

JAERI-M

6 3 7 6

高温ガス炉燃料のリサイクル技術の調査検討

1976年1月

岩 本 多 實

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

JAERI-M 6376

高温ガス炉燃料のリサイクル技術の調査検討

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

岩本多實

(1975年12月26日受理)

高温ガス炉の燃料には高濃縮ウラン-トリウム系と低濃縮ウラン系とが用いられる。本報告では主に前者のトリウムサイクル燃料を採り上げ、燃料のリサイクルに関係がある、トリウム精錬、燃料製造、再処理、再加工、廃棄物処理など、各分野の技術の概要を述べ、その現状と問題点を記すとともに低濃縮ウラン系についても若干言及した。

JAERI-M 6376

A survey of HTGR fuel recycle technologies

Kazumi Iwamoto

Division of Nuclear Fuel Research, Tokai, JAERI

(Received December 26, 1975)

In HTGRs, highly-enriched U-Th cycle or low-enriched U cycle is employed. Fuel recycle technologies for both the cycles are reviewed, such as Th ore processing and refining, fuel fabrication, reprocessing, refabrication and waste disposal. Developments of the technologies and the problems involved are also described.

目 次

1. はじめに	1
2. 高温ガス炉用被覆粒子燃料の概要	1
2.1 被覆粒子燃料の種類	1
2.2 被覆粒子燃料の使用例	2
2.3 燃料リサイクル計画	2
3. トリウムの精錬	10
3.1 トリウム含有鉱石と選鉱	10
3.2 トリウムの抽出と精製	10
4. 被覆粒子燃料の製造	16
4.1 被覆燃料粒子	16
4.2 燃料体	16
4.3 燃料検査	17
5. 被覆粒子燃料の再処理	24
5.1 再処理技術の特殊性	24
5.2 再処理技術の現状	25
5.3 再処理の問題点	27
6. 被覆粒子燃料の再加工	37
6.1 再加工技術の特殊性	37
6.2 再加工技術の現状	37
6.3 再加工技術の問題点	38
7. 被覆粒子燃料の再処理・再加工の将来計画	41
7.1 再処理	41
7.2 再加工	41
8. 被覆粒子燃料再処理施設の環境安全	46
8.1 廃棄物の発生と特徴	46
8.2 廃棄物の処理	46
9. おわりに	54
引用文献	54

1. はじめに

高温ガス炉（HTGR）燃料には、高濃縮ウラン-トリウム系が用いられる場合と低濃縮ウラン系が用いられる場合とがある。前者のいわゆる“トリウムサイクル燃料”はGACの発電炉や西独の実験炉に採用され、後者はDRAGON計画の炉や原研の多目的炉の計画に取り入れられている。トリウム燃料を使用する場合、親物質の ^{232}Th から核分裂性物質である ^{233}U を生み出せるという資源面の利点はあるが、同時に生成した ^{233}U の再処理や再加工という再使用（リサイクル）に関する分野で、従来の軽水炉体系に直ちには組込めない問題をもっている。したがってトリウムサイクルの導入にあたっては、核燃料資源の観点と燃料リサイクルの観点から、技術的および経済的に検討することが必要である。

本報告ではトリウム燃料のリサイクル技術を採り上げ、まずHTGR燃料の概要を述べ、ついでリサイクルに関係のあるトリウムの精錬、燃料製造、再処理、再加工、廃棄物処理などの技術の概要を記し、その現状と問題点に言及し、リサイクル技術全般の大要を紹介した。また、必要に応じて低濃縮ウラン燃料についても言及した。

2. 高温ガス炉用被覆粒子燃料の概要

2.1 被覆粒子燃料の種類¹⁻³⁾

高温ガス炉（HTGR）には在来炉の燃料とは著しく形態を異にした被覆粒子燃料が用いられる。この燃料は、直径が数百ミクロンの球状燃料粒子（燃料核）のまわりを熱分解炭素（PyC）や炭化けい素（SiC）で被覆した粒子（被覆燃料粒子）を最小単位とし、さらにこの粒子を黒鉛中に分散し、成形したもの（燃料スティック、燃料コンパクト）を黒鉛スリーブや黒鉛ブロック中に収めたものである。

1) 被覆燃料粒子

第2.1表に示すように燃料核や被覆の仕方によって種々のものが可能であるが、実用されているのはU、Thの炭化物や酸化物をBISO型またはTRISO型に被覆したものである。第2.1図に示すようにBISO型は燃料核のまわりを低密度（ $1.0 \sim 1.2\text{g/cm}^3$ ）のPyC層（緩衝層）と高密度（約 1.8g/cm^3 ）等方性PyC層とで二重に被覆したものであり、TRISO型はBISO型被覆のまわりにさらにSiC層と高密度等方性PyC層とを加えて四重に被覆したものである。

2) 燃料スティックと燃料コンパクト

被覆粒子は黒鉛とともに炭素で結合して棒状、球状、中空円柱状に加工される。棒状のものとしてはGACのFSVR（Fort St. Vrain炉）や大型炉に用いられるインジェクションモールド法による燃料スティックがあり、球状のものとしてはAVRやTHTR用の燃料球がある。また、中空円筒状のものとしてはPeach Bottom炉、DRAGON炉に用いられた大型のもので、そのまわりに黒鉛スリーブを用い、そのまま燃料ロッドとするもののほか、DRAGON計画や原研のVHTRで検討されているように形状がやや小型で、黒鉛スリーブに入れ、さらに黒鉛ブロックの中に入れる、いわゆるピンインブロック型用に供するものもある。

3) 燃料体

燃料交換を行う最小単位であるが、棒型、球型、ブロック型に分類できる。代表例を第 2.2 図に示す。棒型は Peach Bottom 炉や DRAGON 炉に、球型は AVR や THTR に、またブロック型は GAC の FSVR や大型商用炉に、それぞれ開発された。また、棒型の直径と長さを小さくして、黒鉛ブロックに入れ、燃料棒のまわりを冷却するピンインブロック型も近年、DRAGON 計画や原研の VHTR 計画で検討されている。さらに、燃料体内の温度降下を少なくし、冷却材温度を高められるようにするため、燃料スティックやコンパクトとブロックとのギャップを無くした一体化燃料も研究されている。燃料体の設計にあたっては第 2.3 図に示すように種々の形式が検討されている。

2.2 被覆粒子燃料の使用例^{1-3,20)}

第 2.2 表に稼動中および計画中の高温ガス炉の燃料の概要と使用条件とを一覧している。本表には初装荷燃料または補給燃料に対して示されており、使用済み燃料を再処理して再加工した燃料については 2.3 で述べる。

現在、DRAGON 炉と AVR が稼動中、FSVR (Fort St. Vrain 炉) は出力上昇試験中である。UHTREX 炉と Peach Bottom 炉は運転を終えている。これらの炉に使用される燃料は同表の使用条件に耐えるものである。

GAC の FSVR や大型商用炉の燃料体は体面径 14.17 インチ (792 mm) の正六角柱をしており、この中に燃料孔 (直径 0.5 インチ (12.7 mm)) と He ガス冷却孔 (0.625 インチ (15.9 mm)) があげられている。西独の AVR や THTR の燃料は直径 6 cm の球状をしており、内部の直径 4 cm の部分に燃料が入っている。

2.3 燃料サイクル^{4-8,20)}

HTR の燃料には、大別してトリウム利用と低濃縮ウラン利用の方式があり、発電用商用炉は前者を、また英国 (1974 年 HTGR 計画を断念) や日本の実験炉計画では後者を採用している。燃料の核熱特性上からはトリウム利用の方が優れているようであるが、いずれを採用するかは燃料製造、再処理、再加工の技術、ならびに経済性、安全性の検討を組入れる必要がある。

トリウムを利用する燃料の初装荷には高濃縮ウランとトリウムを用いる。生成する ^{233}U を再処理工程で ^{235}U と分離してつぎの装荷に用いる分離式リサイクル、両者を分離しないでつぎに用いる非分離式リサイクル、およびリサイクルを考えない非リサイクル方式がある。リサイクルする場合に ^{235}U の代りに ^{239}Pu を補給する方式も考えられている。これらを第 2.3 表に示す。GAC の商用炉の場合には分離式 ^{235}U 補給サイクル方式を採っており、第 2.4 図に全容を示し、第 2.4 表に燃料粒子の性質を示している。すなわち、使用済み燃料を再処理して ^{233}U を分離しリサイクルする場合には、BISO 被覆に再加工された ^{233}U , Th の燃料と TRISO 被覆の補給用の ^{235}U , Th の燃料 (転換比が約 0.8 であるため ^{235}U の補給を要する) とを原子炉に供給する。使用済み燃料は再処理され、 ^{233}U , ^{235}U , Th, FPs に分離し、 ^{233}U は再加工に、FPs は廃棄物処理に廻す。Th は約 15 年貯蔵し、未照射 Th の放射能レベルまでにしてから再加工に廻す。 ^{235}U は中性子毒の ^{236}U を含むので、売却されるか、一回だけリサイクルされる。GAC で考えられている最適の燃料サイクルパラメーターを第 2.5 表に示す。 ^{233}U は約 500 ppm の ^{232}U (半減期 74 年) を含み、その娘核を含めて高エネルギーの γ 線を発するので、再加

工には遮蔽が必要で再加工は遠隔操作で行われる。この ^{233}U にThを加えてリサイクル燃料が製造され、原子炉に供給される。燃料リサイクルにおける燃料物質の収支を第2.6表および第2.7表に示す。西独のTHTRでは非分離式 ^{235}U 全補給サイクル方式を採っており、第2.5図に示すようにすべてBISO被覆粒子を用いている。

第2.6図にThサイクルに関連のある核反応と壊変系列を示す。 ^{232}Th （いわゆるTh）は核反応で $^{233}\text{Th} \rightarrow ^{233}\text{Pa} \rightarrow ^{233}\text{U}$ となる一方、 $^{232}\text{Th} \rightarrow ^{231}\text{Th} \rightarrow ^{231}\text{Pa} \rightarrow ^{232}\text{U}$ も生成し、この ^{232}U の娘核に ^{212}Bi と ^{208}Tl を含み、いずれも高エネルギーの γ 線を放出する。

第2.1表 被覆粒子の分類

燃 料 核			被 覆 粒 子	
核物質	化学形	実用例	被覆層形式*	実用例
U	炭化物	UC ₂	BISO : PyC-PyC	BISO
Th	酸化物	(U/Th)C ₂	TRISO : PyC-PyC-SiC-PyC	TRISO
Pu	炭ちっ化物	ThC ₂	TRISO-1 : PyC-SiC-PyC	
		UO ₂	TRIPLEX : PyC-PyC-PyC	
		(U/Th)O ₂	Duplex : PyC-PyC	
		ThO ₂		

* 被覆の最内側からの被覆層材質で示した。最内層のPyCの外側に高密度の薄いシール層を入れる場合もある。

第2.3表 HTGR用Th燃料のサイクル⁸⁾

方式	スキーム	再処理回収物	採用例
1. 分離式 ²³⁵ U補給サイクル		²³² Th ²³³ U ²³⁵ U	GAC 大型炉
2. 分離式 ²³⁹ Pu補給サイクル		²³² Th ²³³ U ²³⁹ Pu	
3. 非分離式 ²³⁵ U補給サイクル		²³² Th ²³³ U, ²³⁵ U	THTR
4. 非分離式 ²³⁹ Pu補給サイクル		²³² Th ²³³ U ²³⁹ Pu	

第2.4表 GAC大型商用炉用被覆燃料粒子^{4-6,15)}

性質		記号	IM燃料体		23リサイクル燃料体		25リサイクル燃料体	
			分裂性粒子	親粒子	分裂性粒子	親粒子	分裂性粒子	親粒子
			初装荷および補給用		²³³ Uリサイクル用		²³⁵ Uリサイクル用	
燃料核	同位体組成直径(μ)		²³⁵ U	Th	²³³ U-Th	Th	²³⁵ U	Th
			UC ₂	ThO ₂	(4.25 Th/U)O ₂	ThO ₂	UC ₂	ThO ₂
			200	500	400	500	200	500
被覆層	厚さ(μ)	形式	TRISO	BISO	BISO	BISO	TRISO	BISO
		緩衝PyC	85	85	90	85	85	85
		内部HOI PyC	25	-	-	-	25	-
		SiC	25	-	-	-	25	-
		外部HOI PyC	35	75	80	75	35	75
	全被覆厚さ	170	160	170	160	170	160	
被覆粒子直径(μ)			540	820	740	820	540	820
備考					FSVR用はTRISO		FSVR用はTRISO	

第 2.5 表 現在の経済条件下での最適の HTGR
燃料サイクルパラメータ⁹⁾

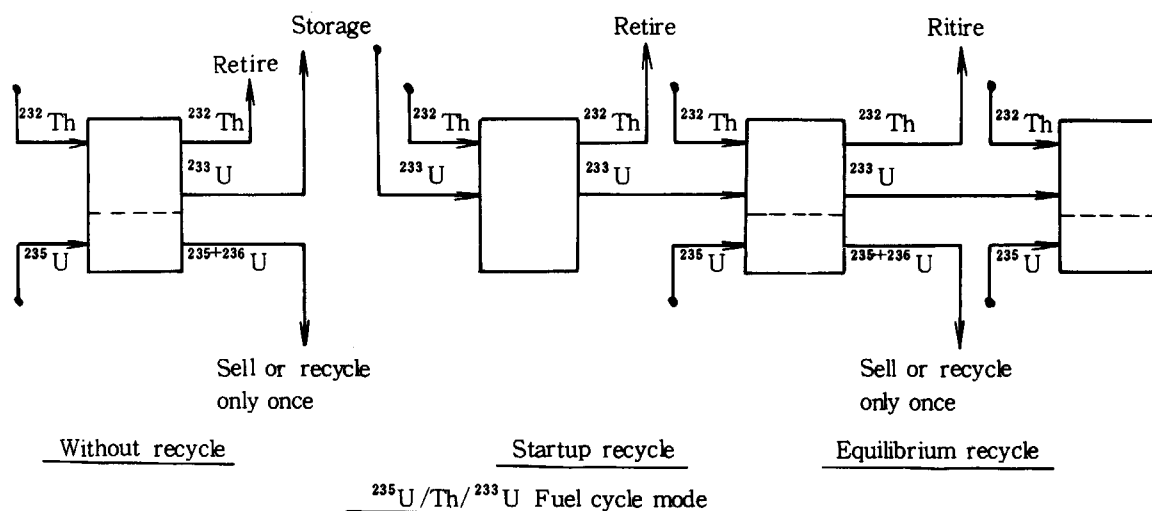
平均炉心出力密度 (W/cm ³)	8.4
平均C/Th比	
初期装荷炉心 / 平衡炉心	214/238
燃料寿命* (年)	4
再装荷間隔 (年)	1
再装荷燃料の炉心割合	1/4
親物質装荷量 (kg/MW(e))	
初期装荷炉心 / 平衡炉心	32/29
²³⁵ U 所要量 (kg/MW(e))	
初期装荷炉心 / 平衡炉心年間補給	1.40/0.33
平均転換比	
初期サイクル / 平衡サイクル	0.69/0.66

第 2.6 表 PWRとHTGRの燃料リサイクルの比較¹⁹⁾

	PWR	HTGR*			合計	
		Th- ²³³ U	²³⁵ U 新規補給	²³⁵ Uリサイク ル補給		
電気出力 (MW(e))	1000				1160	
熱出力 (MW(t))	3077				3000	
平均比出力 (MW/ton)	37.5				80.65	
平均燃焼度 (MWD/ton)	32873				94264	
燃料取替期間 (日)	365.25	365.25	365.25	365.25	365.25	
定常的 装荷	Th (kg)		8434		8434	
	²³³ U (kg)		217		217	
	²³⁵ U (kg)	875.2	29.6	373.0	30.4	433
	Total U (kg)	27350	357.6	403.0	104.5	865.4
	(U+Th) (kg)	27350	8792	403.0	104.5	9299.4
定常的 取出	Th (kg)		7819		7819	
	²³³ U (kg)		219.3		219.3	
	²³⁵ U (kg)	243.4	30.7	30.8	2.6	64.1
	Total U (kg)	26137	366.1	105.3	70.0	541.4
	Fissile Pu (kg)	180.1				2.1
	Total Pu (kg)	254.9				10.0
(U+Th+Pu) (kg)	26572	8185	105.3	70.0	8370	

* 燃料取替は一度に炉心全体の約1/4を行う。²³³Uのリサイクルは3回目の取替時から行う。また²³⁵Uは1回のみリサイクルし、3回目の取替時から行い、その後は廃棄する。

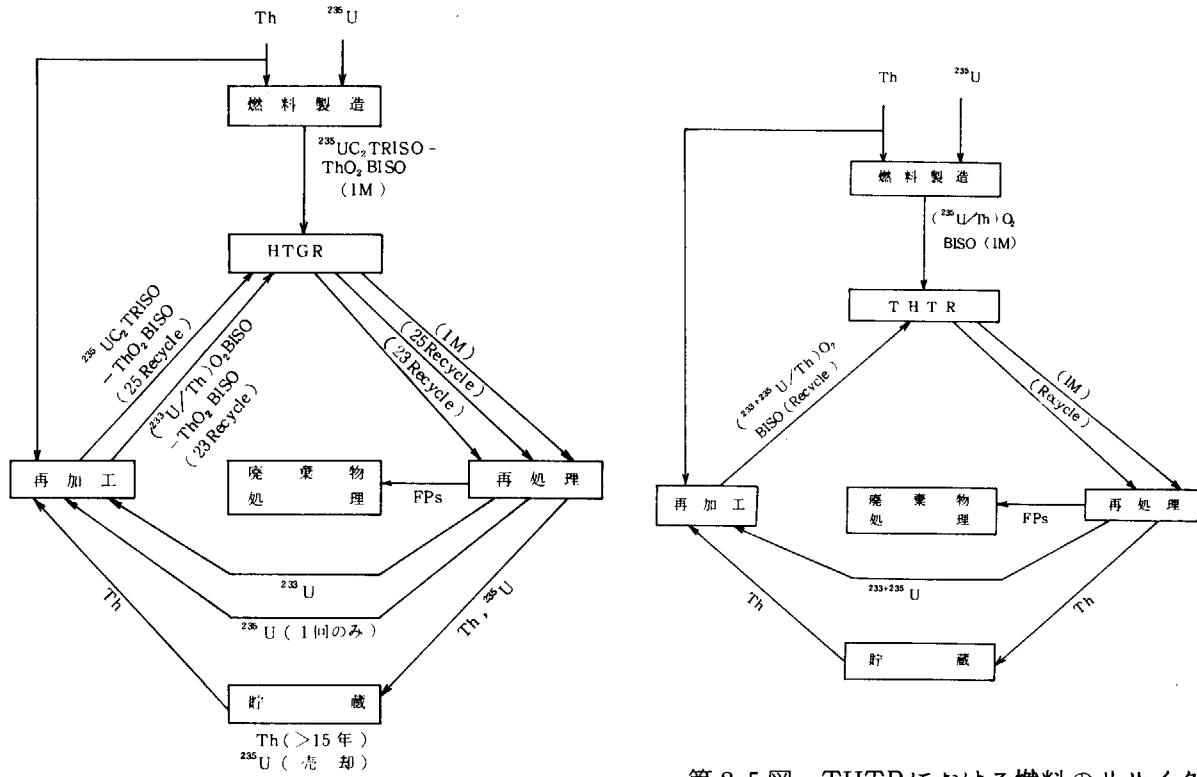
第 2.7 表 燃料サイクル方式と燃料装荷²⁾



HGTR fuel loadings.

