

企画セッション | 部会・連絡会セッション：再処理・リサイクル部会

■ 2019年3月22日(金) 13:00 ~ 14:30 | 会場 共通教育棟2号館 1F 12番

[3D_PL] 乾式再処理に関する国内外の研究開発の現状

座長: 森田 泰治(JAEA)

[3D_PL01] 乾式再処理の概要および各国の研究開発動向

*小山 正史¹ (1. 電中研)

[3D_PL02] 窒化物燃料の処理技術の現状

*林 博和¹ (1. JAEA)

[3D_PL03] 金属燃料および酸化物燃料の処理技術の現状

*飯塚 政利¹ (1. 電中研)

[3D_PL04] フッ化物揮発法を用いた酸化物燃料の処理技術の現状

*星野 国義¹ (1. 日立GE)

[3D_PL05] 溶融塩炉燃料の処理技術開発の現状

*松浦 治明¹ (1. 東京都市大)

再処理・リサイクル部会セッション

乾式再処理に関する国内外の研究開発の現状

Current Status of R&D on Pyroprocessing

(1) 乾式再処理の概要および各国の研究開発動向

(1) Overview of Pyroprocessing and Trend in Each Country

* 小山 正史¹¹電力中央研究所

1. はじめに

昨年 10 月 24 日から 26 日にかけ東海村 IVil で乾式再処理プロセス国際会議（IPRC2018）が開催された。これは核燃料サイクルでの乾式再処理の実用を視野にした目標の明確な国際会議であり、本分野の著名な研究者から若手研究者まで、世界 7 ヶ国から約 60 人が集まり、専門的な議論が行われた。もともと GNEP における乾式サイクル開発の進展を狙い、米 ANL と INL、電中研、KAERI が発起人となって 2006 年に始めた小さな国際会議だが、出席者は増加傾向にあり、今回は CEA が欧州初めてのホストになるなど開催国も広がりつつある。GNEP の終了や福島第一事故などによる政策的な変化にも関わらず、乾式再処理の研究が継続されており、その特有の技術特性により将来の役割が期待されるものと考えられる。

2. 乾式再処理技術の概要

乾式再処理は、硝酸溶液を用いる PUREX 法などの湿式再処理に対照した名づけであり、高温冶金法あるいは高温化学法が元々の名前である。従って、燃料転換や燃料製造に用いられている高温を用いたプロセス技術の一種であり、現行のサイクル技術からかけ離れているわけではなく、両者をまたがる研究者や技術者も多い。乾式再処理が湿式再処理に比べて、体積当たりに扱える核燃料量が大きく、高放射線の燃料が扱えるのは、減速材となる水や、放射線に対し不安定な有機溶媒を用いないため[1]で、燃料製造施設を想定すれば理解しやすい。後の発表に示すように、再処理としては処理する燃料形態に応じて、様々なプロセスが提案されているが、概ね、湿式再処理と比べて分離性能が悪く、回収した燃料にはある程度の濃度で FP が混入することが欠点である。ところが、回収燃料を高速炉で用いれば、FP の核的影響は小さく、むしろ、MA が Pu とともに回収されるため、低い分離性能を逆に長所としているところが特徴である。

3. 内外の研究開発の動向

世界的に、高速炉を始めとする第 4 世代炉の実用化が遅れており、様々な理由が考えられるが、サイクル施設の実用化に大きな時間とコストが掛かることも一因と思われる。即ち、高燃焼度で MA 濃度の高い第 4 世代の使用済燃料について、実用規模のホット試験の実現が大きなネックになっている[1]。乾式再処理は、前記の特性により、小さな施設で比較的多量の燃料処理が行えるため、例えば金属燃料 FBR なら 10ton/年程度の再処理施設で実用的な経済性が期待されている[2]。従って、SMR に कोरोケーションするような再処理施設なら実用規模のホット試験の敷居がずっと低く、INL での EBR-II 燃料のホット試験が既に実用規模である。このため、乾式再処理が商業的な Gen-IV の Pu 燃料サイクルを世界で実現する上で、先導的な役割を担いうと考えられる。当日は、この観点で各国が実施している研究開発動向を紹介する。

参考文献

[1] T. Koyama, T. Todd, B. Boullis, J. Chen, J. Hur “Reprocessing Technology – R&D to Industrialization” GLOBAL2017, Plenary Panel, Sept. 27, 2017.

[2] T. Koyama, “Nuclear Engineering for Pyrochemical Treatment of Spent Nuclear Fuel”, Nash & Lumetta ed., “Advanced Separation Techniques for Nuclear Fuel Reprocessing and Radioactive Waste Treatment”, Woodhead Publishing, ISBN978-1-84569-542-2, p.269-310(2011).

*Tadafumi Koyama¹¹Central Research Institute of Electric Power Industry

再処理・リサイクル部会セッション

乾式再処理に関する国内外の研究開発の現状

Current Status of R&D on Pyroprocessing

(2) 窒化物燃料の処理技術の現状

(2) Reprocessing of Nitride Fuel

*林 博和¹¹日本原子力研究開発機構

1. 窒化物燃料の特徴 [1-3]

アクチノイド窒化物はセラミックスであるが金属的性質を併せ持ち、融点が高く熱伝導率が大きいという特長がある。このため、定常運転条件において燃料温度を融点よりも十分に低く保つことによって、燃料中の物質の移動、燃焼に伴う FP ガス放出、スエリングなどを抑制することができる。窒化物の製造については、原料酸化物を炭素粉末と混合して窒素ガス中での加熱する炭素熱還元反応、及び窒素-水素中での加熱による残存炭素の除去という方法が確立されている。しかし、窒化物は空気中での化学的安定性が十分でないため、不活性ガス雰囲気で取扱う必要があるという課題がある。また、燃焼中に N-14 から(n,p)反応によって C-14 が生成されるため、生成した C-14 の回収・安定化、もしくは天然存在比 0.36% の N-15 を濃縮して使用することが必要である。

