

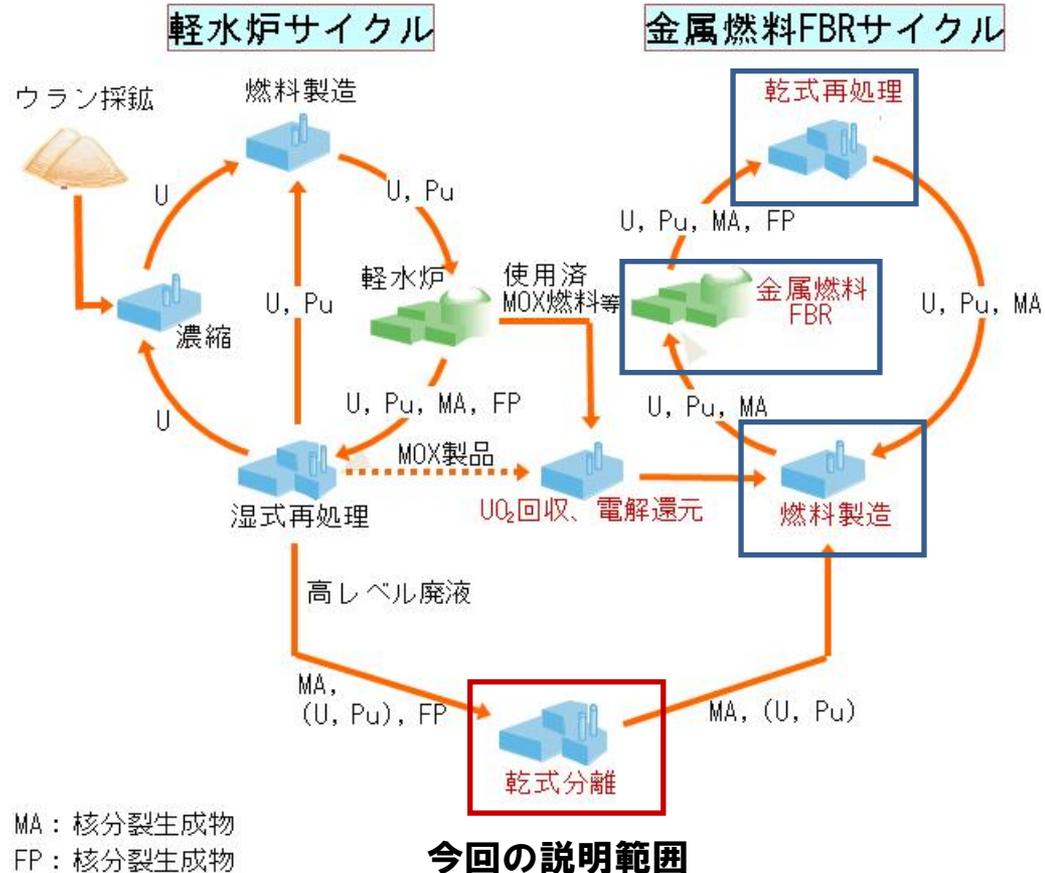
分離変換C&R 進捗状況 －高レベル廃液からの分離－

乾式再処理、核変換(燃料製造、照射
試験)は次回以降報告

平成20年11月13日
(財)電力中央研究所

TRUの分離と金属燃料サイクル

- 湿式再処理から発生する高レベル廃液から乾式法によりウラン (U)、超ウラン元素(TRU)を分離(分離技術-1)
- U、TRUは燃料製造工程に供給して、金属燃料とする。
- 金属燃料高速炉で燃焼させる
- 使用済み燃料は乾式再処理で処理して、その製品は再び燃料製造工程に供給する(分離技術-2)
- 軽水炉サイクルで発生するTRUを金属燃料サイクルに閉じ込める



今回の説明範囲



次回以降の説明範囲

金属燃料サイクルを用いた分離変換システムの特長

- 酸化還元電位の差が少ないため、ウラン、プルトニウム、マイナーアクチノイド元素が一括回収可能である(Puの単離が極めて困難)
- 超ウラン元素と希土類元素の分離も同時に可能
- 分離に際し放射線により劣化する溶媒を使用しない(安定な溶媒)
- 中性子スペクトルが固くMAの燃焼効率が良い金属燃料高速炉との整合性がよい
- MA含有金属燃料の製造が比較的容易(射出製造)である
- 使用済み燃料は小規模(50t規模)でも経済性が高い乾式再処理(バッチ式)でリサイクルする
- MA燃焼を専用とする非均質サイクルとも整合性が高い
- 中性子経済に余裕があるため、長寿命核分裂生成核種(LLFP)の核変換等のオプションに対応しやすい

