

実用化に向けた金属燃料サイクルの工学技術実証に関する研究開発

(受託者)財団法人電力中央研究所

(研究代表者)小山正史 原子力技術研究所 次世代サイクル領域

(再委託先)国立大学法人京都大学、独立行政法人日本原子力研究開発機構

(研究開発期間)平成21～23年度

1. 研究開発の背景とねらい

金属燃料サイクルは、ウラン(U)とプルトニウム(Pu)の合金を燃料とし、再処理と燃料製造を冶金的に行う革新的な高速炉サイクル技術である。この技術の利点は、熱伝導の良い合金燃料を用いるため高速炉の安全性や燃焼効率の向上が望めること、乾式再処理技術では原理的にPu分離が困難なため核拡散抵抗性が高いこと、半減期が長いマイナーアクチニド(MA)を回収・燃焼できるので廃棄物負担が低減されることなどで、システムとしての高い経済性も期待されている。近年、米国に加えて成長が著しいアジア諸国でも高速炉サイクルの実用化技術候補に金属燃料サイクルが選定され、世界的に注目を集めている。一方、わが国で進められているFBRサイクル実用化研究開発(FaCT)では、酸化物燃料と湿式再処理からなる高速炉サイクルを主概念とし、金属燃料サイクルはそれを超える可能性があるが実績が乏しいとして副概念と位置付けられている。

このような状況の下、報告者らは、自主研究として少量のUやPuを用いた小規模試験を自ら実施することで、プロセスの成立性確認や最適化を進めるとともに、試験の経験に基づいて実用的なプロセス機器を提案し、文部科学省公募事業において開発を進めてきた。その成果は先進の技術として上記をはじめとする諸外国から高く評価されている。本研究開発では、国際競争力のある本技術をさらに発展し、実用化の重要ステップである数トン/年規模での工学ホット実証試験につなげる事を目標とする。具体的には、これまでプロセス単体で開発を進めてきた機器を、図1に示すサイクル全体について設計・製作し、各プロセスをつないだ連続試験を繰り返すことで、安定した性能を達成できる設計データを得るとともに、不純物や酸化物の生成による回収ロス等を含む実効的なマスバランスデータを工学規模で蓄積する。併せて、プロセスからプロセスへ回収物や凝固物等を実際にやり取りすることにより、マテリアルハンドリングを含めた実用機器概念の構築を目指す。

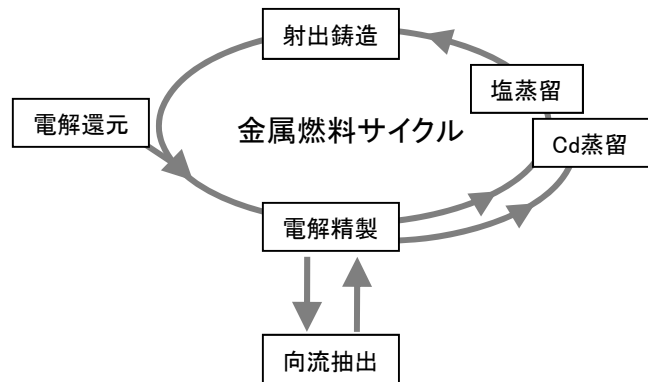


図1 工学試験における各工程の関連図

2. 研究開発成果

1) Uを用いた工学規模での燃料サイクル試験

金属燃料サイクルの主要プロセスについて工学規模ホット試験に向けた機器設計データを得るためにUを用いた連続試験を行う。このうち平成22年度は、5kg規模のUを用いて①電解還元-②電解精製-③陰極処理-④射出鋳造のプロセス連続試験を実施した。

①約5.7kg(装置の最大装荷量)のUO₂ペレットを200-50Aで電解還元し、回収物取扱装置により電

解精製陽極バスケットに移し替えることができた。②5kg-Uの電解精製試験は100-30Aで実施し、電解中に陰極U析出物の掻き取り操作を2回行った。③0.4kg/バッチの陰極処理

