ハイブリッド再処理システムに関する調査

(調査報告書)

2001年6月

核燃料サイクル開発機構 大洗工学センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49 核燃料サイクル開発機構 技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Technical Cooperation Section,

Technology Management Division,

Japan Nuclear Cycle Development Institute

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184

Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute) 2001

ハイブリッド再処理システムに関する調査

(調査報告書)

井上 明* 西村 友宏* 田中 博* 河村 文雄**

要旨

FBR サイクル実用化戦略調査研究の一環として、これまで各種の先進的核燃料サイクルシステムの開発が進められてきた。本調査では、開発されたこれらの先進的再処理システムを組み合わせたハイブリッド再処理システムについて調査と評価を実施した。

ハイブリッド再処理システムの事例調査に関しては、フッ化物揮発法と湿式再処理法の組み合わせ、フッ化物揮発法とフッ化物溶融塩抽出法および長寿命核種変換炉を組み合わせた燃料サイクルシステム、および、湿式再処理工程の前後に乾式再処理の技術を適用した例をとりあげ、これらについて、対象システムの内容を調査し、その特徴を評価した。

ハイブリッド再処理システムの提示と評価に関しては、乾式再処理システムとしてフッ化物揮発法、溶融塩抽出法(酸化物電解法など)をとりあげ、主としてこれらと湿式再処理システムとを組み合わせたシステムを提示した。提示したシステムについては、成立性、MA、FP 分離回収方法、核拡散抵抗性および固有安全性を検討し、経済性、燃料精製度および廃棄物発生量の元のシステムとの比較評価を行った。

^{*} 大洗工学センター システム技術開発部 再処理システム Gr

^{**}株式会社 日立製作所 原子力事業部 (現在)

Investigation on Hybrid Recycle System

Akira Inoue*, Tomohiro Nishimura*, Hiroshi Tanaka*. Fumio Kawamura**

Abstract

Several kinds of advanced fuel cycle systems have been developed as a link in the strategy investigation study to put FBR Cycle to practical use. In this study, survey and evaluation have been carried out on the hybrid fuel reprocessing systems in which developed fuel reprocessing systems are combined.

For the survey of hybrid fuel reprocessing systems, three systems were surveyed such as combination system with fluoride volatility and wet reprocessing method, fuel cycle system in which fluoride volatility method, molten fluoride salt extraction method and long life nuclide transmuter are combined, and an application of dry reprocessing technology before and/or after wet reprocessing process. Contents of the systems are investigated and evaluation was made on peculiarities of the systems.

As for the proposal and evaluation of the hybrid fuel reprocessing systems, fluoride volatility method, molten salt extraction method (oxide electrowinning method etc.) were combined with wet reprocessing method etc. to propose hybrid fuel reprocessing systems. For proposed hybrid system, system validity, MA/FP recovery method, nuclear proliferation resistance and system safety were investigated and comparison were made to the original systems from the standpoint of cost, produced fuel purity and amount of the waste.

^{*} Reprocessing System Engineering Group, System Engineering Technology Division, O-ARI Engineering Center,

^{**} Nuclear System Division, Hitachi Ltd. (present)

目 次

1. 緒言	1
2. 実施計画	2
2.1 実施目的	2
2.2 実施内容	2
3. ハイブリッド再処理システムの事例調査	3
3.1 調査方法	3
3.2 調査結果	5
3.2.1 抽出結果	5
3.2.2 抽出文献の検討	7
3.3 調査結果のまとめ	11
4. ハイブリッド再処理システムの提示と評価	12
4.1 2 種類の方式の組み合わせ	12
4.1.1 フッ化物揮発法と湿式法の結合	12
4.1.2 酸化物電解法と湿式法の結合	13
4.1.3 フッ化物揮発法と溶融塩抽出法の結合	14
4.2 3 種類の方法の組み合わせ	14
4.3 ANL 型の金属電解法と他方法のハイブリッド	15
4.4 各方式におけるハイブリッド効果	15
5. 金属および窒化物燃料への適用性	35
5.1 金属燃料	35
5.2 室化物燃料	35
6. 湿式プロセスにおける MA 分離への乾式技術の採用	37
6.1 金属抽出法	37
6.2 フッ化物溶融塩洗浄法	37
7. 結言	38
8. 謝辞	40
9. 参考文献	40
10. 記号・略号の説明	40

表目次

表 4-1	各方式のハイブリット	[:] による特徴的効果	 34
表 5-1	金属燃料への適用性		 36

図目次

図 4-1	方式 1	 17
図 4-2	方式 2	 18
図 4-3	方式3	 19
図 4-4	方式 4	 20
図 4-5	方式 5	 21
図 4-6	方式 6	 22
図 4-7	方式 7	 23
図 4-8	方式8	 24
図 4-9	方式 9	 25
図 4-10	方式 10	 26
図 4-11	方式 11	 27
図 4-12	方式 12	 28
図 4-13	方式 13	 29
図 4-14	方式 14	 30
図 4-15	方式 15	 31
図 4-16	方式 16	 32
図 4-17	方式 17	 33

1. 緒言

FBR の真価は、炉と燃料サイクル技術の整合がとれた開発がなされて初めて発揮される。これまで FBR サイクル実用化戦略調査研究の一環として、炉心燃料形態とも整合し、安全性および経済性向上などが期待できる技術を選定することを目的に、先進的核燃料サイクル技術の開発が進められてきた。先進的核燃料サイクル技術として、乾式リサイクル(酸化物電解法、金属電解法、フッ化物揮発法)および湿式リサイクル技術 (PUREX 最適化システム、代替/補完システム)が検討されている。

本調査では、再処理システムを対象に諸外国および国内での事例を調査し、これまで開発が進められている各種の湿式再処理システム、乾式再処理システムを組み合わせたハイブリッド再処理システムの可能性について評価、検討を行った。

2. 実施計画

2.1 実施目的

本調査では、再処理システムを対象に、これまで核燃料サイクル開発機構(以下「サイクル機構」)などで開発が進められている各種の湿式再処理システム、乾式再処理システムを組み合わせたハイブリッド再処理システムの可能性について評価、検討を行うため、諸外国および国内での事例を調査し、ハイブリッド再処理システムの利害得失などについて評価を行う。

2.2 実施内容

これまでサイクル機構他で開発が進められている各種の湿式再処理システム、乾式 再処理システムを組み合わせたハイブリッド再処理システムの可能性について評価、 検討を行うため、以下の項目を実施した。

(1) ハイブリッド再処理システムの事例調査

これまでに諸外国ならびに国内において、構想、計画もしくは試みられたハイブリッド再処理システムに関する調査を行い、整理した。

調査内容としては、対象システムの内容、特徴などとした。

(2) ハイブリッド再処理システムの提示と評価

上記調査内容ならびに、現在、FBRサイクル実用化戦略調査研究などで調査検討が進められている各種の湿式再処理システム、乾式再処理システムを組み合わせた複数のハイブリッド再処理システムの提示とその比較評価を行った。

また、ハイブリッド再処理システムの検討にあたっては、燃料製造との適合性についても検討した。対象燃料としては、主にMOX燃料としたが、金属燃料、窒化物燃料を対象とする場合の変更点についても検討した。

システムの比較評価項目として、技術的成立性の概略見通し、安全性、経済性の見通し、資源有効利用性、環境負荷低減性、核拡散抵抗性、運転・保守・補修性、などとした。

3. ハイブリッド再処理システムの事例調査

3.1 調査方法

原子力分野においてこれまでに諸外国ならびに国内において、構想、計画もしくは 試みられたハイブリッド再処理システムに関し、以下の4種類の方法により調査を行 い、整理した。

(1)原子力文献データベース(NUCLEN)検索

本調査の対象は原子力の分野に限定したものであり、先ず、原子力分野における科学技術に関する文献データベース NUCLEN により、関連文献を検索した。

NUCLEN は、科学技術振興事業団(JST: Japan Science and Technology Corporation)によって提供されている、世界の原子力やエネルギー関係の文献に日本語の要約を付けて分かり易くしたデータベースであり、2001 年 1 月 17 日現在の収録データベース件数は、519,826 件である。

検索キーワードは、「再処理 and 乾式 and 湿式」とし、検索データベースによって提供された和文要約の検討を行い、ハイブリッド再処理システムに関連する文献を抽出した。

(2) JST オンライン情報システム (JOIS) 検索

原子力文献データベース NUCLEN は原子力分野にデータベースの範囲を限定された文献データベースであり、原子力分野以外に分類された科学技術文献が無い事を確認するため、科学技術全般に関する文献や研究テーマ情報などの検索が可能な JST オンライン情報システム (JOIS) により、関連文献を検索した。

JST オンライン情報索システム (JOIS: JST Online Information System)は、過去、日本科学技術情報センター (JICST: The Japan Information Center of Science and Technology)が運営管理していた JICST 科学技術文献検索データベースが、1996 年 10 月の同センターと新技術事業団の統合によって新規設立された科学技術振興事業団 (JST)に引き継がれ、検索システムがオンライン化されたものである。収録文献データベース件数は、8,000 万件を越す。

JOIS 文献検索システムのデータベースは、発行年数が 1975 年から 1980 年までのものと、1981 年から現在までの 2 種類に分けられており、両方のデータベースから検索を実施した。

また、JOIS 文献検索システムでは、科学技術全般、医学・薬学、化学、新聞、その他の専門分野、雑誌名および練習用のデータベースが提供されており、このうち、科学技術全般のデータベースから検索を実施した。

検索キーワードは、上記と同様、「再処理 and 乾式 and 湿式」とし、検索データベースによって提供された和文要約の検討を行い、ハイブリッド再処理シス

テムに関連する文献を抽出した。

(3)検索によって抽出された文献からの調査

上記 2 種類の文献検索システムによって検索された文献から抽出した関連文献について、さらに抽出された文献の引用文献を調査し、ハイブリッド再処理システムに関連する文献を抽出した。

