

# 原子燃料サイクル関連技術の開発

## Development of Nuclear Fuel Cycle Technology

日立製作所は主要なエネルギー源としての原子燃料の安定的供給の確立を図るため、原子燃料サイクル関連施設の高信頼化・大容量化、さらには高度化・高機能化を目指した技術の開発を進めてきた。再処理については、日本原燃サービス株式会社が、わが国初の商用再処理工場の建設を推進しており、そのためのプロセス性能の確証、大容量化に伴う高信頼性の確保などのほか、使用済み燃料から有効な資源を回収するための技術開発を進めている。また、ウラン濃縮については、電力会社を中心としたレーザー濃縮技術研究組合が設立され、その指導のもと、レーザを用いた次世代濃縮技術の開発を推進している。

以下、原子燃料サイクル技術に関する日立製作所の活動を中心に、開発技術の概要について述べる。

河原 暁\* Akira Kawahara  
杉本義和\* Yoshikazu Sugimoto  
池田孝志\*\* Takashi Ikeda  
柴田 悟\* Satoshi Shibata  
鈴木一道\*\*\* Kazumichi Suzuki  
幹 淳\*\*\*\* Atsushi Miki

### 1 緒 言

地球環境問題から原子力エネルギーの役割が増しており、原子燃料の安定確保・有効利用は、エネルギー資源の乏しいわが国にとって、ますますその重要性を高めている。原子燃料サイクルとは、採鉱されたウラン資源を軽水炉で燃料として利用できるように精練・濃縮・加工したり、また、使用済み燃料からATR(新型転換炉)やFBR(高速増殖炉)、および軽水炉の燃料として利用できるプルトニウムを回収し、加工するサイクルのことである。さらに、原子力施設から発生する廃棄物の貯蔵も含め燃料サイクル関連施設として、日本原燃産業株式会社の遠心法による商用濃縮プラント、および低レベル廃棄物貯蔵施設、ならびに日本原燃サービス株式会社の商用再処理工場の建設およびその計画が進められている。それとともに、原子燃料サイクル技術の高度化、次世代技術の開発なども進められている。

国および電力会社など各方面の指導を得て、日立製作所は総合技術力を結集して、その技術確立に努めているが、主として商用再処理工場に関連して開発した技術、将来を見据えた再処理高度化技術および次世代のウラン濃縮技術として注目されている原子法ウラン濃縮技術を重点に以下述べる。

### 2 使用済み燃料再処理技術の開発

#### 2.1 日立製作所での技術開発の経緯

日立製作所は昭和46年にオフガス処理設備の開発に着手し

て以来、再処理技術の開発に携わってきた。昭和56年には「排ガス中ヨウ素・NO<sub>x</sub>除去に関する研究」および「減圧蒸発装置確認調査」を日本原燃サービス株式会社から受託するとともに、昭和58年からは動力炉・核燃料開発事業団の東海再処理工場のための溶解槽補修技術の開発をはじめとする各種研究開発を受託して、本格的に再処理技術の開発に参画してきた<sup>1)~3)</sup>。昭和59年からは日本原燃サービス株式会社が建設計画を進めている六ヶ所再処理工場の設計を分担するとともに、分担設備にかかわる技術の確立に努めている。