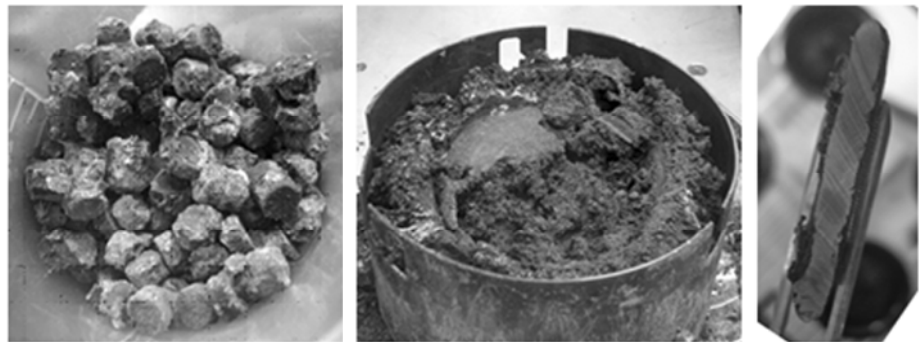


図2 (左)電解還元後の回収ペレット、(中)電解精製の陰極回収物(金属ウランと浴塩の混合物)、(右)陰極回収物を塩蒸留して得られたUインゴット(断面)

(塩蒸留)で得られたUインゴットは、断面観察により内部は高密度の金属であることが確認された(図2)。④このUインゴットを原料にU-10wt.%Zr合金の射出鋳造を行った。上端まで溶融合金が射出され、装荷量の約70%を鋳込むことができた(図3)。電解精製試験開始前の総U量(陽極装荷物中U量+電解精製塩浴中U量+射出鋳造に用いた予備試験射出ピンおよびヒール中U量)と、プロセス連続試験終了時の総U量(射出ピン+装置内各所に分散したものや分析試料など全て)とを比較すると、前者が9,618g、後者が9,703gとなった。電解精製、陰極回収物移し替え、陰極処理、射出鋳造の4つの試験を経た後のU量評価値の変化は83g、初期値の0.86%に留まった。この変化量は、各時点/それぞれの箇所におけるU量を決定するための分析における誤差を考慮すれば極めて僅かな値であり、一連の試験におけるUマスバランスが非常に良好に保たれたことを示している。



図3 射出鋳造の結果 射出鋳造で得られたU-10wt.%Zr合金ロッド(上の2本はモールドにコーティングせず)

2) 溶融塩中のU、Pu濃度モニタリング技術の開発

適時性の高い核物質管理を実現するために、吸光分光分析法を用いた溶融塩中での高濃度のUおよびPuの定量分析技術を開発する。このうち平成22年度はUと希土類の検討を行った。

500°CのLiCl-KCl共晶溶融塩中において、厚さ1mmの薄型分光セルを用いてウランと希土類元素(Y, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd)の混合系の吸光分光スペクトルを測定した(図4)。Uについては9416 cm^{-1} および8271 cm^{-1} の波数条件下において、 $\pm 1\%$ の誤差範囲内において定量できた。Ndは12361 cm^{-1} および13820 cm^{-1} の波数条件下において、 $\pm 6\%$ の誤差範囲内において定量できた。Prについては5058 cm^{-1} で同様に濃度定量を行ったところ $\pm 9\%$ の誤差で濃度が得られた。このことからウラン-希土類元素混合塩中で、U、Nd、Prの吸光ピーク位置における定量評価は可能である。

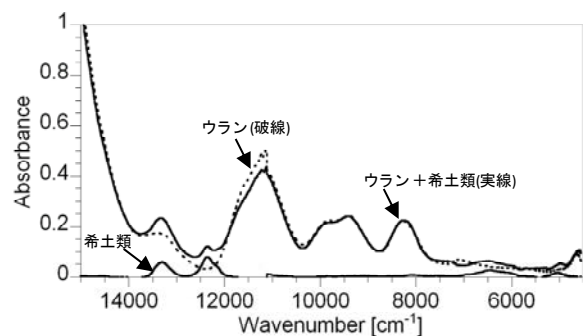


図4 厚さ1mmセルの中でのウラン、希土類、ウラン+希土類の吸光スペクトル

3) 模擬TRU物質を用いた工学規模向流抽出試験

金属燃料サイクルでは電解精製槽の浴塩に蓄積するFPを除去する必要があり、この処理の一部として、電解槽の浴塩を還元剤(Li)を含むカドミウム(Cd)と接触させて、アクチニドを選択的にCd中に抽出する向流抽出技術を開発する。平成22年度は装置を作製し機能試験を行った(図5)。

