



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 -

細馬 隆 市毛 浩次 高橋 芳晴

東海事業所 再処理センター 処理部

History of 20 years Demonstration of Pu-U Co-Conversion Process Using a Microwave Heating Direct Denitration Method

- Operational Experiences and Developments at the Plutonium Conversion Development Facility -

Takashi HOSOMA Kouji ICHIGE Yoshiharu TAKAHASHI

Reprocessing Operation Division, Tokai Reprocessing Center, Tokai Works

サイクル機構では、1977年の日米交渉を機にマイクロ波加熱直接脱硝法（MH法）を開発し、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として、プルトニウム転換技術開発施設において1983年から実証運転と技術開発を安全に行ってきた。また、技術開発の成果を日本原燃六ヶ所再処理工場の設計等に反映してきた。本報告では、MH法によって施設建設の国際合意が得られた経緯、施設概要、実証運転の経過、物質収支や得られたMOX粉末の特性等の工程特性、汚染経験とその対策、セラミックス製脱硝皿や再利用可能な粉末貯蔵容器等のプロセス機器に関する技術開発、予防保全や計量管理／保障措置に関する研究及び技術開発、脱硝反応に関する基礎研究、プロセス機器への確率論的安全評価手法（PSA）の適用研究、革新的なショートプロセス研究への参画、六ヶ所再処理工場混合転換プロセスへの技術移転の経過について紹介する。

Plant operation and related developments to demonstrate microwave heating direct denitration method (MH method) for Pu-U co conversion process have been carried out safely in the JNC at the Plutonium Conversion Development Facility since 1983, and the results have been applied to the Rokkasho Reprocessing Plant (RRP) in the JNFL. This method had been developed to meet the resistivity for proliferation of nuclear weapons on demand of U.S. government in 1977.

This report summarizes the progress of international agreement, outline of the facility, history of operations, quality of processes such as material balance and powder properties, experience of contamination, development of process equipment such as a ceramics denitration dish and a reusable MOX canister, development and/or study of preventive maintenance and material accountability / safeguards, scientific study of MH process, application of PSA method to the process equipment, participation to the study of innovative short process, and transfer of technologies and skills to RRP.

キーワード

プルトニウム, ウラニウム, 転換, 混合転換, 核不拡散, 核拡散抵抗性, 保障措置, MOX, 混合酸化物粉末, 脱硝, マイクロ波, 運転経験

Plutonium, Uranium, Conversion, Co Conversion, Nonproliferation, Resistivity for Proliferation, Safeguards, MOX, Mixed Oxide Powder, Denitration, Microwave, Operational Experience



細馬 隆

転換技術課所属
副主任研究員
混合転換技術開発にかかわる業務に従事
工学博士



市毛 浩次

転換技術課長代理
混合転換技術開発にかかわる業務に従事



高橋 芳晴

転換技術課長
混合転換技術開発にかかわる業務に従事

1. 緒論

1.1 技術開発の背景

(1) 日米原子力交渉¹⁾

東海再処理工場が、実際の使用済燃料を使用して試運転を開始しようとした1977年当時、平和目的という核爆発実験をインドが行ったこと(1974年5月)に端を発した米国の核不拡散政策は、フォード大統領からカーター大統領に引き継がれ、商用再処理及びプルトニウム利用の無期限延期等を含む新原子力政策の発表(1977年4月)によって、更に厳しくなっていた。この政策により、米国から我が国に供給された濃縮ウランの使用方法については規制がされていて、再処理をする場合には日米原子力協定8条C項により、日米共同決定が必要であった。このため、1977年4月、第一次日米原子力交渉が行われ、第二次日米原子力交渉(同6月)では、混合抽出法で再処理工場の運転を認めるという提案があった。しかしながら我が国は拒否し、専門家による日米合同現地調査が開始された。第三次日米原子力交渉(同8月)の結果、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を内容とする日米共同決定が1977年9月12日署名され、共同声明が発表された。

この共同決定には、転換施設の建設を2年間見合わせることを、国際原子力機関(IAEA)は常時査察を含む保障措置を適用する機会を十分に与えられること、混合抽出法の試験を行い国際核燃料サイクル評価(INFCE、1977年5月の主要国首脳会議で米国が提唱)に提供すること、保障措置機器の試験を行いINFCEに提供すること等が盛り込まれた。なお、2年間という期限はINFCEの行われる期間を考慮したものであった。

共同決定を受けて東海再処理工場のホット試験が1977年9月に開始され、核物質に対する査察が開始された。同年12月には核不拡散防止条約に基づく日/IAEA保障措置協定が正式に発効した。また、日-IAEA-米-仏の共同研究として東海再処理改良保障措置技術試験(TASTEX)が1978年2月に開始された。日米共同決定はINFCEの終了を待って1980年4月まで延長された後、混合転換法の成功と日米の再処理技術の専門家及びINFCE

の評価を受け、1980年7月に口上書交換の形で転換施設建設の合意が得られた。その後も、再処理工場の運転及び各種試験の継続について包括的な解決のために交渉が重ねられ、現在は新日米原子力協力協定(1988年7月発効、30年有効)が締結されている。当時、我が国はエネルギー問題を死活問題として極めて重視し、明確な姿勢で迅速に交渉に臨んだが、現在でもエネルギー問題とその施策は基本的に変わっていない。

(2) 単体転換から混合転換への変更と国際合意

日米原子力交渉の3年前の1974年6月、抽出されたプルトニウムを英仏の商用再処理工場と同じしゅう酸沈殿法により酸化物粉末に転換するため、我が国は、単体転換*施設の設計研究を開始していた。東海再処理工場は、同じ年に化学試験を開始している。単体転換施設の設計は、1975年5月には概念設計、1976年12月には詳細設計へと進んでいたが、日米原子力交渉の結果、単体転換を断念し、核拡散抵抗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月に開始した。同年10月にはINFCEの第1回総会が米国で開かれている。

混合転換の方法としては、ウラン粉末製造工程として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をプルトニウム燃料部(当時)で、硝酸ウラニル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を三菱金属株式会社(当時)に委託して試験が開始された。海外では、共沈殿法と流動床法を組み合わせ合わせたCO PRECAL法が米国GE社で、共沈殿法にプルトニウムの酸化数調整工程を加えたAU-PuC法が西独ALKEM社で研究されていた。CO PRECAL法については米国との技術情報交換の形をとり、11月に開発状況の視察と調査が綿密に行われた。一方、沈殿法で生じる重ウラン酸アンモン(ADU)スラリーの乾燥方法として、家庭用電子レンジを用いて試験を行っていたマイクロ波加熱法を硝酸ウラニル溶液に適用したところ、1977年12月、試薬等を必要とせずに直接、乾固体が得られることがわかった。続いてプルトニウム-ウラン混合溶液でも良好な結果が得られたため、1978年1月より、アンモニア共沈殿法、流動床直

*単体転換では、硝酸プルトニウム溶液から二酸化プルトニウム粉末を得、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、二酸化プルトニウム粉末を経ることなくMOX粉末を得る。MOX粉末は、二酸化プルトニウム粉末よりもPuの密度が低くUの分離を必要とするため、軍事利用への障害が大きい。このため、混合転換は核不拡散の目的に適している。

接脱硝法，マイクロ波加熱直接脱硝法の3つに絞って試験が進められた。6月には，我が国が見いだしたマイクロ波加熱法の魅力ある結果を米国エネルギー省（DOE）に説明した。また，共沈殿法とマイクロ波加熱法について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を設置することとなり，必要な設備変更申請を行った。1978年9月と1979年1月には，混合抽出／混合転換とTASTEXの技術開発経過について，日米再処理技術専門家会議が東京及びサンフランシスコで開かれ，マイクロ波加熱基礎試験の結果について報告及び米国技術者との議論が行われている。その後の試験成果を踏まえ，1979年10月に行われた第3回日米再処理技術専門家会議と1980年2月のINFCEにおいてマイクロ波加熱直接脱硝法による混合転換の核拡散抵抗性が高く評価され，我が国におけるプルトニウム平和利

用の道筋についてようやく理解が得られた。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受賞している。

混合転換のPu/U比については，1980年3月に日米間の打ち合わせが行われており，燃料製造上の技術的な理由（主に富化度調整の問題）から我が国が主張したPu/U = 1が了解された。その後，日本のFBR及びATR開発プログラムの要求に照らして最も高いU/Pu比，との合意を経て，混合転換試験設備では，米国の了解を得て1983年から1984年にかけてPu/U = 20の転換を行った。合意形成の年表を表1に示す。

