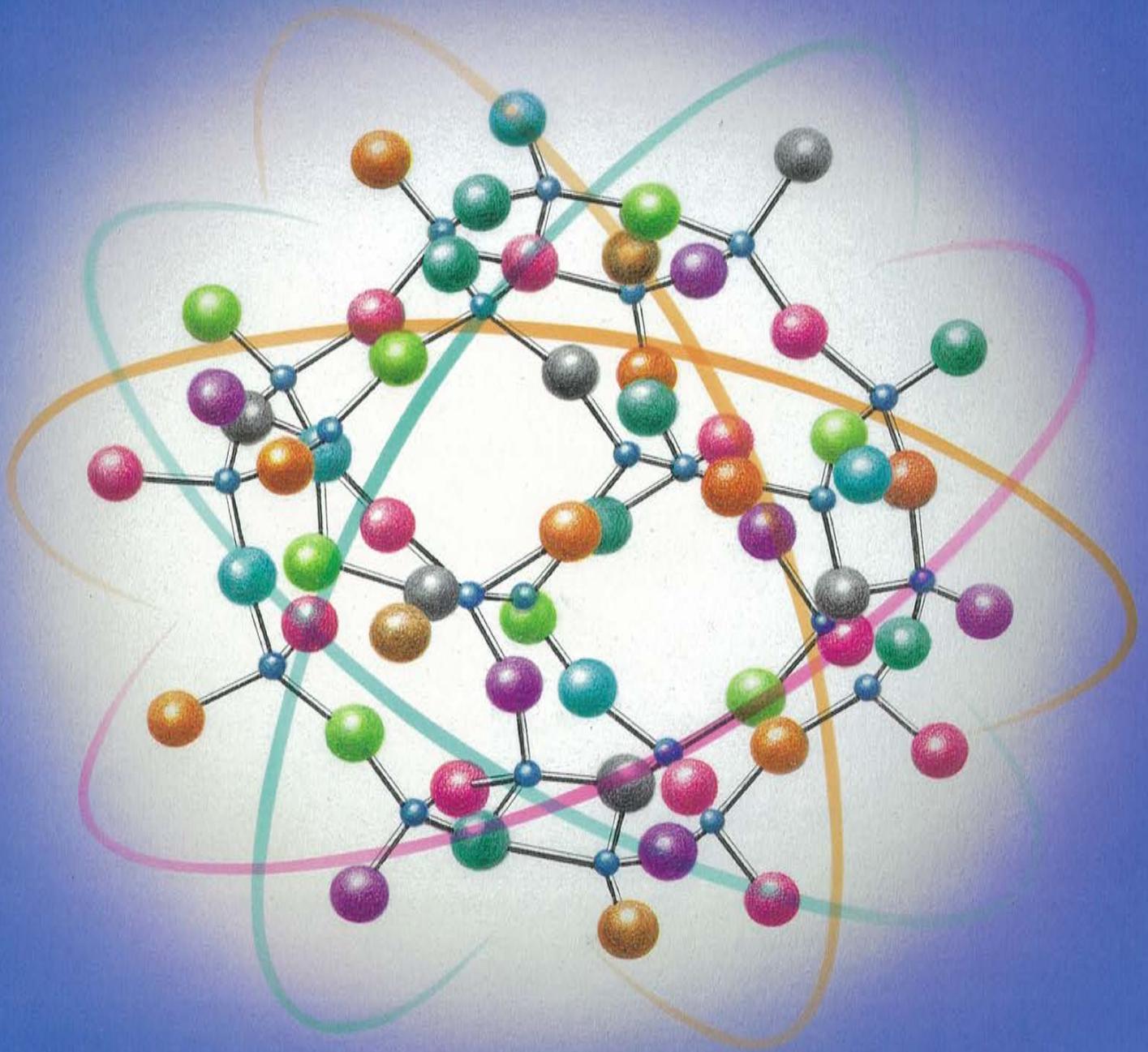


# DENCHUKEN REVIEW

電中研レビュー

乾式リサイクル技術・  
金属燃料FBRの実現に向けて



NO.37 2000. 1

巻頭言	東京電力㈱ 常務取締役 榎本 聡明	2
電中研「乾式リサイクル、金属燃料FBR研究」のあゆみ		4
はじめに	常務理事 鈴木 俊男	6
第 部 原子燃料サイクル技術		7
第 1 章 新しい原子燃料サイクル技術開発への取り組み		9
第 2 章 先進的原子燃料リサイクル技術への取り組み		13
2 - 1 先進的原子燃料リサイクルの開発の概要と国内外の現状		15
2 - 2 分離変換技術開発への取り組みと内外の動向		16
第 3 章 乾式リサイクル技術の概要と電中研における取り組み		19
3 - 1 乾式リサイクル技術の概要		21
3 - 2 乾式リサイクル技術の特徴		22
3 - 3 電中研における取り組み		22
第 4 章 乾式再処理技術		25
4 - 1 電解精製技術		28
4 - 2 陰極回収物処理技術		31
4 - 3 電解精製使用済み塩からの超ウラン元素の還元抽出技術		32
4 - 4 燃料製造技術		33
4 - 5 プロセスフロー		36
第 5 章 酸化物燃料への乾式再処理技術の適用		39
5 - 1 リチウム還元プロセスの原理とフローシート		41
5 - 2 アルゴン又国立研究所における研究開発の現状と課題		43
5 - 3 当所における研究開発の現状と今後の展開		45
第 6 章 高レベル廃液からの超ウラン元素の分離技術		47
6 - 1 乾式分離の前処理技術		50
6 - 2 超ウラン元素の高温冶金分離技術		53
6 - 3 乾式分離プロセスの物質フロー		57
第 7 章 廃棄物固化技術		59

7 - 1	ガラス固化技術	61
7 - 2	人工鉱物固化技術	62
7 - 3	金属廃棄物の固化技術	64
第8章	金属燃料乾式再処理施設の経済性評価	65
8 - 1	施設の概念設計	67
8 - 2	施設の概念設計結果	68
8 - 3	経済性評価結果	69
第9章	乾式リサイクルプロセスの核拡散抵抗性の評価	73
9 - 1	アメリカの核拡散抵抗性の評価	75
9 - 2	国内の金属燃料リサイクル施設の保障措置	77
第10章	まとめと今後の展開	79
第部	金属燃料FBR	83
第11章	金属燃料の特性	85
11 - 1	金属燃料とは	88
11 - 2	照射中のふるまい	88
第12章	金属燃料炉心の特性	91
12 - 1	燃焼特性	93
12 - 2	炉心の反応度特性	94
12 - 3	被覆管最高温度と炉心出口温度	96
12 - 4	燃料温度の変化と燃料要素の寿命支配因子	97
12 - 5	金属燃料FBRサイクル導入時のマスバランス	98
第13章	過渡時の炉心の応答評価	101
13 - 1	設計基準内事象時の応答評価	103
13 - 2	設計基準外事象時の応答評価	104
第14章	金属燃料FBRによるマイナーアクチニドの短半減期核種への変換	107
14 - 1	マイナーアクチニドの変換特性	109
14 - 2	マイナーアクチニド含有金属燃料の特徴と照射試験	113
第15章	まとめと今後の課題	117
おわりに	===== 理事 狛江研究所長 福島 充男	123
引用文献・資料等		124

# 巻頭言



20世紀は、先進国といわれる国で、そして今開発途上国といわれる国々においても、化石燃料エネルギーを無制約と言っていいほど自由に消費して高度な文明生活を享受した時代であった。

そのような中であって、多くの人々が、遠くなく化石燃料が枯渇すること、そのために、それに代わるエネルギー資源を開発しておく必要性を説いてきた。

化石燃料資源に乏しい我が国であって、エネルギー資源確保は、もとより国家の重要な課題であり、原子力は、技術立国である我が国にふさわしいエネルギーと考えられてきた。

というのも、原子力の利用は、原子力の持つ潜在的な危険性を制御して初めて、その奥にある無限の可能性を引き出すことができるからである。

化石燃料は予想を超えて供給力も価格も安定しており、加えて化石燃料の利用技術の革新はめざましく、経済性向上が著しい。化石燃料が限りあるものであることを誰もが否定しないのに、誰もがそのことを忘れてしまっているような状況なのである。

一方、ようやく成熟期にさしかかった原子力は、バック・エンドなど未解決の課題を抱え、経済性も技術革新著しい最新鋭の火力に比べ安閑とはしておれない状況にある。原子力といっても、所詮燃料であるウラン資源は輸入に頼っており、資源確保の問題が解消されているわけではない。

しかも、資源の需給状況は、あまりにもいろんな要素が複雑に絡み合っていて、誰にも確かなことは分からないのである。我が国では今、先進諸国と同様、電力の自由化が進みつつあり、電力供給が市場原理に任されるならば、資源の選択は基本的にはその利用システムの経済性に委ねられることになるだろう。

こういう状況の中で、エネルギー・セキュリティとは何かを改めて考えてみる必要があるであろう。今のように、先行きが不透明で、不確実性の高い時代において、資源

---

の多様化がセキュリティ確保のうえで肝要なことであるにしても、その利用動向は、時の経済性の影響を避けて通れない。では、我が国のエネルギー・セキュリティとは一体何なのか。

突き詰めて考えると、確実なこととして、国際的に信頼されること、エネルギー資源を買うお金があること、言い換えれば世界に買ってもらえる技術があること、それに、いかような資源についても、環境と調和しながら、効率的かつ安全に、それを利用する技術を保有していることなどが思い当たる。

原子力についても、世界最先端の利用システムに絶えず挑戦していくことが基本であり、そのためには、発想豊かに検討の巾を広げ、多様な選択肢を用意しておくことが必要である。

原子力が他のエネルギー資源と本質的に異なるところは、ウラン資源のリサイクル利用によって、ウラン資源の利用価値を何十倍にも拡大できることである。その技術を開発しておくことが、とりもなおさず我が国にとってのエネルギー・セキュリティの確保だと思うのである。

電力中央研究所は、長年高速増殖炉を中心とするリサイクル・システムの研究開発に取り組んできた。しかも、いま世界の主流となっているものとは異なる乾式リサイクル技術や金属燃料に注目してきたのである。それが今、高速増殖炉開発のブレイク・スルーになるのではないかと期待されている。本号では、そのエッセンスが紹介されている。

本年7月から核燃料サイクル開発機構と電力・電力中央研究所で協力して、高速増殖炉の基礎技術を広く掘り起こし、将来有望な候補となる技術やシステムを抽出する「高速増殖炉実用化戦略調査研究」を始めることになったが、電力中央研究所が行ってきたこのような研究が大きな貢献をすることであろう。このような技術に早くから注目し、地道な努力を積んでこられた関係者に心から賞賛の言葉を贈りたい。

東京電力(株) 常務取締役

榎 本 聡 明

## 電中研「乾式リサイクル、金属燃料FBR研究」のあゆみ

西 暦	当研究所の状況	内 外 の 状 況
1950年代 ～ 1960年代 初頭		<ul style="list-style-type: none"> <li>・ピューレックス法を用いた湿式再処理のパイロット規模試験がオークリッジ国立研究所で開始（1950 - 1952）</li> <li>・乾式再処理法として金属燃料を対象とした高温冶金法（液体金属抽出法、熔融塩抽出法、熔融塩電解法など）、酸化物燃料を対象とした高温化学法（塩移動法、塩サイクル法など）、フッ化物揮発法が研究開発される</li> </ul>
1960年代		<ul style="list-style-type: none"> <li>・金属燃料を使用したFBR実験炉（DFR（英）、EBR-1、E.Fermi（米））が運転</li> <li>・EBR-2（U-Fs合金燃料）/FCF（Fuel Cycle Facility）が米国ANLで運転開始</li> </ul>
1960年代 後半		<ul style="list-style-type: none"> <li>・実用規模の再処理でピューレックス法が主流になる（West Valley工場）、1966年</li> <li>・米国金属燃料FBRの開発を断念し、EBR-2に併設のFCFの運転を中止、1968年</li> </ul>
1970年代 初期		<ul style="list-style-type: none"> <li>・ANL金属燃料のスウェリングの解決策を見出す、1970年代初期</li> </ul>
1982年頃	<ul style="list-style-type: none"> <li>・乾式再処理技術に関する調査を実施</li> </ul>	
1983年頃	<ul style="list-style-type: none"> <li>・長半減期核種の消滅処理の技術的可能性検討に着手（欧、米の現状の調査実施）</li> </ul>	
1984年		<ul style="list-style-type: none"> <li>・ANLにおいてIFR（Integral Fast Reactor）計画がスタート</li> </ul>
1985年	<ul style="list-style-type: none"> <li>・長半減期核種消滅法検討プロジェクトグループを設置</li> <li>・FBRプロジェクトチームにおいて金属燃料サイクルの研究開発開始</li> </ul>	
1986年	<ul style="list-style-type: none"> <li>・長寿命放射能消滅特別研究室を設置し長半減期核種の分離・消滅処理の研究開発に着手</li> </ul>	
1987年	<ul style="list-style-type: none"> <li>・乾式再処理研究のうち電解精製技術の開発に関し（株）東芝との共同研究を開始</li> </ul>	
1988年	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ANL情報に基づき乾式再処理技術の成立性と経済的なポテンシャルを確認</li> <li>・乾式法によるTRUの分離基礎研究に関し米国ロッキウエル・インターナショナル社（現ボーイング社）と共同研究を開始</li> <li>・電解精製により1 kg級のウランの回収に成功</li> <li>・TRU含有金属燃料の製造、物性試験並びに照射試験に関しEU超ウラン元素研究所と共同研究を開始</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会で「群分離・消滅処理技術研究開発長期計画（通称オメガ計画）」策定</li> </ul>
1989年	<ul style="list-style-type: none"> <li>・IFR計画WBS200「乾式再処理要素技術の開発」に参加（研究員を派遣）</li> </ul>	

西 暦	当 研 究 所 の 状 況	内 外 の 状 況
1991年	<ul style="list-style-type: none"> <li>乾式分離プロセス試験設備を設置し、模擬物質を用いてプロセスの実証試験を開始</li> <li>ウラン試験によりカドミウム陰極の技術的成立性を確認</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>IFR計画は燃料サイクル実証試験のフェーズに進展</li> <li>仏「放射性廃棄物管理研究に関する法律」を制定。これを受けてSPIN( Separation and Incineration ) 計画がスタート</li> </ul>
1992年	<ul style="list-style-type: none"> <li>IFR計画WBS500「金属燃料サイクル実証試験」に日本原子力発電㈱とともに参加(電力、メーカー、電中研より研究員を派遣)</li> <li>塩廃棄物をソーダライト化する合成技術を開発(ANLで)</li> </ul>	
1994年	<ul style="list-style-type: none"> <li>プルトニウムを用いた電解精製基礎試験に関し、日本原子力研究所と共同研究を開始</li> <li>塩廃棄物固化の技術開発に着手(電中研所内で)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>米国の政策変更によりIFR計画中止(実証試験用装置の機能試験中)し、FCFを使ってDOE保有の使用済み燃料の処理技術の開発に移行</li> </ul>
1995年	<ul style="list-style-type: none"> <li>米国DOEとのIFR技術に関する共同研究終了(延べ17名の研究員を派遣)</li> <li>仏国高速原型炉フェニックスでの照射試験用の金属燃料( TRU含有 ) 9本を製造</li> </ul>	
1996年	<ul style="list-style-type: none"> <li>金属燃料の乾式再処理、高レベル廃液からのTRUの分離、並びに酸化物燃料の乾式再処理に関する研究を統合し、次世代燃料サイクル「乾式リサイクル技術」として研究開発を新たに展開</li> <li>小規模な還元・抽出試験により各々の超ウラン元素を99.5%以上乾式法で分離できることを実証(ロッキウエル・インターナショナル社との共研でミズリー大学で実証)</li> <li>受託研究「金属燃料リサイクルシステム技術開発」を開始</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>FCFで使用済みEBR-2燃料の処理(ウランの分離、回収)を開始</li> </ul>
1997年	<ul style="list-style-type: none"> <li>乾式法によるTRUの効率的な分離プロセスを構築</li> <li>日本原子力研究所との共同研究で電解により溶融塩中からプルトニウム金属、ネプツニウム金属を国内ではじめて回収</li> <li>酸化物燃料の金属への還元に関する共同研究を英国AEAテクノロジー社と開始</li> </ul>	
1998年	<ul style="list-style-type: none"> <li>照射燃料を用いて電解精製、TRU分離、高レベル廃液からのTRUの分離に関する小規模実証試験を超ウラン元素研究所と共同研究で開始</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>核燃料サイクル開発機構-電力が一体となって実施するFBRサイクルに関する実用化戦略調査研究が開始</li> </ul>
1999年	<ul style="list-style-type: none"> <li>核燃料サイクル開発機構との間で原子力の研究開発に関する研究協力協定を締結</li> <li>核燃料サイクル開発機構との共同研究「乾式再処理プルトニウム試験」を計画</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>原子力委員会原子力バックエンド対策専門部会でオメガ計画のチェック・アンド・レビューを実施</li> <li>原子力委員会で原子力の研究、開発および利用に関する長期計画の策定作業が開始</li> <li>ANLでEBR-2金属燃料の処理実証計画を終了。合計約1,000kgの燃料を処理(1999.12)</li> </ul>

# は じ め に

常務理事 鈴木 俊男



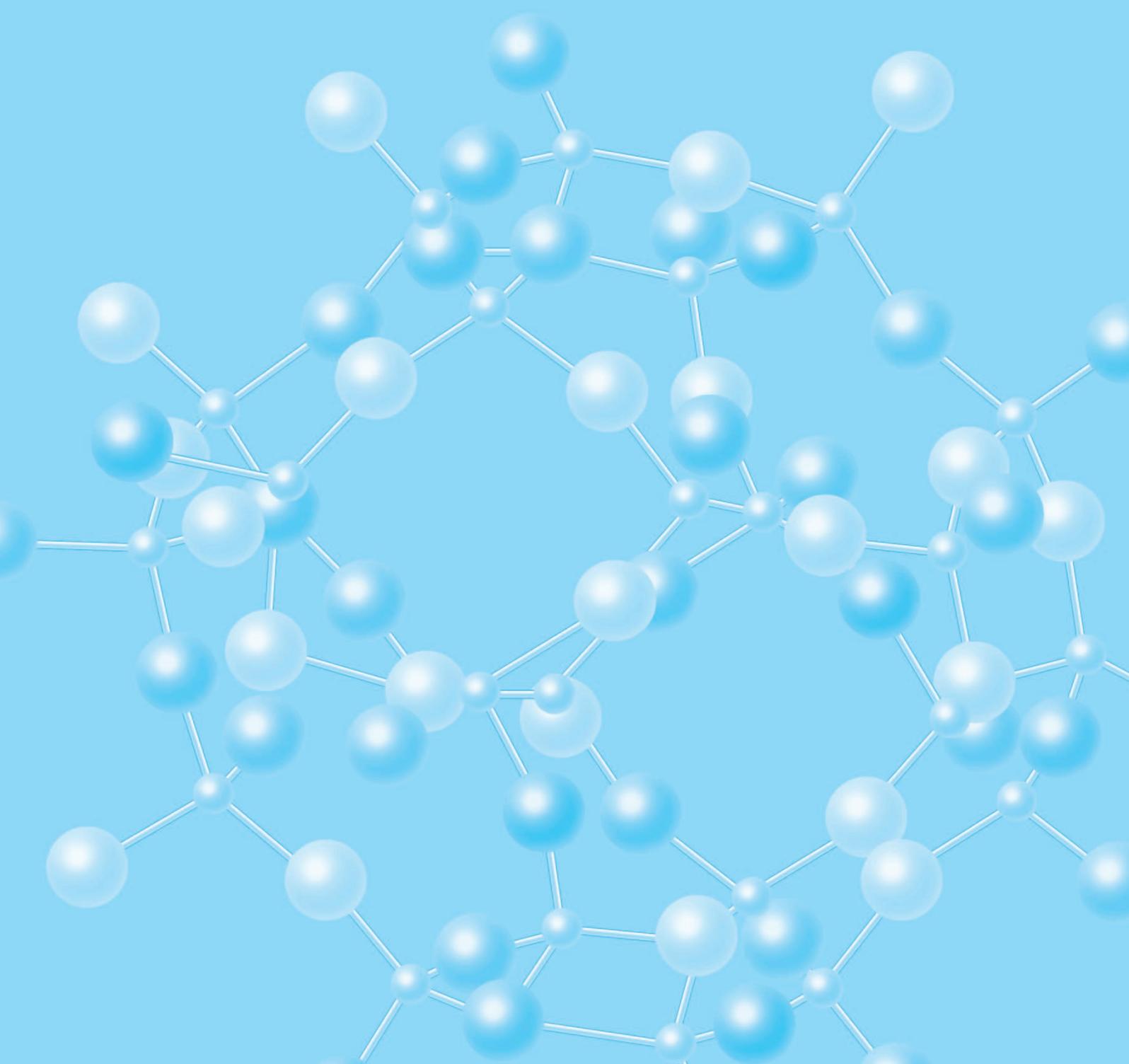
蒸気機関の実用化により1830年頃から始まった人類による急激なエネルギーの消費は、20世紀に入ってから益々勢いを増し、数世紀後には化石資源が枯渇し、かつそれらの大量消費による環境汚染や地球温暖化の影響が顕著になってくると予想されている。一方、1960年代から先進工業国を中心として原子力エネルギーが利用されてきており、我が国のような化石資源が少ない国では中核となるエネルギー源となっている。この原子力を21世紀以降も重要なエネルギーとして使っていくためには、国民からも受け入れやすい原子燃料サイクルの確立が希求されている。

電力中央研究所では次世代に向けて革新的な技術を使った原子燃料サイクルの重要性に早くから着目し、昭和61年頃から鋭意研究開発を進めてきている。そこでは経済性のみならず、環境や核拡散への配慮を取り入れた次世代のサイクルとして使用済み燃料の乾式再処理と金属燃料FBRによるリサイクル技術、並びに使用済み燃料中に含まれる長寿命核種の乾式法による分離と金属燃料FBRを用いた燃料技術の開発を行ってきた。

この電中研レビューではこれまで10数年にわたって実施してきた当所の成果を、海外の研究機関との共同研究で得られた成果を含めて紹介する。おりしも原子力委員会では我が国の原子力長期利用計画を策定中であり、本レビューが今後の原子力エネルギーの進むべき方向を考える上での一助となれば幸いである。

# 第I部

## 原子燃料サイクル技術





第 1 章

1

新しい原子燃料サイクル  
技術開発への取り組み



新しい原子燃料サイクル技術開発への取り組み .....11



井上 正（1974年入所）

原子燃料の物性評価、原子炉一次冷却水系の放射能管理に関わる研究に従事した後、返還ガラス固化体を対象として高レベルガラス固化体の健全性評価、シンロック固化体の評価に10年間携わる。その後、原燃サービス㈱（現日本原燃㈱）の研究開発部に勤務し、昭和62年から乾式法を使った長半減期核種の分離・消滅処理技術、乾式再処理技術の開発に取り組んでいる。

# 第1章 新しい原子燃料サイクル 技術開発への取り組み

わが国など先進諸国ではこれまでエネルギーを大量に消費することによって文明が高度に発達してきたが、その結果、化石燃料エネルギーの大量消費をもたらしており、今後もエネルギー消費の伸びが予想される。また、開発途上国も先進諸国の歩んできた道をたどっており、今後は、膨大なエネルギーの消費が予想される。

これまで、これらのエネルギーは主として石油、石炭などの化石燃料によって賄われてきており、近年はその大量消費にともなうCO<sub>2</sub>発生量の増大による地球温暖化が重要な関心事となっている。1960年代からは化石燃料に加え、ウラン資源を使った原子力発電が先進諸国でエネルギー供給の有力な手段として利用されてきており、わが国においても現在、電力需要の約36%が原子力発電により賄われている。原子力発電のCO<sub>2</sub>発生量は化石燃料による発電に比較して少なく、地球温暖化抑制の観点からも主要電源の一つとして好ましいエネルギー源である。

原子力発電は現在、冷却水に軽水を使う軽水炉が主流であり、天然ウラン(U)中に0.7%しか存在しないウラン-235だけが燃料として利用されている。これでは石油などの化石燃料と同様、数十年間で資源が枯渇すると予想されている。しかし、天然に存在するウランの大半(99.3%)を占めるウラン-238を利用することで、膨大なエネルギーを生み出す潜在的な能力が利用できれば、今後のエネルギー需要の増加への対応も含めて原子力発電で数百年にわたりエネルギーを確保できる有力な準国産エネルギーとなる。

このような点から、長期間安定に原子力発電を利用するためには、軽水炉で使用した燃料から、燃え残りのウランやその燃焼とともに生成したプルトニウム(Pu)を回収し、高速増殖炉(FBR)でリサイクルすることが必要である。そして、そのカギとなるのが原子燃料サイクルである。この燃料サイクルを完成させるには、

使用済み燃料の再処理技術  
燃料加工技術

## FBRの開発

が必要である。

現在、実用化されている再処理技術は、使用済み燃料を硝酸溶液に溶解してウランやプルトニウムを抽出するピューレックス法<sup>\*1</sup>と呼ばれる方法であり、フランスやイギリスでは、使用済み燃料を年間それぞれ800トン、1200トン処理できる再処理工場が稼働している。わが国でも原子燃料サイクルの確立を目指し、電気事業が主体となって青森県六ヶ所村に年間処理量800トンの再処理工場を建設しており、2005年の運転開始を予定している。

現在国内では、原子力発電により年間1000トン程度の使用済み燃料が発生しており、発電量の増加に伴って今後も増えることが予想される。さらにFBRが運転されると、その使用済み燃料のための再処理工場が必要となるが、その建設にあたっては原子力発電所と同様に経済性が大きな課題である。また、ピューレックス法による再処理ではプルトニウムが高い純度で回収できるので、核拡散に対する懸念を解消することも今後の検討課題の一つである。現在は、精密に成型加工された高価なペレット燃料が使われているが、今後の燃料製造には、高放射線環境下でも適用でき、かつ製造プロセスが簡便で経済的な方法が求められる。

現行の再処理手順では、ウラン、プルトニウムを回収した後、その他の元素は高レベル放射性廃棄物として地中深く埋設(以下「処分」)されることになっている。この中には高放射性の核分裂生成物のほか、放射能レベルが半分に減る期間、いわゆる半減期が400年から2百万年にわたるマイナーアクチニド(MA)と称されるネプツニウム(Np)、アメリシウム(Am)、キュリウム(Cm)が含まれている。その処分にあたっては超長期にわたり安全に保管できることが重要である。21世紀はリサイクル社

<sup>\*1</sup>ピューレックス法：使用済みの原子燃料からウランやプルトニウムなどの有用物質を分離・回収するための手段として、溶媒にリン酸トリブチル(TBP)を用いる湿式再処理法である。ピューレックスという呼び名は、英語のPlutonium and Uranium Recovery by Extractionの頭文字を集めた略称PUREXによる。

会と言われるように環境問題への国民意識は高まってきており、原子力発電に対する国民の理解を向上させるためには、このような廃棄物の安全な処分技術の開発とともに、次世代の原子力においては環境中への廃棄物の排出をできるだけ低減する技術が必要であると考えます。

一方、FBR原型炉「もんじゅ」の最近の事故などによるFBR開発の遅れから、再処理で回収したプルトニウムに加え、アメリカ、ロシアの解体核兵器から出てくるプルトニウムの民生利用により当面はプルトニウムが過剰になりつつある。このため、原子力発電の実施国においても使用済み燃料をそのまま貯蔵するという方が当面の選択肢として上がっている。しかし、前述のように中・長期的にはわが国のような無資源国ではエネルギー

一源を安定して確保するという観点から、FBRの導入は非常に重要な選択肢と考えられる。そのためにも化石燃料の価格上昇が予想される2030～2050年頃を目途に原子燃料サイクルを確立する必要がある。

以上のように、次世代にはトータルシステムとして調和の取れた原子力技術開発が重要であり、中でも再処理、リサイクル技術には経済性や安全性の向上、そして環境への負荷軽減<sup>\*2</sup>を図ることができる先進的な原子燃料サイクル技術やFBR技術が求められている。

<sup>\*2</sup>環境負荷軽減：原子力発電所や再処理工場などから発生する廃棄物を処理する場合の環境への不可低減とは、廃棄物量の削減あるいは廃棄物が有する放射能の低減をさす。

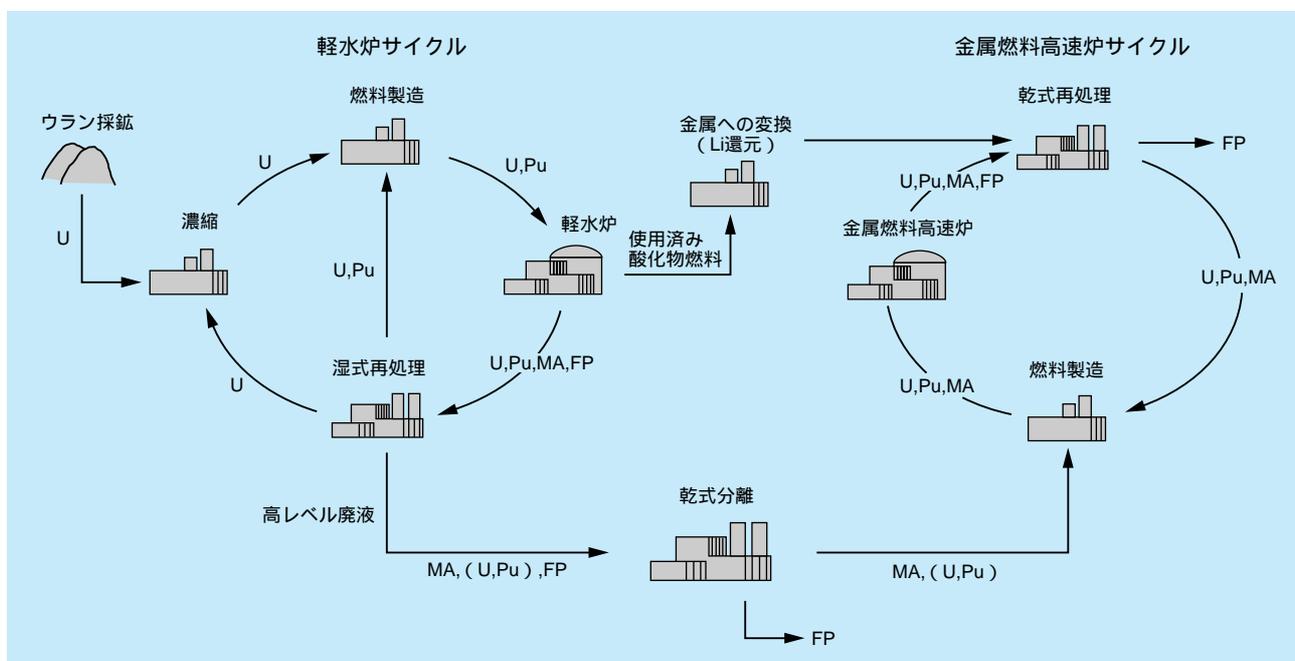
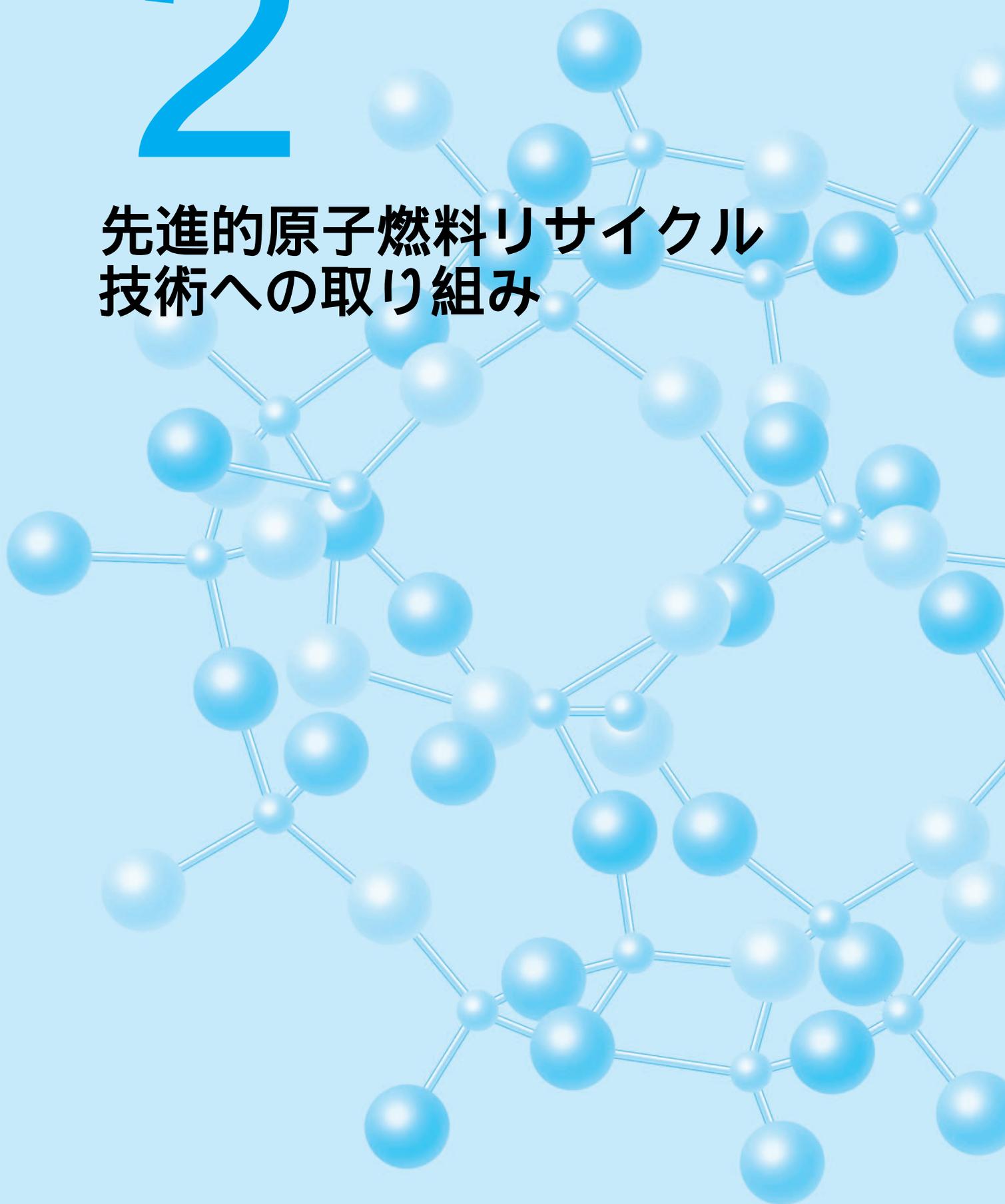


図1-1-1 軽水炉サイクルと金属燃料高速炉サイクル

第 2 章

# 2

## 先進的原子燃料リサイクル 技術への取り組み



第2章 先進的原子燃料リサイクル技術への取り組み 目次

原燃サイクル部長 井上 正

2 - 1 先進的原子燃料リサイクルの開発の概念 .....15

2 - 2 分離変換技術開発への取り組みと内外の動向 .....16

---

井上 正 10ページに掲載

## 2 - 1 先進的原子燃料リサイクルの開発の概要と国内外の現状

先進的原子燃料リサイクル技術とは、経済性と安全性の向上、環境負荷の低減を図りながら軽水炉(LWR)サイクルと高速増殖炉(FBR)サイクルを結び付ける次世代のリサイクル技術であり、FBR技術とその再処理技術及び燃料製造(再加工)技術などからなる。

わが国ではおよそ10年前から経済性、安全性の向上、環境負荷の低減を考慮した先進的再処理技術に関する研究が日本原子力研究所(原研)、核燃料サイクル開発機構(サイクル機構:旧動力炉・核燃料開発事業団)、電力中央研究所(電中研)などで行われている。一方、原子力委員会でも平成6年6月の原子力の研究、開発及び利用に関する長期計画の策定を受けて、FBR開発とその再処理技術開発を総合的に検討する「核燃料リサイクル計画専門部会」および「高速炉開発専門部会」を設けて具体的な研究開発計画の検討を開始した。

国外でもフランス、ロシアなどで再処理プロセスの簡素化やマイナーアクチニド(MA)の回収を含めた新しい技術が開発されている。アメリカでは1984年から高温下での冶金技術に関するそれまでの知見をもとにIFR(Integral Fast Reactor)計画と名づけて金属燃料FBRとその燃料サイクルを一体化した統合型FBRサイクルの開発を進めてきたが、プルトニウムを利用しないという政府の方針転換を受けて1994年9月にその開発が中断された。またFBR炉心についても、緊急停止に失敗しても結果的に自然に原子炉が停止するなどの受動的な安全性や経済性の大幅な向上を図るため、各種の革新的技術を取り入れたシステムの研究が我が国を中心に欧米においても進められている。

先進的原子燃料リサイクルとして、以下に示すような技術の開発が進められている。

### 湿式再処理 - 酸化物燃料

ピューレックス法を基本とした湿式法を大幅に簡素化した方法で再処理し、その製品を振動充填法で燃料製造するプロセスである。これは現在、主としてサイクル機構で研究開発が進められおり、ウランやプルトニウムを分離、精製していた工程を簡素化あるいは省略すること

で、両者の混合物を硝酸溶液中に抽出する方法である。この方法を適用するために、ウランやプルトニウムの抽出に先立ち、使用済み燃料中に多量に存在するウランを溶解液の液温を下げることにより硝酸ウラニルの形で析出(晶析)させてウランを粗分離することや、マイナーアクチニド元素を分離するために特別なプロセスを付け加えることも考えられている。燃料製造については経済的に高価である従来のペレット製造に代えて、硝酸溶液中に溶解しているウランやプルトニウムを酸化物の顆粒状に転換して振動充填法により燃料を製造することが考えられている。この燃料製造法は、後に述べる酸化物燃料乾式サイクルを開発しているロシア原子炉科学研究所(RIAR)で開発された方法で、サイクル機構でも現在その方法を調査検討している。

### 乾式再処理 - 金属燃料

溶融塩や液体金属を用いてウラン、プルトニウム、マイナーアクチニド元素を電解精製法や還元・抽出法により分離し、射出成型法により燃料を製造するプロセスである。これは1984年から1995年までアメリカアルゴン国立研究所(ANL)で開発してきた金属燃料サイクル技術を基本としたもので、当研究所における乾式リサイクルもこの技術を基本としている。本技術については、詳細を第3章以降で述べる。

### 乾式再処理 - 酸化物燃料

酸化物燃料を溶融塩中で直接電解して二酸化ウラン( $UO_2$ )をまず回収した後、沈澱により二酸化プルトニウム( $PuO_2$ )を回収し、これらの回収物を振動充填法で燃料に加工するというプロセスである。この方法は1960年代からロシア原子炉科学研究所(RIAR)で開発が進められており、酸化物燃料を基本としていることから、酸化物燃料を使う軽水炉を運転しているわが国の電力会社が、その技術的な成立性に興味を持ってRIARから成果を手入している。RIARではこの方法について、使用済み燃料を約3~4kg用いた実証試験までを実施した。そこではBOR-60<sup>\*1</sup>で約20数%まで照射された燃料が使われ

た。現在はこの再処理から回収した製品を使って燃料製造の実証試験が行われており、その後、BOR-60またはBN-600\*<sup>1</sup>での照射試験が予定されている。但し、この方法ではウランの解除が不十分な上、ウラン、プルトニウム以外のマイナーアクチニド元素が複数の工程に分散されるため、マイナーアクチニドの回収には別の技術開発が必要である。

### 乾式再処理 - 窒化物燃料

さらに乾式法を用いた方法に、原研で進めている超ウラン元素の消滅を狙った窒化物燃料サイクルがある。窒化物燃料は、融点が3050 と高く熱伝導度も金属と同じ

\*<sup>1</sup>BOR-60、BN-600：ロシア原子炉科学研究所にある高速実験炉

くらいに優れているというセラミックスと金属の両者の特徴を併せ持った高性能燃料であること、さらに窒化物燃料の再処理には、金属燃料の再処理で開発してきた乾式再処理がそのまま適用できることを利用して基礎研究に着手した段階である。

以上、ここでは先進的原子燃料リサイクルとして湿式法、乾式法を用いた燃料サイクルの現状を述べたが、その開発にあたってはそれぞれが持つ課題のほか、経済性や環境負荷低減性を考慮して、将来どのような燃料サイクルを作るのか、また原子炉の安全性、増殖性などの観点から将来のFBRとして、どのような燃料形態が望ましいかなど、その選定にあたっては様々な角度からの検討が必要であることを付け加えておく。

## 2 - 2 分離変換技術開発への取り組みと内外の動向

分離変換技術は、高レベル放射性廃棄物に含まれる長半減期核種を分離し、原子炉や加速器を用いて単半減期の核種に変換する技術である。これにより高レベル放射性廃棄物が長期間有する放射能を軽減することを目的としている。この技術に関しては、1970年代に欧米で活発に基礎研究や評価が行われた。その結果、分離変換処理は技術的には可能であるが、必要な投資に対して得られる効果が小さい、と評価され、この研究は一時下火になった。

しかし、1980年代になると高レベル放射性廃棄物の地下研究施設の立地難などもあり、フランスでは超ウラン元素の管理を取り入れた改良型の再処理法の研究推進をうたったカスタン委員会(1983年10月～1984年10月)報告やバタイユ報告が契機となり、またリサイクル時代に向けた環境への負荷軽減の指向とあいまって再び研究開発が盛んになってきている。ここでは分離変換技術が高レベル放射性廃棄物のガラス固化技術に代わるものとしてではなく、あくまでもその補完技術として、処分にあたり長期的な潜在毒性を低減させ、社会的に受け入れやすいものにするとともに、今後の原子燃料サイクルではウラン、プルトニウムばかりでなくマイナーアクチニド

元素も有効に利用していこうとする姿勢が見られる。

わが国では1988年10月に原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会が「群分離・消滅処理技術研究開発長期計画」(オメガ計画)を策定し、原研、サイクル機構、電中研が中核となって研究を進めている。この計画のなかで3機関が実施している研究開発について平成11年から原子力委員会原子力バックエンド対策専門部会でチェック・アンド・レビューが開始された。

一方、フランスでは先の背景を受けて、高レベル放射性廃棄物の処理・処分計画を一時凍結、廃棄物対策を見直し、

高度化再処理(分離変換技術を導入した燃料サイクル)の研究(SPIN計画)

地下実験所の建設と深地層処分に際しての処分廃棄物取り出し可能性の検討

高レベル放射性廃棄物の長期貯蔵に関する研究

以上3つの研究開発の推進をうたった「放射性廃棄物物理の研究に関する法律」が国民議会で1991年12月に成立した。この法律ではこれら3つの研究を今後15年間並行して進め、その結果に基づいて最適な廃棄物処分オプションを選択するとしている。

またアメリカでも、エネルギー省( DOE )がNational Research Council( 全米科学協議会 )に依頼した評価では、分離変換技術は将来の選択肢の一つであり、経済性と二次廃棄物発注量の低減をねらって研究開発は続けることが必要であると述べている。

最近、欧米ではFBRの開発が遅く一方、プルトニウムやマイナーアクチニド元素の燃焼用の未臨界の原子炉を陽子加速器と一体化した加速器駆動システム( ADS )が開発対象として浮上してきている。今後の燃料の運用を考えた場合、そこでは今以上の超ウラン元素の生成が予想される。このような欧米社会における原子力に対す

る見方の変化や燃料運用の多様化なども含め、さまざまな観点から将来の望ましい原子力システムに用いる技術オプションとして、分離変換技術を評価することが必要である。

以上、分離変換技術の現状を述べた。この技術は高レベル放射性廃棄物などが持つ超長期にわたる潜在的な毒性を低減しようとする技術であり、高レベル放射性廃棄物の処分が必要なくなるということではなく、その処分の負担や環境への負荷をすこしでも軽減しようとするところにねらいがある。

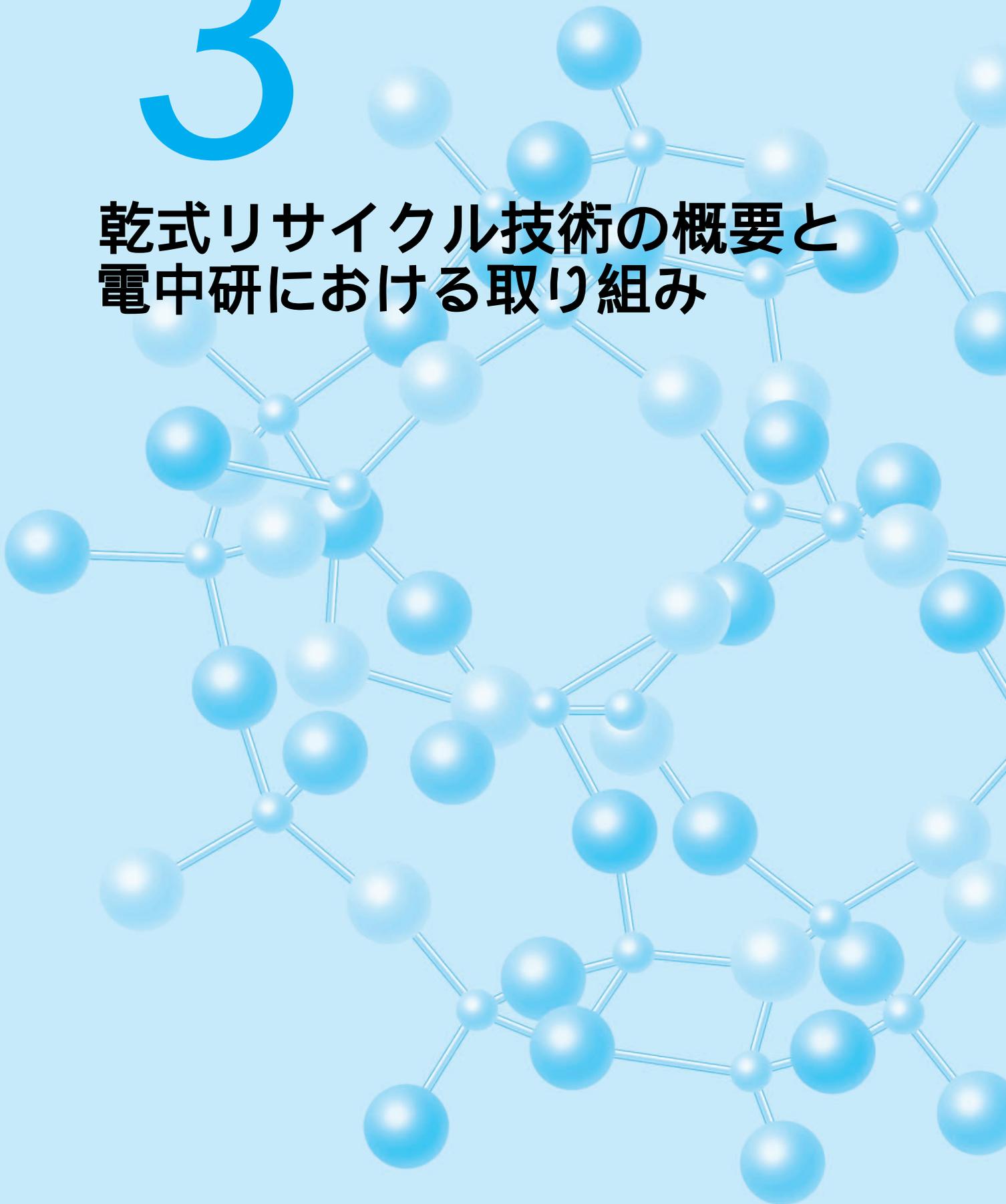


第

章

# 3

## 乾式リサイクル技術の概要と 電中研における取り組み



第3章 乾式リサイクル技術の概要と電中研における取り組み 目次

原燃サイクル部長 井上 正

3 - 1 乾式リサイクル技術の概要 .....	21
3 - 2 乾式リサイクル技術の特徴 .....	22
3 - 3 電中研における取り組み .....	22

