

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)一般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

(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年度～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処分の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きた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。その成果は諸外国からも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。

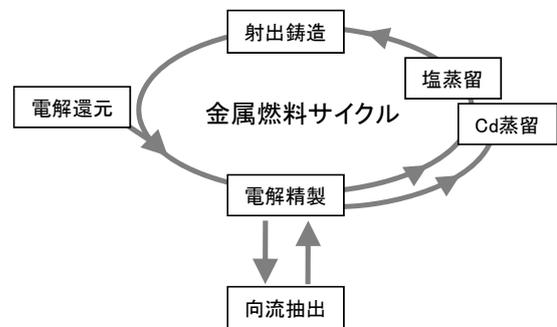


図1 工学試験における各工程の関連図

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

長期間にわたって安定した性能を満たす工学機器の設計基盤を拡充するため、金属燃料サイクルプロセスの主要工程につき、1トン-U/年規模(5kg-U/バッチ/日)の工学試験装置を新たに設計・製作し(図2に例示)、工学規模での燃料サイクル模擬試験を行った。H22年度には、酸化物燃料から金属燃料への移行期を想定し、UO₂ペレット⇒電解還元⇒回収物移替⇒電解精製⇒回収物移替⇒塩蒸留⇒射出製造⇒U-Zrロッド



図2 電解精製装置

に至る一連の連続試験を実施し、続いてH23年度には、この金属燃料をSUS被覆管に入れて模擬使用済金属燃料とし、ピン切断⇒電解精製⇒回収物移替⇒塩蒸留⇒射出鑄造⇒U-Zr、からなるサイクル模擬試験を3サイクル実施した。電解還元では小規模の試験に比べ電流効率の低下が見られたため、陰極・陽極間に多孔質MgO製の隔壁を設け、金属Li、酸素ガスなどの副生成物間の再反応を抑制することにより、高い還元電流と電流効率を両立することができた。電解精製では、操作時間を短縮する電極構造の工夫により、電解析出と析出物回収を効率的に行い、高電解電流と低溶解残さの両立を実現することができた。塩蒸留では、得られたUインゴットは表面に未溶解層が見られたが、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、このU金属インゴットを原料にU-10wt.%Zr合金の射出鑄造を行ったところ、図3のように目標仕様を満足する30本のU-Zr合金を得ることができた。以上の連続試験/サイクル試験では、95%以上の高いUマスバランスを得るとともに、各工程を24時間以内に終了することができた(電解還元は1kg/バッチ試験での見込み)ため、目標とする1t-U/年相当の工学試験機器の設計基盤が得られたと評価した。



図3 (左)陰極回収物を塩蒸留して得られたUインゴットの断面
(右)射出鑄造で得られたU-10wt.%Zr合金ロッド

2) 熔融塩中のU、Pu濃度モニタリング技術の開発

乾式再処理プロセスの熔融塩中に溶存する高濃度のU、Puおよび希土類元素の濃度モニタリングに吸光分光分析法の適応性を検討した。吸光分光装置及びグローブボックスを設置し、光路長の短い(1mmあるいは3mm)薄型石英セルを用いる手法により、500℃のLiCl-KCl共晶塩に溶存した希土類、U、Puの吸光スペクトルを測定した。U-希土類元素混合塩中では、少なくともU、Nd、Prの吸光ピーク位置における定量評価が可能であることが明らかになった。Puを溶解した試料とU及び希土類元素が共存する試料を同時に測定した場合は、近赤外領域でのf-f遷移の吸光度からUの濃度定量が可能であることが分かった。このとき、U濃度が低い試料についてはU(III)のf-d遷移の吸光帯がある可視領域においてPu(III)の吸光ピークを分別することができ、Pu濃度の定量可能性が示された(図4)。

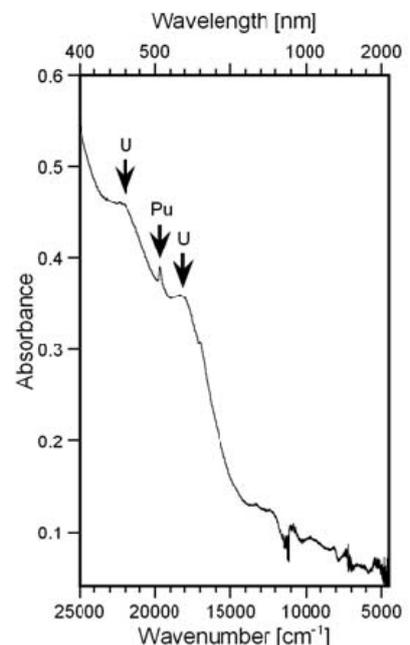


図4 Puを含むLiCl-KClと希土類元素とUを含むLiCl-KClを同時測定した際の吸光スペクトル(500℃)