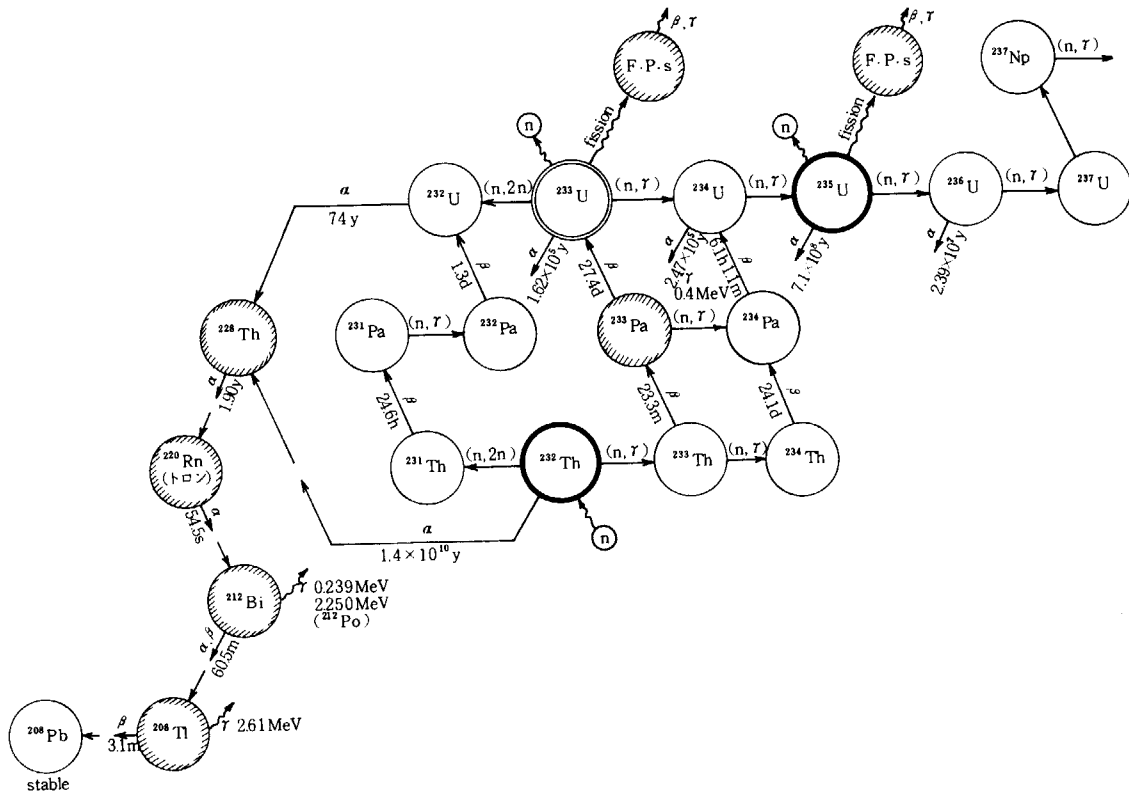
	Segments of initial core				Equilibrium segment	
	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4	Non-recycle	Recycle
Metal charged (kg)						
BISO particle						
^{232}Th	10570	8970	8970	8970	8080	8080
Recycle ^{233}U	-	-	-	-	-	200
Recycle ^{235}U	-	-	-	-	-	20
Total U recycle	-	-	-	-	-	300
TRISO particle						
^{235}U	400	370	400	430	670	390
Total U	430	400	430	470	720	420
Metal discharged (kg)						
BISO particle						
^{232}Th	10360	8630	8460	8310	7470	7490
^{233}U for recycle*	150	180	200	200	190	200
^{235}U for recycle	1	3	6	10	10	20
Total U	160	200	240	270	240	330
TRISO particle						
^{235}U	180	80	40	20	40	30
Total U	250	150	120	110	170	100
Fissile Pu	0.6	0.6	0.6	0.7	1.0	0.6

* This includes the ^{233}Pa in addition to the ^{233}U . Since the ^{233}Pa half-life is only 27.4 days, its decay to ^{233}U will be essentially complete by the time reprocessing occurs.



第 2.5 図 THTRにおける燃料のリサイクル

第 2.4 図 GACのHTGR における燃料のリサイクル



第 2.6 図 Thサイクルに関する核反応と放射性壊変の系列

3. トリウムの精錬

3.1 トリウム含有鉱石と選鉱⁸⁾

地殻中のThの濃度は大体12ppmで、Uの3倍以上である。Thを含む鉱石は水に不溶で、河川床、海浜などに蓄積されているが、重要な鉱物として第3.1表に示したモナズ石(monazite)、方トリウム石(thorianite)およびトリウム石(thorite)の三つがあげられる。これらのうち、モナズ石のみがThと希土類の経済的な供給源となっている。モナズ石はインド、ブラジル、米国、南アフリカなどの河川床や海浜に産するモナズ砂に含まれる鉱物であり、希土類元素とThのりん酸塩からなる。

(Ce, La, Y, Th)PO₄の化学式で代表され、その組成は第3.2表に示すようにTh 3.5~10%, 希土類元素60~85%のほかにTi 0.4~2.1%, Zr 0.1~3.5%を含んでいる。

モナズ砂からのモナズ石の選鉱は、第3.1図に示したインドの例にみられるように、磁気、静電、沈降などの選鉱手段により、モナズ石を取出すほか、他の有用な鉱物の分離を行っている。この方法によるモナズ石は第3.2表に示すようにTh品位はインド産の場合10%程度である。このモナズ石は次に述べるTh抽出にかけられる。

3.2 トリウムの抽出と精製⁸⁾

モナズ石は硫酸またはか性ソーダに溶解した後、沈澱分別によりThが濃縮される。すなわち、硫酸法(第3.2図)ではモナズ石を濃硫酸に溶解した後、アンモニアでpH調節して分別沈澱させ、Thをりん酸塩の形で分離濃縮する。この方法は従来、普通に行われてきた方法であるが、Th濃縮物中にりん酸イオンを持ち込むので、このあと行われるTh精製を困難にする。そこで、モナズ石をか性ソーダに溶解した後、塩酸で分別沈澱させ、Thを水酸化物の形で分離、濃縮するか性ソーダ法(第3.3図)が開発された。この方法は現在、インド、ブラジル、米国などで原子力向けに実用されている。か性ソーダ法によるTh濃縮物の組成は、ThO₂ 50~60%, P₂O₅ 1~2.5%, REO 2~15%, SiO₂ 1~3%, Fe₂O₃ 2~5%, UO₃ 1.5~2.5%, TiO₂ 0.1~1%, 酸不溶性残渣10~30%であり、この濃縮物は次に述べるTh精製工程にかけられる。

原子力用Thでは、Gd, Sm, Dy, B, Cdのような中性子吸収材は²³²Thから²³³Uの生成を妨害するので、高純度にしなければならない。1ppmのGdとSmは²³³Uの生成損失が0.8%と0.2%にあたるという計算がある位である。精製法には溶媒抽出法、分別晶出法、分別沈澱-浸出法の三つがある。後二者は従来、普通に採られてきた方法であるが、これには、たとえば第3.3表に示すように不純物を多く含んでおり、原子力用には向かない。原子力以外の目的で従来用いられていたThにはこの程度の不純物が含まれている。そこで、高純度を要求される原子力向けには溶媒抽出法が用いられる。この方法は第3.4図に示されるように、Thの硝酸塩をTBP溶媒中に抽出し、このさい不純物を取除き、さらに希硝酸中に逆抽出して精製されたTh硝酸塩を得る方法である。この方法では不純物を除き、高純度品を得る以外に、Thの壊変系列中に出てくる放射性生成物を除去できるので、その後の加工操作における放射線被曝を軽減できる利点もある。Thの回収率は99.7%に達する。硝酸塩として得られたThをしゅう酸塩に変え、さらにThO₂にして測定した不純物濃度を第3.4表に示す。

なお、参考までにインドにおける採鉱から精製までのやり方を記しておく。インドでは主にKerala州の海浜砂にモナズ砂があり、Travancore Mineralsで第3.1図の工程が行われ、同じ州にある

Indian Rare Earth Ltd. で抽出が第 3.3 図に従って行われる。この製品は Trombay の BARC にお
くられ、分別沈澱法により精製され、水酸化トリウムの製品とされる。

第 3.1 表 代表的なトリウム鉱物

鉱物	化学式	Th含量(%)	U含量(%)	主要産地(注)
Monazite (モナズ石)	(Ce, La, Y, Th)PO ₄	3.5 ~ 10 (<u><~26</u>)	<1	<u>インド, ブラジル, 米国, 南アフリカ,</u> <u>セイロン, インドネシア, マラヤ, オ</u> <u>ーストラリア, 朝鮮(ソ連?)</u>
Thorite (トリウム石)	ThSiO ₄	25 ~ 63 (<u><77%</u>)	5 ~ 20	<u>米国, カナダ, ニューージーランド</u>
Thorianite (方トリウム石)	(Th, U)O ₂	45 ~ 84	<50	<u>マダガスカル, セイロン, アラスカ,</u> <u>カナダ, シベリヤ, ニューージーランド,</u> <u>米国</u>

注) 下線を付したのが主要なところである。また、トリウム消費国は、米国(6割)、仏、カナ
ダ、インド、ブラジル、英国、西独、その他である。

第 3.2 表 モナズ石の代表的組成

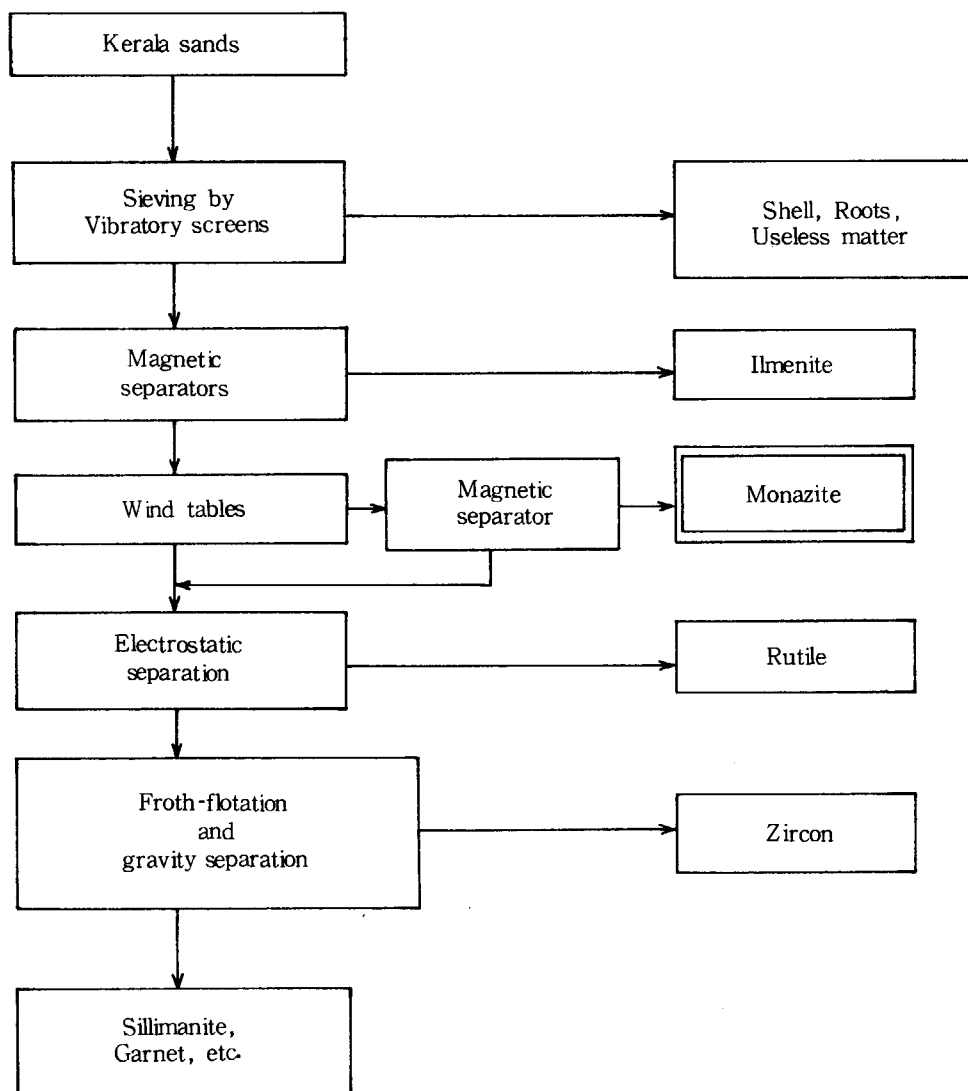
	Brazil, %	Indian, %	U.S.A., %
ThO ₂	6.8	9.9	3.4
Ce ₂ O ₃	25.9	27.5	19.5
P ₂ O ₅	25.5	29.5	20.5
SiO ₂	2.51	1.5	8.5
Zr	3.5	1-3	0.1-1.0
TiO ₂	1.10	0.40	2.1
Fe ₂ O ₃	0.50	0.90	4.5
Al ₂ O ₃	—	—	12.5
RE ₂ O ₃	60.5	59.8	40.1
U ₃ O ₈	0.18	0.27	0.15
MoO ₂	0.01	0.01	—

第 3.3 表 溶媒抽出によらず、従来の精製法で精製した硝酸トリウム
(マントルグレード)の組成

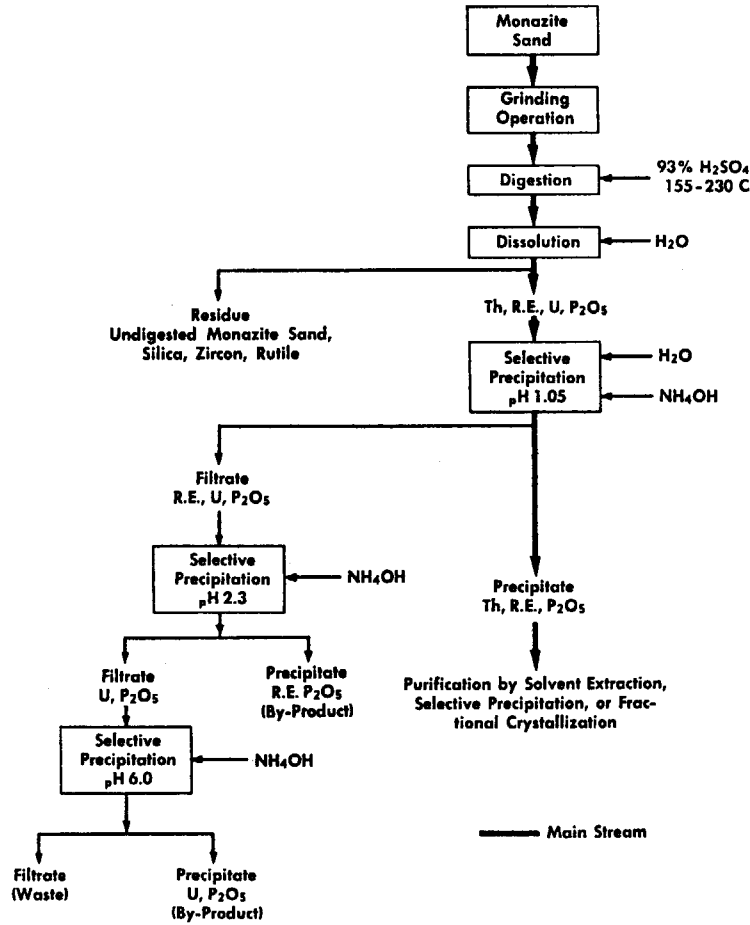
Constituent	Content	Constituent	Content, ppm
Th	40.6%	Rare Earths	100
NO ₃	42.4%	Ce	44.0
SO ₄	0.5-1.5%	Nd	12.2
Ca	0.2%	Y	9.7
Mg	0.2%	La	9.2
Si	400 ppm	Gd	2.1
Fe	300 ppm	Pr	1.85
Al	50 ppm	Sm	1.6
Ni	10 ppm	Lu	0.43
Mn	10 ppm	Yb	0.26
Cu	5 ppm	Dy	<0.38
Pb	5 ppm	Er	<0.25
B	2 ppm	Tm	<0.06
		Eu	<0.04

第 3.4 表 溶媒抽出精製で得た ThO₂ に伴われる不純物量 (wt.%)

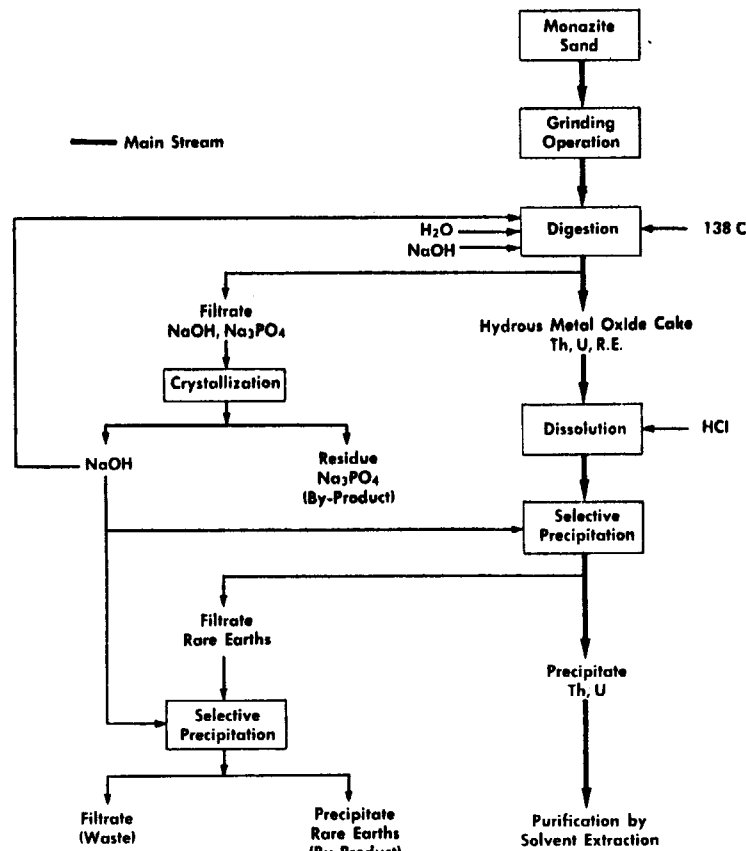
Element	Content	Element	Content	Element	Content
Boron	$<5 \times 10^{-6}$	Sodium	$<5 \times 10^{-3}$	Neodymium	6×10^{-5}
Cadmium	6.3×10^{-5}	Dysprosium	$<8 \times 10^{-6}$	Praseodymium	1.8×10^{-5}
Lithium	$<5 \times 10^{-6}$	Europium	4×10^{-6}	Scandium	$<3 \times 10^{-6}$
Uranium	$<7 \times 10^{-6}$	Gadolinium	$<12 \times 10^{-6}$	Terbium	$<1.8 \times 10^{-5}$
Calcium	1.1×10^{-2}	Samarium	$<12 \times 10^{-6}$	Ytterbium	$<1.5 \times 10^{-5}$
Silicon	6×10^{-3}	Selenium	1×10^{-4}	Yttrium	8×10^{-6}
Aluminium	$<5 \times 10^{-4}$	Holmium	$<5 \times 10^{-6}$		
Lead	$<5 \times 10^{-4}$	Lanthanum	5×10^{-5}		
Potassium	$<7.5 \times 10^{-3}$	Luycium	$<8 \times 10^{-6}$		



