プルトニウム転換技術開発施設

マイクロ波加熱直接脱硝法による 世界初の混合転換プロセスの実用化

日本原子力研究開発機構 吉元 勝起

1977年の日米再処理交渉を機に、基本設計まで終えていたシュウ酸沈殿法によるプルトニウム単体転換プロセスは、日米再処理交渉によって断念を余儀なくされたことから、核不拡散上の観点から、プルトニウムとウランの混合溶液を転換する新たな方法の開発が必要となった。

日本が独自に開発したマイクロ波加熱直接脱硝法は、電子レンジと同じ原理を応用した日本独自の技術である。マイクロ波加熱直接脱硝法を核拡散抵抗性に優れたプルトニウム・ウラン混合転換プロセスの中核技術として採用し、東海再処理工場に隣接してプルトニウム転換技術開発施設を建設し、1986年より開発運転を行っている。この技術を短期間にいかに育み、開花させるに至った経緯について、その歴史的背景等を交えながら解説する。

I. 日米再処理交渉…

平和目的と称して1974年5月に行われたインドの核爆発実験により、米国は商業再処理とプルトニウムの軽水炉利用の無期限延期など、核不拡散政策を強化することとなった。その当時、日米原子力協定の下で米国から輸入した濃縮ウラン燃料を含む使用済燃料を用いたホット試験を予定していた日本初の再処理工場である東海再処理工場の運転の障壁となった。

日米原子力協定では、日本で使用済燃料を再処理する前には事前に米国との共同決定を必要としていた。この共同決定に際し、保障措置上の問題から、東海再処理工場に核不拡散効果が大きいと考えられる工程への設計変更を要求する米側と、エネルギー資源の不足から早急に再処理を実施したいとする日本との間で精力的な交渉が行われた。度重なる交渉の結果、東海再処理工場は既定の単体抽出法で2年間99トンまで運転すること、両国が合意すれば混合抽出法に切り替えること等について合意し、両国は1977年9月12日に日米共同決定に署名することとなった。この結果、1977年9月22日に東海再処理工場のホット試験を始めることができた。

II. 単体転換から混合転換へ^{*1}

日米原子力交渉から遡ること3年前の1974年6月、日

The World's First Success of Practical Pu-U Co-Conversion Process Using a Microwave heating Direct De-Nitration Method (Plutonium Conversion Development Facility):
Katsunobu YOSHIMOTO.

(2010年 11月24日 受理)

本は使用済燃料から再処理によって抽出されたプルトニウムを英仏と同様に、シュウ酸沈殿法を用いた酸化物粉末への単体転換施設の研究・設計を開始していた。単体転換施設の設計は、1975年5月に概念設計を開始し、1976年12月には詳細設計へと進んでいたが、日米再処理交渉の結果を受け、単体転換の断念を決断することとなった。この方針転換により、急きよ、核不拡散性に優れたプルトニウム-ウラン混合転換技術の開発を1977年9月より開始した。

混合転換法としては、(1)ウラン粉末の製造工程として技術が確立していたアンモニア沈殿法を応用したアンモニア共沈殿法^{*2}、(2)硝酸ウランの脱硝法として再処理工場で採用されている流動床を応用した流動床直接脱硝法^{*3}、(3)共沈殿法と流動床法を組み合わせたCO-PRECAL法^{*4}(米国GE社)、(4)共沈殿法にプルトニウムの酸化数調整工程を加えたAUPuC法^{*5}(独ALKEM社)を候補として検討が行われた。

III. マイクロ波加熱直接脱硝法の発見！

プルトニウムの単体転換から混合転換へと大きく方針転換することになり、しかも2年という期限の中で混合転換技術の開発を進めなければならないという極限状態の中、技術者達は上述した各種混合転換技術の開発に精力的に取り組んだ。その中でウランを用いたアンモニア共沈殿法での機器開発を進めていく中で、生成される微細沈殿粒子(ADU)の汙過プロセスにおいて思うような結果が出ず、混合転換試験への移行が懸念されていた。

