



高速炉燃料再処理における新脱被覆システムの開発

鷲谷 忠博 小泉 健治 菅井 考一* 菅沼 隆 青瀬 晋一

東海事業所 環境保全・研究開発センター 先進リサイクル研究開発部
*常陽産業(株)

Development of New Decladding System in the Reprocessing Process for FBR Fuel

Tadahiro WASHIYA Kenji KOIZUMI Kouichi SUGAI* Takashi SUGANUMA Shinichi AOSE

Advanced Fuel Recycle Technology Division ,Waste Management and Fuel Cycle Research Center ,Tokai Works
* Joyo Industry Co.Ltd

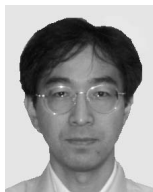
実用化戦略調査研究 (FS) の一環として、酸化物電解法による乾式再処理の前処理工程用脱被覆システムを開発中である。乾式再処理では酸化物燃料を熔融塩中へ溶解し易くするため、使用済燃料を粉体化して取り出す脱被覆システムが必須であるが、既存の技術では高速炉燃料の特性、処理能力等の観点から実用化が困難であり、新しい脱被覆システムが必要であった。本脱被覆システムは、燃料ピンの破碎工程、ハルと燃料の分離工程及びハルに付着した燃料の洗浄工程から構成される。破碎工程において解体後の燃料ピンが機械式破碎機により粉碎され、続く分離工程で磁気分離機によりハルと燃料成分に分離されて燃料成分のみが次の熔融塩電解槽へ移送される。ここで分離されたハルは、ハル洗浄工程において高周波誘導加熱により熔融され、金属成分のハルと酸化物の燃料成分に分離される。ここで分離回収された燃料成分は、再度、主工程に戻されるシステムとなっている。

As a part of the feasibility study (FS) on commercialization fast reactor cycle systems, JNC has been developing the fuel decladding technology for the dry reprocessing process (oxide electrowinning process). In this process, the spent fuel be reduced to powder for quick dissolution in the molten salt at electrolyzer. Therefore, JNC proposes a new decladding system with innovative mechanical decladding devices. The decladding system consists of fuel crushing stage, hull separation stage and hull rinsing stage. In the fuel crushing stage, disassembled spent fuel pins are crushed and powdered by mechanical decladding device, then the following stage, the hull and the fuel powder are separated by magnetic separator. Only the fuel powder is fed to the electrolyzer. On the other side, the separated hull is melted by induction heating method, and the small amount of oxide included in the hull fragments is recovered at the hull rinsing stage. The recovered oxide fuel is then fed back to the electrolyzer.

キーワード

機械式脱被覆, 機械式破碎機, 粉体化, 二軸せん断, ドラム型磁気分離機, 磁気分離, ハル熔融分離機, 高周波誘導加熱, 熔融分離

Mechanical Decladding, Mechanical Shearing/Crushing Device, Fuel Crushing Twin-Shaft Shearing, Drum Type Magnetic Separator Device, Magnetic Separation, Hull Melting Separation Device, Induction Melting, Hull Melting Separation



鷲谷 忠博

機器開発グループ所属
総括チームリーダー
高速炉燃料再処理の機器開発に従事



小泉 健治

機器開発グループ所属
チームリーダー
高速炉燃料再処理の機器開発に従事



菅井 考一

機器開発グループ所属
高速炉燃料再処理の機器開発に従事



菅沼 隆

機器開発グループ所属
サブグループリーダー
高速炉燃料再処理の機器開発に従事



青瀬 晋一

機器開発グループリーダー
高速炉燃料再処理の機器開発に従事

1. はじめに

1999年より実施しているFBRサイクル実用化戦略調査研究（FS）では、安全性、経済性、資源有効利用性、環境負荷低減性及び核拡散抵抗性の観点から、実用可能なFBR燃料サイクルの概念を検討しており、再処理の候補技術として乾式再処理技術及び湿式再処理技術の比較評価を実施している¹⁾。

乾式再処理技術のうち、酸化物燃料の乾式再処理（酸化物電解法）では溶融塩中に溶解させた使用済燃料中から電気化学法により酸化ウラン及び酸化プルトニウムを還元析出させて回収する。この際、処理速度の観点から使用済燃料を溶融塩中へ容易に溶解させるためには、投入する使用済燃料はあらかじめ粉体化処理しておく必要がある。また、運転コスト削減の観点から効率的に酸化ウラン及び酸化プルトニウムを還元析出させるためには、使用済燃料中の金属製構造材はできるだけ溶融塩中に混入させないことも必要である。このため、溶融塩電解工程の前処理工程となる脱被覆工程では、使用済燃料ピンの金属被覆管を除去すると共に燃料ペレットを粉体化して回収する機能が要求される。

これらの要求を満足する前処理技術について調査・検討を行った結果、以下が課題と考えられる。

- (1) 軽水炉使用済燃料の再処理工程で採用されているせん断による脱被覆法では、せん断時に燃料ペレットの一部が粉砕されるものの、粉砕率を向上させるためにせん断長を短くした場合、被覆管がつぶれ易くなるためにせん断された被覆管内への燃料の残留が懸念される。
- (2) ボロキシデーション（使用済燃料を加熱処理することで、酸化ウランや酸化プルトニウムの結晶構造を変化させて粉体化する技術）のような熱脱被覆法では、高プルトニウム富化度となるFBR燃料では粉体化しない可能性がある。
- (3) ローラにより被覆管外側部から荷重を加えて内部の燃料ペレットを粉砕するロール矯正法では、脆化した被覆管が破損するおそれやスペーサワイヤーの除去等のハンドリング性が課題と考えられる。

このように既存の前処理技術では要求機能を満足しないことが判明した。このため、2000年度より簡素な構成で効率の良い脱被覆技術を指向し、一般産業界において産業廃棄物処理技術として実

用化されている脱被覆技術の調査、検討を開始した。2001年度からは調査結果をもとに、単純な装置構造で、かつ簡素な処理作業である機械式脱被覆システム（機械式破砕／磁気分離／ハル洗浄）に関する小型の要素試験装置を製作し、模擬燃料ピンを用いた基礎試験を実施した。2003年度には破砕工程及び分離工程の要素試験装置を組み合わせた機械式脱被覆システム試験装置を第二応用試験棟の3階に設置した。現在、本装置を用いたシステム試験を準備中である。

本報では、機械式新脱被覆システムのこれ迄の開発経緯及び基礎試験の概要について報告する。

2. 機械式新脱被覆システムの構成

機械式新脱被覆技術を用いた酸化物燃料の乾式再処理用前処理システムの概念を図1に示す。本前処理システムは、燃料ピンの破砕工程、金属（以下、「ハル」と略す。）と燃料の分離工程及びハルに付着した燃料の洗浄工程の3工程から構成される。破砕工程で解体後の燃料ピンは「機械式破砕機」により粉砕され、続くハル分離工程で「磁気選別機」によりハルと燃料粉に分離され、燃料成分のみが次の溶融塩電解槽へ移送される。ここで分離されたハルは、ハル洗浄工程において高周波誘導加熱により溶融され、金属のハルと酸化物の燃料に分離される。ここで回収された燃料は、再度破砕工程に戻されるシステムとなっている。

