

一般セッション | III. 核分裂工学：302-1 新型炉システム

2024年9月13日(金) 14:45 ~ 16:10 G会場(講義棟B棟1F B101)

[3G11-15] 熔融塩炉2

座長:岡村 茂樹(JAEA)

14:45 ~ 15:00

[3G11]

塩化物熔融塩高速炉のフィージビリティ研究 (IV)

(6) 塩化物燃料物性評価

*山下 京也¹、有田 裕二¹ (1. 福井大)

15:00 ~ 15:15

[3G12]

塩化物熔融塩高速炉のフィージビリティ研究 (IV)

(7) 再処理プロセス構築に必要な塩化物熔融塩/液体金属間におけるアルカリ・アルカリ土類の分配挙動測定

*村上 毅¹、小山 正史¹ (1. 電中研)

15:15 ~ 15:30

[3G13]

塩化物熔融塩高速炉のフィージビリティ研究 (IV)

(8) 塩化物共晶塩とNi基合金のNiイオン照射後腐食試験による照射下共存性研究

*竹林 大騎¹、福元 謙一¹、有田 裕二¹、石神 龍哉² (1. 福井大、2. 若狭湾エネ研)

15:30 ~ 15:45

[3G14]

塩化物熔融塩高速炉のフィージビリティ研究 (IV)

(9) 腐食挙動試験及び解析

*渡邊 崇¹、鈴木 祐太¹、後藤 琢也¹ (1. 同志社大)

15:45 ~ 16:00

[3G15]

MHD電解フィルタ開発に向けたフッ化物熔融塩中における溶存水の挙動評価

*穴戸 博紀¹、橋爪 秀利¹ (1. 東北大)

16:00 ~ 16:10

座長持ち時間

塩化物溶融塩高速炉のフィージビリティ研究（IV）
（6）塩化物燃料物性評価

Feasibility Study of Integral Molten Chloride Salt Fast Reactor (IV)
(6) Thermophysical Properties Evaluation for Chloride Fuel

*山下 京也¹, 有田 裕二¹
¹ 福井大学

溶融塩燃料中での FP（核分裂生成物）、CP（腐食生成物）、AP（放射化生成物）の挙動および融解挙動を模擬燃料を用いて評価した。FP、CP、AP は燃料と反応し、ガスや固体を形成することが示唆された。熱分析により 3 元系模擬燃料の融点を測定した。

キーワード：核燃料、熱物性、溶融塩炉

1. 緒言

溶融塩炉の実用化に向けて、FP 等の挙動や燃料の熱物性値を整理する必要がある。本研究では、熱力学平衡計算によって燃料と FP・CP・AP との反応を評価し、熱分析によって模擬燃料の融点を測定した。

2. 実験概要

熱力学平衡計算ソフト FactSage を使用し、燃料、FP、CP、AP を入力値として、平衡状態で炉内に存在するガス種と固体化合物の種類・質量を計算した。

化学的性質の類似性から (U, Pu) を (La, Ce) で模擬した 2 種類の模擬燃料を使用し、熱分析を実施した。TG-DSC (NETZSCH 製, STA 449 C Jupiter) を用いて、模擬燃料の融点を測定した。なお、大気との反応を考慮し、秤量は Ar 雰囲気内の GB 内で行い、DSC 測定は Ar フローで実施した。

3. 結果および考察

熱力学平衡計算の結果、ガス種として UCl_4 が多く揮発することが示唆され、揮発成分の回収機構の設置や燃料組成の再検討が必要だと考えられる。また、固体化合物としては、塩化物、白金族化合物、テルル化合物が燃料中に析出する可能性が示唆された。それらの高融点化合物について、文献調査や実験 (DSC, XRD) によって融点を確認した (図 1)。析出物は構造材への浸食や燃料物性の変化を引き起こす恐れがあるため、詳細な影響をコーロド試験によって確かめる必要がある。