(3) マイクロ波加熱直接脱硝法の特徴^{2,3)}

マイクロ波加熱直接脱硝法（MH法）では，硝酸プルトニウムと硝酸ウラニルの混合溶液にマイクロ波を照射し，蒸発濃縮／溶融硝酸塩の生成／

表1 混合転換に関する国際合意形成の年表

年	国内外の情勢	転換技術開発	再処理工場
1974 (昭和49年)	5月 インド核実験（平和利用の名目）	6月 単体転換施設の設計研究を開始	10月 化学試験開始
1975 (昭和50年)		5月 単体転換施設概念設計を開始	9月 ウラン試験開始
1976 (昭和51年)	10月 フォード大統領が原子力政策を発表	12月 単体転換施設の詳細設計（ALKEM社）を開始	
1977 (昭和52年)	1月 カーター大統領就任 3月 日米首脳会談（福田，カーター） 4月 第一次日米原子力交渉（ワシントン） 4月 カーター大統領が新原子力政策を発表 5月 主要国首脳会議において，核燃料サイクル評価（INFCE）を米日欧で行うことを合意 6月 第二次日米原子力交渉 6月 専門家による日米合同現地調査 8月 第三次日米原子力交渉（東京） 9月 日米共同声明を発表（当初2年間，99tonまでの再処理，転換施設の建設延期，混合抽出法の開発，保障措置の十分な適用，INFCEへの情報提供など） 10月 INFCE開始 12月 日/IAEA保障措置協定発効	2月 詳細設計の業務協力（旧三菱金属株）を開始 8月 単体転換施設安全審査準備開始（翌月に中断） 9月 混合転換技術開発開始 アンモニア共沈殿法の試験を開始 米及び西独の混合転換技術を調査 11月 米の混合転換技術（CO-PRECAL）の視察 12月 マイクロ波加熱法で良好な結果を得る	7月 JPDR使用済燃料を受入 9月 ホット試験開始 11月 初のプルトニウム抽出
1978 (昭和53年)	2月 東海再処理改良保障措置技術試験（TASTEX）開始 9月 第1回日米再処理技術専門家会議	1月 混合転換方法を共沈法，流動床法，マイクロ波加熱法の3種類に絞る 6月 開発状況をDOEに報告 6月 混合転換試験設備の設備変更申請開始 12月 混合転換試験設備の据え付け開始 12月 混合転換施設への設計変更開始	2月 BWR試験開始 5月 PWR試験開始 8月 ホット試験中断
1979 (昭和54年)	1月 第2回日米再処理技術専門家会議 10月 第3回日米再処理技術専門家会議 10月 再処理運転の延長を合意（口上書交換）	4月 混合転換試験設備のウラン試験開始 7月 混合転換試験設備のホット試験開始 9月 混合転換施設の安全審査開始 10月 マイクロ波加熱直接脱硝法の開発を発表 12月 混合転換施設の安全審査終了	11月 ホット試験再開
1980 (昭和55年)	2月 INFCE終了 混合転換の核不拡散性が評価される 3月 Pu/U比に関する交渉（ワシントン）Pu/U=1で了解 7月 再処理運転の延長を合意（口上書交換）	2月 混合転換施設の詳細設計終了 6月 混合転換施設の設工認申請 7月 混合転換施設の建設を合意（口上書交換） 8月 混合転換施設の建設に着工（旧東芝株及び東洋エンジニアリング株）	2月 ホット試験終了

硝酸塩の熱分解を経て、固形の脱硝酸化物を得る。写真1に脱硝過程を示す。MH法は、沈殿法や流動床法に対して以下の特徴を有する。

プロセスが短い：液調整 - 沈殿 - る過 - 乾燥を、マイクロ波による脱硝の1工程で置き換えることができる。また、Pu/U比を左右する沈殿条件の微調整が不要である。

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、Pu + U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。また、廃液へのプルトニウムの移行は主に蒸発濃縮に伴うものであり、沈殿法に比較して移行率が小さい。また、流動床法と比較すると、廃気処理工程が小規模ですむ。

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、容易に破砕でき、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⁴⁾。流動床法では粉末の活性度が低く、微粉碎工程を必要とする。

またマイクロ波は、導波管とマイクロ波透過性材料（テフロン等）により、通常の管理区域に設置されたマイクロ波発振機からグローブボックス内の脱硝オープンにエネルギーを送ることができるので、保守・調整が容易である。MH法は沈殿法と異なり不純物の除去は期待できないものの、これらの優位性は他の方法では得難い。そこで、プルトニウム燃料第二開発室に混合転換試験設備を設置して、小規模工学試験を行うこととなった。

(4) 混合転換試験設備の主な成果⁵⁾⁶⁾

本設備には(2)で触れたように共沈殿法とMH法の2種類の工程があり、処理能力は共に2 kg MOX/日である。1978年12月には東京芝浦電気株式会社（当時）によりMH法の機器の搬入と据付が開始され、1979年3月に検査に合格した後、4月にウラン試験、7月にはプルトニウムを用い

た開発試験を開始した。硝酸プルトニウム溶液は、分離精製工場の貯槽から、ステンレス製のボトルに移し替えて輸送された。

試験の結果、共沈殿法、MH法共に、プルトニウムとウランの均一性が良好で活性度が高く、燃料製造に適した粉末が得られること、粉末物性は焙焼条件に大きく依存すること等が明らかになった。また、MH法は廃液発生量が少ないこと、スラリー発生がないため運転も容易であること、共沈殿法は沈殿条件の調整やスラリーの処理が必要となること、MH法における脱硝反応終了の検出は反応終期に生じる局所的な発光を利用できること、MH法で蒸発した酸の大部分は回収可能なこと等が明らかになった。中でも、廃液処理の優位性、運転の容易性、保守性、経済性に優れる点が評価され、MH法の採用が確定した。

本設備では、1979年8月からPu/U = 1として「ふげん」用原料粉末の転換を開始し、1983年4月までに537ロットの転換（1.1トンMOX、0.5トンPu）を実施した。同4月からは、Pu/U = 20として「常陽」用原料粉末の転換を実施し、1984年11月までに216ロットの転換（0.4トンMOX、0.3トンPu）を実施した。また、ハルデン研究用原子炉（ノルウェー）において、MH法で得られた混合粉末から製造したMOX燃料と、従来の機械混合法で製造したMOX燃料について、照射試験を実施した結果、MH法によるMOX燃料のFP放出率が、従来法によるMOX燃料のFP放出率よりも低いことを確認した。

なお、本設備では工学試験終了後、バッチ連続方式及びスクリー方式による脱硝の連続化技術開発が行われた⁷⁾⁸⁾。

1.2 プルトニウム転換技術開発施設の建設

東海再処理工場のプルトニウム生産能力に見合う工学規模のプルトニウム転換施設の詳細設計

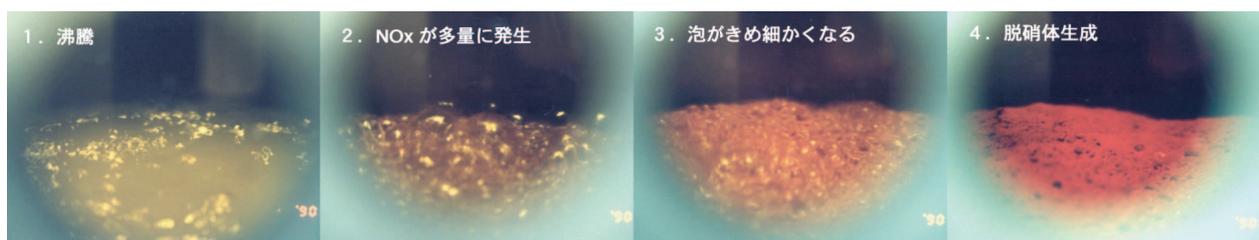


写真1 マイクロ波加熱直接脱硝法による脱硝の過程

は、しゅう酸沈殿法（単体転換法）による主工程の設計が1976年12月に西独ALKEM社により開始され、1977年2月には三菱金属株式会社（当時）による技術業務協力（ALKEM社の設計に対応し安全審査に必要な各種資料作成等の業務協力を行う。）が開始された。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、三菱金属株式会社が主工程の詳細設計を進めることとなった。詳細設計は1980年2月に終了した。

1980年7月には、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、翌8月から、東京芝浦電気株式会社（当時）と東洋エンジニアリング株式会社により、分離精製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の鳥瞰図を図1、主工程室の様子を写真2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月に竣工した。