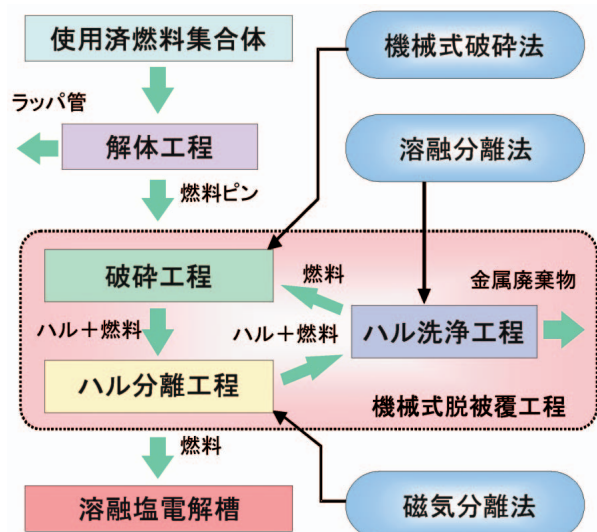


図1 新脱被覆技術を用いた乾式再処理用前処理システムの概念

3. 各工程における機器の概要

3.1 機械式破砕法による破砕工程

(1) 機械式破砕法の選定経緯

破砕工程に対する要求機能は燃料ピン被覆管内の燃料の取り出しであり、代表的な方法として熱処理法、ロール矯正法、機械式破砕法が考えられる。

熱処理法は加熱による酸化ウランの結晶構造の変化を利用した方法である。面心立方晶の酸化ウランの結晶構造は、加熱処理により斜方晶に変化することで結晶格子の歪みが生じて破砕される。これまでに、プルトニウム富化度の低い軽水炉燃料等を用いた微粉砕化の実績はあるものの²⁾³⁾、30%程度とプルトニウム富化度が高い高速炉燃料では同じ面心立方晶もしくは正方晶までしか酸化されないため、結晶格子の歪みが小さく破砕まで至らない可能性がある⁴⁾。

ロール矯正法はローラを用いて燃料ピン被覆管の外側部から荷重を加え、内部の燃料ペレットを粉砕する方法⁵⁾であるが、ピン外側部から荷重を加える際に脆化した被覆管が割れてしまうおそれがある。また、燃料ピン1本単位で処理を行う必要があるため、スペーサワイヤーの除去に係る負担や6 mm程度の小口径高速炉燃料ピンを考慮すると技術的に解決すべき課題は大きい。

一方、カッターミル、多軸せん断等の機械式破砕法は既に一般産業界の廃棄物処理分野における実績があると共に、簡素な装置構成で、複雑な処理作業も必要としないことから、燃料ピンの粉砕に適用可能と予想される。

以上より、高プルトニウム富化度燃料への適用性、燃料ピン取り扱い方法の実現性、装置構造及びシステムの簡素性等の観点から、脱被覆方式の候補として機械式破砕法を選定した。

(2) 機械式破砕法における適用技術の選定

一般産業界で用いられている機械式破砕の主な方式を図2に示す。

カッターミル方式は鋭利な刃物で破砕する方法であり、硬度の高いハルには不向きである。

ハンマーミル方式は回転するハンマーの衝撃により破砕する方法であり処理容量も大きく耐久性もあるが、金属パイプのような延性を有する対象物に対しては、内部の物質を封入した状態で押しつぶしてしまう可能性がある。

ボールミル方式は円筒内に収めた硬いミルボールを回転させミルボール間で対象物を破砕する方

	基本性能	機器構成	耐久性	
方式	(被覆除去)	(事前処理)	(刃物寿命)	
カッターミル	高	要 (端栓除去)	低 (カッター)	
多軸せん断	高	不要	高 (剪断刃)	選定
ハンマーミル	低			
ボールミル	低			
	高:高回収率	不要:構成簡素	高:長寿命	

図2 機械式破砕技術の比較

式であり、ハンマーミル方式と同様に延性を有する対象物には不適である。

シュレッダーに代表される多軸せん断方式は、処理容量は小さいもののハルの破砕処理も可能である。

これらの中から最適な方式を選定する。まずは、脱被覆装置として最も重要な基本性能である被覆管の除去性能、言い換えれば燃料の回収性能を考慮した場合、ハンマーミル方式及びボールミル方式は、延性を有する被覆管に対して内部の燃料を封入した状態で押しつぶしてしまう可能性があり被覆管の除去性能及び燃料の回収性能は低いため、選定候補から除外される。次に、メンテナンス性及び経済性として機器の耐久性を考慮した場合、カッターミル方式では鋭利な刃物を用いることから、被覆管の硬度を考えると刃物の寿命は低いと考えられる。

以上より、多軸せん断方式(二軸せん断破砕方式)が脱被覆技術として最も好ましい技術であると考えられる。本選定結果に基づき、これまでに要素試験装置を製作し、基本特性を把握する試験を実施してきている⁶⁾⁷⁾。

3.2 磁気分離法によるハル分離工程

(1) 磁気分離法の選定経緯

破砕工程において燃料ピンは二軸せん断破砕装置により粉砕処理され、燃料とハル等の金属破砕片が混在した状態で排出される。したがって、溶融塩電解槽へ粉体燃料のみを供給するためには、電流効率の低下等の要因となるハルの除去が不可欠である。

金属破砕片の代表的な分離方式として比重分離、渦電流分離、静電分離、摩擦分離が考えられ

るが、いずれも粉碎化燃料とハルの混合物の分離には有効ではない。

そこで、機械式破碎時に生じる機械的応力によってオーステナイト系ステンレス鋼である被覆管等の金属部分がマルテンサイト変態して強磁性化する事象を利用し、磁力によってハルと燃料(常磁性)を分離する磁気分離法を選定した。

(2) 磁気分離法における適用技術の選定

燃料/ハルの分離における磁気分離技術の適用性を確認するため、一般産業界での実績があり、かつ連続処理可能な静磁界型磁力選別機を用いた予備試験を実施した。

静磁界型磁力選別機的主要な種類及び原理を図3に示す。

ドラム型は回転ドラム内の半周部分に固定の磁石を設けた構造であり、ドラム頂部に供給した破砕片のうち、磁性体はドラム表面に沿って落下する間に磁場の影響を受けて磁性体側の排出口から排出される。一方、非磁性体は磁場の影響を受けないために回転ドラム前方のセパレータで分離され、非磁性体排出口から排出される。

ベルト型はベルトコンベヤのプーリ内に磁石を組み込んだ構造であり、破砕片の落下位置にセパレータを設置することによって自由落下する非磁性体とプーリに追従する磁性体を分離する。

対極型は空隙を介して磁石を対極に配置した構造であり、磁気ロータの極が空隙を介して回転することにより一種の磁気回路を形成するため、空

隙の局部に磁束が集中して強力な磁場が発生する。この空隙に破砕片を投入すると強磁性体は磁石に吸着し、比較的弱磁性のものは磁界に引き寄せられた形で落下し、非磁性体のもはそのまま自由落下することから、セパレータを適切な位置に設置することで磁性の程度に応じた分離が可能となる。

