



- 高速炉サイクルの研究開発を支える解析システム - ・ 乾式再処理システムの物質収支 評価コードの開発

岡村 信生 佐藤 浩司

大洗工学センター システム技術開発部

Computer Code System for the R&D of Nuclear Fuel Cycle with Fast Reactor
Development of an Object-Oriented Analysis Code for Estimation of the Material Balance in
the Pyrochemical Reprocessing Process

Nobuo OKAMURA Koji SATO

System Engineering Technology Division, O-arai Engineering Center

乾式再処理のシステム設計を行う上で重要な情報となる、物質収支、放射能収支、崩壊熱収支、工程内滞留量を評価するための計算コードを開発した。本コードは、バッチ式処理のシステムを対象としたものであり、プロセスフロー等の変更に対して容易に対応できるようにオブジェクト指向型ソフトを用いて作成した。高速増殖炉サイクルの実用化戦略調査研究において検討されている乾式再処理の酸化物電解法プロセスを一例として、熔融塩のリサイクルの影響を考慮した物質収支評価を本計算コードにより実施した。その結果、熔融塩精製の間隔を長期化することによるガラス固化体発生量の低減の可能性が、定量的に示された。

本報では、開発した計算コードの概要を紹介するとともに、熔融塩のリサイクルの影響を考慮した酸化物電解法プロセスの物質収支評価結果について報告する。

An analysis code using the object-oriented software EX·TD Ver:4 was developed for the estimation of material balance for the system design of the pyrochemical reprocessing plants consisting of batch processes. This code can also estimate the radioactivity balance, decay heat balance and holdup, and easily cope with the improvement of the process flow, and so on.

An example of the material balance estimation under the consideration of the solvent(molten salt) recycling time is presented for the oxide electrowinning reprocessing system designed in the feasibility study of the FBR fuel cycle system. The results indicate the possibility of reduction of the vitrified waste form volume due to the extension of the recycling time of the solvent.

This paper describes the outline of the code and estimation of the material balance in the oxide electrowinning reprocessing system under consideration of the solvent recycling time.

キーワード

オブジェクト指向型ソフト、物質収支、放射能収支、崩壊熱収支、工程内滞留量、熔融塩リサイクル、乾式再処理、バッチ式処理、システム設計

Object-Oriented Software, Material Balance, Radioactivity Balance, Decay Heat Balance, Holdup, Molten Salt Recycle, Pyrochemical Reprocessing, Batch Process, System Design



岡村 信生

再処理システムグループ所属
研究員
乾式再処理システムの設計
研究に従事
第一種放射線取扱主任者



佐藤 浩司

再処理システムグループ
リーダー
湿式及び乾式再処理システム
の設計研究及びグループ
の総括に従事
第一種放射線取扱主任者

1. はじめに

高速増殖炉サイクルの実用化戦略調査研究（以下、FS）においては、湿式法、乾式法を含めた幅広い再処理技術の検討が実施されている¹⁾。ここで乾式再処理としては、U、TRUの分離回収を行う際に、熔融塩や液体金属を用いた電解・還元抽出や、元素間の蒸気圧差を利用した揮発・凝縮等の

方法が利用される。しかし、既に商用化されている湿式再処理の一つである溶媒抽出法と比較して、これらの方法は実績が少なく物質挙動が十分に把握されていない。そのため、検討されている乾式再処理のシステムではプロセスフローがまだ完全に固まっておらず、主プロセスの工程の変更や追加等が行われる余地が大きい。

そこでこれらのプロセスフローの改良に対して柔軟に対応しながら、システム設計を行っていく上で重要な情報となる物質収支を容易に評価することができる計算コードの開発を実施した²⁾³⁾。FSのフェーズにおいて乾式再処理の検討の中心となる酸化物電解法と金属電解法は、共に電気分解の工程をプロセスの中心とし、バッチにより離散的に物流を取り扱うものであることから、開発したコードはバッチ式処理システムを評価対象としている。

本報では、開発した評価コードの概要を紹介すると共に、一例として溶融塩のリサイクルの影響を考慮した酸化物電解法プロセスの物質収支評価結果について報告する。

2. 評価コードの概要

2.1 評価コードの特徴

評価コードの作成に当たっては、プロセスフローの変更に対して柔軟に対応するという要求を満たすために、科学技術の分野で一般的に利用されているFORTRAN等のプログラム言語ではなく、オブジェクト指向型ソフト*の一種であるEX・TD Ver.4**を使用した。再処理システムの構成要素である各工程に対応する様にブロックを作成しているため、システム設計で用いられるPFD (Process Flow Diagram) を描く感覚で、多様な再処理システムの評価モデルを構築することが可能となっている。また、接続線を付け替えたりすることにより、プロセスフローの変更にも容易に対応できる。

評価コードの基本となるブロックを設計する際には、少ない種類のブロックの組み合わせで多種多様なプロセスの構築が可能となる様に、汎用性を考慮しておくことが重要である。具体的には、

タスクを分解し、一つのブロックにさせる作業を必要最小限にすることが挙げられる。ここでは、評価コードを構成するブロックの役割を基準として表1に示すように、工程ブロック群、管理ブロック群、評価ブロック群の3種類に分類して考え、ブロックの作成を実施した。

2.2 工程内の物質移行

再処理システム内の物質移行は、分離と混合という二つの要素の組み合わせによる結果である。分離をモデル化したブロックでは、それぞれの経路へ流れ出ていく物量の割合を指定する必要がある。分離方法の種類として、