---

井上 正 10ページに掲載

### 3 - 1 乾式リサイクル技術の概要

将来の合理的な原子力システムには、経済性ばかりでなく安全性や核拡散抵抗性<sup>\*1</sup>の向上、環境負荷の低減などがその要件として求められている。このためには原子炉システムだけでなく、それを支える原子燃料サイクルに新しい考えや技術を取り入れて行く必要がある。当研究所ではこれを満たす将来の理想的なシステムを

金属燃料FBRと乾式再処理を取り入れた燃料サイクル

と考え、昭和60年頃から開発を進めてきた。またそれとほぼ同じ時期より、高レベル放射性廃棄物から超ウラン元素を除去し、その処分期間が超長期にわたることによる安全確保の不確実性を低減させ、高レベル放射性廃棄物処分の社会的受容性の向上を目的とした

乾式技術を取り入れた長半減期核種の分離、金属燃

料FBRによる変換技術の開発を進めてきた。

一方、昨今の原子力情勢からFBRの導入は当初計画よりも遅れ、21世紀においても、当面は軽水炉が主流になると考えられることから、乾式再処理技術を軽水炉の酸化物燃料(UO<sub>2</sub>燃料や今後装荷されていくMOX燃料<sup>\*2</sup>)にも適用するために、

酸化物燃料の金属への還元技術の開発も平成7年から進めている。これら3つの課題を一つのシナリオに統合したトータルシステムを当所では「乾式リサイクル技術」と称している(図3-1-1)。ここでの基礎技術は、電解精製によるウランとプルトニウムの回収、電解や還元・抽出による超ウラン元素の回収、それら回収物を金属燃料FBRにリサイクルするための射

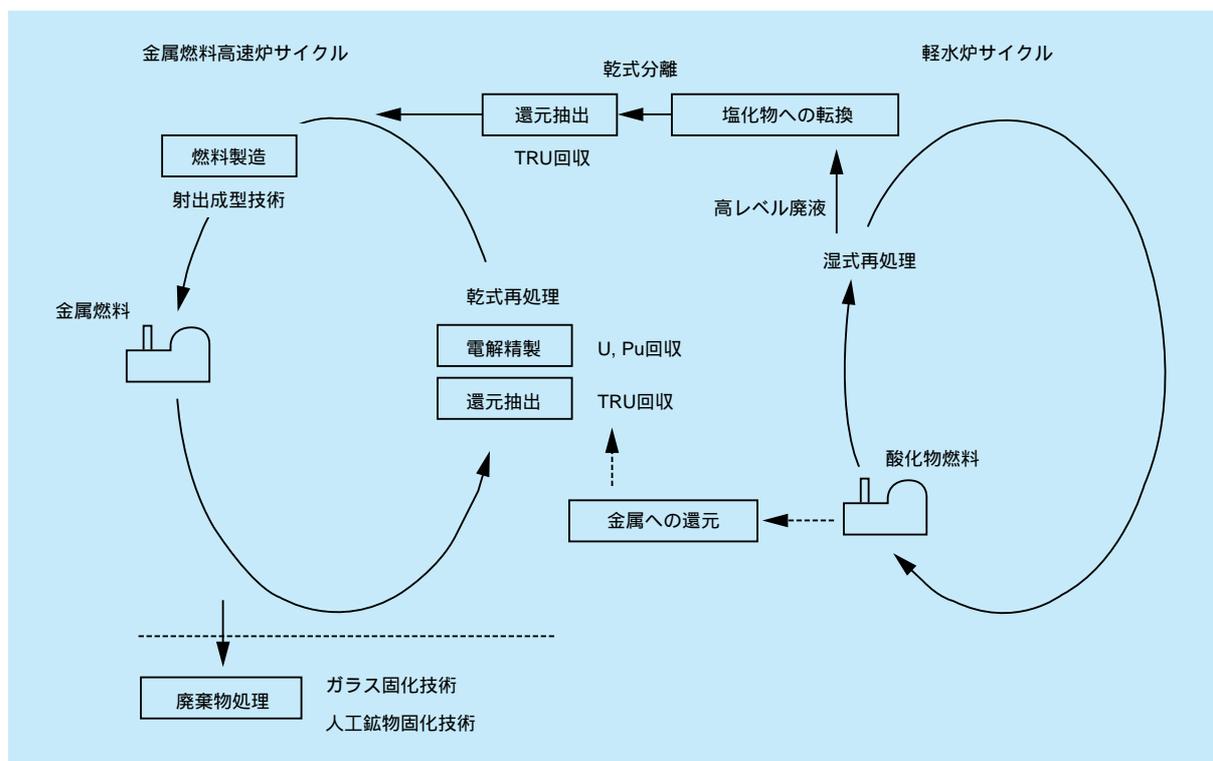


図3-1-1 乾式リサイクルプロセス

<sup>\*1</sup>核拡散抵抗性：商用の再処理施設から回収されるプルトニウムは原子爆弾へ転用されないようにする必要がある。このために再処理プロセスではプルトニウムを単体で存在させないように工夫がなされている。乾式プロセスでは、プルトニウムとマイナーアクチノイドが同時に回収されるために、単体のプルトニウムを得ることが難しく、核拡散抵抗性が高いといわれている。

<sup>\*2</sup>MOX燃料：ウランとプルトニウムの混合酸化物燃料。通常の軽水炉では、ウランのみの酸化物の燃料が用いられている。これに対して軽水炉でMOX燃料を用いるのがいわゆるプルサーマル計画である。

出成型法による燃料製造、並びにウラン、超ウラン元素回収後の廃棄物を処理するための塩処理・固化から成り立っている。酸化物燃料にこのプロセスを適用するためには電解精製に先立って酸化物燃料の中のウランや超ウラン元素をリチウム(Li)などの還元剤によって金属に還元することが必要である。また、高レベル廃液から超ウラン元素を回収するにあたり、乾式法を適用するための前処理として脱硝及び塩素化が必要となる。

電解精製では固体陰極と液体カドミウム陰極の2種類の陰極を使って、前者ではウランを、後者では主にプルトニウムとマイナーアクチニド元素を回収する。さらに

超ウラン元素の還元・抽出工程では電解精製で取り切れなかったウラン、プルトニウム、マイナーアクチニド元素を液体金属(カドミウム(Cd)やビスマス(Bi))の中に回収する。電解精製や還元・抽出工程で回収されたウランや超ウラン元素は付着した塩や金属を蒸留することで除去した後、所定の成分に調整し、射出成型により燃料に再加工される。できる限りウランや超ウラン元素の環境中への排出を防ぐために、このプロセスの回収目標値を、電解精製ではウランやプルトニウムを99.5%以上、超ウラン元素回収工程ではそれぞれのマイナーアクチニド元素を99%以上と設定している。

## 3 - 2 乾式リサイクル技術の特徴

乾式技術(乾式再処理や超ウラン元素の乾式分離)は、回収されたウランや超ウラン元素の製品の核拡散抵抗性が高いだけでなく、強力な線を放出するため盗難などの物的防護の面でも有利な方法である。さらに原子燃料サイクルをトータルシステムとして考えた場合、乾式リサイクルでは全てのマイナーアクチニド元素を燃料サイクル内に閉じ込めることが可能であり、廃棄物として処分されるマイナーアクチニド元素の量が大幅に低減できる。また乾式法では放射線により劣化する有機溶媒などを用いないために、放射線が極めて強い燃料(炉から取り出した後の冷却期間が短い燃料、プルトニウムをリサイクルした燃料など)でも再処理できるという大きな特徴がある。

このような能力を持つ乾式リサイクル技術が実用化できれば、一つの再処理方法で、現在の原子力発電から発

生する使用済み燃料だけでなく、将来発生しうる種々の燃料の処理も可能となり、燃料サイクルを柔軟に運用できるものと考えられる。また乾式リサイクル技術と一体化した金属燃料FBRもプルトニウムの増殖比が高いなど将来の高速炉にふさわしい特徴を持っている

一方、乾式リサイクル技術はこのようなポテンシャルを持つ技術であるが、実用化には解決しなければならない課題も多い。まず、乾式技術は高温下のプロセスであるため、高温の熔融塩や金属が機器材料や配管などと接触する。このため機器設計にあたっては材料の選定や開発が課題となる。さらに簡便な遠隔操作による保守、補修技術の開発や、ウラン、プルトニウムなど核物質の流れを監視する適切な核物質管理方法の開発なども解決しなければならない課題としてあげられる。

## 3 - 3 電中研における取り組み<sup>(3-1、3-2)</sup>

乾式技術は1950年代から60年代の初頭にかけて、動力炉の燃料として金属燃料が検討されていた時代にアメリカやヨーロッパなど各国で研究が盛んに行われた。しかし照射試験の結果、金属燃料の融点が低く炉心の高温化が困難である、スウェリングが大きく燃料と被覆管の機

械的相互作用により燃料被覆管が破損するという現象が認められたため、金属燃料に関する研究とそのための乾式再処理技術開発の勢いは、急速に衰えていった。

しかし、そのような中でもアメリカではアルゴンヌ国立研究所(ANL)において実験炉EBR- を使って金属燃

料の研究が継続されていた。多くの燃料棒照射試験などの結果、スミア密度<sup>\*3</sup>を75～80%と低くすることにより被覆管破損を防止できること、金属燃料にジルコニウム(Zr)を添加することで燃料熔融温度が上げられることなどが分かってきた。これと並行して金属燃料に乾式再処理を適用するための研究も進められた。これらの経験をもとに、ANLでは電解精製を使った高温冶金法で簡便に金属燃料が再処理できること、炉 - 再処理 - 燃料製造が一体化できること、再処理で得られる製品、特にプルトニウムが純粋な形で回収できないため、核拡散抵抗性が高いことなどの利点を生かして、昭和59年からIFR(Integral Fast Reactor)計画<sup>\*4</sup>を開始した。当研究所ではこの計画に着目し、平成元年からこれに参加して金属燃料サイクルの研究を始めると共に、先に述べた超

ウラン元素の分離にも乾式法を適用するなど、独自の構想も加え研究を行ってきた。これについては所内での研究ばかりでなく、実際に超ウラン元素を用いた試験や装置開発などを行うため、国外機関との共同研究を実施してきた。昭和63年からロックウェル・インターナショナル社(現在は関連部門がボーイング社に移籍：アメリカ)/ミズーリ大学(アメリカ)との共同研究により超ウラン元素の分離試験を行い、超ウラン元素研究所(欧州連合)と共同で超ウラン元素の金属燃料による消滅(燃焼)試験のための研究を行ってきた。さらに平成10年からは乾式再処理を酸化物燃料に適用するための還元技術について超ウラン元素を用いた試験を行うためAEAテクノロジー社(イギリス)との共同研究も開始した。

---

<sup>\*3</sup>スミア密度：原子燃料の被覆管の内側を燃料体が占める割合をスミア密度という。

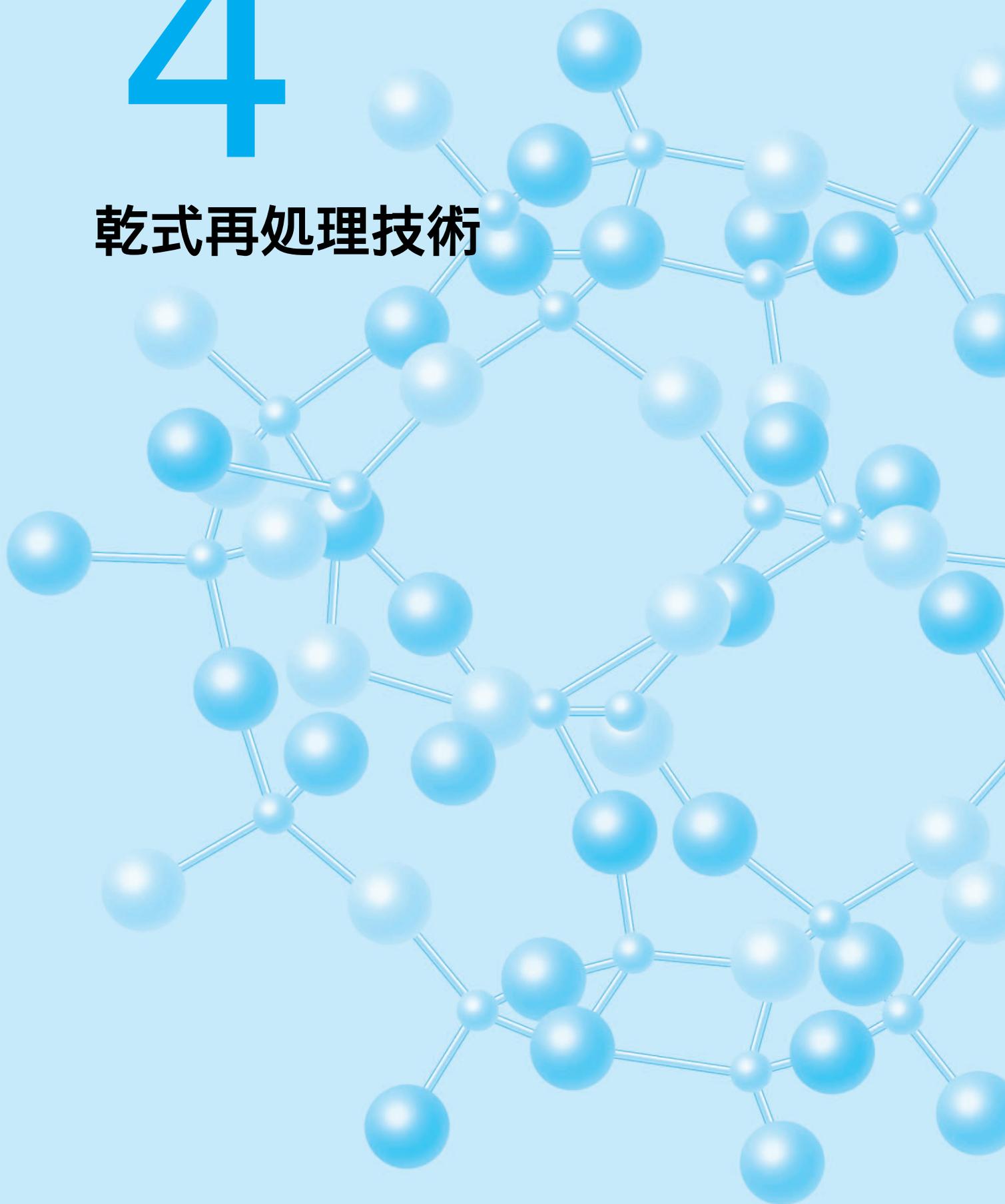
<sup>\*4</sup>IFR計画：IFRはIntegral Fast Reactorの略で、米国アルゴンヌ国立研究所が1984年に提案した高速炉燃料サイクルの概念である。金属燃料を用いる高速炉と核拡散抵抗性の高い乾式のリサイクル技術で構成される。



第 4 章

# 4

乾式再處理技術



## 第4章 乾式再処理技術 目次

原燃サイクル部 主任研究員 小山 正史  
原燃サイクル部 主任研究員 飯塚 政利  
粕江研究所 上席研究員 研究参事 常磐井守泰

4 - 1	電解精製技術	28
4 - 2	陰極回収物処理技術	31
4 - 3	電解精製使用済み塩からの超ウラン元素の還元抽出工程技術	32
4 - 4	燃料製造技術	33
4 - 5	プロセスフロー	36



小山 正史（1988年入所）  
乾式再処理の要素技術およびプロセス技術の開発に従事。特に電解精製と塩廃棄物の固化について重点的に研究し、基礎試験から計算コードや装置開発までを実施することにより新しい知見の獲得と技術の確立に努めた。1998年11月より2年間の予定でEU超ウラン元素研究所に派遣され、乾式リサイクルプロセス実証試験の立ち上げを進めている。



常磐井守泰（1975年入所）  
応力腐食割れなど軽水炉水環境中の材料の劣化対策などの研究に9年間従事後、高レベルガラス固化体の浸出性評価に関する3国共同研究（日本、スイス、スウェーデン）におけるスイスとの共同試験に従事（ポールシェラー研究所滞在、1年間）、85年より金属燃料サイクルの研究の立ち上げに参画し、現在に到る。93年より3年間米国アルゴン国立研究所に滞在し、IFR計画に関する共同研究に従事した。現在も金属燃料サイクルの実用化に向け、研究開発に取り組んでいる。



飯塚 政利（1990年入所）  
主に金属燃料を対象とした乾式再処理プロセスの要素技術、特に液体金属陰極の開発、熔融塩溶媒中の元素濃度オンライン測定、熔融塩中における拡散挙動の測定、燃料合金要素であるジルコニウムの電気化学挙動の測定など電解精製工程に関する技術開発に従事。



以下に「電解精製工程」「陰極回収物処理工程」「還元抽出工程」「射出成型工程」の主要プロセスについて、それぞれの原理と研究開発成果を説明し、続いてプロセス全体としての物質収支を評価した結果を示す。なお、図4-0-1に示した各工程のうち、廃棄物固化処理工程に関

しては高レベル廃液からの超ウラン元素の分離技術(第6章)と共通の技術であるため、まとめて第7章で説明する。なお、軽水炉などの使用済酸化燃料を乾式再処理するための還元技術については第5章で紹介する。

## 4 - 1 電解精製技術

電解精製工程は、使用済燃料中のアクチニド元素を核分裂生成物(FP)から分離して回収する、乾式再処理プロセスで最も中心となる工程である。電解精製は図4-1-1のように電気分解の原理に基づき陽極で使用済燃料を溶解して陰極にアクチニド元素を回収するもので、回収される元素の種類が陽極と陰極の間にかかる電圧や陰極の種類によって変化するという特性を利用し、以下のような手順により再処理を実施する。

オンとして溶解する。



金属燃料は電気を良く通すため、直流電源に直接接続してそれを陽極とすることにより、塩化リチウム - 塩化カリウム熔融塩中に塩化物イオンとして溶解することができる。この時、燃料中のアクチニド元素をほぼ完全に溶解することが、陰極での高い回収率を実現するために不可欠である。しかし、多くの核分裂生成物(FP)が混在する使用済燃料では、核分裂生成物とアクチニド元素との合金化などにより溶解性が低下する可能性があるため、使用済燃料からのアクチニドの溶解試験を行った。

### 4-1-1 使用済燃料の陽極溶解

金属製のバスケットに細かくせん断した使用済燃料を装荷し、熔融塩中に浸す。これを陽極として電流を流すと、次の反応により使用済燃料中の金属が熔融塩中にイ

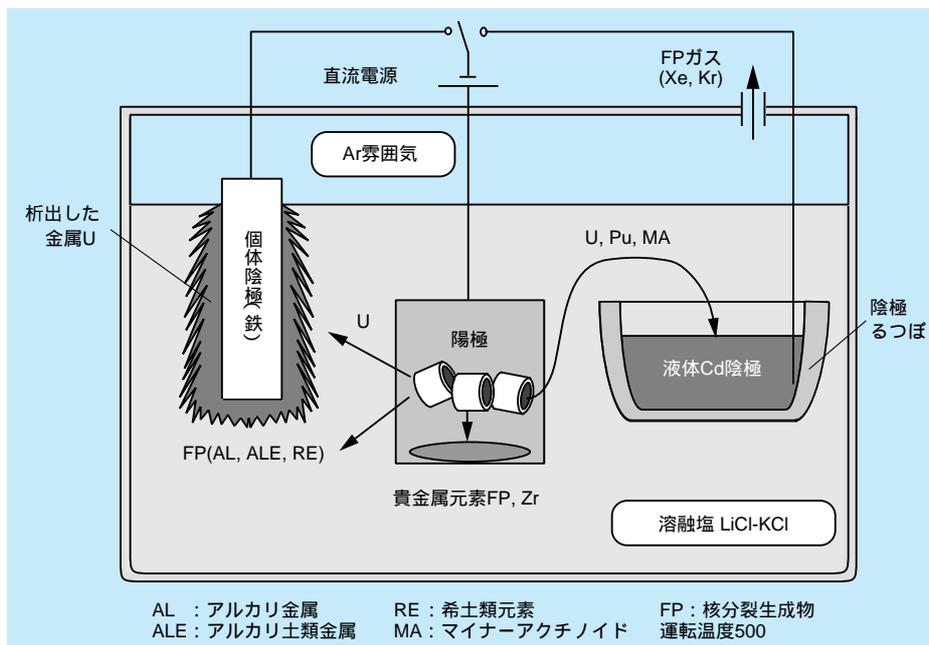


図4-1-1 乾式再処理の電解精製

高速増殖炉実験炉EBR-IIの使用済燃料ピンを被覆管ごと1cm程度の長さでせん断したものを陽極として溶解試験を行い、主な元素の溶け残り量を測定した。その結果、陽極溶解終了後の被覆管への溶け残り率はウランについて0.1%以下、プルトニウムについては0.01%以下であり、アクチニドのほぼ全量が陽極溶解により被覆管から分離されることが確認された。この試験ではごく少量の使用済燃料片を用いたが、実際には一度に数十kgの燃料片を処理するため、これらの燃料片と外部電源との間の電氣的接触を保つことのできる導電性の容器が必要である。そこでステンレス製の網状の容器を4つ十字型に組み合わせたものを用いた試験により、実用レベルの早い速度(24時間で約10kg)でウランを溶解することに成功した。



図4-1-2 個体陰極に析出したウラン(約10kg)  
(ANL/電中研共同研究)

#### 4-1-2 固体陰極へのウランの回収

陰極として鉄などの固体物質を使用し、電圧を制御することにより以下の反応が優先され、ウランが陰極上に析出する。

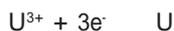


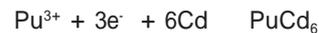
図4-1-2は固体陰極に回収されたウラン析出物の写真で、デンドライトと呼ばれる樹枝状の形態で、約10kgのウランが棒状の陰極から放射状に成長していることが分かる。この析出物は、被覆管付きのウラン-ジルコニウム(U-Zr)合金を陽極にし、固体陰極をゆっくり回転して伸びすぎた析出物を削り落としながら電解して得られたものであり、実用レベルに近い速度(24時間で約10kg)で回収したものである。また、精製性能についても高い純度でウランが回収できたことから、固体陰極によるウランの回収については原理的・技術的にほぼ問題ないものと考えている。

今後は、実用化に向けて、さらに速い速度で処理できる陰極構造の開発を進めていくことを予定している。

#### 4-1-3 液体カドミウム陰極へのプルトニウム回収

陰極を固体陰極から液体カドミウム陰極に交換すると、

以下のような反応が起ってプルトニウムやマイナーアクチニドがウランとほぼ同じ電位で陰極に析出する。



小規模の電解槽で液体カドミウム陰極への析出試験を行なったところ、共存するウランの濃度が低い場合には、ほぼ100%の電流効率でプルトニウムがウランとともに回収できた。ところが、再処理条件に合わせて、ウランがプルトニウムと同程度以上共存する状態で試験を行うと、熔融塩と陰極カドミウムの界面にデンドライト状のウランが発生して電解が阻害されることが分かった。そこで、液体カドミウムを攪拌することにより、デンドライトの発生を抑制する効果について検討した。その結果、攪拌の強さとデンドライト状ウランが発生するまでに回収することができるウラン量との間には正の相関があり、陰極を攪拌することで、固体陰極と同程度の電流密度で液体カドミウム陰極中にウランを10wt%程度の濃度までデンドライトを発生させずに回収できることが分かった。

一方、核分裂生成物(FP)からの分離性能を調べるため、模擬FPとして希土類元素を加えて、ウランの液体カドミウム陰極への析出試験を行った。その結果、図4-1-3のように通電量の増加にともなってウランの析出量が増加しても、液体カドミウム陰極中の希土類元素濃度はあまり変化しないことがわかった。従って、ウランが多く析出するほど回収物中の不純物の割合(FP/U)を小さくできる。

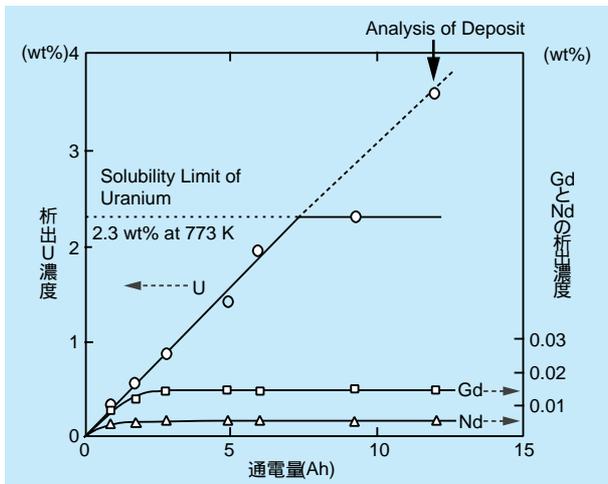


図4-1-3 液体Cd陰極への析出U,Gd,Nd濃度の経時変化

今後は、この攪拌方法を用いてプルトニウムとウラン、希土類が共存する系での析出挙動を調べて液体カドミウム陰極によるプルトニウム回収を確認するとともに、スケールアップした時においても有効な攪拌方法を確立する予定である。

#### 4-1-4 熔融塩からの残留アクチノイド元素の抽出電解

電解を繰り返していくと次第に熔融塩中に核分裂生成物が蓄積するため、崩壊熱あるいは回収物中の不純物濃度が上昇し、電解槽の運転が困難になる。このため、定期的に熔融塩を更新し、核分裂生成物の蓄積した使用済熔融塩を処理する必要がある。抽出電解は、熔融塩の更新前に塩中に残留しているアクチノイド元素を回収するために行うもので、陽極にカドミウム・リチウム(Cd-Li)合金を使用し、陰極でアクチノイドイオンを還元して析出・回収する。ウランと希土類元素を含む熔融塩中で抽出電解試験を行ったところ、ウランが優先的に析出するが、熔融塩中のウラン濃度が減少するにつれて、陰極析出物の陰極表面への固着性が悪化することも明らかとなった。このため、今後は陰極から落ちた析出物を回収する機構を持った固体陰極を開発し、ウラン、超ウラン元素を用いた抽出電解試験を実施して、その実用性を確立する。

#### 4-1-5 実用化技術の検討

##### 電解精製挙動解析プログラムの開発

電解精製における各元素の挙動を予測することは、その実用性を評価するのみならず、必要な製品組成に応じた電解運転条件(例えば、固体陰極から液体カドミウム陰極への切り替えのタイミングなど)を設定する上でも大変重要である。そこで電解精製工程における元素の挙動を予測する全く新しい解析コード「TRAIL」を開発した。「TRAIL」は、熔融塩中のイオンの拡散と電極表面での酸化還元反応をそれぞれモデル化して結合したもので、これにより、各元素の初期量と通電電流を入力すれば濃度および電極電位の経時変化を計算することが可能となった。このプログラムはプルトニウム試験を含む多くの実験データと比較することにより、電解精製時の各元素の挙動が、かなり正確に推測できることが確認された。

##### スケールアップ技術の開発

図4-1-4はアルゴン国立研究所との共同研究により設計・製作されたもので、直径1 m、高さ3 mの実用規模の電解精製試験装置である。本装置の基本設計は実験室規模の装置をほぼそのままスケールアップしたものである。劣化ウランを用いた固体陰極への析出試験では、初期に析出物の脱落による電流効率の低下などがあったものの、運転条件の最適化等により実験室規模と同等の電流効率(60%~70%)で運転できることが分かり、スケールアップ可能であることが確認された。

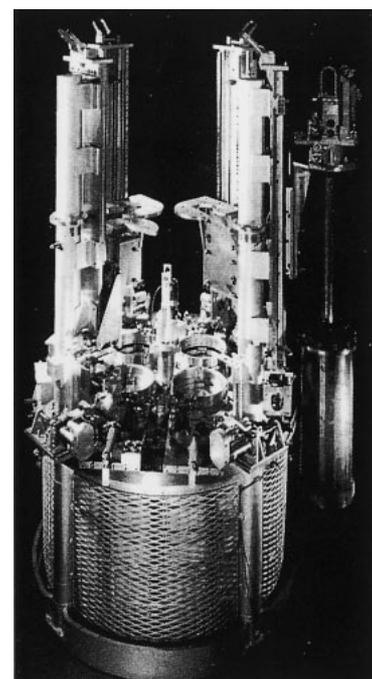


図4-1-4 実用規模の電解精製試験装置

## 4 - 2 陰極回収物処理技術

前述のように電解精製プロセスの回収物は、塩が付着したデンドライト状のウラン(固体陰極回収物)あるいはU-Pu-MA-Cdの合金(液体カドミウム陰極回収物)という形態を取っている。従って、これらの回収物から金属燃料を製造するためには、余分な塩とカドミウムを除去する必要がある。陰極回収物処理のプロセスは、図4-2-1に示すように、塩とカドミウムの蒸気圧が金属ウランや金属プルトニウムの蒸気圧に比べてかなり大きいことに着目し、電解精製の回収物をルツボに入れて加熱し、塩やカドミウムを蒸発させ、ルツボに残ったウランやプルトニウムを回収するというものである。その成立性を確認し装置を設計するためには、析出物からの塩やカドミウムの蒸発速度の温度依存性データと、高温で使用できるルツボ容器の開発が必要である。以下に、液体カドミウム陰極回収物からのカドミウムの蒸発分離と固体陰極回収物からの塩の蒸発分離のそれぞれについて検討した結果を示す。

### 4-2-1 液体カドミウム陰極回収物からのカドミウムの蒸発分離

カドミウム陰極析出物中には約10wt%程度のウランとプルトニウムが含まれる。これらの成分の影響によるカ

ドミウムの蒸気圧の低下を見積もるために、ウラン - カドミウム合金、およびプルトニウム - カドミウム合金を模擬するネオジウム - カドミウム合金について、600 ~ 900 °Cでのカドミウムの蒸発速度を測定した。ウラン - カドミウム合金ではカドミウムの蒸発速度の低下はほとんど見られなかったが、ネオジウム - カドミウム合金ではカドミウムの蒸発速度が1000分の1程度にまで低下した。カドミウムの蒸発分離では、蒸気圧が高いアメリカシウムの蒸発によるロスを考慮する必要がある。上記の結果より、カドミウムの蒸発速度が単体の場合より低下することが予想されるが、アメリカシウムも活量が低下することによって、蒸気圧が低下すると考えられるので、アメリカシウムの蒸発によるロスはそれ程大きくないと想定している。これについては、今後より詳細に検討する必要がある。一方、カドミウムが蒸発したあとに残るウラン - プルトニウム合金は融点が800 °C前後であり、1000 °Cで蒸留する場合には溶融したウラン - プルトニウム合金と反応しない容器材料が必要である。ANLではイットリア( $Y_2O_3$ )をコーティングした黒鉛ルツボをU-Pu-Zr燃料合金を溶融製造する際のルツボとして用いており、この蒸発分離工程での容器材料の候補と考えられる。

### 4-2-2 固体陰極析出物からの塩の蒸発分離

固体陰極析出物からの塩の蒸発分離では、塩とウランは反応しないため、カドミウムの蒸発の場合のように蒸気圧の低下はほとんどないと考えられる。しかし、図4-2-1に示したように塩自身の蒸気圧はカドミウムほど大きくないので、1000 ~ 1300 °Cでの蒸留が必要となる。この場合、このような高温で塩化物とも金属ウランとも反応しない容器材料が必要となる。ANLとの共同研究で開発した実証規模の試験装置(図4-2-2)では、ウランのデンドライト状析出物を1300 °C程度で処理したところ、黒鉛ルツボのイットリアコーティング材の剥離が見られ、さらに安定した材料の開発が必要であることが分かった。この結果をふまえて検討した結果、ベリリアセラミックが繰り返しての使用に耐えうるということが分かったが、ベリリアは化学的毒性が高く近年あ

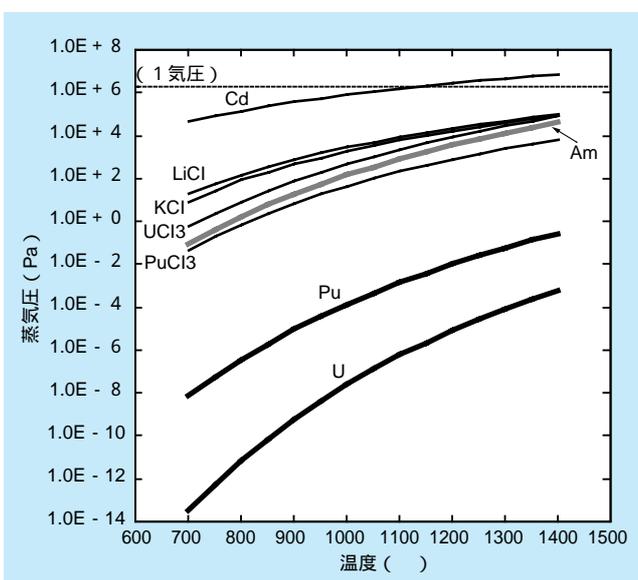


図4-2-1 陰極回収物処理工程に関わる各成分の蒸気圧 (燃料成分を太線で、蒸留される成分を細線で示している)

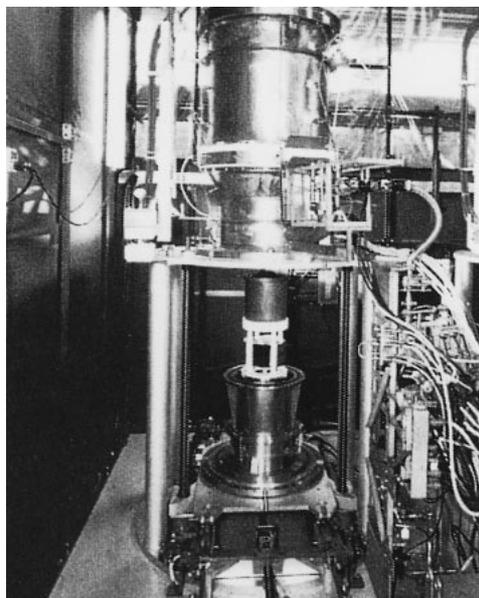


図4-2-2 実用規模の陰極回収物処理試験装置

まり用いられていないため、今後はさらに広い範囲の材料の検討が必要である。

## 4 - 3 電解精製使用済み塩からの超ウラン元素の還元抽出技術

廃棄物処理工程の前に、電解精製後の使用済み塩から残留するアクチノイド元素をさらに回収する必要がある。使用済み塩に還元剤を含んだ液体金属を接触させることにより、アクチノイド元素を金属に還元して液体金属中に移行させて回収するもので、使用する液体金属としてはカドミウム、還元剤としてはウランあるいはリチウムが候補である。

還元抽出法は図4-3-1に示す分配係数の差を利用した分離法である。この分配係数の差を利用して高い回収率と分離を両立させるためには、複数の抽出槽を組み合わせ、抽出を多段で行う必要がある。図4-3-2はその一案として、水溶液系で用いられる遠心抽出器をもとに、500 の高温融体に適用した装置の構造を模式的に示したものである。溶融塩と液体金属は、容器と内部ローターとの間の円筒状部分で混合され、十分に酸化還元反応が進んだ後にローター内部で遠心力により分離される。本装置を用いて行った模擬試験(アクチノイド元素をセリウムで模擬し還元剤としてリチウムを使用)の結果、ローターの回転速度を1000rpm程度に増加させることにより抽出効率が100%に近づくこと、すなわちほぼ平衡計算通りに還元反応が進むことが分かった。

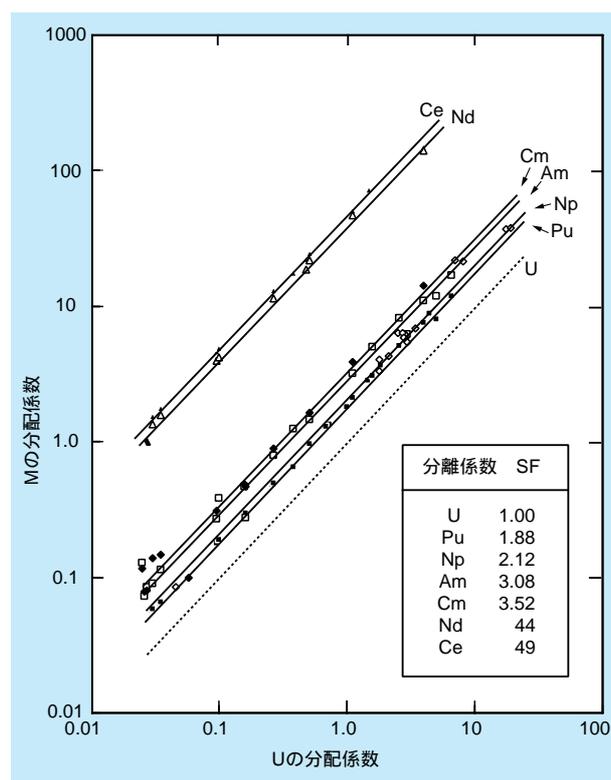


図4-3-1 ウランの分配係数に対するアクチノイド元素と希土類元素の分配係数

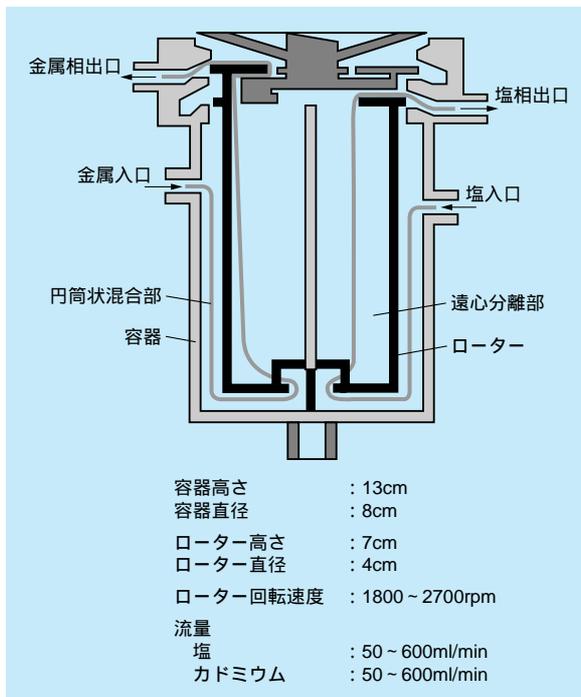


図4-3-2 乾式再処理の溶融塩/液体金属用遠心抽出装置の概念図

## 4 - 4 燃料製造技術

当所では、金属燃料の製造技術に関して、ANLでのこれまでの開発状況の調査を実施した。また、ANLが開発した射出成型法で金属燃料を製造すると仮定し、国内で模擬物質を用いた実験を実施するとともに、射出から凝固までをシミュレーションする解析コードの開発を行なった。これにより、物性値を入力することにより、ウラン - プルトニウム - ジルコニウム (U-Pu-Zr) 合金の射出特性を予測することが可能になった。

### 4-4-1 ANLにおける金属燃料製造技術の開発

金属燃料製造の技術開発プロジェクトは、ANLで1940年代にスタートした。その目的は高速実験炉EBR-1 (1951年運転開始)用の燃料の製造方法を決めることで、遠心鑄造技術が適用された。次いで、後継のEBR-2 (1962年運転開始)とFCF (Fuel Cycle Facility、1964 ~ 1968年まで運転)では、アルゴンセル中での遠隔運転性

に優れる射出成型法を適用した燃料製造技術が開発された。1962年のEBR-2の初装荷燃料から始まり、1994年に運転中止となるまでの約30年間に合計5台の射出成型装置が作られ、累計で約17万本のウラン合金燃料、約1000本のプルトニウム入り3元合金燃料が製造された。

図4-4-1に射出成型法の原理の模式図と実際の射出後のモールド群を写真で示す。この方法は、組成の均一性を確保するための高周波誘導加熱、真空のモールド中への加圧鑄造成型などからなり、融点が1100程度である金属燃料に通用可能な装置構成となっている。同図の写真から、溶湯に浸っていたモールド下部には燃料合金が付着していることがわかる。

IFR燃料は、ブランケット燃料にU-Zr合金、ドライバー燃料にU-Pu-Zr 3元系の合金を用い、被覆管にフェライト系ステンレス鋼のHT-9を用いるレファレンス燃料 (Mark- )、およびオーステナイト系ステンレス鋼のD-9 (改良316に相当)を用いるバックアップ燃料 (Mark-VA)

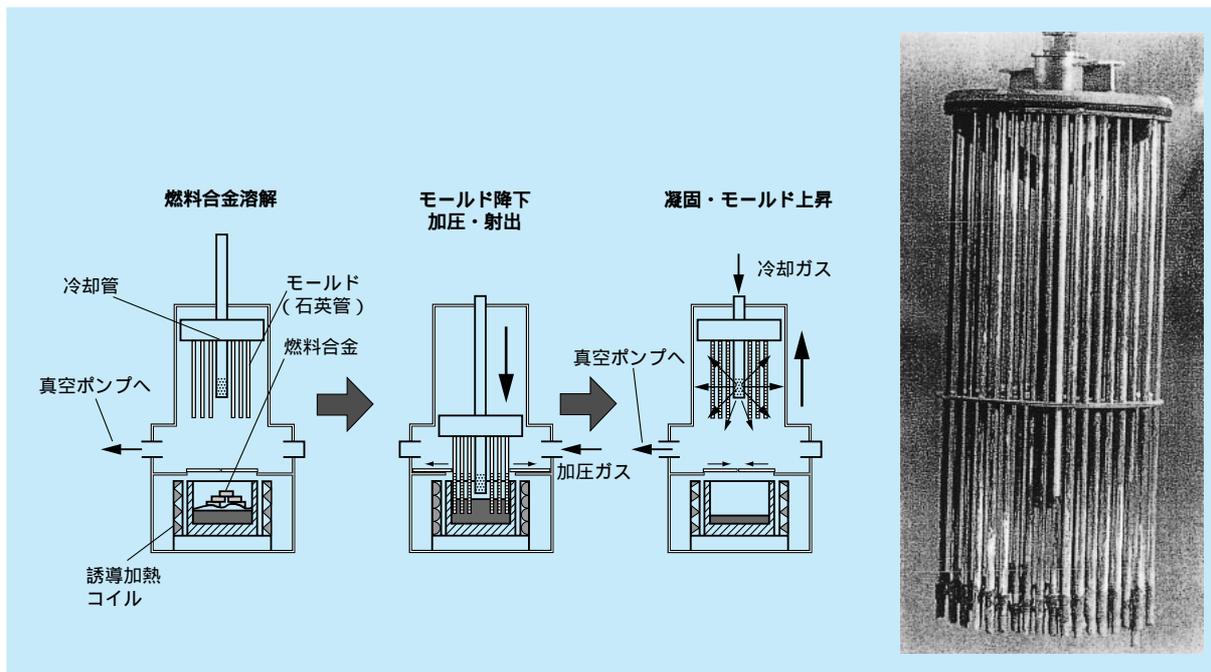


図4-4-1 射出成型法の原理(左)と射出後のモールドの写真(右)

がある。初期の照射試験用に作成したU-Pu-Zr 3元系燃料の分析結果と燃料仕様を表4-4-1に示す。燃料成分元素の組成は、燃料全体にわたって仕様を満足し、酸化物ペレット並みの均一性が得られている。

アメリシウム(Am)、ネプツニウム(Np)を含む変換処理用の試験燃料も本装置で製造された。この燃料製造試験において、約40%程度のアメリシウムがロスしたが、主要な原因は原料アメリシウムの純度とチャージ法に問題があったことがわかっている。さらに、EBR-2の燃料の長さは実用炉燃料の約1/3(約32cm)であり、長尺の燃料の照射データを取ることが必要とされた。現行の短尺燃料スラグを3本使用してFFTF(高速中性子束炉)の燃料の長さに調整して照射した結果では破損なく18%の燃焼度を達成し、長尺炉心に対しても射出成型技術で燃料を供給できることを実証した。

#### 4-4-2 射出成型シミュレーションコードの開発

射出成型法は車のホイールなどの製造方法として産業化されており、その運転支援ツールとして、凝固現象をシミュレーションできる解析コードが用いられている。

表4-4-1 IFRリード燃料の化学分析結果の一例(上)とMK-V燃料組成(下)

		単位 重量 %		
組成	サンプルの場所	U-10Zr	U-8Pu-10Zr	U-19Pu-10Zr
Uranium :	上端	89.80	82.10	71.60
	中央	89.60	82.10	71.30
	下端	89.80	82.40	71.30
	全体	89.70	82.20	71.40
Plutonium :	上端	0.00	7.84	18.92
	中央	0.00	7.93	19.13
	下端	0.00	7.68	18.90
	全体	0.00	7.82	18.99
Zirconium :	上端	10.10	10.10	10.00
	中央	10.10	10.00	9.90
	下端	10.20	9.90	10.20
	全体	10.10	10.00	10.10
密度(g/cc) :		15.7636	15.7736	15.7469
マスバランス :		99.99±0.49	100.01±0.43	100.44±0.38

U,Pu,Zr組成

元素	元素比 (wt%)
U	70.0±1.0/-1.5 (avg.); ±1.5 (上部、中央、下部)
Pu	20.0±1.0 (avg.); ±1.5 (上部、中央、下部)
Zr	10.0±1.0 (avg.); ±1.5 (上部、中央、下部)
U+Pu+Zr	100.0±1.0/-1.5 (avg.)