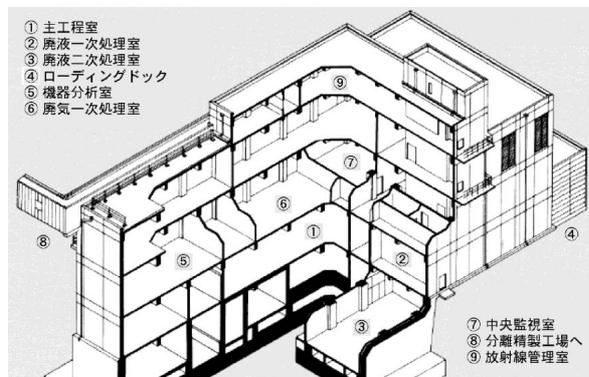


図1 プルトニウム転換技術開発施設の鳥瞰図



写真2 主工程室

1.3 施設及び工程の概要¹⁰⁾

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1,200m²、延床面積は約5,000m²である。工程概要を図2に示す。地下1階 - 地上2階には、受入計量、混合、脱硝、焙焼還元、粉碎、中間貯蔵、ロット混合、充填、粉末貯蔵、払出し等の主工程に加え、廃液処理工程、廃気処理工程、分析工程、基礎実験工程を配置し、地上3階には換排気設備、地上4階には放射線管理室等を備えている。分離精製工場と転換施設は、硝酸プルトニウム溶液、硝酸ウラン溶液、低放射性廃液及び回収酸の移送配管及び排気ダクトで接続され、転換施設の地上4階に、両建屋の連絡通路が設けられている。硝酸プルトニウム溶液は分離精製工場から二重配管で移送されるが、硝酸ウラン溶液は、分離精製工場から同じ方法で移送される系統と、民間のウラン加工施設からトラック輸送で受け入れる系統（濃縮度が20%未満の濃縮Uと劣化Uの2種類）が設置されている。プルトニウムを貯蔵する槽はいずれも同じ形状の環状槽であり、揚程の関係でエアリフトと真空を併用し溶液を移送するシステムとなっている。混合槽でPu/U比を調整した後、プルトニウム約1kgとウラン約1kgを含む混合溶液を1バッチとして脱硝工程に移送する。脱硝工程は2系統あり1バッチ分の溶液を盆状の脱硝ポートに供給した後、脱硝オープン内で2.450MHz、16kWのマイクロ波を約30分照射して脱硝する。脱硝回数は、2系統を合わせて1日に最大5回であり、処理能力は10kg(Pu+U)/日である。脱硝体を破碎した後、気流輸送方式で脱硝体を焙焼還元ポートに供給し、このポートを焙焼還元炉に装填して、5ポートを1バッチとして空气中750℃で焙焼し、水

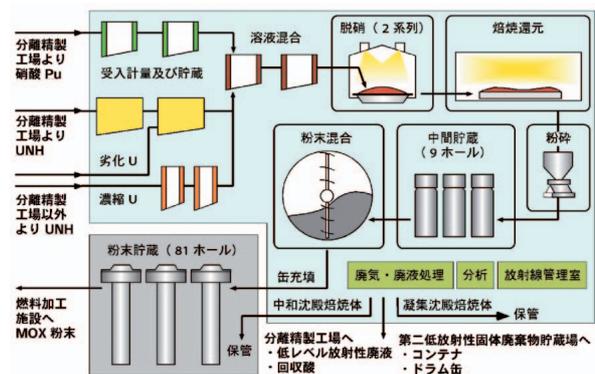


図2 工程概要

素濃度 6 %未満の窒素水素混合ガス中750 , 4 時間で還元を行う。得られた二酸化物粉末は、気流輸送方式で粉碎工程次に中間貯蔵工程に送り、最大4日分の焙焼還元量を1ロットとして円盤状の混合機で均一混合を行ってMOX原料粉末とする。内装設備については、脱硝前の溶液を取り扱う機器はセル内に設置し、脱硝以降の粉末を取り扱う機器はグローブボックス内に設置する構造としている。プルトニウム取扱量の多いグローブボックスにはボロン入りポリエチレンと鉛を積層した重遮蔽を施し、管理区域のほとんどはアンバー区域とするレイアウトとする等、再処理施設と加工施設のそれぞれの安全設計思想を採用している。計量管理上の物質収支区域は、工程(主工程、廃液処理工程、分析工程、基礎実験工程等)と粉末貯蔵庫の2区域であり、プルトニウムの工程への入量は受入計量槽における液量測定と濃度及び密度分析により、工程からの出量は充填工程における重量測定と含有率分析により決定される。

2. 実証運転の経緯

実証運転中の年度別と累積のMOX転換量を図3に、実証運転中の試運転及び技術開発運転の歩みを図4に示す。図4には、六ヶ所再処理施設への技術協力の歩みも併せて示した。試運転及び技術開発運転では、MH法の工学的実証と並行して、以下の観点で研究開発が行われている。

脱硝反応過程の基礎研究

高富化度の粉末を安全(汚染管理、被ばく管理)に取り扱う技術

脱硝ポートと焙焼還元炉及びポートの強度、

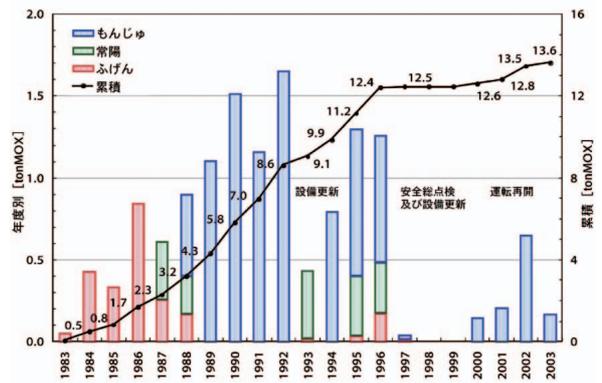


図3 年度別及び累積MOX転換量

耐食性の評価と最適材料の選択

気流輸送を安定に行う技術

安定運転とコスト低減(自動化、再利用、保守性向上)の追求

設備更新時において廃棄物発生量を低減させる技術

溶液、粉末、廃棄物のいずれの形態のプルトニウムも精度良く計量管理し、査察と運転を効率的に両立させるための技術又は手法

将来的な転換技術の研究、安全研究、国内外の研究機関との共同研究

日/IAEA保障措置協定に基づく査察については¹¹⁾、建設工事中から段階的に設計情報の検認や槽の初期校正の検認を受けた後、特定査察を受けつつウラン試験を開始した。続いて、貯蔵容器用大型非破壊測定装置の設置、再処理工場との同時実在庫調査の実施、槽の再校正の頻度と方法、中間在庫検認の方法について、技術開発運転と両立可能な査察方法を巡り、施設付属書(FA)の合意

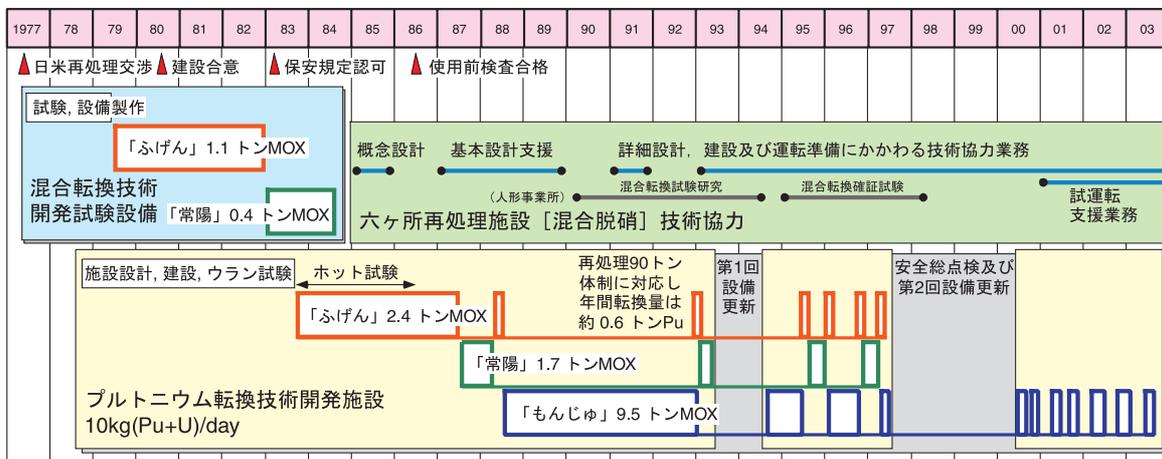


図4 マイクロ波加熱直接脱硝法による混合転換技術開発の歩み

に向けてIAEAとの交渉が行われ、FAは1989年1月に発効した。その後、グローブボックス内の滞留/飛散粉末(ホールドアップ)や低放射性固体廃棄物に含まれるプルトニウム量の測定等測定技術の進展、核的損耗(Pu241 Am241への崩壊)評価方法の合意等に伴う改定を経て、現在の査察方法が合意されている。

