

<概要>

再処理工場で、使用済燃料を処理して回収されるプルトニウムは、硝酸プルトニウム溶液となっている。このプルトニウムを原子炉で核燃料として再使用するためには、酸化物などに転換することが必要である。この過程をプルトニウム転換という。

わが国ではマイクロ波を利用した直接加熱脱硝法による転換技術が開発・確立されており、その他の転換法としては、1) 流動床脱硝法、2) アンモニア共沈殿法、3) コ・プレカル法、4) AUPuC法などがある。

マイクロ波を利用した転換法は、他の転換法に比べて工程が簡素であるとともに、廃液の発生量が少ないなどの特徴を有している。

<更新年月>

1998年03月

<本文>

再処理工場で、使用済燃料を処理して回収されるプルトニウムは、硝酸プルトニウム溶液として得られる。このプルトニウムを原子炉で核燃料として再使用するためには、酸化物などに転換することが必要である。この過程を「プルトニウム転換」という。プルトニウムの転換は、大別してプルトニウムのみを単体で転換する方法と硝酸ウラニル溶液と混合して、二酸化ウランと二酸化プルトニウムの混合酸化物として転換する混合転換法がある。

1977年の日米再処理交渉時に、わが国でプルトニウムを単体で回収することは核不拡散上好ましくないとするアメリカ政府の懸念から、再処理工場での最終製品は、ウラン-プルトニウム混合酸化物とすることが要求された。

このため、動力炉・核燃料開発事業団（現日本原子力研究開発機構）において、混合転換法の技術を確認するための研究が実施された。その結果マイクロ波を利用した混合転換法が確立された。実験室規模から出発し、工程を確立したのち、プラント規模での施設の設計・建設工事を実施し、1983年に施設が完成した。1983年以降、動燃・東海再処理工場（現日本原子力研究開発機構・核燃料サイクル工学研究所）で回収されたプルトニウムを混合転換し、順調に1997年6月末までに約13トンの混合酸化物を製造している。

1. マイクロ波加熱直接脱硝法〔MH法〕

マイクロ波は、1メートルから1センチメートル程度の波長の電磁波である。この波長の電磁波は、通信やレーダーに使用されるほか、マイクロ波を直接加熱の熱源としても利用されている。物質（誘電体）は電界が作用すると分極化が起こり、電界が交互に作用すると、電圧と電流の位相にわずかにズレが生じ、これが摩擦熱となり発熱が起こる。家庭用にはこの原理を利用した電子レンジが広く普及している。熱の発生の割合は、使用するマイクロ波の周波数により大きく変化する。

このマイクロ波の性質を利用してウラン・プルトニウムの硝酸溶液を直接加熱し、脱硝する転換法は、動燃・東海事業所において開発・実証されたものである。

マイクロ波加熱直接脱硝法の工程の一例を、図1に示す。この工程では、硝酸プルトニウムと硝酸ウラニルの混合溶液を、それぞれ一定量ずつマイクロ波加熱装置の脱硝皿に供給し、マイクロ波による混合溶液の加熱・脱硝を行う。この加熱装置内では、混合溶液の加熱・昇温が行われ、水分および硝酸の蒸発が行われる。最初に硝酸塩が生成され、引き続いて硝酸塩の熱分解が起る。この時に亜硝酸ガス等の硝酸系のガスが発生するので、このガスを処理して排気すること

が必要となる。

生成された酸化物は、二酸化プルトニウムと三酸化ウランの混合粉末である。この酸化物を加熱し、次に還元装置内で反応させて、最終製品の二酸化プルトニウムと二酸化ウランの混合酸化物とし、混合酸化物燃料製造のための原料として加工施設へ送り出す。

2. マイクロ波による混合転換技術開発の経緯

マイクロ波を利用した混合転換技術の開発を目的とした混合転換技術開発試験設備は、1979年に完成し、動燃東海再処理工場で抽出された硝酸プルトニウムを使用して混合転換試験を開始した。この試験の結果、マイクロ波を利用した混合転換の技術確証がなされるとともに、混合転換により製造された混合酸化物粉末が、ペレット製造用原料として適することが確認された。この試験は1984年まで実施され、「ふげん」、「常陽」燃料の原料として供給された。

