

群分離及びMA燃料製造/乾式再処理に 関する技術開発の進捗状況



平成27年8月21日

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

群分離技術及びMA燃料製造/乾式再処理技術開発の 取組み状況



□ 群分離技術開発

◎ 高レベル廃液からの溶媒抽出法によるMA分離プロセスの確立

←溶媒抽出法を選択することで、これまでの再処理技術開発の知見を活用

- MAと希土類元素(RE)の一括回収とMA/RE相互分離の2段階分離とする。
- MA・RE一括回収工程についてはTDdDGAを用いる方法で連続抽出のトレーサー試験まで行い、プロセス確立に目途。次は実廃液試験。
- MA/RE相互分離工程では、新規抽出剤が必要であり、研究開発の結果、HONTA抽出剤が非常に有望であることを見出し、トレーサー試験を実施中。さらに開発を加速させる必要がある。

□ MA燃料製造/乾式再処理技術開発

◎ 高濃度のMAを添加して効率的に核変換できる専用の燃料サイクル技術の確立

MA燃料：窒化物を選択 ←高含有MAが可能。優れた熱特性等

MA燃料再処理：溶融塩/液体金属を用いた乾式法 ←高濃度MAの取り扱いが可能

- (MA,Pu,Zr)N燃料ペレット作製の基本技術を確立済み。今後は、照射試験を目指して、セル内遠隔操作による燃料ピン製造装置類の検討、製作を進める
- 燃料の熱的特性データ取得に加え、機械特性データ取得を開始。燃料ふるまい解析コードに随時最新のデータ・モデルを反映し、照射挙動予測に役立てる
- 乾式再処理の主工程である溶融塩電解及び電解回収物の再窒化について、Pu及びAmを用いた実験室規模試験によって技術的な成立性を確認済み。
- 乾式再処理技術の工学化に向けて工学規模コールド機器の開発を実施中、使用済み燃料組成を模擬した試料による実験室規模試験を準備中。

