

Experimental Research Subject and Renovation of Chemical Processing Facility (CPF) for Advanced Fast Reactor Fuel Reprocessing Technology Development

Tomozo KOYAMA Shigehiko MIYACHI

Tadahiro SHINOZAKI Kazunori NOMURA Yoshiaki ICHIGE Tsuguyuki KOBAYASHI

Yoshikazu KOMA Shin - ichi NEMOTO

Advanced Fuel Recycle Technology DivisionWaste Management and Fuel Cycle Research Center, Tokai Works

現行の再処理プロセスの経済性,環境負荷低減及び核不拡散抵抗性をさらに高めるため,プロセスの簡素化, 最適化,これまで採用しなかった新しい技術の適用性評価など,先進的な高速炉再処理技術開発を進めている。 先進的な高速炉再処理プロセスの確立に向けた研究開発において,実際の燃料を用いた試験フィールドの中心で ある高レベル放射性物質研究施設(CPF)をより積極的に活用するため,技術の高度化及び多様化に対応できる よう,ホットセル内装設備の改造,グローブボックスの新設・更新,各種分析装置の設置等の改造工事を進めて きた。これらの最新の試験設備を活用し,簡素化湿式再処理技術,MA分離技術,乾式再処理技術等の研究開発 を,高速炉「常陽」の照射済燃料ピンを用いたホット試験を中心に実施していく計画である。

In order to enhance economical efficiency, environmental impact and nuclear nonproliferation resistance, the Advanced Reprocessing Technology, such as simplification and optimization of process, and applicability evaluation of the innovative technology that was not adopted up to now, has been developed for the reprocessing of the irradiated fuel taken out from a fast reactor. Renovation of the hot cell interior equipments, establishment and updating of glove boxes, installation of various analytical equipments, etc. in the Chemical Processing Facility (CPF) was done to utilize the CPF more positively which is the center of the experimental field, where actual fuel can be used, for research and development towards establishment of the Advanced Reprocessing Technology development. The hot trials using the irradiated fuel pins of the experimental fast reactor "JOYO" for studies on improved aqueous reprocessing technology, MA separation technology, dry process technology, etc. are scheduled to be carried out with these new equipments.

キーワード

高レベル放射性物質研究施設,高速炉燃料再処理,先進湿式プロセス,乾式プロセス,ホット施設改造,晶析, 簡素化湿式再処理,MA分離

Chemical Processing Facility, Fast Reactor Fuel Reprocessing, Advanced Aqueous Process, Dry Process, Renovation of Hot Facility, Crystallization, Simplified Aqueous Reprocessing, MA Separation



技術報告

31

1.はじめに

先進的な高速炉再処理プロセスの確立に向けた 研究開発の高度化及び多様化に対するため,高レ ベル放射性物質研究施設(CPF:Chemical Processing Facility)では1996年3月より試験設備の変更 作業を進めてきた。本作業を通して小型溶解槽, 小型遠心清澄機,小型遠心抽出器等,新規試驗設 備のセル内への設置や実験室への遮蔽付グローブ ボックス (以下, GBという。) 及び分析装置等を 新設し、先進湿式再処理技術に関する試験を実施 するためのフィールド整備を完了させた(表1, 図1)、さらに 乾式再処理法に関しても金属電解 法にかかわる還元,溶融塩電解,蒸留及び酸化の 一連のプロセス試験の実施が可能となるプルトニ ウム試験設備の設置を(財)電力中央研究所(以下, 電中研という。)との共同研究の一環として進めて きており,このたび実験室Cに完了させた。

これによって CPF では, これら最新の試験設備 を活用し, 先進的な再処理プロセスの確立に向け て本格的な技術開発に着手可能となった。引き続 き「常陽」の使用済燃料等を用いたホット試験を 順次開始していく計画である。

本報では, CPF における先進的再処理技術開発 に関する研究課題の概要と,これまで使用してき た各設備の手直し,更新作業及び新設設備の紹介 を行う。

2.CPF における今後の研究開発

2.1 プロセス開発に関する研究

(1) 晶析技術開発

従来のPUREX プロセスによる再処理では、溶媒 抽出法により使用済燃料溶解液のU及びPuとFP を分離する。溶媒に抽出されたU及びPuは、還元 剤の利用によりUとPuに分配される。分配された UとPuは,各々の精製工程で精製され,各々の製 品として回収されるが,Pu製品については,MOX 燃料製造にとって適切な比でUと混合し,U/Pu混 合製品として取り扱う。