高レベル廃液からの乾式分離

脱硝

- 高レベル廃液を仮焼して、酸化物に転換

塩素化

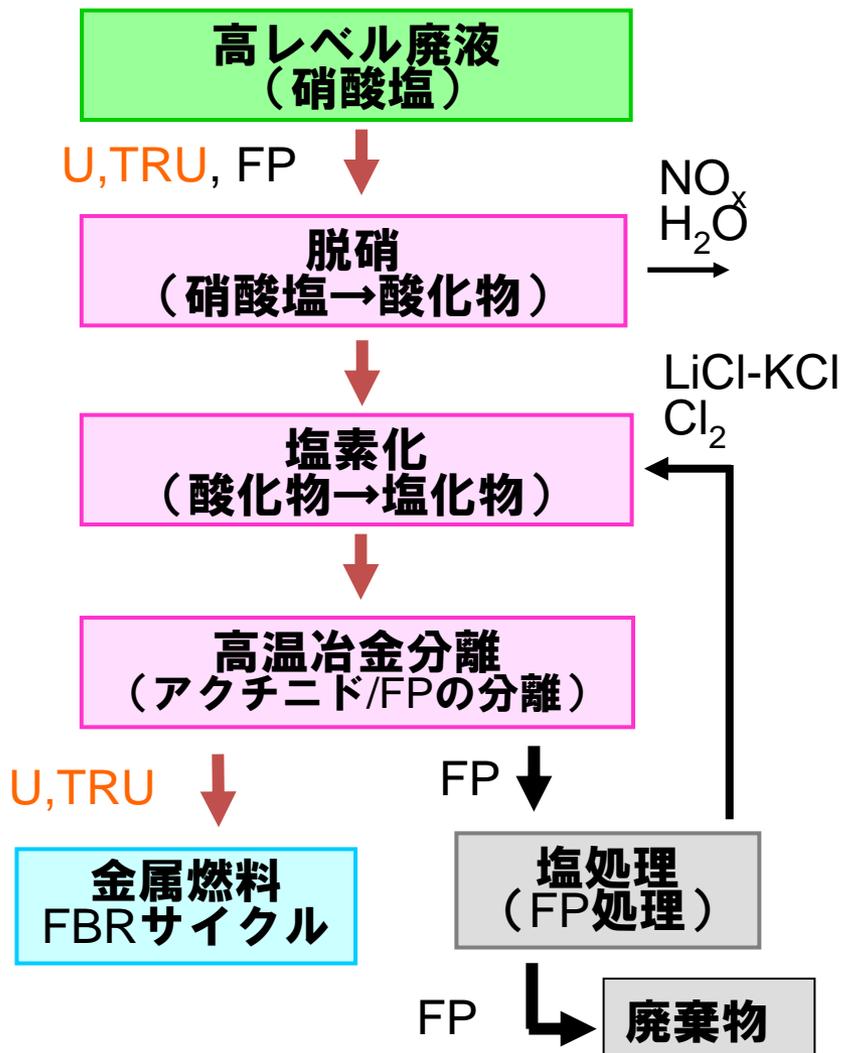
- 炭素を還元剤として酸化物に塩素ガスを反応させ、脱硝物を塩化物に転換

高温冶金分離

- 熔融塩中での電解や還元抽出により、アクチニド元素とFP元素を分離

塩処理

- 電解により使用済み塩中のFPを処理



総括と技術的課題－分離技術－（2000年C&R）

分離変換に関する研究開発の現状と今後の進め方(原子力委員会バックエンド対策専門部会報告書より)

総括(分離技術)

- 熔融塩電解法及び分離プロセスと同様の還元抽出法を考えている
- 再処理の主工程に当たる電解精製技術については国際共同研究を通してプロセスの成立性を確認しており、工学規模の試験段階にあるものの、酸化物の還元技術や塩廃棄物処理技術についてはプロセスの成立性の確認が必要であることから①プロセス構築・成立性実証段階にあると考えられる

技術的課題

- 実際に超ウラン元素や実廃液を用いて、分離プロセス全体を通したプロセス実証試験を進める必要がある。
- 平成14年度までに超ウラン元素研究所との共同研究などを実施する予定となっている
- 今後必要となる工学規模の試験に当たっては、他機関との協力体制が不可欠である
- 当面は、塩化物や活性金属に対する高耐食性材料の開発、熔融塩などの高温の液体の輸送技術の検討、二次廃棄物発生量の評価などが課題である

前回(2000年)のC&Rから大きく進展した課題
—分離技術-1—

- ①実高レベル廃液を用いた廃液処理・TRUの分離試験(化学プロセスとしての確証)

- ②TRU分離(還元抽出)の工学装置開発

- ③活性金属等に対する耐食材料の開発、高温の融体の輸送技術開発

本成果については次回以降の分離技術-2で報告予定

高レベル廃液からのTRUの分離 —実廃液試験に至るまでの成果—

前処理工程(脱硝・塩素化により、硝酸塩を塩化物に転換)

- Uや模擬FPを用いた脱硝・塩素化のプロセス連続試験等により、各元素の挙動を解明
- 温度、雰囲気、材料等の実施条件を検討

高温冶金分離工程(還元抽出や電解により、アクチノイド元素とFPを分離)

- 溶融塩/液体金属系での各アクチノイド元素の熱力学データを測定・整備
- 非照射U、TRU、模擬FPを用いた試験等により、目標分離性能が達成できることを確認

塩処理工程(使用済み塩中のFPを処理)

- 模擬使用済み塩を用いて、液体鉛電極にFP元素を回収
- 回収したFPのガラス固化や、溶融塩や塩素ガスのリサイクルが可能な見通し

高レベル廃液からのTRUの分離 — 実廃液試験 —

実際の照射済燃料を処理して得られた高レベル廃液を使ったTRUの乾式分離実証試験

内容

- ・実高レベル廃液を用いての、脱硝・塩素化の前処理試験
- ・上記の塩素化製品を用いての、溶融塩/液体Cd系での還元抽出試験

高レベル廃液の調整

- ・PWR照射済みMOX燃料のPUREX処理で得られた廃液
約440g
 - ・照射済みSuperFact燃料による分離試験後の溶液
2g添加 ←Np量増加のため
 - ・照射済みUO₂燃料を再処理して得た製品側溶液
90g添加 ←Pu増加のため
- を混合して調製、 廃液量 計520g

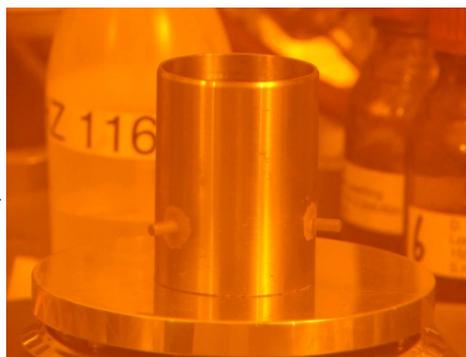


アルゴン雰囲気ホットセル

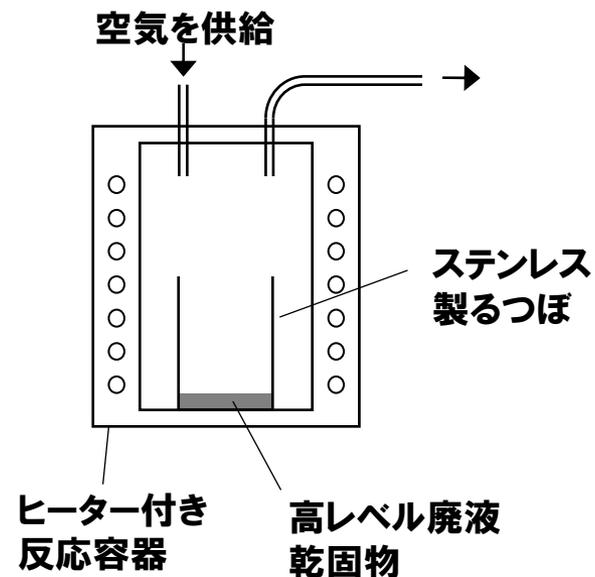
高レベル廃液からのTRUの分離 —高レベル廃液の脱硝(酸化物転換)—



濃縮後の高レベル廃液
(濃縮、減容; 90-120°C)