群分離技術及びMA燃料製造/乾式再処理技術における 他分野との連携



群分離技術

- 発電炉サイクルから核変換に投入するMA等を分離する技術
- ➡ ADS階層型概念及び高速炉均質型概念の共通基盤技術として開発を推進

原子力基礎工学研究センター
高速炉サイクルへの貢献

- DGA系抽出剤の開発
- MA/RE相互分離用新規抽出剤開発等



次世代高速炉サイクル研究開発センター
高速炉サイクル開発からの技術導入

- 遠心抽出器等のプロセス機器の新抽出剤への応用
- プラント概念検討における工学的知見に関する協力

量子ビーム応用研究センター・大学等
基礎研究による現象理解

- 新抽出剤の錯体構造・抽出分離メカニズムの理解
- 複雑な溶液組成におけるイオン挙動、放射線分解挙動の理解

- 合同技術検討会、研究会を通じた情報交換
- 共同研究・研究分担等による協力
- 外部資金の共同提案

- ➡ 国際協力として日米CNWGへの参加、及び日仏協力における活動の具体化を検討中

MA燃料製造技術

- 高速炉均質型概念における核変換燃料とは、燃料組成において補完関係

ADS核変換燃料

- 窒化物・高MA含有率



高速炉用核変換燃料

- 酸化物・低MA含有率

- データベースの拡充に関する協力
- 燃料取扱い技術、工学技術

MA窒化物燃料乾式再処理技術

- 先行している金属燃料の乾式再処理技術開発の知見の活用
- ➡ 電中研との共同研究、米国との情報交換

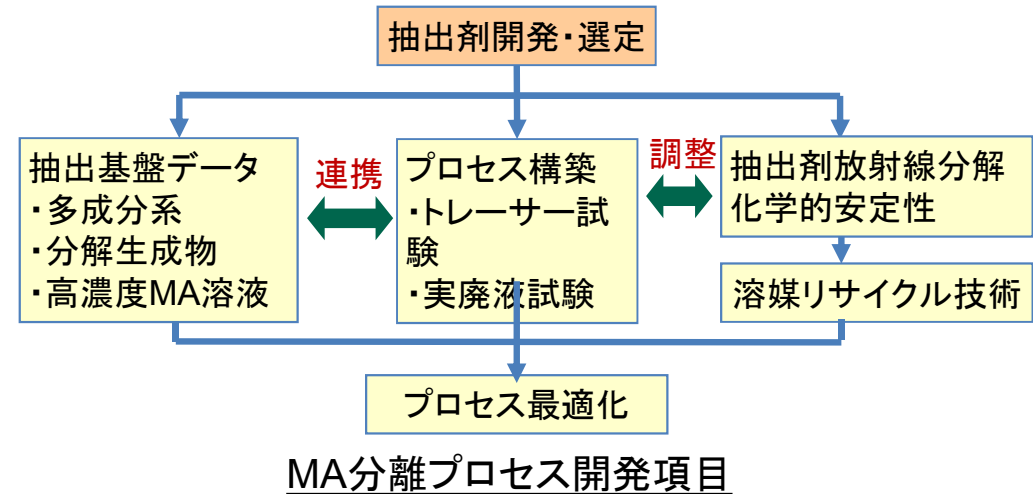
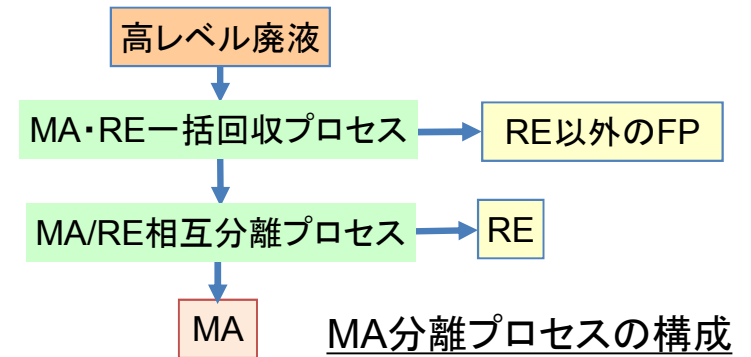
「群分離」技術開発進捗状況

MA分離プロセスの開発

- MA分離プロセスは、MAを高レベル廃液から除去するMA・RE一括回収プロセスと核変換システムに供給できる純度とするMA/RE相互分離プロセスから構成
- プロセス開発と技術的ハードル
 - ✓ 抽出剤開発では、抽出性能、抽出速度、分離性能、化学的安定性、価格を勘案して選定
 - ✓ プロセス構築では、連続抽出試験を実施。抽出基盤データ等の知見と併せてプロセス条件を検討する。
 - ✓ トレーサー試験によって条件を確定した後、実廃液試験に移行
 - ✓ 工程内での沈殿、第3相の発生等、プロセスの安定性を阻害しない条件確立が重要
 - ✓ 抽出剤の分解生成物及びそれを除去するリサイクル技術の開発も併せて実施

● 各開発項目の状況

- ✓ MA・RE一括回収プロセスは、トレーサーによる連続抽出試験によって、目標とするMA回収性能(回収率99.9%以上)を達成。今年度中に実廃液試験に着手。
- ✓ MA/RE相互分離プロセスは抽出剤を選定しトレーサーによる連続抽出試験を実施中。来年度に実廃液試験を実施。
- ✓ MA分離プロセス全体の実廃液試験を平成31年頃まで継続してプロセスを確立し、溶媒リサイクル技術と併せて総合的なプロセス実証試験に移行する。



