

FBR 移行サイクルの柔軟性向上技術の実用化に関する研究開発

(受託者) 日立GEニュークリア・エナジー株式会社

(研究代表者) 深澤哲生 日立GE日立事業所燃料サイクル部

(再委託先) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、国立大学法人北海道大学、
国立大学法人福井大学

(研究開発期間) 平成21年度～23年度

1. 研究開発の背景とねらい

本事業では、軽水炉からFBRへの移行期において優れた特性を有している柔軟な燃料サイクルシステム構想(FFCI, Flexible Fuel Cycle Initiative)の実用化をめざした技術開発を行う。FFCIの枢要技術であるウラン分別技術とリサイクル原料一時貯蔵技術の実用性を確認する。

移行期には軽水炉使用済燃料再処理の回収PuでFBRを立ち上げる。これまで、FBR導入開始時期・速度等の不確定要因を変動させた種々移行シナリオに対する燃料サイクルシステムの柔軟性や経済性を評価し、FFCIの優位性を基礎的に確認した。また、FFCIの枢要技術であるウラン分別とリサイクル原料貯蔵の技術的成立性をさらに詳細に検討し、FFCIの実用性を確認する必要があることを明確化した。図1に移行期の燃料サイクルシステム、図2に優位性評価結果を示す。

本研究開発では、まずウラン分別の候補技術として、考えられる各種の化学的方法を抽出して比較評価し、湿式法及び乾式法を1技術ずつ選定する。次に、選定したウラン分別技術によって得られる模擬のリサイクル原料を用いて、粒径、密度等を変化させたパラメータ試験を実施し、リサイクル原料の物性を評価する。また、従来データ及び上記試験で得られたデータに基づき、リサイクル原料の熱伝導度解析モデルを確立し、貯蔵施設の成立性を詳細な伝熱流動解析コード及び臨界安全性解析コードで評価し、十分な安全性を確保できる施設を検討する。

以上を実施することにより、移行期の種々FBR導入シナリオに柔軟に対応できる燃料サイクルシステムの実用性を確認でき、将来の有望な選択肢として技術的成立性を示すことができる。