2.1 試運転

1983年4月に保安規定が認可され、同月、分離精製工場より濃縮度約1%の硝酸ウラニル溶液を受け入れてウラン試験を開始した。脱硝工程では延べ127回の脱硝を行い、マイクロ波出力を段階的に変更して得られた脱硝体の物性や取扱いの容易さ等から出力を決定した。焙焼還元工程では延べ38回の焙焼還元を行い、雰囲気温度を段階的に変更して得られた粉末の性状から焙焼・還元温度を決定した。使用したウラン量は約220kgであった。本試験では、ステンレス製脱硝ポート内に脱硝体を多量に残したまま次の脱硝を行うと、発泡状態の不完全な脱硝体が生じることが判明したほか、微細粉末による気流輸送設備内の閉塞等、粉末ハンドリング上の障害が発生した。これらの問題に対し、ステンレス製に代わる窒化珪素セラミック製脱硝ポートの開発、気流輸送と同時に残留粉末のかきとりを行う装置の開発、ブローバック装置の改良等を、ウラン試験及びホット試験を通じて進めた。

1983年10月には、分離精製工場より硝酸プルトニウム溶液を受け入れ、ホット試験を開始した。ウラン試験で設定した運転条件に大きな変更はなく、1983年12月にプルトニウム燃料第二開発室へMOX粉末を初出荷した。その後、プルトニウム取扱い経験を重ねつつ1日あたりの脱硝回数を徐々に増加させ、1986年5月には5バッチ/日を1週間継続して6月に使用前検査を受検し、同年8月に使用前検査合格証の交付を受けた。使用したウラン量は約600kg、プルトニウム量は約360kgであった。使用したウラン量とプルトニウム量に差があるのは、分離精製工場の溶解槽新設工事を目的とする再処理工場の停止に伴ってプルトニウムが不足した時期に、Pu/U=0.1として試験を継続したためである。ホット試験では、崩壊熱により粉末の温度が上昇し再酸化によってO/M比(Pu及びUと酸素の原子数の比)が上昇することが判明し

たため、中間貯蔵工程の容器の材質を熱伝導性に優れたアルミニウムに変更するとともに、放熱用の内部フィンを設けてO/M比を安定させた。また、加工施設との間で貯蔵及び輸送に多数使用される貯蔵容器について、再利用に欠かせないダブルカバーシステムの汚染コントロール技術の開発、プルトニウムの受入量を決定する高精度液量測定システムの開発、脱硝反応の基礎データの取得等を行い、その後の施設の稼働率の向上、運転技術の確立、保障措置の信頼感の醸成等を達成した。

2.2 技術開発運転

(1)「ふげん」及び「常陽」用MOX粉末の転換

1986年9月に開始された技術開発運転では、引き続き、濃縮度約1%のウランを用いて転換を継続した。1986年11月には「ふげん」の使用済み燃料が初めて再処理され、このプルトニウムを1987年1月に受け入れてMOX粉末に転換し、1987年4月にプルトニウム燃料工場に出荷した。このプルトニウムは、1988年5月に再び「ふげん」に装荷されATRサイクルの環が初めて完結した¹²⁾。また、濃縮度約18%の硝酸ウラニル溶液を日本核燃料コンバージョン(当時)から輸送するための輸送容器と受入設備を製作し、「常陽」用MOX粉末の転換を開始した。1987年3月から1年間で計20回、約300kgのウランを受入れ、1988年7月までに約590kgのMOX粉末を出荷した。

(2)「もんじゅ」初装荷用MOX粉末の転換

開発運転の当初は、定期検査及び年2回の実在庫調査で年間約3ヶ月の停止期間を要しており、転換量はプルトニウム量で年間約0.3トンにとどまっていた。「もんじゅ」初装荷用MOX粉末の転換では年間転換量を倍増することが必要となり、定期検査の効率的な受験、実在庫調査の頻度削減と中間査察の導入、保守点検の効率的な実施により運転日数を増加させる対応を行った。また、初装荷粉末のウラン濃縮度が0.25%と「常陽」用粉末よりも2桁小さくなったため、スペック外粉末の低減を目的としてシミュレーションに基づく工程洗浄を行い、1988年10月からスペックに適合した粉末の製造を開始した。製造はほぼ計画通りに進み、1992年6月に1.9トンPuの出荷量を達成した。この間、グローブの経年劣化の要因として、線の影響以外にグローブボックス内のオゾンの影響があることを見だし、耐オゾン性に優れた

ハイパロン製グローブへの切り替えを行ったほか、稼働率を維持するため、粉末取扱設備の定期的な分解清掃と飛散防止対策等の予防保全に取り組んだ。1990年度及び1992年度の年間転換量はプルトニウムで0.6トンを超え、再処理工場の90トン（使用済燃料中の金属ウラン量に換算して）体制に対応できるものになった。

(3) 第1回設備更新¹³⁾

昇温と降温を日々繰り返す焙焼還元炉の高温強度と耐久性を検討した結果、予防保全として1993年10月から1994年10月にかけて、炉本体の設備更新と、老朽化した廃液蒸発缶や気流輸送設備等グローブボックス内の大型設備、分析用グローブボックス4基の設備更新を行った。炉はインコネル600に代えてインコネル625を採用し、耐硝酸性と高温強度を向上させ、気流輸送設備には粉末の滞留防止と保守性を主眼とした改良を施した。グローブボックス内の大型設備を更新する方法としては、空きスペースの制約（設備の撤去と新しい設備の設置を並行して行うことができない）及び工期の制約（更新前の設備で定期検査を受けた後、翌年は新しい設備で定期検査を受けることとしたため、工期は1年間）から、グローブボックスのパネルを取り外して開口部から設備を入れ替え、再びパネルを取付ける方法（パネル交換法）を考案し、モックアップ試験で作業手順を確認した後、安全に設備更新を実施することができた。1993年度の定期検査合格証が交付された後、直ちに焙焼還元炉の撤去を行い、炉のあったスペースを利用して大型のグリーンハウスを設置した後、1994年1月から4月にかけてパネル交換法による大型機器の更新を実施した。6月にはグリーンハウスの撤去と新しい炉の据え付けを開始し、9月には試運転を行って10月に定期検査合格証の交付を受けることができた。パネル交換法によって、工期を短縮し費用と廃棄物発生量を大幅に削減することができた。

(4) 信頼性評価研究とホールドアップ問題への対応

技術開発運転を継続する一方、MH法による混合転換の信頼性を高めるため、窒化珪素セラミックス製脱硝ポートについて長岡技術科学大学との共同研究で耐食性及び熱衝撃性等について研究を行うとともに、焙焼還元炉の疲労強度及び高温クリープ強度の評価や確率論的安全評価手法の適用

検討を行った。また、プルトニウム第3開発室のグローブボックス内ホールドアップ（グローブボックス内の狭所へ滞留又は飛散等の形で残留した粉末）問題に関連して、転換施設にも同様の非破壊測定装置を設置し、1995年8月に測定を開始した。その結果、クリーンアップ（運転を停止して残留粉末の回収を行うこと）により全量を回収していると考えていたホールドアップがプルトニウムで約10kgとなることが判明したため、運転を行いつつ粉末回収と廃棄物整理を進め、1996年9月にはホールドアップ量の低減目標値を達成した。1995年12月には、低放射性固体廃棄物に対して非破壊測定装置によるプルトニウム量の測定を開始し、固体廃棄物へのプルトニウムの移行量を明らかにした。

(5) 安全総点検と第2回設備更新¹⁴⁾

アスファルト固化処理施設の火災爆発事故及びJCOの臨界事故を契機として、再処理施設全体で安全性向上に取り組み、転換施設では、窒素水素混合ガスの水素濃度上限操作系の追加、誤操作により脱硝前の溶液が廃液系に移行することを防ぐ閉止弁の追加、臨界を収束させるための中性子吸収剤の供給配管の設置等を行った。また、老朽化した脱硝設備とロット混合機及び換排気制御設備の設備更新を1998年9月から1999年9月にかけて実施した。混合機は、駆動用の大型モーターをグローブボックス外に配置し、磁性流体を用いた軸シールにより駆動力をグローブボックス内に伝達する構造に変更することにより、クリーンアップや機器点検等の保守作業を容易にした。また、換排気制御設備には、リレーを主制御とする従来の方法に代えて、シーケンサーを主制御としリレーをバックアップとする方法を採用し、信頼性を向上させた。また、ダブルカバー型エアラインスーツや水除染を導入して設備更新に伴う廃棄物発生量を低減させたほか、ホールドアップの査察が出来なくなるため、高感度の中性子モニタを開発して査察が継続できるようにした。

