109. マイクロ波加熱直接脱硝法に基づく プルトニウム混合転換施設の設計

大島 博文*, 成木 芳*

(1982年 7月5日 受理)

(1982年 11月29日 再受理)

Design of Co-Conversion Facility of Pu-U Nitrate Solution to Mixed Oxide Powder using Microwave Heating Direct Denitration Method

By Hirofumi OSHIMA and Kaoru NARUKI

Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corp. (PNC) has developed the co-conversion process of Pu-U nitrate solution to the mixed oxide powder using the microwave heating direct denitration method and has designed the co-conversion facility at Tokai Works, PNC.

The capacity of this facility is 10 kg(Pu+U)/d and the facility is consisted of the following processes: Pu & U receiving, Conversion, Powder treatment, Powder storage, Waste treatment and Analytical laboratory, etc.

To keep personnel exposure as low as practical, main process equipment is designed to be remotely controlled and new type of glove box with shielding materials (lead and polyethylene containing boron) is developed. And other safety consideration, e.g. criticality safety, ventilation system, safeguard for nuclear materials, are taken into account to the facility design.

KEYWORDS: plutonium, plutonium conversion, co-conversion facility, fuel cycle facility, mixed oxide powder, glove box, criticality, nuclear safety, safety design, storage, remote operation, direct denitration, microwave heating, uranium

I. はじめに

再処理工場で回収精製された硝酸プルトニウム溶液の酸化物粉末への転換は、Pu を Pu-U 混合酸化物燃料として再利用できるとともに、Pu の長期間貯蔵および輸送上有利となるなどの理由により、核燃料サイクル上極めて重要な位置を占めている。Pu の転換プロセスについては INFCE⁽¹⁾ による討議などにより、U とともに酸化物粉末にする、いわゆる混合転換法が核拡散防止上有効であると示され、各国で現在混合転換プロセスの開発が進められている。

動力炉・核燃料開発事業団(動燃事業団)では1977年より Pu の混合転換プロセスの開発^(2,3)に着手し、世界で初めての Pu の U との混合転換施設の設計を行い、1983年2月に建設工事を完了し、同年4月より試運転を実施している。

本施設については文献(4)でその概要を述べたが、本報では、本施設の設計の内容および設計上の特長について述べる。

II. マイクロ波加熱直接脱硝法

硝酸プルトニウム溶液の酸化物粉末への転換法としては、沈殿剤を加えて Pu の沈殿物を生成させ、これを干過・焙焼して酸化物粉末にする沈殿法(シュウ酸沈殿法⁽⁵⁾、アンモニア沈殿法⁽⁶⁾、過酸化水素水沈殿法⁽⁷⁾など)と Pu 溶液を直接加熱して蒸発乾固し、さらに硝酸塩を分解して酸化物粉末にする直接脱硝法(流動床直接脱硝法⁽⁸⁾、マイクロ波加熱直接脱硝法)などがある。従来 Pu の転換法としてはシュウ酸沈殿法が広く採用されており、各再処理工場に付属する転換施設で実用化されている。また、U との混合転換法としては、アンモニア沈殿法を応用した CO-PRECAL 法⁽⁹⁾、AUPuC 法⁽¹⁰⁾などが研究されている。マイクロ波加熱直接脱硝法は、第1表に示すように、これらの転換法と比較してプロセス上および得られる粉末の物性上いくつかの特長を持っている。以下に本転換法について述べる。

* 動力炉・核燃料開発事業団(Power Reactor & Nucl. Fuel Development Corp.)