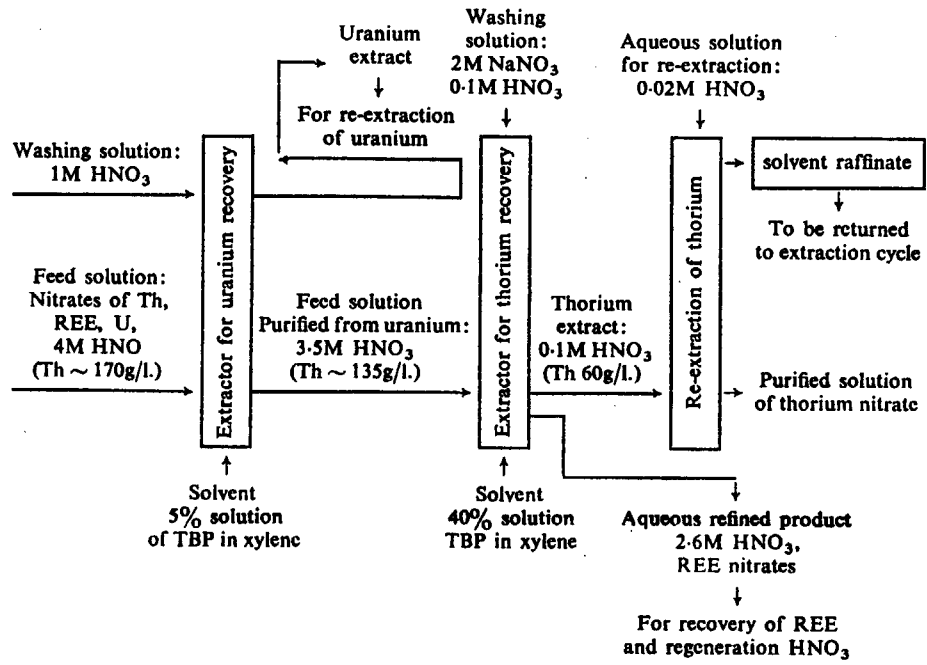
第 3.1 図 インドのモナズ砂からの有用成分の回収例



第 3.2 図 硫酸法によるモナズ石からのトリウム，ウラン，希土類元素の回収



第 3.3 図 苛性ソーダ法によるモナズ石からのトリウム，ウラン，希土類元素の回収



第 3.4 図 硝酸トリウム の溶媒抽出法による精製

4. 被覆粒子燃料の製造

4.1 被覆燃料粒子^{1-4,10-13)}

1) 燃料核

燃料核は第 4.1 図に示すように(1)粒子溶融法, (2)粉末冶金法, (3)ゾルーゲル法, (4)イオン交換樹脂法, などで製造できる。

粒子溶融法は粉末冶金法で球状化したものを最終的に溶融して, 表面張力により球状化する方法である。GACでは球状のUC₂を黒鉛粉末中に分散し, 2450℃程度に加熱して溶融して高密度核を製造し, FSVR用としている。DRAGON計画では粉末冶金法でUC₂核, UO₂核を製造している。ゾルーゲル法はノズルから滴下して球状にしたものをゲル化する方法で, 再処理後の再加工には都合のよい方法であり, ORNL, KFA-Julich, NUKEM, AGIPなどで研究されている。ORNLでは第 4.2 図に示すようにCUSP (Concentrated Sol Preparation)法でゾルをつくり, これをゲル化した後, 乾燥, 焼結する方法を開発した。また, KFAは第 4.3 図, 第 4.4 図, NUKEMは第 4.5 図, AGIPは第 4.6 図の方法をそれぞれ開発した。イオン交換樹脂法は整粒された樹脂球にUを吸着させてから焼成する方法でORNLで研究され800μのものまで製造でき, 原料が安い, 製粒しやすい, 遠隔操作化が容易などの利点があるが, 球あたりのU量に限度がある。

2) 被覆

燃料核の被覆は高温流動層によって行われる(第 4.7 図)。低密度PyCはアセチレンを1200~1400℃で, 高密度PyCはメタンを1800~2000℃, プロパンを1300~1700℃, プロピレンを1200~1400℃のいずれかで, またSiC層はメチルトリクロルシラン(CH₃SiCl₃)蒸気を1200~1800℃で, それぞれ熱分解して粒子に蒸着させる。

被覆層の品質は熱分解条件によって異なるが, 被覆粒子用にはおおそ以下の値を有する。低密度PyC層は密度1.0~1.2g/cm³, 高密度PyC層は1.80g/cm³前後で, かつ結晶子の配列が等方的のもの(BAF<1.1またはOPTAF<1.05), SiC層は理論密度(3.214g/cm³)に近いものとなっている。

3) 被覆粒子

燃料核の組成と寸法, 被覆層の材質と寸法は設計と製造性を考慮して決められる。第 2.2 表には実用されている粒子の仕様を記している。

4.2 燃料体^{1-4,10,12-14)}

被覆粒子は成形体にして使用されるが, 燃料体には2.1で述べたように種々の型があるので, 製造法も若干異なる。今日のHTGR燃料は黒鉛ブロック型と球型とに大別でき, ブロック型はGAC型燃料体とピンインブロック型燃料体とに区別できる。

GAC型燃料体は第 4.8 図に示す方法で製造される。すなわち, 被覆粒子の充填層中へ黒鉛粉末とピッチの混合物(マトリックス原料)を温間で注入し, 冷却すれば円柱状の成形体(燃料スティック)が得られる。この方法はインジェクションモールド法と呼ばれる。この成形体を黒鉛ブロックの燃料孔に装入し, 全体を1800℃で焼成しピッチを炭化して燃料体が完成する。ピンインブロック型燃料体は第 4.9 図に示したように, 黒鉛粉末とフェノール樹脂の混合物(マトリックス原料)を粒子のまわりに付け(オーバーコート), これを金型に入れて成形体とする。この方法はオーバーコート・プレス法と呼ばれる。この成形体を焼成・脱ガスして燃料コンパクトを得る。これを黒鉛スリーブに入

れた後、黒鉛ブロックの燃料孔に入れ固定する。球状燃料では AVR 燃料の初期のものは球状黒鉛殻を機械加工して造り、この中に粒子とマトリックス原料を入れて端栓をして焼成したものであったが、最近では第 4.10 図に示すようにラバープレス法を用いるようになった。すなわち粒子とマトリックス原料を混合し、球状にラバープレスで仮成形してから、さらにマトリックス原料をそのまわりに球殻状に付くようにラバープレス成形する。ついで焼成・脱ガスして燃料球を製造する。

燃料スティックでは被覆粒子の充填率を 60 ~ 65v/o と大きくできるが、マトリックス密度は約 1.0g/cm^3 と低く、熱伝導性がやや悪い。燃料コンパクトでは充填率は最高約 40v/o で自由に変えられ、熱伝導性も良い。

黒鉛⁴⁾ はスリーブやブロックなど燃料体用として、あるいは反射材として用いられる。前者は取り換え可能であるが、後者は取り換えが難しく、一応不可能とみられる。黒鉛材には炉心での高温照射下で構造体としての安定性が要求されるが、照射挙動は原料コークスの種別や製法によって大きく左右される。GAC では H-327 と呼ばれる針状コークス系の異方性の大きい黒鉛材が、また DRAGON 炉ではギルソナイト系の等方質の黒鉛材が、それぞれ用いられている。しかし、黒鉛材としては等方質のものが好ましいので、またギルソナイト系黒鉛の原料供給の不安から、欧米では新しい等方質黒鉛の開発に意欲を燃やしている。

4.3 燃料の検査¹⁻³⁾

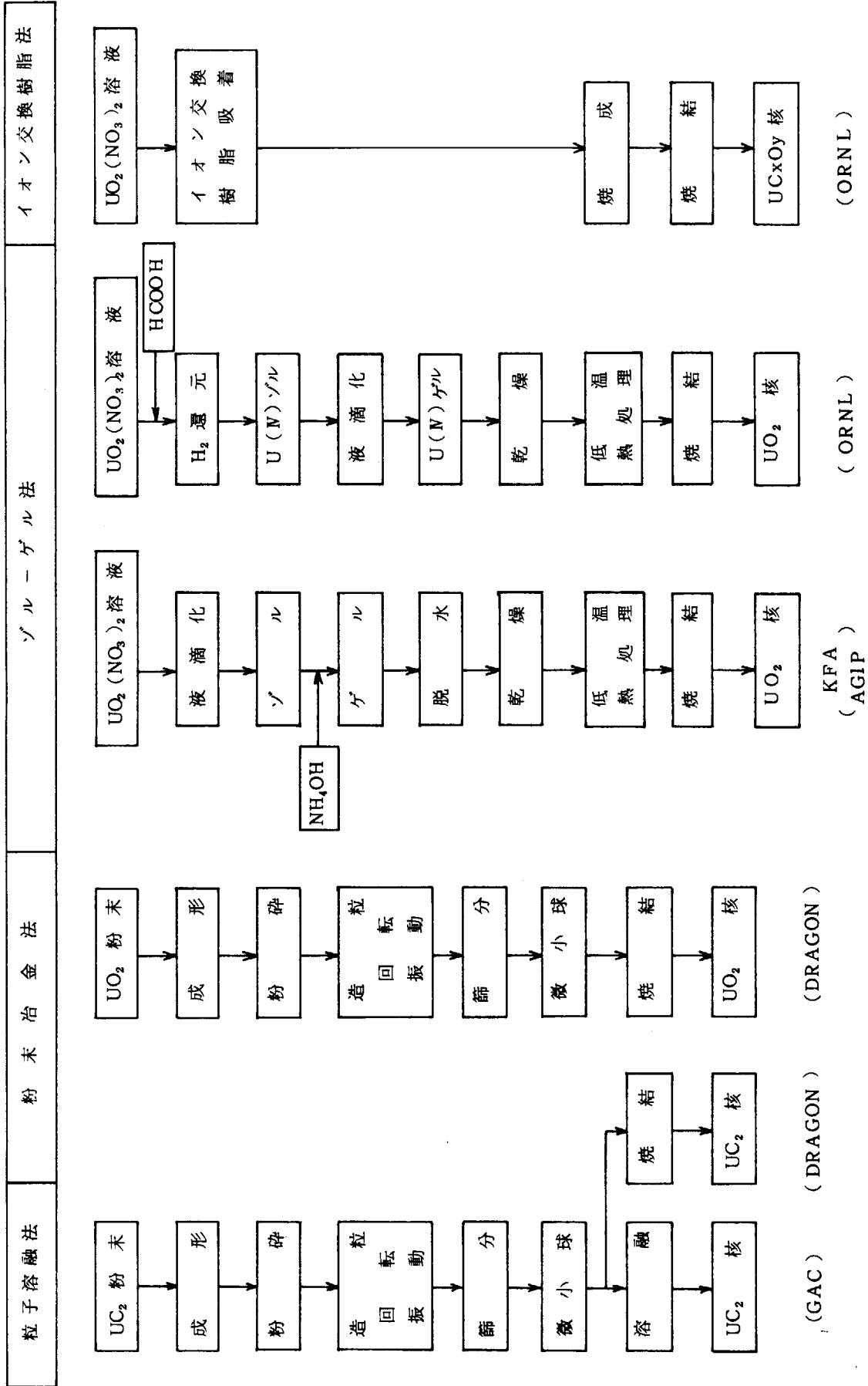
製造燃料に対しては、製造工程を含めて検査が行われ、品質が保証される。第 4.1 表には GAC の FSVR 燃料製造の際に行った検査の項目を一覧している。

第4.1表 Fort St. Vrain炉用燃料に対するGGAの品質管理検査項目³⁾

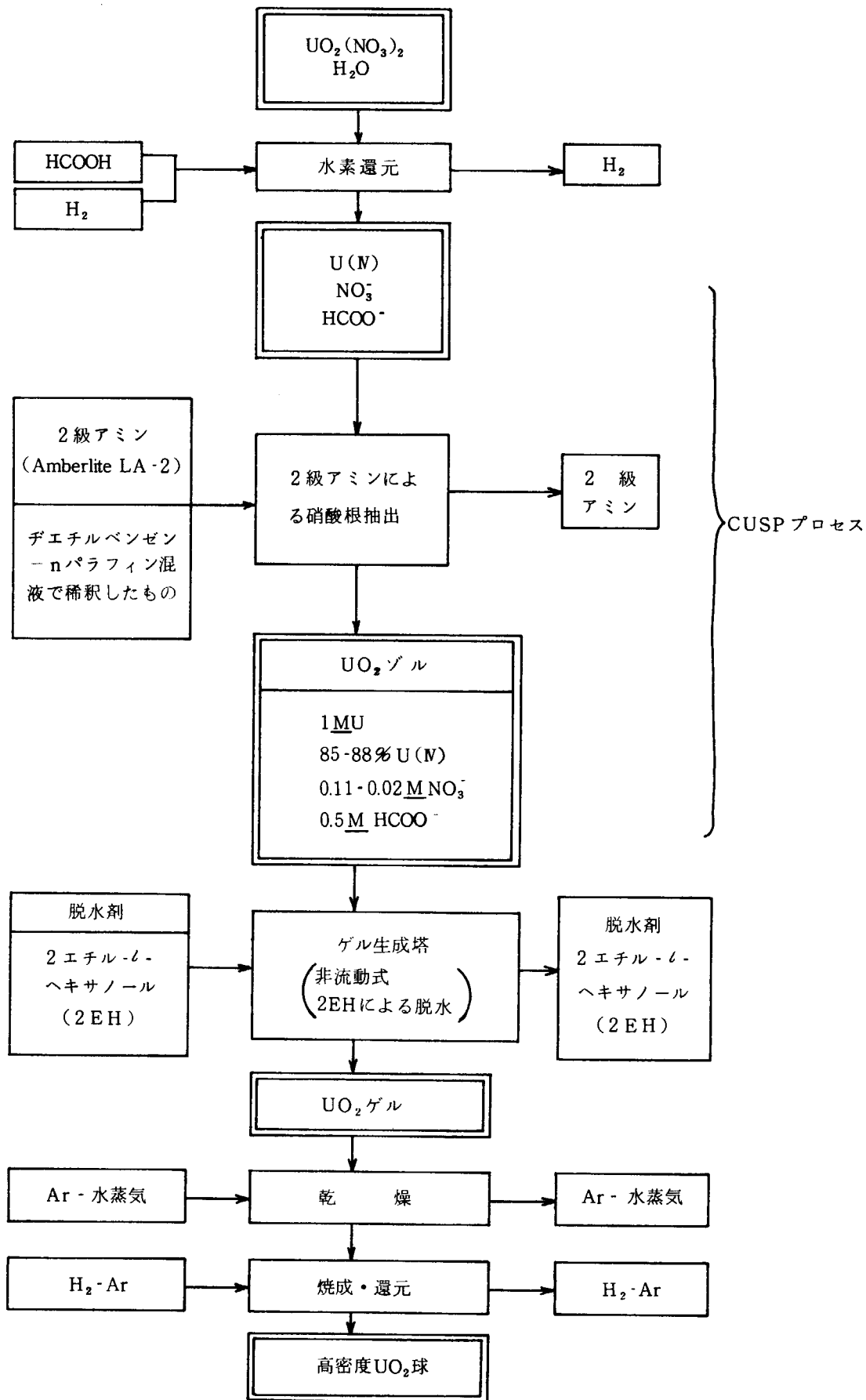
1. 被覆燃料粒子	電気抵抗.....	2,3
1) 燃料核	燃料均質度.....	1,2
²³⁵ U 検査.....		1,2
Th/U比.....		1,2
C, Fe, O ₂		1,3,4
密度.....		1,2
構造.....		3
形状.....		3
寸法.....		4
2) 緩衝層	2) 焼成棒	
厚さ.....	寸法(長さ・直径).....	3
密度.....	外観.....	0
3) 内側 PyC 層	マトリックス端栓厚さ.....	1
厚さ.....	マトリックス空隙率	
密度.....	(マイクロ, マクロ).....	2,3
OPTAF.....	ppm C, Si, Cl.....	4
破損率.....	不純物.....	1
4) SiC 層	U, Th 量.....	1,2
厚さ.....	U, Th 汚染.....	5,6
密度.....	Th 汚染.....	5
角張り被覆.....	3. 黒鉛ブロック	
破損率.....	1) 黒鉛素材	
5) 外側 PyC 層	引張り強度.....	3
厚さ.....	密度.....	3
密度.....	電気抵抗.....	2,3
OPTAF.....	分析(灰分, B当量).....	1,4
破損率.....	熱伝導率.....	2,3
6) 被覆粒子	2) 機械加工ブロック	
W/o U, Th.....	寸法(燃料孔, 冷却孔 平坦度,	
ppm C, Si, Fe.....	ダウエル, ソケットなど).....	3
B 当量.....	目視.....	0
破損 SiC.....	重量.....	0
破損 PyC.....	ウェブ健全性彫刻銘.....	3
密度.....	3) 燃料棒装荷, 端栓, 焼成硬化	
2. 燃料棒	燃料棒配置, パッチ番号, スタック	
1) 未焼成棒	高さの確認検査.....	1,2
マトリックス均質度.....	セメント付け, 孔端栓, ダウエル,	
	焼成時間の確認検査.....	3
	セメント ダウエル, 接合部目視試	
	験(過剰セメント).....	3
	4) 完成燃料要素	
	正確配置の確認検査.....	0
	表面汚染チェック.....	5
	表面損傷目視.....	3

注) 各々の構成単位に対して左側に記された項目は品質管理の検査項目を示し、右側の数字は以下のような性能保証上必要な特性を示す。

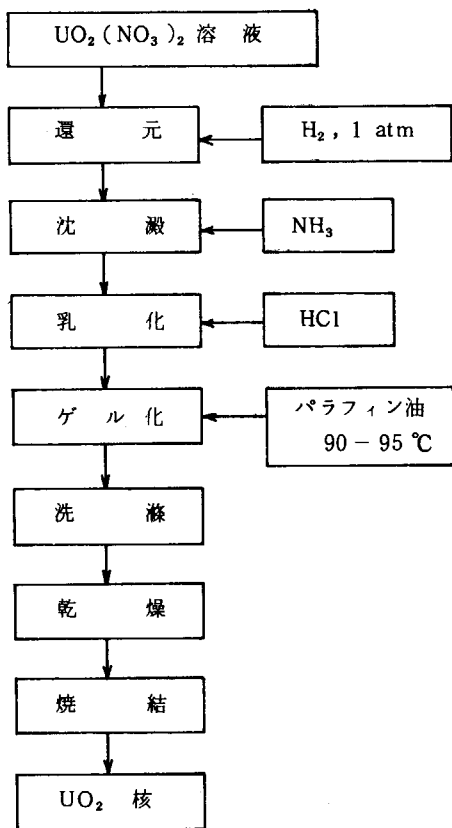
- 1: 核的特性
- 2: 熱的特性
- 3: 機械的特性
- 4: 化学的特性
- 5: ガス状 F.P. 放出特性
- 6: 固体状 F.P. 放出特性



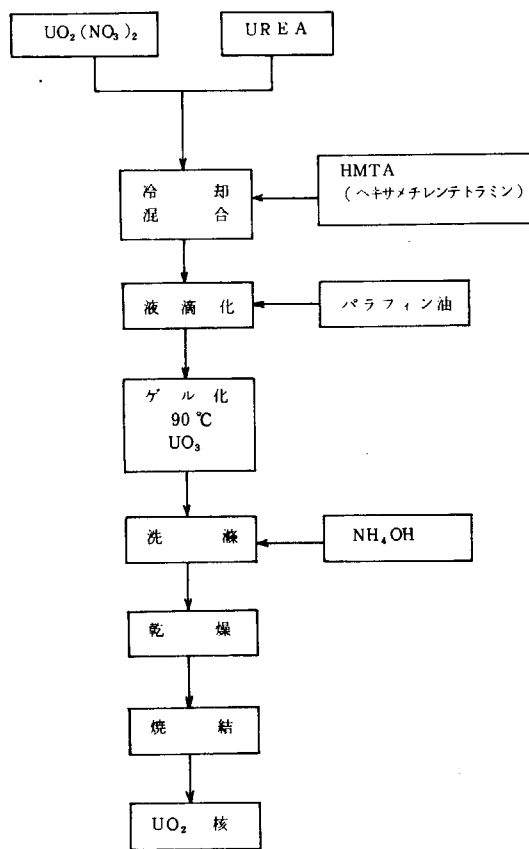
第4.1図 燃料核の製造法 (Uを例にとった, Th入りでも同様である)



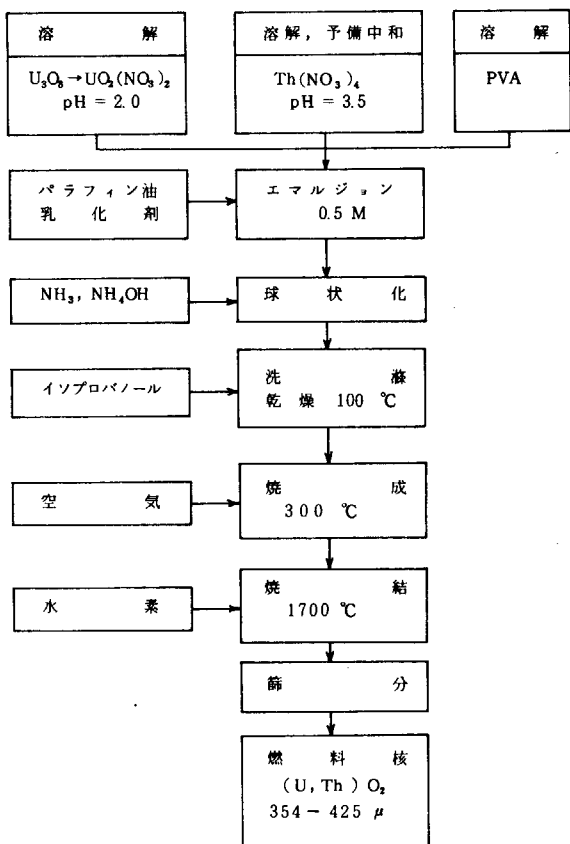
第4.2図 ゾルーゲル法 (CUSP法) によるUO₂球の製造 (ORNL)¹¹⁾