もし初期のU/Pu比, すなわちPUREX プロセス に供する溶解液中のU/Pu比が, MOX 燃料製造に

新設・更新場所	GB名称	雰囲気	概 要	
分 析 室	GA 1A	空気	縦1m×横2m×高さ15m 各種基礎化学試験の実施	
	GA 1B	空気	縦1m×横2m×高さ15m 循環式低温恒温水槽による冷却が可能 各種基礎化学試験の実施	
	GA 2A	空気	縦1m×横1 5m×高さ1 5m U溶液 , Pu溶液及び廃液貯槽を設置	
	GA 2B	空気	縦1m×横2m×高さ15m マイクロ波+抵抗加熱式脱硝装置を設置	
	GA 3A	空気	縦0.7m×横2m×高さ15m 各種分析作業の実施	
	GA 3B	空気	縦0.7m×横2m×高さ15m 各種分析作業の実施	
実験室A	GA 6	空気	縦0 4m×横1m×高さ1m 表面電離型質量分析装置に連結 精密定量分析,同位体分析等を実施	
	GA 7A	空気	縦1m×横4m×高さ1m 誘導結合型プラズマ発光分析装置等を設置 各種分析作業の実施	
	GA 7B	空気	縦1m×横3m×高さ1m 各種基礎化学試験の実施	
	GA 9	空気	縦1m×横2m×高さ1m 鉛ガラス遮蔽付き 各種基礎化学試験の実施	
実験室C	GA 8A	空気	縦0 9m × 横 2 m × 高さ 1 m 試料調整作業等の基礎化学試験の実施	
	GA 8B	アルゴン	縦1 2m × 横5 3m × 高さ1 3m 電解精製装置等を設置 電解精製等の基礎化学試験の実施	
	GA 8C	空気	縦1m×横15m×高さ1m 廃棄物取扱い等の実施	

表1 新設・更新GBの概要



図1 CPF における主要な改造区域

とって適切な比であれば、UとPuを溶媒に抽出した後、一括で溶媒から逆抽出することにより、適切な比のU/Pu混合製品のみが得られることとなる。加えて、一括で回収できることから、UとPuの分配工程を削除することができるため、結果として簡素化した再処理プロセスとなる(簡素化PUREXプロセス)。

一般に,使用済燃料溶解液のU/Pu比は,上述 のMOX燃料製造にとって適切なU/Pu比よりもU の比率が高い。したがって,簡素化PUREXプロ セスの前に余剰のUを除去しておく必要がある。 サイクル機構では,この部分的Uの回収(U粗分 離)方法として、U晶析技術開発を進めている1)。晶 析法とは,溶質の溶解度に対する温度依存性を利 用した沈殿分離法(写真1)であり,温度の制御 によって析出するUの量を制御することができ る。言い換えると, U晶析のための新たな化学試 薬の添加を必要としない分離プロセスである。加 えて,あらかじめ晶析法により一部のUを分離し ているので、簡素化PUREX プロセスで処理すべき 核燃料物質量は減少しており、簡素化PUREX プロ セスで使用する試薬の必要量も減少することが期 待できる。今後CPFホットセルでは,実溶解液を 用いたU晶析ホット試験を実施し,晶析法により 溶解液からのし粗分離が可能であることを確証す



写真1 硝酸ウラニル結晶(左)と母液(右)

るとともに,単純な温度制御によりU回収率が設 定できることなどを確かめる予定である。

晶 析法 により U は 硝 酸 ウ ラ ニ ル の 結 晶 (UO₄(NO₃)・6H₂O)として回収されることから, U晶析条件下における原子価が 6 価のアクチニド (PuO₂²⁺ やNpO₂²⁺)の挙動は重要である²。これは, 化学的挙動の類似性から,無視できない量がUと 同伴する可能性があるためであり,U結晶へのこ れらアクチニド元素の同伴を防ぐために必要な化 学基礎データを,分析室や実験室Aに新たに設置 したGBで採取していく予定である。

(2) 高効率溶解技術開発

これまでにCPFで取得した溶解データに基づく 溶解速度評価式により,MOX燃料の溶解挙動につ いて評価してきた³⁾。その計算結果は 従来のせん 断片溶解に比べ,粉化した燃料では1/10以下の 短い溶解時間が期待できることを示している。ま た,U晶析工程では分離操作を容易に行うために できるだけ高い温度での晶析分離操作が望まれ る。高重金属濃度の溶解液を供給することにより 冷却温度を冷水温度程度にできるが,燃料の粉化 は高重金属濃度の溶解液を得る上で非常に大きな 効果をもたらす。さらに,同じ処理量でも,装置 規模を小型化したり,あるいは溶解条件をよりマ イルドに設定したりすることにも期待がもたれ る。しかしながら、上記の評価は従来の溶解条件 での試験結果から期待される外挿値による議論で あり 高重金属濃度条件における MOX 燃料の溶解 基礎データは不足しているのが現状である。また, 溶解時間の短縮による単位時間あたりのオフガス 発生量の増大も懸念される。ただし,オフガスに 関しては予備的な実験により、溶解条件の調整等 により緩和できることが確認されている。

今後CPFにおいて,高重金属濃度領域における 溶解速度(時間)及びオフガス発生挙動に与える 燃料粉化の影響評価に資するホット基礎データを 採取する。また,高重金属濃度の溶解液が晶析工 程に供されることから,同条件における主要元素 の化学組成についてもMOX燃料を用いた試験に より明らかにしていく。

