

平成11年2月9日(火)

(財)電力中央研究所

電力中央研究所における核種分離・消滅処理技術の研究開発状況

1. 研究開発の目的と対象核種

- ・ 現行の深地層処分技術は潜在的毒性を顕在化させないシナリオに基づいた技術である。これに対し群分離・消滅処理技術は、高レベル廃液から発生するガラス固化体の潜在的毒性そのものを低減することで、処分期間が極めて長期であることによる不確実性を低減し、ひいては公衆の不安感を低減することを目的とする。従って、当所で実施している群分離・消滅処理技術は、当面現行の軽水炉使用済燃料の再処理から発生する高レベル廃液を対象とするかぎりにおいては、直接的に処分場の規模縮小や処分コストの低減を目指すものではない。
- ・ 潜在的毒性を低減するという観点から最も優先される超ウラン元素を群分離・消滅処理の対象に選定する。
- ・ 一方、群分離・消滅処理技術が実用化される 2030 年頃以降を考えると、その技術の対象は高燃焼度燃料、プルサーマル燃料、高速炉の使用済み燃料となる。これらの使用済み燃料は超ウラン元素に起因する高い発熱量を有することから、再処理した後の高レベル廃液から超ウラン元素を除去することはガラス固化体の発生本数を低減することが可能となる。

2. 研究開発の目標

(1) 全体のシナリオ

- ・ 湿式再処理から発生する高レベル廃液(不溶解性残渣、溶媒洗浄廃液を含む)からウラン、超ウラン元素を溶融塩と液体金属を用いる乾式法で回収し、金属燃料(ウラン、プルトニウム、ジルコニウムの合金)に混合し FBR で燃焼させる(図 1)。燃焼した使用済み金属燃料は乾式法で再処理する。
- ・ これらのプロセスにより、軽水炉サイクル、高速炉サイクルから発生する超ウラン元素を高速炉サイクル内に閉じ込める。
- ・ 最終的には軽水炉サイクルと高速炉サイクルを統合した燃料サイクル「乾式リサイクル技術」を構築し、超ウラン元素の環境への排出を最小限にする核燃料サイクルの確立を図る。(図 2)

(2) 乾式分離

- ・乾式法を用いてウラン、プルトニウムを 99%以上分離・回収する。
- ・高レベルの核分裂生成物等を含む廃棄物はガラス固化、または人工鉱物固化する。

(3) 消滅処理

- ・乾式法により回収された金属状の超ウラン元素を金属燃料に混合(最大 5 重量%)し、燃焼(消滅)させる。

3. 研究開発の経緯

- ・昭和 58 年から 2 ケ年にわたり国内外の動向調査や既存データを基に、群分離の技術的可能性を検討した。当初湿式法を対象として有機溶媒等の調査を実施した。
- ・昭和 60 年頃の米国(アルゴンヌ国立研究所)との情報交換を基に、群分離への乾式法の適用を念頭に、乾式法の主要要素技術のフィージビリティを実施した。
- ・昭和 61 年より本格的に研究開発に着手した。
- ・現在は群分離・消滅処理を含め、軽水炉(LWR)サイクル、高速炉(FBR)サイクルを統合した「乾式リサイクル技術」として研究開発を実施している。

4. 乾式分離・消滅処理技術の特徴

(乾式分離技術)

- ・水溶液状の高レベル廃液だけでなく、不溶解性残渣(固体)などからの超ウラン元素の回収にも適用できる。(汚泥状になった高レベル廃液にも適用できる)
- ・分離に用いる溶媒(溶融塩、液体金属)、還元剤等(リチウム、塩素ガス)がリサイクル可能である。湿式法で用いる有機溶媒やイオン交換樹脂を使用しないため硝酸や放射線による劣化生成物が恒常的に発生しない。(プロセス廃棄物の発生が少ない)
- ・分離プロセスがコンパクトになり経済的に有利であることが期待できる。
- ・湿式法に比較して臨界制限に対する裕度が大きい。

(消滅処理技術)

- ・金属燃料高速炉では中性子のエネルギーが高いため、酸化物燃料に比較して消滅効率が良い。
- ・燃料製造が簡便な鋳造法によって出来るため、燃料製造コストの大幅な低減が期待で

きる。

- ・高速炉の使用済み燃料からは、乾式再処理によってウランやプルトニウムとともにマイナーアクチニド元素（ウラン、プルトニウム以外のアクチニド元素でネプツニウム、アメリシウム、キュリウムなどをいう）が一括して回収できる。

(乾式リサイクル技術全体として)

- ・現在のウラン、プルトニウムサイクルからすべてのアクチニド元素（ウランや超ウラン元素）を燃料サイクルに閉じ込めるため、廃棄物として環境中に排出される長半減期の元素の量が低減できる。（環境負荷の低減）
- ・プルトニウム等を純粹に取り出すことが出来ないため、核拡散抵抗性が高い核燃料サイクルとなる。製品は放射能が極めて強いいため盗難等物的防護に強い。
- ・燃料形態や組成を問わず適用できる技術である。（酸化物燃料、金属燃料、窒化物燃料、 UO_2 , MOX 等）
- ・湿式法で用いる溶媒などの劣化が無いため、プルトニウムをリサイクルした燃料や高燃焼度燃料にも適用しやすい。
- ・出力が同じ場合、金属燃料が心は燃料密度が高いため酸化物燃料が心に比べ発生する使用済み燃料の量が少ない。
- ・金属燃料が心は固有の安全性が確保できるが心である。
- ・金属燃料炉心ではプルトニウムの増殖性能が良い。

5. 乾式分離・消滅処理の主要技術

(乾式分離技術、図 3)

- ・高レベル廃液を酸化物を経て塩化物に転換する。
- ・溶融塩、液体金属を用いた電解精製や還元抽出法により超ウラン元素を分離する。(図 4)
- ・超ウラン元素を取り除いた後の、高レベル放射性の廃棄物はガラス固化、または人工鉱物固化し地層中に処分する。

(消滅処理技術)

- ・核データ解析による消滅率・炉心解析：金属燃料内での TRU の消滅効率の評価を行う。TRU 含有炉心の特性評価を行う。
- ・TRU 含有燃料の物性評価と照射試験を行う。照射試験は仏国フェニックス炉を予定している。

6. 研究成果の概要

(乾式分離技術)

第1フェーズ(昭和62年～平成元年)

目標：熱力学データの取得と各プロセスの成立性の検討

- ・基礎データの取得を行い、乾式分離に用いる要素技術が適用できることを確認した。

第2フェーズ(平成2年～平成5年)

