

# 化学溶解を用いた窒化物燃料の革新的乾式再処理プロセスの研究

(受託者)独立行政法人 日本原子力研究開発機構

(研究代表者)佐藤 匠 原子力基礎工学研究部門

(研究開発期間)平成22年度～23年度

## 1. 研究開発の背景とねらい

原子力機構では、加速器駆動システム(ADS)による核変換用窒化物燃料の乾式再処理を含んだ燃料サイクルの研究開発を行っている。原子力機構が提案している熱出力800 MWのADS用の窒化物燃料には約60 mol%の不活性母材が含まれることから、不活性母材を含む窒化物燃料の再処理に適したプロセスを検討する必要がある。これまでに提案されている熔融塩電解を主工程とした乾式再処理プロセスでは、最終的にアクチノイドの組成比と不純物の含有量の異なる2種類の製品が発生すること、不活性母材の添加による陽極溶解速度の低下等が課題となる。一方、燃料ピンのせん断等の前処理によって使用済みの窒化物燃料が反応面積の大きい粉末状となることに着目すれば、窒化物を $CdCl_2$ 等の酸化剤で化学溶解する手法が有効であると考えられる。

本事業では、再処理工程の大幅な簡素化と製品組成の均一化、及び高濃度の不活性母材を含む核変換用窒化物燃料の処理に対応した、窒化物の化学溶解と向流多段抽出を組み合わせた乾式再処理プロセスを構築するため、キーテクノロジーとなる窒化物燃料を熔融塩中で化学溶解する技術の開発とプロセス成立性の評価を行う。本事業で開発するプロセスは、まず使用済み窒化物燃料中のアクチノイド元素(Pu、MA)及び核分裂生成物(FP)の希土類(RE)、アルカリ金属(AL)、アルカリ土類(ALE)を $CdCl_2$ 等の酸化剤を用いて化学的に熔融塩中に溶解して、被覆管材料や不溶解残渣となる不活性母材等と分離する。引き続き、熔融塩と液体Cd金属を用いた向流多段抽出によりPu、MAをRE、AL、ALEから分離してPu-MA-Cd合金として回収し、再窒化して窒化物製品とする。このプロセスを適用することで、製品組成の均一化、及び高濃度の不活性母材を含む窒化物燃料の再処理速度の向上が期待できる。

## 2. 研究開発成果

### 2.1 窒化物燃料の化学溶解試験

#### (1) 模擬窒化物燃料の溶解試験

アクチノイド窒化物の模擬物質としてDyNを選定し、温度や粒径の溶解速度への影響を調べた。また、不活性母材または代表的な固体FP元素を含むDyNの化学溶解試験を行い、これらの添加によるDyNの溶解速度への影響や化学溶解工程における不活性母材と固体FP元素の挙動を調べた。その結果、目標とした溶解温度550°C以下、加熱時間12h以内の条件で、 $CdCl_2$ によりDyNは溶解可能であり、Dyの溶解率は約99%であった。溶解試験後、試料中に含まれる酸素不純物(約0.1~0.2 wt%)由来の酸化物と推察される約1%のDyが不溶解残渣となったが、 $ZrCl_4$ による追加溶解によりこれを溶解し、Dyの溶解率としてほぼ100%を達成できた。不活性母材としてZrN及びTiNを含んだDyNについては、試料中のDyはほぼ全量が $CdCl_2$ との反応により熔融塩中に溶解し、ZrN及びTiNは大部分が溶解せずに不溶解残渣となった。一方、代表的な固体FP元素としてNd、Mo、Pdを含むDyNについては、 $CdCl_2$ との反応によりDyとNdはほぼ全量が溶解し、MoとPdはほぼ全量が不溶解残渣となった。