この結果を基にして、東海再処理工場に隣接した敷地に、プルトニウム転換技術開発施設を建設し、1983年に完成した。この施設は1日当り10kgの混合酸化物を生産できる能力を有しており、操業開始以来、順調に稼動している。同施設においては、「ふげん」、「常陽」用原料粉をはじめ、1988年より「もんじゅ」用原料粉の生産を実施している。

なお、同施設では、ウラン1に対しプルトニウム1の割合で混合した溶液を転換している。

3. その他の転換技術

マイクロ波加熱直接脱硝法以外のプルトニウム転換の方法は、いくつかの方法がある（表1参照）。

(a) 流動床脱硝法

流動床脱硝法は、混合溶液を流動床に供給し、熱分解により脱硝を行う方法である。プルトニウム単体転換にも適用することができ、プロセスが簡単で、廃液も少ないなどの特長がある。しかしながら、硝酸プルトニウムを取り扱うため、制約条件として臨界管理に対する考慮が必要となり、流動床塔の直径を小さくしなければならず、これは転換のためには流量を増大し、流量条件を整える目的では、流動床塔の直径を大きくした方が安定した運転が期待できるが、給液の方法、流動の方法など技術的な制約条件のために実験室規模以上にすることが困難となっている。わが国では、東海再処理工場において、回収ウラン溶液の脱硝には流動床脱硝法が採用されている。

流動床脱硝法を混合転換に応用するときの問題点は、プルトニウム燃料用の原料として、製品である混合酸化物の粉末の物性が適してはならないが、流動床で仮焼された粉末は、平均粒径が1ミクロン以上の大きなものしか得られず、固い粉末であることから、ペレットの成型性、焼結密度の良いものが得られない点である。混合転換に流動床直接脱硝法を適応させるためにはこれらの問題点を克服しなければならない。

(b) アンモニア共沈殿法

アンモニア共沈殿法は、混合溶液にアンモニア水を加え水酸化プルトニウムと重ウラン酸アンモニアの沈殿を作り、この沈殿物質をろ過、乾燥加熱、還元して混合粉末とする方法である。この方法は、フランス、イギリスなどの海外諸国で検討されていたが、実用化されていない。

わが国では、動燃・東海事業所でマイクロ波直接加熱脱硝法と平行して混合転換法の技術開発の目的で試験研究が行われた。その結果、製造された粉末は、成型性、焼結性に優れた良好な粉末が得られることが確認されたが、特にろ過器が臨界管理上の制約から大きくすることができないこと及び硝酸アンモニウムを含んだ廃液が大量に発生するため廃液処理上の問題があることから不採用とされた。

(c) コ・プレカル法

アメリカのジェネラル・エレクトロ社が混合転換法技術開発のために開発した方法である。アンモニア共沈法の特長である製品の粉末物性が良好であることを生かすとともに欠点であるろ過・固液分離以後を流動床脱硝法に置き替えたものである。流動床に供給される原液が共沈が進行したスラリー状になったり、仮焼も不十分になるなどの欠点があり、実用化には至っていない。

(d) AUPuC法

ドイツのアルケム社が混合転換法のために開発した方法で、スクラップ中のプルトニウム回収に使用していた方法を改良したものである。硝酸プルトニウム溶液を蒸発缶で加熱濃縮してプルトニウムの原子価を調整したのち、硝酸ウラン溶液を加えて濃度調整する。混合溶液は加熱してアンモニアガス及び炭酸ガスを吹き込み、プルトニウムとウランの複合化合物の結晶を沈殿物とするもので、この方法をくりかえし反応させるとろ過しやすい沈殿物が得られ、固体と液体の分離が容易となる。ドイツでは実用化までには至ったが、再処理そのものを断念したために、現在は使用されていない。