目標：各要素技術の開発、超ウラン元素と他の元素の分離精度の把握

- ・効率的な酸化物への転換、塩化物への転換技術の開発を継続した。
- ・プロセスからの廃棄物発生量の少ない塩化物処理法を開発した。
- ・電解精製についての基礎試験で99%以上溶融塩中から超ウラン元素を除去できることを実証した。

第3フェーズ(平成6年～平成9年)

目標：小規模分離実証試験の実施、最適なプロセスフローの構築

- ・効率的な酸化物への転換、塩化物への転換技術を開発した。酸化物への転換では一部の余分な元素が分離でき、塩化物への転換では揮発成分が効率的に捕集できる特徴を有する。
- ・小規模な分離実証試験で、還元抽出法で99%以上の超ウラン元素を回収できることを実証した。(表1)
- ・これらの成果を基に、プロセスフローを構築し、マスバランスを評価した(図5)。

超ウラン元素の乾式分離についての研究開発の進捗状況を図6に示す。

(消滅処理技術)

第1フェーズ(平成元年～平成3年)

目標：超ウラン元素の消滅率の解析と、超ウラン元素を含む合金燃料の物性把握

- ・消滅効率の解析により、金属燃料に超ウラン元素を5wt.%混合することにより、軽水炉5～6基/年から発生する超ウラン元素の消滅が可能であることを明らかにした(図7)。
- ・超ウラン元素を含む合金の物性(熱伝導度、融点、合金中の超ウラン元素の挙動)を明らかにし、超ウラン元素5%程度までの混合では、金属燃料が持つ特性を大きく損な

わないことを明らかにした。

第2フェーズ(平成4年～平成6年)

目標：超ウラン元素を含んだ金属燃料の照射挙動を解析するコードの開発と、照射試験のための超ウラン元素を含む合金燃料の製造

- ・超ウラン元素を装荷した燃料棒の燃焼を取り扱う3次元燃焼計算コードを開発した。
- ・フェニックス炉(仏)で照射する試験用の超ウラン元素を含む金属燃料を製造した(図8)。

第3フェーズ(平成7年～平成12年)

目標：解析コードの検証と照射試験

- ・金属、窒化物、及び酸化物燃料 FBR において超ウラン元素をリサイクルする場合の炉心特性の評価、MA 許容量や廃棄物量、炉心安全性パラメータの検討を実施した。これにより、いずれの燃料でも MA 装荷量は数%に制限されること、MA の燃焼効率 は金属燃料が最も良く、必要とする Pu 量が少なくなることを明らかにした。
- ・TRU 含有合金燃料は照射試験に向けて待機中であり、平成12年から照射の予定である。

超ウラン元素の消滅処理についての研究開発の進捗状況を図9に示す。

7. 今後の研究計画(添付表1)

乾式分離技術の次の研究目標は、超ウラン元素の分離プロセスの実証と工学技術への展開であり、そのために、

- ・超ウラン元素や実廃液、実燃料を用いた分離プロセスの実証試験
- ・実用に適用できる装置の検討
- ・施設概念の検討と経済性評価

を行う。

消滅処理技術については、

- ・超ウラン元素を含む金属燃料の照射試験
- ・照射試験結果に基づいた解析コードの検証

を実施する。

8. 他の研究機関との協力

【米：ボーイング社(旧ロックウェル社)、ミズーリ大学】

- ・電中研では取り扱うことのできない超ウラン元素を用いた基礎データの取得、実験室レベルでの乾式分離実証試験を実施した。

【EU：超ウラン元素研究所】

- ・超ウラン元素を含む金属燃料の物性把握と照射試験用の金属燃料の製作を実施した。
- ・CEA(フランス原子力庁)の協力を得て、その金属燃料の照射試験を予定している。
- ・昨年度から乾式分離プロセスの実証試験に着手している。