模擬燃料の DSC 測定を実施し、加熱時にみられた吸熱ピークを図 2 に示す。吸熱ピークの開始点を融解温度として評価し、外挿で得た 0°C/min の値を模擬燃料の融点として評価した。La 系模擬燃料、Ce 系模擬燃料の融点はそれぞれ $463.9 \pm 0.1^\circ\text{C}$ 、 $497.4 \pm 2.2^\circ\text{C}$ であった。

謝辞

本研究は、経済産業省の令和 5 年度「社会的要請に応える革新的な原子力技術開発支援事業」の一環として、原子力研究開発機構から委託を受けて実施したものである。

*Kyoya Yamashita¹, Yuji Arita¹

¹Univ. of Fukui

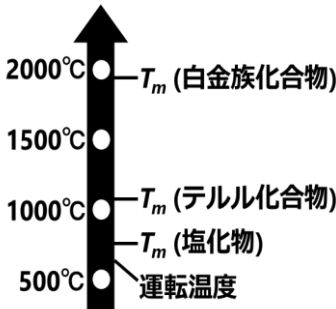


図 1 溶融塩炉の運転温度と高融点化合物の融点の関係

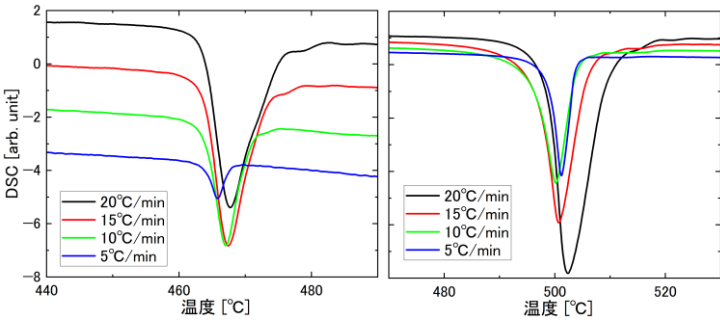


図 2 La 系模擬燃料 (左)、Ce 系模擬燃料 (右) の吸熱ピーク

塩化物溶融塩高速炉のフイージビリティ研究 (IV)
(7) 再処理プロセス構築に必要な塩化物溶融塩/液体金属間における
アルカリ・アルカリ土類の分配挙動測定

Feasibility Study of Integral Molten Chloride Salt Fast Reactor (IV)

(7) Distribution behavior of alkali and alkaline earth elements in molten chloride salt/liquid metal system
to construct reprocessing process

*村上 毅¹, 小山 正史¹
¹電中研

抄録 塩化物溶融塩燃料の乾式再処理プロセスを設計・評価するためには、アクチノイドや核分裂生成物(FP)の塩化物溶融塩/液体金属間における分配挙動を明らかにする必要がある。本研究では、FPのうちアルカリ元素およびアルカリ土類元素の溶融 NaCl-CaCl₂/液体 Bi 間における分配挙動を測定した。

キーワード：塩化物溶融塩燃料，乾式再処理，アルカリ元素，アルカリ土類元素

1. 緒言

使用済み塩化物溶融塩燃料の乾式再処理は、主工程である還元抽出工程に加え、還元抽出に必要な還元剤の電気化学的回収工程や核分裂生成物(FP)の安定固化工程等からなる[1]。還元抽出工程では、アクチノイドと核分裂生成物(FP)の溶融 NaCl-CaCl₂と液体 Bi の間における分配挙動の違いを利用して、アクチノイドを液体 Bi 中へ回収するとともに FP から分離する。これまでに主要な FP である希土類(La, Ce, Pr, Nd, Gd)の分配挙動[2]は測定したことから、本研究では、アルカリ元素(Cs)およびアルカリ土類元素(Sr)の分配挙動を測定した。さらに、得られた結果を基に乾式再処理プロセスにおける各元素のマスバランスを検討した。

