子炉設備	6.2	7.29	5.39	5.52	
・ 原子炉容器	1.2	1.12	0.94	0.97	
・ 遮蔽プラグ	0.7	0.85	0.73	0.73	
・ 炉容器内構築物	0.7	0.85	0.73	0.73	
・ 炉心構成要素	2.8	3.67	2.19	2.29	
・ その他	0.8	0.8	0.8	0.8	
2. 1次主冷却系設備	11.6	11.6	11.6	11.6	
3. 1次主冷却系補助設備	5.5	5.5	5.5	5.5	
4. 2次主冷却系設備	7.8	7.8	7.8	7.8	
5. 2次主冷却系補助設備	4.3	4.3	4.3	4.3	
6. 補助炉心冷却系設備	2.5	2.5	2.5	2.5	
7. 原子炉補助設備	5.4	5.4	5.4	5.4	
8. 燃料取扱設備	1.0	0.92	0.80	0.84	
9. 燃料貯蔵設備	1.8	1.8	1.8	1.8	
10. 放射性廃棄物 処理設備	2.0	2.0	2.0	2.0	
11. 換気空調設備	4.1	4.1	4.1	4.1	
12. 諸設備	7.9	7.9	7.9	7.9	
13. ライナー設備	0.7	0.7	0.7	0.7	
[5]機械装置	19.0	19.0	19.0	19.0	集容器軸長に比例
1. 蒸気タービン	14.7	14.7	14.7	14.7	
2. 電気設備	4.3	4.3	4.3	4.3	
合計	100.0	101.26	99.04	99.21	



## 6.1.2 サイクル単価

### (1) 成形加工単価

窒化物燃料の成形加工工程は酸化物燃料の加工に対して、窒化物への転換工程が余分に追加されるため、成形加工単価のうち建設費および運転費は若干高くなるが、一方で燃料1 kg当たりの部材の重量が約7割と軽くなるため部材費が安くなり、成形加工単価トータルとして酸化物燃料に比べ9割程度となる。しかし、窒化物燃料においては窒素として $^{15}\text{N}$ を濃縮したものをを用いるためその原料費が付加されることになる。 $^{15}\text{N}$ の濃縮費は第1ステップの評価(330 円/g $^{15}\text{N}$ )に比べ1桁近く高めの評価となったが、この値を目標加工単価に上乗せした場合には、酸化物燃料の加工単価より5~7割も高い値となる。

金属燃料では射出成形法の採用による大幅な工程簡素化が実現された場合、プラントの建設費、運転費の削減が可能である。さらに、部材費についても燃料1 kg当たりの部材の重量が約7割と軽くなるため、トータルとして酸化物燃料に比べ半分程度の値となる。

加工単価の相対的な比較を表6.1.3に示す。

### (2) 再処理単価

窒化物燃料の再処理では99%の $^{15}\text{N}$ 濃縮燃料を用いた場合、 $^{14}\text{C}$ の捕集、固化を行うための特別な機器およびプロセスをほとんど考慮する必要がなく、また、その他のプロセスが酸化物燃料の再処理と同じであるため、再処理単価は酸化物燃料とほとんど同じになる。

金属燃料では乾式再処理法の採用により酸化物燃料の溶媒抽出法に比べ工程が簡素化されるため、再処理単価は酸化物燃料のおよそ半分近くまで安くなる可能性を有している。しかし、現時点の乾式再処理プラントの設計は設計研究レベルであり、まだ不確定な部分を多く含んでいる。さらに、廃棄物処理工程やメンテナンス設備についてもまだ十分に見積もれない部分があることを考慮すると、さらにコストアップすることも考えられる。

再処理単価の相対的な比較を表6.1.3に示す。

### (3) 廃棄物処分単価

廃棄物処分単価の相対的な比較を表6.1.3に示す。窒化物燃料および金属燃料の廃棄物処分単価は酸化物燃料と変わらないとした。

### 6.1.3 発電コスト

#### (1) 評価内容

今回の経済性評価は受動的安全炉心（100 万 kW e）を対象とした。評価は酸化物燃料を基準とし、窒化物燃料および金属燃料の発電コストの相対的な比較を行った。

#### (2) 評価の前提条件

発電コスト評価の主眼は、FBRにおける酸化物燃料と窒化物燃料および金属燃料の経済性の相対比較に置いた。ここで基準となるFBR酸化物燃料（受動的安全炉心）については、将来のLWRと対抗できる経済性を有していることを前提とした。したがって、本評価では窒化物燃料および金属燃料を開発する上で直面するR&Dが全てうまくいくと仮定した場合、将来、窒化物燃料および金属燃料が持ち得ると予想される経済性を評価するものである。

窒化物燃料および金属燃料の将来の炉建設費や各サイクル単価の設定にあたっては、まず現状の設計思想や技術レベルで原子炉およびサイクル施設の設計を行い（全てのR&Dが解決されたと仮定して）、その結果を酸化物燃料と比較する。そして、この対酸化物燃料の比率が将来に渡り変わらないと仮定した。当然、将来においては新型燃料開発のためのR&Dの中には現在の技術で予想したコストよりも安く装置や施設ができる可能性もあり、また、逆に予想以上に技術的困難にあたりコスト高になる可能性もある。しかし、今回の評価においてはこの不確定性については考慮しない。（窒化物燃料に関するR&Dは酸化物燃料のR&Dとそれ程変わらないと考えられるため、不確定性は小さいと思われるが、金属燃料については比較的不確定性は大きいと思われる。）また、窒化物燃料および金属燃料の開発にあたって要したR&D費についても全く考慮していない。

評価の前提条件を以下に示す。

- ① 評価の基準となるFBR酸化物燃料（受動的安全炉心）の各単価の目標値は、現状のLWR比で炉の建設費が1.1倍、加工費が3倍、再処理費が2.5倍と仮定した。これは100 万 kW e、15万MWd/tのFBRについての将来の目標値である。（SN 142089-004「FBR燃料サイクルの課題と展望」を参照のこと）
- ② 加工単価、再処理単価、廃棄物処分単価の各サイクル単価および炉の建設費の相対的な比較を表6.1.3と表6.1.4にまとめる。
- ③ 各燃料型の炉特性データを表6.1.5に示す。
- ④ リード・ラグタイムを図6.1.1に示す。（FBRの炉外サイクル時間は3年とした）
- ⑤ ウランクレジットは考慮しない。
- ⑥ 廃炉費は考慮しない。

- ⑦ R & D費は考慮しない。
- ⑧ 加工および再処理でのロス率は1%とする。
- ⑨ 現在価値換算率は5%とした。

### (3) 評価結果

発電コストの評価結果を表6.1.6に、燃料サイクル費の内訳を表6.1.7に示す。窒化物燃料についてみると、発電コストでは酸化物燃料に比べ5%程度安くなった。これは燃料サイクル費が約10%も安くなったためである。これは増殖性の確保および制御棒設計の成立性の確保という前提の基で同じ安全性を追求した場合、燃焼度が高く取れる点および重金属密度が高い点から、窒化物燃料の炉内滞在期間が酸化物燃料よりも長く取ることができ、したがって、年間の燃料取扱い量が小さいことに起因している。<sup>15</sup>N原料費の影響で1.5~1.7倍にも高くなった加工単価を考慮しても燃料サイクル費(円/kWh)を計算すると結果的に安くなる。ちなみに窒化物燃料の全炉心のインベントリーは酸化物燃料とほぼ同程度となっている。

一方、資本費は炉建設費の低下により、酸化物燃料に比べわずかながら減少している。運転費はほとんど変わらない。

金属燃料についてみると、発電コストで酸化物燃料より18%安くなり、窒化物燃料よりもさらに12~14%安くなった。安くなった原因は窒化物燃料の場合と同様燃料サイクル費の減少であるが、年間の燃料取扱い量が小さいことに加え、さらに各サイクル単価が対酸化物燃料比で安くなったためである。金属燃料の全炉心のインベントリーも酸化物燃料とほぼ同程度となっている。

資本費は窒化物燃料の場合と同様、炉建設費の低下により、酸化物燃料に比べわずかながら減少している。運転費はほとんど変わらない。

### (4) まとめ

受動的安全性を追求した酸化物燃料、窒化物燃料および金属燃料についての相対的な経済性評価の結果をまとめる。

- ① 資本費(円/kWh)においては、ほとんど変わらないといえる。
- ② 運転費(円/kWh)はどの燃料についてもほぼ同じである。
- ③ 燃料サイクル費(円/kWh)においては、窒化物燃料で約10%、金属燃料で55%程度酸化物燃料より低い。これは主に年間の燃料取扱い量が小さいことおよび金属燃料についてはサイクル単価が安いことに起因している。
- ④ 発電コストでは、窒化物で5%、金属で18%程度低い値である。

- ⑤ また、今回推定した $^{15}\text{N}$ の原料費では発電コスト全体に与える影響は6～8%程度と窒化物燃料の経済性を悪くする大きな原因の一つであるため、今後、 $^{15}\text{N}$ の原料費のより正確な評価が重要である。
  
- ⑥ 窒化物燃料と金属燃料を比較すると、前者の方が今のところ経済的に不利となる可能性はあるという試算値が得られたが、この結果は第2ステップで経済性評価の精度向上が図られた窒化物燃料の試算値と第1ステップの評価をそのまま用いた金属燃料の試算値との比較であり、金属燃料の経済性評価精度向上が要求される。

表6.1.3 各サイクル単価(円/kgHM)の比較 \*1 \*2

燃料型 サイクル単価	成型加工費 (対酸化物比)	再処理費 (対酸化物比)	廃棄物処分費 (対酸化物比)
酸化物燃料 (受動的安全炉心)	100	100	100
窒化物燃料 (受動的安全炉心)	151~172 (90 *3)	100	100
金属燃料 (受動的安全炉心)	54	45	100

\*1) 酸化物燃料を100とした相対値。なお、各サイクル単価についてはある程度不確定要素を含んでいるため、おおよその傾向を示すものである。

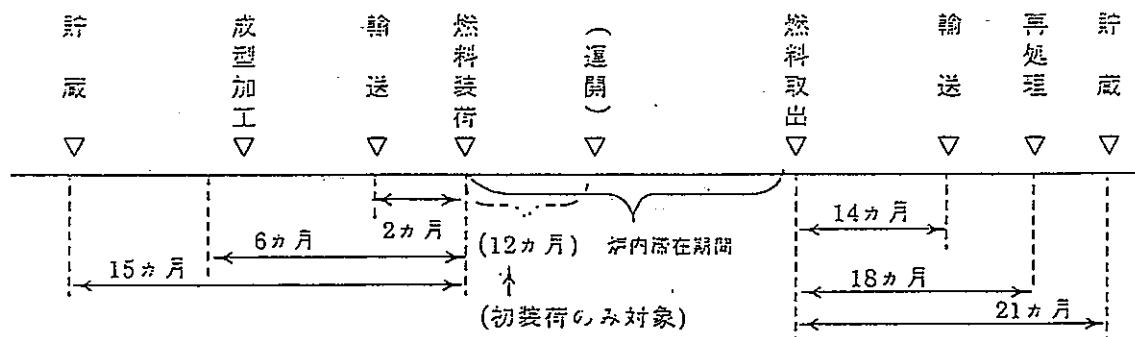
\*2) <sup>15</sup>N原料費を含む。

\*3) <sup>15</sup>N原料費を含まない場合。

表6.1.4 炉の建設単価(円/kWe)の比較 \*1

燃料型	炉の建設単価 (対酸化物比)
酸化物燃料(受動的安全炉心)	100
窒化物燃料(受動的安全炉心)	98
金属燃料(受動的安全炉心)	98

\*1) 酸化物燃料を100とした相対値。なお、各燃料の建設費についてはある程度不確定要素を含んでいるため、おおよその傾向を示すものである。



<FBR炉外時間:3年>

図6.1.1 リード・ラグタイム

表6.1.5 FBR炉特性データ一覧表 (100万kW炉心)

