773. マイクロ波加熱法による プルトニウム・ウラン混合転換連続プロセス

大島博文*, 辻 信雄*

(1983年 6月17日 受理)

(1983年 11月10日 再受理)

Continuous Direct Denitration Process of Plutonium-Uranium Co-Conversion Using Microwave Heating Method

By Hirofumi OSHIMA and Nobuo TSUJI

A study on the development of a continuous co-conversion process of Pu-U mixed nitrate solutions to oxide powder by using a microwave-heating direct-denitration process was performed to obtain more stable powder characteristics and an increased capacity. Basic characteristics of materials, such as water, uranium nitrate and oxides, for microwave were investigated by means of small microwave oven, and estimated on the basis of an experience obtained through 2-kg/batch denitration operations. A continuous denitration test equipment, capacity of which is 2.5 kg/h, was designed, followed by the measurement of microwave adsorption efficiencies of water to know a characteristics of this equipment. Denitration tests were performed for cerium nitrate and uranyl nitrate solutions.

As a result, it was found that the microwave adsorption efficiency of this equipment was a little lower than 30%, and its capacity was 1.7 kg/h when 500-g/l uranyl nitrate was fed. It was also revealed that the apparent property of the denitrate was similar to that produced by the batchwise equipment. Furthermore, several new materials, which are capable of being used as denitration trays, were investigated, and Si_3N_4 was found to be promising with regard to mechanical and chemical properties.

Based on these results, more detailed investigation will be carried out to design an improved equipment for the purpose of mass production.

KEYWORDS: plutonium conversion, denitration, microwave heating method, continuous co-conversion process, uranium conversion, uranyl nitrates, uranium oxides, cerium nitrates, silicon nitrides, performance

I. はじめに

硝酸プルトニウム溶液を混合酸化物燃料製造原料である酸化物粉末に転換する方法として、従来シュウ酸を加えて沈殿・濾過する、いわゆるシュウ酸沈殿法⁽¹⁾が主に用いられてきた。しかしながら、昭和52年度よりの日米再処理交渉および INFCE⁽²⁾などによる討議の中で、Pu 転換法としてシュウ酸沈殿法による Pu 単体転換法に代わって、U との混合転換法が検討され、核拡散防止に有効であることが確認された。これらの討議

と並行して CO-PRECAL 法(米国, GE 社)⁽³⁾, AUPuC 法(西ドイツ, ALKEM 社)⁽⁴⁾などの混合転換法の開発が進められている。

筆者らは混合転換法の一つであるマイクロ波加熱直接脱硝プロセスの研究開発⁽⁵⁾を行い、動力炉・核燃料開発事業団東海事業所内に混合転換試験設備⁽⁶⁾(処理能力 2 kg MOX/d)と Pu 転換技術開発施設⁽⁷⁾(処理能力 10 kg Pu+U/d)を設計・建設し、開発・試験を実施している。

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

マイクロ波加熱直接脱硝法のプロセスの特長および得られる粉末の特性などについては文献(5)~(7)に述べられているが、要約すると、次の通りである。

- (1) 転換プロセスが、他の方法と比べると最もシンプルかつ付帯するプロセスが少ない。
- (2) 得られる粉末の物性が Pu・U 混合酸化物燃料製造の原料として適している。
- (3) 運転・保守が容易である。

しかしながら、現在開発・試験中の設備には臨界安全上から 2 kg/バッチの脱硝装置が設置されており、近い将来に多量の Pu 転換を行う場合には、このバッチ式装置では十分な能力を持つことができない。

本研究は、Pu 転換工程の主要部分であるマイクロ波加熱直接脱硝設備の連続化により、1 日当りの処理能力の増大を図るとともに、併せて得られる粉末物性の安定化をなし遂げる目的で行なった。

まず、バッチ式装置ではさほど注目する必要のなかった U の各化学形態によるマイクロ波の吸収特性について予測した。次に、2.5 kg/h の試験装置を設計し、装置内のマイクロ波の分布および脱硝ポートの材質・形状および供給される溶液の液厚によるマイクロ波吸収効率などを測定し、試験装置の特性を確認した。さらに硝酸セリウムおよび硝酸ウランを用いて脱硝試験を行なった。