当研究所ではこれに着眼し、射出成型シミュレーションコードICASTを開発した。これは、ICAST-FLOWとICAST-HEATの2つのモジュールから構成される。ICAST-FLOWは、炉内加圧速度、円管内を流動する溶融燃料(溶湯)の壁面せん断応力、および慣性力から溶湯のモールド内上昇速度を求めるものである。また、ICAST-HEATは、軸対称r-z 2次元の有限要素法により、

燃料合金とモールドの伝熱凝固解析を行うものである。

ICASTの妥当性を確認するため、Fe - 3.7wt.%C合金を用いた射出成型模擬実験を行った。その結果の一例として、軸方向2点でのモールド表面温度の測定結果を図4-4-2に示す。図中の実線はICASTによる計算結果であるが、測定結果とほぼ一致しており、解析の妥当性が確認された。図には模擬燃料の中心温度の計算結果も示した。この実験ではモールド下端から30cmのところで凝固していたが、計算においてもB-B断面では溶湯が到達した時には、合金の温度はすでに凝固温度(1200℃)に達しており、この辺りでモールドへの充填が止まることが予想できる。図4-4-3に成型不良の例をイラストで示すが、この模擬実験の結果はこのうちのショートキャスティングであるといえる。

以上の例にならって、ある長さの燃料ピンを得るために必要な加圧速度を計算した結果を図4-4-4に示す。40cmの燃料ピンを得るためには、0.4Kgf/cm<sup>2</sup>/sec以上の加圧速度が必要であることがわかった。

### 4-4-3 成立性評価のまとめ

ウラン合金燃料は、製造総本数17万本以上の実績がある。また、本格的なプルトニウム入りのIFR燃料(U-Pu-Zr合金)の製造実績は約1000本程度(内800本を照射)で、実用燃料に必要な長尺燃料の照射健全性も確認された。

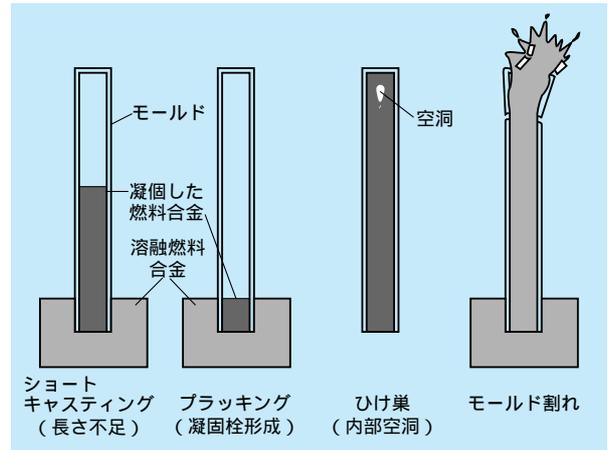


図4-4-3 射出成型法における成型不良の例

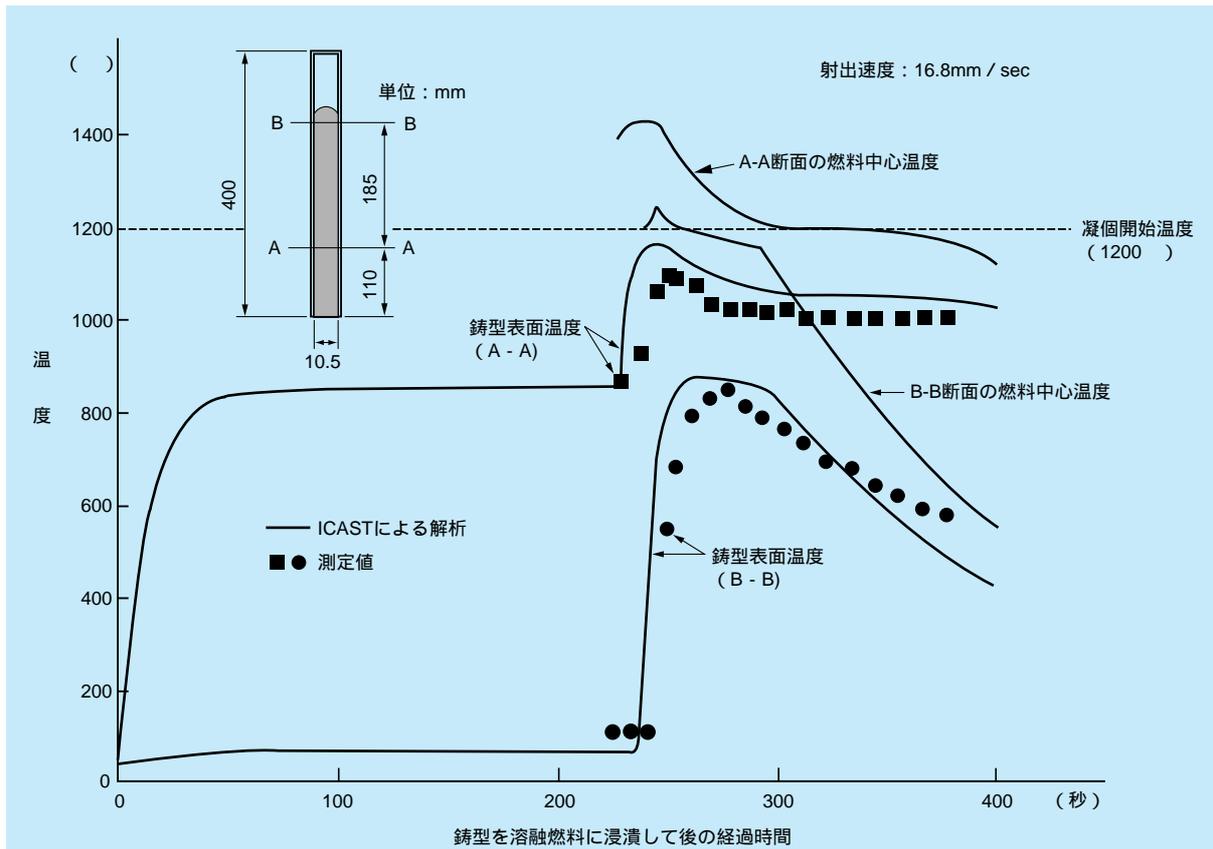


図4-4-2 模擬燃料合金(Fe-3.7C)射出成型実験におけるモールド表面温度の測定結果とICASTによる解析結果

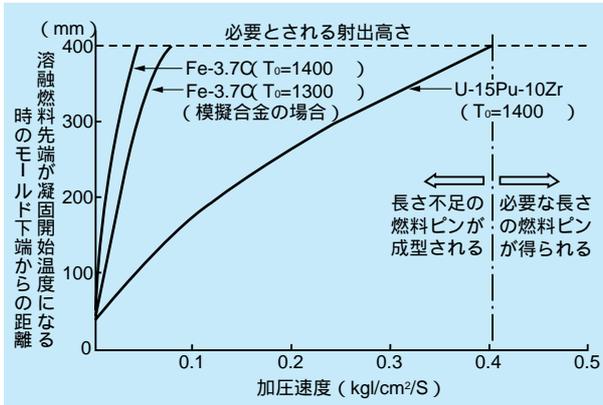


図4-4-4 ある長さの燃料ピンを得るために必要な加圧速度の解析結果 (ICAST)

U-Pu-Zr合金燃料の実績はウラン燃料ほどではないが、製造上、特に困難な問題はなかったため、ウラン合金燃料の実績と合わせ、実用性は十分あると見て良い。

実用施設に不可欠な保守・補修性については、完全遠隔運転が行われ機器の補修性と高い稼働率が実証され

たので、大きな問題はないものと判断される。機器はそれぞれ独立しており、配管等で結合していないことから、装置の増設や改良も容易である。システムがシンプルであり、しかも高級な材料が不要であることから、装置の製作コストは安く、必要な床面積も小さくなり、経済性に優れたものと考えられる。

一方、プロセス全体で回収できないプルトニウムのロスを1%以下に押さえることがリサイクル技術としての基本条件と考え、現行のモールド廃棄物やドロスへのプルトニウムのロスは大きすぎる。

実用化に向けて残る課題としては、

坩堝の耐久性の向上

新モールド材料の開発

ドロスの低減

モールド廃棄物およびドロスからのPu回収技術の開発

システムの自動化

等があげられる。

## 4 - 5 プロセスフロー

乾式再処理プロセスフローは、

高い経済性の確保(プロセス数をできるだけ少なくすること)

廃棄物へ移行する超ウラン元素量および二次廃棄物の低減

優れた核拡散抵抗性の保持(即ちプルトニウムを単体では扱わない)

の3つを基本方針として、前記のような各要素技術の進捗に合わせて改良・検討を進めてきた。

乾式再処理プロセスの物質収支を図4-5-1に示す。同図の物質収支は年間10トン(重金属換算)の使用済燃料を

処理すると仮定し、各プロセスを実験結果に基づくモデルで計算した結果を稼働率200日/年として平均したものである<sup>(21)</sup>。この結果、超ウラン元素全体の回収率を99.9%とし、核分裂生成物のうちで最も分離が困難な希土類についても除染係数10以上の再処理を達成できるものと考えられる。なお、使用済燃料と比べて再処理後に得られる炉心燃料は増え(43.68kg/日 50.82kg/日)、一方ブランケット燃料は減っている計算となっているが、これは回収されたプルトニウム全量を炉心燃料とすると仮定しているためであり、プルトニウムの増殖を表しているものである。

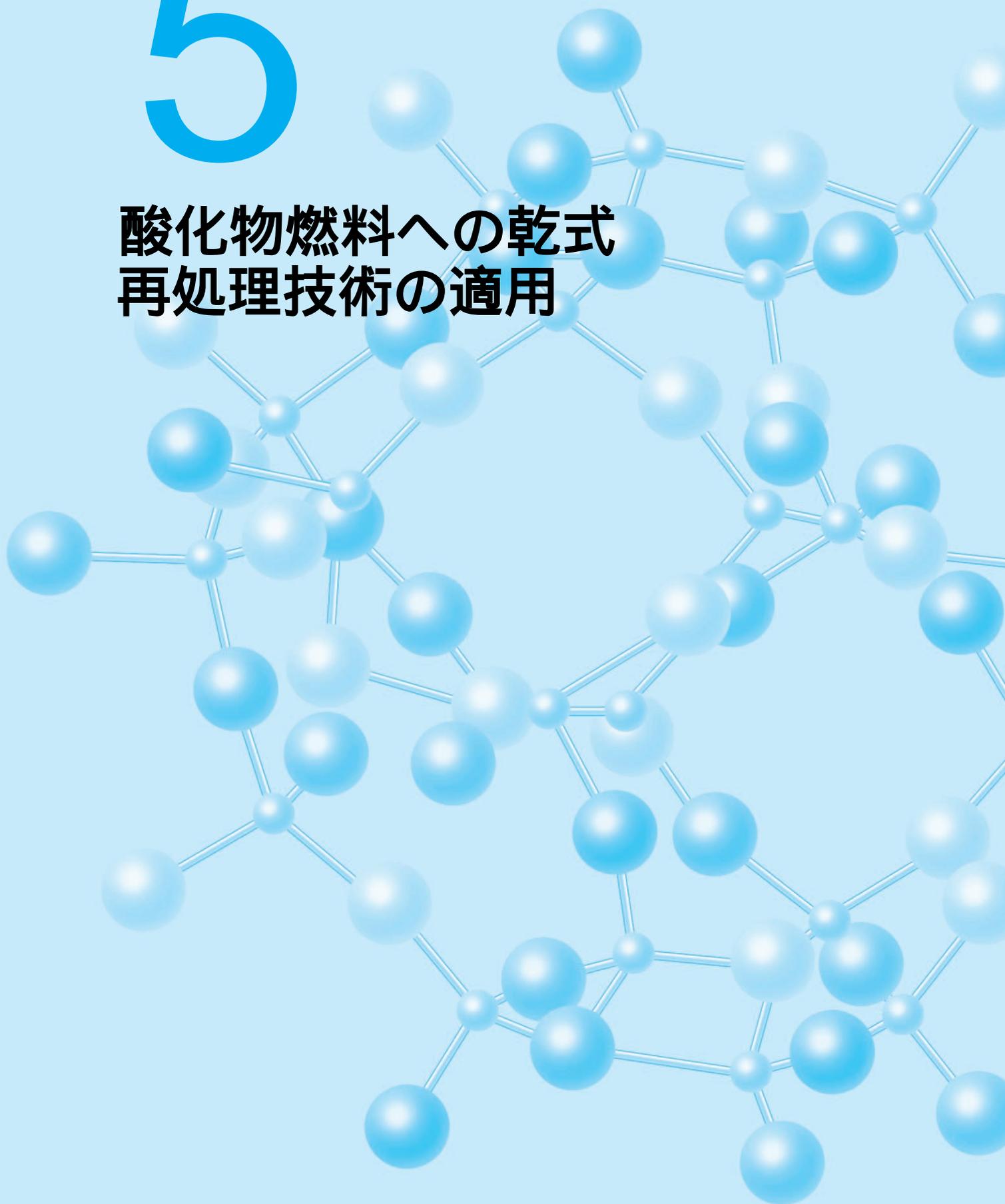




第 5 章

# 5

酸化物燃料への乾式  
再処理技術の適用



## 第5章 酸化物燃料への乾式再処理技術の適用 目次

原燃サイクル部 主任研究員 宇佐見 剛  
原燃サイクル部 主任研究員 加藤 徹也

5 - 1	リチウム還元プロセスの原理とフローシート .....	41
5 - 2	アルゴンヌ国立研究所における研究開発の現状と課題 .....	43
5 - 3	当所における研究開発の現状 .....	45



宇佐見 剛（1995年入所）

入所以来、主として酸化物燃料の還元プロセスの研究に従事。平成10年6月より英国AEA Technology社に滞在し、TRUを用いた還元試験を実施中。これまでにMOXペレット等の還元を確認している。



加藤 徹也（1995年入所）

主として酸化物燃料の還元プロセスの研究に従事。高燃焼度模擬ペレットの還元試験を行うなど、リチウム還元工程および $\text{Li}_2\text{O}$ の再生工程における核分裂生成物の挙動について研究を進めている。

# 第5章 酸化物燃料への乾式再処理技術の適用

軽水炉から発生する使用済み酸化物燃料に乾式再処理技術を適用するためには、酸化物を金属に転換する技術を開発する必要がある。これが本章で述べる酸化物燃料の還元技術である。

酸化物燃料の還元とは、ウラン、プルトニウムやマイ

ナーアクチニド( MA : ネプツニウム、アメリシウム、キュリウム )と化学結合した酸素を取り除くことであり、これらより酸素と結合しやすい金属、つまり酸化物の生成自由エネルギー(  $G$  )の小さな金属を酸化物燃料と接触させるプロセスが考えられている。

## 5-1 リチウム還元プロセスの原理とフローシート

### 5-1-1 還元剤と浴塩の選定

還元剤を選定する際には、酸素との結合のしやすさを示す酸化物生成自由エネルギー(  $G$  )がその指標となる。この酸化物生成自由エネルギーの温度依存性を、図5-1-1に示す。この図では、下にある元素の方が酸素と結合しやすいことを示しており、アクチニド酸化物の還元剤として考えられる金属は、リチウム( Li )、ベリリウム( Be )、マグネシウム( Mg )、カルシウム( Ca )、ストロンチウム( Sr )、トリウム( Th )及び希土類の一部である。これらの還元剤候補から、以下の様な検討を行った結果、リチウムを第1候補として選定した。

トリウムは放射性物質であることにより対象外とした。ベリリウムは $\alpha$ 反応により中性子を放出し、さらにベリリウム自体の毒性やプルトニウムと合金を形成しやすいことにより対象から除外した。希土類元素については、使用済み燃料には有意量の希土類元素がFPとして含まれているために、電解精製以降の工程への負担が増加し、高レベル廃棄物量も増加するという観点から適していないと判断した。同様にストロンチウムもFPの除染の観点から除外した。次に、マグネシウム( Mg )は十分な還元能力を持つが、塩化物が不安定であるために、Puが

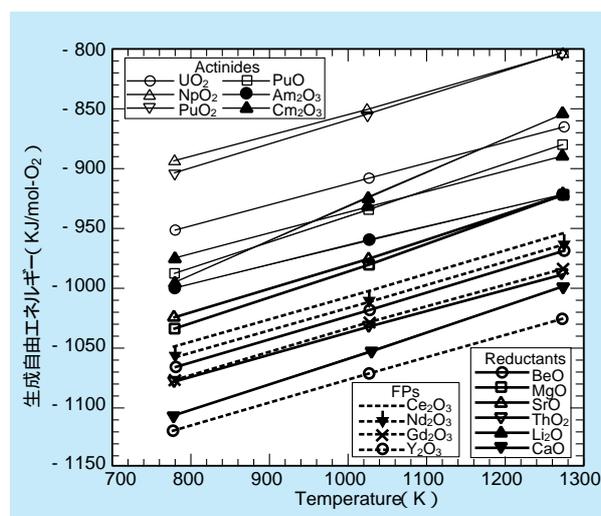


図5-1-1 酸化物の生成自由エネルギー

(この図ではより下側の酸化物が安定。即ち、より上側の酸化物は下側の金属元素によって還元される。図中で最も還元されやすい酸化物は $\text{NpO}_2$ 、最も強い還元剤はYと言える。)

$\text{MgCl}_2$ 中で塩化物に転換され還元に用いる浴塩との分離が難しいことから検討の対象外とした。

以上と比べて、リチウムとカルシウムは欠点が少ない還元剤である。リチウムの酸化物(  $\text{Li}_2\text{O}$  )の生成自由エネルギーは希土類とアクチニドの間にあり、理想的には希土類とアクチニドの分離が可能である。金属リチウムの融点は180、塩化物の融点も605と、他の還

還元候補の金属、塩化物の融点に比べて低い。

一方のカルシウムを用いた場合には、カルシウムの酸化物(CaO)の生成自由エネルギーが希土類よりも小さく、希土類まで還元してしまうために電解精製の負荷は大きくなる。さらに、カルシウムの融点839、塩化カルシウム(CaCl<sub>2</sub>)の融点772で、運転温度が高くなる。アルゴン国立研究所(ANL)ではカルシウムを経てリチウムを最有力候補として開発した経緯があり、当所でも上記のような評価結果をふまえて、リチウムを第一候補として還元プロセスの開発に着手することとした。

還元剤の選定においては、一緒に用いる浴塩との整合性も重要である。浴塩は還元の際に反応生成物を溶解・除去し反応を促進する。浴塩としては、揮発性、吸湿性ができるだけ低いこと、使用済み燃料からの放射線により(α、β、γ、n)反応を生じないこと、等が条件となり、塩化物が適していると判断した。

### 5-1-2 リチウム還元のプロセスフロー

リチウム還元のプロセスフローを図5-1-2に示す。リチウム還元プロセスは、

- ウランと超ウラン元素の還元
- 金属製品の分離・回収
- リチウム金属と塩化リチウム(LiCl)の再生

の3つの工程で構成される。

#### ウランと超ウラン元素の還元

使用済燃料を剪断・脱被覆し、塩化リチウムを浴塩として、金属リチウムで次式のようにアクチニドを還元する。



(AnO<sub>2</sub>: アクチニド酸化物、An: アクチニド元素、Li: 金属リチウム、Li<sub>2</sub>O: 酸化リチウム)

塩化リチウムに溶解した金属リチウムがアクチニドを還元し、還元で消費された分は還元のプロセスを通じて塩化リチウム中の飽和溶解度以上に存在する金属リチウムによって補われる。反応生成物のうち、金属はルツボの底に沈澱し、酸化リチウムは溶融塩に溶解する。使用済燃料に含まれるFPのうち、貴金属(Noble Metal: NM)はアクチニドと同様に以下の反応で金属に転換され、ルツボの底に沈澱する。



(NMOx: 貴金属酸化物、NM: 貴金属、Li: 金属リチウム、Li<sub>2</sub>O: 酸化リチウム)

アルカリ金属(Alkali Metal: AL)FPは塩化物の生成自由エネルギーがリチウムより小さく、即ちリチウムよりも塩化物になりやすいため、塩化リチウムとの間で以下の反応を起こし塩化物に転換される。

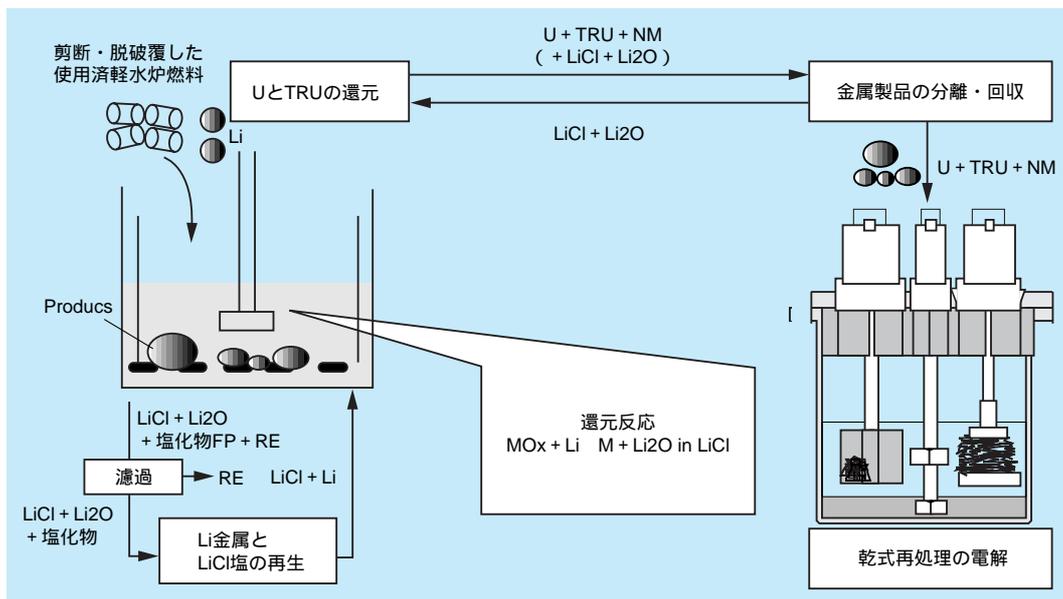


図5-1-2 リチウム還元のプロセスフロー  
(图中Mはリチウムで還元される金属、REは希土類元素、NMは貴金属元素)



( $\text{AlO}_x$  : アルカリ酸化物、 $\text{AlCl}_{2x}$  : アルカリ塩化物、 $\text{LiCl}$  : 塩化リチウム、 $\text{Li}_2\text{O}$  : 酸化リチウム)

アルカリ土類(Alkaline Earth : AE)FPと希土類(Rare Earth : RE)FPは元素によって挙動が異なると考えられる。塩化物の生成自由エネルギーが小さい元素はアルカリFPと同じ反応で塩化物に転換され、塩化物が塩化リチウムよりも不安定な元素は酸化物のまま存在する。また、希土類FPの一部は、アクチニドの還元で生じた酸化リチウムと以下の様に反応し、複合酸化物を形成する事も考えられる。



( $\text{RE}_2\text{O}_3$  : 希土類酸化物、 $\text{Li}_2\text{O}$  : 酸化リチウム、 $\text{LiREO}_2$  : リチウム希土類複合酸化物)

現在これらの反応を詳細に調べるためにアクチニド元素や模擬使用済み燃料を用いて研究を進めている。

#### 金属製品の分離・回収

還元工程の製品は酸化物を含む浴塩から分離し、乾式再処理の電解精製槽に移送する。酸素が電解精製工程に持ち込まれるとアクチニドが再び酸素と結合し、アクチニド酸化物として沈澱してしまうため、生成した金属を

酸化物を含む浴塩から分離することが必要になる。現在考えているプロセスでは、ステンレスのメッシュでできたバスケットに使用済酸化物燃料を入れて還元する。還元で生成したアクチニド金属は、このバスケット中に沈澱するのでバスケットごと引き上げる。浴塩の一部は、アクチニド金属やバスケットに付着して随伴する。付着・随伴した塩は、バスケットを新たな溶融塩化リチウムに浸して洗い流す。

#### リチウム金属と塩の再生

の還元工程で使用された浴塩や、のメッシュバスケット洗浄に用いた浴塩には、還元で生成した酸化リチウムが溶解している。プロセスを経済的にし、且つ廃棄物を低減するためには、この使用済みの浴塩から酸化リチウムを除去し、浴塩をリサイクルしなければならない。浴塩からの酸化リチウムの除去には電解を用いる。電解による再生プロセスでは、酸化リチウムが溶解した塩化リチウムに電極を挿入し、



或いは



といった反応により、塩化リチウム中の酸化リチウムを分解し還元剤であるリチウム自体も再生する。

## 5 - 2 アルゴン又国立研究所における研究開発の現状と課題

米国のアルゴン又国立研究所(ANL)では、酸化物の還元プロセスについて多くの研究開発を行っているが、公開されている文献があまり多くはなく、且つ近年はさらに減少する傾向にある。本節では公開されている文献をもとに、

ウランと超ウラン元素の還元

金属製品の分離・回収

リチウム金属と塩化リチウム( $\text{LiCl}$ )塩の再生

以上3工程のそれぞれについて、研究開発の現状をまとめ、課題を抽出する。

### 5-2-1 ウランと超ウラン元素の還元

ウランと超ウラン元素の還元に関してANLが発表した、ピーカー規模の試験の還元率は酸化ウラン( $\text{UO}_2$ )が100%、酸化プルトニウム( $\text{PuO}_2$ )と酸化キュリウム( $\text{CmO}_2$ )がそれぞれ99%以上、酸化アメリシウム( $\text{AmO}_2$ )が86%-99%、酸化ネプツニウム( $\text{NpO}_2$ )が95%-99%となっている<sup>1)</sup>。試験に用いた物質量はどの文献にも記述されていない。これらの試験では塩中の超ウラン元素濃度のみが測定されており、装荷したウランと超ウラ

ン元素のうち塩中で検出されなかった部分が還元されたとする値である。

また、ANLでは酸化物500g規模の試験を経て最終的に工学規模試験装置を製作し、10kgの模擬使用済燃料を装荷した試験を行った。工学規模の還元槽は高さ約1.2m、直径約1mで、内部に高さ約0.7m、直径約0.4mのルツボを備えている。この試験ではアメリカシウム約1%とネプツニウム約3%が塩中に検出されたこと、ウラン・プルトニウムの塩中濃度が検出限界以下だったことなどが示されている。

以上のとおりANLでは工学規模試験まで行われ、高い還元率が示されているが、分析が行われたのは塩中の元素濃度に限られている。つまり実際にどの程度還元されたのかは明らかでなく、この還元法が成立することに関しては十分な検証が必要である。さらに、実燃料に適用する場合の還元条件を把握するためには、焼結模擬ペレット(使用済燃料を模して焼結したペレット)や実使用済燃料を用いた試験が必要となる。

### 5-2-2 金属製品の分離・回収

ANLではピーカー試験の結果から、500では製品が

表5-2-1 使用済軽水炉燃料の組成

元 素	組成( wt.% )	元 素	組成( wt.% )
U	94.725	Pu	1.0186
Np	0.071935	Am	0.059203
Cm	0.010185		
Rb	0.047745	Gd	0.024827
Cs	0.36795	Zr	0.50227
Sr	0.11268	Mo	0.48381
Ba	0.23936	Tc	0.10631
Y	0.062386	Ru	0.33803
La	0.17506	Rb	0.05793
Ce	0.34249	Pd	0.24
Pr	0.15915	Ag	0.012095
Nd	0.58248	Cd	0.020371
Pm	0.0044562	Sn	0.014005
Sm	0.11713	Se	0.0082757
Eu	0.023554	Te	0.072572

(PWR、燃焼度48000MWD/t、4年冷却を前提にORIGEN-2で計算した値)

微粉末状に塩の底部に浮遊し、750では最大3mmの金属球となって沈澱したと述べている。また、650で100meshのフィルターを通すことで、ほとんどの塩をこの沈澱から除去できたと述べている。500g規模の試験では、製品を純粋な塩化リチウムで2回洗浄することで酸化リチウムの随伴を防いだ。以上の成果は、還元された製品が細かい目のバスケットによってある程度回収できることを示しているが、粒状金属の回収率や粒の生成のメカニズムは不明であり、実用プロセスとして確立するためにはこれを明らかにする必要がある。

### 5-2-3 リチウム金属と塩化リチウムの再生

電解によるリチウム金属と塩化リチウムの再生では、陽極が650という高温で反応性の高い酸素と接触するため、その腐蝕が問題となる。このため、ANLにおける試験では陽極材料に重点が置かれ、炭素や金属などが試された。炭素を陽極に用いた場合、陽極で生成した二酸化炭素が塩化リチウム中の酸化リチウムと反応して炭酸リチウム(Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>)を形成する可能性があることを指摘している。また炭素陽極の表面では、粒界付近のみが反応して陽極からはくりした炭素の粉末が塩中に拡散してしまう。一方、白金-ロジウム合金を陽極に用いて行った模擬FPを含む模擬リサイクル塩中の酸化リチウムの電解試験では、FPのうちのテルルとヨウ素が陽極表面に析出して不導体膜を形成し、電解が進行しなくなる現象が観察されている。以上のように、酸化リチウムの電解によるリチウムと塩化リチウムの再生に関しては、電極材料や装置構成それ自体が課題となっている。工学規模の試験では電極材料として白金-ロジウムが選ばれたが、前述のテルルやヨウ素を含まない試験であったにも関わらず、金属リチウムは得られていない。多くの材料を検討対象として模擬FPを含む系で試験を行っているが、装置の最適化はまだ図られていない。

## 5 - 3 当所における研究開発の現状と今後の展開

これまでに挙げた開発課題を解決するために、電中研でも平成7年より研究に着手した。この節では、電中研における研究開発の現状と今後の展開について述べる。

はじめに、アクチニド酸化物の還元条件を評価する上で重要な、浴塩中の酸化リチウムの生成自由エネルギーについて述べる。図5-3-1に、浴塩中に溶解する酸化リチウムの電気分解を行い、その際の分解電圧から計算した生成自由エネルギーを、酸化リチウムの濃度ごとに示す。酸化リチウムの生成自由エネルギーは、濃度が低いほど小さくなる( 図中、下方に移動する )ことがわかる。図5-3-1に酸化プルトニウム(  $\text{PuO}$ 、 $\text{Pu}_2\text{O}_3$  )および酸化アメリシウム(  $\text{Am}_2\text{O}_3$  )の生成自由エネルギーもあわせて示す。酸化リチウムの生成自由エネルギーは、650 °Cでは、酸化リチウム濃度がおよそ10mol%以下で $\text{PuO}$ より、5 mol%以下で $\text{Am}_2\text{O}_3$ よりそれぞれ小さくなる( 図中、下にある )。このことから、酸化物の還元にもない発生する酸化リチウムの濃度を、5 mol%以下に抑えることにより、アクチニドの酸化物を還元できると考えられる。

この結果をもとに、現在、アクチニド酸化物の還元試験を行っており、最近の研究では、プルトニウム酸化物(  $\text{PuO}_2$  )の金属への還元が確認された。アクチニド酸化物の還元試験の結果については、今後順次報告する予定である。

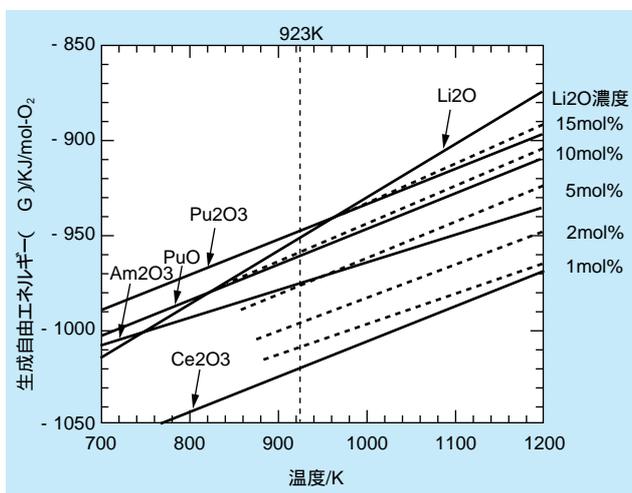


図5-3-1 酸化物の生成自由エネルギー

次に、酸化ウラン(  $\text{UO}_2$  )の還元試験 について述べる。この試験は、精度の高い化学分析を用いて正確に還元率を測定するとともに、還元の結果得られる製品の回収法を検討するために行った。この試験では、平均粒径が約25  $\mu\text{m}$ の酸化ウラン粉末を用い、27gの酸化ウラン粉末を420gの塩化リチウム中に入れ、650 °Cで10時間、金属Liと反応させた。分析は以下の2通りの方法で行い、還元率を求めた。

還元された金属ウランは塩酸に溶解するが未還元の酸化ウランは溶解しない。この酸への溶解性の差を利用し、塩酸に溶解したウラン量から還元率を求める方法。

還元で生じる酸化リチウムは塩中に均質に溶解する。この酸化リチウムを含む塩を水に溶かし、生成した水酸化リチウムの中和滴定によって、塩中の酸化リチウム濃度から還元率を求める方法。

この二つの方法で測定した還元率は良く一致し、いずれも約97%だった。残りの3%についても分析操作の際に再酸化された可能性が高いと考えられ、これにより酸化ウランがリチウムにより還元できることを実験で確認した。

製品の回収方法を検討する際に重要となるのは製品の形状であるが、この還元試験では図5-3-2に示す製品が得られた。これまでの研究と異なり、製品は細かい粒子の集まった凝集体をなしており、大きさも最大で1 mm程度だった。そこで次に、凝集体の形成がリチウムとの反応の過程や反応で生じた酸化リチウムとの相互作用で起こるか、他の原因で起こるのかを調べるための試験を行った。

試験ではまず、還元試験で生成した金属ウランを破碎して、還元前の酸化ウランと同程度の大きさの金属粉末にした。この粉末( 図5-3-3 )を純粋な塩化リチウムに入れ、金属リチウムも酸化リチウムも存在しない条件で、温度を550 °Cから700 °Cまで変化させて24時間放置し、形状の変化を顕微鏡で観察した。550 °Cでは変化が起こらず、製品は原料と同じ形状であった。これに対し650 °Cでは、製品は還元時と同様に凝集体を形成し、大

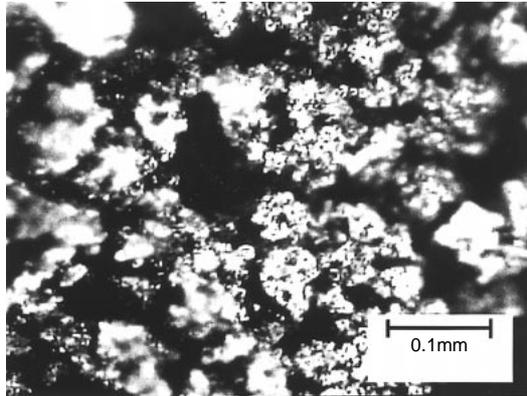


図5-3-2 還元で得られた生成物

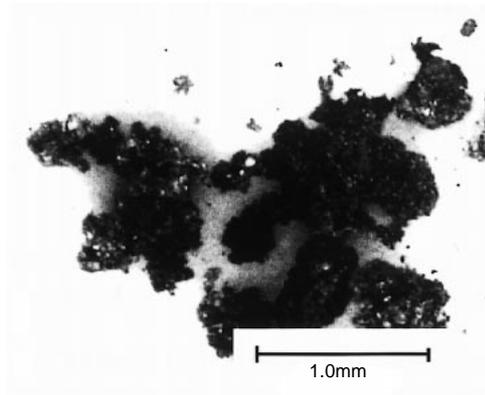


図5-3-4 650 で保持後の生成物

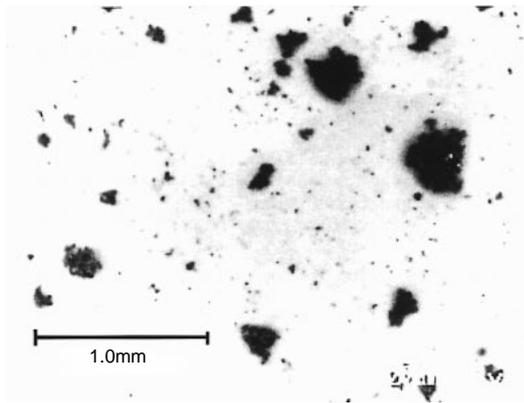


図5-3-3 還元試験で得られた金属ウランを粉末にしたもの

きさも最大で3 mm程度に達した(図5-3-4)。これらのことから、凝集が温度に依存する現象であることが分かる。この凝集体の結合は強く、水中で超音波洗浄を行っても分離しなかった。この凝集は金属を塩中に放置しただけで生じたものであり、還元の進行に伴う成長ではないことも分かった。さらに、700で行った試験では、

ルツボ内に設置したステンレスのメッシュに腐蝕が起こり、これが破損した。また、還元試験においては、金属ウランがルツボに強く付着する傾向が観察された。

以上の実験結果と、ウランの融点(約1130 )、およびウラン-鉄合金の融解温度(約720 )を考え併せると、ウランの凝集は鉄との部分的な合金化が原因である可能性が高いと考えられる。

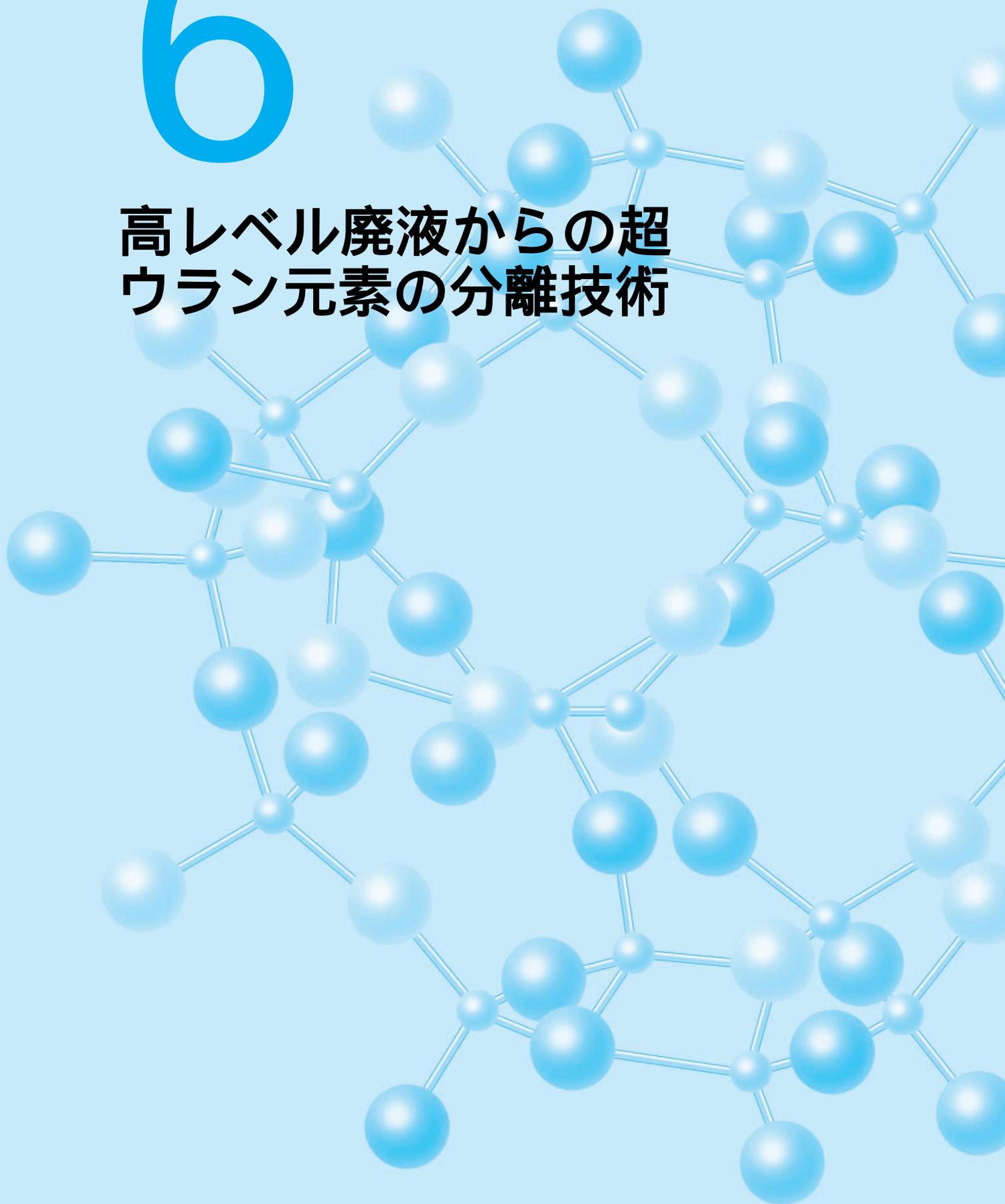
リチウム還元プロセスにおけるFPの挙動を明らかにするための試験も行っている。特に希土類元素については、浴塩中で希土類酸化物と酸化リチウムの反応試験を行い、希土類はリチウムと複合酸化物( $\text{LiREO}_2$ )を形成すること、および浴塩中の酸化リチウム濃度の増大にとともに、希土類酸化物の溶解度が大きくなることが確認された。希土類酸化物を含んだ酸化ウランの還元試験では、実際に有為な量の希土類元素が浴塩中に溶出することが確かめられた。

今後は、アクチニド酸化物の還元条件やFPの挙動を踏まえて、最適ナリチウム還元プロセスの構築に取り組む。

第 章

# 6

高レベル廃液からの超  
ウラン元素の分離技術



## 第6章 高レベル廃液からの超ウラン元素の分離技術 目次

原燃サイクル部 主任研究員 木下 賢介  
原燃サイクル部 主任研究員 倉田 正輝

6 - 1 乾式分離の前処理技術 .....	50
6 - 2 超ウラン元素の高温冶金分離技術 .....	53
6 - 3 TRU分離プロセスの物質フロー .....	57



木下 賢介（1991年入所）

乾式再処理、乾式分離プロセスに関して、還元抽出法を用いた超ウラン元素の希土類からの分離・回収技術の開発に従事。このために平成7～8年に米国ミズーリ大学へ派遣。乾式プロセスのマスフロー、溶媒量の評価など経済性評価のための基礎検討も行っている。



倉田 正輝（1988年入所）

長寿命放射能消滅特別研究室に配属後、還元抽出プロセスの基礎評価、MA含有金属燃料の特性評価を担当した。H2～4にかけてEU超ウラン元素研究所に派遣され、MA含有金属燃料の特性試験に参加した。現在は、金属燃料の挙動評価を継続する一方、乾式再処理の前処理プロセス(酸化物の還元・塩素化技術)を主担当している。

# 第6章 高レベル廃液からの超ウラン元素の分離技術

軽水炉の使用済み燃料を再処理することによって発生する高レベル廃液中には超ウラン元素( TRU )が存在し、この中には著しく長い半減期を持つ核種が含まれている。分離変換技術は、超ウラン元素を高レベル廃液から分離・回収し、高速増殖炉の燃料サイクル中に閉じ込めることを目指した技術である。高レベル廃棄物中には超ウラン元素以外にも、長半減期の核分裂生成物が存在する(表6-0-1)が、当研究所では、潜在毒性の大きさから

表6-0-1 使用済燃料1トンの再処理で発生する高レベル廃液の元素組成

(ORIGEN-IIによる計算値、PWR 48GWD/t-U、4年冷却、再処理でU、Puの99.5%回収)

### アクチノイド

	質量数	重量(g)	モル数(mol)	合計
U	234	1.37E - 01	2.92E - 04	19.73
	235	4.24E + 01	9.03E - 02	
	236	4.70E + 01	9.95E - 02	
	238	9.30E + 03	1.95E + 01	
Np	237	7.16E + 02	3.02E + 00	
Pu	238	3.27E + 00	6.87E - 03	0.22
	239	5.10E + 01	1.07E - 01	
	240	2.75E + 01	5.74E - 02	
	241	1.35E + 01	2.79E - 02	
	242	8.97E + 00	1.85E - 02	
Am	241	3.37E + 02	1.40E + 00	2.41
	243	2.46E + 02	1.01E + 00	
Cm	243	9.15E - 01	3.77E - 03	0.41
	244	9.32E + 01	3.82E - 01	
	245	4.89E + 00	2.00E - 02	
	246	9.70E - 01	3.94E - 03	

### 核分裂生成物

	重量(g)	モル数		重量(g)	モル数
Rb	473.7	5.48	Zr	4976	53.34
Cs	3646	27.01	Mo	4795	49.13
Sr	1119	12.56	Tc	1050	10.61
Ba	2370	17.25	Ru	3346	32.78
Y	617.7	6.94	Rh	575.3	5.59
La	1736	12.49	Pd	2376	22.45
Ce	3393	24.08	Ag	117.5	1.08
Pr	1579	11.2	Cd	202.9	1.82
Nd	5770	39.81	Sn	137	1.13
Pm	46.27	0.32	Se	78.88	0.98
Sm	1163	7.78	Te	715.8	5.53
Eu	231	1.51			
Gd	244.5	1.57			
Fe	3500	62.67	(腐食生成物)		
Na	12650	550.24	(溶媒洗浄剤)		

まず超ウラン元素を分離の対象と考え研究を進めている。

超ウラン元素を高レベル廃液から分離・回収するために、乾式再処理技術と同様に溶融塩と液体金属を用いる高温冶金法を用いた分離プロセスを構築し、この実証を目的として研究開発を進めている。本プロセスでは、高レベル廃液に含まれるそれぞれの超ウラン元素について99%以上の回収を目標としている。高レベル廃液中には表6-0-1に示すように重量で超ウラン元素の約10倍の希土類元素( RE )が含まれているが、超ウラン元素と希土類元素は化学的性質が似ているために分離が困難である。一方、回収した超ウラン元素を含有する金属燃料の健全性の観点からは、できるだけ希土類元素を除去することが望ましい。そこで本プロセスでは、回収物に混入する希土類元素を超ウラン元素と同量以下にすることを目標としている。

当研究所の乾式分離プロセスを図6-0-1に示す。まず、高レベル廃液を高温冶金プロセスに導入するために、

高レベル廃液を酸化物に転換する脱硝・固化工程  
得られた酸化物を塩化物に転換する塩素化工程  
の2つの工程があり、これらを合わせて前処理工程と呼ぶ。前処理工程で塩化物に転換された元素群は、

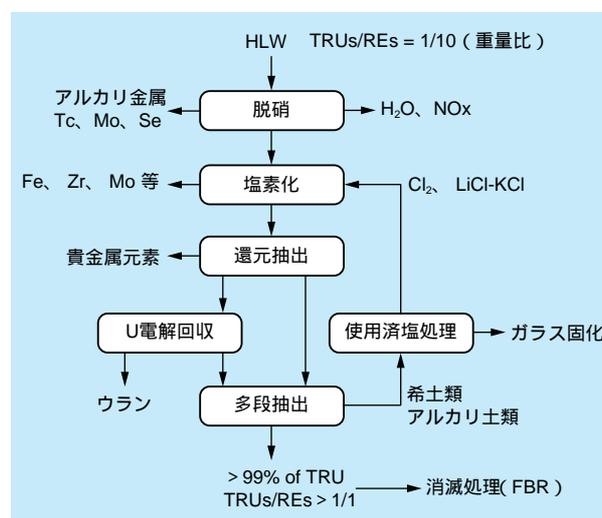


図6-0-1 乾式分離プロセス

ウランより貴(金属としてより安定)な金属群を、リチウムを還元剤として塩化物相から液体カドミウム(Cd)相中へ抽出して分離する還元抽出工程

ウラン、超ウラン元素を、リチウムを還元剤として多段抽出によって塩化物相から液体ビスマス(Bi)相中へ回収し、希土類元素等から分離する多段抽出工程以上2つの分離工程で処理される。さらに、分離工程から発生する使用済みの塩化物は、

希土類元素やアルカリ土類金属を電解によって液体鉛(Pb)中に回収・除去した後、還元抽出工程と多段抽出工程で用いる還元剤を電解で溶媒金属(カドミウ

ム及びビスマス)中に回収する使用済み塩処理工程で処理され、ここで発生する塩素ガスおよび精製された塩化物は、前処理工程にリサイクルされる。これにより、二次廃棄物の発生量が少ない処理プロセスを構築することが可能となる。

この章では乾式分離プロセスについて、その原理やこれまで得られた成果を紹介する。6-1では脱硝・固化工程と塩素化工程を合わせた前処理技術について、6-2では分離技術について述べる。さらに、これまでの研究成果をもとに、本プロセス全体の物質フローを評価した結果を6-3に示す。

## 6 - 1 乾式分離の前処理技術

乾式分離プロセスの前処理技術について、その成立性を明らかにするために、当研究所で模擬物質を用いた試験を実施した。以下に脱硝・固化と塩素化の工程について、それぞれの原理と試験から得られた成果を示す。

### 6-1-1 脱硝・固化工程

高レベル廃液は、核分裂生成物などが硝酸に溶解したものである。これを乾式法で処理するためには、まず脱硝・固化して酸化物に転換する必要がある。当研究所では、二次廃棄物の発生量が少なく、乾式分離法に適した無水の酸化物が得られる利点に着目し、直接加熱して脱硝・固化する方法を採用した。