物流の一部を精製等のために取り出すもの
指定したバッチ数の間隔ごとに流れる経路を変更するもの

化学反応等により特定の物質を取り出すものが考えられる。“ ”、“ ”は共に「管理ブロック群」と呼ばれるブロック群に属し、物質ごとに異なった挙動を示さないため取り扱いが容易であるが、「工程ブロック群」と呼ばれるブロック群に属する“ ”では物質ごとにそれぞれの経路への割合を指定しなければならない。工程の運転条件を基に各物質の挙動(化学反応等)をシミュレーションする方法も考えられるが、本評価コードは要素技術開発ではなくシステム設計に適用することが目的であることから、ここでは工程内の物質移行は分岐率を用いて取り扱うこととした。分岐率の定義について図1に示す。使用する分岐率は過去の実験結果や物性値等を基に、化学的特性の類似性から同じ挙動を示す元素ごとにまとめて設定

表1 評価コードの構成ブロックの分類

分類	内容
工程ブロック群	溶解、沈殿、電解析出等の処理を行う主工程における物質移行を取り扱う。
管理ブロック群	物流の分岐・合流や経路の変更、特定区間における物流量(バッチ数)の制限等の工程管理を行う。
評価ブロック群	物量を基にした放射能や崩壊熱の評価、廃棄体の本数の算出、表計算ソフト形式へのデータの変換等を行う。

* オブジェクト指向型ソフト (EX・TD) の特徴; 特定の機能を果たすまとまった部分をFORTRAN等ではサブルーチンとして取り扱うが、EX・TDでは“ブロック”として管理する。ブロックはアイコンで表現され、ブロック間を接続線で結合することで情報(物量データ等)の受け渡しが実行される。ブロックは、更に別のブロックの集合体もしくは、ModL言語で記述される。(図5参照)

** Imagine That社製



$$B = A \times [B \text{ への分岐率}(\%)]$$

$$C = A \times [C \text{ への分岐率}(\%)]$$

図1 分岐率の定義²⁾

される(表2参照)

更に工程ブロックには、分岐率を基に求められた反応生成物の量から、“ ”の反応において消費される試薬の量や発生する塩素ガス等の2次生成物の量についてmol単位で算出できる機能を装荷した。

2.3 工程間の物流

評価コードの対象とした乾式再処理システムでは運転方法がバッチ式であるため、使用済燃料解体から再処理製品の払出までを一貫して離散事象と見なした。

そこで、1バッチで取り扱う物量を管理するために、アイテムという機能を利用した。アイテムの中では、元素名を属性名、重量を属性値とする

表2 分岐率の設定項目

項目	内 容
溶 融 塩	溶媒として用いる熔融塩
U	U
Np	Np
Pu	Pu
Am	Am
Cm	Cm
ALM	アルカリ金属 (Li, Na, K, Rb, Cs)
ALE	アルカリ土類金属 (Be, Mg, Ca, Sr, Ba)
RE	希土類 (Y, La ~ Lu)
NM	貴金属 (Ru ~ Ag)
Cd	Cd
Zr	Zr
HG	ハロゲン (Br, I)
NG	希ガス (Kr, Xe)
3H, 14C	³ H, ¹⁴ C
そ の 他	Sc ~ Se, Nb ~ Tc, In ~ Te, Hf ~ Po
指 定 元 素	個別に挙動を把握したい元素

ことにより各元素の物量情報を保存することが可能である。アイテムは、これらの情報をまとめてブロック間で受け渡すために使用される。物流の分割過程では、アイテムを経路の数だけ複製し、分岐率を基に属性として保存されている元素量の情報をそれぞれのアイテムに割り当てる。また、複数の物流を混合する場合には、各アイテムに保存されている元素量を合計し、一つのアイテムにまとめる。

しかし、実際に電気分解を行うときには、電解反応を効率よく進行させるために、析出対象となる熔融塩中の物質の濃度を高くしておく必要がある。そこで本評価コードでは、直接、反応に寄与する元素と、濃度を高めるために利用され反応には寄与しないバックグラウンド分の元素の情報を別々のアイテムとして取り扱うこととした。よって、電解過程においてのみ1バッチの物量の情報は、二つのアイテムに分割されている。

2.4 処理時間

シミュレーションでは、再処理システムの平均的な物質収支と時間依存のシステム内物質移動を含めた物質収支のいずれも評価することが可能である。

任意時間当たりの処理量を入力(使用済燃料受入)とし、各ブロックにおける処理時間に関わる項目を設定しないことにより、平均的な物質収支を求めることができる。

時間依存の物質収支を求めるときには、1バッチ当たりの取扱量を入力とし、各ブロック(工程)ごとに機器の処理速度、機器台数、マテハン時間*を設定することにより時間依存の物質移動と物質収支を求めることができる。また、処理の実行中に次のアイテムが前工程から送られた場合には、各ブロックの前で保留されるようになっているため、その仕掛品**量をチェックすることにより処理能力を調整する必要がある工程を抽出することが可能である。

なお、同じ装置で実施される複数の工程の取り扱いについては注意を要する。ブロックは基本的に工程単位で作成されるため、上述のような装置では一連の工程が複数のブロックを用いて表現されるが、そのブロック群では合計で1バッチ分の物