項目	炉型	酸化物燃料FBR <sup>2)</sup> (従来型炉心) (参考)	酸化物燃料FBR (受動的な安全炉心)	窒化物燃料FBR (受動的な安全炉心)	金属燃料FBR (受動的な安全炉心)
電気出力 (MWe)		1,000	1,000	1,000	1,000
熱効率 (%)		—	38.46	38.46	33.46
比出力 (MW/D)		—	—	—	—
燃焼度 (MW/D)		86,000	85,000	125,000	125,000
燃料炉内滞在期間 (年)		(12ヶ月運転×3バッチ)	3.0 (12ヶ月運転×3バッチ)	5.0 (12ヶ月運転×5バッチ)	5.0 (12ヶ月運転×5バッチ)
増殖比/増換比		1.24	1.05	1.19	1.21
バッチ数		(炉心/径ブラ) 3/4	3	5	5
原子炉耐用年数 (年)		—	—	—	—
設備利用率 (%)		80.0 (12ヶ月運転、3ヶ月定検)	80.0 (12ヶ月運転、3ヶ月定検)	80.0 (12ヶ月運転、3ヶ月定検)	80.0 (12ヶ月運転、3ヶ月定検)
初期炉心取扱遅れ (年)		—	—	—	—
初装荷燃料		炉心 軸ブラ 径ブラ	炉心 軸ブラ 径ブラ	炉心 軸ブラ 径ブラ	炉心 軸ブラ 径ブラ
重金属 (t)		32.678 24.392 36.728	32.438 16.060 49.118	31.075 17.756 40.671	31.111 17.778 36.064
ウラン (t)		26.4 24.392 36.728	25.304 16.060 49.118	25.795 17.756 40.671	25.956 17.778 36.064
プルトニウム (t)		6.278 0.0 0.0	7.134 0.0 0.0	5.281 0.0 0.0	5.154 0.0 0.0
分裂性プルトニウム (t)		4.082 0.0 0.0	4.637 0.0 0.0	3.433 0.0 0.0	3.350 0.0 0.0
ウラン濃縮度 (%)		0.3 0.3 0.3	0.20 0.20 0.20	0.20 0.20 0.20	0.20 0.20 0.20
平衡装荷燃料 <sup>1)</sup>		炉心 軸ブラ 径ブラ	炉心 軸ブラ 径ブラ	炉心 軸ブラ 径ブラ	炉心 軸ブラ 径ブラ
重金属 (Uサイクル)		10.893 8.130 9.182	10.813 5.353 12.280	6.215 3.551 10.168	6.222 3.556 9.016
ウラン (Uサイクル)		8.800 8.130 9.182	8.435 5.353 12.280	5.159 3.551 10.168	5.191 3.556 9.016
プルトニウム (Uサイクル)		2.093 0.0 0.0	2.378 0.0 0.0	1.056 0.0 0.0	1.031 0.0 0.0
分裂性プルトニウム (Uサイクル)		1.360 0.0 0.0	1.546 0.0 0.0	0.607 0.0 0.0	0.670 0.0 0.0
ウラン濃縮度 (%)		0.30 0.31 0.31	0.20 0.21 0.20	0.19 0.20 0.20	0.19 0.20 0.20
初期取出燃料 <sup>1)</sup>		炉心 軸ブラ 径ブラ	炉心 軸ブラ 径ブラ	炉心 軸ブラ 径ブラ	炉心 軸ブラ 径ブラ
重金属 (Uサイクル)		10.550 8.123 9.178	10.479 5.349 12.277	6.025 3.548 10.165	6.036 3.552 9.013
ウラン (Uサイクル)		8.508 8.047 9.132	8.197 5.303 12.235	4.992 3.514 10.127	5.039 3.517 8.969
プルトニウム (Uサイクル)		2.042 0.077 0.047	2.282 0.046 0.042	1.032 0.034 0.038	0.998 0.035 0.044
分裂性プルトニウム (Uサイクル)		1.310 0.075 0.045	1.453 0.046 0.042	0.666 0.033 0.037	0.645 0.034 0.044
ウラン濃縮度 (%)		0.24 0.27 0.29	0.17 0.19 0.20	0.16 0.17 0.20	0.16 0.17 0.19
平衡取出燃料 <sup>1)</sup>		炉心 軸ブラ 径ブラ	炉心 軸ブラ 径ブラ	炉心 軸ブラ 径ブラ	炉心 軸ブラ 径ブラ
重金属 (Uサイクル)		9.898 8.090 9.155	10.159 5.343 12.274	5.492 3.524 10.150	5.520 3.524 8.994
ウラン (Uサイクル)		7.945 7.865 8.977	7.959 5.250 12.189	4.516 3.393 10.005	4.597 3.392 8.824
プルトニウム (Uサイクル)		1.952 0.223 0.177	2.200 0.093 0.085	0.976 0.131 0.145	0.923 0.132 0.170
分裂性プルトニウム (Uサイクル)		1.227 0.213 0.172	1.376 0.090 0.084	0.619 0.125 0.140	0.591 0.127 0.165
ウラン濃縮度 (%)		0.17 0.23 0.26	0.14 0.17 0.19	0.09 0.15 0.18	0.09 0.15 0.17
廃止措置時取出燃料		炉心 軸ブラ 径ブラ	炉心 軸ブラ 径ブラ	炉心 軸ブラ 径ブラ	炉心 軸ブラ 径ブラ
重金属 (t)		30.660 24.317 36.665	30.466 16.024 49.087	28.326 17.652 40.630	28.437 17.658 36.012
ウラン (t)		24.668 23.857 36.203	23.858 15.741 48.701	23.349 17.139 40.261	23.697 17.140 35.574
プルトニウム (t)		5.990 0.462 0.460	6.608 0.283 0.386	4.977 0.512 0.369	4.740 0.518 0.438
分裂性プルトニウム (t)		3.803 0.445 0.448	4.137 0.275 0.379	3.174 0.490 0.359	3.047 0.499 0.428
ウラン濃縮度 (%)		0.20 0.25 0.27	0.14 0.17 0.18	0.11 0.16 0.18	0.11 0.16 0.18
備考		1) 1サイクル(15ヶ月)当りの数値 2) 60万kW高増殖炉心から外挿	1) 1サイクル(15ヶ月)当りの数値	1) 1サイクル(15ヶ月)当りの数値	1) 1サイクル(15ヶ月)当りの数値

表6.1.6 発電コスト(円/kWh)の比較 \*1 (対酸化物比)

燃料型	資本費	運転費	燃料サイクル費	その他費用	発電コスト (30年平均)
酸化物燃料 (受動的安全炉心)	46	20	30	4	100
窒化物燃料 *2 (受動的安全炉心)	45	20	25~27 (19 *3)	4	94~96 (88 *3)
金属燃料 (受動的安全炉心)	45	20	13	4	82

\*1) 酸化物燃料を100とした相対値。なお、各発電コストは不確定要素を含んでいるため、おおよその傾向を示すものである。

\*2)  $^{15}\text{N}$ 原料費を含む。

\*3)  $^{15}\text{N}$ 原料費を含まない場合。

表6.1.7 燃料サイクル費(円/kWh)の内訳 \*1 (対酸化物比)

燃料型	Pu 原料費	加工費	再処理 費	廃棄物 処分費	Puクレ ジット	その他 費用	燃料費 (30年平均)
酸化物燃料 (受動的安全炉心)	22	40	43	3	-16	8	100
窒化物燃料 *2 (受動的安全炉心)	11	48~55 (26 *3)	28	2	-9	6	86~93 (64 *3)
金属燃料 (受動的安全炉心)	11	18	17	2	-9	6	45

\*1) 酸化物燃料を100とした相対値。なお、各燃料サイクル費は不確定要素を含んでいるため、おおよその傾向を示すものである。

\*2)  $^{15}\text{N}$ 原料費を含む。

\*3)  $^{15}\text{N}$ 原料費を含まない場合。

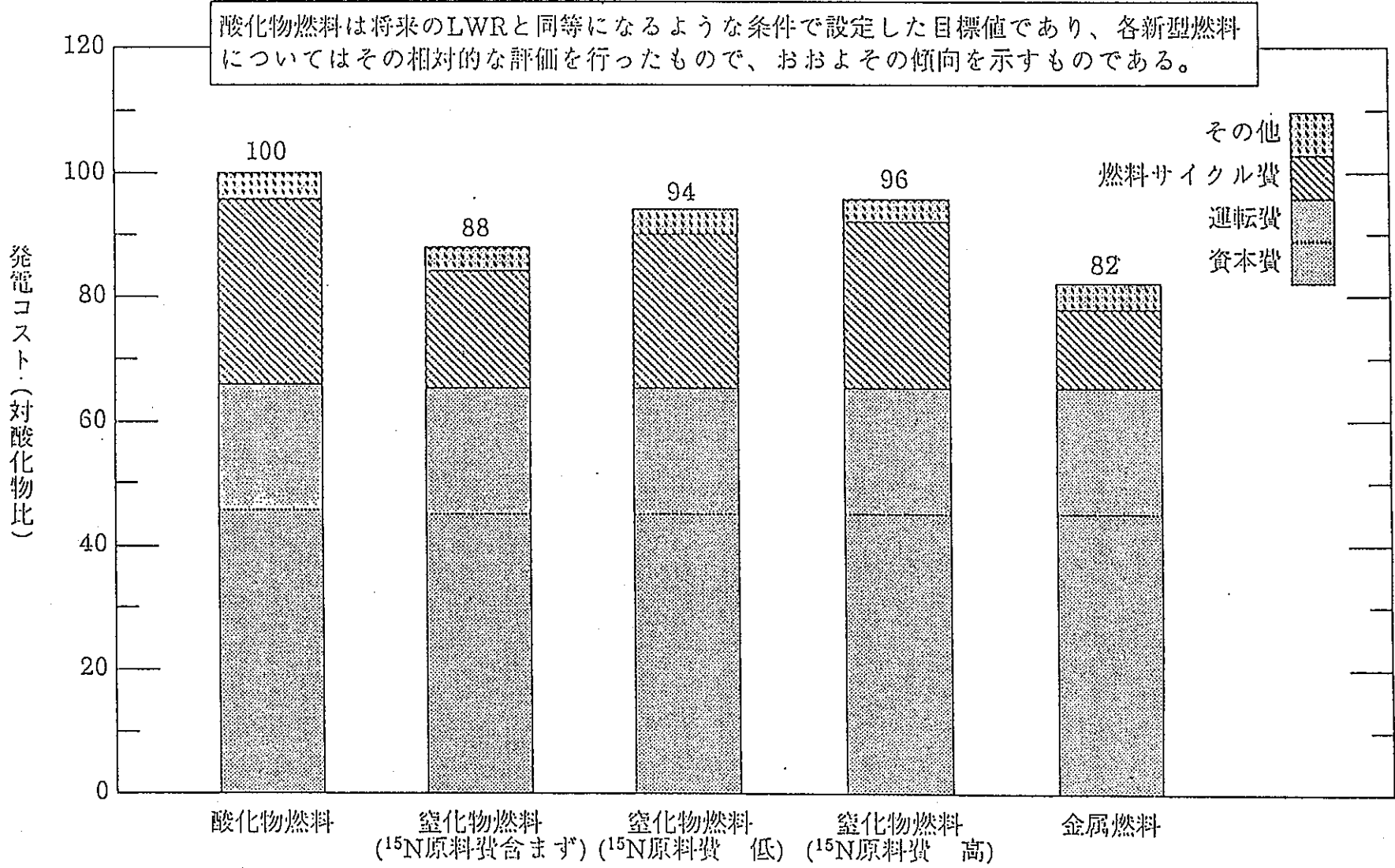


図6.1.2 発電コストの比較 (100万kWe)



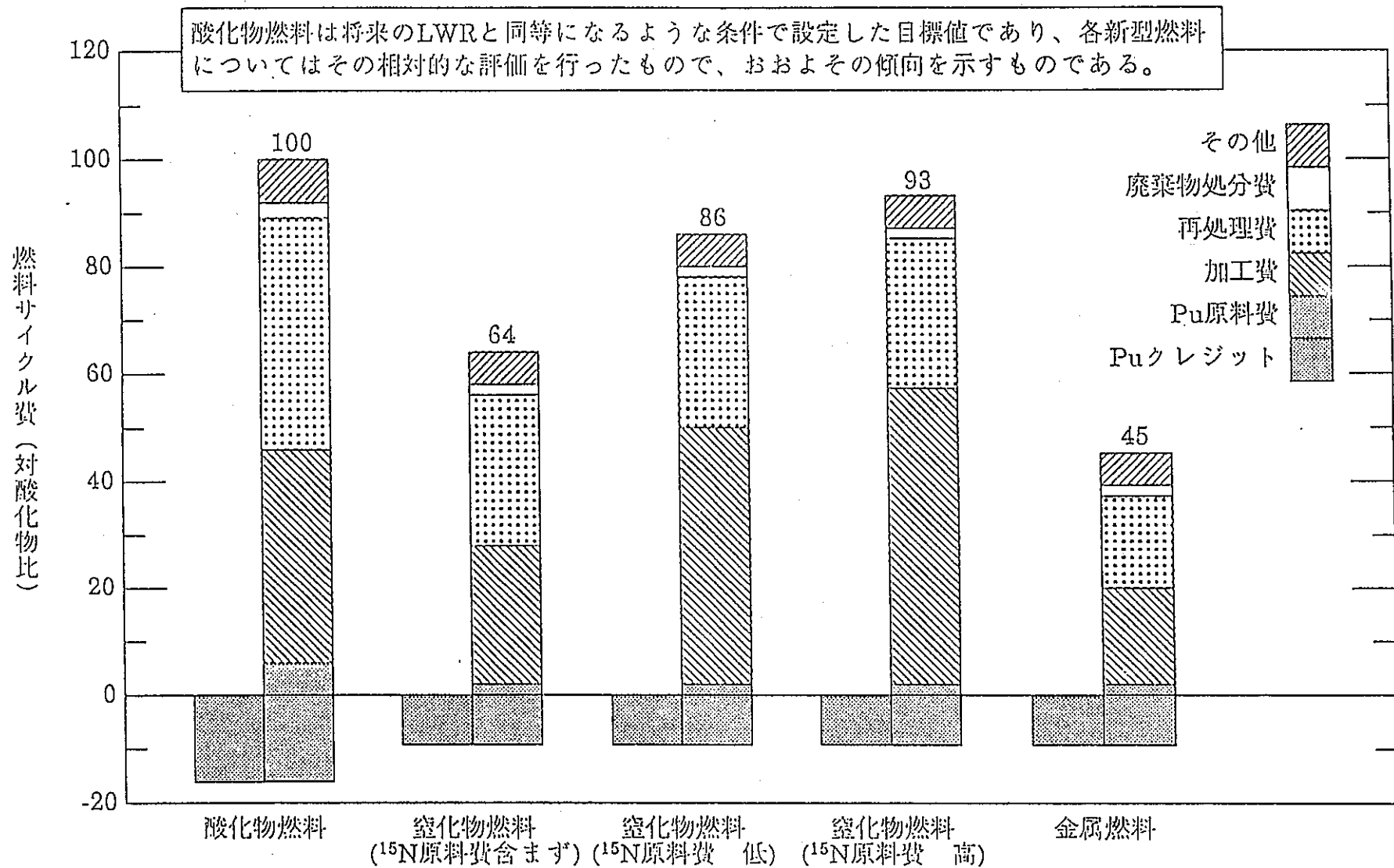


図6.1.3 燃料サイクル費の比較 (100万kWe)

## 6.2 安全性

### 6.2.1 炉心安全性

#### (1) 新型燃料の受動的安全性の比較結果

第5章に詳しく述べたように、第2ステップの検討においては、主にATWS事象時における受動的炉停止能力に着目した新型燃料炉心の比較検討を実施した。ナトリウムプレナムを有する扁平炉心概念での受動的炉停止能力の比較検討では、特にULOF事象時の炉心挙動に着目し、炉心の径方向膨張等を考慮したベストエスティメイト評価を実施した。その結果、MOX燃料炉心でも炉心燃料仕様、炉心形状を工夫することにより窒化物燃料炉心、金属燃料炉心と同様に受動的炉停止能力を得ることが可能であることが示された。一方、窒化物燃料及び金属燃料と同等の受動的安全性を得るための炉心燃料集合体仕様、炉心形状の経済性へのインパクトはかなり大きく、燃料サイクルコスト、原子炉建設コストを通じて発電コストをかなり引き上げる結果となることが分かった。

窒化物燃料と金属燃料については、ほぼ同等のULOF事象に対する受動的炉停止能力を有する一方、UTOP事象に対しては、高融点をもつ窒化物燃料の有利さが示されている。

