令和元年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業 原子カシステム研究開発事業

MA 分離変換技術の有効性向上のための 柔軟な廃棄物管理法の実用化開発

成果報告書

令和2年3月 日本核燃料開発株式会社

本報告書は、文部科学省の原子力システム 研究開発事業による委託業務として、日本核 燃料開発株式会社が実施した平成28年度-2019年度「MA分離変換技術の有効性向上のた めの柔軟な廃棄物管理法の実用化開発」の成 果を取りまとめたものです。

目次

概略 • • • • • • • • • • • • • • • • • • •	x
1. はじめに ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	1–1
2. 業務計画	
2.1 全体計画 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2. 1–1
2.2 令和元年度の成果の目標および業務の実施方法・・・・・・・・・・・・・	2. 2–1
3. 業務の実施内容および成果	
3.1 柔軟な廃棄物管理システムの構築【H28-R1】 ・・・・・・・・・・・・・・	3. 1–1
3.1.1 柔軟な廃棄物管理法の要素技術の選定【H28】・・・・・・・・・・・・	3. 1–1
3.1.2 複数システム案とその成立性・安全性・経済性評価【H29~H30】 ・・・・・	3. 1–2
3.1.3 柔軟な廃棄物管理法の概念仕様の設定【R1】・・・・・・・・・・・・・	3. 1–3
3.2 廃棄物顆粒体製造技術開発【H28-R1】 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 2. 1–1
3.2.1 ロータリーキルン法模擬顆粒体製造試験【H28-R1】 ・・・・・・・・	3. 2. 1–1
3.2.2 模擬廃棄物顆粒体基礎特性試験【H28-R1】 ・・・・・・・・・・・・・	3. 2. 2–1
3.2.3 廃棄物顆粒体製造技術評価(再委託先:原子力機構)【H30-R1】 ・・・・	3. 2. 3–1
3.3 顆粒体高密度化/再廃液化技術開発【H28-R1】・・・・・・・・・・・・・	3. 3. 1–1
3.3.1 顆粒体高密度化技術開発【H28-R1】 ・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 3. 1–1
3.3.2 廃液再生技術開発(再委託先:原子力機構)【H28-R1】 ・・・・・・・	3. 3. 2–1
3.4 廃棄物顆粒体貯蔵技術開発【H28-R1】 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 4. 1–1
3.4.1 廃棄物顆粒体貯蔵設備設計(再委託先:日立GE)【H28-R1】 ・・・・・	3. 4. 1–1
3.4.2 貯蔵廃棄物の材料化学安定性評価(再委託先:大阪大学)【H28-R1】 ・・ 🗧	3. 4. 2–1
3.4.3 貯蔵用キャニスタの健全性評価(再委託先:九州大学)【H28-R1】 ・・・	3. 4. 3–1
3.5 柔軟な廃棄物管理法の有効性評価(再委託先:日立GE)【H28-R1】 ・・・・	3. 5. 1–1
3.5.1 環境負荷低減効果評価【H28-R1】 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 5. 1–1
3.5.2 MA/FP 発熱量低減効果評価【H28-R1】・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 5. 2–1
3.6 研究推進【R1】 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3. 6–1

4. 結言

4. 1	令和元年度の成果【R1】	•	•	•	•	•	•	•	•	•	•	•	•	•••	•	•	•	•	•	•	•	•	·	•	4–1
4. 2	柔軟な廃棄物管理法実用	上月	₹ ₽	ŧ٥	の	4 4	年間	間0	D万	戈身	₹	(H)	28-	-R1)		•	• •	• •	• •	•	•		• •	•	4–3

表一覧

表 2.1-1	4年間の年次計画	2.1-2
表 2.2-1	令和元年度業務の実施工程	2.2-2
表 3.1-1	システム案の比較評価	3.1-7
表 3.1-2	各システム構成技術の基本仕様	3.1-8
表 3.2.1-1	模擬廃液の組成[4]	3.2.1-9
表 3.2.1-2	実機ロータリーキルン運転条件	3.2.1-20
表 3.2.1-3	捕集効率	3.2.1-20
表 3.2.2-1	硝酸塩割合	3.2.2-9
表 3.2.2-2	顆粒体の密度	3.2.2-20
表 3.2.2-3	顆粒体の密度	3.2.2-25
表 3.2.2-4	顆粒体の概念仕様	3.2.2-26
表 3.2.3-1	遠隔保守・補修可能なロータリーキルンの保守対応方針(平成 30 年度)	3.2.3-6
表 3.2.3-2	ロータリーキルンの概略実機仕様の検討結果(令和元年度)	3.2.3-7
表 3.3.1-1	顆粒体に存在する硝酸塩・酸化物モル比の推定	3.3.1-8
表 3.3.1-2	加熱プレスの基本パラメータ(実機加熱プレス機の仕様)	3.3.1-16
表 3.3.1-3	加熱プレスの基本パラメータ(実機加熱プレス機の運転条件)	3.3.1-16
表 3.3.2-1	模擬高レベル廃液の組成	3.3.2-6
表 3.4.1-1	顆粒体貯蔵キャニスタ肉厚妥当性評価結果	3.4.1-7
表 3.4.1-2	廃棄物顆粒体貯蔵設備仕様	3.4.1-7
表 3.4.1-3	詳細熱伝導解析ケース一覧	3.4.1-8
表 3.4.1-4	貯蔵設備の構造寸法仕様	3.4.1-8
表 3.4.1-5	再利用棟の解析結果	3.4.1-9
表 3.4.1-6	廃棄物貯蔵時の通風管本数内訳(ケース1、2)	3.4.1-9
表 3.4.1-7	廃棄物貯蔵時の通風管本数内訳(ケース3、4)	3.4.1-10
表 3.4.1-8	廃棄物顆粒体貯蔵コストの内訳(ケース 1、2)	3.4.1-10
表 3.4.1-9	廃棄物顆粒体貯蔵コストの内訳(ケース 3、4)	3.4.1-11
表 3.4.2-1	粉末状模擬顆粒体からの水素発生量(mol)の含水率依存性	
	(線量:540 kGy)	3.4.2-6
表 3.4.2-2	粉末状模擬顆粒体からの NOx 発生量(mol)の含水率依存性	
	(線量:445 kGy)	3.4.2-7
表 3.4.2-3	実験条件および水素発生の評価結果(令和元年度実施)	3.4.2-8
表 3.4.2-4	NOx 発生の評価結果(令和元年度実施)	3.4.2-8
表 3.5.1-1	横置方式における3次元熱伝導解析結果	3.5.1-7
表 3.5.1-2	竪置方式における3次元熱伝導解析結果	3.5.1-7
表 3.5.1-3	3次元熱伝導解析結果(ケース1、2)	3.5.1-8
表 3.5.1-4	処分場所要面積評価結果(ケース1、2)	3.5.1-8
表 3.5.1-5	3次元熱伝導解析結果(ケース3、4)	3.5.1-9
表 3.5.1-6	処分場所要面積評価結果(ケース3、4)	3.5.1-9

表 3.5.1-7	3次元熱伝導解析結果(ケース 5、6)	3.5.1-10
表 3.5.1-8	処分場所要面積評価結果(ケース 5、6)	3.5.1-10
表 3.5.1-9	3次元熱伝導解析結果(ケース7、8)	3.5.1-11
表 3.5.1-10	処分場所要面積評価結果(ケース 7、8)	3.5.1-11
表 3.5.2-1	FBR 移行サイクル条件	3.5.2-10
表 3.5.2-2	アクチニド簡便燃焼コード仕様	3.5.2-10
表 3.5.2-3	FBR 新燃料発熱量評価条件	3.5.2-11
表 3.5.2-4	ADS 新燃料発熱量評価条件	3.5.2-11
表 3.5.2-5	ADS 初期燃料のアクチニド核種組成	3.5.2-12
表 3.5.2-6	ADS 新燃料発熱量評価ケースまとめ	3.5.2-12

図一覧

図 1-1	柔軟な廃棄物管理法[4]	1-1
図 3.1-1	4年間の計画概要	3.1-6
図 3.1-2	柔軟な廃棄物管理システムの概念仕様化	3.1-8
図 3.1-3	顆粒体製造技術の基本仕様	3.1-9
⊠ 3.1-4	顆粒体貯蔵技術の基本仕様	3.1-9
図 3.1-5	再廃液化技術の基本仕様	3.1-10
図 3.1-6	柔軟な廃棄物管理システム概念仕様体系	3.1-10
⊠ 3.2.1-1	4年間の開発戦略	3.2.1-9
図 3.2.1-2	蒸発皿による乾燥プロセス試験体系	3.2.1-10
⊠ 3.2.1-3	乾固体表面外観写真(乾燥時間 左:11分、中央:6分、右:2分)	3.2.1-10
⊠ 3.2.1-4	か焼プロセス試験の様子(左:300 ℃時、600 ℃時、800 ℃時)	3.2.1-10
⊠ 3.2.1-5	治具の模式図	3.2.1-11
図 3.2.1-6	治具の写真	3.2.1-11
図 3.2.1-7	乾燥物の外観写真	3.2.1-12
図 3.2.1-8	顆粒化プロセス試験の流れ	3.2.1-12
図 3.2.1-9	300 ℃か焼体粉末の 230 ℃顆粒化試験後の試料外観	3.2.1-13
⊠ 3.2.1-10	600 ℃か焼体粉末の 270 ℃顆粒化試験後の試料外観	3.2.1-13
⊠ 3.2.1-11	900 ℃か焼体粉末の加湿空気中顆粒化試験後の試料外観	3.2.1-13
⊠ 3.2.1-12	粉体移動速度試験の模式図	3.2.1-14
⊠ 3.2.1-13	粉体移動速度試験の結果	3.2.1-14
⊠ 3.2.1-14	管内温度分布の測定方法	3.2.1-15
⊠ 3.2.1-15	炉内温度分布	3.2.1-15
図 3.2.1-16	顆粒体連続試作試験で得られた顆粒体	3.2.1-16
⊠ 3.2.1-17	処理速度の確認	3.2.1-16
図 3.2.1-18	長時間乾燥・か焼試験の炉心管表面温度	3.2.1-17
図 3.2.1-19	長時間乾燥・か焼試験後の平板状か焼体	3.2.1-18
図 3.2.1-20	長時間乾燥・か焼試験後の粒状か焼体	3.2.1-18

図 3.2.1-21	か焼体粉砕顆粒化試験後の顆粒体	3.2.1-19
⊠ 3.2.1-22	脱ガス処理系安全性評価試験体系	3.2.1-19
図 3.2.2-1	本節記載内容の構成	3.2.2-8
図 3.2.2-2	か焼時の化学変化のまとめ	3.2.2-8
図 3.2.2-3	試験フローチャート	3.2.2-9
⊠ 3.2.2-4	300 ℃か焼体の TGDTA 分析	3.2.2-9
図 3.2.2-5	600 ℃か焼体の TGDTA 分析	3.2.2-10
図 3.2.2-6	900 ℃か焼体の TGDTA 分析	3.2.2-10
図 3.2.2-7	高密度顆粒体の熱伝導率	3.2.2-11
図 3.2.2-8	硝酸ナトリウムの熱伝導率[10]	3.2.2-11
図 3.2.2-9	300 ℃か焼体粉末の顆粒化処理温度別粒度分布	3.2.2-12
図 3.2.2-10	600 ℃か焼体粉末の顆粒化処理温度別粒度分布	3.2.2-12
図 3.2.2-11	900 ℃か焼体粉末の雰囲気別粒度分布	3.2.2-13
⊠ 3.2.2-12	か焼体の吸湿性	3.2.2-13
図 3.2.2-13	炉心管腐食特性	3.2.2-14
⊠ 3.2.2-14	蒸発時間 11 分で作製した乾固体の断面分析	3.2.2-15
図 3.2.2-15	蒸発時間6分で作製した乾固体の断面分析	3.2.2-16
図 3.2.2-16	蒸発時間2分で作製した乾固体の断面分析	3.2.2-17
図 3.2.2-17	急速乾燥試験で得られた顆粒体の組成ミクロ分布	3.2.2-18
⊠ 3.2.2-18	顆粒体連続試作試験で得られた顆粒体の組成ミクロ分布	3.2.2-19
図 3.2.2-19	顆粒体連続試作試験で得られた顆粒体の粒度分布	3.2.2-20
図 3.2.2-20	長時間乾燥・か焼試験後の平板状か焼体の組成ミクロ分布(×200 倍)	3.2.2-21
⊠ 3.2.2-21	長時間乾燥・か焼試験後の粒状か焼体の組成ミクロ分布(×1000 倍)	3.2.2-22
⊠ 3.2.2-22	か焼粉砕顆粒化試験後の顆粒体の組成ミクロ分布(×200 倍)	3.2.2-23
⊠ 3.2.2-23	長時間乾燥・か焼試験後のか焼体およびか焼体粉砕顆粒化試験後の	
	顆粒体の粒度分布	3.2.2-24
⊠ 3.2.2-24	長時間乾燥・か焼試験後のか焼体およびか焼体粉砕顆粒化試験後の	
	顆粒体の累積粒度分布	3.2.2-24
⊠ 3.2.2-25	顆粒体の熱伝導率	3.2.2-25
⊠ 3.2.3-1	遠隔保守性を考慮した実機ロータリーキルン設計の例	3.2.3-8
⊠ 3.2.3-2	遠隔保守性、セル内環境、および加熱プレス機との取り合いを考慮した	
	実機ロータリーキルンの設計の例	3.2.3-8
⊠ 3.2.3-3	実機ロータリーキルンにおける炉心管の交換手順の例	3.2.3-9
⊠ 3.2.3-4	実機ロータリーキルンの概念設計	3.2.3-10
⊠ 3.2.3-5	実機ロータリーキルンの概念設計(キャニスタの搬送装置)	3.2.3-10
図 3.2.3-6	実機ロータリーキルンの概念設計(キャニスタの蓋の溶接装置)	3.2.3-11
図 3.2.3-7	実機ロータリーキルンの概念設計(顆粒体製造封入システム全体の配置)	3.2.3-11
図 3.2.3-8	実機ロータリーキルンの保守交換(上部ヒータの取り外し)	3.2.3-12
図 3.2.3-9	実機ロータリーキルンの保守交換(炉心管の取り外し)	3.2.3-12

図 3.3.1-1	顆粒体高密度化技術開発の位置付け	3.3.1-6
図 3.3.1-2	4年間の計画概要	3.3.1-6
図 3.3.1-3	導入した加熱プレス機	3.3.1-7
図 3.3.1-4	充填率のプレス温度依存性 NaNO3:CeO2=3:1	3.3.1-9
図 3.3.1-5	充填率のプレス温度依存性 NaNO3:CeO2=1:19	3.3.1-9
図 3.3.1-6	充填率の荷重依存性 NaNO3:CeO2=9:1	3.3.1-10
図 3.3.1-7	充填率の荷重依存性 NaNO3:CeO2=3:1	3.3.1-10
図 3.3.1-8	充填率の荷重依存性 NaNO3:CeO2=1:19	3.3.1-11
図 3.3.1-9	充填率のプレス時間依存性 NaNO3:CeO2=3:1	3.3.1-11
図 3.3.1-10	直径 1cm の高密度顆粒体の外観	3.3.1-12
図 3.3.1-11	充填率および密度の温度依存性	3.3.1-12
⊠ 3.3.1-12	充填率の荷重依存性	3.3.1-13
図 3.3.1-13	直径 3cmの高密度顆粒体の外観	3.3.1-13
図 3.3.1-14	充填率の厚み依存性	3.3.1-14
図 3.3.1-15	直径 5cm の高密度顆粒体の外観	3.3.1-14
図 3.3.1-16	充填率の直径依存性	3.3.1-15
図 3.3.1-17	実機加熱プレス機の概略設計図	3.3.1-15
図 3.3.2-1	か焼体溶解液への各元素の移行率(Na,Baを除く、重量 %)	3.3.2-6
⊠ 3.3.2-2	NFDにおいてロータリーキルンを用いて作製された顆粒体の再廃液化	公結果
	再溶解液および不溶解残渣への各元素の移行率(重量 %)	3.3.2-7
図 3.3.2-3	NFDにおいてロータリーキルンを用いて作製された顆粒体の低密度フ	*レス体
	および高密度プレス体の再溶解時の液相中金属イオン濃度変化 (g/L)	3.3.2-8
図 3.3.2-4	再廃液化試験における各元素の不溶解残渣への移行率(%)	3.3.2-9
図 3.3.2-5	RI 溶媒抽出分離後の ²³⁷ Np、 ²⁴¹ Am および ²⁴⁴ Cm の分配比	3.3.2-9
図 3.3.2-6	SELECT プロセスの概略フローと柔軟な廃棄物管理法の設置概念	3.3.2-10
図 3.4.1-1	簡易熱伝導解析結果(キャニスタ内径と各温度の関係)	3.4.1-11
図 3.4.1-2	廃棄物顆粒体貯蔵の特徴と通風管内構成要素割合	3.4.1-12
図 3.4.1-3	解析形状モデルの概要	3.4.1-12
図 3.4.1-4	再利用棟の解析モデル	3.4.1-13
図 3.4.1-5	専用設備の解析モデル	3. 4. 1-14
図 3.4.1-6	再利用棟解析結果(ケース A4、B3 の解析結果)	3. 4. 1-14
図 3.4.1-7	専用設備解析結果	3.4.1-15
図 3.4.1-8	ガラス固化体貯蔵設備コストデータおよび貯蔵設備概念	3.4.1-15
図 3.4.1-9	廃棄物顆粒体貯蔵コスト比較結果	3.4.1-16
図 3.4.2-1	硝酸塩粉末(か焼なし)へのγ線照射による H₂発生量の	
	線量依存性	3.4.2-5
図 3.4.2-2	硝酸塩粉末(か焼なし)へのγ線照射による NOx 発生量の	
	線量依存性	3.4.2-5