2. 窒化物燃料及び窒化物燃料処理技術の研究開発状況

2-1. 研究開発の概要

窒化物燃料は、炭化物燃料とともに MX 型燃料(M=U+Pu, X=N または C)と称され、アクチノイド密度の大きな高性能の高速炉用燃料として期待されて、1960 年代から米国、ヨーロッパ、ソ連(現ロシア)、日本などにおいて研究開発が行われてきた[1]。窒化物燃料の再処理法については、PUREX 法に基づく湿式法、及び熔融塩電解法を応用した乾式法の研究開発が行われてきた。湿式法では、窒化物燃料を直接硝酸に溶解する方法のほか、硝酸溶解前に酸化処理によって高濃縮 N-15 を回収(再利用)し、その後の工程は酸化燃料の再処理と同様に行う方法が検討された[1,4]。一方、金属燃料の再処理法として開発され、INL において工学的規模試験まで実施されている熔融塩電解を主工程とする乾式法が、電気伝導度が大きな MX 型燃料に適用可能であることが、UC 及び UN を用いた基礎試験によって示され[5,6]、研究開発が行われた。窒化物燃料の熔融塩電解では、陽極において窒化物が窒素(N₂)ガスを発生しながら溶解し、アクチノイドはイオン化して熔融塩中に溶解する[7-9]。陽極における金属元素溶解後は金属燃料の場合と同様に、アクチノイドは塩化物の生成自由エネルギーの差に従って FP と分離され、陰極において回収される。なお、乾式法では、N₂ガスとして放出される高濃縮 N-15 の回収が比較的容易であると考えられる。

2-2. ロシアにおける研究開発状況

ロシアでは、高速炉用高密度燃料として窒化物燃料の研究開発が継続的に行われている[10]。近年は、ROSATOM が 2010 年に政府に承認した連邦目標計画の下で、2025 年までに高速炉を用いた燃料サイクルを基本とした新たな原子力発電技術を開発することを目標として 2012 年に開始された「PRORYV(break through)計画」において、U-Pu 窒化物燃料を鉛冷却高速炉で使用し、使用済燃料を短い冷却期間(1 年間以下が目標)で再処理する技術の開発を実施している。この計画では、トムスク州のシベリア化学コンビナート(SCC)に、窒化物燃料製造施設(14t/y)(2014 年 3 月建設開始)を皮切りに、鉛冷却実証炉(BREST-OD-300、2025 年頃運転開始予定)及び再処理実証施設(5t/y)も建設する予定である[11-13]。He ボンド窒化物ペレット燃料の研究開発では、Na 冷却高速炉での利用も視野に入れて燃料製造技術、基礎物性測定、実験炉(MIR, BOR-60)及び原型炉(BN-600)における照射・照射後試験などが行われている[14]。

燃料再処理については、乾式・湿式ハイブリッド法(PH-プロセス)による再処理の研究開発が実施されてきた[10,15,16]。これは、使用済燃料を短期間冷却後に、LiCl-KCl 共晶塩を用いた熔融塩電解法でアクチノイドとFPの分離を行ってから、アクチノイドの相互分離を湿式法で行うもので、U-Pu-Npを燃料として使用、Amは核変換用燃料(U-Am)に使用、Cmは長期保管することとしている。2013年に照射済みUN燃料を用いた熔融塩電解試験をRIARのホットセル内で実施したが、電流密度が大きい条件で熔融塩電解を行った場合にペレット表面にUNCl化合物などが生成して陽極溶解が妨げられるという現象が見られ、手法の見直しを行っている[16]。現在は、冷却期間を長くせざるを得ないが技術的課題の少ない湿式法の開発[17]の他に、「高温電気化学研究所(IHTE)」において乾式法の研究開発を実施中である[16, 18]。IHTEでは、窒化物の熔融塩中への化学溶解にCdCl₂を用いる方法を”soft chlorination”と名付けて、実験研究を行っている[18]。この方法においても、500℃程度の温度では、中間生成物としてUNClが生成するが、より高温においてUNClの溶解が可能である[18]。これらのUNClの挙動は、2000年前後に旧原研が報告した実験結果及びその熱力学データに基づいた解釈[6,19-21]とよく一致するものである。なお、化学溶解後のアクチノイドの分離回収方法については、熔融塩電解法が適用できると考えられる。

2-3. 日本における研究開発状況

日本原子力研究開発機構では、階層型燃料サイクル概念に基づき、長寿命核種であるマイナーアクチノイド(MA)を加速器駆動未臨界システム(ADS)を用いて核変換するための燃料として、ウランを含まない高濃度MA含有窒化物燃料の研究開発を行っている[22-24]。燃焼による反応度の変化を抑制するためのPu、及び熱出力を調整する不活性母材であるZrNを含んだ固溶体である(Zr,Pu,MA)Nが燃料化学形の第一候補である。窒化物燃料は、燃料中に高濃度のMA元素を多様な組成で安定な状態で共存させられることがMA核変換燃料として適している。MAとPu(TRU)を含むアクチノイド窒化物の物性値はデータ集にまとめられ[25]、ZrNを不活性母材とした窒化物燃料の照射試験も実施されてきた[22]。

現在のADSの炉心設計では1燃焼サイクル当たりのMA核変換率は約20%である。核変換率をより大きくすることを目的として、使用済燃料中に残存するTRUを分離回収して次サイクルの燃料として使用するための乾式処理法の研究開発を実施している[9,22-26]。図に、原子力機構が提案しているMA核変換用窒化物燃料の乾式処理工程の概要を示す。主工程である液体Cd陰極を用いる熔融塩電解法は、陰極中にTRUを一括回収することができるため、原理的に核拡散抵抗性を大きくすることにも寄与する。液体Cd陰極に回収されたTRU元素を窒化物に転換する再窒化工程については、窒素ガス気流中でTRU-Cd合金を700℃程度で加熱する「蒸留窒化法」を開発した[27]。

これまでに、Pu及びMAを含んだ窒化物を用いて実験室規模の乾式処理法要素技術に関する試験を実施し、その原理的成立性を確認している[9,26]。また、「文部科学省 原子力科学技術委員会 群分離・核変換技術評価作業部会」の「中間的論点の取りまとめ」(平成25年11月)では、「(燃料サイクル技術を含めた各技術分野について)技術成熟度の検討を行った結果、概ね、概念開発段階から原理実証段階に移行することが可能な研究開発段階にあり、工学規模の次のステージに移行することが適当である」と評価された[28]。これを踏まえ、使用済MA核変換用窒化物燃料の乾式再処理技術の技術成熟度を原理実証段階まで引き上げることを目指し、窒化物の陽極溶解に適した陽極や工学規模を目指した再窒化試験装置の開発とそれを用いたコールド試験、乾式処理プロセスの詳細検討と物量評価などを実施している。今後は、TRU試料を用いた小規模試験による元素挙動評価とともに、燃料ピンせん断等の前処理工程、電解残渣の化学溶解、塩からのFP除去廃棄体化などの周辺工程も含めた技術開発をさらに進める予定である。

