

# 使用済燃料の再処理—高速炉燃料の再処理—

## Development of FBR Fuel Reprocessing

林 正 太 郎\*

Shotaro Hayashi

### 1. はじめに

わが国は、エネルギー資源の大消費国でありながらほとんどを海外に依存する大輸入国であり、資源を可能な限り有効に利用することが重要である。このことは、ウラン資源として例外ではない。そのため、発電に使用した使用済燃料を再処理し、回収したウラン、プルトニウムをリサイクルする路線がとられてきた。

高速炉は、回収したプルトニウムを燃料として利用しつつ、プルトニウムを再生産できるため、燃料のリサイクルによりウラン資源を最大限に利用できるという理想的なサイクルを構築できる。一方、将来のエネルギー需要予測によれば、開発途上国のエネルギー需要が大幅に増大し、世界のエネルギー供給が逼迫することは必至である。また、化石燃料利用による地球環境への影響を低減化する手段としても原子力が注目されている。

このような観点から、動燃事業団では、高速炉サイクルシステムの確立を目指し、高速炉の開発を進めるとともに、高速炉燃料のリサイクル技術開発を進めている。

ここでは、高速炉燃料リサイクルの要である高速炉燃料再処理の技術開発について、現状と将来の開発の動向について述べる。

### 2. 技術開発の経緯

世界の原子力発電用の燃料の主流は酸化物燃料であり、高速炉においてもウラン (U) とプルトニウム (Pu) の混合酸化物燃料 (MOX燃料) が開発されてきた。わが国の実験炉「常陽」、原形炉「もんじゅ」にもMOX燃料が装荷され、再処理技術の開発も高速炉の開発と整合を取りつつMOX燃料を対象に推進し

てきた。

高速炉燃料の再処理は基本的には軽水炉燃料の再処理と同様で、燃料を小片に剪断し、硝酸溶液に溶解し、ドデカン等で希釈した磷酸トリブチルを抽出溶媒に用いてU、Pu、核分裂生成物 (FP) を分離するピューレックス法が採用できる。従って、両者共通の技術が多いが、高速炉燃料の特徴により、次のような特有の技術開発課題がある。

- ① 燃料集合体がステンレス鋼製のラッパ管で覆われているので、燃料の剪断に先立ち、ラッパ管を除去しなければならない。また、燃料ピンにはワイヤがスペーサーとしてまきつけてあり、燃料処理時にワイヤの巻き込みの防止が必要である。
- ② 炉心燃料の燃焼度が軽水炉の場合に比べて高く、溶解特性の把握が必要である。また、FPの含有率が高くなるため、不溶解残渣の生成量が多くなり、清澄工程での残渣の除去、抽出工程での溶媒の放射線劣化の低減に配慮が必要である。
- ③ 炉心燃料中の核分裂性物質の含有量が、軽水炉の場合に比べて高いため、臨界管理上機器を小型化するとともに、U、Pu分配工程のPu還元方法に改良が必要である。

動燃事業団ではこれらの課題を解決すべく1970年頃から基礎試験と調査を開始し、1975年から本格的な開発に着手した。高速炉燃料に対するプロセスの確証のため実照射済燃料を用いた実験室規模でのプロセス試験、コールド工学規模で工程機器の開発、基盤技術である遠隔保守技術、分析技術、材料技術など総合的に技術開発を推進している。更に、海外との技術協力を進め、特に米国とは1988年度から前処理技術、抽出技術、遠隔技術等の分野で共同研究を実施している。これらの技術開発の結果、高速炉燃料再処理特有の技術課題を解決し、高度化したプロセスや機器の技術見通しを得た。現在、技術開発成果を集約して、「もんじゅ」の燃料を用いて、高速炉燃料再処理用の機器および