また、将来の基盤技術として、電気化学的廃液処理技術、長寿命核種分離・群分離技術などの再処理高度化技術の研究開発に取り組んでいる。

以下に、六ヶ所再処理工場の信頼性向上を目的として実施してきた技術開発の概要と、基盤技術として開発中の高度化技術の開発状況について述べる。

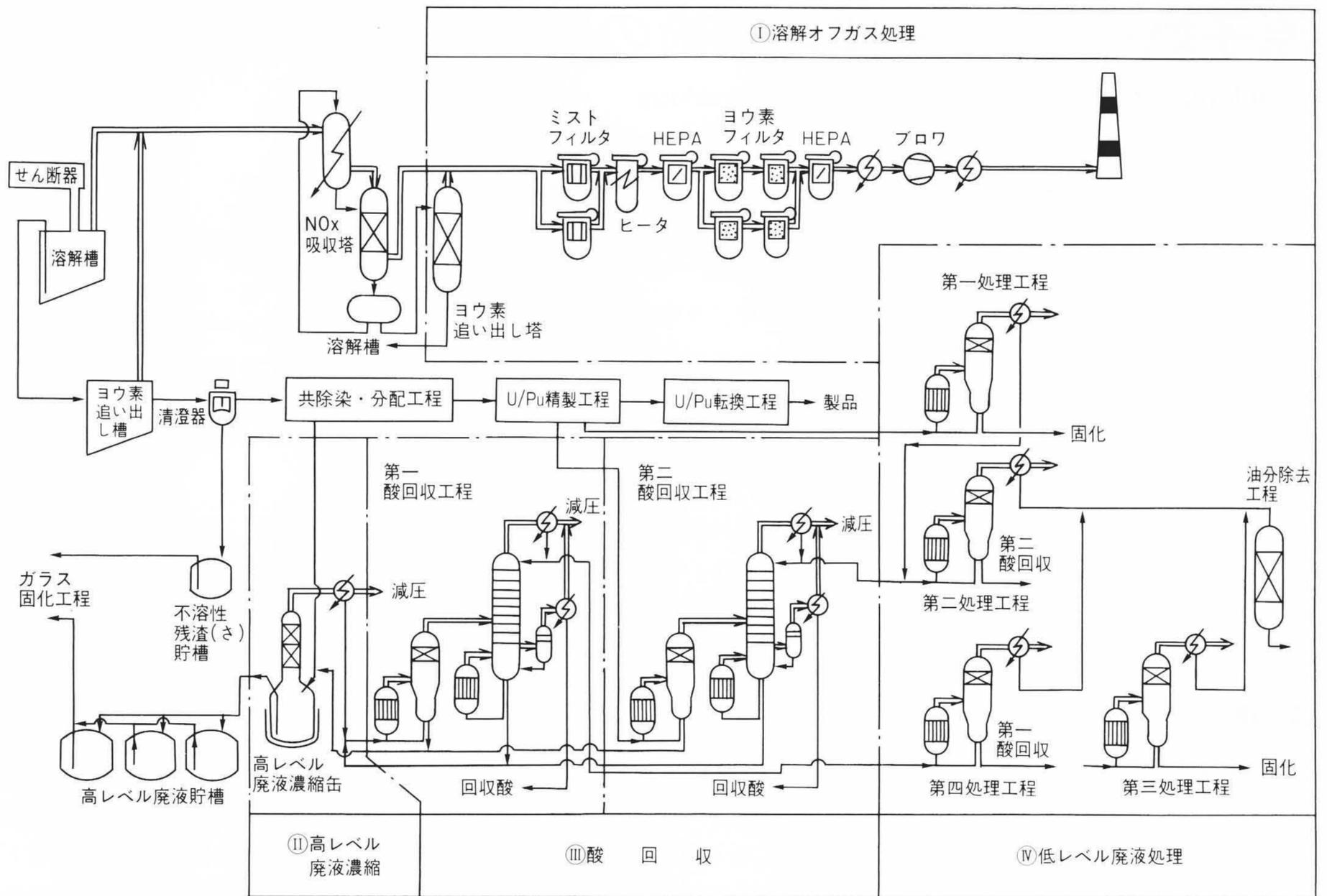
#### 2.2 高信頼性再処理技術

六ヶ所再処理工場での日立グループの分担設備は使用済み燃料貯蔵設備、せん断・溶解オフガス処理設備、高レベル廃液濃縮設備、酸回収設備、低レベル廃液処理設備などである。主施設を対象として、これまで日立グループが実施してきた技術開発項目を図1に示す。

##### (1) 減圧蒸発技術

高レベル廃液濃縮缶、酸回収蒸発缶および精留塔では、運

\* 日立製作所 日立工場 \*\* 日立製作所 エネルギー研究所 工学博士 \*\*\* 日立製作所 エネルギー研究所 理学博士  
\*\*\*\* 日立製作所 日立研究所



主要技術開発テーマ	
①	<ul style="list-style-type: none"> <li>● オフガス中ヨウ素・NOx除去</li> <li>● オフガス処理プロセス確証</li> <li>● ヨウ素共存系材料耐食性試験</li> <li>● ジルコニウム・ステンレス鋼異材継手開発</li> </ul>
②	<ul style="list-style-type: none"> <li>● 高レベル廃液濃縮プロセス確証</li> <li>● フルイディックポンプ性能確証</li> </ul>
③	<ul style="list-style-type: none"> <li>● 減圧酸回収プロセス確証</li> <li>● 核分裂生成物化学挙動研究</li> <li>● 硝酸系材料耐食性試験</li> </ul>
その他	<ul style="list-style-type: none"> <li>● 遠隔補修技術開発</li> <li>● セル点検装置開発</li> </ul>

注：略語説明 HEPA (高性能粒子フィルタ)

図1 高信頼性再処理設備のための主要技術開発テーマ 六ヶ所再処理工場での日立グループ分担設備の信頼性向上に向けて、各種の技術開発を進めている。

転温度を低くして材料の腐食しにくい環境を維持できる、イギリスで開発された減圧蒸発技術が採用されている。日立製作所は日揮株式会社とともに、日本原燃サービス株式会社から受託して実施した減圧酸回収装置(実機 $\frac{1}{4}$ 規模)による確証試験を通じて、減圧蒸発方式でのプロセスの特性および安定性の確認を行っている<sup>1)</sup>。また、図2に示すように、高レベル廃液濃縮缶および酸回収プロセスを模擬した $\frac{1}{200}$ 規模の実験設備を用いて、硝酸廃液濃縮プロセスでの核分裂生成物の影響の解明を行い<sup>2)</sup>、設備設計に反映している。