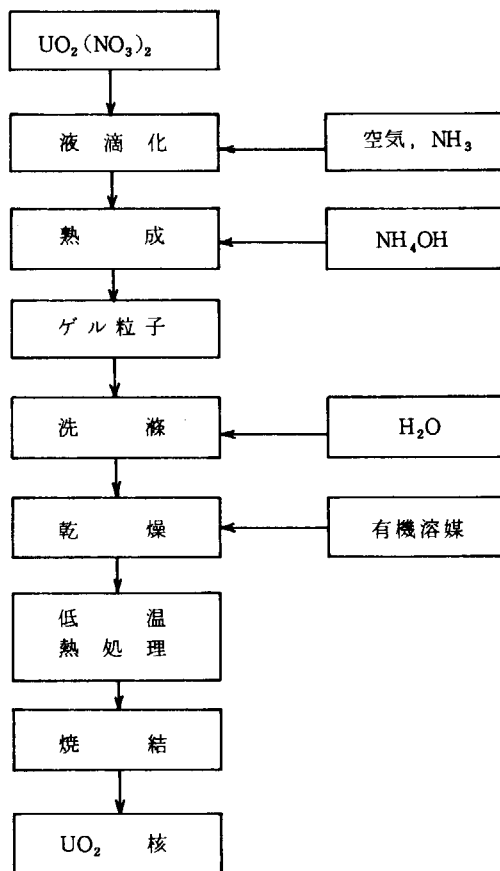
第 4.3 図 ゾル-ゲル法による UO_2 核製造 (KFA)



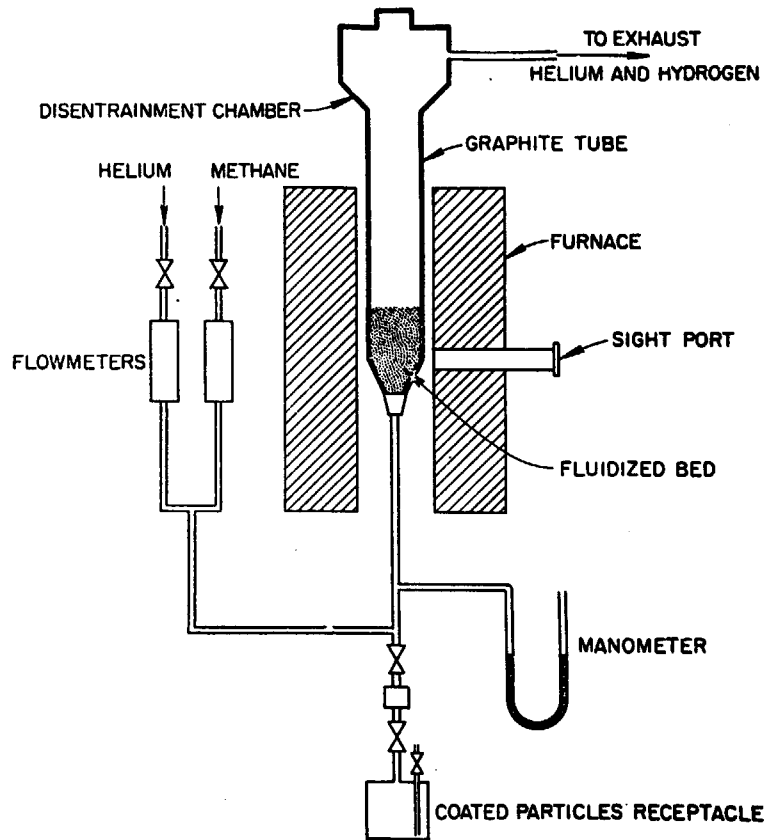
第 4.4 図 ゾル-ゲル法による UO_2 核製造 (KFA)



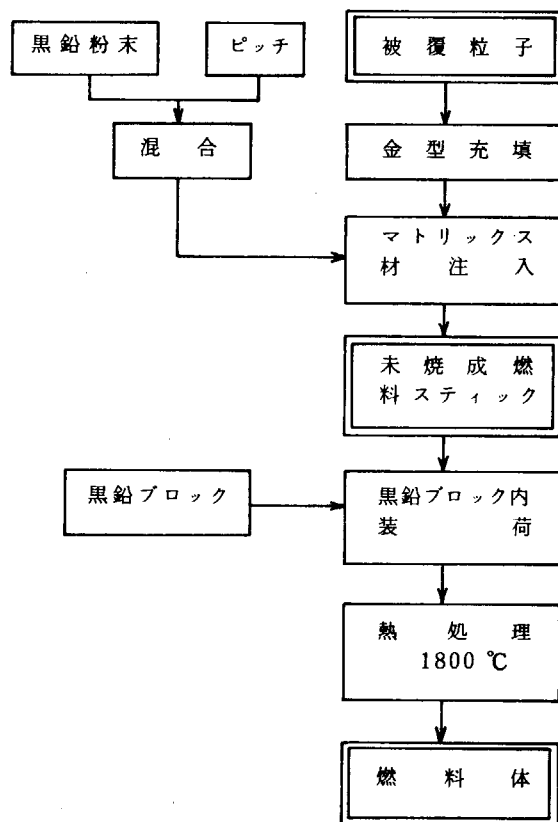
第 4.5 図 エマルジョン法による THTR 燃料核の製造 (NUKEM)¹⁰⁾



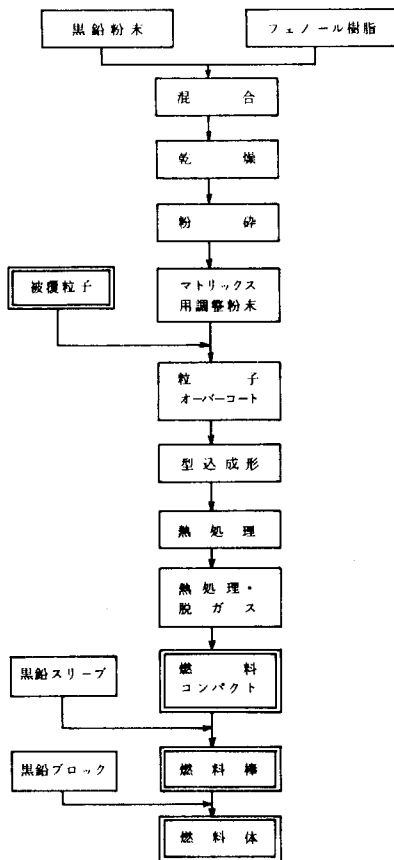
第 4.6 図 SNAM 法による UO_2 核の製造 (AGIP, Th, Pu 入りの場合も同様)



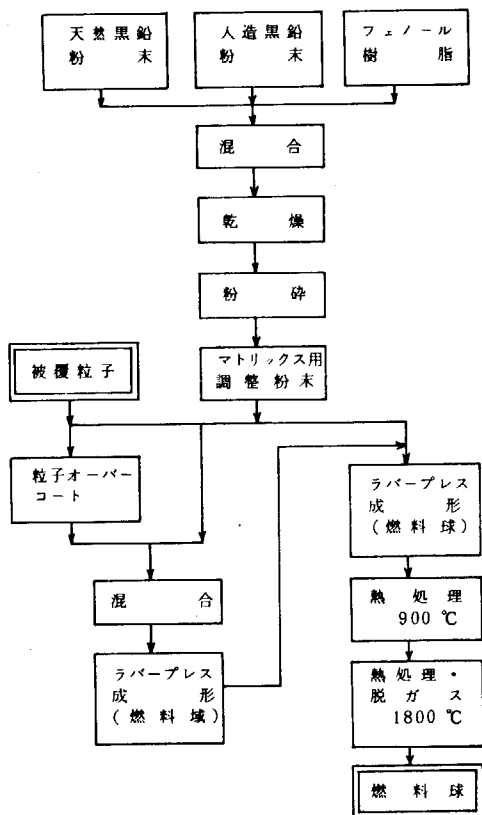
第 4.7 図 流動層による粒子被覆¹⁾



第 4.8 図 GAC 燃料体の製造工程



第 4.9 図 ピンインブロック型燃料体の製造工程



第 4.10 図 THTR 燃料球の製造工程

5. 被覆粒子燃料の再処理

5.1 再処理技術の特殊性^{5-8,15)}

再処理は使用済み燃料の輸送と貯蔵，前処理，溶媒抽出による分離回収，および廃棄物処理よりなる。トリウムを利用する燃料では， ^{235}U や ^{239}Pu の補給の仕方によって第2.3表に示した燃料サイクル方式がある。したがって，再処理法もThや ^{233}U を分離回収する点は共通であるが， ^{235}U や ^{239}Pu の分離回収において若干異なる。 ^{235}U を補給する場合，GACの大型商用炉では ^{235}U をTRISO粒子で補給し，リサイクル燃料をBISO粒子にして， ^{233}U を ^{235}U とは別に回収するのに対し，THTRでは補給，リサイクルともにBISO粒子に統一して ^{233}U と ^{235}U とを一緒に回収する方式をとっている。

トリウム燃料の再処理は，1950年代に米国ORNLでパイロットプラント規模で研究開発を終えた溶媒抽出法-Thorex法-の技術を利用してトリウムとウランを分離する点に最大の特徴を有する。したがって，HTR燃料の場合には使用済み燃料を溶媒抽出できる状態にする処理-前処理-の確立が必要となる。再処理の研究開発の重点が，この前処理の確立に置かれており，これによれば黒鉛を除去する処理が軽水炉の脱被覆に比べて複雑であり，その際の廃ガス処理が厄介なのもこの燃料の再処理の特徴である。

米国や西独で行われている研究にみられる再処理の系統図を第5.1図に示す。同図にはトリウム燃料のほかウラン燃料の場合についても示されている。

トリウム燃料の再処理は，軽水炉燃料のそれに比較して次の特徴をもっている。

- 1) 燃料体に多量の黒鉛を含むので，輸送や貯蔵で嵩ばるほか，黒鉛の処理が必要になる。
- 2) 燃焼度が大きいので，原子炉単位出力あたりの重金属の処理量，したがって分離工程の処理能力は小さくて済む。
- 3) 分離回収すべきものにトリウムが入って来るので，分離回収プロセスがウランの場合のPurex法と異なり，Thorex法によらねばならない。溶媒へのトリウム抽出濃度はウランの場合より小さいので，抽出操作時に水相，溶媒相のほか第3相を形成しやすくなる。
- 4) 短期冷却して再処理をする場合には，トリウムから生成した ^{233}Pa （半減期27.4日）の分離が余計に必要な。冷却を約200日以上にすればこの問題はなくなる。
- 5) 前処理における黒鉛の燃焼で出る廃ガスの処理が必要である。
- 6) 回収したトリウムには ^{228}Th が含まれるので，その娘核種に基因する高エネルギー γ 線の放出があり，取扱い上注意を要する。
- 7) 回収した ^{233}U 中に ^{232}U （半減期74年）を含み，その放射能と娘核種の高エネルギー γ 線とにより，再加工時に遮蔽が必要で遠隔操作を要する。軽水炉燃料の場合には， ^{239}Pu の遮蔽を要する点，類似している。

なお，HTGR燃料に低濃縮ウラン燃料を使用する場合はTh， ^{233}U ， ^{233}Pa などの処理が不要となるが，Puの回収が加わってくる。その再処理法は前処理段階をトリウム燃料を使用する場合と同じにすることが必要であるほかは軽水炉燃料の場合と同じくPurex法による。HTGR燃料にトリウム燃料を使う場合と低濃縮ウラン燃料を使う場合の再処理を第5.1表に比較した。

5.2 再処理技術の現状^{5-8, 15-17)}

再処理技術は現在開発中であり、世界的にまだ確立されていない。1950年代にORNLでトリウム燃料の分離精製についての研究が行われ、Thorex法と呼ばれる溶媒抽出法が200kg/日のパイロットプラント規模で実証されているので、再処理法の技術開発は、このThorex法で分離精製を行えるようにするための前処理法に向けられており、主としてアメリカと西独とで実施されている。

また、低濃縮ウラン燃料の場合には、Purex法との組合せとなる。第5.2表にGACの大型商用炉の使用済み燃料の特性を示す。

1) 使用済み燃料の輸送と貯蔵

アメリカの場合、FSVRからNRTSのICPPへは2台のキャスクによりトラック輸送することになっており、また、大型商用炉の場合にはトラックと鉄道によるキャスク輸送を検討中である。鉄道輸送の場合、使用済み要素6個または再加工程要素5個を入れることのできるコンテナ12個をキャスクに入れ、60トンの特別貨車に水平に乗せる。キャスクは不銹鋼内壁層、劣化ウラン中間層、鋼製外部層の3層構造で、冷却用フィンを有し、重量は160トンである。トラック輸送のキャスクは鉄道用より小さく、1個のコンテナを収容できる。

再処理サイトにおける貯蔵はコンテナを、水ピットまたはドライピットに格納する方式で行われる。ICPPにはFSV炉用に2560個の燃料要素を貯蔵する設備が1974年4月にでき上っており、また1985年以降の商用炉用は設計段階にある。

2) 前処理

使用済み燃料を処理して溶媒抽出による分離精製が実施できるようにする前処理工程は、基本的には、(1)黒鉛部分の除去、(2)燃料粒子被覆層の除去、(3)燃料物質の回収の3段階から構成される。このための処理法としては第5.3表に示すように種々の方法が考えられる。

アメリカでは、前処理工程の選択のための研究がGACやORNLを中心に行われた。黒鉛の解砕、除去については燃料スティックを黒鉛ブロックから機械的に分離する方法、燃料体を粗砕、中間粉碎、微粉碎する粉碎(クラッシュ)法、燃料体の化学的解砕や電気化学的解砕法、および燃料を燃焼する(バーン)方法などである。被覆層除去については粉碎(グランド)法、化学的除去法、燃焼(バーン)法などである。また、燃料物質の回収については酸浸出(リーチ)法、ハロゲン化法などである。これらの研究の結果、(1)燃料体をまず粉碎し、次いで燃焼し、最後に浸出する粉碎(クラッシュ)-燃焼(バーン)-浸出(リーチ)法と、(2)燃料体を粉碎してから浸出する微粉碎(グランド)-浸出(リーチ)法が提案されたが、後者は排出ガス量が少ない利点はあるが、固体廃棄物が大量に生じること、回収率に不安を残していることなどのために、GACのコールドパイロット用には最終的に前処理工程として前者が選定された。FSVR燃料を対象としたフローシートを第5.2図に示す。GACとICPPではフローシート検討を行う一方、ORNLではホットセル研究が進められており、浸出液からThorex法により燃料の回収が試みられる予定である。

粉碎(クラッシュ)は3段で行う。すなわち、第1段目は燃料ブロックをジョークラッシャーで破砕し、4"の大きさに、第2段目もジョークラッシャーで $\frac{3}{4}$ "以下に砕く。第3段目は単式または複式のロールクラッシャーで $\frac{3}{16}$ "以下に粉碎して、流動層燃焼のため空気輸送する。第3段粉碎製品の側を第5.4表に示す。

燃焼(バーン)は流動層2基に直列に供給する2段操作で行う。第1段流動層(第5.3図)は連続

式でそのまわりを強制ガス冷却してあり、燃焼温度を一定にするため酸素の供給を自動調節するほか、燃焼速度を層高圧力差で調節し、燃料の供給速度を一定に保つ。第2段流動層は回分式でそのまわりを電熱加熱し、残留炭素を燃焼する。最終製品は酸化物灰分とSiC被覆粒子である。排出ガスはサイクロン、焼結金属フィルターを通し、冷却、洗滌する。フィルター系で捕集したものは第1段流動層に戻される。第1段操作の結果の例を第5.5表に示す。

粉碎（クラッシュ）－燃焼（バーン）に代る方法として、燃料ブロックをそのまま燃焼する方法（whole block burning）もあるが、燃焼器（バーナー）の開発がまだ済んでいない。

西独では球型またはブロック型の使用済み燃料からU, Th, FPsの三者をThorex法で分離回収することを目的として、JUPITER (Julich Pilot Plant for Thorium Element Reprocessing) 計画を1971年に発足させ、KFA Julichを中心に研究開発を進めている。この計画はAVRの使用済み燃料体を試料として2kg(Th/U)/日の規模のパイロットプラントで再処理プロセスを実証することとなっている。工程を第5.4図に示す。燃焼（バーン）は酸素を用い750－800℃で流動層によることになっており、したがって粉碎も微粉碎が必要で、球状燃料のときはハンマーミルかジョークラッシャーを用いて2.5mm程度とする。ブロック燃料の粉碎には特殊ロール粉碎が研究されている。また、燃焼をシャフト炉で1000℃で行うことも研究されているが、このときの粉碎は粗砕でよい。西独では流動層の方が好ましいと見込んでいるが、シャフト炉と流動層によるAVR使用済み燃料の燃焼も試験されている。すなわち、両装置とも10kg黒鉛/日（0.3kg重金属/日）の容量を有し、600個のAVR燃料(U/Th) C_2 (1:5), max. 50%FIFA) および600個のAVR燃料((U/Th) O_2 (1:5及び1:10), max. 10%FIFA)を処理した。さらに燃焼後、溶解し、Thorex法による抽出を試みている。

3) 分離・精製

粉碎（クラッシュ）－燃焼（バーン）で得られた製品は浸出液で処理して不溶性SiC被覆粒子を除くか、または何らかの方法、たとえば空気分級法で分級される。SiC粒子(^{235}U 補給用粒子)は現時点では一回だけ再使用することになっている。したがって ^{235}U を回収するとすれば、SiCの脱被覆を行う必要がある。このためにはさらにロール粉碎機で粉碎（グランド）して、SiC被覆を破壊する方法が考えられている。

Thを含む液に対してはThと ^{233}U の分離、場合によっては ^{233}Pa の分離も必要になる。この分離精製には第5.6表に示す方法がある。Thorex法の場合にはThorex液(13M HNO_3 , 0.1M $Al(NO_3)_3$, 0.05M HFの混液)で浸出し、遠心分離して得られる液を溶媒抽出する。Acid-Thorex法のフローシートを第5.5図に示す。液はn-ドデカン中のTBPと接触させ、U, Thをまず抽出し、FPや他の硝酸塩を水相中に残す。ついでThとUを分離し、Thを水相中に移す。最後にUを水相中に硝酸塩の形で逆抽出する。溶媒抽出についてはコールドパイロット研究をGACが、またホットセル研究をORNLが行っている。

西独では、被覆粒子がBISO型であるため燃焼後の製品をそのままThorex液に溶解し、ついでTBP抽出を行い、U, Thを別々に回収するAcid-Thorex法溶媒抽出を行う。

また、西独では燃料を破碎、微粉碎した後、900～1000℃で塩素ガスで核物質を揮発性の塩化物に変え、コールドトラップでTh, U, Paを分別凝縮させる方法を研究している。このプロセスは第5.6図に示すようにChlorinex前処理プロセスと呼ばれ、Julich研究所で工学規模での研究が進んでいる。

4) 廃棄物処理

再処理に伴う廃棄物としては、燃料体の燃焼で出てくる廃ガスと溶媒抽出から出てくる廃液とが主なものである。

廃ガスには、 CO_2 、 CO 、 N_2 、 O_2 など炭素の燃焼に係わるガスのほか、 ^{85}Kr 、 ^3H 、 $^{129+131}\text{I}$ 、 ^{14}C 、 ^{220}Rn などの放射性核種が含まれている。米国のNRTSに設置を予定されている再処理施設はFSVRの使用済み燃料を処理し、商用炉用施設建設のためのデータを探ることになっているが、この施設を例に処理について述べる。¹⁷⁾