MA/RE相互分離用新抽出剤

MA/RE相互分離プロセス

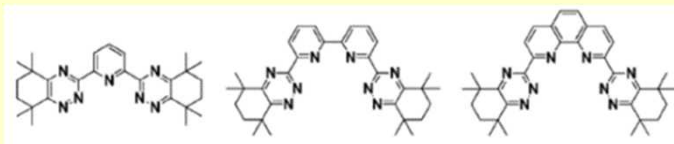
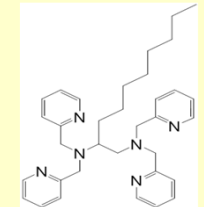
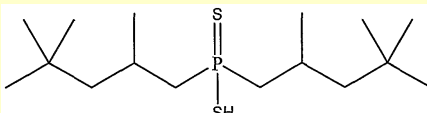
- 3価MAは希土類元素(RE)と極めて類似した挙動を示す。
⇒ MAの高回収率を達成すると、不純物としてREが同伴
- 核変換システムに供給するためにはREとの分離が必要

➡ 困難な分離を達成するために新規抽出剤を開発
主に欧州と日本において1990年代末から開発が進行

抽出剤に必要とされる性能

- 適度な分離性能
(分離係数、使用可能な液性、分配比)
- 抽出速度が速く、良好な相分離性。
- 希釈剤への溶解性と高い抽出容量
(第3相形成無)
- 十分な耐放射線性、化学的安定性
- 入手性、経済性に優れる

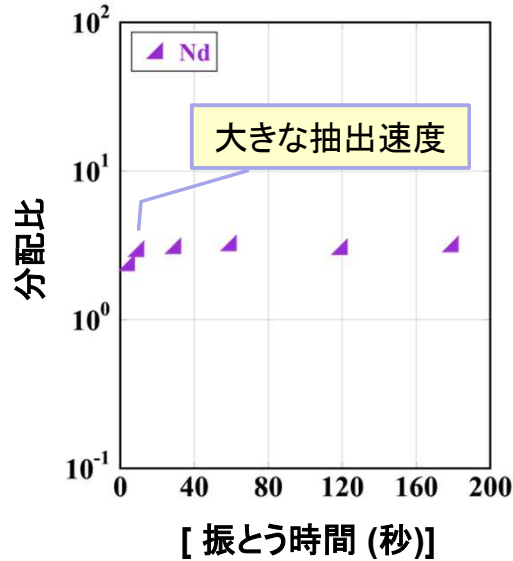
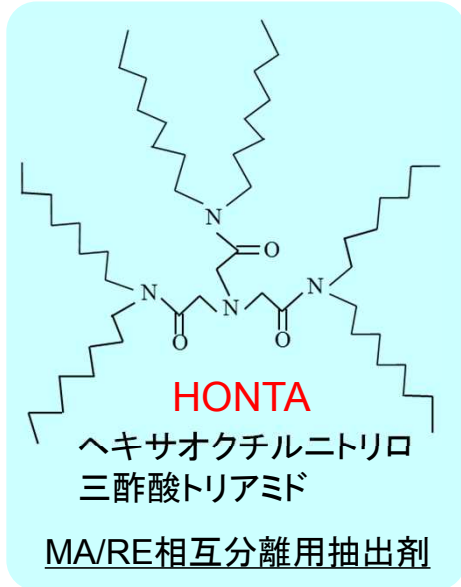
これまでに開発された主な抽出剤

抽出剤(開発国)[代表的試薬名]	抽出分離性能	抽出速度	希釈剤溶解性、抽出容量	安定性	経済性
BTP系抽出剤 (欧州)[CyMe ₄ -BTP] 	高い分離性能 ($SF_{Am/Eu} > 100$)、硝酸 雰囲気を利用可	連続抽出試験に利用可	希釈剤はオクタンールを使用	耐放射線性、 化学的安定性に欠ける	分子構造が複雑、 合成が困難 ⇒ 高価
TPEN系抽出剤 (日本) [TPDN] 	高い分離性能 ($SF_{Am/Eu} > 100$)、希硝酸 雰囲気(0.1N)で利用可	抽出速度が遅い(抽出平衡に120min)	希釈剤はオクタンールを使用 側鎖を長鎖にすることでドデカンに溶解	高い耐放射線性、 化学的安定性	BTPより安価、 プロセス化にはより合理化が必要
Cyanex301(カナダCYTEC社※) [CYANEX301(商標名)] 	著しく高い分離性能 ($SF_{Am/Eu} > 3000$)	抽出速度が遅い	ドデカンに溶解	分子の安定性に欠け、 常温で分解	市販されているが、 精製操作が煩雑 イオウを含む廃棄物が発生