第 1 表 Pu 転換法

転換プロセス	プロセスの概要	開発状況	特 長	備 考
シュウ酸 沈殿法 (単体転換法)	Pu 溶液にシュウ酸を加えて生成する沈殿物を 濾過・乾燥して酸化物 粉末にする。	単体転換法の在来技術 (実用化されている)	・沈殿物の濾過性および粉末の加工 性 良好 ・沈殿工程での不純物除去がある程 度可能であるが、濾液への Pu の溶解ロスがあり、Pu 回収工 程が必要 ・U との共沈性が悪く、混合転換に 不適	実施例 米国 Hanford, BNFP (計画) 英国 BNFL フランス Marcoule, La Hague 西独 ALKEM
アンモニア 沈殿法 (単体転換・ 混合転換法)	Pu 溶液にアンモニアを 加えて生成する沈殿物を 濾過・乾燥・焙焼して酸化 物粉末にする。	工学試験あるいは基礎 試験段階 動燃, 米国 Hanford, GE, NUMEC, Du Pont	・U の転換加工では、商業化されて いる。 ・沈殿物の濾過性が悪い。 ・不純物の DF は期待できない。 ・混合転換法としては最もオーソド ックスなプロセスである。	実施例 一時英国 BNFL で 25 ~30% Pu-U 転換を 実施していた。 類似プロセスとして CO-PRECAL プロ セス(GE)およびAU PuC プロセス(AL KEM)が混合転換法 として開発試験中
流動床直接 脱硝法 (単体転換・ 混合転換法)	Pu 溶液を流動床にスプレ イ供給して、加熱・脱 硝・焙焼し、酸化物に変 換する。	工学試験段階 動燃, 米国 ANL など	・プロセスが短く、廃液発生量が少 ない。 ・加工性のよい粉末を得るために微 粉碎工程が必要 ・流動床へのフィード液の Pu 濃度 は高いことが望ましい。 ・混合転換法に適用可能	
マイクロ波加 熱直接脱硝法 (単体転換・ 混合転換法)	Pu 溶液をマイクロ波に より、加熱・脱硝した のち焙焼して、酸化物 に変換する。	工学試験中(動燃)	・プロセスが短く操作が単純 ・生成粉末の加工性が良好 ・廃液発生量が少ない。 ・バッチプロセスである。 ・混合転換法に適用可能	・連続処理化のための 工学試験中
その他のプロセス: 過酸化水素水沈殿法, CO-PRECAL 法, AUPuC 法				

1. 概 要

本転換法は、あらかじめ 1:1 に混合・調整された Pu・U 混合溶液*を、工業用として一般に用いられている 2,450 MHz のマイクロ波で加熱し、蒸発濃縮して高温の Pu・U 硝酸塩にし、さらに $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$ に直接脱硝する方法である(第 1 図参照)。脱硝工程は 2 kg (Pu+U)/回のバッチ式で 16kW のマイクロ波で約 1 時間で蒸発濃縮・脱硝を完了する。 $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$ は次に空气中

および 95% N_2 -5% H_2 ガス中で焙焼・還元され $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$ になったのち、粉碎・篩分され粉末粒径が調整される。脱硝工程で発生する蒸気および NO_x は凝縮器および洗浄塔で処理される(第 2 図参照)。

本施設には、これらの工程の前後に原料溶液の受入れ・混合工程、 $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$ の中間貯蔵・ロット混合工程、粉末缶充填工程、払出し貯蔵工程、廃液・廃気処理工程などが設けられている。

2. 特 長

(1) $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$ 粉末

本転換法で得られる粉末は、硝酸塩から酸化物に転換する時に粘性の高い液体がマイクロ波の誘電加熱により内部まで均一にかつ急激に脱硝され、 NO_x が発生する(第 1 図参照)。このため、酸化物中に非常に細かい気泡ができ、これにより 1 次粒子が非常に細くなる(1 μm 程度)。このため、混合酸化物ペレットを製造する時に UO_2 粉末との混合性が極めて良好で、かつペレットへの成形加工、ペレットの焼結性など原料粉末として必要な粉末物性を持っている。これは代表的な直接脱硝法である流動床法による粉末が粒状であるために、さらに微粉碎工程が必要となるなど、工程が

第 1 図 マイクロ波加熱直接脱硝法の原理

* 設計上、Pu/U は 1 以下となっている。

第2図 混合転換フローシート

より複雑となることと比べると特筆すべきことである。本プロセスにより得られた粉末は、シュウ酸沈殿法による粉末と同等あるいはそれ以上の燃料加工性を持っている(第2表の粉末物性の例参照)。

第2表 粉末物性の例

項 目	マイクロ波加熱 直接脱硝法	流動床 直接脱硝法 ^(a)
マイクロ波出力	約15kW	—
原 液	約260 gU/l × 約8 l	—
焙 焼 温 度	550~700°C	—
還 元 温 度	650~700°C	500~550°C
比 表 面 積	2.0~4.1 m ² /g	—
平 均 粒 径	1.2~2.1 μm	—
か さ 密 度	1.8~2.6 g/cm ³	—
焼 結 密 度	95% TD (1,680°C, 2h)	83~89% TD (1,650~1,750°C, 1.5~4h)

(2) 工 程

本プロセスは、流動床法と同様に工程が非常に単純であると同時に、沈殿剤を加えない。このため、廃液発生量が10 kg(Pu+U)の転換で約40 lと同一規模のアモンニア沈殿法およびシュウ酸沈殿法の1/3程度と少ない。また、廃液中のPuは数 mg/lと少なく、製品収率は98%以上得られる。このため、廃液中のPu回収工程は必要なく、廃液処理プロセスも簡単でよい。廃気についても、マイクロ波オーブン内のパージ用ガスが発生するのみで、その量も25 m³/h以下と流動床法と比べて1/10以下である。

