

MA 分離変換技術の有効性向上のための柔軟な廃棄物管理法の実用化開発

(受託者) 日本核燃料開発株式会社

(研究代表者) 鈴木晶大 研究部

(再委託先) 国立大学法人九州大学、国立大学法人大阪大学、

日立 GE ニュークリア・エナジー株式会社、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

(研究期間) 平成 28 年度～31 年度

1. 研究の背景とねらい

我が国はすでに約 17,000t の使用済燃料を保管しており、高レベル廃棄物処分問題については、現世代の責任として対策を確実に進める方針である。このため、核燃料サイクルによる使用済燃料中の U,Pu の再利用が推進されている他、長期残留放射性核種の MA (マイナーアクチニド) を高レベル廃液から分離し、高速炉や加速器を用いて安定な核種へ変換する MA 分離変換技術の開発が進められている。しかし、MA 分離変換技術は国内外各機関で鋭意研究開発されているものの、核種分離、MA 含有燃料製造、核変換等の要素技術が全て実用化されるまでには相当期間の取組みが必要であり、MA を含む現行再処理高レベル廃液は当面、再処理後 MA を含んだままガラス固化され、地表施設で約 50 年間冷却貯蔵管理の後、最終的に深地層中に処分される計画である。ガラス固化体は放射性核種の封じ込め性に極めて優れているが、他方、一旦ガラス固化されると MA のみを取り出すことは技術的に難しく、将来、分離変換技術が実用化されても、既にガラス固化された現行再処理廃液の環境負荷低減には繋がらないという課題がある。

本研究開発は、上記課題を解決するために考案された革新的な廃棄物管理法、即ち、現行再処理廃液をガラス固化する代わりに仮焼して、再廃液化が容易な顆粒体として冷却貯蔵しながら MA 分離変換技術の実用化を待ち、最終的に MA を分離変換して FP (核分裂生成物) のみをガラス固化する「柔軟な廃棄物管理法」(図 1)について、実用化のための技術開発を行うものである。柔軟な廃棄物管理法は、現行再処理技術及び開発中の分離変換技術にそのまま適用可能なものとし、顆粒体をガラス固化体冷却貯蔵設備に共用貯蔵することによって開発課題を絞ると共に、実績ある技術あるいは開発容易な技術を採用して組み合わせることにより早期実現を図る。この技術を確認すれば、本保管法を適用した現行再処理廃液に対して、将来 MA 分離変換技術を適用することにより、炉取出し後 1000 年の潜在的有害度を 1/100 以下とすることが可能となる。

本課題開始前のフィージビリティ研究⁽¹⁾により、顆粒体生成のための基礎的な仮焼試験、顆粒体貯蔵時の熱解析、及び環境負荷低減効果評価により、本技術の成立性及び環境負荷低減効果について見通しを得ている。本研究開発はこれらを踏まえ、柔軟な廃棄物管理法の実用化手法を開発すべく、顆粒体製造技術の開発、顆粒体貯蔵技術開発、廃液再生技術開発を実施する。また、廃棄物処理処分条件が変化した場合の本技術の有効性及び FBR サイクルへの本技術適用性評価として MA 含有燃料製造時の発熱量減少効果を評価する。