(4) 最近の核燃料サイクル関連の国際学会における発表論文の調査

文献検索システムによる調査に加え、最新の動向を調査する目的で、過去 1 年内に開催された核燃料サイクル関連の国際学会における発表論文を調査し、ハイブリッド再処理システムに関連する文献を抽出した。

調査対象とした核燃料サイクル関連の国際学会は次の通りである。

- · Global '99: Jackson Hole, WY USA (Aug., 1999)
- · ICONE8: Baltimore, MD USA (Apr. 2-6, 2000,)
- · ATALANTE 2000 : Avignon, France (24-26 Oct., 2000)

抽出された文献については、引用文献を調査し、ハイブリッド再処理システム に関連する文献を調査した。

3.2 調査結果

3.2.1 抽出結果

ハイブリッド再処理システムに関連する以下の文献を抽出した。抽出した文献については、次節 3.2.2 において分類した。

(1)原子力文献データベース(NUCLEN)検索

原子力文献データベース(NUCLEN)の検索によって得られた文献の要旨を検討し、ハイブリッド再処理システムに関連する文献として、次の文献1件を抽出した。

常磐井守泰(電中研)、「核燃料サイクルバックエンドを支えるアクチノイド元素の基礎化学 IV. 乾式再処理と乾式分離」、日本原子力学会誌、Vol.34、No.7、Page.617-624(1992)

(2) JST オンライン情報システム (JOIS) 検索

JST オンライン情報システム (JOIS)の検索によって得られた文献において、 NUCLEN 検索結果に含まれない文献の要旨を検討し、ハイブリッド再処理シス テムに関連する文献として、次の文献1件を抽出した。

过野 毅(原研)、「乾式手法の湿式再処理工程への適用」、日本原子力学会誌、 Vol.18、No.4、Page.202-207 (1976)

(3)検索によって抽出された文献からの調査

上記 2 種類の文献検索結果から抽出した関連文献の中から、さらに抽出された 上記 2 件の文献の引用文献を調査し、ハイブリッド再処理システムに関連する文献として、次の文献 1 件を抽出した。

GE Report, "Midwest Fuel Recovery Plant Technical Study Report", GE Report: NP-20106, GE Corp. (1974)

(4) 最近の核燃料サイクル関連の国際学会における発表論文の調査

過去 1 年内に開催された核燃料サイクル関連の国際学会における発表論文およびその関連文献を調査し、ハイブリッド再処理システムに関連する文献として、次の文献7件を抽出した。

- C. D. Bowman, "Accelerator Transmutation of Waste Using Thermal Neutrons: High-burn-up and Weapon-material Elimination without Recycling", Global '99 (1999)
- P. N. Alekseev, et al., "Concept of the Cascade Subcritical Molten Salt Reactor (CSMSR) for Harmonization of the Nuclear Fuel Cycle", Global '99 (1999)
- F. Lemort, et al., "Application of Pyrochemistry of Nuclear Waste Reprocessing", Global '99 (1999)
- J. Uhlir, et al., "Development of fluoride reprocessing technology for molten salt transmutation reactor systems in the Czech Republic", Int. conf. on Scientific research on the back-end of the fuel cycle for 21th century, ATALANTE 2000, P3.38, Avignon, France (24-26 Oct., 2000)
- V. N. Pursacov, et al., "Fluorination Dry-way Tratment of Irradiated Uranium", Proc. of 2nd. Genova Conf., 46, 468(1958)
- V. Ignativ, et al., "Molten Salt Reactor Technology for Long-Range and Wide-scale Nuclear Energy System", Proc. of 2nd Int. Conf. On Accelerator –Driven Transmutation Technologies and Applications, Kalmar, Sweden, June 3-7, 193-202 (1996)
- C. Garzenne, "AMSTER, Actinides Molten Salt Transmuter, A way to reduce the mass of nuclear waste for storage [frame work: 1991 French law (partitioning/transmutation)], GEDEON Workshop, Workshop on WASTE MANAGEMENT WITH INNOVATIVE OPTIONS (Mar. 2000)

3.2.2 抽出文献の検討

前節に示した抽出文献を組み合わせによって分類し、検討を行った。

- (1) 乾式法と乾式法のハイブリッド
 - (1-1)フッ化物揮発法-フッ化物溶融塩 TRU 燃焼炉のハイブリッド
 - 1) 米、ADNA Corp.: C. D. Bowman, "Accelerator Transmutation of Waste Using Thermal Neutrons: High-burn-up and Weapon-material Elimination without Recycling", Global '99 (1999)
 - 2) 露、RRCKI: V. Ignativ, et al., "Molten Salt Reactor Technology for Long-Range and Wide-scale Nuclear Energy System", Proc. of 2nd Int. Conf. On Accelerator –Driven Transmutation Technologies and Applications, Kalmar, Sweden, June 3-7, 193-202 (1996)
 - 3) 露、RRCKI: P. N. Alekseev, et al., "Concept of the Cascade Subcritical Molten Salt Reactor (CSMSR) for Harmonization of the Nuclear Fuel Cycle", Global '99 (1999)
 - 4) \mathcal{F}_{π} NRI: J. Uhlir, et al., "Development of fluoride reprocessing technology for molten salt transmutation reactor systems in the Czech Republic", Int. conf. on Scientific research on the back-end of the fuel cycle for 21th century, ATALANTE 2000, P3.38, Avignon, France (24-26 Oct., 2000)

これらの文献に提示されたハイブリッド再処理システムは、軽水炉使用済み燃料からフッ化物揮発法でUを揮発・精製除去し、残りのPu、MAなどの長寿命核種を加速器駆動のフッ化物溶融塩炉で燃焼させるシステムであり、乾式再処理法のフッ化物揮発法をU分離に、フッ化物溶融塩抽出法をPu、MA分離に組み合わせたハイブリッドシステムと見なすことが出来る。 また、これらのフッ化物溶融塩炉核変換システムは、再処理ではなく、長寿命核種核変換の研究分野で未臨界溶融塩核種変換炉(SMR: Subcritical Molten Salt Reactor)として議論されている。

関連するものとして AMSTER (<u>A</u>ctinides <u>M</u>olten <u>S</u>alt <u>T</u>ransmut<u>er</u>) プロジェクトに関する文献を以下に示す。

5) C. Garzenne, "AMSTER, Actinides Molten Salt Transmuter, A way to

reduce the mass of nuclear waste for storage [frame work: 1991 French law (partitioning/transmutation)], GEDEON Workshop, Workshop on WASTE MANAGEMENT WITH INNOVATIVE OPTIONS (Mar. 2000)

AMSTER (Actinides Molten Salt Transmuter) プロジェクトは、CEA/CNRS/EDF/FRAMATOME で推進されている GEDEON ワークショップ (WASTE MANAGEMENT WITH INNOVATIVE OPTIONS に関するワークショップ)として、2000年3月開催された「将来の原子力におけるオプションとしての溶融塩概念」に関する会議において EDF が提示したものである。フランスの1991年放射性廃棄物管理に関する法律(1991年12月30日法律第91-1381号)の分野では長寿命核種の分離・核変換に関する研究の枠組みの中で実施されたもので、長寿命高レベル廃棄物の低減に寄与するものである。

ここでのフッ化物溶融塩炉核変換システムは、未臨界の溶融塩炉(加速機駆動、高速中性子スペクトル)と連続再処理を組み合わせた閉サイクルシステムである。

これらのシステムの特徴は、前段の再処理部分は乾式再処理であり、実績のあるフッ化物揮発法で先ずUを分離・精製除去し、フッ化物揮発法と未臨界溶融塩炉との間に、双方のシステムと相性の良いフッ化物溶融塩を媒体として、フッ化物溶融塩電解により、Pu、MAから FPを分離しているため、システムの安定性は高く、再処理部分のコストは湿式法と比較して安価と考えられる。

一方、フッ化物溶融塩抽出法による Pu、MA の FP からの精製技術開発が必要であり、また加速器駆動型の未臨界溶融塩炉の研究開発費や建設コストが高価と考えられる。

これらのフッ化物溶融塩炉核変換システムにおいて、フッ化物溶融塩での MA など抽出技術に関する文献を以下に示す。

6) 仏、CEA: F. Lemort, et al., "Application of Pyrochemistry of Nuclear Waste Reprocessing", Global '99 (1999)

(2)湿式法と乾式法のハイブリッド

- (2-1) PUREX 湿式法と乾式法のハイブリッド
 - 7) 辻野 毅(原研)、「乾式手法の湿式再処理工程への適用」、日本原子力学会誌、 Vol.18、No.4、Page.202-207 (1976)

提示された適用例は、既に技術的に実用レベルにあるものもあり、システム

としての大きな問題はない。しかしながら、上記の乾式法の利点を最大限に生かしたハイブリッド再処理システムではなく、硝酸ウランの脱硝 - フッ素化転換のように湿式法の PUREX や THOREX の前後に乾式処理を適用したものである。従って、廃棄物発生量などの観点からは効果を期待することはできるが、湿式再処理システム自体の著しい経済性向上の効果を期待するものではない。乾式法の適用にあたっては、高温操作、遠隔保守、工程機器の材質制限などの技術的課題が考えられる。

本文献の引用文献として、GE の MIDWEST 燃料回収プラントのシステムが 引用されており、これについては次節に示す。

- (2-2)フッ化物揮発法と湿式法のハイブリッド
 - 8) 露、RRCKI: V. N. Pursacov, et al., "Fluorination Dry-way Tratment of Irradiated Uranium", Proc. of 2nd. Genova Conf., 46, 468(1958)

この方法は、使用済燃料中に大量に存在するUを先ず、コンパクトで実績のあるフッ化物揮発法によって処理し、残るPuやMAを実績のある湿式法で処理するもので、湿式再処理の大幅なコンパクト化が図れる。一方、フッ化物残渣の湿式溶解であることから、特に溶解度の低 $NPuF_4$ の溶解に技術的に解決すべき課題があると考えられる。1M $Al(NO_3)_3$ によるフッ素マスキング法も有力な手段ではあるが、工学的な規模での実績が必要である。また、フッ化残渣の溶解において、フッ素を十分に回収して、後続の湿式処理工程へのフッ素の影響を極小にする必要がある。