3) 模擬TRU物質を用いた工学規模向流抽出試験

工学的に必要な抽出段数を有する体系で抽出装置全体としての機器性能を示すことを目的として、まずアクリル製の装置を製作して水/液体Gaによる流動可視試験を実施したのち、この結果を反映して6段の向流抽出器を含む向流抽出装置を製作した(図5)。500℃の熔融塩と熔融Cdを2m上方の槽まで安定に汲み上げられ、液位と上部供給槽の液位と排出バルブの開度の調整によって数十

ml/分程度での流量調整が可能であることを明らかにした。この装置で向流抽出試験を実施し、TRUとFPの模擬物質として使用したCe、Gd、Yの3つの希土類元素の抽出データを取得した。3カ年の試験結果および計算モデルでの評価をもとに、実機で求められる分離回収性能(アクチニドの回収率99.5%、希土類の除染係数5)に相当する分離回収の機器性能を有することを示した。

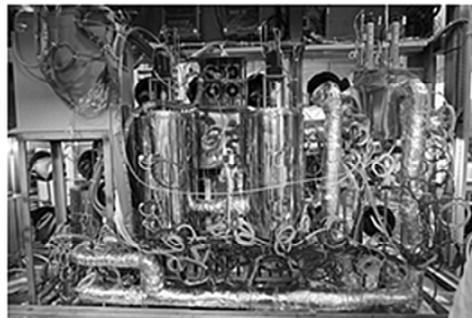


図5 向流抽出装置

4) 模擬TRU物質を用いた工学規模Cd陰極/Cd蒸留試験

これまでのCd蒸留試験においては、実規模で必要とされる処理量240kg/日に相当する蒸留速度は得られたものの、回収Cd中に数千ppmのGd(Pu模擬物質)が混入したことから、分離性能の向上が課題とされた。本研究開発では、まず小規模なCd蒸留試験で飛沫捕集器の形状や捕集効率を把握したうえで、80kg/バッチ規模の工学規模Cd蒸留装置を製作した。Cd-Gd合金についてラッシュリング式の飛沫捕集器を用いた蒸留試験を行い、100g/cm²/h程度の蒸留速度が得られた(目標: 28g/cm²/h以上)。このとき凝縮槽に回収されたCd中のGdの含有量(目標: 100ppm以下)は検出限界(4ppm)以下であったことから、飛沫捕集器が高い捕集効率を有することを確認した(図6)。また電解槽の液体Cd陰極とCd蒸留装置との間で、Cd陰極への模擬TRUの電解、Cd合金の液体輸送、Cd蒸留による模擬TRUの回収の連続試験を行った。電解後の熔融Cd-Gd合金を0.4-1.0L/minの流量で安定に輸送できることを示した。

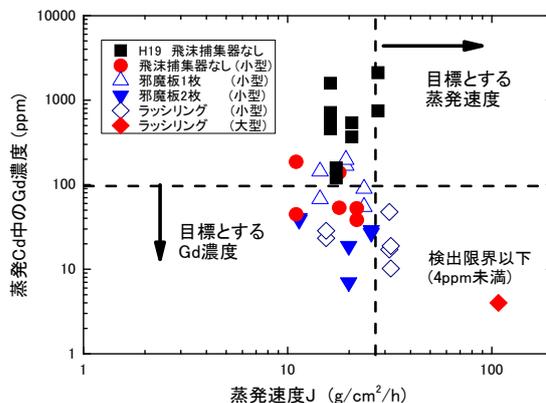


図6 Cd蒸留装置の蒸発速度と凝縮槽で回収されたCdの純度の関係

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

少量のTRUによる電解精製の補完データの測定については、電気化学的挙動に関する基礎データとして450℃のLiCl-KCl共晶塩中でのAm(II)/Am(0)の電位を測定し、-2.827V(塩素電極基準)を得た。同様にCmについては500℃のLiCl-KCl共晶塩中でのCm(III)/Cm(0)の電位として-2.859Vを得た。熱力学的挙動に関する基礎データとして、Am、Cmの塩化物の示差熱分析測定を行い、Am、Cmの塩化物の融点が既報と一致することを確認したうえで、報告値がない(Am_{0.94}, Np_{0.06})Cl₃試料の液相線温度として970.5 ± 4.5K、(Cm_{0.95}, Am_{0.05})Cl₃試料の液相線温度として970 ± 2Kを得た。

