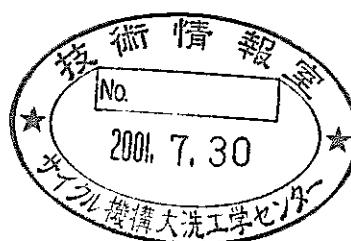


乾式再処理における物質収支評価コードの開発(Ⅱ)

Object指向型コードの開発と工程滞留量の解析

(研究報告)



2001年4月

核燃料サイクル開発機構
大洗工学センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Naka-gun, Ibaraki 319-1184,
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2001

乾式再処理における物質収支評価コードの開発(Ⅱ) Object指向型コードの開発と工程滞留量の解析 (研究報告)

岡村信生* 田中博*

要旨

軽水炉とは異なり FBR(Fast Breeder Reactor)では低除染の燃料が許容されることから、幅広い再処理技術の検討の中で、湿式再処理のみではなく乾式再処理まで含めた種々のプロセスが提案されている。乾式再処理は高い経済性が期待できるといわれているが、湿式再処理と比較して実績が少なく、工学規模のプラントを設計していく過程でプロセスフロー等に多くの検討の余地がある。そのため、乾式再処理システムの検討では、工程の変更や追加等に対して柔軟に対応しながら物質収支の解析・評価をする必要がある。

本研究は、この要求を満たす乾式再処理の物質収支評価コードを開発することを目的としている。ここでは、バッチ処理という運転方法の特徴と各工程内で核物質が複雑な形態をとることから、湿式と比較して乾式では測定されない在庫量である工程滞留量が多くなる可能性があることを踏まえて、開発中の物質収支評価コードに、プロセスを構成する各工程での滞留量を考慮できるように改良を行った。

* 大洗工学センター システム技術開発部 再処理システムグループ

**Development of the Object-oriented Analysis Code for the Estimation of Material
Balance in Pyrochemical Reprocessing Process (II)**
**-Modification of the Code for the Analysis of Holdup of Nuclear Materials in the
Process-**

Nobuo Okamura*, Hiroshi Tanaka*

Abstract

Pyrochemical reprocessing is thought to be promising process for FBR fuel cycle mainly from the economical viewpoint. However, the material behavior in the process is not clarified enough because of the lack of experimental data. The authors have been developed the object-oriented analysis code for the estimation of material balance in the process, which has the flexible applicability for the change of process flow sheet.

The objective of this study is to modify the code so as to analyze the holdup of nuclear materials in the pyrochemical process from the viewpoint of safeguard, because of the possibility of larger amount of the holdup in the process compared with aqueous process. As a result of the modification, the relationship between the production of nuclear materials and its holdup in the process can be evaluated by the code.

* O-arai Engineering Center System Engineering Technology Division
Reprocessing System Engineering Group

目次

1 緒論	1
2 物質収支評価コード開発の概要	2
2.1 コードの概要	2
2.2 開発手順と平成 12 年度の作業	3
3 物質収支評価コードの改良	6
3.1 これまでの開発状況	6
3.2 出力ブロックの改良	7
3.3 時系列	7
3.4 電解析出物への巻込溶融塩	8
3.5 工程滞留量の影響評価	8
3.6 構成ブロックの一覧とモデルの作成例	10
4 乾式再処理プラントの操業への工程滞留量の影響評価	12
4.1 乾式再処理プラントにおける工程滞留量	12
4.2 酸化物電解法	14
4.2.1 プロセス概要	14
4.2.2 計算条件	17
4.2.3 計算結果	18
4.3 金属電解法	23
4.3.1 プロセス概要	23
4.3.2 計算条件	26
4.3.3 計算結果	27
5 総括	31
5.1 結論	31
5.2 今後の展開	31
参考文献	32
APPENDIX 乾式再処理プロセス物質収支評価コードのマニュアル	33

図表リスト

表 3.1 構成ブロック一覧	— 10
表 4.1 各工程の分岐率(酸化物電解法)	— 16
表 4.2 受入燃料組成(酸化物電解法)	— 17
表 4.3 計算条件(酸化物電解法)	— 18
表 4.4 工程別の holdup(酸化物電解法)	— 21
表 4.5 各工程の分岐率(金属電解法)	— 25
表 4.6 受入燃料組成(金属電解法)	— 26
表 4.7 計算条件(金属電解法)	— 27
表 4.8 工程別の holdup(金属電解法)	— 29
 図 2.1 物質収支評価コードの概要	— 2
図 2.2 分岐率の定義	— 3
図 2.3 開発ステップ	— 4
図 3.1 乾式再処理プロセス物質収支評価コードの全体図(例:ANL 法)	— 6
図 3.2 時系列関連項目の設定画面	— 8
図 3.3 卷込溶融塩の設定画面	— 8
図 3.4 蓄積される holdup の時間変化	— 9
図 3.5 holdup 増加量の時間変化	— 9
図 3.6 holdup の特性と時間変化の出力設定画面	— 9
図 3.7 乾式再処理プロセス物質収支評価コードの全体図(改良版)	— 11
図 4.1 酸化物電解法のプロセスフローダイアグラム	— 14
図 4.2 乾式再処理プロセス物質収支評価コードの全体図(酸化物電解法)	— 17
図 4.3 バッチ終了時の溶融塩組成	— 19
図 4.4 バッチ終了時の溶融塩の U、Pu インベントリー	— 19
図 4.5 同時電解工程の holdup 変化	— 20
図 4.6 U 回収量の比($a=10\% / a=0\%$)	— 20
図 4.7 バッチ終了時の溶融塩組成(工程別影響)	— 22
図 4.8 同時電解析出物の塩除去工程後の廃液組成	— 22
図 4.9 同時電解析出物の塩除去工程後の廃液組成(MA)	— 23
図 4.10 金属電解法のプロセスフローダイアグラム	— 23
図 4.11 乾式再処理プロセス物質収支評価コードの全体図(金属電解法)	— 26
図 4.12 バッチ終了時の溶融塩組成	— 27
図 4.13 バッチ終了時の溶融塩中の U インベントリー	— 28
図 4.14 U 回収量の比($a=10\% / a=0\%$)	— 29
図 4.15 バッチ終了時の溶融塩組成(工程別影響)	— 30

1 緒論

現在、実用化されている軽水炉とは異なり FBR(Fast Breeder Reactor)では、高手中性子を利用するという特性から、炉心に装荷される新燃料中への FP(Fission Products)含有率の制限が緩和される。そのため、FBR 再処理システムとして、湿式再処理だけではなく、除染係数は低いが高い経済性が期待できるといわれている乾式再処理も検討されている。

乾式再処理における U、Pu の分離回収では、溶融塩や液体金属を用いた電解・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が、湿式再処理で採用されている溶媒抽出法と比較して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、検討中である乾式再処理システムではプロセスフローが完全に固まっている訳ではなく、主プロセスにおいて工程の変更や追加等が行われる余地が大きい。このようなプロセスフローの変更に対して柔軟に対応しながら、システムを検討していく上で重要な物質収支の評価を行うことが可能であるコードの開発を本研究の目的とした。

一般的に使用されることが多い Fortran 等のプログラム言語を用いて作成された評価コードでは、初期条件だけではなく計算フロー(工程の流れ)にまで及ぶ変更要求に対応できるような柔軟性は有していないため、本研究では Object 指向型ソフトを用いた新しい体系のコード開発を平成 11 年度から行い、既に①工程単位の物質収支評価コードと②再処理プロセス全体の物質収支評価コードを作成した⁽¹⁾。

バッチ処理という運転方法や各機器内で複雑な化学形態をとること等の乾式再処理特有の事情から、湿式再処理とは異なった核物質の管理を行う必要があり、今後乾式再処理のシステム評価を行う上では、物質収支だけではなく保障措置についての検討も重要となってくると考えられる。そこで、平成 12 年度は②の「再処理プロセス全体の物質収支評価コード」に対して、時間変化と工程滞留量(holdup)*を考慮する機能を追加した。具体的には、出力ブロックの改善、各工程の機器の処理能力・台数・マテハン時間を基にした時系列の取り扱い、holdup によるプロセスへの影響評価の導入を実施した。これらの改良により、シミュレーションの時間の単位が 1 バッチという作業を基準としたものから 1 時間という実時間になったため、バッチ中に各工程で扱っている物量の時間変化を追跡することが可能となった。

* MUF(Material Unaccounted For)の発生要因の一つであり、ここではプラント停止後、機器等の内部に残留し測定されないものを示す。

2 物質収支評価コード開発の概要

2.1 コードの概要

Object指向型ソフトを用いて開発している物質収支評価コードでは、基本的な処理を行う機能を有するブロックを作成する。このブロックは、役割をもとに以下の3種類に分類される。

- ①計算ブロック：溶解、沈殿、電解析出、還元抽出、揮発、凝縮等の処理を行う主工程の物質挙動を計算するブロック。
- ②フローブロック：溶媒である溶融塩の分岐・合流や、特定のバッチ数毎に物流の経路を変えるためのブロック。プロセス内の特定の区間における物流量を制限する等、工程管理を行うものも含む。
- ③評価ブロック：物質収支をもとに、放射能や崩壊熱の評価を行うブロック。一般の表計算ソフト形式へのデータの変換や、グラフ表示を行うものも含む。

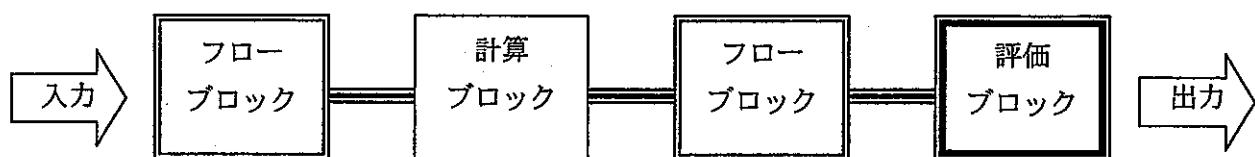


図 2.1 物質収支評価コードの概要⁽¹⁾

各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により多種多様なプロセスの構築が可能となるように、汎用性を考慮しておく必要がある。

本研究で開発の対象としているコードは、以下の2種類のものである。

- I) 工程単位の物質収支評価コード
- II) 再処理プロセス全体の物質収支評価コード

I)の評価コードでは、個々のブロックは工程を構成する機器レベルのものとする。計算ブロックでは、分配係数等の物性データを用いて物質挙動を求

める。II)の評価コードでは、プロセスを構成する工程レベルでブロックを作成する。計算ブロックでは、物質挙動を現象論的に厳密に追跡するのではなく、分岐率を用いて簡略化して物流を取り扱い、プロセス全体の特性を把握することを目的とする。分岐率の定義について以下に示す。



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

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

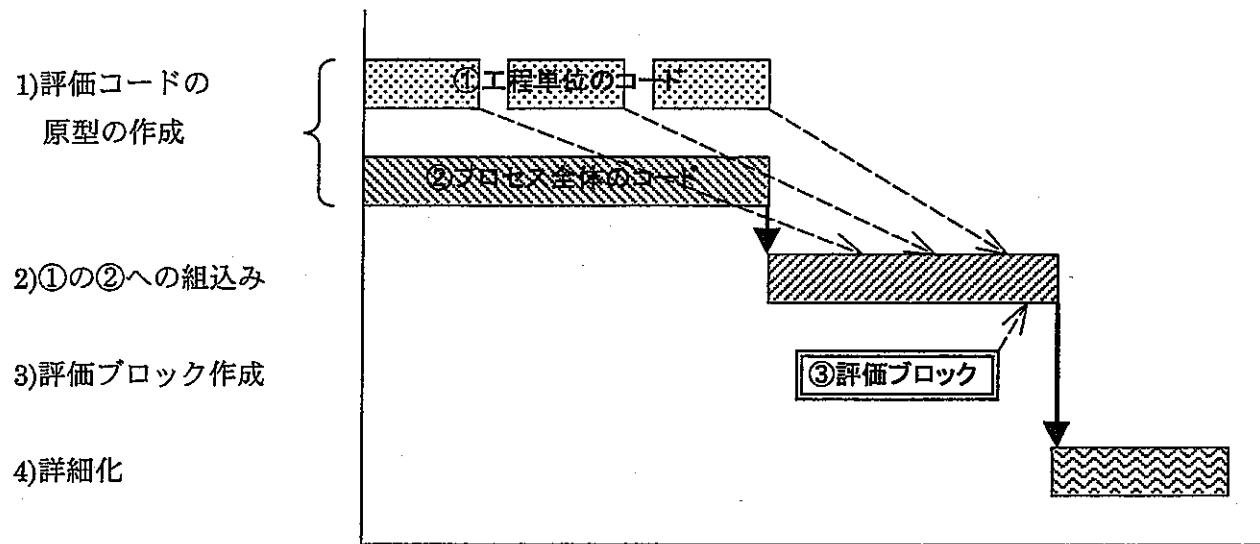
図 2.2 分岐率の定義⁽¹⁾

Object指向型ソフトは、システム構築の自由度が高い反面、極度に複雑な構造を持たせたり、反復計算を行わせると処理に要する時間が急速に長くなるという問題点がある。II)の評価コードの様に再処理プロセス全体の物質収支評価をする場合には、シミュレーションの対象範囲が広いため、各工程ブロックの物質挙動については簡略化をする必要がある。この時に用いる分岐率の値は、実験や工程単位の物質収支評価コードによる計算の結果をもとに設定する。