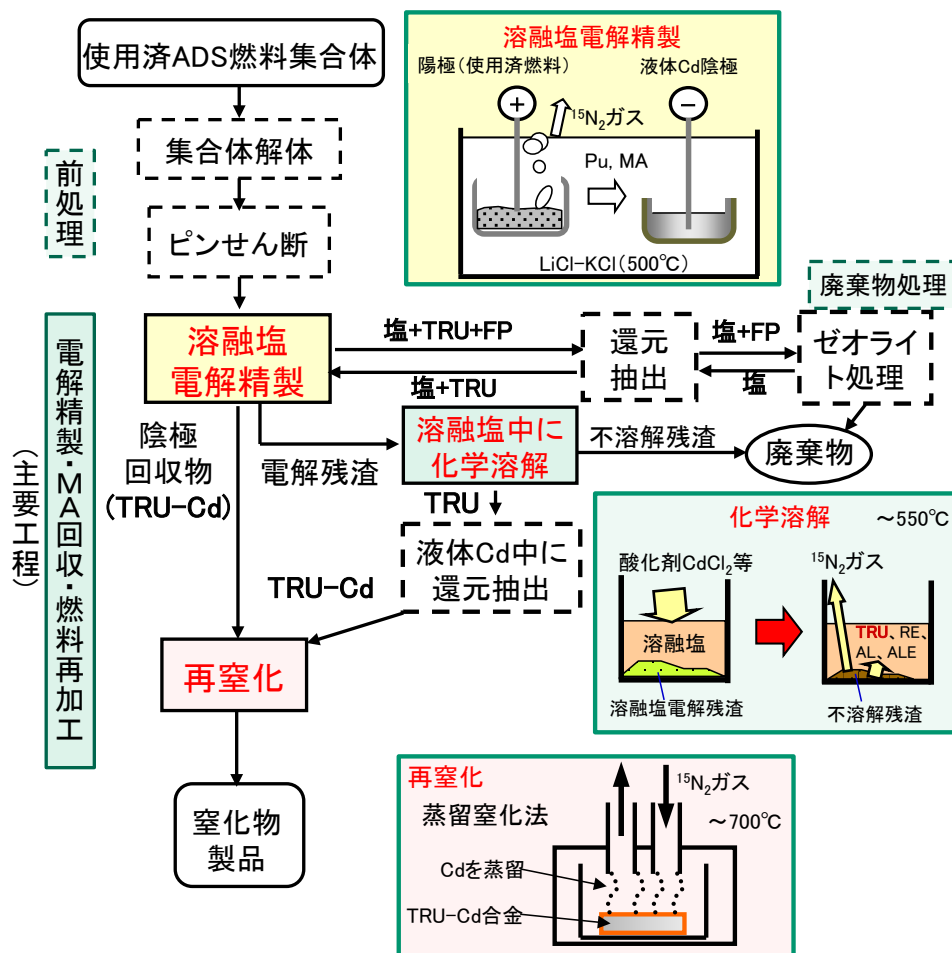


図 原子力機構が提案している MA 核変換用窒化物燃料の乾式処理工程の概要

参考文献

- [1] 鈴木康文、荒井康夫、プルトニウム燃料工学、第4章 4.4 窒化物及び炭化物燃料、日本原子力学会「次世代燃料」研究専門委員会、p.260-291 (1998).
- [2] Y. Arai, "3.02 Nitride fuel," in Comprehensive Nuclear Materials, p.41 – 54, Elsevier (2012).
- [3] OECD/NEA, State-of-the-art Report on Innovative Fuels for Advanced Nuclear Systems, 4. Nitride fuels, NEA No. 6895 (2014).
- [4] HJ. Matzke, Science of Advanced LMFBR Fuels, p. 622-641, (1986).
- [5] O. Knacke, J. Krahe, F. Muller, "Zur anodischen polarisation von UC in der schmelze LiCl-KCl," Z. Physik. Chem., 50, 105 (1966).
- [6] F. Kobayashi, T. Ogawa, M. Akabori, Y. Kato, "Anodic-dissolution of uranium mononitride in lithium chloride-potassium chloride eutectic melt," J. Amer. Ceram. Soc., 78, 2279-2281 (1995).
- [7] 荒井康夫、最新核燃料工学—燃料高度化の現状と展望—、第8章 8.6 窒化物電解法によるリサイクル技術、日本原子力学会「高度燃料技術」研究専門委員会、p.451-457 (2001).
- [8] O. Shirai, H. Yamana, Y. Arai, "Electrochemical behavior of actinides and actinide nitrides in LiCl-KCl eutectic melts," J. Alloys Compd., 408-412: 1267-1273 (2006).
- [9] H. Hayashi, T. Sato, H. Shibata, M. Kurata, T. Iwai, Y. Arai, "Pyrochemical treatment of spent nitride fuels for MA transmutation," Sci. China. Chem., 57(11) 1427-1431 (2014).
- [10] A. Shadrin, et al., "Fuel fabrication and reprocessing for nuclear fuel cycle with inherent safety demands," Radiochim. Acta 103(3) 163-173 (2015).
- [11] 佐賀山豊、「ロシアの高速炉開発戦略」, 高速炉開発会議 戦略ワーキング(第5回), 2017年10月31日,

http://www.meti.go.jp/committee/kenkyukai/energy/fr/senryaku_wg/pdf/005_01_00.pdf

