

8-5 金属燃料高速炉による核変換

1. はじめに

金属燃料高速炉サイクルの概要とその特性を踏まえたマイナーアクチニド (MA) 核変換技術の特徴、および国内外におけるMA合金燃料の開発動向について概説する。

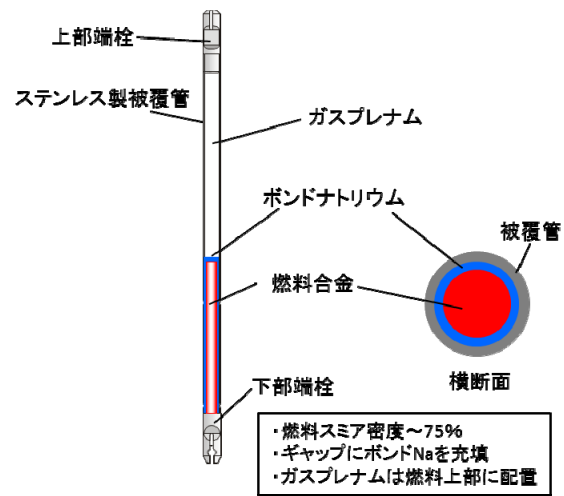
2. 高速炉金属燃料

高速炉の開発初期には、ウラン (U) やプルトニウム (Pu) を含む合金燃料が開発の中心であった^{1,2)}。これは、密度の高い燃料を用いることで増殖性の向上を目的としたことが主な理由として挙げられる。一方で、その当時の燃料設計では、核分裂生成ガス (FPガス) の蓄積による燃料合金のスエリング (すなわち膨張) に起因して、被覆管に過大な応力 (FCMI) がかかり、比較的低い燃焼度で燃料が破損するケースがあった。そのため、燃料の高燃焼度化が困難と判断され、開発の主流は軽水炉での利用実績が豊富な酸化燃料へと移行していった。一方、その後も米国アルゴンヌ国立研究所では、高速増殖実験炉 (EBR-II) のドライバ燃料としてU合金の開発が継続された。その結果、第1図に示すように燃料ピン内部に占める合金の割合 (すなわちスミア密度) をおよそ75%に低減し、被覆管とのギャップを広く確保することで、過大なFCMIの発生を抑制することや燃料と被覆管のギャップ部分に金属ナトリウム (Na) を熱的ボンダ材として充填することでギャップ熱伝達が向上し、燃料温度の低減化を図ることに成功した。

また、U-Pu合金にクロム (Cr) やモリブデン (Mo)、ジルコニウム (Zr) 等の高融点金属を添加し、融点を向上させる検討が行われた結果、実用的な燃料合金として10wt%のZrを添加したU-Pu-Zr燃料が有望と判断された。その後、米国内で実施されたIFR計画では、U-Zr合金やU-Pu-Zr合金燃料の開発が中心となり、約600本のU-Pu-Zr燃料ピンが製造され、EBR-IIやハンフォードの高速フラックス試験施設 (FFTF) において照射が行われた。これらの照射試験の結果、U-Pu-Zr (およびU-Zr) 燃料ピンが高燃焼度まで利用できることが明らかとなった³⁾。

U-Pu-Zr合金などの金属燃料には、酸素などの軽核が含まれていないため、スミア密度を75%に下げた場合にも第1表に示すように高い重金属密度が確保できる。第2図には、金属燃料および酸化燃料高速炉の炉内中性子スペクトルの解析例を示す。金属燃料では軽核による中性子の減速効果がないため、スペクトルが硬くなり、核分裂あたりの発生中性子数が増加する。また、合金自体の熱伝導率が高い上、金属Naとの両立性が良くボンダNaが利用できるため、燃料の除熱性にも優れている。した

がって金属燃料を用いれば、余剰中性子の有効利用による燃焼反応度の低減や高い除熱性を活用することにより炉心の受動的安全性の拡張を図ることができる。さらに長寿命MAの核変換に有利な高エネルギー中性子の割合が高く、MA添加率などの条件をあわせた酸化燃料炉心に比べ、核変換効率をおよそ2割向上できるなど、将来の高度なニーズに幅広く対応する高性能な炉心設計が可能となる。