ちょうど、その頃、別プロジェクトで使用していた電子レンジ(市販品)が捨てられようとしているのを目にし

た技術者の「ADUを加熱し水分を除去したら…？」の
とっさの閃きが、後のマイクロ波加熱直接脱硝法(以下
MH法と称する)の開発に繋がるとは、その時の技術者
も思いはしなかったことであろう…。この閃きをADU
の加熱に電子レンジを使用したところ、ADUは突沸を
起こし、電子レンジ内に飛び散り、挙句の果てには放電
により加熱容器が割れてしまい、もはやこれまでと落胆
し、試験に使用されずに残ったウラン溶液を直接乾燥さ
せようと電子レンジへと入れ、スイッチをONにしたと
ころ、電子レンジ内にウランが飛び散ることなく、山吹
色に輝く三酸化ウランの脱硝体が生成していた。これこ
そが、まさかの偶然により、MH法が見出された瞬間で
あった。

IV. マイクロ波加熱直接脱硝法の開発

偶然発見されたMH法については、ただちにウラン
試験を実施することとなり、試薬等を必要とせずに直
接、乾固体が得られるという大きな利点があることなど
から、1977年12月、他の混合転換法と並行して、開発を
行うこととなった。その後、プルトニウム-ウラン混合
溶液で同様の試験を行ったところ、良好な結果が得られ
たことから、1978年1月より、アンモニア共沈殿法、流
動床直接脱硝法、MH法の3法に絞って試験が進められ
ることとなった。

このうち、アンモニア共沈殿法とMH法については、
小規模工学試験を進める目的で、プルトニウム燃料第二
開発室に混合転換試験設備が設置された。

当該設備を用いた試験結果については、米国技術者を
交えた議論・検証が行われた。その結果、我が国が独自
に開発したMH法による混合転換技術は、極めて核拡
散抵抗性が高く、核不拡散を懸念する米国政府に対し
て、我が国が推し進めるプルトニウムの平和利用につ
いて理解が得られ、我が国における原子力開発の前に立
ちふさがった壁を打ち破り、大きな一步を踏み出すこと
が可能となった(1980年2月)。

単体転換から混合転換へと踏み出した技術者の前に、
次なる壁としてプルトニウムとウランの混合比を幾つに
するかといったことについて議論されることとなった。
米国からは、プルトニウム/ウラン=1/2が適当である
との提案がなされたが、我が国は燃料製造上の技術的な理
由(主に富化度調整の問題)からプルトニウム/ウラン=
1/1を主張した。協議の結果、我が国が主張したプルト
ニウム/ウラン=1/1が受け入れられた(1980年3月)。

V. 回想：小泉ベーカリー……

捨てられようとしていた電子レンジから「種」が見出
されたMH法は、その後、多くの人たちにより育まれ、
偶然から見出された種は芽を出し、1979年7月より2
kgMOX試験設備を用いて再処理工場から回収されたプ

ルトニウムを用いたMH法の確証試験を行った。この
時、作られたプルトニウム・ウランの混合脱硝体は、ち
ょうど「カルメ焼き」に似ていたことから、MH法の開発
の先陣に立ち指揮していた当時のプルトニウム燃料部長代
理であり、転換技術開発班の班長であった小泉益道氏(故
人)から名をとり、「小泉ベーカリーのカルメ焼き」と命
名された。同年10月、小泉ベーカリーの噂を聞きつけた
米国調査団が大挙して「小泉ベーカリーのカルメ焼き」を
確かめようと来日し、来日した米国調査団の目の前で
ケーキカット宜しく、脱硝体をカットし、米国調査団一
行を驚愕させたその時こそ、MH法が大輪の花を咲かせ
た時といえよう。

その後、本技術開発に対し、1981年には米国原子力学
会より学会賞、1983年には日本原子力学会より学会特別
賞を授与されることとなった。

VI. マイクロ波加熱直接脱硝法の特徴

MH法は、使用済燃料の再処理により回収された硝酸
プルトニウム溶液と硝酸ウラン溶液を混合した後、マ
イクロ波を照射することによって脱硝酸化物を得る手法
であり、その過程は溶液から固体までのプロセスをマ
イクロ波による加熱の1工程で実施する非常にシンプルで
ありながら多くの利点を有するものであった。