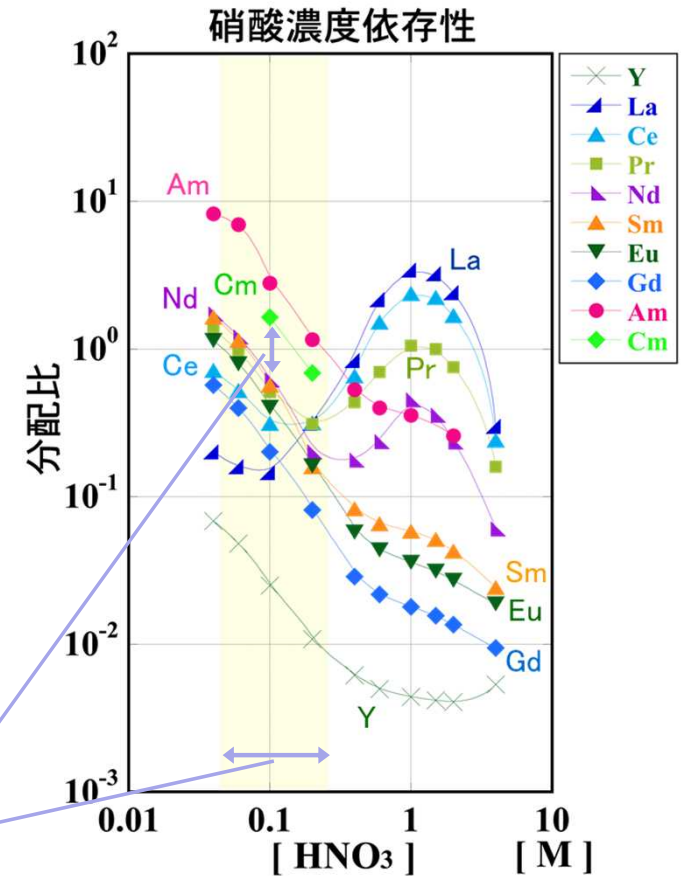
※中国において分離性能発見

HONTA (ヘキサオクチルニトリロ三酢酸トリアミド) 抽出剤

- これまでの抽出剤は高い分離性能を発揮するが、MA/RE相互分離プロセスに適用するには課題が存在
- ➡ 必要十分な分離性能を有する実用可能な抽出剤を開発



有機相: [ADAAM] = 0.1 M in *n*-ドデカン
水相: [HNO₃] = 1.5 M, [Nd]_{init.} = 100 ppm



有機相: [HONTA] = 0.08 M = const. in *n*-dodecane
水相: [HNO₃] = 0.04 ~ 3 M

- ✓ 合成が単純、安価
- ✓ ドデカンへの良好な溶解性

- HONTA抽出剤によるMA/RE相互分離プロセスのトレーサーによる連続抽出試験を実施中
- 来年度、実廃液試験を実施予定

抽出剤HONTAによるMA及びREの抽出

「MA高含有窒化物燃料製造」技術開発進捗状況



MA高含有窒化物燃料製造技術の開発

ペレット1個規模



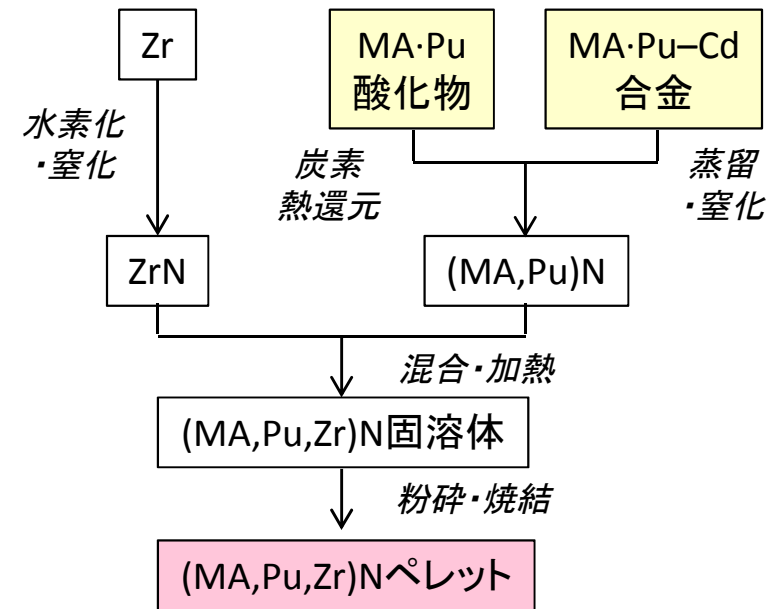
照射用ピン1本規模



工学規模

現在の目標段階

製造規模拡大に伴う技術開発課題



MA高含有窒化物燃料ペレット製造プロセス