図 3.4.3-1	腐食試験後(200 ℃、85 日)の試験片(洗浄後)外観写真	3.4.3-6
図 3.4.3-2	腐食(200 ℃、85 日)による SUS304L の重量変化	3.4.3-6
図 3.4.3-3	Ru(NO)(NO ₃) ₃ で腐食(200 ℃、85日)させた試験片のX線回折パターン	3.4.3-7
図 3.4.3-4	か焼体(MC 0wt %)で腐食(200 ℃、85 日)させた試験片の	
	X線回折パターン	3.4.3-7
図 3.4.3-5	か焼体(MC 3wt %)で腐食(200 ℃、85 日)させた試験片の	
	X線回折パターン	3.4.3-8
図 3.4.3-6	Ru(NO)(NO₃)₃粉末に浸漬して腐食(200 ℃、85 日)させた	
	試験片表面の(a)SEM像および(b)EDX分析結果	3.4.3-9
図 3.4.3-7	か焼体(MC 3wt %)に浸漬して腐食(200 ℃、85 日)させた	
	試験片表面の(a)SEM 像および(b)EDX 分析結果	3. 4. 3-10
⊠ 3.4.3-8	SUS304Lの腐食量と時間の関係(200 ℃)	3.4.3-11
図 3.5.1-1	総合潜在的有害度評価概念	3.5.1-12
⊠ 3.5.1-2	使用済燃料の再処理前冷却期間	3. 5. 1-12
図 3.5.1-3	総合潜在的有害度の MA 回収率依存性	3.5.1-13
図 3.5.1-4	2 つの定置方式の概略図	3.5.1-13
図 3.5.1-5	処分場面積解析体系および処分場物性値	3.5.1-14
図 3.5.1-6	横置方式の処分場所要面積評価結果	3.5.1-14
図 3.5.1-7	竪置方式の処分場所要面積評価結果	3.5.1-15
図 3.5.1-8	潜在的有害度の再処理前冷却期間依存性	3.5.1-15
図 3.5.1-9	相対処分場所要面積評価結果	3.5.1-16
図 3.5.1-10	処分孔間隔の解析結果	3.5.1-17
図 3.5.1-11	高含有ガラス固化体採用時の処分場面積評価手順	3.5.1-17
図 3.5.1-12	相対処分場所要面積評価結果(顆粒化開始までの期間 10 年)	3.5.1-18
図 3.5.2-1	FBR 移行期の軽水炉使用済燃料量推移と Pu マスバランス推移	3.5.2-13
図 3.5.2-2	FBR 移行期の MA マスバランス推移(柔軟管理法)	3.5.2-13
図 3.5.2-3	FBR サイクルにおける従来管理法および柔軟管理法Ⅰ・Ⅱの概略図	3.5.2-14
図 3.5.2-4	ADS サイクルにおける従来管理法および柔軟管理法Ⅰ・Ⅱの概略図	3.5.2-14
図 3.5.2-5	柔軟管理法 I における FBR 初装荷燃料の発熱密度評価結果	3. 5. 2-15
図 3.5.2-6	柔軟管理法Ⅱにおける FBR 初装荷燃料の発熱密度評価結果	3. 5. 2-15
図 3.5.2-7	簡便燃焼コードベンチマーク解析結果	3.5.2-16
図 3.5.2-8	FBR 核変換における燃料バッチモデル概念	3.5.2-16
図 3.5.2-9	FBR 新燃料の MA 含有率の変化(従来管理法)	3.5.2-17
図 3.5.2-10	FBR 新燃料の発熱密度の変化(従来管理法)	3.5.2-17
図 3.5.2-11	FBR 新燃料発熱密度の変化(ケース 1、2)	3.5.2-18
図 3.5.2-12	FBR 新燃料発熱密度の変化(ケース 3、4)	3.5.2-18
図 3.5.2-13	ADS 新燃料の Pu 核種含有率の変化(従来管理法、ケース 1)	3. 5. 2-19
図 3.5.2-14	ADS 新燃料の Pu 含有率および変換率の変化(従来管理法、ケース 1)	3. 5. 2-19
⊠ 3.5.2-15	ADS 新燃料の MA 核種含有率の変化(従来管理法、ケース 1)	3.5.2-20

図 3.5.2-16	ADS 新燃料の MA 含有率および変換率の変化(従来管理法、ケース 1)	3.5.2-20
⊠ 3.5.2-17	ADS 新燃料の発熱密度の変化(従来管理法、ケース 1)	3.5.2-21
図 3.5.2-18	ケース 1 およびケース 2 における Pu/MA 流れ	3.5.2-21
図 3.5.2-19	ADS 新燃料の Pu 核種含有率の変化(ケース 1、2)	3.5.2-22
図 3.5.2-20	ADS 新燃料の MA 核種含有率の変化(ケース 1、2)	3.5.2-22
図 3.5.2-21	ADS 新燃料の発熱密度の変化(ケース 1、2)	3.5.2-23
図 3.5.2-22	ケース 3 およびケース 4 における Pu/MA 流れ	3.5.2-23
図 3.5.2-23	ADS 新燃料の Pu 核種含有率の変化(ケース 3、4)	3.5.2-24
⊠ 3.5.2-24	ADS 新燃料の MA 核種含有率の変化(ケース 3、4)	3.5.2-24
図 3.5.2-25	ADS 新燃料の発熱密度の変化(ケース 3、4)	3.5.2-25
図 3.5.2-26	ケース 5 およびケース 6 における Pu/MA 流れ	3.5.2-25
図 3.5.2-27	ADS 新燃料の Pu 核種含有率の変化(ケース 5、6)	3.5.2-26
図 3.5.2-28	ADS 新燃料の MA 核種含有率の変化(ケース 5、6)	3.5.2-26
図 3.5.2-29	ADS 新燃料の発熱密度の変化(ケース 5、6)	3.5.2-27

略語一覧

ADS	:Accelerator-Driven System (加速器駆動システム)
AVM	:Atelier de Vitrification de Marcoule (マルクール商用廃棄物ガラス固化施設)
BSE	:Backscattered Electron (反射電子)
BWR	:Boiling Water Reactor (沸騰水型原子炉)
CPC	:Compound Particle Circuit (複合粒子回路)
СТ	: Cooling Time (再処理前冷却期間)
EDS	:Energy Dispersive X-ray Spectrometry (エネルギー分散型X線分析)
FBR	:Fast Breeder Reactor (高速増殖炉)
FP	:Fission Product (核分裂生成物)
HM	:Heavy Metal (重金属)
ICP-AES	: Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectroscopy
	(誘導結合プラズマ発光分光分析法)
ICP-MS	: Inductively Coupled Plasma Mass Spectroscopy (誘導結合プラズマ質量分析法)
LET	:Linear Energy Transfer (線エネルギー付与)
LWR	:Light Water Reactor (軽水炉)
MA	:Minor Actinide (マイナーアクチニド)
MH 法	:Microwave Heating direct denitration method (マイクロ波加熱直接脱硝法)
MOX	:Mixed Oxide (混合酸化物)
NFD	:Nippon Nuclear Fuel Development Co., Ltd., (日本核燃料開発株式会社)
PUREX	:Plutonium Uranium Reduction Extraction (プルトニウム-ウラン溶媒抽出)
PWR	:Pressurized Water Reactor (加圧水型原子炉)
RE	:Rare Earth (希土類元素)
SD	:Storage before Disposal (地層処分前貯蔵期間)

SEM : Scaning Electron Microscope (走査型電子顕微鏡)

SF : Spent Fuel (使用済燃料)

- TBP : Tributyl Phosphate (リン酸トリブチル)
- TDdDGA : N, N, N', N'-tetradodecyldiglycolamide (テトラドデシルジグリコールアミド)
- TGDTA : Thermogravimetric Differential Thermal Analysis (熱重量示差熱分析)
- XRD : X-ray Diffraction (X 線回折)

概略

現行再処理にて発生する高レベル廃棄物は、ガラス固化された後、安定な岩盤中に地層処分さ れることになっている。ガラス固化体は潜在的には人体に有害な物質であるが、特に、現文明に て責任を負いきれない可能性を有する地層処分後 1000 年後の潜在的有害度は、高レベル廃棄物 中のマイナーアクチニド(MA)のうち数核種のみで決まる。このため、将来サイクルに向け、MA を分離し核変換して減ずる MA 分離変換技術の開発が進められている。一方、我が国はすでに約 17,000 トンの使用済燃料を保管し、また発生し続けており、現行再処理を推進することは喫緊 の課題である。しかし、現行再処理にて高レベル廃棄物を極めて安定なガラス固化体とすると、 その後 MA を抽出して MA 分離技術に繋げることが困難となる。この解決策として、現行再処理後 の高レベル廃棄物を、MA 分離変換技術が確立するまでの期間、安定かつ分離変換技術に接続可 能な形態(顆粒体)で貯蔵する柔軟な廃棄物管理法を提案している。柔軟な廃棄物管理法が確立 できれば、現在開発中の MA 分離変換技術を現行再処理廃液にまで適用可能とすることができ、 MA 分離変換技術の有効性を大幅に向上させることができる。柔軟な廃棄物管理法については、 平成 26 年度までのフィージビリティ研究により、基礎的な顆粒化試験、貯蔵時熱解析、および 環境負荷低減効果評価により、技術的成立性および環境負荷低減効果について見通しが得られて いる。

本研究開発はこれらを踏まえ、平成28年度から令和元年度までの4年間の計画的な研究により柔軟な廃棄物管理法の実用化手法を開発するべく、ロータリーキルン法顆粒化試験および加熱 プレスによる顆粒体高密度化試験により実用的な顆粒体製造技術開発を行うと同時に、作製した 模擬高レベル廃棄物顆粒体の基礎特性試験結果を基に、顆粒体貯蔵設備設計、顆粒体長期貯蔵時 の材料化学的安定性評価や顆粒体貯蔵用キャニスタの健全性評価、顆粒体からの高レベル廃液再 生試験を実施した。また、廃棄物処理処分条件が変化した場合の潜在的有害度や処分場面積の低 減効果を評価して柔軟な廃棄物管理法の有効性を確認するとともに、MA 含有燃料の発熱量減少 により燃料製造の信頼性・経済性向上に寄与する可能性について評価を行った。

令和元年度は4カ年計画の最終年度として、本業務で得られた成果を基に、柔軟な廃棄物管理 実用システムの定量的な有効性を含むシステムの概念仕様の設定を行うとともに、システムを構 成する各要素技術の基本仕様、および装置仕様、運転条件や操作要領を示した。顆粒体製造では、 顆粒体製造設備を現行再処理施設内に設置し、顆粒体の製造を行うとともに顆粒体貯蔵用に細径 としたキャニスタへの充填を行う。顆粒体貯蔵では、基本的に現行ガラス固化体貯蔵建屋を共用 して、約50年間の細径キャニスタの貯蔵を行う。顆粒体再廃液化では、将来建設されるMA分離 施設内の上流側工程にて再廃液化を行う。

これらの実用システム概念仕様および顆粒体製造技術基本仕様に基づいて、製造技術の要素技術の仕様を検討した。顆粒化対象の高レベル廃液は、ガラス溶融炉に供される直前の廃液である。 高レベル廃液を顆粒化するための手法としては仏国での実績を参考にすることの可能なロータリ ーキルン法を用いた。試験では 18 金属元素を含む模擬硝酸廃液を用い、顆粒体製造の実用技術 であるロータリーキルン法により廃液から顆粒体を一気に製造できることを示すとともに、実機 ロータリーキルンの設計および運転条件を試験結果の評価を踏まえて策定した。実機ロータリー キルンの主な運転条件は、乾燥ゾーンの温度を 250 ℃程度以上に保つことで膜沸騰による混合 で成分均一化を図り、か焼ゾーンで最高温度 600 ℃でか焼する。その後、仏国では考慮されて

ix

いない顆粒化ゾーンの開発を進め 270 ℃で顆粒化することで浮遊しやすい微細粉を減少させる こととする。回転速度や傾斜角度はか焼・顆粒化に必要な時間を確保するよう策定した。ロータ リーキルンで得られる顆粒体の仕様として、粒径、特定元素の凝集状態、密度、熱伝導率、残存 硝酸イオン、含水率を定めた。また、実機ロータリーキルンの設計では、70 L/h の再処理廃液 を連続的に乾燥・か焼・顆粒化処理可能とし、遠隔保守性を考慮してインセルクレーンやマニプ レーターで各モジュールを脱装着可能でありながら、現行再処理施設への接続が容易であるよう にコンパクトな設計を実施した。さらに、顆粒体の高密度貯蔵のオプションとして高密度顆粒体 の作製技術開発を実施し、細径キャニスタに準じた大口径高密度顆粒体を、廃棄物処理速度を確 保しつつ、セル内実績荷重 20 トン以下で作製できる見通しを得るとともに、遠隔保守性を考慮 したプレス機の各部のモジュール化設計を行った。なお、約 3 m×4 m の小規模なスペースにロ ータリーキルンから顆粒体の細径キャニスタへの封入までのシステムを設置できることを示した。

次に、貯蔵・再廃液化技術要素技術の仕様を検討した。早期実現のために細径キャニスタに封 入された顆粒体は現行ガラス固化体貯蔵建屋を共用して貯蔵する。この際、ガラス固化体よりも 高充填貯蔵となるために貯蔵面積は低減できるメリットを保持したまま、現行建屋の自然空冷下 で、顆粒体中の低融点硝酸塩成分を融解させないように除熱するため、細径キャニスタを通風管 内に 7 本配置した。貯蔵容積はガラス固化貯蔵と比べ約 29~49 %減容、貯蔵コストは約 34~ 49 %低減できる。なお、貯蔵に関わる材料開発課題は、顆粒体自体の化学変化と顆粒体の接す るキャニスタの内面腐食に絞られるため模擬顆粒体へのγ線照射および共存性試験からそれぞれ の長期変化機構を推定し、顆粒体含水率の仕様(0.3 %)下で 50 年間を想定した保管期間にわた る放射線分解による脱ガスでの内圧上昇は最大 15atm、腐食は最大でも 53 µm とわかり、本業務 におけるキャニスタ肉厚の設計仕様値 2 mmにて十分な強度を確保できることを確認した。

また、顆粒体は約50年間の貯蔵の後、再溶解・再廃液化して別途JAEAで開発が進められている MA 分離工程に接続する。保管後の顆粒体の硝酸による再溶解で得られた廃液の溶液部を分離 技術に供給し、再溶解時の不溶解残渣はガラス固化する。これは、実 MA をトレーサーとして使 用した試験により、MA の 99 %以上が溶液部に回収でき、MA を抽出分離可能であることによっ て確認し、高レベル廃液の顆粒体再溶解の操作要領や分離施設内への設置などの概念工程を確立 した。

柔軟な廃棄物管理システムの効果については、高レベル廃棄物貯蔵容積を 25 %以上低減させ、 総合潜在的有害度を 75 %以上低減させ、高レベル廃棄物処分場面積を 20 %以上低減させるも のとした。また、本法を FBR, ADS といった将来サイクルに適用すると、MA 含有燃料発熱量を低 減し、燃料製造の信頼性向上に大きく寄与することを確認した。

以上のように、MA 分離変換技術の有効性向上を目指し、既存の再処理高レベル廃液に対して、 将来確立される MA 分離変換技術を適用するために、再処理高レベル廃液を安定かつ再生可能な 形態である顆粒体で貯蔵する柔軟な廃棄物管理法の実用化開発を実施した。実用的な顆粒体製造 技術開発、貯蔵技術開発、貯蔵後の MA 分離技術への接続技術開発とともに、潜在的有害度低減 等の有効性評価を行い、柔軟な廃棄物管理システムの実用化に向けた概念仕様を構築した。本事 業では、六ケ所および東海の再処理施設の公開情報をもとに現行再処理施設を想定し、顆粒体製 造設備を施設内に追加することを提案したが、今後本研究成果が特定の再処理施設の追設計画に 反映されていくことを強く期待する。

х

1. はじめに

国の「エネルギー基本計画」[1]によれば、我が国は約 17,000 トンの使用済燃料を保管して おり今後も発生し続けるが、高レベル廃棄物処分問題については将来世代に負担を先送りせず、 現世代の責任として対策を確実に進めることとなっている。このため、核燃料サイクルを推進す るとともに、長期残留放射性核種の MA を分離し FBR や ADS を用いて安定な核種へ変換すること により、廃棄物の減容・有害度低減等、環境負荷低減に資する技術開発を推進することとしてい る。