II. 脱硝反応とマイクロ波吸収効率

近年一般家庭で用いられている電子レンジの食品加熱と同様に、マイクロ波加熱直接脱硝プロセスは硝酸プルトニウム・硝酸ウラン混合溶液にマイクロ波を照射し、混合溶液中の双極子あるいはイオン化分子が振動することにより発熱する。この熱により混合溶液は蒸発濃縮・脱硝されて酸化物(PuO₂・UO₃)になる。

マイクロ波加熱により混合溶液が脱硝される場合、

- (1) Pu・U 混合溶液中の水および硝酸の蒸発
- (2) Pu・U 混合硝酸塩の結晶水の蒸発・昇温
- (3) Pu・U 混合硝酸塩の酸化物(PuO₂・UO₃)への脱硝

の 3 段階に反応が進む。(2)、(3)の反応は U の場合^(a)には

Pu の場合^(a)には

が主たるものとして考えられ、PuO₂・UO₃ が脱硝体と

して得られる。ただし、U については(1)式の反応終了後さらにマイクロ波を照射しつづけると

の反応が進む。これらの反応に必要なマイクロ波エネルギー P^{in} は、周波数 f が一定の場合

$$P = CE^2 \epsilon_r \tan \delta (\eta/100) \quad (4)$$

ここで、 C : マイクロ波周波数により定まる定数

E : 加えられる電界の強さ

$\epsilon_r \tan \delta$: 被加熱物のマイクロ波吸収効率

(ϵ_r : 比誘電率, $\tan \delta$: 誘電体損失角)

η : マイクロ波加熱装置の形状などで定まるマイクロ波吸収効率

で表わされる。 $\epsilon_r \tan \delta$ は物質により定まる係数で、温度・周波数などにより変化する。Pu および U の硝酸塩および酸化物の $\epsilon_r \tan \delta$ は、連続プロセスの大きさおよびマイクロ波出力などを決定する上で重要な因子であるが、測定報告されたものはない。

Pu および U の硝酸水溶液および水分の蒸発した硝酸塩(融点以上の温度にある)はバッチ式装置の運転時のマイクロ波反射波*の測定などより、実効的には水とほぼ同様な $\epsilon_r \tan \delta$ となっているものと思われる。しかし、酸化物になると反射波が一時的に多くなることが観測されており、 $\epsilon_r \tan \delta$ が大きく変化していることが推定される。このため出力 500 W のマイクロ波加熱装置(周波数 2,450 MHz)を用いて、ビーカーに水、UO₃ および UO₂ を一定の厚さになるように入れ、5~30 s 間マイクロ波を照射して照射前後の温度差を測定した。これより各試料のマイクロ波吸収効率 η' を

$$\eta' = \frac{c_p \Delta T W}{P' t} \quad (5)$$

ここで、 c_p : 試料の比熱

ΔT : マイクロ波照射前後の温度差

W : 試料重量, P' : マイクロ波出力

t : マイクロ波照射時間

で求めた。ここで(4)式の P は装置により E および η が一定であるから、試料の $\epsilon_r \tan \delta$ に比例する。したがって、 η' は実験中の平均の $\epsilon_r \tan \delta$ に比例している。Hinppel⁽¹¹⁾ の表によると水(常温)の $\epsilon_r \tan \delta$ は約 12 であるので、これを基準として第 1 表に示す実験条件において、UO₃ および UO₂ の $\epsilon_r \tan \delta$ はそれぞれ 0.4 および 11 となった。

* マイクロ波加熱器内で吸収されずに導波管内に反射して戻ってくるマイクロ波。

U₃O₈ およびPuO₂ のマイクロ波吸収係数および各物質の $\epsilon_r \tan \delta$ については今後の研究に待たねばならぬ

第1表 ウラン酸化物のマイクロ波吸収効率

	水	UO ₃	UO ₂	U ₃ O ₈
試料重量(g)	150	245	379	—
マイクロ波照射時間 t (s)	30	30	5.4	—
マイクロ波照射前後の温度差 ^{†1} ΔT (°C)	20.5	5.7	24.3	—
マイクロ波吸収効率 η' (%)	32	1.0	30	—
$\epsilon_r \tan \delta$ の推定値	12 ^{†2}	0.4 ^{†3}	11 ^{†3}	(UO ₃ より十分大きい) ^{†4}