(3) 簡素化 PUREX プロセス開発

簡素化PUREX プロセスに関して、先進高速炉燃料サイクルシステムにおいては遠心抽出器が主な 分離機器の一つと見なされている⁴)。遠心抽出シス テムでは、物質移動速度や反応速度の点で、従来 のミキサ・セトラシステムにはないプロセス研究 課題が生じることも考えられる。改造後のCPFに おいても、CPF型ミニ遠心抽出器(写真2)を用 いたホット試験等により、簡素化PUREX プロセス フローシートの実証を行っていく。

簡素化PUREX プロセスでは 希硝酸を用いた逆 抽出によりUとPuを共回収することとしており, 最適な逆抽出条件についてGBでの試験を中心に 基礎データを収集する。また,Npについては積極 的にU,Pu混合製品と共に回収する事を目指して いる。Np回収の鍵はその原子価制御にある。晶析 プロセスにおける温度制御,高重金属濃度溶解, 希硝酸によるU,Pu一括逆抽出など,従来とは異 なるプロセスへの要求を含むことから,これらの



写真2 CPF型ミニ遠心抽出器

プロセス条件におけるNpの化学的挙動を明らか とするための基礎試験を,分析室や実験室Aに新 たに設置したGBで採取していく予定である。

22 多様な湿式分離に関する研究

FBR サイクル実用化戦略調査研究では,PUREX 法を中核とした分離プロセスをリファレンスとし て位置づけ,これについての研究開発を進めると ともに,PUREX法による湿式再処理工程を補完 し,あるいは代替となる多様な分離技術の成立性 を評価していく。2000年度までのPhase I検討にお いていくつかの候補となる要素技術が選定され, 2001年度から化学プロセスとしての成立性を評価 すべく試験研究を展開している。検討を進めてい る分離技術を表 2 に示す。

(1)分離技術の概要

1) 超臨界流体による直接抽出 (Super DIREX)³ TBPと硝酸を含む超臨界状態の二酸化炭素 (sf CO₂)を酸化物燃料と接触させ, UとPuを選 択的にsf CO₂相に回収するプロセスである。

主抽出剤の希釈剤として飽和炭化水素ではなく sf CO₂を用いており,有機溶媒廃棄物の低減が可 能となる。また,sf CO₂に含む硝酸は酸化剤とし て作用し,酸化物燃料からUとPuをイオン化し, 選択的にTBPとの錯体を形成することに寄与して いる。

2) SETFICS/TRUEX法⁶⁾

CMPO*とTBPを混合した溶媒(TRUEX溶媒) を用い,高酸性廃液からAmとCmを抽出し,分 離回収する。抽出の段階では,三価アクチニドで

^{*}n octy(phenyl) N,N diisobutylcarbamoylmethyl phosphine oxide, 米国アルゴンヌ国立研究所で開発された有機リン系抽出剤

日的	分離プロセス名称	概要		
使用済み燃料からの U及びPuの回収 出(Super DIREX)		↓ · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·		
PUREX工程等からの 高放射性廃液からの Am及びCmの分離回 収と希土類元素の除去 (Ar())Ln分離)	SETFICS/TRUEX法	CMPOとTBPを混合した溶媒を用い,高酸性廃液からAm とCmを抽出し,分離回収する。キレート剤を併用し,希 土類元素を粗分離する		
	抽出クロマトグラフィー	多孔質のシリカに抽出剤分子を保持したものを吸着剤とし て用いたクロマトグラフィー分離により,高酸性廃液から AmとCmを選択的に分離回収する		
	アミン抽出	酸性溶液中のAmをAm()に酸化し,多価陰イオンと錯形 成させ安定化する。錯体をアミン混合溶媒を用い,Amの みを選択的に抽出し,Cmや希土類と分離する		
AmとCmを含む溶液 からのAmの分離回収 (Am/Cm分離)	炭酸沈殿	炭酸アルカリ溶液中でAmを酸化し,Amの沈殿を生成し, Cmや希土類と分離する		
	陽イオン交換	希硝酸溶液中の金属を吸着し,キレート剤を用いて選択的 に溶離することによって相互に分離する		

表2 検討を進めている分離技術

あるAmやCmと水溶液中での化学挙動が似てい る希土類元素もともに回収される。これらの相互 分離は,キレート剤を含む水溶液を逆抽出液とし て用い,三価アクチニドを選択的に逆抽出するこ とにより行う。核分裂収率の大きな軽い希土類元 素(La,Ce,Pr,Nd)を分離できることを確認 している。

本法に関しては,1990年度から試験研究を行っ ており今後は廃棄物の減少などのさらなる改良を 行っていく予定である。

3)抽出クロマトグラフィー⁷⁾

高分子被覆した多孔質のシリカ(SiO₂ P)に抽 出剤分子を保持したものを吸着剤として用いたク ロマトグラフィー分離により、高酸性廃液からAm とCmを選択的に分離回収する。

リファレンスとして抽出剤にはCMPOを用いて いるが,SiO₂ Pは数多くの抽出剤を保持できる。こ れは,抽出剤を変えることによって分離の機能を制 御できることを意味する。現在 SETFICS/TRUEX 法の代替プロセスとして検討しているが,液 液 抽出技術の代替技術という側面があるといえる。