予備試験の結果、対極型では磁束密度が高いものの磁極間隔が狭く、かつ、比較的磁性の高い小粒径の破砕片では磁極に付着した破砕片の回収が困難であることから不適と判断した。ベルト型については放射線環境下におけるベルト素材の耐久性に難点があることから不適と判断した。以上を踏まえ、装置構造が簡素で、かつ、十分な分離性能を有する結果が得られたドラム型を選定した。本選定結果に基づき、これまでに要素試験装置を製作し、基本特性を把握する試験を実施している³⁾⁹⁾。

3.3 溶融分離法によるハル洗浄工程

(1) 溶融分離法の選定経緯

二軸せん断破碎では被覆管内に燃料を封じ込めた形態のハルが発生する。このハルは磁気分離により金属廃棄物側へ回収されるが、わずかながらも使用済燃料を含んでいるため、環境保護及び有効資源再利用の観点から金属廃棄物としての廃棄は得策ではない。そのため、ハル内部に封じ込められた燃料を回収する技術開発が必要となる。

ハルと酸化物を同時に高温溶融した場合、比重

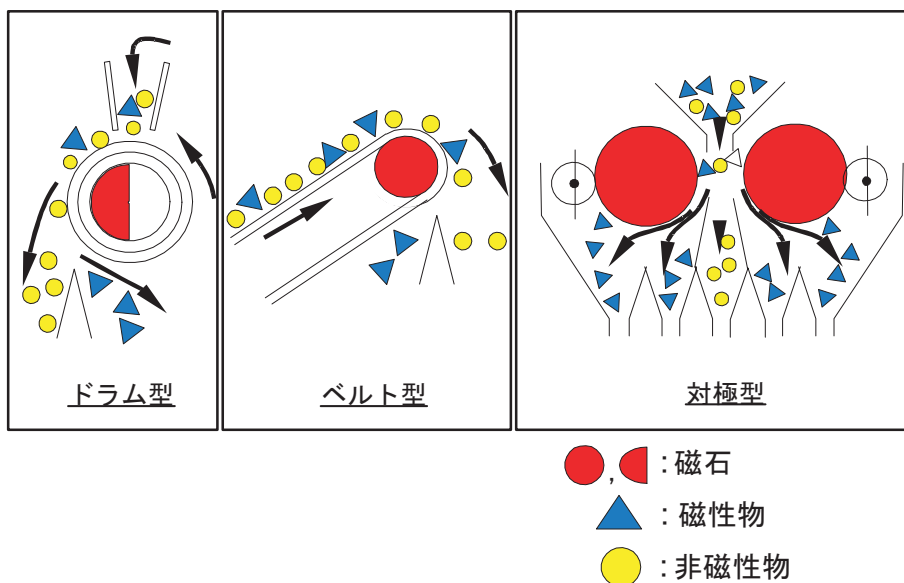


図3 連続式静磁界型磁力選別機の原理

差によりハルと酸化物が分離し、冷却固化した後ハルと酸化物は比較的容易に分離可能であることが知られている^{10),11)}。本特性を利用したものが一般工業界における金属精錬技術であり、純粋な金属を抽出するプロセスとして確立されていることから、本技術の目的を逆に利用することで、酸化物の抽出（ハルからの燃料回収）に適用できる可能性があると考えた。本発想は、既に汚染金属の溶融除染技術としてサイクル機構の他部署（環境保全・研究開発センター 環境保全部 環境計画課，技術開発グループ）において検討が進められている。本検討では、金属材料を汚染しているウランは、カルシア、シリカ、アルミナ等のスラグ材を添加して酸化ウランとしてスラグに包含させて除染するため、スラグが二次廃棄物として発生するデメリットがある。しかしながら、本件では酸化物燃料を対象とするため、スラグ材を添加しなくてもハルと分離する可能性があることから、溶融分離法を候補として選定した。溶融分離法によるハル洗浄の概念を図4に示す。

(2) 溶融分離法における適用技術の選定

燃料を封じ込めたハルの溶融炉としては、装置構造が簡単で、かつ、加熱性能に優れていることから、汚染金属の溶融除染技術にも適用されている高周波誘導加熱炉を選定した。これまでに小型装置を用いた基礎試験を実施している¹²⁾。

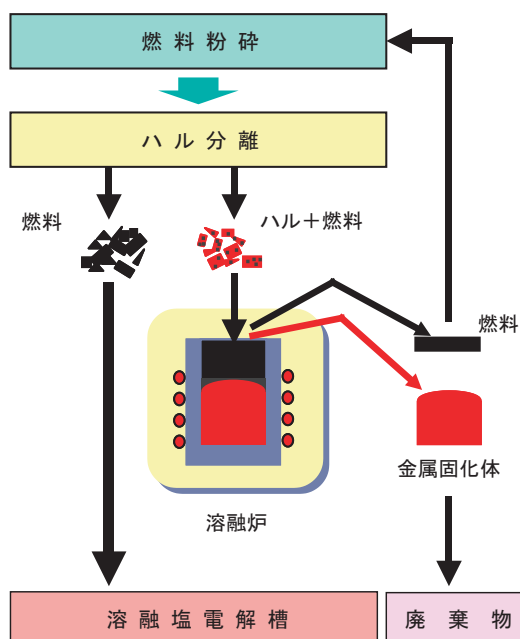


図4 溶融分離法によるハル洗浄の概念

4. 各工程機器の性能評価

4.1 機械式破砕法

(1) 試験目的

破砕工程に対する要求機能は、燃料ピン被覆管内から効率よく燃料を取り出すと共に粉体化することである。その際、被覆管内への燃料の残留や装置内部への燃料の滞留は燃料回収率（破砕前の燃料質量に対する破砕後に回収した燃料質量の比）を低下させることから、機械式破砕法によるこれらの特性を十分に把握しておく必要がある。また、破砕後に回収される燃料及びハルの粒径分布は、次工程の磁気分離による分離特性を把握する上で必要な情報となる。したがって、本試験では燃料回収率及び破砕片の粒径分布データの取得を目的とする。

(2) 試験装置

二軸せん断破砕方式による試験装置の構造及び各部外観写真を図5に示す。試験装置は全長約2.5m、全高約2m、奥行き約1mであり、積層された二軸の上下回転刃とその下部にスクリーンが設置されている。回転刃は5個の爪を持つ構造で直径320mmであり、スクリーンは幅350mm、穴径6mm、穴間ピッチ11mmである。投入された模擬燃料ピンは回転刃でせん断破砕された後、スクリーンから排出される。スクリーンの穴径よりも大きな破砕片はスクリーン上に残留することで、