この施設の処理量は130 kg Th/日(12燃料体/日)であるが、廃ガス生成量は約 $6 \times 10^4 \text{ m}^3/\text{日}$ で、 CO 2.6%、 CO_2 6.5%、 N_2 70%、 O_2 20%、 NO_2 0.1%のガスを含むほか、放射性核種として ^{85}Kr $2.8 \times 10^6 \text{ Ci/年}$ (燃料中の全量が放出されるとする)、 ^3H $1.1 \times 10^5 \text{ Ci/年}$ 、 ^{129}I 5.5 Ci/年 (冷却180日とする)、 ^{131}I 8.7 Ci/年 を含み。排気は放射性物質を除去した後、フィルター系を通し、煙突から放出される。

放射性物質の除去は、今後の開発を必要とするが、現在考えられている方法は次の通りである。

^3H ：酸化銅触媒で酸化物に変え、モレキュラーシーブで捕集する。捕集した ^3H はシーブを加熱して排出し、凝縮後固体の金属水素化物に変えて貯蔵・処分する。プロセスを第5.7図に示す。DFは10～100が期待できる。

$^{129+131}\text{I}$ ：第5.7図に示すように、硝酸蒸気中で分解し、元素状にして加熱、酸化物にして捕集するか、または鉛や銀を添着したゼオライトで吸収する。DFは > 100 が期待できる。

^{85}Kr ：KALC (Krypton Absorption by Liquid Carbon Dioxide) 法による。この方法は第5.8図に示すように、排気を20気圧に圧縮、冷却して CO_2 を液化し、この液体 CO_2 にKrやXeは吸収されやすいが、 O_2 、 N_2 、 CO などはあまり吸収されない性質を利用したものである。吸収されたKrは温度をかえ、さらに濃縮される。この方法によるKrのDFは > 100 、濃縮係数は > 1000 が期待できる。

なお、西独では廃ガス処理としてAKUT (Aerosol, Krypton und Tritium) プロセスが研究されており、Ru、Cs、Ce、Iなどはエロゾルの形であるのでこれを静電的および高性能フィルターで捕集し、 ^{85}Kr ガスは液体 CO_2 に吸収し、水蒸気として存在するトリチウムをモレキュラーシーブで吸着する。除去率はエロゾル 10^7 、Kr 5×10^2 、トリチウム 10^2 程度である。

その他、再処理から出る廃液や固体廃棄物の処理処分については、5.7で述べる。

5.3 再処理の問題点⁸⁾

トリウムサイクル導入という核エネルギー利用戦略上の問題点を別にし、技術的ならびに企業性についての問題点を以下に述べる。

1) 技術的問題点

HTGR用トリウム燃料の再処理はすでに述べたようにThorex法という一応実証済みのUとThの分離方法を利用すること、および、このための燃料の前処理が特異なことに特徴がある。

現在、再処理技術として有力と考えられているものを中心にして、その問題点および代替技術を第5.7表に一覧した。これを通して言えることは、前処理技術が廃ガス処理を含めて未開発であることである。すなわち、現在は実験室規模の研究段階にあり、コールドパイロット試験(GAC)のためのプロセス選定が終ったにすぎず、前処理を含めた再処理技術は、米国で着手予定のコールドパイロ

試験（NRTS）によって1981年を目標に一応の確立がなされる予定である。商用工場の設計はこれらの結果を得てからとなる。

2) 企業化上の問題点

経済的に成立する再処理の需要をいかにして確立するかが問題である。商業規模としてはトリウム1トン/日程度の処理を要するものとみられ、これは発電容量にして約3000万kWとなる。需要の確保はトリウムサイクルの導入、およびその規模に支配される。したがって、導入を前提とすれば、再処理工場としては軽水炉燃料と両用できる多目的工場とするか、パイロットプラントで商用規模になるまで漸定的に処理することを考えねばならぬだろう。もちろん、再処理事業の実施にあたっては、立地問題、法的整備、建設費の調達が必要である。

第5.1表 高温ガス炉用トリウム燃料と低濃縮ウラン燃料の再処理の比較⁸⁾

項目	トリウム燃料	低濃縮ウラン燃料
1. 冷均期間	^{233}Pa 27.4日 \rightarrow ^{233}U } ^{131}I 8.04日 \rightarrow ^{131}Xe } }より決定	^{239}Np 2.35日 \rightarrow ^{239}Pu } ^{131}I 8.04日 \rightarrow ^{131}Xe } }より決定
2. 輸送	キャスク	同 左
3. 貯蔵	水ポンドまたはドライピット	同 左
4. 前処理	^{235}U 補給サイクル方式：破碎・燃焼・篩分・ 粉碎・再燃焼・浸出 その他の方式：破碎・燃焼・粉碎・再燃焼・ 浸出	破碎・燃焼・粉碎・再燃焼・浸出
5. Pa分離	長期間冷却 (> 200日)：不要 短期間冷却：必要	不 要
6. 分離精製	U/Th系：Thorex法 U/Th/Pu系：Thorex/Purex複合法	Purex法
7. 製品	U/ThまたはU/Th/Pu	U/Pu
8. 排出ガス	Kr, I, $^3\text{H}/\text{CO}_2$, N_2 , O_2	同 左
9. 廃棄物	F使用, Th同伴によりLWRの場合と若干組成が異なる	ハルを除きLWRと同じ

第5.2表 高温ガス炉 (GGA社) の使用済み燃料 (1000MWe)^{注)}

<u>燃料要素</u>	
形状	六角形ブロック
寸法	14.17" (360mm) 対面長 × 31.22" (794mm) 長
重量	129.57 kg
燃焼率	67000 MWD/T
<u>冷却日数</u>	
炉サイト	90日以上
再処理工場サイト	120日, 合計210日以上
<u>使用済み燃料</u>	
燃料取換量	炉心の1/4 / 年
燃料要素排出量	938ヶ / 年
カーボン	108,200 kg / 年
トリウム	9,810 "
親物質ウラン (83% U-233)	286 "
親物質粒子中核分裂生成物	384 "
核分裂性ウラン (主にU-234, -236)	140 "
核分裂性粒子中核分裂生成物	392 "

GAMD-8615 (1968) による。

注) NRTSのパイロットプラントで処理されるFSVR燃料の組成は1燃料要素あたり, 黒鉛 104 kg, ^{233}U 0.237 kg, ^{235}U 0.142 kg, Th 10kg, SiC 5kg, F.P.S 0.9kgであり, 1日に12要素が処理される。

第 5.3 表 前処理の単位操作

プロセス	1. 黒鉛の解砕・除去	2. 被覆層除去		3. 燃料物質回収	
		SiC層	PyC層		
単位操作	(1) 機械的解砕 (2) 化学的解砕 (3) 電気化学的解砕 (4) 燃 焼	(1) 機械的解砕 (2) 化学的解砕 (3) 溶触塩溶解	(1) 機械的解砕 (2) 燃 焼 (3) 溶触塩溶解	(1) 浸 出 (2) ふっ素化 (3) 塩素化	
備考	アメリカでの方法	破碎 (クラッシュ) 燃焼 (バーン)	粉 碎 (グラインド)	燃 焼 (バーン)	浸 出 (リーチ)
	西 独 での方法	"	"	"	"

第 5.4 表 燃料ブロックの粉碎製品の篩分結果例⁶⁾
(複式ロールギャップ0.057インチの場合)

篩 寸 法 (メッシュ)	3.5	4	7	14	18	35	60	120	-120	
積分重量率 (%)	1.96	4.93	28.24	55.98	64.64	77.82	85.40	91.31	8.69	100

第 5.5 表 第 1 段流動層燃焼の操作例⁶⁾

直 径 (cm)	10
燃焼速度 (g/cm ² ・hr)	32
空塔速度 (cm/sec)	64
流動層寸法 (g/cm ²)	52
流動層温度 (°C)	1015
酸素入口濃度 (%)	87
微粉同伴速度 (g/g燃焼)	1.04
排出ガス濃度 (%)	O ₂ : 0, CO : 4.5, CO ₂ : 83
最終製品 直 径 (μ)	600
炭素量 (%)	6.3
破損粒子 (%)	3.2

第 5.6 表 トリウム燃料の分離精製法

	U 回 収	U/Th 分離回収
²³³ Pa 共存 (<~200目)	KFA-TBP 23/25 ¹⁾	Thorex ²⁾ Acid Thorex ³⁾
²³³ Pa の共存なし (>~200目)	Interim Uranium-233 ²⁾ Hexone-Uranium-233 ²⁾	Thorex ²⁾ Acid Thorex ³⁾

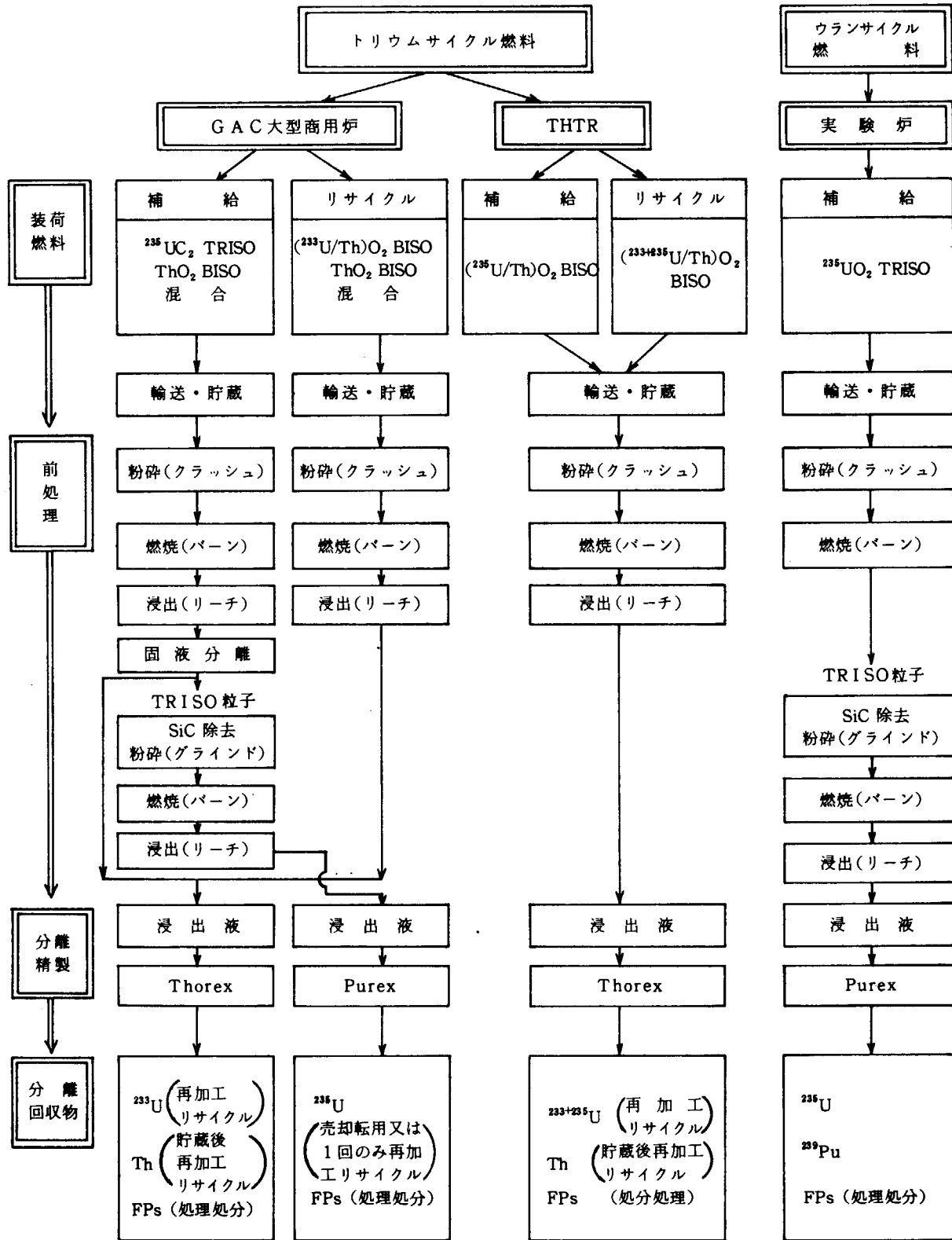
1) Proceedings of Panel on Reprocessing of Highly Irradiated Fuels, Vienna, IAEA(1969).

2) Reactor Handbook, vol. II, Fuel Reprocessing, pp. 209.

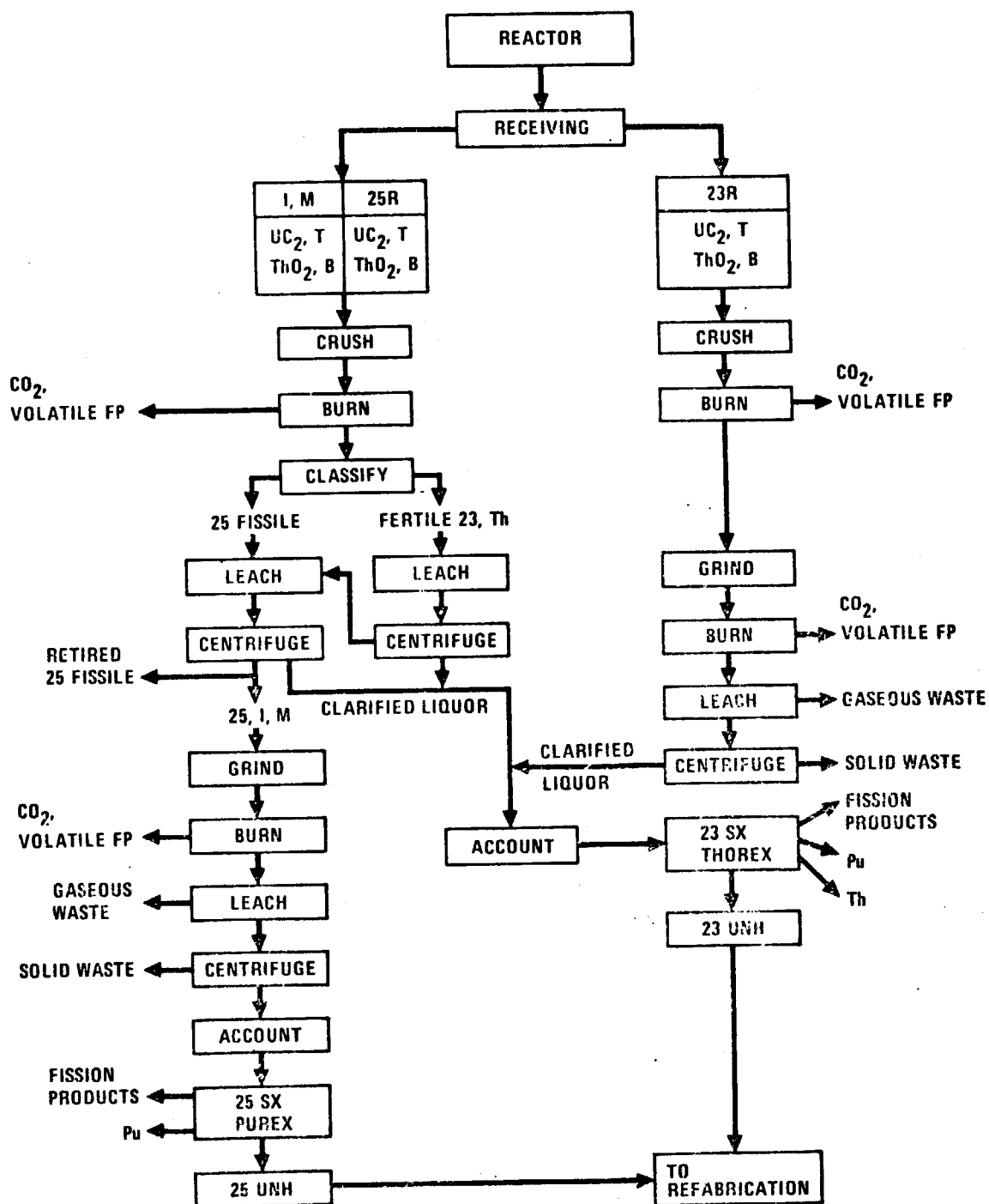
3) ORNL - 3155 (1962).