^{†1} 照射前の各試料の温度は室温(18°C)であった。

^{†2} 文献(4)に示された値

^{†3} 実験により得られたマイクロ波吸収効率と水の文献値より推定した値

^{†4} バッチ式装置の運転経験より推測した。

いが、バッチ式装置の運転経験より(3)式の反応が進み脱硝体中に U₃O₈ が生成すると、そこにマイクロ波が集中する現象が観察されていることより、UO₃ に比べて U₃O₈ は十分に大きい $\epsilon_r \tan \delta$ を持っているものと推定される。

Ⅲ. 連続脱硝試験装置の概要

マイクロ波加熱法による連続脱硝プロセスを開発するため、第Ⅱ章で示した各物質のマイクロ波吸収特性およびバッチ式装置⁽⁵⁾の運転経験を基礎に試験装置を設計した。試験装置は、第1,2図に示すように、長さ3.5m、幅0.7m、高さ1.3mのステンレス鋼(SUS304)製で、直径100~200mmのステンレス鋼(SUS316)製脱硝ポートを回転ヘッドにのせ、これをチェーンコンベアで連続的あるいは間欠的に移動する方式とした。

第1図 連続脱硝試験装置

UO₃ の $\epsilon_r \tan \delta$ はPu-U 硝酸水溶液および水分の蒸発した硝酸塩より第Ⅱ章で述べたように小さい。したがって、マイクロ波オープン部を1室構造にすると、 $\epsilon_r \tan \delta$ の大きい硝酸水溶液および硝酸塩の方にマイクロ波が偏り均質な脱硝体が得にくくなる。また、蒸発した水分によりオープン内雰囲気が増湿された状態になり、UO₃ 中の含水率が大きくなる。したがって、マイクロ波オープン部を蒸発室および脱硝室の2室構造とした。

本装置はマイクロ波吸収効率 η を 60%*と仮定し、500 g/l の原料溶液を供給した場合に 2.5 kg/h の処理能力を持つように計画し、熱計算より蒸発室および脱

硝室に導入されるマイクロ波の最大出力をそれぞれ 4.5kW × 2 台および 1.35kW × 1 台とした。各マイクロ波発振器からのマイクロ波は、それぞれの導波管を通してマイクロ波オープン側壁の第1図に示す位置より入射する。マイクロ波攪拌ファンは蒸発室および脱硝室に1台ずつ設けられ、マイクロ波オープン内でマイクロ波を均一に分散するのに用いる。回転ヘッドは脱硝ポートを回転させることにより被加熱物に平均的

* 文献(5)~(7)で報告されているバッチ式マイクロ波加熱装置のマイクロ波吸収効率 η は 60~80% である。ここではこれより低い側の 60% を設計上採用した。

第2図 脱硝ポート駆動部

にマイクロ波を照射するために用いる。

また、マイクロ波トラップを脱硝ポートの出入口部および回転ヘッドの軸の移動のための開口部にマイクロ波の漏れを防止するために設け、オフガス処理設備をマイクロ波オープン内の水蒸気および NO_x の処理のため設けた。

IV. 試験の方法および結果

1. 試験装置の特性確認試験

試験装置の基本特性を把握するとともに、脱硝ポートの材質、直径、液厚などによるマイクロ波吸収効率の変化を調べる目的で、水を用いて試験装置の特性確認実験を行なった。マイクロ波オープン内に直径100mmのガラス製ビーカー、直径100, 185, 200mmのステンレス鋼製脱硝ポートおよび直径270mmのAl製脱硝ポートをポートの寸法に応じて3~8皿入れ、これらに水を液厚が一定になるように加えた。

次に、マイクロ波をそれぞれの発振器の最大出力で水の温度上昇が 20°C 程度になるよう30s~4min間照射した。マイクロ波照射前後の各ポート内の水温をガラス温度計で測定し、これより各脱硝ポートに吸収されたマイクロ波エネルギー Q_i を求めた。各脱硝ポートごとのマイクロ波吸収効率 η_i は、吸収されたマイクロ波エネルギー Q_i を発振器出力に照射時間を乗じて求められる照射されたマイクロ波エネルギー $P_0 t$ で除して求められる。この時、マイクロ波オープン内には3~8皿の脱硝ポートが入っているため、装置内に入ったマイクロ波の吸収効率(以下、合計マイクロ波吸収効率) η_t は、各脱硝ポートの η_i を加えて求められる。

$$\eta_t = \sum_{i=1}^n \eta_i = \sum_{i=1}^n Q_i / P_0 t \times 100(\%) \quad (6)$$

ここで、 η_t : 合計マイクロ波吸収効率(マイクロ波オープン内に置かれた各脱硝ポートのマイクロ波吸収効率 η_i の和)