4) アミン抽出^い

高酸性廃液から Am と Cm を抽出し、分離回収す る方法で, SETFICS/TRUEX 法の代替技術と位 置づけている。

一般に酸性溶液中でのAmやCmの酸化は困難であるが,酸化したイオンと強く結合する陰イオンを共存させることにより安定化することができる。本法では,酸性溶液中のAm(III)をAm(IV)に酸化し,リンタングステン酸のような多価陰イオンと錯形成させ安定化する。Am錯体は二級アミ

ンを含む混合溶媒により選択的に抽出し, Cmや 希土類と分離する。また,CmをAmとともに酸化 して抽出する可能性も検討する。

5)炭酸沈殿^{。)}

SETFICS/TRUEX法等により回収したAmやCm を含む溶液から選択的にAmを回収する方法であ る。

Am 等の三価金属イオンを含む炭酸アルカリ溶 液を調製し,溶液中でAm を酸化する。Am(V)炭 酸錯体の溶解度は小さく,沈殿として回収でき, また,Cm や希土類との分離が可能である。

6) 陽イオン交換⁽¹⁾

炭酸沈殿法と同様にAmやCmを含む溶液から 選択的にAmを回収する方法である。

希硝酸溶液中の金属を陽イオン交換体に吸着 し,クロマトグラフィー分離を行う。三価アクチ ニドと優先的に錯形成するキレート剤を用いて相 互に分離する。陽イオン交換体は抽出クロマトグ ラフィー法と同様に,SiO₂ Pを基に調製する。 (2)試験研究の予定

SETFICS/TRUEX法を除いたプロセスは分離化 学プロセスとしての成立性を評価する段階にあ る。いずれのプロセスに関してもFBRサイクル実 用化戦略調査研究のPhase II検討においてプロセ スの比較評価に資するデータを得るべく取り組ん でいく。また,プロセスの目的や特性に応じて試 験を計画する。

U及びPuを回収するSuper DIREX法について は,混合酸化物(MOX)を用いた試験によりPu の回収性を調べる。また,超臨界CO2を用いずに 常圧条件で照射燃料を用いた試験を行い,照射燃 An(III)と希土類元素の分離プロセスは,希土類 元素を模擬にした試験により分離条件や安全性 を検討し,放射性物質を用いた試験へと移行して いく。特に放射性物質を用いた初期の試験では, GA 9等のGB群が有用である。また,分離プロセ スとして実証する試験では,高放射性廃液を用い て分離性能を明らかにしていく。

2.3 乾式再処理基礎研究

乾式再処理の特徴は,ピューレックス法に代表 される湿式再処理と異なり硝酸溶液や有機溶媒を 利用しない高温化学反応で再処理を行うことにあ る。乾式法の再処理設備では配管が少なく設備が コンパクトなため比較的小規模な施設でも経済性 を確保できる可能性がある。

FBRサイクル実用化戦略研究では,乾式再処理 による候補技術として金属電解法及び酸化物電解 法について実用化のフィージビリティーが検討さ れている。

本試験設備では,主に金属電解法のプロセスを Puを用いた試験によって評価するための基礎研 究を電中研と共同で実施する計画である。以下, 図2に示した金属電解法のプロセスフローを参照 し,各工程について研究内容を述べる。

ただし,解体・脱被覆工程や燃料製造工程につ いては,CPF以外で研究が実施されているので今 回は説明を省略する。

(1) リチウム還元工程

金属電解法では,使用済燃料が酸化物の場合, 最初にLiCIの溶融塩中でリチウムによりU,Puを 金属に還元する。リチウムによる還元は,Mgや Ca等の他の方法に比べて反応容器の腐食が少な く,廃棄物も少なくなることが期待されている新 しい還元法である。国内では,これまでU試験し か実施されておらず,Pu試験を海外で実施する場 合規模や試験数の制約が大きかった。このため, 国内で数10g規模試験でPuの還元データを蓄積す ることが重要である。また,還元したU,Puを次 の電解精製で利用することによりプロセス全体で の回収率や除染係数を実際のプロセスに近い状態 で評価することが不可欠である。

本試験設備では,常陽の使用済燃料からCPFで 回収したMOX等を利用し様々な条件で多数の還 元試験を実施し,還元率や還元速度を測定する予 定である。

(2) 溶融塩電解工程

この工程では,MOXの還元生成物を陽極で電気 化学的に溶融塩中にイオン化すると同時に鉄製の



サイクル機構技報 No.17 2002.12

固体陰極で金属Uを選択的に析出させることによ リ溶融塩中でPu濃度を増加させる。次に,溶融し たCdをルツボ内に入れたCd陰極によりU,Puお よびMAを同時に析出させる。

これまで,精製された金属UやPuによる電解試 験が国内で多数実施され1kg規模のUや10g規模 のPuの回収に成功しているが,還元生成物を用い たPu試験は米国で実施されているのみで不明な 点が多い。