模擬高レベル廃液の加熱試験では、約100 で水分や過剰の窒素酸化物(NO<sub>x</sub>)が揮発し、金属元素は硝酸塩を形成した。さらに温度上昇に伴って硝酸塩が分解し、約700 以上で完全に脱硝した。しかし、アルカリ元素は脱硝されると化学的に不安定な酸化物を形成するため、約600 以上の温度域では脱硝反応の進行に伴い、アルカリ元素が多量に揮発したり容器と反応したりする現象が見られた。表6-1-1に主要な元素の硝酸塩の熱分析から求めた脱硝温度と脱硝後に形成される酸化物の化学形態をまとめて示す。アルカリ元素の硝酸塩は約300 で溶融し、約300~600 の温度域で安定な硝酸溶融塩を

表6-1-1 高レベル廃液に含有される主要な元素の硝酸塩の脱硝温度

硝酸塩	硝酸塩から酸化物に転換される温度( )	酸化物の化学形	参考文献
NaNO <sub>3</sub>	- #	Na <sub>2</sub> O	[ 8 ]
CsNO <sub>3</sub>	- #	Cs <sub>2</sub> O	[ 8 ]
Sr(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	> 400	SrO	[ 8 ]
Ce(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ·6H <sub>2</sub> O	> 280	CeO <sub>2</sub>	[ 8 ]
Nd(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ·6H <sub>2</sub> O	> 470	Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	[ 8 ]
Zr(NO <sub>3</sub> ) <sub>4</sub> ·2H <sub>2</sub> O	> 250	ZrO <sub>2</sub>	[ 8 ]
Ru(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	> 280	RuO <sub>2</sub>	[ 8 ]
Rh(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	> 500	Rh <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	[ 8 ]
Pd(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	180 - 825	PdO	[ 8 ]
Fe(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ·9H <sub>2</sub> O	> 160	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	[ 8 ]
UO <sub>2</sub> (NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	> 300	UO <sub>2</sub>	[ 9 ]
NpO <sub>2</sub> (NO <sub>3</sub> )	> 300*	NpO <sub>2</sub>	[ 9 ]
Pu(NO <sub>3</sub> ) <sub>4</sub>	> 300	PuO <sub>2</sub>	[ 9 ]
Am(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	> 356	AmO <sub>2</sub>	[ 10 ]
Cm(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	> 450	CmO <sub>2</sub>	[ 10 ]

\* 推定値

# アルカリ硝酸塩は脱硝されず、硝酸塩として揮発する。

形成する。一方、他の元素の硝酸塩はアルカリ元素の硝酸塩より不安定で、いずれも500 以下で脱硝し酸化物に転換する。

図6-1-1にこれらの性質を利用した脱硝・固化プロセスのフローを示す。約100 で脱水し、さらに約500 で加熱することで、アルカリ元素以外の元素を完全に脱硝・固化する。次に、得られた脱硝物を室温に冷却した後、水洗浄処理する。この際、アルカリ元素の硝酸塩は水溶性であり、他の元素の酸化物は水に不溶であることを利用して、アルカリ元素を洗浄水中に溶解

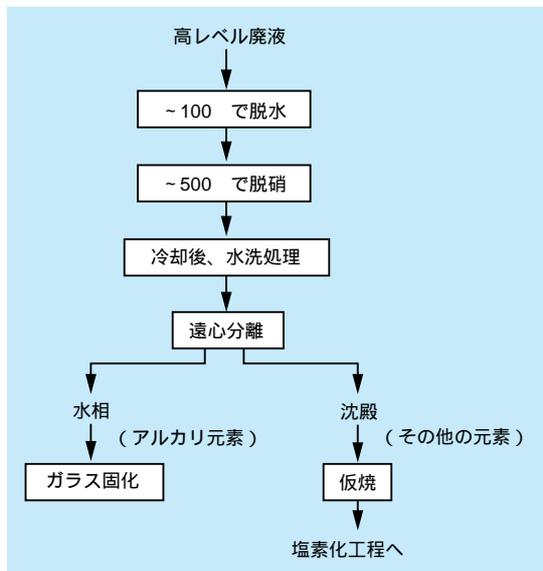


図6-1-1 乾式分離法における脱硝・固化プロセスフロー

させ、水溶液と沈殿を遠心分離法で分離する。沈殿は約500 で仮焼して無水物にする。

このプロセスでは、脱硝反応においてアルカリ元素の硝酸溶融塩が残留する。これは熱媒体や金属の焼き入れ溶剤として工業的に広く用いられ、ステンレス鋼との両立性に優れていることから、本脱硝プロセスではステンレス鋼容器を用いることができる。

模擬高レベル廃液を図6-1-1の脱硝・固化プロセスに従って処理を行い、本プロセスにおける各元素の分離能を評価した結果を示す。試験では、高レベル廃液中に含

まれる元素のうちアクチニド以外の主要な26元素を用いて、模擬高レベル廃液100ccを調製した。この溶液は、ピューレックス工程から排出される濃縮後の高レベル廃液を模擬して元素濃度を調整したものである。図6-1-1に従って、この模擬高レベル廃液を100 で1時間脱水した後に、500 で1時間脱硝した。さらに脱硝物を水洗浄した後に、沈澱を500 で1時間仮焼した。図6-1-2に試験後の水溶液、酸化物、及び揮発物への各元素の分配割合を示す。ルテニウム以外では試験前後の物質収支は極めて良好であった。各元素の揮発率はいずれも0.2%以下に抑制され、本脱硝プロセスではほとんど揮発物が発生しないことが確認された。水相中には99%以上のアルカリ元素に加え、アルカリ元素と水溶性の複合酸化物を形成するモリブデン、セレン、クロムの相当量が回収された。また、本試験でテクネチウムの模擬物質として用いたレニウムの90%以上が同様に水相に回収された。

一方、酸化物中には、アルカリ土類元素、希土類元素、白金族元素、ジルコニウム、鉄、ニッケル、テルルのほぼ全量が回収された。これらの元素の水相中の存在量はいずれもICP発光分析\*1の検出限界以下と極めて小さかった。アクチニドの硝酸塩や酸化物は、希土類元素と性質が類似していることから、アクチニドも

\*1 ICP発光分析：高周波の放電プラズマ中に不活性気体とともに溶液状の試料を導入して行う発光分析法。高感度で多元素同時測定が可能である。

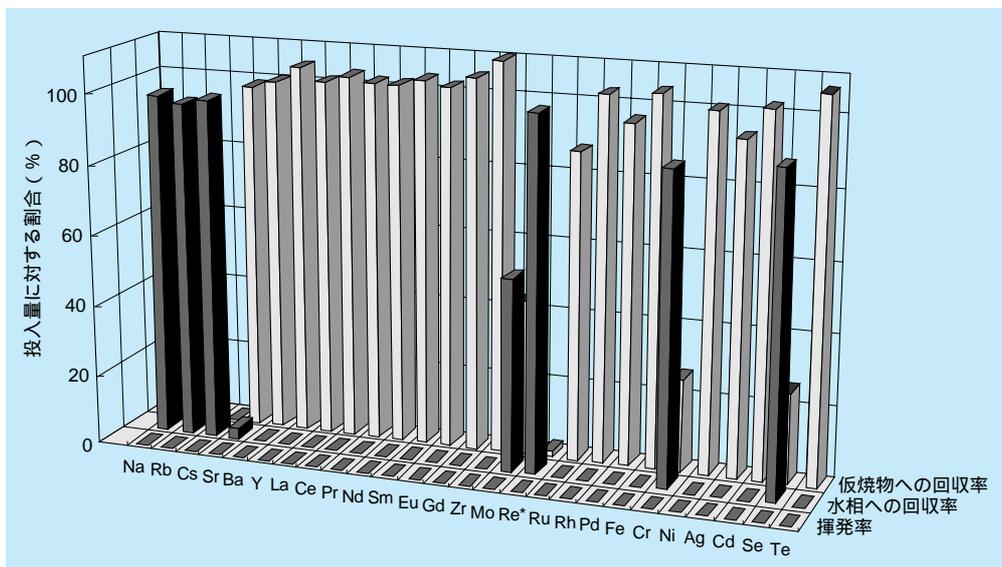


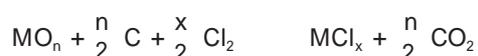
図6-1-2 模擬高レベル廃液の脱硝試験後の各元素の揮発率、水相への回収率、仮焼物への回収率

酸化物として効率的に回収されると考えられる。

今後は、超ウラン元素やアルカリ洗浄廃液などを本脱硝・固化プロセスで処理し、本プロセスが実高レベル廃液にも適用できることを明らかにする。

## 6-1-2 塩素化工程

脱硝・固化工程からの脱硝物は酸化物の形態で供出される。水分の混入をさけるために、脱硝物の塩化物への転換法として塩素ガスを直接反応させる塩素化法を採用した。この塩素化法の原理を化学反応式で示すと、



となる。反応が進行するためには、上記の式の反応の自由エネルギー変化が負になる必要がある。表6-1-2に、高レベル廃液中に存在する主要な元素について上式の反応の自由エネルギー変化をまとめる。いずれの元素についても反応の自由エネルギーは負の値をとり、塩素化反応が進行すると予想される。

当研究所のプロセスでは、塩素化反応を効率的に行うために、熔融塩中に酸化物を投入し塩素ガスを吹き込む塩浴塩素化法を採用している。塩浴塩素化法では、反応に塩浴が介在することで未反応の酸化物の残留やオキシ塩化物などの中間生成物の形成を抑制することができる。また、一部の揮発性塩化物の揮発が抑制されることが期待できる。

これまでに模擬物質を用いた試験により、塩浴塩素化

表6-1-2 高レベル廃液に含有される主要な元素の酸化物を塩化物に転換する反応のギブスエネルギー変化（900K、式に基づく）

酸化物の形態	ギブスエネルギー変化 (KJ/eq.mol. - Cl <sub>2</sub> )
Na <sub>2</sub> O	- 231.3
Cs <sub>2</sub> O	- 376.3
SrO	- 383.8
Ce <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	- 240.9
Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	- 229.6
ZrO <sub>2</sub>	- 117.9
*RuO <sub>2</sub>	- 242.4
Rh <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	- 219.8
PdO	- 239.7
FeO	- 213.6
U	- 114.4
Np	- 124.5
Pu	- 180.3

\* Ruは金属に還元される。

法で、ほぼ100%の塩素化率が達成できること、反応条件として700、4時間以上が必要であることが明らかになった。図6-1-3に代表的な結果として、模擬高レベル廃液の脱硝物を塩浴塩素化法で塩素化した試験の物質収支を示す。試験では、100ccの模擬高レベル廃液を脱硝・固化した後に得られた約8gの脱硝物を50gの塩化リチウム・塩化カリウム塩浴中に添加し、温度を700に保って、100cc/分の塩素ガス気流を塩浴中に導入することで塩素化を行った。反応時間は8時間とした。また、反応容器としてパイログラファイトを使用した。前節で示したように、脱硝・固化工程においてアルカリ元素とレニウムはほとんど水相中に分離されるため、塩素化試験後の塩浴中あるいは揮発物中にアルカリ元素とレニウムはほとんど検出されない。その他の元素は、塩化物に転換され、塩浴中あるいは揮発物中に回収された。また、オキシ塩化物などの未反応物はほとんど残留しなかった。塩浴塩素化により、アルカリ土類元素、希土類元素、白金族、ニッケルはほとんどが塩浴中に回収されるが、セレン、モリブデン、ジルコニウム、鉄、テルル、クロムなどは多量に揮発した。従って塩浴塩素化法を用いてもこれらの元素の揮発は抑制されないことがわかった。

ウランについては、上に示した模擬高レベル廃液の脱硝物の塩素化試験と同じ条件で、別途単元素の試験を実施した。これまでに、塩素化率88%、揮発率1%の結果を得ている。この試験では、一部のウラン(11%)がオキシ塩化物として残留したことから、現在、その塩素化率を向上させる反応条件を検討中である。

塩素化工程では、上に示したように一部の塩化物が揮発し、ウランなどのアクチノイドがこれに微量に含有される可能性があるため、揮発性塩化物を捕集する方法について検討している。回収した揮発性塩化物を乾式分離の主工程に直接戻すことができる利点から、塩化リチウム・塩化カリウム熔融塩の塩浴をトラップとして用いる方法を考案した。これまでに基礎データとして、塩化リチウム・塩化カリウム共晶塩からのジルコニウム、モリブデン、鉄、ウランの塩化物の揮発速度を測定している。

これらの知見を基に構築した塩素化工程の概念図を図6-1-4にしめす。塩浴塩素化法の連続操業ユニットがロックウェル社(当該部門は現在はボーイング社に移籍：アメリカ)によって開発されており、当研究所の塩素化

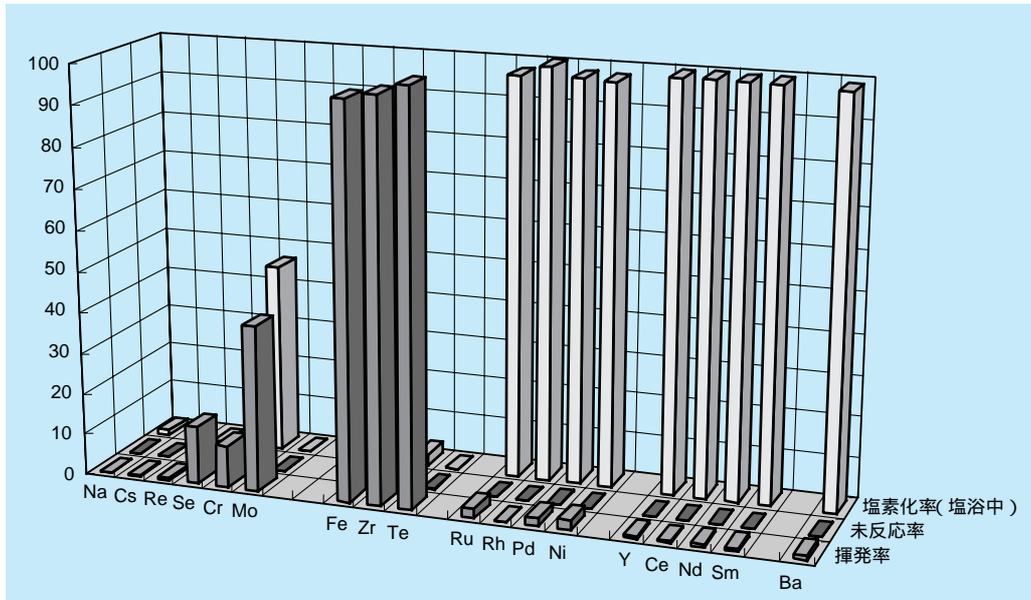


図6-1-3 模擬高レベル廃液の脱硝物を用いた塩浴塩素化試験後の各元素の揮発率、塩素化率（塩浴中に回収）、未反応率

工程でも同様の装置を用いることができると考えられる。本装置では、塩浴の下部から塩素ガスとアルゴンガスをそれぞれ塩浴中に吹き込む。アルゴンガスは酸化物粉末のキャリアガスとして用いられる。塩素化反応により、酸化物は塩化物に転換されて塩浴中に溶解するため、これを装置の上部より回収する。発生した揮発性塩化物は塩浴トラップで回収する。塩素化炉に適宜塩化リチウム・塩化カリウム塩を投入することにより、本装置を用いて連続操作が可能となる。

今後は、実際に超ウラン元素や実高レベルを用いた塩浴塩素化試験を実施するとともに、塩素化プロセス装置を設計し、乾式分離に適した塩素化技術を確立する。

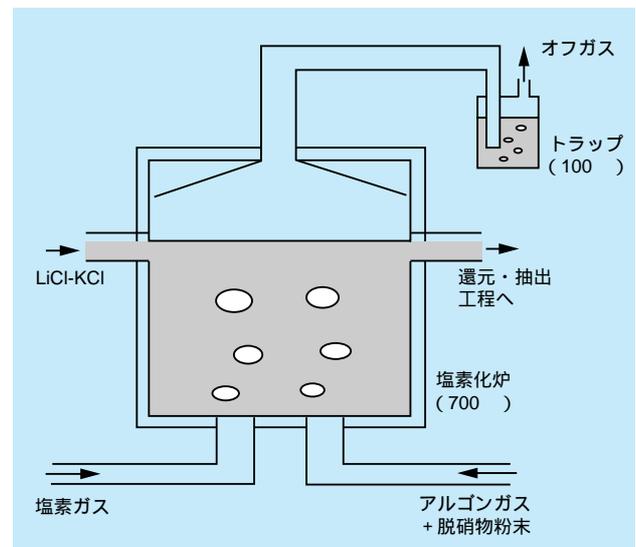


図6-1-4 塩素化工程の概念図

## 6 - 2 超ウラン元素の高温冶金分離技術

図6-0-1に示した分離プロセスのうち、高温冶金技術を応用した各工程が成立することを明らかにするために、当研究所内の試験設備を用いてコールド実験を行うとともに、京都大学原子炉実験所でウランを用いた試験、ミ

ズ・リ大学研究用原子炉施設(米国)で超ウラン元素を用いた試験を実施してきた。以下にそれぞれの工程の原理と目標、およびこれまでの試験から得られた成果を示す。

## 6-2-1 還元抽出工程

還元抽出工程では、ウラン、超ウラン元素、およびFPの塩化物を含む塩化リチウム - 塩化カリウム/カドミウム系で、リチウムを還元剤として添加することにより、塩相中の塩化物  $MCl_n$  を以下の反応によって、金属  $M$  に還元しカドミウム相中に抽出する。



高レベル廃液中に含まれる元素のうち、塩素化工程で塩化物に転換された元素は、塩化リチウム - 塩化カリウムを主成分とする熔融塩中に溶解している。この中にはウラン、超ウラン元素のほかに、核分裂生成物である希土類元素( RE )、白金族元素、ジルコニウム( Zr )などの遷移金属や、腐食生成物である鉄( Fe )が多量に含まれている。白金族や鉄、ジルコニウムは、ウランや超ウラン元素に比べて塩化物の生成自由エネルギー - の絶対値が小さい。これは相対的に金属に還元されやすく、液体金属相中に抽出されやすいことを示している。還元抽出工程では、このような化学的性質の違いを利用して、ウランより貴(金属としてより安定)な金属群を選択的に金属に還元しカドミウム相中に抽出することによって、塩相中に残留するウランや超ウラン元素から分離する。これまでの試験から、この工程で分離の対象となる元素のうち、最もウランと分離しにくいジルコニウムについても1段の還元抽出でウランとの間で十分な分離が可能であることがわかっている。しかしながら、ジルコニウム、鉄などはカドミウムに対して溶解度をほとんど持たないことから、物質収支の良好な試験結果は得られていない。このため今後さらに検討が必要である。なお、塩素化工程で揮発する塩化物をそのまま除去(廃棄)することが可能である場合には、本工程で分離の対象となるのは、ほぼ貴金属元素に限られるため分離が非常に容易になるとともに、溶媒カドミウムの量、還元剤リチウムの量の低減を図ることができる。本工程でカドミウム合金となった白金族元素などは、カドミウムの蒸留によって分離回収され金属廃棄物となる。一方、蒸留したカドミウムは還元抽出工程の抽出溶媒として再利用される。

## 6-2-2 多段抽出工程

還元抽出工程で塩中に残留したウラン、超ウラン元素、希土類元素やアルカリ土類は多段抽出工程に送られる。ここでは、前工程と同様の還元抽出を多段階で実施することにより、ウラン、超ウラン元素を金属相へ抽出しその他の元素から分離し回収する。

本工程は、4-3に示した乾式再処理の超ウラン元素回収プロセスと同様の工程である。アルゴン国立研究所(ANL)で研究開発がなされてきた乾式再処理における超ウラン元素の回収プロセスではカドミウムを溶媒、リチウムあるいはウランを還元剤として多段抽出を行う方法が考えられている。一方、当研究所では溶媒金属としてさらに高い分離性能を持つビスマス( Bi )を選び、分離試験を行ってきた。この試験は実際に超ウラン元素を用いることが必要であるため、当研究所内では実施することができず、ミズ - リ大学との共同研究として同大研究用原子炉施設で実施した。

表6-2-1に塩化リチウム - 塩化カリウム/カドミウム系と塩化リチウム - 塩化カリウム/ビスマス系での各元素の分離係数を示す。ここではネオジム( Nd )を基準とした。ネオジムは希土類のうちで高レベル廃液中に最も多量に含まれる元素である。ここで、ある金属  $M$  の分離係数  $SF(M)$  は、モル分率  $X$  を用いて、

$$SF(M) = \{ X(M \text{ in salt}) / X(M \text{ in metal}) \} / \{ X(Nd \text{ in salt}) / X(Nd \text{ in metal}) \}$$

で定義され、この数字が小さいほどネオジムに比べて

表6-2-1 Ndに対するU、TRU、希土類元素の分離係数

	LiCl-KCl/Bi 773K	LiCl-KCl/Cd 723K
U	0.00065	0.016
Np	0.0051	0.045
Pu	0.0076	0.056
Am	0.015	0.067*
Pr	0.99	0.93
Ce	0.89	1.1
Nd	1.0	1.0
La	2.7	2.9
Gd	11	4.0
Y	630	120

(\* :  $\log D(Nd) = 0$  の場合)

金属相中に抽出されやすいことを示している。この表6-2-1から、カドミウムを溶媒として用いる場合に比べて、ピスマスを用いたほうが超ウラン元素の分離係数が小さく、すなわち超ウラン元素と希土類元素の分離が容易であることが分かる。

しかし、ピスマスを溶媒として用いても、1段の還元抽出では超ウラン元素の99%以上を回収し、かつ付随する希土類元素量を超ウラン元素と同量以下にするという分離目標を達成することは不可能であり、還元抽出を多段階で実施することが必要である。抽出を多段階で実施する方法として、図6-2-1に多回抽出法と向流多段抽出法の2通りを示す。多回抽出に比べて向流多段抽出法の方が高い分離効率を期待できるが、装置の開発が難しく、また実験での超ウラン元素の取扱量が限られていることから、この方法で試験を実施することは容易ではない。そこで分離試験は多回抽出法で実施し、向流多段抽出法については計算による予測を行った。

多回抽出法による実験では、塩化リチウム - 塩化カリウム/ピスマス系で500において、1段目として4回の抽出を行った後、回収物をピスマスから新しい塩化リチウム - 塩化カリウムに抽出し、さらに2段目として6回の抽出を行った。塩相中の超ウラン元素と希土類元素の初期組成は、高レベル廃液中の初期組成とほぼ等しいものであった。各段で超ウラン元素の各々99.5%以上を回収することを目標とし、還元剤の添加量は、各元素の分配係数が各回でおおむね等しくなるように調整した。表6-2-2にこの試験での超ウラン元素と希土類元素の回収率、および回収物中の超ウラン元素と希土類元素の重量比を示す。ネプツニウム、プルトニウム、アメリカシウ

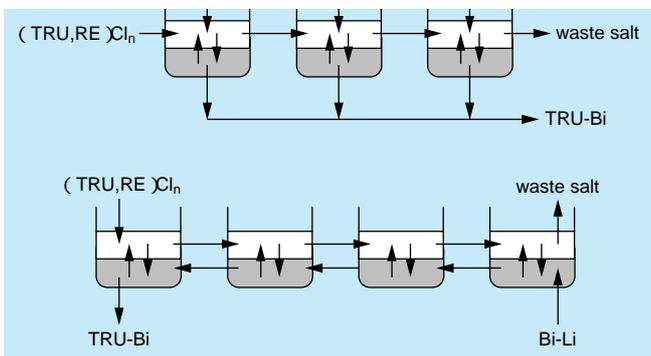


図6-2-1 (a)多回抽出法と(b)向流多段抽出法の概念図

表6-2-2 LiCl-KCl/Bi系500 における多回抽出実験でのTRUの回収率と回収物中のTRUとREの重量比

		目標値	実験結果
回収率	Np	99%	99.8%
	Pu	99%	99.7%
	Am	99%	99.4%
TRUとREの重量比( TRU/RE )		1/1 ( HLLW中1/9.5 )	2.01/1 ( 実験前1/9.9 )

(注) 4回多回抽出後に、Bi中の回収物を新しい塩中に抽出し、更に6回多回抽出により回収した試験結果

ムの回収率はいずれも99%を超え、回収目標を達成した。また、回収物中の超ウラン元素と希土類元素の重量比は2.01であり、分離目標の1以上を達成した。この試験結果により、多回抽出法で当研究所の超ウラン元素元素の分離・回収目標が達成可能であることを実証した。

向流多段抽出については、平衡状態での抽出操作を仮定すると、分離係数を基にした計算で予測が可能である。ここではアメリカシウムを99%回収する際の他の元素の回収率を、分離係数の関係から計算した。図6-2-2には、2～5回多回抽出および2～5段の向流多段抽出を用いた場合の回収物中における超ウラン元素と希土類元素の重量比の計算結果を示す。多段抽出の塩相の初期組成は、高レベル廃液中の超ウラン元素と希土類元素の組成に等しいとした。

この計算結果から、多回抽出では4回以上で各超ウラン元素の99%以上を回収し、希土類元素の混入量を同量以下にするという目標を達成できるが、目標に対する余裕が低いことが分かる。一方、向流多段抽出では、多回抽出を大きく越える分離能力が期待でき、実

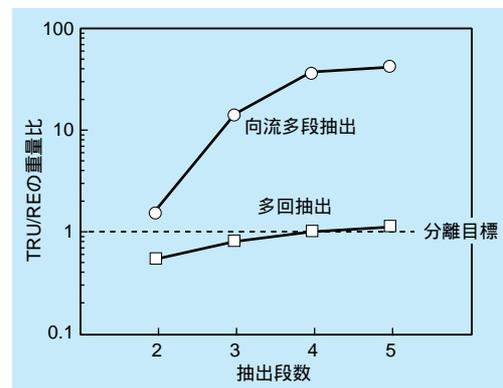


図6-2-2 LiCl-KCl/Bi系で向流多段抽出、多回抽出によってAmを99%回収した場合の回収物中のTRUとREの重量比(計算値)

際分離プロセスでは向流多段抽出を採用することが望ましい。高温の溶融塩・液体金属2相系での遠隔操作・連続運転が可能な向流抽出装置の開発が今後の課題である。また多段抽出で得られた超ウラン元素とピスマスの合金から超ウラン元素を取り出す方法として、

- ・超ウラン元素を固体陰極へ電解回収する
- ・超ウラン元素を(電解もしくは還元抽出で)ピスマスからカドミウムへ移送した後、カドミウムを蒸留するなどの方法が考えられ、これらについては今後検討を行う。

乾式分離プロセスの一つのオプションとして、多段抽出を実施する前にウランの電解回収を行うことを検討している。乾式再処理と異なり、乾式分離で対象とする高レベル廃液中のウラン量は少ないが、それでも超ウラン元素の合計量の3倍以上含まれている。従って電解法でウランを回収した後多段抽出を実施すれば、多段抽出での金属溶媒や還元剤の取り扱い量を低減することが可能となる。乾式分離プロセスで想定している電解工程は450 ~ 500 で操業され、乾式再処理の主工程であるウランの電解工程と原理的には全く同じものである。図6-2-3に当研究所で測定した塩化リチウム - 塩化カリウム系での超ウラン元素、希土類元素各元素の塩中濃度と酸化還元電位の関係を示す。酸化還元電位が貴である(零に近い)ほど金属に還元されやすく、卑である(マイナスの値が大きい)ほど塩化物として安定であることを示している。ウランは超ウラン元素、希土類元素と比べて酸化還元電位が大きく離れているので、陰極電位を適切に制御することによりウランを高い純度で固体陰極に析出回収することができる。この電解工程を採用するか

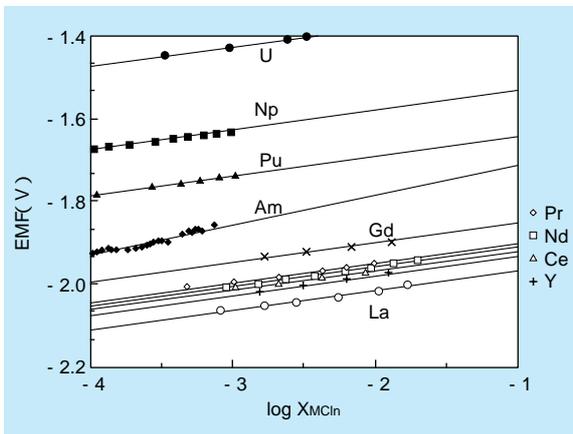


図6-2-3 450 におけるLiCl-KCl溶融塩中のMCl<sub>n</sub>濃度と起電力(EMF)の関係

どうかは、電解の操業時間、抽出装置の規模縮小の効果、機器台数の増加の影響などを総合して、経済性の観点から判断する必要がある。

### 6-2-3 使用済み塩処理工程

多段抽出工程から発生する使用済みの塩化物をそのまま廃棄すると、多量の二次廃棄物が発生することになる。さらに、サイクルごとに新たな塩化リチウム - 塩化カリウム共晶塩や還元剤のリチウム金属を外部から添加しなければならず、経済性の観点からも問題である。そこで、この乾式分離プロセスでは、図6-2-4に示すような使用済み塩処理工程により、使用済み塩化物中のアルカリ土類および希土類元素を除去して塩化物を再利用するとともに、還元剤と塩素ガスもリサイクルする。

この工程は、液体鉛を陰極としてFPを電解回収する工程と、還元抽出工程のカドミウムおよび多段抽出工程のピスマスを陰極として還元剤となるリチウムをそれらの金属相中に電解回収する工程、以上の3つの工程からなる。これまでにアルカリ土類や希土類を高濃度に鉛中に電解回収できること、回収されたアルカリ土類や希土類元素を酸化物のスラグとして鉛から分離できることを確認している。また、いずれの工程においても陽極からは塩素ガスが発生するが、これらは前処理の塩素化工程において再利用される。

今後は、次節で示す物質フロ - の精度向上のために、想定される操業条件での電解試験を実施し、アルカリ土類、希土類元素の鉛中への回収率(廃棄率)や、溶媒塩中のリチウムやカリウムが廃棄物に随伴する割合を明らかにする。

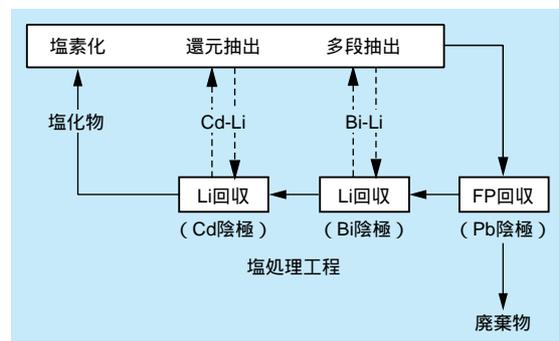


図6-2-4 塩処理工程(塩化物と還元剤のリサイクル)

## 6-3 乾式分離プロセスの物質フロー

乾式分離施設は、年間で200日間の操業により800トンの軽水炉使用済燃料を処理する湿式再処理工場とともに稼働することを想定している。ここでは使用済燃料1トンから発生する高レベル廃液(約500リットル)を1バッチとして、1日に4バッチの処理を行う。この条件を満たすために、前2項で示したこれまでの試験の成果をもとに計算した乾式分離プロセスの物質フローを図6-3-1に、それぞれの工程ごとに分離される各元素の割合を表6-3-1に示す。このプロセスは溶媒として使用される共晶塩、ピスマス、カドミウム、鉛が理想的には全量再利用できることが大きな特徴であり、アルカリ土類などのFPを鉛中に電解回収する際にリチウムの一部が廃棄される以外は、溶媒成分から発生する二次廃棄物は極めて少量に抑さえることができる。なお、リチウムはガラス固化の際に母剤として添加される成分であることから、有効に利用していると考えられる。また各

工程から発生する塩素ガスも塩素化工程において利用できる。

ここで示した物質フローで、これまでの試験結果をもとに、各元素の塩中濃度や金属中の濃度を設定した。以下にそれらについて説明する。

表6-3-1 各々の工程で分離・回収される各元素の割合

	脱硝分離 (水溶物)	脱硝揮発 (酸化物)	還元抽出 分離 (Cd合金)	多段抽出 回収 (Bi合金)	塩処理 分離 (Pb合金)
Mo	50		50		
Se	85		15		
Re(Tc)	98		2		
Ru		25	75		
Rh, Pd, Ag			100		
Fe, Zr, Te 等			90	10	
U			<1	>99	
TRU				>99	<1
RE				<10	>90
Sr	3				97
Ba	0				100
アルカリ金属	99				1

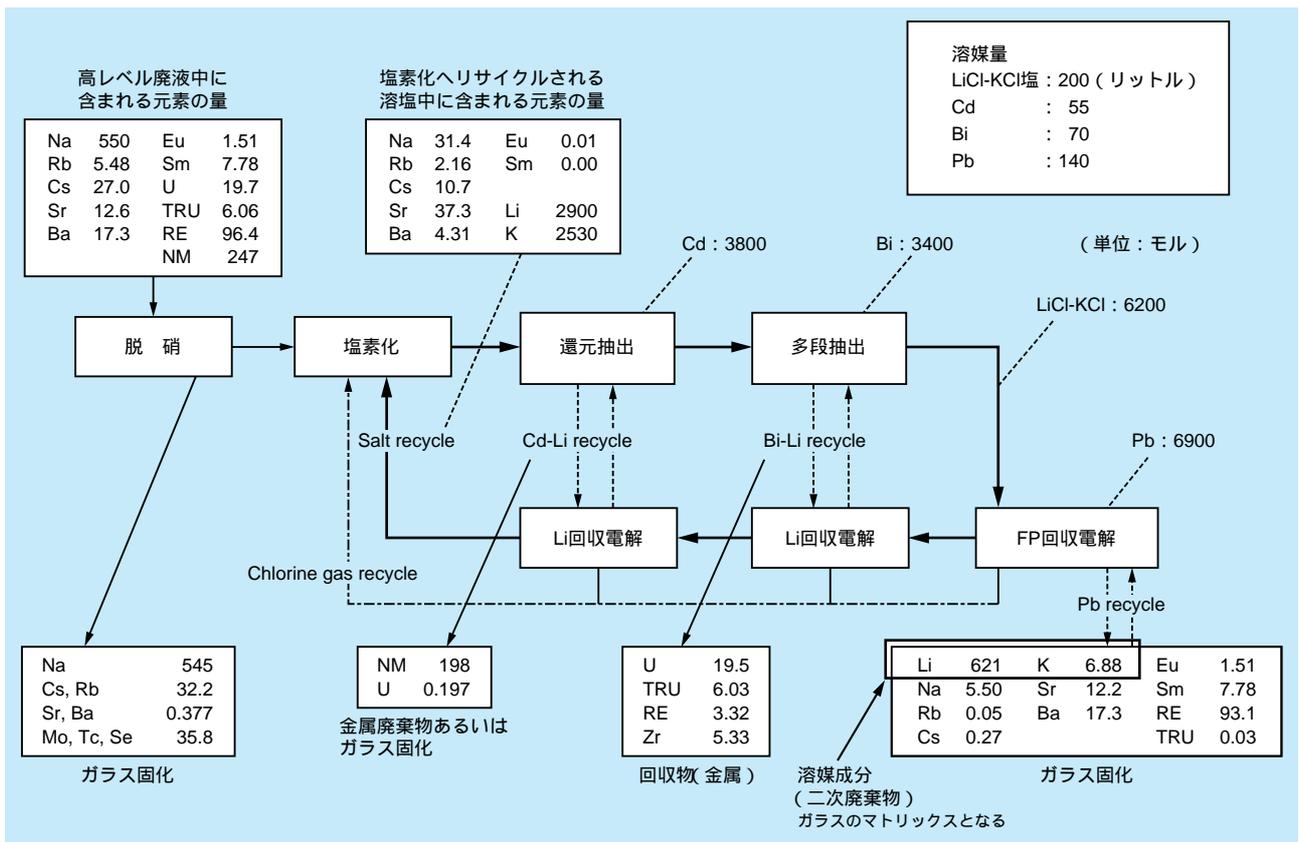


図6-3-1 乾式分離プロセスのマスフロー

脱硝工程では、アルカリ金属の99%が硝酸塩として、またテクネチウム(Tc)の98%、セレン(Se)の85%、モリブデン(Mo)の50%が複合酸化物として水相へ移行し、他の元素と分離される。ルテニウム(Ru)は25%が揮発し廃棄されるものとする。これらは酸化物に転換した後、ガラス固化する。他の元素は次の塩素化工程に送られる。

塩素化工程では、表6-3-1に示す割合で塩化物が揮発し、これらは熔融塩を用いたトラップで捕集される。ウラン、ネプツニウムの揮発が非常に少ない場合には、この塩はそのまま廃棄することが可能であるが、現状では塩素化の際のネプツニウムの揮発挙動が不明であるため、この塩は全量還元抽出工程に送るものとした。塩素化工程での超ウラン元素の揮発量に関しては、今後試験で明らかにする。

還元抽出工程で貴な(金属としてより安定な)金属群を取り込んだカドミウムは、蒸留によって貴な金属群の廃棄物と分離された後、再利用される。ここでは抽出される貴金属FPのカドミウム中の合計濃度の上限を5mol%と設定して、カドミウム量を約55リットルとした。貴な金属群のうち、ジルコニウムは90%、その他は全量カドミウム中に抽出されるものと仮定する。このとき、ウランは99%、超ウラン元素、希土類元素、アルカリ土類は全量が塩化物のまま次の工程に移るものとした。カドミウムの蒸留については今後の検討課題であるが、ここではカドミウムは貴金属FPと完全に分離され100%再利用できるものとする。

溶媒として用いられる塩化リチウム-塩化カリウム共晶塩量を見積もる際の制限として、多段抽出工程で塩化物中のウラン、超ウラン元素、希土類元素の塩中合計濃度が2mol%を越えないこととし、塩化物量を約200リットルとした。このときウラン、超ウラン元素、希土類元素の中で最も濃度が高いネオジム(Nd)がおよそ0.7mol%になる。塩中濃度が1mol%以下であれば、希薄な領域で測定した分配挙動にその元素が従うものとして取り扱えると考えられる。

多段抽出工程で溶媒となるピスマス量は、抽出された全金属のピスマス中の合計濃度が1mol%を越えないことを条件として、710kg、約70リットルとした。これまでの検討結果から、抽出されたウラン、超ウラ

ン元素、希土類元素の合計濃度が1mol%以下であればピスマス中での金属間化合物の形成を抑制することができると考えられる。抽出後の超ウラン元素などはピスマスから完全に分離可能で、ピスマスは100%リサイクルできるものとする。

鉛の必要量は、アルカリ土類、希土類元素を鉛中に10mol%程度まで抽出できるとして1400kg、約140リットルとした。これまでの試験から鉛中に10mol%程度までは十分に電解可能であると考えられる。

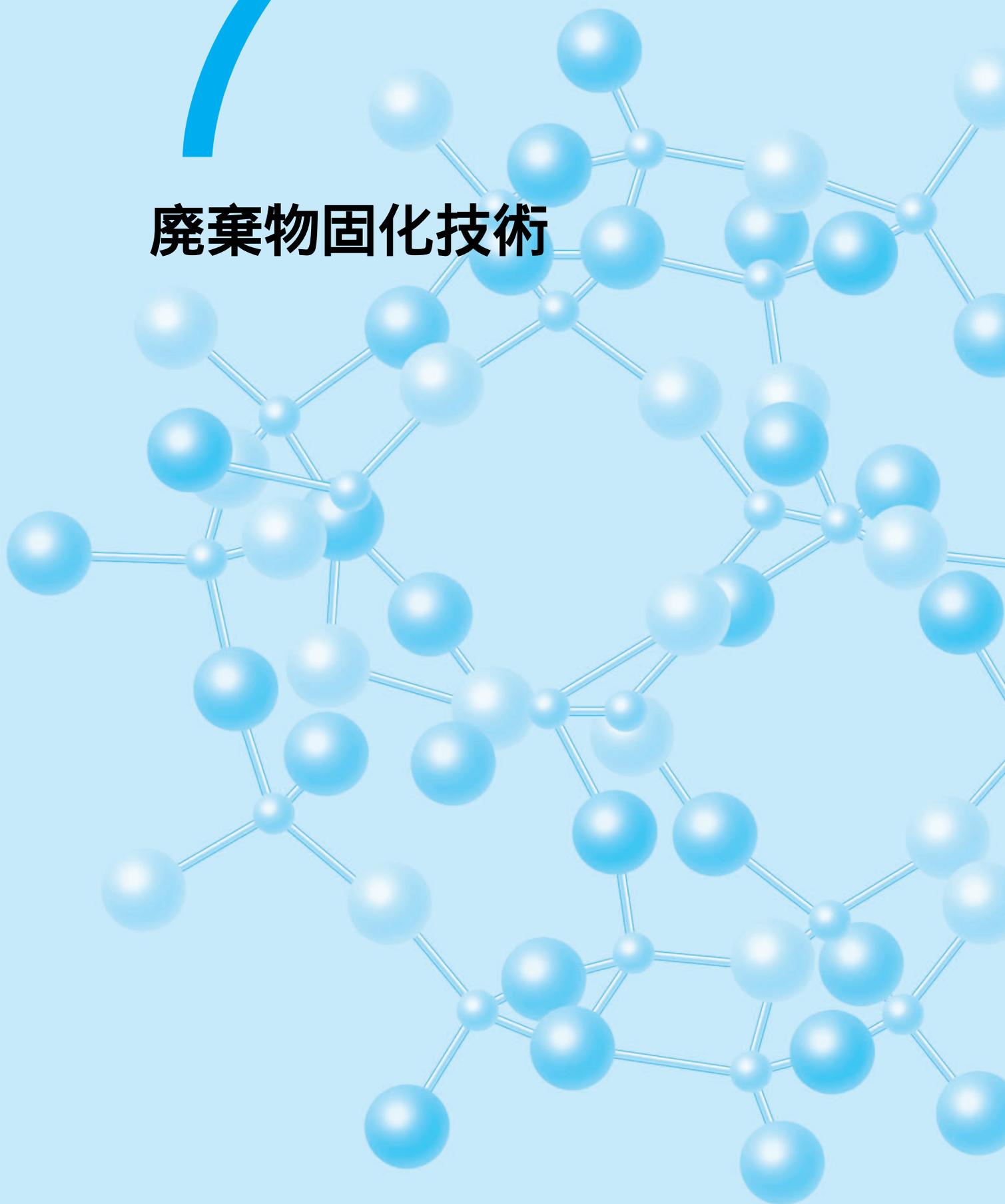
使用済み塩処理工程の電解では、塩相からアルカリ土類金属を完全に除去することはできない。アルカリ土類などの鉛への抽出量を増やすと、溶媒成分であるリチウムの抽出量(廃棄量)も増加し多量の二次廃棄物を発生する可能性がある。高レベル廃液を直接ガラス固化する場合には、FPがガラス固化体の10wt.%を占めるのに対して、3wt.%の酸化リチウムが添加されている。従って、使用済み塩処理工程から排出されるリチウムが酸化物換算でFPの30wt.%を超えないことを電解の条件として、浴塩中のリチウムの17%を電解によって系外に排出することとした。その時の各元素の分配係数の関係から、共晶塩と共に浴塩中に存在するアルカリ金属、アルカリ土類、希土類元素の量を評価した。

ここで示した物質フローでは軽水炉燃料1トン分の高レベル廃液について、約200リットルの塩化物が溶媒として必要であることが分かった。湿式の分離プロセスでは使用済み燃料1トンあたりの溶媒量は3000~4000リットルとされている。湿式分離プロセスは基本的に連続処理であり、乾式分離プロセスはいまのところバッチ処理を前提としているので、この値を直接比較することはできないが、いくつかの工程について連続化を図ることができれば乾式分離プロセスは少ない溶媒量で操業できる可能性が高く、コンパクトなプロセスを構築できるものと思われる。

今後はここで挙げた数字をもとにして、プロセスの概念設計と経済性評価を実施する。さらに実際の廃液を用いた前処理工程の実証試験、超ウラン元素による向流多段抽出工程の実証試験を実施するとともに、材料開発や工学的な機器開発を実施する予定である。

第 7 章

# 廃棄物固化技術



第7章 廃棄物固化技術 目次

原燃サイクル部 主任研究員 西村 友広  
(現在 日本原子力発電㈱に出向中)  
原燃サイクル部 主任研究員 坂村 義治

7 - 1 ガラス固化技術 .....61  
7 - 2 人工鉱物固化技術 .....62  
7 - 3 金属廃棄物の固化技術 .....64



西村 友広(1982年入所)  
軽水炉と金属燃料FBRのプラント動特性解析など原子炉の安全性に関わる研究・開発に約10年従事した後、乾式再処理に関する研究・開発に、ここ数年は乾式再処理の使用済塩の処理・固化法の研究・開発に従事している。今後、安全性と経済性に優れた原子燃料サイクルの確立に役立つ研究・開発に取り組んでいきたい。



坂村 義治(1989年入所)  
希土類元素、アクチノイド元素に関して、熔融LiCl-KCl共晶塩中の標準酸化還元電位の測定、液体金属中の活量係数と溶解度の測定。電解精製によるアクチノイド元素の希土類元素からの分離回収などの研究に従事。

# 第7章 廃棄物固化技術

乾式再処理プロセスおよび高レベル廃液の乾式分離プロセスから、希土類元素、アルカリ土類元素、アルカリ金属などの核分裂生成物が蓄積した使用済み塩と貴金属FPを含んだ金属状の廃棄物とが発生する。

使用済み塩は、地下水に容易に溶解して人間の生活環境中に到達する恐れがあるため、そのままでは処分が難しい。そこで、使用済み塩を深地層処分に適応する安定な形態の固化体にする方法として、当研究所では、

ガラス固化技術

人工鉱物固化技術(ソーダライト型固化技術)

について研究している。ガラス固化技術の研究開発の現状を7-1で、人工鉱物固化技術については7-2で述べる。

金属状の廃棄物の処理方法については、アルゴン国立研究所(ANL)において行われている「金属廃棄物」の研究開発状況を7-3で簡単に紹介する。

## 7-1 ガラス固化技術

現在、軽水炉使用済燃料の湿式再処理で発生する高レベル廃液は、ホウケイ酸ガラス固化体にして処分することが計画されている。乾式再処理プロセスおよび高レベル廃液の乾式分離プロセスから発生する使用済み塩も、ガラスに転換できれば同じ方法で処分することが可能となる。

重量%程度と言われている。このため当研究所では、廃棄物発生量の低減をめざし、図7-1-1に示すように、次の3ステップで塩化物をガラスに転換する方法について研究している。

電気分解の技術を適用することにより塩を塩素ガスと金属状のFPとに分解し、金属状FPは液体鉛金属中に回収する。塩素ガスは、オフガス中から深冷分離法\*1により液化・回収したのち高レベル廃液の塩