(1) プロセスが短い

溶液の昇温、溶液の濃縮、硝酸塩の加熱、脱硝、酸化
物の昇温をマイクロ波による加熱の1工程で置き換える
ことできる。(第1図参照)

(2) 廃液の発生量が少ない

沈殿物の生成に必要な試薬を必要とせず、プルトニ
ウム+ウラン溶液を濃度の高いまま直接脱硝するため廃
液の発生量が少ない。

(3) 得られる粉末の特性が良い

熱分解反応の際に生じるNO_xガスにより、脱硝酸化
物は多孔質で微細な粒子の集合体となっている。このた
め、容易に破碎でき、高密度ペレットの製造に有利な高
い活性度の粉末が得られる。

第1図 MH法による脱硝の過程

Ⅶ. プルトニウム転換技術開発施設の建設

1977年には、東海再処理工場にて回収したプルトニウムをシュウ酸沈殿法(単体転換法)により酸化物粉末に転換する施設の詳細設計が終了し、安全審査に必要な各種資料作成等の業務が始まっていた。

しかしながら、日米原子力交渉の結果を受けて単体転換は断念され、MH法による混合転換の目処が得られた後、1978年12月に混合転換施設への設計変更に踏み切り、再度、混合転換施設の詳細設計を進めることとなり、1980年2月に終了した。1980年7月には、国際核燃料サイクル評価委員会(INFCE)等の評価を受けて、混合転換施設の建設が日米間で口上書交換の形で合意され、東海再処理工場の南側に施設の建設が開始された。

プルトニウム転換技術開発施設は地下1階、地上4階の鉄筋コンクリート造であり、建築面積は約1,200 m²、延床面積は約5,000 m²である。外観を第2図、主工程室の様子を第3図に示す。主工程設備の据付は1981年11月に開始され、翌年8月からは通水作動試験を行い、施設は1983年2月に終了した。

Ⅷ. プルトニウム転換工程の概要

東海再処理工場の分離精製工程で使用済燃料から回収

第2図 プルトニウム転換技術開発施設の遠景

第3図 主工程室

された硝酸プルトニウム溶液、および回収された硝酸ウラン溶液または分離精製工場以外で精製された硝酸ウラン溶液を受入れ、混合槽でプルトニウムとウランとの比が1:1以下になるように混合し、約2 kg(Pu+U)の溶液がマイクロ波加熱脱硝器内で直接加熱脱硝され、プルトニウム・ウラン混合脱硝体(PuO₂+UO₃)が生成する。マイクロ波加熱脱硝器は2系列有しており、2系列で5回脱硝することで10 kgMOX/dの処理能力を持っている。

生成されたプルトニウム・ウラン脱硝体は、破碎され気流輸送装置により、焙焼還元工程に送る。焙焼還元工程では750℃で焙焼(PuO₂+UO₃→PuO₂+U₃O₈)されたのち、水素還元(PuO₂+U₃O₈→PuO₂+UO₂)が行われる。焙焼還元された粉末は、粉碎工程にて均一な粒径の粉末となる。その後、中間貯蔵工程を経て混合機へと気送し、回転羽により粉末を均一に混合する。混合機によって、1ロット当たりのサイズが大きくなった混合粉末は、アルミニウム製の粉末缶に1缶当たり2.5 kgずつ封入する。そして、粉末が充填された粉末缶4缶を貯蔵容器と呼ばれる容器に収納し、施設内の貯蔵ホールにて保管し、燃料製造施設からの混合粉末供給の要請に応じて、適時、払い出しが行われる。(第4、5図参照)

Ⅸ. 試験運転と開発運転

1983年4月にはウラン試験を開始し、マイクロ波出力

第4図 施設および工程の概要

第5図 プルトニウム・ウラン混合脱硝体

に対する脱硝体や焙焼還元温度に対する焙焼還元粉の物性評価並びに粉末の取扱いに対する不具合の改善等を行った。1983年10月には分離精製工場から硝酸プルトニウム溶液を受入れ、ホット試験を開始し、さらにプルトニウムの崩壊熱に起因するO/M比(PuおよびUと酸素の原子数の比)が上昇することが判明したことから、中間貯蔵工程で使用されている保管容器の材質をステンレス鋼からアルミニウムに変更するとともに、内部に放熱用のフィンを設けてO/M比を安定させるなどの改善を行い、1986年には設計通り10 kgMOX/dの処理能力を達成し、使用前検査に合格し、開発運転段階に移行した。