* 処理対象物や処理物払出容器等の必要機材の調達や装置のセッティング等を行うための時間。

** 連続する二つの工程のうち、後工程の方の処理能力が低いときに工程間に発生する在庫。

量しか同時に処理できない。この時には本評価コードでは、管理ブロック群の中に用意されている「特定のブロック群に含まれるバッチ数を制限する機能」を有するブロックにより対処することが可能である。

2.5 工程内滞留量

乾式再処理では、核物質を粉体や顆粒として取り扱うことが多く、工程内への滞留が湿式再処理と比較して増加することが予測される。そこで、工程ブロック群には工程内滞留量（ホールドアップ）を評価する機能を付加した。

プラント操作中に流れている物量の内、常に一定の割合が工程内に滞留するのではなく、運転初期（装置更新時も含む）では滞留する割合は大きい、時間の経過とともにその割合は減少し、最終的にホールドアップは飽和するものと考えられる。以上のことを踏まえて本評価コードでは、次式でホールドアップを定義した。

$$H_x = 0.01 \times a \times (1 - (x+1)^{-b}) \times M$$

- x : バッチ番号
 - H_x : xバッチ時点のホールドアップ (kg)
 - a : 平衡滞留量割合(%) = (平衡状態でのホールドアップ) / (1バッチ当たりの物流量) × 100]
 - b : 滞留量特性係数 (ホールドアップの時間変化を設定。通常は、b < 0)
 - M : 1バッチ当たりの物流量 (kg)
- a = 10, b = -1 の条件下におけるホールドアップの時間変化を図2に示す。

2.6 ブロックとその条件設定

本評価コードは、工程ブロック群が8個、管理ブロック群が11個、評価ブロック群が4個のブ

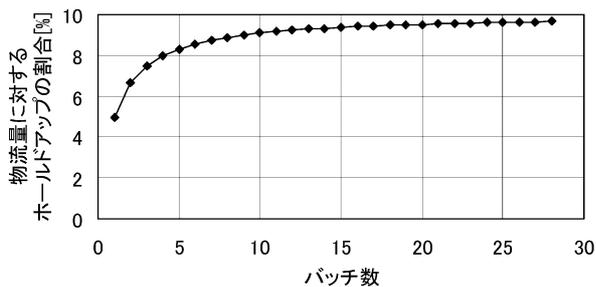


図2 ホールドアップの時間変化

ックにより構成されている。使用者はこれらのブロックから必要となるものを選択して、評価対象とする再処理システムのモデルを構築することができる。

ここでは例として、工程ブロック群に属する物流を分岐させるブロックの条件設定画面を図3に示す。上から順に、機器数、処理速度、マテハン時間という時間依存の物質収支を評価する時に必要となる処理時間に関する項目と、処理に伴い必要となる試薬量や2次生成物量を算出するために用いられる工程種別番号を設定する欄がある。次に、滞留量特性と各経路への分岐率が入力できるようになっている。その下の「処理待ち(結果)」、「滞留量(結果)」は、ブロックの直前における仕掛品の状況と工程内の滞留量の過渡的な情報を表示する。その他のブロックにおいてもダブルクリックにより同様の条件設定画面を開くことができるので、シミュレーションの実行前に必要な条件を与えておく必要がある。

3. 酸化物電解法プロセスとそのモデル化

3.1 酸化物電解法プロセス

本報で評価の対象とした酸化物電解法を用いた乾式再処理プロセス¹⁾について、その概略を説明す

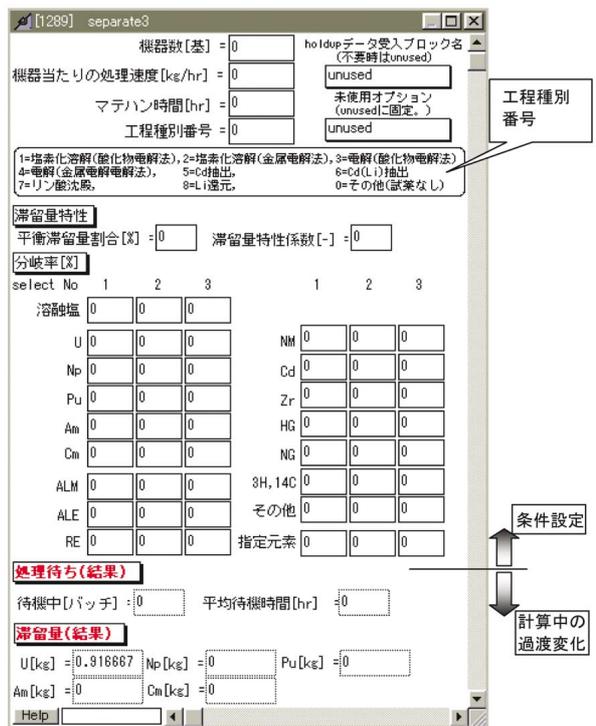


図3 分岐ブロックの条件設定画面

る(図4を参照)。このプロセスでは、使用済燃料を溶融塩(NaCl 2CsCl)に溶解し、電解操作により UO_2 、MOX、TRUを回収し、最後に沈殿操作により溶融塩中に残留しているFPを除去する。各工程の詳細について以下に述べる。

脱被覆工程

ロール矯正法により被覆管内の燃料を粉碎した後、燃料ピンの中央部を切断して中身をハンマーで叩き出す。この機械式脱被覆法では、処理後の被覆管に有意な量の燃料が付着していると想定されるためハル洗浄を行う。