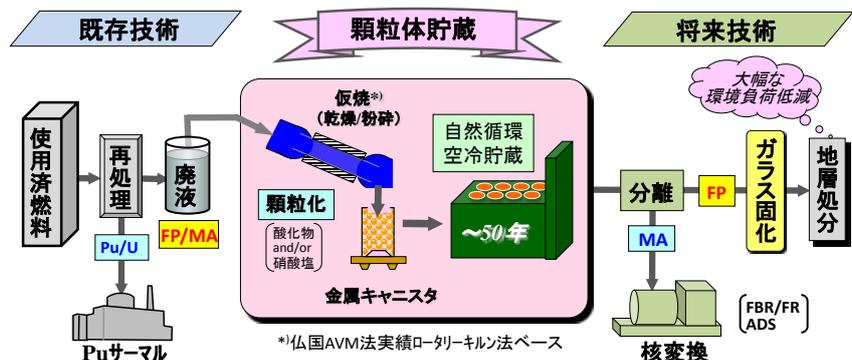


図 1 柔軟な廃棄物管理法

2.これまでの研究成果

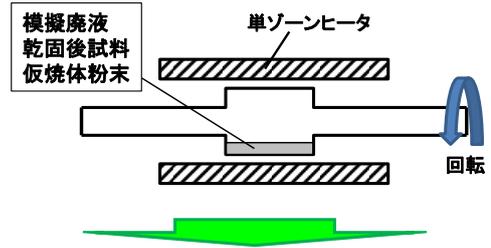
(1) 顆粒体製造技術開発

MA 分離変換技術確立まで現行再処理廃液を貯蔵する際の必要期間について約 50 年間と考えた場合、廃液を仮焼して顆粒体を作ることが、一定の化学安定性確保、容易な再廃液化等の観点から有力な選択肢となる。顆粒体には、取扱時の浮遊移動を防止するための一定以上のサイズ、及び局所融解を防ぐためのマクロな発熱元素の均一分布が必要となる。顆粒化手法としては、仏国 AVM (マルクールガラス固化施設) 法における仮焼段階として商用実績が豊富であるとともに、複数仮焼相の混合が期待できるロータリーキルン法を用い、その出力物質をそのまま顆粒体として保管する手法を開発するほか、出力物質をプレス成型して熱伝導率の一様性を高めた高密度顆粒体についてもオプションとして開発し比較評価を進める。なお、対象とする廃液はアルカリ洗浄溶媒や残渣を含んだ現行再処理廃液とする。

ロータリーキルンに導入された廃液は、蒸発乾燥、脱硝焼成、顆粒化を連続して経験し、顆粒体として出力 (図 2) されるため、それぞれの工程における温度、回転数、滞留時間等を最適化したのちに、それらを一本の管内で連続的に実施した際の連携を調整する計画である。現在、回転する炉心管の軸方向中央部で試料を焼成するバッチ式ロータリーキルンにおける動的試験、及び蒸発皿等における静的試験により、それぞれの工程について非放射性

の模擬廃液を用いた試験を開始している。蒸発乾燥工程については、模擬廃液の高温蒸発皿への滴下試験 (図 3) により、液体成分が無くなるまでの蒸発時間を 2 分間まで減少させると、発熱元素の成分偏在につながるマクロな成分のばらつきが抑えられることがわかった。脱硝焼成過程については、模擬廃液のろつぼ内焼成により、各温度で生成する各分離相の成分を調べた。アクチニドを含む希土類発熱元素は Ce と同様の変化を見せると考えられるが、Ce 含有領域の粒成長が顕著になる 700°C 以上ではマイクロ発熱源の成長が生じる可能性があり、熱的一様性確保のためには低温焼成あるいは降温後粉碎混合が必要となることがわかった。顆粒化工程については、生成する低融点硝酸塩液相が粘結材となり顆粒化が進行することがわかり、その液相線-固相線間温度付近である 270°C のロータリーキルン内で、模擬廃液仮焼体粉末の粒径が増大し顆粒化することが確認できている (図 4)。また、上

<バッチ式ロータリーキルン試験>



<連続式ロータリーキルン試験>

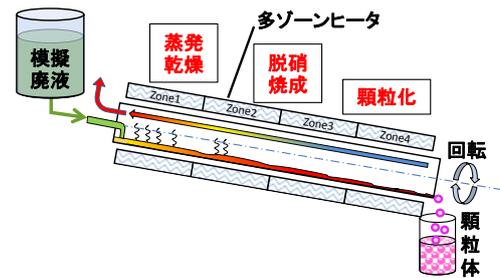


図 2 ロータリーキルン試験計画



図 3 模擬廃液滴下試験

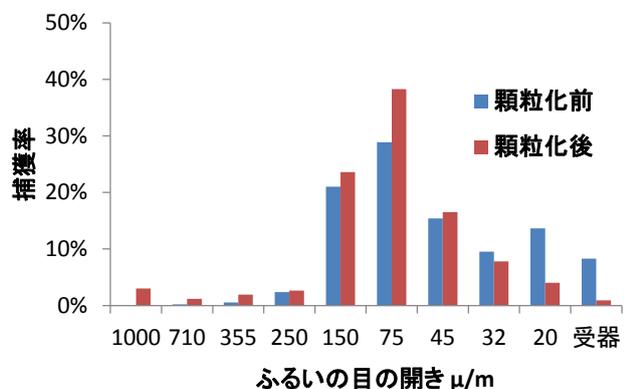


図 4 粘結による微粉末の減少

記個別試験による最適化前の運転条件であるが、想定される工程をバッチ式ロータリーキルンでの一連の単工程（模擬廃液導入 → 300℃で乾燥 → ステンレス球を入れて回転させることによる粉碎 → 粉碎しながら500℃で脱硝焼成 → 徐冷による粘結）として試作した顆粒体は、粉碎された酸化物成分が低融点の硝酸塩成分によって粘結されており（図5）、粒子全体の金属元素比は模擬廃液の金属元素比に近いことが確認できた。