η_i : 各脱硝ポートのマイクロ波吸収効率

Q_i : 各脱硝ポート内の水が吸収したエネルギー

P_0 : マイクロ波発振器の合計の出力(=10.35kW)

t : マイクロ波照射時間

脱硝ポートの材質・寸法による合計マイクロ波吸収係数 η_t を第3図に示す。ガラス製ビーカーを用いた場合の η_t は直径が小さいにもかかわらず、他の脱硝ポートの場合より大きく、液厚が50mmの場合に62%となった。これは設計時に採用した η_t 60%とほぼ同じである。一方、同じ液厚でも液厚100mmのステンレス鋼製の場合の η_t は24%となった。これはガラスがマイクロ波透過性のある材料であるため側面からもマイクロ波が照射されるのに対し、他の材料はマイクロ波透過性がないため脱硝ポート上面から入射するマイクロ波によってのみ水が加熱されることに起因している。マ

第3図 脱硝ポートの材質・寸法とマイクロ波吸収効率 η_t

マイクロ波を透過しない金属製脱硝ポートの場合の η_t は脱硝ポートの直径の2乗(面積)に比例し、脱硝ポート内液厚を変化させた場合には、第3図に示すようにほぼ直線的に増加している。

第3図に示した実験のうち、直径200mmのステンレス鋼製脱硝ポートの吸収効率試験時の各脱硝ポートの η_t を第4図に示す。脱硝ポートは第4図に示すように等間隔でマイクロ波オープン内に置いた。A、Cの位置ではBの位置より η_t が大きくなっている。これは蒸発室内のA、Cのような壁に近いところの方がマイクロ波密度が大きくなっているため、その原因としては壁からの反射マイクロ波がB位置に比べて多いためと考えられる。脱硝室内(D位置)に置かれた脱硝ポートの η_t は液厚10~50mmのいずれの場合にも蒸発室内に置かれた脱硝ポートのより小さくなっている。しかしながら、この η_t は(6)式の P_0 として10.35kWを用いて求めているため、脱硝室に供給されるマイクロ波出力1.35kWを P_0 として η_t を算出すると、30~60%となった。

第4図 脱硝装置内の各脱硝ポートのマイクロ波吸収効率

以上の実験により、ガラスビーカーを用い、50mm液厚に水を供給してマイクロ波を照射した場合には、設計時に仮定したのとはほぼ同様のマイクロ波吸収効率 η_A を得ることができたが、他の実験ケースではいずれも設計値を下回るマイクロ波吸収効率しか得られな

った。これはバッチ式装置^⑥では側壁からの反射マイクロ波が効率よく被加熱物に行くようにマイクロ波オープンの断面を正方形にするとともに、脱硝ポートを床面に配置して一つの脱硝ポートにマイクロ波が集中するように設計されているのに対し、本装置は長方形であり、脱硝ポートが複数で、かつマイクロ波オープンの床面より上の位置にある回転ヘッドの上のせてある。したがって、脱硝ポート内に効率的にマイクロ波が入射しなかったためである。

被加熱物(水)に吸収されなかったマイクロ波は第Ⅳ-2節で述べる脱硝試験時に第1,2図に示したマイクロ波トラップの温度が100°C以上になっていたことにより、マイクロ波トラップに吸収されたものと考えられる。なお、マイクロ波攪拌ファンおよび脱硝ポートの回転の有無によって水のマイクロ波吸収効率の変化は認められなかった。

2. CeおよびUによる脱硝試験

(1) Ce脱硝試験

第Ⅳ-1節で述べたマイクロ波吸収効率測定試験に続いて、直径200mmのステンレス鋼製脱硝ポートを用いて脱硝試験を行なった。U、Puの模擬物質として化学的、物理的性質の似た非放射性物質である硝酸セリウムを用い、Ce濃度・液厚・マイクロ波出力などをパラメータとして、試験条件および結果を第2表に示す。

(1) 原料塩の供給量：液厚およびマイクロ波出力を一定にし、Ce濃度を変えることによりCe供給量を変えた場合には、第5図に示すようにCe供給量が少なくなるに従って徐々に脱硝時間が長くなっていく。これは水分が蒸発した後の熔融硝酸セリウムの液厚が低くなり、硝酸セリウムに吸収されないマイクロ波が脱硝ポートの底で反射して系外にいつてしまい、マイクロ波吸収効率が小さくなるためと考えられる。硝酸セリウム供給量230gの第2表に示した試験番号2,3,6,7では十分な脱硝反応が得られなかった。