9) 米、GE Corp. (Aquafluor 法): "Midwest Fuel Recovery Plant Technical Study Report", GE Report: NP-20106(1974)

米国 GE 社によって建設された MIDWEST 燃料回収プラント (Morris 工場)は、湿式法-フッ化物揮発法を組み合わせた Aquafluor 法を採用している。

Morris 工場は 300t/y(1t/d)の再処理工場であり、Illinois 州 Morris に 1970 年代初頭に建設されたが、試運転中にトラブルが発生し、結局 1974 年運転を中止した。

このハイブリッド方法では湿式法自体の持つ高い精製能力を生かさず、フッ化物法の高速精製能力に期待している。また、前述 8)のロシア・クルチャトフ研究所が提案したシステムと比較して、前段にフッ化物揮発法を配置して燃料中に大量に存在する U を粗取りしていないため、湿式法における処理溶液量の低減は図られておらず、湿式再処理システム自体の経済性向上の効果は期待できない。

また、高温操作、遠隔保守、工程機器の材質制限などの技術的課題が考えられる。

なお、「原子力化学工学、第 IV 分冊、燃料再処理と放射性廃棄物管理の化学工学 ¹⁾」および「Nuclear News, August 1974」によれば、Morris プラントの中止原因は、イオン交換法を含む湿式法や後続のフッ化物揮発法自体に問題があったわけではなく、プラント設計上の問題によると考えられている。

(2-3)湿式法と溶融塩抽出法のハイブリッド

10) 常磐井守泰(電中研)、「核燃料サイクルバックエンドを支えるアクチノイド 元素の基礎化学 IV. 乾式再処理と乾式分離」、日本原子力学会誌、 Vol.34、No.7、Page.617-624 (1992)

FBR 金属燃料サイクルに関しては、湿式法や他の乾式再処理技術ではなく、単独の金属電解法サイクルであるが、軽水炉サイクルの湿式再処理から発生する高レベル廃液から TRU を分離し、乾式法の FBR 金属燃料サイクルに結合している。

FBR 燃料サイクルにハイブリッド再処理システムを適用しているわけではないが、ハイブリッド再処理システムを検討する上で参考となる文献である。

3.3 調査結果のまとめ

文献調査により、10 件の文献が抽出された。このうち、明らかに湿式再処理法と乾式再処理法、あるいは乾式再処理法のハイブリッド再処理システムといえるのは、抽出文献 8) および 9) のフッ化物揮発法と湿式再処理法の組み合わせの 2 件のみであった。文献 1) から 6) は、再処理システムと言うよりは、フッ化物揮発法とフッ化物溶融塩抽出法および長寿命核種変換炉を組み合わせた燃料サイクルシステムである。核種変換炉の前段の部分は、フッ化物揮発法再処理とフッ化物溶融塩再処理法という 2 種の乾式再処理技術の組み合わせと考えることも出来る。

文献 7) および 10) は、乾式脱被覆法を用いた前処理、乾式再処理技術による高レベル廃液処理など、湿式再処理工程の前後に乾式再処理の技術を適用した例であり、広義の意味からは、ハイブリッドと言えない事は無いと考える。この範疇に入る文献としては、本報告書では抽出しなかったが、乾式再処理技術である酸化物電解法による湿式高レベル廃液処理技術(アクア・パイロ群分離法)が挙げられる。

4. ハイブリッド再処理システムの提示と評価

FBRサイクル実用化戦略調査研究などで調査検討が進められている各種の湿式再処理システム、乾式再処理システムを組み合わせたハイブリッド再処理システムについて検討した。

個々のハイブリッド再処理システムの特徴および MA、FP 分離回収方法、経済性、U、MOX 精製度および廃棄物発生量の元のシステムとの比較、組み合わせによって元のシステムで不要となった技術および新たに必要となった技術、また、核拡散抵抗性および固有安全性については、転用システムに関し、転用した部分と元のシステムとの比較を個々のシステムの方式説明図に表示した。

4.1 2種類の方式の組み合わせ

湿式法が優れた精製能力を持つことを考えると、湿式法との結合の意味は以下のように考えられる。いずれの結合でも湿式法の意義は精製能力である。

乾式法-湿式法での乾式法の意義

- (1) U の事前回収
- (2) 軽度の除染による、高燃焼度の場合に懸念される溶媒の放射線劣化の軽減湿式法-乾式法での乾式法の意義
 - (3) 顆粒状燃料製造が可能

これらの観点から、2種類の方式の組み合わせについて検討する。

4.1.1 フッ化物揮発法と湿式法の結合

大量の U に対し高い処理・精製能力を有するフッ化物揮発法と、U と Pu に対し高い精製能力を有する湿式法の特徴を有効に生かした結合を、図 4-1 に示す。この方法では Pu に比べ低温でフッ化しやすい U について、まずその大部分を選択的に揮発させ、吸着剤で精製する。残った U と Pu を酸化物に転換して、湿式系で精製し燃料を製造する。大部分の U を事前回収することで、残った U と Pu の処理量を減らし、湿式系の負担を著しく小さくすることができる。

Uの大部分を選択的にフッ化揮発させ、吸着剤で精製する方法のバリエーションとして、残った Uと Pu を酸化物に転換する際に溶融塩洗浄で FPと U+Pu+MAを分けることもできる(図 4-2)この方法は、Uの事前回収による湿式系の縮小のほか、軽度の除染により、高燃焼度の場合に懸念される溶媒の放射線劣化を軽減する効果がある。また、MOX、FP、MAを別々に分離することもでき、フッ化物揮発法と湿式法の結合の中では最も多機能である。

軽度の除染により、高燃焼度の場合に懸念される溶媒の放射線劣化を軽減するという目的に特化すると、図 4-3 の方法があり得る。この方法では Pu と U は全量をフッ化させ、フッ化部分での Pu と U の分離は行わない。その分離は、湿式部分で

行われる。湿式部分に Zr が入らないという利点もある。

U を事前回収することで、湿式系を小さくする別の方法は、図 4-4 の結合である。 これは、標準的な先進湿式法の晶析後の U をフッ化で精製するもので、ハイブリッ ドというよりはアドオン(プラグイン)の精製系と考えて良い。

湿式法で回収した U の精製にフッ化物揮発法を用いる方法として Aquafluor 法が 試みられている。参考までに、低除染 MOX 製造を念頭に、Aquafluor 法に準じた ハイブリッドシステムを図 4-5 に示す。この結合方法では湿式 (PUREX)法の精製能力を生かさず、フッ化物揮発法の高速精製能力に期待している。また、湿式工程部分での処理容量も元の湿式法と変わらず、コスト低減効果もない。フッ化物揮発法の高速精製能力を使うには、湿式法-フッ化物揮発法という順序でなく、フッ化物揮発法-湿式法という組み合わせの方が有利であり、このハイブリッドシステムは機能の面からも殆んどメリットが無い。

4.1.2 酸化物電解法と湿式法の結合

(1)湿式法から酸化物電解法へ結合する場合

酸化物電解法が受け取れる物質の形態は酸化物である。このため、前段の湿式工程は焙焼・還元まで行わなければならない。この場合、図 4-6 から図 4-8 に示す 3 通りの結合が考えられる。

- 図 4-6 は、湿式工程の MOX 製品を酸化物電解法で顆粒燃料に転換する。
- 図 4-7 の例は U 製品を酸化物電解法で顆粒燃料に転換する。
- 図 4-8 の例は湿式工程の MOX 製品および U 製品を酸化物電解法で顆粒燃料に 転換する。
- いずれの場合も酸化物電解法は燃料製造用としてのみ使用され、再処理としての 分離機能は必要とされない。

これらの例では湿式法として、先進湿式法を用いたが、通常の PUREX 法についても同様に適用できる。ただし、ペレットが製造できるような純度で得られた U および MOX 製品を酸化物電解法で顆粒燃料に転換するので、ハイブリッド法というよりは、燃料製造方法として酸化物電解を行っていると考えるべきであろう。

(2)酸化物電解法から湿式法へ結合する場合

溶融塩に溶解した状態で湿式法に結合することはできないので、酸化物電解から払い出される形態は酸化物である。従って、酸化物電解から払い出された酸化物燃料を湿式法で再精製することになる。結合方式は図 4-9 から図 4-11 の 3 種類である。

それぞれ酸化物電解から払い出される U、MOX、その両方を湿式法で再精製し

ている。この結合では最終製品の DF がかなり高いものにできることが期待される。 また、酸化物電解の効果としては、ある程度の DF があるため、湿式部分に持ちこ まれる放射能、熱が小さくなり、特に高燃焼度の場合に懸念される溶媒の放射線劣 化が軽減される。

これらのうち、図 4-11 の結合は U の精製の部分は湿式法ではなくフッ化揮発法でおきかえることもできる。この変形例はフローのみ、図 4-12 に示す。このハイブリッドは 4.2 節の 3 種類の方法の組み合わせとみなすことも出来る。また、図 4-12 の結合の湿式部分もフッ化物揮発法でおきかえることもできる。

4.1.3 フッ化物揮発法と溶融塩抽出法の結合

この組み合わせは、元のシステムの機能が似ているため、論理的な結合分類ができないので、結合した結果について述べる。

図 4-13 の結合は、図 4-2 の湿式法とフッ化物揮発法の結合から湿式部分を除いた形式である。MA リサイクル部分に U + Pu+MA 回収の役割を担わせており、この部分が溶融塩洗浄法になっている。従って、元々のフッ化物揮発法の方法を再構成しているが、溶融塩洗浄法を溶融塩抽出法の一種とみなせば、形式上はフッ化物揮発法と溶融塩抽出法の結合である。

図 4-14 は図 4-1 の湿式法とフッ化物揮発法の結合において、湿式法に替わる溶融 塩抽出法として酸化物電解法を用いる場合である。MOX の精製度は図 4-1 の方法に 劣るが、燃料製造方法としては使用できる。また、U が事前分離されているので、 酸化物電解法部分はオリジナルより小型化されている。