#### (2) アクチノイド窒化物溶解試験

ADS用窒化物燃料の主要構成元素であるPuNの化学溶解挙動を調べた。その結果、目標と

した溶解温度 550℃以下、加熱時間 12h 以内の条件で、 $\text{CdCl}_2$ により PuN は溶解可能であり、Pu の溶解率はほぼ 100%で、不溶解残渣は確認できなかった。図 1 に PuN 溶解試験後の試料の外観、図 2 に加熱温度による PuN 溶解速度の比較をそれぞれ示す。不活性母材として ZrN 及び TiN を含んだ PuN については、試料中の Pu は  $\text{CdCl}_2$ との反応によりほぼ全量が熔融塩中に溶解し、ZrN 及び TiN は溶解せずに不溶解残渣となった。試料中の不活性母材の濃度が増加すると、Pu の溶解速度は低下した。溶解速度の低下は、PuN と固溶しない TiN よりも、PuN と固溶体を形成する ZrN の影響が大きい結果であった。しかし、最も溶解速度の遅い ZrN を 90mol%含んだ試料であっても、550℃で 12 時間の加熱により約 97%の Pu が溶解しており、本手法で Pu が溶解できるという見通しが得られた。



図 1 PuN 溶解試験後の試料

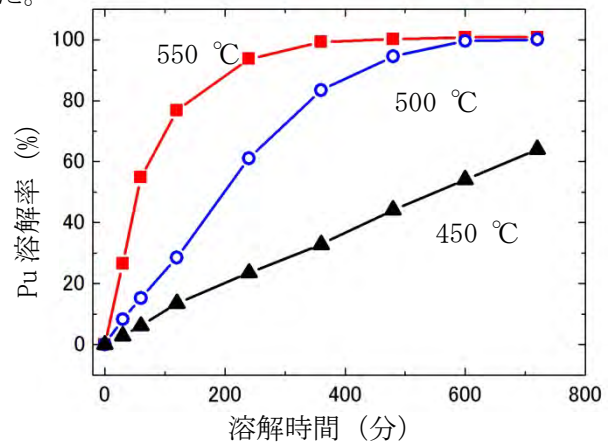


図 2 加熱温度による PuN 溶解速度の比較

## 2. 2 不活性母材及び不純物の ADS 燃料性能への影響評価

不活性母材の候補材である TiN 及び ZrN の ADS 燃料性能への影響を計算により評価した結果、対象とすべき不活性母材濃度の範囲として TiN は 57~85 mol%、ZrN は 53~82 mol% の値が得られた。不純物の影響を評価した結果、燃料中の RE 不純物の混入割合が大きくなると、不活性母材の割合を小さくして Pu+MA の含有割合を高める必要があり、熱伝導度等の燃料性能の低下をまねく。一方、乾式再処理での RE の除染係数 (DF) が 4 以上であれば、得られる窒化物燃料の組成が ADS 燃料設計に適合できる結果であった。

## 2. 3 新規再処理プロセスの成立性評価

本プロセスに基づくマスバランスと燃料設計への適合性を計算により評価した。本事業で得られた試験結果及び既存データを基にマスバランスを評価した結果、本プロセスによる RE の DF は 25、アクチノイド元素の回収率は 99.98% となり、DF4 以上及び回収率 99.95% 以上の基準が達成でき、このプロセスが原理的に成立することを確認した。従来プロセスでは、電解精製の電解槽中に大量の MA が滞留する。本プロセスは電解精製がないため工程全体の MA 存在量を従来の約 0.4 倍まで削減でき、設備への放射線や発熱等による負荷を低減できる利点があるが、廃棄物となるゼオライトは約 2 倍になるという評価結果が得られた。

## 3. 今後の展望

以上のように、実験結果から使用済窒化物燃料の化学溶解工程が技術的に成立する見通しが得られ、炉心設計及びマスバランスの計算結果から新規再処理プロセスが原理的に成立することが確認できた。一方、不活性母材を分離・回収してリサイクルする手法の開発、塩廃棄物の増大への対応等が課題であり、今後はこれらの課題解決に向けて検討していきたい。