2.2 開発手順と平成12年度の作業

Object指向型ソフトを用いたコード開発では、プロセスフロー自体の変更も新しい工程(ブロック)の作成や追加も容易に行うことができるため、解析対象や適用範囲について事前に詳細な検討をする必要はない。

この点を考慮して、物質挙動モデルを取り扱う工程単位の物質収支評価コードと、再処理プロセス全体の物質収支評価コードの開発を互いに調整できるように開発ステップを設定した(図2.3)。



1) 評価コードの原型の作成。

①物質挙動のモデル化を行い、工程単位の物質収支評価コードを作成する。

②プロセスのモデルを構築する上で必要となる要素(ブロック)について検討を行い、再処理プロセス全体の物質収支評価コードを作成する。

2) ①の結果を反映させて②の工程ブロックにおける分岐率を設定する。

3) ③の評価ブロックを作成して②へ組み込む。

4) 通常時の物流だけではなく、機器停止等による工程の処理能力低下の影響といった実際の操業に即した物流を考慮できるようにモデルを詳細化する。

図 2.3 開発ステップ

平成 11 年度に作成した物質収支評価コードを以下に示す。

●工程単位の物質収支評価

a) バイロコンタクタ*を用いた抽出工程評価コード

●再処理プロセスの物質収支評価

b) ANL(Argonne National Laboratory)法**電解プロセス物質収支評価コード

c) 乾式再処理プロセス物質収支評価コード

平成 12 年度は酸化物燃料を対象とした複数の乾式再処理システムについて評価することを目的として、b)、c)の評価コードの中より汎用性を持っている「乾式再処理プロセス物質収支評価コード」をもとに改良を行った。物質収支を計算するときに必要となる分岐率は、現時点で分かっている実験結果や標準電位等の物性値から設定した⁽²⁾。

* ANL で開発された遠心抽出器であり、Li 等の還元剤を含む金属相(Cd)と溶融塩を向流接触させることにより、U、TRU(Transuranium)を金属相へ還元抽出する。

**ANL で開発された金属燃料を対象とした乾式法であり、酸化物燃料を取り扱う金属電解法⁽²⁾のもととなったプロセスである。

3 物質収支評価コードの改良

3.1 これまでの開発状況

平成 11 年度、開発した「乾式再処理プロセス物質収支評価コード」によって作成したモデルを図 3.1 に示す。モデルは金属燃料の再処理を目的とした ANL 法のプロセスであり、浴塩精製過程のゼオライトカラムによる Cs の吸着工程等、一部の工程については省略した。

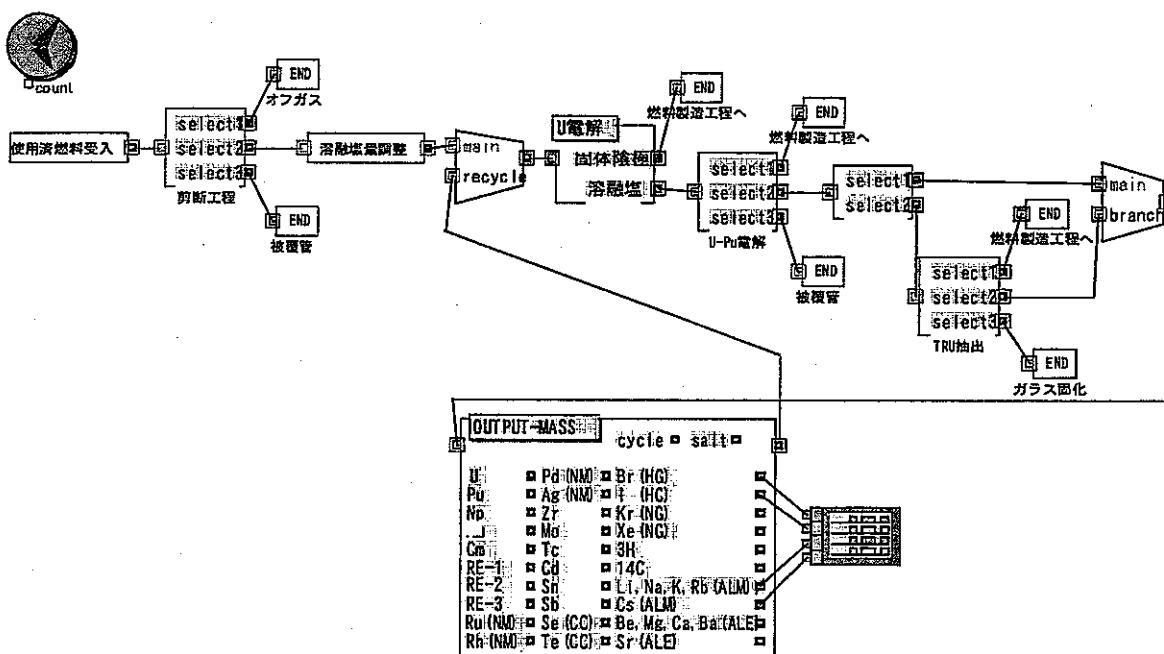


図 3.1 乾式再処理プロセス物質収支評価コードの全体図⁽¹⁾ (例:ANL 法)

この物質収支評価コードの特徴を以下に示す。

- 各工程での物質収支は、全て分岐率を基に算出。
- U 電解では、電解後の溶融塩中の Pu 富化度を設定することが可能。
- 溶融塩等の媒体のリサイクルを考慮することが可能。
- 各ブロックの機能に汎用性をもたせることで、ブロックの種類を抑制。
- プロセスのモデル作成を行うときのルールの単純化。

物流の計算時間はバッチ数を基本単位としているため、取り出せる情報は、1 バッチが終了した時点での製品や廃棄物の発生量とそのバッチで工程間を

流れた総物量である。

これに対して、平成 12 年度は実時間に基づく物流、電解析出物への付着塩、holdup の影響を評価するための機能を追加した。コードの詳細な取り扱い方法については、APPENDIX に示す。

3.2 出力ブロックの改良

これまでの評価コードでは、プロセス中の工程間を移動する物量や最終製品の物量を読み出すための出力ブロック(図 3.1 の OUTPUT-MASS ブロック)には、以下の問題があった。

- ①30 種類の元素の物量を読み出すためのコネクターを設置したため、プロセスの主工程のブロック(図 3.1 の剪断工程、U 電解工程等)と比較してサイズが大きくなり、スペース上の問題からモデル中で使用できる出力ブロックの数が制限された。
- ②各元素の物量を質量単位、放射能単位、崩壊熱単位で出力させるためのブロックが別々のものであったため、単位の変更に伴い出力ブロックを差し替える必要があった。
- ③物量の情報を得るために、対象としている元素のコネクターと、グラフ化やデータ蓄積をするプロッタブロックのコネクターを接続線で結線するため、対象とする元素の数だけ接続線を作図する必要があった。

これらの問題点を解決するために、2 つの改良を行った。第一点として、値抽出ブロック(表 3.1)を作成したことにより、物流の値をプロッタブロックに接続線を用いることなく受け渡しが可能となった。また、ブロックは、元素の物量を読み出すためのコネクターが不要となりサイズが小さくなつたため、スペース上の制約がなくなった。さらに、以前は物量が各工程別にしか出力されなかつたが、同じプロッタブロックに異なる箇所からのデータを転送することにより、剪断工程→U 電解工程→U-Pu 電解工程→・・・→製品等、工程順序に従って出力することができるようになった。第二点として、プロッタブロックを拡張し、30 種類の元素を直接表示できるようにした。作成したブロックについては、3.6 節の表 3.1 に一括して示す。

3.3 時系列

各工程において、主要機器の処理能力や設置台数とマテリアルハンドリン

グに要する時間を設定することにより実時間単位の物流を追跡することができるようとした。ある工程で処理作業中に前の工程から処理対象物が搬入され物流に遅延が生じるときにはエラーが表示されるため、その工程の処理速度等を調整することによって対応する。溶融塩の分岐・合流や特定のバッチ数毎に物流の経路を変更する等の工程管理を行うフローブロックについては、作業時間を入力できるようにした。

機器当たりの処理速度 [kg/hr] =	<input type="text" value="0"/>	作業時間 [hr] :	<input type="text" value="0"/>
装置数[基] =	<input type="text" value="0"/>		<input type="text" value="0"/>
マテハン時間 [hr] =	<input type="text" value="0"/>		<input type="text" value="0"/>

図 3.2 時系列関連項目の設定画面

3.4 電解析出物への巻込溶融塩

これまで評価コードでは、富化度調整の役割を兼ねている U 電解以外の電解工程(U-Pu 電解等)については他の工程と同じ分岐ブロックを用いていたため、物流の出口は処理後の溶融塩、電解析出物、その他廃棄物だけであった。しかし実際には、電解析出物の中に溶融塩の一部(巻込溶融塩)が付着し、水洗浄により陰極処理を行う酸化物電解法⁽²⁾ではこれは廃棄物となる。廃棄物へ移行する物量を把握するために、巻込溶融塩の量を電解析出物に対する重量割合で指定できる電解工程専用のブロックを作成した。電解工程ブロックの陰極析出物のコネクタから出力される物量は、電解析出物と巻込溶融塩を合計したものである。これに対応して、両者を分離するための陰極処理装置専用のブロックも作成した。これらブロックについては 3.6 節の表 3.1 に示す。

巻込溶融塩重量割合 [%] =	<input type="text" value="0"/>
浴塩中のPu富化度 [%] =	<input type="text" value="0"/>

図 3.3 巷込溶融塩の設定画面

3.5 工程滞留量の影響評価

プラントの操業中に流れている物量の内、常に一定の割合が装置内に滞留して holdup となるのではなく、運転初期(装置更新時も含む)では holdup となる割合は大きいが、時間の経過とともに飽和してある一定量以上には増加

しない。物質収支評価コードでは以下の式で holdup を定義した。

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

x : バッチ数

H_x : x バッチ目の holdup [kg]

a : 平衡滞留量割合 [%] (= 平衡状態での holdup/1 バッチ当たりの物流量)

b : 滞留量特性係数(滞留量の時間変化を設定)

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 holdup の変化を図に示す。図 3.4 はバッチ数の増加に伴う holdup の総量変化を、図 3.5 は各バッチにおいて holdup となる量の変化を表している。

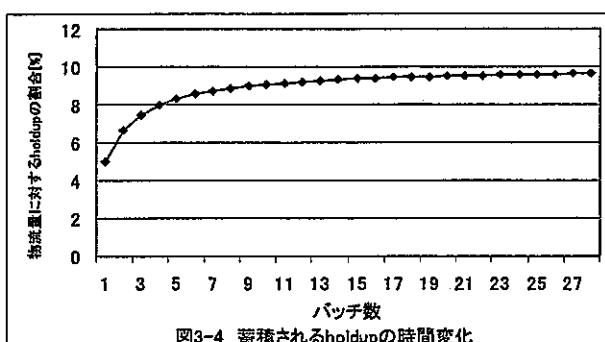


図3-4 蓄積されるholdupの時間変化

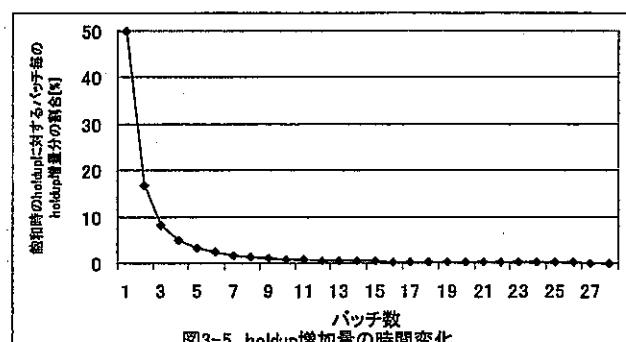


図3-5 holdup増加量の時間変化

holdup によるシステムの物流への影響評価をするときには、各工程で平衡滞留量割合 a と滞留量特性係数 b を設定する必要がある。計算終了後にアクチノイド元素については、ブロック(工程)の条件設定画面の下方に holdup が表示されるようになっている。holdup の時間変化の情報を得るためにには、条件設定画面中にある holdup データ受入ブロック名(出力ブロック)を指定すればよい。

平衡滞留量割合 [%] =	<input type="text" value="0"/>
滞留量特性係数 [-] =	<input type="text" value="0"/>
holdupデータ受入ブロック名 (不要時はunused)	<input type="text" value="output1"/>
未使用オプション (unused)に固定。)	<input type="text" value="unused"/>

図 3.6 holdup の特性と時間変化の出力の設定画面

3.6 構成ブロックの一覧とモデルの作成例

乾式再処理プロセス物質収支評価コードで、モデルを構成するときに使用するブロックとその役割について表 3.1 に示す。

表 3.1(1/2) 構成ブロック一覧

	1 バッチ毎にプロセスに入量される物量を元素別に設定する。		指定されたバッチ間隔毎に経路を切り替える。
	初期の溶融塩量と定期的に補給する溶融塩量を設定する。		リサイクルにより還流された物流を合流させる。
	特定区間の物量を制限する。		分岐された物流を合流させる。
	物流の終点。		