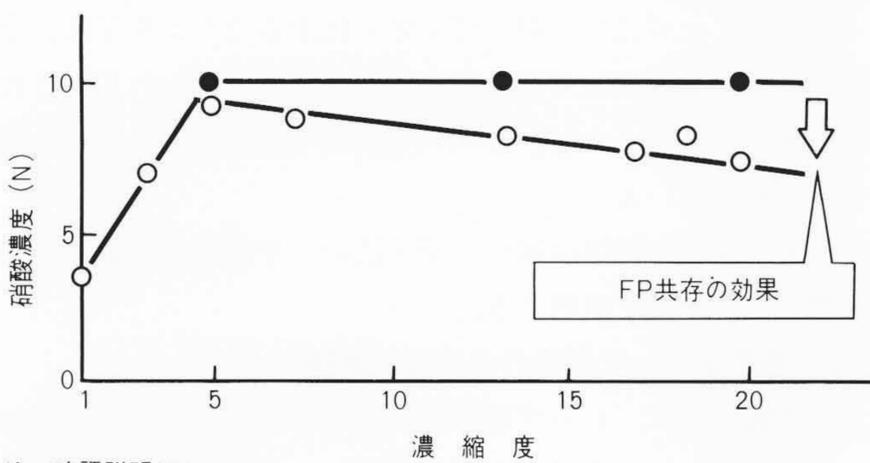
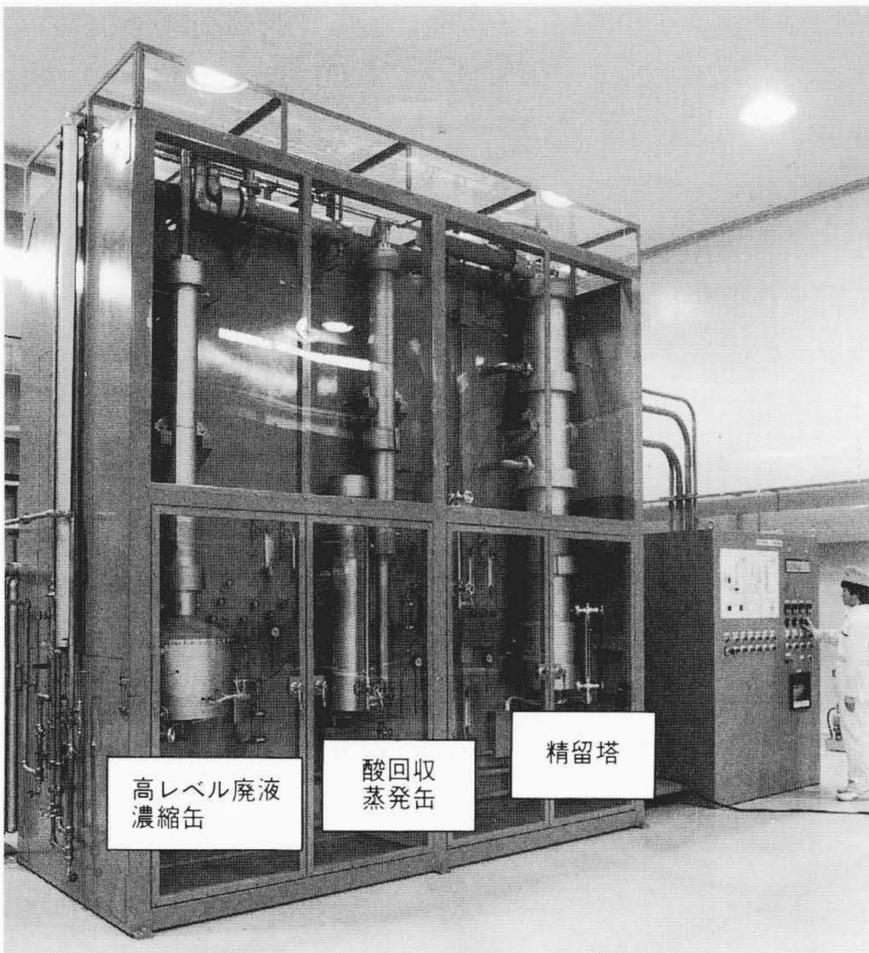
(2) オフガス処理技術

使用済み燃料のせん断・溶解時に発生するオフガスからの

ヨウ素除去には、除去効率が良く、廃棄物が少量で安定性が高い、ドイツで実績のある銀系吸着剤ヨウ素フィルタが採用されている。日立製作所は日本原燃サービス株式会社からの受託によって実施した、排ガス中ヨウ素・NOx除去に関する研究を通じて、銀添着ヨウ素吸着剤の性能を確認するとともに、実プラントに近い条件下でNOx吸収塔やヨウ素追い出し塔の性能確認試験を実施しており<sup>1)</sup>、設備設計の信頼性が確認されている。

(3) 保守・補修技術

東海再処理工場での溶解槽補修技術の開発を通じて、日立製作所は動力炉・核燃料開発事業団の指導のもとに、ペリス



注：略語説明ほか  
FP (核分裂生成物), ○(FPなし), ●(FP共存)

図2 硝酸廃液処理プロセスのシミュレーション解析コードを開発するとともに、高レベル廃液濃縮缶、酸回収蒸発缶および精留塔を含む $\frac{1}{200}$ 規模の実験装置を用い検証している。

コープ、研磨装置、溶接装置、液体浸透探傷試験装置、空中・水中兼用テレビジョンカメラ、超音波探傷試験装置から成る6種類の補修ロボットを開発した。この補修ロボットにより、高放射線下の溶解槽補修作業は成功裏に終了している<sup>3)</sup>。また、六ヶ所再処理工場の保守・補修技術についても検討を進めている。

### 2.3 再処理技術の高度化

六ヶ所再処理工場の信頼性向上のための技術開発を進める傍ら、日立製作所では、将来の基盤技術として再処理に伴って発生する廃棄物の処理方法の高度化研究を進めている。開発中の将来技術のうちから電気化学的廃液処理技術、長寿命核種分離・群分離技術について以下に述べる。