その後の開発運転では、新型転換炉「ふげん」、高速実験炉「常陽」、高速原型炉「もんじゅ」用原料粉末の14.5 tMOXを2009年までに安定的に製造し燃料加工施設に提供するとともに、これらの運転を通じて工学規模での実証を行った。また、この開発運転の期間中、脱硝反応の基礎データの取得、運転効率向上のためのマイクロ波透過性窒化ケイ素セラミック製脱硝皿の開発、MOX粉末貯蔵容器の再利用技術開発、計量管理・保障措置技術開発等の高度化のための開発を行った。

このように家庭用の電子レンジを用いた実験から始まったMH法は、その後、小規模試験設備によって工学規模での確証を行い、その知見は実証施設であるプルトニウム転換技術開発施設へと引き継がれ、原料粉末の製造を通じて、工学的規模での実証を行い、核拡散抵抗性が高い日本独自の転換技術として確立した。

X. 民間再処理工場への技術移転

民間再処理工場である日本原燃(株)の六ヶ所再処理施設の転換施設への技術移転は、1985年の「ウラン及びプルトニウム転換・貯蔵施設」の概念設計から始まる。この概念設計では先に述べた各種混合転換法に加え、世界で唯一工学的に実証されたMH法も含めて改めて実証性、安全性、操作性などの技術的な評価結果を提示し、日本原燃(株)はMH法の採用を決定した。

1987年から1989年にかけて、基本設計にかかわるコンサルティングを実施し、ホット試験と技術開発運転を通じて得られた技術データを提供した。

1990年から1998年にかけては、商用規模でのスケールアップ(10 kgMOX/d→90 kgMOX/d)に伴う技術的問題の解決を目的として、人形峠事業所でウラン粉末を用いて「マイクロ波加熱法による混合転換技術開発試験研究」や「マイクロ波加熱法による混合転換技術確証試験」を実施し、機器内粉末滞留量、廃棄物発生量の把握や約700時間のシステム試験を実施し、片系1日45 kgUの定格処理能力がほぼ得られることを確認した。

プルトニウム転換技術開発施設の技術開発運転によって得られたMOX粉末の物性値や、センサやケーブル等の耐硝酸性に関する知見などについて技術協力を行うと

ともに、1993年からは個別機器に関わる詳細情報のほか、グローブボックス内機器の保守性、貯蔵中のMOX粉末の物性変化の有無、気流輸送設備の内部観察結果等を提供した。

人的協力については、1983年から日本原燃(株)の研修生を48名受け入れ、最長で3年間のOJTにより混合転換に関わる専門知識、MOX粉末の取扱い技術、主工程/廃棄物処理工程/ユーティリティー工程の運転技術、撤去更新技術、許認可対応補助、保障措置対応補助等の研修を行った。また、1988年以降、プルトニウム転換技術開発施設の開発に携わった原子力機構の技術者が混合転換に関わる知識、技術、ノウハウを確実に移転するため日本原燃(株)に延べ約20名を派遣している。

このようにハード、ソフト両面からの協力によって、六ヶ所再処理工場のウラン・プルトニウム混合脱硝施設は2005年5月にウラン試験が終了し、2007年7月にはプルトニウムを使ったアクティブ試験も終了したことでマイクロ波加熱直接脱硝法による混合転換プロセスの技術移転がほぼ終了した。(第6図参照)

XI. プルトニウム転換技術が果たした役割

プルトニウム転換技術開発施設は、1983年10月のホット試験開始以来、2010年11月で27年が経過する。この間、我が国で最初の再処理工場と、燃料加工施設を繋ぐプルトニウムリサイクルの要として、大きなトラブルもなく円滑な運転を継続できたことは、多くの諸先輩方が「マイクロ波加熱脱硝法」を国産技術として定着させるべく、国内外を奔走し、今日に至る道筋を定めてくださった努力の結果の賜物である。