表 3.1(2/2) 構成ブロック一覧

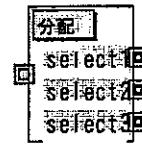
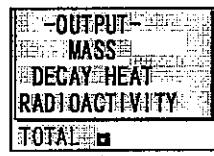
	設定された分岐率をもとに、物流を 2 つに分割する。		設定された分岐率をもとに、電解回収を行う。巻込溶融塩も設定する。
	設定された分岐率をもとに、物流を 3 つに分割する。		電解析出物と巻込溶融塩を分離する。
	設定された分岐率をもとに、電解回収を行う。巻込溶融塩も設定する。		指定された出力ブロックに接続線なしで、物量のデータを受け渡す。
	設定された電解処理後の溶融塩中の Pu 富化度をもとに、電解回収を行う。巻込溶融塩も設定する。		データを読み出す出力ブロック。最大 30 種類の元素までのグラフ化が可能。

図 3.1 の ANL 法のモデルについて、改良後の物質収支評価コードを用いて作成し直したものを図 3.7 に示す。

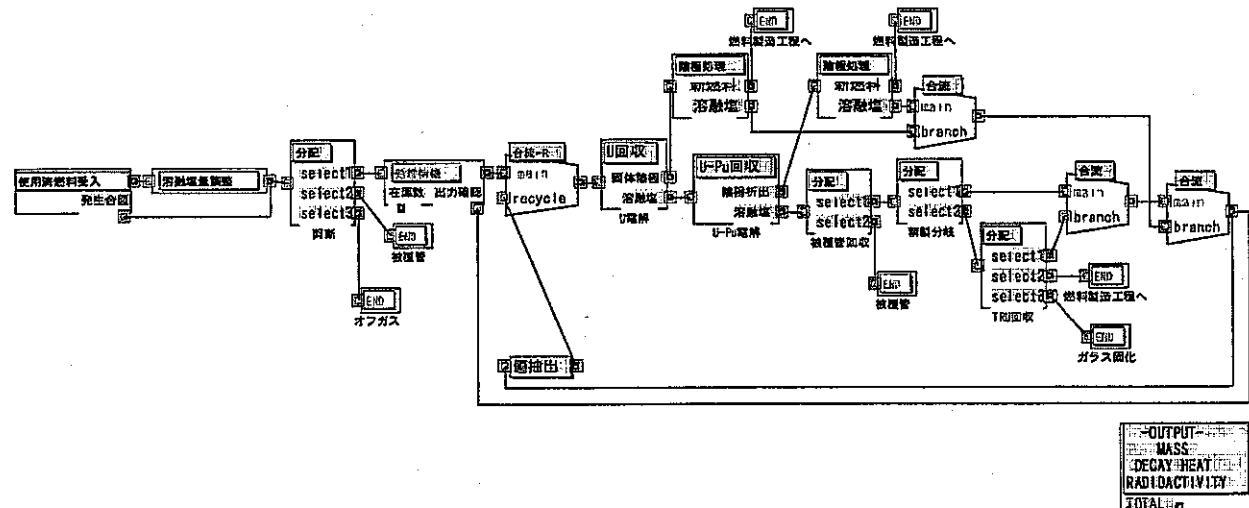


図 3.7 乾式再処理プロセス物質収支評価コードの全体図(改良版)

4 乾式再処理プラントの操業への工程滞留量の影響評価

4.1 乾式再処理プラントにおける工程滞留量

再処理プラントのような施設では、保障措置の適用を受ける核物質について計量管理を行う必要がある。一般的に、MBA(Material Balance Area)単位で、受入量、派出量、在庫量を計量することによってその管理は実施される。在庫量については定期的に棚卸しを行い実在庫量を確認し、前回の棚卸し時の実在庫と在庫変動との代数和である帳簿在庫の間に生じる差であるMUFを求める。MUFが測定誤差等により予測される不確かさの範囲を超えていた場合には、MUFの発生原因の解明を行う義務が発生する。

MUFの発生要因として考えられるものを以下に示す。

- ①測定誤差
- ②分析精度上の誤差
- ③計量における誤り
- ④測定されない損失
- ⑤holdup(測定されない在庫)

乾式再処理プラントでは、測定点の設置箇所については十分な検討がなされていない。計量管理や運転管理上、測定点を設ける必要がある箇所を推測することは可能であるが、場所により測定対象の状態が多種多様であること、また測定方法自体も確立していないため①と②について評価することは困難である。③と④は、基本的に起こり得ない異常事象であるため、正常に操業しているプラントでは考慮する必要はない。

従って、本検討では、保障措置で重要なMUFの発生要因として、holdupのみを取り扱うこととした。holdupとは、プラントの操業を停止した時には、工程内の装置、配管、隣接作業区域の中及びその付近に残留している核物質を、また操業中の場合には、工程内に存在する核物質の量を示す。これらは、IKMP(Inventory Key Measurement Point)が設置されている貯蔵箇所とは異なり、測定されない在庫となる。評価コードに追加したholdupの評価機能は、装置内に滞留するもの、即ちプラントの操業を停止した時にholdupと呼ばれるものの影響を評価するためのものである。

乾式再処理プラントでは、工程内で溶融塩中の溶質、沈殿物、電解析出物、気体、粉体等様々な相と化学形態をとるため核物質は複雑な挙動を示し、ま

た塩化物を高温で取り扱うことから装置部材への沈着が考えられる。湿式再処理プラントでは、硝酸溶液等で装置を洗浄することにより装置内部に残留した核物質を回収することが可能であるが、乾式再処理プラントでは、バッチ処理であるため個々の機器が独立していて、さらに設置されているセル内は溶融塩を使用するために乾燥雰囲気に維持されているので水溶液等で機器を洗浄することは困難である。従って、機器内部に残留した核物質を回収するためには、機器を保守専用のセルに移動させて分解する必要があり、機器の補修時以外に行なうことは操業の妨げとなるので現実的ではない。これより、湿式再処理プラントと比較して holdup は増加すると考えられ、その影響について検討を行うことは重要である。

以下の節において酸化物電解法⁽¹⁾と金属電解法⁽²⁾のプロセスに対して解析を行うが、そこでそれぞれのプロセスの概要とともに各工程における holdup 要因についても記述する。

4.2 酸化物電解法

4.2.1 プロセス概要

酸化物電解法のプロセスフローダイアグラムを図 4.1 に示す。

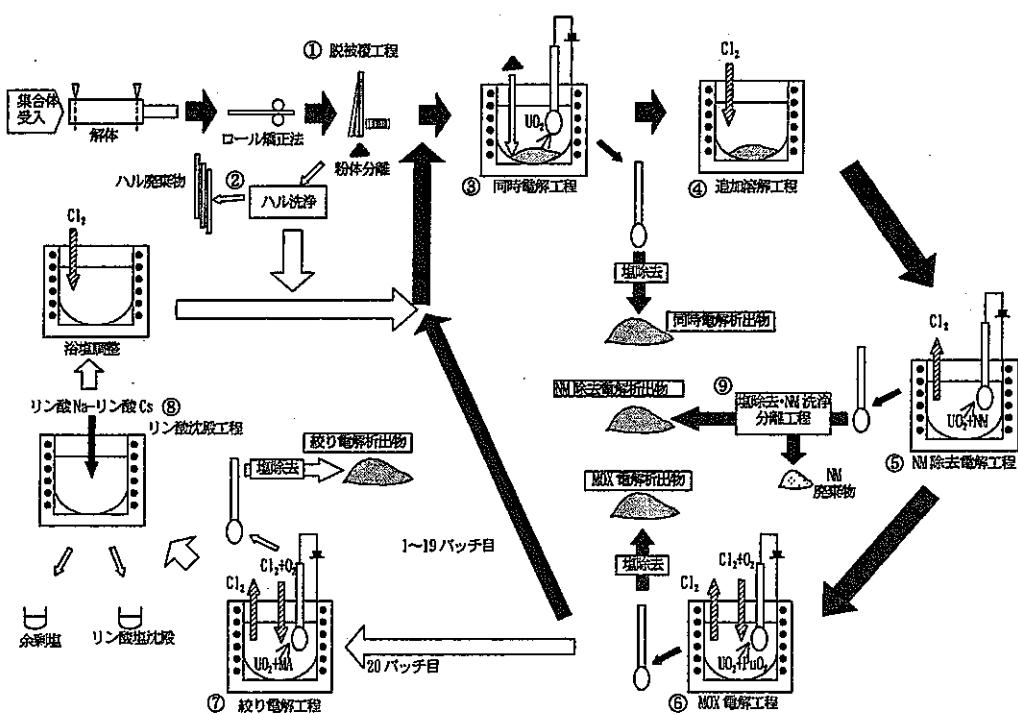


図 4.1 酸化物電解法のプロセスフローダイアグラム⁽²⁾

各工程の説明と、holdup 要因として考えられる事象について述べる。

①脱被覆工程

ロール矯正法で燃料を粉碎した後、燃料ピンの下部端栓部を切断し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のでハル洗浄を行う。

[holdup 要因]バルクである粉末を取り扱うため、装置内壁等への付着。

②ハル洗浄工程

ハルを溶融塩中に浸漬させ、 $ZrCl_4$ で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。

[holdup 要因]容器の内壁への付着。

③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、 UO_2 のみを陽極から溶解させて固体陰極により回収する。

[holdup 要因]電解槽の内壁への付着。固体陰極やそのハンドリングのための周辺装置への付着。

④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 UO_2 やその他の元素を溶融塩中に溶解させる。

[holdup 要因]電解槽の内壁への付着。ガス吹込管への付着。追加溶解により、溶解されなかつた残渣。

⑤NM 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(Noble Metal)の混入が避けられないため、低電流で電解して NM を選択的に溶融塩中から取り除く。

[holdup 要因]電解槽の内壁への付着。固体陰極やそのハンドリングのための周辺装置への付着。

⑥MOX 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+} に酸化しながら、固体陰極に UO_2 、 PuO_2 を同時に析出させる。得られた析出物は MOX 製品となる。

[holdup 要因]電解槽の内壁への付着。ガス吹込管への付着。固体陰極やそのハンドリングのための周辺装置への付着。酸素ガスによる酸化反応が進行して、電解反応を介さずに PuO_2 となつた沈殿物。

⑦絞り電解工程

溶融塩中に残留している U、Pu、MA(Minor Actinoids)を回収する。析出物は燃料製造工程へ送られる。

[holdup 要因]電解槽の内壁への付着。固体陰極やそのハンドリングのための周辺装置への付着。

⑧リン酸沈殿工程

溶融塩と同じ割合のリン酸 Na とリン酸 Cs 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。リン酸塩の投入による溶融塩の增量分を余剰塩として除去することで、崩壊熱が大きく溶融塩の使用限度に影響を及ぼす Cs の濃度を平衡状態に維持する。

[holdup 要因]電解槽の内壁への付着。未回収となる沈殿物。

⑨NM 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 UO_2 が混入しているため、水中で両者の比重差を利用して分離し、 UO_2 を回収する。

[holdup 要因]装置や配管等への付着。顆粒状の析出物の沈着。

MOX 電解後、溶融塩は直接リサイクルされるが、残留 FP の発熱量の問題から 20 バッチ毎に絞り電解工程とリン酸沈殿工程から構成される溶融塩精製過程へ送られる。

物流を計算する上で用いた各工程における分岐率を以下に示す。分岐率の値は、参考文献(2)に記載されている平均マスバランス表を参考に設定した。

表 4.1(1/2) 各工程の分岐率(酸化物電解法)[%]

元素	受入 燃料	脱被覆工程		ハル洗浄工程		同時電解工程		追加溶解工程	
		燃料粉体	ハル洗浄	回収燃料	ハル 廃棄物	同時電解 析出物	処理後 溶融塩	処理後 溶融塩	オフガス
U	100.0	99.0	1.0	89.9	10.1	70.0	30.0	100.0	0.0
Np	100.0	99.0	1.0	91.3	8.7	70.0	30.0	100.0	0.0
Pu	100.0	99.0	1.0	91.3	8.7	0.5	99.5	100.0	0.0
Am	100.0	99.0	1.0	91.3	8.7	0.1	99.9	100.0	0.0
Cm	100.0	99.0	1.0	91.3	8.7	0.0	100.0	100.0	0.0
ALE	100.0	99.0	1.0	100.0	0.0	0.0	100.0	100.0	0.0
RE	100.0	99.0	1.0	100.0	0.0	0.1	99.9	100.0	0.0
NM	100.0	99.0	1.0	100.0	0.0	10.0	90.0	100.0	0.0
他FP	100.0	99.0	1.0	100.0	0.0	0.0	100.0	100.0	0.0

表 4.1(2/2) 各工程の分岐率(酸化物電解法)[%]