【日本原子力研究所】

- ・プルトニウム、ネプツニウムに関する熱力学データの取得、電解精製技術の開発を行っている。
- ・金属燃料と被覆管の特性に関する基礎的な検討を実施している。

【英：AEAT社】

- ・使用済み酸化物燃料の金属への還元技術の開発を行っている。
- ・金属燃料の被覆管許容温度に関するデータ取得を実施している。

【京都大学、名古屋大学】

- ・微量のウランやネプツニウムを用いた基礎データの取得等を実施している。

図1 電中研の分離・消滅処理構想

- ・ 乾式法 によるTRUの分離
- ・ 金属燃料高速炉 を用いたTRU消滅（金属燃料サイクルにTRUを閉じ込める）

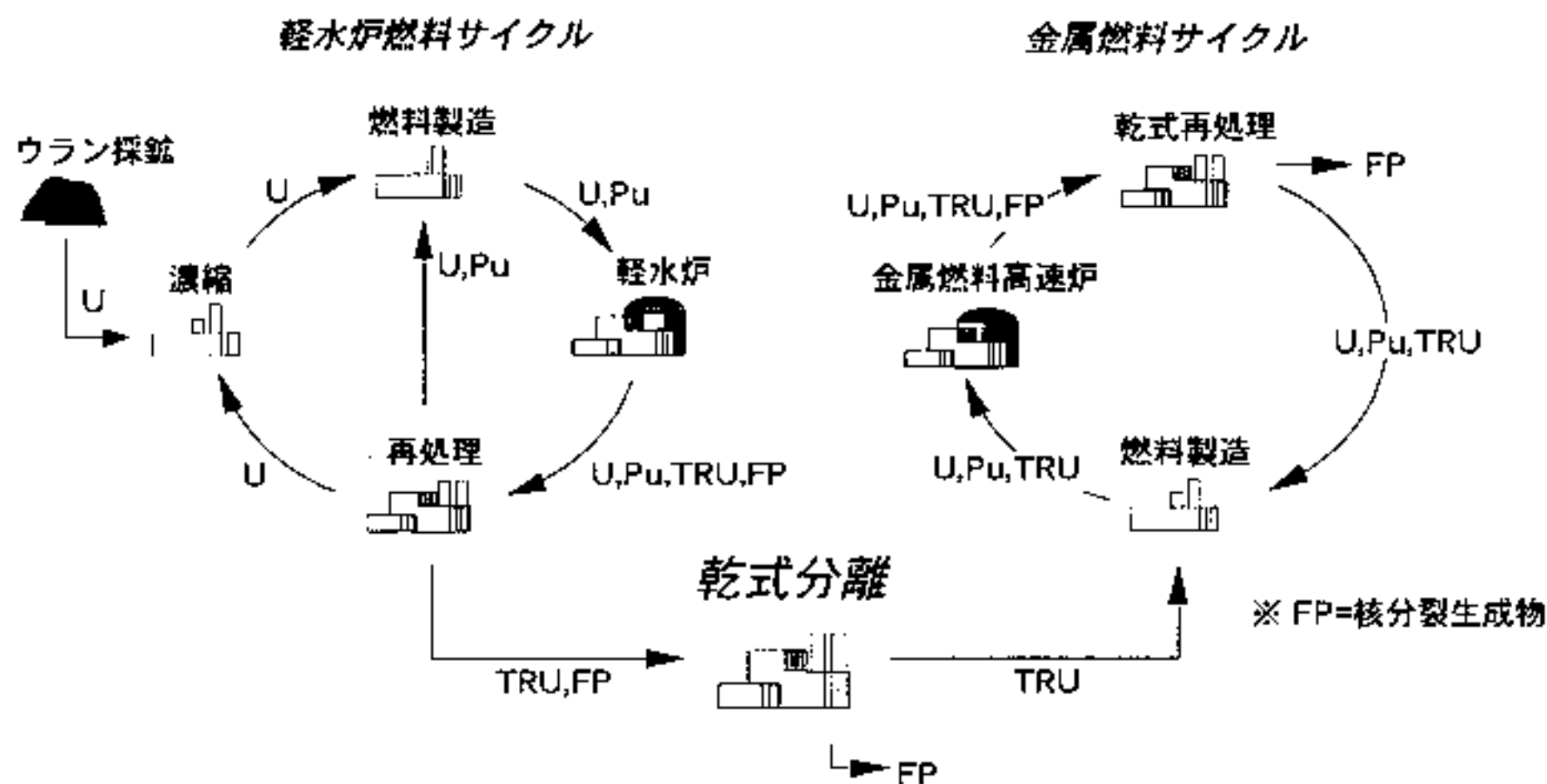


図2 乾式リサイクル技術の概要

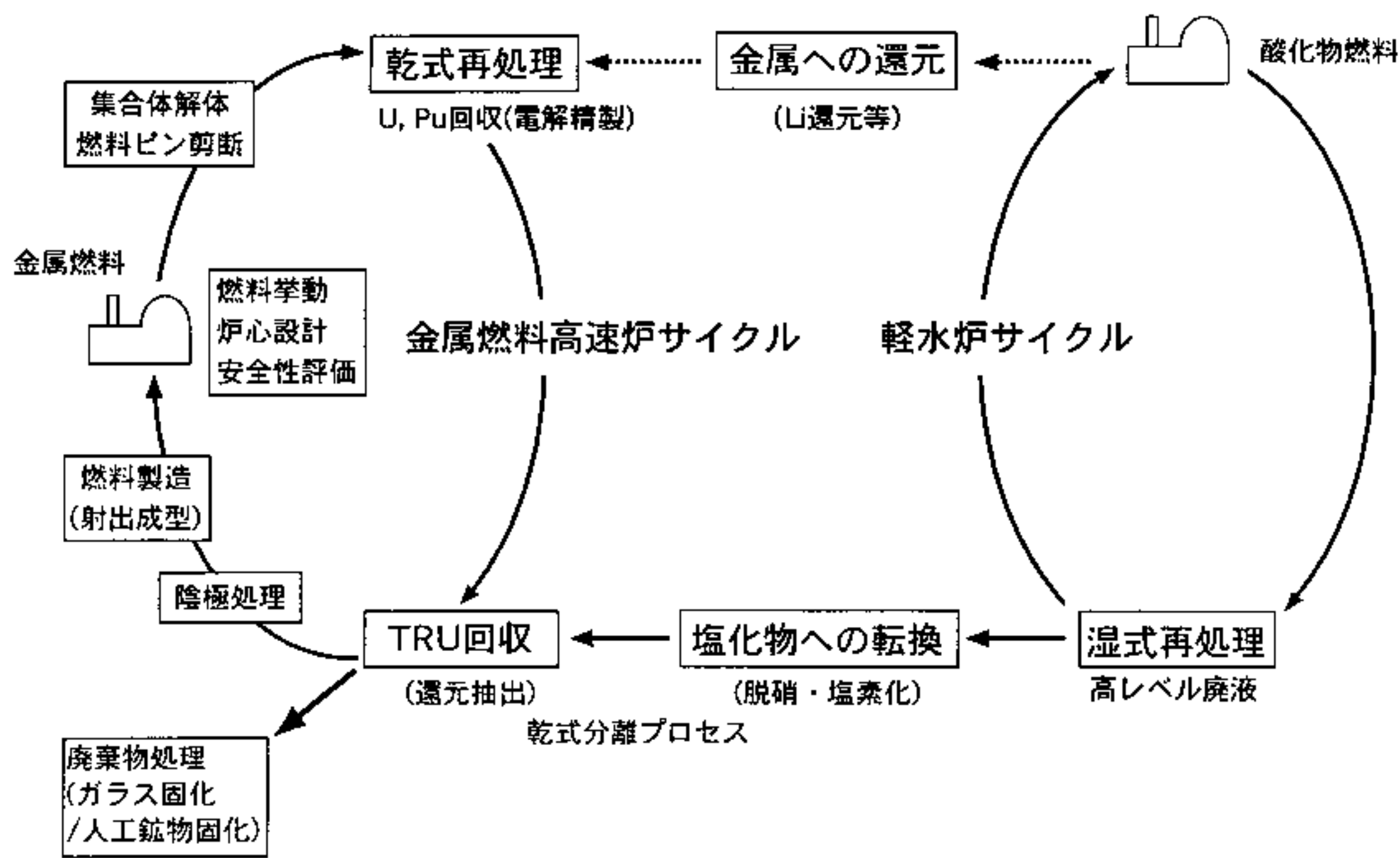


図3 乾式分離プロセスの提案

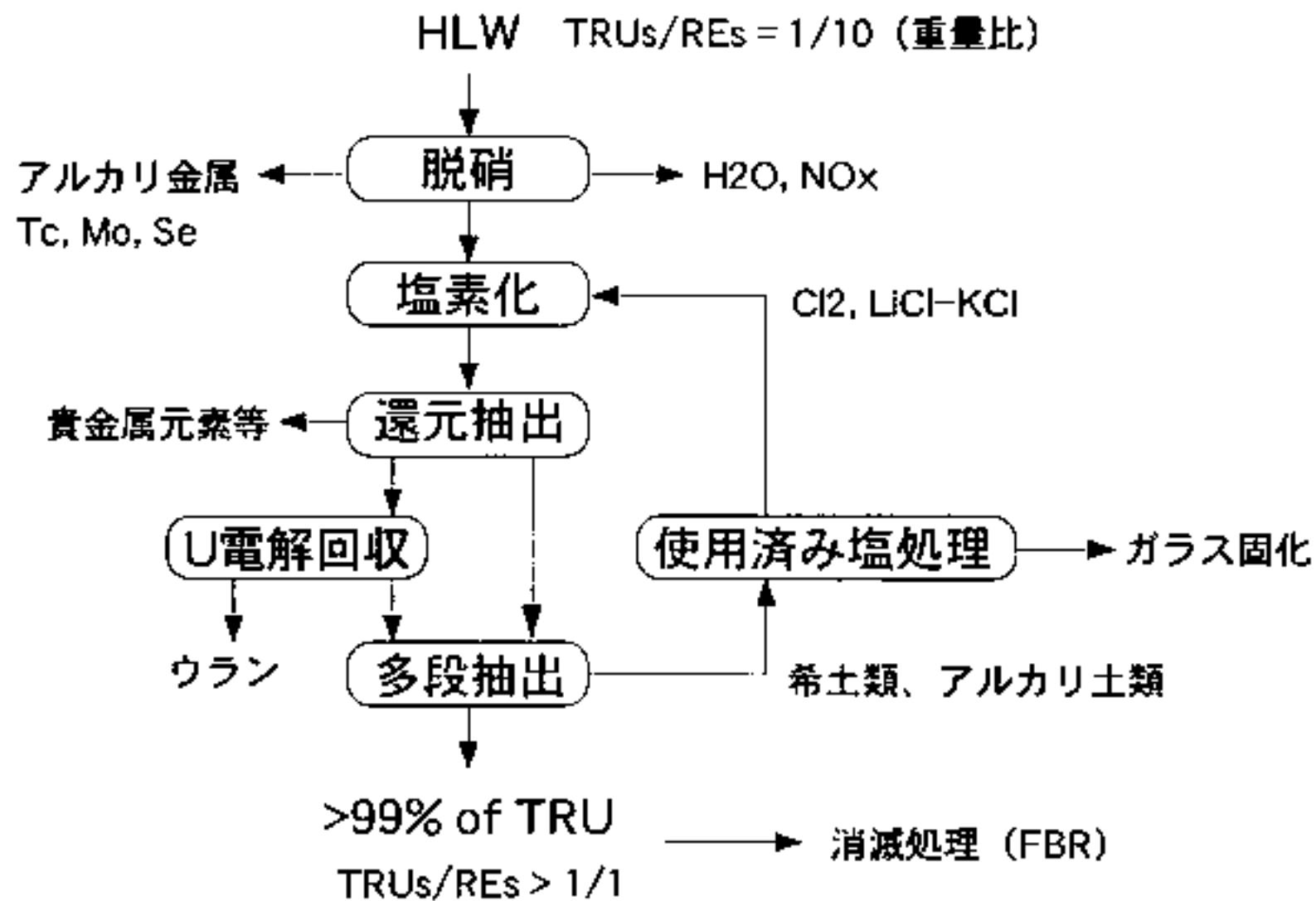


図4 還元抽出と電解回収の概念

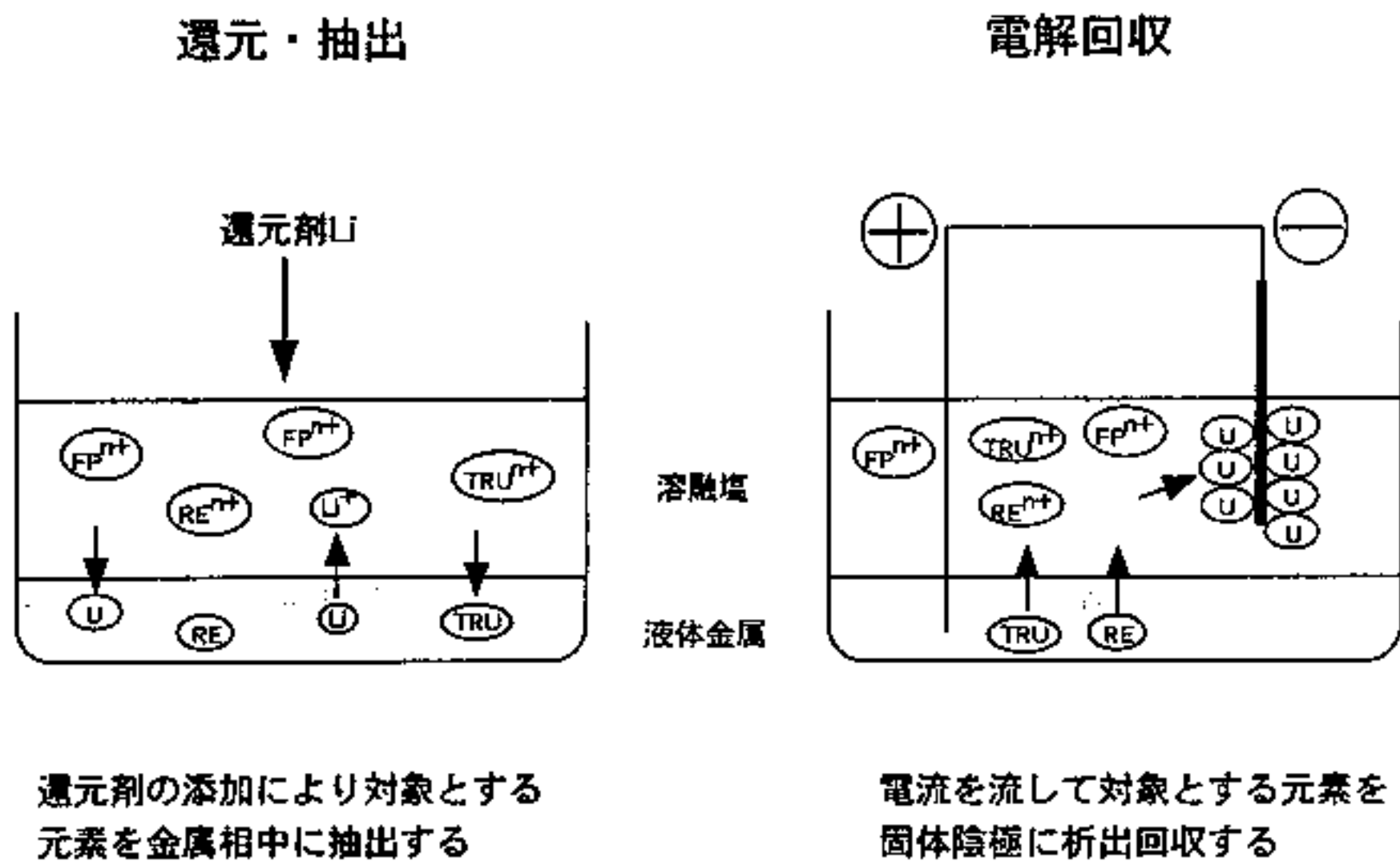


表1 多回抽出によるTRU/REの分離試験結果

試験結果例1 試験開始時のTRUとREの比 1:21.7 (wt./wt.)