MA 分離変換技術については国内外各機関で鋭意研究開発されているが、現状は個々の技術の 基礎研究や成立性確認段階にあり、分離変換の実現には核種分離、MA 含有燃料加工、高速中性 子炉による核変換等の要素技術がすべて実用化され、それらを効率的なシステムとして組み上げ るためには、今後、相当期間の取り組みが必要とされている[2][3]。我が国において使用済燃料 は再処理しプルサーマル利用する核燃料サイクルが行われる[1]が、現時点では MA 分離変換技術 が確立されていないため、MA を含む廃棄物(高レベル廃液)は、当面、再処理後すぐにガラス 固化され、地表施設で約 50 年間冷却貯蔵管理の後、最終的に深地層中に処分される計画である。 ガラス固化体は貯蔵管理および地層処分において人工バリアとしての放射性核種の封じ込め性に 優れているが、他方、一旦ガラス固化されると MA のみを取り出すことは技術的に難しく、将来、 分離変換技術が実用化されても既にガラス固化された廃棄物には適用できず、環境負荷低減につ ながらないという課題がある。

上記課題を解決するために革新的な廃棄物管理法、すなわち、高レベル廃棄物をガラス固化す る代わりに再生可能な顆粒体として冷却貯蔵し、地層処分直前に MA を分離変換し、FP をガラス 固化する「柔軟な廃棄物管理法」(図 1-1)を提案し、これまでに、基礎的なか焼試験、顆粒体 貯蔵時熱解析、環境負荷低減効果評価を行い、技術的成立性および工学的有効性の基本的な見通 しを得ている[4]。本研究開発は、「柔軟な廃棄物管理法」についての実用化のための技術開発 を行うものである。



図 1-1 柔軟な廃棄物管理法[4]

2. 業務計画

2.1 全体計画

MA 分離変換技術の有効性向上を目指し、既存の再処理設備廃液に対して、将来確立される MA 分離変換技術を適用するために、再処理高レベル廃液を安定かつ再生可能な形態である顆粒体で 貯蔵する柔軟な廃棄物管理法の実用化開発を行う。柔軟な廃棄物管理法の開発として、ロータリ ーキルン法顆粒化試験および加圧/加熱高密度化試験により実用的な顆粒体製造技術の開発を行 うとともに、製造した模擬廃棄物顆粒体の基礎特性試験結果を基に、顆粒体貯蔵設備設計、貯蔵 廃棄物の材料化学的安定性評価や貯蔵用キャニスタの健全性評価、廃液再生確認試験を行う。ま た、潜在的有害度低減効果、発熱量低減効果、処分場面積低減効果等の評価を行い、これらの結 果を統合的に評価し、柔軟な廃棄物管理システムの実用化に向けた概念仕様を構築することを目 的とする。本業務における4年間の研究開発項目を以下に示す。

(1) 柔軟な廃棄物管理システムの構築

柔軟な廃棄物管理法システムの各要素技術概念を選定し、開発試験結果および有効性評価結果 を踏まえ、整合性のあるシステム概念仕様案を構築する。

(2) 廃棄物顆粒体製造技術開発

① ロータリーキルン法模擬顆粒体製造試験

高レベル廃液の乾燥、脱硝、粉砕を一貫して行うロータリーキルン法顆粒化試験設備を設計・ 製作し、模擬廃液を基に顆粒化試験を行い、廃棄物顆粒体製造技術を開発する。

② 模擬廃棄物顆粒体基礎特性試験

模擬廃棄物顆粒体の化学形態、粒径、元素組成、充填密度、熱特性分析、熱伝導率等の基礎特 性データを分析評価し、成立性を確認する。

③ 廃棄物顆粒体製造技術評価(再委託先:原子力機構)

廃棄物顆粒体製造設備のセル内向け概念仕様案を構築する。

(3) 顆粒体高密度化/再廃液化技術開発

① 顆粒体高密度化技術開発

模擬廃棄物顆粒体の加圧・加熱による高密度化試験および高密度ペレットの基礎特性試験を行い、高密度化の成立性・効果を確認する。

② 廃液再生技術開発(再委託先:原子力機構)

模擬顆粒体の溶解試験を行い、不溶解性残渣の成分元素/形態分析等を基に、廃液再生性を評価するとともに、MA含有模擬顆粒体の再溶解性試験によりMA分離性への影響を評価する。

(4) 廃棄物顆粒体貯蔵技術開発

廃棄物顆粒体貯蔵設備設計(再委託先:日立GE)

顆粒体貯蔵設備の概念設計を基に高密度化減容効果を評価するとともに、詳細熱伝導解析によ り成立性を確認する。

・② 貯蔵廃棄物の材料化学安定性評価(再委託先:大阪大学)

高放射線影響等を考慮して顆粒体貯蔵時の材料化学変化や安定性を評価し長期貯蔵の成立性を 確認する。

③ 貯蔵用キャニスタの健全性評価(再委託先:九州大学)

廃棄物顆粒体貯蔵時のキャニスタの耐食性試験、外的要因による影響を評価し、健全性確保を

確認する。

(5) 柔軟な廃棄物管理法の有効性評価(再委託先:日立GE)

① 環境負荷低減効果評価

MA 回収率や廃棄物処理処分条件が変化した場合の潜在的有害度および処分場面積への影響を 評価・検討する。

② MA/FP 発熱量低減効果評価

発熱量低減による FBR/ADS の MA 含有燃料の製造性向上効果等を評価し、柔軟な廃棄物管理法の有効性を確認する。

(6) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、広く意見を聴 きながら研究を進めるため技術評価委員会を開催する。

本業務における4年間の年次計画を表2.1-1に示す。

年度	平成28年度	平成29年度	平成30年度	平成31年(令和元年) 度
	_	要素研究フェーズ (要素開発、基礎検討)		検証フェーズ (妥当性評価)
(1)柔軟な廃棄物管理システムの 構築(NFD)	要素技術検討	要素技術成立性評価	システム概念検討	システム概念仕様まとめ
(2)廃棄物顆粒体製造技術開発 ①ロータリーキルン法模擬廃棄物	装置製作および試作	製造単プロセス試験	製造プロセス統合試験	プロセス最適化および評価まとめ
1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1	予備試験	か焼体および試作顆粒体 特性試験	模擬顆粒体特性試験	特性試験および評価まとめ
試験(NFD) ③廃棄物顆粒体製造技術評価			セル内製造設備検討	配置概念検討および評価まとめ
(原士刀阀構) (3)廃棄物顆粒体高密度化/				
再廃液化技術開発 ①顆粒体高密度化技術開発	装置準備	か焼体高密度化試験	模擬顆粒体高密度化試験	高密度化試験および評価まとめ
 (NFD) ②廃液再生技術開発 (原スカ機構) 	予備検討	模擬廃液再生試験	MA分離基礎試験	MA分離試験および評価まとめ
(4)廃棄物顆粒体貯蔵技術開発				
①廃棄物顆粒体貯蔵設備設計	概念設計	減容貯蔵効果評価	熱伝導率解析モデル検討	解析および評価まとめ
②貯蔵廃棄物の材料化学安定性 2111111111111111111111111111111111111	試験体系整備	照射線量依存性試験	照射下含水率影響評価	顆粒体化学安定性評価まとめ
評価(大阪大学) ③貯蔵用キャニスタの健全性	予備検討	腐食試験・予備引張試験	腐食試験および引張試験	キャニスタ健全性評価まとめ
評価(九州大字)				
(1) 采标 & 原来 初 自 生 (2) 行 初 住 評価(日立 G E) ①環境負荷低減効果評価	解析·評価	MA回収率影響評価	処分条件変動時影響評価	環境負荷低減効果評価まとめ
②MA/FP発熱量低減効果評価	評価条件設定	解析手法構築	FBR用燃料発熱量評価	発熱量低減効果評価まとめ
(6)研究推進(NFD)	研究推進および技術評価	研究推進および技術評価	研究推進および技術評価	研究推進および技術評価まとめ
		· · · ·		

表 2.1-1 4年間の年次計画

2.2 令和元年度の成果の目標および業務の実施方法

(1) 柔軟な廃棄物管理システムの構築

柔軟な廃棄物管理法システムとして構築した複数のシステム案に対して、本業務における技術 開発・評価を反映した結果を基に、システム案の絞り込みを行う。

(2) 廃棄物顆粒体製造技術開発

① ロータリーキルン法模擬顆粒体製造試験

模擬廃液を用いて製造プロセス制御試験を行い、単プロセスに対して温度勾配の影響を評価する。また、模擬廃液から顆粒体の試作を行い実用化製造設備での顆粒化を評価する。

② 模擬廃棄物顆粒体基礎特性試験

バッチ式ロータリーキルンおよび顆粒体製造プロセス試験装置にて作製した顆粒体の組成ミク ロ分布、粒度分布を測定するとともに、密度、熱伝導率、融点、熱特性、吸湿性の測定を実施す る。

③ 廃棄物顆粒体製造技術評価(再委託先:原子力機構)

ロータリーキルンによる高レベル廃液からの顆粒体製造装置について、模擬顆粒体製造試験結果を基に、遠隔保守性とセル内環境を考慮した装置の基本的な設計を行う。

(3) 顆粒体高密度化/再廃液化技術開発

① 顆粒体高密度化技術開発

ロータリーキルンにて作製した顆粒体について、荷重や温度等をパラメータとした高密度化試 験を実施し、熱伝導率、密度、吸湿性を測定する。

② 廃液再生技術開発(再委託先:原子力機構)

廃棄物顆粒体の再廃液化試験および MA 分離試験の条件を確定するため、MA トレーサーを添加 したか焼体の作製と溶解試験を実施し、MA の挙動に関するデータを取得する。また、日本核燃 料開発(株)(以下、NFDと表記。)において試作したコールドの模擬顆粒体の溶解試験を実施 する。

(4) 廃棄物顆粒体貯蔵技術開発

廃棄物顆粒体貯蔵設備設計(再委託先:日立GE)

模擬廃棄物顆粒体基礎特性試験で得られた熱伝導率を基に、貯蔵設備の詳細熱伝導解析評価に 必要な熱伝導率解析モデル、解析条件等を検討・設定し、予備的解析を実施する。

貯蔵廃棄物の材料化学安定性の評価(再委託先:大阪大学)

廃棄物顆粒体模擬物質を用いてγ線照射を行い、生成物質(水素および NOx)および残留物の 測定を行い、その含水率依存性を評価する。

③ 貯蔵用キャニスタの健全性評価(再委託先:九州大学)

キャニスタ材 SUS304L に対して、硝酸塩および模擬顆粒体による腐食試験を実施する。また、 NaNO3融点以下の温度にて長期腐食試験を継続して実施し、SEM-EDX 分析および XRD 分析により 観察・評価する。キャニスタの材料強度評価に資するための引張試験を実施する。

(5)柔軟な廃棄物管理法の有効性評価(再委託先:日立GE)

① 環境負荷低減効果評価

廃棄物処理処分条件が変動した場合の潜在的有害度および処分場面積への影響を評価する。

② MA/FP 発熱量低減効果評価

MA 核変換システムとして FBR を導入した場合において、柔軟な廃棄物管理法の適用によるア クチニド核種の物量変化、MA 含有燃料発熱量等を解析し、燃料製造性への有効性を評価する。

(6) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、広く意見を聴 きながら研究を進めるため技術評価委員会を開催する。

令和元年度の業務の実施日程を表 2.2-1 に示す。

区分	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月
(1)柔軟な廃棄物管理システムの構築	•											
(2)廃棄物顆粒体製造技術開発												
①ロータリーキルン法模擬顆粒体製造 試験	-											
②模擬廃棄物顆粒体基礎特性試験												
③廃棄物顆粒体製造技術評価 (原子力機構)												
(3)顆粒体高密度化/再廃液化技術開発												
①顆粒体高密度化技術開発	•											
②廃液再生技術開発(原子力機構)	•											
(4)廃棄物顆粒体貯蔵技術開発												
①廃棄物顆粒体貯蔵設備設計 (日立GE)	-											
 ②貯蔵廃棄物の材料化学安定性評価 (大阪大学) 	-											
③貯蔵用キャニスタの健全性評価												
(九州大学)												
(5)柔軟な廃棄物管理法の有効性評価 (日立GE)												
①環境負荷低減効果評価	-											
│ ②MA/FP発熱量低減効果評価												
(6)研究推進	-											

表 2.2-1 令和元年度業務の実施工程

3. 業務の実施内容および成果

3.1 柔軟な廃棄物管理システムの構築【H28-R1】

現行再処理において発生する高レベル廃棄物を保管して、将来確立する MA 分離変換技術を適 用することができれば、MA 分離後の廃棄物の潜在的有害度を大幅に減少させることが可能とな る。このために、革新的な廃棄物管理法、すなわち、高レベル廃棄物をガラス固化する代わりに 再生可能な顆粒体として冷却貯蔵し、地層処分直前に MA を分離変換し、FP をガラス固化する柔 軟な廃棄物管理法[4]を提案している。柔軟な廃棄物管理法の実用化開発では、実用手法による 各要素技術の開発を行うとともに、本業務による開発成果を踏まえ、図 1-1 に示した柔軟な廃棄 物管理システムの概念を実用化システムの概念仕様へ落とし込む。本節では、柔軟な廃棄物管理 システムの構築として、実廃液処理実績や既存開発実績を利用した要素技術を選定し、本業務に おける各要素技術の開発成果や有効性評価を踏まえてシステム案を組み上げるとともに、達成可 能な仕様を設定してシステム概念仕様を構築する。また、柔軟な廃棄物管理システムを構成する 要素技術である顆粒体製造技術、顆粒体貯蔵技術、顆粒体再廃液化技術が満たすべき基本仕様を 策定する。本業務における4年間の開発計画として、図3.1-1 に示すように、まず、開発するべ き技術の選択肢を評価選定(3.1.1 項)し、次に、想定した複数システム案の成立性総合評価を 行って候補となるシステム案を設定(3.1.2 項)し、システム概念仕様の策定(3.1.3 項)を行 う。

3.1.1 柔軟な廃棄物管理法の要素技術の選定 【H28】

柔軟な廃棄物管理法を構成する要素技術の選択肢について前公募事業[4]のフィージビリティ 結果や最新の検討等を踏まえ、実用化開発で対象とする技術候補の選定・評価を行った。

現行再処理において発生する高レベル廃棄物を将来確立する MA 分離変換技術に適用するため に、高レベル廃棄物を MA 分離変換技術確立まで冷却しながら貯蔵する必要期間を約 50 年間と考 えた。この 50 年間を想定した場合の貯蔵形態として、ガラス固化体、硝酸廃液、か焼体、か焼 体粉末、顆粒体(顆粒化したか焼体)等を比較検討し、MA 分離コストおよび貯蔵コスト等の観点 から大きな弱点が存在しない貯蔵形態の検討を行った。なお、ここで言うか焼体とは、化学変化 を伴わずに高レベル廃液を蒸発乾固させたか焼体ではなく、保管中に想定される温度で容易に硝 酸ガスが発生しないように、成分の一部もしくは全部について化学変化を生じる温度で焼成し化 学的に安定化させたものを指す。検討の結果、ガラス固化体は分離技術適用前の再廃液化に、ま た硝酸廃液は、保管時の化学安定性に大きな弱点が存在したが、顆粒体による貯蔵には本質的な 弱点はなく、貯蔵時の化学安定性、発熱の均一性確保、除熱性能、MA 分離性の確認が必要とな るが、実現に向けた最有力の貯蔵形態であると結論した。なお、本業務で言う顆粒体とは、か焼 体粉末をある程度のサイズにまとめたものであり、その性能の目標は、放射性粉末の飛散防止と ともに、発熱密度の一様化、熱伝導率の一様化である。また、顆粒体を圧縮したものを本業務で は高密度顆粒体と呼び、さらなる貯蔵面積の低減および熱伝導率の向上を図った貯蔵形態である。 また、顆粒体の製造技術として、文献[5,6]より、ロータリーキルン法、流動床仮焼法、マイク ロ波焼結法について比較評価した。この結果、高温焼成による全量の酸化物化を図ると再溶解が 困難となることから、アルコールや水ではなく低融点硝酸相による造粒が可能な手法として、エ 程が単純であり、比較的低温での焼成に実績のあるロータリーキルン法を選定した。

3.1.2 複数システム案とその成立性・安全性・経済性評価 【H29~H30】

本節では、柔軟な廃棄物管理法を構成する各要素技術の選択肢を組み合わせた整合性のある複数のシステム案を比較し、システム案の絞り込みを実施した。

顆粒体はか焼時のか焼温度に応じてその化学形態が異なる。すなわち、150 ℃程度の低温焼成 であれば水分と硝酸の蒸発したほぼ硝酸塩の乾固体となり、900 ℃以上の焼成であればほぼ酸化 物となり、その中間の温度においては硝酸塩成分と酸化物成分が混在した化学形態となる。顆粒 体のか焼温度は 300 ℃~900 ℃のうちの適切な温度と考えており、300 ℃、600 ℃、900 ℃を か焼温度とした顆粒体を用いるシステムを想定した。また、各か焼温度の顆粒体を加熱プレスに より高密度化するオプションを考え、合計6ケースの顆粒体を用いたシステム案を複数システム 案とした。