そこで、還元試験で得られた数10g程度のU,Pu 混合物による電解試験を実施し、回収率を確認す ると共に固体陰極やCd陰極の性能データを蓄積 する。また、使用済塩を廃棄する前に塩中のU, PuをCd Liによって回収するTRU回収試験も実施 する予定である。

(3) 蒸留工程

電解工程の陰極析出物には、溶融塩やCdが付着 しているため、高温・低圧蒸留によって塩、Cdを 蒸留分離する。その後、1500 程度まで昇温し てU、Puを溶融させ均一な合金インゴットに加工 する。実機で想定されている高周波誘導加熱炉に よるPu析出物の蒸留試験は報告例が無く、これま で試作機によるコールド試験を多数実施し、装置 を改良してきた結果、自信のもてる装置が完成し たので、J試験を経てPu試験へと進む予定である。

本試験では,U,Puの回収率のみでなく蒸発す る塩,Cdの排気系への移行率も低く抑えることを 重視している。ここで,合金の均一性を確認する ためのサンプリングには,燃料製造と同じ射出成 型法を採用しており,燃料製造の基礎データも得 られると期待している。

(4)酸化工程

金属電解法では,再処理したU,PuをU Pu Zr 合金の金属燃料としてリサイクルする場合と MOX燃料としてリサイクルする場合が想定され ているが,後者の場合,Ar O2混合ガスによる金 属の酸化工程を利用する。MOX燃料製造工程を具 体化するにはU,Puの均一性O/M,流動性等の データが必要である。

そこで,本試験装置では蒸留工程で得られた合 金インゴットを利用しこれらのデータをさまざま な条件で取得する予定である。また,金属火災の 発生条件やダストの移行率等の安全評価データの 取得も予定している。 3.CPF改造

CPFは、照射済高速炉燃料ピン及び再処理高レ ベル廃液を取り扱うことのできる基礎化学研究施 設として、1980年に建設された。照射済高速炉燃 料の再処理技術開発を行う設備と高レベル固化体 廃棄物の処分技術開発を行う設備に分かれてい る。再処理技術開発に関する建設当初の目的は、 軽水炉燃料再処理プロセスであるPUREX プロセ スの照射済高速炉燃料への適用性を評価すること であった。このためCPFの再処理試験設備は、再 処理ミニプラントのような設計となっていた。

当初の目的を達成し,前項で紹介した先進的高 速炉燃料再処理技術開発を実施することとなっ た。しかしながら,セル等の内装設備は再処理工 程を模した設計となっていたため,新規技術に関 する試験研究を実施できるような自由度が十分で はなかった。

そこで,前項で述べたような新規技術の試験研 究に柔軟に対応できるよう,試験実施スペースの 確保及び増強,老朽化設備の更新等を目的とした 改造を行った。

以下に,表3に示した新設・改造設備を中心に, 主なCPF改造内容について述べることとする。

3.1 セル改造

CPFには,再処理試験用にCA 1からCA 5まで 5つのセル設備がある。このうちCA 3セルは,照 射済高速燃料の溶解から抽出までの試験を実施す る,試験研究の中心的なセルである。CA 3セルの 改造前は,セル内一杯に各工程の試験設備が,固 定された配管や貯槽類と接続,配置されていた。 そこで,新規技術に関する基礎試験に柔軟に対応 することを目的に,基礎試験エリア確保のための 主要装置とその配置の更新,固定配管からつなぎ 換えの容易なフレキシブル配管への変更等の改造 を実施した。

ここでは,上記のCA 3セル内装設備改造とその 他設備の補修・改善の概要を述べる。

(1) CA 3セル改造

CPF研究棟1階のA系列セル群は,高速炉燃料 再処理技術開発に使用してきた。A系列セル群の 中央に位置するCA 3セルは,これまでに高速炉使 用済燃料の溶解,抽出等の研究に使用してきたセ ルであり,放射性物質による高レベルの汚染がセ ル全体に広がっていた。先に述べた目的を達成す

	CA 3 セル	実 験 室 A	実 験 室 C	分析室
設備概要	照射済高速炉燃料をピ ン単位で用いた再処理 技術開発基礎試験を行 う	アクチニド元素等の分 離技術開発基礎試験及 び各種分析を行う	U,Puの電解精製基礎 試験及び各種分析を行 う	アクチニド元素等の分 離技術開発基礎試験, 試験後回収U,Puの脱 硝及び各種分析を行う
主な新設・ 改造設備等	 ·溶解槽 ·遠心清澄機 ·調整槽 ·遠心抽出器 ·オフガス処理設備 ·セル内レイアウト ·基礎試験エリア 	 ・フード ・グローブボックス ・表面電離型質量分析 装置 ・核磁気共鳴分析装置 ・フーリエ変換赤外分 光光度計 	 ・グローブボックス ・Ar精製装置 ・誘導加熱炉 ・電解精製装置 ・電気炉 ・示差熱分析装置 	 ・フード ・グローブボックス ・脱硝装置 ・紫外 / 可視分光光度 計
主な試験内 容 と 特 徴	 溶解槽等再処理試験 装置を更新 照射済高速炉燃料を 用いた再処理基礎試験 基礎試験エリアでの 新規技術に係るホッ トデータ採取 	 ・核燃料物質や放射性 同位元素を用いた基 礎試験の実施できる グローブボックスを 新設 ・アクチニド元素等の 質量分析,錯体構造 等溶液化学分析 	・酸化物を出発物質と した金属電解法に関 するPu基礎試験	 ・核燃料物質や放射性 同位元素を用いた基 礎試験の実施できる グローブボックスに 改造 ・マイクロ波加熱及び 抵抗加熱の併用方式 による回収U,Puの 脱硝