#### (2) 大型高速炉における自己制御性の抜本的強化の可能性

受動的安全性を追求した炉心概念としては、これまでにPRISM、SAFRがあり、その設計においてはULOF事象に対する受動的炉停止能力が強調されている。一方、そのATWS時の炉心安全評価においてはベストエスティメイトの考え方がとられており、炉心湾曲による大きな負の反応度効果を考慮することにより受動的炉停止が達成されるとしている。この炉心湾曲あるいは炉心径方向膨張は炉心拘束方式に密接に関連するものであり、我が国における耐震性を重視した拘束棒方式のもとで、この効果に期待することについては必ずしも楽観できない面がある。更に、炉心が大型化する場合の集合体本数の増加、熱的境界条件の複雑化（制御棒チャンネルの影響、流量配分条件の複雑化）に合わせて、燃料集合体の照射変形による複雑な挙動を考慮する必要がある。炉心設計者の立場からは、この不確かさを避けるために、炉心湾曲あるいは炉心径方向膨張を考慮しなくとも受動的炉停止が達成できる炉心反応度特性を得ることが一つの目標となる。また、このアプローチは高速炉の安全論理を簡明にするものであり、これが達成されれば、高速炉実用化へ向けての一つのブレイクスルーを与える可能性がある。

窒化物燃料のナトリウムとの両立性、高熱伝導度、高融点という特性は、上記の高度な受動的安全性へのポテンシャルを秘めており、ナトリウムボンド型燃料として採用することにより、そのポテンシャルを最大限に引き出すことが可能となる。第5章に示し

たように、ナトリウムボンド型窒化物燃料では、ULOF事象、UTOP事象の双方に対してドップラー係数を高めることが有効であり、これまでの冷却材温度係数低減に偏った受動的安全性強化策に新たな自由度を与えている。僅かにスペクトルをシフトさせてドップラー効果を強調し、同時に冷却材温度係数を低減する方法は、シンプルな炉心構成、また、炉心サイズの影響が小さいという点から工学的に非常に有力な概念であり、大型高速炉における自己制御性の抜本的強化を達成できる可能性がある。

原子炉出力をスケールアップすることは、実用化段階に向けてFBRの経済性を高める有力な方策であり、ナトリウムボンド型窒化物燃料を用いることにより、原子炉出力のスケールアップによって安全性のレベルが変化しない高速炉炉心概念が成立する見通しが得られた。

### (3) 今後の検討課題

炉心安全性に対する第2ステップでの検討結果に基づき、今後の窒化物燃料炉心の設計研究では、ナトリウムボンド型燃料と水素化ジルコニウム等の組合せによる弱スペクトルシフト炉心を重点的に検討し、炉心と原子炉構造および冷却系システムを総合的に検討することにより、自己制御性を抜本的に強化した大型高速炉プラントの成立性を定量的に検討する必要がある。

この炉心の成立性の最終的判断には、水素化ジルコニウムを初めとする水素化物減速材における水素の熱的安定性に関するデータが重要であり、文献調査、実験的検証を通じて早期にその安定性を確認する必要がある。また、ここで挙げたナトリウムボンド型窒化物燃料炉心における燃料仕様および照射条件は従来の炉心検討におけるものとはかなり異なるものであり、①中線出力（～400W/cm）での、②ナトリウムボンド・高密度ペレットに対する照射データを中心として、燃料スエリング率、FPガス放出率を確認する必要がある。

## 6.2.2 燃料サイクル安全性

### (1) 窒化物燃料

#### ① 燃料製造

5.5節で報告したように、UN粉末を空气中に6時間放置しても重量増加率は0.1wt%以下と酸化反応はほとんど進まず、また空气中で加熱しても急激な重量増加開始温度は300～350℃であり、急激な酸化反応が進むのは300℃以上と考えられる。したがって、UNと(U, Pu)Nの酸化反応速度に大差はないと考えられるから、窒化物燃料製造工程で窒化物粉末が空気にさらされるようなトラブルが発生したとしても、わずかに酸化は進むものの、火災が発生することはないであろう。

また、Na ボンド型燃料の場合は、Na 取扱いにおいて水分との接触は厳禁である。Na 取扱い作業は不活性雰囲気内で行われるべきであるが、空気にさらされた場合はNa の酸化は急速に進むとともに空気中の水分と反応して発火するおそれがあり、安全上重要な問題となる。

## ② 再処理

### (イ) $^{14}\text{C}$ について

窒化物燃料を使用する場合の大きな問題として大量の $^{14}\text{C}$ 発生が挙げられる。環境問題が重要視される近年、 $^{14}\text{C}$ は窒化物燃料の導入において解決すべき大切な問題である。従って、窒化物燃料の評価は、炉側の安全性（これは明白である）のみを持って行うのではなく、サイクル全体の安全性を勘案して行う事が重要である。具体的には、再処理施設における $^{14}\text{C}$ の捕集、処分の為の安定化処理、そして $^{14}\text{C}$ の処分に関する技術開発が必要である。

### (ロ) 直接溶解法

硝酸アンモニウムは溶解時に生成するアンモニウムが起源となって生成するものであり、混入には注意が必要であるから前述の溶解試験によって生成量を確認し、安全への影響を評価する事が必要である。

また、Na をボンド材として使用する場合、溶解工程において硝酸との急激な反応が考えられることから、溶解槽への装荷の前に水蒸気などによって酸化物に変える不活性化処理を必要とする。

### (ハ) 酸化溶解法

酸化処理によって、不溶解残渣の量及び不溶解性Puの増加が考えられ、その場合残渣中のPu濃度の増加は、残渣及び高レベル廃液の臨界制限上の取扱いを難しくする。しかし、酸化処理に伴う不溶解性Puの発生については十分な実験がされておらず、評価するためにはデータが不十分である。

## (2) 金属燃料

金属燃料乾式再処理の安全性に関する問題は、高温プロセスに起因するものが多い。即ち、材料腐食、金属火災である。特に材料腐食に関しては重要であり、熔融塩環境に於ける反応容器材料の耐食性に関する情報が必要である。金属火災は、不活性雰囲気を保つ事で防ぐ事が出来る。

一方、乾式法の利点としては中性子減速系を使用しない事による臨界条件の緩和が期待できる。これは、1バッチ当たりの取扱い量を増加し、プロセス単価を引き下げる効果を持っている。

### 6.3 実現性

#### 6.3.1 原子炉実現性

##### (1) 受動的安全炉心の実現性

前節までの検討では、実用炉へ向けて受動的安全性を抜本的に強化するという観点から、窒化物燃料が非常に有力であることが示された。第1ステップおよび第2ステップ中間報告までに指摘された窒化物燃料の問題点は、高温状態での、窒素の解離反応であった。しかしながら、文献調査によると窒化ウランからの窒素の解離反応は可逆的であり、2200Kでの平衡窒素分圧が  $1 \times 10^{-5}$  atmと非常に低いこと、また、炉心設計研究に示されたように、通常時の線出力が400W/cm程度の場合は、これを全く考慮する必要がないことが明らかになった。米国のロスアラモス研究所での照射経験でも、化学量論組成 (UN<sub>1.00</sub>) を維持した高密度ペレットにより非常に安定した照射特性を示すことが報告されており、現状までの情報では、定常状態における窒化物燃料の照射物性について特に危惧される事実は認められない。

窒化物燃料の製造における<sup>15</sup>Nの使用は、<sup>14</sup>Nの(n, p)反応による<sup>14</sup>Cの生成を避ける観点からであるが、窒素の濃縮コストの動向によっては、炭酸ガスの形態で発生する<sup>14</sup>Cの炭酸塩等への固定化という再処理側の対応が中心となる可能性もある。炉心燃焼特性については<sup>15</sup>Nと<sup>14</sup>Nの差が大きく、これまでの検討では、燃焼反応度、増殖性の観点から<sup>14</sup>Nとする場合の不利益が指摘されてきている。しかし、第5章に示したように、炉心の受動的安全性を同一とする場合には、<sup>15</sup>Nでは、より冷却材温度係数の低減あるいはドップラー係数の増加を図る必要が生じ、結局、最終的な炉心の増殖性に大きな差は生じないことが分かった。つまり、受動的安全性の確保という条件のもとでは、<sup>14</sup>Nと<sup>15</sup>Nの差は殆どないといってよく、濃縮コストと、再処理における<sup>14</sup>Cの固定化の、どちらがより経済的かという観点から選定すべきであることが分かった。

##### (2) 受動的安全炉心における窒化物燃料の実現性

###### ① はじめに

窒化物燃料を使用した受動的安全炉心の定常運転時最大線出力は450W/cmと低く、燃料最高温度はHeボンドでは1000℃以下、Naボンドの場合はさらに低い。FPガス放出率を10%と想定し、プレナム長さの短縮を図っている。以下では、照射挙動の観点から受動的安全炉心における窒化物燃料の実現性を評価した。

###### ② FCMI挙動

窒化物燃料は燃料温度が低く、燃料のクリープダウンによるFCMI応力の緩和が小さい。このため、FCMI挙動が照射挙動上の重要な評価対象となっている。特に受動的安全炉心は、燃料のクリープダウンによるFCMI応力の緩和が期待できない

燃料温度条件にあり、高線出力の照射条件よりもFCMI挙動が厳しくなると考えられる。Naボンドの場合、ギャップ幅は大きい、クラッキングとリロケーションが発生するとスエリングの吸収効果は消失し、FCMIの発生は避けられない。しかしシュラウド方式を採用することで、FCMIの発生を防止できる可能性はある。

10at%を超える燃焼度の照射試験例はなく、高燃焼度域までのFCMI挙動は明らかでない。実現性評価には、スエリングの温度依存性に着目し、NaボンドおよびHeボンド型燃料のFCMI挙動についての照射試験に基づく評価が必要である。

### ③ 高温分解挙動

窒化物燃料では高温分解 ( $2PuN(s) \rightarrow 2Pu(g) + N_2(g)$ ) による問題発生を防止するため、燃料最高温度を1727°C以下にすべきと提唱されている。ただし、過去の照射実績を調査した結果からは、高温分解が問題となった照射試験例は見当たらない。

窒化物燃料の平衡窒素分圧は、1727°Cでは $1.1 \times 10^{-6}$  atm、1127°Cでは $3 \times 10^{-11}$  atmである。受動的安全炉心の定常状態における燃料温度条件では分解反応は進行せず、NaボンドおよびHeボンドのいずれを採用しても高温分解は問題にならないと考えられる。

「常陽」照射に当たっては、試験用要素として許認可を取得している。特殊燃料要素として本格的な照射試験を行うためには、高温分解に関するデータの蓄積が必要である。

### ④ FPガス放出挙動

EBR-IIにおける照射試験結果の中で、Naボンドを採用した場合に7.3at%の燃焼度でもFPガス放出率が2%未満であったとの報告例もあり、Heボンドの場合に想定される10~50%に対して非常に低い。しかし、現状では照射試験データの蓄積が不十分であり、10at%を超える高燃焼度域までのFPガス放出挙動は明らかでない。実現性評価には、FPガス放出率の温度依存性に着目し、NaボンドおよびHeボンド型燃料のFPガス放出挙動についての照射試験に基づく評価が必要である。

### ⑤ まとめ

実現性評価には、照射試験に基づく高燃焼度までのFCMI挙動およびFPガス放出挙動の評価が必要である。

受動的安全炉心では、定常状態における高温分解は問題にならないと考えられる。

## 6.3.2 燃料サイクル実現性

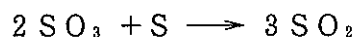
## (1) 窒化物燃料

## ① 燃料製造

$^{15}\text{N}$ 濃縮コストを考えなければ、炉心の扁平化より窒化物燃料の部材費が安くなるため、窒化物燃料加工コストはMOX燃料のその約9割となる。しかし、 $^{15}\text{N}$ 濃縮コストはそれに匹敵するものである。(以上5.7節参照)第1ステップ評価では、 $^{15}\text{N}$ 濃縮コストを330円/g $^{15}\text{N}$ としたが、これは化学交換に必要な原料費と副生成物の処理費を含んでいない。それに対し今回のコスト評価ではそれら化学薬品コストも評価に含め、評価のベースとなったNO-HNO<sub>3</sub>交換法で使用する化学薬品はHNO<sub>3</sub>とSO<sub>2</sub>、副生成物はH<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>である。評価結果のうちSO<sub>2</sub>コストの占める割合は極めて高いものとなった。一方、これらの使用量及び生成量を化学薬品産業界の生産量と比較(5.7節参照)することにより、HNO<sub>3</sub>の供給は可能であり、また生成したH<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>を転売したとしても産業界に対して打撃を与えることもないと考えられる。しかし、SO<sub>2</sub>はその生産キャパシティーを増大させなければならない。

つまり、コスト面及び化学薬品生産キャパシティー両面から、 $^{15}\text{N}$ の大規模濃縮実現のための課題はSO<sub>2</sub>ということになる。この課題を解決する可能性を有する手法として3つあげられる。その1つとして生成したH<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>を利用してSO<sub>2</sub>をリサイクル使用することが考えられる。H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>をSO<sub>2</sub>に転換することは技術的に可能\*であり、 $^{15}\text{N}$ 濃縮プラントに隣接してSO<sub>2</sub>リサイクルプラントを建設し、両プラントをSO<sub>2</sub>とH<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>の流れるパイプラインでつなぐ必要がある。

\*2つの手法があり、1つはSO<sub>3</sub>の溶けた発煙H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>を利用するものであり、以下の反応に基づく。



発煙H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>は、副生成物H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>を加熱することによって得られる。

もう1つの手法は、副生成物H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>を870～1260℃で加熱し、直接SO<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>O、O<sub>2</sub>に分解することである。

2つめは、H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>生産工場との取引きを行うことである。つまり、一般のH<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>生産工場では原料のSO<sub>2</sub>をH<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>に酸化する工程のコストが大きいので、SO<sub>2</sub>を消費してH<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>を生産するプラントとみなすこともできる $^{15}\text{N}$ 濃縮プラントがSO<sub>2</sub>の酸化工程を引き受けるという取引きを成立させることである。この場合、 $^{15}\text{N}$ 濃縮プラントをH<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>生産プラントは隣接させた方がコスト低減には効果的である。最後の3つめは、 $^{15}\text{N}$ 使用量を極力減らすために、再処理工程で $^{15}\text{N}$ を高い割合で含有するN<sub>2</sub>ガスを回収することである。回収N<sub>2</sub>ガスの $^{15}\text{N}$ 含有率が5%まで低