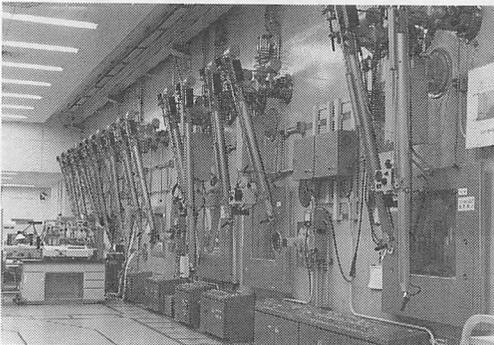
\*動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所再処理工場副工場長  
〒319-11 茨城県那珂郡東海村村松4-33

プロセスについて実環境下での工学規模の試験を行う施設（リサイクル機器試験施設）の計画を進めている。

### 3. 技術開発の現状

#### 3.1 プロセス技術開発

実験室規模の基礎的なホット試験を行うため、高レベル放射性物質研究施設（CPF）を建設し、1982年から試験を開始した。CPFは2系列のホットセルラインを有し、一方の系列は高速炉燃料再処理の研究のために5つのセルとグローブボックス群から構成されており、燃料ピンの単位で剪断からMOX粉末への転換まで一連の試験ができる（写1参照）。現在までに「常陽」、英国「ドンレイ炉」、仏国「フェニックス炉」で照射した燃料を用いて、燃料の溶解特性、不溶解残渣の性状、抽出特性等を把握してきた。その結果、高速炉燃料の再処理は基本的にはピューレックス法が適用可能であることを確認した。



写1 高レベル放射性物質研究施設  
（セル前面の操作区域）

再処理工程では、洗浄剤、酸化剤、還元剤として種々の化学薬品を使用し、これが含塩廃液を多量に発生させる原因となる。この改善のためソルトフリープロセス即ち含塩廃液の発生を無くするプロセスの研究開発を進めている。基礎試験により実現可能性を確認し、現在工学規模の実証試験を行っている。ここでは、ソルトフリープロセスの溶媒洗浄、U、Pu分配、Pu精製工程への適用について述べる。

ピューレックス法で使用される抽出溶媒の磷酸トリブチルは、放射線分解と加水分解により劣化し、分離効率の低下や第三相の形成の原因となるため、溶媒を洗浄する工程を設けている。洗浄剤として一般に用いられている炭酸ナトリウムは優れた洗浄能力を持つが、

ナトリウム塩を廃棄物として管理する必要がある。そのため、最終的に含塩廃棄物として残らず、気体に分解する溶媒浄剤の開発を進めている。ヒドラジン系とテトラメチルアンモニウム系の洗浄剤を検討し、溶媒洗浄に有効であること、ヒドラジン系洗浄剤は電気分解で、テトラメチルアンモニウム系洗浄剤は熱分解で気体成分に分解できる事を確認した。

UとPuの分離工程でPuを還元する必要があるが、軽水炉燃料再処理では還元剤として通常硝酸ウラナスを用いている。高速炉燃料再処理のようにPuの割合が大きい場合には、多量の硝酸ウラナスが必要になる。この改良として、硝酸ヒドロキシルアミンによる還元、電解還元法などの研究を行っている。さらに、低温でUとPuの分配比の差が大きくなる特性を利用して、還元剤を使用しない方法の研究を進めている。

Puは分配工程で3価に還元されるが、精製工程では4価に酸化し溶媒に抽出する。このため、一般には、NO<sub>x</sub>ガス、亜硝酸ナトリウムを用いるが、装置としても簡素化できる電解酸化法の研究を行っている。

#### 3.2 工程機器開発

燃料の剪断に先だって、ラップ管やエントランスノズル等のハードウェアを除去する工程を解体と言う。開発の初期には機械式の回轉刃による切断を検討したが、切断刃の損耗が激しく頻繁に刃の交換が必要のため、レーザービームを用いた切断方法を選定し解体機の開発を進めた。光源には、安定して高出力が得られる炭酸ガスレーザーを用い、切断条件、切断手順、保守方法を検討し、実用化の見通しを得た。現在、装置を小型化し、保守を容易にするため、切断トーチ部を移動させる方式の開発を進めている。