顆粒体製造容易性に関して、製造時か焼温度を 300 ℃、600 ℃としたか焼体粉末の顆粒化挙 動は、低融点硝酸塩相による粘結が有効に働き、顆粒化が容易に進行することがわかった。一方、 か焼温度を 900 ℃とした模擬か焼体粉末の顆粒化は残存硝酸塩による粘結はほとんど見られな いが、水蒸気導入による一部酸化物の水酸化物化とその溶融によって粘結を進められる可能性が ある。また、製造時か焼温度を 300 ℃、600 ℃、900 ℃とした模擬顆粒体の高温プレスによる 高密度化試験ではいずれも 8kN/10mm φ以下の低圧で高密度化が可能であった。一方、製造時に は Ru 揮発や有機物の分解といった安全上の懸念も存在する。製造時か焼温度が低温の場合には 顆粒体中にわずかに有機物が残留して貯蔵時に酸化する可能性があり、廃液中の有機物は顆粒体 製造前に除去しておく必要がある。製造時の Ru 揮発については、揮発した Ru をトラップするこ とで対処できる。顆粒体貯蔵時の熱除去については、高密度顆粒体を装荷した場合の細径キャニ スタの中心温度は、発熱密度増大と熱伝導率増加がちょうど打ち消し合うことにより、粒状の顆 粒体を装荷する場合と大きくは変わらない。また、顆粒体貯蔵時の化学安定性については、模擬 顆粒体に対するγ線照射試験を実施したところ微量の NOx と H₂ が発生したが、比較的影響の大 きいか焼温度が低温の顆粒体の場合等においても窒素封入などの対策を取れば内圧上昇は小さい。 また、顆粒体とキャニスタ内面との共存性についても、いずれの温度でか焼した顆粒体を使用し た場合でも 50 年間の腐食量は小さい。また、模擬か焼体粉末の硝酸への再溶解について、か焼 温度を 900 ℃とした顆粒体を用いる場合は、再溶解時残渣をアルカリ溶解法で溶解する必要が 生じるが、その他のケースの顆粒体では硝酸への溶解が比較的容易に進むことがわかった。

これらの本業務の要素技術開発を踏まえた検討により、複数システム案の成立性について検討 したところ、6ケースとも克服困難な課題があると評価された項目は1つもなく、いずれのシス テム案についても成立することが確認できた。さらに、システム案を比較評価してシステム案を 絞り込むため、各システム案について、柔軟な廃棄物管理システムに関わる各設備(顆粒体製造 設備・貯蔵設備・再溶解設備)の安全性、これらの経済性、および環境負荷低減効果の比較評価 を行った。安全性については、その安全対策コストは経済性に含むとし、本質的に安全性確保が 可能かどうかを論点とすると、成立性の評価には一定の高い水準の安全確保方法が前提として求 められるため、成立性評価に含めて〇×にて判断を行った。また本システムの環境負荷低減効果 の向上は、できるだけ早期の顆粒化設備導入によって、現行再処理稼動期間に生成する廃液のう ちMAを含有したガラス固化体の作製割合を減らし、廃液の多くをMA分離変換技術につなげるこ とが非常に有効であるため、顆粒化設備の完成およびシステム全体仕様の具体的評価による本シ ステムの導入判断時期の差が、各システム案の環境負荷低減効果比較の指標となる。このため、 各システム案のうちからベースとなるケースを設定し、それに対してほかのシステム案で必要と なる追加設備の技術開発期間が顆粒化開始時期に影響するかどうかを判断した。経済性について も同様にベースとしたケースからの差によって評価した。なお、環境負荷低減効果はコストでは 図れない重要指標であるため、経済性の観点よりも優先して考えた。これらの評価結果を表 3.1-1に示す。

その結果、顆粒化開始時期、すなわち環境負荷低減効果に影響を及ぼすケースとして、300 ℃ か焼の顆粒体および高密度顆粒体を採用したシステムは、か焼前の廃液中から TBP およびその劣 化物といった有機物をあらかじめ除去するための吸着システムの開発期間が必要であり、また、 900 ℃か焼の顆粒体および高密度顆粒体を採用したシステムは焼成時の炉心管の材質選定試験が 必要となるために、いずれも導入時期が数年遅れる可能性がわかった。600 ℃か焼の顆粒体およ び高密度顆粒体を採用したシステムは、ほかのシステムと比較して顆粒化開始時期が最も早いと 見られるため、この2つのシステム案を有力候補として選定した。

3.1.3 柔軟な廃棄物管理法の概念仕様の設定【R1】

令和元年度は、昨年度までに選定した 600 ℃か焼の顆粒体を採用したシステム案を対象とし、 600 ℃か焼の顆粒体をプレス機によって高密度化することをオプションとして、整合性のある廃 棄物管理システムの概念仕様を設定し、システム構成技術の基本仕様を示す。ここで言うシステ ム概念仕様とは、貯蔵容積低減・環境負荷低減の観点から有効性を持つ柔軟な廃棄物管理システ ム全体を成り立たせるための仕様であり、システム構成技術の基本仕様とはシステム概念仕様の 下で、顆粒体製造技術、顆粒体貯蔵技術、顆粒体再廃液化技術それぞれに定める仕様を指す。

(1) システム概念仕様

本業務で得られた研究開発成果を踏まえ、柔軟な廃棄物管理システム概念の仕様化を行った。 図 3.1-2 に示すように、柔軟な廃棄粒管理システムは顆粒体製造フェーズ、顆粒体貯蔵フェーズ、 顆粒体再廃液化フェーズの3つのフェーズに分かれる。顆粒体製造フェーズでは、顆粒体製造設 備を現行再処理施設内に設置し、顆粒体の製造を行うとともに細径キャニスタへの充填を行う。 顆粒体貯蔵フェーズでは、基本的に現行ガラス固化体貯蔵建屋を共用して、約50年間の細径キ ャニスタの貯蔵を行う。顆粒体再廃液化フェーズでは、将来建設される MA 分離施設内の上流側 工程にて再廃液化を行う。

顆粒体製造は再処理工場にて行うことにしているため、柔軟な廃棄物管理システムにおける顆 粒体製造は現行再処理工場に接続可能であることが求められる。顆粒化対象の高レベル廃液は、 現行再処理後、ガラス溶融炉に供される直前の廃液とし、アルカリ洗浄溶媒やTBPおよびその劣 化有機物、分析廃液を含んだものとする。高レベル廃液を顆粒化するための手法としてはロータ リーキルンを用い、焼成中最高温度となるか焼工程の温度は 600 ℃とする。このロータリーキ ルンは高放射線場に設置されるため、遠隔保守が可能である必要がある。ロータリーキルンで製 造された顆粒体には、安全性確保の観点から、高放射能の粒子を飛散させないため浮遊性の微粒 子を含まないことおよび貯蔵時の局所融解を防止するため発熱元素が凝集していないことが求め られる。また、作製した顆粒体の細径キャニスタへの封入も現行再処理工場内で行う。なお、こ れら顆粒体製造設備の最大処理能力は現行再処理工場の最大処理能力をカバーできるものとする。

細径キャニスタに封入された顆粒体は現行ガラス固化体貯蔵建屋を共用して貯蔵する。現行ガ ラス固化体貯蔵建屋は、現行再処理工場で製造されたガラス固化体キャニスタを通風管内の収納 管に貯蔵する施設であり、通風管と収納管の間に空気を自然循環させて冷却するという仕様にな っているため、顆粒体貯蔵は、自然循環の空気冷却であることが求められる。顆粒体はガラス固 化体と比較しガラス成分を含まないために発熱密度が高く、現行キャニスタより冷却能を高くす る必要がある。このため、顆粒体は径 15cm 程度の細径キャニスタに封入して徐熱性能を確保す るとともに、これを通風管内に7本程度配置してガラス固化体よりも高密度の貯蔵を行う。また、 細径キャニスタ使用に伴う材料開発課題を顆粒体の接する内面腐食に絞るため、細径キャニスタ 材は現行キャニスタと同一のSUS304Lとする。なお、共用貯蔵設備が一杯になった際には、現行 ガラス固化体貯蔵技術をそのまま用いて自然冷却型の細径キャニスタ専用貯蔵設備を建設するが、 共用貯蔵後の現行ガラス固化体冷却後空きスペースについても顆粒体貯蔵に再利用する。

顆粒体は約50年間の貯蔵の後、再溶解・再廃液化して別途開発の進められているMA分離工程 に接続する。現在日本原子力研究開発機構(原子力機構:JAEA)で開発が進められているMA分 離技術は、再処理プロセスからの抽出残液からMAを溶媒抽出によって分離する方針として開発 が進められている[3]ため、そこに接続させられるように顆粒体の再溶解手法は硝酸溶解とする。 硝酸による再溶解で得られた廃液の溶液部を分離技術に供給することとし、再溶解時の不溶解残 渣はガラス固化する。ここで、核変換対象であるMAが不溶解残渣に移行した場合、MAを含有す るガラス固化体が製造されることになり、環境負荷低減効果が減少するので、再溶解時の溶液部 へのMA以降割合は95%以上とする。

柔軟な廃棄物管理システムの効果に関する仕様については、高レベル廃棄物貯蔵容積を 25 % 以上低減させ、総合潜在的有害度を 75 %以上低減させ、高レベル廃棄物処分場面積を 20 %以 上低減させるものとする。

(2) システム構成技術の基本仕様

システム概念仕様の下、本業務で得られた要素技術開発成果を踏まえ、表 3.1-2 のようにシス テム構成技術の基本仕様を策定した。図 3.1-3 に示すように顆粒体製造技術については、現行再 処理設備のガラス固化設備と同等の処理速度が求められるため、廃液 70L/h を連続処理できるロ ータリーキルンを使用する。顆粒体製造時の高放射能の粒子の飛散を低減するためにロータリー キルンに顆粒化部を設け、顆粒体の粒径を 10 µm 以上とするとともに、顆粒体貯蔵時の局所融解 を防止するため、顆粒体製造時の発熱性元素の凝集を 0.1mm 程度以下とする。また、製造システ ムの遠隔保守を可能とするために、ロータリーキルンはモジュール化してマニプレーターで脱着 可能とする。なお、顆粒体貯蔵面積のさらなる低減のため、製造システムのオプションとして顆 粒体の高充填化を行う場合は、ロータリーキルンから出力された顆粒体に対し加熱プレスを行う。 次に、顆粒体貯蔵技術については、図 3.1-4 に示すように、ガラス固化体貯蔵建屋を共用するた め、キャニスタ以外は現行貯蔵法と同仕様とする。低融点の硝酸塩相を含む顆粒体は融点が低く、 最高温度となる充填中心温度は一部硝酸塩成分の融解開始温度(約 260 ℃)以下としなければな らず、また、冷却空気は現行自然循環空気の制限温度 65 ℃未満とするため、内径 14.6cm の細 径キャニスタを通風管内に 7 本配置された収納管内で貯蔵することにする。キャニスタは健全性 を確保するために肉厚を 2.0mm とし密封する。再廃液化技術については、図 3.1-5 に示すように、 将来の分離設備に接続可能なように硝酸溶解とし、溶解液の酸濃度調整などを行った上で MA 分 離工程に供給する。1000 年後の潜在的有害度を低減させるために溶解液への MA 移行率は 95 % 以上とする。オプションである高密度顆粒体の再廃液化に関しては顆粒体と同等の MA 移行率と する。

(3)柔軟な廃棄物管理法の概念仕様体系

図 3.1-6 に柔軟な廃棄物管理法の概念仕様体系を示す。本 3.1 節では、図 3.1-6 に示す点線で 囲った範囲の仕様を定めた。すなわち、システム概念仕様を定めるとともにシステムの概念仕様 を満たす各構成技術の基本仕様を策定した。ここで策定したシステム概念仕様および各技術の基 本仕様の下で、その下部にそれぞれの各要素技術に対する具体的な仕様・機器運転条件・操作要 領を設計した。それらの詳細については 3.2~3.4 節にて詳述するが以下に概要を記載する。

顆粒体製造技術基本仕様の下の具体的な仕様は 3.2 節並びに 3.3.1 項に記載する。3.2.1 項で は実機ロータリーキルンの運転条件を述べ、3.2.2 項では得られる顆粒体仕様を記述し、3.2.3 項では実機ロータリーキルンシステムの基本的な設計結果を記載する。3.3.1 項ではオプション として開発を進めた加熱プレスの基本仕様、すなわち加熱プレス機の仕様・運転条件、得られる 高密度顆粒体の仕様を記す。顆粒体製造技術基本仕様を満たす実機ロータリーキルンは、70L/h の再処理廃液を連続的に乾燥・か焼・顆粒化処理可能で、セル内で出力された顆粒体をキャニス タ封入まで可能なものとなっている。遠隔保守性を考慮してインセルクレーンやマニプレーター で各モジュールを脱装着可能でありながら、現行再処理施設に接続可能なように 3m×3m 程度の 台座に設置可能なコンパクトな設計とした。このロータリーキルンの主な運転条件は、乾燥ゾー ンの温度を 250 ℃程度以上に保つことで膜沸騰による混合で成分均一化を図り、か焼ゾーンで 最高温度 600 ℃でか焼する。その後、顆粒化ゾーンで 270 ℃で顆粒化することで、1 本の焼成 炉内で高レベル廃液から顆粒体を作製する。回転速度や傾斜角度はか焼・顆粒化に必要な時間を 確保するよう設定した。ロータリーキルンで得られる顆粒体の仕様は、粒径 10 µm 以上であり、 特定元素の凝集は 0.1 mm 以下、密度は 3.5 g/cm³、熱伝導率は室温で 0.8 W/m/K、残存硝酸イオ ンは約30 wt %、細径キャニスタへの封入作業終了時の顆粒体含水量は0.3 wt %とした。オプ ションとしての加熱プレスには、セル内実績荷重の 20 トン以下の荷重で、細径キャニスタ径の 高密度顆粒体を、70 L/h で排出される高レベル廃液から製造される顆粒体を滞りなく高密度化 する。

顆粒体貯蔵技術基本仕様の下の具体的な仕様は3.4節にて細径キャニスタの仕様として記載する。熱除去性、顆粒体の放射線分解、キャニスタ材腐食の観点等から検討した結果、細径キャニスタは、内径14.6cm、肉厚2mm、外径15cm、内高123cm、廃棄物充填高さ108cm、通風管内7本配置時の収納管の内径15.4cm、肉厚3mm、通風管内径58cmと設定した。なお、内高、廃棄物充填高さ、通風管内径はガラス固化体貯蔵時と同じである。

再廃液化技術基本仕様の下の具体的な仕様は 3.3.2 項にて再溶解操作要領として述べる。MA 分離施設の前段部にて、保管後の顆粒体を濃硝酸に投入して 90 ℃まで加熱し、24h 程度保持し た後、放冷する。次に、残渣と液相を遠心分離あるいはフィルターにより分離した後、液相の硝酸濃度を溶媒抽出の供給液として適した 3.0Mになるよう調整し、MA分離工程に供給する。残渣は、固化工程において適切な性状の固化体とする。

以上のように、柔軟な廃棄物管理システムの構築では、4 年間の実用化開発にて柔軟な廃棄物 管理法システムの各要素技術概念を選定し、開発試験結果および有効性評価結果を踏まえ、整合 性のあるシステム概念仕様を構築した。

システム要素技術評価

- 開発するべき要素技術の選択肢を評価・選定(平成28年度)
- ・ システム案のパラメータの設定(平成28年度)

成立性総合評価

- システム案の成立性確認(平成29年度)
- 有効性・経済性等から総合評価し、システム案を絞り込み(平成30年度)

システム概念仕様策定

絞り込んだ構成技術による概念仕様の確立(令和元年度)

図 3.1-1 4年間の計画概要

評価項目			成立性	環境負荷 低減効果	経済性	備考
複数システム案	300°C か焼	顆粒体	0	res inter		貯蔵時の可燃物質残留防止のため顆粒体製造前廃液中の有機物除去装置の開発期間確保が必要。
		高密度顆粒体	0	焼液からの 有機物除去装置		マステム等へ遅れにより、現行 再処理稼動期間に対し分離変換 につなげられる廃液の割合が低 下。
	600°C か焼	顆粒体	0	0	0	すべての要素技術項目において ベース評価もしくはベース評価 と同等
		高密度顆粒体	0	0	0	すべての要素技術項目において ベース評価もしくはベース評価 と同等
	900°C か焼	顆粒体	0	▲ 耐腐食 炉心管材 開発	▲ 残渣溶解時 アルカリ 溶解設備	顆粒体製造時の炉心管材にニッ ケル系合金の選定・確認が必要 であり、システム導入遅れによ り、分離変換につなげられる廃 液の割合が低下。 再溶解時に高温のアルカリ溶融 設備の追加が必要。
		高密度顆粒体	0			

表 3.1-1 システム案の比較評価



図 3.1-2 柔軟な廃棄物管理システムの概念仕様化

システム 構成技術	要求事項	基本仕様		
	現行再処理廃液の安定化	現行再処理に接続し、廃液を600℃でか焼		
	廃液排出速度を上回る製造速度	廃液70L/hを連続処理		
■西 业会 /士	飛散性の低減	顆粒化部を設け、粒径10µm以上とする		
│ ^{积01} 仲 │製造技術	局所融解の防止	発熱性元素の凝集は0.1mm程度以下		
	遠隔保守	モジュール化してマニプレーターで脱装着可とする		
	高充填化による貯蔵面積のさらなる 低減(オプション)	加熱プレスの設置(オプション)		
marke de	ガラス固化体貯蔵建屋共用	キャニスタ以外は現行貯蔵と同仕様 自然循環空冷		
│顆粒体 │貯蔵技術	顆粒体中心温度は融点以下、冷却 空気<65℃	収納管内に細径キャニスタ7本配置、細径キャニスタの径14.6cm		
	キャニスタ・顆粒体の健全性確保	キャニスタ肉厚2.0mm、キャニスタは密封		
王贞法 ()	将来の分離設備に接続できること	硝酸溶解、溶解液をMA抽出に用いる		
│ 冉廃次化 │ 技術	1000年後の潜在的有害度を低減	溶解液へのMA移行率95%以上		
	高密度顆粒体(オプション)の再廃液化	顆粒体と同等の溶解液へのMA移行率		