#### (1) 電気化学的廃液処理技術

低レベル廃液の処理には、蒸発方式が一般に使用されてい

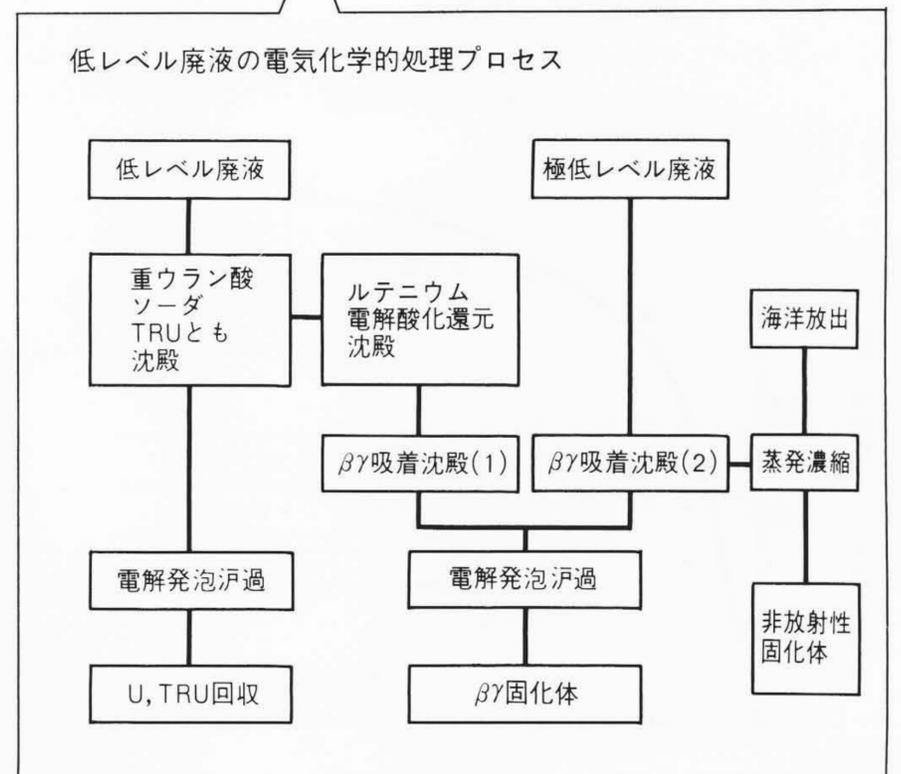
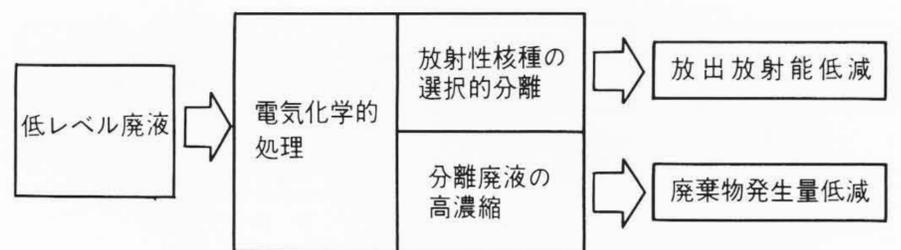
るが、日立製作所は、図3に示す電気化学的処理についても開発中である<sup>4)</sup>。同図中に示すプロセスフロー図のように、この方法は沈殿、滲過などの化学プロセスと電子の化学的作用を効率よく利用しようとするものである。

現在、各コンポーネント技術の確証を実施しているが、今後プロセス全体として試験を行い技術の確立を図る予定である。

#### (2) 長寿命核種分離・群分離技術

再処理で発生する高レベル廃液には、半減期が非常に長い長寿命核種、白金族元素(ルテニウム、ロジウム等)や、ラジオアイソトープとして活用できる核種(セシウム、ストロンチウム等)などの有用元素が含まれている。このような核種を選択的に群分離し、それぞれの特徴に応じて処分や有効利用を行えば、高レベル廃棄物の処分の効率化や有用元素の資源化が期待できる。

TRU(超ウラン元素)の中でも特に長寿命(半減期約200万年)のネプツニウム( $^{237}\text{Np}$ )は、溶液中で四価[Np(IV)], 五価[Np(V)], 六価[Np(VI)]の酸化数状態をとり、複雑な挙動を示すことが知られている。これら3種類の酸化数状態のうち比較的安定な五価のNpは錯形成をしにくく、他の核分裂生



注：略語説明 βγ(β核種およびγ核種), TRU(超ウラン元素)

図3 電気化学的廃液処理方法の概念図 電気化学的廃液処理方法とは、凝集沈殿によって放射性物質を選択的に分離した後、蒸発処理することによって放出放射能の低減と二次廃棄物発生量の低減を図るのである。

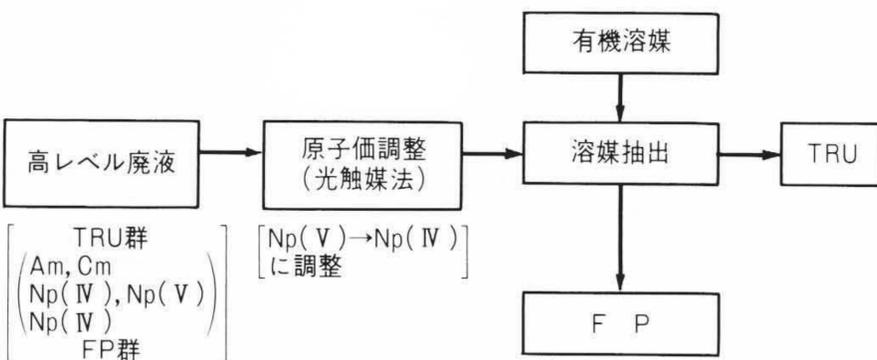
成物から分離しにくい原子価状態である。そこで五価のNpを分離しやすい四価あるいは六価のNpに酸化還元するため、新しい方法として光触媒(白金を担持した炭化ケイ素)を用いた光化学的方法を開発している。この方法の概要および原子価調整の原理と試験結果をまとめて図4に示す<sup>5)</sup>。本方法の利点は分離に伴う二次廃棄物発生量を低減できることにあり、現在までにNpの基礎的な酸化還元挙動の確認を行った。今後、工学システムの開発を行う予定である。