ハル洗浄工程

ハルを溶融塩中に浸漬させ、 $ZrCl_4$ を添加して付着している燃料を溶融塩中に溶出させて回収する。

同時電解工程

電解槽へ投入された燃料粉末を陽極として、主に UO_2 を UO_2^{2+} として溶解させることにより、 UO_2 を選択的に回収する。【U製品の回収】

追加溶解工程

塩素ガスを吹き込むことにより、同時電解工程後に残留している燃料粉末を溶融塩中に溶解させる。この時、Uは UO_2^{2+} として、Puは Pu^{4+} として溶解する。

NM(貴金属)除去電解工程

追加溶解直後にU、Puの回収を実施すると最も還元されやすいNMの混入が避けられないため、

低電流で電解を行い選択的に溶融塩中からNMを除去する。

MOX電解工程

塩素ガス中に酸素ガスを混ぜて吹き込むことにより、 Pu^{4+} の形態で溶解しているPuを PuO_2^{2+} に酸化させながら、固体陰極に UO_2 、 PuO_2 を同時にMOXとして析出させる。【MOX製品の回収】

絞り電解工程

電解電流を絞りながら時間をかけて、溶融塩中に残留しているU、Pu、MAを回収する。ここで回収されないアクチノイド元素は、次工程のリン酸沈殿工程で希土類と共に廃棄物となる。

【TRU製品の回収】

リン酸沈殿工程

溶融塩を構成するNa、Csと同じ割合のリン酸ナトリウムとリン酸セシウムを投入することにより、溶融塩中に残留しているFPをリン酸塩の沈殿物として回収する(回収されたリン酸塩はリン酸ガラスへ添加される)。リン酸塩の投入による溶融塩の増量分を余剰塩として廃棄する(この余剰塩は酸化転換後、ホウケイ酸ガラスへ添加される)。その結果、崩壊熱が大きく溶融塩の使用限度に大きな影響を及ぼすFPのCsについては、蓄積が回避され、ある一定濃度で飽和する。【リン酸ガラス固化体、ホウケイ酸ガラス固化体の廃棄】

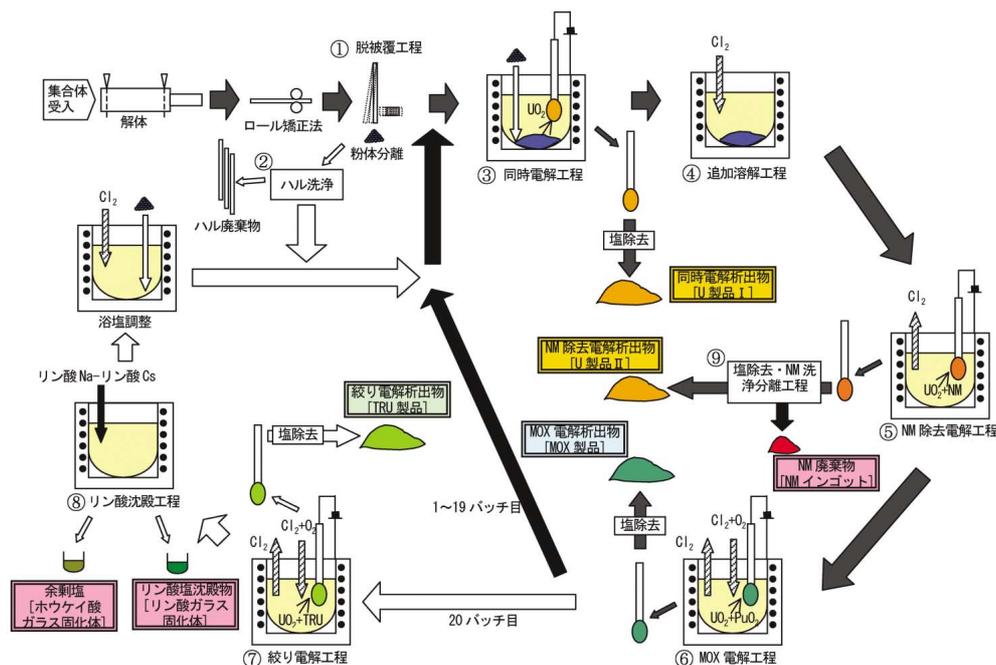


図4 酸化物電解法プロセス¹⁾

NM 分離洗浄工程

NM 除去電解工程で回収された電解析出物中にはNM以外にUO₂が混入しているため、両者の比重差を利用して水中で分離し、UO₂を回収する。

【U製品 の回収, NM インゴットの廃棄】

は溶融塩を精製する工程であり、溶融塩中のFPが蓄積してきた段階で実施される。よって、通常のバッチは ~ , で構成されており、サイクルの最終バッチにおいてのみ ~ までの操作が行われる。電解はある程度濃度が高い領域で実施する方が効率を上げられるため、サイクルの初めに1バッチ分の使用済燃料を塩素化溶解により溶解しておく(浴調整)。この濃度の底上げを担うバックグラウンド分については、 , では回収されず、最終バッチの , にてTRU製品または廃棄物としてシステム外へと除去される。ハル洗浄工程における回収物は、バッチごとではなく次のサイクルが開始される直前の浴調整時に

電解槽へ投入される。

このプロセスにおいて高レベル固化体として発生する廃棄物は、のNMインゴット、のリン酸塩を起源とするリン酸ガラス固化体と余剰塩を起源とするホウケイ酸ガラス固化体の3種類である。