2. 実験

高純度アルゴン雰囲気グローブボックス内にて、溶融 NaCl-CaCl₂-CsCl-SrCl₂-CeCl₃ 中(823 K)のアルカリ元素およびアルカリ土類元素を液体 Bi 中へ還元抽出する試験を実施した。試験後の溶融塩中および液体 Bi 中の各元素濃度の定量分析結果を基に Na 基準の分離係数(SF)を求めた。これまでに得られている希土類の分配挙動[2]との比較のために、Ce の分離係数も測定した。還元抽出反応($M^{n+} + nNa_{in\ Bi} \rightarrow M_{in\ Bi} + nNa^+$ 又は $2M^{n+} + nCa_{in\ Bi} \rightarrow 2M_{in\ Bi} + nCa^{2+}$ (M=Ce のとき n=3, M=Sr のとき n=2, M=Cs のとき n=1))を進行させるための還元剤として Na-Ca 合金を液体 Bi 中に添加した。

3. 結果

還元抽出反応により、Cs, Sr および Ce を液体 Bi 中に回収した場合の溶融 NaCl-CaCl₂/液体 Bi 間における分配挙動を測定した。得られた分離係数を表 1 に示すように、液体 Bi 中への抽出されやすさは、Ce>Sr>Na>Cs と評価された。得られた結果、これまでに測定した希土類に関する基礎データ[2]、アクチノイドに関する既往の熱力学データ等に基づいて、使用済み塩化物溶融塩燃料の乾式再処理プロセスにおけるアクチノイドや FP のマスバランスを評価した。その結果、FP から分離しながら、ほぼすべてのアクチノイドを新燃料塩としてリサイクルできることが確認された。本研究は、経済産業省の令和 5 年度「社会的要請に応える革新的な原子力技術開発支援事業」の一環として、日本原子力研究開発機構から委託を受けて実施したものである。

参考文献

[1] 山脇道夫ら、日本原子力学会誌 ATOMOS, 63 (2021) 791.、[2] 村上毅ら、日本原子力学会 2023 年秋の大会予稿集 2H06.

*Tsuayoshi Murakami¹ and Tadafumi Koyama¹, ¹CRIEPI

表 1 Na 基準の Sr, Cs, Ce の分離係数(*SF_M)

SF _{Sr}	SF _{Cs}	SF _{Ce}
3.0×10 ⁻²	1.8	3.3×10 ⁻⁴

*SF_M = ((X_{M in salt})^{1/n} / (X_{M in Bi})^{1/n}) / (X_{Na in salt} / X_{Na in Bi})。
X_{M in salt} は溶融塩中の元素 M イオン濃度、X_{M in Bi} は液体 Bi 中の元素 M 濃度である。M=Ce のとき n=3、M=Sr のとき n=2、M=Cs のとき n=1 である。

塩化物溶融塩高速炉のフィージビリティ研究 (IV)

(8) 塩化物共晶塩と Ni 基合金の Ni イオン照射後腐食試験による 照射下共存性研究

Feasibility Study of Integral Molten Chloride Salt Fast Reactor (IV)

(8) Research trial about compatibility under ion irradiation on Ni-based alloy with chloride salt

*竹林 大騎¹, 福元 謙一², 有田 裕二², 石神 龍哉³

¹ 福井大院工, ² 福井大原子力研, ³ 若エネ研

本研究は Ni^{3+} イオン照射を行った Ni 基合金の Hastelloy-C276、Hastelloy-N と塩化物溶融塩の $\text{NaCl-CaCl}_2\text{-CeCl}_3$ 三元系共晶塩の反応試験を行い、反応初期における腐食への照射材中の照射欠陥の影響を調査する目的で行った。