- [12] 「平成 29 年度原子力の利用状況等に関する調査（革新的原子炉の研究開発動向等に関する調査）報告書」平成 30 年 2 月 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構
- [13] E. O. Adamov, “Closed Fuel Cycle Technologies Based on Fast Reactors as the Corner Stone for Sustainable Development of Nuclear Power,” Proc. FR17, Yekaterinburg, Russia, 26–29 June 2017, p.17 (2018).
- [14] A.F. Grachev, L.M. Zabudko et al., “Development of innovative fast reactor nitride fuel in Russian Federation: state-of-art,” Proc. FR17, IAEA-CN245-062 (2018).
- [15] OECD/NEA, State-of-the-Art Report on the Progress of Nuclear Fuel Cycle Chemistry, 2.3.4. Nitride fuel treatment, NEA No. 7267, pp.169-173 (2018).
- [16] A. Shadrin, et al., “Reprocessing of Fast Reactors Mixed U-Pu Used Nuclear Fuel in Russian Federation: Studies and Industrial Test,” Proc. FR17, IAEA-CN245-076 (2018).
- [17] A. Shadrin, et al., “Hydrometallurgical reprocessing of BREST-OD-300 mixed uranium-plutonium nuclear fuel,” Procedia Chemistry, 21, 148-155 (2016).
- [18] Yu. P. Zaykov et al., “Pyrochemical Recycling of the Nitride SNF of Fast Neutron Reactors in Molten Salts as a Part of the Short-Circuited Nuclear Fuel Cycle,” Proc. FR17, IAEA-CN245-259 (2018).
- [19] O. Shirai, K. Uozumi, T. Iwai, Y. Arai, “Recovery of U by electrolysis of UN in LiCl-KCl eutectic melts,” J. Nucl. Sci. Technol. Sup. 3, 745-748 (2002)
- [20] H. Hayashi, F. Kobayashi, T. Ogawa, K. Minato, “Dissolution of uranium nitrides in LiCl-KCl eutectic melt,” J. Nucl. Sci. Technol. Sup. 3, 624-627 (2002)
- [21] H. Hayashi, T. Ogawa, K. Minato, “Thermochemical consideration for pyrochemical reprocessing of nitride fuels,” Proc. Japan-Korea Workshop on Nuclear Pyroprocessing, 5-6 Feb., 2002, p.301-314 (2002).
- [22] 荒井康夫、分離変換技術総論、日本原子力学会「放射性廃棄物の分離変換」研究専門委員会、p.134-140, 166-172 (2016).
- [23] H. Hayashi et al., Recent progress and future R&D plan of nitride fuel cycle technology for transmutation of minor actinides, Proc. 13th OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, Seoul, Republic of Korea, Sep. 23-26, 2014, (2015), p.370-377.
- [24] H. Hayashi et al., Development of nitride fuel cycle technology for transmutation of minor actinides, Proc. Global 2015, Paris, France, Sep. 20-24, 2015, (2015), p.1811-1817.
- [25] T. Nishi, Y. Arai, M. Takano, and M. Kurata, “Property database of TRU nitride fuel,” JAEA-Data/Code 2014-001 (2014).
- [26] 林博和「マイナーアクチノイド核変換用窒化物燃料の乾式再処理研究の現状」、日本原子力学会「2015 年秋の大会」TN21 再処理・リサイクル部会セッション「ADS による核変換用 MA 燃料再処理技術の最新動向」、静岡 (2015 年 9 月).
- [27] Y. Arai, T. Iwai, M. Akabori, K. Minato, “Synthesis of actinide nitrides in molten cadmium,” Nucl. Technol., 162, 244-249 (2008).
- [28] 「「群分離・核変換技術評価について」の中間的な論点のとりまとめについて」文部科学省 科学技術・学術審議会 研究計画・評価分科会 原子力科学技術委員会 群分離・核変換技術評価作業部会 (2013 年 11 月).

*Hirokazu Hayashi¹

¹Japan Atomic Energy Agency

再処理・リサイクル部会セッション

乾式再処理に関する国内外の研究開発の現状

Current Status of R&D on Pyroprocessing

(3) 金属燃料および酸化物燃料の処理技術の現状

(3) Reprocessing of Metal Fuel and Oxide Fuel

*飯塚 政利¹¹電力中央研究所

1. 金属燃料および酸化物燃料を対象とする乾式再処理技術の特徴と概要[1,2]

我が国における高速炉燃料サイクルは、MOX 燃料 Na 冷却高速増殖炉、先進湿式法再処理及び簡素化ペレット法燃料製造からなる組み合わせを「主概念」、金属燃料ー乾式再処理からなる組み合わせを、将来の社会環境によっては主概念よりもその時点の社会に柔軟に適合する可能性がある「副概念」として位置付け、研究開発が進められている。金属燃料高速炉燃料サイクル（図 1）は、金属燃料の特性に基づく高い増殖率と優れた炉安全性、再処理において水や有機溶媒を使用しないことによる高燃焼度・高発熱燃料処理への適性、常に超ウラン元素に U が随伴することによる核拡散抵抗性への寄与、マイナーアクチニド(MA) と Pu の一括回収ならびにサイクル内への閉じ込めと核変換、簡素で低コストな射出鋳造法を用いた燃料製造、などの特徴を併せ持っている。さらに、小規模における経済性が優れていることから、高速炉燃料サイクル導入シナリオに柔軟性をもたらす技術として着目されている[3,4]。

金属燃料および酸化物燃料の乾式再処理フローシート概要を図 2 に示す。使用済み酸化物燃料は、熔融塩化リチウム (LiCl、650℃) 中で電気分解の原理を用いて金属に転換され、乾式再処理に導入される。湿式再処理で発生する高レベル廃液に含まれる MA は、脱硝および塩素ガスによる塩素化を経て乾式再処理に供給される。乾式再処理の中心的な工程は、500℃で熔融させた塩化物 (LiCl-KCl) 溶媒中での電解精製である。電解精製工程の概要と主な物質の流れを図 3 に模式的に示す。熔融塩化物中における元素による溶解・析出電位や液体 Cd 中での化学的安定性などの性質を最大限利用することにより、燃料の溶解と FP の分離、アクチニドの回収が一つの装置で実施できることが大きな特徴である。電解精製工程で回収されたアクチニドは、陰極処理と呼ばれる高温蒸留により溶媒塩化物溶媒や液体 Cd を除去した後に成分調整され、リサイクル燃料製造原料となる。電解精製工程で使用する熔融塩化物溶媒中蓄積したアルカリ、アルカリ土類、希土類 FP は、ゼオライトに吸着させ、ガラスと混合して加熱圧縮することにより、安定なガラス結合型ソーダライト固化体とする。一方、電解精製工程で溶解しない白金族 FP は、被覆管材料と共に熔融固化される。