元素	NM 除去電解工程		MOX 電解工程		絞り電解工程		リン酸沈殿工程			NM 洗浄分離工程	
	電解 析出物	処理後 溶融塩	MOX 析出物	処理後 溶融塩	絞電解 析出物	処理後 溶融塩	リン酸 塩沈殿	余剰塩	処理後 溶融塩	NM 除去 析出物	NM 廃棄物
U	20.2	79.8	90.5	9.5	100.0	0.0	-	-	-	99.0	1.0
Np	33.3	66.7	100.0	0.0	-	-	-	-	-	100.0	0.0
Pu	0.5	99.5	90.5	9.5	100.0	0.0	-	-	-	100.0	0.0
Am	0.1	99.9	0.1	99.9	98.6	1.4	100.0	0.0	0.0	100.0	0.0
Cm	0.0	100.0	0.0	100.0	95.5	4.5	100.0	0.0	0.0	-	-
ALE	0.0	100.0	0.0	100.0	0.0	100.0	0.0	37.5	62.5	100.0	0.0
RE	0.1	99.9	0.1	99.9	10.1	89.9	99.8	0.0	0.3	100.0	0.0
NM	95.0	5.0	100.0	0.0	-	-	-	-	-	5.3	94.7
他FP	0.0	100.0	0.0	100.0	0.0	100.0	100.0	0.0	0.0	-	-

注)ALE:Alkali Metals、RE:Rare Earth。

4.2.2 計算条件

酸化物電解法プロセスの物質収支評価をするために作成した評価コードのモデルを図 4.2 に示す。

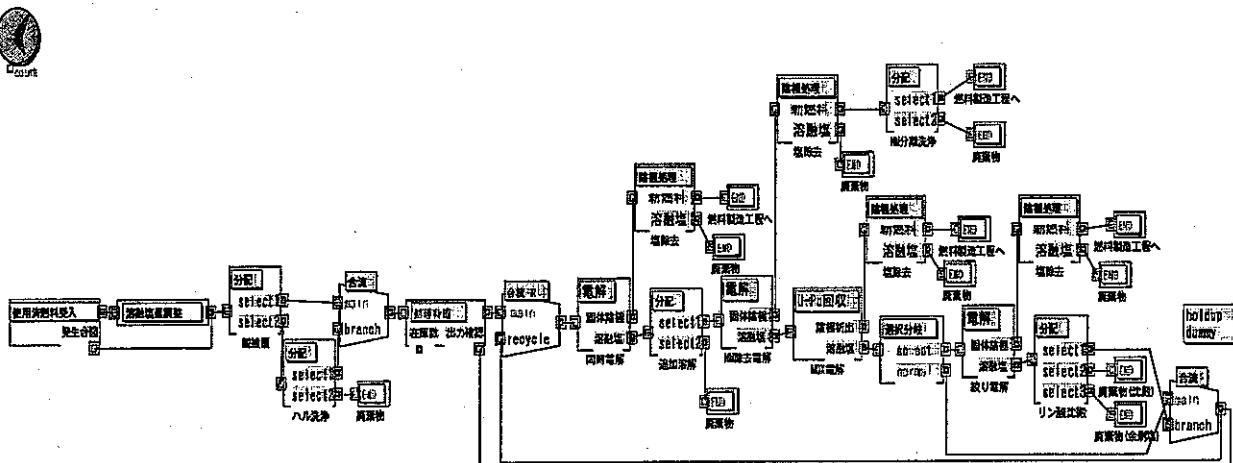


図 4.2 乾式再処理プロセス物質収支評価コードの全体図(酸化物電解法)

1 バッチ当たりに受け入れる燃料の総重量は 249.58kg であり、その組成⁽²⁾を以下に示す。

表 4.2 受入燃料組成(酸化物電解法)⁽²⁾

種類	重量[kg]
U	207.49
Np	0.10
Pu	23.85
Am	0.74
Cm	0.24
HM 合計	232.42
ALE	1.88
RE	4.72
NM	4.62
その他 FP	5.94
FP 合計	17.16

これは年間処理量 50t、稼働日数 200 日のプラントが、1 日当たりに処理する量である。受入燃料は FBR の使用済燃料であり、炉心平均燃焼度が 15 万 MWd/t、冷却期間が 4 年のものである。

電解工程で使用される溶融塩の量は、受入燃料の 10 倍の 2500kg とした。

同時電解工程、NM 除去電解工程、MOX 電解工程、絞り電解工程における巻込溶融塩は、電解析出物が酸化物の緻密な結晶であるので主に表面に付着するものと考え、重量割合を 1wt%と仮定した。巻込溶融塩の影響により電解槽中の溶融塩が減少しないように、バッチ毎に溶融塩の補給を行った。

計算対象は、平衡滞留量割合 a をパラメータとした以下の 6 ケースである。

表 4.3 計算条件(酸化物電解法)

No.	平衡滞留量割合 a [%]	バッチ当たりの溶融塩の平均補給量[kg]
1	0(全工程)	2
2	1(全工程)	8
3	10(全工程)	70
4	0(脱被覆工程)	
	10(その他の工程)	70
5	0(同時電解工程)	
	10(その他の工程)	70
6	0(MOX 電解工程)	
	10(その他の工程)	70

holdup の増減に対するプロセスへの影響を見るためにケース 1~3 を、また工程別に影響の相違を見るためにケース 4~6 を設定した。全てのケースで滞留量特性係数 $b=-1$ とした。計算は、溶融塩精製が実施される 20 バッチまで行った。

4.2.3 計算結果

①リサイクル溶融塩の組成に対する平衡滞留量割合 a の影響

holdup がない条件下($a=0\%$)におけるバッチ終了時の溶融塩組成変化を図 4.3 に示す。

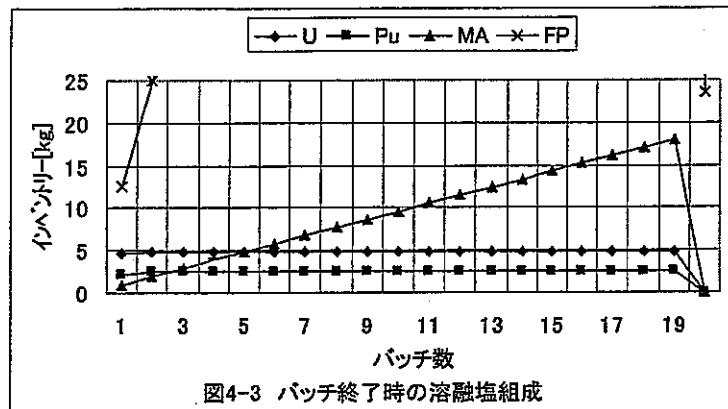
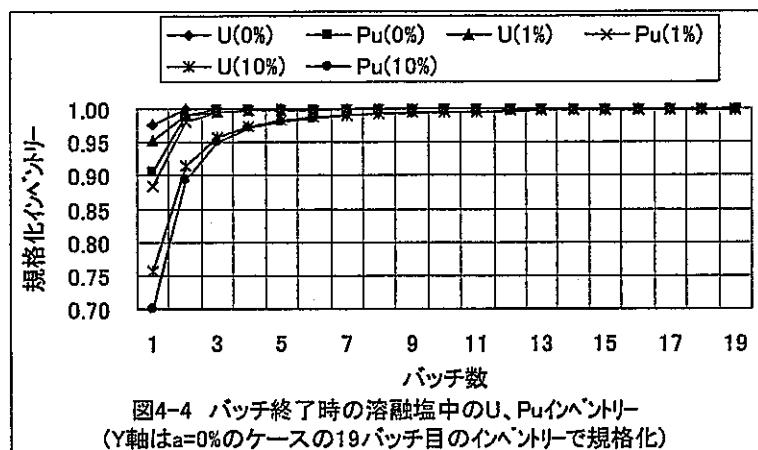


図4-3 バッチ終了時の溶融塩組成

絞り電解工程以外では殆ど回収されがない MA は、バッチ数に比例してインベントリーが増加している。NM は電解操作により除去されるがその他の FP が溶融塩中に蓄積されていくため、19 バッチ目には FP の総インベントリーは 233kg となる。U、Pu については 1 バッチの回収率が 100%ではないことから 3 バッチ目まではインベントリーが増加するが、それ以降では平衡状態となる。

ここで平衡滞留量割合 a の値を 0%、1%、10%と変動させて、リサイクル溶融塩中のインベントリーが平衡となる U、Pu について比較した。

図4-4 バッチ終了時の溶融塩中のU、Puインベントリー
(Y軸はa=0%のケースの19バッチ目のインベントリーで規格化)

平衡滞留量割合 a の値が大きいほど、溶融塩中の組成が平衡状態、即ち、holdup の影響がなくなるまでに長い時間を要することが分かる。 $a=1\%$ では holdup がないケースと同様に 3 バッチ目で平衡となるが、 $a=10\%$ では 12 バッチ目まで holdup の影響が及んでいる。

②工程の順序と holdup の影響の関係

平衡滞留量割合 a が 1%であるときの同時電解工程における holdup の時間変化を図 4.5 に示す。

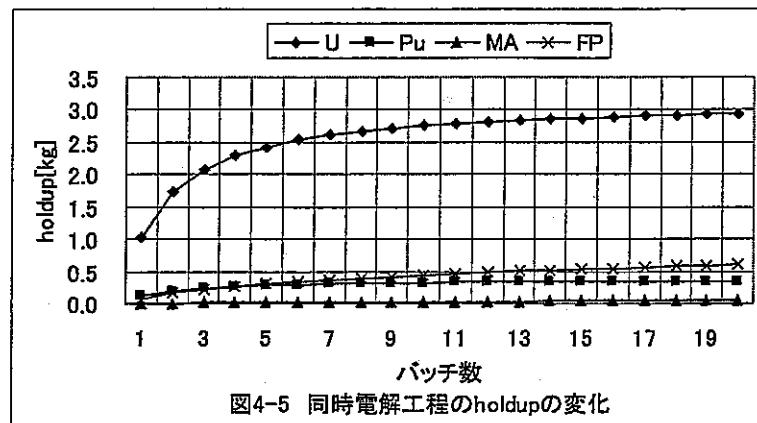
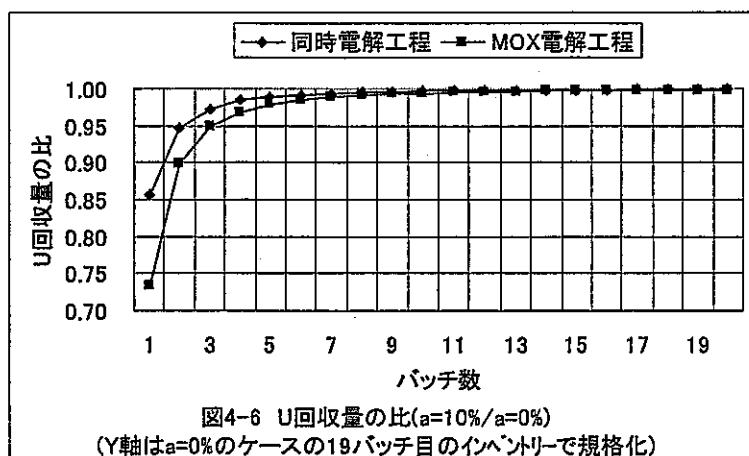


図 3.4 では工程の受入量は一定であるが、この同時電解工程では直前の脱被覆工程でも holdup が発生することからバッチ数と共に受入量が変化しているため、同じ値の滞留量特性係数 b を用いても平衡状態に到達するまでに要する時間が長くなっている。このことから holdup による影響は、上流の工程から逐次なくなっていくことが分かる。

$a=0\%$ と $a=10\%$ の 2 ケースについて、同時電解工程と MOX 電解工程で回収される U 製品の重量の比較を行った。



両工程の中で上流にある同時電解工程の方が、U の回収量が短時間で平衡状態に接近する。しかし、holdup の影響がなくなり回収量が安定するのは、両工程ともバッチ終了時の溶融塩組成が平衡状態になる 12 バッチ

以降である。これは製品への holdup の影響は、各工程内の holdup とりサイクル溶融塩中に残留する U のインベントリーに起因しているためである。前者は上流の工程のほうが早く解決されるが、後者については工程順序は関係しない。

③工程毎の holdup とその影響

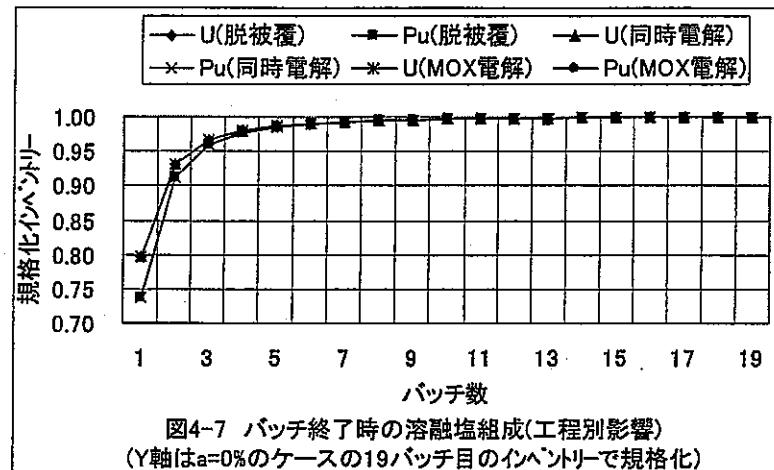
全工程で $a=10\%$ としたときの各工程における holdup を表 4.4 に示す。