向流抽出装置を設計製作し、アルゴン雰囲気グローブボックスに据え付けた。この装置は、塩供給槽およびCd供給槽、ピストンポンプ、汲み上げられた塩とCdを受ける上部供給槽、連続的に供給される塩とCdが接触する6段の向流抽出器、抽出器から排出された塩とCdを別々に受ける塩回収槽およびCd回収槽、塩とCdを再利用するための逆抽出槽からなる。塩とCdの流量は、ポンプ運転間隔と出口ニードル開度調節により15-60ml/分程度に調整できた。これにより、工学規模向流抽出試験で想定している25-50ml/分の流量が得られることを確認した。

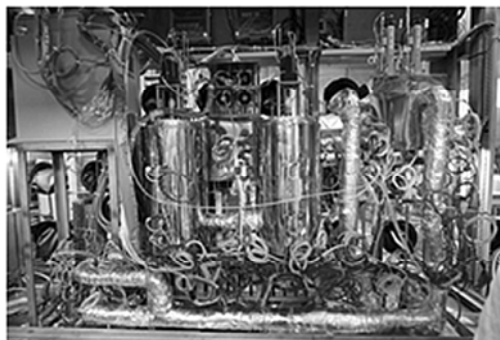


図5 向流抽出装置

4) 模擬TRU物質を用いた工学規模Cd陰極/Cd蒸留試験

電解精製工程の液体Cd陰極に回収したU, TRU-Cd合金は陰極処理(Cd蒸留)工程で処理される。これまでの試験では、実用規模に必要な処理量240kg/日に相当する蒸留速度を達成したが、回収したCd中には数千ppmのGd(模擬TRU)が混入した。そこで蒸留速度と分離性能を両立する工学規模Cd蒸留装置を開発する。平成22年度は小型装置で飛沫捕集法を検討したのち工学装置を製作した。

小型のCd蒸留試験器具を用いて飛沫捕集器の形状や捕集効率を把握した。邪魔板を2枚装着したとき、蒸留速度26g/cm²/hで目標値27g/cm²/hを概ね達成しつつ、蒸留Cd中のGd濃度は目標値100ppmを下回る28ppmを達成した。この結果をふまえ、工学規模Cd蒸留装置を設計・製作をした(図6)。Cd蒸留試験装置は機能試験で1600℃まで昇温を達成した。黒鉛るつぼの自動搬送・搬出機構など動作試験を行った。

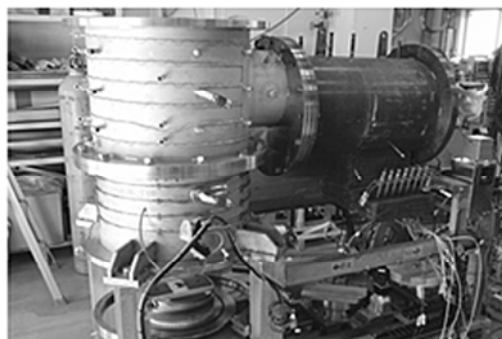


図6 Cd蒸留装置(工場での仮組み状態
左が蒸留槽、右が凝縮槽)

5) 少量のTRUによる電解精製と還元抽出における補完データの測定

本事業ではUや希土類(模擬TRU)を用いた試験を行うが、これらを補完するTRUのデータも引き続き取得する必要がある。平成22年度は、電解精製の補完データとしてAmの挙動を測定するとともに、還元抽出の補完データについては広い濃度範囲での還元抽出試験を実施した。

LiCl-KCl共晶塩(450℃)中でのAm²⁺/Amの電位を測定し-2.827V(塩素電極基準)を得た。また、示差熱分析測定を行い(Am_{0.99}, Np_{0.01})Cl₃試料の融点として992.5±2.5K、(Am_{0.94}, Np_{0.06})Cl₃試料の液相線温度として970.5±4.5Kを得た。前者は既報告値と測定誤差範囲内で一致しており、報告値がない後者はAmCl₃の融点よりも約22K低い温度であった。

向流抽出工程の最終段を模擬した塩中のU、Pu、Am濃度が希薄な条件での還元抽出試験を実施した。既存データより希薄な条件(U : 9.14×10^{-5} mol%、Pu : 2.05×10^{-6} mol%)で分離係数は文献値と概ね一致し広い範囲で一定であることを確かめた(図7)。