### 7-1-1 塩化物のガラス固化法

ホウケイ酸ガラス固化体への塩素イオン許容濃度は1

\*1深冷分離法：混合ガスを冷却し、そのガス中の成分を、それぞれの凝縮する温度の違いを利用して分離する方法

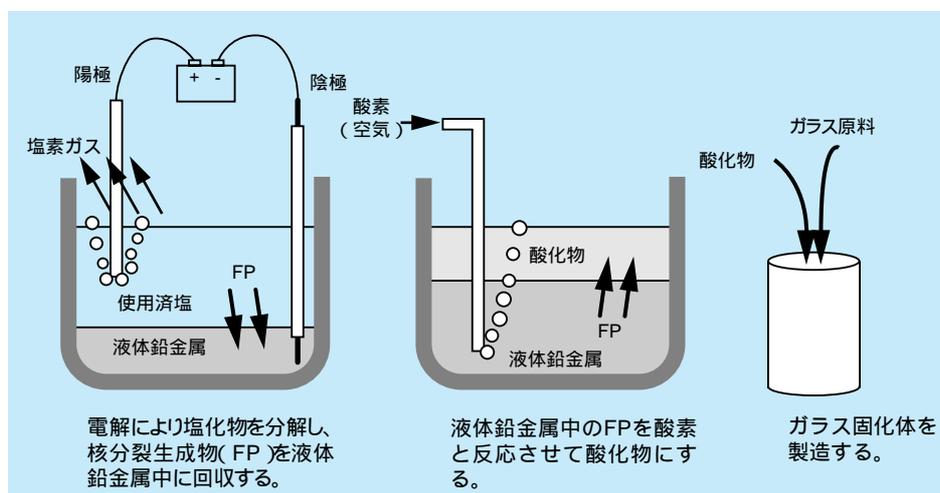


図7-1-1 使用済み塩のガラス固化の手順

化物への転換(第6章で示した塩素化工程)で再利用する。

液体鉛金属中のFPを空気中の酸素と反応させて酸化物にする。FPを除去した後の鉛はの工程に戻し、繰り返し使用する。

FPの酸化物に、ガラスの原料(二酸化ケイ素、酸化ホウ素など)を加え、高温にしてガラス化し、ガラス固化体にする。このステップは従来の湿式法再処理のガラス固化技術がそのまま適用できると考えられる。

当研究所は、ステップとに関して、液体鉛金属を陰極にした模擬使用済み塩の電解実験ならびに液体鉛金属中の模擬FPの酸化実験を、住友金属鉱山(株)との共同研究で行い、電解で液体鉛金属中に金属状態で模擬FPを回収できること、800で液体鉛金属中に酸素を吹き込むことにより鉛を酸化させずに模擬FPだけを酸化物にできることを確認した。

### 7-1-2 乾式プロセスへの適用

本ガラス固化技術から発生する塩素ガスのリサイクルの観点から、第6章で述べた高レベル廃液の乾式分離プロセス(塩素化工程で塩素ガスを使用)と組み合わせることのできるプロセスとなる。第6章で示した乾式分離プロセスフローシートの「使用済み塩処理」工程が上述のの工程に相当する。

高レベル廃液の乾式分離プロセスから発生する全ての

廃棄物をガラス固化体にした場合のガラス固化体の組成を表7-1-1に示す。この表には比較のため核燃料サイクル開発機構のガラス固化体の標準化学組成を併記したが、乾式分離プロセスの浴塩の成分であるLi、Kの廃棄量は多くなく、湿式再処理のガラス固化体の技術が適用できるものと考えられる。

今後の課題としては、

高レベル廃液の乾式分離プロセスからガラス固化体製造までの通しの試験

ガラス組成の最適化

オフガス処理も含めた工学規模装置の開発

などがあげられる。

表7-1-1 高レベル廃液の乾式分離プロセスから発生するガラス固化体の組成の推定値(単位:重量%)

	高レベル廃液の乾式分離からのガラス固化体	TVFガラス固化体の標準化学組成 <sup>*1</sup>
廃棄物 FP等	~ 15	15.0
Na <sub>2</sub> O	3.4	10.0
Li <sub>2</sub> O	1.2 <sup>*2</sup>	-
K <sub>2</sub> O	0.6	-
ガラス原料		
SiO <sub>2</sub>	未定 <sup>*3</sup>	46.7
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	未定 <sup>*3</sup>	14.3
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	未定 <sup>*3</sup>	5.0
Li <sub>2</sub> O	未定 <sup>*3</sup>	3.0 <sup>*2</sup>
CaO	未定 <sup>*3</sup>	3.0
ZnO	未定 <sup>*3</sup>	3.0
合計	100.0	100.0

\*1 動燃技報No. 100, pp. 215-233(1996)

\*2 核燃料サイクル開発機構のTVFガラス固化体にはガラス原料として3.0重量%添加されている。

\*3 ガラス原料の添加割合はガラス組成の最適化検討を経て決定される。

## 7-2 人工鉱物固化技術

7-1で述べた使用済み塩のガラス固化技術は、湿式法再処理のガラス固化体の処分に関する研究成果がそのまま利用できるという利点がある。しかし、塩素ガスなどの化学的に活性な副生成物が発生するため、耐腐食性を考えた設備にしなければならないという欠点がある。

そこで、当研究所は、塩素ガスなどが発生しない固化法の研究開発にも着手した。塩素ガスが発生しない固化法として、アルゴン国立研究所(ANL)では、使用済み塩をゼオライトの中に取り込み、それを低融点のガラスで固めたガラス結合セラミックスの研究開発を行っている。当研究所は、天然鉱物のソーダライト(sodalite)が

3次元かご構造中に塩化物を安定に保持していることに着目し、ソーダライト型の人工鉱物にする技術(以下ソーダライト型固化と呼ぶ)の研究開発を進めている。以下に当研究所で実施しているソーダライト型固化に関する技術開発の現状について述べる。

### 7-2-1 ソーダライト型固化体の合成試験

ソーダライトは、ネフェリンセン長岩などナトリウムに富む深成岩中に産出し、その理想化学組成はNa<sub>6</sub>[(AlO<sub>2</sub>)<sub>6</sub>(SiO<sub>2</sub>)<sub>6</sub>]・2NaClで表され、図7-2-1に示すよう

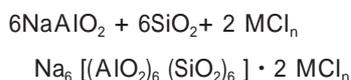
にアルミニウムとケイ素が酸素を共有して結合した3次元のかご構造内にナトリウムイオンと塩素イオンが入った立方晶系の鉱物である。ソーダライト型固化体は、3次元かご構造内のナトリウムイオンが核分裂生成物のイオンで置き代わったものである。

ソーダライトの合成法として種々の方法が研究されているが、当研究所では、

水を使用しない乾式の合成法であること

合成時にガスや水などの二次廃棄物が発生しないこと

の2つを条件に合成法の調査・検討を行い、アルミン酸ナトリウム( $\text{NaAlO}_2$ )、二酸化ケイ酸( $\text{SiO}_2$ ) および使用済塩の混合物を900 程度までの高温にして合成する方法を選定した。下記に合成反応の化学式を示す。



ここで、 $\text{MCl}_n$ は使用済塩を表す。現在、所内研究として実施している、模擬使用済塩を用いたソーダライト型固化体試験片の合成試験の手順は、3種類の原料(アルミン酸ナトリウム、二酸化ケイ酸、および模擬使用済塩)をメノウ乳鉢で十分に粉碎、混合し、約300MPaの力をかけてペレット状にした後、電気炉で900 程度までの高温にしてソーダライト化させる単純で簡単なものである。

加熱温度、加熱時間などをいろいろと変えて作製した

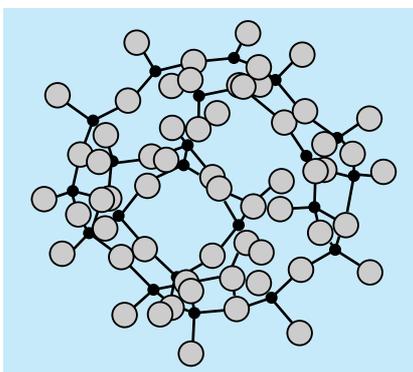


図7-2-1 ソーダライトの3次元かご構造

試験片に含まれるソーダライトの量を粉末X線回折(XRD)分析で調べるとともに、浸出試験で試験片の浸出率を測定することにより、耐浸出性に優れたソーダライト型固化体の合成条件の把握を行っている。これまでの合成試験の結果から、ソーダライトの量が多く、かつ耐浸出性の低下をもたらすネフェリンと呼ばれる鉱物の量が少ない最適な合成条件(加熱温度と加熱時間)は、850 で約8時間であるとの見通しを得ている。廃棄物固化体の性能評価で最も重要なものの一つである耐浸出性については、短時間浸出試験の結果の一例を、ガラス固化体および米国ANLで研究開発中のゼオライトの浸出率データと比較して図7-2-2に示す。この図から、ソーダライト型固化体はゼオライトや湿式法再処理のガラス固化体と同等以上の耐浸出性を持つという見通しを得た。

### 7-2-2 ソーダライト型固化体開発の今後の課題

ソーダライト型固化体開発の今後の課題としては、ネフェリンなどの不純物がほとんどなく、耐浸出性に優れた固化体の合成条件の見極めがある。耐浸出性については、長期浸出試験による浸出メカニズムの同定と長期浸出率の取得がある。また、ガラス固化体(直径約0.4m、長さ約1.3m)並みの大きな固化体の製造技術の開発も必要である。

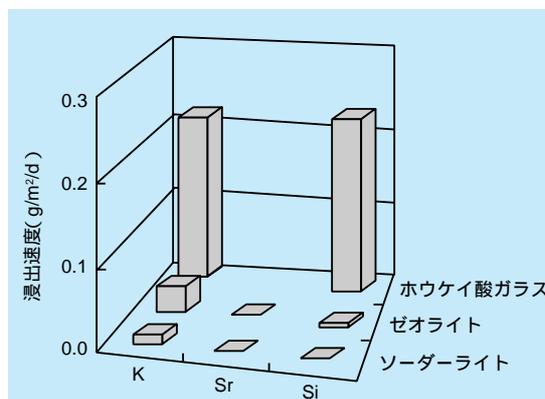


図7-2-2 固化体の浸出速度の比較

## 7 - 3 金属廃棄物の固化技術

乾式再処理プロセスの電解槽の陽極溶解バスケット中に被覆管ハル、燃料成分のジルコニウム、および貴(金属としてより安定)な金属FP(ルテニウム、パラジウム、テクネチウムなど)が不溶解物として残る。

ANLでは、これらを溶解炉で溶かし、鋳型に流し込んで固め、金属廃棄物固化体にして処理・処分することを考えている。金属廃棄物固化体の組成はステンレス鋼とジルコニウムの合金に貴な金属FPを最大で4%入れたものが検討されている。ステンレス鋼は被覆管ハルや使用済みの集合体部材などから供給し、ジルコニウムはFBR金属燃料の再処理では燃料成分の不溶解物から、

軽水炉燃料の再処理ではジルカロイ被覆管ハルから供給される。

ANLではこれまでに数10g規模～数kg規模の溶解炉を用いた試験片の作製、作製した試験片の金属学的研究、腐食試験、強度試験などを実施している。

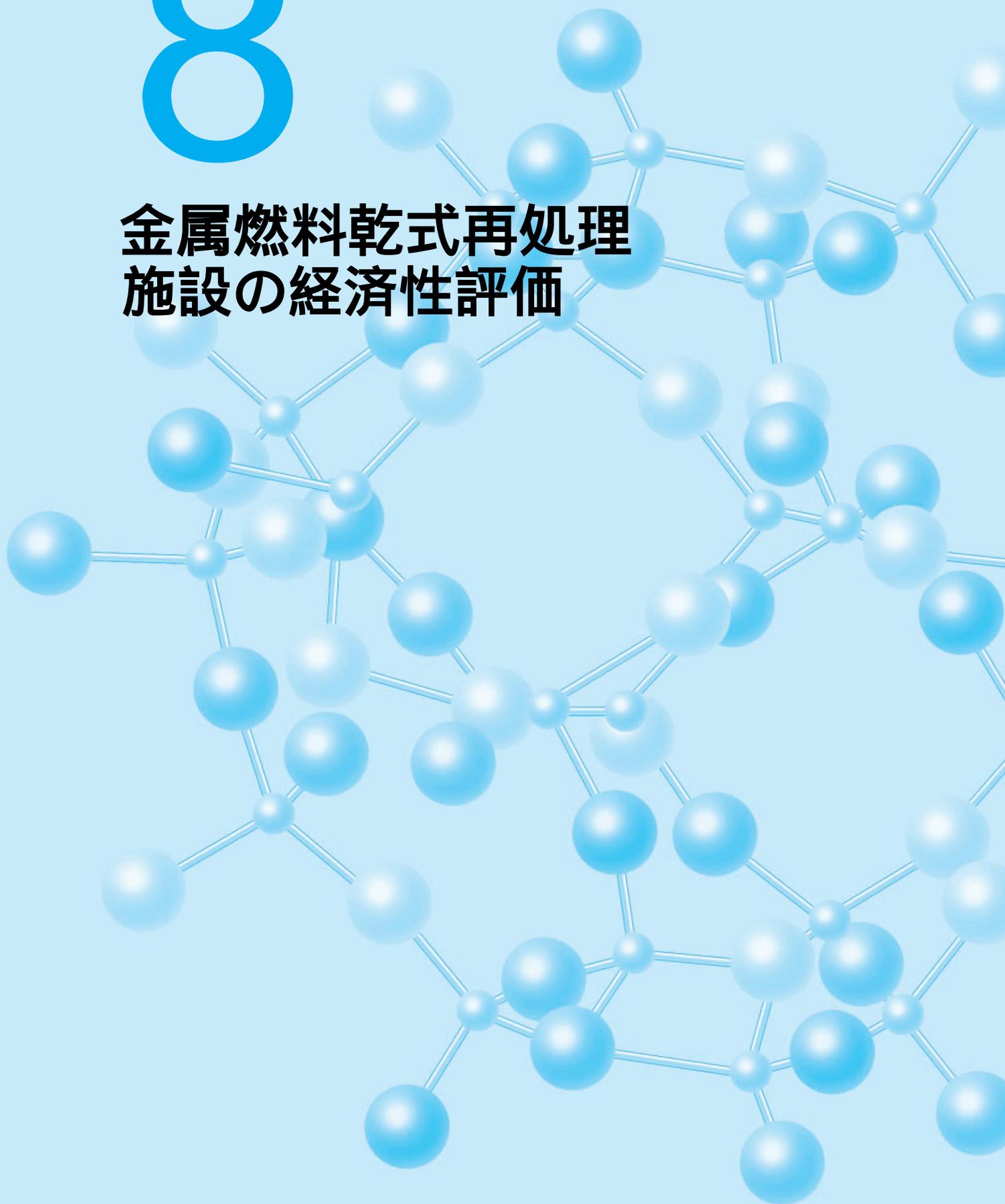
金属廃棄物の固化体開発に関する今後の課題として、処分概念の検討があげられる。金属廃棄物固化体の特徴の一つとして、放射能強度が50年程度で3桁程度低下することがあげられており、金属廃棄物固化体の処分方策として、例えば、一時貯蔵してから処分する方法などが考えられる。

第

# 8

章

## 金属燃料乾式再処理 施設の経済性評価



第 8 章 金属燃料乾式再処理施設の経済性評価 目次

柏江研究所 上席研究員 研究参事 常磐井守泰

8 - 1	施設の概念設計 .....	67
8 - 2	施設の概念設計結果 .....	68
8 - 3	経済性評価結果 .....	69

---

常磐井守泰 26ページに掲載

# 第 8 章 金属燃料乾式再処理施設の 経済性評価

FBRの再処理プラントでは、FBRの導入初期、平衡サイクルに至る中間的な過程、および大量処理が必要な平衡サイクル・実用化時期に到るステップまで考えると、従来考えられてきた大型施設のみではなく、必要に応じて処理能力を順次増強でき、技術の進歩を適時取り入れ

やすいバッチシステムによる構成が合理的である。このような考えをふまえて、リサイクルシステムの最小単位について評価し、規模を増大させる場合には単位処理ラインを増設するという考え方で施設の経済性を評価した。

経済性を評価するために施設の概念設計を行った。再処理と燃料製造を行うリサイクル施設、および廃棄物を固化処理する施設、ならびに酸化ウラン、酸化プルトニウム混合物を金属に還元する燃料転換施設の概念設計を行った。表8-1-1に施設の構成を示す。

乾式リサイクル施設の年間の処理量は20トンで、標準的な均質2領域の大型FBR(約100万kWe)のリサイクルを賄える。また、当研究所が中型炉用に設計した径方向非均質炉であれば、燃料の炉内滞在時間が大幅に延びるので、210万kW(30万kWe7基)を賄うことが出来る。本評価では、当研究所設計の中型炉をレファレンスとして経済性を評価した。

## 8 - 1 施設の概念設計

### 8-1-1 プロセスフロー

施設設計を行うにあたり、第4章の図4-5-1に示したプロセスフローとマスバランスをもとにした。

### 8-1-2 施設設計

金属燃料乾式再処理施設は、再処理と燃料製造を行なうリサイクル施設(アルゴンセル)、リサイクル施設から排出された廃棄物を安定な固化体に製造する廃棄物処理施設(空気セル)、および初装荷燃料を製造する転換施設(アルゴングローブボックス、原料は軽水炉燃料の湿式再処理施設で精製されるプルトニウムとウラ

表8-1-1 金属燃料サイクル施設の構成

施設の名称	目的	備考
1.リサイクル施設	使用済みの燃料集合体を受け取り、必要な除染処理を行ない、新燃料を製造して集合体にまで組み上げて炉側に排出する。また、工程で発生した廃棄物を排出する。	・再処理工程、燃料製造工程、分析工程で構成 ・アルゴンセルで燃料を処理 ・計量管理のための分析ポイントは、射出成型工程
2.廃棄物処理施設	リサイクル施設から排出された廃棄物を受け取り、処分に適合する固化体を製造する。	・電解槽からの廃塩処理 ・電解槽からの貴金属FPの固化 ・全工程からの廃棄物(廃坩堝、その他廃棄物) ・空気雰囲気セル
3.燃料転換施設	軽水炉湿式再処理工場のプルトニウム製品を原料とし、金属に還元する。還元物質にウラン、ジルコニウムを適量添加し、射出成型装置で初装荷燃料を製造する。	還元処理は6トン/年で、5ヵ年間で1炉心分のドライバ-燃料を製造する(ブランケットは別の施設で製造すると仮定) (射出成型装置はリサイクル施設に設置した装置を使用する)

ンの混合物)で構成される。廃棄物処理施設については、空気雰囲気セルで行なう方がコストメリットがあると考え、独立の建屋とした。

システムはバッチプロセスであり、物質の流れに沿って機器が直線的に配置され、機器間の物質の移動は床走行ロボットが行う。天井走行クレーンに比べて床走行ロボットとすることで、セルの天井高さを低減できる。扱われる物質は固体状であり、各機器で処理した製品は温度が十分下がって塩などが固化してから取り出す。製品は所定の容器に入れて搬送し、物質を受け渡すステーションで機械によって各装置に装荷される。

### 8-1-3 適用する機器

適用する技術の設定においては、工学規模装置が稼働

あるいは設計・製作段階にある機器を採用した。また、工学規模の装置の設計例がない場合には、アルゴン国立研究所(ANL)あるいは当研究所で小規模な装置が順調に稼働していることを条件に、それをスケールアップして適用することとした。従って、採用した各機器は、それぞれ技術的に成立することが既に実験によって確認されており、かなり確度の高い根拠データに基づく運転条件を想定できた。

一方、乾式リサイクルシステムの製品は固体状であるので、それらをどのようにハンドリングするのかがシステム設計上極めて重要な検討事項となる。ここでは、2000年時点で原子力産業界で実用化されていると想定される技術を適用して、積極的に自動化を図った場合の「商用施設」を考えている。

## 8 - 2 施設の概念設計結果

### 8-2-1 リサイクル施設

リサイクル施設の基本仕様を表8-2-1に示す。リサイクル施設では、使用済み燃料の再処理と使用済み塩からの超ウラン元素の抽出、および燃料の製造を同一のアルゴンガス雰囲気セルで遠隔操作で行う。再処理には電解精製、燃料製造には射出成型法を適用している。超ウラン元素を抽出した後の使用済み塩は、廃棄物処理施設に排出される。

主要な機器は、燃料せん断装置、電解精製槽と超ウラン元素抽出器、カソードプロセッサ、射出成型機、燃料ピン処理機、ボンドナトリウム充填機、端栓溶接機などである。封入された燃料ピンは、隣接の空気雰囲気セルに送られて検査される。検査済み燃料ピンは、集合体に組み立てられ、炉に供給される。これらの運転操作は遠隔で行われる。

施設の建屋寸法は72 L × 48 W × 23 H ( m )、建屋体積は約43,000 ( m<sup>3</sup> )となった。また、アルゴンセルの体積は約( 1,400 m<sup>3</sup> )となった。

### 8-2-2 廃棄物処理施設

廃棄物処理施設の基本仕様を表8-2-2に示す。廃棄物の種類は、電解精製槽から排出される廃塩、せん断燃料片の一部である被覆管ハルと塩に溶解しない貴金属FP (ロジウム、ルテニウム、パラジウムその他、モリブデン、ニオブなど) および高温の装置から排出される坩堝やモールドなどである。

本設計時点では、廃棄物処理の方法は確定しておらず、当時のANLの方針を踏襲して廃塩の固化にセメント固化法を暫定的に適用した。その結果、建屋寸法は、46 L × 46 W × 28 H ( m )であり、建屋体積は約38,000 ( m<sup>3</sup> )である。なお、本設計が完了した後で、セメント固化法では水素の発生問題の解決が困難と判断され、新規にゼオライト(最終的な固化体はガラス結合型ソーダライト)を用いる方法がANLで開発され、それを参考に当研究所では、塩廃棄物をソーダライトに直接固化する方法を研究している。

表8-2-1 金属燃料リサイクル施設の基本仕様

主要目	仕様	備考
年間処理量	20トン	使用済み燃料中の重金属
年間稼働日数	200日	湿式プラントに揃えた
取り出し燃焼度	10.5万MWd/トン(平均)	ドライバ燃料
	3.8万MWd/トン	ブランケット燃料
プルトニウム富化度	22.4wt%	ドライバ燃料
燃料製造法	射出成形法	100本/バッチ
燃料端栓溶接	電気抵抗溶接法	電気抵抗溶接
燃料せん断法	バンドルせん断	一部ピンを化学分析用に抽出後にせん断処理
FPの除染	電解精製法	固体陰極、液体カドミウム陰極を使い分けるデュアルカソード方式
蒸留精製法	蒸留によるカソードプロセス	塩、カドミウムを蒸発させ、ウラン、プルトニウムはインゴットで回収
アルゴンセル	裸の状態の燃料を扱う工程はすべてアルゴンガスセル中に設置	金属燃料は活性金属であり、酸化されるため
空気セル	燃料の端栓終了後は空気セル中で扱う	集合体の解体、新燃料の検査、新燃料集合体組み立てと検査
初装荷燃料の金属燃料の製造	湿式再処理工場のウランとプルトニウムの混合酸化物を還元して金属合金を得、射出成型装置にて金属燃料に成型加工する。	
実施年度	1992年度	

### 8-2-3 転換施設

転換施設の基本仕様を表8-2-3に示す。転換施設では、

各施設について、概念設計に基づく積み上げで建設費を算出した。また、運転費、部材費、消耗品費、人件費、廃棄物処分費、およびデコミッションング費など燃料サイクルコストの評価に必要なコストを算出した。これらのコストの算定には、類似の施設の単位体積あたりの建設費など、既存施設の情報を活用している。なお、土地代、プロジェクトエンジニアリング・管理費は含めていない。

#### 8-3-1 施設の建設費

##### リサイクル施設

表8-3-1に建設費の内訳を示す。施設の建設費は約260

表8-2-2 廃棄物処理施設の基本仕様

項目	仕様
ラップ管部 FPガス 溶融塩の安定化法 ハル・セラミックス等 セル形態	圧縮梱包 高圧ボンベ封入 セメント固化法 銅中分散固化法(HIP) (酸洗浄によりTRU除去後) 空気セル

軽水炉使用済み燃料から湿式再処理施設で精製されたプルトニウム製品(酸化物)を受け取り、金属燃料用の合金を製造する。酸化物を金属に還元する方法として、現在は5章で示したりチウム還元法の研究開発を進めているが、本評価はリチウム還元法の検討開始以前に実施したために、当研究所が神戸製鋼と共同で開発したフッ化物電解還元法を用いることとした。その結果、建屋寸法は35 L × 29W × 10 H(m)、その体積は約900(m<sup>3</sup>)となった。

表8-2-3 転換施設の基本仕様

項目	仕様
重金属生産量	6トン/年
稼働日数	200日
原料	PUREX再処理済混合酸化物(炉心) U酸化物(ブランケット)
還元法	フッ化物溶融塩電解法
セル形態	Ar雰囲気グローブボックス

## 8 - 3 経済性評価結果

億円となった。プロセス設備費用は約60億円強で、全体の約1/4である。運転費の内訳を表8-3-2に示す。3直4班で運転するなど、既存の原子力発電所の運転経験などを取り込んで、運転要員数(147人、100万円/人・月と仮定)を算出し、人件費を算出した。必要な消耗品の数、量を算定し、それらを積み上げて消耗品費が算出された。運転費は40億円強となった。

##### 廃棄物処理施設

廃棄物処理施設の建設費は約150億円となった。建屋コストは全体の1/4以下であるが、プロセス付帯設備が1/2強となり、その中でも中央制御設備費がプロセス・

表8-3-1 再処理・成型加工施設の建設費内訳

項目	コスト(億円)	備考
1. 建屋・建屋付帯設備		
建屋	27	
建屋換気設備	8.7	
建屋電気設備	10.1	
建屋給水設備	0.9	
建屋防火設備	0.3	
放射線管理設備	7.4	
小計	54.4	
2. プロセス設備		
集合体解体設備	25	
電解精製設備	5	
塩分離設備	2.5	
Cd蒸留設備	5	
射出成型設備	7	
集合体組立設備	7.5	
塩再生設備	2.7	
Cd再生設備	0.9	
ロボット設備	6.3	
小計	61.9	
3. プロセス管理・付帯設備		
中央制御設備	10	暫定値
ユーティリティ設備	10	暫定値
プロセス冷却系設備	21.9	
Arセル純化系設備	11.2	
空気セル空調設備	7.5	
廃液処理設備	7.8	
セル内ライニング	5	
セル内ハッチ	5	
分析設備	5	暫定値、計量管理含む
保守設備	5.9	
キャスク取扱設備	9.2	
資材貯蔵設備	0.2	
小計	98.7	
4. エンジニアリング費		
設計費	21.5	上記1～3の10%
工事管理費	21.5	上記1～3の10%
小計	43.0	
合計	258.0	

付帯設備の約60%強を占めている。

### 転換施設

転換施設の建設費は約110億円となった。

### 8-3-2 燃料サイクル費の評価

実用化時期を想定した時の発電プラント(30万kWe、稼働率80%)では、使用済み燃料の取り出し量は5.71トン重金属/20ヶ月で、年間当たり2.86トン重金属である。この際、燃料サイクル費は1.32円/kWeとなった。燃料サイクル費に占めるリサイクル費は72%、廃棄物処理費は19%、廃棄物処分費は9%である。

### 8-3-3 酸化物燃料サイクルとの比較

在来のMOX燃料サイクル(高除染湿式再処理とペレッ

表8-3-2 再処理・成型加工施設の運転費

項目	費用	備考
人件費(運転員)	17.6 億円/年	3直 5班 147名、100万円/人月
交換機器費	8.6	建物コストの1%、 プロセス設備コストの5%
動力費	1.5	84 × 10 <sup>6</sup> kWh、17.5円 / kWh
消耗品費	13.4	
合計	41.1	

ト製造)と、金属燃料サイクルとを施設の建設費、サイクル費で比較した例がいくつか報告されている。それらを図8-3-1に示す。建設費では両者の比は3.3～5.2の範囲で異なっているが、金属燃料サイクルの方がMOX燃料サイクルよりも安いことは共通している。一方、サイクル費では金属燃料サイクルの方がMOX燃料サイクルよりも安いが、建設費程の差はない。

### 8-3-4 まとめ

本施設設計は1992年に行ったものである。金属燃料サイクルが技術開発途上であり、この評価以降にも多くの技術の進歩や大型装置による実証があり、これらの成果をもとにコスト評価を見直していく必要がある。一方、当研究所以外の組織でも、金属燃料サイクルの経済性評価も行われており、湿式再処理との比較でいえば、程度の差はあるものの金属燃料サイクルの方がMOX燃料サイクルよりも燃料サイクル費が安いと言う結果が得られている。

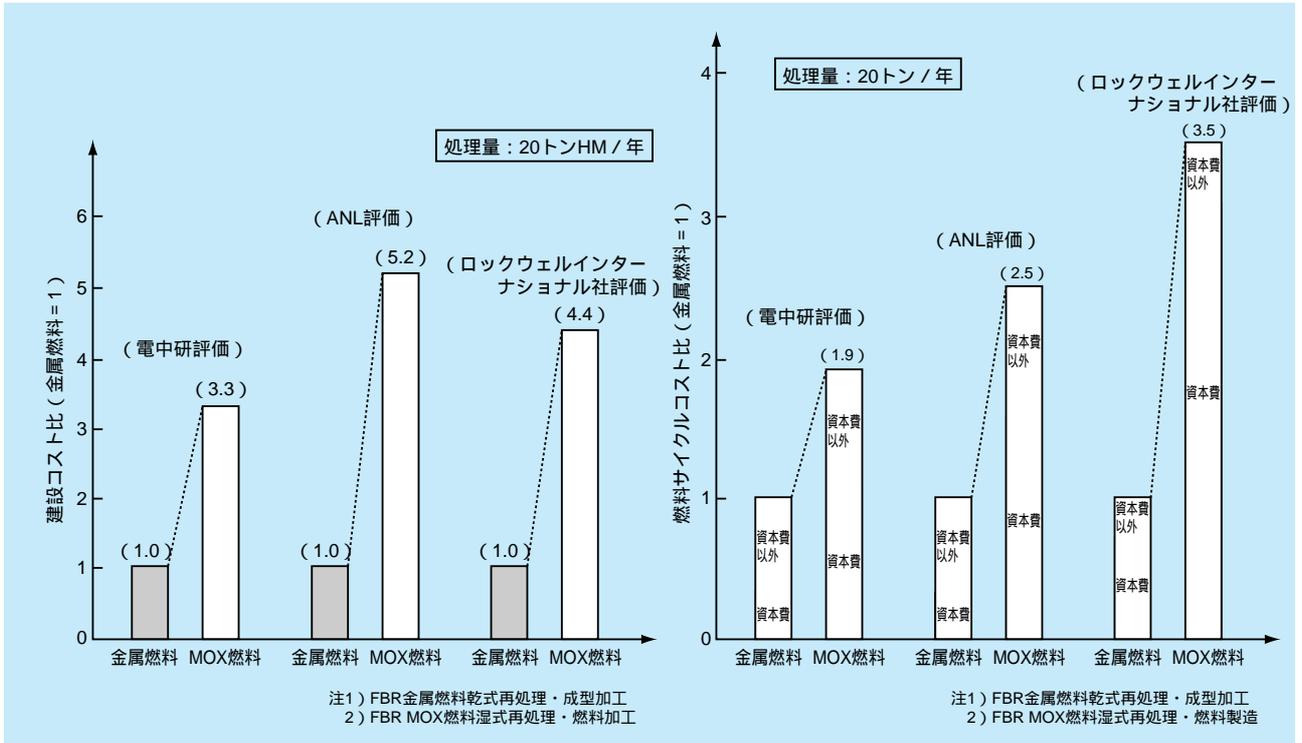


図8-3-1 金属燃料とMOX燃料の(左)再処理・成型加工建設費と(右)サイクル費の比較

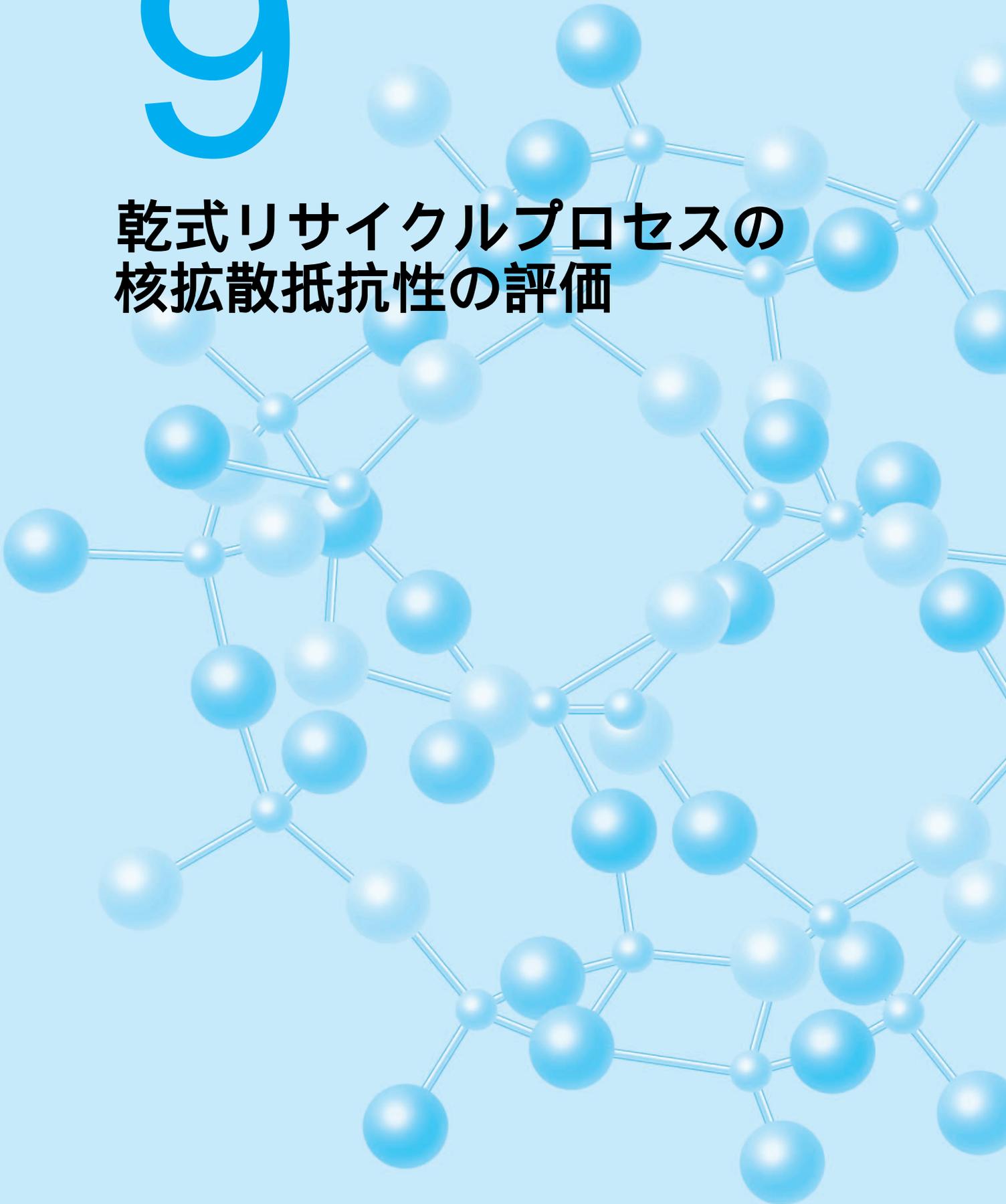


第

章

# 9

## 乾式リサイクルプロセスの 核拡散抵抗性の評価



第9章 乾式リサイクルプロセスの核拡散抵抗性の評価 目次

粕江研究所 上席研究員 研究参事 常磐井守泰

9 - 1 アメリカの核拡散抵抗性の評価 .....75

9 - 2 国内の金属燃料リサイクル施設の保障措置 .....77

---

常磐井守泰 26ページに掲載

# 第9章 乾式リサイクルプロセスの核拡散抵抗性の評価

FBRとそのリサイクルシステムでは、大量のプルトニウムを扱う。FBRシステムの実用化には、経済性の高いFBRとともに、核拡散抵抗性の高いリサイクルプロセスが求められる。

核物質の国際的な保障措置において、核物質の計量と査察方法は施設のシステム設計に、査察の頻度は施設の稼働率に大きな影響を及ぼす。これらはリサイクルの経済性に大きな影響を及ぼすため、新しいリサイクル概念の評価において、核拡散抵抗性の程度や保障措置の適用

方法などは重要な検討項目である。本章では、

米国エネルギー省( DOE )が、乾式再処理技術が原子力機微技術ではないと評価した技術的な根拠等に関する調査結果

将来、国内に金属燃料リサイクルシステムを建設・運転する場合の保障措置に関する検討の概要( 国内の保障措置の実務経験が豊富な 核物質管理センターとの共同研究 )  
について述べる。

## 9-1 アメリカの核拡散抵抗性の評価

アメリカにおいては、政府レベルでIFR乾式再処理プロセスの核拡散抵抗性に関する評価が複数回行われており、いずれも抵抗性が極めて高いと結論されている。これらの評価結果のレポートは公開されていないが、その結論を引用している公開文献が存在し、ここから、政府レベルでのIFRの核拡散抵抗性の評価結果を知ることができる。本章では上記文献の記述に沿って述べる。

### 9-1-1 IFR燃料サイクルの保障措置

核不拡散を担保するための障壁が高いほど核拡散の抵抗性が強くなる。障壁には制度的なもの、技術的なものの両方があり、これらは相互補完関係にある。制度的な障壁には、国際的な核不拡散条約、保障措置としては物的防護と計量、およびIAEAによる現地での査察が含まれる。技術的な障壁としては、核物質の不正な利用を検知する感度が高いこと、核物質そのものの魅力度が小さいこと、などが挙げられる。技術的な障壁に関し、IFRで再処理した物質の特徴を在来の湿式再処理(高除染のピューレックス法を想定)で得られるプルトニウム、および使用済み軽水炉燃料と比較すると以下のように評価される。

使用済みの軽水炉燃料とIFR燃料中のアクチニド組成、発熱量、中性子放出速度は表9-1-1に示すとおりである。単位重金属あたり、使用済みIFR燃料は、使用済みの軽水炉燃料よりも発熱量で5倍、自発中性子放出速度で3倍大きい。この値は兵器級プルトニウムの自発中性子放出速度の約1万倍に相当する。

IFR再処理( 溶融塩電解再処理、射出成型を想定 )、軽水炉湿式再処理により回収されるアクチニドの組成は表9-1-2に示すとおりであり、崩壊熱と自発中性子放出速度はIFRのアクチニド製品の方が大きい。さらに、同IFR製品ではランタニドFPが含まれるので、ガンマ線が強く人の接近を困難にするに十分な自己防護性が備わっている。

自己防護性の判断基準としては、ガンマ線強度が1 m以上離れて1 Sv/hと言う条件があるが、図9-1-1から、IFR再処理、燃料製造( 射出成型 )のどの工程も自己防護性条件に合致することが判る。

### 9-1-2 乾式再処理プロセスの保障措置上の課題

核不拡散の目的を達成するために特別に設計された

表9-1-1 使用済み燃料の組成、崩壊熱、中性子発生速度

Spent Fuel at Discharge* ( Normalized to 1 kg HM basis )						
Nuclide	Relative Isotopic Mass ( g/kg HM )		Decay Heat ( W/kg HM )		Spontaneous Neutrons ( neutrons/s/kg HM )	
	LWR	IFR	LWR	IFR	LWR	IFR
Np-237	6.61e - 01	1.38e + 00	1.37e - 05	2.84e - 05	6.91e - 05	1.44e - 04
Pu-236	2.98e - 06	1.37e - 05	5.52e - 05	2.53e - 04	1.01e - 11	4.63e - 11
Pu-238	1.12e - 01	1.40e + 00	6.29e - 02	7.85e - 01	2.90e + 02	3.62e + 03
Pu-239	6.21e + 00	1.67e + 02	1.18e - 02	3.18e - 01	1.36e - 01	3.65e + 00
Pu-240	2.48e + 00	4.47e + 01	1.70e - 02	3.06e - 01	2.25e + 03	4.06e + 04
Pu-241	1.94e + 00	4.77e + 00	8.21e - 03	2.01e - 02	9.57e - 02	2.36e - 01
Pu-242	4.85e - 01	1.90e + 00	5.58e - 05	2.18e - 04	8.32e + 02	3.27e + 03
Am-241	4.25e - 02	1.55e + 00	4.88e - 03	1.78e - 01	5.05e - 02	1.84e + 00
Am-242m	1.41e - 03	1.14e - 01	3.91e - 06	3.15e - 04	1.89e - 01	1.54e + 01
Am-243	3.10e - 01	3.89e - 01	2.18e - 03	2.73e - 03	1.22 + 00	1.53e + 00
Cm-242	1.62e - 02	7.96e - 02	1.97e + 00	9.71e + 00	3.39e + -5	1.72e + 06
Cm-243	1.06e - 03	4.32e - 03	1.79e - 03	7.29e - 03	1.29 + 02	5.27e + 00
Cm-244	7.80e - 02	1.78e - 01	2.21e - 01	5.06e - 01	8.43e + 05	1.92e + 06
Cm-245	6.36e - 03	3.65e - 02	3.53e - 05	2.02e - 04	2.46e - 01	1.41e + 00
Cm-246	7.93e - 04	1.06e - 02	8.02e - 06	1.06e - 04	7.49e + 03	9.98e + 04
U-234	2.91e - 03	3.17e - 02	4.14e - 05	1.96e - 05	1.32e - 03	6.24e - 04
U-235	8.31e + 00	9.33e - 01	3.95e - 05	1.93e - 07	1.99e - 01	9.68e - 04
U-236	4.03e + 00	1.71e - 01	5.54e - 04	1.02e - 06	1.77e + 00	3.25e - 03
U-237	4.38e - 08	2.33e - 07	1.89e - 04	4.38e - 05	5.79e - 12	1.34e - 12
U-238	9.75e + 02	7.75e + 02	6.58e - 04	2.27e - 05	1.21e + 02	4.18e + 00
Total Pu	11.23	219.9	0.10	1.43	3.38e + 03	4.75e + 04
Other Ac	1.12	3.74	2.20	10.4	1.18e + 06	3.64e + 06
Total TRU	12.35	223.7	2.30	11.8	1.19e + 06	3.79e + 06
Total U	987.7	776.3	1.48e - 03	8.73e - 05	1.23e + 02	4.18e + 00
Total HM	1000.0	1000.0	2.30	11.8	1.19e + 06	3.79e + 06

\* Taken from Hill ( 1990 ). IFR core is a 1200 MWe fissile self sufficient core with 4 year cycle, 2 year external cycle, 100% recycle of transuranics ( TRU ) and 10% rare earth recycle at ~ 10% discharge burnup.

表9-1-2 再処理で得られる製品の組成、崩壊熱、中性子発生速度  
( LWRは軽水炉燃料をPUREXで、IFRは金属燃料を乾式法で、夫々再処理 )

Normal Process Products* ( PUREX for LWR and PYRO for IFR )						
Nuclide	Relative Isotopic Mass ( g/kg HM )		Decay Heat ( W/kg HM )		Spontaneous Neutrons ( neutrons/s/kg HM )	
	LWR	IFR	LWR	IFR	LWR	IFR
Np-237		1.38e + 00		8.47e - 05		4.26e - 04
Pu-236	2.65e - 04	1.37e - 05	3.05e - 03	7.07e - 04	5.02e - 10	1.30e - 10
Pu-238	9.98e + 00	1.40e + 00	6.33e + 00	2.38e + 00	2.64e + 04	1.10e + 04
Pu-240	2.21e + 02	4.47e + 00	6.71e - 01	5.91e - 02	7.06e + 00	6.67e - 01
Pu-241	1.73e + 02	4.77e + 00	6.71e - 01	5.91e - 02	7.06e + 00	6.67e - 01
Pu-242	4.32e + 01	1.90e + 00	5.04e - 03	6.51e - 04	7.40e + 04	9.73e + 03
Am-241		1.55e + 00		5.50e - 01		5.70e + 00
Am-242m		1.14e - 01		9.40e - 04		4.56e + 01
Am-243		3.89e - 01		8.13e - 03		4.56e + 00
Cm-242		7.96e - 02		1.89e + 01		3.26e + 06
Cm-243		4.32e - 03		2.16e - 02		1.54e + 01
Cm-244		1.78e - 01		1.49e + 00		5.66e + 06
Cm-245		3.65e - 02		6.02e - 04		4.21e + 00
Cm-246		1.06e - 02		3.19e - 04		2.97e + 05
U-234		3.17e - 02		2.42e - 06		7.73e - 05
U-235		9.33e - 01		2.38e - 08		1.20e - 04
U-236		1.71e - 01		1.26e - 07		4.02e - 04
U-237		2.33e - 07		5.42e - 06		1.65e - 13
U-238		7.75e + 02		2.81e - 06		5.17e - 01
Total Pu	1000.0	219.9	9.62	4.30	3.01e + 05	1.42e + 05
Other Ac		3.74		21.01		9.22e + 06
Total TRU		223.7		25.31		9.36e + 06
Total U		776.3		1.08e - 05		5.17e - 01
Total HM	1000.0	1000.0	9.62	25.31	3.01e + 05	9.36e + 06

\* PUREX for LWR with 2 y cooling; PYRO for IFR with 100 d cooling and 2 to 1 ratio for TRU to U.