(2) マイクロ波発振器出力：上記の結果からCe供給量が一定の硝酸セリウム濃度1.1mol/lおよび液厚30mmにし、マイクロ波出力を変化した場合の脱硝するまでの時間を第6図に示す。マイクロ波出力と脱硝時間は反比例している。(6)式においてもマイクロ波出力 P_0 と脱硝時間 t は反比例することが示されている。したがって、マイクロ波出力を5~10.35kWの間で変化してもマイクロ波吸収効率に影響を及ぼさないことが確認できた。

(3) マイクロ波吸収効率：(6)式からマイクロ波吸収効率を求めると、第5,6図に実線で示した30%を

第2表 Ce 脱硝試験の結果

試験 番号	Ce 供給条件				マイクロ波 出力 (kw)	脱硝ボートの 移動方法	マイクロ波照射時間 又は脱硝ボートの回転	脱硝時間 (min)	備 考
	濃度 (mol/l)	液厚 (mm)	液量 (l)	脱硝体の径 (mm)					
1	1.1	30	1	480	10.35	間 欠	有	53	脱硝ボート底の円周部に未脱硝 Ce 塩が一部残った。
2	0.5			230				60	
3				230				60	
4				480				74	
5	1.1	10	0.3	160	10.35			20	十分な脱硝が起きなく、Ce 塩が底に残った。
6				160				20	
7				160				20	
8				480				111	
9	2.2	30	1	480	10.35			111	
10				960				48	
11				740				71	
12	1.1	30	1	480	10.35			無 有	59
13				480		連続	有		54

注) *1 脱硝ボートを 11mm/min で連続的に移動

第5図 溶液濃度と脱硝時間

下回る27~28%であった。第6図に示した試験では直径200mmのステンレス鋼製脱硝ボートを用い、初期液厚30mm、脱硝体厚さ10mmであったので、仮に平均液厚を20mmとすると、これは第3図に示した同じ脱硝ボートで水の液厚20mmのマイクロ波吸収効率27%と一致した。

(4) その他：本装置には加熱・脱硝をより均一にするため、第1図に示す位置にマイクロ波搅拌ファンを設けるとともに、第2図に示す回転ヘッドで脱硝ボートを回転できるようにした。Ce脱硝試験では、マイクロ波搅拌ファン、脱硝ボートの回転の有無による脱硝時間およびマイクロ波吸収効率に有意な差はなかった。しかし得られた脱硝体の色相観察から、いずれか一方が作動すれば脱硝ポート内の脱硝体の色がより均一となり、有効であった。

また、脱硝ポートの移動速度を11mm/minにした第2表の試験番号13と、10min間の停止を入れて平均移動速度を同じにした試験番号12とでは、マイクロ波

第6図 マイクロ波出力と脱硝時間

吸収効率および脱硝体の性状に有意な差はなかった。

(2) U脱硝試験

Ce脱硝試験に続いて、硝酸ウラニル溶液を用いてU脱硝試験を行なった。U脱硝試験には直径200mmのステンレス鋼製ボートを用いた。原料溶液はU濃度270g/l(約1.1M/l)、硝酸濃度約2.8Mに調整し、各脱硝ボートに1l(30mmの液厚)ずつ供給した。試験結果を第3表に、U脱硝体の例を写真1に示す。試験番号1の脱硝時間は約70minで、Ce脱硝試験の試験番号1(約50min間)より必要熱量の補正をした脱硝時間とはほぼ同等であり、マイクロ波吸収効率も同じであった。

試験番号1,2ではCe脱硝試験では見られなかった黒色の斑点が脱硝ポート中心部近傍に現れた(写真1の○部の斑点)。これはバッチ式脱硝装置でも見られ

第3表 U脱硝試験の結果

No.	脱硝ポートの回転	マイクロ波の厚さ	生成物 (mm)	生成物重量 (g)	残留硝酸分 (%)	備考
1	あり	あり	10~42	296	0.09	赤熱スポットが発生した [†] 。
2	なし	あり	10~38	300	0.19	未脱硝部分があった。赤熱スポットが発生した。
3	あり	なし	10~50	290	0.12	

[†] 脱硝ポート中心部で赤熱してない部分 写真1 ウラン脱硝体(UO₃)(試験番号1)