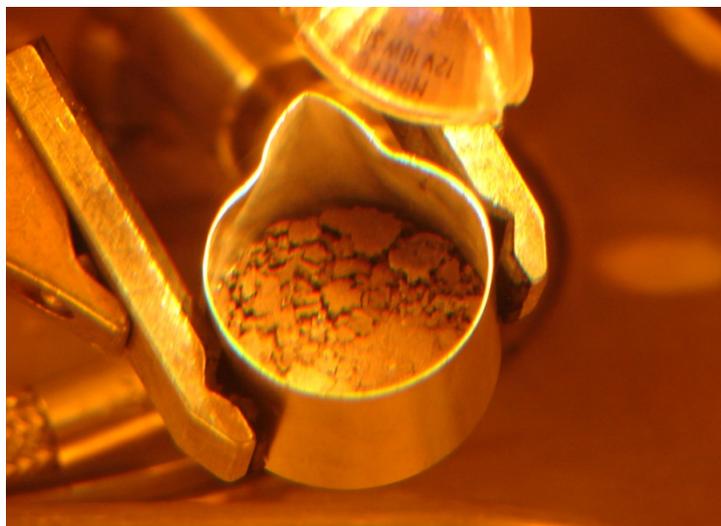
ホットプレート上での乾固
(100-140°C)



脱硝模式図

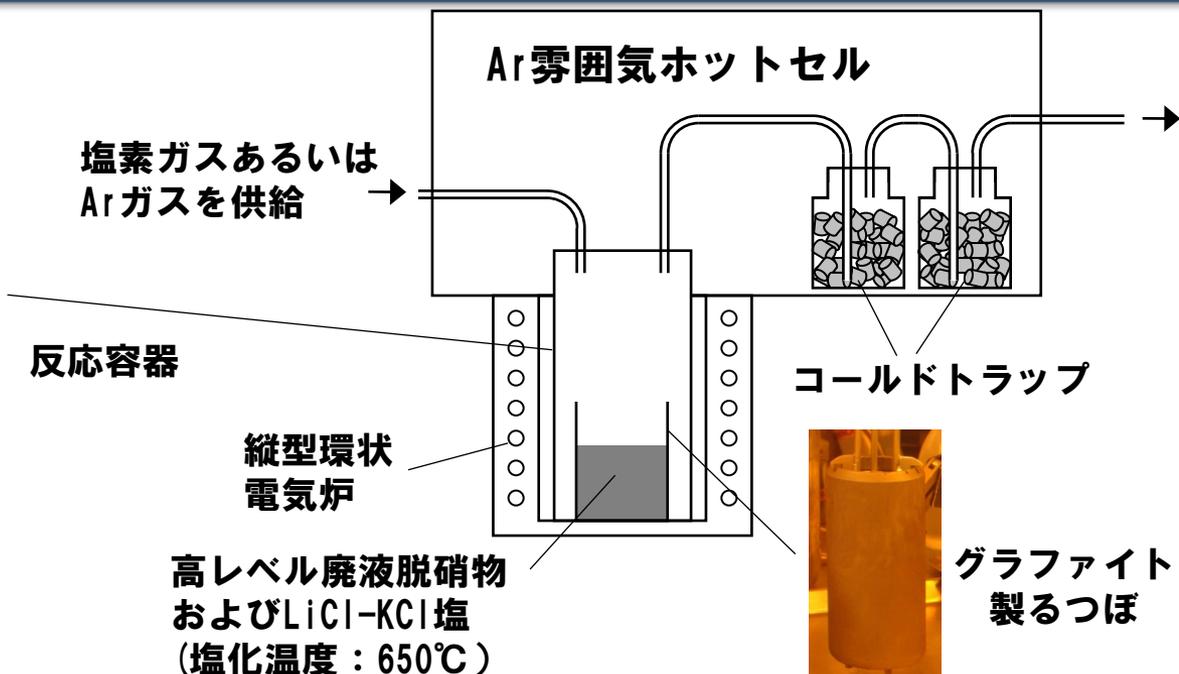
回収した脱硝物

脱硝温度:
500°C



脱硝物全量 (7.3g) を回収
揮発物は微量のRuのみ (0.2-0.3%)

高レベル廃液からのTRUの分離 — 脱硝物の塩素化(塩化物転換) —



塩素化概念図



塩素化中の試験装置



塩素化試験後の回収塩断面

結果:

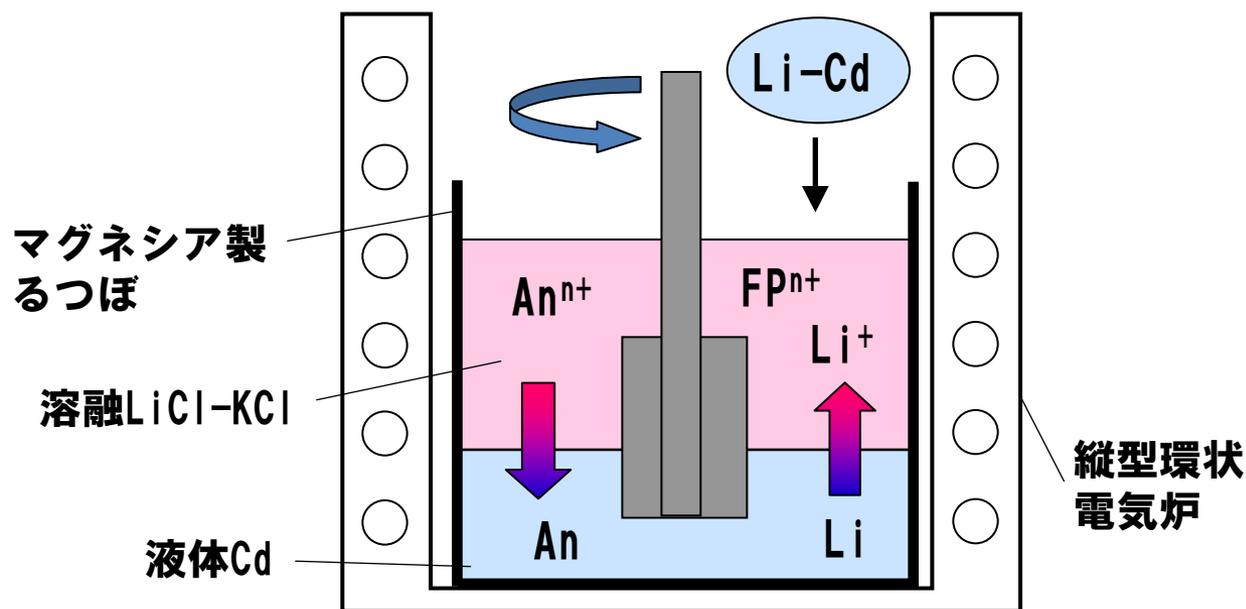
- ・U、TRU、Tc、希土類FP、アルカリ土類FP、アルカリ金属FPはほぼ全量回収塩中に残留
- ・模擬FP元素を用いた試験同様に、Mo、Zr等が揮発成分として観測