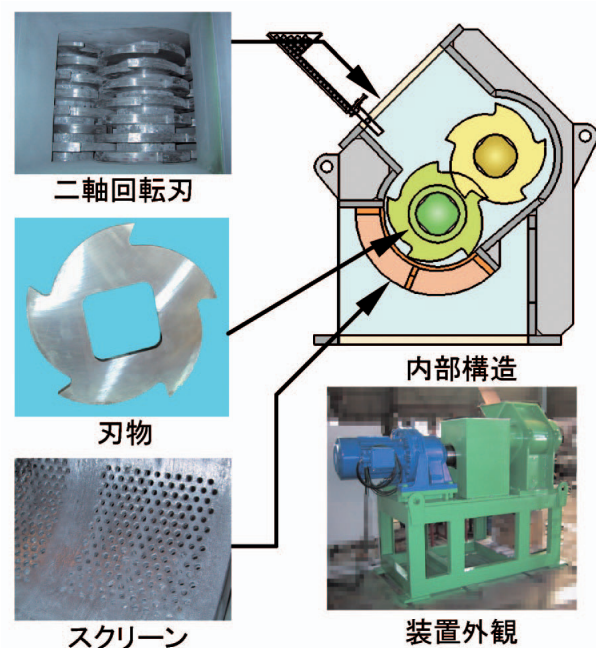


図5 二軸せん断方式の機械式破砕試験装置の概要

再度、回転刃により掻き上げられ、スクリーン穴径より小さい径になるまで繰り返し破碎される。

(3) 試験方法

約40秒間隔で模擬燃料ピンを1本ずつ投入口から投入し、破碎終了後、装置内の残留物（刃物間の隙間やスクリーンの目も含む）スクリーン上の残留物、スクリーンからの排出物とに分けて回収する。各破砕片についてハルと模擬燃料ごとの粒径分布、質量測定を行うと共に、得られた質量値から燃料回収率を算出した。

試験では高速増殖炉「もんじゅ」の炉心燃料ピンを模擬したものを使用した。寸法は全長300mm、直径6.5mmであり、被覆管の材質はSUS316、内部の燃料ペレットはアルミナを用いた。また、下部端栓とスペーサワイヤを取り付けた。試験では燃料集合体1体相当となる169本を粉碎した。回転刃の回転数は11rpm前後であり、刃物間の隙間への残留物の詰まりを防止するため、上下で刃物の回転数を変えている（上刃物：10.2rpm、下刃物：11.3rpm）。

(4) 試験結果及び考察

破碎後の燃料、ハルの状況及び粒径分布を写真1及び図6に示す。燃料の破砕片は1～2mmに、ハルの破砕片は4mm付近にピークを有することが分かる。

続いて、破碎前後のハル及び燃料（アルミナ）の質量割合を図7に示す。ここでは模擬燃料ピン製造時の総質量を100%として算出した。破碎後、スクリーンから排出されて回収した燃料の質量比は40.1%、ハルは58.4%であり、燃料回収率としては約97%であった。一方、装置内部に残留した破砕片の質量比は約0.8%程度であり、回収できなかった質量比は約0.7%であった。

本結果から、燃料回収率を向上するためには装

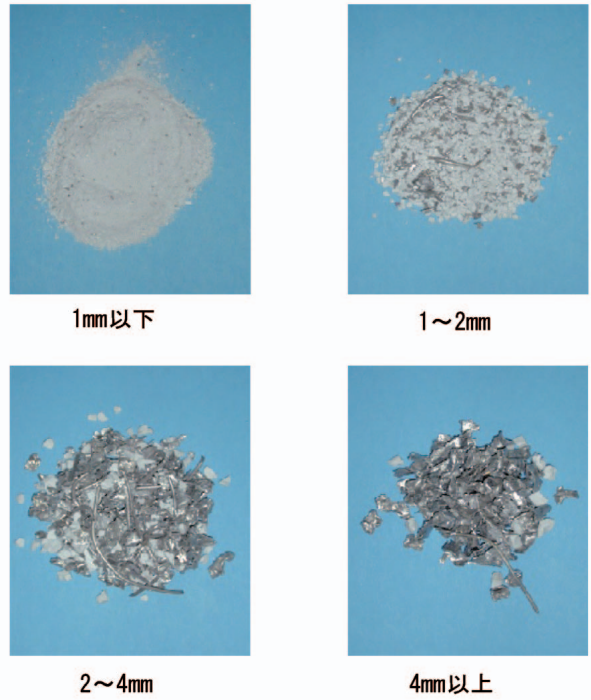


写真1 機械式破碎試験後の破砕試料片

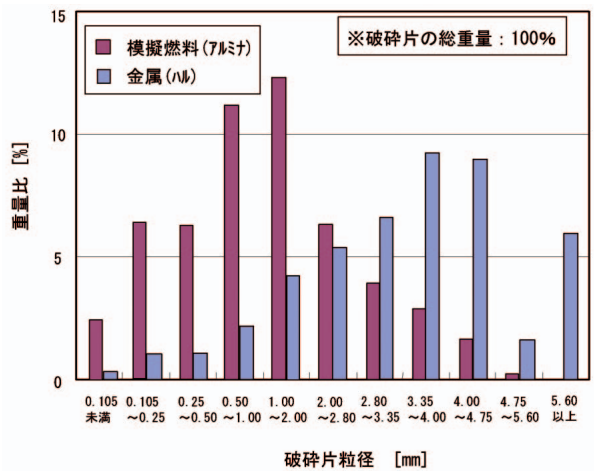
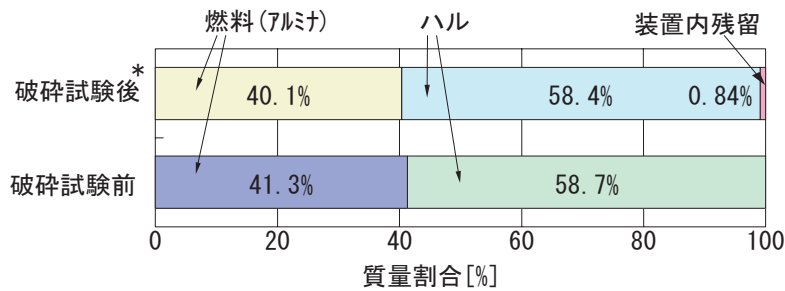


図6 機械式破碎試験後の燃料、ハルの粒径分布



*: 破碎試験後の未回収割合0.7%を含む

図7 機械式破碎試験前後の質量割合

置内残留物の低減が必要であることがわかった。これまでの検討から、刃物間の残留物については、上下の刃物の回転数を変更することで回転刃の位相差による掻き出し効果によりほぼ零となった。また、スクリーン上の残留物については、刃物の厚みを増加すると共に刃物とスクリーン間の間隔を小さくして、破砕片の掻き上げ効果及び小粒径化を促進することで半減できた。なお、スクリーン上の残留物はスクリーンと刃物隙間に残留するため、隙間容積以上に増大することはないものと予想されることから、大量の燃料ピンを処理する商業規模装置では燃料ピン処理数に対して相対的に低減すると考えられる。今後の課題は、刃物、スクリーンの耐久性の把握と長寿命化の検討である。また、磁気分離装置と組み合わせたシステムとしての検証を行う必要がある。

4.2 磁気分離法の基礎試験

(1) 試験目的

ハル分離工程に対する要求機能は、機械式破砕装置から排出された破砕片の中から燃料だけを効率良く分離回収することである。磁気分離法では、ハル部分の磁性特性（磁化率）と装置の運転条件（磁力密度、ドラム速度）が燃料分離効率（非磁性体側の燃料質量 / 分離前の燃料総質量）及び分離回収後の燃料純度（非磁性体側の燃料質量 / 非磁性体側の総質量）に影響する。そこで、本試験ではこれらの因子が燃料分離効率、燃料純度に及ぼす影響の把握を目的とする。