ており、マイクロ波オープン内のマイクロ波の偏りによって部分的に脱硝体が加熱され、(3)式の反応が進んで脱硝体(UO₃)がU₃O₈になるためと考えられる。U₃O₈は第Ⅱ章で述べたようにUO₃と比べて十分に大きい $\epsilon_T \tan \delta$ を持っていると推定され、さらにマイクロ波照射を続けるとU₃O₈になった部分にマイクロ波が集中し、U₃O₈は赤熱温度まで加熱される。

このため、脱硝ポート内のUが脱硝体(UO₃)になる前に(3)式の反応が始まると、脱硝ポート内に未脱硝の硝酸ウランが残り均質な脱硝体が得られなくなる。さらに未脱硝部分のある脱硝体にマイクロ波照射を続けるとU₃O₈が多量にでき、粉末物性を悪化させる原因になる。この対策として、本試験装置の設計に当っては、脱硝室のマイクロ波密度を低くするとともにマイクロ波攪拌ファンと回転ヘッドを設けた。今回の試験では第3表に示したように、試験番号2に未脱硝部分が見られ、かつ残留硝酸部分が他の試験より多かったことにより、マイクロ波攪拌ファンより脱硝ポートの回転の方がより均質な脱硝体を得るのに有効で

あった。なお、本試験ではバッチ式脱硝装置と同様、U₃O₈が部分的にできた時にマイクロ波の発振を停止してU₃O₈が僅かしかできないようにした。

(3) その他の関連試験

(1) 材料試験：脱硝ポートの材料にマイクロ波透過性のガラスのような材料を用いれば、第3表に示したようにマイクロ波吸収効率を向上でき、より均質な脱硝体を得られるようになる。しかしながら、ガラスは機械的強度がないので、脱硝反応時に破損してしまう。このため、機械的性質および耐硝酸性に優れ、かつマイクロ波透過性を持つ材料の中から石英ガラス、特殊強化ガラス(商品名マコール)および窒化ケイ素(Si₃N₄)を選び、10N 沸騰硝酸中で腐食試験を行うとともに内径150mmの脱硝ポートを試作して脱硝試験をした。石英ガラス、特殊強化ガラスとも耐食性は優れているが、脱硝時の急激な脱硝体の膨脹により5回以内に破損した。

Si₃N₄の耐食性は第7図に示すように、30hの沸騰硝酸浸漬試験で5mg/cm²であるので、脱硝体中に溶出するSiは約15ppm/U(第Ⅳ-2(2)項で述べたU脱硝試験条件)と考えられ、原子炉燃料の原料粉末Siの許容量に比べ十分に低い結果が得られた。

第7図 窒化ケイ素(Si₃N₄)の沸騰硝酸腐食試験結果

Si₃N₄製脱硝ポートでCe脱硝試験とU脱硝試験を行ったところ、脱硝ポートの破損もなく、マイクロ波がステンレス鋼製脱硝ポートの場合に上部から入射するのに比べ、側部からも入射するため脱硝時間が約3%になった(Ce脱硝試験による比較で53→37min)。なお、U脱硝試験ではUO₃中の残留硝酸が0.15%で、ステンレス鋼製脱硝ポートと有意な差はなかったが、写真1に示した脱硝体と比べると、周辺部まで均質に脱硝されていた。

V. 検討とまとめ

1. マイクロ波吸収効率

UO_2 , UO_3 のマイクロ波吸収効率を水と比較して測定し、 $\epsilon_r \tan \delta$ がそれぞれ 11, 0.4 であることを推定した。また、バッチ式脱硝装置での経験⁹⁾より Pu, U の硝酸水溶液、水分の蒸発した硝酸塩のそれは水とほぼ同等であり、 U_3O_8 は UO_3 と比べて十分に大きいことを予測した。ウラン酸化物の場合、酸素量により結晶構造が異なるため、マイクロ波場における各結晶の分子振動の大きさが異なるものと考えられる。今後、U, Pu 化合物の温度・マイクロ波周波数による $\epsilon_r \tan \delta$ の測定が必要である。