(6) 技術開発運転の現状

2000年11月より、分離精製工場の運転に合わせて転換施設の運転も再開した。「ふげん」、「常陽」、「もんじゅ」燃料製造用に、転換施設から供給したMOX原料粉末は、2004年3月末で、累積13.6トンMOX（5.6トンPu）に達している。今後は、安全を確保しつつ、再処理技術の工学的実証とを目的

とした運転を継続し、運転技術と管理技術の標準化、高燃焼度燃料を再処理・転換する場合の安全性研究と実証運転、MOX 残材(スクラップ粉末)の再利用、低レベル放射性固体廃棄物の処理/処分、ショートプロセス技術開発の展開、六ヶ所再処理施設の運転に伴って生じる各種試験/評価等への協力、基礎研究に必要な試料の作製とデータの整備等を行っていく計画である。

2.3 内部汚染の経験

プルトニウムの汚染が作業室や作業衣の表面に付着した場合は、固定し除去することが可能であるが、作業員が汚染を吸い込んだ場合(内部汚染)は、除去が困難となる恐れがある。転換施設では、1989年3月16日に、グローブ作業中に、グローブの傷に起因して作業員の鼻腔汚染が発生した。対策として、傷の原因となったグローブの挟み込みが発生しないよう、グローブポートカバーの設計を変更しすべてのカバーに対策を施した。また、第1回設備更新中の1994年4月20日には、グローブボックスの排気フィルタのビニルバッグ接続部に生じた漏れに起因して作業員の鼻腔汚染が発生した。対策として、漏れの原因となった排気中の水分凝縮によるビニルバッグの劣化を防止するために、グローブボックス内で発生する水蒸気をフードで捕捉する対策を行った。また、第2回設備更新中の1999年3月26日には、溶接工事の作業方法の不備に起因して作業員の鼻腔汚染が発生した。対策として、溶接箇所を大きく囲うフードを用い汚染の閉じ込めを徹底した。現在では、管理区域内の作業はすべて特殊放射線作業となり、事前に安全性評価が行われている。

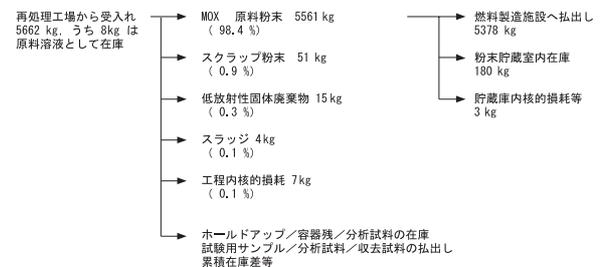
3. 実証運転の成果

3.1 プルトニウムの収支

ホット試験開始から2003年8月の実在庫調査までの、プルトニウムの収支を図5に示す。再処理工場から受入れたプルトニウム量(転換していない原料溶液を除く)の98.4%はMOX原料粉末に転換された。約0.9%はスクラップ粉末に、約0.3%は低放射性固体廃棄物に、約0.1%は廃液処理工程で発生するスラッジに移行した。またPu241の核的崩壊を主とする核的損耗量は約0.1%であった。残り0.2%は、ホールドアップ/容器残/分析試料の在庫と試料の払出し及び在庫差であった。本収支の基とした計量管理データは、すべて国とIAEAの検認を受けている。また、固体廃棄物への移行率は、設備更新工事で生じた廃棄物を含んでいる。なお、再処理工場に戻される廃液及び回収酸に含まれるプルトニウムの濃度は、計量分析下限未満(放射能分析のレベル)であった。

3.2 製品粉末の性状

MOX原料粉末の、物性分析(タップ密度、バルク密度、比表面積、水分含有率、O/M比)結果の度数分布を図6に示す。マイクロ波出力と焙焼還元温度は、ホット試験開始以降変わっていないが、



[ホット試験開始(1983年10月)から第26回実在庫調査(2003年8月)まで]

図5 プルトニウム転換技術開発施設に受け入れたプルトニウムの収支

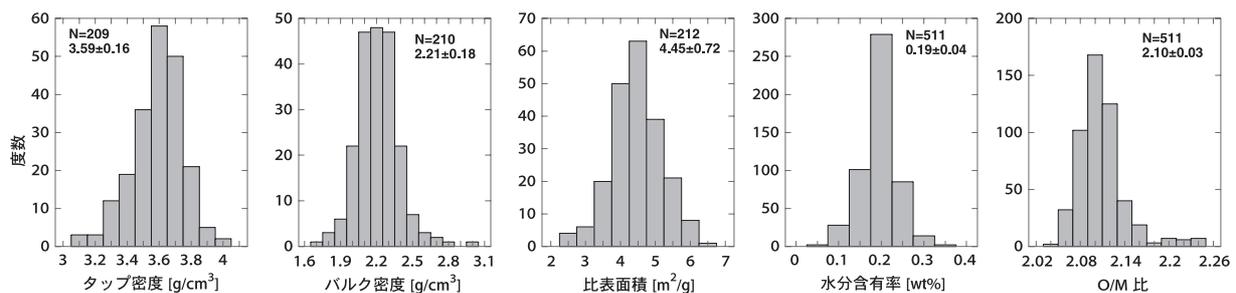


図6 MOX原料粉末の物性値

Pu/U比は0.1として運転した時期がある。いずれの度数分布も単峰型であるが、O/M比の分布の裾が高い方向に伸びており、再酸化の影響やPu/U比が低い時期の影響と考えられる。

一方、MOX原料粉末の不純物含有率については、多くの元素が測定下限値前後で推移している（一時的な上昇を除く）中で、Fe、Cr、Niは有意な値で推移した。特に、2000年の運転再開以降に受け入れたプルトニウムを用いたMOX原料粉末は、燃料製造上のスペックと比較して無視できない不純物濃度となった。Fe、Cr、Niは、受け入れた直後（溶液）から高い含有率を示しているが、含有率の単位が粉末と溶液では異なり、またロット単位ではばらつきの影響が大きいいため、含有率を含有金属重量の累積量に直し、受け入れた直後の溶液とMOX原料粉末の比較を行った（図7）。その結果、受入直後のFe、Cr、Ni比は、Crがやや小さいもののステンレス鋼の成分比に近いこと、時期によって傾きが異なるものの累積量は処理量に対して直線的に増加することが認められた。工程内での増加分に着目すると、粉末中のFe、Crの約20%、Niの約35%が工程内で増加してお

り、ステンレス鋼とインコネル（焙焼還元工程の炉とボートの構成材料で主成分はNi）が共に不純物の起源になっていると考えられる。一時的な上昇としては、1988 - 1989年にMg含有率の上昇があり、グローブ作業で用いたタルクが分析試料に混入したものと推定された。対策として、グローブボックス内の整理整頓を徹底した。

3.3 主な技術開発

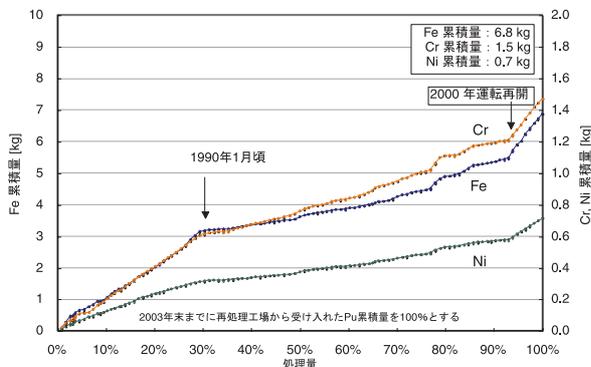
主な技術開発の年表を開発運転の歩みと共に図8に示す。

(1) セラミックス製脱硝ボートの開発¹⁵⁾

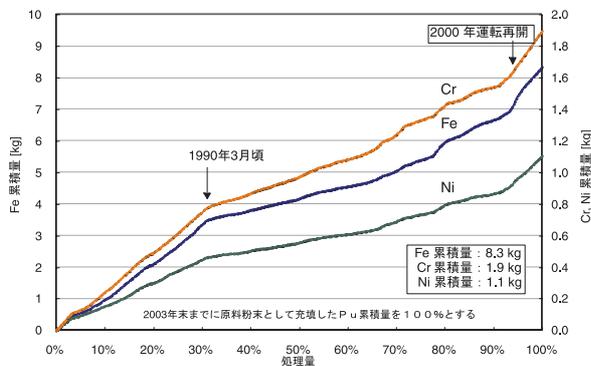
MH法による転換では、脱硝ボートと呼ばれる盆状の容器に混合溶液を満たし、マイクロ波を照射して加熱及び脱硝反応を生じさせる。反応の際に生じるNO_xガスにより、溶液は発泡状態を経て固体の脱硝体となる。この際、当初はステンレス製の脱硝ボートを用いており、脱硝ボート底面ではマイクロ波電界強度がゼロとなるため、発泡状態が不完全な脱硝体が生じることがあった。そこで、材質をマイクロ波透過性の窒化珪素セラミックスに変更し、電界強度がゼロとなる位置をボート外とすることで発泡状態を大幅に改良した。ボートの直径は約50cmであり、窒化珪素セラミックスとしては現在でも最大級の大きさである。セラミックス材料の欠点である脆さを克服するため、バインダーの選択や製造条件に様々な工夫を重ねたほか、長岡技術科学大学との共同研究により、耐食性及び熱衝撃性について詳しく評価を行った。写真3に脱硝オープン内部の様子を示す。窒化珪素セラミックス製脱硝ボートは、1988年3月に片系列、翌年には両系列に採用され、現在まで継続的に使用されているが、割れ、欠け、目視可能な減肉等の不具合は生じていない。