表3 主な新設・改造設備等

るために, CA 3セルの内装機器を撤去し,新た な試験機器の設置,各種基礎研究の行える試験エ リア及び必要なユーティリティーの整備を実施し た。

CA 3セル改造は大きく分けて次の3つの作業 に区分けできる。

・遠隔操作による解体,撤去,除染作業

・セルに直接入域しての解体,撤去,除染作業

・セルに直接入域しての新設機器据付作業

遠隔操作における旧設備の解体,撤去,除染は, セルに設置されているマニプレータ等の遠隔操作 治具を用いて,セル内機器及び配管等を解体,撤 去し,次の作業ステップである作業員の直接入域 に支障のないレベルまでセル内の放射線量率を低 減するための作業である。

図3にセル内の放射線量率の推移を示す。この 図に示す通り,当初に設定した作業者がセル内に 入域するための遠隔操作での除染目標値であった 1 mSv/hを大きく下回る0 55mSv/hの除染結果 を得た。

なお,この遠隔解体に使用した機材は特殊な解 体機材を使用せず,市販のディスクソー,セーバー



ソー及びグラインダー等の工具を遠隔操作で取扱 い易いように改良したものを用いた。写真3及び 写真4に作業開始前のセル内状況及び遠隔解体, 撤去後のセル内状況をそれぞれ示す。

遠隔操作による除染作業後,作業員が直接セル に入域し残架台等の撤去及び除染を行い,放射線 量率は0.14mSv/hとセル内での作業線量率とし ては十分に低い値にまで低減した。

これに引き続き新設機器の据え付けを行った。 この据付作業は効率向上や品質管理上,以下の点 を重視して進めることとした。

- ・新設機器配置の区分けによるユニット化と組み 上げたユニットごとでのセル内への搬入
- ・溶接及び配管施工等の作業における専用作業防 讃具の使用
- ・作業監視システムの充実と,セル内作業員との 連絡手段の多重確保



写真3 改造開始前のセル内状況

また,セル内で発生する廃棄物の低減のため, セル内で他目的に使える作業架台の製作も行っ た。写真5に新設機器据え付け後のセル内状況を 示す。

これらの作業を通して,セル内で多量の高レベ ル固体廃棄物が発生したが,このうちステンレス 材等の不燃廃棄物については表面や透き間に付着 した放射性物質を除去するため,加温した硝酸溶 液に浸積し低レベル化除染を図った。この硝酸浸 積除染法により,解体した高レベル金属廃棄物の 約90%が低レベルに除染できた。また,セル内に 入域するために使用した作業防護衣についても減 容処理を行い,CPFにおける廃棄物保管スペース の確保を図った。これらの経験・実績は,将来予 想されるホット施設デコミでも有意な知見となり 得る。

(2) その他セル内設備の補修・改善

セル内で各種のホット試験を実施するうえで, パワーマニプレーター,インセルクレーン及びセ ル上部に取り付けている天井ハッチは,セル内で の重量物の取扱い,廃棄物のセルからの取り出し, 大型機器のセル内への搬入等の作業において重要 な役割を有している。

今回, CA 3セル内試験設備の改善・変更に合わ せて,これら設備についても補修や改善を行った。

CA 3セル内に据え付けられているパワーマニ プレーターは,燃料溶解から抽出試験の際に様々 な形で使用されている。これまで約20年間の使用 実績があるが,パワーマニプレーターのクラッチ 部の滑りをはじめ,経年による機能の低下が認め られていた。今回,パワーマニプレーターを天井



写真4 解体,撤去後のセル内状況



写真5 新設機器据え付け後のセル内状況

一方,天井ハッチについては,CPFで発生する 高レベル放射性固体廃棄物を東海再処理工場へ払 い出すために,新型キャスクの使用を可能とする ための改善であり約20t近い天井ハッチそのもの の改造も行った。

32 分析室及び実験室A

湿式再処理プロセスの高度化試験やマイナーア クチニド分離試験にかかわるホット基礎試験エリ アを整備することを目的に,実験室A,分析室の 内装設備の解体・撤去及びGB等基礎試験設備の新 設据付作業を実施した。ここでは実験室A及び分 析室の内装設備の解体・撤去及び新設した基礎試 験設備と付帯設備作業の概要を述べる。