図 4-15 は図 4-1 の湿式法とフッ化物揮発法の結合において、湿式法に替えてフッ化物溶融塩電解法を用いる場合である。U が事前分離されているので、フッ化物溶融塩電解法部分はオリジナルより小型化される。また、製品は金属として払い出される点に特徴がある。

図 4-16 はこれまでと逆に酸化物電解を行った後、UO2 を U の高速精製に優れたフッ化物揮発法に払い出す。これは、図 4-9 の U 精製工程以降の部分に、多段溶媒抽出により精製を行う湿式法に代えて、吸着により精製を行うフッ化物揮発法を用いた場合である。このシステムは、図 4-9 の酸化物電解法の回収 UO2 を湿式法に払い出す場合と比較して、装置は小型になると考えられる。

4.2 3種類の方法の組み合わせ

乾式法-湿式法-乾式法の結合について述べる。既に記載したように、酸化物電解法 と湿式法の結合は、基本的にはそれぞれの最終製品を再度処理することになる。中間 に湿式工程を配置する場合、湿式法のもつ高い精製性能を考えると、後続の乾式処理 は酸化物電解法による燃料製造に限られると考えて良い。 一方、湿式法の前に設置する乾式法の機能は、湿式法の負担を軽減することが目的であり、次の二つが考えられる。

(1) U の事前回収

(2) 軽度の除染による、高燃焼度の場合に懸念される溶媒の放射線劣化の軽減

これらの組み合わせは結局、既に述べた、乾式法-湿式法の組み合わせにおいて、湿式法の製品を再度酸化物電解法によって燃料製造するという形式になるので、3 方式のハイブリッドというよりも、燃料製造のバリエーションに過ぎない。従って、ここでは1例のフローを図4-17に示すにとどめる。

4.3 ANL 型の金属電解法と他方法のハイブリッド

ANL型は金属で受け入れ、金属で払出す方式である。このため他の方式との直接的な結合では酸化物-金属の相互転換工程を含める必要がある。この転換が可能であれば、形式的にはあらゆる結合が可能であるが、現実的ではないと考える。

4.4 各方式におけるハイブリッド効果

各組み合わせにおいて、その組み合わせによる効果として最も顕著な特徴を検討した。結果を表 4-1 に示す。

方式 1 から 4 は、湿式法に比べ U 精製度が向上し、Pu 単独のフッ化を回避することで核拡散抵抗性が向上する。また、フッ化物揮発法では難しい U+Pu 精製が容易になり、U+Pu のハンドリングが容易になるという利点がある。

方式5は特段のメリットは無い。

方式 6 から 8 は、湿式法の製品を溶融塩電解して、顆粒状燃料を作るという方式なので、振動充填方式による燃料製造に好適といえる。湿式法から直接顆粒状燃料を製造し、振動充填する方法が困難である場合には有効である。精製度は向上するが、これは湿式法、乾式法それぞれで精製しているためで、ハイブリッド的効果ではない。

方式 9 から 12 は、酸化物電解法の製品の精製度を上げるため、湿式法またはフッ 化物揮発法を後続として結合している。従って、精製度は向上している。また、湿式 法から見た場合、軽度の事前精製による溶媒劣化防止の効果がある。

方式 13 と 15 では工程が著しく簡素化される。また方式 15 では製品が金属となり、 軽水炉燃料からの金属燃料 FBR の初期装荷燃料製造に好適である。

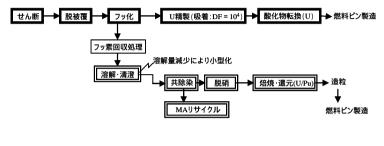
方式 14 は方式 1 と同様に、Pu 単独のフッ化を回避することで核拡散抵抗性が向上するという利点がある。

方式 16 では方式 9 と同じく、酸化物電解法の製品の U 精製度が上がるが、後続処理が湿式法ではないので、「軽度の事前精製による溶媒劣化防止の効果」はない。

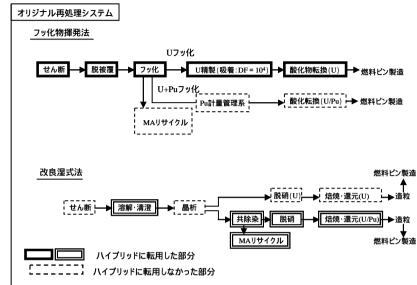
方式 17 は 4.2 に示したように 3 方式のハイブリッドというよりも、燃料製造のバリエーションである。

以上のように、元の再処理システムの問題点を相互補完することにより、機能の向上が図れるハイブリッド再処理システムを提示することができた。しかしながら、経済性に関しては、図 4-1 から図 4-17 に示したように、方式 13 および方式 15 以外の組み合わせにおいては、いずれの元のシステムよりも格段に経済性が向上する組み合わせは想定できなかった。また、廃棄物発生量の低減の観点からも、方式 3 を除き、いずれの元のシステムよりも発生量が大幅に低減する場合を想定できなかった。これらは、高燃焼度の FBR サイクル・低除染燃料製造のシナリオ条件における評価であり、この条件が変わった場合には再検討が必要である。

フッ化物揮発法と湿式法の混成(1)



一 元の工程にない部分



(1) 機能比較 システム間比較

評価項目	フッ化物揮発法との比較	改良湿式法との比較
経済性	低下	向上(溶解量減少)
精製度(U)	同等	向上
精製度(MOX)	ほぼ同等	ほぼ同等
廃棄物発生量	増加	ほぼ同等
不要となった技術	Puフッ化、Pu計量 酸化転換(U/Pu)	晶析、U脱硝-造粒
新たな技術	フッ素回収処理としての酸化転換	

転用部分とオリジナルシステムの比較(システム間での比較が困難な項目)

評価項目	フッ化物揮発法との比較	改良湿式法との比較
核不拡散性	向上	同等~向上
	(Puフッ化の回避)	(分配工程省略)
固有安全性		同等

(2) その他の特徴

- 1) 晶析の替わりにフッ化物揮発によりUを粗分離し、精製する。精製分だけUの純度は高くなり 燃料製造が容易になる。
- 2) U純度が高くできるので、軽水炉サイクルにも適する。改良湿式同等の大きさであるが、 高純度のUを得る方法としては、湿式(PUREX)法よりかなり小さくなると考えられる。
- 3) U+Pu+FPは不揮発性フッ化物として、フッ化工程から回収される。このフッ化物は水に溶解しにくいのでフッ素回収工程で酸化物に転換して、溶解槽に送る必要がある。
- 4) フッ素回収工程は、高温加水分解法、フッ化物溶融塩洗浄法、水洗と、高温加水分解法、フッ化物溶融塩洗浄法の併用など多くのパリエーションがある。

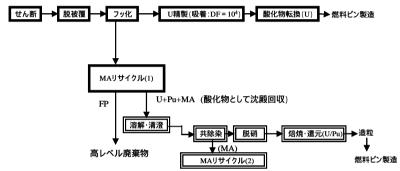
(3) MA回収とLLFP分離

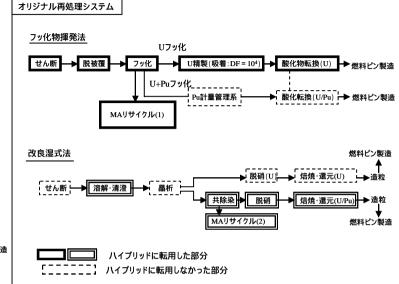
MA回収: 改良湿式法での処理法を転用

LLFP: Cs、Tc、Iはフッ化物揮発法の方法を適用

図4-1 方式1

フッ化物揮発法と湿式法の混成(2)





(1) 機能比較 システム間比較

評価項目	フッ化物揮発法との比較	改良湿式法との比較
経済性	低下	向上(溶解量減少)
精製度(U)	同等	向上
精製度(MOX)	向上	向上
廃棄物発生量	増加	ほぼ同等
不要となった技術	Puフッ化、Pu計量 酸化転換(U/Pu)	晶析、U脱硝-造粒
新たな技術	フッ素回収処理としての	MAリサイクル(1)

転用部分とオリジナルシステムの比較(システム間での比較が困難な項目)

評価項目	フッ化物揮発法との比較	改良湿式法との比較
核不拡散性	向上	同等~向上
	(Puフッ化の回避)	(分配工程省略)
固有安全性		同等

(2) その他の特徴

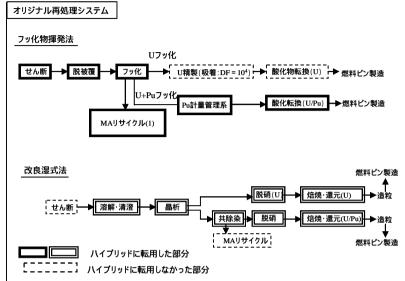
- 1) 湿式法とフッ化物揮発法の混成(1)の変形 晶析の替わりにフッ化物揮発によりUを粗分離し、精製する。精製分だけUの純度は高くなり 燃料製造が容易になる。
- 2) フッ素回収工程として、フッ化物揮発法のMAUサイクル法である、フッ化物溶融塩洗浄法を用いる。
- 3) U純度が高くできるので、軽水炉サイクルにも適する。改良湿式同等の大きさであるが、 高純度のUを得る方法としては、湿式(PUREX)法よりかなり小さくなると考えられる。
- 4) MAリサイクル(1)によりFPがかなり除かれるため、MOXのDFは向上する。

(3) MA回収とLLFP分離

MA回収: フッ化物揮発法と改良湿式法での処理法を共に使用

LLFP : Cs、Tc、Iはフッ化物揮発法の方法を適用

図4-2 方式2



(1) 機能比較 システム間比較

フッ化物揮発法との比較 改良湿式法との比較 評価項目 経済性 低下 向上?(溶媒劣化減少) 精製度(U) やや低下 向上 精製度(MOX) やや向上 やや向上 廃棄物発生量 減少(精製系なし) 減少(溶媒劣化減少) 不要となった技術 2段フッ化 MAリサイクル 新たな技術 なし