表 4.4 工程別の holdup(酸化物電解法)[kg]

工程	U	Pu	Np	Am	Cm
脱被覆工程	1.98E+01	2.27E+00	9.52E-03	7.05E-02	2.29E-02
ハル洗浄工程	2.83E-01	3.26E-02	1.37E-04	1.01E-03	3.28E-04
同時電解工程	2.86E+01	3.41E+00	1.36E-02	2.90E-01	9.48E-02
追加溶解工程	8.34E+00	3.30E+00	3.98E-03	2.86E-01	9.36E-02
NM除去電解工程	8.12E+00	3.21E+00	3.87E-03	2.83E-01	9.26E-02
MOX電解工程	6.31E+00	3.12E+00	2.51E-03	2.79E-01	9.15E-02
絞り電解工程	1.15E-03	5.88E-04	0.00E+00	3.21E-03	1.07E-03
リン酸塩沈殿工程	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	4.49E-05	4.82E-05
NM分離洗浄	1.55E+00	1.53E-02	1.22E-03	2.76E-04	0.00E+00
陰極処理	同時電解	1.95E+01	1.81E-02	9.28E-03	4.39E-04
	NM除去電解	1.60E+00	1.58E-02	1.25E-03	2.99E-04
	MOX電解	5.56E+00	2.75E+00	2.24E-03	3.56E-04
	絞り電解	1.15E-03	5.88E-04	0.00E+00	3.16E-03

5 元素とも同時電解工程の holdup が、最も大きくなっている。その原因是、受け入れた全量が同じバッチ内で回収されない元素は、媒体に蓄積されていくため、受入燃料だけを取り扱う脱被覆工程等よりも媒体であるリサイクル溶融塩にそれを投入する同時電解工程以降の方が、工程内インベントリー、即ち、物流量が大きくなるためである。実際に第 1 バッチ目では、U は 2.27%、Pu は 9.40%が溶融塩中に残留する。U よりも回収率が低い Pu や溶融塩精製のない通常サイクル(1~19 バッチ)において殆ど回収されることがない Am、Cm は、MOX 電解工程よりも脱被覆工程の holdup が少なくなる。また、この回収率の差は、図 4.4 に見られるような Pu と U のインベントリー変化の相違を引き起こす。

全工程において $a=10\%$ としたまま、脱被覆工程、同時電解工程、MOX 電解工程に対してそれぞれ個別に $a=0\%$ と設定したケース 4~6 について、バッチ終了時の溶融塩組成を図 4.7 に示す。



第1番目の工程、Uを扱う中心的な工程、Puを扱う中心的な工程を選別したが、工程毎の相違は現れなかった。このことから holdup のプロセスへの影響(製品の安定性)を考えたときには、特定の工程を選別して対応するよりもプロセス全体の平衡滞留量割合 a を低く抑えることが重要である。

④巻込溶融塩の組成変化

酸化物電解法では、巻込溶融塩は水洗いにより析出物から除去され廃液として処理される。全工程で $a=0\%$ のときに、同時電解工程で得られた析出物を洗浄することにより生じる廃液の組成を図 4.8 に示す。

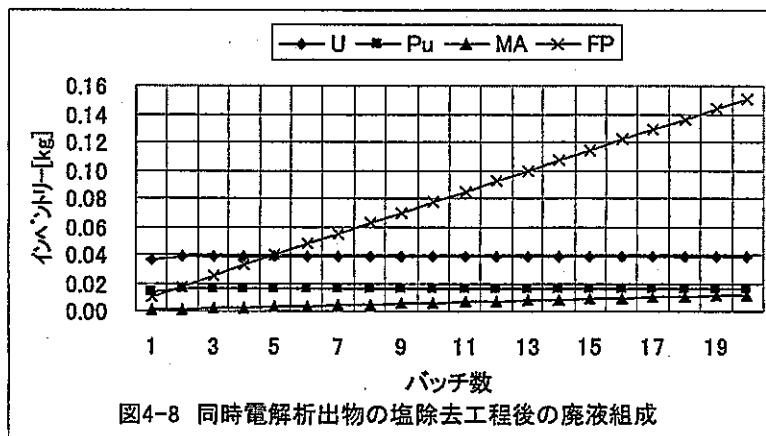
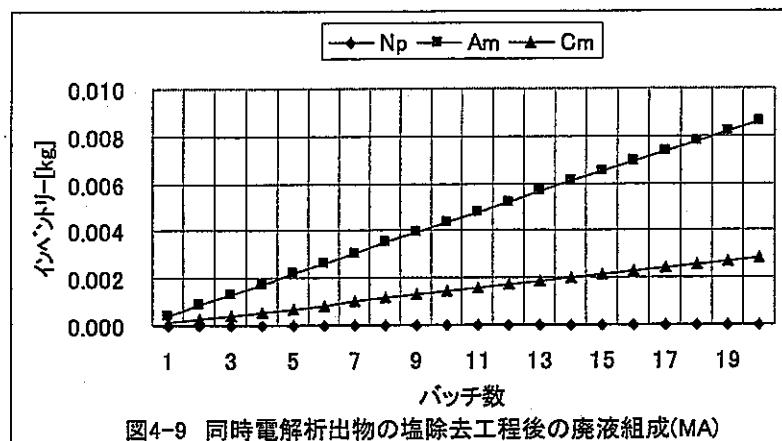


図 4.3 のバッチ終了時の溶融塩組成と同様に、MA、FP は時間と共に単調増加し、U、Pu は4バッチ以降では平衡状態となっている。同時電解工程で回収される U は約 148.5kg であることから、ここで得られる製品のうち 0.03wt% が廃棄物へ移行する。

廃液中の MA の内訳を図 4.9 に示す。



Am、Cmは1~19バッチでは回収されずに溶融塩中に残留するが、NpはUと挙動が類似しているため溶融塩中への蓄積量は少なく飽和する。従って、廃液中のMAは、Am、Cmが主成分となっている。

4.3 金属電解法

4.3.1 プロセス概要

金属電解法のプロセスフローダイアグラムを図4.10に示す。

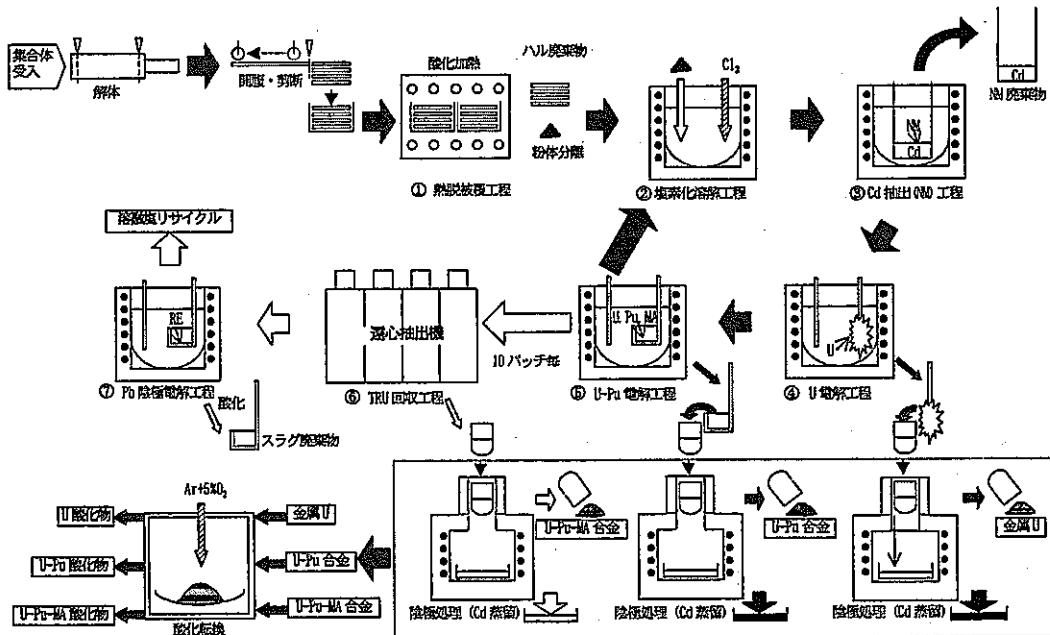


図4.10 金属電解法のプロセスフローダイアグラム⁽²⁾

各工程の説明と、holdup 要因とした考えられる事象について述べる。

①熱脱被覆工程

燃料ピンを開腹・剪断して酸化加熱処理を施し、 $\text{UO}_2 \rightarrow \text{U}_3\text{O}_8$ 反応に伴う体積膨張により燃料を粉体化させて被覆管と分離する。

[holdup 要因]バルクである粉末を取り扱うため、装置内壁等への付着。

②塩素化溶解工程

塩素ガスを吹き込むことにより、電解槽へ投入された燃料粉末を全量溶解させる。

[holdup 要因]電解槽内壁への付着。ガス吹込管への付着。溶解されなかつた残渣。

③Cd 抽出(NM)工程

NMは還元されやすいので、U回収時の混入を防ぐため予め除去しておく必要がある。坩堝に入れた液体 Cd と溶融塩を接触させることにより、溶解している NM の塩化物を還元抽出する。

[holdup 要因]電解槽内壁への付着。液体 Cd 用坩堝壁面やそのハンドリングのための周辺装置への付着。

④U 電解工程

次工程の U、Pu 同時回収を行うためには Pu/U 比を高くする必要があるので、本工程で固体陰極を用いて予め余分な U を回収する。酸化物電解法とは異なり、陽極は電解槽ではなくグラファイト製の電極を使用する。

[holdup 要因]電解槽内壁への付着。陽極、固体陰極やそのハンドリングのための周辺装置への付着。

⑤U-Pu 電解工程

液体 Cd 陰極を用いることにより、Pu の標準電位をシフトさせて U と同時に回収を行う。

[holdup 要因]電解槽内壁への付着。陽極、陰極用坩堝壁面やそのハンドリングのための周辺装置への付着。

⑥TRU 回収工程

パイロコンタクタを用いて溶融塩を液体 Cd と向流接觸させて、液体 Cd 中に U、Pu、MA を還元抽出する。還元剤として液体 Cd 中には、Li を溶解させる。

[holdup 要因]パイロコンタクタ、配管内壁への付着。

⑦Pb 陰極電解工程

溶融塩に残留している FP の崩壊熱により溶融塩の使用限度は決定されるため、本工程で溶融塩の一部を電解して Sr、RE を除去することによって使用期間を長期化させ、塩廃棄物の発生量を抑制する。

[holdup 要因] Pb 陰極電解用電解槽や酸化処理用坩堝内壁への付着。陽極、陰極用坩堝壁面やそのハンドリングのための周辺装置への付着。

溶融塩は通常、U-Pu 電解後に直接リサイクルされるが、10 バッチ毎に残留 FP の発熱量の問題から TRU 回収工程と Pb 陰極電解工程によって構成される溶融塩精製過程へ送られる。蓄積した Cs による発熱量が電解槽の自然冷却による除熱量を超えた時点で、溶融塩は廃棄される。

物流を計算する上で用いた、各工程における分岐率を以下に示す。分岐率の値は、参考文献(2)に記載されている平均マスバランス表を参考に設定した。なお、塩素化溶解は全量が溶解されたため分岐率表から省略した。

表 4.5(1/2) 各工程の分岐率(金属電解法)[%]

元素	受入 燃料	熱脱被覆工程		Cd 抽出 (NM) 工程		U 電解工程	
		燃料粉体	ハル廃棄物	NM 廃棄物	処理後 溶融塩	U 電解 析出物	処理後 溶融塩
U	100.0	99.5	0.5	0.0	100.0	84.5	15.5
Np	100.0	99.5	0.5	0.0	100.0	0.0	100.0
Pu	100.0	99.5	0.5	0.0	100.0	0.0	100.0
Am	100.0	99.5	0.5	0.0	100.0	0.0	100.0
Cm	100.0	99.5	0.5	0.0	100.0	0.0	100.0
RE	100.0	99.5	0.5	0.0	100.0	0.0	100.0
Zr	100.0	99.5	0.5	89.8	10.2	100.0	0.0
他のFP	100.0	99.5	0.5	66.1	33.9	0.4	99.6

表 4.5(2/2) 各工程の分岐率(金属電解法)[%]

元素	U-Pu 電解工程		TRU 回収工程		Pb 陰極電解工程	
	U-Pu 電解 析出物	処理後 溶融塩	TRU回収物	処理後 溶融塩	スラグ廃棄物	処理後 溶融塩
U	90.0	10.0	80.6	19.4	100.0	0.0
Np	90.0	10.0	97.0	3.0	100.0	0.0
Pu	90.0	10.0	97.0	3.0	100.0	0.0
Am	90.0	10.0	97.0	3.0	100.0	0.0
Cm	90.0	10.0	97.0	3.0	100.0	0.0
RE	10.0	90.0	11.1	88.9	100.0	0.0
Zr	-	-	-	-	-	-
他のFP	0.0	100.0	0.0	100.0	35.5	64.5