2. 世界各国における研究開発の状況

米国では 1960 年代から高速実験炉金属燃料再処理のために乾式再処理技術開発を進めてきた。熔融塩電解精製などの技術を適用した乾式再処理プロセスの基本は、ANL (Argonne National Laboratory: アルゴン国立研究所) が実施した IFR (Integral Fast Reactor) 計画 (1984～1994 年) と呼ばれる金属燃料高速炉サイクル研究開発プロジェクトの中で生み出されたものである。INL (Idaho National Laboratory: アイダホ国立研究所) は、このプロセスによりこれまでに約 5 t の高速実験炉 (EBR-II : Experimental Breeder Reactor-II / FFTF : Fast Flux Test Facility) 照射後金属燃料を処理した実績を持つ。この他の国立研究所や大学でも盛んに乾式再処理研究が行われている。

韓国では KAERI (Korea Atomic Energy Research Institute: 韓国原子力研究所) が、金属燃料・高速炉を含めた研究開発を行っている。乾式再処理技術については、電解精製、電解還元、廃棄物処理などのプロセス開発を進める一方、工学規模ホットセルである乾式プロセス統合実証試験施設 (PRIDE) を運用している。INL での工学規模乾式ホット試験を含む米国との乾式共同研究 (2011～2021) を行うと共に、IAEA との国

際協力により保障措置／計量管理の妥当性、コスト評価等を実施している。

欧州では核変換ターゲットの再処理法のオプションとして乾式法に着目しており、フランスでは溶融フッ化物浴、JRC-Karlsruhe（欧州共同研究センターカールスルーエ）では溶融塩化物を用いた処理技術開発が進められたほか、イギリスやチェコにおいても溶融塩中における電気化学プロセスや廃棄物処理に関する基礎研究が行われている。ロシアの RIAR (Research Institute of Atomic Reactor: 原子炉研究所) では、高速炉燃料製造用の MOX 析出法として、溶融 NaCl-CsCl を用いた独自の乾式処理プロセスが開発された。溶融塩炉関連と並行して現在も基礎研究やプロセス検討を継続している。インド、中国では増殖率の高さから長期的には金属燃料高速炉の開発を志向しており、IGCAR (Indira Gandhi Centre for Atomic Research: インディラ・ガンジー原子力研究所) で工学規模装置開発を含めた活発な技術開発が進められている。

3. 日本における研究開発の状況

電中研は 1986 年より金属燃料高速炉および乾式再処理の研究に着手し、京大炉や国内メーカー等の国内機関との共研を経て、1990 年より前述の IFR 計画の一部 (Pu を用いた試験などによる乾式再処理要素技術開発、高速実験炉 EBR-II 使用済み金属燃料を用いた工学実証試験) に参画した。一方で、ロックウエル社、ミズーリ大学との共同研究により、溶融塩／液体金属系におけるアクチノイドの基礎物性測定などを行った。1994 年からは日本原子力研究所 (現 JAEA) との共同研究で Pu を用いた電解試験を実施し、Cd 陰極への回収条件を明らかにした。さらに、2002 年より核燃料サイクル機構 (現 JAEA) の CPF (Chemical Processing Facility: 高レベル放射性物質研究施設) に乾式試験設備を設置し、Pu を用いたプロセス連続試験を実施している。一方、金属燃料高速炉サイクルにおける MA の分離・核変換の実証を目指して、ITU (欧州超ウラン元素研究所、現 JRC-Karlsruhe) と共同で MA 含有金属燃料を製造し、フランスの高速原型炉フェニックスで照射した。CEA および ITU における照射後試験と並行して、ITU と共同で開発した Ar 雰囲気ホットセルにて照射済み燃料の乾式再処理試験、照射済み MOX を用いた電解還元試験、実高レベル廃液からの MA 乾式分離試験などを実施し、これらのプロセスの成立性を実証した。

2006 年以降は、「高速増殖炉サイクル実用化研究開発 (FaCT)」プロジェクトにおける「副概念」として、上記プロセス開発に加えて、国の競争的資金を活用した工学規模機器開発および模擬サイクル試験 (図 4) [5]、施設概念検討などを実施した結果、主要工程については工学規模での実証に進める段階に達している。さらに近年は、アクチノイド／希土類元素間分離性能向上や廃棄物発生量低減を中心としたプロセス合理化・高性能化の要となる独自のアイデアについても有望な結果が得られている。

参考文献：

- [1] T. Koyama and M. Iizuka, "Chapter 18 Pyrochemical process developments in Japan" in "Reprocessing and recycling of spent nuclear fuel for advanced fuel cycles" edited by Robin Taylor, Woodhead Publishing (2015).
- [2] 飯塚ら、「分離変換技術総論, 3.2 乾式再処理技術」、日本原子力学会 (2016).
- [3] 小山、尾形、「変化する将来に柔軟に対応するサイクルオプション—乾式リサイクル技術と金属燃料 FBR」、日本原子力学会誌、52、402-408 (2010).
- [4] M. Iizuka, T. Tsukada and T. Koyama, "Development of Fuel Cycle Technologies in CRIEPI - For Steady and Flexible Implementation -", Proc. Global 2017, Seoul, Korea (2017).
- [5] M. Iizuka et al., "Performance of pyroprocess equipment of sem-industrial design and material balance in repeated engineering-scale fuel cycle tests using simulated oxide/metal fuels", Nucle. Technol., 184, 107-120 (2013).