5段の多回抽出により

回収率 Np 99.93%

 Pu 99.94%

 Am 99.66%

回収物中のTRUとREの比 0.32:1 (wt./wt.)

(計算では0.30:1)

試験結果例2 試験開始時のTRUとREの比 1:9.91 (wt./wt.)

4段と6段の多回抽出により

回収率 Np 99.8%

 Pu 99.7%

 Am 99.4%

回収物中のTRUとREの比 2.01:1 (wt./wt.)

図5 乾式分離プロセス

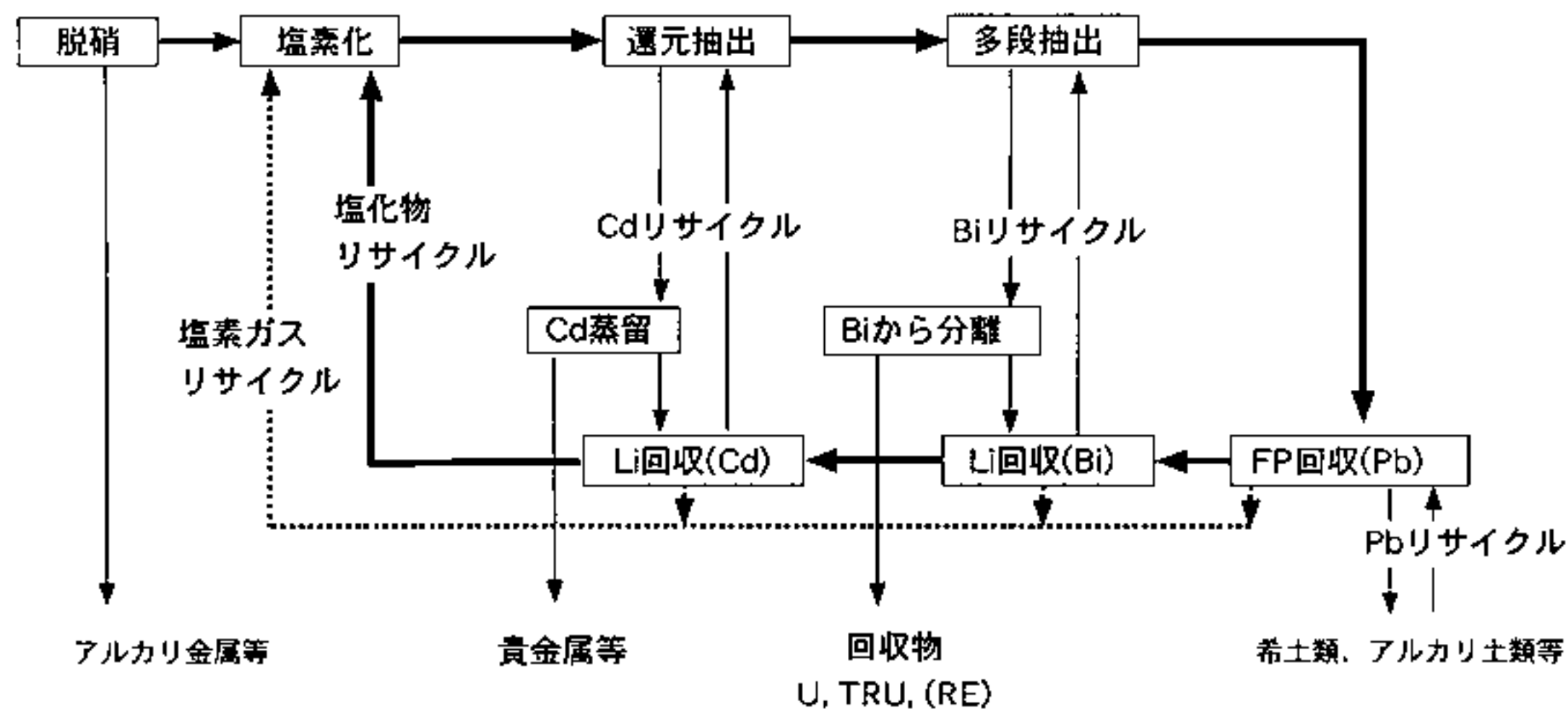


図6 高レベル廃液からのTRU乾式分離プロセスの開発段階

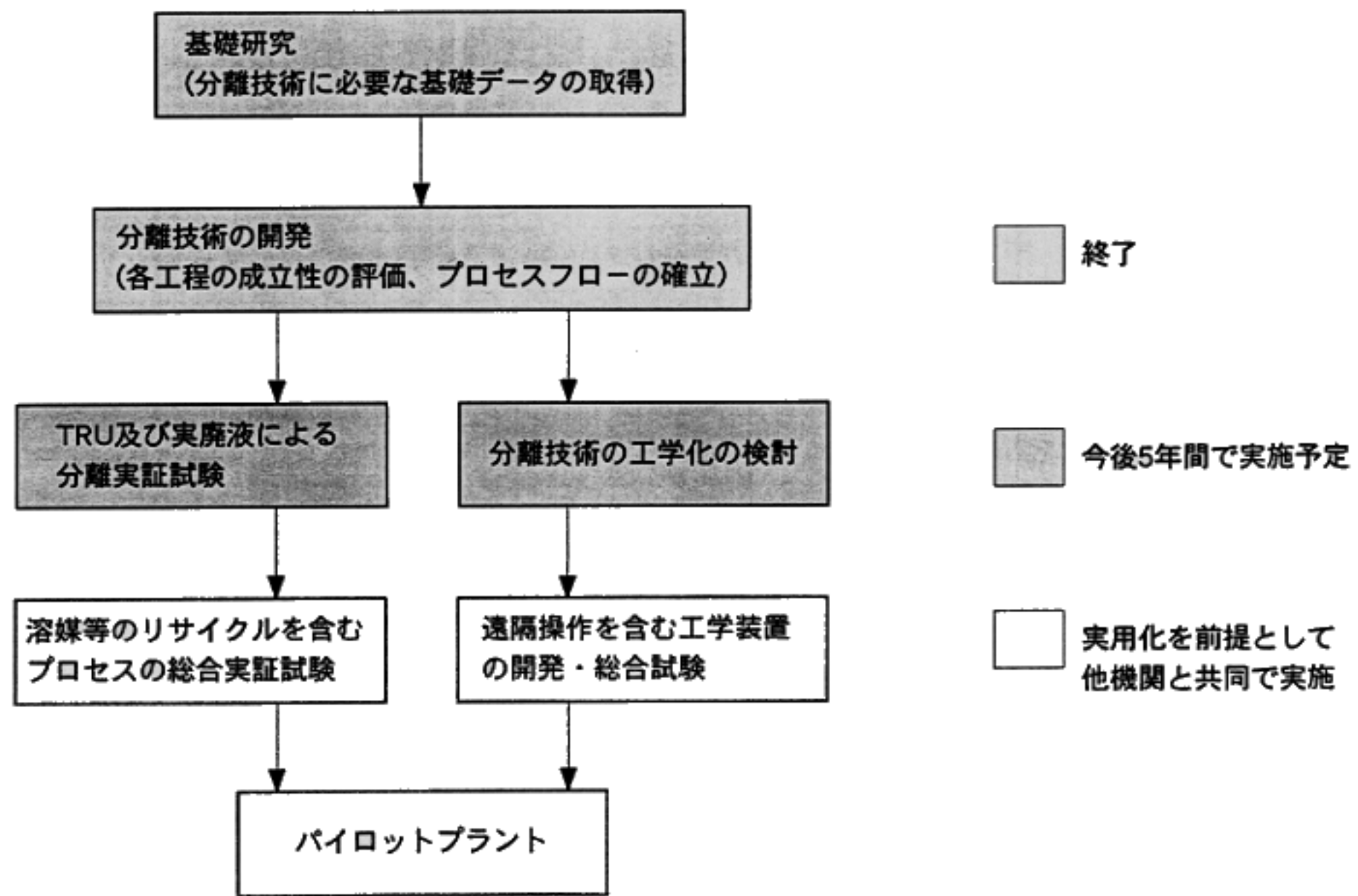


図7 金属燃料(5wt.%MA+5wt.%RE含有燃料)FBRの平衡サイクル

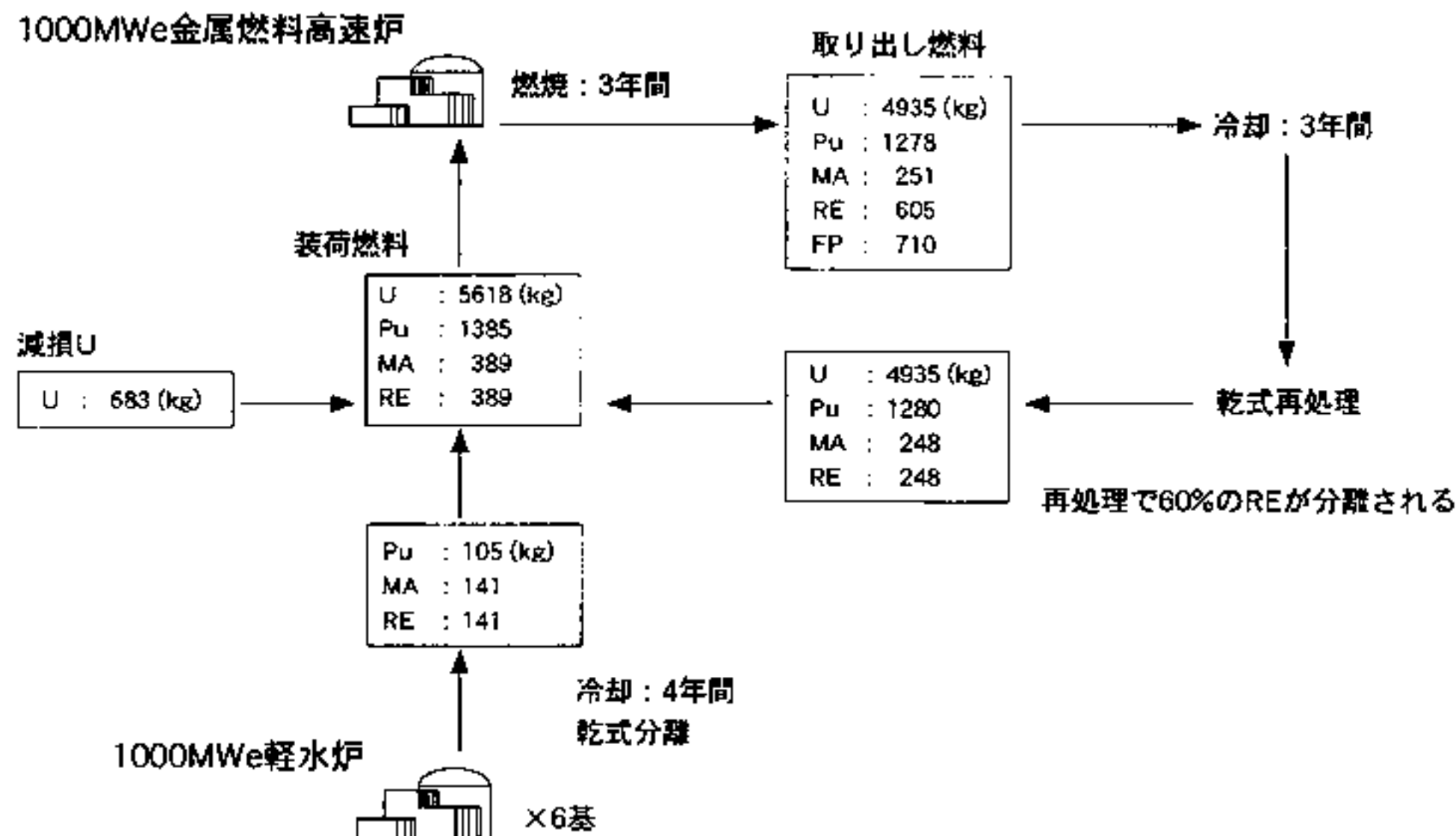
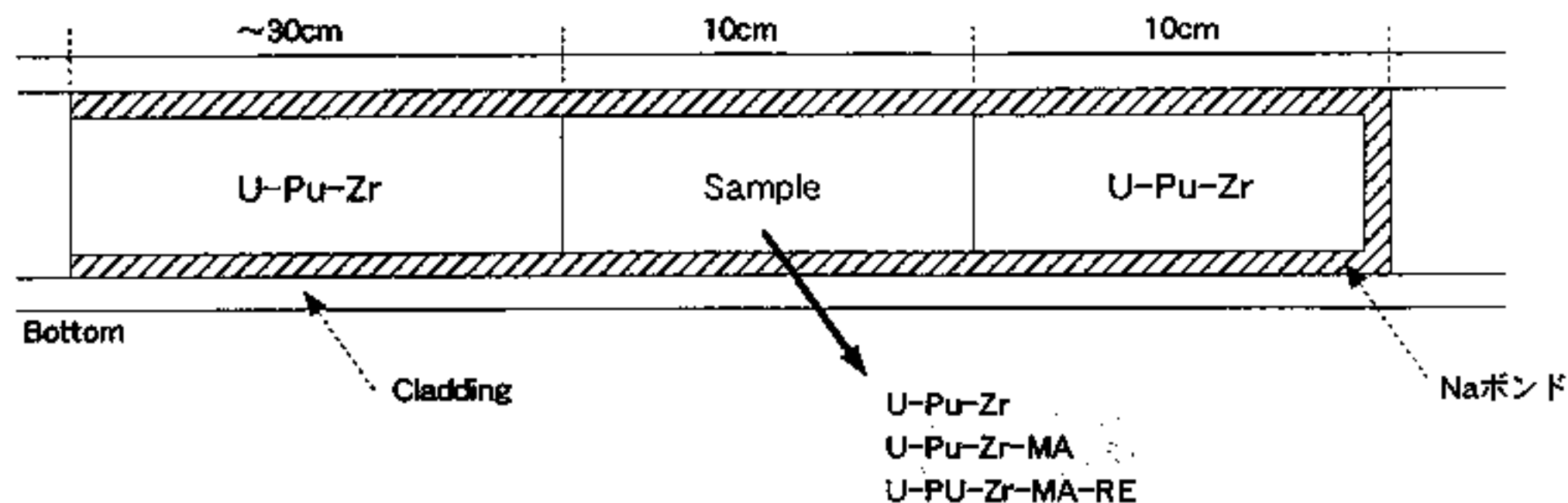