4.3.2 計算条件

金属電解法プロセスの物質収支評価をするために作成した評価コードのモデルを図 4.11 に示す。

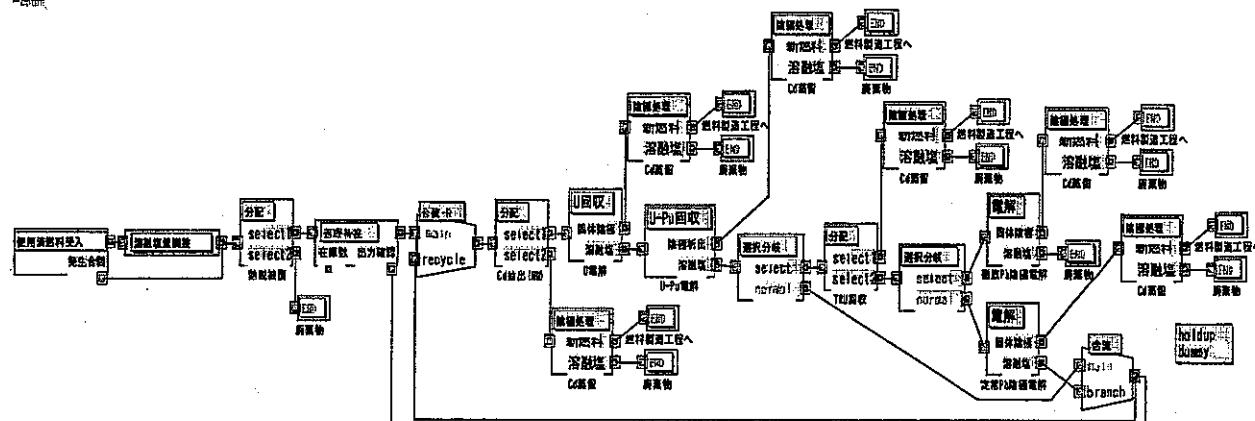


図 4.11 乾式再処理プロセス物質収支評価コードの全体図(金属電解法)

1 バッチ当たりに受け入れる燃料は 167.40kg であり、その組成⁽²⁾を以下に示す。

表 4.6 受入燃料組成(金属電解法)⁽²⁾

種類	重量[kg]
U	130.40
Np	0.09
Pu	20.29
Am	0.71
Cm	0.23
HM 合計	151.72
RE	4.31
Zr	1.18
その他 FP	10.19
FP 合計	15.68

受入燃料は、炉心平均燃焼度が 15 万 MWd/t、冷却期間が 4 年のものである。表 4.6 の数値は、本プロセスの基本取扱単位である 1 炉心燃料集合体の量をもとに設定した。

電解工程で使用される溶融塩の量は、受入燃料の 10 倍の 1670kg とした。U 電解工程は固体陰極であるが、U-Pu 電解工程と Pb 陰極電解工程では液体金属の陰極が利用されるため、巻込溶融塩は U 電解工程で重量割合を

3wt%としてその他の電解工程では発生しないものと仮定した。回収される金属Uがデンドライト状であることから、巻き込まれる割合を酸化物電解法の時よりも大きく設定した。巻込溶融塩の影響で電解槽中の溶融塩が減少しないように、バッチ毎に溶融塩の補給を行った。

計算対象は、平衡滞留量割合aをパラメータとした以下の6ケースである。

表4.7 計算条件(金属電解法)

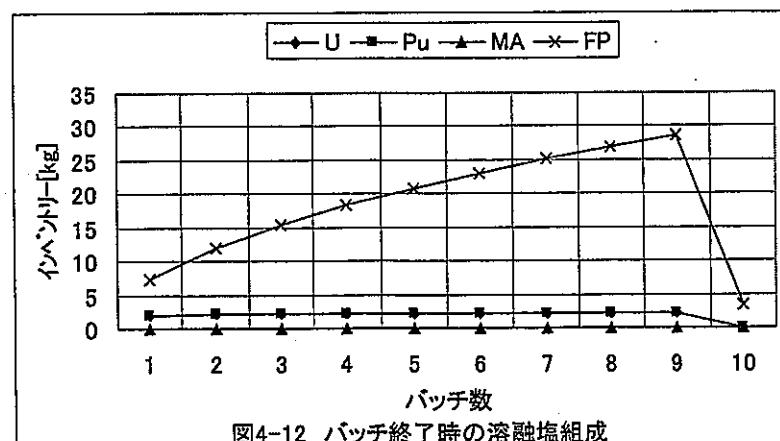
No.	平衡滞留量割合 a[%]	バッチ当たりの溶融塩の平均補給量[kg]
1	0(全工程)	1
2	1(全工程)	3.5
3	10(全工程)	13
4	0(熱脱被覆工程) 10(その他の工程)	13
5	0(U電解工程) 10(その他の工程)	13
6	0(U-Pu電解工程) 10(その他の工程)	13

holdupの増減に対するプロセスへの影響を見るためにケース1~3を、工程別に影響の相違を見るためにケース4~6を設定した。全てのケースで滞留量特性係数b=-1とした。

4.3.3 計算結果

①リサイクル溶融塩の組成に対する平衡滞留量割合aの影響

holdupがない条件下で、溶融塩が精製過程へ送られる10バッチ目までのバッチ終了時の溶融塩組成変化について図4.12に示す。



酸化物電解法では殆ど回収されなかった MA が U-Pu 電解工程により 90%回収されるため、そのインベントリーは短期間で平衡に達する。FP については、Cd 抽出(NM)工程で NM、U 電解工程で Zr が回収されるが、その他 RE 等の FP の蓄積によりインベントリーは最大 29kg まで増加する。U、Pu については 1 バッチの回収率が 100%ではないため、3 バッチ目まで増加する。また、U 電解工程で溶融塩中の Pu/U 比を 1 に調整することにより、両者のグラフは重なっている。

リサイクル溶融塩中では U と Pu は同じ挙動を示すため、U のインベントリーのみについて平衡滞留量割合 a の値を 0%、1%、10% と変動させて比較した。

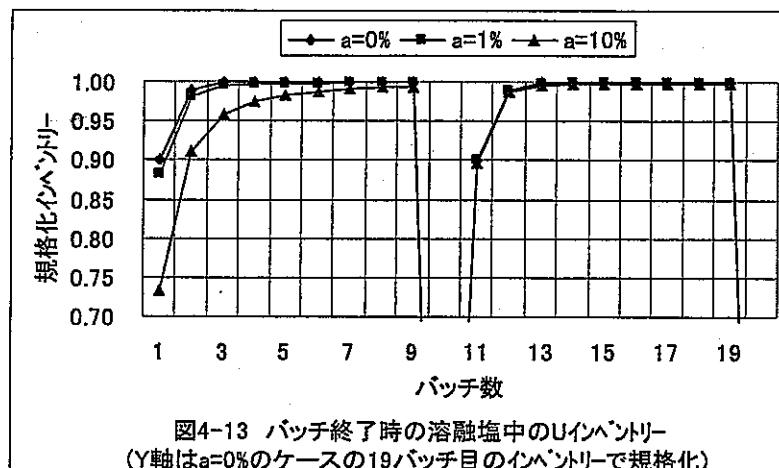
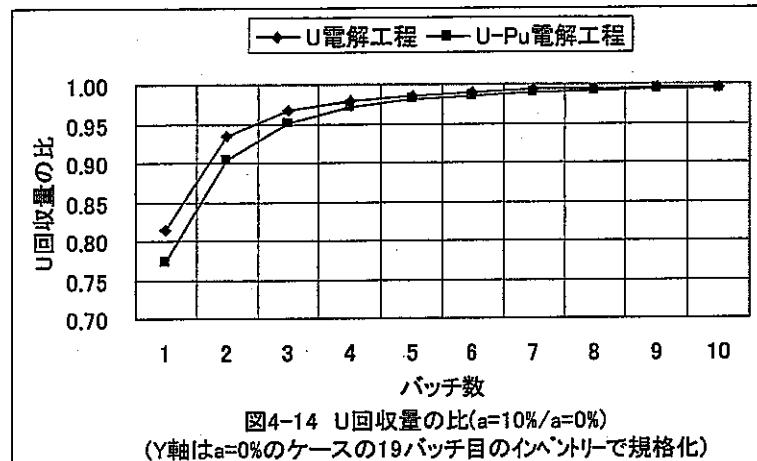


図4-13 バッチ終了時の溶融塩中のUインベントリー
(Y軸はa=0%のケースの19バッチ目のインベントリーで規格化)

10 バッチ目と 20 バッチ目では溶融塩の精製を行うため、U のインベントリーは極端に減少している。a=10% のときには、第 1 サイクル(10 バッチ)において定常運転を行うことは出来ないが、11 バッチ以降では各工程の holdup が飽和し、平衡滞留量割合 a の相違による影響はなくなる。

②工程の順序と holdup の影響の関係

a=0% と a=10% の 2 ケースについて、U 電解工程と U-Pu 電解工程で回収される U の重量の比較を行った。



酸化物電解法では同時電解工程→追加溶解工程→NM 除去電解工程→MOX 電解工程と比較する工程間に別の工程が介在していたが、本プロセスでは U 電解工程→U-Pu 電解工程となっているため、工程間の初期における U 回収量の比の差が図 4.6 よりも小さくなっている。

③工程毎の holdup とその影響

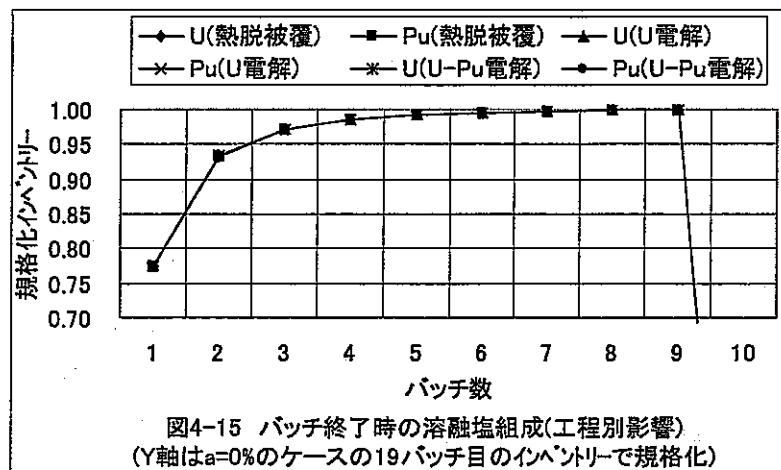
全工程で $a=10\%$ としたときの工程別 holdup を表 4.8 に示す。

表 4.8 工程別の holdup(金属電解法)[kg]

工程	U	Pu	Np	Am	Cm
熱脱被覆工程	1.28E+01	2.00E+00	8.85E-03	6.98E-02	2.26E-02
Cd抽出(NM) 工程	1.87E+01	3.04E+00	1.35E-02	1.06E-01	3.44E-02
U電解工程	1.82E+01	2.96E+00	1.31E-02	1.04E-01	3.36E-02
U-Pu電解工程	2.88E+00	2.88E+00	1.28E-02	1.01E-01	3.26E-02
TRU抽出工程	5.69E-03	5.69E-03	2.53E-05	1.99E-04	6.45E-05
Pb陰極電解工程	1.69E-04	1.69E-04	7.49E-07	5.91E-06	1.91E-06
陰極 処理	U電解工程	1.48E+01	6.76E-03	3.00E-05	2.37E-04
	U-Pu電解工程	2.53E+00	2.53E+00	1.12E-02	8.85E-02
	TRU抽出工程	1.10E-02	1.10E-02	4.90E-05	3.86E-04

U、Pu の回収率は 100%ではなく、第 1 バッチ目において 1.54% の U と 9.95% の Pu が溶融塩中に残留するので、溶融塩を扱う Cd 抽出(NM)工程では熱脱被覆工程よりも両元素の holdup が大きくなる。Np、Am、Cm についても同様の傾向が見られるが U-Pu 製品中への回収率が高いため、溶融塩中の蓄積量が低く、電解工程と熱脱被覆工程の holdup の差は酸化物電解法ほど大きくない。

全工程において $a=10\%$ としたまま、熱脱被覆工程、U 電解工程、U-Pu 電解工程に対してそれぞれ個別に $a=0\%$ と設定したケース 4~6 について、バッチ終了時の溶融塩組成を図 4.15 に示す。



第 1 番目の工程、U を扱う中心的な工程、Pu を扱う中心的な工程を選別したが、酸化物電解法と同様に工程毎の相違は現れなかった。

5 総括

5.1 結論

本報告書では、平成 11 年度に作成した乾式再処理プロセス物質収支評価コードを改良し、酸化物電解法と金属電解法プロセスにおける holdup の影響について検討を行った。その結果、定性的に以下のようなことが言える。