(3) 機 器

脱硝に使われるマイクロ波オーブンは第3図に示すように、ステンレス鋼製の箱型(85 cm²×235 cm²)である。搬送機によりターンテーブル上に載せられた脱硝ポート(ステンレス鋼製, 50 cm²×6 cm²)はモーターで鎖線まで上昇され、ここでターンテーブルとともに回転しながら、上部から入射するマイクロ波でPu-U溶液を加熱・脱硝する。溶液の蒸発濃縮・脱硝時の蒸気およびガスに同伴されるPuは極めて少なく、また加熱中に溶液の沸騰によるオーブン内へのPuの飛散

第3図 脱硝加熱器(マイクロ波オーブン)

もほとんどない。これはマイクロ波が十分に均質に分布するように、マイクロ波の入射を4個所に分散し、かつ被加熱物を常に回転させていることによる。

Ⅲ. プルトニウム転換技術開発施設の設計

1. 施設の能力

(1) 建屋

本施設の建物は東西方向に延びる矩形をしており、地下1階、地上4階の鉄筋コンクリート造り(一部鉄骨造り)で、建築面積約1,200 m²、延床面積約4,000 m²である(写真1参照)。

写真1 Pu 転換技術開発施設の建屋外観

(2) 主工程

本施設は10 kg(Pu+U)のPu・U混合溶液を酸化物粉末に転換できるように設計されており、操業は原則として日勤(8 h/d)で計画している。受入れ・混合工程にはPu受入れ計量槽・混合槽など4基の300 l環状槽およびU受入れ計量槽・U貯槽の2基、1,000 lの平板槽が設けられている。脱硝工程は2系列設置されており、2 kg(Pu+U)/回の脱硝を1日5回交互に行う。焙焼還元以降は原則として10 kg(Pu+U)単位で処理するように計画した。中間貯蔵設備は10 kg(Pu+U)/ホール×9ホールの能力を、ロット混合機は4バッチ分の40 kg(Pu+U)/回の能力を持つ。また、粉末缶は2.5 kg(Pu+U)を収納でき、貯蔵容器には4缶の粉末缶を収納できる。粉末貯蔵室には81の貯蔵ホールがあり、810 kg(Pu+U)を保管できる。

(3) 廃気および廃液処理工程

主工程で発生するプロセス廃気などは、多段の洗浄塔、凝縮器、高性能フィルタなどで処理され、最大85 Nm³/hの処理能力を持つ。主工程やプロセス廃気処理などからのプロセス廃液は約100 l/d発生し、蒸発濃

縮、中和沈殿、凝集沈殿などの処理をされる。

2. 施設設計上の特長

(1) 取り扱う Pu

本施設は世界で初めての混合転換施設であるのと同時に、初めての軽水炉産 Pu の取扱い施設として設計されている。このため、Pu の同位体組成は第3表に示すように ²³⁸Pu, ²⁴⁰Pu, ²⁴¹Pu などの含有率が増し、作業環境におけるγ線および中性子の線量率が大きくなるので、設備の運転の自動化・遠隔化、遮蔽対策などが第Ⅱ-3, -4節で述べるように実施された。

第3表 遮蔽設計に用いた線源

Pu 同位体組成†	
²³⁸ Pu	1.2 %
²³⁹ Pu	65.6 %
²⁴⁰ Pu	22.3 %
²⁴¹ Pu	8.8 %
²⁴² Pu	21 %
Pu 娘核種††	
²⁴¹ Am	5,000 ppm 蓄積した時の Pu 娘核種
核分裂生成物	
13.2 γμCi/g Pu	

† 平均バーンナップ28,000 MWd/t、比出力35 MW、180日冷却の軽水炉使用済燃料から分離精製された Pu に相当する。
燃焼計算コード ORIGEN⁽¹²⁾より算出した。

†† Pu 精製後約1年後に相当。

(2) 技術開発

本施設は混合転換技術を実証化するための施設として計画されているが、さらに Pu 転換に係る各種試験研究を実施するための基礎実験室(1階、約350 m²)を設けている。

(3) 保障措置・計量管理

核物質在庫量の迅速な把握、計量精度の向上などを目指して、電子計算機による計量管理システムを設置するとともに高性能な液位計、秤量器などを主要測定点に配置し、運転データのオンライン管理を計画している。