剪断機については、東海再処理工場の運転経験をふまえるととも、モックアップ試験により、剪断刃を改良した全遠隔保守対応の改良型を開発した。

溶解槽については、東海再処理工場で実績のあるバッチ式溶解槽について、モックアップ試験や流動解析のシミュレーション等により、高速炉燃料再処理への適用性を評価し、実用化の見通しを得たが、更に、装置の小型化、連続処理化、効率化を図るため連続溶解槽の開発を進めている。この形式は回轉円筒型で、円筒の内部がらせん状に仕切られている。燃料剪断片は円筒の一方の開口部から投入され、円筒の回轉により順次反対方向に送られる。一方、硝酸が反対方向から供給され剪断片と向流に接触し燃料を溶解する。このため、溶解槽では、ハル（燃料溶解後の空の剪断片）へ

のU, Puの付着残留を少なくでき、溶解中のガスの発生を平坦化しオフガス処理工程を小型化できる等の利点を持つ。現在、ウランを用いた試験を実施している。連続溶解槽の概略を図-1に示す。

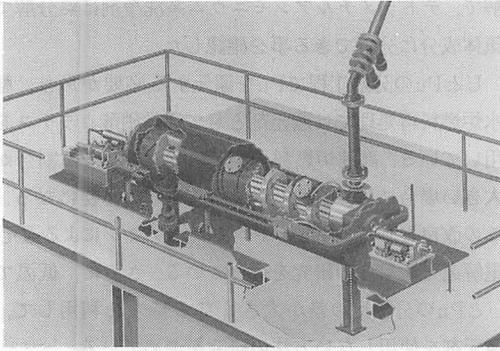


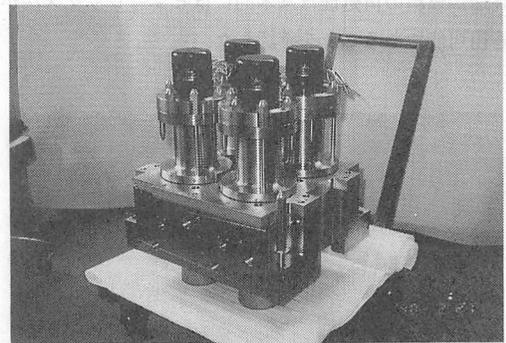
図-1 連続溶解槽

燃料溶解液中には、微小な粒子としてFP元素が浮遊するが、溶媒抽出工程に送る前にこれを除去する工程が必要である。これを清澄工程という。清澄工程には、東海再処理工場と同じように、フィルターを用いることも出来るが、高速炉炉心燃料の場合は不溶解残渣の生成量が多く、フィルターエレメントを頻繁に交換する必要が予測される。そのため、遠心沈降式の清澄機の開発を進めた。モックアップ試験機を試作し、アルミナ等の模擬粒子を用いて分離性能の評価、長時間運転の安定性等を調べ、良好な結果を得た。現在、更にサブミクロン領域での捕集効率の向上等の高性能化をねらった機器の開発を進め、所期の目的を達成出来る見通しを得ている。

溶媒抽出の抽出器には、ミキサ・セトラ、パルス・カラム、遠心抽出器等が用いられている。東海再処理工場では、ミキサ・セトラが用いられ高い信頼性の実績を持っている。高速炉炉心燃料はFPとPuの含有量が大きく、溶媒劣化を軽減し、臨界安全形状をとりやすい小型で処理速度が速いパルス・カラムや遠心抽出器を開発した。

パルス・カラムについては、1975年からウランを用いた工学試験、プルトニウムを用いた試験を行い、その技術の大成化を図った。一方、遠心抽出器は、溶液のホールドアップ量がミキサ・セトラの数十分の一、パルスカラムに比べても十分の一程度と小さく、また溶媒と水相との接触時間や系統が平衡に達する時間を短くできる。このため、装置の小型化が図れるほか、