(2) 試験装置

ドラム型磁気分離装置の概要及び外観図を図8に示す。高磁束密度を得るため、ネオジウム・鉄・ボロン系の希土類の永久磁石を採用すると共に、ドラム表面における磁束密度を増大するため、ドラム内の主磁極に加えてドラムに対向する位置に補助磁極を設置した。試験装置は全高930mm、全幅1,300mmであり、ドラム寸法は直径400mm、幅430mmである。主磁極単独でのドラム表面の磁束密度は最大0.77Tであり、補助磁極を加えた場合は最大0.93Tとなる。また、ドラム速度はインバータ制御により10~70m/minの範囲で可変である。

(3) 試験方法

破砕片試料は、模擬燃料ピンを二軸せん断破砕装置で破砕したものをを用いた。運転終了後、回収

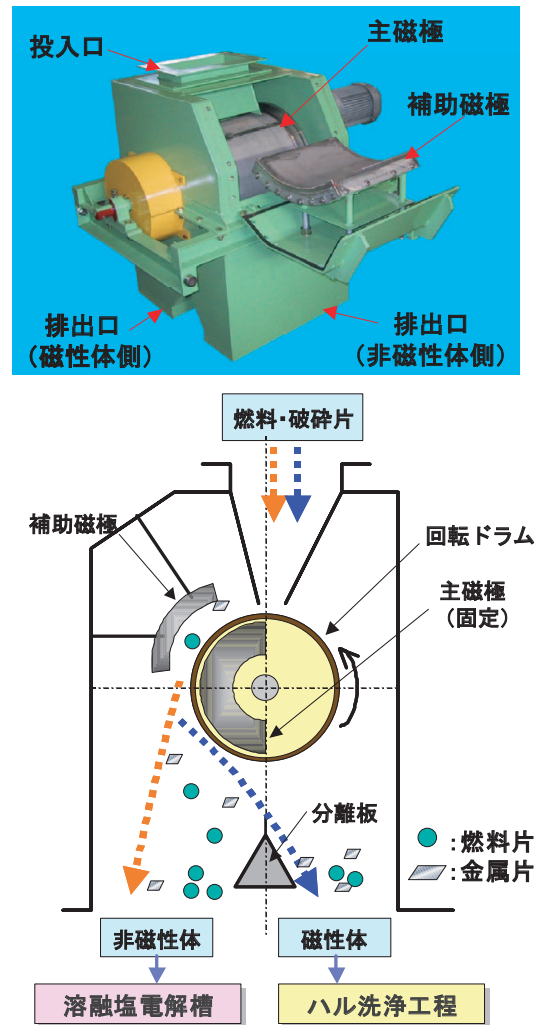


図8 ドラム型磁気分離試験装置の概要

された磁性体側、非磁性体側の各排出試料中におけるハル、燃料を分離し、各質量を計測することにより、分離効率、燃料純度を導出した。

機械式破砕法により細かく破砕されたオーステナイト系ステンレス鋼のハルは、破砕時のひずみによりマルテンサイト変態し強磁性体となる。振動試料型磁力計を用いて磁化曲線を測定し、その曲線上の最大磁化率から求めた単位質量あたりの磁化率、すなわち質量磁化率と粒径の関係を図9に示す。本図より小粒径の金属破砕片ほど質量磁化率が高いことが分かる。これは、破砕時にひずみを受けた部位のみが変態するため、大粒径では変態を起こしていない部分の割合が大きくなり破砕片としての磁化率が低下するためと考えられる。

磁場中の磁性体に作用する磁力は、一般的に(1)式で示すことができる。

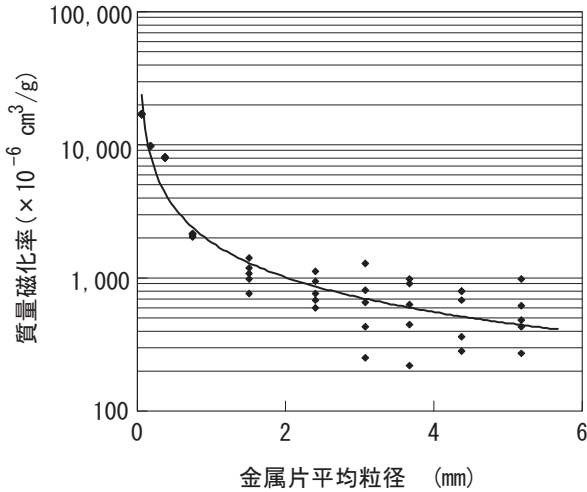


図9 質量磁化率と金属片粒径の関係

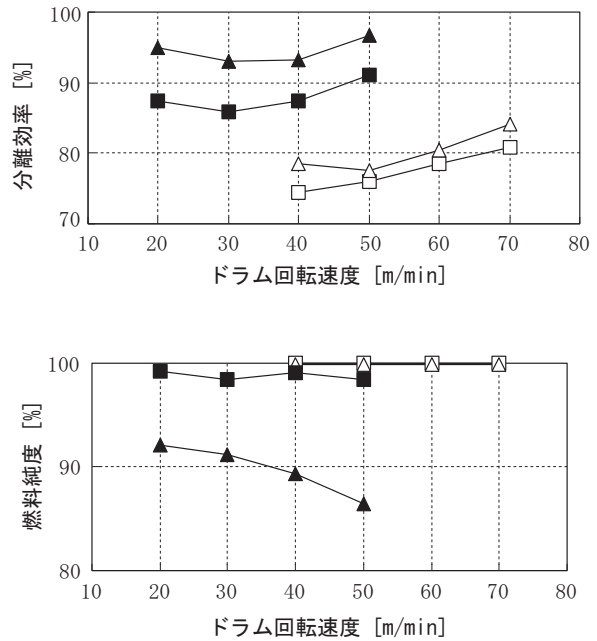
$$F_x = m(\kappa - \kappa_0)H \frac{\partial H}{\partial x} \quad \dots(1)$$

ここで、 F_x 、 m 、 κ 、 κ_0 、 $\partial H/\partial x$ はそれぞれ磁性体が受ける磁力、磁性体の質量、磁性体の質量磁化率、空間の質量磁化率、磁場強度、磁場勾配を示している。(1)式より磁性体に作用する磁力は、磁化率に比例することが分かる。一方で、磁力は質量にも比例するが、図9に示すように粒径による磁化率増加の影響が大きいので、小粒径の金属破砕片の方が受ける磁力は大きいと予測される。このため、粒径と金属破砕片の磁化率の関係を踏まえて、破砕片を燃料が大半を占める粒径範囲と、ハルが大半を占める粒径範囲に分離して個別に適した条件で磁気分離を行うと効率よく分離できると予測される。なお、前述の機械式破砕試験結果から1mmを分級境界とすることにより燃料とハルの粗分離が可能であることから、1mmを基準に小粒径と大粒径に大別した予備試験を実施した結果、効率よく分離できることが確認されたことから、破砕片の分級境界を1mmとして粒径別の分離試験を行った。

予備試験条件を参考に、ドラム表面の磁束密度を0.5Tと0.93Tとし、ドラム速度は1mm以下の破砕片に対しては40~70m/min、1mm超の破砕片に対しては20~50m/minとした。また、破砕片の供給速度は約20kg/hとした。

(4) 試験結果及び考察

図10にドラム型磁気分離装置の分離効率及び燃料純度を示す。ここで、分離効率は分離前燃料の総質量に対する非磁性体側に回収された燃料の質量比を示し、燃料純度は非磁性体側の回収物総質