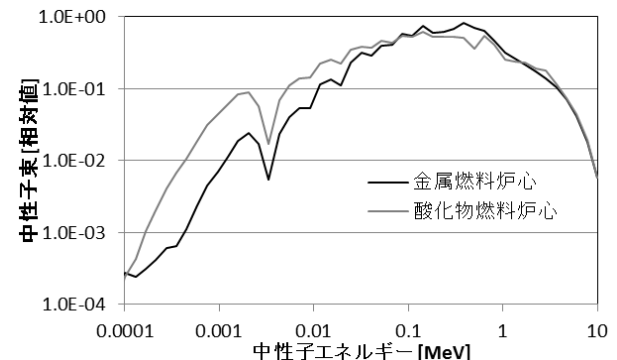


第1図 金属燃料ピンの概念図

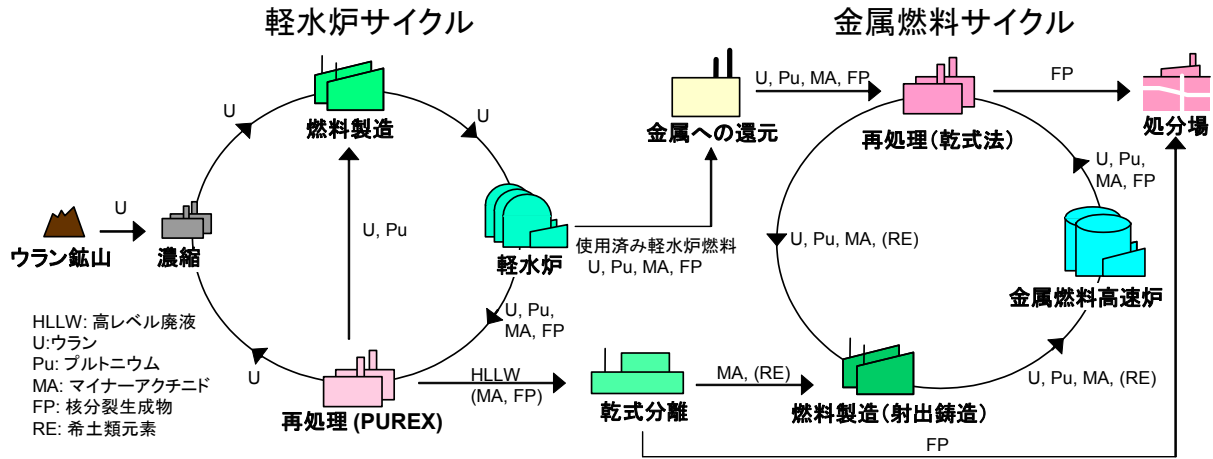
第1表 金属燃料と酸化燃料の主な物性値

	金属燃料	酸化燃料
組成 [wt%]	U-Pu-10Zr	(U, Pu)O ₂
理論密度 [g/cc]	15.8	11
スミア密度 [%TD]	75	84
重金属密度* [g/cc]	8.3	6.3
熱伝導率 [W/mK]	26.6	2.3
融点 [K]	1400	3000

*: ピン径=8.5mm、被覆管肉厚=0.5mmの燃料ピン平均値



第2図 金属燃料炉心と酸化燃料炉心の炉内中性子スペクトルの例



第3図 軽水炉サイクルおよび金属燃料サイクルの概念と物質フローの概要

3. 乾式リサイクル技術

金属燃料サイクルでは、燃料形態との相性の良さから、熔融塩による電解精製を主工程とする乾式再処理法の利用が最適とされている。第3図に軽水炉サイクルと金属燃料サイクルによる物質フローの概要を示す。乾式再処理法の原理やその特徴に関する詳細は別章に示す通りであるが、ここでは、Puの回収工程においてUとMAが一部の希土類元素（RE）と共に同時に回収される点について重ねて指摘しておく。すなわち、金属燃料サイクルでは標準的なプロセスにおいて、新燃料にMAやREが混入することとなる。新燃料にMAなどが混入することは、その取扱いを困難にする一方で、核不拡散上のアドバンテージとも位置付けられている。

さらに、高レベル廃棄物処分場の負担を軽減するため、軽水炉で生成したMAも金属への還元工程や乾式分離工程を経て、金属燃料サイクルに受入れる概念の検討も進められている。第2表には、様々なMA回収経路による新燃料組成の概略値を示す。再処理プラントの施設設計に依存するところが大きいものの、希土類FPの除染係数を10（乾式リサイクル技術の実用化開発目標値）とした場合、軽水炉起源のMA回収物には、ほぼ同重量のREが随伴する。

4. 金属燃料の製造法

高速炉燃料はPu濃度が比較的高く、特に金属燃料の場合には、MAの混入が不可避であることから、その燃料製造技術として、遠隔操作性に優れた射出鋳造法が開発されている。第4図に射出鋳造による燃料製造の概念を模式的に示す。この方法の場合、燃料組成の均一化を図る手段が、第4図中の1の工程における高周波誘導加熱による熔融燃料の対流や電磁攪拌であることから、燃料合金の原料となる各物質の液相での混合性が重要となる。