溶媒劣化や系内洗浄時の廃液発生量を低減できる、プラントの起動停止が容易に短時間で行える等の数々の利点がある。動燃では、遠心抽出器の開発を1985年頃から開始した。遠心抽出器には単段型と多段型があるが、現在開発中のものは前者の単段型である。抽出器の試作改良、流動特性や分離特性試験、6段型抽出器によるウラン抽出試験、抽出器34段からなる工学試験設備によるウラン試験等を進め、高い段効率を得られること、ミキサ・セトラで開発されたシミュレーション計算コード「MIXSET」が適用出来る事を確認した。現在、システムとしての総合試験設備を製作中である。遠心抽出器の写真を写2に示す。これは4段型のもので、機器の保守は遠隔操作で行える構造をとっている。



写2 遠心抽出器

### 3.3 遠隔保守技術

保守技術の高度化は施設の稼働率向上と作業員の被曝低減から極めて重要な課題である。このため大型セルを用いたラック方式による遠隔保守技術の開発を進めている。これは、米国のサバナ・リバー・プラントやビューレックス・プラントのクレーン・キャニオン法の概念を基礎に、米国オークリッジ国立研究所が新しい遠隔保守技術を取り入れ高度化を図った概念に基づいて開発した保守方式である。この概念を図2に示す。モジュール化又はカセット化されたプロセス機器は、ラックと呼ばれる寸法を統一された架台に組み込まれる。ラックは、セル内の壁面に沿って配置される。機器、配管、ラックの交換・保守は、操作室でTV画面を見ながら、両腕型サーボ・マニプレータ(BSM)を操作して、遠隔操作で行う。このために、セル内で想定される種々の保守作業に対応できるマニプレータシステム、保守交換が容易で、コンパクト