下したとしても、再濃縮コストは天然N<sub>2</sub>出発の場合の1/7であり、SO<sub>2</sub>使用量も1/10である。

以上の評価より、窒化物燃料加工コストを増大させる要因である<sup>15</sup>N濃縮コストをNO-HNO<sub>3</sub>交換法で低減させることは可能であり、窒化物燃料の実現性に負の評価を与えることにはつながらない。今後は、そのコスト低減の定量的評価とNO-HNO<sub>3</sub>交換法以外の他手法の調査（現在、東京工業大学に委託し、ウラン濃縮で開発された技術をベースとしたイオン交換法基礎試験を進めている。）を行う必要がある。

一方、Naボンド型燃料製造については、規模は小さいものの海外での実績はあるため技術的には可能であろう。しかし、Naボンド型窒化物燃料製造成立性評価は、実用化における技術的评价、つまり大規模製造の実現性評価を行うべきである。（諸外国でNaボンド型炭化物燃料製造が行われた実績があるといっても、それは照射試験用であり製造規模は小さい。）大規模製造になると、取扱うNaの量は多くなり、Naハンドリング（安全上も含む）のみならず、加工施設から発生する廃棄物処理等にも課題が生じると考えられ、Na充填技術、Na取扱い技術（安全対策）、廃棄物対策について検討する必要がある。また、以上の検討にも関係するが、Naボンド型燃料製造を行う設備は、炉規制法、毒物劇物取締法、消防法の同時規制となる。Na取扱量が少ない試験（例えばNaとの共存性評価のような炉外試験）ならば許可取得は可能かもしれないが、Na取扱量が多くなると、炉規制法では安全対策が厳しく要求され、また消防法では多くの条件が設けられるため、許可取得は容易ではなく、許認可上の課題評価も重要である。

## ② 再処理

### (1) 直接溶解法における溶解性の面からの評価

窒化物燃料の硝酸に対する溶解性の良さは文献によって確認されている。また、一旦硝酸に溶解してしまえばPUREX法が適用できるので、窒化物燃料の湿式再処理は充分実現性があると判断できる。

一部の文献ではアンモニウムイオンの有意な発生について述べているが、抽出工程に於けるアンモニウムイオンの存在は、HAN（ヒドロキシルアミン）を用いた還元プロセスを採用する場合も同様であり、特に大きな問題は生じないものと考えられる。しかし、溶解挙動の確認という意味で次に示すような溶解試験の実施は必要である。

① 溶解性を溶解速度、残渣生成量の面から確認する。

② 溶解反応に於いて、アンモニウムイオンの生成率を測定し、その生成が抽出反



応に影響を及ぼす程度であるかどうかを評価する。

(ロ) 直接溶解法の $^{14}\text{C}$ 対策の面からの評価

$^{15}\text{N}$ を燃料原料とした窒化物燃料の直接溶解法の問題点は、 $^{15}\text{N}$ の回収が困難になる事である。

仮に50t/y 規模の再処理工場を想定すると、この工場の窒素インベントリは約100000molであり、燃料成分として持ち込まれる窒素が約2000molであるから、通常の硝酸を使用する限り工場系内における $^{15}\text{N}$ 濃度は、燃料中 $^{15}\text{N}$ の全量が硝酸に溶解したとしても、1/50に希釈されることになる。更に、燃料中の、 $^{15}\text{N}$ の約50%が気体として放出されることとすると、硝酸中の $^{15}\text{N}$ 濃度は結局、投入量の約1/100 になってしまう。仮に $\text{H}^{15}\text{NO}_3$ を100%使用したとしても、工程に投入される2000molの窒素に対し、廃棄物として約1000molが排出されてしまう。つまり、このような極端な想定であっても投入量に対し、約50%だけの $^{15}\text{N}$ が系内に留まることになる。更に、 $^{15}\text{N}$ を含む硝酸を回収し再利用することを考えても、回収した硝酸を再濃縮する設備には遮蔽を必要とするなど、設備の面からも実現に至るまでには多くの開発を必要とする。

即ち、直接溶解法を採用する場合、 $^{15}\text{N}$ の回収は困難であり、 $^{15}\text{N}$ の使用、回収使用を前提とした時の窒化物燃料の再処理法として、直接溶解法は必ずしも最適とは言えない。

(ハ) 酸化溶解法の評価

酸化溶解法は、窒化物を $\text{O}_2$ もしくは $\text{CO}/\text{CO}_2$ 気流中で加熱し、酸化物に変えてから、再処理工程に送るものである。この方法は、窒化物を一旦酸化物にする事から、全く従来と変わらない再処理が可能となる、ボンド材であるNaに対しても同時に酸化が進み、特別の処置は不要となる等の再処理プロセスに対する利点と、高温処理の過程で $^{15}\text{N}$ が全量気中にできると考えられており、高い効率で回収できる可能性を持っている。

③  $^{14}\text{C}$ 処理技術

$^{15}\text{N}$ 濃縮度による(99.7%濃縮で現行のMOX燃料のN不純物含有量スペック200ppmとほぼ同等となる。)が、窒化物燃料照射中に無視できない量の $^{14}\text{C}$ が生成すると、それらは再処理工程でほぼ全量が $^{14}\text{CO}_2$ の形でオフガス中に移行する。

直接溶解法の場合、前述のように使用済み燃料を溶解すると燃料中に存在する $^{14}\text{C}$ の内約50%がオフガス中に放出される。 $^{14}\text{C}$ の捕集を考えると、大気中の $^{12}\text{C}$ との混合が起こると処理対象となる炭酸塩の量は、膨大なものとなる。従って、可能な限り容器系換気との混合が起こらないようなオフガス系位置において $^{14}\text{C}$ の捕集を行う

必要がある。その位置は溶解オフガス系で、せん断オフガス系との混合前に当たるが、そこはNO<sub>x</sub>濃度が高いところでもあることから、NO<sub>x</sub>除去の必要性もでてくる。

一方、酸化溶解の場合は酸化処理においてほぼ100%の<sup>14</sup>Cが放出されると考えられ、効率の良い回収が図られるものと期待される。

<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>の固定・固化については、トバモライトを利用することによって<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>の固定・固化の可能性があることが基礎試験によって確認された。

## (2) 金属燃料

### ① 乾式サイクル技術

ANLの開発に代表される熔融塩電解法による金属燃料乾式再処理プロセスは従来のPUREX法とは異なり、(イ)DFが低い、(ロ)再処理と加工工程を一体化できる、等の特徴を持っており、サイクルコストの低減化に寄与することができると考えられる。しかし一方では、(イ)遮蔽が必要、(ロ)燃料ピンに対する考え方が著しく変わる、(ハ)廃棄物中の燃料成分濃度が高くなる、等の面を持っており、十分な開発評価を必要とする。

乾式再処理の研究開発は、弗化物揮発法を中心に1945年頃から始められており、1981年頃は仏・露両国で共同開発が行われていた。現在のように再処理プロセスがPUREX法一辺倒になったのは、「研究開発努力を全てPUREX法に捧げる、と言う選択がなされた事が基本的な原因となっている」（1983年キャストン報告一付属書一）との評価も存在する（酸化物燃料に対する弗化仏揮発法適用）。即ち、実現性の面から乾式法は充分PUREX法に対抗できる可能性を持ったものであると評価された訳である。これは重要な認識であり、今後再処理開発の選択肢を増やしていく場合には乾式法も高い実現性を持った開発候補として取り上げる事は可能であると考えられる。

しかし、熔融塩電解法による乾式再処理技術開発の中心的推進者であったANLが、米国内の事情により、開発の継続が困難になっていることが懸念されている。

### ② 塩廃棄物前処理技術

塩廃棄物をガラス固化するための前処理技術として、ホウ酸による酸化物処理が有効かつ最適であることが試験によって確認された。したがって、塩廃棄物の酸化物処理に関して見通しを得ることができた。

## 6.4 結論

評価の前提条件として、原子炉側は受動的安全炉心を追求し、そして燃料サイクル側はPUREX法（窒化物燃料）と熔融塩電解精製法（金属燃料）をベースとした。評価の結果、窒化物燃料、金属燃料の総合評価は以下のようにまとめることができる。

### (1) 窒化物燃料

- ① 受動的安全性を追求した第2ステップの場合でも、原子炉建設費は余り影響を受けず、酸化物炉心に比べて若干有利になる程度である。一方燃料サイクル単価では、酸化物燃料とは異なり<sup>15</sup>N濃縮コストを考慮する必要があるが、<sup>15</sup>N濃縮コストの評価結果は第1ステップの時に比べて1桁大きくなった。しかしながら、この影響は、成形加工費（円/kgHM）で考えると、酸化物に比べ50%程度の増加になるが、窒化物燃料の炉内滞在期間が酸化物燃料よりも長く取れることから年間の燃料取扱い量が小さくなり、燃料サイクルコストとしては10%程度の低減が実現できる。また、発電コスト（円/kWh）で考えても、酸化物燃料より約5%の低減が見込まれる。したがって、現状の<sup>15</sup>N濃縮コストの見通しでは、kgHM当たりの成形加工費をかなり引き上げると考えられるが、kWh当たりにすれば、燃料サイクルコスト、発電コストはともに酸化物燃料より有利との試算結果を得る。
- ② Naボンド型燃料と水素化ジルコニウム等による僅かなスペクトルシフトの組合せにより大型高速炉の自己制御性の抜本的強化を図ることが可能であり、ULOF事象に対する受動的炉停止能力が格段に向上する。UTOP事象に対しては、高融点を持つことにより燃料溶融に対して非常に大きな裕度を有する。
- ③ 窒化物燃料の高温における窒素の解離反応については、定格時最大線出力を~400W/cmで使用する場合、定常状態においては問題とされないと考えられる。一方FCMIについてはNaボンド型燃料では燃料-被覆管ギャップを十分に設けることにより回避する方向に進むが、クラッキングまたはリケーションによるFCMIの発生の可能性の有無については、今後の照射試験で確認する必要がある。
- ④ <sup>14</sup>Nと<sup>15</sup>Nの増殖性の違いについて、同等の受動的安全性を得るという観点から反応度特性を調整する場合には、その差は無視できるものとなる。
- ⑤ 燃料製造工程において窒化物粉末が空気にさらされても火災が発生することはないと考えられる。また、窒化物の焼結ペレットは空気中で取扱っても問題はないため、MOX燃料製造ラインの一部改造によって対応できる。Naボンド型燃料製造についても諸外国で照射試験の実績があるため、小規模であれば技術的には可能と思われる。しかし、大量製造では小規模製造にはない種々の課題が現れると考えられ、大規模製造での成立性評価が必要である。さらに、Naのグローブボックス内での取扱いに当たり、炉規制

法、毒物劇物取締法、消防法の同時規制になると考えられ、現状では照射燃料製造のような小規模製造であっても可能であると結論付けることはできず、今後検討を継続しなければならない。

- ⑥ He ボンド型窒化物燃料のPUREX法への適用は可能であるが、Na ボンド型燃料ではPUREX法でのNaの除去は技術的に困難であると考えられ、今後の検討が必要である。
- ⑦  $^{14}\text{C}\text{O}_2$  が再処理工程でオフガス中に移行しても、技術的には $^{13}\text{C}\text{O}_2$ も含んだ $\text{CO}_2$ ガスのオフガスからの除去は可能と考えられる。しかし、空気中の $^{12}\text{C}$ の混入を避ける工夫をしないと大量の廃棄物が発生することになる。また、 $^{14}\text{C}\text{O}_2$ の固定・固化も可能と考えられるものの、 $^{12}\text{C}$ 混入防止策も含めて実用化における経済性評価が今後の課題である。

## (2) 金属燃料

- ① 第2ステップでの金属燃料を用いた原子炉の経済性の試算によると、受動的安全性を追求した場合でも、原子炉設備コストへの影響は小さく、建設コストと比較すると酸化物燃料より2%有利になる程度である。乾式リサイクル技術による燃料サイクルコストの低減効果を第1ステップで得られた試算結果をベースとして評価すると、燃料ピン加工本数低減による効果も合わせて酸化物燃料との比較では燃料サイクルコストが55%程度低減され、発電コスト(円/kWh)においても酸化物燃料より18%程度低減する見込みがあるとの試算値が得られるが、評価精度が乏しいおそれがあり、これらの数値をそのまま酸化物燃料および窒化物燃料の試算値と対比するには問題がある。より精度の高い経済性評価を行うには、乾式リサイクル技術による燃料サイクルコストの評価精度の向上を図るべく見直しが必要である。

- ② 窒化物燃料と同等のULOF時受動的炉停止能力を持たせることが可能であり、Naボンド型窒化物燃料と同様の方法でさらに自己制御性の強化を図ることも可能と考えられる。UTOP事象に対しては、低融点、共晶反応が制限条件となっており、UTOP時の添加反応度を小さく抑える設計対応が必要である。また、第2ステップでは対象としていないが、従来から金属燃料に対して指摘のある通常運転時の破損によるボンドNa流出時の燃料溶融の可能性、DN信号による破損検知の困難さ等の課題については未検討のままである。
- ③ 第1ステップにおいて、燃料サイクル実現性については高温の乾式再処理工程の技術の実証には多くの技術的課題があり、実用化までには酸化燃料に匹敵する開発期間が必要になり、実用化時期は酸化燃料より遅くなる、と評価しており、また安全性についても取扱いの面で厳しくなるとの見方をしている。それらについての変更はないが、評価の精度を上げるべきである。
- ④ 塩廃棄物のホウ酸による酸化燃料処理が技術的に可能であることが確認されたが、実用化における経済性評価が今後の課題である。