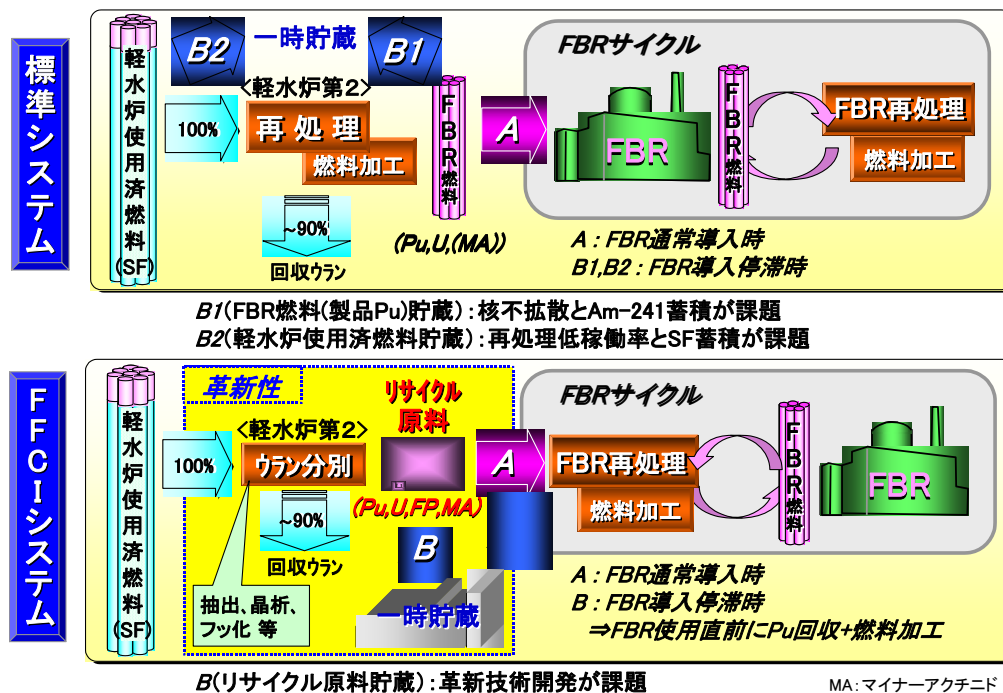


図1 FBR 移行期の標準的な燃料サイクルシステムと FFCI システム

項目	サイクルシステム	標準システム	FFCIシステム
	特徴	フル再処理	U分別のみ
第二L-再	Puバランス対策	製品Pu貯蔵(図1B1)/SF貯蔵(B2)	リサイクル原料貯蔵(B)
	① 柔軟性 (不確実性に伴うリスク)	・FBR導入遅延の場合、製品Pu又はSFの長期大量貯蔵が必要であり、社会的受容性確保が困難の可能性あり、 リスクが高い	・FBR導入遅延を含め、種々の移行期シナリオに対しリサイクル原料の貯蔵により柔軟に対応可能であり、 リスクが低い
総合評価	② 経済性	・ベース	・FBR再処理設備の共用化により 18~30%経済性が良い ・製品Pu貯蔵量に制限ある場合は 18~40%経済性が良い
	③ 核不拡散	・FBR導入遅延の場合、製品Pu長期大量貯蔵が必要であり、 核不拡散上問題 となる可能性高い	・リサイクル原料は核拡散抵抗高く、また保証措置上の要求を満たすため 核不拡散性に優れる
	④ 環境負荷低減	・製品PuはMA分離再々処理要 ・軽水炉再処理に伴い稼働率低	・FBR再処理設備に付属するので稼働率高
	⑤ 信頼性	・特に開発課題なく 信頼性が高い	・ リサイクル原料技術開発要

(○:優る、-:ベース、△:劣る、▲:問題)

図2 FBR移行期の燃料サイクルシステムの優位性評価結果

2. 研究開発成果

(1) 一時貯蔵物質としてのリサイクル原料の調製・物性測定試験

① リサイクル原料の調製試験

i) リサイクル原料調製技術評価

各種のウラン分別を含む再処理技術を、ウラン分別順番、使用媒体数、分別ウラン純度、分別ウラン形態、ウラン分別残渣形態、の観点から比較評価した結果、晶析法(先進湿式法)とフッ化物揮発法が選定された。

ii) リサイクル原料調製模擬乾式試験

平成21年度選定した乾式法調製試験条件で、模擬リサイクル原料(コールド模擬FPとウラン)を調製する試験を実施し、乾式リサイクル原料の製作の成立性を評価した。

UF₄及び模擬FPフッ化物試薬(SrF₂、BaF₂、CeF₃、NdF₃)を混合し、ペレット状に加圧成型したものを高純度アルゴン気流中695-700℃で2時間加熱することにより、270gの乾式模擬リサイクル原料を調製した。これをスタンプミルと乳鉢を併用して破碎・粉砕し、32-63μmと63-90μmの2つの粒径群に分級し、物性測定に供した。乾式リサイクル原料製作成立性は、調製時のフッ化物の不安定性と生成粒子径に留意が必要で、貯蔵時の臨界安全・冷却・フッ化物安定性の観点から充填密度と雰囲気制御が望ましい。

iii) リサイクル原料調製実燃料湿式試験

平成21年度整備した電気炉を用いて、実使用済燃料を用いた調製(焼成)試験を実施し、湿式リサイクル原料の製作の成立性を評価した。

調製試験では、使用済燃料硝酸溶解液の全量脱硝試験(比較試験)と硝酸ウラン析出状態での上澄み液脱硝試験(晶析模擬試験)の2試験を実施した。使用済燃料約28gを5N-HNO₃約100mlに溶解し、