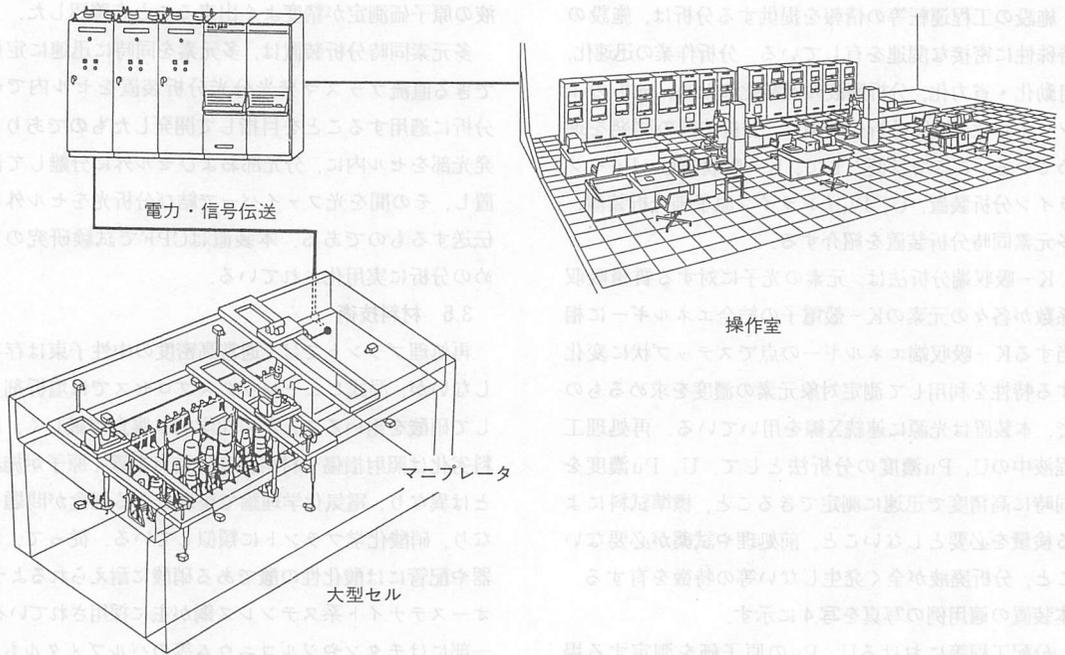


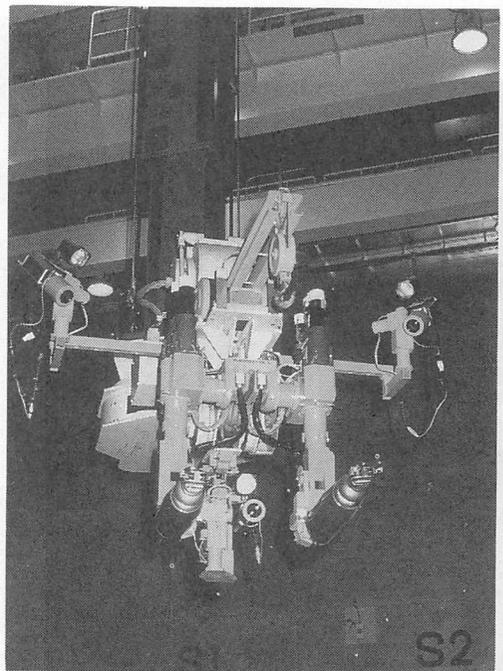
図-2 大型セル遠隔保守方式の概念

ト化されたラックシステム, 自動サンプリングシステム等の開発を行っている。

マニプレータシステムは, BSM, 視覚システム, 動力信号電送システム等で構成される。BSMは, 機器の補修・交換等の遠隔保守の中心的役割を担うもので, セル内のスレーブアームはトランスポーターに搭載されて保守対象物に接近する。BSMは作業の性質上, 人間の腕に近い器用さが要求されると共に, セル内に設置する部分はセル内での使用に耐え, 遠隔保守が可能な構造が必要がある。開発したBSMは次のような特徴を持っている。

- ① マニプレータの姿勢を作業内容に応じて切り換えて効率の良い遠隔保守が行える。
- ② 動作速度の高速化を図っている。また, 荷重を操作者が感じられる力帰還機能を持っている。
- ③ 実施に適用出来る耐放射線性を有している。
- ④ モジュール化されユニットに分割でき, 遠隔保守性が高い。

BSMスレーブアームの写真を写3に示す。この他, セル内の視覚情報取得手段として, 解像度がすぐれた高品位TVカメラの耐放射線化, セル内と操作室を結ぶ制御, 映像等の伝送系として, 光ファイバケーブルを用いた信号伝送装置を開発した。



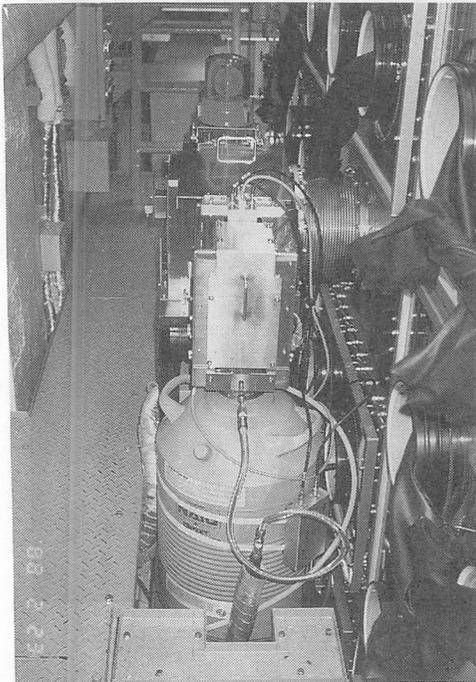
写3 両腕型サーボ・マニプレータ

### 3.4 分析技術

施設の工程運転等の情報を提供する分析は、施設の特異性に密接な関連を有している。分析作業の迅速化、自動化・省力化、分析廃液の低減化のため、分析のインライン化、機器分析化を図り、分析装置の開発を進めている。ここでは例として、K-吸収端U、Puインライン分析装置、U、Puインライン原子価分析装置、多元素同時分析装置を紹介する。