キーワード： 溶融塩, イオン照射, 腐食, Ni 基合金

1. 緒言

溶融塩炉で使用する溶融塩である塩化物塩と構造材料の腐食挙動に関する知見は少ない。過去、本研究グループの研究にて Hastelloy 合金と $\text{NaCl-CaCl}_2\text{-CeCl}_3$ 塩化物溶融塩の腐食反応過程^[1]と腐食反応初期過程において He^+ イオン照射による照射欠陥の影響は小さいこと^[2]を明らかにした。本研究では、 Ni^{3+} イオン照射を用いて反応初期過程における腐食への照射材中の照射欠陥の影響について Ni 基合金に対し塩化物溶融塩環境下で反応試験を行い、反応前後の断面組織観察から高温・溶融塩環境における腐食による照射欠陥の影響について調査した。

2. 実験方法

試料として Ni 基合金の Hastelloy-C276、Hastelloy-N を用いた。試料を短冊状に加工し焼鈍を行い、若狭湾エネルギー研究センターのタンデム加速器を用いて 600°C にて最大損傷量 1.7dpa 相当の Ni^{3+} イオン照射を行った。塩化物塩として $\text{NaCl-CaCl}_2\text{-CeCl}_3(35\text{-}35\text{-}30\text{mol}\%)$ の三元系共晶塩を使用し、反応試験を 600°C 、5h と 10h で行った。反応試験前後に質量測定を行い、FIB により採取した断面組織試料を用いて TEM 観察を行った。

3. 実験結果・考察

5h 反応試験前後の質量測定により、 Ni^{3+} イオン照射を行った試料は未照射の試料より質量減少量(mg/cm^2)が約 2 倍大きいことが確認された。表面付近に導入された欠陥が塩との接触面積を増大させたためだと考えられる。反応前照射試料の TEM 観察により $2.0\mu\text{m}$ までのイオン飛程範囲内にて照射欠陥分布に従って格子間型欠陥集合体や転位ループ組織形成が確

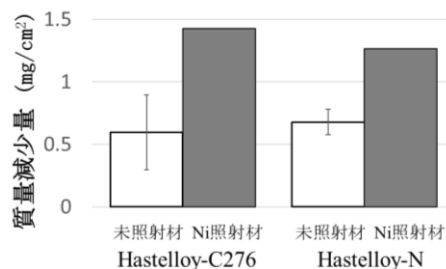


図 1. $600^\circ\text{C}\times 5\text{h}$ 反応試験前後での質量減少量

認された。 He^+ イオン照射とは異なりボイド形成は観察されなかった。反応試験により表面から 150nm 程度の領域が腐食反応によって失われたことが確認された。反応前後の照射試料の損傷組織観察の比較は当日に報告する。

謝辞：本研究は、経済産業省の令和 5 年度「社会的要請に応える革新的な原子力技術開発支援事業」の一環として、原子力研究開発機構から委託を受けて実施したものである。

参考文献

[1] 福元 中川 有田 日本原子力学会 2022 秋の大会 発表番号 2F18

[2] 竹林 福元 有田 石神 日本原子力学会 2023 秋の大会 発表番号 2H07

*Daiki Takebayashi¹, Ken-ichi Fukumoto², Yuji Arita², Ryoya Ishigami³

¹ University of Fukui, ² Research Institute of Nuclear Engineering, ³ The Wakasa wan Energy Research Center

塩化物溶融塩高速炉のフィージビリティ研究（IV）
（9）腐食挙動試験及び解析

Feasibility Study of Integral Molten Chloride Salt Fast Reactor (IV)

(9) Tests and Analysis of Corrosion Behavior

*渡邊 崇¹，鈴木 祐太¹，後藤 琢也¹

¹同志社大

塩化物溶融塩中でのハステロイ合金の腐食現象について、FP 成分として想定される 4f 元素から成る塩（NdCl₃，SmCl₃，GdCl₃，EuCl₃）が腐食挙動に与える効果を明らかにするために、系統的な腐食挙動解析を電気化学インピーダンス測定や分極測定、および高温ラマン分光分析により行った。