(4) 核物質防護

主要な Pu の取扱い区域を地階および1階に集中的に配置する(特に Pu の貯蔵区域は地階に配置する)とともに、工程滞留量を極力減らすように設計した。監視・制御するための核物質防護システムとして、磁気カード・チェックゲートなどによる出入管理、工業用テレビ・SNM検知器*などによる監視を行う。特に Pu の貯蔵区域は二重・三重の管理・監視を行う。

* 特殊核物質検知器(Special Nuclear Material Detector)

3. 安全設計

(1) 包蔵性

Pu は槽・容器, セル・グローブボックス, 建物の三重の包蔵性を持つように設計されている。槽類はその設計圧力の1.25倍以上の圧力で耐圧試験を行い, さらにアンモニアまたはエアソープによるリーク試験を行なった。セルおよびグローブボックスは常時内圧を-25 mm水柱以下に維持できるようにし, かつ十分な換気回数*を確保するとともに, 十分な気密性**を持つように設計した。各工程室は標準換気回数として6回/h程度を目標として換気設計をした。工程設備, セル・グローブボックスなどからの廃気は多段の高性能フィルタで汚過される。また, 粉末を取り扱う設備は後述の第5図に示すように粉塵の発生を少なくするとともに, 粉塵回収装置(第5図の③')を配置した。

(2) 換気のリサイクル

環境への排気の放出量を減らし, 空調エネルギーの節約を目的として, 部屋排気の一部を高性能フィルタで汚過したのち再使用するように設計した。本リサイクルシステムは米国の Regulatory Guide⁽¹²⁾を参考して設計し, Pu 取扱量の少ない区域の部屋排気を常時換気リサイクルモニタ(Pu ダストモニタ)で監視し, 高性能フィルタ2段で汚過したのち, 外部からの空気と混合して各部屋に供給する。また, 換気リサイクルモニタにより万一異常が検知された場合には, 警報が発せられて換気のリサイクル使用が停止される。

(3) 遮蔽設計

軽水炉産 Pu 中の ^{239}Pu , ^{241}Pu および Pu の娘核種などから中性子および γ 線が放出されるので(第3表参

照), 従業員等の被曝線量の増大を防ぐために作業環境の放射線量率を可能な限り低くする必要がある。このためグローブボックス内に設置される機器には必要に応じて遮蔽体を取り付けるとともに, グローブボックスの遮蔽能力を増強するようにした。第4図に示すように, グローブボックスのパネルを透明樹脂からステンレス鋼に変更し, その外側にB入りポリエチレン, 鉛などの遮蔽体を取り付けた。また, 内部観察用の窓部も同等の遮蔽能力を持つように Pb ガラス, B ガラスを積層した。これにより, 従来 Pu 取扱い施設で用いられているグローブボックスと比べてグローブボックスの表面線量率**は中性子で約 $\frac{1}{3}$ に, γ 線で約 $\frac{1}{5}$ に低くすることができる(例: 粉末缶を置いたグローブボックスの表面で中性子線量率4 mrem/h, γ 線量率12 mrem/h)。

(4) 臨界安全設計⁽¹⁴⁾

工程変動条件を実験あるいは文献などにより把握し, 二重偶発性の原理に従って想定しうる最も臨界に近づきやすい状況を仮定して臨界安全解析を実施した。解析には ^{239}Pu 95%, ^{240}Pu 5% の同位体組成および $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$, $\text{Pu}-\text{H}_2\text{O}$, $\text{PuO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ などの化学組成を前提とし, 各国の臨界実験データ, 臨界安全ハンドブックなどを用いて, 計算手法および計算コードの検証を実施した上で, 1次元輸送コード ANISN またはモンテカルロコード KENO⁽¹⁵⁾ と Hansen Roach 16 群核断面積ライブラリー⁽¹⁶⁾を使用した。また, 本施設内には万一の臨界事故を検知するために8セットの2-out of-3方式の臨界モニタを要所に配置した。

(5) 放射線管理

Pu ダストモニタ, γ 線および中性子空間線量モニタ, α 線および $\gamma(\beta)$ 線フットモニタ, エアスニッファなどが施設内各所に配置されるとともに, 放射線管理室でこれらは集中監視・記録される。

(6) 耐震設計

本施設の建物および設備は, その重要度に応じてA, B, Cの3種類に区分し, A類は基盤に180 Galの地震力および建築基準法に定められた値の3倍の地震力に対して, B類はその $\frac{1}{2}$, C類は $\frac{1}{3}$ の地震力に対して静的および動的(A, B類のみ)解析を行い, その健全性を確認した。区分の例として