転用部分とオリジナルシステムの比較(システム間での比較が困難な項目)

評価項目	フッ化物揮発法との比較	改良湿式法との比較
核不拡散性	向上 (富化度調製な	同等
固有安全性	同等	同等

(2) その他の特徴

- 1) フッ化によりFPを分離し、湿式法での有機物の損傷を軽減する。
- 2) このため、MOXの精製度は向上する。
- 3) フッ化は2段フッ化を行わず、フレーム炉で全U+Puを同時にフッ化
- 4) Cs, Iは分離できるが、Ru/Rh, TcはU、Puに同伴する。
- 5) ただし、Zrはフッ化過程で分離できるので、共除染工程は設計裕度が高い。

(3) MA回収とLLFP分離

MA回収:フッ化物揮発法でのフッ化物溶融塩洗浄法を転用

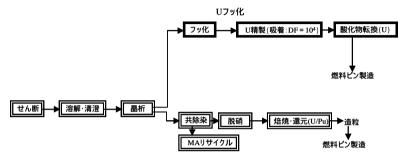
LLFP: Cs、I、はフッ化物揮発法の方法を適用 Tcは湿式法の処理を踏襲。

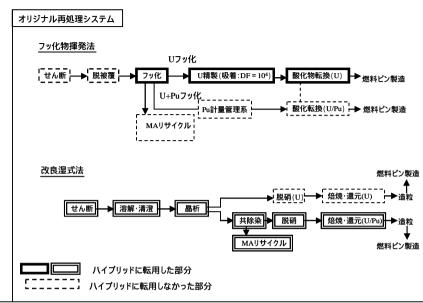
図4-3 方式3

20

検討したハイブリッドシステム

フッ化物揮発法と湿式法の混成(4)





(1) 機能比較 システム間比較

フッ化物揮発法との比較 改良湿式法との比較 評価項目 経済性 低下 同等~低下 精製度(U) 同等 向上 精製度(MOX) ほぼ同等 ほぼ同等 廃棄物発生量 増加 ほぼ同等 Puフッ化、Pu計量 不要となった技術 U脱硝-造粒 酸化転換(U/Pu) 新たな技術 なし

転用部分とオリジナルシステムの比較(システム間での比較が困難な項目)

評価項目	フッ化物揮発法との比較	改良湿式法との比較
核不拡散性	向上 (Puフッ化の回避)	同等
固有安全性		同等

(2) その他の特徴

- 1) 晶析したUをフッ化により精製する。精製分だけUの純度は高くなり燃料製造が容易になる。 また、精製により、晶析時にUに混入したPuを分離し、製品UへのPu混入を避けられる。
- 2) U純度が高くできるので、むしろ軽水炉サイクルに適する。改良湿式法より大型化するが、 高純度のUを得る方法としては、湿式(PUREX)法よりかなり小さくなると考えられる。
- 3) 湿式法とフッ化物揮発法の混成(1)に比べると、フッ素回収工程がなく、技術開発要素はさらに少ない。
- 4) 湿式法とフッ化物揮発法の混成(1)に比べると、溶解液へのフッ素混入がなく、湿式部分への影響の 懸念が少ない。
- 5) Aquafluor法(モリス工場)よりも、フッ化に供給するUの回収が容易である。

(3) MA回収とLLFP分離

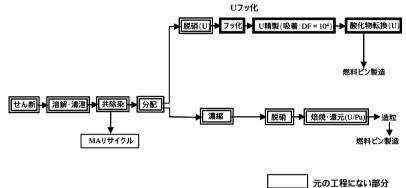
MA回収: 改良湿式法での処理法を転用

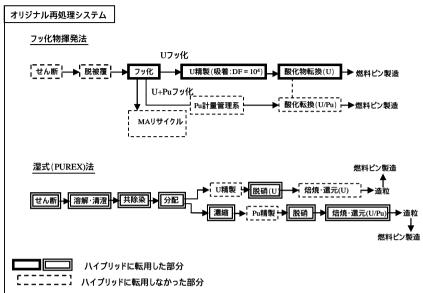
LLFP : 改良湿式法での処理法を転用

図4-4 方式4

検討したハイブリッドシステム

フッ化物揮発法と湿式法の混成(5)





(1) 機能比較 システム間比較

フッ化物揮発法との比較 湿式(PUREX)法との比較 評価項目 経済性 低下 向上 精製度(U) ほぼ同等 同等 精製度(MOX) ほぼ同等 低下 廃棄物発生量 増加 ほぼ同等 Puフッ化、Pu計量 不要となった技術 U脱硝-造粒、Pu精製 酸化転換(U/Pu) 新たな技術 なし

転用部分とオリジナルシステムの比較(システム間での比較が困難な項目)

評価項目	フッ化物揮発法との比較	湿式(PUREX)法との比較
核不拡散性	向上 (Puフッ化の回避)	同等
固有安全性		同等

(2) その他の特徴

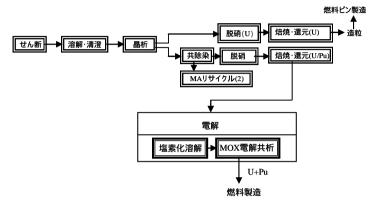
- 1) Aquafluor法(モリス工場)に準じた低除染MOX燃料製造ハイブリッドシステム。
- 2) U精製に関しては湿式法の持つ高い精製能力を生かさず、フッ化物揮発法の高速精製能力に 期待している。湿式法における処理量の低減効果がないが、U精製系が湿式(PUREX)法より フッ化物揮発法のほうが小型になる考えられ、経済性は湿式(PUREX)法よりは幾分向上する ことが期待される。
- 3) 技術開発要素は少ないが特段のメリットが無い。

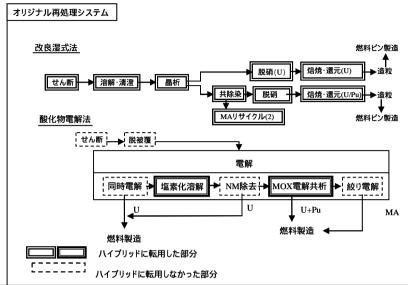
(3) MA回収とLLFP分離

MA回収: 改良湿式法での処理法を転用

LLFP : 改良湿式法での処理法を転用

図4-5 方式5





(1) 機能比較 システム間比較

7 7 7 7 1 1 1 1 1 1 X		
評価項目	改良湿式法との比較	酸化物電解法との比較
経済性	低下	低下
精製度(U)	同等	向上
精製度(MOX)	やや向上	向上
廃棄物発生量	増加	増加
不要となった技術	なし	同時電解、絞り電解
新たな技術	なし	

転用部分とオリジナルシステムの比較(システム間での比較が困難な項目)

評価項目	改良湿式法との比較	酸化物電解法との比較
核不拡散性	同等	同等
固有安全性		同等

(2) その他の特徴

- 1) ハイブリッドというより、酸化物電解部分は燃料製造方法とみなすべきものである。
- 2) MOXはのDFはやや向上。

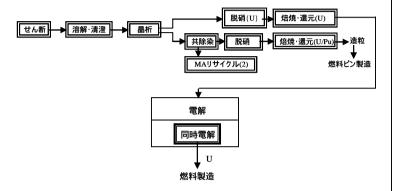
(3) MA回収とLLFP分離

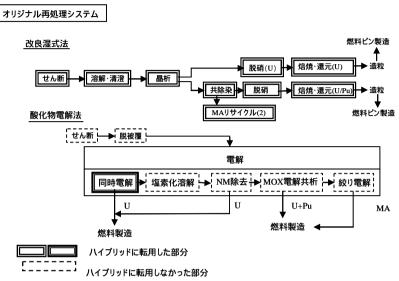
MA回収: 湿式法での処理。

LLFP: 湿式法での処理を踏襲する。

図4-6 方式6

溶融塩抽出法と湿式法の混成(2)





(1) 機能比較 システム間比較

評価項目	改良湿式法との比較	酸化物電解法との比較
経済性	低下	低下
精製度(U)	向上	向上
精製度(MOX)	同等	向上
廃棄物発生量	増加	増加
不要となった技術	なし	溶解絞り電解まで
新たな技術	なし	

転用部分とオリジナルシステムの比較(システム間での比較が困難な項目)

評価項目	改良湿式法との比較	酸化物電解法との比較
核不拡散性	同等	判定対象外 (Puを扱わない)
固有安全性		同等

(2) その他の特徴

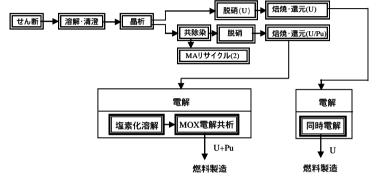
1) ハイブリッドというより、酸化物電解部分は燃料製造方法とみなすべきものである。

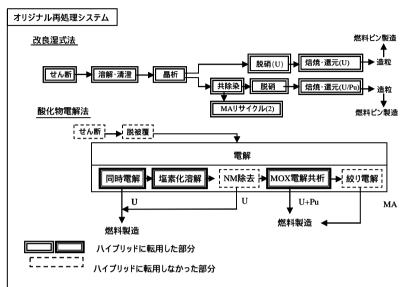
(3) MA回収とLLFP分離

MA回収: 湿式法での処理。

LLFP: 湿式法での処理を踏襲する。

図4-7 方式7





(1) 機能比較 システム間比較

77 A B D D T		
評価項目	改良湿式法との比較	酸化物電解法との比較
経済性	低下	低下
精製度(U)	向上	向上
精製度(MOX)	向上	向上
廃棄物発生量	増加	増加
不要となった技術	なし	NM除去、絞り電解
新たな技術	なし	

転用部分とオリジナルシステムの比較(システム間での比較が困難な項目)