(2) 脱硝反応の基礎データの取得¹⁶⁾

脱硝反応の機構を解明し、脱硝条件の最適化を図るため、反応で生じる中間生成物を同定する試験、反応中の被加熱物質のマイクロ波特性を詳細に把握するための誘電特性測定、脱硝反応温度を直接測定するための機器開発、焙焼・還元条件による粉末物性の変化を把握して処理条件の最適化を図るための試験を行い、マイクロ波加熱直接脱硝法に関する基礎データの取得と整備を行った。オープン内は電界強度が高く、またNO_xガスが発生するため、温度測定に熱電対等は使用できない。



1) 硝酸プルトニウム溶液（転換前）



2) MOX原料粉末（転換後）

図7 転換工程中のFe、Cr、Niの増加傾向

1980 (昭和55年)	8月 着工	4月 転換累積量 80 kgMOX					
1981 (昭和56年)	12月 MH 法が米国原子力学会賞受賞	4月 転換累積量 380 kgMOX	混合転換技術開発				
1982 (昭和57年)	8月 通水作動試験開始 10月 転換技術開発部発足	4月 転換累積量 733 kgMOX	技術開発				
1983 (昭和58年)	2月 竣工 4月 ウラン試験開始 10月 プルトニウム試験開始	4月 常陽用原料粉末転換開始	高精度液量測定装置の開発	S57 水晶振動型センサの試験	S53 ホウ珪酸ガラスの試験	S55 Pu 燃焼 Wカバー採用	
1984 (昭和59年)	前壊熱による O/M 比上昇への取り組み 気流輸送設備の改良	11月 終了 1146kgMOX	実機製作	窒化珪素製造脱硝ホット開発	窒化珪素を選択小規模脱硝試験	大型容器検討	貯蔵容器再利用技術開発
1985 (昭和60年)	低比率転換 (Pu/U = 0.1) 5月 設計能力 (5 バッチ/日) を達成						
1986 (昭和61年)	8月 使用前検査合格 9月 開発運転開始			測定技術の確立		リップシール形状の改良	
1987 (昭和62年)	1月 ふげんから回収された Pu を転換 3月 濃縮ウランを受入開始					実機製作	
1988 (昭和63年)	8月 工程洗浄運転を開始 10月 もんじゅ初装荷用粉末の転換開始					実証試験開始	
1989 (平成元年)	稼働率の向上への取り組み 予防保全への取り組み グローブ劣化防止への取り組み					リップシール交換装置の開発	
1990 (平成2年)	1990年度の転換量は 642 kgPu となり再処理 90 ton 体制に対応。					リップシール交換方法の確立	
1991 (平成3年)				腐食試験		S59 炉の高温強度解析	
1992 (平成4年)	1991年度転換累積量 6.9 t MOX 6月 もんじゅ初装荷 MOX の出荷終了 引き続き取替用 MOX の転換			熱衝撃試験		インコネルの腐食試験 インコネル 625 を選択	
1993 (平成5年)	1992年度転換累積量 8.6 t MOX 4月 常陽用 MOX の転換開始 9月 第1回設備更新を開始			窒化珪素信頼性評価	繰返し応力試験	パネル交換法モックアップ パネル交換法実施	
1994 (平成6年)	10月 転換を開始						
1995 (平成7年)	1994年度転換累積量 9.9 t MOX ホールアップ低減に組み			寿命評価試験 I	東工大との協力	工程内滞留中の Pu 量測定	少量の Np を分離
1996 (平成8年)	1995年度転換累積量 11.2 t MOX			寿命評価試験 II	固体廃棄物中の Pu 量測定 IAEA との協力	非破壊測定技術開発	確立的な安全評価手法の研究開始
1997 (平成9年)	3月 ASP事故 転換累積量 12.4 t MOX 10月 押し出し終了			実機製作			熔焼還元炉の爆発事象の確率評価
1998 (平成10年)	9月 第2回設備更新を開始			磁性流体軸シール水除染法	設備更新	工程内滞留中の Pu 量監視	簡素化プロセスの概念検討
1999 (平成11年)	9月 設備更新が終了			Wカバースーツ		Pu 量測定の測定範囲改良	
2000 (平成12年)	11月 転換を開始			ショートプロセス技術開発		換排気制御系に関する信頼性解析	その他技術開発
2001 (平成13年)	2000年度転換累積量 12.6 t MOX					高精度非破壊測定に関する LosAlamos との共同研究	
2002 (平成14年)	2001年度転換累積量 12.8 t MOX 11月 もんじゅ用に回収 U を使用開始						
2003 (平成15年)	2002年度転換累積量 13.5 t MOX 2003年末転換累積量 13.6 t MOX					1998年 ショートプロセス計画が打ち出される 富化度調整及び粉末流動性改良を担当	

図8 主な技術開発の歩み

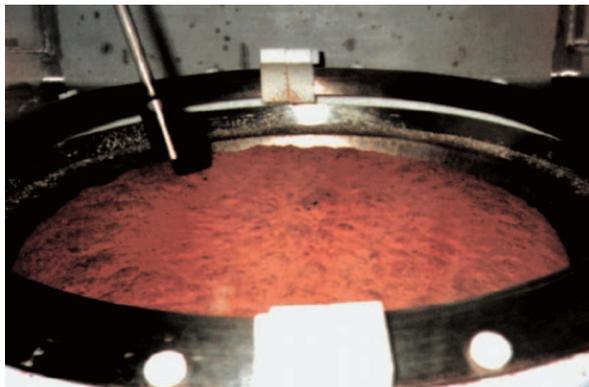


写真3 脱硝オープン内部

そこで、赤外線を利用した温度測定方法を開発した。図9に脱硝反応の温度変化と生成物の関係を示す。

(3) 貯蔵容器の再利用技術開発

貯蔵容器は、転換施設と加工施設の間で貯蔵及び輸送の目的で繰り返し使用されるため、グローブボックスと貯蔵容器の接続機構として、再利用性に優れたダブルカバーシステムが採用されている(図10)。これは、カメラの交換レンズと同様の接続機構を2重化したものであり、機構上避けられない僅かな隙間から生じる汚染を防止するた

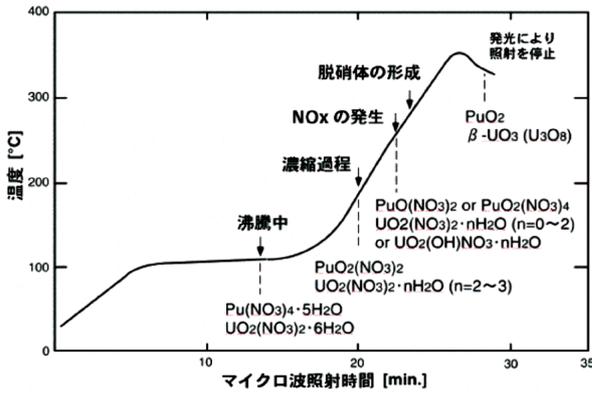


図9 脱硝反応の温度変化と生成物

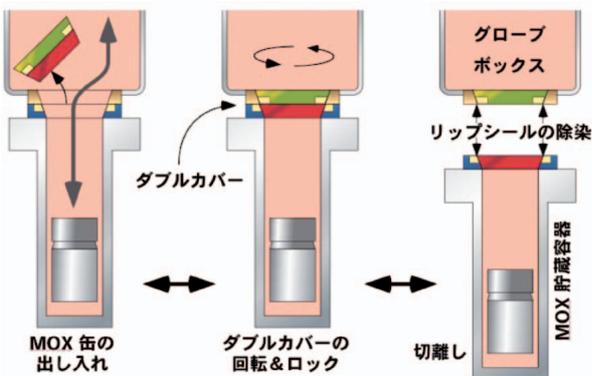


図10 ダブルカバーシステム

め、断面に薄いヒダを持ったリング状のリップシールが用いられている。接続を自動化するため隙間はやや大きめになっており、当初用いられたリップシール形状では、接続と切離しの際に手作業による除染が必要であった。この除染作業は、高線量下で1時間以上を要することもあり、また回転時の摺動によってリップが変形することもあった。そこで、接続機構の部品形状を改良するとともに、リップシール形状について試行を繰り返して独自の形状を開発し、除染時間を10分程度まで短縮した。また、専用のグローブボックスを用