高レベル廃液からのTRUの分離 —脱硝・塩素化時のマテリアルバランス—

元素/元素群	脱硝時に揮発	塩素化時に揮発	塩素化回収物中に残留	合計
U	0.0%	0.0%	113%	113%
Np	0.0%	0.0%	109%	109%
Pu	0.0%	0.0%	99%	99%
Am	0.0%	0.0%	113%	113%
Cm	0.0%	0.0%	105%	105%
Tc	0.0%	0.6%	82%	82%
希土類FP	0.0%	0.1%	101%	101%
アルカリ土類FP	0.0%	1.9%	106%	108%
遷移金属FP (Tcを除く)	0.0%	20.4%	23.7%	44%
貴金属FP	0.1%	0.0%	128%	128%
その他のFP (Cdを除く)	0.0%	6.9%	15.2%	22%

高レベル廃液からのTRUの分離 — TRUの抽出分離(還元抽出) —

- 塩素化後に回収した塩を金属Cdと共にマグネシア製るつぼに装荷(反応温度: 500°C)
- 浴中を攪拌しつつ、Cd-Li合金を逐次添加し、塩相中の元素を還元してCd相に抽出



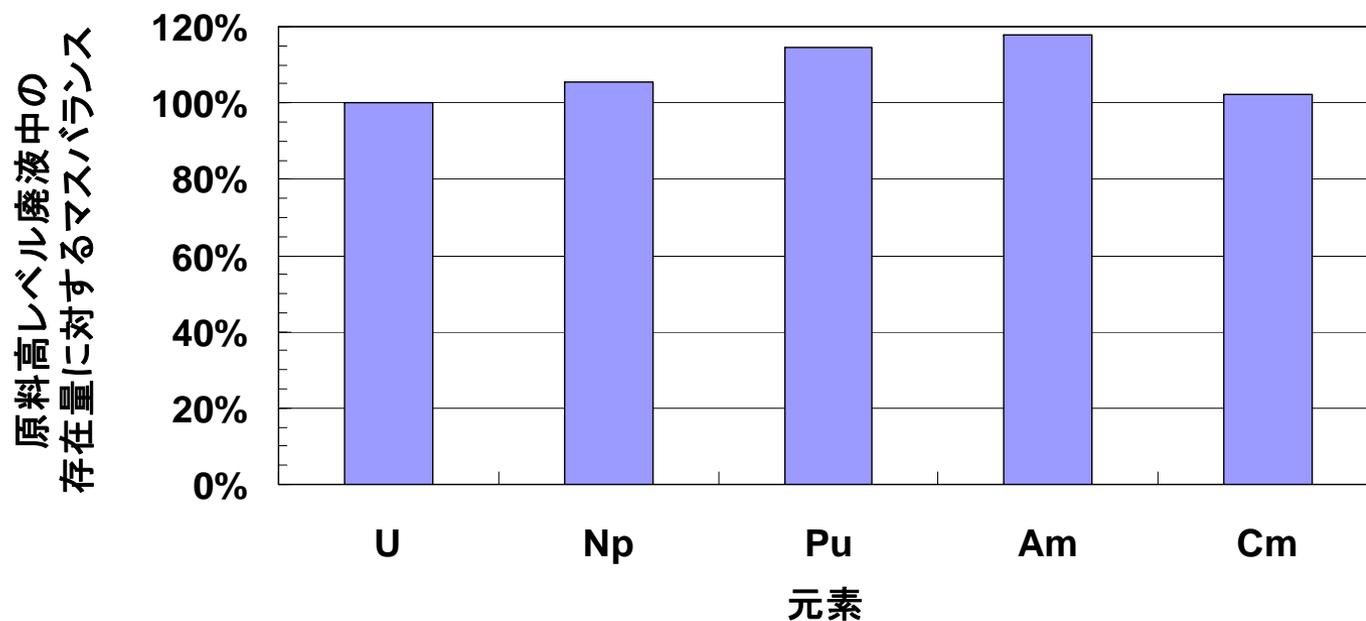
マグネシア製るつぼ
(内直径; 40mm、深さ; 76mm)