評価項目	改良湿式法との比較	酸化物電解法との比較
核不拡散性	同等	同等
固有安全性		同等

(2) その他の特徴

1) ハイブリッドというより、酸化物電解部分は燃料製造方法とみなすべきものである。

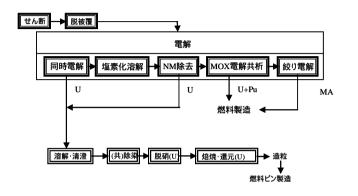
(3) MA回収とLLFP分離

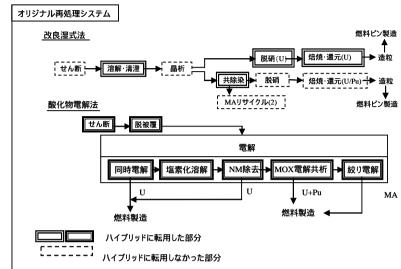
MA回収: 湿式法での処理。

LLFP: 湿式法での処理を踏襲する。

図4-8 方式8

溶融塩抽出法と湿式法の混成(4)





(1) 機能比較 システム間比較

評価項目	改良湿式法との比較	酸化物電解法との比較
経済性	低下	低下
精製度(U)	向上(精製系追加)	向上
精製度(MOX)	同等	同等
廃棄物発生量	増加	増加
不要となった技術	晶析	
新たな技術	なし	

転用部分とオリジナルシステムの比較(システム間での比較が困難な項目)

評価項目	改良湿式法との比較	酸化物電解法との比較
核不拡散性	同等	同等
固有安全性		同等

(2) その他の特徴

1) 酸化物電解でえられるUのDFが不充分な場合に、湿式法でDFを増加させる。

2) 湿式法で扱う放射能量が小さいので、溶媒劣化が軽減される。

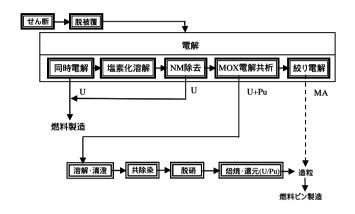
(3) MA回収とLLFP分離

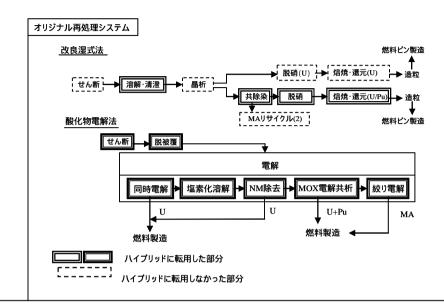
MA回収: 酸化物電解方式での処理。

LLFP: 酸化物電解方式での処理を踏襲する。

図4-9 方式9

溶融塩抽出法と湿式法の混成(5)





(1) 機能比較 システム間比較

評価項目	改良湿式法との比較	酸化物電解法との比較
経済性	低下	低下
精製度(U)	同等	同等
精製度(MOX)	向上	向上
廃棄物発生量	増加	増加
不要となった技術	晶析	なし
新たな技術	なし	

転用部分とオリジナルシステムの比較(システム間での比較が困難な項目)

評価項目	改良湿式法との比較	酸化物電解法との比較
核不拡散性	同等	同等
固有安全性		同等

(2) その他の特徴

- 1) 酸化物電解でえられるMOXのDFが不充分な場合に、湿式法でDFを増加させる。
- 2) 湿式法で扱う放射能量が小さいので、溶媒劣化が軽減される。

(3) MA回収とLLFP分離

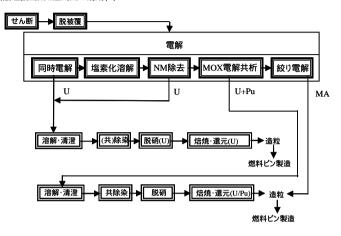
MA回収: 酸化物電解方式での処理。燃料への再装荷は検討要。

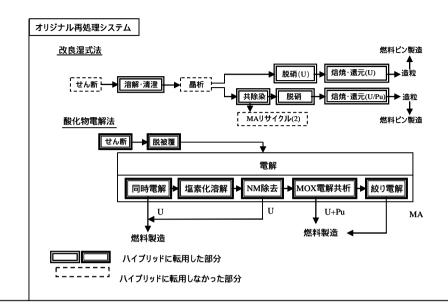
LLFP : 酸化物電解方式での処理を踏襲する。

図4-10 方式10

検討したハイブリッドシステム

溶融塩抽出法と湿式法の混成(6)





(1) 機能比較 システム間比較

改良湿式法との比較 酸化物電解法との比較 評価項目 経済性 低下 低下 精製度(U) 向上(精製系追加) 向上 精製度(MOX) 向上 向上 増加 廃棄物発生量 増加 不要となった技術 晶析 なし 新たな技術 なし

転用部分とオリジナルシステムの比較(システム間での比較が困難な項目)

評価項目	改良湿式法との比較	酸化物電解法との比較
核不拡散性	同等	同等
固有安全性		同等

(2) その他の特徴

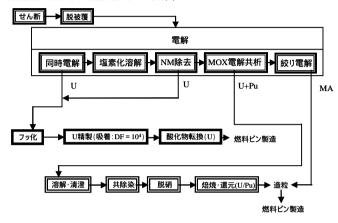
- 1) 酸化物電解でえられるUとMOXのDFが不充分な場合に、湿式法でDFを増加させる。
- 2) 湿式法で扱う放射能量が小さいので、溶媒劣化が軽減される。

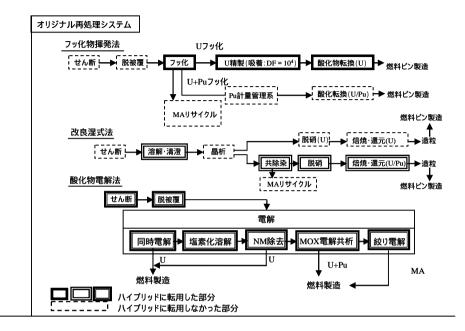
(3) MA回収とLLFP分離

MA回収:酸化物電解方式での処理。

LLFP : 酸化物電解方式での処理を踏襲する。

図4-11 方式11





(1) 機能比較

システム間比較

評価項目	フッ化物揮発法との比較	改良湿式法との比較	酸化物電解法との比較
経済性	低下	低下	低下
精製度(U)	同等	やや向上	向上
精製度(MOX)	ほぼ同等	同等	同等
廃棄物発生量	増加	増加	増加
不要となった技術	Puフッ化、Pu計量 酸化転換(U/Pu)、他	晶析	なし
新たな技術	なし		

転用部分とオリジナルシステムの比較(システム間での比較が困難な項目)

評値	西項目	フッ化物揮発法との比較	改良湿式法との比較	酸化物電解法との比較
核	该不拡散性	向上		同等
固	有安全性	(Puフッ化の回避)	同等	I 미 경

(2) その他の特徴

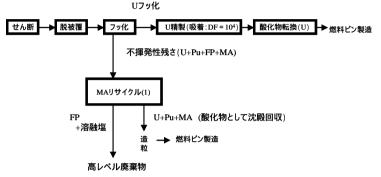
- 1) MOXについては方式10に同じ。
- 2) Uについては方式15に同じ。

(3) MA回収とLLFP分離

MA回収: 方式10に同じ。

LLFP : 方式10に同じ。

図4-12 方式12



フッ化物揮発法

Uフッ化

U精製(吸着:DF=104) 酸化物転換(U) 燃料ビン製造

U+Puフッ化

Pu計量管理系

MAJサイクル

MAJサイクル

ハイブリッドに転用した部分

ハイブリッドに転用しなかった部分

(1) 機能比較 システム間比較

/ // AINIUTA	
評価項目	フッ化物揮発法との比較
経済性	向上
精製度(U)	同等
精製度(MOX)	不明(おそら〈低下)
廃棄物発生量	同等~減少
不要となった技術	Puフッ化、Pu計量 酸化転換(U/Pu)
新たな技術	フッ素回収処理として のMAリサイクル(1)
核不拡散性	向上
	(Puフッ化の回避)
固有安全性	

(2) その他の特徴

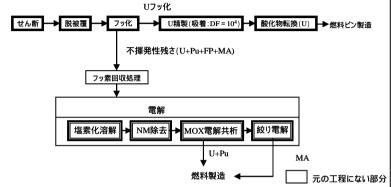
- 1) 湿式法とフッ化物揮発法の混成(3)の変形。 フッ素回収工程として、フッ化物揮発法のMAリサイクル 法であるフッ化物溶融塩洗浄法を用い、その後の湿式精製を省略する。
- 2) MAリサイクル(1)によりFPをPu+U+MAから除く。
- 3) MOX燃料用の造粒は改良湿式法から転用する。
- 4) U純度が高くできるので、軽水炉サイクルにも適するが、MOXのDF低い。
- 5) 造粒部分のコストと、Pu-Uフッ化及び酸化転換のコストの違いが明確でないが、 造粒部分のコストがあまり大きくなければ経済性は向上する。
- 6) 本方法と「湿式法とフッ化物揮発法の混成(3)の変形」の中間に、多くのパリエーションがある。 たとえば、「湿式法とフッ化物揮発法の混成(3)」の共除染、脱硝酸以下を省略し、 造粒とのつながりよい硝酸溶液で燃料製造系に供給するなど。
- (3) MA回収とLLFP分離

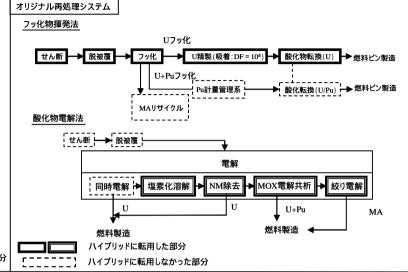
MA回収: フッ化物揮発法のMAリサイクルを使用。ただし、MOXとMAの分離はできない。

LLFP: Cs、Tc、Iはフッ化物揮発法の方法を適用

図4-13 方式13

フッ化物揮発法と溶融塩抽出法の混成(2)





(1) 機能比較 システム間比較

30

-	ノヘノム的比较		
	評価項目	フッ化物揮発法との比較	酸化物電解法との比較
	経済性	同等?	同等?
	精製度(U)	同等	向上
	精製度(MOX)	同等	同等
	廃棄物発生量	増加?	ほぼ同等
	不要となった技術	Puフッ化、Pu計量 酸化転換(U/Pu)	同時電解
	新たな技術	フッ素回収処理	