3.2 評価コードによるモデル化と設定条件

評価コードのブロックの中から必要なものを用いて、酸化電解法プロセスのモデルを作成した。モデルについては図5に示す。また、物質収支を計算する上で用いた各工程の分岐率を表3にまとめた。

絞り電解により回収されたバックグラウンド分は、次サイクルのバックグラウンドとして利用する方法も考えられるが、FSではMA回収とそのリサイクルも目的の一つとしているため、多量のUを含む絞り電解析出物はTRU製品として燃料製造に移送することとした。

NM インゴット、リン酸ガラス固化体、ホウケ

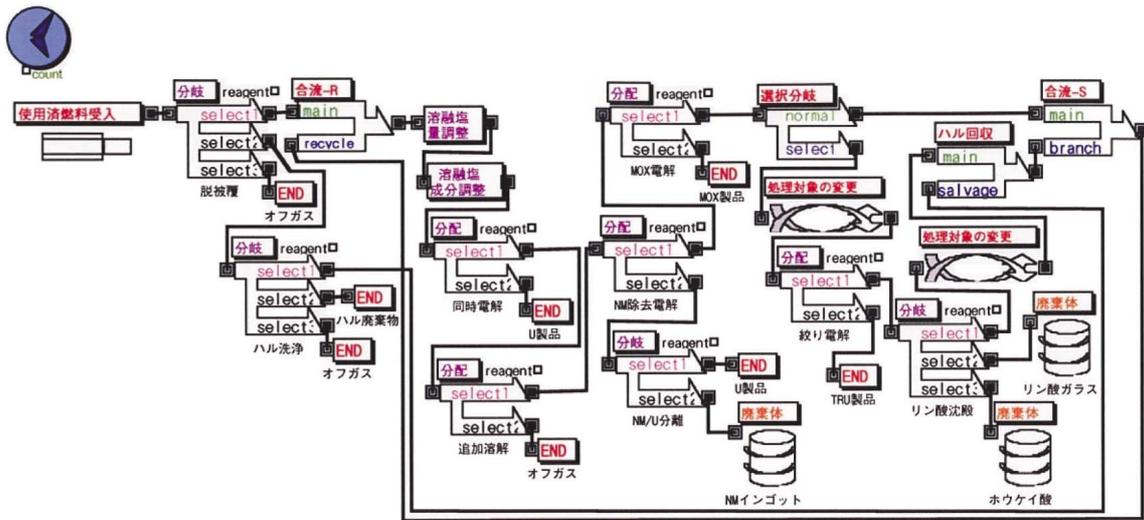


図5 評価コードにおける酸化電解法プロセスのモデル

表3 酸化電解法プロセスの分岐率

工程	脱被覆[%]			ハル洗浄[%]			同時電解[%]		追加溶解[%]	NM除去電解[%]		NM/U分離[%]		MOX電解[%]		絞り電解[%]		リン酸沈殿[%]			
次工程(分岐先)	ハル洗浄	オフガス	浴調整	ハル廃棄物	オフガス	追加溶解	U製品I	NM除去電解	オフガス	MOX電解	NM/U析出物	U製品II	NM廃棄物	リサイクルの絞り電解	MOX製品	リン酸沈殿	TRU製品	浴調整	リン酸沈殿	余剰塩	
U	99.00	1.00	0.00	90.00	10.00	0.00	30.00	70.00	100.00	0.00	79.80	20.20	99.00	1.00	10.00	90.00	0.10	99.90	6.26	90.00	3.74
Np	99.00	1.00	0.00	90.00	10.00	0.00	30.00	70.00	100.00	0.00	79.80	20.20	99.00	1.00	10.00	90.00	0.10	99.90	0.00	100.00	0.00
Pu	99.00	1.00	0.00	90.00	10.00	0.00	99.50	0.50	100.00	0.00	99.50	0.50	100.00	0.00	10.00	90.00	0.10	99.90	1.88	97.00	1.12
Am	99.00	1.00	0.00	90.00	10.00	0.00	99.90	0.10	100.00	0.00	99.90	0.10	100.00	0.00	99.90	0.10	1.00	99.00	0.06	99.90	0.04
Cm	99.00	1.00	0.00	90.00	10.00	0.00	99.90	0.10	100.00	0.00	99.90	0.10	100.00	0.00	99.90	0.10	5.00	95.00	0.06	99.90	0.04
ALM	99.00	1.00	0.00	90.00	10.00	0.00	100.00	0.00	100.00	0.00	100.00	0.00	-	-	100.00	0.00	100.00	0.00	62.49	0.10	37.41
ALE	99.00	1.00	0.00	90.00	10.00	0.00	100.00	0.00	100.00	0.00	100.00	0.00	-	-	100.00	0.00	100.00	0.00	0.31	99.50	0.19
RE	99.00	1.00	0.00	90.00	10.00	0.00	99.90	0.10	100.00	0.00	99.90	0.10	100.00	0.00	99.90	0.10	90.00	10.00	0.31	99.50	0.19
NM	99.00	1.00	0.00	90.00	10.00	0.00	90.00	10.00	100.00	0.00	5.00	95.00	5.30	94.70	0.00	100.00	-	-	-	-	-
Cd	99.00	1.00	0.00	90.00	10.00	0.00	90.00	10.00	100.00	0.00	5.00	95.00	5.30	94.70	0.00	100.00	-	-	-	-	-
Zr	99.00	1.00	0.00	90.00	10.00	0.00	90.00	10.00	100.00	0.00	5.00	95.00	5.30	94.70	0.00	100.00	-	-	-	-	-
HG	99.00	1.00	0.00	90.00	10.00	0.00	100.00	0.00	100.00	0.00	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
NG	20.00	0.00	80.00	-	-	-	100.00	0.00	100.00	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
3H,14C	99.00	1.00	0.00	0.00	100.00	100.00	0.00	0.00	100.00	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
その他	99.00	1.00	0.00	0.00	0.00	100.00	100.00	0.00	100.00	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-