4. マイクロ波を利用した転換法の特徴

動力炉・核燃料開発事業団（現日本原子力研究開発機構）が独自に開発したマイクロ波加熱直接脱硝法による混合転換法は、技術的な面で従来の硝酸沈殿法などの単体転換法と比較して以下の様な利点、欠点を持っている。各方法の比較を [表 2](#) に示す。

- （a） 転換工程は簡素であり、運転操作も容易で安全な操業が可能である。
- （b） 廃液の発生量が少ない。
- （c） 転換して生成する混合酸化物の粉末の物性は、均一性が良く混合酸化物燃料製造用の原料として適している。
- （d） 製品収率が高い。

などの利点があるが、欠点としては、不純物の除去（精製）ができないなどがある。

＜参考文献＞

- （1） 火力原子力発電技術協会（編）：やさしい原子力発電、火力原子力発電技術協会（平成 2 年 6 月）
 - （2） 火力原子力発電技術協会（編）：原子燃料サイクルと廃棄物処理、火力原子力発電技術協会（昭和 6 1 年）
 - （3） 三島良績（編著）：核燃料工学、同文書院（昭和 4 7 年）
 - （4） 河田東海夫、岸本洋一郎：プルトニウム燃料の開発、動燃技報、No.100, 159-182 (1996.12)
-

表1 混合転換技術開発段階における各種方式の評価

混合転換方式	特 徴	問 題 点
アンモニア共沈澱法	硝酸プルトニウム－硝酸ウラニル混合溶液に、アンモニアを加えて生成する沈降物をろ過乾燥、焙焼し、混合酸化物粉末にする。	廃液が多量に生産、沈殿物がろ過性に改善の余地、工程が長い。
流動床直接脱硝方式	硝酸プルトニウム－硝酸ウラニル混合溶液をノズルから高温ガス流中に噴霧し、直接酸化物粉末にする。	工業的技術に不安定要素が多い（運転開始時の条件設定が微妙、ノズル孔の閉塞等）
COPRECAL 法	アンモニア共沈澱法と流動床直接脱硝法の結合GEの技術、粉末特性良好。	工学的に未完成
マイクロ法加熱直接脱硝法	硝酸プルトニウム－硝酸ウラニル混合溶液を電子レンジ（マイクロ波加熱）で加熱、沈殿物を經ずして混合酸化物にする純国産技術（国内ならびに外国特許申請中）アンモニア共沈澱方式に比して、工程－操作が簡単、得られた粉末は焼結性極めて良好で、プルトニウムスポットも認められなかった。	金属不純物の精製はできない。
（参考） 蓚酸沈澱法	硝酸プルトニウム溶液に蓚酸を加えて、生成する沈殿物をろ過焙焼して酸化物粉末にする。在来転換技術	単体転換法であり、核不拡散上問題あり。

表2 混合転換法のプロセス比較

混合転換	溶液工程					転換工程			粉末工程		廃液処理	排ガス処理	その他
	溶液受入					マイクロ波加熱脱硝	焙焼	還元	粉碎	混合	酸回収	排ガス処理	不純物除去が問題
(直脱法) マイクロ波加熱法	溶液受入					マイクロ波加熱脱硝	焙焼	還元	粉碎	混合	酸回収	排ガス処理	不純物除去が問題
流動床法	溶液受入	蒸発濃縮				流動床仮焼		還元	粉碎	混合	酸回収	排ガス処理	加工性に操作が困難
(沈澱法) アンモニア共沈澱法	溶液受入	液調整	アンモニア添加	沈澱	ろ過	乾燥	焙焼	還元	粉碎	混合	凝集液処理	排ガス処理	不純物除去が問題
CE コ・プレカル法	溶液受入	液調整	アンモニア添加	沈澱		流動床仮焼		還元	粉碎	混合	凝集液処理	排ガス処理	不純物除去が問題
単体転換 (沈澱法) 砒酸沈澱法	溶液受入	液調整	砒酸添加	沈澱	ろ過	乾燥	焙焼		粉碎	混合	ろ過処理	排ガス処理	ろ液からPu回収が可