キーワード：溶融塩化物，ハステロイ N，腐食解析，高温ラマン分光分析

1. 緒言

塩化物溶融塩高速炉の運転時に生成される FP 成分が与える腐食挙動への影響を明らかにすることを目的とし、NdCl₃、SmCl₃、GdCl₃、EuCl₃ を含む溶融 NaCl-CaCl₂ 中での Hastelloy N の腐食挙動試験及び解析を行った。当研究グループで既に報告している分析手法^[1]を利用し、材料寿命の迅速診断には電気化学測定とグロー放電発光分析法(GD-OES)を用い、溶融塩中での各種イオンの挙動解析には高温ラマン分光分析を実施した。

2. 実験方法

1 cm 角の Hastelloy N 基板を試験用サンプルとし、塩化物溶融塩中での分極測定を行った。浴は 873 K の溶融 NaCl-CaCl₂（50:50 mol%）を用い、NdCl₃、SmCl₃、GdCl₃、EuCl₃ を各 0.10 mol% 添加していった。分極曲線から得られた腐食電流密度および GD-OES から得られた Hastelloy N 表面の元素組成から各系での腐食速度を評価した。また、溶融状態での溶融塩の構造と腐食挙動の相関について、溶融塩の融体構造を顕微ラマン分光分析により計測した。

3. 結果

各浴組成に対する Hastelloy N の腐食速度を図 1 に示す。NaCl-CaCl₂ 中における Hastelloy N の腐食速度が 0.47 mm year⁻¹ であるのに対し、添加する FP 含有塩の種類により腐食速度が変化した。特に、NdCl₃ が混合された場合には腐食速度の増加量は小さく、一方で EuCl₃ が混合された場合において最も腐食速度が増加した。この腐食のしやすさに関する傾向は、交流インピーダンス計測においても同様に見られた。

図 2 は、各浴のラマン分光分析結果を示す。最も腐食速度が増加する傾向を示した EuCl₃ が混合された系において浴構造が大きく変化する結果が得られた。これは、腐食界面において液相構造の変化が腐食性に影響を与えることを示している。本研究結果は FP を考慮した溶融塩設計が腐食制御に対して重要であることを示唆するものである。

[1] Y. Suzuki, T. Watanabe, T. Goto, *Nucl. Eng. Des.*, 415, 112699 (2023).

*Takashi Watanabe¹, Yuta Suzuki¹ and Takuya Goto¹

¹Doshisha Univ.

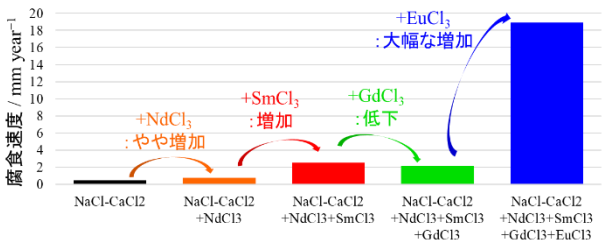


図 1. Hastelloy N の腐食速度

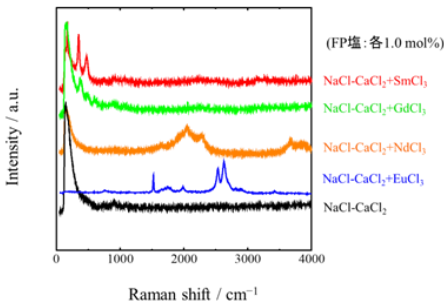


図 2. 高温ラマンスペクトル

MHD 電解フィルタ開発に向けたフッ化物溶融塩中における溶存水の挙動評価

Evaluation of the behavior of impurity water dissolved in a molten fluoride salt for developing an MHD electrolytic filter

*宍戸 博紀¹, 橋爪 秀利¹

¹東北大

磁場中を横切ることによって生じる起電力を利用した電解フィルタの開発に向け、電子状態計算に基づいた分子動力学計算により、溶融塩中に溶存する不純物としての水の構造および輸送特性について評価する。