い、ダブルカバーシステムの部分のみを貯蔵容器から安全に取り外して交換する技術を開発し、貯蔵容器の再利用技術を確立した。写真4にダブルカバー部の外観を示す。

(4) 設備更新技術開発¹³⁾¹⁴⁾

グローブボックス内の老朽化した設備を更新する際、従来はグローブボックス全体を切断/撤去/新設する方法(全体撤去法)が主流であったが、転換施設では空きスペースと工期に制約があったため、1993年 - 1994年の設備更新では、グローブボックスのパネルを取り外して開口部から設備を入れ替えるパネル交換法を開発した。開口部とグリーンハウスを確実に接続し、かつパネルを安全に外すため、枠型のシール治具とシール剤を用いた新たな作業手順を考案するとともに、拭き取りと電解研磨を併用して汚染コントロールを行った。パネル交換法では、開口部が小さくグローブボックス内の除染を十分には行えないため、仮設プロアによって開口部の空気流線を確認したり、グローブボックス内に間仕切りを設けて、グリーンハウス内の空気汚染密度をコントロールした。いずれもモックアップ試験により作業手順を確かめた上で作業を実施した。パネル交換法によって改善された工期、費用、廃棄物発生量を表2に示す。

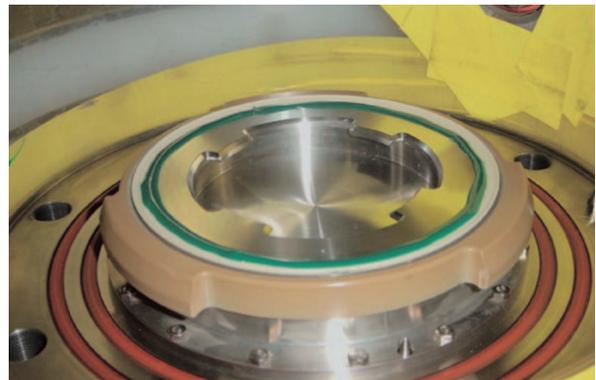


写真4 ダブルカバー部の外観

表2 全体撤去法(従来法)とパネル交換法の比較

更新手法	項目	廃棄物発生量(ドラム)			被ばく 手部組織線量当量	更新期間	コスト	
		総発生量	可燃物	難燃物				不燃物
	全体撤去方式	550	300	85	165	1	16カ月	1
	パネル取り外し方式	400	341	24	35	0.2	12カ月	0.7
	差	150	+41	61	130	0.8	4カ月	0.3

仮に今回実施したグローブボックス内大型機器を全体撤去方式で実施したと仮定し、今までの撤去の実績により推定したものである。

1998年 - 1999年の設備更新では、エアラインスーツの背中に作業員が出入りするダブルカバーを設けたダブルカバー型エアラインスーツを導入し、スーツの繰り返し使用を可能にした。これにより、従来は4室であったグリーンハウスが3室となり、除染時間が短縮され、また同時入退域が可能となり、作業効率が向上した。設置スペースを小さくできる水除染法も採用された。図11にパネル交換法とダブルカバー型エアラインスーツの概念図を示す。

(5) 計量管理・保障措置技術開発¹⁷⁾¹⁸⁾

硝酸プルトニウム溶液の受入液量の測定方法としては、遠隔・無保守で原理的に正確な測定が可能な浸漬管による差圧測定が採用されているが、ウラン試験当初はオンラインで使用可能なセンサの精度が十分でなかったため、水晶振動型差圧変換器を用いた液量測定システムを急ぎ開発し、年1回の保守で $\pm 2\text{Pa}$ の高精度を安定的に維持できるようにした。また浸漬管内の気柱や浸漬管先端で生成・離脱する気泡の影響について東京工業大学の協力を得て研究をおこない、差圧測定から正確な密度と液量を求める補正方法を導いた。密度の測定結果は、試料を採取して振動型密度計で求めた密度と $\pm 0.1\%$ で一致しており、万一、受入時にこれらが一致しない場合は、再サンプリング等の迅速な対応がとれるようになった。またIAEAに協力して高精度のタンクモニタリング装置を設計し、1997年から稼働させている。

また、1998年の設備更新の際は、グローブボックス内ホールドアップに含まれるプルトニウム量の測定が査察要件になっているにもかかわらず、

工事上の制約によって測定が困難になったため、グラムオーダーの変化を検知できる高感度中性子モニタを開発し（グローブボックスの上下から挟むように設置）設備更新前に測定したプルトニウム量が、設備更新中ずっと維持されていることを査察側に証明した。また、ホールドアップに含まれるプルトニウム量の非破壊測定技術に関しても、プルトニウム燃料センターとDOEとの共同研究で開発された装置の検出器の幾何学的配置を再設計し、高さ4 m以上あるグローブボックスでも測定できるよう改良した。低放射性固体廃棄物に対しては、工程室まで移動可能な測定装置を開発し、プルトニウム付着量の多いバッグアウト物又はカートンを、発生後速やかに測定できるようにしている。写真5に改良されたホールドアップ測定装置、写真6に廃棄物カートン用測定装置の外観を示す。

(6) ショートプロセス技術開発¹⁹⁾

転換を含めたMOX燃料製造プロセスを大幅に合理化し、飛躍的にコストを低減するため、1998年にショートプロセス技術開発計画が打ち出さ

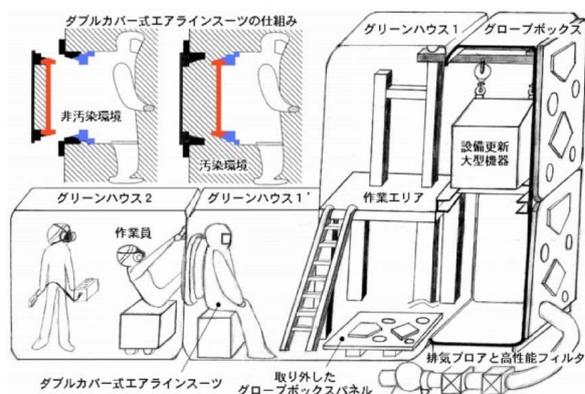


図11 パネル交換法とダブルカバー型エアラインスーツの概念図



写真5 改良されたホールドアップ測定装置

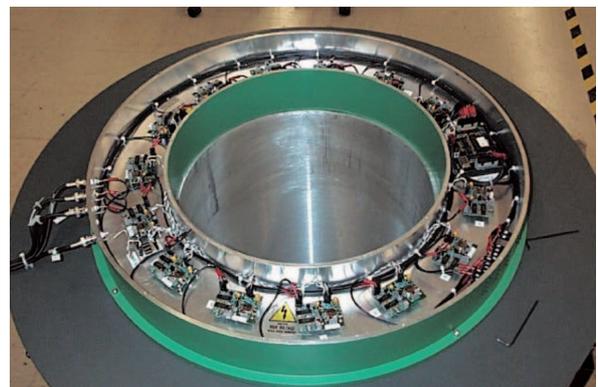


写真6 廃棄物カートン測定装置

れ、1999年に富化度調整技術開発と粉末流動性の改良を開始した。前者は富化度調整を混合転換時に行い、以降の燃料製造時の調整を不要とすることを目的としており、Pu/U比を従来の1から0.3に変更しても脱硝特性や粉末特性は従来と同等であることを確認した。後者はFBR燃料ペレット成形用の金型に直接充填可能な流動性を得ることを目的としており、焙焼還元温度を950以上を高めた「高温焙焼法」と、焙焼還元温度は従来と同じで転動造粒処理を行った「造粒法」について試験を実施した結果、造粒法で得られた粉末の流動性及びペレット品質が良好であることを確認した。