- 熱的特性に優れ、MAを高濃度で添加可能な窒化物燃料を、燃料ピン規模で製造可能な遠隔機器類の検討・製作を進め、照射試験を目指す

- 製造プロセス原理実証、要素技術開発
- 物性データベース構築
- 燃料ふるまいコード開発・改良

- 粉砕、成形、ピン封入等遠隔操作機器設計・製作
- 照射試験による燃料仕様、ふるまいコードへのフィードバック

- 数百g-MA/バッチ規模で取り扱える製造施設、完全遠隔化

● 技術開発内容と技術的ハードル

- ✓ 燃料をセル内で製造できる各種遠隔操作機器の設計・製作が工学的な重要課題
- ✓ 燃料の熱・機械特性のデータベース化、及び照射時の燃料ふるまい解析コードの作成が必要
- ✓ 照射試験による燃料性能の評価が不可欠、さらに蓄積したHeの放出による影響評価、ふるまい解析コードの改良、燃料仕様へのフィードバックが必要

● 各開発項目の状況

- ✓ 手作業による燃料ペレット1個規模での製造基本技術は確立済み／照射用ピン1本規模での製造を目指し、セル内遠隔操作機器の設計・製作に取り組む
- ✓ コールド模擬試験により、ゾルゲル法経由の大規模な窒化物調製等の工学的試験を実施中
- ✓ 燃料の熱・機械特性データベースを構築中／これを元に窒化物燃料のふるまい解析コードの原型を作成、今後随時改良する

「核変換専用MA燃料製造」技術開発進捗状況(1/2)