磁束密度	燃料粒子径	
	1mm以下	1mm超
0.50T	△	▲
0.93T	□	■

図10 ドラム型磁気分離装置の分離特性

量に対するそのうちの燃料の質量比を示している。粒径1mm以下の破砕片においては磁束密度に関係なく、金属破砕片の質量磁化率が高いことに起因して99%以上の高燃料純度が得られるが、燃料の巻き込みにより燃料分離効率は低下している。この時、磁束密度が低い方が高い分離効率を得ている。またドラム周速度が上昇するほど分離効率は上昇している。

一方、粒径1mm超の破砕片においては、磁束密度が低いと金属破砕片の磁化率が低いので燃料純度は低下するが、燃料分離効率は向上している。また、ドラム速度が上昇すると磁束密度によらず分離効率は上昇するが、燃料純度は磁束密度が低いと低下している。

したがって、燃料純度、分離効率向上のためには、ドラム速度を上げた上で粒径1mm以下の小粒径破砕片に対しては磁束密度をやや低くし、また、粒径1mm超の破砕片に対しては磁束密度を高くする必要がある。このように破砕後に行う磁気分離においては、小粒径用磁気分離装置と大粒径用磁気分離装置の各装置に効果的な運転条件を設定して効率の良い分離を行う必要がある。

今回の試験では、1mm超の粒径に対し磁束密度

0.93T, ドラム速度50m/min, 1mm以下の粒径に対し磁束密度0.50T, ドラム速度70m/minの組合せ条件により, 分離効率86.2%, 燃料純度99.1%を達成している。

図11に磁気分離後の磁性体側及び非磁性体側における破砕片の粒径分布を示す。ハル及び燃料破砕片の総質量を100%として質量比で示している。

磁束密度が高いほど磁性体側への小粒径の燃料片の混入が増加しており, 分離効率を低下させる要因になっていることが分かる。これは, 小粒径の高磁化率のハルが磁性体側へ回収される際に, 磁場に引きずられ磁気凝集を起こし, 小粒径の燃料片を抱え込み磁性体側に巻き込んでしまうためと推定される。

一方, 磁束密度が低いほど非磁性体側への大粒径のハルの混入が増加しており, 燃料純度を低下させる要因となっていることが分かる。これは, 大粒径ハルの磁化率が低いため, 磁性体側へ回収される程の磁気力が作用しないためである。以上の通り, 燃料純度と分離効率は相反する関係にあるため, 燃料純度が高いと分離効率が比較的

低い値となっている。今後, 分離効率改善のため, 多段磁気分離による小粒径燃料片の回収方法の検討を行う予定である。

4.3 ハル溶融分離法の基礎試験

(1) 試験目的

ハル洗浄工程においては, 前工程の磁気分離装置において磁性体側に回収されたハル中の混入燃料及びハル中に封入された燃料の回収を行い機械式脱被覆システム全体としての燃料回収率の向上を図る。したがって, ハル洗浄法として選定した溶融分離法により効率よくハルと燃料の分離が行われることを確認する必要がある。そこで, ハルとウラン酸化物混合物の溶融時におけるウラン酸化物の基礎的な挙動を把握する目的で, 溶融基礎試験を実施した。

(2) 試験装置

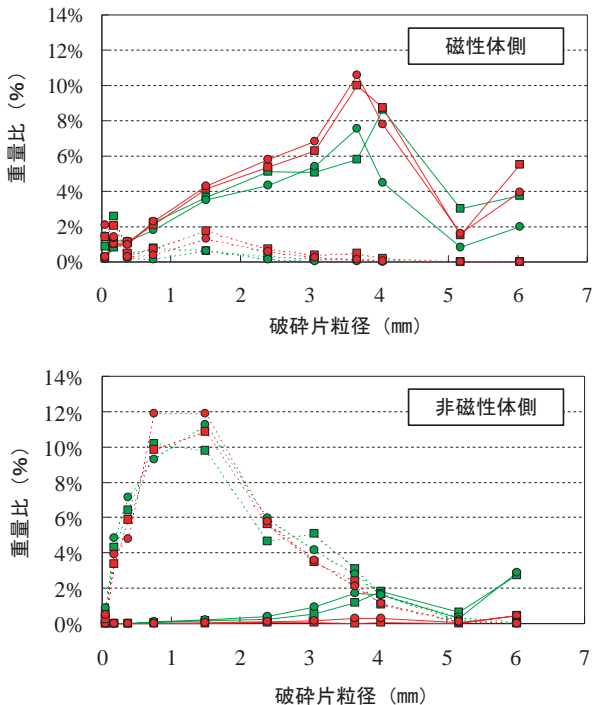
写真2に高周波誘導加熱炉を用いた試験装置の概略図を示す。装置は, 誘導コイル・ガラス管・外側るつぼ(アルミナ製, 97×78×H185(mm))・内側るつぼ(74×60×H160(mm))・熱電対保護管・蓋・排ガスサンプリング配管等から構成される。高周波電源は, 定格が30kW 3kHzである。内側るつぼ材質には金属溶融に一般的に用いられるMgO耐火物製とし, 耐熱衝撃性に優れた多孔質るつぼに, 耐食性に優れたZrO₂コーティング材を塗布し乾燥させたものを用いた。

(3) 試験方法

るつぼ内に初装用模擬ハルを敷き詰め, その上に溶融助材を乗せて初装材料とした。排ガスダストサンプルを採取するため, 排ガスラインにダスト捕集フィルタを設置した。

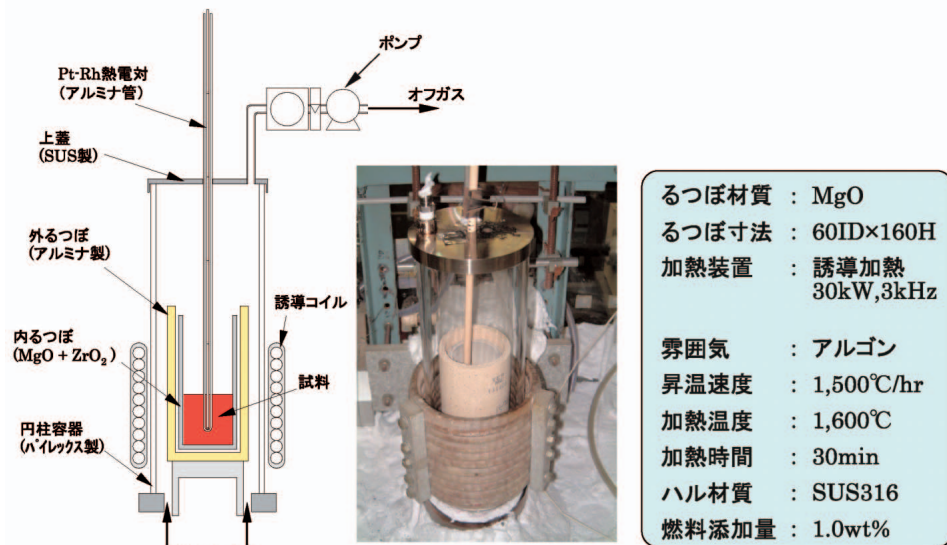
昇温速度が約1,500 /hとなるように出力を調節した。目視にて初装材料が全量溶融したことを確認したのちに, 追装材料を一つずつ溶湯中に追装した。追装材料が溶融後, 1,600 に到達したところで出力を下げ, 1,600±20 となるように出力を調整し, 30分間保持した。保持終了後, コイルへの通電を停止した。るつぼは高周波コイル内に設置したまま放冷し, 溶融体を凝固させた。室温まで冷却した後, るつぼを高周波コイルから取り出し, るつぼを破壊して中の金属固化体及び酸化物を取り出した。金属固化体及び酸化物は重量を秤量し, 溶融前後のマテリアルバランスを検討した。