還元抽出模式図

高レベル廃液からのTRUの分離 —還元抽出開始直後のマテリアルバランス—

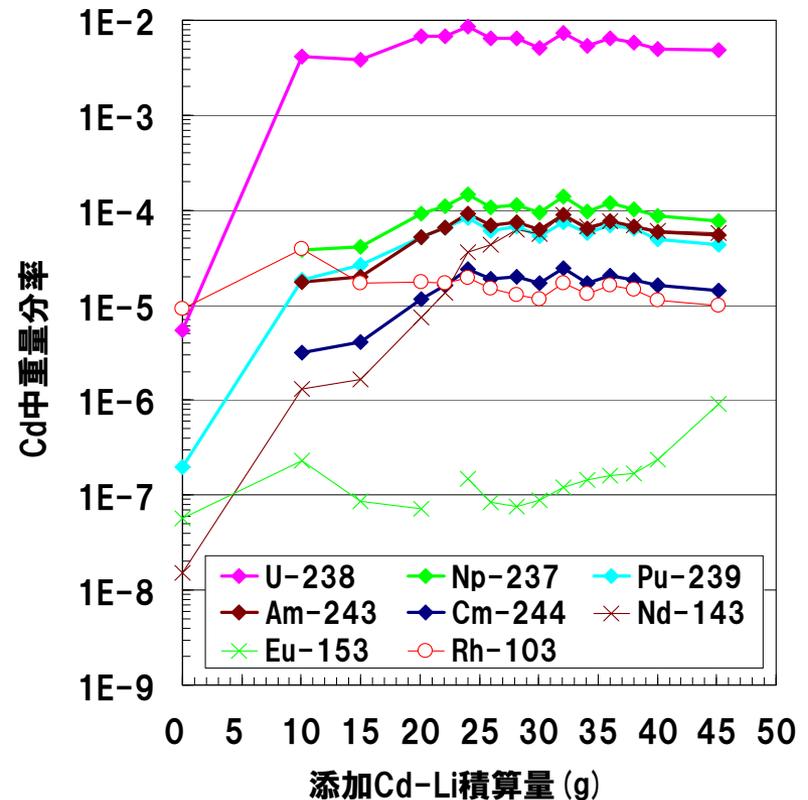
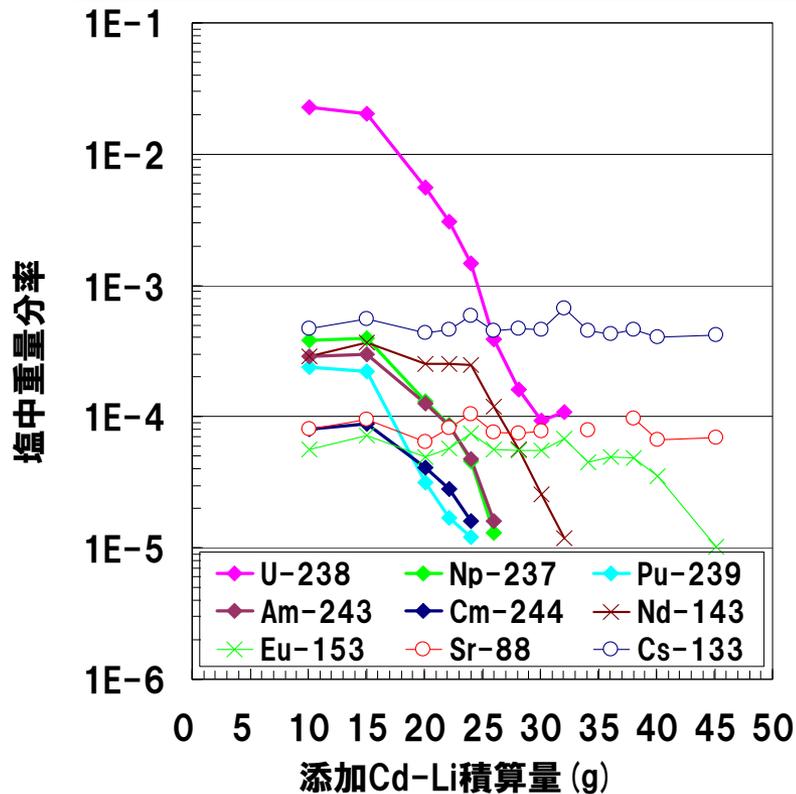
各アクチニド元素のマテリアルバランス

(塩相、Cd相中の存在量の和)



