

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)による核変換用の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が行われている。原子力機構が提案している熱出力800 MWのADS核変換用の窒化物には約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、アクチノイドの組成比と希土類FP等の不純物の含有量の異なる2種類の製品が発生することと、不活性母材の添加によるアクチノイド窒化物の陽極溶解速度の低下が課題となる。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。

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窒化物燃料の革新的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U、Pu、MA、RE (RE: 希土類FP)、AL (アルカリ金属FP)、ALE (アルカリ土類FP)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、不溶解残さとなる被覆管材料や不活性母材等と分離する。次に、熔融塩と液体Cd金属を用いた向流多段抽出によりU、Pu、MAをRE、AL、ALEから分離してU-Pu-MA-Cd合金として回収し、このCd合金を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により、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処理速度の画期的な向上が期待できる。さらに、このプロセスは工程が少なく簡素である上、向流多段抽出には金属燃料の乾式再処理で開発中の技術を適用できるため、今後の研究開発にかかる費用と時間を大幅に低減できると期待できる。

2. 研究開発成果

2. 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希土類窒化物を用いた模擬燃料、及び不活性母材を含む模擬燃料を調製し、熔融塩中での化学溶解試験を行い、溶解率や溶解速度等の基礎データを取得した。アクチノイド窒化物の模擬物質としてDyNを選定し、不活性母材のADS燃料性能への影響評価で得られた不活性母材の濃度範囲を基に、不活性母材としてZrN、TiNをそれぞれ30、60、90 mol%含有したDyNを調製した。DyNの溶解試験では、550℃で約12時間の加熱により試料中の約99%のDyが $CdCl_2$ と反応し、 $DyCl_3$ として熔融塩中に溶解した。試験後、るつぼの底部に反応生成物であるCdが析出した。このとき、塩中に残留した微量の不溶解残渣をDyの酸化物と類推し、酸化剤として $ZrCl_4$ を添加して約550℃で約2時間、追加で加熱した結果、ほぼ100%のDyが熔融塩中に溶解した。また、温度と粒径をパラメータとしたDyNの試験結果(図1、2)より、温度が高いほど、粒径が小さいほど溶解速度は増加した。不活性母材としてZrN及びTiNを含んだDyNの溶解試験では、いずれの場合も550℃で約12時間加熱した結果、試料中のDyが

CdCl₂との反応により熔融塩中に溶解した。一方、Zr は試験後に試料中の約0.1%に相当する微量の熔融塩中濃度の増加がみられたが、Ti の濃度は検出限界以下でありTiN はほとんど溶解しない結果であった。

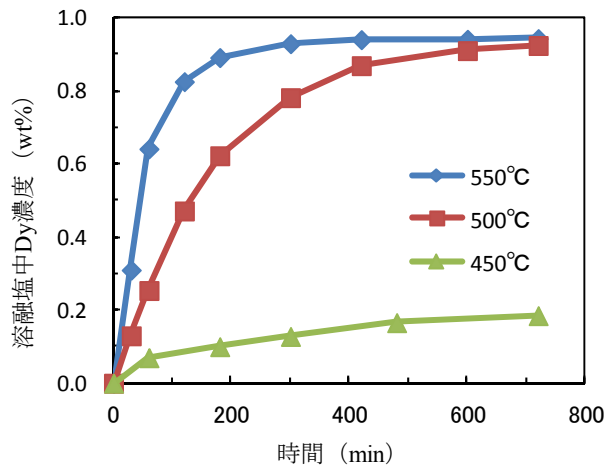


図1 加熱温度の DyN 溶解挙動への影響
(粒径 20~63 μm)

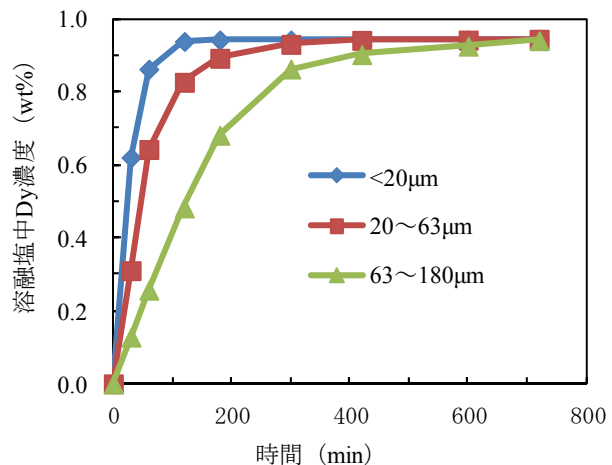


図2 粒径の DyN 溶解挙動への影響 (550°C)

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の濃度をパラメータとして、ADS燃料性能を計算により評価し、窒化物燃料の化学溶解試験の実験対象とすべき不活性母材濃度の範囲を決定した。出力分布が平坦になるようにADS炉心を4領域に設定し、不活性母材の割合を領域ごとに4種類とした。ADS燃料ピンの被覆管制限温度(550°C)を満たすように燃料ピンの直径を8.2 mmと設定し、1年間の核変換率等の燃料性能を計算により評価した結果、窒化物燃料の化学溶解試験の実験対象とすべき不活性母材濃度の範囲をZrNは53~82 mol%、TiNは57~85 mol%と定めた。

2. 3 新規再処理プロセスの成立性評価

新規再処理プロセスの要素技術について、窒化ウランの化学溶解挙動、熔融塩から液体 Cd へのアクチノイド/核分裂生成物 (FP) の分離係数、向流多段抽出の抽出段数及び熔融塩及び液体Cdの量、ゼオライトカラムを用いた熔融塩からのFP除去に関する既存データを収集した。また、新規再処理プロセスのマスバランスを評価するための計算モデルを構築し、年間200日操業とした場合の1日あたりのアクチノイドやFP、熔融塩などの取扱量を評価した。

3. 今後の展望

今後、PuN、及び不活性母材を添加したPuNの化学溶解試験を行い、その溶解挙動を解明する。代表的な固体FP元素を添加した模擬燃料の溶解試験を行い、FPの分離挙動に関する基礎データを取得する。RE等の不純物量のADS燃料性能への影響を計算により評価する。これらの試験結果及び評価結果を基に、新規再処理プロセスのマスバランス評価計算及び燃料設計への適合性評価を行う。