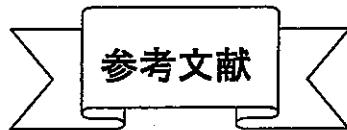
- holdup/物流量の比が小さいほど、holdup の影響は早期になくなる。
- 製品への holdup の影響は、製品を直接回収する工程内の holdup の蓄積と媒体(溶融塩)に残留する物量によって決定される。前者は上流の工程の方が早く解消されるが、後者については工程順序は関係しない。
- holdup となる核物質量自体を問題とする場合には、物流量が多い工程ほど改善の優先順位が高くなる。但し、溶融塩内で蓄積していく核種については、最も上流の工程である脱被覆工程よりも、受入燃料と蓄積された物質が合流する電解工程において holdup が多くなる。holdup となつた核物質が溶融塩に溶解しているときには問題はないが、臨界安全上の見地から、これらが局所的に析出しないように管理する必要がある。
- バッチ毎に安定した製品量を得るという観点からは、特定の工程の holdup を改善するよりは、プロセス全体の holdup を減らす方が効果的である。

5.2 今後の展開

holdup は、各工程における核物質の形態と機器の構造に強く依存するものである。本検討では、全ての工程で holdup となる割合を一律に設定したが、今後は工程(機器)毎に評価し設定していく必要がある。

また、保障措置では MUF(本検討では holdup が中心)以外にも操業中の核物質移動等を把握することが重要となるため、時間依存の物質移動についても評価を行っていく。さらに、計量測定を模擬するブロックを作成し、測定点や測定精度について検討していくことも重要である。

その他には、物流だけではなくマテリアルハンドリングや処理時間も考慮して、プラント処理能力の評価を行っていく予定である。



- (1)岡村,米澤,”物質収支コードの開発 Object 指向型コードの開発と解析例(I)”,JNC TN9400 2000-034(2000)
- (2)田中他,”再処理システムの技術検討書”,JNC TY9400 2000-025(2000)
- (3)荒木勝啓,”EX・TD によるシミュレーション入門”,白桃書房(1996)
- (4)科学技術庁原子力安全局保障措置課,”核物質管理読本 技術編(保障措置)”,
(財)核物質管理センター(1996)
- (5)科学技術庁原子力安全局保障措置課,”IAEA 保障措置用語集 増補・改訂版”,(財)核物質管理センター(1987)

APPENDIX

乾式再処理プロセス物質収支評価コードのマニュアル

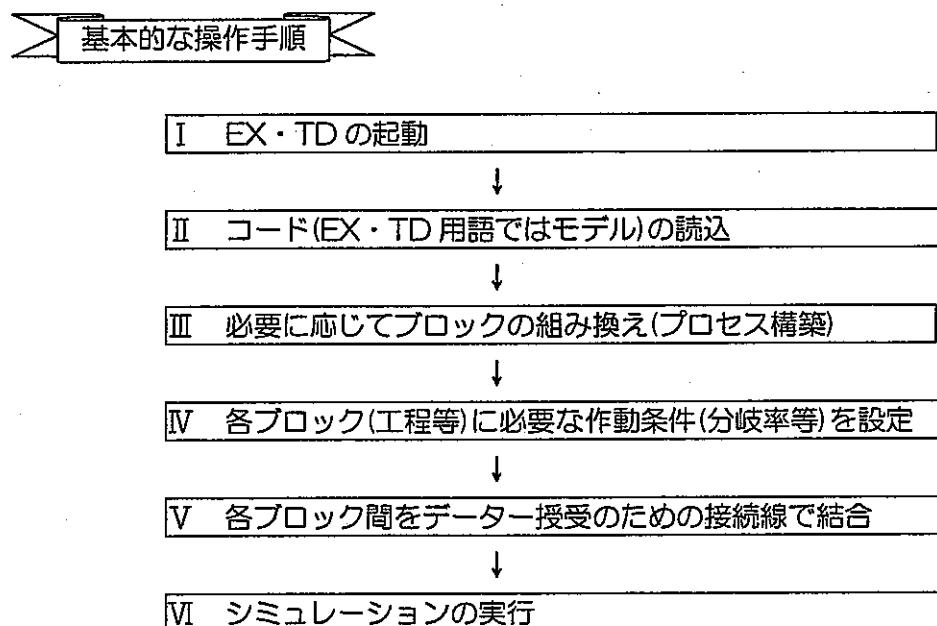
1.評価対象モデルを構築するための手順と規則

2.乾式再処理プロセス物質収支評価コードの構成要素

3.ブロック(工程)の作動条件の設定画面一覧

1.評価対象モデルを構築するための手順と規則

先ず最初に、乾式再処理プロセス物質収支評価コードを利用するための操作手順のフローシートを示す。



次に、物質収支評価コードを使用するにあたって、最低限守らなければならない5つの規則について纏める。

規則① 作業領域 1

各種ブロックを用いて評価対象モデルを組み上げるときには、以下のブロック(Executive:シミュレーションの時間経過を管理している。)の右下領域で作業を行う。



図 A.1 Executive ブロック

規則② 作業領域 2

構築した評価対象モデルの左端には、ダミーブロックを設置する。各ブロックは holdup のデータをプロッタブロックへ出力できるようになっているが、データが不要なときにはこのダミーブロックを指定して出力を破棄させる。



図 A.2 ダミーブロック

規則③ コネクタ接続-アイテム・値

各種ブロック間のデータの受け渡しは、コネクタ同士を接続線で結合させることによって行われる。コネクタには、

- ; アイテム入力コネクタ
- ; アイテム出力コネクタ
- ; 値入力コネクタ
- ; 値出力コネクタ

の4種類がある。アイテム用のコネクタはアイテム用のもの同士、値用のコネクタは値用のもの同士でしか結線することはできない。ここでアイテムと値の相違点について触れる。再処理プロセスの中で工程間を移動する U, Pu 等元素のそれぞれの物量データが、値に相当する。この値をブロック間で直接受け渡すためには、例えば 20 元素の挙動を再処理システム中で追跡しようとする場合は、全てのブロック間を元素の数に等しい 20 本の接続線を用いて結合する必要が生じる。そこで、アイテムという概念が有意性を示す。アイテムはこれら複数の値を一つに纏めて扱うための、いわば箱に相当するものと考えることができる。アイテムを用いることによってブロック間において個別の値を接続線で受け渡す必要が無くなり、作業の軽減化が図られる。特に、バッチ処理を行う乾式再処理プロセスの様に離散事象を扱うときには、アイテムの概念が非常に有効となる。

規則④ データの終点

各種コード内で移動するアイテムには、全て受け入れ先が必要である。これは使用済燃料等の入力ブロックによって発生させられたアイテムは、系内を循環し続けるか END ブロックによって系外へ排出されることが絶対条件であり、各ブロックのアイテム出力コネクタは必ず接続線により結線されなければならない。値に関してはこの様な規則がないため、あるブロックから出力される値を必要としないときには値出力コネクタは接続線により結線されていなくてよい。



図 A.3 END ブロック

規則⑤ ブロック(工程)の作動条件の設定

ブロックは、実際のプラントの工程を模擬したものであるため、分岐率、処理速度等の作動条件を設定する必要がある。基本的には、ブロックをダブルクリックすることで、作動条件の設定画面が開くようになっている。もし、何も設定する必要がないブロックであったときには、画面に次のようなメッセージが表示される。



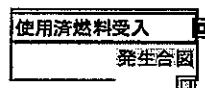
図 A.4 エラーメッセージ

2.乾式再処理プロセス物質収支評価コードの構成要素

本年度、改良を加えた乾式再処理プロセス物質収支評価コードを構成する個々のブロックについて、その役割と設定する条件について以下に記載する。実際の作動条件設定画面については次節に一括して示す。

①使用済燃料受入ブロック

モデルの中で使用するアイテムを発生させるブロックである。これは使用済燃料の受入を模擬したものであり、ブロックの作動条件としては、受入間隔時間[hr]、燃料組成[kg]を指定する。アイテムの発生は受入間隔時間以外に、発生合図を受け取ることでも制御が可能である。



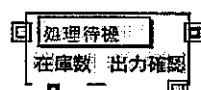
②溶融塩量調整ブロック

電解工程で必要となる溶融塩量を設定するブロックである。ブロックの作動条件としては、作業時間[hr]、溶融塩の初期量[kg]、2 バッチ目以降の溶融塩の補給量[kg]を指定する。



③処理待機ブロック

特定区間内でのアイテム数(本コードでは設定値は 1。)を制限するためのブロックである。特定区間内のアイテム数の時間変化を出力させることも可能である。ブロックの作動条件は設定不要である。



④エンドブロック

発生したアイテムを消去するためのブロックである。モデル内のアイテムは例外なく、エンドブロックにより消去されなければならない。ブロックの作動条件は設定不要である。



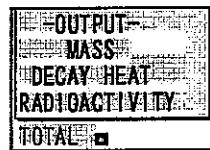
⑤値抽出ブロック

接続線を通る物流量のデータをプロッタブロックへ受け渡すためのブロックである。ブロックの作動条件は、値受け入れ先のプロッタブロックの名前である。



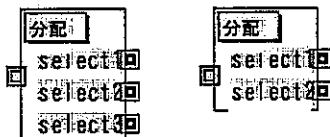
⑥プロッタブロック

受け取ったデータをグラフ化するブロックである。またデータは、表計算ソフトで使用できる形式で保存することが可能である。ブロックの作動条件は、自分自身の名前、出力単位(kg, Bq, W)の選択、使用済燃料の構成情報である。



⑦分配ブロック

入量を分岐率に基づき 2 つ、または、3 つの経路へと分配するブロックである。一般的な工程に用いられるものであり、ブロックの作動条件は、分岐率[%]、機器当たりの処理速度[kg/hr]、装置数[基]、マテハン時間[hr]、平衡滞留量割合[%]、滞留量特性係数[-]、holdup データの受入ブロック名(プロッタブロック)である。



⑧電解ブロック

陰極析出率を基準に、電解工程を模擬するブロックである。ブロックの作動条件は、陰極析出率[%]、巻入溶融塩重量割合[%]、機器当たりの処理速度[kg/hr]、装置数[基]、マテハン時間[hr]、平衡滞留量割合[%]、滞留量特性係数[-]、holdup データの受入ブロック名(プロッタブロック)である。



⑨U回収ブロック

陰極析出率と電解後の溶融塩中のPu富化度を基準に、U電解工程を模擬するブロックである。ブロックの作動条件は、陰極析出率[%]、巻込溶融塩重量割合[%]、電解後の浴槽中のPu富化度[%]、機器当たりの処理速度[kg/hr]、装置数[基]、マテハン時間[hr]、平衡滞留量割合[%]、滞留量特性係数[-]、holdupデータの受入ブロック名(プロッタブロック)である。



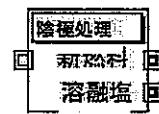
⑩U-Pu回収ブロック

陰極析出率を基準に、U-Pu電解工程を模擬するブロックである。ブロックの作動条件は、陰極析出率[%]、巻込溶融塩重量割合[%]、機器当たりの処理速度[kg/hr]、装置数[基]、マテハン時間[hr]、平衡滞留量割合[%]、滞留量特性係数[-]、holdupデータの受入ブロック名(プロッタブロック)である。



⑪陰極処理ブロック

陰極処理工程により行われる析出物と巻込溶融塩の分離を模擬するブロックである。ブロックの作動条件は、機器当たりの処理速度[kg/hr]、装置数[基]、マテハン時間[hr]、平衡滞留量割合[%]、滞留量特性係数[-]、holdupデータの受入ブロック名(プロッタブロック)である。



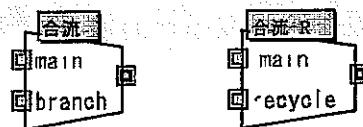
⑫選択分岐ブロック

指定された間隔毎に経路を切り替えるブロックである。通常は、normalのコネクターから出力される。ブロックの作動条件は、作業時間[hr]、分岐間隔[batch]である。



⑬合流ブロック

2つの経路から来た物流を合流させるためのブロックである。リサイクルにより還流された物流を合流させる場合には、合流-R ブロックを使用する。ブロックの作動条件は、作業時間[hr]である。



3. ブロック(工程)の作動条件の設定画面一覧

① 使用済燃料受入ブロック

[167] 受入

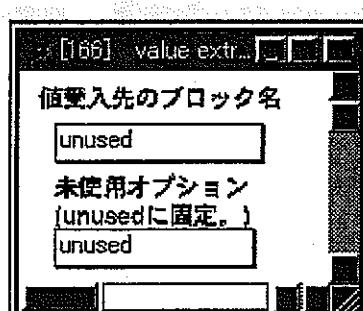
U 重量 [kg] =	130.4	Cd 重量 [kg] =	0.1006
Pu 重量 [kg] =	20.29	Sn 重量 [kg] =	0.08626
Np 重量 [kg] =	0.08907	Sb 重量 [kg] =	0.02022
Am 重量 [kg] =	0.7067	Se(CC) 重量 [kg] =	0.01766
Cm 重量 [kg] =	0.2252	Te(CC) 重量 [kg] =	0.2891
RE-1 重量 [kg] =	4.31	Br(HG) 重量 [kg] =	0.005418
RE-2 重量 [kg] =	0	I(HG) 重量 [kg] =	0.1524
RE-3 重量 [kg] =	0	Kr(HG) 重量 [kg] =	0.1092
Ru(NM) 重量 [kg] =	1.311	Xe(HG) 重量 [kg] =	2.038
Rh(NM) 重量 [kg] =	0.3815	3H 重量 [kg] =	2.380000000e-005
Pd(NM) 重量 [kg] =	1.15	14C 重量 [kg] =	1.199000000e-008
Pt(NM) 重量 [kg] =	0.103	Li, Na, K, Rb(ALM) 重量 [kg] =	0.09571
Zr 重量 [kg] =	1.179	Cs(ALM) 重量 [kg] =	1.623
Mo 重量 [kg] =	1.421	Be, Mg, Ca, Ba(ALE) 重量 [kg] =	0.7414
Tc 重量 [kg] =	0.3449	Sr (ALE) 重量 [kg] =	0.2002
使用済燃料受入間隔 (/hr) = 1			

