

6-7 高速炉燃料再処理

1. はじめに

高速炉燃料は軽水炉燃料と比較して、(1)ラップ管やラッピングワイヤを有する等構造が大きく異なる、(2)Puの含有率が高い、(3)燃焼度が高いため核分裂生成物の含有率が高い、等の特徴がある。このため高速炉燃料再処理では、(1)ラップ管除去工程（解体工程）が必要である、(2)各工程機器に対して臨界安全上の制約が厳しくなる、(3)溶媒の放射線劣化、不溶解残渣の増大、比放射能の上昇等が生じるためそれらに対応した溶解、清澄、抽出等各工程の高性能化が必要となる、等の特有の技術課題がある。

本稿ではピューレックス法に基づいた湿式法による高速炉燃料の再処理技術について、開発・処理実績を有する諸外国（米国、フランス、英国、ドイツ、ロシア、インド）の状況を簡単に紹介するとともに、わが国における技術開発の経緯及び主要工程の概要を説明する。

2. 海外における高速炉燃料再処理技術開発の状況¹⁻³⁾

2.1 米国

米国における高速炉燃料再処理の技術開発は、オークリッジ国立研究所（ORNL）を中心に1960年代より高速炉開発と呼応して進められた。1977年のカーター政権下での政策変更による高速原型炉CRBR（Crich River Breeder Reactor）の建設中止の影響を受けて、同炉の使用済燃料を対象とした工学試験施設（BRET: Breeder Reprocessing Engineering Test Facility）の建設が無期延期となる等、技術開発計画が大幅に見直された後も、ORNLでは統合再処理開発計画（Consolidated Fuel Reprocessing Program）のもとに新型機器の技術開発が行われた。後述するように、これらの成果は1987～1994年にかけてのORNL-動力炉・核燃料開発事業団（動燃、現日本原子力研究開発機構）間の技術協力において日本に技術移転された。2001年5月にブッシュ政権によって発表された新国家エネルギー政策を受け、高速炉と先進的核燃料サイクルの開発を含む先進的核燃料サイクルイニシアティブ（AFCI: Advanced Fuel Cycle Initiative）、さらには国際原子力エネルギーパートナーシップ（GNEP: Global Nuclear Energy Partnership）構想が打ち出された。この中で再処理技術については、ピューレックス法に比べ、核不拡散性を高めるとともにマイナーアクチニド（MA）をエネルギー源として利用することを狙ったUREX+法の研究開発が進められるとともに、高速炉の使用済燃料再処理とMAを燃焼するための燃料を製造する先進的燃料サイクル施設であるAFCF（Advanced Fuel Cycle Facility）の建設が計画された。しかし、2009年のオバマ政権への移行

以来、これらの技術開発計画は大幅に縮小し、長期的な観点からの幅広い燃料サイクル研究へと変更され、現在に至っている。

2.2 フランス

フランスでは、1960年にフランス原子力庁（CEA）が高速炉燃料の再処理研究に着手し、1968年にフォントネ・オ・ローズ研究所において高速実験炉ラプソディの使用済燃料を用いた再処理試験が実施されて以降、ラ・アージュのAT1施設（1969-79、現在、廃止措置完了）及びUP2再処理施設（1979-84）、さらにはマルクールのAPM施設（1974-97、現在、廃止措置中）において、高速原型炉フェニックスの使用済燃料を中心に総計約30トンの燃料を用いた再処理試験が実施された。1980年代には高速実証炉スーパーフェニックス等の使用済燃料を再処理するためのMAR-600と呼ばれる再処理プラント（処理能力50t/y）が計画されたが、その後中止された。1991年には放射性廃棄物管理研究法が制定され、これを受けてマルクールのATALANTE施設において長寿命放射性核種の分離変換を含む種々のバックエンド研究が開始された。これらの研究成果をもとに、2006年には放射性廃棄物等管理計画法が公布され、技術実証のための核燃料サイクル研究施設及びプロトタイプ炉の2020年の運転開始を目指したASTRID計画が策定されている。ATALANTE施設では、これまでにDIAMEX-SANEX法によるMA回収技術やGANEX法によるU/Pu/MAの一括回収技術等が開発され、現在も研究が継続されている。また、ラ・アージュの再処理施設においては、高速炉等の使用済燃料の前処理（解体・せん断、溶解）に特化した施設であるTCP（Polyvalent fuel treatment facility）の併設が計画されている。本施設については、2023年の運転再開を目指して、現在詳細設計が進められており、処理量を確保する観点から機械式解体方法が、また溶解性能を確保する観点から2ステップの溶解方法（バッチ式）が採用される予定である。