イ酸ガラス固化体の高レベル廃棄物については、FP元素の濃度制限で廃棄体の本数を算出するように設定した。濃度の制限値は、FSのフェーズの結果1)を参考に決めた。本報で行った評価計算においては、いずれのガラス固化体も六ヶ所再処理工場の発熱量の制限値である2.3kW/本を下回った。

酸化物電解法プロセスの中で最も長い処理時間を要する箇所は電解工程であり、1バッチ当り36時間である。よって、プロセス全体の処理能力も1バッチ当たり1.5日となる。FSの設計では機器のメンテナンス性を理由に1サイクルの構成バッチ数を20バッチと設定していることから、これを基準に構成バッチ数を変えた場合に生じるプロセスへの影響を次章で評価する。計算ケースについては表4に示す。ここでは、プラントの年間稼働日数が200日という設計条件を考慮して、サイクルの期間を最大で210日とした。

1バッチ当たりを受け入れる使用済燃料の組成別重量を表5に示す。サイクルの開始時に、電解の処理効率を上げるために投入されるバックグラウンドの量もこれと同じである。ただし、サイクルの期間が120日と210日のケースでは、ハル回収工程においてハルから回収されるUと前のサイクルで回収されずに溶融塩中に残留するUの重量の合計が表5にある311kgを超えるため、第2サイクル以降においてバックグラウンドの投入は行わない。

4. 評価結果

4.1 溶融塩中のFP・MA発熱量

1サイクルの構成日数が30日のケース(20バッチ/サイクル)における溶融塩中のFP・MA発熱量の変化を図6に示す。発熱量の値は、1サイクルの中で最大となる最終バッチの使用済燃料を受け入れ直後のものを示している。実際には、7基の電解槽で処理されるため1基当たりの発熱量

は、図6の値を7で除したものとなる。

1サイクル当たりの回収率が95%を超えるAm, Cm, ALE(アルカリ土類金属), RE(希土類)については、2サイクル目以降ではほぼ平衡状態となる。しかし、溶融塩の構成元素と同じアルカリ金属元素のFP(主にCs, Rb)は、溶融塩精製過程においても回収率が低く、蓄積していく。これらが系外へ除去されるのは、廃棄される余剰塩に含有される分のみであり1サイクル当たり37%程度であるため、全体の発熱量が平衡に達するのは7サイクル以降となる。

サイクルの構成日数を変化させたときの溶融塩中のFP・MA発熱量を表6に示す。平衡状態における発熱量は、サイクルの長さ按比例しているが、平衡状態になるまでのサイクル数は、サイクルの構成日数に依存しない。サイクル間の発熱量の増

表5 バッチ当たりの受入量

種類	重量[kg]	種類	重量[kg]
U	311.4	NM	4.9
Np	0.2	Cd	0.2
Pu	35.8	Zr	2.0
Am	1.1	HG	0.3
Cm	0.4	NG	3.6
ALM	2.9	³ H, ¹⁴ C	0.0
ALE	1.6	その他	3.7
RE	7.2	総計	375.0

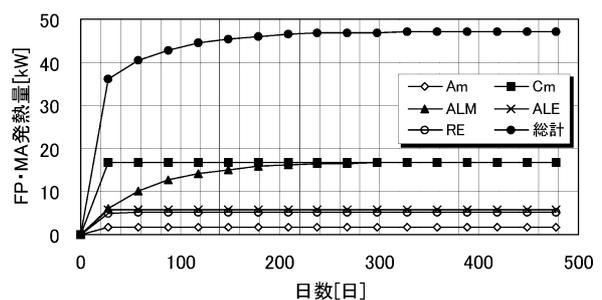


図6 溶融塩中のFP・MA発熱量(1サイクル-30日)

表4 計算ケース

ケース	サイクルの期間[日]	サイクルの構成バッチ数
1	15	10
2(基準)	30	20
3	60	40
4	120	80
5	210	140

表6 溶融塩中のFP・MA発熱量

サイクルの期間[日]	平衡到達サイクル数	最大発熱量[W]
15	7	2.4×10^4
30	7	4.6×10^4
60	7	8.9×10^4
120	7	1.7×10^5
210	7	2.8×10^5

加率が1%以下となったときに平衡と見なすものとする、そのサイクル数は7サイクルである。

4.2 廃棄物の発生量

サイクルの構成日数別に、平衡状態で1日当りに発生する廃棄物量を図7に示す。サイクルの構成日数が長くなるにつれて、廃棄物発生量は減少している(NMインゴットにおいても210日の発生量は15日の0.91倍である)。原因の一つとして、バックグラウンド分の使用済燃料の影響が考えられる。構成日数が15日(10バッチ)では処理する使用済燃料は11バッチ分となり、1日当たり0.73バッチ分の燃料を取り扱う。60日(40バッチ)では1サイクルで41バッチ分の燃料を処理するため、1日当たりの取扱量は0.68バッチ分となる。さらに、120日以上ではバックグラウンドを補給しないため、0.67バッチまで減少する。