### 3 原子法レーザー濃縮基盤技術の開発

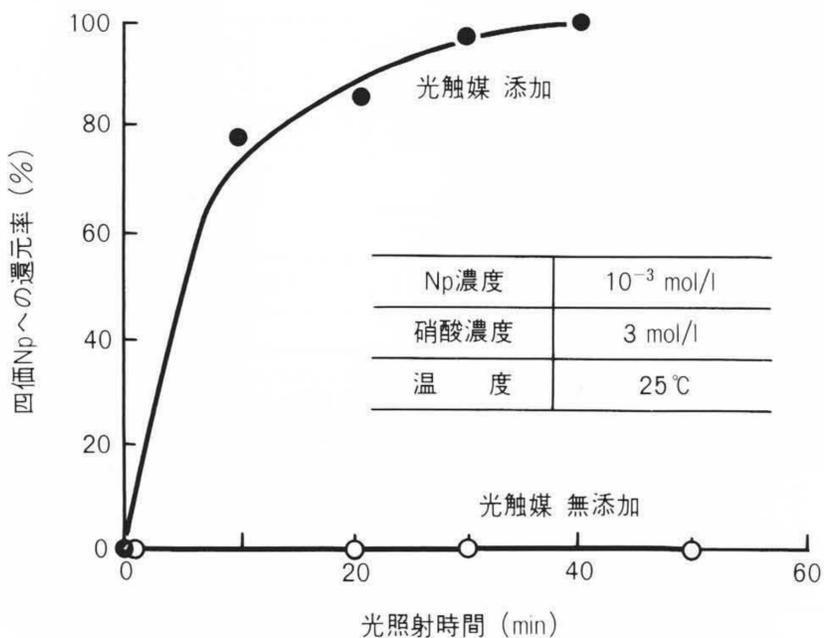
#### 3.1 原子法レーザー濃縮の概要

米国や欧州各国では、濃縮ウラン市場でのシェア拡大を図るため、より低コストで生産可能な新技術開発を推進している。

わが国では、現在建設中の遠心分離法を引き継ぐ次世代の濃縮法として原子法レーザー濃縮法<sup>6)</sup>、分子法レーザー濃縮法<sup>7)</sup>、化学法<sup>8)</sup>および改良型遠心分離法の4方法が開発推進されている。本稿では、日立製作所が現在取り組んでいる研究の中で



(a) 分離プロセスの概要



(b) Np原子価調整の原理および試験結果

図4 ネプツニウム分離方法の概要と試験結果 光触媒を用いた光化学的方法により、原子価状態を変化させ、ネプツニウムを効率よく分離できるようにする。

特に原子法レーザー濃縮技術開発について概要を述べる。この方法は、電力会社を主体としたレーザー濃縮技術研究組合で開発が進められている。

原子法レーザー濃縮の原理および概略構成を図5に示す。原子のエネルギーレベルは、同じ元素でも原子核の質量の異なる同位体間では幾分異なっている。そこで、例えば原子状のウランの蒸気に<sup>235</sup>Uの共鳴吸収波長の光を照射すると、<sup>235</sup>Uだけが励起される。このような吸収波長の同位体シフトを利用して、原子状の<sup>235</sup>Uを選択的に励起し電離回収するのが原子法レーザー濃縮である<sup>9)</sup>。

ウラン原子を基底状態からイオン化するまでの電離エネルギーは図5に示すとおり約6 eVであるが、2 eV程度の3種の可視光を同時に照射することで、選択的にイオン化する方法が最も効率がよいと考えられ、この方法の開発が中心となっている。

この方法に使う銅蒸気レーザーの発振光自身は、<sup>235</sup>Uが共鳴吸収する波長に比べ若干ずれているため、波長の変換が必要である。この変換のために銅蒸気レーザー励起の色素レーザーを使う。

一方、レーザー光を照射してイオン化するウラン原子は、金属ウランを高温にして発生する蒸気によって得られる。この蒸気発生部とイオン化した<sup>235</sup>Uを回収する機構を合わせて分離セルと称している。