転用部分とオリジナルシステムの比較(システム間での比較が困難な項目)

評価項目	フッ化物揮発法との比較	酸化物電解法との比較
核不拡散性	向上 (Puフッ化の回避)	同等~向上 (同時電解省略)
固有安全性		同等

(2) その他の特徴

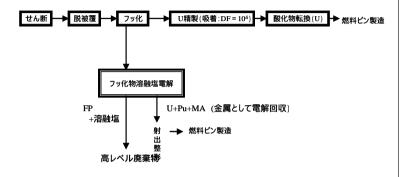
- 1) フッ化物揮発によりUを粗分離し、精製する。粗分離後のU+Puは酸化物電解で回収。
- 2) U純度が高くできるので、軽水炉サイクルにも適するが、MOXは低DFである。このフッ化物を 塩素化溶解するため、フッ素回収工程で酸化物に転換して、電解槽に送る必要がある。
- 3) フッ素回収工程は、高温加水分解法、フッ化物溶融塩洗浄法、水洗と、高温加水分解法、 フッ化物溶融塩洗浄法の併用など多くのバリエーションがある。

(3) MA回収とLLFP分離

MA回収: 酸化物電解法の絞り電解法を使用

LLFP: Cs、Tc、Iはフッ化物揮発法の方法を適用

図4-14 方式14



(1) 機能比較

システム間比較

評価項目	フッ化物揮発法との比較
経済性	おそらく向上
精製度(U)	同等
精製度(MOX)	不明(おそら〈低下)
廃棄物発生量	ほぼ同等
不要となった技術	Puフッ化、Pu計量 酸化転換(U/Pu)
新たな技術	フッ化物溶融塩電解
核不拡散性	向上 (Puフッ化の回避)
固有安全性	(14771000日起)

(2) その他の特徴

- 1) 湿式法とフッ化物揮発法の混成(1)の変形。PuとUを含む、揮発残さフッ化物をフッ化物溶融塩に溶解し電解により回収。
- 2) MAリサイクル性は不明。
- 3) フッ化物溶融塩での電解フローは開発要であるが、本質的に、U、Puの金属として析出する。 析出物が合金となるか、2相となるかは現時点では未調査。 このフッ化物溶融塩での電解は、溶融塩炉の開発に関連して米、フランス、チェコでR&Dが行われている。
- 4) Uを高精製のフッ化物として得ることができるので軽水炉燃料を処理して、Uを軽水炉に、 U+Puを金属燃料FBRの初期装荷用に提供するのに適する。

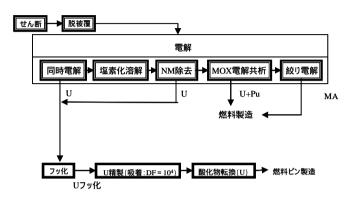
(3) MA回収とLLFP分離

MA回収: フッ化物電解法でのPu、Uへの同伴が期待できるが、R&Dによる見極めが必要。

LLFP : Cs、Tc、Iはフッ化物揮発法の方法を適用

図4-15 方式15

フッ化物揮発法と溶融塩抽出法の混成(4)

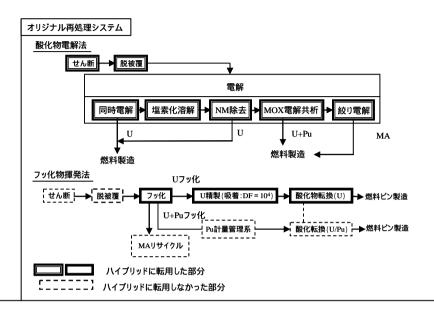


(1) 機能比較 システム間比較

7.7.4 B 10.4X		
評価項目	フッ化物揮発法との比較	酸化物電解法との比較
経済性	低下	低下
精製度(U)	同等	向上
精製度(MOX)	ほぼ同等	同等
廃棄物発生量	増加?	増加
不要となった技術	Puフッ化、Pu計量 酸化転換(U/Pu)	なし
新たな技術	なし	

転用部分とオリジナルシステムの比較(システム間での比較が困難な項目)

評価項目	フッ化物揮発法との比較	酸化物電解法との比較
核不拡散性	向上 (Puフッ化の回避)	同等
固有安全性		同等



(2) その他の特徴

- 1) 酸化物電解法の回収Uをフッ化物揮発により精製する。
- 2) Uを軽水炉サイクルにリサイクルするため、U純度を上げるのに適する、酸化物電解法の プラグインオプションとして可能。
- 3) MOXは低DFである。

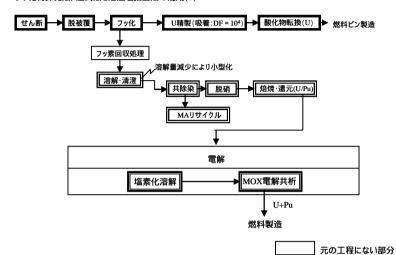
(3) MA回収とLLFP分離

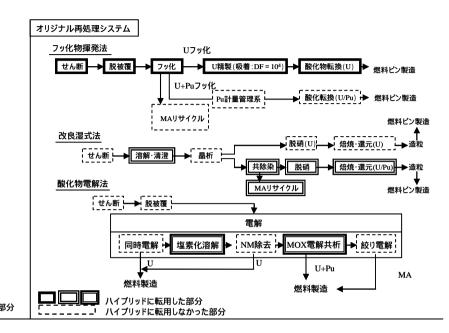
MA回収: 酸化物電解法での絞り電解による。 LLFP: 酸化物電解法での処理を踏襲する。

図4-16 方式16

検討したハイブリッドシステム

フッ化物揮発法、湿式法と溶融塩抽出法の混成(2)





(1) 機能比較

システム間比較

評価項目	フッ化物揮発法との比較	改良湿式法との比較	酸化物電解法との比較
経済性	低下	ほぼ同等	低下
精製度(U)	同等	向上	向上
精製度(MOX)	向上	向上	向上
廃棄物発生量	増加	増加	増加
不要となった技術	Puフッ化、Pu計量 酸化転換(U/Pu)	晶析、U脱硝-造粒	同時電解、絞り電解
新たな技術	フッ素回収処理としての酸化転換		

転用部分とオリジナルシステムの比較(システム間での比較が困難な項目)

評価項目	フッ化物揮発法との比較	改良湿式法との比較	酸化物電解法との比較
核不拡散性	向上	同等~向上	同等
固有安全性	(Puフッ化の回避)	同等	同等

(2) その他の特徴

- 1) 方式1に同じ。
- 2) 酸化物電解部分は燃料製造方法とみなすべきである。
- 3) MOXのDFは向上。

(3) MA回収とLLFP分離

MA回収: 改良湿式法での処理法を転用

LLFP: Cs、Tc、Iはフッ化物揮発法の方法を適用

図4-17 方式17

表4-1 各方式のハイブリッドによる特徴的効果

方式	結合形式	特徵的効果	報告例(3章参照)
1	フッ化物揮発法 改良湿式法	U精製度向上、核拡散抵抗性向上、U+Puハンドリング向上	文献 8) ロシアRRCKIのシステム
2	フッ化物揮発法 改良湿式法	U精製度向上、核拡散抵抗性向上、U+Puハンドリング向上	
3	フッ化物揮発法 改良湿式法	U精製度向上、核拡散抵抗性向上、U+Puハンドリング向上	
4	改良湿式法 フッ化物揮発法	U精製度向上、核拡散抵抗性向上、U+Puハンドリング向上	
5	湿式(PUREX)法 フッ化物揮発法	特段のメリットなし	文献 9) 米GE社モリス工場のシステム
6	改良湿式法 酸化物電解法	顆粒状燃料製造可能(*)	
7	改良湿式法 酸化物電解法	顆粒状燃料製造可能(*)	
8	改良湿式法 酸化物電解法	顆粒状燃料製造可能(*)	
9	酸化物電解法 改良湿式法	高精製度、溶媒劣化防止	
10	酸化物電解法 改良湿式法	高精製度、溶媒劣化防止	
11	酸化物電解法 改良湿式法	高精製度、溶媒劣化防止	
12	酸化物電解法 フッ化物揮発法、改良湿式法	高精製度、溶媒劣化防止	
13	フッ化物揮発法 溶融塩洗浄法	小型化	
14	フッ化物揮発法 酸化物電解法	核拡散抵抗性向上	
15	フッ化物揮発法 フッ化物溶融塩電解法	小型化、金属製品	文献 4) チェコNRIのシステム
16	酸化物電解法 フッ化物揮発法	U精製度向上	
17	フッ化物揮発法 改良湿式法 酸化物電解法	U精製度向上、核拡散抵抗性向上、U+Pu八ンドリング向上、 顆粒状燃料製造可能(*)	

(*)湿式法で直接顆粒状燃料を製造し振動充填する方法が困難な場合に有効。

5. 金属および窒化物燃料への適用性

5.1 金属燃料

金属燃料の処理を最も得意とするのは、ANL型の金属電解法である。一方、他の方法は、フッ化物揮発法を除き、いったん金属を酸化物に転換してからそれぞれの処理を行う。従って、ANL型の金属電解法と他の方法を組み合わせた方法は大きくなる一方で、かつANL型に比べて特段のメリットも現われないと考えられる。

以下、4 章で取り上げた方式について適用性を検討する。表 5-1 に各ハイブリッド 結合方式での入口および出口で必要となる追加工程を示す。

フッ化物揮発法は流動床、フレーム炉の両方のフッ化方式ともに、金属燃料をフッ 化することができるので、フッ化物法から始まるハイブリッド法は、入口での追加工 程を(金属 酸化物)とした。括弧が付いているのは、脱被覆方式を替えなければな らないからである。

出口は酸化物がほとんどである。フッ化物として払い出せる場合もあるが、いずれにしても金属への転換が必要である。例外は方式 15 で、U+Pu+MA の金属で回収される。ただし、この場合でも U は酸化物またはフッ化物で払い出される。