2. 連続脱硝試験装置

水を用いて本装置のマイクロ波吸収効率を測定して装置の特性を調べ、次に Ce, U を用いて脱硝試験を行った。本装置は 500 g/l (2.2 M/l) の原料溶液を供給した場合に 2.5 kg/h を持つように計画したが、270 g/l の原料を供給した場合の脱硝時間が 70 min であった。これは 0.8 kg/h に相当する。また、この結果より 500 g/l の原料を供給した場合には 1.7 kg/h の処理能力が得られるものと考えられる。これは設計値の 30% 減の処理能力である。この原因としては設計時にマイクロ波吸収効率を 60% と仮定したが、第 3～6 図に示したようなマイクロ波がマイクロ波トラップに吸収され、マイクロ波吸収効率が低くなったことによる。これは試験中にマイクロ波トラップの温度が徐々に上昇したことからも確認できた。

均一加熱のためのマイクロ波攪拌ファンや脱硝ポートの回転の効果は、Ce, U 脱硝試験で得られた脱硝体の色相観察により確認できた。

今回の試験装置は、グローブボックス内に設置することを前提として外形寸法を決定した。また、マイクロ波のより均一な分散を得るためマイクロ波攪拌ファンや脱硝ポートの回転ヘッドを設けたため、実機の運転時に保守を必要とする部分が多くかつ保守作業も容易でないことが試験を通じ判明した。このため、より均一なマイクロ波場を得るには、マイクロ波トラップの設置方法、脱硝ポートの移動・回転の方法、マイクロ波オープン内へのマイクロ波の導入方法などについて、今後さらに検討する必要がある。

3. その他の関連試験

ガラスのように、マイクロ波を透過してマイクロ波吸収効率を向上させるとともにステンレス鋼と同等の

機械的強度および耐食性を持つ材料として、チタケイ素 (Si_3N_4) が有望であることが確かめられた。しかしながら、 Si_3N_4 は製造法により機械的強度、耐食性のバラツキおよびマイクロ波に対する特性が変化する可能性があるため、さらに試験を重ねる必要がある。

以上の試験の実施中にマイクロ波連続脱硝プロセスの監視・制御の方法についても検討した。特に、得られた脱硝体 (UO_3) にマイクロ波を照射し続けると UO_3 が U_3O_8 になり、この量が多くなると粉末物性が悪くなるので、これを監視・制御するため、脱硝体の温度、マイクロ波反射量を測定する赤外線温度計、反射マイクロ波測定計、照度計を用いた。

以上に報告したように、本試験により、マイクロ波加熱による Pu・U 混合溶液を、酸化物に脱硝するマイクロ波加熱直接脱硝プロセスの連続化の目途がついた。本試験装置は約 1 t/yr の能力を持っている。さらにマイクロ波出力を増し、脱硝ポートの材料をマイクロ波透過性のものにするにより、処理能力を増すことが可能である。しかしながら、Pu・U 溶液および酸化物のマイクロ波に対する特性については未だ公開された文献はなく、今後の研究に期するところが大きい。動燃事業団では、本研究成果をもとに、改良型連続脱硝試験装置の製作および大量処理試験を行う予定である。

本試験研究の実施に当り試験装置の設計・製作を初めとして、実験の実施に多大の協力を頂いた動力炉・核燃料開発事業団の小泉益通氏、田村修男氏（現在、三菱原子燃料㈱）、柳東芝の森末哲夫氏を初め関係各位に感謝の意を表する。

— 参考文献 —

- (1) DOTO, P.C., PEABOY, C.M.: ARH-SA-213, (1975), Atlantic Richfield Hanford Co..
- (2) INFCE/PC/214: Reprocessing, plutonium handling, and recycle report of Working Group 4, IAEA STI/PUB/543, (Jan. 1981).
- (3) KINCARD, C.B., et al.: GEFRE-SP-168, (1979).
- (4) SCHNEIDER, V.W., et al.: Trans. Am. Nucl. Soc., 40, 50 (1982).
- (5) KOIZUMI, M., et al.: J. Nucl. Sci. Technol., 20(7), 529 (1983).
- (6) KOIZUMI, M., et al.: 文献(4), 38, 203 (1981).
- (7) 大島博文, 他: 原子力誌, 25(11), 918 (1983).
- (8) FANE, A.G., et al.: AAEC/E 284 (1974), Aust. AEC.
- (9) SOUPLY, K.R., NEAL, D.H.: RFP 2600, (1977), Rockwell International, USA.
- (10) 露木英男, 他: “食品のマイクロ波加熱”, (1974), 建邦社.
- (11) HINPPEL, A.R.: “Dielectric Materials and Applications”, (1954), MIT Press.