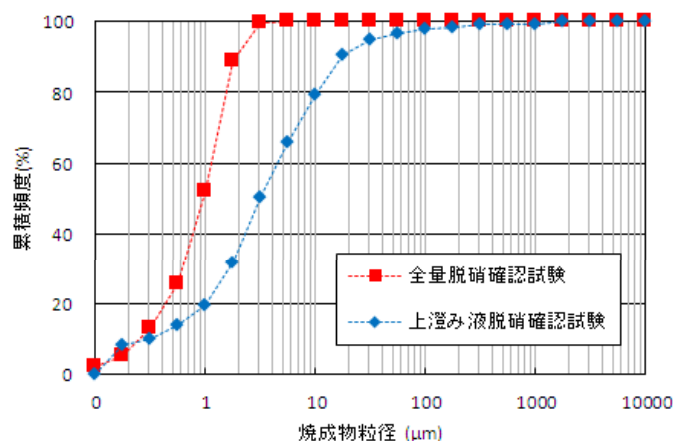


図3 焼成物の粒度分布

全量脱硝試験では、溶解液約 40ml を分取し、空気中で加熱蒸発・脱硝焼成し、焼成物の詳細 SEM 観察を実施した。上澄み液脱硝試験では、溶解液約 60ml を分取し、空気中で液量 27ml を目標に加熱濃縮した。冷却後ろ過した上澄み液は空気中でさらに加熱蒸発・脱硝焼成し、焼成物の詳細 SEM 観察を実施した。最終焼成物の粒径分布(累積頻度)を図 3 に示す。全量脱硝焼成物の方が小粒径である。湿式リサイクル原料の製作成立性は、調製時の晶析核物質量と生成粒子径に留意が必要で、貯蔵時の臨界安全・冷却の観点から充填密度と雰囲気制御が望ましい。

iv) リサイクル原料調製試験結果評価

乾式、湿式でのリサイクル原料の調製に関して、最適なウラン分別技術を選定するための特質評価を、a. 調製全体プロセス、b. 調製技術、c. 安定性、d. FBR 再処理性に着目して行った。

乾式法(フッ化物揮発法)によるリサイクル原料調製は以下に示す特徴を有す。

- a. 大部分のウランを迅速に除去でき、残りの物質をそのまま一時貯蔵できる。
- b. 効果的に後段工程を簡略化でき、ウラン分別システムそのものを簡素化できる。
- c. フッ化物は高温で不安定なため、昇温時の安定性・安全性確認が必要となる。
- d. PUREX 法で処理する場合、フッ素を極力除去することが好ましい。

湿式法(晶析法)によるリサイクル原料調製は以下に示す特徴を有す。

- a. 晶析 1 段で約 70%、2 段で約 91%のウランを除去でき、残りの物質を硝酸溶液、硝酸塩、酸化物のいずれかの形態で一時貯蔵することになる。
- b. 効果的に後段工程を簡略化でき、ウラン分別システムそのものを比較的簡素化できる。
- c. 硝酸溶液の脱硝は必要だが、酸化物は安定で一時貯蔵に最も適している。
- d. 硝酸溶液、硝酸塩、酸化物は PUREX 法処理に適している。

② 調製済リサイクル原料の物性評価

i) 模擬リサイクル原料の物性測定試験

乾式法で調製した模擬リサイクル原料の物性(粒径や熱伝導度)の測定試験を実施した。模擬湿式試料についても測定し、比較評価を行った。

乾式模擬リサイクル原料、乾式模擬 FP 加熱物、湿式模擬リサイクル原料、及び比較参照用球状アルミナ粒子について、非定常熱線法により粉体熱伝導率を He 中及び空気中で測定した。一例として、乾式模擬リサイクル原料の熱伝導率測定結果を図 4 に示す。全般的に、熱伝導率は温度上昇とともに増大し、He 中の方が空気中より 1.5 倍から 2 倍程度高い値を示した。粒径の違いによる熱伝導率への効果は、湿式模擬リサイクル原料以外の試料で、特に He 中で顕著に見られ、粒子径が大きい程熱伝導率が増大することを確認した。

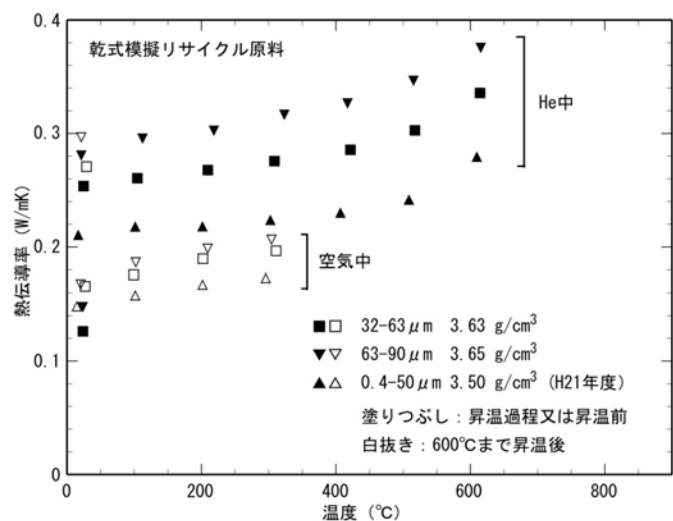


図 4 乾式模擬リサイクル原料の熱伝導率

ii) リサイクル原料の物性評価

熱伝導率測定試験結果については、全ての試料で熱伝導率は温度とともに上昇し、熱伝導率の低い気体の中の熱伝導に支配される傾向を示した。全ての試料について、空気中より He 中の方が