第 5.7 表 HTGR 燃料再処理技術と再加工技術

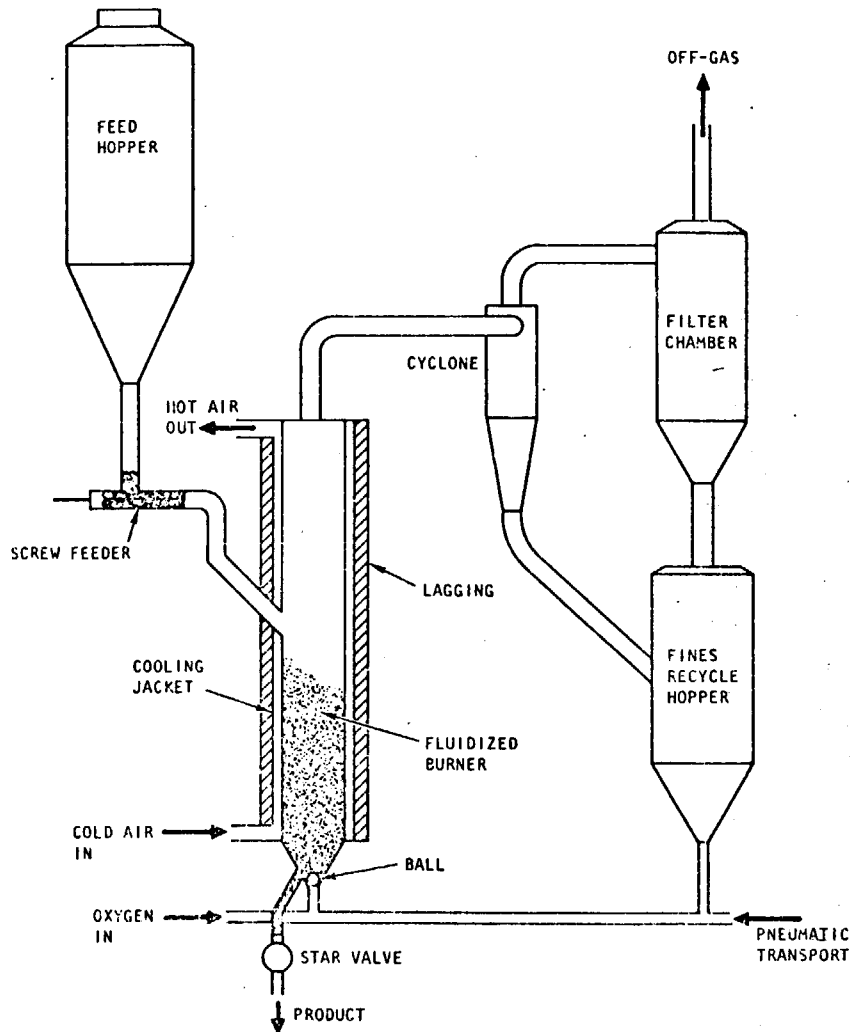
軽水炉燃料再処理との比較		HTGR 燃料再処理と再加工の技術		代 替 技 術
使用済み燃料	特 徴	現 時 点 での 有 力 技 術	同 左 に対 する 問 題 点	
再 加 工	1. 被覆粒子と大量黒鉛 2. 高燃焼度 3. FPI 収率 4. ²³³ U 1. ²³³ Pa 1. 複雑程度 2. 低溶解度	1. トラック、貨車輸送 2. 水中貯蔵 粉 碎 (クラッシュ) 3 段階砕 (ジョークラッシュ) - 2 段, ロールミル 1 段) 燃 焼 (バーン) 2 段流動層 (第 1 段: 連続, 第 2 段: 回分式) 粉 碎 (グラインド) 浸 出 (リーチ) TRISO 粒子分離 廃ガス処理 給液調整 抽 出 高レベル廃液 その他廃棄物	特 に な し ロールミル機種未選定, TRISO 粒子破損防止要, 遠隔操作ホット試験実証要, 微粉体輸送法確立要, TRISO 粒子破損防止要, 遠隔操作ホット試験実証要 機種未選定 破損 TRISO からの ²³⁵ U の ²³³ U への混入 遠隔操作ホット試験実証要 空気分級方式開発要 遠隔操作ホット試験実証要 KALC 法 AKUT 法 (西独) 硝酸除去 (Acid-Thorex 法 用) パルスカラム ミキサセトラー (西独) 仮焼固化・貯蔵 仮焼固化・貯蔵 ツルゲル法 (CUSP 法) に よる (Th/U)O ₂ 製造, 補給 用 ThO ₂ は別施設で造る TURF プラントでは TRISO 被覆 スラグインジェクションによる 棒製造 - 黒鉛ブロック内焼 成 KFA 試験法による (Th/U) O ₂ 製造 検 討 中 燃料体形式未決定につき未着 手	1. 燃料体一括燃焼法研究中 (トンネル炉) 2. 燃焼採取法研究中 (酸 化, 機械的, その他) 3. 燃料体一括酸化解砕法研 究中 (湿式, 膨潤) 新粉砕法 (ミ リンダカッタ ー) 研究中 相碎 - シヤフ ト炉方式研究 中 ジェット粒砕研究中 粉砕 - 塩素化法研究中 (Chlorinex 法) KALC 法: CO ₂ 処理について CO ₂ 固化, K ₂ CO ₃ 吸収, CO ₂ 蒸溜など研究中 1. Th/U 比を高めて補給用 Th も同時製造 (経済性悪し) 2. (Th/U)O ₂ でなく UO ₂ のみとし, 処理 量を増大する。 3. イオン交換樹脂法による製造 1. BISO 被覆とする スラグインジェクションによる棒製造 - アル ミナ充填層内焼成 - 黒鉛ブロック内表荷
再 加 工	1. 酸欠乏液, 低濃度 Pa 分離 2. 大量高レベル廃液 (U の約 3 倍) 1. TURF バイロットプラントによる再加 工技術の実証試験 2. 再加工程の代替 (1) 燃料リサイクルしない (2) TURF 計画再検討 (3) 再加工程の代替 (右欄参照) (4) バイロットプラントを ORNL 以外の 場所に設置する	1. トラック、貨車輸送 2. 水中貯蔵 粉 碎 (クラッシュ) 3 段階砕 (ジョークラッシュ) - 2 段, ロールミル 1 段) 燃 焼 (バーン) 2 段流動層 (第 1 段: 連続, 第 2 段: 回分式) 粉 碎 (グラインド) 浸 出 (リーチ) TRISO 粒子分離 廃ガス処理 給液調整 抽 出 高レベル廃液 その他廃棄物	特 に な し ロールミル機種未選定, TRISO 粒子破損防止要, 遠隔操作ホット試験実証要, 微粉体輸送法確立要, TRISO 粒子破損防止要, 遠隔操作ホット試験実証要 機種未選定 破損 TRISO からの ²³⁵ U の ²³³ U への混入 遠隔操作ホット試験実証要 空気分級方式開発要 遠隔操作ホット試験実証要 KALC 法 AKUT 法 (西独) 硝酸除去 (Acid-Thorex 法 用) パルスカラム ミキサセトラー (西独) 仮焼固化・貯蔵 仮焼固化・貯蔵 ツルゲル法 (CUSP 法) に よる (Th/U)O ₂ 製造, 補給 用 ThO ₂ は別施設で造る TURF プラントでは TRISO 被覆 スラグインジェクションによる 棒製造 - 黒鉛ブロック内焼 成 KFA 試験法による (Th/U) O ₂ 製造 検 討 中 燃料体形式未決定につき未着 手	1. 燃料体一括燃焼法研究中 (トンネル炉) 2. 燃焼採取法研究中 (酸 化, 機械的, その他) 3. 燃料体一括酸化解砕法研 究中 (湿式, 膨潤) 新粉砕法 (ミ リンダカッタ ー) 研究中 相碎 - シヤフ ト炉方式研究 中 ジェット粒砕研究中 粉砕 - 塩素化法研究中 (Chlorinex 法) KALC 法: CO ₂ 処理について CO ₂ 固化, K ₂ CO ₃ 吸収, CO ₂ 蒸溜など研究中 1. Th/U 比を高めて補給用 Th も同時製造 (経済性悪し) 2. (Th/U)O ₂ でなく UO ₂ のみとし, 処理 量を増大する。 3. イオン交換樹脂法による製造 1. BISO 被覆とする スラグインジェクションによる棒製造 - アル ミナ充填層内焼成 - 黒鉛ブロック内表荷
工	1. SATURN 計画パイロットプラントに よる再加工程の実証試験	1. トラック、貨車輸送 2. 水中貯蔵 粉 碎 (クラッシュ) 3 段階砕 (ジョークラッシュ) - 2 段, ロールミル 1 段) 燃 焼 (バーン) 2 段流動層 (第 1 段: 連続, 第 2 段: 回分式) 粉 碎 (グラインド) 浸 出 (リーチ) TRISO 粒子分離 廃ガス処理 給液調整 抽 出 高レベル廃液 その他廃棄物	特 に な し ロールミル機種未選定, TRISO 粒子破損防止要, 遠隔操作ホット試験実証要, 微粉体輸送法確立要, TRISO 粒子破損防止要, 遠隔操作ホット試験実証要 機種未選定 破損 TRISO からの ²³⁵ U の ²³³ U への混入 遠隔操作ホット試験実証要 空気分級方式開発要 遠隔操作ホット試験実証要 KALC 法 AKUT 法 (西独) 硝酸除去 (Acid-Thorex 法 用) パルスカラム ミキサセトラー (西独) 仮焼固化・貯蔵 仮焼固化・貯蔵 ツルゲル法 (CUSP 法) に よる (Th/U)O ₂ 製造, 補給 用 ThO ₂ は別施設で造る TURF プラントでは TRISO 被覆 スラグインジェクションによる 棒製造 - 黒鉛ブロック内焼 成 KFA 試験法による (Th/U) O ₂ 製造 検 討 中 燃料体形式未決定につき未着 手	1. 燃料体一括燃焼法研究中 (トンネル炉) 2. 燃焼採取法研究中 (酸 化, 機械的, その他) 3. 燃料体一括酸化解砕法研 究中 (湿式, 膨潤) 新粉砕法 (ミ リンダカッタ ー) 研究中 相碎 - シヤフ ト炉方式研究 中 ジェット粒砕研究中 粉砕 - 塩素化法研究中 (Chlorinex 法) KALC 法: CO ₂ 処理について CO ₂ 固化, K ₂ CO ₃ 吸収, CO ₂ 蒸溜など研究中 1. Th/U 比を高めて補給用 Th も同時製造 (経済性悪し) 2. (Th/U)O ₂ でなく UO ₂ のみとし, 処理 量を増大する。 3. イオン交換樹脂法による製造 1. BISO 被覆とする スラグインジェクションによる棒製造 - アル ミナ充填層内焼成 - 黒鉛ブロック内表荷



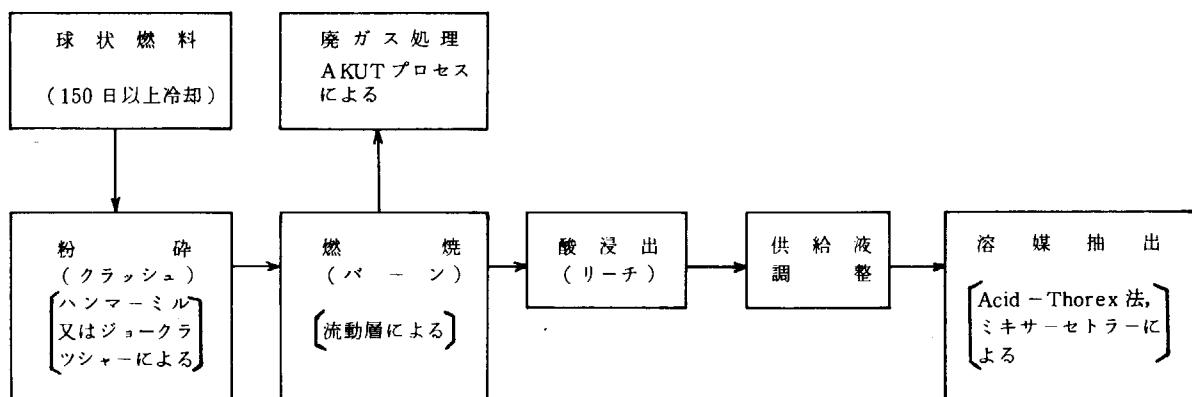
第 5.1 図 高温ガス炉燃料の再処理系統図



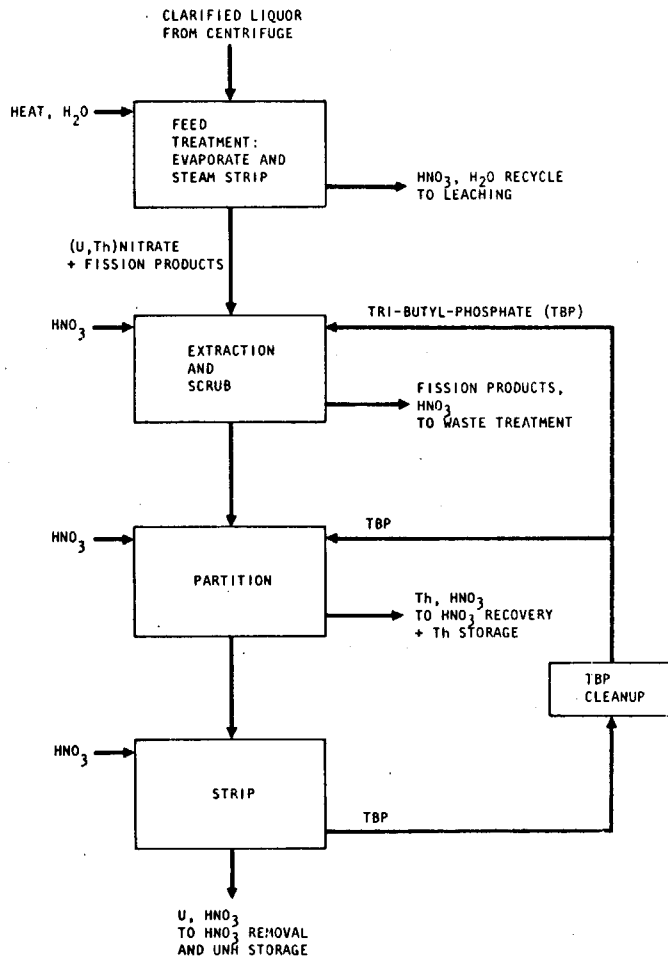
第 5.2 図 粉碎 (フラッシュ) - 燃焼 (バーン) - 浸出 (リーチ) プロセスフローシート¹⁷⁾
 (GAC コールドパイロットプラント用, FSVR 燃料)



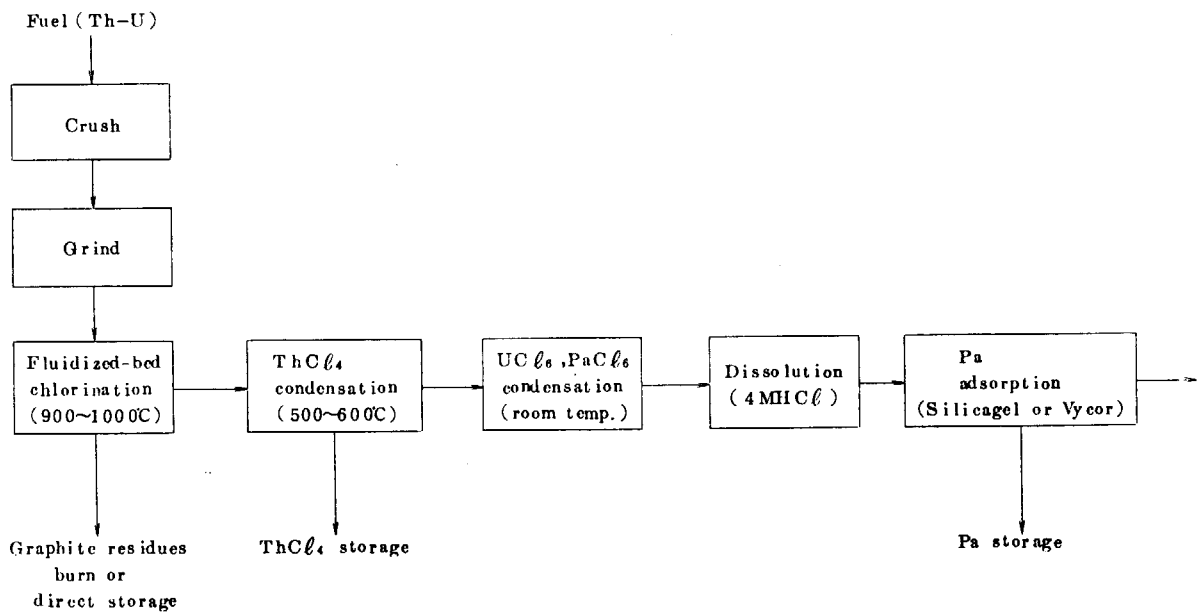
第 5.3 図 第 1 段流動層燃焼器¹⁷⁾



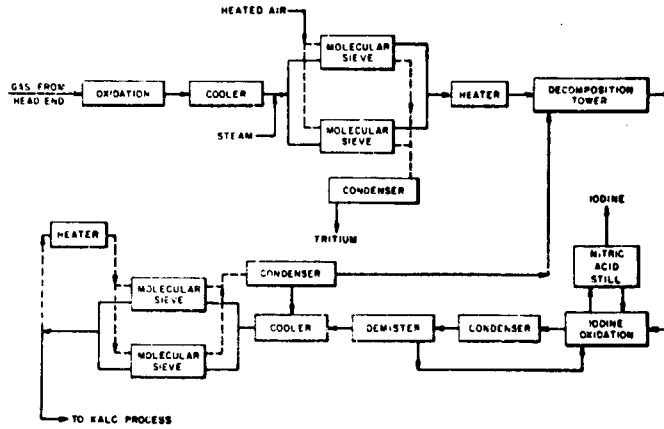
第 5.4 図 JUPITER 計画の再処理プロセス^{7), 16)}



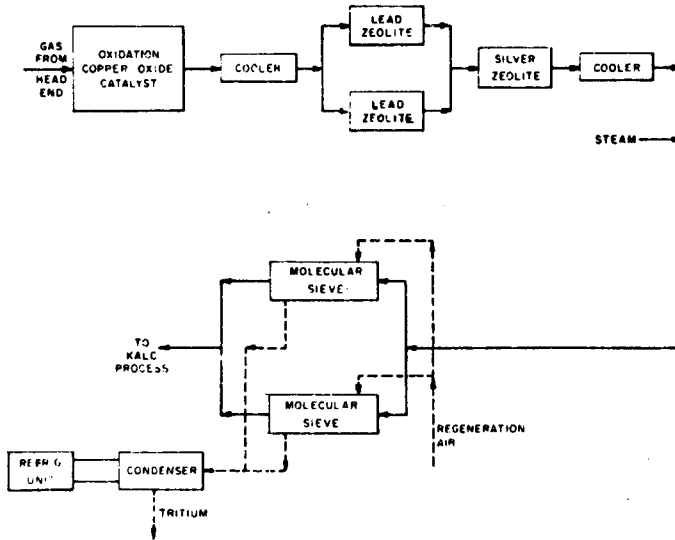
第 5.5 図 Acid-Thorex 法による溶媒抽出フロー¹⁷⁾



第 5.6 図 クロリネックス前処理プロセス (西独, KFA)

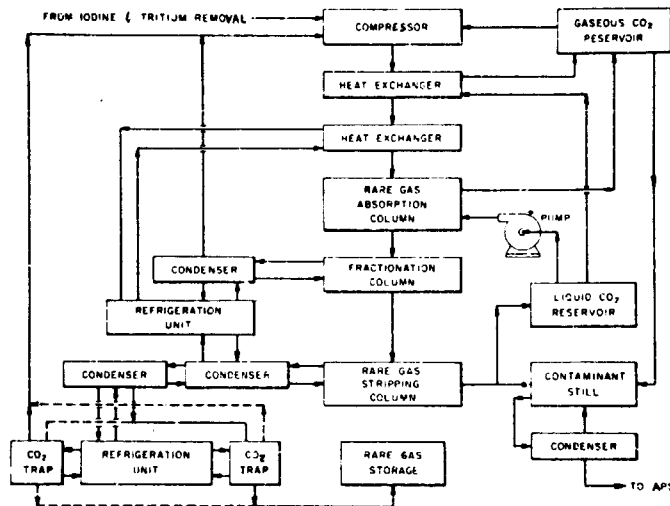


(1) 有カプロセス



(2) 代替プロセス

第 5.7 図 ^3H および $^{129, 131}\text{I}$ の除去プロセス¹⁷⁾



第 5.8 図 KALC プロセス¹⁷⁾

6. 被覆粒子燃料の再加工

6.1 再加工技術の特殊性

再加工は溶媒抽出で分離・精製した ^{233}U や ^{235}U を再び被覆粒子にし、燃料体にまで組立てる工程である。 ^{235}U については軽水炉の場合に準じて行われるが、 ^{233}U の場合はやや事情が異なる。Thから ^{233}U が生成した場合には、溶媒抽出によってUとThを分離し、各々を精製しても、U中には ^{232}U が含まれ、これが第2.6図に示したように半減期74年で壊変し、その放射能は第6.1表に示したように時間とともに増大する。またTh中にも ^{228}Th が含まれ、半減期1.91年で壊変する。

^{233}U 中には平衡リサイクル時におよそ500ppmの ^{232}U が含まれ(第6.2表)、この娘核の ^{212}Bi や ^{208}Tl が放出する高エネルギー γ 線のために、 ^{233}U の再加工時には遮蔽が必要となる。ORNLで行った ThO_2 -3% $^{233}\text{UO}_2$ の半遠隔加工と遠隔加工の試験結果によれば、 ^{232}U が数ppm以上含まれる場合には遠隔加工を必要とする。HTGR燃料の時は500ppmにも達し得るので当然、遮蔽が必要で遠隔加工となる。したがって、再加工工程は基本的には5.3で述べたのと同一であるが、技術的には遠隔化を行わねばならない。

回収したThは含まれている ^{228}Th の放射能を減衰させ、天然Thと同じ放射能レベルにするため15年間貯蔵されることになっている。

6.2 再加工技術の現状

1) 米国の場合^{5,6,8,18)}

米国においては再加工技術の開発はORNLで行われており、現在あるホットセル施設TURF (Thorium-Uranium Fuel Cycle Development Facility) 内にパイロットプラントを造り、HTGR燃料の再加工技術を実証しようとしている。TURF建屋は幅約124ft、長さ約162ftの3階建て、コンクリートセル6個を有する。設置するパイロットプラントの規模は約25kg(Th+U)/日(燃料体2.5個/日相当)で、1978年から2年間にわたって燃料体をおよそ200個処理する。総費用は1973年見積りで1000万ドル(30億円)である。

再加工プロセスの概要は以下の通りである。溶媒抽出で得られた ^{233}U の2モル硝酸溶液にTh:核分裂性U=4.2:1になるように硝酸Thを混合し、ついでゾルーゲル法によってゲル粒子に転換する。この粒子を乾燥、焼成してから、PyC被覆を行う。被覆粒子はさらに別途造られた親物質 ThO_2 の被覆粒子と混合してから、燃料棒に成形され、黒鉛ブロックに入れてリサイクル燃料体を造る。

ゾルーゲル法により燃料微小球を造る技術はORNLで開発されたCUSP法によることになっており、これでゾルを造り、ついでゲル化することになっている。すなわち、再加工プラントにおいては、回収された ^{233}U の硝酸塩とThの硝酸塩とを混合したものを第2.2図に示したゾルーゲルプロセスに供給する。この硝酸塩はn-パラフィンで希釈した2級アミンで硝酸イオンを抽出し、ゾルに変えられる(CUSP法)。抽出は2段で行い、硝酸イオンは第1段で約半分抽出され、ついで高温で熟成してから残りを第2段で抽出する。この酸化物のゾルを液滴化し、これと向流に流れるアルコール(2エチル-1-ヘキサノール, 2EH)によって脱水し、ゲル粒子に変える。ゲル粒子は乾燥、焼成、篩分を経て、酸化物核が出来上る。この核に対し、寸法、形状、UとThの含量、密度、不純物量を検査する。

検査済みの (U/Th)O₂ 核に緩衝層PyCと高密度 PyCのBISO 被覆を行い、リサイクル用核分裂性被覆粒子ができる。被覆層の厚みと寸法の検査をしてから、別途に造られた ThO₂ BISO 粒子と金型内で混合し、黒鉛粉末とピッチの粘性混合物を注入し、冷却して外径5/8インチ、長さ2インチの未焼成燃料棒を造る。この棒を金型から取出し、直径、長さ、核分裂性物質の分布の均一性を検査する。