IFR技術で生産される物質は直接核兵器に使用できないのでIFRは機微技術ではない。さらに放射能レベルが高いために物質への接近ができないことは、厳格な保障措置を単純化する。しかしながらIFR燃料サイクルにおける核物質といえども、国際的なIAEA保障措置契約のもとで管理されねばならない。

今後の重要な技術的課題は、プロセスにおける核物質管理技術を実証することであり、リアルタイムの計量(NRTA)と核物質の追跡管理のためのコンピュータコードの開発と検証であり、これらは現在もANLで実施中である。

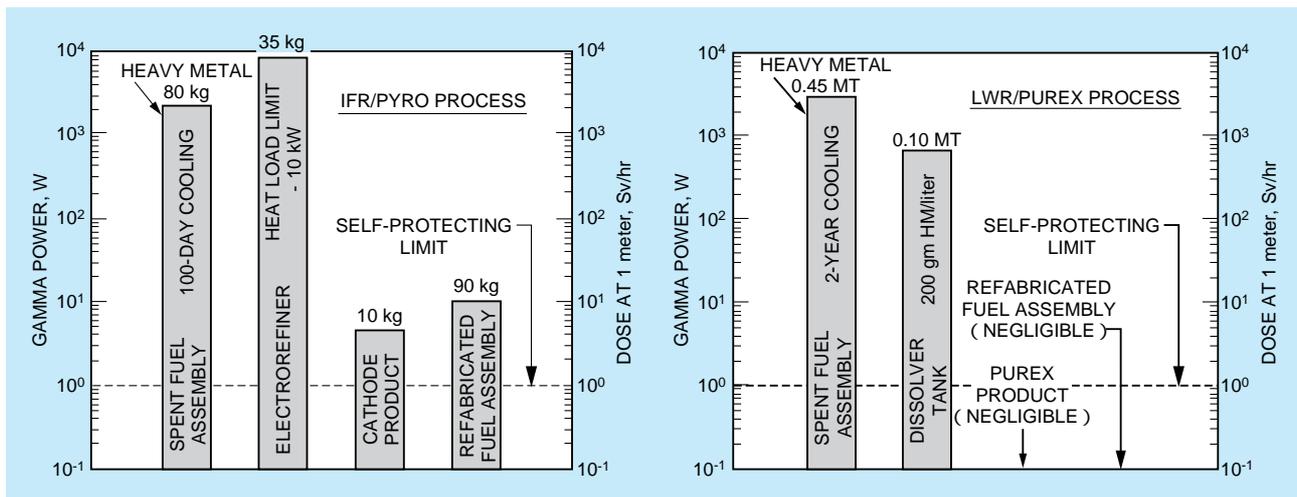


図9-1-1 (左)IFR使用済み燃料と乾式再処理、(右)軽水炉と湿式再処理、の製品からの線強度

## 9 - 2 国内の金属燃料リサイクル施設の保障措置

国内で核物質を扱う施設を運転する場合を想定し、その保障措置について核物質管理センターと共同して調査した。

現行のIAEA保障措置の計量や検認方法は、現行ピューレックス法再処理施設や、純度の高いプルトニウムを扱う燃料加工施設を対象として構築された経緯がある。国内での実用化には、新たに乾式再処理プロセスの保障措置の計画と関連データを示してIAEAを説得すること、およびアメリカの事前同意(日米原子力協定、1987年)を得ることが必要である。

プロセス設計し、その中で行なう核物質の管理(計量ポイント、検認方法など)の具体的な方法とその精度などのデータを作る。本プロセスでは塩素ガスの発

生を避けるために使用済み燃料を全量溶解しないために計量槽を設けないが、射出成型工程で全ての核物質の計量を高精度で行うことによって保障措置を担保するなどを含め、プロセスに特有の新しい計量管理方法を示すことがもっとも重要である。

IAEAの高官、IAEA査察実務経験者、などの経験を聴取した結果、新しい検認方法、計量管理手法などに関してIAEAを説得するためには実績のデータを示すことがもっとも効果的であることが分かった。これらの保障措置関連の技術開発は、プロセス技術開発と同様にきわめて重要なものであることを認識しておくことが必要である。

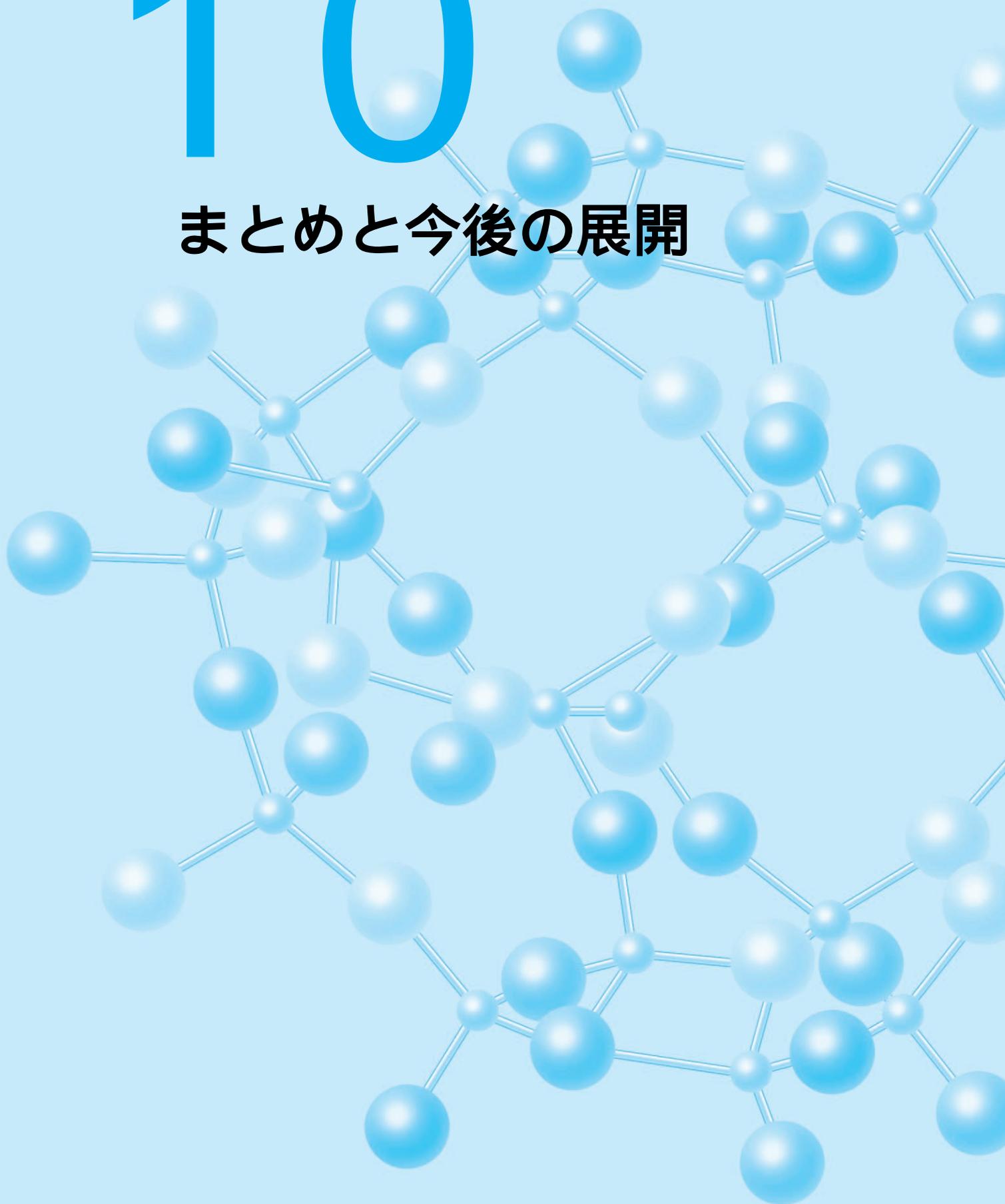


第

10

章

まとめと今後の展開



第10章 まとめと今後の課題 目次

原燃サイクル部長 井上 正

まとめと今後の展開 .....81

---

井上 正 10ページに掲載

# 第10章 まとめと今後の展開

第一部では当研究所で実施している乾式リサイクル技術の研究開発状況とその特徴について紹介した。乾式リサイクル技術が確立できれば、軽水炉燃料サイクルと高速炉燃料サイクルが乾式リサイクル技術という一つの重要な技術の中核として一体化できるため、当研究所ではこれを革新的な次世代燃料サイクル技術と位置づけ、精力的に研究の展開を図っている。乾式リサイクル技術は、使用済み燃料の再処理では燃焼度や燃料組成にほとんど影響されずに適用できるという利点を有しており、経済性が高く二次廃棄物の発生が少ないという今後の社会に適合した技術として期待出来る。

これまで当研究所では、金属燃料の再処理や高レベル廃液からの超ウラン元素の分離に関して、米国DOEをはじめとする国内外機関との共同研究や所内研究により要素技術の成立性を確認すると共に、プロセスフローも構築してきた。特に、金属燃料の乾式再処理技術に関しては、米国との共同研究で小規模なウラン試験や超ウラン元素試験により技術の実証を終了し、工学規模への適用にまで至っていたが、米国の政策変更と共に、共同研究は終了を余儀なくされた。現在は当研究所が中核となって、プルトニウムなどを用いた確認試験や工学装置の開発を実施している。

一方、この技術を酸化物燃料に適用するために必要となる酸化物の還元技術に関しては、リチウムによる還元プロセスを有利と考え、当研究所内での研究に加え、英国AEAテクノロジー社と共同で超ウラン元素を使った試験を実施している。これまでにウランやプルトニウム

を単独で使った試験で技術の成立性を確認しており、今後は使用済み燃料のような複雑な系での成立性が鍵となる。

また、高レベル廃液からの超ウラン元素の分離に関しては、小規模な超ウラン元素を用いた試験で、多段抽出により各々の超ウラン元素の99%以上を分離できることを実証し、それらの結果をもとに二次廃棄物が最小限に出来るプロセスの構築を行った。乾式リサイクルプロセスから発生する塩廃棄物に関しては、人工鉱物に固化する方法、ガラスに固化する方法を開発しており、廃棄物の性状に合わせて適切に選択していく。

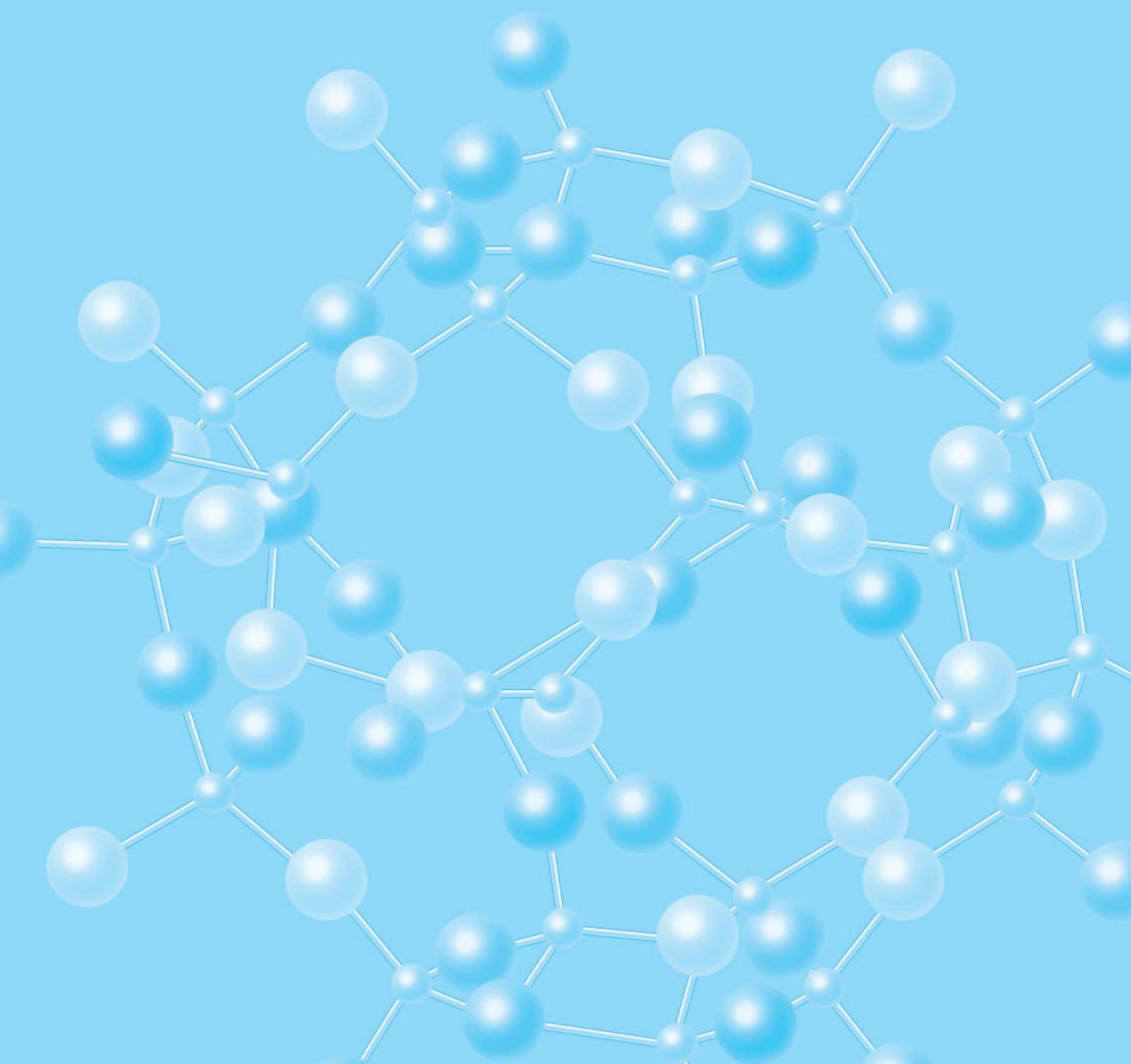
今後は各要素技術やプロセスの確立の進捗にあわせ、逐次経済性評価を実施し、経済性の観点からのプロセスの簡素化を目指す。また、これまでに構築したプロセスを超ウラン元素や実燃料、高レベル廃液を用いて実証して行くと共に、各要素技術の工学装置の検討を行う予定である。さらに、核物質管理を簡便にする方法の開発や遠隔操作に関する検討も実施する。

現在、これらの課題を進めるため、ヨーロッパ連合超ウラン元素研究所に実燃料まで取り扱いが可能な施設を設置した段階である。また国内でも核燃料サイクル開発機構との共同研究でプルトニウム試験を実施していくと共に、その成果をもとに工学装置の検討へと発展させて行く予定である。これらを踏まえ、当面の目標としては2005年頃までに超ウラン元素を用いた技術実証を終了し実用プロセスの提案を行いたいと考えている。



# 第Ⅱ部

金属燃料FBR



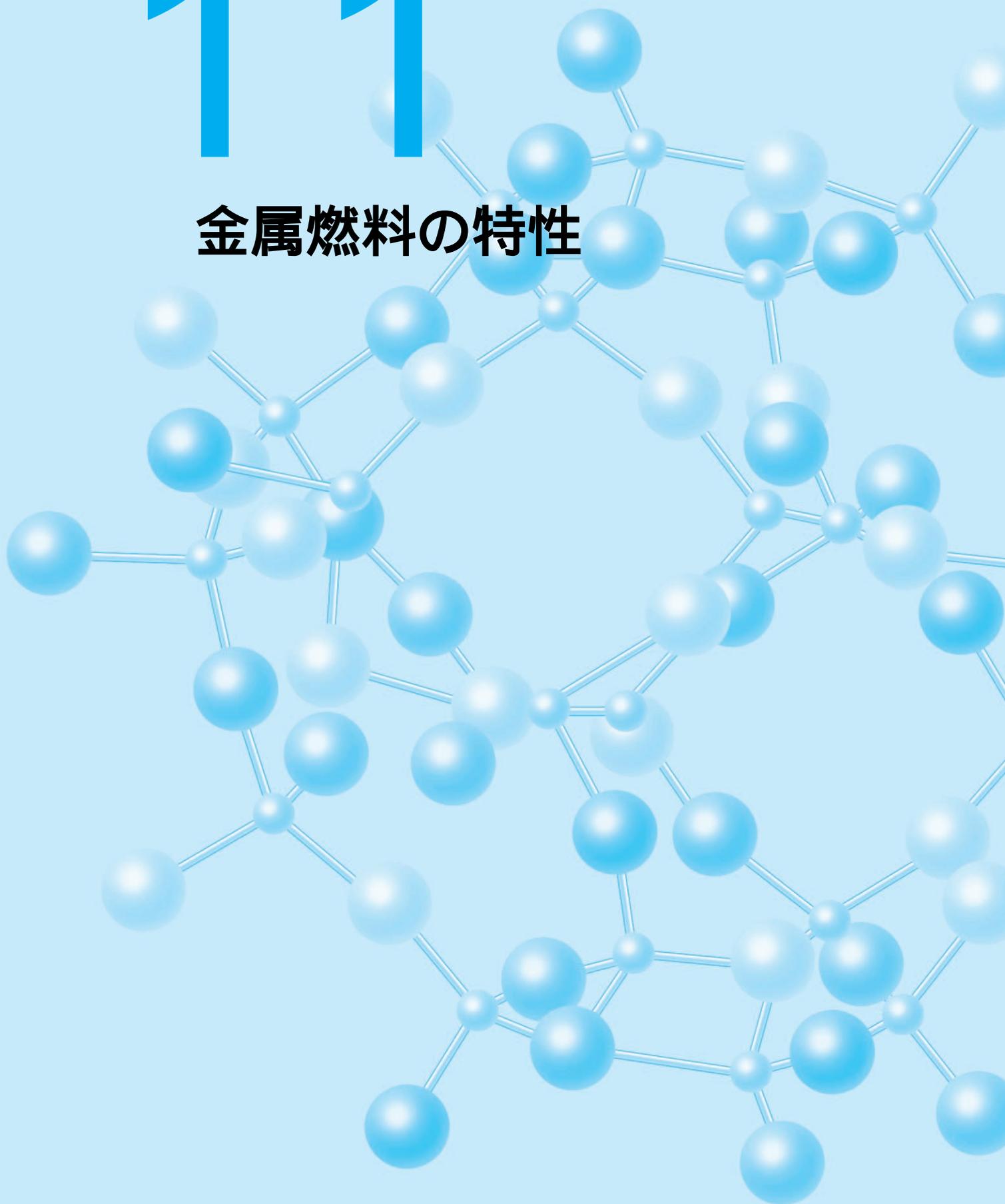


第

# 11

章

## 金属燃料の特性



原子力システム部 上席研究員 横尾 健  
原燃サイクル部 主任研究員 尾形 孝成

11 - 1 金属燃料とは .....88  
11 - 2 照射中のふるまい .....88



横尾 健 (1982年入所)

軽水炉の炉心核熱流動解析手法の研究、原子力情報センターの情報システム(NICS)や予防保全支援システム(CSPAR)の開発などを行った後、金属燃料FBRと乾式リサイクルの研究に従事。経済的かつ安全な燃料サイクル概念の確立をめざして、主に、燃料・炉心設計と安全評価に関わる解析技術の開発を行ってきた。



尾形 孝成 (1987年入所)

入所以来、高速増殖炉用金属燃料の開発研究に従事。特に、照射挙動解析コードの開発および燃料要素の健全性評価を担当。金属燃料と被覆管との共存性に関する実験も行うなど、金属燃料の特性について、実用性評価の観点から幅広く検討している。

# 第11章 金属燃料の特性

1950年代から60年代にかけて運転が始まった初期のFBR(EBR-、EBR-、Enrico-Fermi、DFR)では金属燃料が使用された。しかし、当時の設計では、燃料合金のスウェリング<sup>\*1</sup>のために被覆管に過大な応力が生じて、低い燃焼度<sup>\*2</sup>で被覆管が破損した。また、融点が比較的低い<sup>1</sup>ため、炉心の高温化に対する余裕が小さいと考えられた。そのため、各国における燃料開発の主流は、軽水炉で用いられていた酸化燃料へと移行した。この流れの中にあっても、米国アルゴンヌ国立研究所(ANL)では、実験炉EBR-IIの炉心用燃料として金属燃料の開発を継続し、最適な燃料組成の探索やスミア密度<sup>\*3</sup>の変更など、高燃焼度達成のための設計の改良が行なわれた。その結果、スミア密度を低減したウラン-プルトニウム-ジルコニウム三元合金燃料によって、20万MWd/t<sup>\*2</sup>に近い

実用上十分な高燃焼度を達成するに至った。この燃料開発の成功によって、密度が高く熱伝導が良いという利点を活かして経済性と安全性の向上を図った金属燃料FBRが可能となった。さらに、前章までに述べたコンパクトな乾式再処理プロセスおよび成型加工プロセスを組み合わせて、魅力的な金属燃料FBRサイクルを実現できる可能性が出てきた。

電力中央研究所では早くからこの金属燃料FBRに着目し、1987年には独自の解析システム(燃料挙動解析コード、炉心核熱流動設計コードシステム、プラント過渡解析コード)の開発に着手した。そして、この解析システムを用い、公開文献に発表された燃料物性値や燃料照射データなどを活用して、金属燃料FBRの設計研究を進めてきた。第11、12、および13章では、この研究の成果にもとづいて、燃料の特色を生かした炉心の高性能化や受動的安全性の確保の可能性について述べる。第14章では、軽水炉の使用済燃料に含まれるマイナーアクチニドを金属燃料FBRサイクルに取り込むことによって、軽水炉からの高レベル廃棄物の放射能毒性の低減をはかる方法について紹介し、その技術的課題と解決の見通しについて述べる。

\*1スウェリング：核分裂によって生成される元素(核分裂生成物)が燃料体に蓄積することによって燃料体自身が膨らむ現象。ガス状の核分裂生成物の一部は燃料体の内部で気泡を形成するため、特に燃料体を膨らます効果が大きい(ガススウェリング)。

\*2燃焼度：核燃料の単位質量あたりに放出されたエネルギーで、燃焼の度合いを表わす。単位としてMWd/tやGWd/tなどが用いられる。燃料物質(ウランやプルトニウム)の始めの量に対する燃焼した量の割合(燃焼率)と同じ意味で用いられることもある。この場合の単位は、例えば原子数パーセント(at%)が用いられる。

\*3スミア密度：被覆管の内側を燃料体が占める面積割合。

## 11 - 1 金属燃料とは

FBR用の金属燃料ピンの概念を、酸化物燃料ピンと比較して図11-1-1に示す。ウランとジルコニウムからなる合金、あるいはこれにプルトニウムを加えた合金を燃料体として用いる。通常、燃料中のジルコニウムの割合は、重量割合で10%とされる。この燃料合金を鋳造法によって数10cmの棒に成型加工したものを(燃料スラグと呼ぶ)

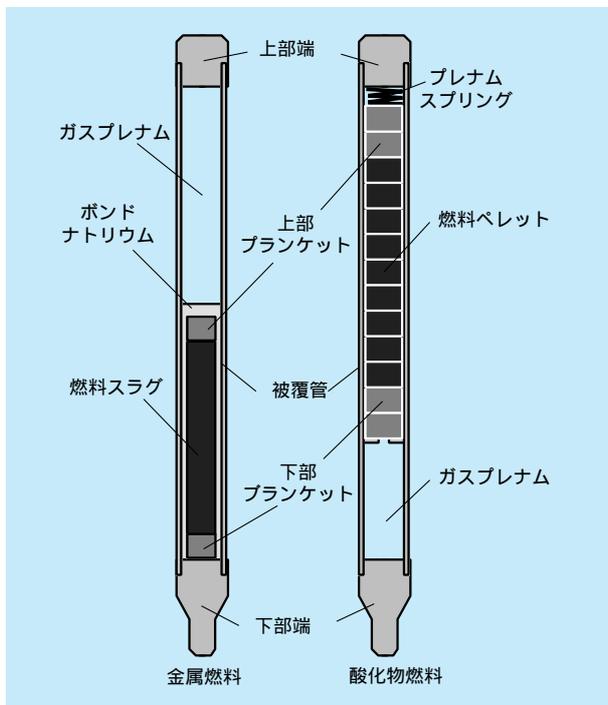


図11-1-1 金属燃料ピンと酸化物燃料ピンの概念図

を必要に応じて積み重ねて使用する。被覆管材には、酸化物燃料ピンと同様に、オーステナイト系またはフェライト系などのステンレス鋼が用いられる。

表11-1-1には、酸化物、金属、および窒化物の3種類のFBR用燃料の代表的な特性を示す。金属燃料は密度が高く熱伝導が良いが、融点は比較的低い。金属燃料ではスミア密度を約75%とするが、この値は他の燃料に比べて低い。これは、後述するように、燃料-被覆管機械的相互作用による被覆管の破損を防止するために、燃料と被覆管との隙間を比較的大きくするためである。また、金属燃料はナトリウムとの共存性が良いため、燃料と被覆管との隙間にナトリウムを充填して(ボンドナトリウムと呼ぶ)、燃料スラグから冷却材への熱の伝達を促進することができる。

表11-1-1 代表的な各種高速炉燃料の比較

	酸化物 (U, 15Pu)O <sub>2</sub>	金属 U-13Pu-10Zr	窒化物 (U, 14Pu)N
燃料要素外径 (mm)	8.5	8.5	8.5
ペレット密度 (g/cc、常温)	11.0	15.8	14.3
スミア密度 (%TD)	87.0	75.0	80.0
炉心平均重金属密度 (g/cc)	3.7	4.7	4.8
炉心高さ (cm)	100.0	80.0	78.0
ボンド材	He	Na	He、Na
熱伝導率 (W/m/K、定格時)	4.0	26.6	19.2
融点 (°C)	2750	1120	2500
照射スエリング	中	大	小
照射クリープ	小	大	小
照射実績	> 100万本	数千本	数百本

## 11 - 2 照射中のふるまい

ウラン - ジルコニウム合金は米国の実験炉EBR-1の炉心燃料として使用され、1万本以上の使用実績がある。また、ウラン - プルトニウム - ジルコニウム合金燃料は、EBR-1および実験炉FFTFにおいて照射試験が行なわれ、その照射本数は合計約600本に至っている。照射試験では、被覆管温度、線出力\*1、スミア密度など、燃

料ピンの仕様や照射条件を様々に変えて行なわれた。これらの試験条件のうち被覆管温度と線出力は、実用炉で期待されるよりやや低い範囲にとどまっているものの、20万MWd/tに近い実用上十分な高燃焼度が達成されている。一連の照射試験によって明らかにされた金属燃料要素の照射下でのふるまいを次に述べる。

燃焼によって生じる核分裂生成物 (FP) のうちガス状のもの (FPガス) が燃料スラグ内部に蓄積して気泡が形成さ

\*1線出力：燃料要素の単位長さあたりの出力。線出力密度とも呼ぶ。単位としてW/cmやW/mが用いられる。

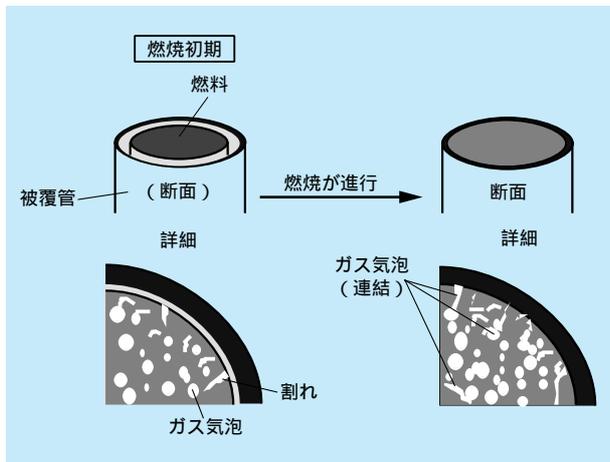


図11-2-1 金属燃料内のFPガス気泡の発達（概念図）

れる。このために燃料スラッグの体積増加、すなわちスウェリングが生じる。燃料スラッグ中の気泡の割合が増加すると、それらが互いに合体・連結するようになり、燃料スラッグの内部から外部へ通じた「トンネル」が形成される(図11-2-1)。FPガスはこのトンネルを通じて燃料スラッグの外部へ排出されるようになり、FPガスが燃料スラッグ内部に蓄積する速度が減少する。その結果、スウェリングの速度が減り、燃料スラッグと被覆管との間の機械的な相互作用(燃料-被覆管機械的相互作用)<sup>\*2</sup>が緩和される。したがって、照射初期の燃料スラッグのスウェリングに起因した燃料-被覆管機械的相互作用による被覆管の破損を防止するためには、「トンネル」が形成されるために必要なFPガス気泡の発達を許容する、つまりある程度のスウェリングを許容することが重要である。そのためには、被覆管の内部にスウェリングのための空間を確保すればよい。その空間の大きさは、照射試験結果から被覆管内側面積の20~25%(スミア密度80~75%に対応)とされているが、目標燃焼度、被覆管材料、使用条件などに応じて最適な値が定まるであろう。

当所で開発した金属燃料挙動解析コードALFUSを用いれば、図11-2-2に示すような詳細なスウェリング量の評価と、これにもとづく燃料ピンの応力-ひずみ解析が

<sup>\*2</sup>燃料-被覆管機械的相互作用：例えば、燃料体が被覆管と接触していて、しかも燃料体の外径の増加速度が被覆管のそれより速い場合、被覆管は燃料体から力(応力)を受け、その反作用で燃料体は被覆管から圧縮力を受ける。このような燃料体と被覆管との間で生じる機械的な作用を、燃料-被覆管機械的相互作用と呼ぶ。FCMI(Fuel-Cladding Mechanical Interaction)と略称されることもある。燃料体の外径増加の要因のひとつがスウェリングである。

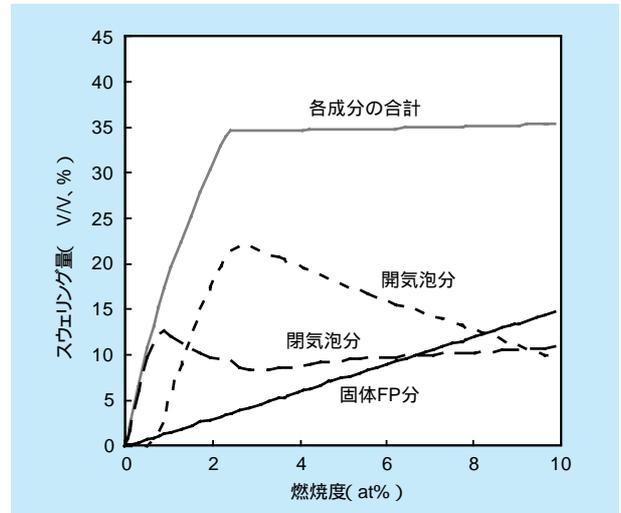


図11-2-2 ALFUSコードによるEBR- 照射燃料の解析結果 (燃料合金のスウェリング量の内訳)

可能であり、被覆管の破損に対する余裕を定量的に予測することができる。高燃焼度までの被覆管の健全性を確保するためには、スミア密度を適切な値としたうえで、ガスプレナム部に蓄積するFPガスによる内圧の増加に対して被覆管のクリープ寿命が十分となるように、被覆管肉厚およびプレナム容積を設定すればよい。なお、図11-2-2に示したように、高燃焼度では固体状の核分裂生成物(固体FP)の蓄積によるスウェリングが大きくなり、燃料-被覆管機械的相互作用の大きさが増加する。このような固体FPの効果もALFUSで評価できる。

燃料スラッグ内部で核分裂によって発生した熱は、被覆管の外側を流れる冷却材によって除去される。そのため、燃料スラッグの中心部と外側との間に温度差が生じる。この温度差によって「熱拡散」と呼ばれる現象が生じ、燃料成分であるジルコニウムやウランが移動する。その結果、初期には均一であった燃料スラッグの組成が均一でなくなる。金属燃料ピンの照射中の健全性を評価する場合、この燃料成分の分布を正しく予測して、組成の変化に対応した適切な熱伝導率や融点などの物性値を用いる必要がある。さらに、気泡による熱伝導率の劣化、固体FPが物性値に与える影響、などの評価も重要である。

ウラン、プルトニウム、および被覆管の主要成分である鉄との合金は、組成によっては比較的低い温度(700~650)に融点がある。燃料と被覆管との接触部に形成される反応層に溶融した部分(液相)が生じると、それによって被覆管が侵食される。このため、反応層の各部分の

組成を把握して、最も融点が低い部分でも液相とならない温度を燃料ピンの使用上限とする必要がある。当研究所では、液相が形成される条件を評価する方法を開発するため、ウラン - プルトニウム - ジルコニウム合金と鉄

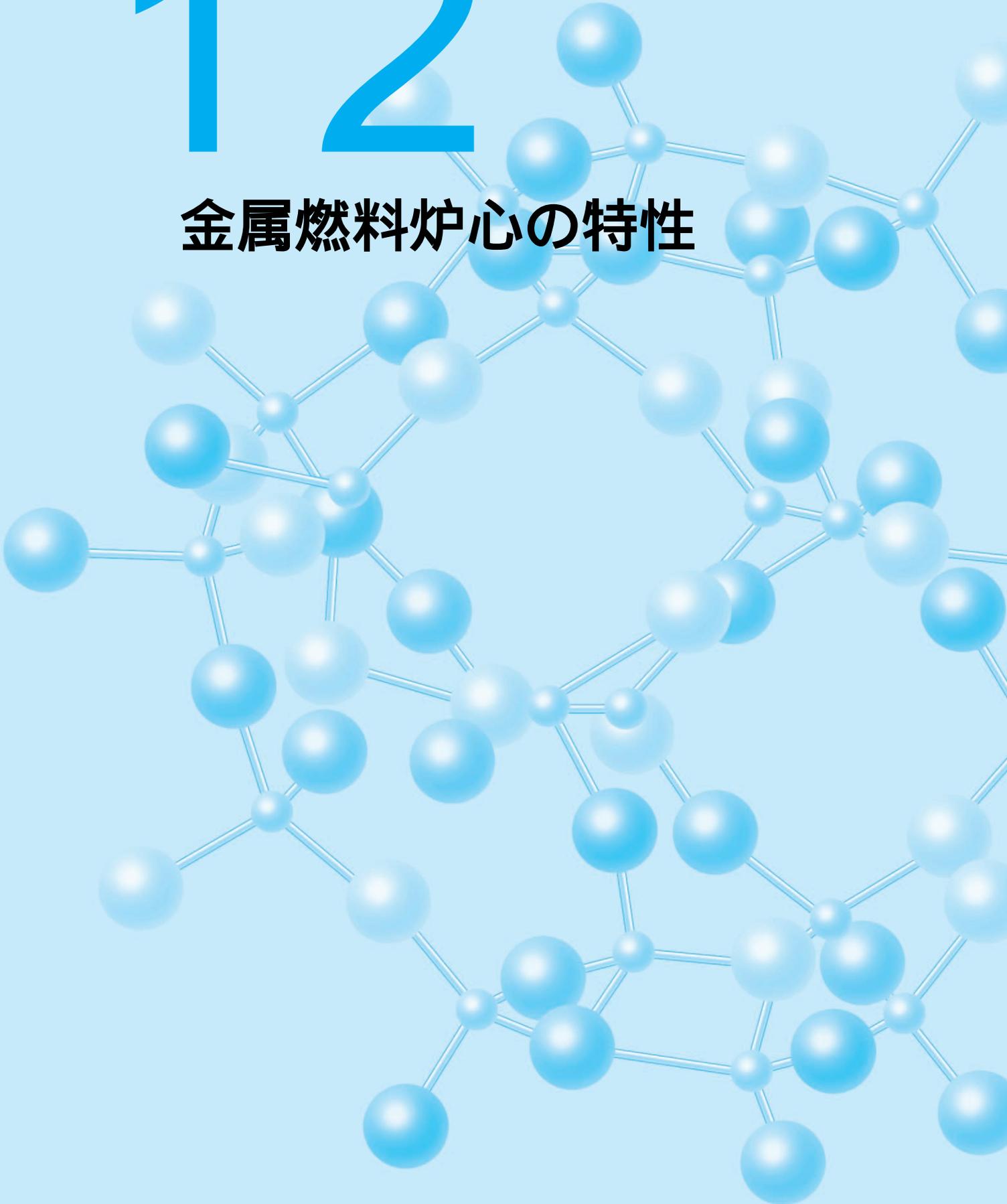
との反応実験 など実施して基礎的なデータを取得するとともに、熱力学的な解析による反応生成物の予測などを進めている。

第

# 12

章

## 金属燃料炉心の特性



第12章 金属燃料炉心の特性 目次

原子カシステム部 上席研究員 横尾 健  
原燃サイクル部 主任研究員 尾形 孝成

12 - 1	燃焼特性 .....	93
12 - 2	炉心の反応度特性 .....	94
12 - 3	被覆管最高温度と炉心出口温度 .....	96
12 - 4	燃料温度の変化と燃料要素の寿命支配因子 .....	97
12 - 5	金属燃料FBRサイクル導入時のマスバランス .....	98

---

横尾 健 86ページに掲載  
尾形 孝成 86ページに掲載



高い酸素等の軽い原子核が含まれないため、炉内の中性子の平均エネルギーが高くなるためである。

一方、高い転換性能をより積極的に活用する炉心設計方針として、燃焼反応度の大幅な低減によって安全性の向上を図ることが挙げられる。制御棒に必要な反応度の大部分は、燃焼による反応度低下量の補償分で占められる<sup>\*1</sup>。したがって、この反応度を1\$<sup>\*1</sup>以下と非常に小さくしておけば、制御棒が誤って引き抜かれた場合に挿入される反応度が小さくなって、事故の重大性が緩和されることになる。しかし、一般に燃焼反応度の低減を目指した炉心では、経済性の重要な指標である燃焼度を高く設定することが容易ではなく、これらの両立をはかることが炉心設計の課題となる。前出の図12-1-1には、この点に関する評価の結果も合わせて示してある。図12-1-1から、大型炉では、燃料ピンの外径を太くして炉心の中の燃料の体積割合を増加させることによって、燃焼反応度を1\$以下に抑え、かつ燃焼度を90GWd/t程度にまで高められることがわかる。この場合、炉心部の転換率は1.0に近い値となる。一方、小型炉においては、燃焼

反応度を適切な範囲に抑えるためにはかなりの太径化が必要であり、均質炉心では十分な燃焼度が得られなくなる。その場合には、径方向に非均質な炉心<sup>\*2</sup>にして、燃料交換の際に内部ブランケット<sup>\*2</sup>同士で配置変えを行うなど、出力の時間変化を抑え、かつ炉心内の出力分布が平坦となるように一層の工夫を行うことにより、目標の達成が可能となる。前出の表12-1-1には、このような炉心の特性例として、1000MWe均質炉心と300MWe非均質炉心の値も示している。

なお、金属燃料炉心の設計では、通常の炉心設計上の不確かさに加えて、照射中の燃料スラグの変形、再処理工程において核分裂生成物が除去される割合、および燃料スラグ製造の際の製品のばらつき等も炉心の反応度に影響を与えると考えられ、その影響を補うための反応度も制御棒に必要である。当研究所の評価によれば、このような種々の影響を考慮しても、炉心の規模によらず、制御棒が誤って引き抜かれた場合に挿入される上述の反応度を小さく抑え、事故の重大性を緩和することが可能である。

## 12 - 2 炉心の反応度特性

前出の表12-1-1に燃焼特性を示した300MWeおよび1000MWe炉心における主な反応度特性を、1000MWe酸化燃料炉心の例と比較して表12-2-1に示す。金属燃料炉心の第一の特徴的な点は、酸化燃料炉心と比べて炉内の中性子の平均エネルギーが高いためにドブドラ係数<sup>\*5</sup>、<sup>\*6</sup>が小さいことである。炉内で平均的な燃料要素における定格時の温度分布を図12-2-1に示しているが、金属燃料ではかなり平坦な温度分布となる。これは、金

属燃料では燃料スラグの熱伝導率が高く、しかもボンドナトリウム(11-1節参照)を使用するため、燃料スラグから冷却材への熱の伝達が良好であることによる。このように金属燃料ピンからの熱の除去が速やかであるから、炉心の出力が上昇した際の燃料温度上昇量が小さい。そのため、出力変化に対する反応度係数である出力係数<sup>\*5</sup>の大きさ(絶対値)が小さくなる。ただし、表12-2-1に示したように20%の不確かさを見込んで出力係数は負<sup>\*5</sup>であるので、起動時から定格までのすべての運転状態にわたって、原子炉の安定な制御性を保証することは十分に可能である。なお、ゼロ出力から定格出力までの出力上昇を補うために必要な反応度(出力補償反応度)は酸化燃料炉心の数分の1程度である。

表12-2-1に示した燃料温度係数<sup>\*5</sup>は、燃料の熱膨張による炉心高さや燃料密度の変化に対応するものであるが、出力規模、炉心配置、および燃料物質の違いによる差は小さい。なお、金属燃料の熱膨張率は酸化燃料より大

<sup>\*5</sup> 反応度係数：原子炉の状態を表わす量(出力、燃料温度、冷却材温度など)が変化した場合の反応度(\*1参照)変化を表わす。対象としている量に応じて、出力係数、燃料温度係数、などと呼ぶ。反応度係数が負であることは、原子炉に生じたある変化(例えば温度上昇)が、反応度を下げる方向、すなわち原子炉出力を下げる方向に作用することを意味する。

<sup>\*6</sup> ドブドラ効果：燃料温度が上昇すると、プルトニウム239などの核分裂性元素よりも他の元素(特にウラン238)による中性子の吸収量が多くなって、反応度が下がる(核分裂の連鎖反応が抑制される)現象をドブドラ効果と呼ぶ。ドブドラ効果に起因する反応度(\*1参照)がドブドラ反応度で、その反応度係数(\*5参照)をドブドラ係数と呼ぶ。これは、一般には燃料温度係数の一部に含められるが、本編では説明の都合上、燃料温度係数にドブドラ係数は含めていない。

表12-2-1 各種の炉心設計例における反応度特性の比較(平衡サイクル末期、定格時)

反応度係数	300MWe金属燃料炉心		1000MWe均質炉心	
	均質	非均質	金属燃料	酸化物燃料
遅発中性子実効割合( $10^{-3}$ )	3.75	3.89	3.78	3.9
燃焼補償反応度( \$ )	10.2	- 0.05	2.1	7.3
温度補償反応度( 低温 高温、 \$ )	0.48	0.45	0.49	0.6
出力補償反応度( 高温 定格、 \$ )	0.41	0.26	0.31	2.1
燃料温度係数( $\rho /$ )	- 0.11	- 0.06	- 0.08	- 0.09
冷却材温度係数( $\rho /$ )	0.16	0.17	0.21	0.19
炉心径膨張係数( $\rho /$ )	- 0.16	- 0.15	- 0.19	- 0.20
ドップラ係数( $10^{-3}\text{TdK/dT}$ )	- 4.04	- 4.64	- 4.60	- 7.84
出力係数( $\rho / \%$ 出力、20%error)	- 0.19 $\pm$ 0.07	- 0.11 $\pm$ 0.06	- 0.14 $\pm$ 0.08	- 1.44 $\pm$ 0.25

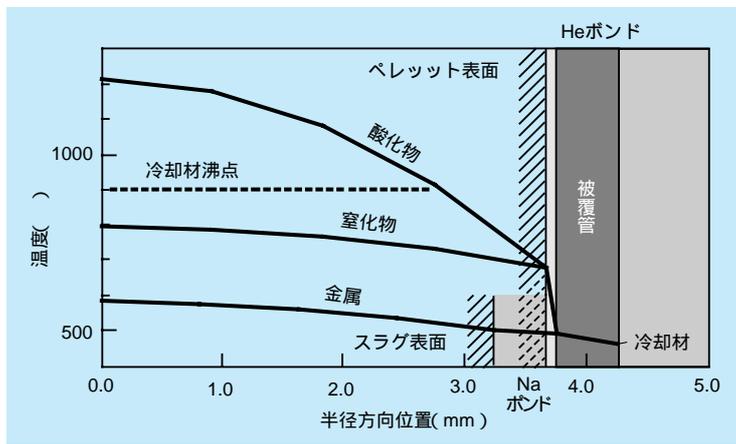


図12-2-1 各種燃料炉心の燃料要素内径方向温度分布 (1600MW炉心)

きいが、出力変化に伴う燃料温度の変化が比較的小さいため、熱膨張量はあまり大きくなりません。さらに、燃料スラグがスウェリングして被覆管と接触した後は、燃料スラグは被覆管に拘束されるため、熱膨張による炉心高さの変化もあまり大きくなりません。炉心の径方向膨張係数は、炉心支持板あるいはラッパ管(図12-2-2参照)の熱膨張に対応する反応度係数であるが、これも炉心配置や燃料物質に対する依存性が小さい。

一方、冷却材温度係数については金属燃料炉心では若干大きな値を示す傾向がある。これは、炉内の中性子の平均エネルギーが高いことに加え、冷却材以外に軽い原子核がないために、冷却材密度変化の影響が相対的に大きくなることに起因している。同様の理由で、沸騰などのために冷却材の一部が無くなった場合に加わる正の反応度(ボイド反応度)が大きくなることが懸念されたが、図12-2-3に示

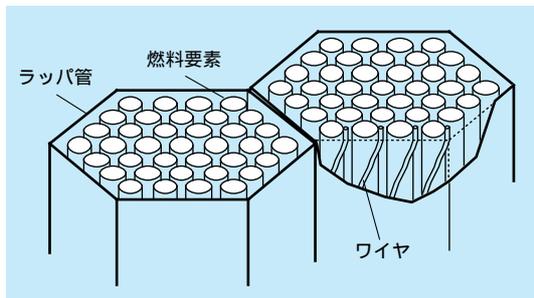


図12-2-2 高速炉の燃料集合体の概念図

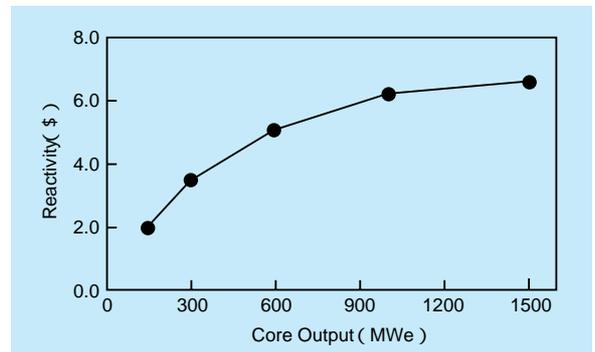


図12-2-3 各出力規模の金属燃料炉心の炉心部ボイド反応度

すように、金属燃料炉心のポイド反応度は、大型炉においても極端に大きくはならない。安全性確保の観点から、「スクラム失敗を伴う冷却材流量喪失型事象（第13章参照）

の際に炉心に加わる反応度の制限値は8%とされるが、その制限値を下回るように金属燃料炉心を設計することが可能である。

## 12 - 3 被覆管最高温度と炉心出口温度

一般に、FBRの燃料集合体には、前出の図12-2-2に示したようなラッパ管が付けられるため、冷却材の流量を集合体毎に調節することができる。そのため、各々の燃料集合体の発熱量に応じて冷却材流量を適切に配分することによって、冷却材の炉心出口における温度を平坦化して、炉心の発熱の有効利用を図ることができる。一方、図12-3-1に示すように、通常運転時および運転中の異常な過渡変化の際の燃料と構造材の健全性確保ならびに冷却材の沸騰防止などの観点から、被覆管など炉心各部の温度に対して制限値が設定される。そして、炉心および各集合体内の出力分布とその変動を考慮した詳細な熱流動評価を行った上で、最も発熱/流量比が高く温度条件が厳しくなる部分においてもこれらの制限が満たされるように、各集合体の必要流量が定められる。このような設計を熱流設計と呼ぶ。

各燃料集合体の冷却材流量の調節は、燃料集合体下部の冷却材導入部（エントランスノズル）と炉心支持板連結管の開口部の組み合わせを変えることによって行われる。運転中に冷却材流量を調節することは困難であるため、燃料集合体の発熱量が使用期間中で最大となる時点に合

わせた一定の流量を配分する。また、冷却材流量の微調節は技術的に困難であるため、一部の集合体には必要以上の流量が配分される。このような流量配分上の限界から各集合体の間に温度差が生じ、さらに集合体内の出力/流量分布の不整合から高温点ができることになる。この高温点において設計上の各種の不確かさを考慮した場合でも、通常運転時および運転中の異常な過渡変化時の各部の温度が制限値以下となることが要求される。このような従来からの炉心設計の方法は、金属燃料炉心に対しても適用される。

前出の表12-1-1に燃焼特性を示した300MWe径非均質炉心および1000MWe 2 領域均質炉心に対する熱流設計の結果を、表12-3-1 に示す。この設計では、11章で述べた液相形成の制限の観点から、定格時および過渡時の被覆管最高温度を各々620-625 および700 に制限している。そのため、炉心出口温度は約500 と現行の酸化燃料炉心より若干低い値となっている。なお、今後原型炉などにおける実績が反映されて工学的安全係数の合理化がなされると想定した場合、表中に示したように、炉心出口温度を10%程度高く設定できると期待される。

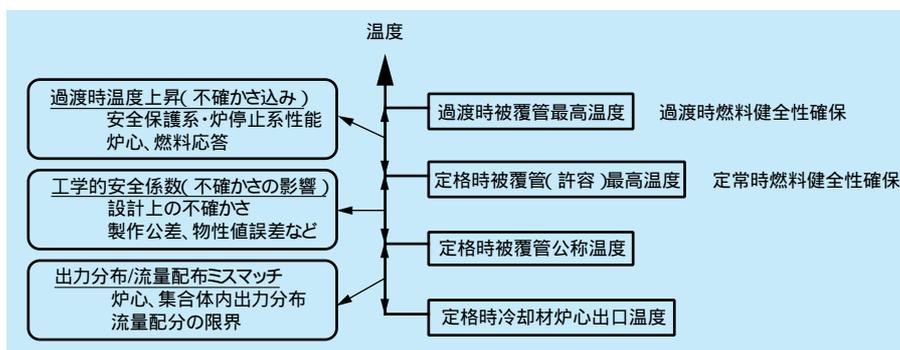


図12-3-1 炉心熱流設計の考え方

表12-3-1 炉心温度評価結果の例(入口温度 = 355 )