目標: MA高含有窒化物燃料について、燃料挙動評価に不可欠な燃料ふるまいコードを作成

これまでの成果

- MA高含有窒化物燃料、被覆管材料、Pb-Bi冷却材の物性データを軽水炉燃料ふるまいコード「FEMAXI-7」へ入力して、シミュレーション計算を可能とした。

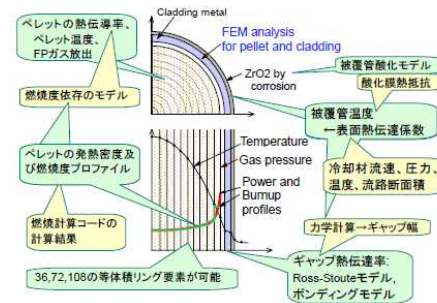
現在の状況

- 燃料-被覆管ギャップ幅等をパラメーターとした試計算など、既存データを利用した計算を実施

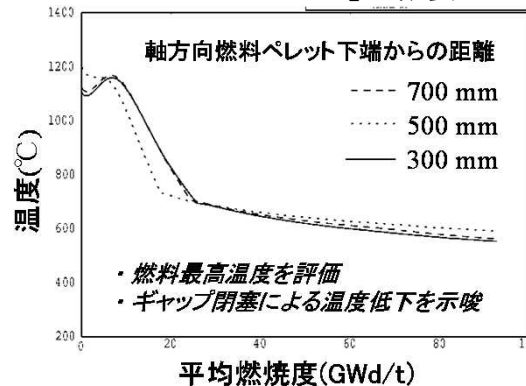
今後の展開

- 感度解析等により各種物性データの重要度を評価・データ取得
- 計算結果と既存照射試験データ*の比較を実施

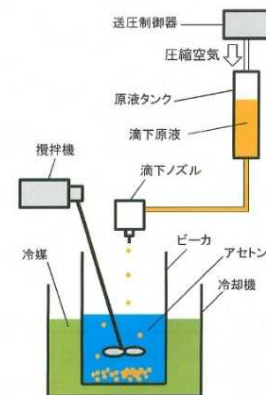
* (Pu, Zr)N (JMTR)、(U, Pu)N (常陽、JMTR)、外国のデータ等



軽水炉燃料用ふるまい解析コード「FEMAXI-7」の概要



「FEMAXI-7」による窒化物燃料ペレット中心温度履歴計算結果の概観



脱水ゲル化法による酸化物/炭素混合物製造装置概略

目標: 原理実証段階に移行するために、MAの調達、燃料製造設備の整備、実用燃料ピン設計を実施

これまでの成果

- 工学規模の燃料製造法の開発に向けたコールド模擬試験
- これまでの燃料ピン設計検討状況を把握

現在の状況

- 粉末飛散を防止できるゾルゲル法による酸化物/炭素混合物(窒化物の原料)製造試験
- 軽水炉燃料ピンの挙動を参考として燃料ピン挙動調査中

今後の展開

- コールド模擬試験等により、大規模燃料製造法の開発
- 実用燃料ピン設計

「核変換専用MA燃料製造」技術開発進捗状況(2/2)

目標:相当量のMAを使用する物性測定やサンプル照射試験等を効率的に進める

これまでの成果

- 既存の熱物性測定装置に加え、機械物性測定装置を整備
- MA高含有窒化物燃料照射用サンプル製造及び照射試験検討

現在の状況

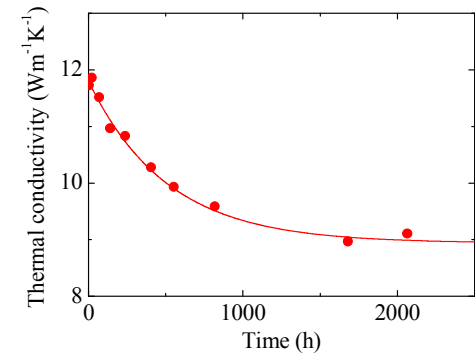
- 熱物性測定実施
- データベースweb版作成に向け、公開データベース運営実績のある他機関との連携関係を構築