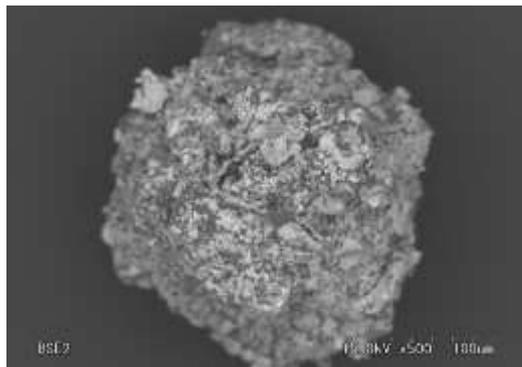


図5 試作顆粒体のSEM観察(BSE像)
(EDSにより、灰色の薄い部分は酸化物成分が多く、濃い部分はNaやNが多い硝酸塩成分と確認している。)

また、冷却貯蔵時の熱伝導向上のためのオプションとして、600℃で焼成した模擬廃液仮焼体を高温プレスすることによって高密度顆粒体の試作を行い、仮焼体粉末の250℃,3kN,1000秒のプレスにて、かさ密度/真密度が94%の高密度顆粒体が作成できている。

(2)顆粒体貯蔵技術開発

顆粒体貯蔵は実現容易性の観点から、ガラス固化体冷却設備への共用貯蔵を想定しているが、顆粒体はガラス固化体よりも発熱密度が大きくまた硝酸塩成分が低融点であるという課題がある。そこで、自然循環空気冷却方式という制約のもとで冷却効率を上げるために、ガラス固化体キャニスタよりも細径のキャニスタを採用し、簡易熱伝導解析による熱的成立性の確認を進めている（図6）。高密度顆粒体オプションにおいては、発熱密度が

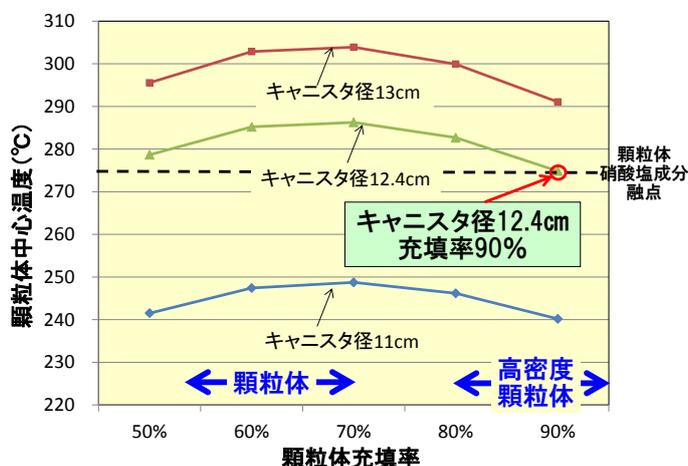


図6 貯蔵設備の簡易熱伝導解析結果

大きくなるものの熱伝導も上昇して相殺し、充填率90%とすると余裕を持てることが確認できた。

また、貯蔵時安全性に関しては、キャニスタ外は既存のガラス固化体冷却と同等であるため、顆粒体自体の化学安定性とキャニスタの内面腐食に絞って成立性を確認し貯蔵技術の確立を目指す。顆粒体自体の化学安定性は、長期保管時の放射線分解の影響が最も大きいと考えられるため、阪大産研・コバルト照射施設による照射試験を実施している。放射線分解には本来線質も影響するが本課題では積算吸収線量として考え、50年間の貯蔵期間にわたる顆粒体への積算線量は~11GGyと見積もっている。現在までに、模擬廃液からNFDで試作した約1gの高密度顆粒体の432kGyγ線照射後のNO_xの遊離は測定限界(0.0005ppm/27mL)以下、最も水分を含むと考えられる顆粒体模擬物質である硝酸ナトリウム試薬の383kGy照射後のH₂の遊離は0.15ppm(重量比)であり、~11Ggyまで直線外挿してもそれほど大きな値にはならないことが見出されている。一方、キャニスタの内面腐食については、顆粒体の主成分であるNaNO₃によるSUS304L鋼の腐食挙動について600℃で最長11.5日間の加速試験を行った結果、腐食によって生成する層状構造はFe、Crの酸化物等から構成される酸化膜であることを確認し、溶融塩と接触する場合でも通常の酸化と同様の挙動を示すことが分かった。