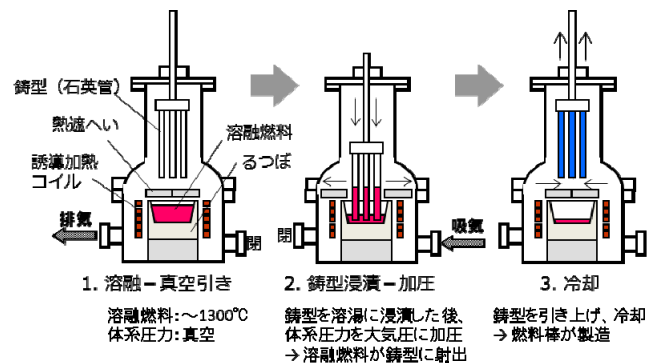
U-Pu-Zr合金にネプツニウム(Np)やアメリカシウム(Am)等のMAのみを添加したU-Pu-MA-Zr合金の場合には、容

第2表 MA回収経路による新燃料組成の概略値

MAの回収経路	新燃料組成 [wt%]**
	U-Pu-10Zr-xMA-yRE
使用済み金属燃料の再処理*	$x \leq 0.8, y \leq 0.5$
使用済み軽水炉燃料の還元	$x \leq 2.0, y \leq 1.5-2.0$
高レベル廃液の乾式分離	x, y = 調整可能

*:大型金属燃料高速炉のリサイクル平衡値

**：希土類FPの除染係数（DF）=10



第4図 射出鋳造による金属燃料の製造

易に数10wt%のMAが均一に混合される一方で、乾式リサイクル技術で想定されるREの混入を考慮する場合には、RE（とMA）を多く含む析出相が燃料の母相から分離するため、REの過剰な混入は避ける必要がある⁴⁾。

様々な組成条件を対象に行われたこれまでの試験検討の結果によれば、REおよびMAの添加率を2-5wt%に抑えた合金では、RE析出相の外径は10μm程度以下と比較的小さく、燃料合金内にほぼ均一に混合・分散することが確認されている⁴⁾。但し、このような有意な量のREを含む金属燃料を射出鋳造によって製造した例はほとんどなく、MA添加金属燃料の実用化に向けた今後の課題の一つと考えられる。

上述のように、金属燃料リサイクルでは標準プロセスにおいて新燃料にMAやREが混入し、また燃料合金の均

質性を確保するためにMAと同時に回収されるREの過剰な混入を避ける必要があるといった特徴から、金属燃料の場合には、比較的濃度のMA（およびRE）を多数基の高速炉でリサイクルする「均質サイクル」によるMA核変換が適当と考えられる。

5. 金属燃料高速炉によるMA核変換

MAをリサイクルし、UやPuとともにU-Pu-MA燃料として高速炉で燃焼させる場合、通常のU-Pu燃料に比べ、MAの高速核分裂によるスペクトルの変化やU割合の減少による冷却材温度係数やドップラー係数といった核的安全性パラメータが影響を受けると予想される。

第3表には、ブランケット燃料を装荷しない富化度2領域均質炉心を対象にU-Pu-Zr合金にMA（Np, Am, Cm）を均質に添加したU-Pu-Zr-MA燃料の燃焼特性解析結果の例をまとめる⁵⁾。MA添加率は、金属燃料サイクルによって繰り返しリサイクルされることを想定した平衡値である0.8wt%、および使用済み軽水炉燃料の還元および乾式再処理による回収を想定した2.0wt%、さらに高レベル廃液からの乾式分離による回収MAを添加して、5.0wt%に調整した合金燃料の3通りについて示している。RE添加率は、それぞれのMA回収工程においてDF=10として定めている。

金属燃料サイクルによるリサイクル平衡燃料の場合、MAの炉内インベントリーは燃焼によってほとんど変化せずにバランスする。また、MA添加率を2.0%-5.0%に増大させると、燃焼前後のMA変換率は37-53%に増加する。これは同規模の軽水炉による生成量のおよそ2-7倍に相当するMAが単基の金属燃料高速炉で核変換できることを意味している。さらに、わずかではあるがPu富化度を低減できる効果もある。一方で、MA添加によって安全パラメータが相対的に非安全側に变化し、5.0wt%のMA添加燃料では、リサイクル平衡燃料の場合に比べ、冷却材温度係数がおよそ2割増大する。したがって、MA核変換技術の成否を判断するには、MA含有燃料の成立性や核変換特性だけでなく、これらの炉心パラメータが実用的な値に抑えられることにも留意が必要である。