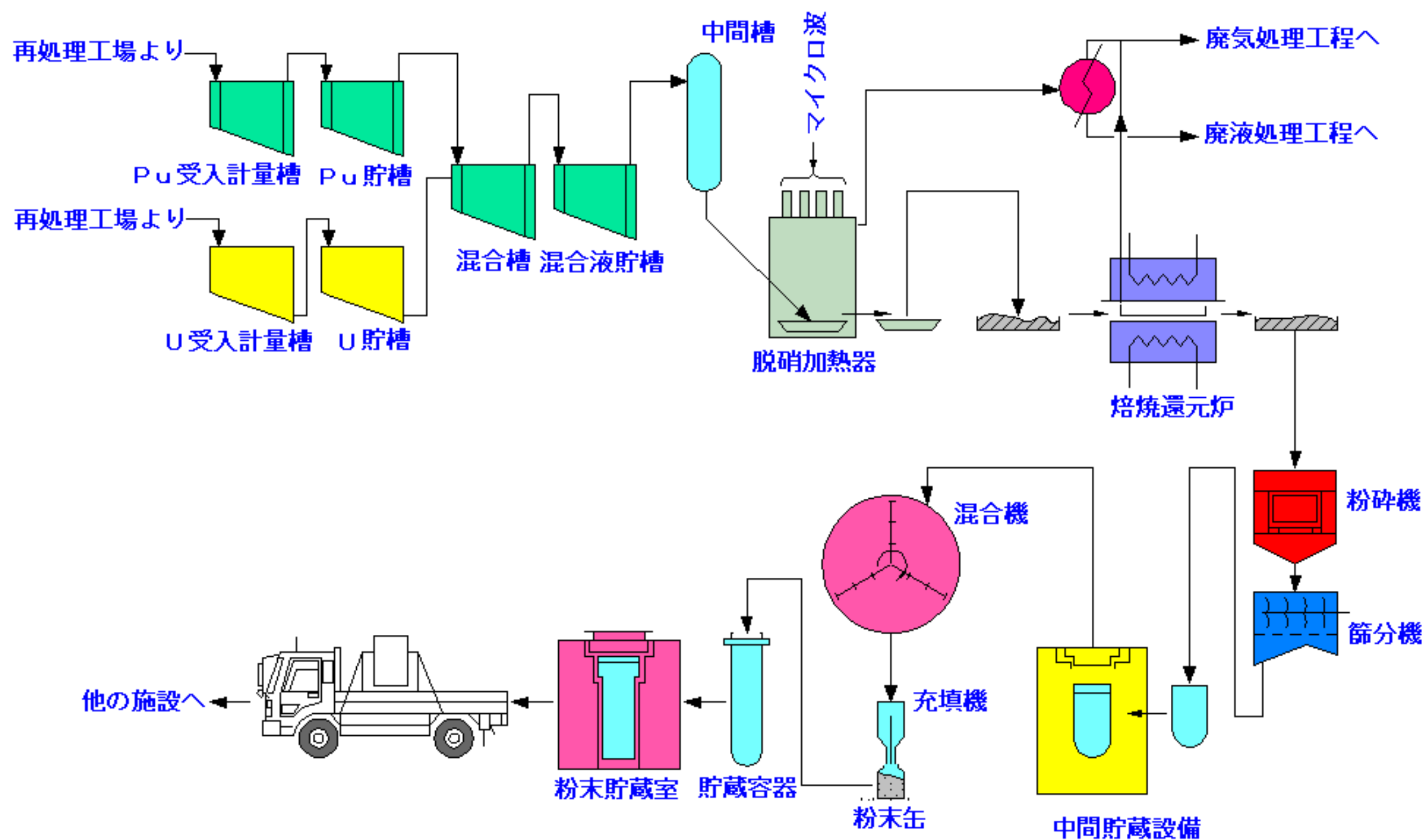


図 1 マイクロ波加熱直接脱硝法の代表的な工程