キーワード：電気分解，分子動力学法，密度汎関数理論，腐食，溶融塩炉

1. 背景 溶融塩は第4世代原子炉における燃料および冷却材として利用が検討されている[1]。これら工学利用において構造材との共存性は重要な問題であり、溶融塩中に溶存する水分等の不純物が腐食を引き起こす大きな要因といわれている[2]。これを受けて著者らは、外部から磁場を印加し、これを横切ることによって生じる起電力により、運転しながら溶融塩中の水分等を電解除去する MHD (Magnetohydrodynamics) 電解フィルタを提案している。当該システムの開発に向けて、電気分解に必要な電位や拡散律速と思われる中での電極反応速度などを評価するために、溶融塩中における不純物の挙動を明らかにする必要がある。以上から本研究では、電子状態計算に基づいた分子動力学 (MD) 計算により、溶融塩中に溶存する不純物としての水の構造および輸送特性について評価する。

2. 数値解析手法 計算対象は原子力利用において一般的な LiF-BeF₂ 混合塩 (BeF₂ モル比 33%) とする。計算セル中のイオン数は、LiF-BeF₂ が 63 個、水分子が 1 個である。計算においては VASP.6.4.3 を使用した[3]。PAW 型擬ポテンシャルを用い、PBE 交換相関汎関数を使用した。MD 計算は NVT アンサンブルにて行い、時間ステップ 0.5 fs とした。MD 計算中の全エネルギーのドリフトは 0.6 meV atom⁻¹ ps⁻¹ 程度であった。MD 計算結果より平均二乗変位を算出し、アインシュタインの関係式に基づいて自己拡散係数を評価する。

3. 数値解析結果 図1に各元素の平均二乗変位を、図2に自己拡散係数のアレニウスプロットを示す。水分子の拡散挙動はO原子の拡散係数として評価する。アレニウスの関係の通り、酸素の拡散係数の対数値は T^{-1} に対して線形性を示しており、さらにその傾き、すなわち活性化エネルギーは他元素よりも大きい結果が得られた。BeF₄²⁻の連鎖したガラス状の構造に捕捉されながら水は運動するであろうことが予想されたが、それに束縛されずに運動している可能性が示された。

参考文献

- [1] R. Scarlat et al., Prog. Nucl. Energy 77 (2014) 406-420. [2] M. Kondo et al., Fusion Eng. Des. 85 (2010) 1430-1436.
[3] G. Kresse et al., Phys. Rev. B 47 (1993) 558-561.

*Hiroki Shishido¹, Hidetoshi Hashizume¹

¹Tohoku Univ.

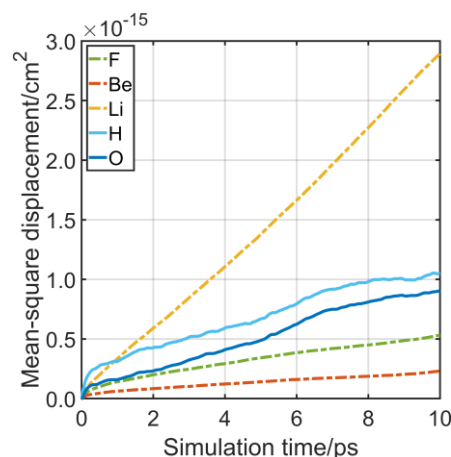


図1 各元素の平均二乗変位 (973 K)

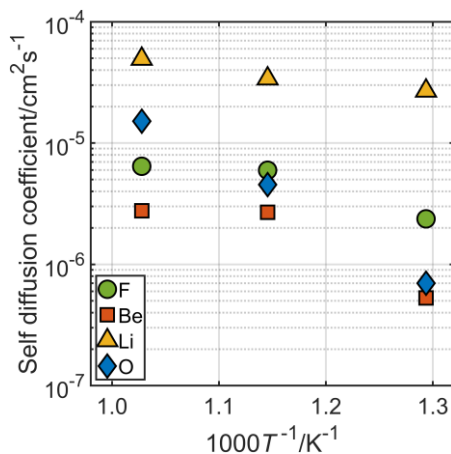


図2 自己拡散係数の温度依存性