今後の展開

- ・MA高含有窒化物燃料の熱物性・機械物性データベースの拡充、微細組織構造データ取得
- ・サンプル照射試験計画立案・サンプル製造設備検討

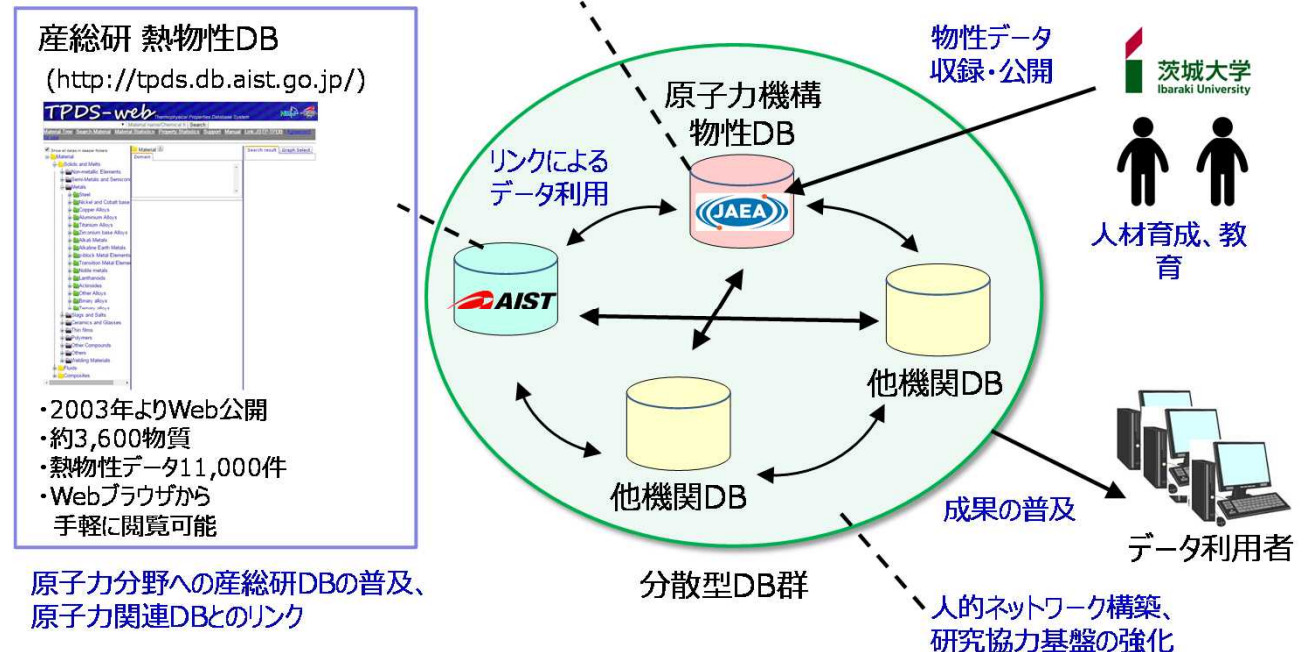


機械物性測定用に整備した弾性挙動測定装置(左)、及び機械特性測定装置(右)