還元抽出の補完データについては、還元抽出工程

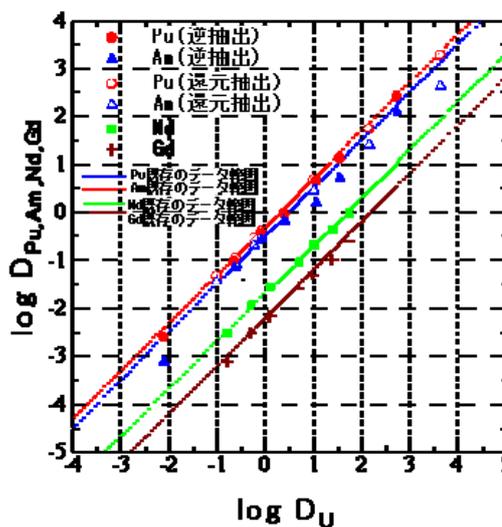


図7 高濃度領域の還元抽出試験及び希薄濃度領域での還元・逆抽出試験の分配係数の関係

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、及び還元抽出工程の初段を模擬した塩中のU濃度が高い条件での還元抽出試験、さらにCd中から塩中へのアクチニドの逆抽出試験を実施し、これまでに報告されているデータ範囲を超えて希薄濃度から高濃度領域にわたる広い濃度範囲において分離係数のデータを取得した(図7)。いずれの条件においても分離係数はこれまでに得られている値から大きく変化せず、広い領域で適用可能であることを確認した。

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に向けたプロセスフローシートの開発については、本事業で設計・製作した装置やその試験結果を踏まえ、工学ホット実証試験で採用すべき工程を選定した。作成した工学ホット実証試験のプロセスフローシート(図8)のうち、本事業で実施した電

解精製、射出鋳造、陰極処理(塩蒸留およびCd蒸留)、向流抽出の各工程については、工学ホット実証試験(1トン/年規模)でのマスバランス、装置規模や基本仕様、試験項目などを検討した。また本事業では実施していないゼオライトカラム、ソーダライト固化、陽極処理、ドロス処理の各工程についてもこれまでの知見をもとに、基本仕様や試験項目などを検討した。

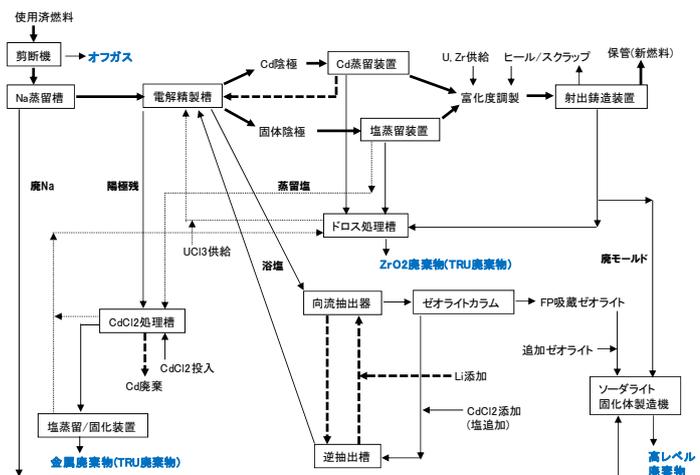


図8 工学規模ホット試験のプロセスフロー

3. 今後の展望

本研究開発は、これまでの金属燃料サイクル技術の開発成果を工学ホット実証試験につなげる事を目標として実施し、所定の成果を得た。国内外での原子力を取り巻く環境の変化は大きい、将来のエネルギー政策の選択肢から核燃料サイクルを除外することはできない。その選択肢を広く維持し続けるためにも、本事業を含むこれまでの自主および公募事業の成果を維持・活用するとともに、本事業で明らかとなった工学実証に向けての課題解決や、電中研が実施している廃棄物処理・固化の研究開発を継続することが重要と考える。

なお、本研究の途上で福島第一原子力発電所の事故が発生した。デブリと呼ばれる破損熔融燃料は、酸化Uと酸化Zrの固溶体を主成分とするが、硝酸には殆ど不溶なためPUREXによる湿式(再)処理はほぼ不可能である。しかし、乾式再処理の電解還元法を用いると固溶体中のUやPuを金属に還元することが可能であり、そのまま本研究の工程に従ってU、Puの回収を行うことも、還元後湿式で溶解して処理することも可能と考えられる。本研究で開発したコンパクトな設備は将来のサイト内のデブリ処理専用施設にも適すると考えられ、廃炉への合理性の高い技術として波及効果が期待される。