熱伝導率が高く、粒径が大きいほど熱伝導率が高くなっている。前者は粒子内の熱伝導より粒子間(雰囲気ガス中)の熱伝導が支配的なことに起因し、後者は雰囲気ガスの平均自由行程と充填密度(粒子間の接触面積)に起因しているものとする。今回の結果より、粒径だけでなく、粒子内気泡(比表面積の大きさ)や充填密度も熱伝導率に影響していることが分かった。

今回硝酸溶液から調整した模擬リサイクル原料を用いているので、本事業での試験・評価結果より、晶析法以外の他の湿式法についても同時に実用性が示されたことになる。

(2) 調製済リサイクル原料一時貯蔵システムの安全設計

① 熱伝導度解析モデルの設定

リサイクル原料熱伝導度解析モデルを用いてこれまで得られた湿式(酸化物)模擬リサイクル原料及び乾式(フッ化物)模擬リサイクル原料の試験データを解析し、その結果を基に評価した熱伝導度解析モデルの誤差を図5に示す。図5より、本事業で開発した解析モデルは、ほぼ±20%程度の精度で実験結果を再現することが分かった。

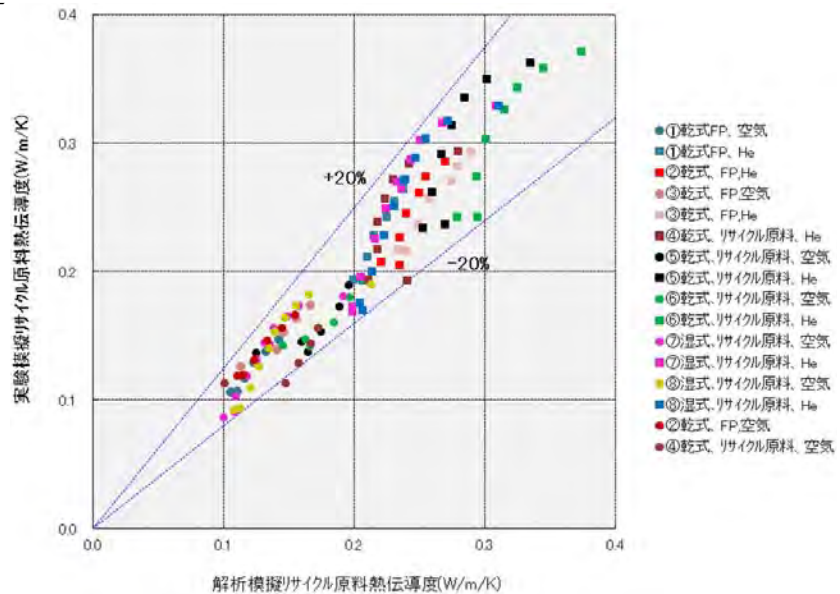


図5 実測データと解析結果の比較

② 調製済リサイクル原料貯蔵設備の設計評価

汎用の流体解析コードを用いて、自然対流と熱輻射を考慮した3次元の熱流動解析を実施した結果、調製済リサイクル原料貯蔵施設は排気温度及び原料粉末温度に対する要求(65℃及び800℃)を満足できる見通しが得られ、除熱性能を確認できた。

③ 臨界安全設計

リサイクル原料は自然循環空気冷却で貯蔵するので熔融事故等は起こり難いが、保守的に溶融して燃料材と構造材が分離するとしてモンテカルロ解析を行い、以下の事項が明らかとなった。

- ・溶融リサイクル原料が通風管の中に留まると超保守的に仮定した場合には、未臨界を達成できなく、収納管の配置間隔、ホウ素を含む仕切り板を設ける対策も有効ではない。
- ・この場合の未臨界を達成する対策としては、収納管の直径サイズを大きくすることまたは貯蔵量の削減が有効である。

なお、リサイクル原料は溶融すると通風管内の冷却空気通路を落下する構造にしており、貯蔵施設の床面に平板状となり中性子のもれ効果により未臨界を確保できることは確認済みである。

3. 今後の展望

柔軟な燃料サイクルシステム FFCI の枢要技術(ウラン分別、リサイクル原料一時貯蔵)の実用化の基本的な見通しを得た。今後は、福島第一原子力発電所事故後の国内外動向、特に政府のエネルギー・環境会議の決定事項を踏まえた柔軟な燃料サイクルの開発を進める。