以上を総合的に勘案すれば、次の7点に整理することができる。

- ① 経済性の試算によると窒化物燃料は $^{15}\text{N}$ 濃縮による経済負担を加えたとしても経済的に大きく不利となることはなさそうであり、さらに、高い受動的安全炉心が達成できる。さらに、Naボンド型燃料を用いることにより、ULOF事象、UTOP事象に対する自己制御性の抜本的強化を図ることができ、炉心崩壊事象を想定する必要のない大型高速炉を実現できる可能性が高い。
- ② 従来問題としていた窒化物燃料の高温分解については、受動的安全炉心における使用条件（ $\sim 400\text{W/cm}$ 程度）では定常時においては問題とならない。また、同じ使用条件で $^{14}\text{N}$ と $^{15}\text{N}$ の増殖性の違いの差は無視できる。しかし、FCMIについては、クラッキングまたはリロケーションによる発生の可能性について照射試験での確認が必要である。
- ③ Heボンド型窒化物燃料サイクルの既存の酸化燃料サイクルへの適用は、その一部変更あるいは工程追加によって可能となる。しかし、Naボンド型燃料は動燃では未経験なため、燃料製造では許認可上から、そして再処理では技術的な側面から可能であると結論付けることはできず、定量的な実現性評価が必要である。
- ④ 窒化物燃料サイクルに付随して $^{15}\text{N}$ 濃縮または $^{14}\text{CO}_2$ 処理処分のどちらかを選択しなければならない。現状の $^{15}\text{N}$ 濃縮コストの見通しでは、窒化物燃料を経済的に不利とすることはなさそうであるが、コスト低減のための技術開発が必要である。また、 $^{14}\text{CO}_2$ 処理処分は技術的には可能と考えられるものの実用化に当たってのコスト評価

が必要である。両者とも経済的には負の方向に働くため、コスト等の比較検討によって選択しなければならない。

- ⑤ 第1ステップで得られた乾式リサイクル技術による金属燃料の燃料サイクルコストの試算結果を基準にして発電コスト（円/kWh）を評価すると、金属燃料は窒化物燃料より10%以上有利となった。ただし、窒化物燃料のコスト評価における試算値は第2ステップにおいては第1ステップより精度が向上しているため、金属燃料もそれに合わせてコスト評価の精度向上が必要である。
- ⑥ 金属燃料は窒化物燃料と同等のULOF時受動的炉停止能力を有し、Naボンド型窒化物燃料と同様にさらに自己制御性の強化を図れると考えられるが、UTOP事象に対しては不利な面がある。また、通常運転時の破損時に生ずる課題を解決する必要がある。
- ⑦ 金属燃料サイクル技術は経済的には有利となる可能性を有するもののエンジニアリング面で未開発の課題が多いため、実証は容易ではなく、実証できたとしても長期間を必要とすると思われる。

したがって、窒化物燃料と金属燃料を比較すると、前者の方が今のところ経済的に不利となる可能性はあるという試算値が得られたが、この結果は第2ステップで経済性評価の精度向上が図られた窒化物燃料の試算値と第1ステップの評価をそのまま用いた金属燃料の試算値との比較であり、金属燃料の経済性評価精度向上が要求される。一方、炉心安全面において受動的な安全炉心を追求した結果、窒化物燃料、金属燃料ともにULOF事象に対する自己制御性の抜本的強化を図ることが可能であることが示されたが、UTOP事象においては金属燃料は不利な面があることが分かった。しかし、炉心安全面で抜本的強化が可能と考えられるNaボンド型窒化物燃料の酸化物燃料型燃料サイクルでの実現性の評価検討を継続させる必要があり、また、 $^{15}\text{N}$ 濃縮と $^{14}\text{C}$ O<sub>2</sub>処理処分という酸化物燃料にはない課題もある。一方、金属燃料サイクルは熔融塩電解精製法の実証は容易でないと考えられる。

第1ステップの評価の前提条件は、原子炉側はコンパクト炉心性能の評価、そして燃料サイクル側は今回と同じであり、窒化物燃料は金属燃料より優位であると評価した。その結論を得たのは、両者とも炉心安全の向上が可能である（そのため、第2ステップの原子炉側の前提条件は受動的な安全炉心の追求とした）ものの、経済性で前者の方が有利であること、そして後者の燃料サイクル実用化まで長期間要することが主な理由である。第2ステップでは、経済性では逆に金属燃料の方が有利となり、また、炉心安全はUTOP事象に対する評価から窒化物燃料の方が有利と評価されるものの、受動的な安全性にのみ着目する場合には窒化物燃料と金属燃料の差はあまり大きくはない。しかし、第2ステップでは第1ステップの評価結果を受けて、窒化物燃料の評価に力点が移ってしまい、その結果窒化物燃料で様々な課題

が見えてきたのに対し、金属燃料の課題は窒化物燃料ほど鮮明になっていないと考えることができる。したがって、現状では窒化物燃料と金属燃料を同じ評価レベルで比較検討することはできない。第3ステップにおいては今回と同様な前提条件の下に、窒化物燃料の課題について定量的な評価を加えるとともに金属燃料の評価精度を窒化物燃料なみに向上させ、両者を同じ視点で評価できるようにすることが肝要である。次章で報告する。

## 7. 今後の新型燃料評価研究の進め方の基本的考え方

新型燃料の研究課題は、基礎研究としてデータを蓄積する項目とフィージビリティ研究として実用性を評価する項目に大別できる。本章では、現時点で考えられる研究課題を網羅するとともに第3ステップの進め方について報告する。

### 7.1 基礎研究課題

#### (1) 窒化物燃料

##### ① 照射試験の実施

現在進めている原研との共同研究を完遂する。作業内容としては、原研で製作した炭化物燃料ピン1本、窒化物燃料ピン2本の「常陽」照射、照射後試験および照射挙動評価を行う。

また、動燃独自の窒化物燃料照射試験の具体化計画を構築し、燃料仕様を定めた後Pu燃料第一開発室に整備した設備により照射試料を製造する。さらに、「常陽」で照射し、照射後試験を行う。

なお、照射試験により、次に述べるFCMIや高温分解挙動評価の他に、FPガス放出率、照射中の窒化物燃料の物性変化についても明らかにする。

##### ② FCMI挙動評価

MOX燃料の燃料挙動解析コード：CEDARをベースとした窒化物燃料挙動解析コード：CEDAR-MNの整備および原研共研による「常陽」照射試験結果に基づく検証解析を行う。そして、検証されたCEDAR-MNを利用してFCMI挙動評価を行う。

##### ③ 高温分解から来る線出力限界の評価

本課題は定常状態においては受動的安全炉心では問題にならないと考えられるが、炉内の燃料中に生じる温度勾配を模擬することによる炉外評価試験によって確認し、さらに照射試験により最終確認を行う。

##### ④ $^{15}\text{N}$ 濃縮技術評価

フィージビリティ研究としてNO-HNO<sub>3</sub>化学交換法のコスト評価を継続する(後述)が、基礎研究としてイオン交換法基礎試験を行う。

##### ⑤ 再処理技術評価

窒化物燃料を用いた溶解試験によって、溶解特性の把握を行う。また、窒化物燃料は熔融塩電解精製法への適用が見込まれるため、ウラン窒化物を用いて電解精製の基礎試験を行う。

##### ⑥ $^{14}\text{CO}_2$ 処理技術評価

トバモライトへのCO<sub>2</sub>の吸収固定試験及び炭酸化トバモライトの固化試験を行う。



## ⑦ Na中に放出されたPu蒸気のカバーガス中への移行率評価

本課題は評価に直接関わる研究課題ではないが、「常陽」設置変更許可申請時に、規模の大きい窒化物燃料照射試験を行う場合はデータが必要と規制当局より要求されたものであり、窒化物燃料の成立性評価を実施する上で重要な課題である。評価手法として、ウラン窒化物を用いて、爆発的に蒸発させたときの蒸気の挙動を評価することが考えられ、炉外試験で実施すべき項目である。

## (2) 金属燃料

## ① 照射挙動評価

動燃内部で照射試験を実施することは設備面等から不可能であるため、文献調査等により照射データの収集を図る。

## ② 熔融塩電解精製法の評価

模擬試料を利用して基礎試験を行い、PuとFP各元素の挙動の予測等を進め、アクチニドや長寿命FPの回収・除去技術の見通しと確立を行う。

## 7.2 フィージビリティ研究課題

## (1) 窒化物燃料, 金属燃料共通

## ① FBRシステムへの新型燃料の適合性評価

我が国のFBR実用化時代におけるプラント規模, 安全性確保の考え方及び望ましい燃料サイクルの形態に対する考え方を勘案した上で, 両燃料がそれを満足するのかどうか評価検討を行う。

## ② 原子炉設計研究

上記FBR評価研究の成果を受け, 炉心の設計研究とその成立性評価を行う。

## (2) 窒化物燃料

## ① 製造技術評価

整備した設備を用いた製造試験により製造条件を確立するとともに, 窒化物粉末の取扱い経験を蓄積させることによって窒化物燃料製造設備(不活性雰囲気グローブボックスを含む)設計の最適化を図る。

Naボンド型燃料加工技術については, 大規模製造の成立性評価を実施し, さらに炉規制法, 毒物劇物取締法, 消防法に関わる許認可上の課題の整理・評価を行い, グローブボックスでの製造の可能性を評価する。以上二つの評価を通じ, 窒化物燃料加工コスト評価の精度を向上させる。

②  $^{15}\text{N}$ 濃縮技術評価

$\text{NO}-\text{HNO}_3$ 化学交換法のコスト低減化対策, すなわち, 副生成物 $\text{H}_2\text{SO}_4$  から $\text{SO}_2$ を回収してリサイクルする技術の評価を行う。また,  $\text{HNO}_3$ から $\text{N}_2$ への転換コストの評価を行う。

③ 再処理技術評価

先に述べた窒化物燃料を用いた溶解試験によって, 溶解特性の把握を行い, 直接溶解法適用性の評価を行う。また,  $\text{Na}$ ボンド材の直接溶解前処理として必要な $\text{Na}$ 不活性化技術の評価を行う。

$^{14}\text{C}$ の捕集に関しては, オフガス処理の最適位置の評価を行う。さらに, 酸化処理技術をレビューし,  $^{15}\text{N}$ 回収,  $^{14}\text{C}$ 捕集,  $\text{Na}$ ボンド材処理の観点から評価を行う。

以上の評価を通じ, PUREX法の場合の窒化物燃料再処理コスト評価を行う。

一方, 先に述べた熔融塩電解精製基礎試験により新しい乾式再処理法を評価する。

④  $^{14}\text{CO}_2$ 処理・処分技術評価

$^{14}\text{CO}_2$ 処理技術として, 基礎研究として実施するトバモライトへの $\text{CO}_2$ の吸収固定試験及び炭酸化トバモライトの固化試験の他に, オフガス工程から $^{14}\text{CO}_2$ 除去技術の評価も行う。また, 窒化物燃料の熔融塩電解精製法への適用性評価の一環として, 熔融塩電解による $^{14}\text{C}$ の固定化と除去法について検討する。

一方 $^{14}\text{CO}_2$ 処分技術については,  $^{14}\text{CO}_2$ 処理での固化体発生量, 地層処分の環境評価等を勘案して成立性評価を行う。

以上の評価を通じて,  $^{14}\text{CO}_2$ 処理・処分コストを見積もる。

(3) 金属燃料

① 乾式リサイクルプラントのエンジニアリング評価

第1及び第2ステップで行った金属燃料乾式リサイクルプラントのエンジニアリング評価の内容をより高度にした評価, すなわちセル内外の機器配置及び設備の運転保守を十分考慮した上で評価を行う。それによって, 金属燃料乾式リサイクルプラントの経済性, 安全性, 現実性の各評価精度をより向上させる。

② 塩廃棄物前処理技術評価

実用化における経済性評価を行う。(そのための検討課題の抽出の過程で, 基礎研究課題を見出す。)

### 7.3 第3ステップについて

#### (1) 第3ステップの目標及び進め方

昭和62年より始めた新型燃料評価研究の目的は、「技術評価のための最新情報入手と研究開発を通じて酸化燃料との比較を行い、新型燃料の実用化の可能性を評価し、どの燃料サイクルシステムが優位であるか明らかにする」ということであり、第1～第3の3段階のステップを踏まえて結論を下すという計画である。その考え方は基本的に変わるところはなく、第1、第2ステップに引き続いて第3ステップにおいても、新型燃料成立性評価を継続し、一つの新型燃料システムの商業化への是非を判断できるようにするための材料をそろえることを目標とする。

前章で述べたことを繰り返すと、窒化物燃料と金属燃料の優劣について現状では言える段階がなく、それは金属燃料の評価が窒化物燃料と比較すると十分ではないからである。そのため、第3ステップの進め方としてはまず金属燃料の評価レベルを向上させることを主眼とし、窒化物燃料と評価レベルを合わせる。また、7.1、7.2節で整理した研究課題等を追求することにより、窒化物燃料と金属燃料の基本データの収集に努め、それぞれの燃料形態での成立性を評価できるだけの材料をそろえる。

#### (2) 第3ステップの評価計画及び具体化計画の作成

図1.1より、当初照射試験結果も踏まえて評価を下す予定であった。しかし、諸外国で照射挙動の知見もある程度蓄積されていることもあって、必ずしも照射試験のデータを得なくとも成立性の評価は可能である。そこで、当初の予定通り、平成9年度末までに窒化物燃料および金属燃料の基本データの収集に努めるものとする。ただし、成立性を評価する上で必要なデータが何か十分に勘案した上で、各研究課題ごとにスケジューリングを行い、第3ステップ評価研究の具体化計画を早急に作成することとする。なお、平成10年度以降についても基本データの収集を継続する必要ありと判断される項目がでてくるのが十分考えられるため、平成10年度以降の評価研究の進め方及び本分科会の位置付けは第3ステップ終了時に定めるものとする。

## 7.4 国内外との協力

### (1) 窒化物燃料

窒化物燃料開発を進めてきたヨーロッパではFBR開発そのものが一時の勢いがなくなってきたおり、そのあおりを受けた形で窒化物燃料開発そのものもフェードアウトしようとしていた。しかし、例えば仏国CEAではPu燃焼という新テーマの中で、窒化物燃料を酸化物燃料のalternativeとしており、窒化物燃料開発が再び盛り上がる機運も見せている。CEAと動燃間の共同研究の協定がすでにあるため、その中で積極的にCEAより情報入手に努めるとともに、動燃側からも研究者の交換等積極的に働きかける。

また、昨年宇宙炉用UN燃料の研究開発を進めてきた米国LANLから照射データについての技術協力の申し入れがあった。動燃にとって貴重なデータになると考えられるため、情報購入の価値があるかどうか検討を行い、価値有りとの判断があれば積極的に働きかける。さらに、ロシアも窒化物燃料開発を進めているため、同様に検討を行うものとする。