以上の原理や特徴に基づく原子法レーザー濃縮の主要な技術課題について次に説明する。

#### 3.2 原子法レーザー濃縮の主要技術課題

日立製作所は、レーザー濃縮法に適用するレーザーシステムおよび分離セルの各要素を含めた開発と、これらを組み合わせたレーザー濃縮プロセス技術の開発を推進している。

##### (1) レーザーシステム

レーザーシステムを大きく分類すると、銅蒸気システム、色素レーザーシステムおよび光合成システムの3グループに分類

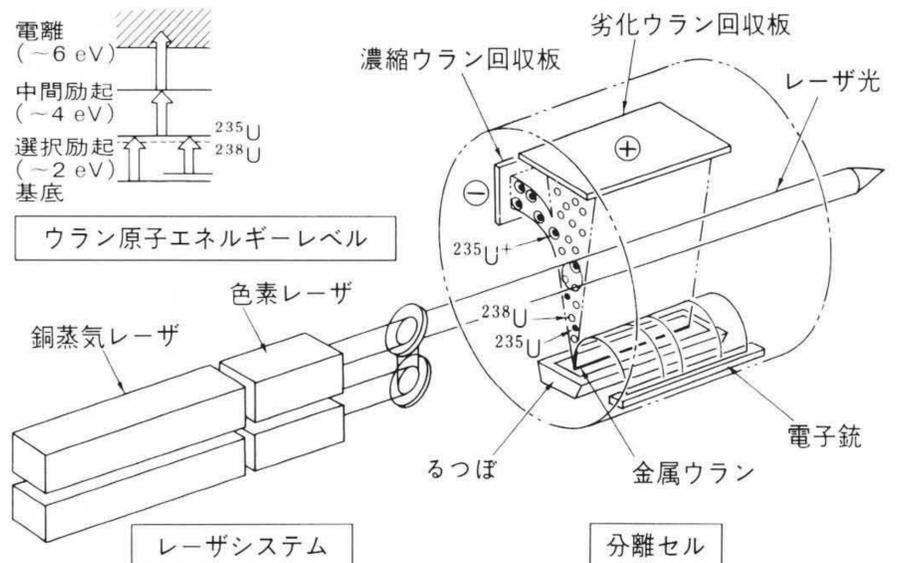


図5 原子法レーザー濃縮の原理および概略構成 るつぼから蒸発したウラン原子に<sup>235</sup>Uの吸収波長に同調させた色素レーザー光を照射し、<sup>235</sup>Uだけを電離し回収する。

される。

(a) 銅蒸気レーザシステム

銅蒸気レーザの概略構造を図6に示す。銅蒸気レーザは銅蒸気をレーザ媒体とし、極短パルス放電で銅蒸気を励起して発振するレーザである。放電管はセラミックで大気圧の約 $\frac{1}{30}$ 程度のネオンガスを充てんして約1,500℃に保持される。このレーザ開発の技術課題として(i)超高速のパルス立上りと高繰返し技術確立、(ii)放電管軸方向温度の均一分布化、(iii)放電管内不純物ガスの低減、の三つが考えられる。

日立製作所ではこれら技術課題に対し、レーザ濃縮に必要とされる目標値を満足する銅蒸気レーザを開発したが、その成果の一例であるレーザビーム分布についての計測結果を図7に示す<sup>10)</sup>。

(b) 色素レーザシステム

色素レーザはアルコール中に溶かされたローダミン6Gなど有機色素を循環し、色素分子に横方向から銅蒸気レーザ光を照射することにより、励起し発振される。有機色素は連続スペクトルを持っているため、連続的に変調できる。この色素レーザの技術課題は、(i)波長の高精度技術および(ii)色素の長寿命化、が考えられる。