外形12mm, 内径11mmのSUS316チューブを切



磁束密度	ドラム速度		金属	燃料(アルミ)
	1mm以下	1mm超		
0.50T	40 m/min	20 m/min	—■—	—●—
	70 m/min	50 m/min	—○—	—□—
0.93T	40 m/min	20 m/min	—■—	—●—
	70 m/min	50 m/min	—○—	—□—

図11 磁気分離後の破砕片の粒径分布



るつぼ材質	: MgO
るつぼ寸法	: 60ID×160H
加熱装置	: 誘導加熱 30kW, 3kHz
雰囲気	: アルゴン
昇温速度	: 1,500°C/hr
加熱温度	: 1,600°C
加熱時間	: 30min
ハル材質	: SUS316
燃料添加量	: 1.0wt%

写真2 ハル溶融試験装置

断し、長さ40mm（通電開始時にるつぼ内に入れておく初装用）33本、60mm（るつぼ内材料が溶融したのちに追加する追装用）39本での模擬被覆管を製作した。

酸化ウラン粉末を圧縮して焼結させ、直径10mmの模擬核燃料ペレットを作製し、ハンマーで最大のもので粒径が3mm前後となるように粉砕したものを模擬核燃料とした。写真3に模擬核燃料を粉砕した状態を示す。初装、追装用の模擬被覆管の約半数（15本及び19本）の片方の端を圧縮して封止し、内部に模擬核燃料粒子を入れてもう一端も封止し、模擬ハルとした。添加量は模擬被覆管重量の1.0wt% - 酸化ウランとした。

(5) 試験結果及び考察

るつぼを割り金属固化体側面を露出させた状態を図12に示す。金属固化体側面に模擬核燃料粒子が付着していた。目視では、上面及び底面に粒子の付着は認められなかった。側面に付着した模擬核燃料粒子は金属相に食い込んでおり、軽くたたく程度では剥がれ落ちなかった。このため、タガネを用いてはつきり落とした後、表面に残存している模擬核燃料を除去するため、金属固化体を1N硝酸に浸し、表面に20分間の超音波洗浄を行った。表面に残存していた模擬核燃料粒子及びZrO₂コーティング材等はほぼ剥離し、表面は金属光沢を帯びていた。

表1に固化体金属の表面及び金属相中のウラン分析結果を示す。金属固化体内部サンプルの王水

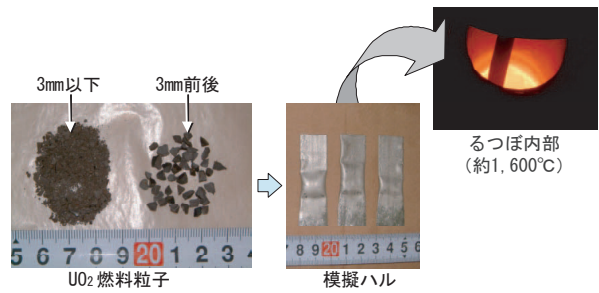


写真3 模擬ハルの状況

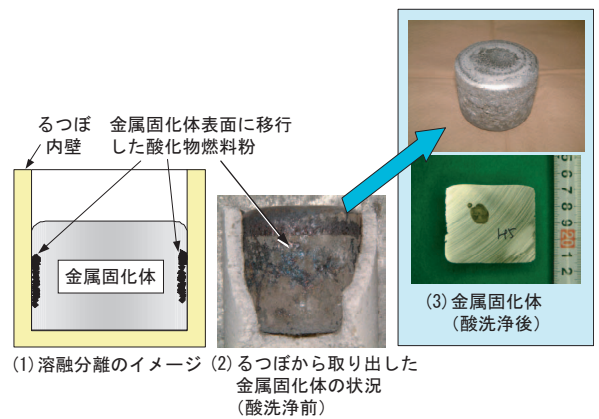


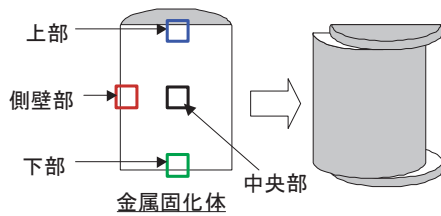
図12 ハル溶融試験後の金属固化体の表面

溶解によるウラン分析では、ウラン濃度が1.0ppm程度であり、ウランメタル量では0.9mgに相当する。この量は全添加ウラン量のわずかに0.01%程度である。

以上の結果より、高周波誘導炉を用いれば、ウ

表1 金属固化体へのウラン移行量

金属固化体 サンプル部位	U濃度 (ppm)	平均U濃度 (ppm)	U量 (g)	移行率 (%)
上部	1.0	1.0	8.79×10^{-4}	0.01
中央部	1.0			
下部	1.0			
側壁部	0.8			



ラン酸化物が熔融金属へ移行する量はごくわずかであり、熔融後のウラン酸化物は金属固化体とるつぼ側壁の間に集中し、それらの燃料は金属固化体表面に露出した状態になることがわかった。

今回のハル熔融分離基礎試験における高周波誘導加熱方式の適用検討により、ハルに残存する核燃料回収へ熔融分離が適用可能であることを確認できた。現在、核燃料物質の回収を容易にする方法として、誘導によってハルを加熱熔融するとともに、るつぼからハルを浮揚させるCCLM (Cold Crucible Levitation Melting) 炉を使用した熔融試験について検討中である。

5. おわりに

新たな脱被覆システムである機械式脱被覆システムは、機械式破砕法による破砕工程、磁気分離法によるハル分離工程及び熔融分離法によるハル洗浄工程にて構成される。各工程の選定技術に関する基礎試験の結果、以下の結論を得た。

5.1 機械式破砕法による破砕工程

- (1) 使用済燃料ピンを破砕し、粉体燃料を取り出す機械式破砕法として二軸せん断破砕方式を選定した。
- (2) 基礎試験の結果、燃料ピンの破砕が可能であることを確認するとともに、燃料ピン中の燃料の回収率として約97%を得た。
- (3) 破砕片の粒径分布は、燃料の破砕片が1～2mmに、ハルの破砕片が4mm近傍にそれぞれピークを有する。
- (4) 今後、刃物、スクリーンの耐久性の把握と長寿命化の検討、磁気分離装置と組み合わせた場