一方、国内では原研との共研がすでに行われているが、共研終了後も活発に情報交換の場を作る。

### (2) 金属燃料

米国ではANLのEBR-IIにおける金属燃料開発からの撤退に追い込まれたため、動燃としての方針を定めた上で必要ならば国内外との協力を求める。

### (3) 共通

前節で述べたごとく多くの研究課題が抽出されており、動燃内部ですべてに対応することは不可能である。そのため、外部に対して動燃としての新型燃料開発の基本的考え方と方向性を明確に示すとともに、研究課題の中から取捨選択して大学、研究所、メーカーとの研究協力や委託を積極的に進めて行く。

## 付録1. 執筆者一覧

人形峠事業所

環境資源開発部	転換技術開発課	岡本 主査
---------	---------	-------

東海事業所

技術開発推進部	炉心・燃料設計室	古田土 研究員
---------	----------	---------

核燃料技術開発部	プルトニウム燃料開発室	遠藤 主査
----------	-------------	-------

		森平 研究員
--	--	--------

	転換技術開発室	佐々木 研究員
--	---------	---------

再処理技術開発部		五十嵐 担当役
----------	--	---------

環境技術開発部	環境技術第一開発室	小林 研究員
---------	-----------	--------

	環境技術第二開発室	林 副主研
--	-----------	-------

大洗工学センター

技術開発部	プラント工学室	小泉 嘱託
-------	---------	-------

		林 室長代理
--	--	--------

	新型炉サイクル解析室	小野 副主研
--	------------	--------

燃料材料開発部	燃料材料技術開発室	井上 研究員
---------	-----------	--------

実験炉部	照射課	北村 研究員
------	-----	--------

---

新型燃料分科会事務局

付録2. 新型燃料分科会委員名簿（所属，役職名は当時）

本 社

企画部

穴 戸 担当役（第12回～第16回）  
藤 田 主 査（～第18回）

動力炉技術開発部 技術開発室

永 井 担当役（～第11回）  
植 松 主 査（第12回～第18回）

核燃料サイクル技術開発部

木 村 担当役（～第 5 回）  
金 子 担当役（第10回～第12回）

プルトニウム燃料開発室

谷 室 長（～第 8 回）  
中 島 室 長（第 9 回～）  
佐 藤 主 査（～第 9 回）  
小 幡 主 査（第11回～第18回）

再処理技術開発室

山 本 研究員（第19回～）  
市 村 担当役（～第 7 回）  
板 橋 副主研（～第 8 回）  
井 上 研究員（第 9 回～第14回）

人形峠事業所

環境資源開発部 転換技術開発課

音 村 担当役（～第 5 回）  
天 本 主 査（～第 8 回, 第15回）  
高 信 研究員（～第 8 回）  
岡 本 主 査（第 9 回～）

東海事業所

技術開発推進部 研究開発調整室

大 島 室 長（第13回）  
明 珍 主 査（～第12回）  
朝 倉 副主研（～第 8 回）  
鈴 木 副主研（第14回～第18回）  
伊 藤 副主研（～第 7 回）  
山 口 副主研（～第10回）

炉心・燃料設計室

	古田土 研究員
核燃料技術開発部 プルトニウム燃料開発室	三島 室長 (～第5回) 長井 室長 (第6回～第15回) 上村 室長 (第16回～) 山口 主査 (第7回～第10回) 佐藤 主査 (第10回～第15回) 遠藤 主査 (第16回～) 遠藤 副主研 (～第6回) 高橋 副主研 (第5回～第10回) 森平 研究員 (第4回～)
転換技術開発室	堀江 担当役 (第10回～第11回) 鈴木 副主研 (～第6回) 佐々木 研究員
再処理技術開発部	松本 担当役 (～第16回) 五十嵐 担当役 (第17回～)
プラント設計開発室	小沢 主査 (～第5回) 小巻 主査 (第6回～第18回) 日野 研究員 (第6回) 北島 室員 (第6回～第15回)
機器材料開発室	武田 担当役 (第17回～) 紙谷 研究員 (第17回～)
プロセス・分析開発室	野村 研究員 (第17回～) 駒 研究員 (第20回)
環境技術開発部 環境技術第一開発室	五十嵐 主査 小林 研究員
環境技術第二開発室	林 副主研
地層処分開発室	宮原 副主研 (～第5回) 亀井 副主研 (第7回～第15回) 芦田 副主研 (第16回～)

大洗工学センター

技術開発部 プラント工学室

新型炉サイクル解析室

小 泉 囑託  
若 林 担当役 (～第9回)  
林 室長代理 (第10回～)  
大久保 副主研 (～第9回)  
原 研究員 (～第5回)  
森 室 長 (～第12回)  
新 谷 担当役 (第8回～第11回)  
松 元 主 査 (第20回)  
小 野 副主研

燃料材料開発部 燃料材料技術開発室

照射燃料試験室

水 野 副主研 (第20回)  
平 井 研究員 (～第6回)  
井 上 研究員 (第6回～)  
桑 島 研究員 (～第5回)  
吉 持 研究員 (第6回～第14回)

実験炉部 照射課

水 谷 担当役 (～第7回)  
北 村 研究員

安全工学部 原子炉工学室

犬 飼 研究員 (～第6回)

---

新型燃料分科会事務局

主 査 東海)

核燃料技術開発部プルトニウム燃料開発室

三 島 室 長 (～第5回)  
長 井 室 長 (第6回～第15回)  
上 村 室 長 (第16回～)

事務局 (東海)

核燃料技術開発部プルトニウム燃料開発室

遠 藤 副主研 (～第6回)  
高 橋 副主研 (第7回～第9回)  
佐 藤 主 査 (第10回～第15回)  
遠 藤 主 査 (第16回～)

(新型燃料分科会は平成5年8月25日現在で、20回開催された。)



別 添

F B R 新 型 燃 料 評 価 研 究  
第 2 ス テ ッ プ 最 終 報 告 書

要 約

## 1. はじめに

新型燃料（金属，炭化物，窒化物）の研究開発は，酸化物燃料に主力を注ぎつつFBR開発のより広範な展開を図る先端的基盤技術開発として，「新型燃料を用いたFBRの研究開発基本計画」（昭和62年8月動力炉幹部会・核燃料幹部会）の下に開発がスタートし，平成元年より，本社核燃料サイクル技術開発部を中心に評価を行うこととなり，核燃料サイクル技術開発部を中心に設置された燃料開発会議の分科会の一つである新型燃料分科会を連絡調整機関として新型燃料評価研究を継続した。そして，平成元年度末に第1ステップが終了し，その成果として「FBR新型燃料評価研究報告書（第1ステップ）」（ZN8410 90-075）がまとめられた。第1ステップの評価を要約すると，

- (1) 窒化物燃料は，若干の課題が残るものの，発電コストは最も安く，安全性を追求した炉心設計が期待できる上に，既存技術がほぼ利用可能な点から，新型燃料の中で最も優れていると判断される。
- (2) 金属燃料は，発電コストが酸化物燃料より安く，炉心設計の観点から安全性の向上を図り得る可能性があり，魅力的な燃料であるが，高温乾式再処理技術の実用化には長期間の研究開発を要すると判断される。
- (3) 炭化物燃料は，燃料サイクルの実現性において，“再処理工程におけるプルトニウムの溶解性の問題”が大きな課題となる。

ということになり，酸化物燃料に代わり得る燃料として窒化物燃料，次いで金属燃料が有望である，という結論が得られた。

第2ステップ（平成2年4月～平成5年3月）では，評価対象を窒化物燃料及び金属燃料として評価研究を進めた。本資料は第2ステップ最終報告であり，窒化物燃料と金属燃料の経済性，安全性，実現性について基礎試験等の成果を踏まえて評価を行い，さらに第3ステップの評価の進め方の考え方について分科会案を取りまとめた。

## 2. 海外及び我が国における新型燃料開発の動向

ヨーロッパでは、1980年代半ばより仏国CEA、ECのITU（超ウラン元素研究所）、スイスのPSI（ポール・シェラー研究所）の3つの研究機関による窒化物燃料の共同研究が行われている。現在行われている照射試験はNIMPHE計画と名付けられ、Phenixを用いている。照射燃料は各研究機関で作られ、63,000MWd/tまで燃焼させて中間照射後試験を行ない照射健全性が確認されている。将来は150,000MWd/tを達成させる計画である。ところが、ヨーロッパではFBR開発はスローダウンしてきており、FBR燃料としての窒化物燃料開発のインセンティブは失われ、NIMPHE計画以降の新規照射試験計画はない。しかし、仏国CEAではPu燃焼という新テーマの中で窒化物燃料開発が見直される機運も見せている。

米国では1985年末にMOX燃料から金属燃料に転換し開発（IFR計画）が進められ、EBR-IIによる照射試験ではU-Pu-Zr三元合金を用いて1989年には18.5at%という高燃焼度を達成している。燃料サイクル技術開発ではEBR-IIに併設したFCFで実証試験に入ろうとしており、1993年末頃にはコールドテストに、1994年初めにはホットテストに入る計画である。また、金属燃料サイクル技術をいかして、LWRの使用済燃料からアクチニドを回収するプロジェクトを計画している。しかし、米国ではPu開発の行方が不透明になってきており、ANLの金属燃料開発も先行き不透明な状況である。一方米国では、WHハンフォードがFBR新型燃料としてU、Pu混合窒化物燃料を、そしてLANLでは宇宙原子炉の燃料としてU窒化物燃料を開発してきた実績がある。

旧ソビエト連邦では1983年頃よりBR-10によるU窒化物燃料の照射試験を行っており、8.3 at%燃焼度に達した。インドでは炭化物燃料を中心に開発を進めてきたが、再処理（PUREX法）の困難性、燃焼度限界の点から1991年に断念し、金属燃料を調査中であり、また窒化物燃料開発を行っている。

一方、我が国においては日本原子力研究所（以降、原研）と電力中央研究所（以降、電中研）がそれぞれ窒化物燃料と金属燃料の開発を進めている。

原研では、大洗研究所において燃料研究棟が建設された1974年から炭化物燃料の研究が開始された。炭化物燃料の照射試験はJRR-2とJMTRでの試験は終了し、動燃との共研による常陽照射試験を残すのみである。窒化物燃料は1990年にJMTRによる照射試験が開始し、照射後試験が進行中である。窒化物燃料も炭化物燃料と同様に動燃との共研による常陽照射試験を計画しており、来年度照射開始予定である。

電中研は米国電力研究所（EPRI）と金属燃料の評価を目的とする共同研究を進めており、炉心特性評価と乾式法による燃料サイクル技術評価を進めてきた。さらに、米国ANLのIFR計画にも参画し、金属燃料サイクル全体を通じての実証データや機器の運転、保守経験が蓄積されることが期待される。

### 3. 新型燃料に関する業務の進捗状況

窒化物燃料照射試験に向けて各部署において業務が進捗している。その一つは「常陽」を照射ベッドとする原研との共同研究であり、すでに、原研で調整する炭化物燃料（燃料要素1本）と窒化物燃料（燃料要素2本）の設計評価を経て「常陽」設置変更許可を取得しており、燃料要素部材及び照射用リグ部材の製作を開始した。

一方、動燃独自の窒化物燃料照射試験については基本計画の検討を行っており、また、東海事業所プルトニウム燃料第1開発室に照射試験用窒化物燃料製造設備を設置した。

### 4. 評価研究結果

評価研究の実績から、主要事項を以下に報告する。

#### (1) 安全性向上炉心評価

##### ① 新型燃料の受動的安全性の比較結果

第2ステップの検討においては、主にA T W S事象時における受動的炉停止能力に着目した新型燃料炉心の比較検討を実施した。Naプレナムを有する扁平炉心概念での受動的炉停止能力の比較検討では、特にU L O F事象時の炉心挙動に着目し、炉心の径方向膨張等を考慮した最適評価を実施した。その結果、酸化物燃料炉心でも炉心燃料仕様、炉心形状を工夫することにより窒化物燃料炉心、金属燃料炉心と同様に受動的炉停止能力を得ることが可能であることが示された。一方、窒化物燃料及び金属燃料と同等の受動的安全性を得るための炉心燃料集合体仕様、炉心形状の経済性へのインパクトはかなり大きく、燃料サイクルコスト、原子炉建設コストを通じて発電コストをかなり引き上げる結果となることが分かった。

窒化物燃料と金属燃料については、ほぼ同等のU L O F事象に対する受動的炉停止能力を有する一方、U T O P事象に対しては、高融点をもつ窒化物燃料の有利性が示された。すなわち、U T O P事象について燃料溶融あるいは冷却材沸騰の生じない最大の添加反応度を比較すると、

- ・酸化物燃料炉心は燃料溶融の防止の観点から1 \$
- ・金属燃料炉心は燃料溶融の防止の観点から80 ¢
- ・窒化物燃料炉心は冷却材沸騰防止の観点から1.5 \$

が許容投入反応度となり、制御棒誤引き抜き等による反応度投入の制限については金属燃料が最も条件が厳しくなる。また、制限温度を被覆管と燃料の共晶反応におく場合は金属燃料はもっと厳しい結果となる。

## ② 大型高速炉における自己制御性の抜本的強化の可能性

従来の大型高速炉の受動的安全性評価においては、炉心湾曲あるいは炉心径方向膨張を考慮しているが、それらの不確かな要因を考慮せずとも受動的炉停止が達成できる炉心反応度特性を追求するアプローチは高速炉の安全論理を簡明にするものであり、これが達成されれば、高速炉実用化へ向けての一つのブレークスルーを与える可能性がある。

窒化物燃料のNaとの両立性、高熱伝導度、高融点という特性は、上記の高度な受動的安全性へのポテンシャルを秘めており、Naボンド型燃料として採用することにより、そのポテンシャルを最大限に引き出すことが可能となる。Naボンド型窒化物燃料では、ULOF事象、UTOP事象の双方に対してドップラー係数を高めることが有効であり、これまでの冷却材温度係数低減に偏った受動的安全性強化策に新たな自由度を与えている。ULOF事象について述べると、以下の2つにまとめることができる。