6. MA核変換技術に関する開発動向

高速炉燃料の実用化を目指した開発が国内外で進められている中、MA含有合金の特性やその照射挙動についての研究も米国、欧州、日本を中心に進められている。以下に、最近報告されたMA含有金属燃料の照射試験や炉外試験の概要をまとめる。

6.1 X501試験⁶⁾

米国アルゴンヌ国立研究所において、3.4%MA含有合金（U-20.3Pu-10.0Zr-2.1Am-1.3Np）が、射出鑄造法によって製造され、EBR-IIによる金属燃料照射試験シリーズの一環として照射された。取出し平均燃焼度は7.6at.%、ピーク線出力は45kW/m、燃料中心最高温度は700℃であり、Am-241の核変換率は9.1%と報告されている。

燃料横断面の組織観察の結果、Amは母相に存在せず、燃料中心領域と燃料外周部の連結ポア領域に局在していた。この傾向は、燃料と被覆管の化学的な相互作用（FCCI）に大きく関与するREの挙動と類似している。つまり、AmがREとともにFCCIに関与する可能性を示唆している。ただし、この燃料では被覆管内面へのAmの移動は確認されていない。この他、REと安定な化合物を形成する元素（InやTl等）を予め燃料合金中に添加することにより、FCCIを抑制するアイディアも提案されている⁷⁾。

6.2 METAPHIX試験^{4,8)}

（一財）電力中央研究所と欧州超ウラン元素研究所との共同研究として、仏国フェニックス炉でMA含有合金燃料サンプルが照射された。MA含有合金の組成は、U-19Pu-10Zr-2MA-2RE（MA組成1.2Np+0.7Am+0.2Cm）、U-19Pu-10Zr-5MA-5RE（MA組成3Np+1.5Am+0.3Cm）、U-19Pu-10Zr-5MA（MA組成3Np+1.5Am+0.3Cm）の3種類であり、約2.5at.%、約7at.%、約10at.%の3通りの燃焼度まで照射された。

これらの照射サンプルは、アーク鑄造法と高温冶金法を用いて製造された。照射中の最大線出力は約33kW/m、被覆管最高温度は約570℃である。これまでにすべての照射が完了しており、照射済み燃料ピンの非破壊検査と約

第3表 富化度2領域均質炉心によるMA添加金属燃料による燃焼特性解析結果の例

	金属燃料サイクルのリサイクル平衡		軽水炉起源のMAをリサイクル	
MA/RE添加率 [wt%]	0.8/0.5 ²	2.0/1.5 ²	5.0/3.5 ²	
Pu富化度 [wt%]	14.8/20.1 ²	14.7/19.7 ²	14.1/19.3 ²	
燃焼反応度 [%Δk/kk']	2.0	1.8	1.5	
増殖比	1.07	1.07	1.09	
MA変換率 ¹ [%]	-	37	53	
ドップラー係数 [10 ⁻³ Tdk/dt]	-2.26	-2.20	-2.09	
冷却材温度係数	0.254	0.273	0.310	

1：MA変換率=(燃焼前後のMAインベントリーの変化) / (燃焼前のMA装荷量)

2：内側炉心燃料/外側炉心燃料

2.5at.%および7at.%燃焼度まで照射された燃料の照射後試験が実施されている。これまでの観察からは、燃料中心付近の高温領域や燃料外周部付近において、REを含むMA析出相の成長が見られているものの、被覆管の変形量やプレナムへのFPガス放出などに関しては、いずれの組成の燃料においてもU-Pu-Zr三元合金燃料と大きく異なることが確認されている。

6.3 AFC試験⁹⁾

AFCI(Advanced Fuel Cycle Initiative)計画のもと、米国ATRで以下のように様々な燃料組成を有するMA含有合金の照射試験(AFC-1およびAFC-2)が行われている。

AFC-1試験シリーズ：

Pu-40Zr、Pu-60Zr、Pu-12Am-40Zr、Pu-10Np-40Zr、
Pu-10Am-10Np-40Zr、U-25Pu-3Am-2Np-40Zr、
U-28Pu-7Am-30Zr、U-29Pu-4Am-2Np-30Zr、
U-34Pu-4Am-2Np-30Zr

AFC-2試験シリーズ：

U-20Pu-3Am-2Np-15Zr、U-20Pu-3Am-2Np-1RE-15Zr、
U-20Pu-3Am-2Np-1.5RE-15Zr、U-30Pu-5Am-3Np-20Zr、
U-30Pu-5Am-3Np-1RE-20Zr、
U-30Pu-5Am-3Np-1.5RE-20Zr