*Masatoshi Iizuka¹

¹Central Research Institute of Electric Power Industry

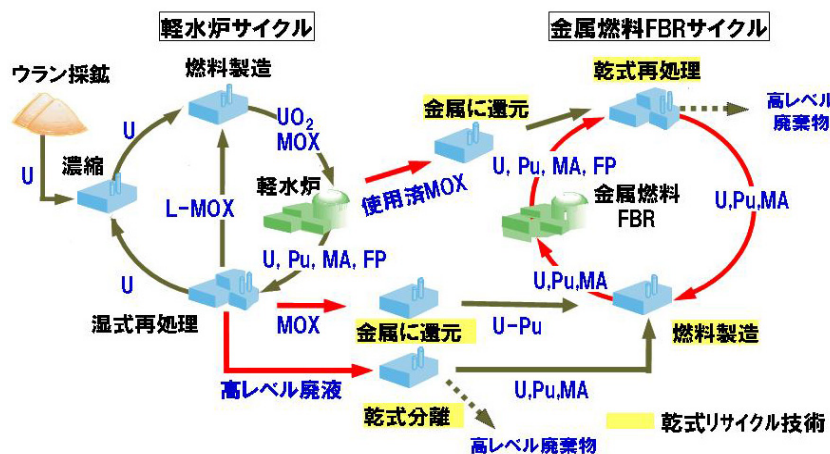


図1 金属燃料高速炉燃料サイクルの概念

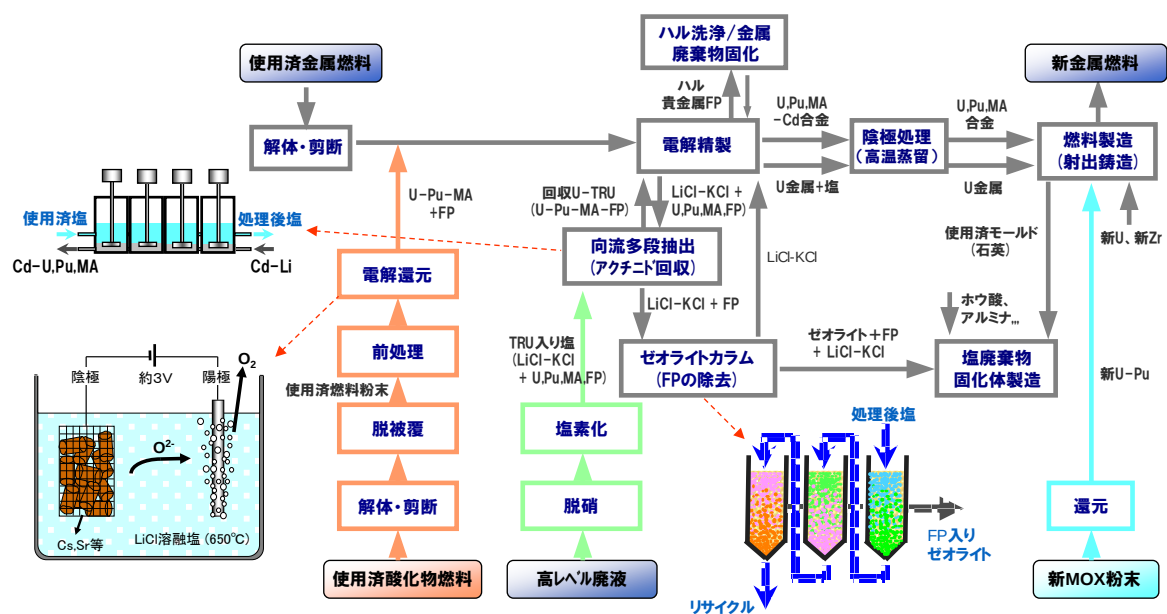


図2 乾式再処理フローシート

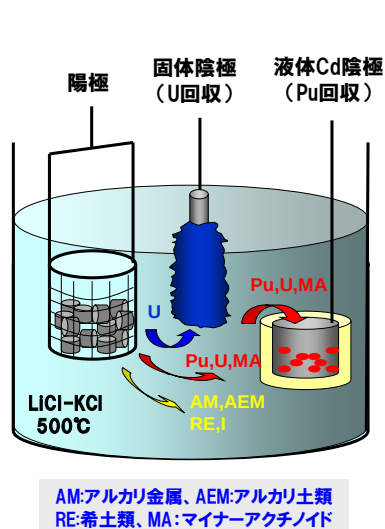


図3 電解精製工程の概要

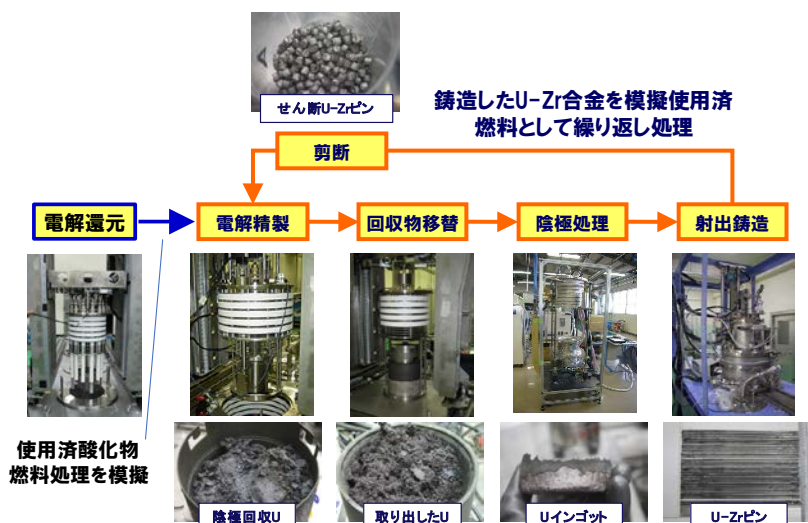


図4 工学規模模擬金属燃料サイクル試験の概要

再処理・リサイクル部会セッション

乾式再処理に関する国内外の研究開発の現状

Current Status of R&D on Pyroprocessing

(4) フッ化物揮発法を用いた酸化物燃料の処理技術の現状

(4) Processing of Oxide Fuel Using Fluoride Volatility Method

*星野 国義¹¹日立GEニュークリア・エナジー

1. 緒言

フッ化物揮発法は、使用済燃料の乾式再処理法の一つで、U、Puなどの核燃料物質や、いろいろな核分裂生成物のフッ化物の揮発性の差を利用して、核燃料の除染、回収を行う方法である。フッ化物揮発法を用いた処理技術の例として、使用済燃料の再処理技術および燃料デブリの安定化処理技術について以下に紹介する。