- ・窒化物燃料でもHeボンド型燃料として用いる場合には、線出力を最大400 W/cm程度に低減しても、定格時の炉心燃料平均温度は800℃程度であり、ULOF時のドップラー反応度フィードバックは正となってしまう。酸化物燃料の場合に比べると小さいが、受動的に炉停止させるために正味の反応度を負にする必要があるときに、これを妨げる効果となっている。
- ・Naボンド型燃料とする場合は、定格時の炉心燃料平均温度が500℃程度となるので、ULOF事象においても燃料温度は上昇する方向であり、ドップラー反応度フィードバックは負となる。つまり、正味の反応度を負として出力の低下を助ける方向である。

また、水素化ジルコニウムを封入したピンを添加することによって、僅かにスペクトルをシフト（水素の減速作用による中性子スペクトルのソフト化）させてドップラー効果を強調し、同時に冷却材温度係数を低減する方法は、シンプルな炉心構成、また、炉心サイズの影響が小さいという点から工学的に非常に有力な概念であり、大型高速炉における自己制御性の抜本的強化を達成できる可能性がある。

## ③ 窒化物燃料炉心における窒化物燃料高温分解及び $^{15}\text{N}$ と $^{14}\text{N}$ の反応度特性の差

受動的安全炉心を追求した窒化物燃料炉心の使用条件は $\sim 400$  W/cm程度であり、このときの燃料中心温度はHeボンド型燃料では1100℃程度、Naボンド型燃料では800℃程度である。このような温度では高温分解は生じない。

また、 $^{14}\text{N}$ 炉心と $^{15}\text{N}$ 炉心の増殖性の違いについて、同等の受動的安全性を得るという観点から反応度特性を調整する場合には、その差は無視できる。なぜなら、一般には $^{15}\text{N}$ 炉心の方が $^{14}\text{N}$ 炉心より増殖比は大きい、受動的安全性強化を狙うと $^{15}\text{N}$ 炉心は $^{14}\text{N}$ 炉心よりも反応度特性の調整幅を大きくする必要があり、その結果 $^{15}\text{N}$ 炉心の増殖低下を招くからである。

## ④ 今後の検討課題

炉心安全性に対する第2ステップでの検討結果に基づき、今後の窒化物燃料炉心の設計研究では、Naボンド型燃料と水素化ジルコニウム等の組合せによる弱スペクトルシフト炉心を重点的に検討し、炉心と原子炉構造および冷却系システムを総合的に検討することにより、自己制御性を抜本的に強化した大型高速炉プラントの成立性を定量的に検討する必要がある。

この炉心の成立性の最終的判断には、水素化ジルコニウムを初めとする水素化物減速材における水素の熱的安定性に関するデータが重要であり、文献調査、実験的検証を通じて早期にその安定性を確認する必要がある。また、ここで挙げたNaボンド型窒化物燃料炉心における燃料仕様および照射条件は従来の炉心検討におけるものとはかなり異なるものであり、①中線出力(～400 W/cm)での、②Naボンド・高密度ペレットに対する照射データを中心として、燃料スエリング率、FPガス放出率、クラッキングまたはリロケーションによるFCMI発生の有無を確認する必要がある。なお、NaボンドにすればスエリングによるFCMI発生はないと見込まれるが、これは等方的にペレットが膨張する場合であり、ペレットにクラックやリロケーションが生ずるような場合はFCMIが発生することは有り得る。ただし、Naボンド型燃料の大量製造上及び再処理上の実現性については後述するように相当な困難が見込まれるので、Naボンド型窒化物燃料については燃料サイクル全体からの評価が必要である。

## (2) 窒化物燃料製造技術評価

U窒化物燃料製造基礎試験の結果、酸化物粉末から窒化物粉末へ転換する炭素熱還元反応によって得られた窒化物中の炭素及び酸素不純物量をそれぞれ0.3 wt%、0.1 wt%まで低減させることができ、また窒化物焼結ペレット密度は約85% T.D.であった。

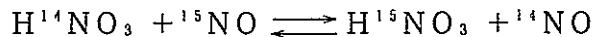
Naボンド型窒化物燃料製造成立性評価は、実用化における技術的評価、つまり大規模製造の実現性評価を行うべきである。(諸外国でNaボンド型炭化物燃料製造が行われた実績があるといっても、それは照射試験用であり製造規模は小さい。)大規模製造になると、取扱うNaの量は多くなり、Naハンドリング(安全上も含む)のみならず、加工施設から発生する廃棄物処理等にも課題が生じると考えられ、Na充填技術、Na取扱い技術(安全対策)、廃棄物対策について検討する必要がある。また、以上の検討にも関係するが、Naボンド型燃料製造を行う設備は、炉規制法、毒物劇物取締法、消防法の同時規制となる。Na取扱量が少ない試験(例えばNaとの共存性評価のような炉外試験)ならば許可取得は可能かもしれないが、Na取扱量が多くなると、炉規制法では安全対策が厳しく要求され、また消防法では多くの条件が設けられるため、許可取得は容易ではなく、許認可上の課題評価も重要である。

## (3) ウラン窒化物の酸化特性試験

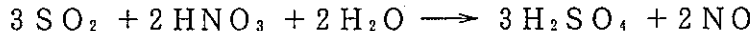
文献によればウラン窒化物の粉末は常温の空气中で急激に酸化されることはなく、発火温度は250℃以上であるとされているが、試作したウラン窒化物を用いた試験により、文献報告を裏付ける結果が得られた。しかし、発火温度は粉末性状の影響を大きく受けるので、粉末物性との相関について定量的に評価する必要がある。

(4)  $^{15}\text{N}$ 濃縮技術評価 ( $^{15}\text{N}$ 濃縮コスト評価)

$^{15}\text{N}$ 濃縮コスト評価に当たり、最も現実的な手法である化学交換法をベースとした。化学交換法の基本反応は、



である。コスト評価の際のプラント規模は、100kg/y, 500kg/y, 1500kg/y, 4500kg/yを想定し、また濃縮度は90~99.9%を考えた。評価の結果、人件費やサイト開発費を考えなければプラント規模や濃縮度にほとんど関係なく、15\$/g $^{15}\text{N}$ または20\$/g $^{15}\text{N}$ となった。ここで、化学交換法では $^{15}\text{N}$ を高濃縮させるためには上記交換反応を何度も起こす必要があり、 $^{15}\text{N}$ の濃縮された $\text{HNO}_3$ 溶液を下記反応によって $\text{NO}$ ガスに転換させなくてはならない。



つまり、副生成物として $\text{H}_2\text{SO}_4$ が生じ、 $\text{H}_2\text{SO}_4$ の売却利益を入れなければ20\$, 入れれば15\$となった。さらに、人件費(プラント規模とともに安くなる)やサイト開発費(プラント規模に関係ない)を考慮すれば、窒化物燃料の成形加工費は、窒化物燃料1kg当たり $^{15}\text{N}$ は約60g必要であることから換算することによりMOX燃料のそれより5~7割も高い試算結果となった。

なお、評価結果のうち $\text{SO}_2$ コストの占める割合が極めて高く( $\text{SO}_2$ 使用量は生産規模にほぼ比例し、濃縮度に影響されない。そのため、コスト評価の結果、プラント規模はほとんど関係なくなった。)、かつその使用量は我が国の全 $\text{SO}_2$ 生産キャパシティに匹敵するほど大量であると見込まれ、 $^{15}\text{N}$ の大規模濃縮実現のための課題は $\text{SO}_2$ の供給である。

## (5) 窒化物燃料再処理プロセスの評価

文献調査の結果、窒化物燃料の硝酸に対する溶解性の良さが確認された。また、アンモニウムイオンの発生については、一部の文献ではアンモニウムイオンの有意な発生について述べているが、抽出工程に於けるアンモニウムイオンの存在は、HAN(ヒドロキシルアミン)を用いた還元プロセスを採用する場合も同様であり、特に大きな問題は生じないものと考え

られる。しかし、溶解挙動の確認という意味で次に示すような溶解試験の実施は必要である。

- ① 溶解性を溶解速度、残渣生成量の面から確認する。
- ② 溶解反応に於いて、アンモニウムイオンの生成率を測定し、その生成が抽出反応に影響を及ぼす程度であるかどうかを評価する。

また、再処理工程における<sup>15</sup>N回収について検討しており、「直接溶解性」では溶解反応中に燃料中の<sup>15</sup>Nが硝酸中の<sup>14</sup>Nと同位体交換し、その回収が困難となるが、「酸化溶解法」では、燃料中の<sup>15</sup>Nを同位体希釈することなくオフガスとして放出させることができる。オフガス処理系でトリチウムやクリプトン等の放射性ガスを除去した後、これを原料に<sup>15</sup>Nを回収すれば、通常の空気を原料とした<sup>15</sup>N濃縮より経済的と考えられる。

Na ボンド型燃料を再処理する場合、Na 除去のために再処理工程に及ぼす影響は大きく、Na ボンド型燃料の採用に当たっては、燃料サイクル全体を通じた評価が重要である。

#### (6) <sup>14</sup>C O<sub>2</sub>捕集、固定・固化技術評価

オフガスに含まれる<sup>14</sup>C O<sub>2</sub>を除去する方法として、ゼオライトの一種で結晶構造中にCaを持つトバモライト（珪酸カルシウム水和物の一種）を用いた炭酸ガスの吸収（反応式： $\text{Ca}(\text{OH})_2 + {}^{14}\text{CO}_2 \rightarrow \text{Ca} {}^{14}\text{CO}_3 + \text{H}_2\text{O}$ ）及び炭酸化したトバモライトの水熱固化（高温高压下の水の性質を利用して、常温では溶けない廃棄物を溶解・反応させ安定な固化体とすること。）の研究を行っている。

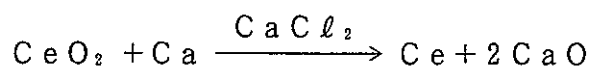
これまでに、トバモライトへのCO<sub>2</sub>の吸収基礎試験及び炭酸化トバモライトの固化方法として、直接圧縮法及び水熱固化基礎試験を実施した。また、再処理オフガス工程でのCO<sub>2</sub>の吸収・固化プロセスの概要を検討した。

その結果、トバモライトの水分存在化での炭酸化速度は速く、炭酸化トバモライトは、熱的に安定であることから、技術的適用の可能性が確認できた。

課題としては、トバモライトの炭酸化条件の最適化検討及び炭酸化機構の解明とともに、水熱固化条件の最適化及び固化体の性質、安定性の評価が必要である。また、プロセスの適用にあたっては、オフガス処理におけるヨウ素、NO<sub>x</sub>などの処理との整合性が重要であり、オフガスプロセス全体から<sup>14</sup>C O<sub>2</sub>捕集技術の検討を行う必要がある。

#### (7) 金属転換技術評価

Ce O<sub>2</sub>を用いたコールド試験は、Caを還元剤、CaCl<sub>2</sub>を溶剤として用いて800℃以上での以下に示す反応を利用することにより行われた。





試験の結果、収率は約91%まで得られたが100%近いほぼ完全な収率は達成できなかった。その原因は、CeとPuの比重及び融点の違いや取扱量が小さいこと等にあると考えられる。なお、米国での実績を見るとDOR法によるPu金属への直接還元で99.5%以上の収率が得られている。

#### (8) 金属燃料乾式リサイクル技術評価

第1ステップで検討した48t HM/yプラントをベースとして、ORIGEN-IIより燃料成分、TRU、アルカリ、アルカリ土類、希土類、貴金属、ハロゲン、オフガスそれぞれの物質収支を求めた。

#### (9) 塩廃棄物前処理技術評価

金属燃料再処理の電解精製工程から発生するF、P等を含んだ塩廃棄物(LiCl, NaCl, KCl等)は、処分を行う上で現状ではガラス固化が最も有効な手段である。しかし、塩化物は、その熱力学的安定性のために直接ガラス固化することが難しい。そのため、ガラス固化のための前処理技術として、多成分塩系でのホウ酸による酸化物化処理技術の評価試験を行った。

その結果から、ホウ酸による酸化物化処理法は、塩廃棄物のガラス固化にいたる前処理技術として有効かつ最適な技術と判断され、塩廃棄物のガラス固化の見通しが得られた。

#### (10) 熔融塩電解精製基礎試験

装置製作後、予備試験を行い装置取扱、試薬取扱及びサンプリング方法等について検討を実施した。予備試験結果を踏まえ、KCl-LiCl共晶塩、金属Cdを用いた基礎試験を500℃近辺の温度で実施し、電解精製及び共晶塩に蓄積するTRU/FPの群分離プロセスの理論解析に必要な基礎データの取得を行った。また、基礎データについて理論計算評価を実施した。

これらの試験では、ウランの電解精製で金属ウランを精製回収するとともに熔融塩の取扱技術、カドミウム中におけるウラン及びイットリウム(プルトニウム模擬)の活量係数等のデータを取得した。また、窒化物燃料への熔融塩電解精製法の適用については、窒化イットリウムを用いて電析試験を実施したが評価できるデータは得られていない。

今後、熔融塩電解精製プロセス評価を行う為には、装置の改造及び試験技術の検討を行い、更なる基礎データの蓄積が必要である。

以上評価の前提条件として、原子炉側は受動的な安全炉心を追求し、そして燃料サイクル側はPUREX法(窒化物燃料)と熔融塩電解精製法(金属燃料)をベースとした。評価の結果、窒化物燃料、金属燃料の総合評価は以下のようにまとめることができる。