還元抽出試験開始直後のアクチニド元素のマテリアルバランス

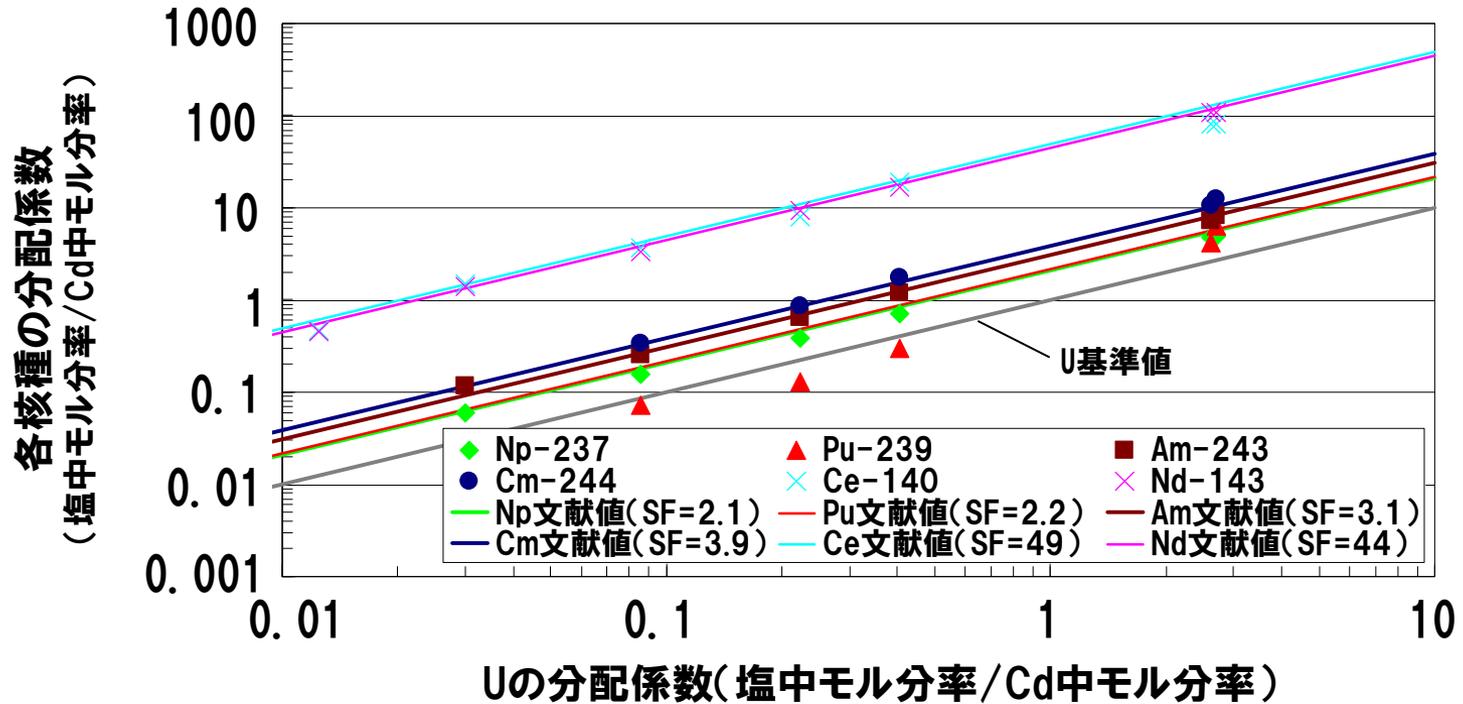
高レベル廃液からのTRUの分離 — TRUの抽出分離(還元抽出) —



- 塩相中の元素は、アクチニド→3価の希土類FP→2価の希土類FPの順で還元され、Cd相に抽出
- アクチニド元素は塩相には残留せず、全量をCd相中に回収

溶融塩中ならびにCd中の元素濃度変化

高レベル廃液からのTRUの分離 — TRUの抽出分離(還元抽出) —



- ・Pu以外のTRU、希土類FPの分離係数は文献値とほぼ一致
⇒U、TRUと希土類FPはこれまでの知見通り分離できる

元素:MのUに対する分離係数(SF) =
$$\frac{M \text{の 塩相中モル分率/Cd相中モル分率}}{U \text{の 塩相中モル分率/Cd相中モル分率}}$$

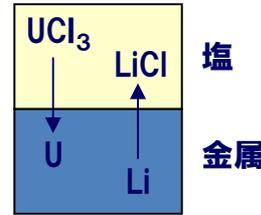
溶融塩/Cd系中での分離係数

還元抽出技術の開発 — 前回C&Rまでの成果 —

【還元抽出技術】

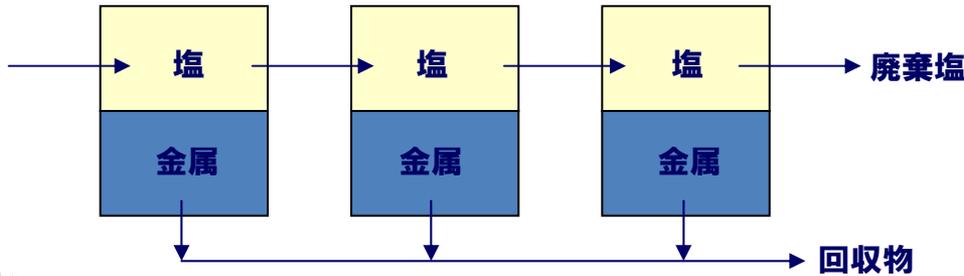
<基礎試験>

静置系での還元抽出試験により、希土類元素、アクチニド元素の分配係数を測定し、分離係数（相互の分配係数の関係）を明らかにした。



<分離実証>

TRUを用いた多回抽出（バッチ式での多段抽出）試験により、アクチニドの99%以上の回収と、希土類との分離を同時に達成できることを明らかにした。



<プロセス検討>

これらの結果をふまえ、還元抽出を中心とする乾式分離プロセス全体のマスバランス評価を実施した。

LiCl-KCl/Bi系および/Cd系での分離係数（実験値）
Nd基準：小さいほど金属に抽出されやすい。

	LiCl-KCl/Bi系	/Cd系
U	0.00065	0.016
Np	0.0051	0.045
Pu	0.0076	0.056
Am	0.015	0.067
Ce	0.89	1.1
Pr	0.99	0.93
Nd	1	1
La	2.7	2.9
Gd ^{*)}	11	4.0

LiCl-KCl/Bi系 (500℃) での5回の多回抽出による各元素の回収結果

	実験値	計算値
U	99.3%	100.0%
Np	99.9	99.99
Pu	99.9	99.99
Am	99.7	99.81
Ce	20.5	18.82
Pr	20.9	17.13
Nd	16.3	16.97
La	6.85	6.735
Gd ^{*)}	7.52	1.706

*) ICP-MS分析において、GdはNdOの干渉を受ける。

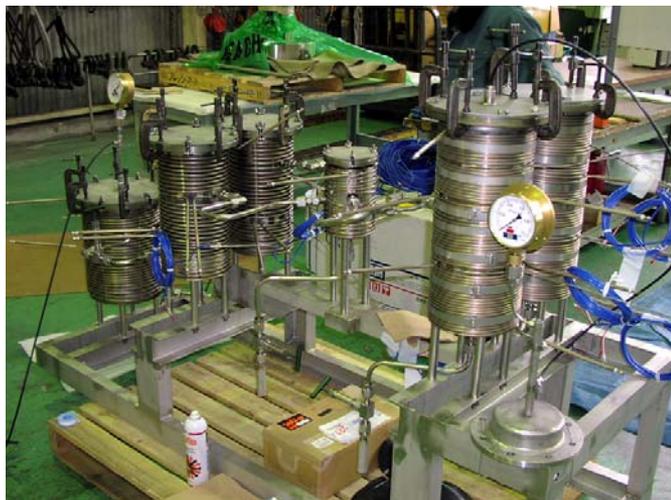
還元抽出工学化技術の開発 — 単段抽出機の開発 —

<目標>

金属燃料の乾式再処理プロセスにおいて、電解精製槽の使用済塩からアクチニドを99.9%以上の高効率で回収でき、かつ遠心抽出器(パイロコンタクター:ANL)に比べて構造が単純で、複雑な運転制御を必要としない攪拌槽式の抽出装置を開発する。