2. フッ化物揮発法を用いた処理技術

2-1. 使用済燃料の再処理技術「FLUOREX」

軽水炉燃料サイクルから高速炉サイクルへの移行期を主な対象とし、移行期に発生する各種の使用済燃料(軽水炉、プルサーマル、高速炉)を共通に処理可能な柔軟な再処理技術として、フッ化物揮発法と溶媒抽出法を組み合わせたハイブリッド再処理技術「FLUOREX」(Hybrid Process of Fluoride Volatility and Solvent Extraction)が開発されている[1]。本技術のプロセスフローを図1に示す。FLUOREX再処理技術では、使用済燃料再処理の初期段階で大量に存在するUの大部分をフッ化揮発させて分離し、気相に移行したPuを固体として回収し、一部のUとともに溶解して溶媒抽出法で精製する。大量Uの初期分離によりU/Pu精製系(UとPuは常に共存)の取扱量を大幅に低減でき、水溶液系の導入により既存のPUREX法でU/Puを高純度に精製できる。また、ガス系ではUF₆の気体状態での精製が可能でそのままウラン濃縮工程へ移送でき、水相へ移行するマイナーアクチニドMA(Np, Am, Cm)には現在国内外で開発中の湿式群分離技術を適用できる。これらの研究開発で、Uを用いた模擬使用済燃料のフッ化試験(500g/h規模)、小規模実使用済燃料フッ化試験(10g/バッチ)、酸化物転換試験(熱天秤、ボート炉試験装置等)等により基礎的成立性が見通しが得られている。

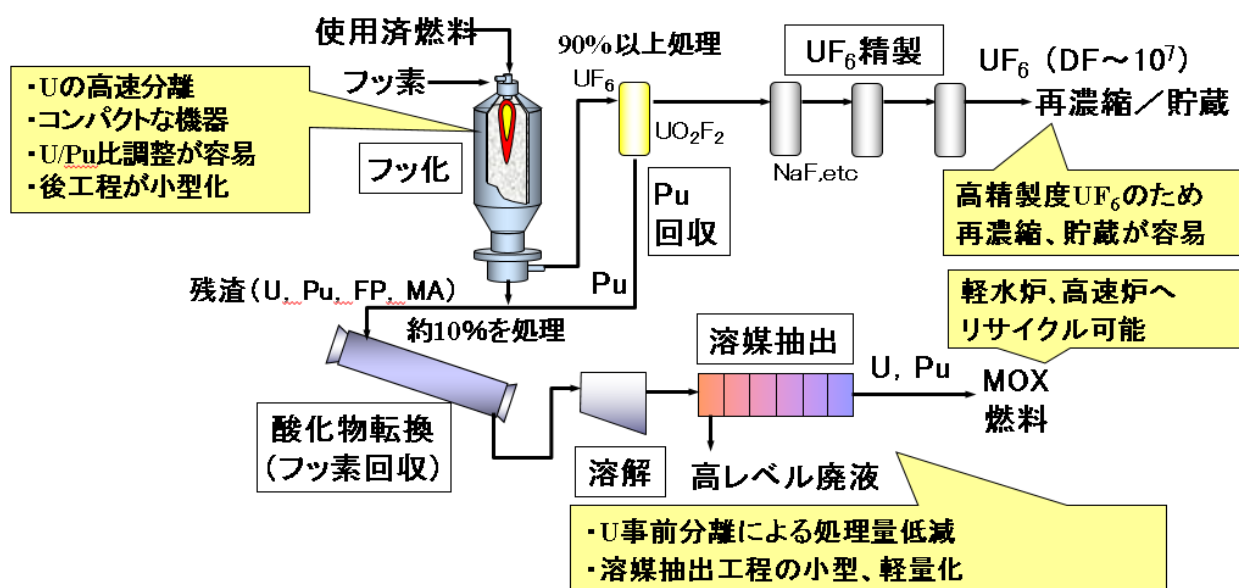


図1 「FLUOREX」のプロセスフローと特徴

2-2. 燃料デブリの安定化処理技術

これまで、米国スリーマイル島、旧ソ連チェルノブイリ、および福島第一の各原子力発電所で重大事故が発生し、燃料デブリが生成している。将来の革新炉も含め、原子炉で万一発生した場合の重大事故の収束と、事故で生じた燃料デブリを管理可能な形態に安定化処理することが大きな課題となる。燃料デブリは種々の放射性核種や構造材を含有しており、各核種の含有量や化学形態が不明確なまま保管することは、臨界管理、発熱管理等の観点から安全上のリスクが生じることになるからである。また、国際的にも核物質の計量管理が要求される。米国スリーマイル島原子力発電所2号機の事故で発生した燃料デブリは、従来の方法では溶解できず合理的な処理および安定形態への転換が困難であった。このため、フッ素(F_2)の反応性の高さを利用したフッ化揮発法による燃料デブリ処理技術の開発が進められている[2]。本技術は、前節 2-1 で説明した使用済燃料の再処理技術へ適用してきたフッ化物揮発法を、燃料デブリ処理に適用するものである。フッ化物揮発法を用いた燃料デブリ処理の概略プロセスフローを図2に示す。燃料デブリは、フッ化反応炉において一旦フッ化物に転換し、六フッ化物として気体となる U、Pu 等と固体で残る不純物を分離し、その後両者を安定な酸化物に転換する。大量の不純物を除去できるので、U や Pu の計量管理は容易となり、またデブリから転換された酸化物は硝酸に溶解可能であり、従来の再処理施設における計量管理用の分析や、必要であれば処分廃棄体や再利用を目指した更なる安定化や分離が可能である。すなわち、フッ化処理によりデブリを計量管理・長期保管・再処理・処分のいずれにも適した形態とすることが可能となる。これらの研究開発で、U を用いた模擬燃料デブリのフッ化試験 (5g/バッチ規模)、酸化物転換試験 (熱天秤、ボート炉試験装置等)、熱力学的評価等により基礎的成立性が見通しが得られている。