表 3.1-2 各システム構成技術の基本仕様







図 3.1-4 顆粒体貯蔵技術の基本仕様



図 3.1-5 再廃液化技術の基本仕様



図 3.1-6 柔軟な廃棄物管理システム概念仕様体系

3.2 廃棄物顆粒体製造技術開発【H28-R1】

本節では、ロータリーキルンにより現行再処理廃液から顆粒体を製造する要素技術開発の成果 について記載する。3.2.1 項「ロータリーキルン法模擬顆粒体製造試験」では、実験室規模のロ ータリーキルン試験装置を用いて要素試験を実施して開発した顆粒体の製造技術について述べる。 3.2.2 項「模擬廃棄物顆粒体基礎特性試験」では、顆粒体の物理的・化学的特性を支配するか焼 温度をパラメータとして種々の特性を評価して 3.1 節「柔軟な廃棄物管理システムの構築」にお けるか焼温度決定への判断材料を供給するとともに、要素試験で試作された顆粒体の評価を行う。 3.2.3 項「廃棄物顆粒体製造技術評価」では、上記の試験で得られた知見に基づき、実機ロータ リーキルンシステムの設計検討を行う。

3.2.1 ロータリーキルン法模擬顆粒体製造試験【H28-R1】

柔軟な廃棄物管理法では、現行再処理廃液をロータリーキルンでか焼・顆粒化する。製造され る顆粒体には、高放射能の微粉末が飛散しないように粒径 10 µm 以上にまとめることと、貯蔵時 に局所融解を招かないよう発熱元素の凝集は 0. 1mm 程度以下とすることが求められる。本項では そのような顆粒体の製造技術開発結果並びに成果を記述する。まず 3.2.1.1 試験計画にて4年間 の開発戦略を述べる。3.2.1.2 プロセス試験では、ロータリーキルン内でのプロセスを切り分け てプロセスごとに実施したプロセス試験、および各プロセス間の接続を図る連続プロセス試験の 結果について記述する。次に、3.2.1.3 プロセス統合では、各要素試験の結果から実機ロータリ ーキルンシステムの仕様を検討するとともに、検討した仕様を確認するために実施した試験結果 について述べる。最後に 3.2.1.4 顆粒体製造システムの成立性評価では、4 年間の研究開発成果 により顆粒体製造システムが成立することを示す。

3.2.1.1 試験計画

図 3.2.1-1 に示すように、4 年間の開発戦略として、まず、ロータリーキルン内でのプロセス を乾燥・か焼・顆粒化のプロセスに分け各単プロセスにおける製造条件を検討するとともに、各 プロセス間の接続を図る。以上の結果を基にプロセス統合では、実機ロータリーキルンシステム の仕様および運転条件を策定し、策定した仕様・運転条件を基に顆粒体製造プロセス試験装置で 実機ロータリーキルンでの製造条件を模擬して顆粒体を作製し、顆粒体製造システムの成立性を 確認する。

3.2.1.2 プロセス試験 【H28-H30】

ロータリーキルン内に投入された廃液は、図 3.2.1-1 上の模式図に示すように乾燥プロセスに より水分・硝酸の蒸発を経て乾固体となり、続いてか焼プロセスによって乾固体が脱硝・酸化を 経てか焼体となり、さらに顆粒化プロセスによってか焼体が顆粒化されて一定以上のサイズにま とめられた顆粒体となって出力される。ロータリーキルン内で廃液はこれら乾燥・か焼・顆粒化 のプロセスを連続的に経験するが、これらの各プロセスでの製造条件を得るために、プロセスご とに切り分けた試験を実施した。まず、(1)乾燥プロセス試験では、適切な乾燥条件を見出すた めに、静置した蒸発皿や炉心管を水平に配置したバッチ式ロータリーキルンへ模擬廃液を滴下す ることで廃液の乾燥挙動を試験した。(2)か焼プロセス試験では、乾燥後からか焼プロセスにか けて発生する脱硝現象をバッチ式ロータリーキルンを用いて確認した。次に、(3)乾燥・か焼プ ロセス接続試験では、乾燥プロセスとか焼プロセスを接続する方法を開発するために、炉心管に 傾斜を持たせることのできる顆粒体製造プロセス試験装置すなわち連続式ロータリーキルンで試 験を実施した。(4)顆粒化プロセス試験は、か焼後の廃棄物(か焼体)が顆粒化する条件を見出 すために、バッチ式ロータリーキルンを用いた試験を実施した。(5)連続プロセス試験では、乾 燥・か焼・顆粒化の3つのプロセスを1本の炉心管の中で接続するために、まず、(5-1)粉体移 動速度試験で、乾燥後に粉体となった模擬廃棄物がロータリーキルン内を傾斜と回転によって移 動する挙動を確認し、(5-2)顆粒体連続試作試験では、乾燥・か焼・顆粒化の3つのプロセスが 接続可能であることを確認した。

(1) 乾燥プロセス試験

ロータリーキルンに投入された廃液の蒸発・乾燥挙動を観察するために、まず蒸発皿上に模擬 廃液を滴下して乾燥し乾固体とする試験を行った。図 3.2.1-2 に示すように、ホットプレート上 に蒸発皿を置き、熱した蒸発皿上に一定量の模擬廃液を滴下した。なお、模擬廃液組成は、前公 募事業[4]を参照し、基本的に表 3.2.1-1 に示す 18 金属元素を含有した硝酸溶液を使用した。滴 下前のホットプレートの設定温度を 180 ℃、230 ℃、および 500 ℃とし模擬廃液が乾燥するま で熱したところ、それぞれ約11分、約6分、および約2分で乾燥した。約11分で乾燥させた乾 固体(図 3.2.1-3 左)は蒸発皿に強く固着していたが、約 6 分で乾燥させた乾固体(図 3.2.1-3 中 央)の蒸発皿への固着は弱く、約2分で乾燥させた乾固体(図3.2.1-3右)は蒸発皿からほぼ剥離 した状態であった。これは乾燥時間が短いほど激しい膜沸騰を生じ内部に多数の気泡が含まれた まま乾固したことによると見られた。また、破断面を SEM-EDS 観察したところ沸騰が激しい方が 元素偏在が小さいことがわかった。これをロータリーキルンの廃液乾燥ゾーンに置き換えて考え れば、乾燥ゾーンでは膜沸騰を維持することにより、管壁への乾固体の付着の低減が見込めると ともに、激しい沸騰混合によって元素の偏在が軽減されることが期待される。上記の結果を踏ま え、バッチ式ロータリーキルンによる乾燥プロセス試験として、500 ℃に加熱し回転しているロ ータリーキルン内に模擬廃液を直接滴下する試験を実施したところ、蒸発皿での試験と同様に、 生成した乾固体の管壁への付着は弱くさじを用いて容易に掻き出すことができるとともに、乾固 体の元素偏在が小さいことが確認された。なお、膜沸騰による蒸発乾固にて管壁への付着低減が 図れるものの、実機ロータリーキルンにおいては、後述するように管壁からの剥離を促すための 機構を設置することとした。

(2)か焼プロセス試験

乾固体となった廃液は、管壁から剥離された後にロータリーキルンの傾斜に沿って、脱硝・酸 化を伴うか焼プロセスに移動して脱硝される。か焼ゾーンはロータリーキルン中で最高温度とな る部分であり、最終的に生成する顆粒体の化学物性(硝酸塩/酸化物比)を決める工程である。か 焼プロセス試験では、粉末乾固体を試料としてバッチ式ロータリーキルンに装荷し、乾燥空気雰 囲気下で昇温させながら図 3.2.1-4 に示すように内部の様子を観察した。昇温させていくと、乾 固体は、試料装荷時から 230 ℃程度まで、炉心管を外部から軽く叩けば落ちる程度の管壁への 軽い付着を示していたが、230 ℃を過ぎたあたりからは粘着性を示し始め、炉心管への付着が増 すとともに、管内に NO₂ と見られる紫がかった茶色のガスが比較的濃く発生した。一方、300 ℃ を過ぎると管内の NO₂ 発生は減少していき、また炉心管への付着性も減少して炉心管を外部から 叩けば落ちるようになった。それ以上の温度ではべた付くことなく、サラサラの黒色粉末状で加 熱が進んでいった。これは昇温によって、廃棄物か焼体中の一部の低融点硝酸塩成分が溶解して べた付くものの、脱硝が進むと硝酸塩成分が変化し溶融成分が減少するためであると見られる。 また、このことはロータリーキルン内でか焼体が 300 ℃に達するまで管壁からのか焼体の剥離 を促す機構が炉心管内に必要となることを示しているが、乾燥ゾーンでは膜沸騰により乾固体は 一気に 300 ℃以上に達すると見られることから、管壁からの剥離を促すための機構は乾燥ゾー ンにのみ設置すれば良いことがわかる。すなわち、それ以上の温度となるか焼ゾーンでは乾燥し た粉体が移動していくとみなして良いこと、発生する NOx は乾燥ゾーンより少ないことがわかっ た。

(3)乾燥・か焼プロセス接続試験

乾燥プロセス試験およびか焼プロセス試験によって、乾燥ゾーンでは膜沸騰している液体が移動するとともに管内に管壁からの剥離を促すための機構を設置すべきこと、か焼ゾーンでは粉体が移動することがわかっている。これらを傾斜した一本のロータリーキルン内で接続するために、 炉心管を傾斜させられる連続式ロータリーキルンすなわち顆粒体製造プロセス試験装置を用いて 乾燥プロセスで得られた乾燥物を連続的にか焼プロセスへ移行させられることを確認する。

乾燥プロセスからか焼プロセスへ送るためにロータリーキルン内に設置した治具の模式図を図 3.2.1-5 に、作製した治具の写真を図 3.2.1-6 上に示す。傾斜を持つロータリーキルン内で膜沸 騰している模擬廃液は非常に速くロータリーキルンの傾斜に沿って移動するため、液体の移動を 阻止するリング状の液止めを設置した。また、ロータリーキルン内で回転していない廃液投入管 の上方に剥離板を取り付け、管壁に弱く付着した乾固体を剥がすようにした。剥離板には、剥離 させた乾燥物を液止め用リングを越えてか焼プロセスへ移動させるための送り板を取り付けた。 模擬廃液を顆粒体製造プロセス試験装置の高温部に注入したところ、沸騰した模擬廃液は 1°以 下のわずかな傾斜でもすばやく移動したが、液止め用のリングによって、注入した模擬廃液を乾 燥するまで保持することができた。また、図 3.2.1-6 下に示すように剥離板と送り板によって連 続的に乾燥物を乾燥プロセスから次のか焼プロセスに送ることができた。か焼プロセスに送られ た乾燥物の外観写真を図 3.2.1-7 に示す。本試験により、剥離板および送り板をロータリーキル ン内に挿入した回転しない管内棒上に設置することで、乾燥プロセスとか焼プロセスを接続でき ることを確認した。

(4)顆粒化プロセス試験

乾燥プロセス、か焼プロセスを経たか焼体は、ロータリーキルンの傾斜に沿って、顆粒化プロ セスへ移動する。顆粒化プロセスでは、粉末となっているか焼体を、か焼プロセス試験でか焼体 が粘着性を示した 230~300 ℃程度の温度に保持し、ロータリーキルンの動的条件下で 10 µm 以 下の微粉末を減じ、飛散しない一定サイズ以上の顆粒体にまとめる工程である。顆粒化プロセス 試験では、図 3.2.1-8 に示すように、あらかじめ、模擬廃液を空気雰囲気下のるつぼ中でか焼し、 得られたか焼体を乳鉢で粉砕混合したか焼体粉末を試料とし、バッチ式ロータリーキルンに装荷 して一定温度で回転させて顆粒化挙動を観察した。300 ℃で焼成したか焼体粉末は、230 ℃までの温度で保持しても粘着性を示す様子は見られなかったが、230 ℃では図 3.2.1-9 に示すようにやや粒子に粘着性が発生し微粉末がまとまった様子が見られた。240 ℃では明らかに粘着性が増し短時間で巨大な凝集体を形成した。600 ℃で焼成したか焼体粉末は、250 ℃までの温度で保持してもべた付く様子はなかったが、270 ℃では図 3.2.1-10 に示すようにやや粘着性を持ち始め 微粒子がまとまり、300 ℃で保持すると短時間で巨大凝集体に成長した。一方、ほぼ完全に脱硝が進行した 900 ℃で焼成したか焼体粉末は、乾燥空気中での顆粒化処理では、粘着性を持つなどの変化は観察されなかった。なお、900 ℃で焼成したか焼体粉末は、ロータリーキルン内に湿 潤空気を導入すると、図 3.2.1-11 に示すように 600 ℃での保持で適度に凝集することがわかった。以上から、3.1 柔軟な廃棄物管理システムの構築におけるか焼温度の異なる顆粒体を用いた複数システム案の顆粒体製造容易性に関する知見を与えたほか、同節で有力とされた 600 ℃で焼成したか焼体粉末は 270 ℃で保持することで顆粒化が進行することがわかった。

(5)連続プロセス試験

ここでは傾斜付きの連続式ロータリーキルンである顆粒体製造プロセス試験装置を用いて、乾燥・か焼・顆粒化の3つの単プロセスを一本のロータリーキルン内で同時に実現することが可能であることを示す。(5-1)では粉体の連続的な移動速度を確認する。次に(5-2)で顆粒体製造プロセス試験装置内に乾燥・か焼・顆粒化のプロセスで必要とされる温度が実現できることを確認し、 連続試作を実施する。

(5-1)粉体移動速度試験

ロータリーキルン内では、導入された模擬廃液が乾燥された後は粉体となり、粉末状の物質が ロータリーキルン内を移動しながらか焼や顆粒化されていく。か焼や顆粒化には一定の時間を要 することから、粉体の移動速度について顆粒体製造プロセス試験装置の傾斜角度と回転速度をパ ラメータとして調べた。試験の模式図を図 3.2.1-12 に示す。粉体には 600 ℃でか焼したか焼体 粉末を使用した。か焼体粉末をロータリーキルン上流部に装荷し、傾斜を付けて回転させると、 か焼体粉末は広がりながら下流へ移動したため広がりの中心位置を測定した。傾斜角度の正接と 回転速度の積を横軸に取り、移動速度を縦軸に取ったところ、移動速度はその積に比例していた (図 3.2.1-13)。すなわち、ロータリーキルン内の粉体の移動速度を制御するには傾斜角度の

正接と回転速度の積を条件として設定すれば良く、傾斜角度あるいは回転速度のどちらかは、移 動速度制御以外の目的で自由に設定できることがわかった。

(5-2)顆粒体連続試作試験

顆粒体のか焼温度を 3.1 柔軟な廃棄物管理システムの構築において最も有力とされた 600 ℃ とした場合について、顆粒体製造プロセス試験装置内の温度分布を設定し、模擬廃液からの顆粒 体の連続作製を図る。各プロセス試験から、乾燥ゾーンの管壁温度は 500 ℃、か焼ゾーンは 600 ℃、顆粒化は 270 ℃で実施すれば良いが、これを一本の管状炉において設定する場合は連 続的な温度変化となる。このため、図 3.2.1-14 に示す方法で顆粒体製造プロセス試験装置のロ ータリーキルン炉心管内の温度分布を測定しながら、装置に設置した4つのヒータを調整し、図 3.2.1-15 に示すような温度プロファイルを設定した。500 ℃近傍での乾燥、600 ℃程度でのか 焼、か焼後の急激な温度低下と 270 ℃程度での維持が概ね達成されている。この温度勾配下で、 傾斜角度を 0.5°、回転速度を 10rpm と設定すると、粉体移動速度は 4.5cm/min となり、か焼プ ロセスにおいて 600±20 ℃が約 3 分、顆粒化プロセスにおいて 270±20 ℃が 10rpm で約 5 分確 保される。上記の設定の下、(3)乾燥・か焼プロセス接続試験で作製した治具を用いて、断続的 に模擬廃液を注入しながら顆粒体製造プロセス試験装置で連続的に顆粒体を作製する試験を実施 した。この試験で得られた試料の外観写真を図 3.2.1-16 に示す。試料取り出し時に細かい粉末 が舞うようなことはなく、融解した低融点硝酸塩成分による粘結が有効に働いたと見られ、模擬 廃液から顆粒体を一本のロータリーキルン内で連続的に作製することに成功したと言える。なお、 得られた顆粒体には 1 cm 以上の大きさの扁平状顆粒体(図 3.2.1-16 左) があった。乾燥されか 焼工程へ送られた直後の粒子は今回見られた扁平状顆粒体ほど大きくはなかったので、このよう な扁平状顆粒体はか焼工程で生じていた可能性が高い。1 cm を超えるような扁平状顆粒体を貯 蔵用キャニスタ内に充填すると充填密度が局所的に変化する可能性があり、大きな扁平状顆粒体 の生成は抑制した方が良い可能性がある。