1000MWe 2 領域均質炉心

300MWe径方向非均質炉心

(工学的安全係数改善を想定)

(液相形成問題の解消を想定)

被覆管最高温度		実効的 工安係数	炉心出口 温度
定格時	過渡時		
620	700	1.244	498
620	700	1.150	511
675	770	1.245	528

被覆管最高温度		実効的 工安係数	炉心出口 温度
定格時	過渡時		
625	700	1.244	499
625	700	1.150	510
675	770	1.245	524

## 12 - 4 燃料温度の変化と燃料要素の寿命支配因子

前出の表12-1-1に示した炉心の中で線出力が最大となる燃料ピンの各部の温度履歴を、熱流体力設計の結果をもとに、金属燃料挙動解析コードSESAME を用いて解析した。この結果を図12-4-1に示す。SESAMEは設計用の簡易解析に用いることを目的として、当研究所で開発した解析コードである。11-2節で述べたALFUSと異なり、SESAMEには経験的な解析モデルが多く用いられている。大型の1000MWe 2 領域均質炉心の場合、線出力が最大となる燃料ピンは、転換率<sup>\*3</sup>が高い内側炉心<sup>\*2</sup>にあるために、燃料ピンの使用期間中、線出力はあまり下がらない。一方、300MWe非均質炉心の場合では、転換率が低いために、燃料ピンの線出力は燃焼が進むにつれて減少してゆく。燃料スラッグの熱伝導率は、FPガス気泡

の発達(11-2節)にともなって劣化し、気泡が連結して形成される「トンネル」にボンドナトリウムが浸入し始める直前に最も悪くなる。上記の2つの炉心の燃料温度のピークはこの時点で出ており、線出力が最大になる時点には対応しない。

スミア密度を適切な値( ~ 75% )とすることによって照射初期の燃料 - 被覆管機械的相互作用を低く抑える設計(11-2節参照)がとられた金属燃料ピンにおいても、炉内での使用を続けるうちに、やがては被覆管にかかる力(応力)や被覆管のひずみが増加して、燃料ピンの健全性が損なわれてくる。被覆管の応力や外径が増加する主な原因には、ガスプレナム(図11-1-1参照)に放出されたFPガスが蓄積して被覆管内のガス圧が高くなること、

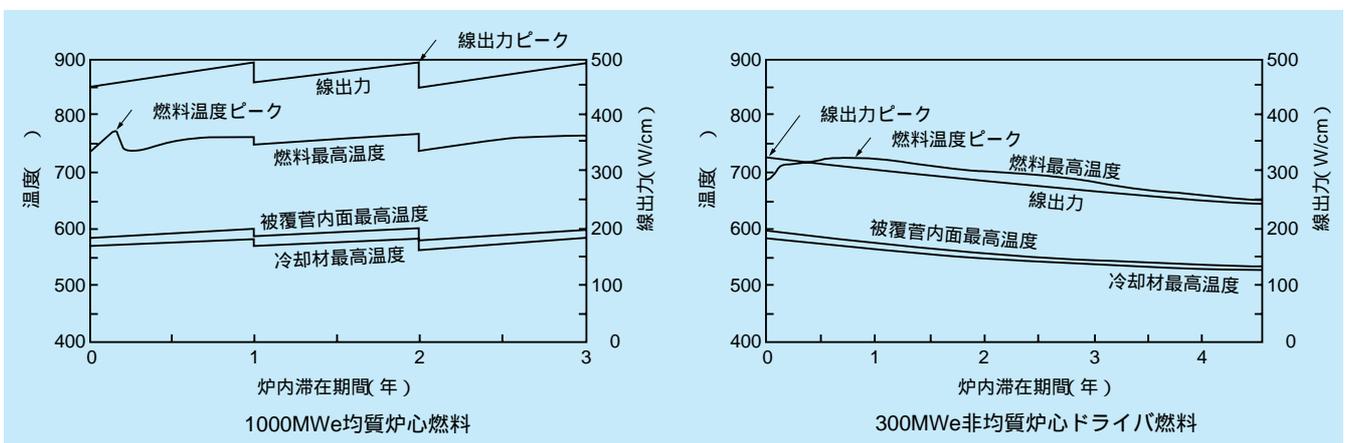


図12-4-1 金属燃料炉心の最大出力燃料要素各部温度履歴評価例

11-2節で述べた固体FPの蓄積によって燃料スラグのスウェリングが増加して燃料 - 被覆管機械的相互作用が大きくなること、核分裂生成物の一部である希土類元素が被覆管と反応して被覆管の有効な厚さが減少すること、の3つがある。これらが金属燃料ピンの寿命を支配する

因子である。図12-4-1に示したような温度や線出力の使用期間中の変動を踏まえて、寿命支配因子の定量的な評価を行い、被覆管の破損に対する余裕が十分となるように燃料ピンを設計することで、使用期間中の燃料ピンの健全性が保たれるようにする。

## 12 - 5 金属燃料FBRサイクル導入時のマスバランス

近年のウラン価格の安定、FBRのプラントコスト低減策の不確かさなどを反映して、FBRとその燃料サイクルが経済的競争力を持つ時代は来世紀中葉以降になるとの見通しが出てきた。FBRの実用化が大幅に遅れ、これに伴って軽水炉時代が長期化すると、軽水炉で生成される超ウラン元素(プルトニウムとマイナーアクチニド：ネプツニウム、アメリカシウム、キュリウムなど)が大量に蓄積されることになる。さらに、軽水炉の使用済燃料を長期にわたって貯蔵している間に、放射性崩壊によって超ウラン元素の中でも原子番号のより大きなものの割合が増加する。一般に、超ウラン元素は、他の放射性同位元素と比べて放射能が減少する速度が遅いため、放射性廃棄物の処分においては大きな負担となる。本節では、金属燃料FBRサイクルの導入によって超ウラン元素の負担を解消する方策について、あるシナリオを設定して評価した結果を紹介する。

設定したシナリオでは、図12-5-1に示すように一定規模の軽水炉発電が一定期間(今後数十年)継続した後、ある時点から寿命に達した軽水炉を順次FBRで置き換える。軽水炉発電で蓄積されたプルトニウムを含む超ウラ

ン元素は、必要に応じて再処理および乾式群分離によって回収され、FBRの建設時に必要な初装荷燃料と取り替え燃料( 燃焼補償分 )に用いられる( 図12-5-2 )。また、FBRの導入が始まると速やかにFBRの燃料サイクルも開始され、超ウラン元素の回収・リサイクルが行われるものとした。ここで、軽水炉としては大型のPWR、FBRの炉心には当研究所で設計した電気出力1,500MWe相当の金属燃料炉心を想定した。軽水炉発電の継続期間や燃焼度などの条件を色々に変えた場合の超ウラン元素の減少速度などの特性を求めて、FBR導入時の超ウラン元素の収支等を解析した。

一例として、総発電量50GWeの軽水炉( 燃焼度=48GWd/t )が50年間運転され、それ以降毎年その1/40 ( 軽水炉の寿命を40年としたことに相当 ) をマイナーアクチニド含有率2%のFBRで置き換えることを想定した場合の解析結果を図12-5-3に示す。図からわかるように、軽水炉発電によって蓄積した超ウラン元素の量は増加することなく順調に減少し、約50年ですべて消費される。また、この間の燃料サイクル全体からの廃棄物中に含まれる超ウラン元素の量は非常に小さく抑えられる。このように、軽水炉発電が長期化した場合でも、最終的に同規模の金属燃料FBRサイクルへの移行がなされるならば、蓄積した超ウラン元素を消費することは十分に可能であると言える。

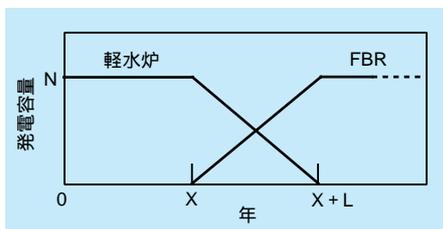


図12-5-1 軽水炉発電から金属燃料FBRサイクルへの移行シナリオ  
一定規模(N-GWe)の軽水炉発電を一定期間(X年)継続した後寿命(L)に達した炉を順次FBRでリブレース

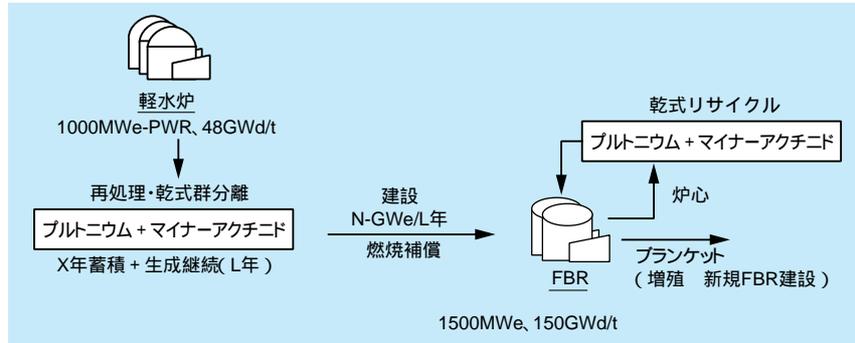


図12-5-2 軽水炉発電から金属燃料FBRサイクルへの移行時のマスフローモデル

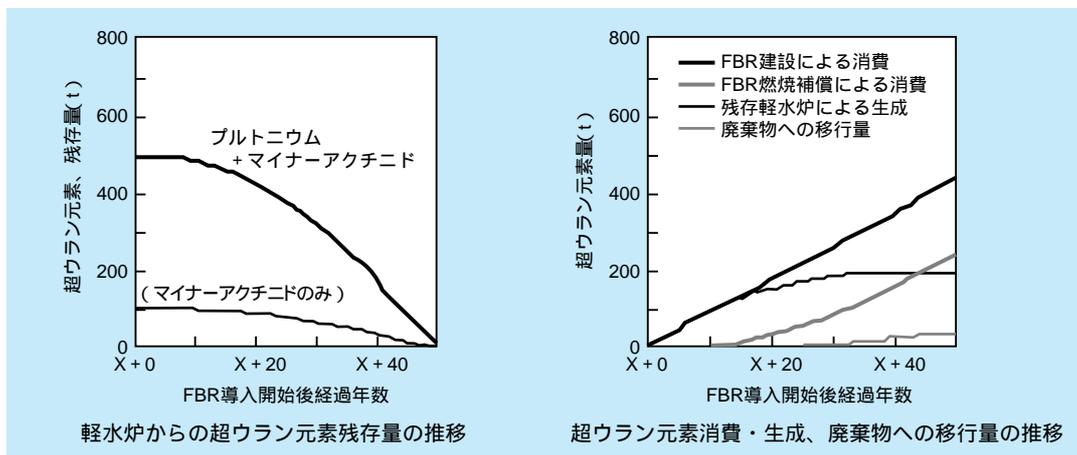


図12-5-3 軽水炉発電で蓄積された超ウラン元素のFBR導入による消費  
 (50GWeの軽水炉発電を50年継続し、その後40年でFBRに移行。FBR燃料中のマイナーアクチノイド添加率は2%。)

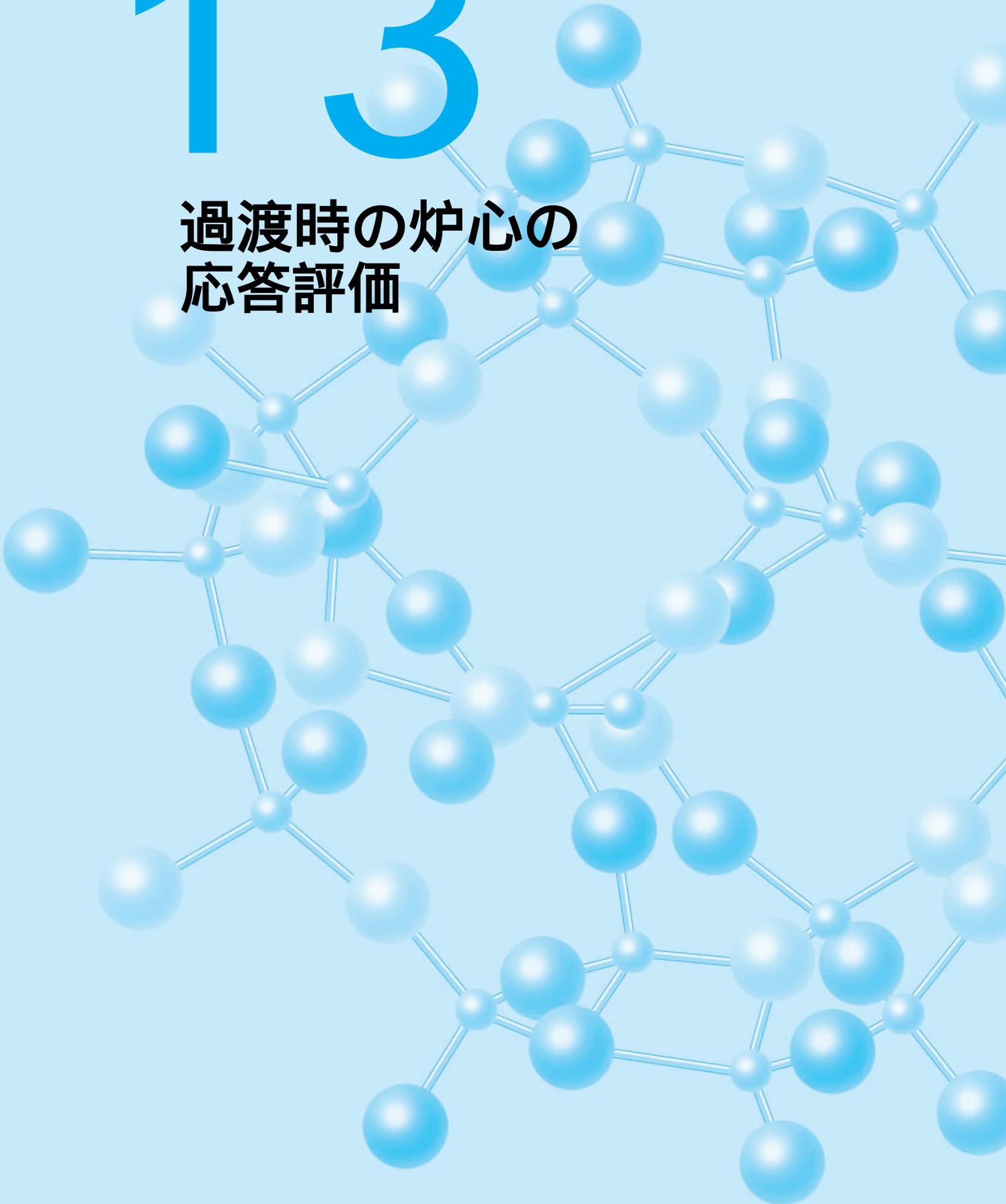


第

# 13

章

過渡時の炉心の  
応答評価



第13章 過渡期の炉心の応答評価 目次

原子力システム部 上席研究員 横尾 健  
原燃サイクル部 主任研究員 尾形 孝成

13 - 1 設計基準内事象時の応答評価 .....103  
13 - 2 設計基準外事象時の応答評価 .....104

---

横尾 健 86ページに掲載  
尾形 孝成 86ページに掲載

# 13 - 1 設計基準内事象時の応答評価

これまでに述べたように、金属燃料炉心の設計では、金属燃料の特長を活用するとともに、不利な点を補うための工夫が求められる。これらは従来からのFBR設計の考え方にほぼ沿ったものである。また、原子炉構造、原子炉保護系、1次冷却系に対しても、従来の酸化燃料FBRで開発されてきた概念を適用することに問題はない。したがって、金属燃料FBRの安全性の検討に対しても、従来からの考え方が適用できるであろう。これは、「設計基準事象<sup>\*1</sup>と呼ばれる設計の基準とする事象(表13-1-1)を頻度で分類し、各分類に対して燃料ピンの健全性に対する判断基準(表13-1-2)を設定したうえで、具体的な事象を評価することによって、これらの基準が満たされることを保証する」という考え方である。ただし、現状では金属燃料ピンの破損時および溶融時の挙動については未解明の部分が多い。今後、これらを解明して、燃料ピンの健全性に対する判断基準を具体化してゆく必要がある。

原子炉保護系などを従来と同様と想定するならば、代表的な設計基準事象も酸化燃料FBRのものと同様になると考えられる。金属燃料FBRに対する設計基準内事象の例を表13-1-3に示す。具体的な事象の評価の

表13-1-3 金属燃料FBRの設計基準内事象の例

事象分類	代 表 事 象		
	過出力(TOP)型事象	流量低下(LOF)型事象	集合体事故(局所異常)
事象	制御棒の異常な引抜き	外部電源喪失	統計的燃料要素破損
事象	制御棒の急速引抜き	1次系ポンプ軸固着	局所流路閉塞(非発熱)
事象	S2クラス地震	全電源喪失	局所燃料要素過熱

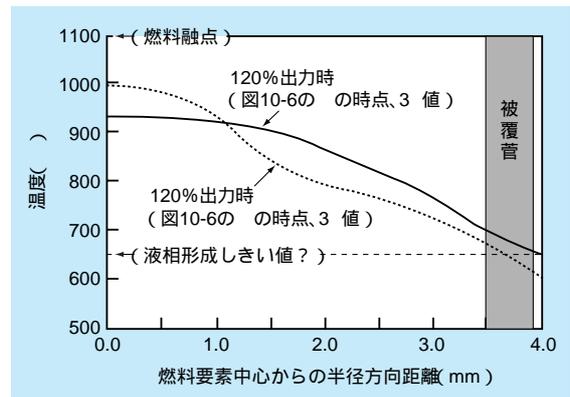


図13-1-1 1000MWe炉心の最大出力燃料要素の、120%過出力時における径方向温度分布

一例を図13-1-1に示す。これは、前出の1000MWe 2領域均質炉心において、制御棒の異常な引き抜きが生じた場合の最大線出力燃料ピンの温度を解析した結果である。制御棒が引き抜かれると、炉心に反応度が加わって炉心全体の出力が上昇し、過出力状態となる。この時の過出力値(定格時の出力を100%とした値)は、従来の酸化燃料炉心では一般的に115~117%とされるが、図13-1-1で示した解析では、それより大きめの120%とした。これは金属燃料炉心では反応度の出力係数が小さい(12-2節参照)ことを踏まえて設定したものである。図13-1-1から、燃料中心温度は融点以下、また、被覆管内面温度も700以下(対応する液相侵食量1μm以下)であり、破損までに十分に余裕があることがわかる。設計基準内、すなわち原子炉のスクラム<sup>\*2</sup>に成功する事象においては、燃料の違いに起因する炉心応答の差異は小さく、燃料健全性確保のうえで大きな問題は生じないと言える。

表13-1-1 金属燃料FBRの事象分類の考え方

分類	発生頻度(炉年 <sup>-1</sup> )	内 容	もんじゅの分類
事象	-	通常運転状態	通常運転
事象	~10 <sup>-2</sup>	単一故障・誤動作、単一誤動作(1回/プラント寿命)	異常な過渡変化
事象	10 <sup>-2</sup> ~10 <sup>-4</sup>	多数基のプラントでは発生する可能性あり	事故
事象	10 <sup>-4</sup> ~10 <sup>-6</sup>	発生の可能性は極めて小さいが安全評価の観点から想定	

表13-1-2 金属燃料FBRの事象分類ごとの燃料判断基準の例

分類	TOP型事象	LOF型事象	許容燃料破損数
事象、~10 <sup>-4</sup> (炉年)	中心溶融なし	CDF 0.01/事象、0.1/寿命	(燃料健全性確保)
事象、10 <sup>-2</sup> ~10 <sup>-4</sup>	溶融許容値1 <sup>*</sup>	CDF 0.01	数本の破損
事象、10 <sup>-4</sup> ~10 <sup>-6</sup>	溶融許容値2 <sup>*</sup>	CDF 0.3	(冷却形状の維持)

\*1設計基準事象：原子力施設の安全特性や安全設備を設計するとき、事故時においても公衆の健康と安全が確保されることを示すために選ばれる、機器の破損や故障などの事象。

\*2スクラム：本編では、運転中の原子炉が異常な状態となった場合に、原子炉停止系などの安全装置によって自動的に原子炉の停止を行うことを指す。

## 13 - 2 設計基準外事象時の応答評価

金属燃料炉心の大きな特徴のひとつは、炉心損傷事故の起因過程として代表的な事象である「異常な過渡変化時にスクラムに失敗する事象( ATWS : Anticipated Transient without SCRAM )」に対する安全性向上の可能性が高いことである。ATWSに含まれる代表的な事象は、制御棒が誤って引き抜かれることによる過出力型事象( UTOP : Unprotected Transient Over Power )と、ポンプの停止などによる冷却材流量喪失型事象( ULOF : Unprotected Loss of Flow )である。UTOPに対する有効な方策は、前章で述べたように、制御棒に必要とされる反応度を低減することによって事象の重大性を緩和することである。一方、ULOFの際に反応度フィードバック<sup>\*3</sup>のみによる受動的な炉停止<sup>\*4</sup>を実現する上で、金属燃料炉心において有利な点は、運転時の燃料温度が冷却材の沸点よりかなり低いこと、反応度の出力係数( 12-2節参照 )が小さいため出力補償反応度<sup>\*5</sup>が少なく済むこと、である。以下、金属燃料炉心のULOF時の応答について述べる。

ULOF時には、冷却材温度の上昇によって正の反応度が加わるが、同時に炉心各部の熱膨張に対応して負の反応度フィードバックが生じる。後者が前者より大きい場合には、正味の反応度が負となって炉心の出力は低下する。しかし、出力の低下は流量の低下ほど速やかではないために、冷却材の温度は上昇を続けることになる。また、ULOF時の燃料温度の変化を、金属燃料炉心と酸化燃料炉心で比較して示したものが図13-2-1である。酸化燃料炉心では、出力の低下を反映して燃料温度が低下してゆく。一方、金属燃料炉心では、燃料スラグから

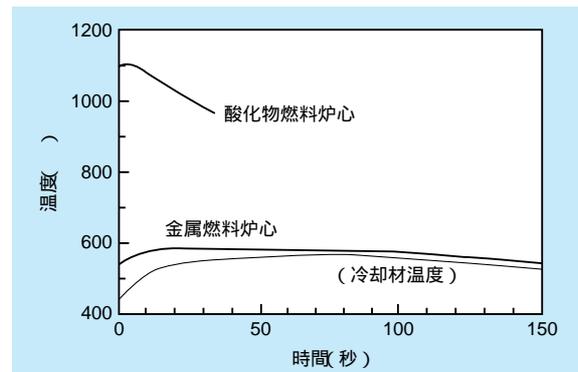


図13-2-1 ULOF時の燃料平均温度の推移( 1000MWe炉心 )

冷却材への熱の伝達が良好である( 12-2節参照 )ために、定格運転時の燃料温度が冷却材温度に近く、冷却材温度の上昇に追従して燃料温度が上昇する。結局、燃料温度が低下してゆく酸化燃料炉心では正のドブプラ反応度<sup>\*6</sup>が加わるために出力低下が遅れるのに対して、燃料温度が上昇する金属燃料炉心では負のドブプラ反応度が加わって出力の低下が促進される。

図13-2-2および図13-2-3には、それぞれ金属燃料および酸化燃料の1500MWe 2領域均質炉心のULOF時の応答解析結果を示す。ここでは、ポンプ停止後10秒で冷却材の流量が半減し、最終的には自然循環にいたることを想定した。また、負の反応度フィードバック要因として炉心の径方向膨張によるものを考慮した。その他の反応度フィードバック項目についても両炉心で同一とした。この結果によると、金属燃料炉心では上述の理由で正のドブプラ反応度<sup>\*6</sup>が入らないために正味の反応度が十分に負となって、冷却材が沸騰することなく事象が終息に向かっている。これに対して、酸化燃料炉心ではより大きな負の径方向膨張反応度が入るが、正のドブプラ反応度のために正味合計が小さくなるために、出力の低下速度が十分でなく、冷却材が沸騰する。

金属燃料炉心において、ULOF時に冷却材沸騰にいたることなく受動的に炉停止を達成できる可能性は、小型炉から大型炉まで炉心の出力規模によらず、ほぼ同様にあることもわかっている。

<sup>\*3</sup> 反応度フィードバック：ある出力状態の炉心に、冷却材温度の上昇などの変化が生じた場合、それに対応して炉心の反応度( 第12章の\*1参照 )が変化し、炉心の出力が変化する。このように、炉心内のある変動が、反応度を介して再び炉心の出力に影響することを反応度フィードバックと呼ぶ。負の反応度が炉心に加わる( 第12章の\*1参照 )場合には、負の反応度フィードバック、と呼ぶ。

<sup>\*4</sup> 受動的な炉停止：事故の際などに、制御棒などの工学的な装置にたよることなく、反応度フィードバック( \*3参照 )など炉心が本来持っている性質によって、炉心の出力が安全性に問題が生じないレベルにまで下がること。

<sup>\*5</sup> 出力補償反応度：通常の炉心では、反応度の出力係数( 第12章の\*5参照 )が負であるため、停止状態から定格出力状態まで炉心の出力を上げた時、反応度が低下する。これを補うために制御棒によって反応度を加える必要がある。この反応度を出力補償反応度と言う。

<sup>\*6</sup> ドブプラ反応度：第12章の\*6参照

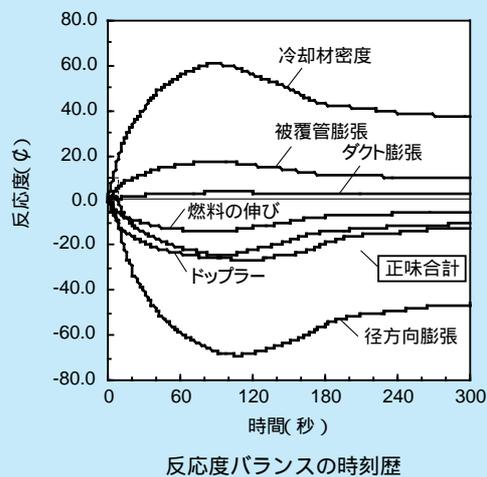
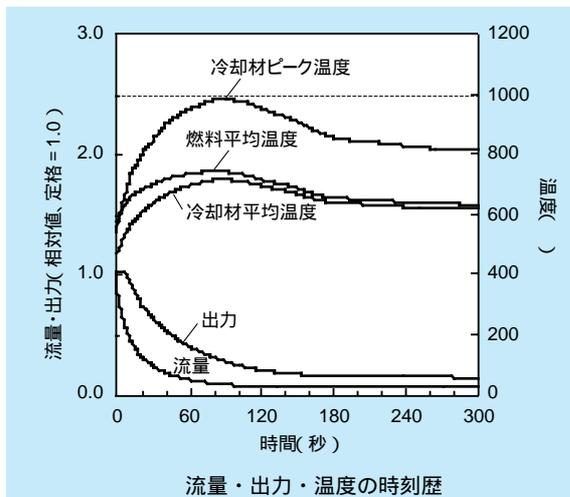


図13-2-2 1500MWe金属燃料炉心のULOF解析結果  
(平衡サイクル末期、流量半減時間=10秒)

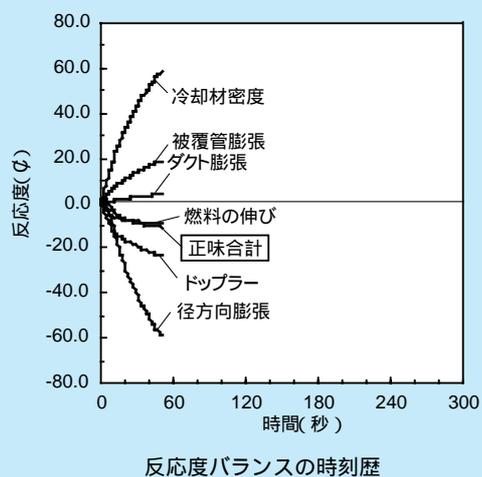
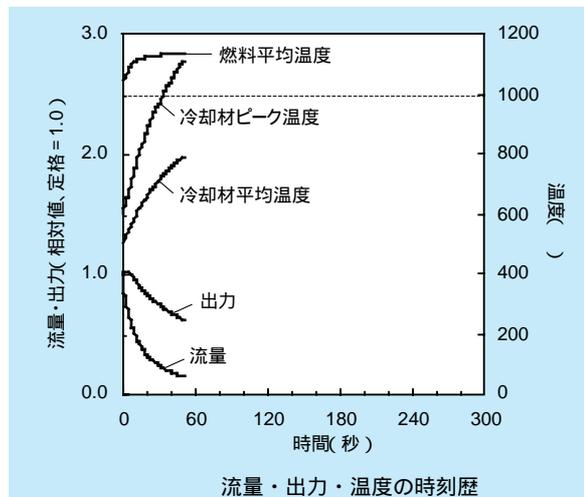


図13-2-3 1500MWe酸化物燃料炉心のULOF解析結果  
(平衡サイクル末期、流量半減時間=10秒)



第

# 14

章

金属燃料FBRによる  
マイナーアクチニドの  
短半減期核種への変換



第14章 金属燃料FBRによるマイナーアクチニドの短半減期核種への変換 目次

原子力システム部 上席研究員 横尾 健  
原子力システム部 主任研究員 笹原 昭博  
原燃サイクル部 主任研究員 倉田 正輝

14 - 1 マイナーアクチニドの変換特性 .....109  
14 - 2 マイナーアクチニド含有金属燃料の特徴と照射試験 .....113

横尾 健 86ページに掲載  
倉田 正輝 48ページに掲載



笹原 昭博（1987年入所）

これまで、FBR関係では超ウラン元素の変換解析、リサイクル時の質量バランス解析、炉心安全性パラメータ解析および超ウラン元素金属の製造を行ってきた。軽水炉関係では炉心燃焼解析、核種生成量解析評価、貯蔵時の燃料特性評価を行ってきた。今後は、照射燃料で得た実験データをより詳細に検討してゆきたい。

## 14 - 1 マイナーアクチニドの変換特性

原子力発電所の使用済燃料中にはマイナーアクチニド（MA：ネプツニウム(Np)、アメリシウム(Am)、キュリウム(Cm)など)が含まれており、これらのマイナーアクチニドには半減期が数百万年で、長期にわたって環境からの隔離が必要なものがある。したがって、軽水炉燃料の再処理の際にマイナーアクチニドも分離回収して、高速炉でリサイクルすることにより燃料サイクルの中へ閉じ込めることは、長期的な放射能低減および廃棄物処理や処分の負担軽減に有効となる。当研究所ではマイナーアクチニドの燃焼(変換)に有利な硬い中性子エネルギー分布をもち、乾式再処理法との整合性も良い金属燃料FBRによるマイナーアクチニドの変換特性について、当研究所開発のシステムを用いて解析を進めてきた。基本となる金属燃料の組成は上述したU-Pu-10%Zrの3元合金である。また、金属燃料に添加するマイナーアクチニド組成は表14-1-1に示すとおりである。

実証炉を念頭に設計された1000MWe級の酸化物燃料炉心の燃料を酸化物の他に金属とした場合についても解析を行った。解析では中性子と燃料・構造材質との反応データを納めたデータベースを使用する。本解析では日本原子力研究所で作成されたデータベース(JFS-3-J2)および不足している核反応データについてはブルックヘブン国立研究所(アメリカ)で作られた核反応データベース(ENDF/B-IV)を使用した。また、炉心を径方向と軸方向の2次元でモデル化を行い、中性子のエネルギー(0~10MeV)を12個のエネルギーに12群で計算を行った。炉心領域は内側炉心と外側炉心の2領域で構成されるが、内側炉心領域の解析による平均の中性子エネルギー分布を図14-1-1に示す。金属燃料では酸素による中性子の散乱がないために、高いエネルギーの中性子の割合が酸化物燃料に比べて多い分布となる。この炉心の

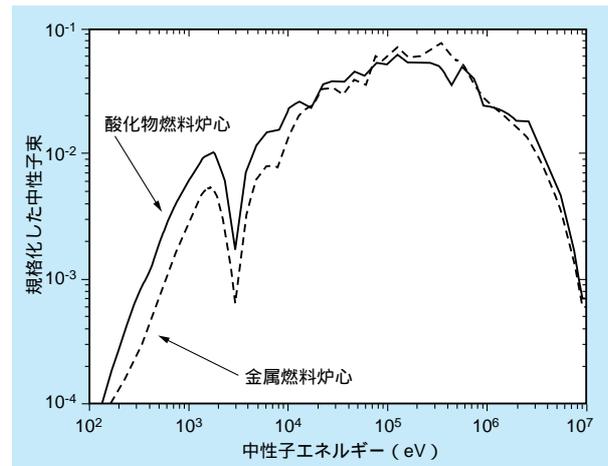


図14-1-1 金属燃料炉心と酸化物燃料炉心の中性子エネルギースペクトルに(内側炉心)

内側炉心と外側炉心にマイナーアクチニドを装荷燃料の5%、10%、15%添加した場合の変換率を図14-1-2に示す。図14-1-2には変換率の定義も合わせて示す。マイナーアクチニドは中性子エネルギーの高い領域で変換に寄与する核分裂断面積が大きくなっているために、金属燃料炉心におけるマイナーアクチニドの変換率は約14%/年、一方、酸化物燃料炉心では12%/年となり、金属燃料炉心の方がマイナーアクチニドの変換に有利であることが分かる。

軽水炉からの高レベル放射性廃棄物にはマイナーアクチニドの他に希土類元素(RE:ネオジウム、セリウム、

表14-1-1 軽水炉取り出しのマイナーアクチニドの組成(軽水炉取り出し燃料度:40GWd/t)

核種	Np237	Am241	Am243	Cm244
重量(%)	53.6	23.1	17.4	5.93

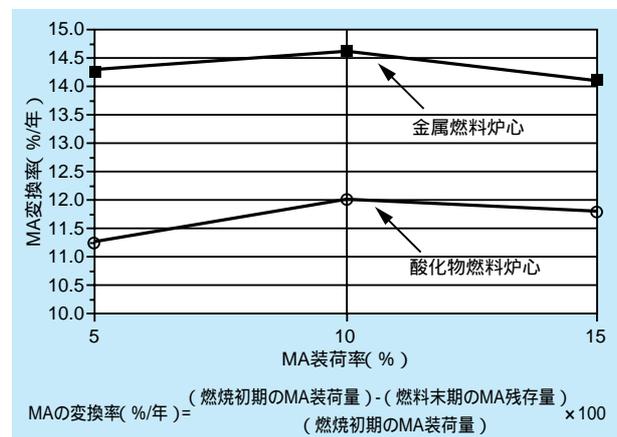


図14-1-2 金属燃料炉心と酸化物燃料炉心におけるMAの変換率

ガドリニウム、サマリウムなど)が含まれており、高レベル放射性廃棄物から乾式法でアクチノイド元素を分離する場合、マイナーアクチノイドと等量の希土類元素が同伴してくると予想される。そのため、軽水炉燃料を対象としたORIGEN 2 コードによる燃焼計算で求めた希土類元素のうち、高速炉に添加した場合に中性子の吸収によって炉心特性に与える効果が大きいと考えられるネオジウム(Nd)、サマリウム(Sm)やユーロピウム(Eu)などの14核種について核変換を考慮した。当研究所で最適化設計を行った2領域均質の1000MWe級の金属燃料炉心の内側炉心と外側炉心の金属燃料にマイナーアクチノイドとREを各々5%、10%、15%添加した場合の燃焼に伴う反応度変化を図14-1-3に示す。マイナーアクチノイドのみ装荷した場合にはNp237からPu238、Am241からAm242、Am243からCm244への核変換に伴う反応度の顕著な増加がみられる。一方、希土類元素も同時に添加した場合はマイナーアクチノイドによる反応度の増加が希土類

元素の中性子吸収でほぼ相殺される結果となった。変換率についてはマイナーアクチノイドのみ添加した場合、マイナーアクチノイドと希土類元素を同時に添加した場合ともに約14%/年となり、希土類元素がマイナーアクチノイドとともに添加されてもマイナーアクチノイド変換率に与える影響は小さいことが分かった。マイナーアクチノイドと希土類元素を各々5%燃料に添加して、取り出し燃料中のマイナーアクチノイドを再び自らの炉心にリサイクルし、一方、燃焼によって失われた分のマイナーアクチノイドは軽水炉使用済燃料の再処理によって発生する高レベル廃液中から、乾式分離で回収したマイナーアクチノイドによって補っていく、というリサイクルの中で、マイナーアクチノイドの変換をはかっていく。これを“自己リサイクル”と呼ぶが、その解析を行った。図14-1-4にリサイクル平衡時(リサイクルを繰り返すことで燃料の装荷時と取り出し時でウランやプルトニウムの量および組成が平衡に達して変化しなくなる状態)の質量バランスを示す。REが付随した場合でも軽水炉5~6基からのマイナーアクチノイドを1000MWe級の金属燃料炉心1基で受け入れることが可能である。

自己リサイクルのより詳細な解析を図14-1-5に示す燃料サイクルについて実施した。対象とした炉心は高速炉の導入初期における実用的なものとして、2領域の均質な炉心より構成される600MWe級炉心である。表14-1-2に炉心の主な仕様を示す。炉心燃料として金属燃料(U-13%Pu-10%Zr)の他にも窒化物燃料(U<sub>N</sub>-15%Pu<sub>N</sub>)および酸化物燃料(UO<sub>2</sub>-15%PuO<sub>2</sub>)についても対象とした。添加出来るマイナーアクチノイド量の上限、リサイクルの中で乾式分離や乾式再処理の際に回収率を考慮して廃棄物に移行するプルトニウムやマイナーアクチノイド等の重金属量および炉心安全性パラメータについて検討した。表14-1-3に燃料集合体の主な仕様を示す。表14-1-4にリサイクルを繰り返して平衡に達した時の炉心特性を示す。炉心高さについては、燃料の良好な熱伝導とウランからプルトニウムへの内部転換性を活用することで酸化物燃料炉心に比べて、窒化物燃料炉心では短尺化、金属燃料炉心では短尺化と軸方向ブランケットの削除を行った。いずれの燃料でもPu238およびマイナーアクチノイドの高エネルギーの中性子による核分裂の寄与で希土類の付随にかかわらず燃焼に伴う反応度の低下は減る。マイナーアクチノイド添加や自己リサイクルを行わない場合の炉

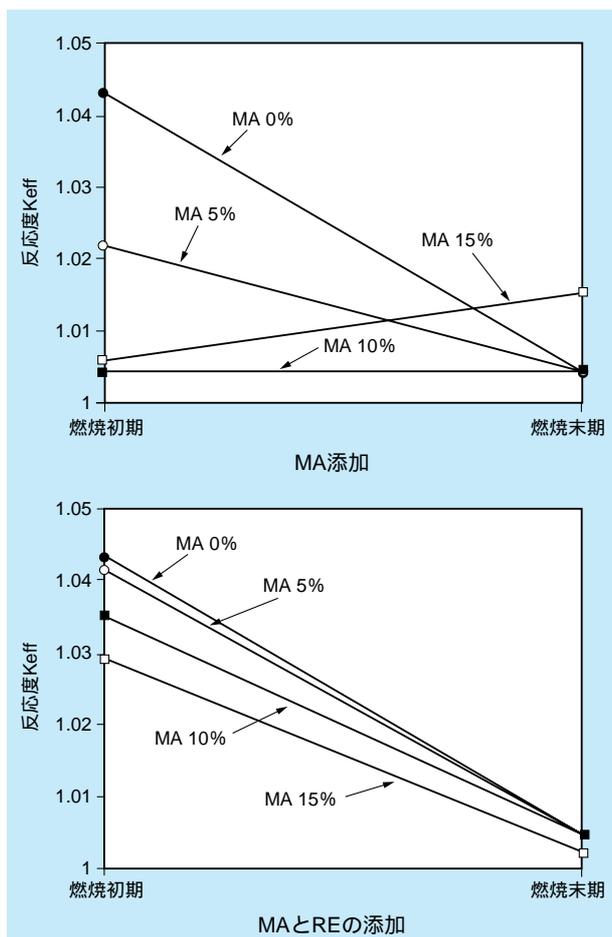


図14-1-3 MAとREを添加した場合の燃焼反応度



表14-1-2 解析対象とした600MWe級炉心の仕様

項目	仕様
内側炉心/外側炉心/ブランケット/遮蔽体/制御棒本数	199/96/138/354/30
集合体ピッチ	158.1
運転サイクル期間	1.5年、3バッチ
冷却材入/出口温度	395/550
最大線出力	420W/cm
取り出し平均燃焼温度	90,000MWd/t

表14-1-3 解析対象とした600MWe級炉心の燃料仕様

項目	燃料			ブランケット		
	金属	窒化物	酸化物	金属	窒化物	酸化物
ダクト肉厚 (mm)	3.9			3.9		
燃料要素数 (mm)	217			217		
燃料要素径 (mm)	8.5			11.5		
被覆管肉厚 (mm)	0.5			0.5		
ボンド材	Na	He	He	Na	He	He
燃料理論密度 (g/cm <sup>3</sup> , 常温)	15.8	14.3	11.0	15.8	14.3	10.9
燃料スミア密度 (%TD)	75	81	87	80	81	87
重金属密度 (g/cm <sup>3</sup> ) <sup>1)</sup>	8.0	7.7	6.3	10.4	10.2	7.23
燃料体積比 (% <sup>2)</sup> )	33	42	42	43	48	48
構造材体積比 (%)	23	23	23	20	20	20
Na体積比 (%)	44	33	33	37	29	29
融点 (°C)	1120	2497	2750	1204	2597	2750
熱伝導率 (W/m・K, 定格時)	26.7	3.9	18.6	30.6	3.9	19.3

1) UとPuの燃料密度

2) 炉心体積に占める燃料の体積比、被覆材・ラッパー管などの構造材の体積比および冷却・被覆管中のNaの体積比

表14-1-4 リサイクル平衡時の炉心特性 (15ヶ月運転、平均燃焼度 ~ 90MWd/kg)

燃料物質	金属		窒化物	酸化物
炉心高さ (cm)	80	80	76	100
軸フランケット厚さ (cm)	0	0	35	35
Pu富化度 (w/o, 内/外)	14.3/24.0 <sup>*</sup>	13.8/23.3 <sup>*</sup>	16.0/25.1 <sup>*</sup>	17.2/27.8 <sup>*</sup>
MA富化度 (w/o)	2 <sup>*1</sup>	5 <sup>*2</sup>	5.3 <sup>*3</sup>	5 <sup>*4</sup>
希土富化度 (w/o)	0.5	2.0	2.0	2.0
燃焼反応度 (% k/k)	0.9	0.4	0.9	0.5
ドブラー係数 (10 <sup>-3</sup> )	-2.5	-2.0	-3.2	-5.2
遅発中性子割合 (10 <sup>-3</sup> )	3.4	3.2	3.3	3.1
炉心部ポイド係数 ( \$ )	6.4	7.5	5.8	7.7

(w/o) pu238/239/240/241/242, Np237/Am241/Am242/Am243/Cm244/Cm245

\*1: 4/57/30/4/5, 36/22/1/20/18/3  
 \*2: 9/54/28/4/5, 43/19/1/18/16/3  
 \*3: 8/52/30/5/5, 42/20/1/18/16/3  
 \*4: 8/50/32/5/5, 10/20/1/18/17/3

ルによってまかなうことができる。他の燃料についても同様で、これは各炉心ともに内部転換性が良好なことによる。また、マイナーアクチニドについても自己リサイクル分が主要となり、所定の添加量を満たすために部分的に軽水炉からの群分離によるマイナーアクチニドが供給される。マイナーアクチニド添加量を5%とした場合、

表14-1-5 MA添加炉心のリサイクル平衡時のUやPu等の重金属の装荷・取り出し量

要素	金属燃料炉心、MA5%添加			金属燃料炉心、MA2%添加		
	装荷燃料	取り出し燃料	取り出し量	装荷燃料	取り出し燃料	取り出し量
U (kg)	LWRから 4895	リサイクル -	4450	LWRから 5133	リサイクル -	4641
w/o, U234	0	-	0.1	0	-	0.0
U235	0.2	-	0.1	0.2	-	0.1
U236	0	-	0.0	0	-	0.0
U238	99.8	-	99.8	99.8	-	99.9
Pu (kg)	LWRから 38	リサイクル 1030	1038	LWRから 68	リサイクル 1024	1050
w/o, Pu238	0	9.2	9.3	0	3.9	3.9
Pu239	58	53.9	53.6	58	56.5	56.2
Pu240	24	28.4	28.3	24	30.8	30.6
Pu241	14	3.5	3.9	14	4.0	4.4
Pu242	4	5.0	5.0	4	4.9	4.9
MA (kg)	LWRから 104	リサイクル 217	223	LWRから 35	リサイクル 94	99
w/o, Np237	53.6	38.9	37.9	53.6	30.5	29.6
Am241	23.1	18.0	17.6	23.1	21.2	20.6
Am242m	0	1.0	1.0	0	1.2	1.2
Am243	17.4	18.3	17.8	17.4	21.3	20.7
Cm244	5.9	20.0	21.0	5.9	21.6	22.6
Cm245	0	3.8	3.6	0	3.9	3.8
RE (kg)	LWRから 104	リサイクル 32	325	LWRから 35	リサイクル 25	248