未焼成棒を黒鉛ブロックの燃料孔に15本ずつ入れ、黒鉛端栓をしてセメント付けする。このブロックを不活性雰囲気中で約1800℃で加熱、焼成し、ピッチを炭化する。この際、照射による棒のスウェリングが黒鉛ブロック燃料孔壁に応力を及ぼさないように棒と孔壁のギャップを調節する。この燃料体は検査の後、再加工燃料貯蔵庫に貯蔵される。

第5.7表に上記の技術を一覧し、これに対する代替技術も示されている。再加工はセル内で遠隔操作で行うので、処理量ができるだけ少ないことや工程が簡略かつ遠隔化しやすいことなどが必要である。したがってTURF計画においても、セル内に設置する機器やプロセスには上に述べたのとは変更されることもあり得ると考えられる。

2) 西独の場合^{7,16)}

西独ではトリウム燃料の再加工技術開発のため、約2kg (Th/U)O₂/日の処理量を有するパイロットプラントを造り、1978年運開を目指したSATURN (Semitechnische Anlage zur Th/U Refabrikation) 計画を推進し、JUPITERで再処理した燃料の再加工を試みることになっている。現在では、本計画を進めるための炉外試験としてまず燃料核製造研究を進めている。核製造はKFAの沈殿法による予定である。この方法では、第6.1図に示すように、UやThの酸化物ゾルをノズルからわずかにNH₃を含むケトン溶媒中に落下させて液滴を造り、ついでNH₄OH相を通してゲル化する。このゲル粒子を水洗、乾燥して焼成して酸化物核を造る。被覆については文献調査のかたわら、炉外のモデル実験を行っている段階である。被覆粒子からあとの燃料体再組立てについては、西独での燃料体概念の最終決定をまって進められる予定である。

6.3 再加工の問題点

再加工の技術開発はすでに述べたように米国では遠隔操作化を目指したコールド試験の段階にあり、ORNLにあるホットセルTURFによって再加工技術のホットパイロット試験を行い、技術実証する計画である。しかし、第5.7表に示したように、この再加工計画に対しては燃料リサイクルをしない場合、本計画の再検討、技術的代替、ORNL以外の場所にプラントを設置する、などの政策的な代替も含めて検討されているようである。

再加工はセル内で遠隔操作で作業せねばならない。したがって経済的にはセル内での処理量をできるだけ少なくすること、工程を簡便かつ遠隔化しやすいようにすることが要求される。このため代替技術として核に対しては²³³UO₂のみ造る、イオン交換樹脂法で造るなどが、また被覆BISOに限るとか燃料スティックを黒鉛ブロックと一緒になく、単独に焼成するなどが考えられる。したがって、コールド試験の結果を勘案しつつTURF計画が進められよう。

再加工を企業性からみれば、再処理の場合とやや事情を異にし、再加工設備はHTGRリサイクル用の被覆粒子燃料しか製造できず、他の型の炉の燃料には転用できない宿命をもつ。他の炉、たとえば軽水炉へのリサイクルを行うとすれば内装設備を更新しなければならない。したがって、再加工を行うには相当数のHTGRの稼動が前提となる。

第 6.1 表 ^{232}U を含む ^{233}U の放射能の増大

1. 500 ppm の ^{232}U を含む ^{233}U 1 kg

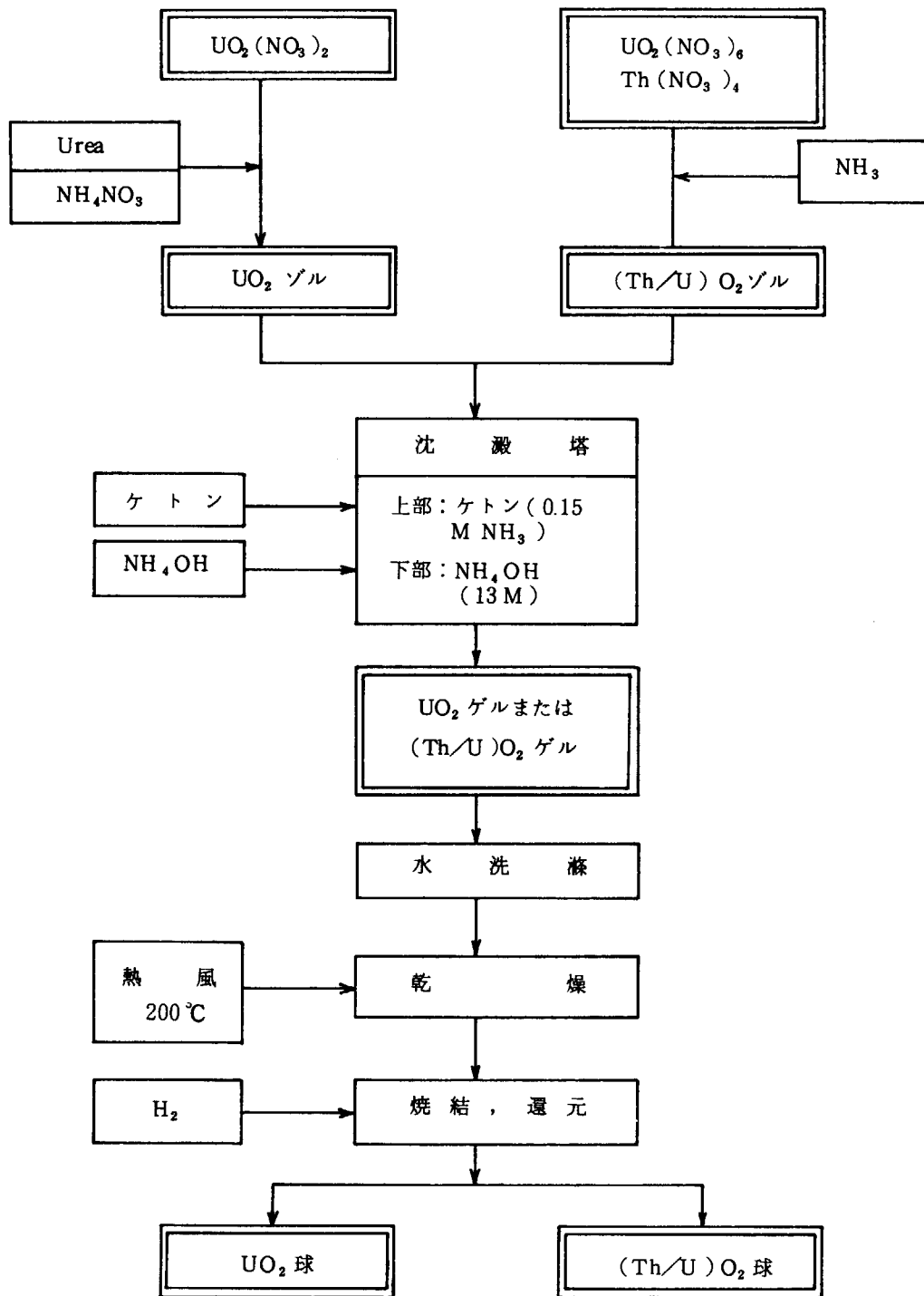
分離精製後の日数 (日)	1 m 位置の線量率 (mR/h)
1	0.3
3	4
10	45
30	210
100	770
300	2200

2. 156 ppm の ^{232}U を含む ^{233}U (5% UO_2 in ThO_2 , 20,000 MWD/T)

分離製精後の日数 (日)	天然Thに対する線量率比 (-)
1	3.9×10^{-4}
3	0.3
7	1.8
15	7.0
30	17.5
90	60.0

第 6.2 表 ^{238}U 1 g 中の放射能

同位体	平衡時原子比	平衡時放射能	
		(Ci/g)	百分率(%)
^{232}U	0.001	2.14×10^{-2}	74.49
^{233}U	0.613	5.82×10^{-3}	20.26
^{234}U	0.243	1.51×10^{-3}	5.25
^{235}U	0.080	1.72×10^{-7}	0.006
^{238}U	0.060	3.99×10^{-6}	0.014
合計	1.000	2.873×10^{-2}	100



第 6.1 図 西独KFAでの燃料核再加工プロセス⁷⁾
(KFA Precipitation Process)

7. 被覆粒子燃料の再処理・再加工の将来計画

7.1 再処理^{5-8,15-17)}

米国では1970年から始められたNational HTGR Fuel Recycle Development Program Plan にもとづいて燃料サイクルの研究開発を進めている。この計画は第7.1表に示すように1970年に着手し、1985年までに、(1)燃料再処理技術の開発、(2)再加工技術の開発、(3)リサイクル燃料の照射試験、(4)燃料リサイクルシステム分析、(5)商用工場設計・建設、を行うことになっている。そのための資金として1983年までに研究開発費7,250万ドル、建設費(商用工場を除く)4,000万ドル、計11,250万ドル(1970年見込み額)を予定している。再処理技術の開発については、ORNLがプロセス開発試験、GACがコールドパイロット試験、NRTSのICPPがホットパイロット実証試験を担当し、再加工技術は主にORNLで開発されることになっている。米国で燃料サイクル開発に関連する施設の概要を第7.2表に示している。時期的には1983年までに技術開発を終え、1985年から商用工場(大型炉50基、5,000万kWe相当)の運開が計画されていることになる。技術的には5.3で述べたように現在では未開発の状態であり、有力技術とみなされるものでもなお問題を含んでいる。この技術開発をFSVR燃料を使ったホットパイロット試験(130kg Th/日処理)を含めて1983年までに解決しようとしている。

西独では、第7.1図に示すようにKFAにあるJUPITER計画(2kg Th/日処理)により再処理プロセスの実証試験を1976年から行い、1982年からはKFKのWAK計画(50t Th/年処理、500万kWe相当)で再処理技術の実証試験を行う計画である。

イタリアではCNENにトリウム-ウラン燃料の再処理実証用にパイロットプラントITREC(PCUTとも呼ばれる)(15kg(Th+U)/日)を造り、試験を進めているようである。

以上、各国の再処理関連施設を第7.3表に一覧した。HTGR燃料の再処理に関しては、今日、その技術開発、とくに前処理のそれに重点が置かれている段階であり、実証試験が終るまでにはさらに6年以上かかるものと思われる。大型商用炉(100万kWe)から出る使用済み燃料は、一基あたり約10トンTh/年であるので、米国が計画している商用再処理工場(500トンTh/年)は電気出力にして、5,000万kW(大型炉50基分)にあたる。一方、NRTSのICPPホットパイロットプラント(0.13トンTh/日)は電気出力にしておよそ400万kW(大型炉4基)分にあたる。商用工場の運開は技術的にみて10年後以降になるのはもちろん、需要の確保の点からは、特に最近の米国におけるHTR情勢を考えると、さらに遅れるものと思われる。したがって、再処理に関しては、当面は技術開発に重点を置いて進め、まずその解決を計り、ついで、商用規模の需要が確保できるまではパイロットプラントで漸定的に再処理を行うことになるものと思われる。また商用規模の再処理の実施についてはHTR燃料専用工場によるか、あるいは軽水炉燃料と両用できる多目的工場によるかの基本的な政策が今後検討されるものと思われる。

7.2 再加工

米国では第7.1表に示した燃料リサイクル開発計画に沿って、再加工技術の開発をORNLが担当することになっている。TURF内にホットパイロットプラント(25kg(U+Th)/日)を造り、1979年から約2年運転して、NRTSのホットパイロットプラントで再処理されたFSVR燃料の再加工を試みる。このための経費は1973年見積りで1000万ドル(30億円)である。しかしその後の経費の上昇や環

境安全性問題などで計画が見直されているようである。

西独では第 7.1 図に示したようにSATURN計画を推進し、ホットプラント (2kg (U+Th)/日) を造り、1980年から約2年運転して、ホットパイロットプラントJUPITERで再処理されたAVR燃料の再加工を試みることになっている。燃料体を球状とするか、ブロック状とするかについては、将来の西独でのHTGR燃料体概念の最終決定をまって決められる予定である。

第 7.1 表 米国における高温ガス炉燃料リサイクル開発計画の日程⁵⁾

Fiscal Year	1970	1971	1972	1973	1974	1975	1976	1977	1978	1979	1980	1981	1982	1983	1984	1985
FUEL REPROCESSING DEVELOPMENT																
Process Development and Reprocessing Pilot Plant Design																
Reprocessing Pilot Plant Equipment Fabrication, Installation, and Cold Operational Testing																
Reprocessing Pilot Plant Hot Demonstration																
REFABRICATION DEVELOPMENT																
Process Development and Refabrication Pilot Plant Design																
Refabrication Pilot Plant Equipment Fabrication, Installation, and Cold Operational Testing																
Refabrication Pilot Plant Hot Demonstration																
RECYCLE FUEL IRRADIATIONS AND EXAMINATIONS																
Capsule Irradiation Tests and Peach Bottom Irradiation Tests																
Large - Scale Recycle Element Tests																
Refabricated Fuel Irradiation Tests																
FUEL RECYCLE SYSTEMS ANALYSES																
Engineering and Economic Studies																
Commercial Plant Conceptual Design																
Safety and Environmental Impact Studies																
COMMERCIAL RECYCLE FACILITIES																
Design and Construction - Spent Fuel Storage Facility																
Design and Construction - Fuel Recycle Plant																
Calendar Year	1970	1971	1972	1973	1974	1975	1976	1977	1978	1979	1980	1981	1982	1983	1984	1985

第7.2表 アメリカに現存し、あるいは計画されている高温ガス炉燃料サイクル施設

Name	Function	Location	Startup	Capacity
1. Pilot fuel fabrication facility	Made all Peach Bottom 1 and Fort St. Vrain fuel	Sorrento Valley area at G.A. La	1961	Now equivalent of 2,100-Mwe -- unit cores per year; pilot line for # 4
2. Temporary fuel storage facility	Holding Peach Bottom 1 first core	NRTS, Idaho	1970	1 core
3. Irradiated fuel storage facility	Hold P. B. 1 second core and Fort St. Vrain fuel until # 6 completed	NRTS, Idaho	Apr.' 74	2,560 fuel blocks *
4. HTGR Fuel Fabrication Plant	Produce reload fuel for Fort St. Vrain and fuel for all newer HTGR's	Youngsville, N. C. (20 mi. north of Raleigh)	1978	6 large cores/year, expandable
5. Developmental headend reprocessing line	Test head -end systems for # 6	G.A. La Jolla	1973	pilot -plant scale
6. Reprocessing pilot plant	Demonstrate processes to be used in # 8	NRTS, Idaho	1979	pilot -plant scale
7. Refabrication pilot plant	Demonstrate processes to be used in # 8 for hot refabrication of recycled U-233	TUFCDF, ORNL	1979	pilot -plant scale
8. Reprocessing plant	Reprocess and refabricate HTGR fuel	Site under study, probably in central Mississippi basin area	Jan.' 85	Reprocess 50,000/yr. graphite hex blocks, fabricate 20,000/yr. recycled - fuel hex blocks†

* For comparison, Fort St. Vrain core comprises 1,482 blocks

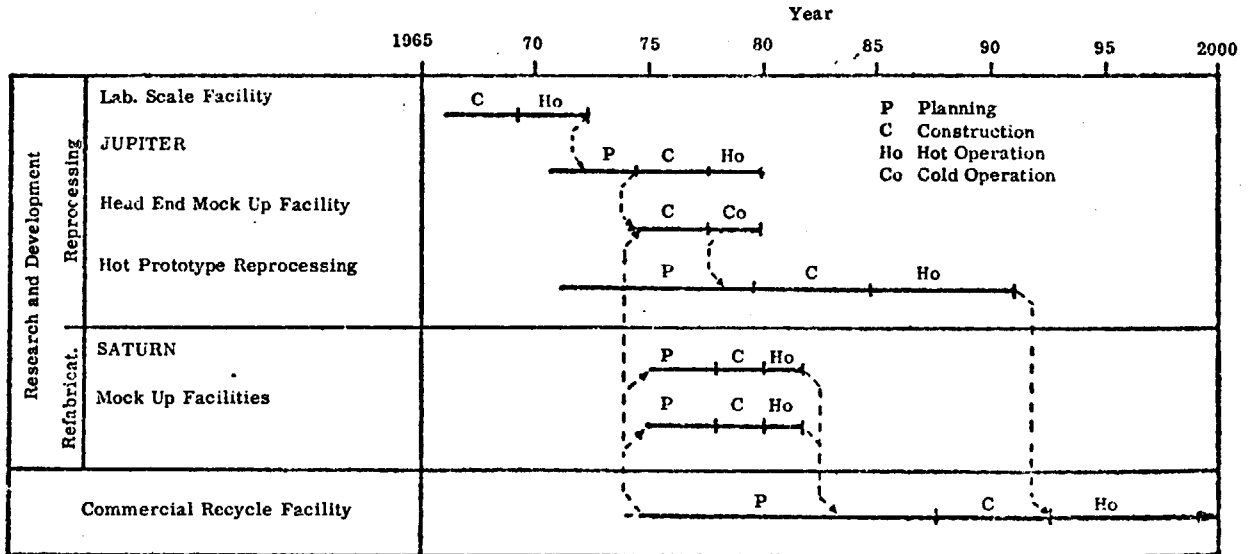
† Meet annual needs of 50 large HTGR's

NUCLEAR INDUSTRY

June, 1974

第 7.3 表 運転または計画中の再処理施設⁸⁾

施設名	国名	所有者	運 開	目 的	能 力	処 理 方 式	備 考
ITREC (Rotondella)	伊	CNEN	1971 (竣工)	Th-Uサイクル 燃料の再処理実証用	15kg/d ThO ₂ +UO ₂	トップ・リーチ -Thorex	遠隔再加工 工場が附設
JUPITER	西独	KFA	1976	AVRの再処理研究開 発用	2kg/d Th	バーン・リーチ -KFA/TBP-23/25	
WAK	西独	KFK	1982 (計画)	HTGR 再処理実証用	~50t/y	バーン・リーチ Thorex	5000 MWe相当
NRTS	米	AEC	1979 (計画)	FSVR・大型HTGR 再処理実証用	130kg/d Th	バーン・リーチ Thorex	4000~6000 MWe 相当
商業工場	米	GGA	1985 (計画)	HTGRの再処理	~500tTh/y	バーン・リーチ Thorex	50,000 MWe (大型炉50基)相当



第 7.1 図 西独における HTGR 燃料サイクル計画のスケジュール¹⁶⁾

8. 被覆粒子燃料再処理施設の環境安全

8.1 廃棄物の発生と特徴

再処理による廃棄物の発生源は第 8.1 図に示すように、大別して 1) 廃ガス②, 2) 固形廃棄物④, 3) 高レベル FP 廃液⑤, 4) α 廃液⑥および溶媒洗滌廃液⑦, の 4 種類となる。使用済み燃料 1 トンあたり生成するこれらの廃棄物の量と組成を第 8.1 表に、また放射能を第 8.2 表に、LWR と比較して示している。HTGR では高レベル廃液⑤は燃料 1 トンあたり約 6.6m^3 生成するが、Thorex 抽出するので $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ や F を含み、蒸発による減容比も小さく濃縮して 3.8m^3 となるにすぎない。一方 LWR では約 5.2m^3 生じて濃縮して 1.25m^3 となり、廃液量は HTGR の $\frac{1}{3}$ である。固形廃棄物④は LWR では被覆管として、HTGR では浸出残渣やリサイクル ^{235}U 粒子 (TRISO) として、それぞれ、発生するが、重量は前者で 228kg で後者の約 4 倍である。 α 廃液⑥は HTGR の場合 7.5m^3 で LWR と HTGR とほぼ同じである。廃ガス②については定量的な比較はできないが、HTGR の場合には CO_2 , CO などを含むので LWR に比較して、その処理が大変なことはいうまでもない。

HTGR 燃料①中に含まれる FP のうち、重量百分率で約 74% が高レベル廃液⑤に、約 16% が廃ガス②に、約 10% が固形廃棄物中に移行する。LWR の場合、高レベル廃液⑤に約 81%, 廃ガス②に約 18%, 固形廃棄物中に約 0.6% が移行する。HTGR の場合には高レベル廃液が LWR より少なくなった分が固形廃棄物に移行していることになる。