3.2.1.3 プロセス統合【R1】

これまでに、ロータリーキルン内のプロセスを乾燥・か焼・顆粒化の3プロセスに分け、単プ ロセスごとに作製条件の最適化を図るとともに、連続式ロータリーキルンである顆粒体製造プロ セス試験装置を用いてプロセスを接続する連続プロセス試験を実施した。断続的な注入かつ回転 速度と傾斜角度の実機ロータリーキルンへの適用性を未検討の状態ではあったものの連続式ロー タリーキルンで模擬廃液から顆粒体が作製可能なことを示した。ただし、作製した顆粒体には粗 大な顆粒体が含まれていた。したがって、ロータリーキルン法模擬顆粒体製造試験として令和元 年度に残された課題は、これまで得られてきた製造条件の実機ロータリーキルンシステムへの適 用性検討と連続的な廃液注入および粗大な顆粒体の減少である。

そこで令和元年度は、70L/h (3.1 節の柔軟な廃棄物管理システムの構築にて策定されたシス テム概念仕様値)で排出される現行再処理廃液を処理可能な実機ロータリーキルン仕様を考える 上で、主にこれまでに得られた試験結果から得られる実機装置の概略仕様と運転条件パラメータ を(1)実機ロータリーキルンシステム概略仕様の策定にて定め、その仕様から導かれる実機運転 条件を顆粒体製造プロセス試験装置で模擬して確認する観点で、(2)実機ロータリーキルンシス テムを模擬した顆粒体製造試験として、(2-1)長時間乾燥・か焼試験と(2-2)粗大な粒子を抑制し た顆粒体製造を確認する。

(1)実機ロータリーキルンシステム概略仕様の策定

実機ロータリーキルンシステムでは、70L/h で排出される廃液を処理できることが求められる がこのために必要なヒータ容量を考えると、昇温や脱硝に必要な熱エネルギーよりも、水分の蒸 発に必要な熱エネルギーが極めて大きく、乾燥ゾーンに最も大きなヒータ容量を要する。後述す る顆粒体製造プロセス試験装置における熱の逃げを参考に、実機の乾燥ゾーンのヒータ容量を 60kW と設定した。この容量のヒータを乾燥ゾーンに設置するためには一定のヒータ設置面積が 必要となるため、乾燥ゾーン長を 0.5m、炉心管径を約 35cm とする。この乾燥ゾーンの管内には、 廃液を保持するために液止め機構を設置するとともに、管壁に付着する乾固物を剥離させる剥離 機構と、剥離させた乾固物を、液止めを越えさせてか焼ゾーンに送る送り板が装備される。炉心 管料は 3.2.2 項にて後述するように 600 ℃でのか焼が可能なように耐腐食 SUS310S を用いる。 炉心管の回転速度は、遅いと乾燥ゾーンで廃液と接さない上部での温度上昇が大きくなるため速 い方が良いが、実規模管径で回転速度の実績は国内ロータリーキルンメーカによると 10rpm がお およその限度であることから、回転速度は最高の 10rpm とする。一方、炉心管の傾斜角度は、か 焼と顆粒化には一定の時間が必要となることから、粉体の逆流の少ない最低の傾斜角度として 0.5°とする。炉心管内の粉体移動速度は平成 30 年度までに回転速度と傾斜角度の正接に比例す ることがわかっているが一般的に管径にも比例する[7]ため、このことを考慮して、か焼に必要 な時間 1 分と顆粒化に必要な壁面移動量約 5m を確保するために、それぞれのゾーン長は 0.2m、 0.3m (か焼ゾーン 600 ℃から顆粒化ゾーン 270 ℃への温度降下に必要な長さを含む。)とする。 なお、この概略仕様を満足する実機ロータリーキルンの設計については(2)③廃棄物顆粒体製造 技術評価にて行う。

(2) 実機ロータリーキルンシステムを模擬した顆粒体製造試験

上記で定めた実機ロータリーキルンの仕様および運転条件を、顆粒体製造プロセス試験装置で模 擬すると考えた場合、炉心管直径とか焼および顆粒化の各ゾーン長の比較から、ちょうど回転速 度 10rpm・傾斜角度 0.5°が相当する。ここではこの条件の下(2-1)長時間乾燥・か焼試験と(2-2)か焼体粉砕顆粒化試験を実施し、長時間連続に廃液を注入し続けた場合に顆粒体の作製が可能 であることおよび粗大ではない顆粒体の作製が可能であることを示す。

(2-1)長時間乾燥・か焼試験

ここでは、模擬廃液を長時間に注入し、乾燥・か焼を連続的かつ長時間行う長時間乾燥・か焼 試験を実施するが、長時間乾燥・か焼試験に先立ち、長時間に注入可能な模擬廃液の流量を確認 するため、まず純水の長時間乾燥試験を実施した。これは乾燥・か焼・顆粒化のプロセスの内、 水分の蒸発を伴う乾燥ゾーンが最も熱量を必要とすると考えられるからである。なお、顆粒体製 造プロセス制御試験装置のヒータの出力は1つ当たり1.4kWである。図3.2.1-17 に横軸に時間、 縦軸に乾燥ゾーンにおける炉心管外壁温度を取ったグラフを示す。1.8L/h で注入を開始してか ら液が堰き止められる液止めの部分の温度が下降し始め、その後注入終了まで温度は一定となっ た。この間乾燥部の出力は最大の1.4kWを維持させた。水の蒸発熱から入力された熱量の割合を 計算すると熱効率は約 80 %であった。これを実機処理量 70L/h に換算すると、乾燥部の出力は 54kW 必要となる。AVM の乾燥部では73L/h 処理のために 54kW[8]を要しており、ちょうど一致す るため、規模を拡張しても熱効率はほぼ見積もり通りであると見られる。また、このことから顆 粒体製造プロセス試験装置に模擬廃液を導入する試験において、この 1.8L/h を上限として顆粒 体の製造試験を実施することが実機相当であると考える。

次に硝酸溶液である模擬廃液を用いて長時間乾燥・か焼試験を実施した。か焼温度は 600 ℃、 回転速度および傾斜角度は実機ロータリーキルンシステムでの運転条件を顆粒体製造プロセス試 験装置で模擬して、上述したように 10rpm、0.5°とした。模擬廃液の流量は上限に近い 1.5L/h とした。この時の乾燥ゾーン温度の経時変化を図 3.2.1-18 に示す。この流量で 12 分間模擬廃液 を流し続けたところ、順調に乾燥・か焼させられた。長時間乾燥・か焼試験にて得られたか焼体 の外観写真を図 3.2.1-19 に示す。試料取り出し時に細かい粉末が舞うようなことはなかった一 方、粗大な凝集体が確認された。

(2-2)か焼体粉砕顆粒化試験

顆粒体連続試作試験と同様に、長時間乾燥・か焼試験で得られたか焼体には 1cm を超える粗大 な凝集体が含まれており、細径キャニスタへの装荷時にマクロな粗密を発生する可能性が考えら れることから、顆粒化前に一旦粉砕する工程を検討する。すなわち、炉心管内の顆粒化ゾーン前 に簡易な粉砕機構(ローラー)を設けることで粉砕を図り、続いて顆粒化できることを確認する。 ローラーのような簡易な粉砕機構で粉砕が可能であれば炉心管閉塞などのトラブル時に保守管理 が容易になることが期待できる。試験では、直径 25mm、長さ 10cm の SUS 製丸棒をローラーとし て炉心管内に設置した。実機においてはか焼ゾーンと顆粒化ゾーン間の冷却部において、か焼体 が粘着性を持たない部分にローラーを設置することに相当する。顆粒化ゾーンの温度は 270 ℃ とし、回転速度や傾斜角度 0.5° は長時間乾燥・か焼試験と同条件に設定した。試験の結果、当 初粗大なか焼体が含まれていたが、ローラーの重みで粉砕され、目視により 1mm 程度未満の粉末 状か焼体となった。その後、粉砕されたか焼体は顆粒化ゾーンに到達し、顆粒化の工程を経た。 得られた顆粒体の外観写真を図 3.2.1-20,-21 に示す。粉砕されたか焼体は顆粒化ゾーンで再度 顕著な凝集を示すようなことはなく、また飛散するような微細な粒子も観察されなかった。 3.2.2 項で後述するが、今回得られた顆粒体は粒度分布の観点からも組成分布一様性の観点から も顆粒体の要件を満たしていた。

これらの結果から、実機における製造条件を模擬した条件において顆粒体が作製できることを 確認した。すなわち、顆粒体の製造の観点からのシステム成立性を確認したことになる。なお、 ここで得られた成果を、実機ロータリーキルンの運転条件としてまとめると表 3.2.1-2 のように なる。

3.2.1.4 顆粒体製造システムの成立性評価【R1】

ロータリーキルンによる顆粒化を顆粒体製造システムとして考えた場合、放射能を含む排出物 は、製品である顆粒体のほかに放射能を含む排ガスがある。模擬顆粒体の作製時に投入した各金 属元素量と作製した顆粒体中の各金属元素量を比較するとRuの顕著な減少と若干のCsの減少が 見られることが平成30年度までにわかっており、排ガス中の主な放射性元素はRuとCsである と考えられる。本節では脱ガス処理系の概念を示し有効性の確認をすることで、顆粒体製造シス テムの安全性の観点からの成立性を確認し、先に示した顆粒体作製の観点からの成立性と合わせ て、顆粒体製造システムの成立性を示すこととする。

(1) 脱ガス処理系安全性評価

顆粒体製造システムにおける排ガスには、乾燥・か焼といった熱処理によって揮発しやすい RuやCsの放射性同位体が含まれるが、硝酸溶液である高レベル廃液を乾燥・か焼するために多 量の硝酸ガスやNOxも含まれる。脱ガス処理系では、揮発性放射性同位元素のほか、腐食性酸性 ガスも外部へ漏らさない必要がある。ここで、排ガス中の多量の硝酸ガスとNOxの効果的な捕集 方法としてはアルカリ水溶液によるトラップが挙げられるが、アルカリ水溶液によるトラップは RuやCsの捕集にも有効であると考えられる。ここでは、水酸化ナトリウム水溶液に模擬か焼体 作製時の脱ガスをバブリングすることによって、水酸化ナトリウム水溶液トラップへのRuやCs の回収能を評価する。

図 3.2.1-22 に示すような試験体系にて、バッチ式ロータリーキルン内に模擬廃液 100mL/を 注入し、500 ℃乾燥後、続いて 600 ℃か焼を実施した。この際発生したガスを 3M の水酸化ナト リウム水溶液に 2 段階バブリングさせた。その後、トラップ水のろ液を ICP 分析した。模擬廃液 乾燥・か焼試験において、蒸発した硝酸を処理するための NaOH 溶液の簡易な二段バブリング中 に Ru は 97 %、Cs は 94 %捕集された(表 3.2.1-3)。また段数を増やせば 1 桁程度ずつ捕集率 が増加すると見られる。したがって、本試験で設置したような簡易な水酸化ナトリウム水溶液バ ブリングによって Ru と Cs が回収されることが明らかとなった。また、ロータリーキルンからバ ブリングまでの配管内で Ru が 4 価の Ru0₂となり、配管内に固着析出する可能性が考えられるが、 文献[9]によると、廃液の乾燥並びに脱硝時に生じる NOx の酸化力により配管内では揮発状態の 8 価 Ru が保たれると見られ、配管に詰まることもないと言える。したがって、水酸化ナトリウ ム水溶液トラップへの Ru や Cs の回収は効果的に行えることがわかり、脱ガス処理系の安全性は 確保できると言える。

(2)まとめ

高レベル廃液の乾燥・か焼、粉砕を一貫して行うロータリーキルン法顆粒化試験設備を設計・ 製作し、模擬廃液による顆粒体製造プロセス制御試験を実施した。これにより、顆粒体製造の実 用技術であるロータリーキルン法により廃液から直接顆粒体を製造できることを示すとともに、 実機における顆粒体製造の条件を策定し、脱ガス処理系の安全性を確認することで、システムと して成立する廃棄物顆粒体製造技術の開発をするという公募研究の目的を達成した。



図 3.2.1-1 4年間の開発戦略

元素	mol %	元素	Mol %	元素	mol %
Na	56.4 %	Ru	3.4 %	Pr	1.1 %
Fe	6.4 %	Cs	3.3 %	Sm	0.8 %
Zr	5.47 %	Pd	2.3 %	Y	0.7 %
Мо	5.04 %	Ba	1.8 %	Rh	0.6 %
Се	4.8 %	Sr	1.3 %	Те	0.6 %
Nd	4.6 %	La	1.3 %	Eu	0.2 %

表 3.2.1-1 模擬廃液の組成[4]


図 3.2.1-2 蒸発皿による乾燥プロセス試験体系



図 3.2.1-3 乾固体表面外観写真(乾燥時間 左:11分、中央:6分、右:2分)



図 3.2.1-4 か焼プロセス試験の様子(左:300℃時、600℃時、800℃時)



図 3.2.1-5 治具の模式図



図 3.2.1-6 治具の写真

3.2.1-11



図 3.2.1-8 顆粒化プロセス試験の流れ



図 3.2.1-9 300 ℃か焼体粉末の 230 ℃顆粒化試験後の試料外観



図 3.2.1-10 600 ℃か焼体粉末の 270 ℃顆粒化試験後の試料外観



図 3.2.1-11 900 ℃か焼体粉末の加湿空気中顆粒化試験後の試料外観



図 3.2.1-12 粉体移動速度試験の模式図



図 3.2.1-13 粉体移動速度試験の結果







図 3.2.1-15 炉内温度分布



図 3.2.1-16 顆粒体連続試作試験で得られた顆粒体



図 3.2.1-17 処理速度の確認



図 3.2.1-18 長時間乾燥・か焼試験の炉心管表面温度



図 3.2.1-19 長時間乾燥・か焼試験後の平板状か焼体



図 3.2.1-20 長時間乾燥・か焼試験後の粒状か焼体



図 3.2.1-21 か焼体粉砕顆粒化試験後の顆粒体



図 3.2.1-22 脱ガス処理系安全性評価試験体系

項目	設定方針	仕様値
乾燥ゾーン温度	膜沸騰を起こす温度(乾燥中 250 ℃程度以上)	250 °C
か焼ゾーン温度	システム概念仕様からの要求	600 °C
顆粒化ゾーン温度	か焼体が顆粒化する温度	270 °C
回転速度	か焼体・顆粒体の適切な管内輸送速度を実現する 回転速度	10rpm
傾斜角度	か焼体・顆粒体の適切な管内輸送速度を実現する 傾斜角度	0.5°
管内雰囲気	か焼体・顆粒体の乾燥状態を維持する	ドライエア

表 3.2.1-2 実機ロータリーキルン運転条件

表 3.2.1-3 捕集効率

	Ru			Cs		
模擬廃液中	305 mg			100 mg		
	ろ液中	残渣中	捕集率	ろ液中	残渣中	捕集率
一段目	61 mg	13 mg	85 %	8.1 mg	<0.6 mg	75 %
二段目	9.2 mg	1.6 mg	97 %	2.0 mg	<0.05 mg	94 %
蒸発量 (捕集効率から算 出*)		87 mg			11 mg	

3.2.2 模擬廃棄物顆粒体基礎特性試験【H28-R1】

本項では、3.2.2.1 にて試験計画を述べ、3.2.2.2 にてか焼温度の異なる顆粒体の基礎特性評価の結果を記載し、3.2.2.3 では 3.2.1.2 のプロセス試験で試作した顆粒体の基礎特性評価の結果を記述し、3.2.2.4 では 3.2.1.3 のプロセス統合で製作した顆粒体の基礎特性評価について記載し、3.2.2.5 で顆粒体の概念仕様を示す。

3.2.2.1 試験計画

本項では模擬顆粒体の分析等を実施するが、その記載内容は、3.2.1 項で作製した模擬顆粒体 等の分析を含み、その結果は3.2.1 項の製造条件設定に使用しているほか、他の技術開発項目に 必要十分な模擬顆粒体の特性を与えるため、上述の顆粒体等の分析のほか、別途か焼体等を作製 して分析するものであり、他の技術開発項目と密接に関連している。本節記載内容の構成とその フィード先を図3.2.2-1 に示す。主には、顆粒体の物理・化学特性に決定的な影響を与えるか焼 温度をパラメータとし、るつぼもしくはロータリーキルンで作製する模擬廃棄物顆粒体の化学形 態(組成ミクロ分布、硝酸塩割合)、顆粒化特性(粒度分布)、熱的特性(融点、熱伝導率)、 吸湿性、炉心管腐食特性を評価し、3.1 柔軟な廃棄物管理システムの構築にてか焼温度を決定す るための情報を得る。同時に、3.2.1 ロータリーキルン法模擬顆粒体製造試験における製造技術 開発の中で試作する顆粒体について組成ミクロ分布、顆粒化特性(粒度分布)、密度を評価し、 製造技術開発にフィードバックする。

令和元年度は、平成 30 年度までに 600 ℃と決定されたか焼温度の下、連続式ロータリーキル ンである顆粒体製造プロセス試験装置にて、実機ロータリーキルンでの製造条件を模擬した条件 にて作製した顆粒体について基礎特性を評価し、平成 30 年度までの成果と合わせて顆粒体の概 念仕様を決定する。

3.2.2.2 か焼温度の異なる顆粒体の基礎特性評価 【H28-H30】

(1) 化学形態

(1-1) 組成ミクロ分布

柔軟な廃棄物管理法における顆粒体製造温度は、アクチニドの脱硝、顆粒体の再溶解性確保、 貯蔵時の NOx 発生防止などの観点から 300~900 ℃を想定している。か焼温度選定にあたり各領 域の組成や結晶粒の成長などのミクロ挙動を把握しておく必要がある。模擬廃液を各種温度でか 焼し、生成する領域の SEM-EDS 観察を行って元素偏在を観察した。