2.3 英国

英国では、1960年代から英国原子力公社（UKAEA）のドンレイ研究所において、高速実験炉DFR（Dounreay Fast Reactor）の使用済燃料再処理施設が稼働し、1975年までに約10tの炉心燃料及び約22トンのブランケット燃料が処理された。同施設はその後、高速原型炉PFR（Prototype Fast Reactor）の使用済燃料再処理施設として改造され、1996年に運転を停止するまでの間、約25トンの燃料を処理した。本施設では、レーザーによるラップ管の切断技

術や遠心清澄機、遠心抽出器等の機器がいち早く導入された。これらの経験や技術開発成果をもとに、1980年代にはヨーロッパ各国の高速炉の使用済燃料を再処理するための再処理実証施設EDRP（European Demonstration Reprocessing Plant）が計画されたが、北海油田の開発によりエネルギー資源問題への懸念が薄れたこと等から、1992年には国として高速炉開発を行わないことが決定され、同計画も中止された。

2.4 ドイツ（旧西ドイツ）

旧西ドイツでは、1974年からカールスルーエ原子核センター（KfK）内のホット試験施設MILLIにおいて、ラプソディ、DFR等で照射した高速炉燃料の再処理試験が行われ、燃料の溶解性や抽出フローシートに関する研究が進められた。この他、同センター内の電気化学プロセス研究施設PUTEや小型パルスカラム試験施設MINKAでは、電解還元型のみキサセトラやパルスカラム、電解酸化槽等の各種電解装置が開発された。これらの装置の一部はカールスルーエ再処理工場（WAK）において再処理試験に供されたが、1991年には高速炉開発の中止が決定された。

2.5 ロシア

ロシアでは、旧ソ連時代より閉サイクルを基本とした核燃料サイクル政策がとられており、現在もこれを踏襲している。これまでに、1976年に操業を開始した再処理施設RT-1において高速炉BN-350及びBN-600より発生した使用済燃料の再処理が行われている。2009年にはロシア連邦プログラム（FTP: Federal target program for development of new nuclear technologies）が策定され、2020年までに多目的高速試験炉MBIRや高速炉燃料サイクル技術の実証が可能な試験施設を建設し、これらの施設より得られる研究開発成果を踏まえて、2030年代には大規模再処理工場の操業を開始することが計画されている。実証対象となる再処理技術としては、熱脱被覆法による前処理やPu/NpをUの一部と共回収する簡素化ピューレックス（Simplified PUREX）法による溶媒抽出等が考えられている。

2.6 インド

インドでは、2003年にインディラガンジー原子力研究センター（IGCAR）に高速炉使用済燃料再処理のパイロットプラントCORALが建設され、同センター内の高速実験炉FBTRの使用済燃料を用いた試験が実施されている。この成果をもとに、2014年中に運転開始が予定されている高速原型炉PFBRの使用済燃料を対象とした再処理実証プラントDFRPの建設が進められている。DFRPでは、CORALにおいて開発・実証されたレーザーを用いた解体技術や、電解法を組み合わせたバッチ式燃料溶解槽、さ

らには遠心清澄機及び遠心抽出器等が導入される予定である。PFBRと併設し、燃料製造・再処理・廃棄物管理を行う統合型の実用高速炉燃料サイクル施設（FRFCF）の建設も進められている。本施設はPFBR2基をさらに増設した場合にも将来拡張できるように計画されている。