以上のように、各ハイブリッド法とも、金属からの、及び金属への転換工程が追加されれば、金属へ適用できる。

5.2 室化物燃料

原則的には金属燃料と同じく、窒化物からの、および窒化物への転換工程が追加されれば、窒化物燃料への適用は可能である。

表5-1 金属燃料への適用性

方式	結合形式	必要追加工程
1	フッ化物揮発法 改良湿式法	入口:(金属 酸化物)、出口:酸化物 金属
2	フッ化物揮発法 改良湿式法	入口:(金属 酸化物)、出口:酸化物 金属
3	フッ化物揮発法 改良湿式法	入口:(金属 酸化物)、出口:酸化物 金属
4	改良湿式法 フッ化物揮発法	入口:金属 酸化物、出口:酸化物 金属
5	湿式(PUREX)法 フッ化物揮発法	入口:金属 酸化物、出口:酸化物 金属
6	改良湿式法 酸化物電解法	入口:金属 酸化物、出口:酸化物 金属
7	改良湿式法 酸化物電解法	入口:金属 酸化物、出口:酸化物 金属
8	改良湿式法 酸化物電解法	入口:金属 酸化物、出口:酸化物 金属
9	酸化物電解法 改良湿式法	入口:金属 酸化物、出口:酸化物 金属
10	酸化物電解法 改良湿式法	入口:金属 酸化物、出口:酸化物 金属
11	酸化物電解法 改良湿式法	入口:金属 酸化物、出口:酸化物 金属
12	酸化物電解法 フッ化物揮発法、改良湿式法	入口:金属 酸化物、出口:酸化物 金属
13	フッ化物揮発法 溶融塩洗浄法	入口:(金属 酸化物)、出口:酸化物 金属
14	フッ化物揮発法 酸化物電解法	入口:(金属 酸化物)、出口:酸化物 金属
15	フッ化物揮発法 フッ化物溶融塩電解法	入口:(金属 酸化物)、出口:不要
16	酸化物電解法 フッ化物揮発法	入口:金属 酸化物、出口:酸化物 金属
17	フッ化物揮発法 改良湿式法 酸化物電解法	入口:(金属 酸化物)、出口:酸化物 金属

6. 湿式プロセスにおける MA 分離への乾式技術の採用

乾式プロセスのなかには乾式脱被覆法である AIROX 法のように、湿式法の一部に組み入れることが可能な技術がいくつかある。湿式再処理への AIROX 法の適用については、3 章の抽出文献 7) に記述されている。ここでは、乾式方法のうち、湿式プロセスにおける MA 分離へ適用できる方法を検討する。

これまで、湿式法と乾式法の組み合わせのうち、方式 3 ではフッ化物揮発法の MA リサイクル方式、方式 9、10、11 および 12 では酸化物電解法の MA リサイクル方式を用いている。これらのハイブリッド方式は、湿式プロセスにおける MA 分離へ、乾式技術を適用した場合とみなすことができる。

上記のような、工程を組み合わせた上での適用を除くと、湿式法の中での乾式技術の 採用は以下の2種類が考えられる。

- (1) 廃棄物、廃液を酸化物に転換し、乾式技術で MA を回収する
- (2) 共除染などの抽出工程の途中で、溶液を酸化物に転換し、乾式技術で MA を回収したのち、再び硝酸に溶解し、中断された抽出工程に戻す。

このうち、(2)は MA の多くは共除染により除かれる FP 側に移行するので、共除染後の溶液に適用するのは意味がない。一方、共除染で除かれた FP と MA は廃液となるので、ここからの回収は(1)と同じ意味になる。従って、乾式法の MA 回収技術は、原則的には廃液に適用されることになる。この方法には大きく2種類が考えられるので、以下に示す。いずれの方法も基礎検討レベルであり、今後工学規模での確認が必要である。

6.1 金属抽出法

この方法は電力中央研究所で開発されつつある。この方法のプロセスは以下のようになっている²。

- (1) 高レベル廃液を脱硝して酸化物固体とする
- (2) 酸化物に塩素ガスを作用させ、塩化物に転換する
- (3) 塩化物に、Li などを作用させ、ウランより金属になりやすい元素を還元し、液体 Cd に移行させる。
- (4) 液体ビスマスを塩化物相に接触させ、ウランおよび超ウラン元素を移行させる。

6.2 フッ化物溶融塩洗浄法

フッ化物揮発法における MA リサイクル法を適用する。方法は以下のようになる。

- (1) 高レベル廃液を脱硝して酸化物固体とする
- (2) 酸化物にフッ素ガスを作用させフッ化物に転換し、NaF-LiF 溶融塩に溶解する。
- (3) NaF-LiF 溶融塩にアルミナ粉末を加える。U、Pu、MA は酸化物に転換され沈殿 するので、分離回収する。

7. 結言

再処理システムを対象に諸外国および国内での事例を調査し、これまで開発が進められている各種の湿式再処理システム、乾式再処理システムを組み合わせたハイブリッド 再処理システムの可能性について評価、検討を行った。

(1) ハイブリッド再処理システムの事例調査

(1-1) 乾式法と乾式法のハイブリッド

フッ化物揮発法とフッ化物溶融塩抽出法による連続再処理および長寿命核種変換炉を組み合わせた燃料サイクルシステムに関する文献を6件抽出した。このシステムは、実績のあるフッ化物揮発法で先ずUを分離・精製除去し、フッ化物揮発法と未臨界溶融塩炉との間に、双方のシステムと相性の良いフッ化物溶融塩を媒体としたフッ化物溶融塩電解により、Pu、MAからFPを分離している。従って、システムとしての安定性は高く、再処理部分の経済性は湿式法と比較して高いと考えられる。

(1-2)湿式法と乾式法のハイブリッド

ロシア・クルチャトフ研究所が提案したシステムと、米国 GE 社によって建設された Aquafluor 法による MIDWEST 燃料回収プラント (Morris 工場)のシステムの2件を抽出した。

ロシア・クルチャトフ研究所が提案したシステムは、使用済燃料中に大量に存在する U をフッ化物揮発法によって処理することにより、湿式再処理法の大幅なコンパクト化が図れる。米国 GE 社の Morris 工場は、フッ化物揮発法の高速精製能力に期待したシステムである。

その他、湿式再処理工程の前後に乾式再処理の技術を適用した例を2件抽出した。 これらは、乾式脱被覆法を用いた前処理、乾式再処理技術による高レベル廃液処理 などである。

(2) ハイブリッド再処理システムの提示と評価

フッ化物揮発法と湿式法、酸化物電解法と湿式法、フッ化物揮発法と溶融塩抽出法の組み合わせについて、それぞれ5方式、6方式および4方式の組み合わせを提示し、システムの特徴および MA、FP 分離回収方法、経済性、U、MOX燃料精製度および廃棄物発生量、核拡散抵抗性および固有安全性について比較検討した。

フッ化物揮発法と湿式法の組み合わせについては、ハイブリッドにより、U 精製度、 核拡散抵抗性、U および Pu のハンドリング性を向上させることができるシステムを 提示した。

酸化物電解法と湿式法については、湿式法-酸化物電解法の順の組み合わせでは、顆粒状燃料製造を可能とするシステム、また、酸化物電解法-湿式法の組み合わせにおい

ては、燃料精製度を向上させ、溶媒の放射線劣化を軽減できるシステムを提示した。 フッ化物揮発法と溶融塩抽出法の組み合わせでは、施設小型化、核拡散抵抗性向上 や U 精製度向上などの特徴をもつシステムを提示した。

さらに、3種類の再処理法の組み合わせ(2方式) ANL 型の金属電解方式と他方法のハイブリッドについて検討を行った。

(3)金属および窒化物燃料への適用性

上記(2)で提示したハイブリッド再処理システムに関し、それぞれ金属燃料および窒化物燃料への適用性について検討し、金属燃料あるいは窒化物燃料と酸化物燃料相互の転換工程を追加する必要性の有無を示した。

(4)湿式プロセスにおける MA 分離への乾式技術の採用

湿式法の一部に乾式プロセスの技術を組み入れる方法のうち、湿式プロセスにおける MA 分離へ乾式法の技術を適用する方法を検討した。乾式法の MA 回収技術は、原則的には廃液に適用され、電力中央研究所で開発されつつある金属抽出法、およびフッ化物揮発法の MA 回収プロセスを取り上げた。

8. 謝辞

本調査を遂行するに当たり、協力頂いた(株)日立製作所の笹平朗氏、高橋正典氏に感 謝の意を表します。

9. 参考文献

本報告書 3 章において抽出された文献は 3.2 節に示す。ここでは、これら以外の参考文献を示す。また、参考文献 3) は、4章、5章および6章において、各種の先進湿式、乾式再処理システムの組み合わせを検討するに当り、参考とした。

- 1) M. Benedict, et al., 清瀬量平訳、原子力化学工学、第 IV 分冊、「燃料再処理と放射性廃棄物管理の化学工学」、日刊工業新聞社(1984)
- 2) 木下、倉田:「高レベル廃液からの超ウラン元素の分離技術」、電中研レビュー第 37 号、p48-58(2000年1月)
- 3)核燃料サイクル機構/日本原子力発電株式会社:「高速増殖炉サイクルの実用化戦略調査研究(フェーズ)中間報告書[詳細編]、JNC TY1400 2000-004(2000 年 8 月)

10. 記号・略号の説明

TRU: Trans Uranium Element

MA: Minor Actinide FP: Fission Product

JST: Japan Science and Technology Corporation

JOIS: JST Online Information System

JICST: The Japan Information Center of Science and Technology

RRCKI: Russian Research Center Kurchatov Institute

NRI: Nuclear Research Institute Rez plc

SMR: Subcritical Molten Salt Reactor

EDF : <u>Electricite De France</u>

AMSTER : Actinides Molten Salt Transmuter

GEDEON: Gestion des Dechets par des Options Nouvelles

CEA : Commissariat a l'energie atomique

CNRS: Cetnre National de la Recherche Scientifique

GE: General Electric