(1)実験室 A 及び分析室の内装設備の解体・撤去

実験室A及び分析室に設置していたPUREX工程 試験用のGB,フードのほか,試薬供給設備や各 種制御盤を撤去した。GBの解体・撤去では,GB 内に約8kBq/cm²の汚染を有していたことから硝 酸(1N)及びアルコール(50%)による繰り返 し除染を行うとともに,ペイント固定を行い,目 標値の0.1Bq/cm²までGB内の汚染レベルを低下 させたのち,4室構造のグリーンハウス内にGBを 搬入し,バンドソーやニブラなどの放射性粉塵の 飛散が少ない電動工具を用いて細断した。装備は エアラインスーツとし,作業時間管理,放射性物 質濃度管理を徹底して安全を第一に作業を進め た。

(2) 基礎試験設備の新設

分析室には,基礎試験用のGB(GA 1A,GA 1B) 2台,液処理用のGB(GA 2A,GA 2B)2台, 分析用のGB(GA 3A,GA 3B)2台及びフード 1台を新設した。

基礎試験用のGBは縦1m×横2m×高さ15m のボックスが2台連結されており,Pu,U及び放 射性同位元素(RI)の取扱いが可能で,晶析法な ど温度制御下での基礎試験を行うための循環式低 温恒温水槽を備えている。本水槽は,-30 から 80 の範囲で温度制御が可能な能力を有してい る。液処理用のGBは縦1m×横15m×高さ15m のボックスと縦1m×横2m×高さ15mのボッ クスが連結されており 220gまでのPuとUの取扱 いが可能で,各種の基礎試験で発生する試験溶液 を貯留するための貯槽ユニットやPUREX法など で精製したプロダクト溶液をMOX粉末に転換す るための脱硝装置を設置している。本脱硝装置は, マイクロ波加熱と抵抗加熱を併用する方式を採用 している。分析用のGBは縦0.7m×横2m×高さ 1mのボックスが2台連結されており,Pu,U及 び核分裂生成物(FP)の取扱いが可能である。Pu, U,酸濃度の分析や固体試料の秤量,溶解に対応 するため,紫外/可視分光光度計,自動滴定装置, 溶解装置及び天秤を設置している。分析室の外観 を写真6に示す。

一方,実験室Aには,遮蔽GB(GA9)1台, 基礎試験用のGB(GA7B)1台,分析用のGB (GA6,GA7A)2台及びフード3台を新設した。

GA 9は縦1.1m×横2m×高さ1mのボックス で、マイナーアクチニド核種に関する抽出・分離 試験研究に関連する炭酸沈澱試験やU,Puの晶析 試験に使用するものであり、最大放射能量が2.24 ×10[®]BqのFPを取り扱うことができる。GA 7Bは 縦1m×横3m×高さ1mのボックスで,横4m のGA 7Aと連結している。GA 7Bでは、Am、Cm と希土類元素の相互分離に関する試験を行う計画 である。GA 7Aには、Pu、U、アクチニド元素、 極微量の金属元素及び無機陰イオンの定量を行う ため、紫外/可視/近赤外分光光度計、ICP発光 分析装置、イオンクロマト分析装置を設置してい る。また、もう1台の分析用のGBであるGA 6は、 縦0 Am×横1m×高さ1mで、表面電離型質量 分析装置専用のボックスであり、核物質の計量管



写真6 分析室の概観

理にかかわる Pu, Uの精密定量分析や同位体組成 の分析に使用する。フードには,湿式再処理プロ セス試験で要求される抽出溶媒などの化学構造解 析や溶媒の定量分析のために核磁気共鳴分析装置 及びフーリエ変換赤外分光光度計を設置している。 (3) その他付帯設備

分析室や実験室Aへの試験試料や分析試料の移送には、セル、GB間をつなぐ気送管設備によっ て行うが、この気送管設備についても6系統を増設した。また、有機溶媒を使用するGBには万一のボックス内火災発生時における初期消火効果の確実性及び安全性の観点より炭酸ガス消火設備を設置した。

なお,実験室Aは,核燃料物質取扱量の変更に 伴い,施設の給排気系統を変更し,グリーン区域 よりアンパー区域への変更を行っている。

33 実験室Cの改造

(1)概要

サイクル機構と電中研は,2001年2月に共同研 究「乾式再処理プルトニウム試験」契約を締結し た。これに基づき,酸化物を出発物質とした金属 電解法プロセスのプルトニウム試験による実証と 周辺技術を含めた金属燃料サイクルの成立性評価 を行うことを目的に、実験室Cの整備及びGB等の 設計・製作・据付けを,電中研と共同で2001年7 月~2002年8月9日の期間で実施した。

(2) 第一段階

GB等の大型機器の据付けを考慮し、露出電線管等のルート変更などの既設物の移設と撤去を行い新設機器の設置スペースを確保するとともに, 表面上の劣化が著しかった床,壁の補修及び塗装を行った。

新設するGBは、電気炉や遮蔽体等を設置するた め全体の重量が大きく、実験室C内の床耐荷重 (800kg/m²)対策として重量を分散する荷重分散 工法を採り入れた。これにより設置した荷重分散 架台は縦2 6m×横6 8mの大きさで6分割で搬入 しボルトで連結し、かつ、床面の水平度を担保す るため、床面の目粗しと無収縮モルタルの打設も 合わせて実施した。