図8 フェニックス炉照射試験用MA含有金属燃料棒



燃料組成 1) 71%U-19%Pu-10%Zr (Reference)
 2) 67%U-19%PU-10%Zr +2%MA +2%RE
 3) 61%U-19%PU-10%Zr +5%MA +5%RE
 and 61%U-19%Pu-10%Zr +5%MA

燃焼度 1) ~1 at.%
 2) 6 at.%
 3) >10 at.%

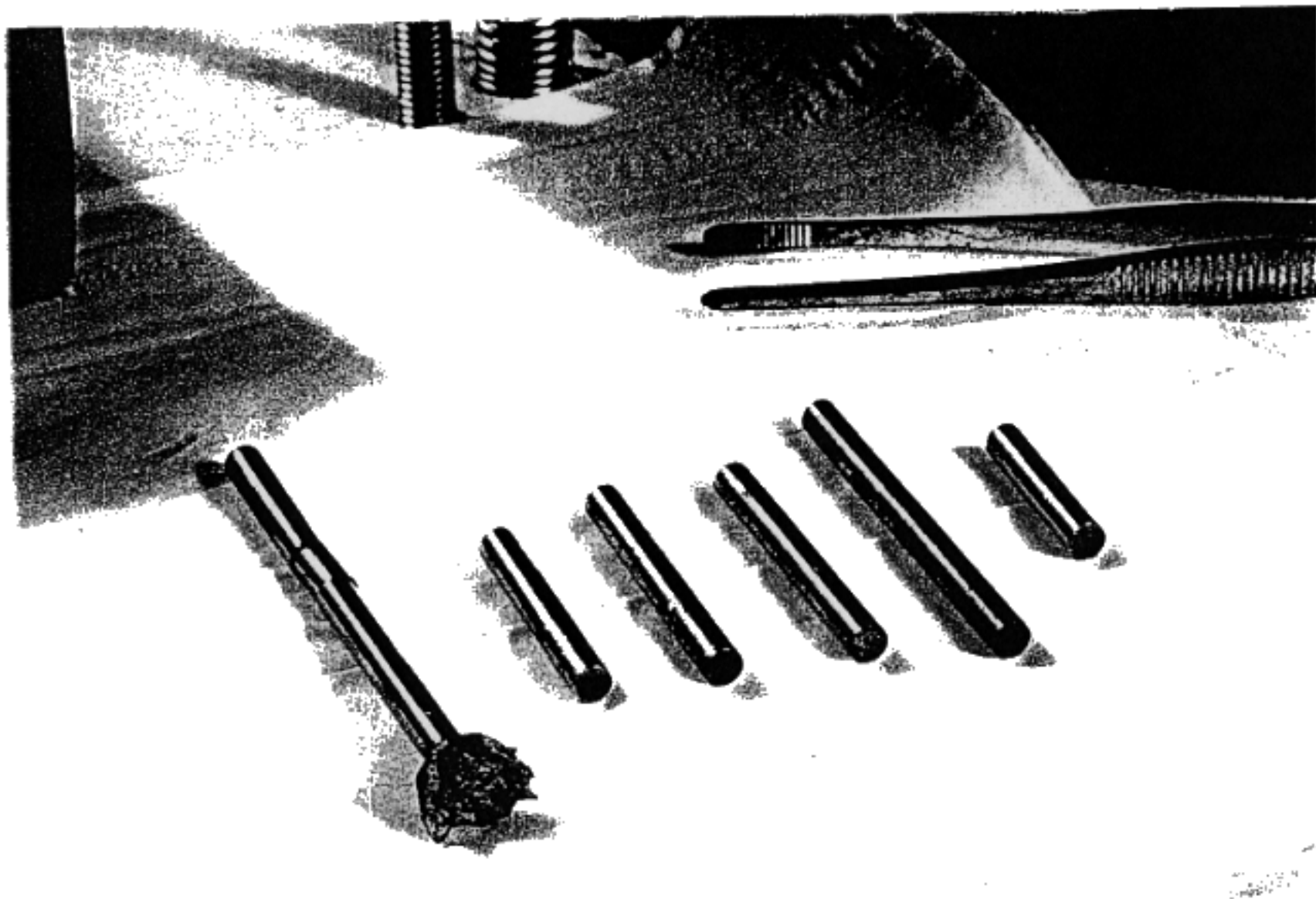
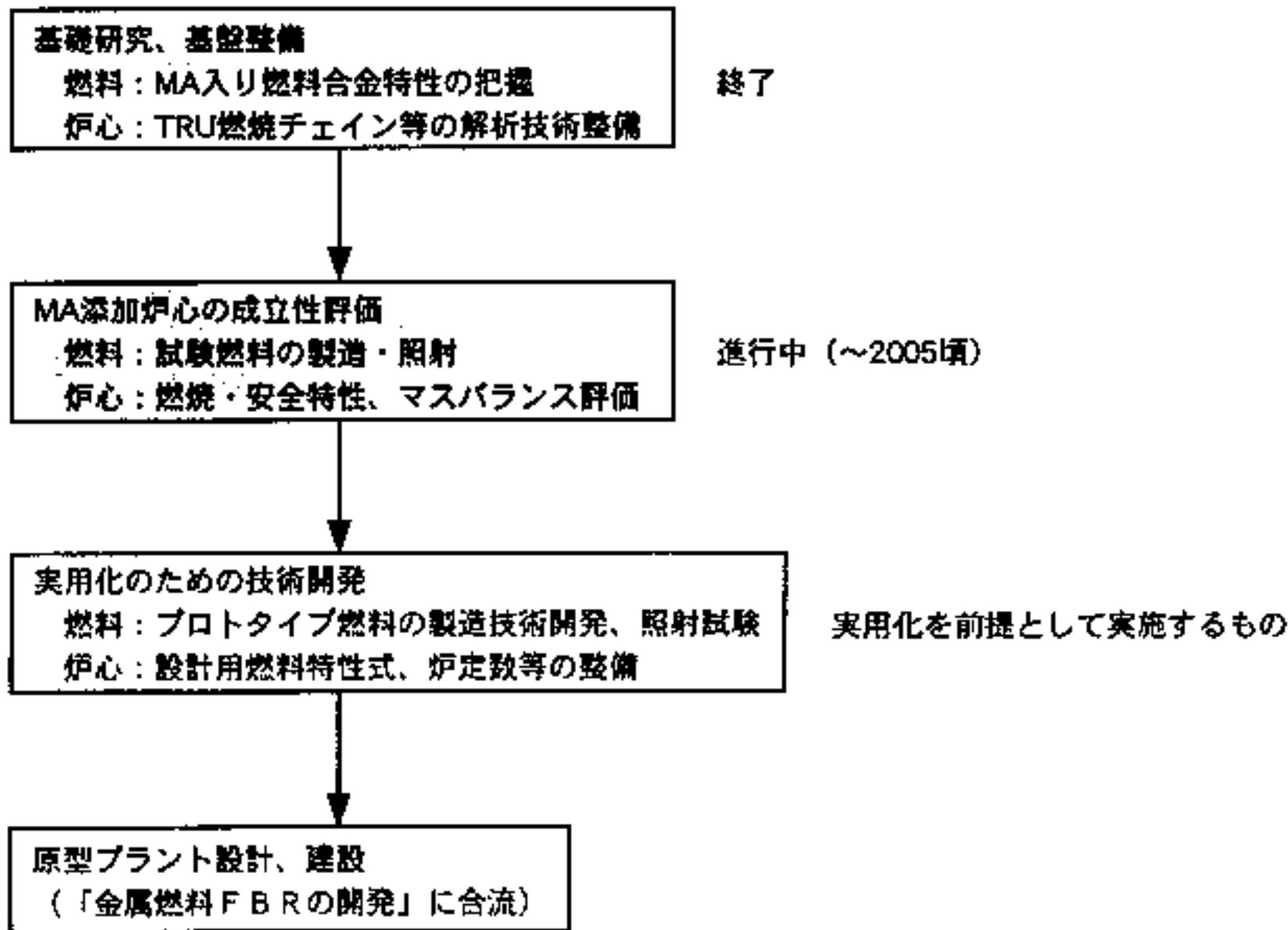