(7) 将来的な核燃料サイクルに関する研究と安全研究

Np, Am, CmをMOX燃料中に含有させて核拡散抵抗性を高め、またこれらの核種の廃棄物への移行を軽減させるアクチノイドサイクル研究の一端として、Npの照射特性を調べるため、3価のPuの還元力を利用して硝酸プルトニウム溶液から少量のNpを分離し(1995年)、Np含有の試験燃料を作製するためのMOX粉末として供給した。このNp量は、国及びIAEAに報告されている。

再処理及びMOX燃料加工の分野では初めて、確率論的安全評価(PSA)手法の適用研究を三菱マテリアル株式会社と実施した(1996-1997年)。本評価では、焙焼還元時の水素爆発及び脱硝廃気HEPAフィルタの吸湿による機能喪失を、レベル1及びレベル2に相当する頂上事象として選定し、実験値、運転及び保守実績、現場調査の結果等から、個々の事象の確率とシナリオを想定し、フォールトツリー解析(FTA)によって頂上事象の確率を見積もった。結果として、周辺環境への影響が大きい事故の確率は小さいこと、閉じ込め機能を損傷しない事故の例として、脱硝廃気HEPAフィルタの吸湿事象の発生頻度が約 2×10^{-2} /年、焙焼還元時の水素の燃焼事象の発生頻度が約 3×10^{-2} /年と計算された。また、第2回の設備更新では、リレー制御とシーケンス制御についてFTAを用いた信頼性評価を実施し、シーケンス制御を採用した(1999年)。

また、ショートプロセスの考え方を更に進めて、脱硝-焙焼還元-流動性調整を同一のポートで処理し、気流輸送と粉末ロット混合を工程から排除した簡素化プロセスの予備的概念検討を三菱マテリアル株式会社と実施した(1999年)。続いて、こ

の簡素化プロセスに必要とされ、現行の保障措置対応の大幅な合理化も可能となる貯蔵容器用高精度非破壊測定装置について、ロスアラモス国立研究所との共同研究により概念設計を行った(2003年)。この高精度非破壊測定装置と類似の装置は、大型再処理施設にも適用が計画されている。その他、廃棄物に移行するプルトニウムを減少させるため、微細なMOX粉末粒子をレーザー光で捕捉・回収する方法について東京大学に研究を委託した。

4. 六ヶ所再処理工場への技術移転

マイクロ波加熱直接脱硝法は、プルトニウム-ウラン混合転換技術として、唯一工学的に実証された方法である。本技術は、日本原燃株式会社六ヶ所再処理施設のウラン・プルトニウム混合脱硝施設に採用され、ホット試験の終了直後から技術移転が行われている(図4)。最初に、「ウラン及びプルトニウム転換・貯蔵施設」の概念設計を受託し実施した(1985年)。次に、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。

続いて、1990年から1994年にかけて、スケールアップに伴う技術的問題の解決を目的として、人形峠事業所において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」が実施された(日本原燃サービス(当時)及び電力10社との共同研究)。本研究により、スケールアップに伴い必要となる装置の改良、機器内粉末滞留量、廃棄物発生量等について多くの知見が得られた。続いて、1995年から1998年にかけて、遠隔自動運転による高稼働率の実現を目的として、人形峠事業所において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確証試験」を受注した。本試験により、機器の改良点を詳細に把握するとともに約700時間のシステム試験を実施し、片系1日45kgUの定格処理能力がほぼ得られることを確認した。

一方、東海事業所では、1991年に詳細設計にかかわる技術協力業務を行い、実際の粉末物性値、ロータリーキルン式還元炉のプルトニウム試験データ、硝酸プルトニウム溶液の低温下における析出の有無、センサやケーブル等の耐硝酸性に関する知見等を提供した。続いて、1993年から2001年にかけて、建設及び運転準備にかかわる技術協

力業務を行い、個別機器に関わる詳細情報の他、グローブボックス内機器配置の保守性、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。その他、保障措置にかかわる技術協力(1993年)や技術情報連絡会(随時)において、種々の技術データを提供した。

人的協力については、1983年 - 2003年の間、日本原燃株式会社の研修生を48名受け入れ、最長で3年間のOJTにより混合転換にかかわる専門知識、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、許認可対応補助及び保障措置対応補助等の研修を行った。また、1988年以降、日本原燃株式会社に延べ17名、2004年3月末で約50人・年の技術者を派遣しており、混合転換に関わる知識/技術/ノウハウを確実に移転しつつある。

5. おわりに

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、2002年10月で満20年を迎えた。この間、我が国で最初の再処理工場と、燃料加工施設をつな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、1978年当時、リーダーであった小泉益通氏(2003年8月逝去)をはじめとして、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。

「マイクロ波加熱脱硝法」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言っても過言ではない。当時、混合転換はアンモニア共沈殿法ありきで試験を開始したものの、沈殿法で生じるADUスラリーのろ過効率が悪く、ろ過の代替として家庭用電子レンジによる乾燥を試みたがスラリーが飛散することが判った。そこで、試みに、余ったウラニル溶液を電子レンジで直接加熱したのが「MH法」発見の第一歩であった。その後は水を得た魚のごとく、数ヶ月足らずでプロセス成立性を評価し、省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・役務員及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たわけである。メーカーとの技術的交流は、六ヶ所再処理工場への技術移転を円滑に進める上で今なお継続しており、その活力が、施設の安定運転を行う上で大きなプラス要因となってきたことを忘れてはならない。

関係各位へ、この場をお借りしてお礼を述べさせていただきます。

参考文献

- 1) 原子力白書 昭和52年度版及び昭和55年度版
- 2) 辻信雄：“マイクロ波加熱直接脱硝法による転換技術の開発”，動燃技報，No. 52, 52-60 (1984)。
- 3) 青木実，大竹俊英：“MOX燃料技術開発の動向(3) プルトニウム転換技術開発”，原子力工業，第32巻第2号(1986)。
- 4) 鹿志村元明，遠藤秀男，鹿島貞光，他：“マイクロ波加熱直接脱硝粉末を用いた常陽燃料ペレット製造試験”，動燃技報，No. 53, 91-94 (1985)。
- 5) M. Koizumi, K. Ohtsuka, H. Isagawa, H. Akiyama, A. Todokoro, “Development of a process for the co conversion of Pu-U nitrate mixed solutions to mixed oxide powder using a microwave heating method”, Nucl. Technol., vol.61, 55-70 (1983)。
- 6) 木原義之，嘉代甲子男：“混合転換技術開発試験設備(2 kg MOX設備)における硝酸プルトニウムの転換”，動燃技報，No. 57, 40-50 (1986)。
- 7) 大島博文，辻信雄：“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”，日本原子力学会誌，vol. 26, No. 4, 339-346 (1984)。
- 8) 木原義之，藤咲栄，高橋芳晴，大内仁：“マイクロ波加熱直接脱硝技術の高度化開発”，動燃技報，No. 80, 57-60 (1991)。
- 9) H. Oshima, “Development of microwave heating method for co conversion of plutonium uranium nitrate to MOX powder”, J. Nucl. Sci. Technol. 26[1], 161-166 (1989)。
- 10) 大島博文，成木芳：“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”，日本原子力学会誌，vol.25, No.11, 918-924 (1983)。
- 11) 石川一成，細馬隆，佐藤富雄：“プルトニウム転換技術開発施設における保障措置技術とその実績”，動燃技報，No.72, 60-64 (1989)。
- 12) 東海事業所再処理工場：“「ふげん」MOX燃料の再処理”，動燃技報，No.69, 117-123 (1989)。
- 13) 鈴木征雄，米川雪夫，吉元勝起，他：“プルトニウム転換技術開発施設の更新工事”，動燃技報，No.93, 102-108 (1995)。
- 14) 磯前日出海，高橋直樹：“プルトニウム転換技術開発施設の更新 - 第2回設備更新 - ”，サイクル機構技報，No.12, 37-46 (2001)。
- 15) 有重達志，中野弘信，市毛浩次：“マイクロ波加熱直接脱硝法における窒化珪素製脱硝ポートの開発”，動燃技報，No.68, 68-73 (1988)。
- 16) 加藤良幸，廣田隆，木原義之，高橋芳晴，都所昭

雄：“マイクロ波加熱直接脱硝法による転換技術開発”，PNC PN8410 96 095(1996)。

17) 細馬隆：“硝酸プルトニウムの高精度液量測定に関する研究”，PNC TN8419 98 002(1998)。

18) 中村仁宣，細馬隆，田中泉：“設備更新時のグロー

ブボックス内在庫検認における保障措置技術開発”，サイクル機構技報，No.16, 27-36(2002)。

19) 牧野崇義，武内健太郎，大代操，他：“ショートプロセスによるペレット製造方法の基礎的検討”，サイクル機構技報，No.20, 13-22(2003)。