6) 工学ホット実証試験に向けたプロセスフローシートの開発

工学ホット実証試験の具体的な計画立案への反映を目途とし、同試験で実施すべきプロセスフローの構築と、各プロセス機器の容量と全体のマスバランスの評価を行う。このうち平成22年度はプロセスフローを作成し、各工程の取扱容量などを予備的に検討した。

工学ホット実証試験に必要な工程は、前処理としてピン剪断、主要工程として電解精製、陰極処理(塩蒸留およびCd蒸留)、射出鋳造、使用済み塩や残渣の処理として、向流抽出、ゼオライトカラム、ソーダライト固化、陽極処理、

ドロス処理である。本事業と同じ1トン/年(5kg/日)の規模とすると、1日当たりの処理量は燃料ピン約11本であり、発生する高レベル廃棄体は実機と同じ150リットルの固化体を想定すると年に3.4本となる。取扱要領の一例として、たとえば電解精製装置は400mm×800mm×液深さ400mm程度(容量約130リットル)であり、1つの陰極の処理規模は実機の約1/10、固体陰極で約3.5kg/日、液体Cd陰極で約1kg/日の回収量となる。

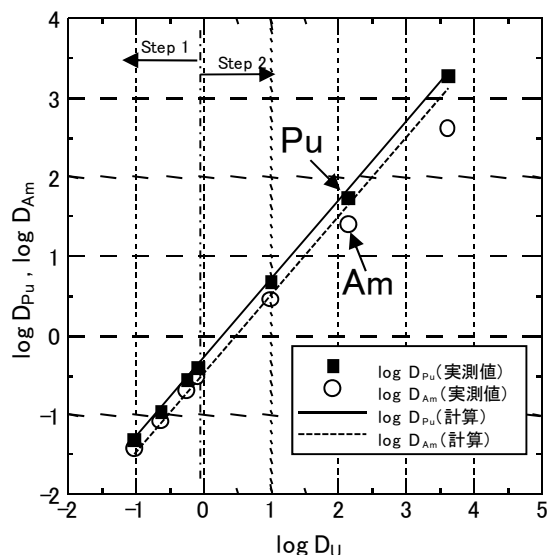


図7 希薄濃度領域でのUとPu、Amの分配係数の関係(500°C)

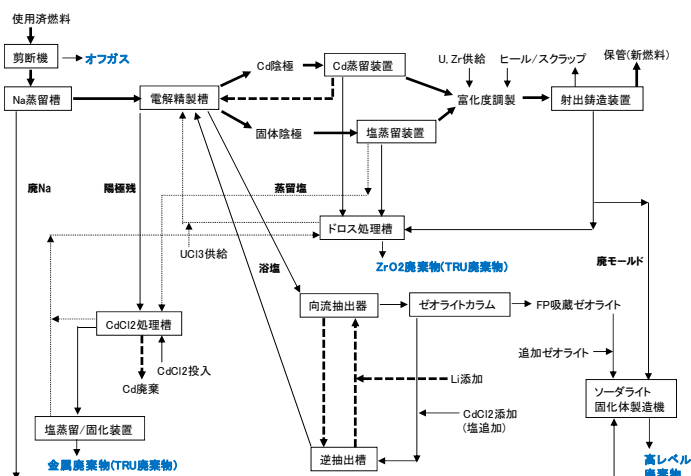


図8 工学規模ホット試験のプロセスフロー

3. 今後の展望

Uを用いた工学規模での燃料サイクル試験については、電解精製～塩蒸留～射出鋳造の繰り返し試験を実施し、実効的なマスバランスデータを工学規模で蓄積する。

模擬TRU物質を用いた工学規模試験では、6段の向流抽出試験を行い、実機で求められる分離回収性能に相当する能力を実証する。また、工学規模のCd蒸留試験を実施し、これまでに得られている蒸留速度を維持しつつ回収Cd中の不純物濃度の低減を図る。さらに、既設の工学規模電解槽とこれらの装置を結合し、電解槽のCdおよび溶融塩のリサイクルについて、不純物の発生やマスバランスを評価する。以上の結果を総合して、実用化に向けた次のフェーズとして実施すべき工学ホット試験計画を立案する。