8.2 廃棄物の処分

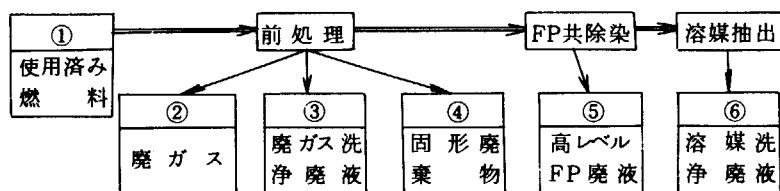
廃液は蒸気濃縮後、仮焼固化して、また、固形廃棄物は LWR の場合、被覆管を圧縮減容、HTGR の場合はそのまま永久貯蔵される。これらの処理に伴う廃棄物の量を第 8.3 表に比較している。LWR と HTGR を比較した場合、高レベル廃液の固化後の量が HTGR の場合の燃料 1 トンあたり 65t で LWR の約 3 倍であること、 α 廃液の固化後の量が LWR より圧倒的に大きいことが特徴的で、固形廃棄物や溶媒洗浄廃液は大差ない。これら固化物の環境への安全は LWR の場合に準じて確保される。

廃ガスは HTGR 燃料の前処理時に発生するものが殆んどである。放射性核種としては希ガス、ヨウ素、トリチウム、 ^{14}C が問題となるがその生成量を第 8.4 表に一覧した。HTGR の場合、燃焼度が高いので生成量が LWR より多いことは当然であるが、それ以外に ^3H の生成量が LWR より 4~5 倍大きいことと ^{14}C の生成が顕著に大きいことが特徴的である。これらのガス核種などの処理法についてはすでに 5.2 で述べた。この処理を行ったとして環境へ放出される量について、FSVR 燃料の燃焼時の計算例を第 8.5 表に示す。この計算は NRTS のホットパイロット試験の安全解析で行われたもので、計算によれば許容量を満たす値となっている。

HTGR 全体についての廃棄物の発生量に関し、判明分を第 8.6 表に一覧した。採鉱、精錬時の末回収核燃料物質の放射能を第 8.7 表に示したが、U と Th とでは差はない。原子炉からは放射化物が主である β - γ 廃棄物がでるが、LWR と HTGR では大差ないようである。再加工時には Pu を扱う場合と Th を扱う場合とで、 α 廃棄物や β - γ 廃棄物の発生量は Pu や ^{233}U の処理量あたりについてみると大差ないが、処理量は燃料 1 ton あたり LWR のとき 10kg Pu で、HTGR で 37kg ^{233}U であるので、HTGR の方が量的には約 4 倍大きいと思われる。

放射性物質の環境への放出に対してはALAP精神の適用を受けるので、施設からの放出の低減化対策は一段ときびしくなる。特に再処理施設についてはその必要度が大きく、高レベル廃液の処理・処分をはじめ、施設から出る気体、液体、固体廃棄物の放出低減化が特に大きくクローズアップされよう。そしてそのため、なお残されている技術の開発、とくにHTGRの場合にはKr, Xe の捕集・貯蔵、¹⁴C の環境効果、³H の固定・貯蔵などを含めて、その開発が急がれる。

第 8.1 表 再処理から出る廃棄物についてのPWRとHTGRの比較



		①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	
		使用済み燃料	廃ガス	廃ガス洗浄廃液	固形廃棄物	高レベルFP廃液	α廃液	溶媒洗浄廃液	
P W R (カッコ内は%)	容 積 (ℓ)			(38)	228	5175 (1250)	3015 (57)	873 (114)	
	重 量 kg	U	986 (100)				0.993 (0.10)	0.0010 (0.0001)	0.298 (0.03)
		Pu	96 (100)			0.0094 (0.098)	0.0010 (0.01)	0.0091 (0.095)	0.00087 (0.009)
		FPs	320 (100)	5.62 (17.6)		0.02 (0.6)	263 (81.3)		
		アクチノイド	553 (100)				553 (100)		
		被覆管	271 (100)			270 (100)			
		その他			Na 7.22				Na 18.1
		容 積 (ℓ)		48×10 ⁸		52	6610 (3800)	7552 (95)	853 (95)
H T G R (カッコ内は%)	重 量 kg	Th	840 (100)			0.5 (0.06)	0.875 (0.10)	0.837 (0.10)	1.81 (0.21)
		²³³ U	37.2 (100)			0.02 (0.054)	0.016 (0.043)	0.039 (0.105)	0.0817 (0.15)
		²³⁵ U	188 (100)			7.52 (4.0)	0.022 (0.117)	0.020 (0.106)	
		Pu	1.7 (100)			0.5 (29.4)	1.06 (62.3)	0.097 (5.7)	0.0017 (0.1)
		FPs	989 (100)	16.2 (16.4)		10.0 (10.1)	73.0 (73.5)	301	
		アクチノイド	22 (100)			0.7 (32)	1.45 (66)		
		C	11.726 (100)	11.684 (99.85)		17.3 (0.15)			
		SiC	45.3 (100)			45.3 (100)			
		その他	1.62			3.2	1.00 (Al 6.7I) (F 1.85)	Na 5.55	Na 11.8

注) 1. 核燃物質 1 トンあたりの数字。PWR は 33,000 MWD/T, 150 日冷却
HTGR は 94,270 MWD/T, 180 日冷却
2. 容積 (ℓ) は再処理工程から排出されたもので、カッコ内は蒸発濃縮後。
HTGR 廃ガス量は NRTS のパイロットプラントの設計値から推算。

第 8.2 表 使用済み燃料と再処理廃棄物の放射能

		PWR	HTGR
電気出力 (MWe)		1000	1160
燃 焼 度 (MWD/T)		33000	94270
燃料中の重量と放射能 (炉装荷燃料1トンあたり、 160日冷却後)	軽 元 素 (kg)	271	8020
	(Ci)	2.62×10^4	3.43×10^3
	FPs (kg)	34.9	98.9
	(Ci)	4.19×10^6	9.18×10^6
	アクチノイド (kg)	965	902
	(Ci)	1.26×10^6	1.07×10^6
再処理高レベル廃棄物の 重量と放射能 (炉装荷燃 料1トンあたり、再処理 直後)	FPs (kg)	28.8	81.0
	(Ci)	4.18×10^6	4.49×10^6
	アクチノイド (kg)	5.48	15.9
	(Ci)	2.02×10^4	3.74×10^4

- 注) 1) 軽元素は被覆管, 黒鉛, SiCのほか放射化生成物を含む。
 2) アクチノイドはU, Th, Puなどの全同位体を含む
 3) HTGRの高レベル廃棄物中のアクチノイド重量15.9kgは第8.1表から推算しても約3倍大きい
 が、いずれも文献19)によったものである。

第 8.3 表 再処理から出る液体, 固体廃棄物の量のPWRとHTGRの比較

炉 型	処 理	項 目	高レベルFP 廃 液	α 廃 液	溶 媒 洗 浄 廃 液	廃 ガス 洗 浄 廃 液	被 覆 管	前 処 理 浸 出 残 渣	廃 液 合 計
PWR	再処理工程 (濃縮後)	容 積(m ³)	1.25	0.057	0.114	0.038	0.0572	-	1.46
		主 成 分	FP, Fe, Cr, Ni	Fe	Na	Na	Zrly. SUS	-	
	仮焼固化後	重 量(kg)	40.4	0.031	79.6	31.6	270	-	152
		容 積(L)	20.0	0.01	30.8	12.7	57.2	-	50.8
		主 成 分	FP, Fe, Cr, Ni	Fe	Na	Na	Zrly. SUS	-	
HTGR	再処理工程 (濃縮後)	容 積(m ³)	3.8	0.095	0.095	*	-	0.052	3.98
		主 成 分	FP, Al, Fe	Na	Na		-	SiC, C	
	仮焼固化後	重 量(kg)	226	39.5	53.5	*	-	85.1	480
		容 積(L)	65	13.7	20.4		-	52	156
		主 成 分	FP, Na, Al, Fe, Cr, Ni, B	Na	Na		-	SiC, C	

注) 核燃物質1トンあたりの数字, PWRは33,000 MWD/T, HTGRは94,270 MWD/T.

* 未調査

第 8.4 表 廃ガスに関連する放射性核種の生成量

種 類	項 目		PWR	HTGR
希 ガ ス	生成量 (kg/t 燃料)		5.37	16.2
	再処理時主要核種		⁸⁵ Kr (10.8 y)	⁸⁵ Kr (10.8 y)
	環境放出率 %	再処理	貯蔵後 99 (回収すれば減少)	
炉		1		
ヨ ウ 素	生成量	(g/MWD)	0.01	0.01
		(kg/t 燃料)	0.33	0.98
	再処理時主要核種		¹³¹ I, ¹²⁹ I	¹³¹ I, ¹²⁹ I
	環境放出率 %	再処理	0.01	
炉				
トリチウム (³ H)	生成量	核分裂	(Ci/MWD)	0.02~0.03
			(Ci/t 燃料)	600~900
		その他 (Ci/t 燃料)	1000 MWe 炉で 380 Ci/y 排水	1,300 (0.12g/t 燃料) 2,960
		合計 (Ci/t 燃料)	600~900	4,260
	環境放出率 %	再処理		
炉		1000 MWe 炉で 380 Ci/y 排水		
¹⁴ C	生成量 (Ci/t 燃料)			38.6
	環境放出率 %	再処理		
		炉		

第8.5表 FSVR燃料中の主な核種と燃焼（バーン）時の環境への放出¹⁷⁾

主な核種		放射能* (Ci/要素)	燃焼時の環境への放出速度(Ci/日)**	
			Fertile 粒子	Fissile 粒子
重 元 素	²²⁰ Rn	1	10	10
	²²² Rn	2×10^{-6}	3×10^{-5}	3×10^{-5}
	²²⁸ Th	0.3	1×10^{-12}	1×10^{-12}
	²³² Th	0.1	1×10^{-15}	1×10^{-15}
	²³³ Pa	3000	4×10^{-9}	3×10^{-9}
	²³⁴ Pa	0.1	2×10^{-16}	2×10^{-16}
	²³² U	2	3×10^{-12}	2×10^{-12}
	²³³ U	2	3×10^{-12}	2×10^{-12}
	²³⁴ U	0.3	3×10^{-13}	4×10^{-13}
	²³⁸ Pu	100	—	4×10^{-10}
	²⁴¹ Pu	50	—	2×10^{-10}
	²⁴² Cm	20	—	5×10^{-11}
²⁴⁴ Cm	6	—	5×10^{-11}	
F P な ど	³ H	20	100	200
	¹⁴ C	1	4	3×10^{-2}
	⁸⁵ Kr	600	5000	8000
	⁸⁹ Sr	2000	2×10^{-9}	2×10^{-9}
	⁹⁰ Sr	3000	2×10^{-9}	5×10^{-9}
	⁹⁰ Y	3000	2×10^{-9}	5×10^{-9}
	⁹¹ Y	2000	2×10^{-9}	3×10^{-9}
	⁹⁵ Zr	3000	3×10^{-9}	4×10^{-9}
	⁹⁵ Nb	6000	6×10^{-9}	8×10^{-9}
	¹²⁹ I	1×10^{-3}	6×10^{-23}	9×10^{-3}
	¹³¹ I	2×10^{-3}	1×10^{-2}	1×10^{-2}
	^{131m} Xe	6×10^{-3}	7×10^{-2}	8×10^{-2}
	¹³⁷ Cs	3000	2×10^{-9}	6×10^{-9}
	^{137m} Ba	3000	2×10^{-9}	5×10^{-9}
	¹⁴⁴ Ce	1×10^4	1×10^{-8}	2×10^{-8}
¹⁴⁴ Pr	1×10^4	1×10^{-8}	2×10^{-8}	
¹⁴⁷ Pm	6000	9×10^{-10}	2×10^{-9}	

* 6年照射，180日冷却， $\sim 10^5$ MWD/T

** 6年照射，180日冷却， $\sim 10^5$ MWD/T，燃焼2段分

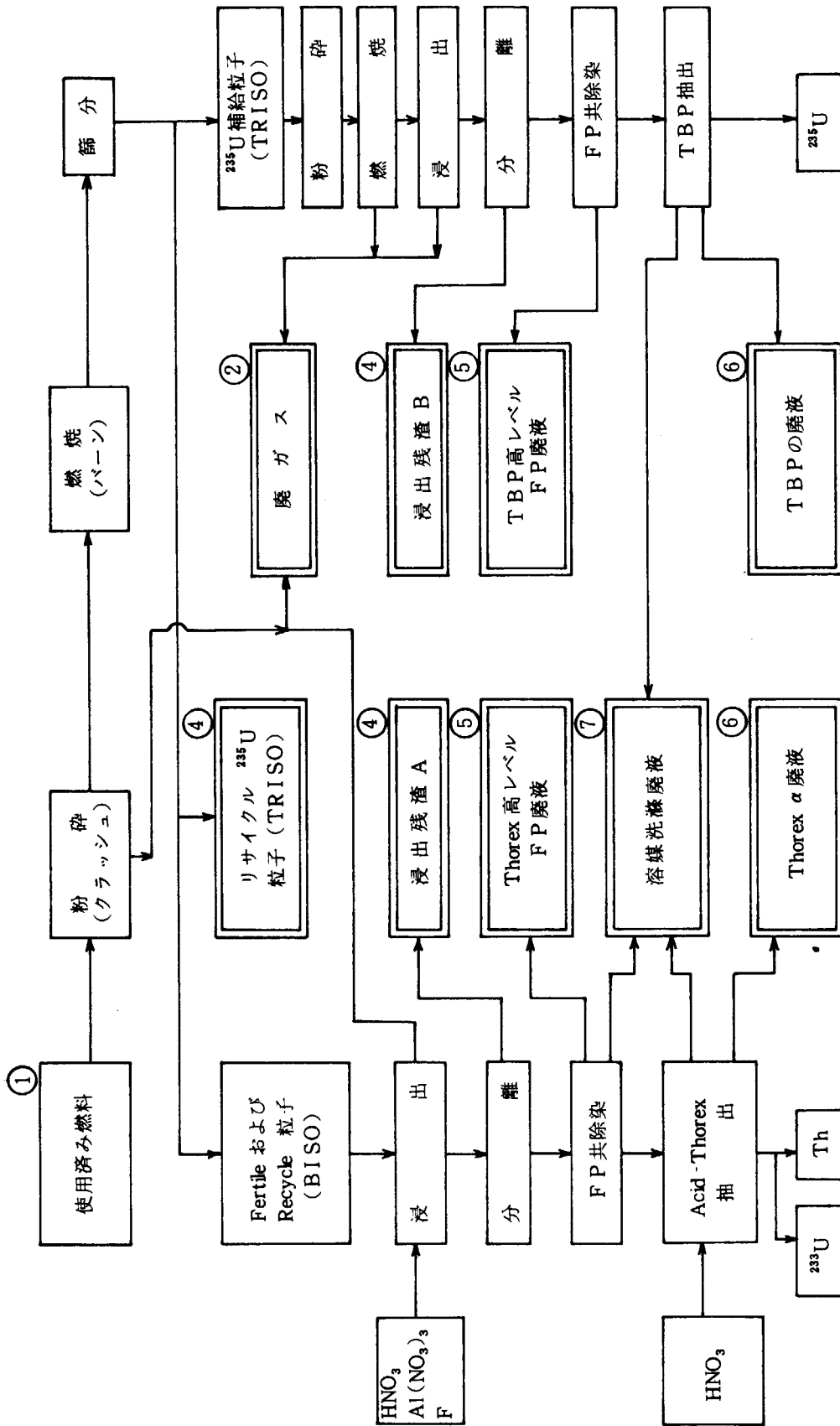
第 8.6 表 PWR と HTGR から出る廃棄物量の比較

	P W R				H T G R							
	採 精 錬	製 造	炉	再処理	再加工	合 計	採 精 錬	製 造	炉	再処理	再加工	合 計
高レベルFP 廃棄物				固化後 40.4 kg 20 L (燃料 1 トンあたり)						固化後 226 kg 65 L (燃料 1 トンあたり)		
被 覆 材				270 kg 57.2 L (燃料 1 トンあたり)						85.1 kg 52 L (燃料 1 トンあたり)		
α 固体廃棄物 ($>10\mu\text{Ci}/\text{kg}$, $<10\text{mrem}/\text{h}$)				108 m ³ / ton Pu, 9.3 g α / m ³	810 m ³ / ton Pu, 9.3 g α / m ³					108 m ³ / ton ²³⁵ U, 9.3 g α / m ³	810 m ³ / ton ²³⁵ U, 9.3 g α / m ³	
α - β - γ 固体 廃棄物 ($>10\mu\text{Ci}/\text{kg}$, 10~1000 mrem/h)				270 m ³ / ton Pu, 0.093 g α / m ³						270 m ³ / ton ²³⁵ U, 0.093 g α / m ³		
β - γ 固体 廃棄物				108 m ³ / y, 37 Ci/ m, (1000 MWe)	3240 m ³ / ton Pu, Pu, 0.037 Ci/m ³					108 m ³ / y, 37 Ci/ m (1000 MWe)	430 m ³ / ton ²³⁵ U, 0.037 Ci /m ³	
低レベル固 体廃棄物	5.5 m ³ /kg U ₃ O ₈ 回収, 0.4 Ci/m ³											

第 8.7 表 採鉱精錬時の未回収核燃料物質の放射能¹⁹⁾

元素	鉱石 (0.2% U, Th) から 95% 回収した場合の残渣の有する放射能 (Ci/ton 鉱石)	
	U 鉱石 処理	Th 鉱石 処理
Tl	0.0152	0.0394
Pb	0.677	0.109
Bi	0.677	0.109
Po	1.01	0.109
Rn	0.346	0.109
Fr	0.0002	-
Ra	0.346	0.219
Ac	0.0153	0.109
Th	0.692	0.0109
Pa	0.347	-
U	0.0338	-
計	4.15	0.816

- 注) 1. 廃棄物はすべて最終処分用に固化したもので比較。ただし発生量の表現単位は項目により異なるので注意。
 2. 空欄は未調査
 3. PWR について α を含む場合は PWR に Pu を補給した場合の値である。



第 8.1 図 HTGR 燃料の再処理に伴う廃棄物の発生源 (○内数字は第 8.1 表と共通)

9. お わ り に

本報告ではトリウム燃料のリサイクル技術の全体が判るようにできるだけ幅広く採り上げ、現状問題点が明らかになるよう努めたつもりである。調査と検討がなお不足していることは承知しているが、この資料がリサイクル技術全般の把握に役立てば幸いである。再処理の項目については東海研究所燃料工学部再処理研究室長辻野毅氏に有益な助言を賜ったので謝意を表したい。

引 用 文 献

- 1) Godfrey, T.G., et al. : ORNL -4324 (1968)
- 2) Simnad, M.T. : "Fuel Element Experience in Nuclear Power Reactors" p.99 (1971), Gordon & Breach Sci. Publ., N.Y.
- 3) Iwamoto, K. : J. At. Energy Soc. Japan, **15** 69 (1973), Nenryo-Kyokai-Shi, **53** 223 (1974)
- 4) Gulden, T.D., et al. : CONF-740501, p.176 (1974)
- 5) ORNL & GGA : ORNL-4702 (1971)
- 6) Brooks, L.H., et al. : CONF-740501, p.257 (1974)
- 7) Merz, E.R., et al. : CONF-740501, p.268 (1974)
- 8) Murata, H., et al. : JAERI-M 6002 (1974)
- 9) Bernett, L.L. : CONF-740501, p.128 (1974)
- 10) Balthesen, E., et al. : CONF-740501, p.201 (1974)
- 11) Finnley, B.C., et al. : ORNL-4802 (1972)
- 12) Nickel, H., et al. : Kerntechnik **17** 205 (1975)
- 13) Graham, L.W., et al. : CONF-740501, p.218 (1974)
- 14) Engle, G.B., et al. : CONF-740501, p.288 (1974)
- 15) Brooks, L.H. : GA-A 12853 (1974)
- 16) Tillessen, U., et al. : Trans. ANS **20** 636 (1975)
- 17) NRTS : WASH-1534 (1974)
- 18) ORNL : WASH-1533 (Final) (1974)
- 19) Blomeke, J.O., et al. : ORNL-TM-3965 (1974)
- 20) Dahlberg, R.C., et al. : Nucl. Engng & Design **26** 58 (1974)