熱物性測定結果の例
Zr_{0.70}Pu_{0.25}Cm_{0.05}Nの自己照射損傷による熱伝導率変化

産総研のDB開発のノウハウを導入

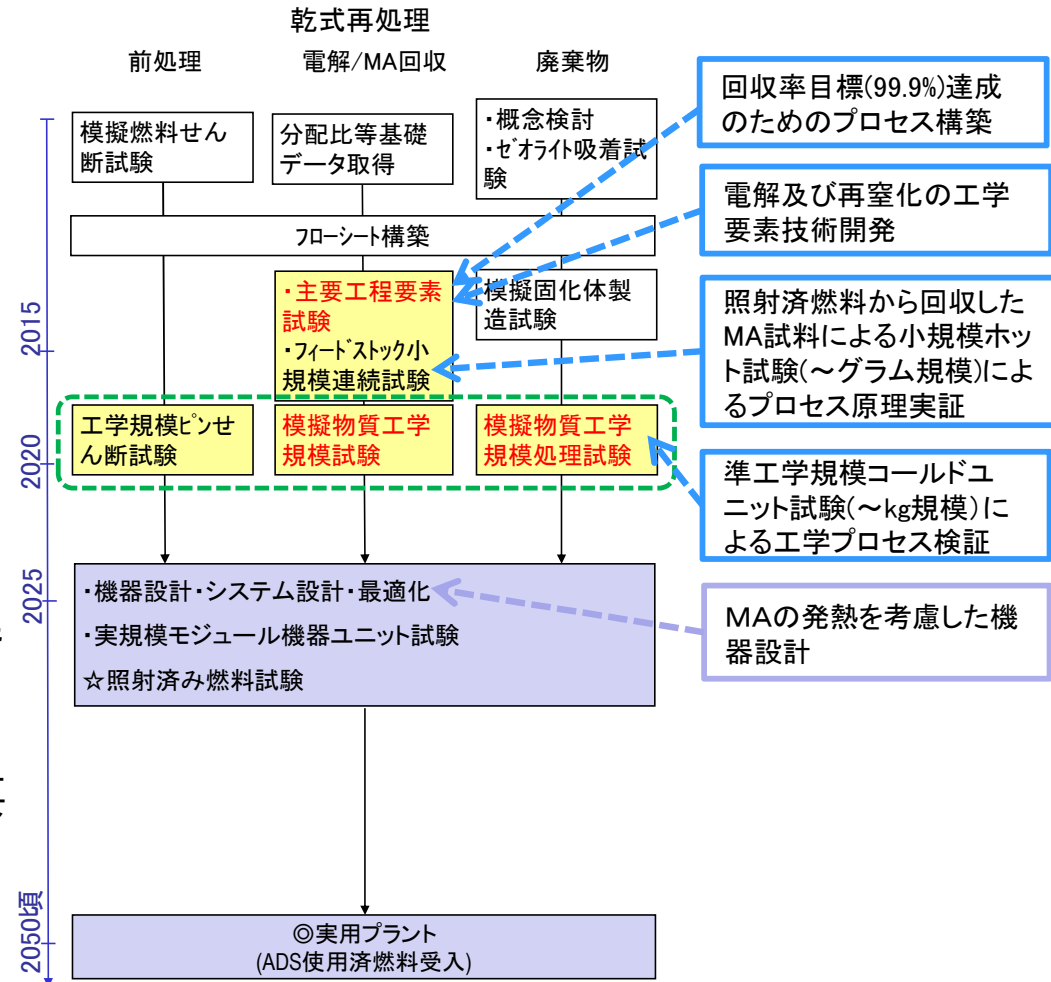


原子力分野への産総研DBの普及、原子力関連DBとのリンク

「乾式再処理」技術開発進捗状況

核変換専用MA燃料乾式再処理技術の開発

- MA高含有窒化物燃料の再処理のため、高濃度MAの取り扱いが可能な熔融塩/液体金属を用いた乾式再処理技術を、先行している金属燃料の乾式再処理技術の知見を活用して開発
- 技術開発内容と技術的ハードル
 - ✓ 乾式再処理の主工程である熔融塩電解及び電解回収物の再窒化について、Pu及びAmを用いた実験室規模試験によって技術的な成立性を確認済み
 - ✓ 乾式再処理技術の工学化に向けて、工学規模機器の開発のためのコールド試験を実施中／高放射線・高発熱性のMAを高濃度で含む使用済燃料を適切な速度で処理するための要素技術の開発が必要
 - ✓ 使用済燃料組成を模擬した試料による実験室規模試験を準備中／使用済燃料からのTRU回収率の評価・回収率向上のための技術開発が必要



MA燃料乾式再処理技術ロードマップ及び技術開発進捗状況

● 各開発項目の状況

- ✓ 工学規模機器のサイズの評価において、MAの発熱による制約が大きいことを明らかにし、適切な装置のサイズを示した。また、処理速度向上のための技術の開発において、電解装置及び電解回収物再窒化装置の改良を実施中。今後、模擬物質工学規模試験の実施を予定。
- ✓ 使用済み燃料組成を模擬した試料による実験室規模試験を実施するため、試験内容の検討・試験装置の整備・試料の準備等を実施中。今後、フィードストック小規模連続試験の実施を目指す。