3. わが国における高速炉燃料再処理技術開発の状況^{4,5)}

3.1 開発経緯

わが国においては、1975年に原子力委員会が策定した「動力炉・核燃料開発事業団の動力炉開発業務に関する第2次基本計画」に高速炉燃料再処理技術の研究業務が追加されたことを受け、動燃が本格的に高速炉燃料再処理技術の開発に着手することになった。再処理方式については、当時既に軽水炉燃料再処理で実績のあった湿式法（ピューレックス法）と乾式法を主体とした他の方法を比較した結果、短期的に実用化するために湿式法を改良することが有利であると判断し、前述の高速炉燃料特有の課題を中心とした技術開発を進めることとした。このため、実験室規模のホット試験施設である高レベル放射性物質研究施設（CPF）や、工学規模のコールド又はウラン試験施設（応用試験棟、第2応用試験棟、実規模開発試験室）を順次建設し、開発を進めた。

1982年に原子力開発利用長期計画（長計）が改訂され、高速炉燃料再処理技術の確立とパイロット規模の再処理試験施設の計画推進が新たに盛り込まれたことに伴い、1990年代初めの運転開始を目指してもんじゅ等の使用済燃料処理を行う高速炉燃料再処理試験施設（パイロットプラント）の設計も進めた。1984年9月には、CPFで回収したPuで再加工した燃料が常陽に再装荷され、小規模ながら高速炉における核燃料サイクルの輪が完成した。

1986年に入り、世界的な高速炉開発停滞の煽りを受け、高速炉燃料再処理パイロットプラント計画の変更も余儀なくされ、1988年に改訂された長計では2000年過ぎに運転開始とされた。しかし、パイロットプラントの建設前のステップとして、経済性・信頼性のある高速炉使用済燃料再処理技術を確立していくためには、要素技術の開発とともに、システムとしての最適化を図ることが重要視され、プロセス・エンジニアリングの確立を図り、再処理技術の基盤の強化を図るために、工学規模のホット試験施設（後のリサイクル機器試験施設（RETF））を建設する計画が同長計で新たに盛り込まれた。このため、技術開発の重点をRETFでのホット試験のための新型プロセス・機器に移すとともに、もんじゅ等の実際の使用済燃料集合体を用いて工学規模のホット試験を行うRETFの設計を進めた。また、前述のORNL-動燃間の技術協力を通して、レーザー解体機、連続溶解槽、遠心抽出器、大型セルによる遠隔保守等の概念を明らかにした。これらの成果をRETFの設計に反映し、1992年1月に東海再処理施設の試験施設として設置する安全審査を開始

し、1995年には建設工事に着手したものの、同年のもんじゅ事故を契機に徐々に計画が遅れ、1997年のアスファルト固化処理施設の事故を受けて動燃全体の事業展開を見直すこととなった。その結果、2000年の第一期工事終了をもって、工事を中断させることとなった。

1994年に改訂された長計では、環境負荷低減、核不拡散性への配慮等将来の社会の多様なニーズに対応できる技術の可能性を追求し、その選択の幅を広げていくことが重要視され、窒化物燃料、金属燃料等の新型燃料の選択やアクチノイドのリサイクルを行う先進的な核燃料リサイクル技術の研究開発に取り組むことが新たに盛り込まれた。これを受け、U/Pu/Npを共抽出する単サイクル抽出工程や経済性向上に寄与できる可能性のある晶析法の開発を開始した。1999年度には、前年に動燃より改組された核燃料サイクル開発機構と電気事業者によるFBRサイクル実用化戦略調査研究（FS）フェーズ1が開始された。国内外から応募があった計27の再処理技術から10候補を絞り設計を行い、予め定めた設計要求に従って技術の比較を行った。その結果、主に経済性の観点から「晶析＋簡素化溶媒抽出法」（先進湿式法）の検討を深めることとした。2001年度からはFSフェーズ2を開始し、先進湿式法におけるMA回収プロセスとして抽出クロマトグラフィを選定し、評価を進めた。2005年度にフェーズ2が終了した後、文部科学省の「科学技術・学術審議会研究計画・評価分科会 原子力分野の研究開発に関する委員会」の審議を経て、炉、燃料及び再処理のシステムとしての観点から最終的にナトリウム炉－先進湿式法再処理－簡素化ペレット法燃料製造の組合せを主概念として選定した。