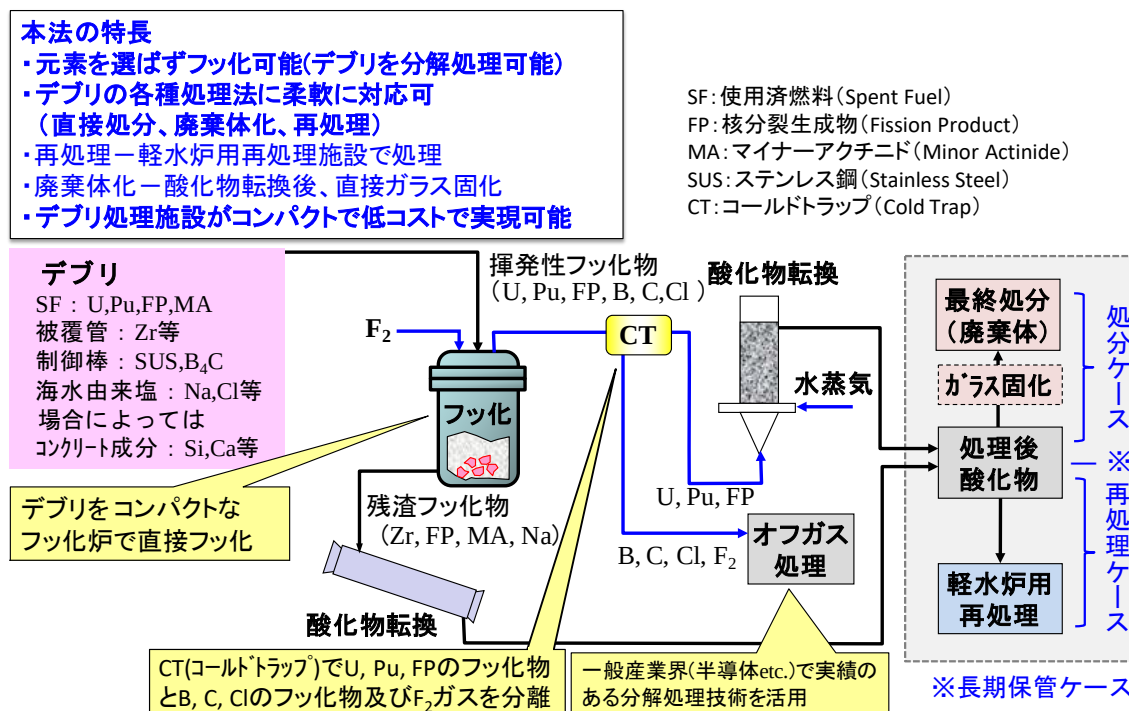


図2 燃料デブリの安定化処理技術のプロセスフローと特徴

参考文献；

- [1]平成 20～22 年度文部科学省原子力システム研究開発事業「フッ化技術を用いた自在性を有する再処理法に関する研究開発」総合報告書、日立GEニュークリア・エナジー（平成 23 年 3 月）
- [2]深澤ら、日本原子力学会 2014 年春の年会 H56、星野ら、日本原子力学会 2019 年春の年会 2B01

*Kuniyoshi Hoshino¹、¹Hitachi-GE Nuclear Energy, Ltd.

本報告は文部科学省からの受託事業として日立GEニュークリア・エナジー(株)が実施した平成 20～22 年度「フッ化技術を用いた自在性を有する再処理法に関する研究開発」および平成 25～29 年度「フッ化技術を用いた燃料デブリの安定化処理に関する研究開発」の成果を含みます。

再処理・リサイクル部会セッション

乾式再処理に関する国内外の研究開発の現状

Current Status of R&D on Pyroprocessing

(5) 熔融塩炉燃料の処理技術開発の現状

(5) Reprocessing of Molten Salt Reactor Fuel

*松浦 治明¹¹東京都市大学

概要

熔融塩炉用燃料のオンライン処理技術開発は、1960年代にオークリッジ国立研究所での歴史的な MSBR 概念設計において、増殖させた ^{233}U を効率よく炉心に戻すための連続処理プロセスとして提案され[1]、ビスマス合金系熔融金属を用いた多段抽出の概念構築のための基礎的な要素技術研究が当時実施された。MSBR 計画が中止されたため、それら個々の断片的な要素研究成果を組み合わせ工学的な研究に展開する試みはそれ以来ほとんど進展が無かったものの、2000年代後半の原子力リネッサンス期に第4世代炉候補の一つとして熔融塩炉が選択されるに伴い、各国で再び個々の要素技術の再検討から、それまでになかったような新たな処理概念、例えば電気化学的な手法をも包含したような提案[2]がなされるようになってきた。特に近年では中国でのアクティビティが非常に高く、実際に熔融塩ループを作成し失敗を克服しながら、次々と新たな成果を生み出している[3]。とは言え、熔融塩炉燃料の処理に当たっては表[4]に示すように多種の元素を多様な方法で分離する必要があり、実用化は容易ではない。

本講演では2018年10月に水戸で開催された乾式プロセスの国際会議にて公開された内容も含めて、現時点での開発動向と今後の展望について概説する。

表 熔融塩炉燃料のオンライン再処理における各元素の分離方法の提案例[4]

元素群	元素	分離方法
希ガス	Kr, Xe	He ガス注入
貴金属、遷移金属、カルコゲン、他	Zn, Ga, Ge, As, Se, Nb, Mo, Ru, Rh, Pd, Ag, Tc, Cd, In, Sn, Sb, Te	部分凝固、オフガス移行、ろ過
U	U	フッ化
Zr, Pa	Zr, Pa-233	還元抽出
構造材	Ni, Fe, Cr	
TRU	Pu, Am, Cm, Np	
希土類 (3 価)	Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Gd, Tb, Dy, Ho, Er	
希土類 (2 価)	Sm, Eu	
アルカリ、アルカリ土類	Sr, Ba, Rb, Cs	

参考文献；

- [1] M.W. Rosenthal, *et al.*, Oak Ridge National Laboratory, ORNL-4812 (1972).
 [2] J. Uhlir, *et al.*, *Proc. ICAPP 2012*, Chicago, Illinois, USA, June 2012, Paper 12399 (2012).
 [3] Q. Yu, *IPRC 2018*, Tokai, Ibaraki, Japan, October 2018, Presentation O4 (2018).
 [4] “Introduction of thorium in the nuclear fuel cycle, Short- to long-term considerations”, OECD NEA, No. 7224 (2015).

*Haruaki Matsuura¹¹Tokyo City University