(3) 廃液再生技術開発

顆粒体は貯蔵後に再溶解して廃液に戻し、分離変換技術につなげる。現行再処理廃液はもともと不溶解残渣を有しており顆粒化保管後の再溶解時にも残渣が発生すると想定され、MA 元素がこれらの不溶解残渣や難溶性 PuO_2 に取り込まれることが考えられる。再溶解時の MA 元素の溶解性は本保管法全体の MA 回収率に最も影響が大きい。現在までに、コールドの模擬廃液による予備試験において、不溶解残渣を添加しない模擬廃液を 300°C で仮焼した仮焼体を 3 M 硝酸に再溶解し、ろ過して再溶解液と残渣の金属元素量を定量したところ、MA 元素と比較的近い挙動を取ると考えられる Nd や Ce はほとんどが溶解し、残渣への移行割合は 1% 未満と小さかった。また今後、不溶解残渣が増える条件での試験を進めるにあたり、残渣溶解法の適用も合わせて検討を進めている。上記試験の残渣組成は最終的に溶解して ICP（誘導結合プラズマ発光分析）で成分分析を行ったが、この際、分離技術への影響が少ないと考えられる現行再処理廃液残渣溶解法である硫酸水素アンモニウム融解法を適用し、溶解可能であることを確認した。

(4) 柔軟な廃棄物管理法の有効性評価

環境負荷低減効果評価として、本技術導入による現行再処理稼働期間にわたる全廃液の処分後の総合的な潜在的有害度について、各種条件下で解析・評価を行った。その結果、本技術の早期導入が極めて重要であり、導入時期が再処理稼働後 10 年以内であれば、高い有害度低減効果を実現できる。また、MA/FP 発熱量低減効果評価として、FBR（高速増殖炉）及び ADS（加速器駆動システム）による MA 核変換への本技術の導入シナリオ（図 7）を検討した。

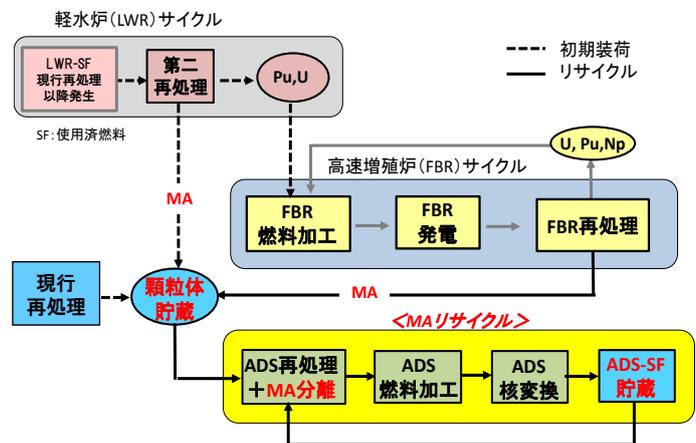


図 7 ADS による MA 核変換への本技術の適用シナリオのうち、第 2 再処理廃液も保管するケース

3. 今後の研究

顆粒体製造技術開発では、バッチ式ロータリーキルンの各工程に対する成果をもとに連続式ロータリーキルンの設計製作を進めると共に、高密度顆粒体の作成においては、大面積化、低荷重化、短時間化を図る。顆粒体貯蔵技術開発では、顆粒体での試験を進めメカニズム解明による 50 年間の化学安定性及び腐食の評価を行うとともに、試作顆粒体の熱物性測定を進め熱解析の高精度化を図る。廃液再生技術開発では、実際に Am 等を用いて残渣に残留する MA 量を評価するとともに、得られた再溶解廃液の MA 分離技術への適用性を評価する。有効性評価についても処分場面積の低減効果の評価とともに、発熱量低減効果の評価を進める。また、本事業における技術開発、有効性評価を踏まえて、柔軟な廃棄物管理法を構成する要素技術選択肢を組み合わせ合わせた整合性のあるシステム案の構築を行い、実廃液実証試験のためのシステム概念仕様の提案を目指す。

4. 参考文献

(1) 文部科学省原子力システム開発事業「マイナーアクチノイド分離変換技術の有効性向上のための柔軟な廃棄物管理法の研究開発」成果報告書，平成 27 年 3 月。