2006年度からは日本原子力研究開発機構と日本原子力発電（株）の協力のもと、上記主概念を中心に実用化に集中した研究開発を進め、2010年度に革新技術の採否を判断し、2015年度に性能目標を達成できるFBRサイクルの実証施設と実用施設の概念設計及び実用化に至るまでの研究開発計画を提示することを目標としたFBRサイクル実用化研究開発（FaCTプロジェクト）が開始された。2010年度までのフェーズ1では、先進湿式法については構成する6つの革新技術を対象に開発を進め、解体・せん断技術、高効率溶解技術及びU/Pu/Np一括回収技術の3技術については採用可能と判断するとともに、晶析技術、抽出クロマトグラフィによるMA回収技術及び廃棄物低減化（廃液二極化）技術の3技術については検討継続とした。

これらの結果について経済産業省の「FaCTプロジェクト評価委員会」の評価を受けた後、2011年度からフェーズ2へ移行する予定であったが、東日本大震災後、同委員会の開催は中断され、現在に至っている

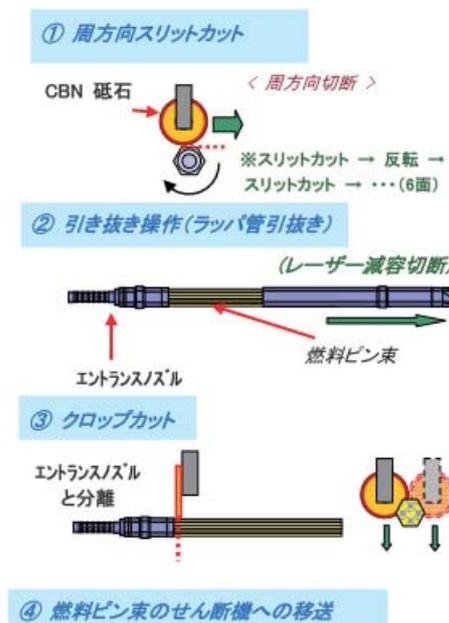
3.2 主要工程の概要

(1) 解体・せん断技術

高速炉燃料では、燃料ピンがラップ管と呼ばれる六角

形のステンレス管の中に収められていることから、再処理においては燃料集合体からラップ管を除去する解体技術が必要となる。開発当初、鋸刃等で切断する機械的方法を選定し、評価を進めた。しかし、刃の損耗が激しく、技術開発対象をレーザー法に切り替えた。米国との共同研究により炭酸ガスレーザーを用いた解体方法について試験を行い、切断自体は順調に実施できることが分かった。しかし、ラップ管切断時にその直下にある燃料ピンまで損傷すること、レーザー発振部から切断箇所までの伝送系の遠隔調整が困難であること等の課題が明確となり、後者の課題についてはレーザーをYAGに変更することにより解決を図ったが、前者の課題については現状のレーザー制御技術ではピン損傷の防止が難しいと判断した。一方、機械的方法については新たに利用可能となった耐久性に優れた刃や砥石を用いた切断性能把握試験等により、解体手順を具体化（第1図）及び評価し、技術的成立性を確認した。

燃料ピン束のせん断技術については、特に先進湿式法では、後工程の高効率溶解への対応を考慮した短尺でのせん断による燃料粉化率の上昇が要求されるが、軽水炉燃料再処理で実績のある水平せん断方式の適用が可能である。