AFC-1試験は照射を全て完了し、照射後試験が進められている。これまでの照射後試験により、以下が確認されている。

- U-Pu-Zr三元合金と比較してMA含有合金では、FPガス放出を開始する燃焼度が遅くなるものの、最終的なFPガス放出率は三元合金とおおむね一致する。
- 燃料スエリングは三元合金よりも高燃焼度側で生じるため、低スミア密度燃料とすることにより、超高燃焼度が期待される。

一方、AFC-2試験ではより実用的な燃料組成を対象に照射挙動データの蓄積を目指した試験が行われている。

6.4 FUTURIX-FTA試験¹⁰⁾

米国DOEと仏国CEAは共同で、35U-29Pu-4Am-2Np-30Zr、48Pu-12Am-40Zrの2種類のMA含有合金燃料をフェニックス炉で照射し、その照射後試験を進めている。燃焼度は7.0-11.4at%、線出力は約27-32kW/mである。なお、本照射試験では、上記組成の金属燃料の他にもMA添加窒化物燃料や酸化燃料と不活性母材を組み合わせたCERMET燃料やCERCER燃料なども照射している。

2014年の時点で照射済み金属燃料は米国INLへの輸送が完了しており、照射後試験の準備が進められている。

7 まとめ

本稿では高速炉金属燃料サイクルとそれを用いたMA核変換技術について概説した。金属燃料高速炉によるMA核変換には以下の特徴が挙げられる。

- 金属燃料のリサイクル技術として最適とされる乾式再処理法や乾式分離法では、MAと共にREの一部が同時に回収される。
- 燃料合金の均質性確保の観点からは、MAおよびREの添加率は2-5wt%程度に抑える必要がある。
- MA添加による炉心の安全パラメータの変化を実用的な範囲に抑えることに留意する必要がある。

これらの特徴から、金属燃料の場合には、2-5%程度の比較的低濃度のMA(およびRE)を多数基の高速炉でリサイクルする「均質サイクル」によるMA核変換の実施が、技術的課題も少なく、実用化に近いと考えられる。一方で、REの除染係数向上を目指した検討も進められており、炉心の安全パラメータ改善に効果が高い非均質体系炉心の開発などとあわせれば、高濃度MA含有金属燃料による核変換も十分に可能と考えられる。

将来の核燃料サイクルへの高度な要求に応えるため、高速炉によるMA核変換に関する様々な概念について、確実な研究開発の継続が重要と考えられる。

参考文献

- 1) Kittel, J.H., et al., "History of fast reactor fuel development," *J. Nucl. Mater.*, 204, 1 (1993)
- 2) G. L. Hofman et al., "Metallic Fast Reactor Fuels," *Materials Science and Technology, A Comprehensive Treatment*, R. W. Cain, et al., Eds., in *Nuclear Materials*, Vol. 10A, Part 1, B. R. Frost, Ed., VCH Verlagsgesellschaft (1994).
- 3) R. G. Pahl et al., "Steady-State Irradiation Testing of U-Pu-Zr Fuel to > 18 at.% Burnup," *Proc. Int. Fast Reactor Safety Meeting*, Snowbird, Utah, August 12-16, 1990, Session 2 Vol. IV, 129 (1990).
- 4) H. Ohta et al., "Development of Fast Reactor Metal Fuels Containing Minor Actinides", *J. Nucl. Sci. and Technol.*, Vol. 48, No. 4, pp. 654-661, 2011.
- 5) T. Yokoo, et al., "The Transuranic Mass Balance during the Introduction of Metal Fuel FBR Cycle," *J. Nucl. Sci and Technol.*, vol. 36, No. 9 761-766 (1999).
- 6) C.L. Trybus et al., "Casting of Metallic Fuel Containing Minor Actinide Additions", *J. Nucl. Mater.* 204 (1993) 50.
- 7) Y.S. Kim et al., "Migration of MA and RE in Metallic Fuel", *Trans. American Nuclear Society*, 98 (2008) pp.1071.
- 8) Kurata et al., "Fabrication of U-Pu-Zr Metallic Fuel Containing Minor Actinides", *Global 1997*.
- 9) J. Carmack et al., "Review of Transmutation Fuel Studies," *INL/EXT-08-13779*
- 10) S. Hayes, et al., "Status of Transuranic Bearing Metallic Fuel Development," *Global 2009*.

電力中央研究所 太田 宏一
(2015年10月9日)