か焼体の元素分布は、主に Na, Ce, Mo, Sr, Pd に代表される 5 つの領域の脱硝に伴う化学反 応や熱拡散によって理解することができ、か焼温度の高温化に伴って、領域の重なりや結晶成長 が見られた。各領域の変化の概要を図 3.2.2-2 に示す。顆粒体の主成分である Na を含む領域は 点在しておらず、800 ℃までの高温状態で硝酸塩による液相を保つと考えられる。なお、Na を 含む領域は、700 ℃以上で一部が Mo との化合物を生じて著しい粒成長を生じるが、900 ℃で分 解してすべて固体の酸化物に変わる。Ce を中心とする領域は、各元素の硝酸塩から酸化物への 変化によって、Nd, Fe, La, Cs が凝集したものであり、温度に応じて Mo 領域からの Zr 凝集や Sr 領域の吸収を発生し、700 ℃以上では大きな粒成長が見られる。アクチニドを含む希土類の 発熱元素は概ね Ce と同様の変化を見せると考えられ、Ce 領域での粒成長が顕著になる 700 ℃以 上ではミクロ発熱源の成長が生じる可能性がある。このため、熱的一様性確保のためには、低温 焼成あるいは降温後粉砕混合が必要となる。一方、熱伝導率を支配して熱的一様性のスケールを 決定する Na 領域は、Ce 領域の成長に伴う共晶硝酸塩成分の酸化物への変化、モリブデン酸ジル コニウムの分解、および、モリブデン酸ナトリウムの成長により融点や熱伝導率を変化させるこ とが示唆される。

(1-2) 硝酸塩割合

か焼体中に含まれる硝酸塩の硝酸イオンを加熱した純水に溶出させ、イオンクロマトグラフィ ーで硝酸イオンと亜硝酸イオンを測定した。試験のフローチャートを図 3.2.2-3 に示した。結果 を表 3.2.2-1 に示す。この表に示す mass %とは、か焼体中に含まれる各イオンの質量割合を示 す。また、mol/g とはか焼体 1g 中に含まれる各イオンの物質量を示している。か焼体中には亜 硝酸塩はほとんど含まれず、硝酸塩の形態であった。か焼温度によってか焼体中に含まれる硝酸 塩の割合は異なっており、この比率は各硝酸塩元素単体の脱硝挙動から想定された硝酸塩比率に 近いものであった。

(2) 熱的特性

(2-1) 融点

顆粒体の貯蔵時には顆粒体自身が発する崩壊熱を適切に除熱し、融点以下で貯蔵しなくてはならない。融点・熱特性は TGDTA を用いて取得した。300、600、900 ℃か焼体をアルゴン雰囲気中、5K/min でそれぞれ昇温させながら TGDTA 分析を行った。図 3.2.2-4,-5,-6 にか焼体の TGDTA 分析の結果を示す。

300 ℃か焼体は 300 ℃過ぎまで重量変化がなく、その後重量および DTA が減少していった。 これはか焼温度以下では NOx の脱離が起こらず、か焼温度を超えると徐々に NOx の脱離が生じて いったと考えられる。270 ℃付近には吸熱のピークがあり、重量変化がない中で吸熱のピークが あったので、この温度で低融点硝酸塩成分の融解が生じたものと考えられる。なお、約 270 ℃ ではか焼体の全量が融解したのではなく、この温度以降は、融解した低融点成分と融解していな い酸化物を中心とした固体成分が混合している状態と考えられる。ただし、270 ℃付近の吸熱の ピークが低融点硝酸塩の融点であり、低融点硝酸塩成分の大部分が液化すると考えられるが、 240 ℃程度から融解に伴う吸熱は開始されており、低融点硝酸塩混合体の部分的融解は 240 ℃ では開始されているものと考えられる。

600 ℃か焼体は、300 ℃か焼体と同様に、270 ℃付近で融解のピークが存在し、か焼温度である 600 ℃までは重量変化および DTA 変化がなく、その後どちらも減少していった。

一方、900 ℃か焼体は 100 ℃前後までに重量減少と吸熱ピークを持っていた。900 ℃か焼体 は Na、すなわちアルカリ金属の酸化物が多量に含まれており、これは空気中の水分を容易に吸 着する。この吸着水が脱離することでこのピークを生じたと考えられる。その後は熱的に安定で あった。

(2-2) 熱伝導率

か焼体粉末を加熱プレスにより高密度体とし、高密度体の熱伝導率をレーザーフラッシュ法で

測定した。ここで言う高密度体は、か焼体の物性値としての熱伝導率を測定することを目的とし てできるだけ空隙をなくすように加熱プレスにて作製したものであり、貯蔵形態のオプションと して開発を進める高密度顆粒体とは異なった目的を持ったものである。熱伝導率測定の結果を図 3.2.2-7 に示す。300 ℃か焼体と900 ℃か焼体は概ね同じ熱伝導率であったが、600 ℃か焼体は より高い熱伝導率を示していた。冷却貯蔵温度として想定する 250 ℃付近においては、各か焼 体の熱伝導率は 0.7W/mK 程度となった。これは図 3.2.2-8[10]に示す硝酸ナトリウムの熱伝導率 から高密度顆粒体の熱伝導率として推定していた値(0.5W/mK)よりも大きく、除熱性能が想定 よりも良くなることを示している。

(3)顆粒化特性

ここでは 3.2.1.2(4)顆粒化プロセス試験にて得られた顆粒体の顆粒化特性すなわち粒度分布 を評価する。300 ℃か焼体粉末の顆粒化前後の、各ふるい上に捕獲された質量割合を図 3.2.2-9 に示す。顆粒体に求められる要件として、飛散性低減の観点から少なくとも粒径 10 um 以上が求 められる。最も細かいふるいの目の開きは 20 µm であるが、より粒径が小さくそれを通過した粉 末は受器上に捕捉されるため、図3.2.2-9の受器における質量割合を低減することが顆粒化プロ セスの開発目標である。220 ℃で顆粒化処理をした場合、顆粒化処理前と比較して受器上の粉末 が増加した。230 ℃で顆粒化処理したものは微細粉の割合が 1 %以下となり、それ以上の温度 ではさらに減少していた。600 ℃か焼体粉末の顆粒化処理温度別の粒度分布を図 3.2.2-10 に示 す。250 ℃で顆粒化を行った場合、目の開き 20 µm のふるいを通過して受器上に堆積した微細粉 末重量は顆粒化処理前と大差なく微細粉を減らすことはできなかったが、270 ℃および 300 ℃ で顆粒化を試みた場合は 1 %未満にまで減少させることができた。300 ℃で顆粒化を試みた場 合は、300 ℃顆粒化物をふるいにかけた時最大の目の開きであった 710 µm のふるいを通過しな い粗大な平板上凝固体が多量に生じ、このような粗大な平板上凝固体は貯蔵用キャニスタへの一 様な装填に影響を生じる恐れがあるため、顆粒化温度は 270 ℃程度が良いと考えられる。 900 ℃か焼体粉末は、3.2.1 項に示したように、雰囲気に水蒸気を導入することで粘結を図った。 900 ℃か焼体粉末を 600 ℃の乾燥空気中および加湿空気中で顆粒化した際の粒度分布を図 3.2.2-11 に示す。乾燥空気中で顆粒化を行った場合、目の開き 20 µm のふるいを通過して受器 上に堆積した微細粉末重量は顆粒化処理前よりも多く微細粉を減らすことはできなかったが、加 湿空気内で顆粒化を試みた場合は1 %未満にまで微細粉を減少させることができた。

(4) 吸湿性

顆粒体には酸化物のほかに吸水しやすいと考えられる硝酸塩成分が含まれているが、水分を吸 収した顆粒体においては放射線分解によって水素が発生する可能性がある。300 ℃か焼体、 600 ℃か焼体、そして 900 ℃か焼体の吸湿性を測定した。およそ 25 ℃、湿度約 50 %に保った グローブボックス内に試料を保持することで吸湿させた。所定の時間吸湿させた後、その重量増 加を測定することで吸湿性を取得した。結果を図 3.2.2-12 に示す。吸湿が激しい順に、900 ℃ か焼、300 ℃か焼、600 ℃か焼となった。この結果から、数時間のオーダーで重量割合にして 数 %の吸湿が生じることから、高温での顆粒体製造の後、貯蔵用キャニスタに顆粒体を密閉す るまでの間、湿潤空気に触れないように管理する必要がある。なお、吸湿量制限値については、 3.3.1項の顆粒体の放射線分解影響の評価によって決定する。

(5) 炉心管腐食特性

ロータリーキルン内では、廃液の乾燥・か焼・顆粒化を行うが、長期間運転する際に炉心管材 料の腐食が進行する可能性がある。高温の腐食は炉心管の交換時期を決定する重要な要素である ので、腐食影響を評価する必要がある。このため、模擬廃液の乾燥・か焼を各種炉心管材料候補 上で行い重量変化を評価した。炉心管材候補としては、ステンレス系の SUS316L、SUS310S、代 表的な Ni 系耐食合金であるインコネル 600、そしてアルミナ、石英とした。試験ではこれらの 試験片(およそ 10 mm×10 mm、厚さ 0.5 mm 程度)を模擬廃液に浸し、150 ℃で模擬廃液を乾燥 させ、その後所定の温度(300 ℃、600 ℃、900 ℃)まで昇温し2時間か焼を行った。試験後の 重量変化のグラフを図 3.2.2-13 に示す。300 ℃でか焼した場合はすべての候補材料にて重量変 化がなかった。この結果は、模擬廃棄物とともに 300 ℃でか焼しても腐食が生じなかったとい うだけでなく、濃縮して酸化性を増していく模擬廃液に曝され、その後か焼に移っていったとし ても腐食が生じなかったということである。600 ℃のか焼時には、SUS310S、インコネル 600、 アルミナは重量変化がなかったが、SUS316L はわずかに重量が増加し、石英もやや重量が減少し た。SUS310S、インコネル 600、アルミナが 600 ℃か焼時の管材候補となる。一方、900 ℃のか 焼になるとアルミナのみは重量変化がなかったが、それ以外は重量変化が生じた。以上をまとめ ると、300 ℃か焼の場合はどの材料でも腐食に耐えたが、600 ℃か焼の場合は石英が耐えられず、 SUS316L が厳しい可能性があり、900 ℃ではアルミナのみが耐え得ることがわかった。

3.2.2.3 プロセス試験で試作した顆粒体の基礎特性評価 【H28-H30】

本節では3.2.1.2 プロセス試験で得られた顆粒体等について組成ミクロ分布、粒度分布、密度 を測定した結果を記載する。ここで得られた結果はプロセス試験にフィードバックされ、(2)① ロータリーキルン法顆粒体製造技術開発に活かされることになる。柔軟な廃棄物管理法の実用化 開発で目指す顆粒体の要件は、飛散しやすい10 µm 以下の微細な粉末を減ずることと顆粒体中の 局所融解を防ぐために0.1mm 程度以上の元素凝集がなく一様に分布していることである。したが って、顆粒体の基礎特性としては、組成ミクロ分布では元素が一様に分布していることを確認す る必要がある。

まず 3.2.1.2(1)乾燥プロセス試験の前半で得られた蒸発皿上の乾固体のミクロ組成分布を調べた。蒸発時間の異なる 3 つの乾固体試料について、乾固体を蒸発皿ごと破断し、その断面 SEM を図 3.2.2-14,-15,-16 のそれぞれの上図に示す。またそれぞれの図中の黄色で囲われた 3 ヵ所 の面についてそれぞれ EDS による元素分析を行ったものが図 3.2.2-14,-15,-16 のそれぞれの下 図である。Na のみ右の縦軸に濃度を示している。元素の定量に用いた特性 X 線は凡例中に記載 している。蒸発時間を 11 分と長く取った乾固体は、3 ヵ所の面における成分が異なっており、特に主成分である Na の激しい偏在が見られた。一方、蒸発にかける時間を短くした乾固体では、成分の偏在は減少していた。これは、蒸発時間 6 分、および 2 分のものは蒸発時に沸騰が生じて いたことから、内部で発生した気泡によって模擬廃液が混合され、成分の凝縮が阻害されたため と考えられる。したがって、上述のような局所融解の可能性を低減するためには、廃液が沸騰す るような条件、すなわち短時間で蒸発乾燥させれば良いことが明らかとなった。

次に、3.2.1.2(1)乾燥プロセス試験の後半の試験結果、すなわち短時間での蒸発乾燥が有効で あることがわかったことから、熱したバッチ式ロータリーキルン内に模擬廃液を投入し、急速に 乾燥させて得られた乾固体に対してか焼・顆粒化を施し、試作した顆粒体の SEM(BSE 像)および EDS マッピングを図 3.2.2-17 に示す。高レベル廃液の主成分である Na が全体に広がっており、 マトリックスを形成していることがわかる。代表的な発熱性元素である Cs や Sr のスポット的な 凝集・析出などは観察されなかった。

最後に、3.2.1.2(5-2)顆粒体連続試作試験で得られた顆粒体の SEM 像を図 3.2.2-18、組成ミ クロ分布を図 3.2.2-19 に示す。こちらの顆粒体についても同様に、硝酸ナトリウムをマトリッ クスとして、ほかの元素を粘結させた構造が見て取れた。こちらも特段の元素の凝集は観察され なかった。平成 29 年度までに明らかになったように、急速に廃液を乾燥させることで、廃液内 部で沸騰混合が生じ、その効果で元素分布が一様になり、か焼・顆粒化を経てもその一様性が保 たれたと考えられる。同試験で得られた顆粒体の粒度分布について図 3.2.2-19 に示す。1 cm 以 上の顆粒体は 50 wt%を超えていた。また、短径が 32 µm を下回るような微細粉に関しては十分 に減らすことができていた。したがって、この試験で得られた顆粒体は微細粉量の観点からも顆 粒体の要件を満たしていた。密度については、乾式密度計で測定した。乾式密度計は、試料の体 積を測定し、試料重量と合わせて、試料の密度を測定できる装置である。乾式密度計による体積 の測定では、粒子内部に完全に取り込まれた気孔(閉気孔)部分の体積は含まれるものの、粒子 周辺の気相と通じている粒子表面の気孔(開気孔)部分の体積や粒子同士の空隙の体積は除くこ とができる。顆粒体という物体の密度としては、粉砕や溶融等をしない限り変化しない閉気孔を 含んだ乾式密度計で測定した密度を報告する。この考え方に基づき、顆粒体密度の測定結果を表 3.2.2-2 に示す。H29 年度に取得した 600 ℃か焼の顆粒体の真密度(閉気孔も開気孔も粒子間の 空隙の体積も除いた粒子そのものの体積から求められた密度)と比較すると、閉気孔の割合は約 5%ほどである。

3.2.2.4 プロセス統合で作製した顆粒体の基礎特性評価【R1】

本節では実機ロータリーキルンシステムを模擬した条件で試験を行った 3.2.1.3 プロセス統合 にて得られた顆粒体について組成ミクロ分布、粒度分布、密度を測定した結果並びに実環境を想 定した顆粒体の実効熱伝導率の測定結果を記載する。

(1) 組成ミクロ分布・粒度分布・密度

3.2.1.3(2) 実機ロータリーキルンシステムを模擬した顆粒体製造試験、すなわち模擬廃液を連続注入にて乾燥・か焼させる長時間乾燥・か焼試験で得られたか焼体とそこで得られた粗大な凝 集体を含むか焼体を粉砕し顆粒化するか焼体粉砕顆粒化試験で得られた顆粒体の粒度分布、組成 ミクロ分布、密度の評価を実施した。

図 3.2.2-20 に長時間乾燥・か焼試験後のか焼体のうち、粗大な平板状か焼体の組成ミクロ分 布を示す。粗大化は乾燥後のか焼過程で発生するため、その過程で元素の凝集が発生しないかを 確認する。図 3.2.2-20 からわかるように平板状か焼体は、最も多量に含まれている Na が全面に 一様に分布し、他元素においても 0.1mm を超えるような凝集は観察されなかった。図 3.2.2-21 は長時間乾燥・か焼試験後のか焼体のうち、0.1mm 程度の粒状のか焼体を 1000 倍の高倍率で観 察した組成ミクロ分布である。高倍率で観察するといくつかの元素の凝集が確認されるが、それ でも高々20 µm 程度であり、局所融解につながるほどの凝集は見られなかった。こちらも主要元 素の Na をマトリックスとして、他元素を粘結した様子が見て取れた。図 3.2.2-22 は長時間乾 燥・か焼試験で得られたか焼体を粉砕し、顆粒化したか焼体粉砕顆粒化試験後の顆粒体の組成ミ クロ分布である。か焼体に元素凝集が見られなかったことから予想されていたことではあるが、 こちらも特に元素凝集は見られず、一様性を確保できていた。