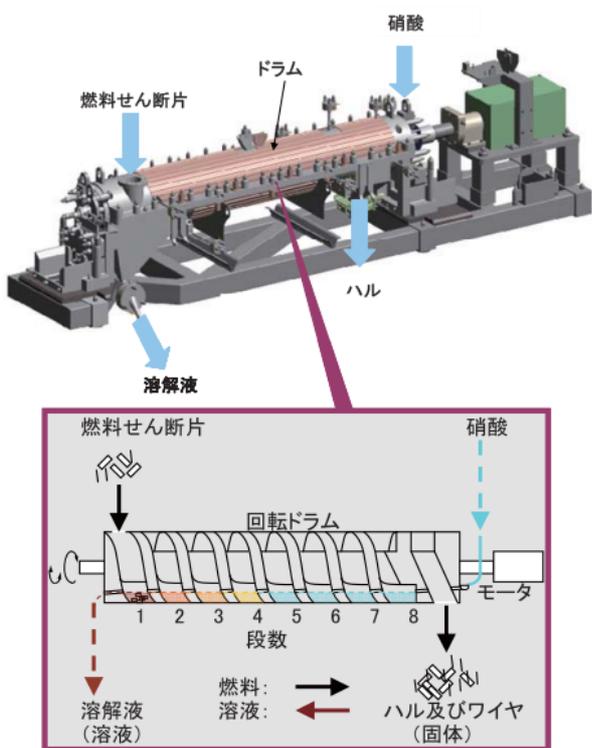
第1図 機械式解体技術の概念図

(2) 溶解・清澄技術

高速炉の使用済燃料は、軽水炉に比べて、高Pu富化度、高燃焼度であるため、臨界管理や溶解性能の確保の観点から、機器の仕様が厳しく制限される。溶解槽の開発当初は、バッチ式を検討したが、溶解の効率化等の観点から連続式が優れていると判断し、様々な型式について検討を行った。米国との共同研究で円筒水平の回転ドラム型連続溶解槽（第2図）を開発対象として選定し、この共

同研究の中で工学規模のウラン試験を行い、基本的性能を確認した。その後、独自に開発を進め、溶解槽内部のせん断片の移行状況の把握、閉塞発生抑制のための内部構造の改良等を行うとともに、常陽等の使用済燃料を用いたホット基礎試験等を踏まえた評価により、先進湿式法における晶析工程を念頭とした高濃度溶解への対応（粉体を含む短尺せん断片の溶解）についても問題がないことを確認した。

溶解液からその中に残留している固形物（スラッジ）を除去する澄清技術については遠心法を選定し、開発を行った。本方法は基本的に軽水炉燃料再処理と同様の技術であるが、高速炉燃料の場合はスラッジの量が多いこと、さらに先進湿式法では後工程の晶析へのフィード液として高濃度溶解液を対象とすること等への対応が必要である。スラッジの性状について発生状況等も含め基礎的データを収集するとともに、模擬物質を用いた試験により澄清機の基本的性能（回収率等）を把握した。

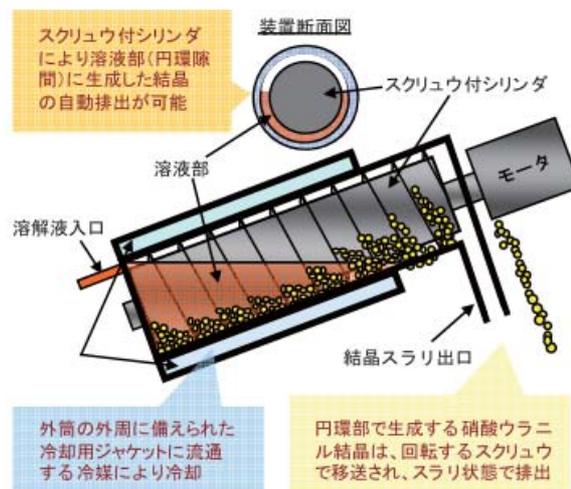


第2図 回転ドラム型連続溶解槽の概念図

(3) 晶析技術

先進湿式法では、高速炉サイクルにおいては低除染燃料の利用が成立することを前提に、溶解液からUを粗分離した後、工程を簡素化しPuを一部のUとともに回収することを指向している。晶析技術は溶解液からUの大部分を硝酸ウラン結晶として分離回収する技術であり、新たな試薬等を必要としない合理的なU粗回収技術である。しかし、溶解液の冷却によりUが晶析する時にPuやFP元素も同伴する可能性があること、装置としては固体

結晶を扱うことによる閉塞の可能性や冷却温度制御等において開発課題を有する。晶析プロセスに関しては、ホット試験等により、フィード液のU濃度、冷却温度と晶析率の関係等のデータを取得するとともにPuやFP元素の挙動を把握し、基本的な成立性を確認しているが、固体不純物として同伴する一部FP元素の除染係数向上等について検討をさらに継続する必要がある。晶析装置としては様々な型式について比較評価を行った結果、連続処理、臨界管理、結晶のハンドリング等の観点からロータリーキルン型（第3図）を最適な型式と選定し、その運転安定性等について試験を行い、技術的成立性を確認した。