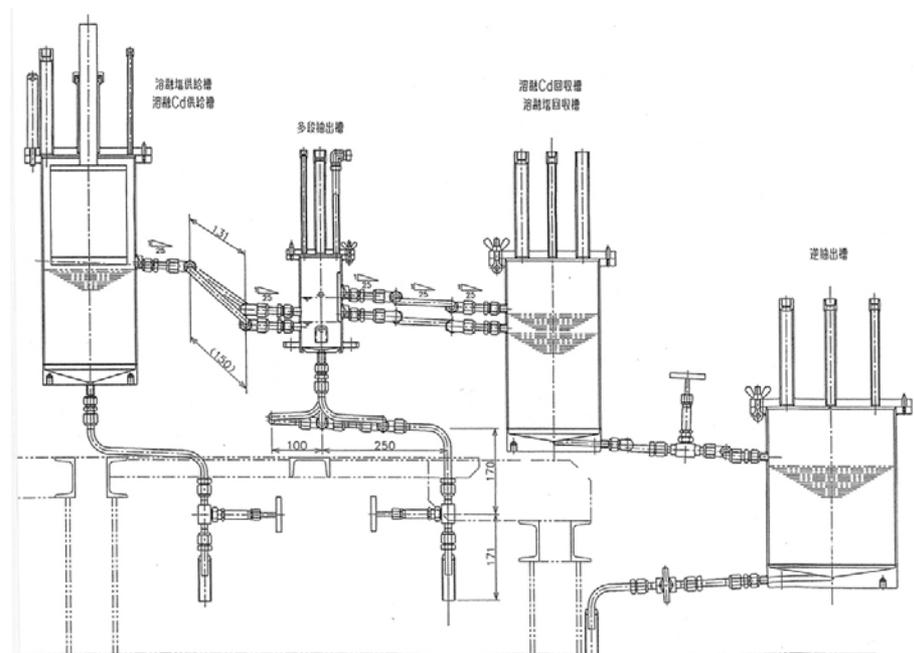
このうち、連続抽出器については、単段および向流3段の装置を製作し、

(1) 一定の低流量で塩およびCdを抽出器に供給でき、(2) 抽出器から塩とCdを完全に分離して回収でき、(3) 高い回収率と分離係数が得られることを明らかにした。



・塩及びCdの装荷量:各5リットル、
処理量:各3リットル/2-5時間

→ 現在設計している乾式再処理プラントでの浴塩処理量:約50リットル/日)



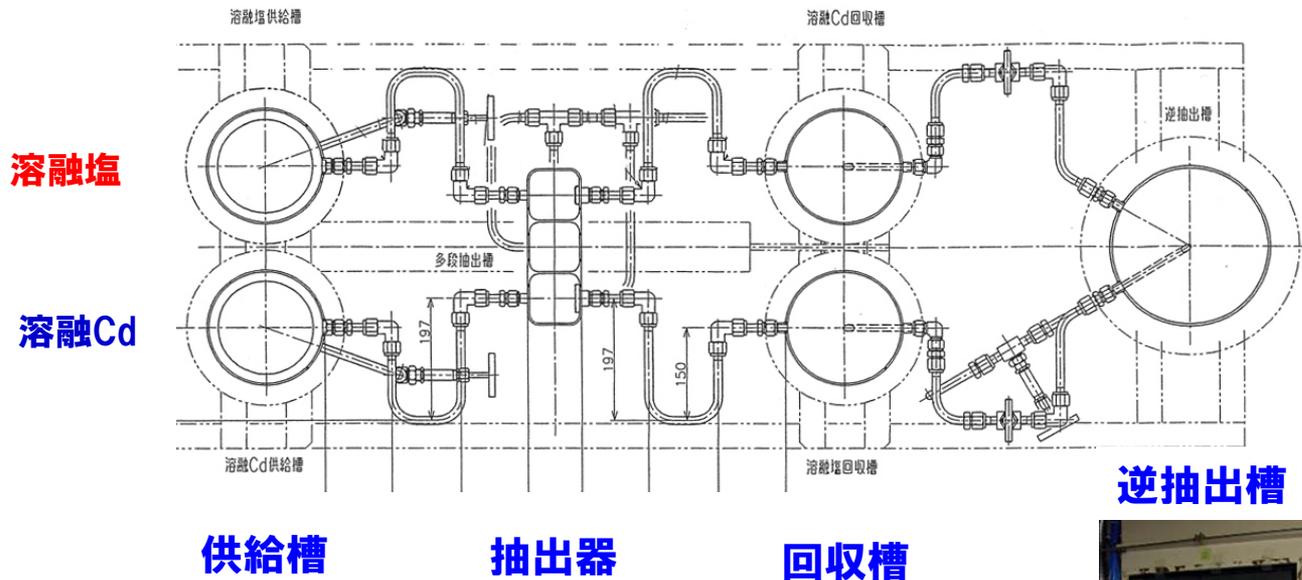
供給槽

抽出器

回収槽

逆抽出槽

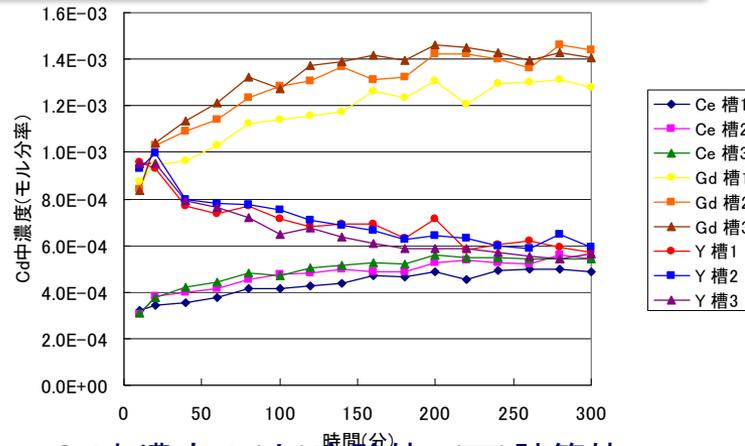
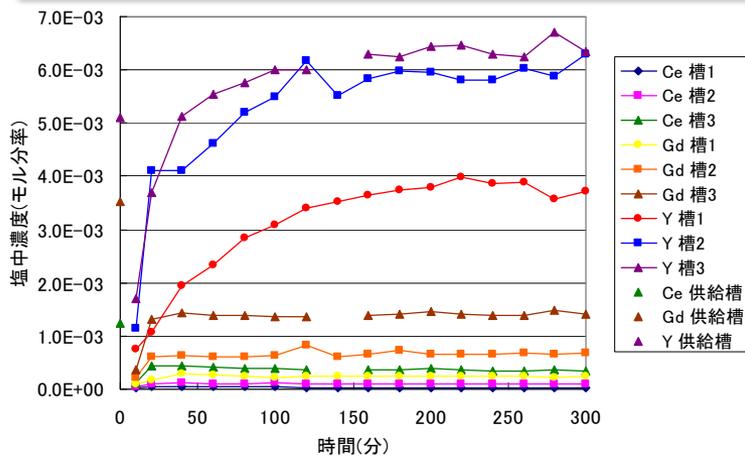
還元抽出工学化技術の開発 一向多段抽出機の開発