② 溶融塩量調整ブロック

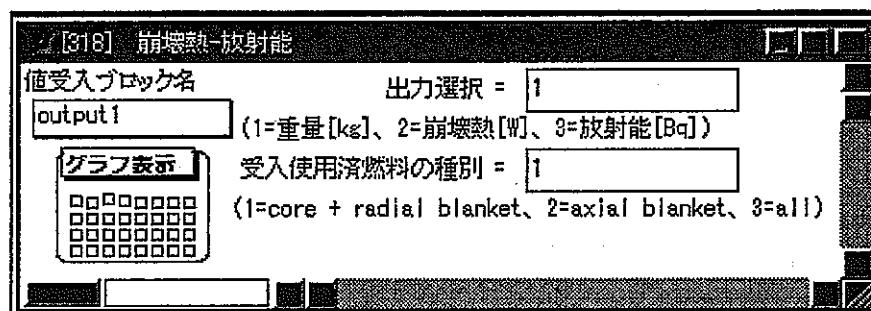
[168] 溶融塩補給

作業時間 [hr] =	0
溶融塩の初期量 [kg] =	1
溶融塩の補給量 [kg] =	0

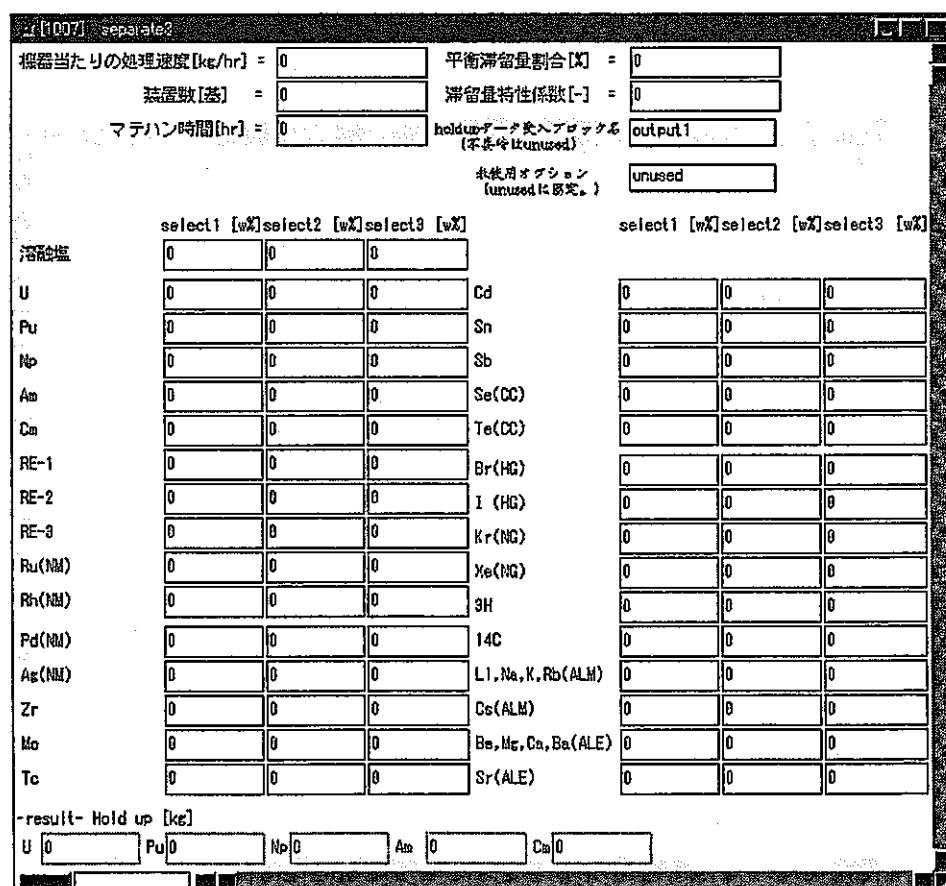
③値抽出ブロック



④プロッタブロック



⑤分配ブロック



⑥電解ブロック

[2676] separate3

機器当たりの処理速度 [kg/hr]	= 0	平衡滞留量割合 [%]	= 0																																												
装置数 [基]	= 0	滞留量特性係数 [-]	= 0																																												
マテハン時間 [hr]	= 0	holdupデータ入力ブロック名 (未使用はunused)	output1																																												
巻込溶融塩重量割合 [%]	= 0	未使用オプション (unusedに設定。)	unused																																												
<table border="1"> <thead> <tr> <th></th> <th>陰極析出 [%]</th> <th>陰極析出 [%]</th> <th>陰極析出 [%]</th> </tr> </thead> <tbody> <tr><td>U</td><td>0</td><td>Pd(NM)</td><td>0</td></tr> <tr><td>Pu</td><td>0</td><td>Ag(NM)</td><td>0</td></tr> <tr><td>Np</td><td>0</td><td>Zr</td><td>0</td></tr> <tr><td>Am</td><td>0</td><td>Mo</td><td>0</td></tr> <tr><td>Cm</td><td>0</td><td>Tc</td><td>0</td></tr> <tr><td>RE-1</td><td>0</td><td>Cd</td><td>0</td></tr> <tr><td>RE-2</td><td>0</td><td>Sn</td><td>0</td></tr> <tr><td>RE-3</td><td>0</td><td>Sb</td><td>0</td></tr> <tr><td>Ru(NM)</td><td>0</td><td>Se(CC)</td><td>0</td></tr> <tr><td>Rh(NM)</td><td>0</td><td>Te(CC)</td><td>0</td></tr> </tbody> </table>					陰極析出 [%]	陰極析出 [%]	陰極析出 [%]	U	0	Pd(NM)	0	Pu	0	Ag(NM)	0	Np	0	Zr	0	Am	0	Mo	0	Cm	0	Tc	0	RE-1	0	Cd	0	RE-2	0	Sn	0	RE-3	0	Sb	0	Ru(NM)	0	Se(CC)	0	Rh(NM)	0	Te(CC)	0
	陰極析出 [%]	陰極析出 [%]	陰極析出 [%]																																												
U	0	Pd(NM)	0																																												
Pu	0	Ag(NM)	0																																												
Np	0	Zr	0																																												
Am	0	Mo	0																																												
Cm	0	Tc	0																																												
RE-1	0	Cd	0																																												
RE-2	0	Sn	0																																												
RE-3	0	Sb	0																																												
Ru(NM)	0	Se(CC)	0																																												
Rh(NM)	0	Te(CC)	0																																												
<p>-result- Hold up [kg]</p> <table border="1"> <tr><td>U 0</td><td>Pu 0</td><td>Np 0</td><td>Am 0</td><td>Cm 0</td></tr> </table>				U 0	Pu 0	Np 0	Am 0	Cm 0																																							
U 0	Pu 0	Np 0	Am 0	Cm 0																																											

⑦U回収ブロック

[1601] separate3

機器当たりの処理速度 [kg/hr]	= 0	平衡滞留量割合 [%]	= 0																																												
装置数 [基]	= 0	滞留量特性係数 [-]	= 0																																												
マテハン時間 [hr]	= 0	holdupデータ入力ブロック名 (未使用はunused)	output1																																												
巻込溶融塩重量割合 [%]	= 0	未使用オプション (unusedに設定。)	unused																																												
<table border="1"> <thead> <tr> <th></th> <th>陰極析出 [%]</th> <th>陰極析出 [%]</th> <th>陰極析出 [%]</th> </tr> </thead> <tbody> <tr><td>Np</td><td>0</td><td>Pd(NM)</td><td>0</td></tr> <tr><td>Am</td><td>0</td><td>Ag(NM)</td><td>0</td></tr> <tr><td>Cm</td><td>0</td><td>Zr</td><td>100</td></tr> <tr><td>RE-1</td><td>0</td><td>Mo</td><td>0</td></tr> <tr><td>RE-2</td><td>0</td><td>Tc</td><td>0</td></tr> <tr><td>RE-3</td><td>0</td><td>Cd</td><td>0</td></tr> <tr><td>Ru(NM)</td><td>0</td><td>Sn</td><td>0</td></tr> <tr><td>Rh(NM)</td><td>0</td><td>Sb</td><td>0</td></tr> <tr><td></td><td></td><td>Se(CC)</td><td>0</td></tr> <tr><td></td><td></td><td>Te(CC)</td><td>0</td></tr> </tbody> </table>					陰極析出 [%]	陰極析出 [%]	陰極析出 [%]	Np	0	Pd(NM)	0	Am	0	Ag(NM)	0	Cm	0	Zr	100	RE-1	0	Mo	0	RE-2	0	Tc	0	RE-3	0	Cd	0	Ru(NM)	0	Sn	0	Rh(NM)	0	Sb	0			Se(CC)	0			Te(CC)	0
	陰極析出 [%]	陰極析出 [%]	陰極析出 [%]																																												
Np	0	Pd(NM)	0																																												
Am	0	Ag(NM)	0																																												
Cm	0	Zr	100																																												
RE-1	0	Mo	0																																												
RE-2	0	Tc	0																																												
RE-3	0	Cd	0																																												
Ru(NM)	0	Sn	0																																												
Rh(NM)	0	Sb	0																																												
		Se(CC)	0																																												
		Te(CC)	0																																												
<p>-result- Hold up [kg]</p> <table border="1"> <tr><td>U 0</td><td>Pu 0</td><td>Np 0</td><td>Am 0</td><td>Cm 0</td></tr> </table>				U 0	Pu 0	Np 0	Am 0	Cm 0																																							
U 0	Pu 0	Np 0	Am 0	Cm 0																																											

⑧U-Pu 回収ブロック

[1800] separate3

機器当たりの処理速度 [kg/hr] =	<input type="text" value="0"/>	平衡滞留量割合 [%] =	<input type="text" value="0"/>		
装置数 [基] =	<input type="text" value="0"/>	滞留量特性係数 [-] =	<input type="text" value="0"/>		
マテハン時間 [hr] =	<input type="text" value="0"/>	holdupデータ受け入れブロック名 (不要時はunused) =	<input type="text" value="output1"/>		
巻込溶融塩重量割合 [%] =	<input type="text" value="0"/>	未使用オプション (unusedに固定。)	<input type="text" value="unused"/>		
陰極析出[%]		陰極析出[%]		陰極析出[%]	
U	90	Pd(NM)	0	Br(HG)	0
Pu	90	Ag(NM)	0	I (HG)	0
Np	90	Zr	0	Kr(NG)	0
Am	90	No	0	Xe(NG)	0
Cm	90	Tc	0	3H	0
RE-1	10	Cd	0	14C	0
RE-2	0	Sn	0	Li,Na,K,Rb(ALM)	100
RE-3	0	Sb	0	Cs(ALM)	100
Ru(NM)	0	Se(CC)	0	Ba,Mg,Ca,Ba(ALE)	100
Rh(NM)	0	Te(CC)	0	Sr(ALE)	100
-result- Hold up [kg]					
U	<input type="text" value="0"/>	Pu	<input type="text" value="0"/>	Np	<input type="text" value="0"/>
Am	<input type="text" value="0"/>	Cm	<input type="text" value="0"/>		

⑩陰極処理ブロック

[5441] separate3

機器当たりの処理速度 [kg/hr] =	<input type="text" value="0"/>	平衡滞留量割合 [%] =	<input type="text" value="0"/>
装置数 [基] =	<input type="text" value="0"/>	滞留量特性係数 [-] =	<input type="text" value="0"/>
マテハン時間 [hr] =	<input type="text" value="0"/>	holdupデータ受け入れブロック名 (不要時はunused) =	<input type="text" value="output1"/>
		未使用オプション (unusedに固定。)	<input type="text" value="unused"/>
-result- Hold up [kg]			
U	<input type="text" value="652"/>	Pu	<input type="text" value="652"/>
Np	<input type="text" value="652"/>	Am	<input type="text" value="652"/>
Cm	<input type="text" value="652"/>		

⑪選択分岐ブロック

[5431] separate-select

作業時間 [hr] =	<input type="text" value="0"/>
分岐間隔 [batch] =	<input type="text" value="1"/>
注)指定した間隔毎に選択分岐へと流れれる。	

⑫合流ブロック