A類: Pu 溶液を多量に収容する槽およびセル

* 設計上の標準換気回数は10回/hとした。

** リーク率が0.1%/h以下であることを確認した。

** 線量解析には1次元輸送コード ANISN⁽¹⁴⁾を用いた。

第4図 遮蔽体付きグローブボックス

写真 2 主 工 程 室

B類：主要なグローブボックス, Pu を取り扱う槽類および建物など。

C類：グローブボックス内の配管, PVC 製グローブボックスなど。

特に第Ⅲ-3(3)項で述べた遮蔽体付きグローブボックスについては, 基本モジュール(横 2 m×奥行 1 m×高さ 4 m)の加振実験を行い, 汎用有限要素法解析

コード SAP-V⁽¹⁷⁾による解析結果との比較検討をして, 解析手法の確立およびグローブボックス基本モジュールの設計地震入力時の健全性の確認を行なった上で, 各グローブボックスの耐震設計をした(写真 2)。

4. 工程機器の設計

(1) 設計の基本

Pu を多量に取り扱う主工程の機器は原則として遠

第 5 図 粉末パッキング装置

第6図 粉末パッキング工程の制御

隔・自動化を図ることにより、運転の効率化・従業員等の被曝線量の増大の防止などを図った。これらの機器の保守・点検はグローブを介して直接作業員が行う。このため重要な機器の配置はグローブ、窓の位置などに配慮して決めるとともに、必要に応じて分解・取外しが容易なようにした。また、これらの機器はマイクロコンピュータまたはシーケンサーなどにより自動運転されるので、保守時の操作が容易なように各グローブボックスごとに単独操作盤を設けてユニット動作ができるようにした。

(2) 機器設計の例

上述の考え方により設計された機器の例として粉末の缶充填装置を第5図に示す。ロット混合された粉末は2段のロータリーバルブ①で供給量を調整されながら、自動サンプリング装置②を経て充填機のオーガー③に送られる。あらかじめ準備された粉末缶④が充填機に自動的に送られ、充填機の秤量器⑤などが空粉末缶の定位置到着を確認するとオーガーが作動し、粉末缶に粉末が充填される。粉末量が一定量に達すると秤量器からの信号によりオーガーが停止し、粉末缶は次の蓋締機⑥に送られ蓋が閉められる。粉末缶は次に除染機⑦に送られ、ジェットエアで表面除染され、さらに精密秤量機⑧で秤量されると同時にITV⑨で粉末缶番号が確認されたのち、次工程へ送られる。これらの一連の動作はマイクロコンピュータおよびミニコンピュータで制御されると同時に、重要な運転情報は記録・保管される(第6図参照)。

V. おわりに

以上報告したプルトニウム転換技術開発施設は1983年度内の予定でUおよびPuによる試運転を実施したのち、プロセスの実証のための技術開発試験を行う計画である。

また、本施設の設計・建設により得られた技術を基礎として、バッチ式プロセス(本施設に採用されている)を連続化プロセスにして、製品品質の安定化・装置のコンパクト化を目指した研究開発に着手している。

—参考文献—

- (1) INFCE/PC/214: Reprocessing, plutonium handling and recycle report of Working Group 4, IAEA STI/PUB/543, (Jan. 1981).
- (2) KOIZUMI, M., et al.: *Trans. Am. Nucl. Soc.*, **38**, 203 (1981).
- (3) KOIZUMI, M., et al.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **20**(7), 529 (1983).
- (4) OSHIMA, H., et al.: *Trans. Am. Nucl. Soc.*, **40**, 48 (1982).
- (5) DOTO, P.C., et al.: *ARH-SH-213*, (1975).
- (6) THOMAS, L.L.: *CONF 800802-7*, (1980).
- (7) MAINLAND, E.W., et al.: *Ind. Eng. Chem.*, **53**, 686 (1961).
- (8) VOGLER, S., et al.: *ANL-7917*, (1972).
- (9) KINCARD, C.B., et al.: *GETR-SP-168*, (1979).
- (10) SCHNEIDER, V.W., et al.: *Trans. Am. Nucl. Soc.*, **40**, 50 (1982).
- (11) BELL, M.J.: *ORNL-4628*, (1973).
- (12) U.S.AEC: *Regulatory Guide 3.12*, Aug. (1973).
- (13) ENGLE, W.W.: *K-1693*, (1967).
- (14) 大島博文, 他: 原子力誌, **25**(4), 291 (1983).
- (15) PETRIE, L.M., et al.: *ORNL-4938*, (1975).
- (16) HANSEN, G.E., et al.: *LAMS-2543*, (1961).
- (17) BATHE, K.J., et al.: *EERC 73-11*, (1973).