日立製作所は、現在これらの技術課題に対してほぼ開発の見通しを得ているが、実用に供するために構造の単純化、安定化の開発を進めている<sup>7)</sup>。

(c) 光合成システム

これは、色素レーザシステムから変調発振された4種の波長の異なるレーザ光を1本のビームに合成するもので、技術課題はひとえに光を合成するときの減衰率の低減である。

これには、環境の清浄度や光学素子の反射または透過損失低減のための品質向上、および光学素子数の低減がポイントである。

(2) 分離セル

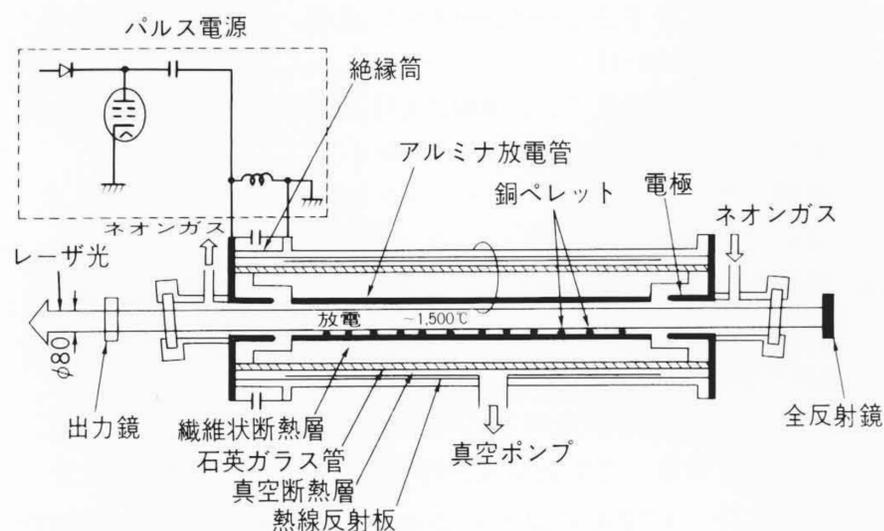


図6 銅蒸気レーザの構造 銅蒸気レーザは~1,500℃の高温で銅を蒸発させ、その銅蒸気を放電で励起し、レーザ発振させる高出力のパルスレーザである。

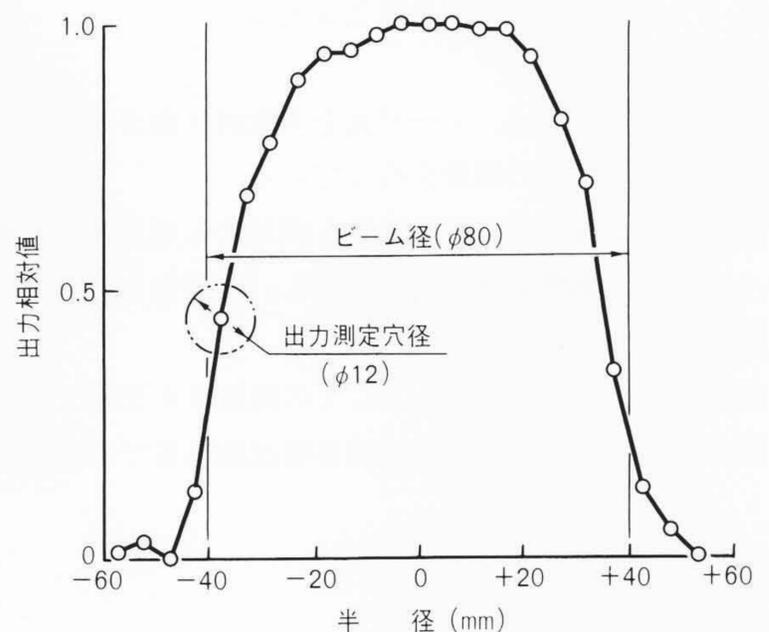


図7 100 W級銅蒸気レーザのビーム強度分布 銅蒸気レーザの出力増大のため大径化を図る場合、最も難しい技術は放電の空間的均一化と発振効率低下を防ぐことでもあり、この技術はほぼ確立された。

分離セルの概略構成は図5に示すとおりである。開発課題要素としては、(a)電子銃、(b)るつぼ、(c)濃縮・劣化ウラン回収板および(d)多重反射光学系が考えられる。

(a) 電子銃

電子銃は図5に示したとおり長尺線状カソードから電子ビームを射出し、帯状にウラン蒸気を噴出させるための加熱源である。

電子銃開発の技術的課題は、(i)ウラン照射面でのビーム幅狭帯化と長手方向のビーム強度均一化、(ii)電極の熱変形防止および(iii)高電圧によるアーキング防止対策、が考えられる。

これに対し日立製作所では、電子放出能力の高い含侵カソードを開発し熱変形を抑え、ビーム精度向上および大型化が可能となった。

(b) るつぼ

るつぼの技術課題としては、(i)耐ウラン性向上および(ii)熱効率向上、が最も重要な課題である。

日立製作所では、るつぼの熱効率向上に必要なるつぼ内の複雑な固液共存の自由境界面を持つ液体流動解析コードを開発し、これをスーパーコンピュータ上でるつぼ形状の最適化および蒸発挙動の解析評価を行い構造判定<sup>11)</sup>している。この解析結果の一例を図8に示す。

(c) 濃縮・劣化ウラン回収板

濃縮ウラン回収板は、レーザが照射されてイオン化した<sup>235</sup>Uを電場で吸収し回収するもので、劣化ウラン回収板はイオン化されない<sup>238</sup>Uを回収するものである。

日立製作所では、これら回収板の開発に必要な高真空中への高温蒸気の噴流、およびレーザ光を照射してイオン化した蒸気プラズマ挙動の大規模解析コードを開発し、スーパーコンピュータ上で各種状態の挙動特性評価を行い、こ