「MH法」は、日米原子力交渉によって、国外にも技術的蓄積がほとんどない混合転換への変更を余儀なくされ、課題が山積みの中、背水の陣で臨んだ技術者達の結束力が生み出した技術といっても過言ではない。前述したように偶然、余ったウラン溶液を電子レンジで直接乾燥しようと加熱したのが「MH法」発見の第一歩であっ

第6図 マイクロ波加熱直接脱硝法の歩み

たが、その後は一瀉千里、数ヶ月足らずでプロセス成立性を評価し、少資源国である日本の「プルトニウムリサイクル」という命題のもとに、官民一体、職員・協力会社員および多くのメーカー出向者が一丸となって、建設・試運転・技術開発運転が進められ、プルトニウム転換技術開発施設は非核兵器保有国として唯一、使用済燃料の再処理および核燃料サイクルの実現を果たした象徴的な施設となった。また、六ヶ所再処理工場への技術移転も円滑に進められ歴史的に大きな役割を果たすことができた。

XII. 新たな歴史の構築へ…

将来の燃料製造技術として、燃料製造コストの大幅低減と遠隔操作を必要とする超ウラン元素のリサイクル燃料製造に対応できるショートプロセスの開発が進められている。このショートプロセスは、プルトニウム溶液とウラン溶液の混合段階でその混合比を原子炉の燃料仕様の合わせ、その後、MH法により脱硝、焙焼還元、造粒を行い、そのまま成形・焼結してMOXペレットを得る方法である。この方法は、現行の23工程あるペレット製造プロセスを8工程に削減することができる革新的な技術である。

現在、プルトニウム転換技術開発施設では、このショートプロセスを実現するための要素技術である溶液のプルトニウム富化度調整技術開発、粉末流動性改良技術開発を進めており、今後も核燃料サイクルの一翼を担う施設としてその役割を果たし、新たな歴史を構築していきたい。

(用語の説明)

- *¹単体転換，混合転換： 単体転換では、硝酸プルトニウム溶液を二酸化プルトニウム粉末に転換し、別に製造した二酸化ウラン粉末と混合してMOX粉末を得る。混合転換では、溶液段階でプルトニウムとウランを混合することにより、二酸化プルトニウム粉末の状態を経ることなくMOX粉末を得る。MOX粉末からプルトニウムを取り出すためには、含有するウランを取り除く必要があるため、軍事利用への障害が高い。
- *²アンモニア共沈殿法： Pu・U混合溶液にアンモニア水を加え、Pu・U共沈殿物を生成し、これをろ過・焙焼・還元しPuO₂・UO₂の粉末を得る。
- *³流動床直接脱硝法： Pu・U混合溶液を濃縮したのち、流動ガス(N₂ガス)とともに流動床中で加熱して脱硝し、その後、焙焼・還元しPuO₂・UO₂の粉末を得る。
- *⁴CO-PRECAL法： Pu・U混合溶液に過剰なアンモニア水を加え、生成した沈殿スラリーをN₂ガス・金属球とともに焙焼流動床で焙焼・微粉化し、その後、還元しPuO₂・UO₂の粉末を得る。
- *⁵AUPuC法： Puの原子価を6価に調整したPu・U混合溶液にアンモニアガス、炭酸ガスを供給し沈殿物を生成する。これをろ過し、焙焼炉のH₂-N₂ガス中で加熱しPuO₂・UO₂の粉末を得る。

— 参 考 資 料 —

- 1) “マイクロ波加熱直接脱硝法による混合転換プロセスの実証20年の歩み—プルトニウム転換技術開発施設の運転経験と技術開発”，サイクル機構技報 No. 24, (2004. 9).
- 2) “燃料製造システムの要素技術開発(1)—ペレット法燃料製造技術”，サイクル機構技報 No. 24別冊, (2004. 11).

著 者 紹 介

吉元勝起(よしもと・かつのぶ)

(独)日本原子力研究開発機構