## (1) 窒化物燃料

- ① 受動的安全性を追求した第2ステップの場合でも、原子炉建設費は余り影響を受けず、酸化物炉心に比べて若干有利になる程度である。一方燃料サイクル単価では、酸化物燃料とは異なり<sup>15</sup>N濃縮コストを考慮する必要があるが、<sup>15</sup>N濃縮コストの評価結果は第1ステップの時に比べて1桁大きくなった。しかしながら、この影響は、成形加工費(円/kg HM)で考えると、酸化物に比べ50%程度の増加になるが、窒化物燃料の炉内滞在期間が酸化物燃料よりも長く取れることから年間の燃料取扱い量が小さくなり、燃料サイクルコストとしては10%程度の低減が実現できる。また、発電コスト(円/kWh)で考えても、酸化物燃料より約5%の低減が見込まれる。したがって、現状の<sup>15</sup>N濃縮コストの見通しでは、kg HM当たりの成形加工費をかなり引き上げると考えられるが、kWh当たりになれば、燃料サイクルコスト、発電コストはともに酸化物燃料より有利との試算結果を得る。
- ② Naボンド型燃料と水素化ジルコニウム等による僅かなスペクトルシフトの組合せにより大型高速炉の自己制御性の抜本的強化を図ることが可能であり、ULOF事象に対する受動的炉停止能力が格段に向上する。UTOP事象に対しては、高融点を持つことにより燃料溶融に対して非常に大きな裕度を有する。
- ③ 窒化物燃料の高温における窒素の解離反応については、定格時最大線出力を~400W/cmで使用する場合には定常状態においては問題とならないと考えられる。一方FCMIについては、Naボンド型燃料では燃料-被覆管ギャップを十分に設けることにより回避する方向に進むが、クラッキングまたはリロケーションによるFCMIの発生の可能性の有無については、今後の照射試験で確認する必要がある。
- ④ <sup>14</sup>Nと<sup>15</sup>Nの増殖性の違いについて、同等の受動的安全性を得るという観点から反応度特性を調整する場合には、その差は無視できるものとなる。
- ⑤ 燃料製造工程において窒化物粉末が空気にさらされても火災が発生することはないと考えられる。また、窒化物の焼結ペレットは空気中で取扱っても問題はないため、MOX燃料製造ラインの一部改造によって対応できる。Naボンド型燃料製造についても諸外国の実績があるため、技術的には可能と思われる。しかし、Naのグローブボックス内での取扱いに当たり、炉規制法、毒物劇物取締法、消防法の同時規制になると考えられ、現状では照射燃料製造のような少規模製造であっても可能であると結論付けることはできず、今後検討を継続しなければならない。
- ⑥ Heボンド型窒化物燃料のPUREX法への適用は可能であるが、Naボンド型燃料ではPUREX法でのNaの除去は技術的に困難であると考えられ、今後の検討が必要である。

⑦  $^{14}\text{CO}_2$  が再処理工程でオフガス中に移行しても、技術的には $^{12}\text{CO}_2$ も含んだ $\text{CO}_2$ ガスのオフガスからの除去は可能と考えられる。しかし、空気中の $^{12}\text{C}$ の混入を避ける工夫をしないと大量の廃棄物が発生することになる。また、 $^{14}\text{CO}_2$ の固定・固化も可能と考えられるものの、 $^{12}\text{C}$ 混入防止策も含めて実用化における経済性評価が今後の課題である。

## (2) 金属燃料

① 第2ステップでの金属燃料を用いた原子炉の経済性の試算によると、受動的安全性を追求した場合でも、原子炉設備コストへの影響は小さく、建設コストで比較すると酸化物燃料より2%有利になる程度である。乾式リサイクル技術による燃料サイクルコストの低減効果を第1ステップで得られた試算結果をベースとして評価すると、燃料ピン加工本数低減による効果も合わせて酸化物燃料との比較では燃料サイクルコストが55%程度低減され、発電コスト(円/kWh)においても酸化物燃料より18%程度低減する見込みがあるとの試算値が得られるが、評価精度が乏しいおそれがあり、これらの数値をそのまま酸化物燃料および窒化物燃料の試算値と対比するには問題がある。より精度の高い経済性評価を行うには、乾式リサイクル技術による燃料サイクルコストの評価精度の向上を図るべく見直しが必要である。

② 窒化物燃料と同等のULOF時受動的炉停止能力を持たせることが可能であり、Naボンド型窒化物燃料と同様の方法でさらに自己制御性の強化を図ることも可能と考えられる。UTOP事象に対しては、低融点、共晶反応が制限条件となっており、UTOP時の添加反応度を小さく抑える設計対応が必要である。また、第2ステップでは対象としていないが、従来から金属燃料に対して指摘のある通常運転時の破損によるボンドNa流出時の燃料溶融の可能性、DN信号による破損検知の困難さ等の課題については未検討のままである。

③ 第1ステップにおいて、燃料サイクル実現性については高温の乾式再処理工程の技術の実証には多くの技術的課題があり、実用化までには酸化物燃料に匹敵する開発期間が必要になり、実用化時期は酸化物燃料より遅くなる、と評価しており、また安全性についても取扱いの面で厳しくなるとの見方をしている。それらについての変更はないが、評価の精度を上げるべきである。

④ 塩廃棄物のホウ酸による酸化物処理が技術的に可能であることが確認されたが、実用化における経済性評価が今後の課題である。

以上を総合的に勘案すれば、次の7点に整理することができる。

- ① 経済性の試算によると窒化物燃料は $^{15}\text{N}$ 濃縮による経済負担を加えたとしても経済的に大きく不利となることはなさそうであり、さらに、高い受動的安全炉心が達成できる。さらに、Naボンド型燃料を用いることにより、ULOF事象、UTOP事象に対する自己制御性の抜本的強化を図ることができ、炉心崩壊事象を想定する必要のない大型高速炉を実現できる可能性が高い。
- ② 従来問題としていた窒化物燃料の高温分解については、受動的安全炉心における使用条件（ $\sim 400\text{W/cm}$ 程度）では定常状態においては問題とならない。また、同じ使用条件で $^{14}\text{N}$ と $^{15}\text{N}$ の増殖性の違いの差は無視できる。しかし、FCMIについては、クラッキングまたはリロケーションによる発生の可能性について照射試験での確認が必要である。
- ③ Heボンド型窒化物燃料サイクルの既存の酸化物燃料サイクルへの適用は、その一部変更あるいは工程追加によって可能となる。しかし、Naボンド型燃料は動燃では未経験なため、燃料製造、再処理ともに技術的な側面から及び許認上から可能であると結論付けることはできず、定量的な実現性評価が必要である。
- ④ 窒化物燃料サイクルに付随して $^{15}\text{N}$ 濃縮または $^{14}\text{CO}_2$ 処理処分のどちらかを選択しなければならない。現状の $^{15}\text{N}$ 濃縮コストの見通しでは、窒化物燃料を経済的に不利とすることはなさそうであるが、コスト低減のための技術開発が必要である。また、 $^{14}\text{CO}_2$ 処理処分は技術的には可能と考えられるものの実用化に当たってのコスト評価が必要である。両者とも経済的には負の方向に働くため、コスト等の比較検討によって選択しなければならない。
- ⑤ 第1ステップで得られた乾式リサイクル技術による金属燃料の燃料サイクルコストの試算結果を基準にして発電コスト（円/kWh）を評価すると、金属燃料は窒化物燃料より10%以上有利となった。ただし、窒化物燃料のコスト評価における試算値は第2ステップにおいては第1ステップより精度が向上しているため、金属燃料もそれに合わせてコスト評価の精度向上が必要である。
- ⑥ 金属燃料は窒化物燃料と同等のULOF時受動的炉停止能力を有し、Naボンド型窒化物燃料と同様にさらに自己制御性の強化を図れると考えられるが、UTOP事象に対しては不利な面がある。また、通常運転時の破損時に生ずる課題を解決する必要がある。
- ⑦ 金属燃料サイクル技術は経済的には有利となる可能性を有するもののエンジニアリング面で未開発の課題が多いため、実証は容易ではなく、実証できたとしても長期間を必要とすると思われる。

したがって、窒化物燃料と金属燃料を比較すると、前者の方が今のところ経済的に不利となる可能性はあるという試算値が得られたが、この結果は第2ステップで経済性評価の精度向上が図られた窒化物燃料の試算値と第1ステップの評価をそのまま用いた金属燃料の試算値との比較であり、金属燃料の経済性評価精度向上が要求される。一方、炉心安全面において受動的な安全炉心を追求した結果、窒化物燃料、金属燃料ともにULOF事象に対する自己制御性の抜本的強化を図ることが可能であることが示されたが、UTOP事象においては金属燃料は不利な面があることが分かった。しかし、炉心安全面で抜本的強化が可能と考えられるNaボンド型窒化物燃料の酸化物燃料型燃料サイクルでの実現性の評価検討を継続させる必要があり、また、 $^{15}\text{N}$ 濃縮と $^{14}\text{CO}_2$ 処理処分という酸化物燃料にはない課題もある。一方、金属燃料サイクルは熔融塩電解精製法の実証は容易でないと考えられる。

第1ステップの評価の前提条件は、原子炉側はコンパクト炉心性能の評価、そして燃料サイクル側は今回と同じであり、窒化物燃料は金属燃料より優位であると評価した。その結論を得たのは、両者とも炉心安全の向上が可能である（そのため、第2ステップの原子炉側の前提条件は受動的な安全炉心の追求とした）ものの、経済性で前者の方が有利であること、そして後者の燃料サイクル実用化まで長期間要することが主な理由である。第2ステップでは、経済性では逆に金属燃料の方が有利となり、また、炉心安全はUTOP事象に対する評価から窒化物燃料の方が有利と評価されるものの、受動的な安全性にのみ着目する場合には窒化物燃料と金属燃料の差はあまり大きくはない。しかし、第2ステップでは第1ステップの評価結果を受けて、窒化物燃料の評価に力点が移ってしまい、その結果窒化物燃料で様々な課題が見えてきたのに対し、金属燃料の課題は窒化物燃料ほど鮮明になっていないと考えることができる。したがって、現状では窒化物燃料と金属燃料を同じ評価レベルで比較検討することはできない。第3ステップにおいては今回と同様な前提条件の下に、窒化物燃料の課題について定量的な評価を加えるとともに金属燃料の評価精度を窒化物燃料なみに向上させ、両者を同じ視点で評価できるようにすることが肝要である。

## 5. 今後の新型燃料評価研究の進め方の基本的考え方

新型燃料の研究課題は、基礎研究としてデータを蓄積する項目とフィージビリティ研究として実用性を評価する項目に大別できる。ここでは、現時点で考えられる研究課題を網羅するとともに第3ステップの進め方について概要を報告する。

### 5.1 基礎研究課題

#### (1) 窒化物燃料

##### ① 照射試験の実施

- ・原研との共同研究を完遂する。
- ・動燃独自の窒化物燃料照射試験を行う。

##### ② FCM I 挙動評価

上記照射試験の評価の他に、挙動解析コードを整備して評価を行う。

##### ③ 高温分解から来る線出力限界の評価

炉外評価試験によって確認し、さらに上記照射試験で最終確認を行う。

##### ④ $^{15}\text{N}$ 濃縮技術評価

イオン交換法基礎試験を行う。

##### ⑤ 再処理技術評価

- ・溶解試験を行う。
- ・電解精製基礎試験を行う。

##### ⑥ $^{14}\text{C O}_2$ 処理技術評価

$\text{CO}_2$ の吸収固定試験等を行う。

##### ⑦ Na中に放出されたPu蒸気のカバーガス中への移行率評価

本課題は「常陽」設置変更許可申請時に、規模の大きい窒化物燃料照射試験を行う場合はデータが必要と規制当局より要求されたものである。炉外試験で評価する。

#### (2) 金属燃料

##### ① 照射挙動評価

文献調査等により照射データの収集を図る。

##### ② 熔融塩電解精製法の評価

模擬試料を利用して基礎試験を行い、PuとFP各元素の挙動の予測を行う。

## 5.2 フィージビリティ研究課題

### (1) 窒化物燃料, 金属燃料共通

#### ① FBRシステムへの新型燃料の適合性評価

我が国のFBR実用化時代におけるプラント規模, 安全性確保の考え方及び望ましい燃料サイクルの形態に対する考え方を勘案した上で, 両燃料がそれを満足するかどうか評価検討を行う。

#### ② 原子炉設計研究

上記FBR評価研究の成果を受け, 炉心の設計研究とその成立性評価を行う。

### (2) 窒化物燃料

#### ① 製造技術評価

- ・整備した設備を用いて製造試験を行う。
- ・Naボンド型燃料についてグローブボックスでの製造の可能性を評価する。

#### ② $^{15}\text{N}$ 濃縮技術評価

第2ステップでコスト評価を行ったNO-HNO<sub>3</sub>化学交換法のコスト低減化対策について検討する。

#### ③ 再処理技術評価

- ・溶解性の基礎試験(前述)により, 直接溶解法適用性の評価を行う。
- ・Naボンド材の直接溶解前処理として必要なNa不活性化技術の評価を行う。
- ・ $^{14}\text{C}$ の捕集に関し, オフガス処理の最適位置の評価を行う。
- ・酸化処理技術の評価する。
- ・熔融塩電解精製基礎試験(前述)により新しい乾式再処理法を評価する。

#### ④ $^{14}\text{CO}_2$ 処理・処分技術評価

- ・オフガス工程から $^{14}\text{CO}_2$ 除去技術の評価を行う。
- ・熔融塩電解による $^{14}\text{C}$ の固定化と除去法について検討する。
- ・ $^{14}\text{CO}_2$ 処分技術について, 成立性評価を行う。

### (3) 金属燃料

#### ① 乾式リサイクルプラントのエンジニアリング評価

セル内外の機器配置及び設備の運転保守を考慮した上で評価を行う。

#### ② 塩廃棄物前処理技術評価

実用化における経済性評価を行う。

### 5.3 第3ステップについて

#### (1) 第3ステップの目標及び進め方

- ・第1, 第2ステップに引き続いて, 新型燃料成立性評価を継続し, 一つの新型燃料システムの商業化への是非を判断できるようにするための材料をそろえることを第3ステップの目標とする。
- ・金属燃料の評価レベルを向上させることを主眼とし, 窒化物燃料と評価レベルを合わせる。
- ・両燃料の基本データの収集に努める。

#### (2) 第3ステップの評価計画及び具体化計画の作成

- ・当初の予定通り, 平成9年度を目途に両燃料の基本データの収集に努める。
- ・第3ステップ評価研究の具体化計画を早急に作成する。

### 5.4 国内外との協力

#### (1) 窒化物燃料

- ・PNC/CEA共同研究の中でCEAより情報入手に努めるとともに, 研究者の交替等積極的に働きかける。
- ・米国LANL及びロシアからの情報購入を検討する。
- ・原研との情報交換の場を作ることに努める。

#### (2) 金属燃料

- ・動燃としての方針を定めた上, 必要ならば国内外との協力を求める。

#### (3) 共通

外部に対して動燃としての新型燃料開発の基本的考え方を方向性を示し, 大学, 研究所, メーカーとの研究協力や委託を進める。