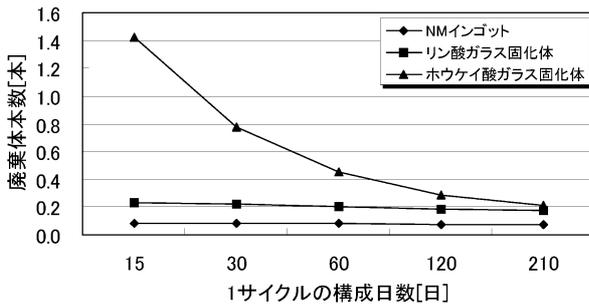


図7 1日当たりの廃棄体発生量

表7 廃棄体中の廃棄物組成

廃棄体	NMインゴット [%]		リン酸ガラス固化体 [%]		ホウケイ酸ガラス固化体 [%]	
	15	210	15	210	15	210
U	3.0	3.2	0.35	0.04	0.004	0.002
Pu	0.0	0.0	0.046	0.005	0.0	0.0
Np	0.001	0.002	0.0	0.0	0.0	0.0
Am	0.0	0.0	0.1	0.1	0.0	0.0
Cm	0.0	0.0	0.2	0.2	0.0	0.0
ALM	0.0	0.0	0.1	0.1	9.5	55.5
ALE	0.0	0.0	19.7	24.5	0.01	0.07
RE	0.0	0.0	79.4	75.0	0.04	0.20
NM	67.7	67.52	0.0	0.0	0.0	0.0
Cd	2.3	2.3	0.0	0.0	0.0	0.0
Zr	27.1	27.0	0.0	0.0	0.0	0.0
溶融塩	0.0	0.0	0.0	0.0	90.4	44.2
合計	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0

次に、各廃棄体の減少率の相違について検討する。サイクル構成日数が15日と210日の2ケースについて、各廃棄体中の廃棄物の組成を表7に示した。両ケースとも平衡状態を比較するため、15日のケースでは33サイクル目(481~495日)、210日のケースでは14サイクル目(2731~2940日目)のデータを用いた。

NMインゴットには、U, NM, Cd, Zrが含まれている。主要成分であるNM, Zr, Cdはバッチにおける回収率が100%であり、溶融塩中へ蓄積しない。それ故に廃棄体の減少の原因は、バックグラウンド分の影響によるもののみであるから、120日以上では廃棄体の発生量は変化しない。

リン酸ガラス固化体には、ALE, RE と少量のU, Pu, Am, Cm, ALM(アルカリ金属)が含まれる。ALEとほとんどのREは、絞り電解工程とリン酸沈殿工程という溶融塩精製過程で系外へ取り除かれるため、同一サイクルの中ではバッチの経過と共に溶融塩中に蓄積される。NMインゴットと振る舞いが異なる理由は、蓄積されたREの一部がU製品, MOX製品に混入するためである。サイクルの期間が長くなると製品側へ移行するRE量が増加し、廃棄体発生量はNMインゴットよりも大きく減少する。表7から構成日数が210日では廃棄体中のREの割合が少なくなっていることが分かる。

ホウケイ酸ガラス固化体には、ALM, 余剰塩と少量のU, ALE, REが含まれる。廃棄体の減少については、バックグラウンド分がないことも一つの要因ではあるが、サイクル構成日数が15日ではALMの約10倍の量が含まれる溶融塩(余剰塩)による影響が大きい。他の廃棄体との減少率の比較からも、サイクル期間の長期化による利得が最も大きい。

4.3 製品の成分と回収率

酸化物電解法プロセスでは、四つの電解工程により再処理製品が回収される。基準ケース(1サイクル-30日)におけるそれぞれの製品の成分を表8に示す。本評価ではバックグラウンド分を考慮したため、TRU製品におけるUの割合が大きくなっている。現状では、絞り電解においてMAとUを分離するプロセスは含まれていないため、TRU製品中のTRU濃度は低いものとなる。

サイクルの構成日数別に各元素回収率を図8に

表 8 製品の組成

製 品	U 製品 [%]		MOX製品 [%]	TRU製品 [%]
	同時電解	NM除去電解	MOX電解	絞り電解
U	99.47	96.59	65.76	80.80
Pu	0.09	0.99	33.76	9.73
Np	0.05	0.05	0.03	0.04
Am	0.01	0.08	0.02	4.79
Cm	0.00	0.03	0.01	1.49
RE	0.05	0.55	0.10	3.15
NM Zr Cd	0.33	1.71	0.32	0.00
合 計	100.00	100.00	100.00	100.00

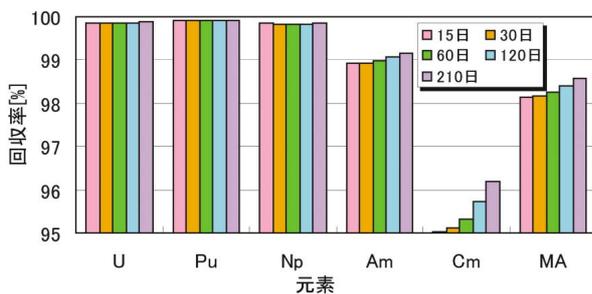


図 8 サイクル構成日数別の回収率

示す。いずれのケースにおいてもU, Pu, Npの回収率は、99.8%以上であった。Am, Cmは主に絞り電解工程で回収されるが、そこでの両者の回収率の違いによる影響が図8に現れている。バックグラウンド分を回収し、その製品への利用を行わない場合には、U, Pu, Npの回収率は89.8~98.9%、Am, Cmについては2.1~25.7%まで減少する。