容量: 溶融塩 240ml 溶融Cd 360ml
攪拌: 塩相、界面、Cd相の3段のインペラを1軸で廻す。
サンプリング: 上部のサンプリング孔よりステンレス管を挿入して吸引採取

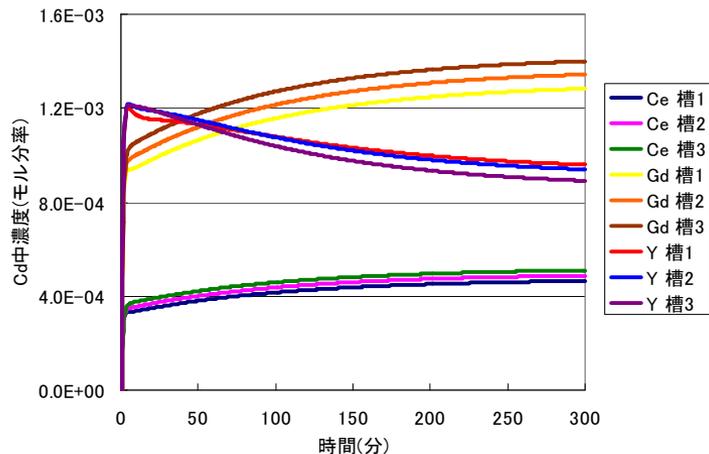
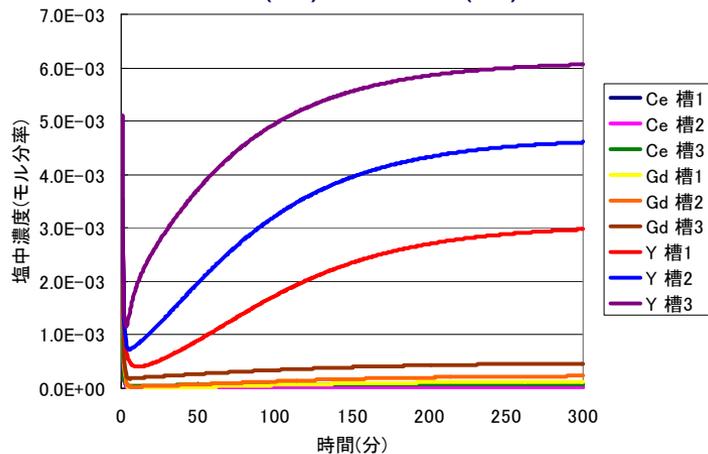


還元抽出工学化技術の開発 — 抽出試験結果と計算値 —



塩中濃度の(上)実験値、(下)計算値

Cd中濃度の(上)実験値、(下)計算値



回収率(%)

	Ce	Gd	Y		Ce	Gd	Y
塩中	2.1	6.7	72.7		2.0	6.6	76.4
Cd中	103.5	94.9	26.4	→	98.0	93.4	26.7
合計	105.6	101.6	99.1		100.0	100.0	100.0

(規格化)

Ceに対する分離係数

	実験結果	分配平衡
Gd	0.28	0.27
Y	0.0073	0.0091

まとめ

実高レベル廃液試験

- 化学プロセス確証のため、実高レベル廃液を出発物質として脱硝・塩素化・還元抽出のプロセス連続試験を実施し、全てのTRU元素をほぼ100%液体カドミウム中に回収することができた
- 各工程でのアクチニド元素、FP元素の挙動は、コールドならびにTRU使用試験の知見(単元素試験、模擬廃液試験)とほぼ一致した
 - 脱硝、塩素化工程での元素揮発挙動
 - 各元素の分配挙動
 - 単段における分離係数

還元抽出工学化技術開発

- 高温のCd、塩を連続的に一定流量で供給しそれぞれを混合することなく、個別に回収できる単段の抽出器を開発した
- 引き続き3段の向流抽出器を開発し、単段抽出器での試験と同様に、運転できることを確認した
- Uの模擬物としたCeについて98%の回収率が得られ、単段での分配平衡を超える分離係数が得られた
- 本研究成果によって還元抽出技術が工学規模で成立することが確認できた

総括(2000年C&R)に対する進捗

総括(分離技術)

- 熔融塩電解法及び分離プロセスと同様の還元抽出法を考えている
 - 再処理の主工程に当たる電解精製技術については国際共同研究を通してプロセスの成立性を確認しており、工学規模の試験段階にあるものの、酸化物の還元技術や塩廃棄物処理技術についてはプロセスの成立性の確認が必要であることから①プロセス構築・成立性実証段階にあると考えられる
- 国際共同研究により実廃液試験を行いTRU分離プロセスの確認を行った
- 工学的な適用が可能な向流多段抽出装置を開発した
- 塩廃棄物処理についてはプロセスの成立性を確認した(次回以降報告)

技術的課題

- 実際に超ウラン元素や実廃液を用いて、分離プロセス全体を通したプロセス実証試験を進める必要がある。
- 小規模であるがプロセス実証試験を実施した。
- 平成14年度までに超ウラン元素研究所との共同研究などを実施する予定となっている
- 本試験は当初標記年度に予定していたが、18,19年度に実施した
- 今後必要となる工学規模の試験に当たっては、他機関との協力体制が不可欠である。
- 工学装置の開発は実施しているが、ホット試験で実施するには我が国には適切な施設が整備されていないのが現状である
- 当面は、塩化物や活性金属に対する高耐食性材料の開発、熔融塩などの高温の液体の輸送技術の検討、二次廃棄物発生量の評価などが課題である。
- 抽出工程での材料は、鉄性のものだと課題はないと考えるが、塩化炉の材料、塩・カドミウムの蒸留工程(乾式再処理)では適切な材料の開発、選定が必要である(セラミックス系ならびに多層構造の材料開発中、次回以降報告)。塩リサイクル技術に関してはゼオライト処理法を開発中である