新設GBは Ar雰囲気の循環系や弁操作による負 圧維持方法を採用していることから,配管・フィ ルタ等の付帯設備が膨大であるため,これらの設 備を保持し 床への荷重軽減を図るためGBの上部 に配管及びフィルタを収納する配管架台を設置した。

(3) 第二段階

実験室C内の配置設計等を考慮し,室内の最も 奥に設置するAr精製装置から据付けを行った。

本装置は,縦2 6m×横6 8mの大きさで,装置 内部に85m³/hrのプロワ2台を設置し,主設備で あるGA 8B内のAr雰囲気を高純度で制御でき る性能を有している。GBについては,主設備の GA 8Bより据付けを行った。GA 8Aは,縦0 9m ×横2m×高さ1mの大きさであり,GA 8B据付 け後に搬入し,連結管を介してGA 8Bと接続れて いる。GA 8Cは縦0 9m×横1 5m×高さ1mであ る。

GB内の内装試験装置については,蒸留装置, 電解精製装置,酸化/還元装置,還元装置内の窒 素濃度を分析するガスクロマトグラフ分析装置, 物性測定の示差熱分析装置が設置されている

GA 8Bに設置した加熱炉は蒸留装置用(最高温度;1,600)の誘導加熱炉と電解精製装置(600) と酸化/還元装置用(800)電気炉の3台である。 各加熱炉は、高温融体を取扱うことからGB下部に ウエルを設け、このウエル内に試験装置を入れ、 その周囲を加熱する構造とし、冷却方法としては、 パンダリー内に水冷却を全く持込まない構造とし、ウエル上部蓋はガス冷却方式とした。

これは,水漏れ等によるAr雰囲気の劣化や加熱 部への水の接触による水蒸気爆発を想定し,保守 的に設計したものである。遮蔽機能については, GB下部のウエルに線源を保持することからウエ ルの周囲を鉄及びポリエチレンにて遮蔽を施し, 22×10°BqのFPが取り扱える遮蔽性能を有して いる。

本設備は,Ar雰囲気と負圧の維持,安定運転に 係るインターロック機能と加熱炉運転時での冷却 水異常による加熱炉の電源遮断など,設備の安全 運転に関するインターロック機能を有している。

新設したGB及び付帯設備に関する検査につい ては,2001年8月の施設検査申請に基づき,耐震, 遮蔽性能,気密等の検査を受検し,2002年7月に 合格した。

4.おわりに

CPFでは1982年度よりPUREX法を中心とした 従来再処理技術の高速炉燃料への適用性を確認し てきた。1990年度からは高速炉燃料中に含まれる マイナーアクチニド元素の分離研究や再処理プロ セス合理化にかかわる研究へと試験目的を広げて きたものの,セル内設備の老朽化や配置設計上の 課題から新しい研究を実施するには制約があり設 備の改造が必要であることが判明した。これらを 受けて施設内設備の大幅改造を実施してきた。

CPFでは完成した最新の試験設備を活用し先進 的再処理プロセスの確立に向けて各種のホット試 験を立ち上げていく予定である。

参考文献

- 1)野村和則他:" 晶析法を導入した PUREX 再処理プロ セスの検討評価()~ 晶析法を導入した PUREX プ ロセスの設計研究のプロセス設定~",日本原子力学 会「2000年春の年会」, J8
- 2) K. NOMURA, et al. "STUDY ON U CRYSTALLIZA-TION FOR ADVANCED REPROCESSING ", Proceedings of the International Symposium NUCEF2001, 213 216 (2002)

- 3) 佐野雄一他: "高濃度溶解時におけるUO2の溶解学 動評価試験", JNC TN8400 2000 032 (2000)
- 4) K. NOMURA, et al. "DEVELOPMENT OF HOT TEST EQUIPMENT FOR ADVANCED NUCLEAR FUEL CYCLE DEVELOPMENT IN JNC", Proceeding of 9th International Conference On Nuclear Engineering (ICONE9) (2001)
- 5) T. SHIMADA et al. "Development of Spent Fuel Reprocessing by Super critical Fluid. Development of Super DIREX Method",日本機械学会動力エネル ギー技術シンポジウム講演論文集, vol.7th, p.331 334(2000)
- 6) Y. Koma, et. al. "Recover of Minor Actindes in Spent fuel Reprocessing Based on PUREX Process ", Proc. of RECOD'98(1998)
- 7) 韋悦周他: "イオン交換による FBR 燃料再処理の研 究", JNC TJ9400 2000 002 (2000)
- 8) 鴨志田守他:日本原子力学会「1999年春の年会」L46 (1999)
- 9) G. A. Burey, Nucl. Appl. ,4, 217 221(1968)
- 10) E. J. Wheelwright, et al. "The Use of Alternating DTPA and NTA Cation Exchange Flowsheets for the Simultaneous Recovery and Purification of Pu, Am and Cm "(1969)