K-吸収端分析法は、元素の光子に対する質量吸収係数が各々の元素のK-殻電子の結合エネルギーに相当するK-吸収端エネルギーの点でステップ状に変化する特性を利用して測定対象元素の濃度を求めるもので、本装置は光源に連続X線を用いている。再処理工程液中のU、Pu濃度の分析法として、U、Pu濃度を同時に高精度で迅速に測定できること、標準試料による検量を必要としないこと、前処理や試薬が必要ないこと、分析廃液が全く発生しない等の特徴を有する。本装置の適用例の写真を写4に示す。

分配工程等におけるU、Puの原子価を測定する場合、オフライン分析では試料の移送中に原子価が変化するため、インラインで分析することが望ましい。硝酸溶液中のU、Pu原子価別濃度を測定するフローケーロメータを開発した。本装置でのPu(IV)、U(VI)



写4 K-吸収端U、Puインライン分析装置

の電解効率はほぼ100%と良好であり、両者の混合溶液の原子価測定が精度よく出来ることを確認した。

多元素同時分析装置は、多元素を同時に迅速に定量できる直流プラズマ発光分光分析装置をセル内での分析に適用することを目指して開発したものであり、発光部をセル内に、分光部およびセル外に分離して設置し、その間を光ファイバーで結び分析光をセル外に伝送するものである。本装置はCPFで試験研究のための分析に実用化されている。

### 3.5 材料技術

再処理プラントでは、通常高密度の中性子束は存在しないが、湿式ビューレックスプロセスでは塩析剤として硝酸を用いることから化学的な腐食が厳しく、材料劣化は照射損傷や材料強度に重点を置く原子炉施設とは異なり、電気化学理論で整理できる湿食が問題となり、硝酸化学プラントに類似している。従って、機器や配管には酸化性の酸である硝酸に耐えられるよう、オーステナイト系ステンレス鋼が主に採用されている。一部にはチタンやジルコニウム等のバルブメタルも用いられている。ゴムやフッ素樹脂等の有機物質も放射線のレベルの低いところでは使用され、腐食の心配のない所には炭素鋼や鉛等も使用されている。

材料面からは、高速炉燃料再処理は軽水炉の場合と基本的には異なることは無く、東海再処理工場での腐食経験をベースに基盤技術として再処理装置材料の研究を行っている。東海再処理工場では、材料の腐食に起因する故障をいくつか経験し、状況に応じて補修や交換で対応し改良を図っている。例えば、溶解槽は、損傷部を遠隔操作で補修することともに、国産材のNAR310Nbを用いた溶解槽を新設する方策が採られた。また、酸回収蒸発缶の故障に際しては輸入材から国産材に変更し、更に長寿命化を図るため採用したチタン5%タンタル合金製蒸発缶が順調に稼働している。

再処理プラントでは、硝酸による腐食に加えて放射線( $\alpha$ 、 $\beta$ 、 $\gamma$ 線等)、核物質(U、Pu)、FP等特有の環境因子が存在し、硝酸化学プラントと同列に論じられない。そこで、これらの因子の影響を調べ明らかにしつつある。例えば、機構は不明な点が多いが $\gamma$ 線と材料の腐食挙動には何らかの関係があること、PuやFPには、ステンレス鋼に対しては腐食の促進が、チタン材に対しては腐食抑制効果が考えられる等である。