合のシステム特性の検証及び遠隔保守性を考慮した構造検討が必要である。

5.2 磁気分離法によるハル分離工程

- (1) 機械式破砕片中から燃料を分離回収する磁気分離法としてドラム型磁気分離方式を選定した。
- (2) 基礎試験の結果、破砕時のひずみにより被覆管等のオーステナイト系ステンレス鋼のハルがマルテンサイト変態し強磁性化すること、並びに本特性により燃料(アルミナは反磁性、実燃料は常磁性)と分離が可能であることを確認した。
- (3) 燃料とハルの粒径分布が異なること、並びに粒径が小さいほどハルの磁化率が上がることから、小粒径と大粒径に分別して磁気分離を行うことにより高い分離性能を得ることが可能であった。今回の試験では、分離効率86.2%、燃料純度99.1%を得た。
- (4) 分離効率を下げる原因は、高磁化率の小粒径ハルが小粒径の燃料片を巻き込んで磁性体側へ分離されるためと推定される。今後、改善策の検討が必要である。また、磁石の耐放性及び遠隔保守性を考慮した構造検討が必要である。

5.3 ハル熔融分離法によるハル洗浄工程

- (1) 磁気分離装置において磁性体側に回収されたハル中の混入燃料及びハル中の封入燃料を回収するハル熔融分離法として高周波誘導加熱方式を選定した。
- (2) 基礎試験の結果、ハルに残存する核燃料回収法として熔融分離法の適用可能性が確認できた。また、ウラン酸化物が熔融後の金属固化体内部へ移行する量は全添加ウラン量のわずか0.01%程度あり、その他の燃料は金属固化体表面に露出した状態になることを確認した。
- (3) 今後、分離された燃料の効率的な回収技術の検討が必要であり、CCLM等の技術が有望と考えられる。

今後の開発計画として、機械式脱被覆システム試験装置(図13)を用いた工学的なシステム性能評価及びハル熔融分離法における回収技術の検討等を実施していく。

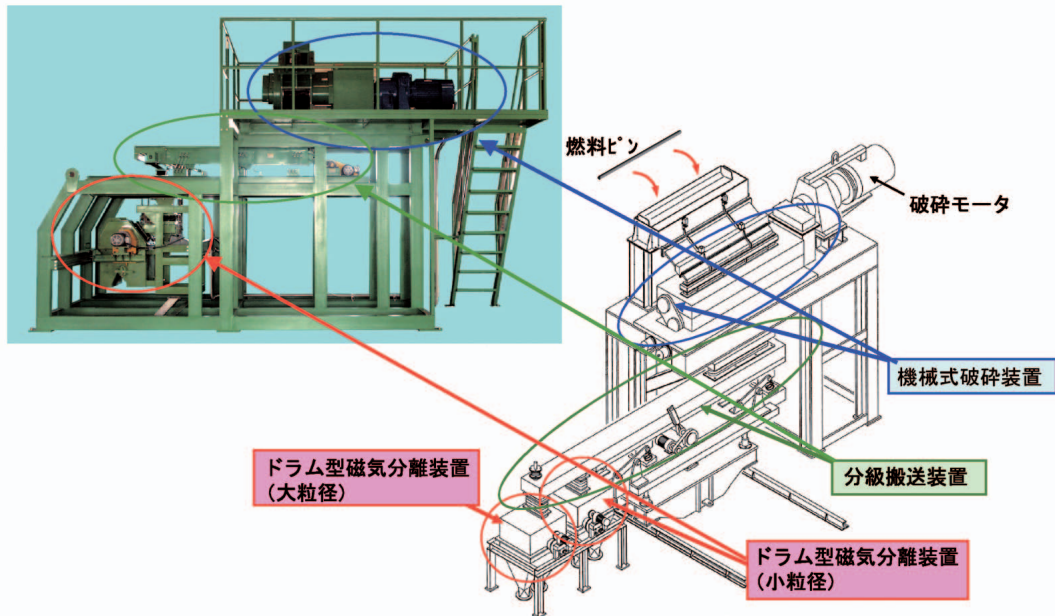


図13 機械式脱被覆システム試験装置

参考文献

- 1) K.Fujii,A.Inoue,T.Namba,et al.“ Conceptual Design on Oxide Electrowinning Method for FR Fuel Cycle ”, Proc.Global 2003,(2003).
- 2) T. Hara, Y. Kosaka, K. Itoh, et al.“ Dry pyrochemical technique for the oxide fuel decladding ”, Proc. Japan-Korea Workshop on Nuclear Pyroprocessing, Kyoto, Japan, Feb. 5 6, 2002, pp134 137,(2002).
- 3) Y. Kosaka, K. Itoh, H. Kitao, et al: “ A Study on the Dry Pyrochemical Technicque for the Oxide Fuel Decladding ”, J. of Nucl. Sci. and Technol., Supplement 3, pp902 905,(2002).
- 2) T. Hara, Y. Kosaka, K. Itoh,et al“ Dry pyrochemical technique for the oxide fuel decladding ”,Proc. Japan-Korea Workshop on Nuclear Pyroprocessing,Kyoto, Japan, Feb.5 6, 2002, pp134 137,(2002).
- 3) Y. Kosaka, K. Itoh, H. Kitao, et al: “ A Study on the Dry Pyrochemical Technicque for the Oxide Fuel Decladding ”, J. of Nucl. Sci. and Technol., Supplement 3, pp902 905,(2002).
- 4) 川瀬啓一, 吉田真之, 遠藤秀男他:“ 低密度ペレット製造条件確立試験(10) - 酸化破碎による乾式回収試験(2) - ”, PNC TN8410 94 227,(1994).
- 5) W. D. Bond, J. C. Mailen, G. E. Michaels,“ Evaluation of Methods for Decladding LWR Fuel for Pyroprocessing-Based Reprocessing Plant ”,ORNL-TM-12104,(1992).
- 6) 山田誠也, 小泉務, 小山智造他, “ 高速炉燃料再処理用機械式脱被覆法の開発(1) - 多軸せん断破碎方式による脱被覆予備試験 - ”,日本原子力学会2001年秋の大会予稿集, N2, pp801 ,(2001).
- 7) 山田誠也, 竹内正行, 小泉務他, “ 高速炉燃料再処理用機械式脱被覆法の開発(2) - 二軸せん断破碎方式による脱被覆要素試験 - ”,日本原子力学会2002年秋の大会予稿集, B58, pp524 ,(2002).
- 8) 竹内正行, 山田誠也, 小泉務他, “ 高速炉燃料再処理用機械式脱被覆法の開発(3) - 磁気分離法による燃料分離予備試験 - ”,日本原子力学会2002年秋の大会予稿集, B59, pp525 ,(2002).
- 9) 山田誠也, 竹内正行, 鷲谷忠博他, “ 高速炉燃料再処理用機械式脱被覆法の開発(5) - 磁気分離法による燃料分離要素試験 - ”,日本原子力学会2003年秋の大会予稿集, I12, pp497 ,(2003).
- 10) 鈴木正啓, 宮尾英彦, 榎戸裕二他, “ コールドクルーシブルによる解体金属の溶融技術について() ”,デコミッションング技報, No.24, pp14 26 ,(2001).
- 11) M. Aoyama, Y. Miyamoto, M. Fukumoto, et al, “ Develop-ment of Metal Refining Decontamination Technology for Low Level Radioactive Metal Waste Contaminated with Uranium ”, JNC TW8411 2003-011,(2003).
- 12) 小泉務, 山田誠也, 竹内正行他, “ 高速炉燃料再処理用機械式脱被覆法の開発(4) - ハル溶融分離における高周波誘導加熱方式の適用検討 - ”,日本原子力学会2002年秋の大会予稿集, B60, pp526 ,(2002).