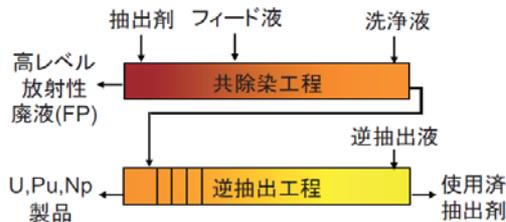


第3図 キルン式円環型晶析装置の概念図

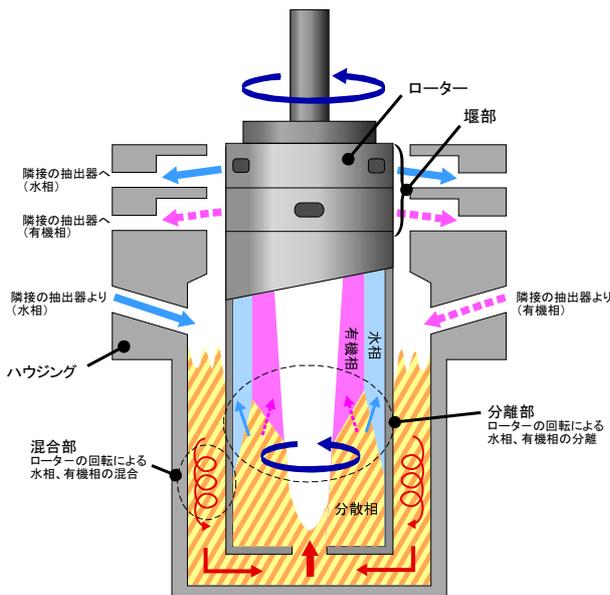
(4) 抽出技術

溶媒抽出技術では、ピューレックス法をベースに、還元剤として硝酸ヒドロキシルアミン(HAN)を用いたU/Pu分配型フローシートや還元剤を使用しないU/Pu共回収型フローシートの開発を進め、常陽等の使用済燃料を用いたホット基礎試験により高速炉燃料への適用性を確認した。先進湿式法では、晶析法においてUが粗分離された溶解液を対象に、分配と精製の工程を廃し、U/Pu/Npを一括で抽出・逆抽出する単サイクル型フローシート（第4図）の開発及び評価を行い、目標とする回収率や除染係数が得られることを確認した。抽出装置については、当初、臨界安全性の観点からパルスカラムの開発を実施したが、その後、機器の小型化、溶媒接触時間の短縮化、起動停止時間の短縮等の観点から遠心抽出器（第5図）を選定し開発を進めた。米国との共同研究により単段型の遠心抽出器について工学規模でのウラン試験を実施するとともに、複数の抽出器を繋いだシステム試験、さらには長時間運転試験等により運転特性や耐久性を把握し、技術的成立性を確認した。また、大型化の観点から臨界安全性を維持した大型遠心抽出器の構造として中性子内包型遠心抽出器を、高耐久化の観点から磁気軸受型遠心