Fig. 2.9 Rods of UPuZr as casted in an Y_2O_3 crucible

図9 金属燃料FBRによるTRUの燃焼技術の開発段階



添付表1 電中研のP-T技術開発計画

	第1フェーズ			第2フェーズ				第3フェーズ				第4フェーズ					
	'87	'88	'89	'90	'91	'92	'93	'94	'95	'96	'97	'98	'99	'00	'01	'02	'03~
乾式分離技術の開発 ・コールド試験で塩化物への転換の可能性を確認した。TRU試験によりTRUの99%以上の分離回収が可能であることを確認した。 ・今後は工学技術としての展開を図るとともに、高レベル実廃液（不溶解性残渣）を用いた実証を行う。	分離基礎データの取得			各工程の要素技術の開発（コールド・TRU試験）				高温冶金分離 TRU 試験				実廃液を用いたプロセス実証					工学規模試験 実廃液を用いた総合試験
								システム技術の開発				工学装置の開発					
												U, Puの電解プロセスの実証					
乾式リサイクル技術の開発 ・U, Pu電解精製技術の開発を行い、成立性を確認した。塩廃棄物処理法に見通しを得た。 ・今後は、射出成型技術、Li還元技術、塩廃棄物処理技術の開発を継続するとともに、TRU共存系での電解プロセス実証、さらには工学規模でのプロセス実証へと展開する。				U, Puの電解精製技術開発 (DOE)				塩化物の金属への転換プロセスの開発									工学規模試験 使用済み燃料を用いた総合試験
	電解精製基礎試験							システム技術の開発				射出成型技術の開発					
								塩廃棄物処理基礎試験				塩廃棄物処理技術の開発					
MA添加金属燃料の開発 ・炉外試験によりMA添加5%程度までのU-Pu-Zr合金燃料の成立性に見通しを得た。 ・今後、照射試験による確認を進め、それをもとに金属燃料挙動解析技術の拡張はかる。	燃料合金の特性炉外試験			照射仕様検討				照射用MA調整				照射(PHENIX)、PIE(1.0, 6.0, 10.0at.%)					金属燃料高速炉の開発研究に統合して研究を推進する
								照射用ビン製作				挙動評価コードに反映					
	解析コード開発、燃焼特性解析							炉心概念の設計検討									
												解析コード検証、設計改善、安全性評価					
MA添加炉心概念の開発 ・数%のMAを均質に添加する炉心概念の成立性、この炉心による軽水炉-高速炉平衡サイクルのマスバランスの見通しを得た。 ・金属燃料FBRの一つの型として評価を進める。																	
金属燃料FBRの開発 ・炉心設計、過渡解析の結果、小型～大型で高燃焼度かつ受動的安全性の高い炉の見通しを得た。 ・燃料挙動解析技術を開発した。																	実用化のための技術開発
				燃料・炉心設計、過渡解析				→ 再処理・成型加工技術と整合したサイクル概念構築									
				燃料挙動解析コード開発								→ 燃料-被覆管共存性の解明					