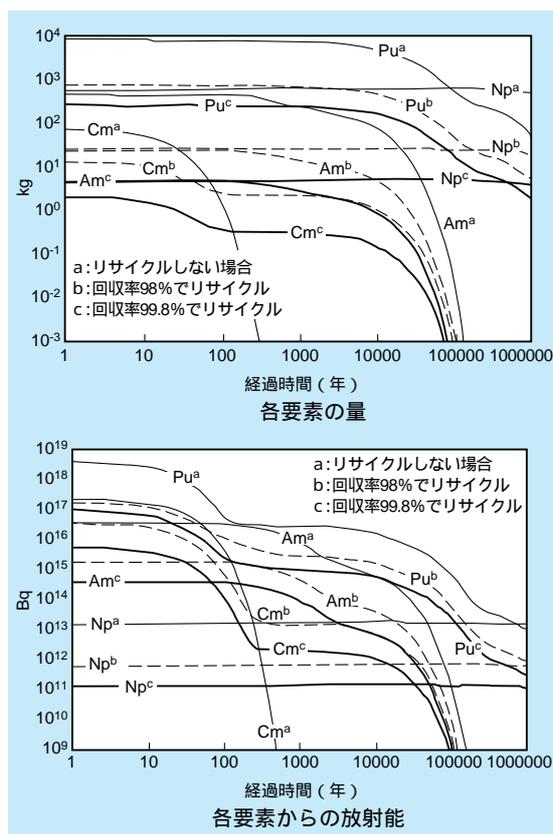


図14-1-6 金属燃料によるサイクルからの廃棄物の各要素の減衰の評価結果

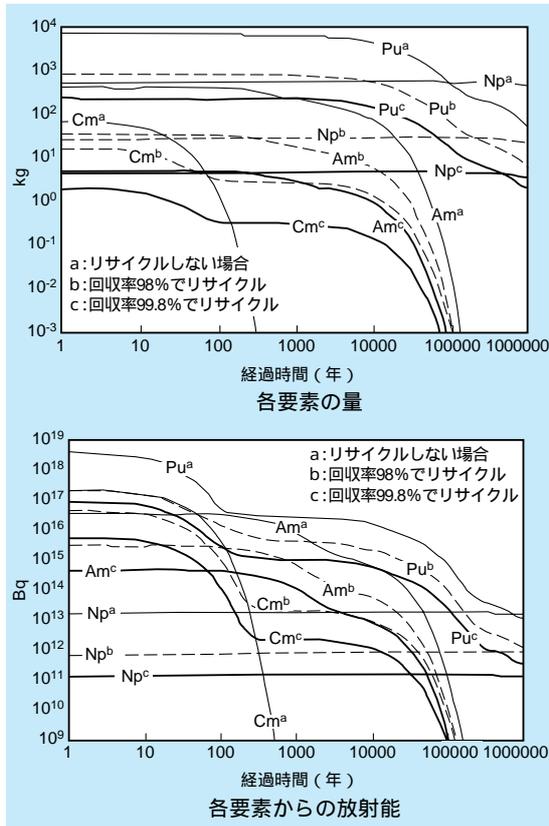


図14-1-7 窒化物燃料によるサイクルからの毎年の廃棄物の各要素の減衰の評価結果

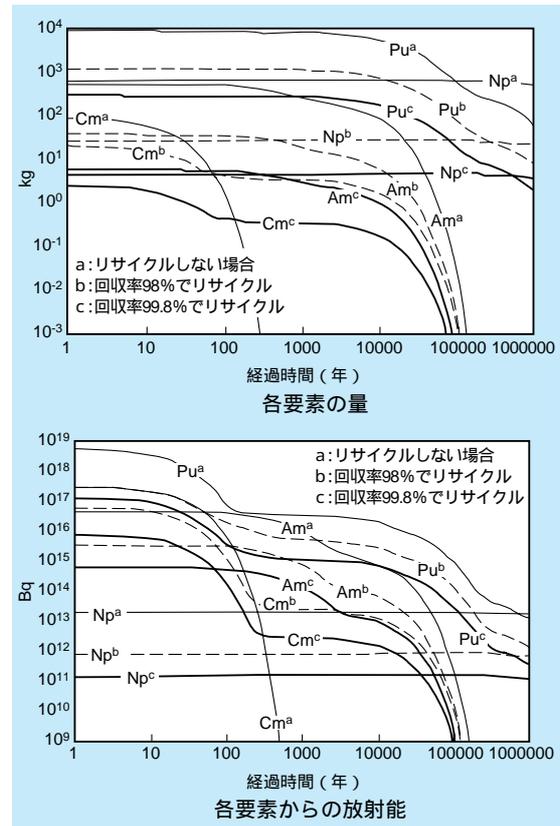


図14-1-8 酸化物燃料によるサイクルからの毎年の廃棄物の各要素の減衰の評価結果

金属燃料では他の燃料に比較してマイナーアクチニドの燃焼効率がいために供給量が約10%大きくなる。図14-1-6には金属燃料のリサイクルで各工程において発生する全重金属廃棄物を長期貯蔵した場合について、放射能量の変化を評価した結果を示す。プルトニウムを回収率98%以上でリサイクルすると、廃棄物中のPu量はワンスルーの場合のNpおよびアメリシウムと同

程度以下となり、短・中期的にみた放射能もワンスルーの場合のキュリウムまたはアメリシウムよりも小さな値となる。窒化物および酸化物燃料の場合も同様な結果となる。これらから、プルトニウムのみでなくマイナーアクチニドも分離回収して高速炉へリサイクルし燃料サイクル中への閉じ込めをはかることは、廃棄物中の放射能低減の観点から必要であるといえる。

## 14-2 マイナーアクチニド含有金属燃料の特徴と照射試験

### 14-2-1 マイナーアクチニド含有金属燃料の特徴

当研究所では、まず、ウラン - プルトニウム - ジルコニウム (U-Pu-Zr) 金属燃料の母材中に、均質に添加で

きるマイナーアクチニド (MA) や希土類元素 (RE) の上限を求めるため、それぞれの金属を溶解し混合する試験を実施した。

その結果、マイナーアクチニドや希土類元素の比重は、U-Pu-Zrに比べて約2/3以下であり、それらの相互の溶解度が、それぞれ約0.5%程度と極めて小さいこと

などから、U-Pu-Zr燃料とマイナーアクチニドやREとの混合性はあまりよくないことが分かった。さらに、アーク溶解法で溶解・混合した後、鑄造する方法では、U-Pu-Zr燃料中に均質に添加できるマイナーアクチニドや希土類元素は最大でそれぞれ2%程度であった。一方、粉末鑄造法を用いた場合では、最大でそれぞれ5%程度に向上することが分かった。

当研究所では、金属燃料の製造法として射出成型法を採用することを検討しているが、その射出成型プロセスはアーク溶解して鑄造するプロセスと類似しており、射出成型法でも最大で2%のマイナーアクチニドと希土類元素を金属燃料中に均質に添加できると考えられる。

さらに、マイナーアクチニドや希土類元素の燃料への添加上限を定める試験に並行して、U-Pu-ZrにマイナーアクチニドやREを添加した場合に炉心特性に与える影響を解析的に評価した。ここでは、ポイド反応度や出力係数などのパラメーターに対するマイナーアクチニドやREの添加の効果を調べ、炉心の安定性を損なわないためにはマイナーアクチニドやREの添加量を5%以下に留めるべきであることを示した。

以上より、マイナーアクチニド消滅処理のために添加できるマイナーアクチニドと希土類元素の上限は約5%であることが分かった。そして、マイナーアクチニドを添加した金属燃料の物性を調べるために、2%マイナーアクチニドと2%希土類元素を含有するU-Pu-Zr合金、5%マイナーアクチニドと5%希土類元素を含有するU-Pu-Zr合金をそれぞれ試作し、以下の項目について測定した。

金属組織と各相の組成

熱伝導度

密度、機械的性質

温度勾配下での元素再分布

燃料 - 被覆管の両立性

マイナーアクチニドのナトリウム中の溶解度

それぞれの測定に際しては、U-Pu-Zr燃料についても同様の測定を実施し、マイナーアクチニド-希土類元素含有燃料との差を調べた。

なお以下では、2%マイナーアクチニド-2%希土類元素を含有するU-Pu-Zr燃料、5%マイナーアクチニド-5%希土類元素を含有するU-Pu-Zr燃料を、それぞれ2%燃料、5%燃料として示す。

## 金属組織と各相の組成

2%燃料と5%燃料を所定の温度(500~800で焼鈍した試料の金相写真<sup>\*1</sup>)を図14-2-1と図14-2-2にそれぞれ示す。2%燃料では、数ミクロン以下の小さな析出相がほぼ均質に分散しているのに対し、5%燃料では小さな析出相の他に10ミクロン以上の大きさの析出相が分散していた。波長分散型X線分析(WDX)<sup>\*2</sup>を実施したところ、これらの析出相はおよそ20%Am-8%Pu-72%REの組成を持っていた。また、アメリカウムと希土類元素は、ほぼ全量が析出相中に存在していたが、プルトニウムは一部が母相中に、一部が析出相中に存在した。母相はいずれの燃料でも、600以下では2相に分れ、700以上では1相になった。U-Pu-Zr三元系状態図より、600以下の2相はそれぞれウランを主成分とする相とジルコニウムを主成分とする相に、700以上の1相は相に対応した。

それぞれの燃料の熱分析を実施し、得られた融解温度と相変態温度<sup>\*3</sup>を文献値と比較して表14-2-1に示す。U-Pu-Zr燃料、2%燃料、5%燃料ともに温度上昇に伴って2回相変態した。その結果、それぞれの相変態温度は組成の違いによらず580と630であった。また融点はマイナーアクチニド-希土類元素含有燃料では1207であり、U-Pu-Zr燃料より約10低かった。

マイナーアクチニド-希土類元素含有燃料には、Am-Pu-REの析出相が含まれ、U-Pu-Zr母相より約200低い融点を持つと推定されるが、熱分析ではこのような低い融解温度は測定されなかった。これは5%程度のマイナーアクチニド-希土類元素の添加では析出相の量が母相に比べて小さく、融解温度を検出できなかったためと考えられる。

## 熱伝導度

図14-2-3にU-Pu-Zr燃料と5%燃料の熱伝導度を比較して示す。測定した温度範囲(650以下)では両者にほとんど差はなかった。

<sup>\*1</sup>金相写真：金属燃料の微細組織の光学顕微鏡写真

<sup>\*2</sup>波長分散型X線分析：試料に電子線を投入し、発生する特性X線の強度により試料の濃度分析を行う分析法

<sup>\*3</sup>相変態温度：金属組織はその組成によっては、ある温度に達すると構造が変化する場合がある。これを相変態といい、相変態する温度を相変態温度という。相変態温度前後では、熱膨張係数等の物性値が異なる。

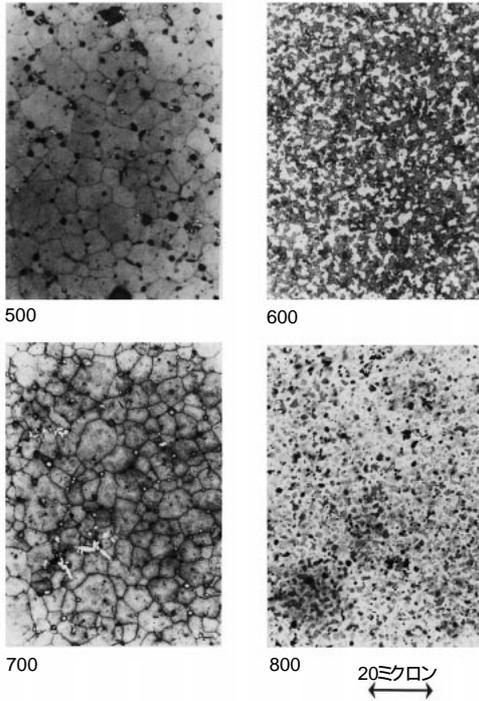


図14-2-1 2%燃料の金相写真

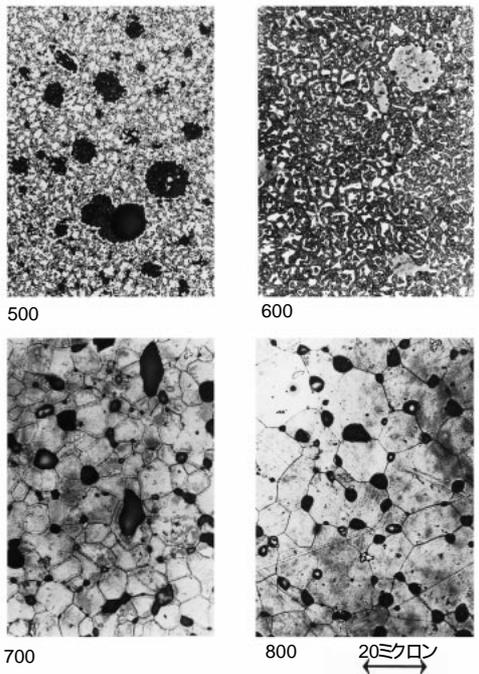


図14-2-2 5%燃料の金相写真

### 密度、機械的性質

U-Pu-Zr燃料と5%燃料の密度をそれぞれ測定した。U-Pu-Zr燃料では15.5g/cm<sup>3</sup>、5%燃料では14.5g/cm<sup>3</sup>であった。5%燃料ではU-Pu-Zr燃料より比重の小さいAm-Pu-REの析出相が存在するために密度が約9%小さくなった。

表14-2-1 それぞれの燃料合金の相変態温度と融解温度 ( )

燃料	U-Pu-Zr (文献値)	U-Pu-Zr (実測値)	2%燃料 (実測値)	5%燃料 (実測値)
融解温度	1214	1217	1207	1207
相変態温度 +	580	580	580	580
相変態温度 +	630	630	630	630

燃料設計において重要な機械的性質であるヤング率<sup>\*4</sup>とポアソン比<sup>\*5</sup>についても測定を実施した。機械的性質は密度の影響を受けるため、5%燃料ではU-Pu-Zr燃料に比べて小さい値を示した。これは、5%燃料がU-Pu-Zr燃料に比べてもろいことに対応している。

### 温度勾配下での元素再分布

金属燃料に特有の燃料挙動として、照射中に燃料成分が径方向に再分布することが知られている。再分布により、融解温度の異なる領域が形成されたり、被覆管との反応機構が異なる可能性がある。そこで、マイナーアクチニド-希土類元素含有燃料とU-Pu-Zr燃料の再分布挙動を棒状試料の温度勾配下での焼鈍試験により調べた。

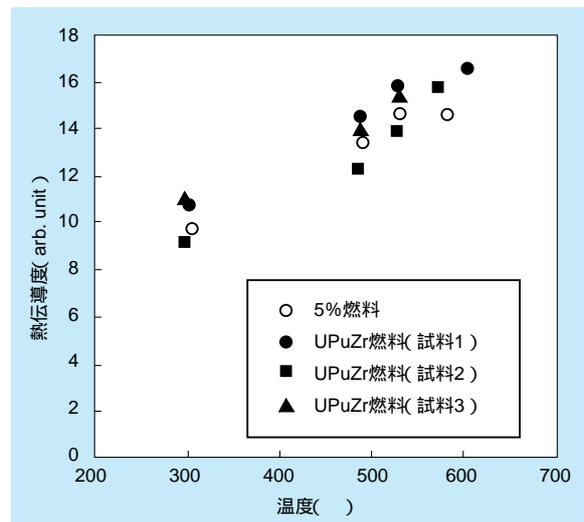


図14-2-3 U-Pu-Zr燃料と5%燃料の熱伝導度の比較

\*4 ヤング率：材料の伸び変形において、かかる応力と歪みの間に比例関係が成立する場合、その比例定数をヤング率という。

\*5 ポアソン比：材料をある方向に引っ張る場合、それと垂直な方向には縮む。かかる応力と変形が比例関係にある場合の伸びと縮みの比率をポアソン比という。

図14-2-4にU-Pu-Zr燃料の焼鈍後の金相写真とα-オートラジオグラフ\*6を示す。この燃料では、Puの濃度分布を示すα-オートラジオグラフの濃淡は、ほぼ均一であった。

図14-2-5に5%燃料の焼鈍後のα-オートラジオグラフを示す。Amを添加したこれらの試料では、α-オートラジオグラフの白色部位はアメリウム-プルトニウム-希土類元素の析出相の粒径が大きくなったことが観察された。

### 燃料 - 被覆管の両立性

金属燃料と被覆管が接触すると合金同士の相互反応により、融点の低い領域(共晶反応領域)が形成され、燃料設計に影響を与える可能性がある。これを調べるために、U-Pu-Zr燃料と5%燃料をそれぞれステンレス鋼ではさみ、熱分析を実施した。

いずれの燃料でも測定された共晶温度は燃料主成分のウランと被覆管主成分の鉄の共晶温度(725℃)とほぼ等しかった。これより5%のマイナーアクチニドを添加してもU-Pu-Zr燃料とステンレス鋼の反応に大きく影響しないことが分かる。しかし、マイナーアクチニド-希土類元素含有燃料に含まれるアメリウム-プルトニウム-希土類元素の析出相と被覆管の共晶温度は状態図などから約600℃と推定される。このため、その共晶反応については今後の詳細な検討が必要である。

また、U-Pu-Zr燃料の被覆管としては、オーステナイト系ステンレス鋼よりニッケル含有量の少ないフェライト系ステンレス鋼が適していることが知られているが、今回の試験で得られたマイナーアクチニド-RE燃料の共晶反応領域中にもニッケルが多く混入しているため、マイナーアクチニド-希土類元素含有燃料についてもフェライト系の被覆管が適している。

### マイナーアクチニドのナトリウム中の溶解度

5%燃料をフェライト系およびオーステナイト系のステンレス容器に入れた液体ナトリウム中に浸し、約500℃に加熱して二日間放置した後に、ナトリウム中の

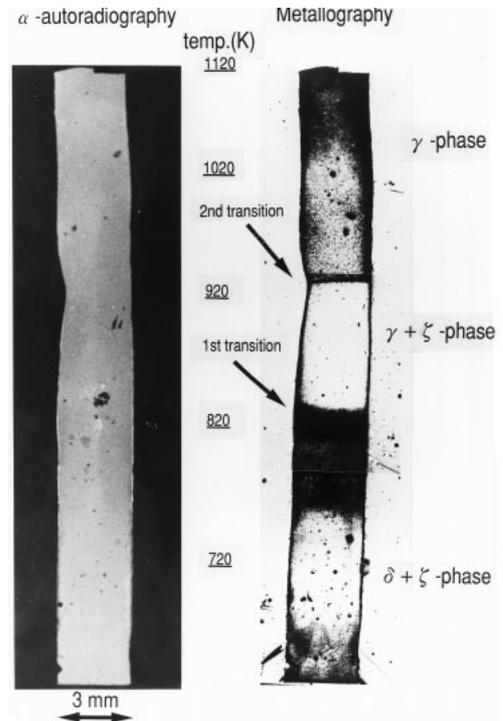


図14-2-4 U-Pu-Zr燃料と5%燃料の温度勾配焼鈍試験後のα-オートラジオグラフ

プルトニウム、アメリシウム、キュリウム-244の溶解度を放射能測定により求めた。ナトリウム中のアクチニド元素の溶解度はいずれも極めて小さかった。

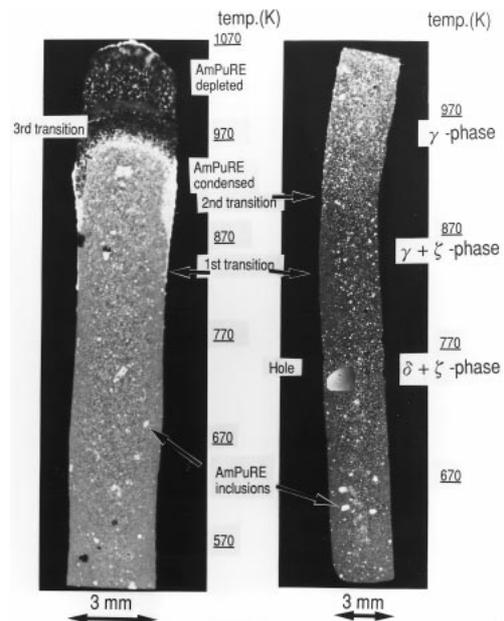


図14-2-5 U-Pu-Zr燃料棒

\*6 α-オートラジオグラフ：PuやAm等の放射線を発生する元素を感光板の上に配置すると、それらの存在部位が白く感光する。この原理を利用したのがα-オートラジオグラフである。

## 14-2-2 マイナーアクチニド(マイナーアクチニド)含有金属燃料のフェニックス炉における照射試験

当研究所では、当所の開発した金属燃料炉心を用いたマイナーアクチニドの消滅率解析コードを検証し、また、マイナーアクチニド含有燃料の照射下での燃料挙動を調べるために、高速原型炉フェニックス(フランス)を用いた照射試験を計画している。燃料組成として、炉心の安定性、マイナーアクチニドの混合性、燃料特性の炉外試験などから、U-Pu-Zr燃料に影響を与えないマイナーアクチニド濃度を持つ以下の三つを選定し、照射試験用の燃料スラグを試作した。

U-Pu-Zr + 5%マイナーアクチニド + 5%RE

U-Pu-Zr + 2%マイナーアクチニド + 2%RE

U-Pu-Zr + 5%マイナーアクチニド

また、これらとの比較用にU-Pu-Zr合金を製造した。

図14-2-6 に照射試験用の燃料ピンの模式図をフェニックス炉の通常燃料ピンと比較して示す。今回入手したマイナーアクチニド量に制限があったため、マイナーアクチニド含有燃料は燃料ピンの一部に装荷した(長さ10cm)。また、上の と の試験用燃料スラグは長さを5cmずつとして1本の燃料ピン中に装荷した。燃料ピンの出力を調整するために、試験用燃料スラグの上下をU-Pu-Zr燃料でサンドイッチした。

5%燃料を装荷した燃料ピン、2%燃料を装荷した燃料ピン、及び、U-Pu-Zrのみを装荷した燃料ピンを、それぞれ3本ずつ製作し、これを16本の酸化物のドライバ燃料ピンと共に照射試験用カプセルに図14-2-6 のように装荷した。カプセルは3個用意し、それぞれ燃焼初期、中期、末期の消滅率や燃料挙動を調べるために、燃焼度1.5、6、10at.%まで燃焼させることとした。

また、マイナーアクチニド含有金属燃料をフェニックス炉で照射するために、安全性評価に関する事前解析を

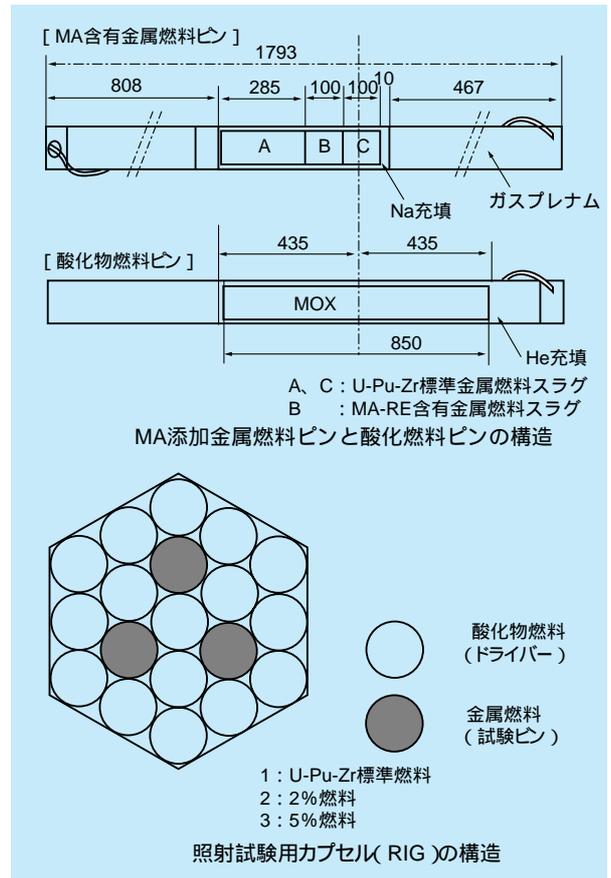


図14-2-6 照射試験用MA含有燃料棒の模式図と照射試験用リグの模式図

実施した。定格運転では、燃料棒中心温度、被覆管温度、中性子による被覆管損傷度がいずれもフェニックス炉の許容値を常に下回ることを確認している。制御棒引き抜き事故、被覆管破損事故、仮想炉心事故のを想定した三つの過渡時象においてもマイナーアクチニド含有燃料はフェニックス炉の安全性に影響を及ぼさないことも確認している。

フェニックス炉の運転に関するフランスの事情、及び金属燃料の輸送に関するドイツの事情により照射試験は、当初平成7年より開始する予定であったが延期され、現在時点では平成12年度より照射を開始する予定である。

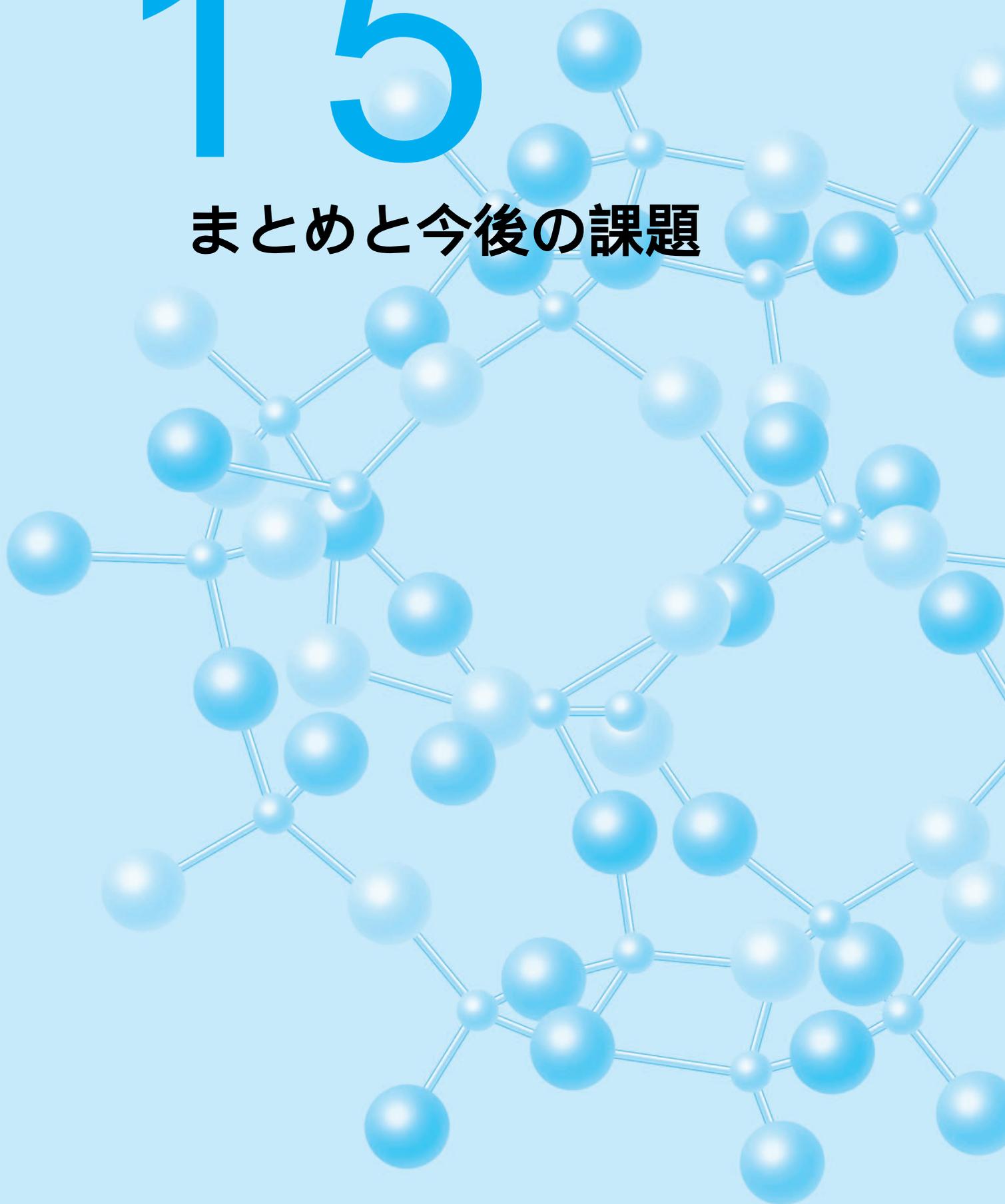


第

# 15

章

まとめと今後の課題



第15章 まとめと今後の課題 目次

原子カシステム部 上席研究員 横尾 健

まとめと今後の課題 .....119

---

横尾 健 86ページに掲載

# 15章 まとめと今後の課題

本章では、当研究所での金属燃料炉心の設計研究の経験をもとに、高密度・高熱伝導という特長を生かし、かつ燃料挙動を反映した設計によって、金属燃料炉心がどのような特性を持ち得るか、さらには過渡時およびATWS時にどのような特色ある応答を示すか、について述べた。それらは次のようにまとめられる。

- ・金属燃料FBRでは、燃料 被覆管境界での液相形成防止の観点から、炉心の温度は他の燃料に比べてやや低めに制限される可能性がある。しかし、炉心材料や炉構造、原子炉保護系などに特殊な工夫を必要とするものではない。
- ・大型炉のみでなく小型炉でも、高い転換率を生かすことによって、高燃焼度達成と燃焼反応度低減の両立を図ることが可能である。
- ・運転時の燃料温度が比較的低いことなどに起因して、ULOF時の受動的な炉停止に対して有利な反応度フィードバック特性を持つ。この特性は、出力規模によらない。

- ・燃料中に数%程度のマイナーアクチニドおよびそれに付随する希土類FPを添加しても、燃料製造や炉心特性の面から問題は生じない。したがって、金属燃料FBRサイクルが確立されれば、マイナーアクチニドをリサイクルして放射性廃棄物中の放射能毒性の低減をはかることが可能となる。

金属燃料の実用化までには、照射下での燃料物性値や破損時の燃料挙動、さらにはここでは触れなかった炉心損傷時の応答など、解明すべき研究課題が残っている。しかし、当研究所では、これまでに述べた特長を持つ金属燃料炉心は将来の高速炉として十分に魅力あるものと考え、炉外試験に基づく液相形成条件の評価方法の開発、受動的安全性の評価に重要な炉心径方向膨張評価法の開発、さらには熔融時の燃料挙動の評価法の開発など、燃料の実用性と炉心の魅力をより明確にするための研究開発を進めている。



# お わ り に

理事 狛江研究所長 福島 充男



資源小国のわが国において、21世紀を通してエネルギーを安定に確保していくためには、原子力発電は不可欠の中核エネルギー源である。ここでは当研究所が次世代原子力発電における有力技術と考えている、乾式リサイクルと金属燃料FBRの研究状況を紹介させて頂いた。当研究所では国内外各機関のご協力を得て研究開発を続けてきており、さらなる発展のためには、わが国官民にわたる、一層のご協力や国レベルでの開発が不可欠である。

おりしも現在、原子力委員会では原子力長期利用計画の策定が進みつつあり、また核燃料サイクル開発機構、電力が一体となってFBRとその燃料サイクルの評価が進められている。当研究所では国、電力における研究開発に、ここに紹介させて頂いた乾式リサイクル、金属燃料FBRに関する研究の成果を反映してゆくと共に、今後とも積極的に協力しながらFBRサイクル技術の開発に力を注いでいく所存である。関係各位のご指導とご鞭撻をお願いする次第である。

## 引用文献・資料等

### 第2章

カスタン報告：「放射性廃棄物管理についての研究開発に関するワーキンググループの報告書」フランス原子力安全高等評議会(1984)

バタイユ報告：「放射性廃棄物の管理に関する報告書」フランス議会科学技術選定評議会(1998)

Committee on Separations Technology and Transmutation Systems, iNuclear Waste : Technologies for Separation and Transmutation, National Research Council, USA, 1996

### 第3章

T.Inoue, H.Tanaka, " Recycling of Actinides Produced in LWR and FBR Fuel Cycle by Applying Pyrometallurgical Process ", Proc. Global '97, Yokohama, Japan, Oct. 5-10, 1997

T.Inoue, T.Yokoo, T.Nishimura, " Assessment of Advanced Technologies for the Future Nuclear Fuel Cycle ", Proc. Global '99, Jackson Hole, Wyoming, USA, Aug. 29-Sep. 3, 1999

### 第4章

T.Koyama, M. Iizuka, H. Tanaka, M. Tokiwai, " An Experimental Study of Molten Salt Electrorefining of Uranium Using Solid Iron Cathode and Liquid Cadmium cathode For development of Pyrometallurgical Reprocessing ", J. Nucl. Sci. Technol., V34 , 384-393 (1997) .

小山正史、魚住浩一、飯塚政利、坂村義治、木下賢介、「高温冶金法物性値集」、電中研調査報告T93033(1994)

R.W.Benedict, J. R. Krsul, R. D. Mariani, K. Park and G. M. Teske, " Small-scale Irradiated Fuel Electro-refining ", Proceedings of Global '93, Sep. 12-17, 1993, Seattle, Washington, p. 1331

E. C. Gay, Z. Tomczuk and W. E. Miller, " Plant-scale Anodic Dissolution of Unirradiated IFR Fuel Pins ", Proceedings of Global '93, Sep. 12-17, 1993, Seattle, Washington, p. 1086

M. Steindler, et al., " Argonne National Laboratory Chemical Technology Division Annual Technical Report 1990 ", ANL-91/18(1991)

小山ら、「熔融塩電解精製技術の開発、液体カドミウム陰極での樹枝状ウラン発生抑制条件の検討」、電中研報告T95004(1995)

M. Iizuka, T. Koyama, et al., J. Nucl. Mater. 247, 227 (1997)

T. Kobayashi and M. Tokiwai, J. Alloys and Compounds, 197, 7(1993)

K. M. Goff, et al., " Fuel Conditioning Facility Electrorefiner Start-up Results ", roceedings of the embedded topical meeting on DOE Spent Nuclear Fuel & Fissile Material Management, Reno, Nevada, Jun. 16-20, 1996

小山正史、魚住浩一、飯塚政利、坂村義治、木下賢介、「高温冶金法物性値集」、電中研調査報告T93033(1994)

K.M.Goff, et al., " Fuel Conditioning Facility Electrorefiner Start-up Results ", Proceedings of the embedded topical meeting on DOE Spent Nuclear Fuel & Fissile Material Management, Reno, Nevada, Jun. 16-20, 1996

T. Koyama, T. R. Johnson, D. F. Fischer, " Distribution of Actinides between Molten Salt/Cadmium Metal Systems ", J. Alloys and Compounds, 189, 37(1993)

ANL-4617(1951) A. B. Shuk : " Development of Methods for Casting and Fabricating Enriched Uranium Fuel Slugs

ANL-5123(1953) A. B. Shuck : " The Development of Equipment and Methods for Centrifugally Casting Reactor Fuel Slugs "

C. E. Stevenson, M. J. Feldman, N. J. Swanson ; Operation of a Pyrochemical Processing-Remote Refabrication Plant : The EBR-2 Fuel Cycle Facility

P. Hensen : Private Communication(1994)

Carole L. Trybys, " Injection Casting of U-Zr-Mn, Sarrogate alloy for U-Pu-Zr-Am-Np ", J. Nucl. Materials, 224(1995) 305-306

H. Tsai and L. A. Neimark , " Irradiation Performance of Fuel - Length Metallic IFR Fuels , Proceeding of International Conference on Design and Safety of Advanced Nuclear Power Plants ", Kyoto(1992) 28. 2-1

尾形孝成、常磐井守泰、堀江正明、中川ら : " FBR 金属燃料サイクルの成立性評価 - 金属燃料の射出成型法の検討、電力中央研究所共同研究報告書(T988925)、平成2年12月

T. Nakagawa, T. Ogata, M. Tokiwai : Trans. American Nuclear Society, 60(1989) 315

(21) 小山、飯塚、「乾式再処理プロセスの性能評価モデルとマスバランスの検討」、電中研研究報告T92078(1993)

(22) T. Koyama, M. Iizuka, H. Tanaka, " Process Evaluation of Pyrometallurgical Reprocessing Facility ", Proceedings of ICONE-5, 1998.

### 第5章

C. C. McPheeters et al., Application of the Pyrochemical Process to Recycle of Actinides from LWR Spent Fuel,

Progress in Nuclear Energy, 31, 175-186( 1997 )  
 C. C. McPheeters et al., " Pyrochemical Methods for Actinide Recovery from LWR Spent Fuel ", GLOBAL '93 vol. 2, 1094-1101  
 J. E. Battles et al., " Pyrometallurgical Processes for Recovery of Actinide Elements ", Actinide Processing: Methods and Materials( 1994 ) 135-151  
 G. K. Johnson et al., " Pyrochemical Recovery of Actinide Elements from Spent Light Water Reactor Fuel ", Actinide Processing : Methods and Materials( 1994 ) 199-214  
 J. J. Laidler et al., ANL Chemical Technology Division Annual Technical Report 1994 101-110  
 E. J. Karell et al., " Treatment of Oxide Spent Fuel Using the Lithium Reduction Process ", DOE Spent Nuclear Fuel and Fissile Material Management( ANS, 1996. 6. 16-20, Reno, Nevada )pp. 352-8  
 J. P. Ackerman et al., " Advanced Waste Forms from Spent Nuclear Fuel ", GLOBAL '95 vol. 1, 750-757  
 宇佐見剛他、「金属リチウムによるUO<sub>2</sub>粉末及び塊状模擬酸化物の還元挙動」、電力中央研究所研究報告

## 第6章

井上正、倉田正輝、坂村義治、土方孝敏、木下賢介、魚住浩一、加藤徹也、「分離プロセスの改良と実証」電力中央研究所総合報告T57( 1998 )  
 宮代一、井上正、吉鋪信也、坂田昌弘、「長半減期核種の高温度冶金法による群分離 - 基本的成立性の評価 - 」電中研研究報告、T87920、昭和63年5月  
 中村勤也、倉田正輝、坂村昌弘、「長半減期核種の乾式分離技術の開発 - 脱硝による高レベル廃液からのアルカリ元素の分離 - 」電中研研究報告、T95041、平成8年5月  
 溶融塩・熱技術研究会監修 無機融体の物性値第II集 KNO<sub>3</sub>+NaNO<sub>2</sub>+NaNO<sub>3</sub>系溶融塩( HTS )、1988、(株)日本原子力情報センター発行  
 倉田正輝、「長半減期核種の乾式分離技術の開発-改良脱硝プロセスによるアルカリ元素の分離-」電中研研究報告、T98002、平成10年9月  
 日下部、宮代、坂田、井上、北川、三谷、清水、首藤、「長半減期核種の乾式群分離技術の開発-改良塩素化法試験及び塩素化工程概念の検討-」電中研-住友金属鉱山共同研究報告、T988905、平成2年5月  
 小長谷秀明、土方孝敏、中村協正、倉田正輝、「長半減期核種の乾式分離技術の開発-塩浴塩素化法の塩素化工程への適用可能性の検討-」電中研研究報告、T97076、平成10年6月  
 土方孝敏、中村協正、倉田正輝、小長谷秀明、「溶融塩トラップでの揮発性塩化物の回収( )」電力中央研究所研究報告T96068( 1997 )

中村協正、土方孝敏、「長半減期核種の乾式分離技術の開発-LiCl-KCl共晶塩中からのMoCl<sub>5</sub>の揮発挙動」、電中研研究報告、T97078、平成10年6月

K. Kinoshita, K. Uozumi, M. Kurata, and T. Inoue, " Estimation of Material Balance in Pyrometallurgical Partitioning Process for TRUs from HLLW ", Proc. of 5th International Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning & Transmutation, Mol, Belgium, Nov. 25-27, 1998, p. 169-178( 1999 )

K. Kinoshita, T. Inoue, S. P. Fusselman, D. L. Grimmer, J. J. Roy, R. L. Gay, C. L. Krueger, C. R. Nabelek, and T. S. Storvick, " Separation of Uranium and Transuranic Elements from Rare Earth Elements by means of Multistage Extraction in LiCl-KCl/Bi System ", J. Nucl. Sci. Technol., 36, 189-197( 1999 )

坂村義治、井上正、T. S. Storvick、L. F. Grantham、第26回溶融塩化学討論会予稿集p. 101、札幌( 1994 )

M. Kurata, Y. Sakamura, T. Hijikata, and K. Kinoshita, " Distribution behavior of uranium, neptunium, rare-earth elements and alkaline-earth elements between molten LiCl-KCl eutectic salt and liquid cadmium or bismuth ", J. Nucl. Mater., 227, 110-121( 1995 )

魚住浩一、木下賢介、S. P. Fusselman, C. L. Krueger, D. L. Grimmer, 「混合溶融塩からのアクチノイド元素の分離・回収実証試験」電力中央研究所研究報告T97061( 1998 )

Y. Sakamura, T. Inoue, T. Shimizu, K. Kobayashi, " Development of Pyrometallurgical Partitioning Technology for TRUs in High Level Radioactive Wastes -Vitrification Process for Salt Wastes ", Proc. of Global A97, Yokohama, Japan, Vol. 2, p. 1222-1227( 1997 )

五十嵐寛、NEW GLASS, 11, 11-18( 1996 )

M. Kurata, Y. Sakamura, T. Hijikata, K. Kinoshita, and T. Inoue, " Thermodynamic studies on reductive extraction process of pyrometallurgical partitioning ", CRIEPI REPORT ET96001( 1997 )

M. Kubota and Y. Morita, " Preliminary Assessment on four Group Partitioning Process Developed in JAERI ", Proc. of Global A97, Yokohama, Japan, Vol. 1, p. 458-462 ( 1997 )

## 第7章

L. Kahl et al., KfK 3251( 1982 )

井上正ら、「超ウラン元素の乾式分離要素技術の開発と効率的分離プロセスの構築」、電中研総合報告、T39( 1995 )

大内仁ら、「放射性廃棄物の処理技術開発」、動燃技報 No. 100, pp. 215-233、核燃料サイクル開発機構( 1996 )

吉田拓真、小山正史、「乾式再処理における塩廃棄物固化

体の開発 - ソーダライトの乾式直接合成法の検討 - 」電中研研究報告T93032、電力中央研究所(1994)

瀬戸千秋、小山正史、沢俊雄、「乾式再処理における塩廃棄物固化体の開発 - 塩廃棄物固化体へのソーダライトの適用性の評価 - 」電中研研究報告T95081、電力中央研究所(1996)

松原千秋、小山正史、沢俊雄、「乾式再処理における塩廃棄物固化体の開発 - 塩廃棄物固化体へのソーダライトの適用性の評価 - 」電中研研究報告T96057、電力中央研究所(1997)

Michele A. Lewis, Donald F. Fischer, Londa J. Smith : Salt-Occluded Zeolites as an Immobilization Matrix for Chloride Waste Salt, J. Am. Ceram. Soc. 76, 2826-2832 (1993)

S. M. McDevitt, D. P. Abraham, D. D. Keiser, Jr., " Alloy Waste Forms for Metal Fission Products and Actinides Isolated by Spent Nuclear Fuel Treatment," Proc. 2nd Int. Symp. Extraction and Processing for the Treatment and Minimization of Wastes, Scottsdale, Arizona, Oct. 27-30, 1996, 177(1996)

Dennis D. Keiser, Jr., Brian R. Westphal, R. S. Herbst, Steve G. Johnson, " Initial Results of Metal Waste-Form Development Activities at ANL-West," Trans. Am. Nucl. Soc., 77, 80(1997)

## 第9章

W. H. Hannum, et al., " The Technology of the Integral Fast Reactor and its Associated Fuel Cycle ", Progress in Nuclear Energy, vol. 31, No. 1/2(1997)

## 第11章

L. C. Walters, et al., " Performance of Metallic Fuels and Blankets in Liquid Metal Fast Breeder Reactors," Nucl. Technol., 65, 179(1984)

D. C. Wade and Y. I. Chang, " The Integral Fast Reactor Concept: Physics of Operation and Safety," Nucl. Sci. Eng., 100, 507(1988)

H. Tsai, et al., " Irradiation Performance of U-Pu-Zr Metal Fuels for Liquid-Metal-Cooled Reactors," Proceedings of 3rd JSME/ASME Joint Intl. Conf. on Nuclear Engineering, Kyoto(1995)

T. Ogata and T. Yokoo, " Development and Validation of ALFUS : an Irradiation Behavior Analysis Code for Metallic Fast Reactor Fuels," Nucl. Technol., 128, 113 (1999)

尾形孝成、他、「高速炉用金属燃料における液相形成温度の評価 ~ U-Pu-Zr合金とFeとの923Kにおける反応 ~ 」、電中研報告T98028(1999)

## 第12章

横尾健、他、「金属燃料高速増殖炉の設計検討」、電中研報告T88043(1989)

T. Yokoo, et al., " A Consideration on Excess Reactivity Reduction in Metal Fuel FBR Core Design," Proceedings of International Conference on the Physics of Reactors, Marseille(1990)

横尾健、他、「金属燃料FBR炉心の設計検討」、電中研報告T91013(1991)

T. Kobayashi, et al., " Development of the SESAME Metallic Fuel Performance Code," Nucl. Technol., 89, 183 (1990)

横尾健、他、「金属燃料FBRサイクル導入時における超ウラン元素マスバランスの評価」、電中研報告T98026(1999)

## 第13章

横尾健、他、「金属燃料炉心における安全性確保の方策と課題」、電中研報告T92007(1992)

西村友弘、「金属燃料炉心の受動的安全性評価」、電中研報告T91040(1992)

## 第14章

H. Nakagawa, et al., " Cost reduction Study of a 1000MWe Loop-Type Demonstration Fast breeder Reactor," Int. Conf. on Fast Breeder System, Experience Gained and Path to Economical Power Generation, Richland, Wa., 1987. 9. 13-17.

笹原昭博、松村哲夫、「長半減期核種の金属燃料FBRによる消滅処理技術の開発」、電中研報告T87071(1988)

笹原昭博、松村哲夫、「長半減期核種の金属燃料FBRによる消滅処理技術の開発」、電中研報告T88042(1989)

横尾健、姜政敏、「超ウラン元素をリサイクルする各種新型燃料高速炉の特性評価」、電中研報告T94023(1995)

井上正、坂田昌弘、宮代一、松本俊一、日下部武、倉田正輝、坂村義治、松村哲夫、笹原昭博、八田洋、「長半減期核種の乾式分離、消滅処理基礎技術の開発」電力中央研究所総合報告 T15 平成2年5月

倉田正輝、井上正、L. Koch, J.-C. Spirlet, C. Sari, J.-F. Babelot, 超ウラン元素含有合金の製造とその特性の把握 電力中央研究所研究報告T92005平成4年10月

笹原昭博、松村哲夫、燃料に混入する希土類元素の影響とTRUサイクルの解析 電力中央研究所研究報告 T88042平成1年3月

倉田正輝、井上正、尾形孝成、L. Koch, J.-F. Babelot, J.-L. Faugere, 超ウラン元素含有金属燃料照射試験計画 電力中央研究所研究報告 T92028、平成5年5月

U-Pu-Zr三元系状態図、CRIEPI-ACTINIDE-DATABASE、平成10年9月

---

## 編集後記

---

電中研レビュー第37号「乾式リサイクル技術・金属燃料FBR研究」をお届けいたします。

本号は、当所および当所と国内・外研究機関との共同研究で実施してきた先進的技術である「乾式リサイクルと金属燃料FBR」に関する研究成果を、電中研レビューNo.37として刊行するものです。

現在、我が国では、原子力施設の事故やFBR導入の遅れなどにより、原子力政策のあり方が議論されている

状況にあります。

この時機に、電中研レビューとして、次世代を目指した「乾式リサイクルと金属燃料FBR」を刊行することは、今日、各方面で議論されている将来の原子燃料サイクルや原子力発電のあり方に対しての一助になるものと確信いたします。

読者の皆様には、ご一読の上、忌憚の無いご意見、ご叱責を戴ければ幸いです。

---



---

## 電中研レビュー NO.37

●平成12年1月24日

●編集兼発行・財団法人 電力中央研究所 広報部  
東京都千代田区大手町1-6-1 [大手町ビル7階] ☎100-8126  
☎ (03) 3201-6601 (代表)  
●印刷・株式会社 電友社

---

本部／経済社会研究所 東京都千代田区大手町1-6-1 ☎(03) 3201-6601 ☎100-8126 我孫子研究所 千葉県我孫子市我孫子1646 ☎(0471) 82-1181 ☎270-1194  
狛江研究所／情報研究所／原子力情報センター 横須賀研究所 神奈川県横須賀市長坂2-6-1 ☎(0468) 56-2121 ☎240-0196  
ヒューマンファクター研究センター／事務センター 赤城試験センター 群馬県勢多郡宮城村苗ヶ島2567 ☎(027) 283-2721 ☎371-0241  
東京都狛江市岩戸北2-11-1 ☎(03) 3480-2111 ☎201-8511 塩原実験場 栃木県那須郡塩原町関谷1033 ☎(0287) 35-2048 ☎329-2801

---