抽出器を新たに開発し、各種試験により相分離性能等の基本性能を把握した。



第4図 U/Pu/Np一括回収フローシートのご概念図

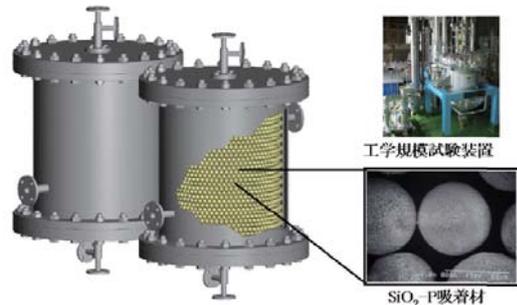


第5図 遠心抽出器のご概念図

(5) MA回収技術開発

先進湿式法では、環境負荷低減の観点から、高速炉への装荷を念頭にU, Pu, Npとともに3個のMA元素であるAm, Cmを回収する。MA回収技術については、米国において開発された溶媒抽出法であるTRUEX法をベースとしたSETFICS法を新たに開発し、ホット試験等よりMA元素の分離・回収性能を評価し、その基本性能に問題がないことを確認した。一方、このような溶媒抽出を利用したMA回収において問題となる廃液発生量の増大に対しては、これを大幅に改善する可能性を有している抽出クロマトグラフィに注目し、研究開発を実施した。SiO₂-P担体（多孔質のSiO₂粒子にスチレン-ジビニルベンゼン高分子を被覆した粒子）に各種抽出剤をそれぞれ担持させた吸着材を用いてホット試験等を行い分離性能や安全性等を把握したが、回収率や除染係数の向上等に向けて継続した検討が必要である。機器開発の面からは、工学規模の試験装置（第6図）を用いた分離塔内における水溶液や放射線分解ガス、吸着材等の流動性評価や、温度制御性評価、さらには繰返し運転時の性能評価を実施するとともに、通常運転時及び異常時における計装制御システ

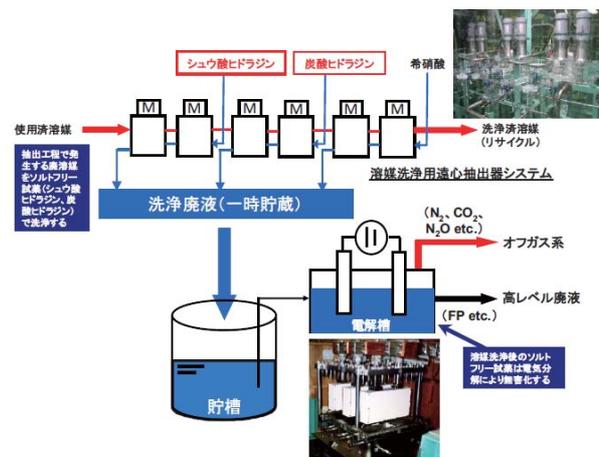
ムの構築や吸着材交換時等の運転保守における遠隔操作性に関する検討を進め、基本的性能を把握した。



第6図 抽出クロマトグラフィ機器

(6) ソルトフリー技術（廃液二極化技術）

再処理工程における金属塩を含んだ試薬の使用を極力排除するいわゆるソルトフリー化技術は、廃液の濃縮効率を高め、各種廃液をガラス固化する高レベル廃液と海洋放出可能な極低レベル廃液に二極化することで廃棄物全体の発生量を大幅に削減できる可能性を有している。含塩廃棄物の主要因であるNaを含む各種洗浄液に加え、Pu濃度が高い高速炉燃料再処理において増加が懸念されるPu還元剤を対象にソルトフリー化を進めた。溶媒洗浄工程については、新たに炭酸ヒドラジン等のソルトフリー試薬を採用（第7図）し、溶媒抽出工程より得られた実廃溶媒を用いた試験等により、その洗浄性能に問題がないことを確認した。また、Puの還元試薬としてはHANを選択し、高Pu濃度条件においても十分な性能が得られることを確認した。また、使用後のソルトフリー試薬を電気分解により窒素、水等に分解する手法を検討し、分解条件等を明らかにするとともに、工学規模電解装置を用いた各種試験により基本性能を把握した。



第7図 ソルトフリー技術を適用した溶媒洗浄フローの概略図

4. まとめ

本稿では、湿式法による高速炉燃料再処理技術について

て、諸外国の状況とともにわが国における開発経緯と技術概要を整理した。東日本大震災以降、わが国における同技術の開発が停滞する一方、フランスやインド等においては着実な進展が見られており、その動向には今後も注目する必要がある。

参考文献

- 1) 山本、日本原子力学会誌、28(2), 120-128(1986).
- 2) 日本原子力研究開発機構、第2回FaCT評価委員会資料3(2010).

- 3) Proceedings of International Conference on Fast Reactors and Related Fuel Cycles: Safe Technologies and Sustainable Scenarios (FR13) (2013)
- 4) 船坂、永井、鷺谷、日本原子力学会誌、50(4), 247-252 (2008)
- 5) 日本原子力研究開発機構 次世代原子力システム研究開発部門、JAEA-Evaluation-2011-003 (2011)

日本原子力研究開発機構 佐野雄一
(2015年1月22日)