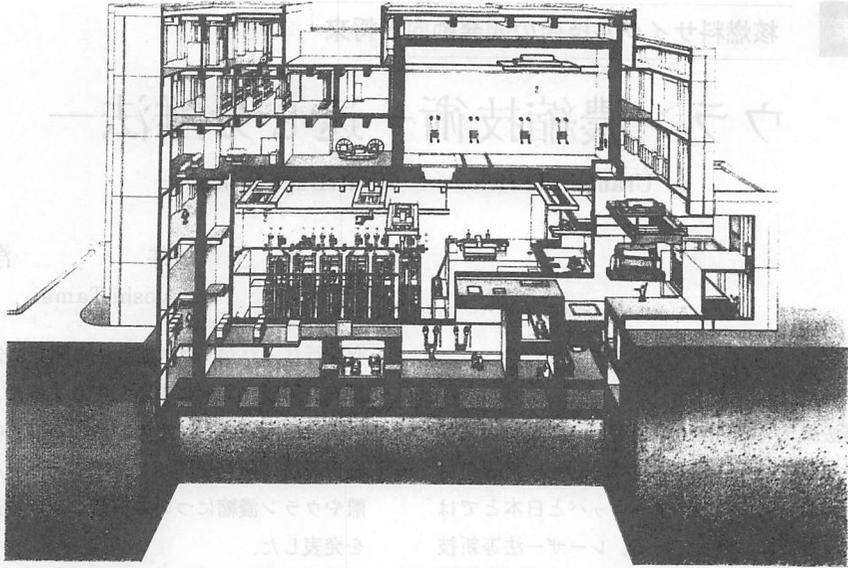


図-3 リサイクル機器試験施設

#### 4. 今後の開発の動向

軽水炉燃料再処理技術については、わが国においても、動燃東海再処理工場が順調に稼働しており、日本原燃サービス(株)の民間第一工場が1990年代中頃の運転開始を目指して準備が進められている。一方、高速炉燃料再処理技術は現在では実環境下において実証が必要な段階に到達している。そのため、1990年代半ば過ぎに試験開始を目標として、リサイクル機器試験施設(RETf: Recycle Equipment Test Facility, 図3を参照)の建設計画を進めている。RETfは、開発してきた新型の機器等のホットでの実証を行うことを目的とするが、長期にわたって多様な研究開発が行えるように、プロセスの変更、装置の入れ換えには柔軟に対応できる大型セル方式の施設概念を採用しており、将来にわたり新技術の実証の場として重要な役割を果たすことが期待される。これらの開発の成果を総合して、高速炉燃料リサイクル試験施設(パイロットプラント)を2000年代に建設し、経済性を含め、高速炉燃料再処理プラントシステムを実証したいと考えている。

以上、述べたように、高速炉燃料再処理技術開発は、1980年代までに特有の課題について解決の見通しを得たが、1990年代は技術改良による経済性向上に努力し、2000年代には、技術を成熟させプラントとしての実用化の見通しをつけることとなる。

高速炉とその燃料のリサイクル技術を総合したシステムの実用化には、軽水炉体系と競合できる経済性の

実現が鍵であり、再処理技術においても高度化、合理化により一層優れた経済性を達成することが不可欠であるが、パブリックアクセプタンスや環境問題への配慮も重要である。そのため、現在のピューレックス法をベースとして、その改良、合理化に重点を置いて、機器の高速化・小型化、工程の簡素化・短縮化、運転の自動化・省力化等の開発を鋭意進めていくとともに、放出放射能の低減化、廃棄物発生量の低減化、保障措置技術の高度化を図るなど、国民の理解を得られやすい、より安全で信頼性の高い技術の開発を鋭意進めていく。さらに、高速炉体系の可能性をさらに追求し、来世紀を見据えた長期的な基礎的再処理研究として、MOX燃料以外の金属燃料や窒化物燃料の再処理、再処理廃液中に含まれる超ウラン元素を分離回収する技術の研究を進めていく計画である。

#### 5. おわりに

高速炉の開発は、国際的には米国的高速炉開発路線の変更、欧州における開発路線の足踏みなど、ややスローダウン気味であるが、原子力発電の究極の体系としての高速炉システムの確立の必要性については変わりなく、特にエネルギー資源に乏しいわが国が先進先導の役割を担って世界をリードしていくことが期待される。再処理はその要となる技術であり、動燃事業団ではこれまでに培った技術力を最大限に発揮して、高速炉と燃料のリサイクルシステムを社会に定着させるように研究開発に努力していきたいと考えている。