4.4 塩廃棄率の影響

溶融塩電解を用いた再処理では、溶融塩中のFP等の発熱量には作業上の制約から上限値が設定されている。そこで、基準ケースよりもサイクルの構成日数が長い60日のケースについて、リン酸沈殿工程における余剰塩の発生量(塩廃棄率)を増加させ、基準ケースに対する発熱量の増加幅をどの程度抑えることが可能であるかということについて評価した。

ここでは、塩廃棄率を増やすことにより不足した溶融塩は、次サイクルの開始時に補給することとした。塩廃棄率を37%から100%まで変化させた時の溶融塩中のFP・MA発熱量の変化を図9に示す。これまでと同様に、サイクル内での最大発熱量の値で評価をしている。塩廃棄率の影響を最も

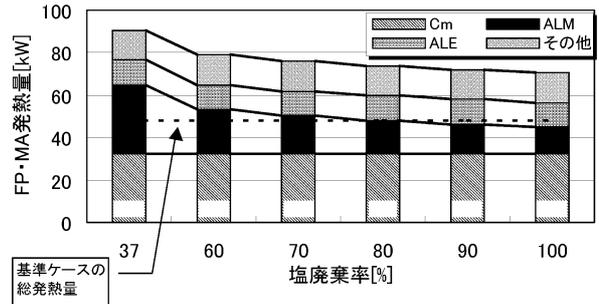


図9 塩廃棄率と溶融塩のFP・MA発熱量(1サイクル-60日)

受けるALMはCmとともに主要な発熱成分ではあるが、塩廃棄率が37%の時ににおいてもその発熱量は全体の35.8%程度である。それゆえに、塩廃棄率を100%まで増加させても総発熱量は77.9%までしか低下せず、基準ケースの1.5倍である。

次に、廃棄物発生量の変化について図10に示す。図7との比較より塩廃棄率が80%を超えると、基準ケースよりも廃棄物発生量が増えるためサイクルの期間を長期化する有意性が失われる。

以上より、塩廃棄率を上げることで溶融塩中のFP・MA発熱量を低下させることは可能であるが、廃棄物発生量の観点からもその効果は限定的なものとなる。

4.5 まとめ

本報では、酸化物電解法プロセスについて運転サイクルの期間の長さをパラメータに、溶融塩中のFP・MA発熱量と廃棄物の観点から評価を実施した。その結果得られたプロセスの特徴を以下にまとめる。

- 溶融塩中のFP・MA発熱量は、サイクル期間の長さに比例する。
- 発熱量が平衡状態に到達するまでの期間は、サイクル数だけに依存する(ALMに起因する発熱量が平衡になることと同値)。

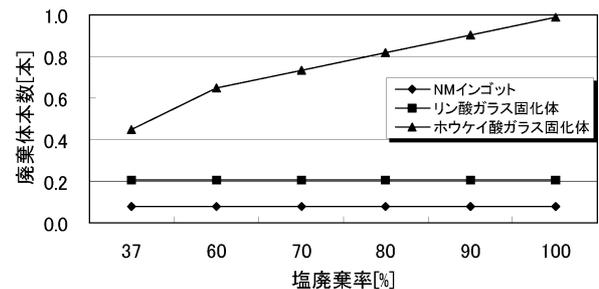


図10 1日当たりの廃棄体発生量(1サイクル-60日)

- ・ サイクル期間が長期化すると、廃棄体発生量が減少する。
- ・ U, Pu, MA回収率の向上の見地からバックグラウンド分の回収は必須である。
- ・ サイクル期間を長期化した場合には、塩廃棄率の増加では有意な発熱量の低下を図ることは困難である。

FSの酸化物電解法プロセス設計(20バッチ/サイクル)では、1電解槽当たりの溶融塩中のFP・MA発熱量が6.6kW(表6参照)であり、金属電解法で検討された発熱量制限値の15kW¹⁾と比較して半分以下であるので、熱的制約からはサイクル期間の長期化の余地はあると考えられる。現在、1サイクルの構成バッチ数を決定している機器のメンテナンス性(るつぼ交換等)に起因する制約を緩和することが可能であれば、廃棄物の低減の見地からサイクル期間を長期化することが有効である。

5. おわりに

今回、プロセス改良の余地が大きい乾式再処理システムの物質収支評価を容易に行うため、オブジェクト指向型ソフトを用いたコード開発を実施し、基本的な機能を備えた各種のブロックを一通り作成した。乾式再処理システムの設計の進行に伴い新たに必要な機能が生じた場合にも、本コードの特性から拡張していくことは容易であり、今後の設計研究においても有効に活用していくことが可能である。

参考文献

- 1) 田中博, 河村文雄, 他:“再処理システム技術検討書 - 実用化戦略調査研究(フェーズ)成果報告 - ”, JNC TY9400 2001 014(2001).
- 2) 岡村信生, 米澤重晃:“物質収支評価コードの開発 Object指向型コードの開発と解析例()”, JNC TN9400 2000 034(2000).
- 3) 岡村信生, 田中博:“乾式再処理における物質収支評価コードの開発() Object指向型コードの開発と工程滞留量の解析”, JNC TN9400 2001 059(2001).