れにより回収板の設計が可能となった。

(d) 多重反射光学系

多重反射光学系は、レーザ光を多数回往復させウラン蒸気を照射するための機能を持っている。

日立製作所は、これらの特性を満足する超高精度自動アライメント光学システムを開発し、実用化している。

(3) 濃縮プロセス技術

日立製作所では、システムとしての問題点を把握するために、**図9**に示す小型の同位体分離基礎試験装置での試験、お

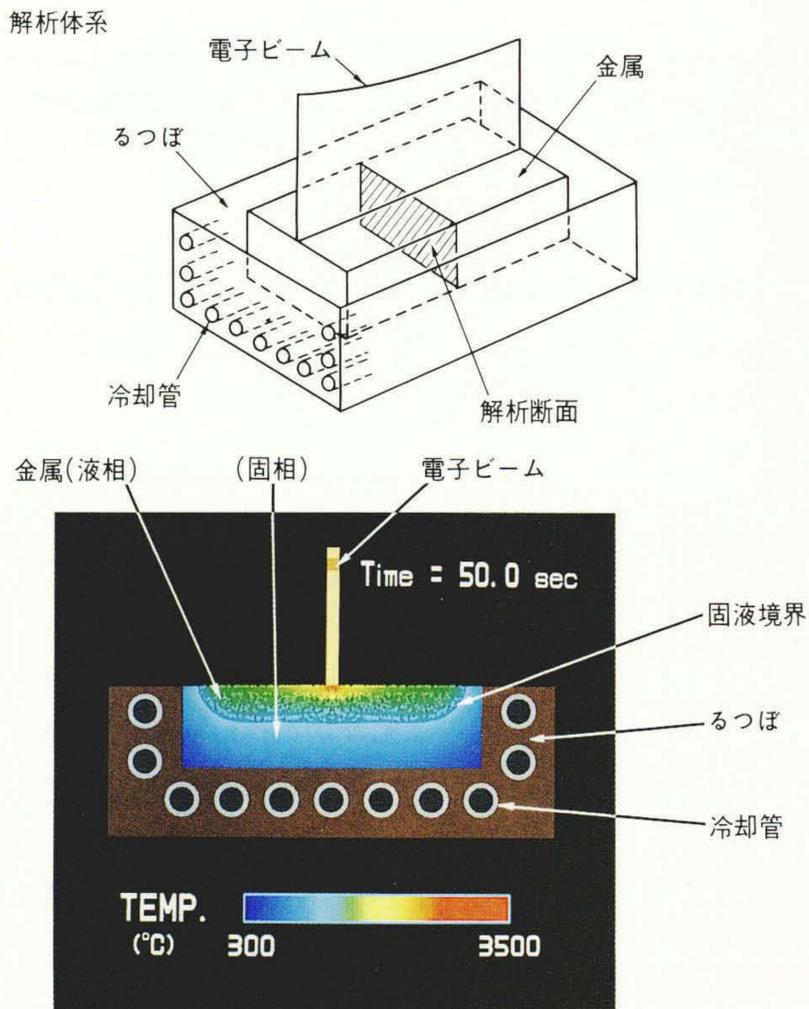


図8 金属熔融時の温度分布解析結果 水冷銅るつぼ内に固体金属を入れ、その上面中心から入熱した場合の熔融金属内の対流、温度分布および固体と液体の境界面状態時間変化を解析した一例を示す。

よび解析評価を進めている。主な成果としては、電離断面積が大きく同位体分離に適する3段階分離スキームを選定するとともに、濃縮度3wt%以上のウランの回収を達成している。また、レーザ光とウラン原子の反応を量子力学的な取り扱いで評価し、レーザ光強度比<sup>12)</sup>の最適化を検討している。

4 結 言

原子燃料サイクル技術のうち、特に、原子法レーザウラン濃縮、再処理技術を重点に、日立製作所での最近の開発技術の概要について述べたが、その他放射性廃棄物の減害・固化技術や分子法レーザ濃縮技術の開発なども進めている。今後のエネルギー事情を考えると、わが国にとって原子燃料サイクル分野の技術開発は、ますますその重要性を増している。日立製作所は、今後とも総合技術力を結集し、原子燃料サイクル関連技術の開発に積極的に取り組む考えである。引き続き国および電力会社など、各方面のご指導をお願いしたい。

参考文献

- 1) 加藤, 外: 原子燃料再処理プロセス技術の開発, 日立評論, **68**, 6, 479~484(昭61-6)
- 2) 下里, 外: 原子燃料サイクル関連技術の開発, 日立評論, **70**, 4, 433~440(昭63-4)
- 3) 河原, 外: 原子燃料再処理工場遠隔保守技術の開発, 日立評論, **69**, 4, 337~340(昭61-4)
- 4) 広瀬, 外: 電気化学的廃液処理技術の開発, 日本原子力学会「1989年会」L45
- 5) 高橋, 外: ネプツニウム(V)還元実験, 日本原子力学会「1990年会」L45
- 6) 西川: レーザ法を中心としたウラン濃縮の動き, 季報エネルギー総合工学, Vol.8, No.4, p.14~26(1986-1)
- 7) 田代, 外: 分子法レーザーウラン濃縮, 応用物理, **58**, 2, 243~248(1989-11)
- 8) 渡辺, 外: 化学法ウラン濃縮における濃縮工場の概念設計, 日本原子力学会1990年会, 104(1990-4)
- 9) 森岡, 外: 原子法レーザーウラン濃縮, 応用物理, **58**, 2, 249~257(1989-11)
- 10) 菅原, 外: Development of A 100 W Copper Vapor Laser, Proceedings of the International Conference on Lasers '89, 354~358(1989-12)
- 11) 山本, 外: 金属蒸発用るつぼ内の熱流動評価(I), (II), 1990年日本原子力学会年次要旨集E-29, 247~248(1990-3)
- 12) 土田, 外: Amplification of Ring Dye Laser at High Repetition Rate by Copper Vapour Laser, The XVI International Conference on the Physics of Electronic and Atomic Collisions(1989-7)

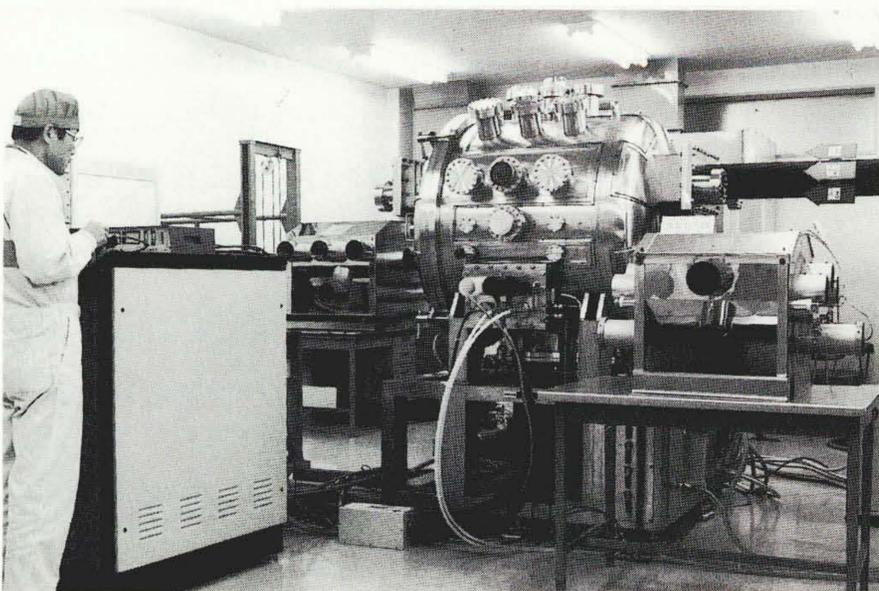


図9 同位体分離基礎試験装置 ウラン同位体分離プロセスを検討するために、比較的小型で主要な物理特性を把握している。