図 3.2.2-23 は長時間乾燥・か焼試験後のか焼体と、か焼体粉砕顆粒化試験後の顆粒体をふる い分けして各目の開きのふるい上に捕捉された粉末の重量割合を示したグラフである。か焼体は 直径 2000 µm すなわち 2 mm を超えるような大きな粉末(凝集体)の割合が 40%近く含まれてい たのに対し、顆粒体は粉砕され、ほぼ存在しなくなっていた。図 3.2.2-24 は累積重量の割合を プロットしたものである。粒径 30 µm を下回るような細かい粉末の割合は顆粒化によって減少し、 一方、それ以上の大きさから 1000 µm すなわち 1mm 程度までは顆粒体の割合が増加していた。し たがって、粉砕と顆粒化工程を経ることで、微細粉も粗大粒も減少し、顆粒と呼べる粒子の割合 が増えたと言える。

表 3.2.2-3 に作製した顆粒体の密度の測定結果を示す。併せて閉気孔を除いた 600℃か焼のか 焼体の密度、すなわち真密度を載せた。どちらも約 3.4g/cm³ 程度であったが、顆粒体には顆粒 化の過程で取り込まれた閉気孔が存在するために若干密度が小さいという結果になっていた。

(2) 実環境を想定した顆粒体の実効熱伝導率

顆粒体貯蔵時の崩壊熱の除熱性を評価するに当たり、顆粒体の熱伝導率値が必要となるが、顆 粒体をキャニスタに充填すると顆粒体間に空隙が存在するために、顆粒体自体の熱伝達だけでな く、気相の熱伝達の影響も含めた顆粒体系の実効熱伝導率を得る必要がある。また、セル内の環 境として 25 ℃・湿度 50 %を想定すると、製造された顆粒体がキャニスタに充填され封入され るまでその雰囲気に曝されたとすると最大 0.3wt %吸湿される恐れがある。もし乾燥状態と比 較し吸湿状態で熱伝導率が低下する場合、除熱性が下がることになり、貯蔵設備設計に影響が出 る。そこで、実環境を想定した熱伝導率測定として、製造時セル内を乾燥状態に保った場合に得 られる乾燥顆粒体とセル内が湿潤環境であった場合に吸湿した顆粒体について、充填時の気体の 影響を含む実効熱伝導率を取得した。測定時雰囲気ガスにはキャニスタ充填ガスの窒素を選定し、 熱線法を用いて RT~230 ℃まで低温側から測定していった。吸湿顆粒体については、230 ℃で の測定後は脱水された状態となるため、再度室温で測定することで吸湿前後の実効熱伝導率変化 を調べた。図 3.2.2-25 に熱伝導率の温度依存性を示す。比較のため、過年度に取得した顆粒体 自体の熱伝導率と、雰囲気ガスである窒素の熱伝導率[11]を載せた。乾燥した顆粒体も吸湿した 顆粒体も0.2W/mK ほどの実効熱伝導率を示していた。実効熱伝導率では雰囲気ガス・窒素の熱伝 導率の低さに影響され、顆粒体自体の熱伝導率と比較し、大きく下がっていた。貯蔵設備設計で は、雰囲気ガスの影響を考慮したモデルを用いていることから、充填ガスによる実効熱伝導率低 下の影響を考慮して設計をしている。なお、吸湿顆粒体について昇温前後での実効熱伝導率、す なわち吸湿状態と乾燥状態での実効熱伝導率を比較したところ、その違いはなかったことからも 吸湿影響はないと言える。

3.2.2.5 顆粒体の概念仕様【R1】

柔軟な廃棄物管理システムの概念仕様では、廃棄物顆粒体を、現行再処理廃液をか焼し、発熱 元素の凝集を 0.1mm 程度以下かつ粒径 10 µm 以上となるように顆粒化してまとめたものと定義し た。本節では、そのような顆粒体をロータリーキルンで作製できることを示すとともに、これま での知見をまとめて得た顆粒体の概念仕様を表 3.2.2-4 に示した。

なお、粒径分布、組成分布については設定した仕様値が目標を達成していることを本節で示し たが、密度、熱伝導率、残存硝酸塩割合、含水量限度については、本節で設定した仕様値が目標 を達成することを3.4.1、3.4.2、および3.4.3項で確認する。



図 3.2.2-1 本節記載内容の構成



図 3.2.2-2 か焼時の化学変化のまとめ



イオンクロマトグラフィー

表 3.2.2-1 硝酸塩割合

試料名	NO ₃ -		NO ₂ ⁻		
	Mass %	mol/g	Mass %	mol/g	
300 ℃か焼体	40.6	0.00655	<0.1	<0.00003	
600 ℃か焼体	28.6	0.00461	<0.1	<0.00003	
900 ℃か焼体	<0.1	<0.00002	<0.1	<0.00003	



図 3.2.2-4 300 °Cか焼体の TGDTA 分析

図 3.2.2-3 試験フローチャート



図 3.2.2-5 600°Cか焼体の TGDTA 分析



図 3.2.2-6 900 ℃か焼体の TGDTA 分析



図 3.2.2-7 高密度顆粒体の熱伝導率



図 3.2.2-8 硝酸ナトリウムの熱伝導率[10]



図 3.2.2-9 300 ℃か焼体粉末の顆粒化処理温度別粒度分布



図 3.2.2-10 600 ℃か焼体粉末の顆粒化処理温度別粒度分布



図 3.2.2-11 900 ℃か焼体粉末の雰囲気別粒度分布



図 3.2.2-12 か焼体の吸湿性



図 3.2.2-13 炉心管腐食特性





図 3.2.2-14 蒸発時間 11 分で作製した乾固体の断面分析





図 3.2.2-15 蒸発時間 6 分で作製した乾固体の断面分析





図 3.2.2-16 蒸発時間 2 分で作製した乾固体の断面分析



図 3.2.2-17 急速乾燥試験で得られた顆粒体の組成ミクロ分布



図 3.2.2-18 顆粒体連続試作試験で得られた顆粒体の組成ミクロ分布





試料	粒度分布	密度 g/cm ³
顆粒体連続試作試験顆粒体密度	150 µm 以上 1 cm 未満	3.40
600 ℃か焼模擬廃棄物真密度	全分布範囲	3.58

表 3.2.2-2 顆粒体の密度



図 3.2.2-20 長時間乾燥・か焼試験後の平板状か焼体の組成ミクロ分布(×200倍)

SEM	N	0	Na
30. Sr	<u>v</u>	20m Zr	зж Mo
Dur Ru	Rh	Pd	Te
Cs	<u>am</u> Ba	Jur.	<u>e</u>
Pr	Dur Nd	Sm	Fe

図 3.2.2-21 長時間乾燥・か焼試験後の粒状か焼体の組成ミクロ分布(×1000倍)



図 3.2.2-22 か焼粉砕顆粒化試験後の顆粒体の組成ミクロ分布(×200 倍)



図 3.2.2-23 長時間乾燥・か焼試験後のか焼体およびか焼体粉砕顆粒化試験後の顆粒体の 粒度分布



図 3.2.2-24 長時間乾燥・か焼試験後のか焼体およびか焼体粉砕顆粒化試験後の顆粒体の 累積粒度分布

表 3.2.2-3 顆粒体の密度

試料	密度 [g/cm ³]	意味
閉気孔を除いたか焼体	3.46	真密度
か焼体粉砕顆粒化試験後の顆粒体	3. 36	閉気孔を含む密度


	1		1
項目	観点	目標	仕様
粒径分布	製造時安全性	浮遊性粒子の低減	10 µm 以上
		(粒径 10 µm 以上)	
組成分布	貯蔵時熱除去性	熱伝導率の不均一化を防ぐた	0.1mm 以下
		め、サブ mm スケールで発熱	
		性元素の分布が一様	
密度	貯蔵時熱除去性	本節で定める仕様値を用い、	3.5 g/cm ³
		3.4.1 項で冷却システムが成	
		立することを確認すること	
熱伝導率	貯蔵時熱除去性	本節で定める仕様値を用い、	0.8 W/m/K
		3.4.1 項で冷却システムが成	
		立することを確認すること	
残存硝酸塩割合	貯蔵時放射線分解安定性、	本節で定める仕様値を用い、	$30 \text{ wt } \% \text{NO}_3^-$
	貯蔵時キャニスタ健全性	3.4.2 および 3.4.3 項で貯蔵	
		時安全性が確保できることを	
		確認すること	
含水量限度	貯蔵時放射線分解安定性	本節で定める仕様値を用い、	0.3 wt %以下
		3.4.2 項で貯蔵時安全性が確	
		保できることを確認すること	

表 3.2.2-4 顆粒体の概念仕様

3.2.3 廃棄物顆粒体製造技術評価(再委託先:原子力機構) 【H30-R1】

3.2.3.1 概要

廃棄物顆粒体製造技術評価では、本業務で想定した 70L/h の実廃液処理を想定した顆粒体製造 装置(実機ロータリーキルン)の概念仕様を設定する。そのため、平成 30 年度には、ロータリー キルンによる高レベル廃液からの顆粒体製造装置について、模擬顆粒体製造試験結果を基に、遠 隔保守性とセル内環境を考慮した装置の基本的な設計を行った。また、令和元年度は、平成 30 年度の設計検討結果を基に必要な課題解決を実施するとともに、装置設計検討の詳細化を進める とともに、配置に関する概念検討を実施した。

3.2.3.2 基本方針

遠隔保守性とセル内環境を考慮したロータリーキルンによる高レベル廃液からの顆粒体製造装置について、以下に示す基本方針で設計検討を実施した。

(1) 設置場所

高レベル放射性廃液からの放射線を遮へいする必要があるため、装置はコンクリートセル内に 設置されるものとした。また、セル内の装置を運転するために、鉛ガラスおよびセル内のカメラ により、装置の主要部位が目視できるものとした。

(2) 遠隔保守方法

セル内の放射線量は高く、作業員がセル内にアクセスして接触保守する方法では被曝量が大き くなるため、遠隔保守する必要がある。遠隔操作にはマニプレーター等が用いられるが、人手よ りも自由度が小さく、実施可能な作業は限られている。そのため、装置はモジュールと称する、 マニプレーターで装脱着可能な、機器や部品の集合体として設計しておき、問題が発生した場合 には、モジュールを取り外し、必要に応じて除染した後、メンテナンスエリアにて、グローブを 介して作業員が接触保守する方法を想定した。

(3) 寸法

平成 30 年度に実施した基本的な設計では、NFDでの試験に用いた顆粒体製造プロセス試験 装置(連続式ロータリーキルン)の設計や得られた知見を参考に実機ロータリーキルンを検討した。 なお、NFDの装置は、顆粒体製造の原理実証のための試験装置であり、本業務で想定している 実際の処理速度(70L/h)を達成するにはスケールアップする必要がある。そのため、仏 ORANO 社 から公開されている 70L/h 程度の処理速度を有するロータリーキルンのサイズを直接参考とし、 仏 ORANO 社のロータリーキルンの炉心管長さが 3m[8,12,13]、NFD装置の炉心管長さが 1.5m であることから、NFD装置の寸法を 2 倍にスケールアップする方針とした。しかし、仏 ORANO 社の 3mのロータリーキルンを直接参考にした場合、保守管理に必要な部分も含めて設備の設置 面積の縮小が課題になった。このため令和元年度の設計検討では、一般産業用ロータリーキルン をベースに、液止めの導入、炉心管の太径化による伝熱面積の確保、炉心管のメンテナンスをメ ンテナンスエリアで実施することによる挿入物引き出し機構の削除等を行うことにより、設備設 置に必要な土台の面積が 3m×3m程度に収まるよう設計を見直すこととした。

3.2.3.3 遠隔保守性とセル内環境を考慮したロータリーキルンによる顆粒体製造装置の基本的 な設計結果 【H30】

遠隔保守性とセル内環境を考慮したロータリーキルンによる高レベル廃液からの顆粒体製造装置について、想定される保守管理やそれが実施可能であることを示す。

(1) 想定されるトラブルの抽出と対処方針の策定

遠隔保守・補修可能なロータリーキルンの保守対応方針を表 3.2.3-1 に示す。装置はロータリ ーキルンと補助設備(加熱プレスへの顆粒体の搬送装置)で構成される。ロータリーキルンは大 きく分類して炉心管、ヒータ、雰囲気調整部、および顆粒体容器に分類される。また、加熱プレ スへの顆粒体の搬送装置については、顆粒体の搬送コンベアーとハンドリング装置で構成される。 表 3.2.3-1 に示すトラブルについて遠隔保守できるよう、対処手順の検討とロータリーキルンの 設計を行った。

(2) 遠隔保守性を考慮したロータリーキルンの設計結果

遠隔保守性を考慮したロータリーキルンの設計結果を図 3.2.3-1 に示す。ロータリーキルンは 9 つのモジュールから構成されている。

設計に当たっては、マニプレーターで遠隔保守可能なよう、NFDの連続式ロータリーキルン に対して、以下のような設計変更を行った。

- ・ 管内治具を炉心管からスムーズに取り外すための X 軸ステージを追加
- ・ 炉心管の傾斜角度の調整は支持棒を押す方式から、マニプレーターで摘みを回転させる方式
 に変更
- ・ 架台の側面にある操作スイッチや表示器等の電気機器は取り外してセル外に移設
- ・ モーターから炉心管への動力伝達は、チェーン方式から歯車方式に変更
- 通常のボルトをナットランナ(マニプレーターに取り付ける治具)で回せる遠隔ボルトに変
- ・ モジュールをインセルクレーンで吊り上げるため、吊り金具を追加
- ・ モジュールを正確な位置に取り付けるため、ラフガイドと位置決めピンを追加
- ・ 熱電対はマニプレーターで交換可能な構造に変更

(3) 遠隔保守性とセル内環境を考慮したロータリーキルンの設計結果

遠隔保守性とセル内環境を考慮するとともに、オプションで顆粒体の高密度化する場合に用いる加熱プレスまでの取り合いを考慮した設計結果を図 3.2.3-2 に示す。

ロータリーキルンの排出口から排出された顆粒体は、金属製の顆粒体容器に収容した後、ハンドリング装置と顆粒体容器搬送コンベアーを用いて加熱プレス機まで移動し、加熱プレスで高密度化される。加熱プレス機のサイズは、グローブボックス内使用実績があり、保守用モジュール 化検討を実施済のプレス機のサイズを参考とした。なお、この設備の設置に要するスペースとしては、約11m×約2.6m程度が必要であるため、長手方向のサイズの縮小が課題となった。

(4) 想定されるトラブルへの具体的な対処手順の検討

表 3.2.3-1 に示す保守交換において、特に複雑な操作を要するロータリーキルンの炉心管交換 が可能であることを示すために、その交換方法の一例を以下に示す(図 3.2.3-3)。なお、下記 の例では、長手方向のサイズの縮小を考慮しておらず、特に手順⑥において炉心管を長手方向に 引き出すために、必要とされる設置面積が長手方向に極端に大きくなっているため対応が必要で あることがわかった。

- 上部ヒータと下部ヒータを連結している遠隔ボルトをマニプレーターに取り付けたナットランナで緩める。
- ② マニプレーターを用いて、上部ヒータの吊り金具にインセルクレーンの吊り治具を取り付ける。
- ③ 上部ヒータを吊り上げる。
- ④ 上部ヒータを水平移動させる。
- ⑤ 管内治具用台車の遠隔ボルトをマニプレーターに取り付けたナットランナで緩める。
- ⑥ マニプレーターで台車を掴んで、X 軸ステージ上に管内治具を水平に引きずり取り出す。
- ⑦ 顆粒体排出ロモジュールの遠隔ボルトをマニプレーターに取り付けたナットランナで緩める。
- ⑧ マニプレーターを用いて、顆粒排出ロモジュールの吊り金具にインセルクレーンの吊り治具 を取り付け、上部ヒータを水平方向に移動させて吊り上げる。
- ⑨ 廃液・雰囲気ガス導入モジュールの遠隔操作ボルトをマニプレーターに取り付けたナットランナで緩め、マニプレーターで水平方向に移動させる。
- ⑩ マニプレーターを用いて吊り金具にインセルクレーンの吊り治具を取り付ける。
- ① インセルクレーンで炉心管を吊り上げて取り外す。
- ① 予備あるいはメンテナンスエリアで修理した炉心管を逆の手順で取り付けて装置を復旧させる。

3.2.3.4 遠隔保守性とセル内環境を考慮したロータリーキルンによる顆粒体製造装置の設計の 詳細化と配置設計【R1】

遠隔保守性とセル内環境を考慮したロータリーキルンによる高レベル廃液からの顆粒体製造装置について、令和元年度は実機ロータリーキルンシステム設計として、設計の詳細化と配置設計を行った。設計の詳細化に当たって長手方向のサイズの大幅な縮小を図るため、仏 ORANO 社の3mのロータリーキルンを直接参考にするのではなく炉心管の短尺化に留意しながら寸法を設定するとともに、設備設置に要するスペースの長手方向を短縮するように保守管理手順を設定した。

(1) ロータリーキルンの実機仕様の概略検討結果

ロータリーキルンの実機仕様の概略検討結果を表 3.2.3-2 に示す。商用再処理施設で発生する 廃液を処理するため、廃液処理速度は 70L/h とした。また、炉心管を短尺化するため、炉心管の 太径化(直径 355.6mm)とNFDにおける平成 30 年度の実験成果の導入(液止め、剥離・送 り機構)を行った。耐腐食の観点から、炉心管の材質は SUS310S とした。また、炉心管内の各ゾ ーン(乾燥、か焼、顆粒化)について、ヒータ出力、長さ、内面の形状等について定めた。

(2) 遠隔保守性を考慮した実機ロータリーキルンの設計結果

実機ロータリーキルンシステム設計のうち、遠隔保守性を考慮した実機ロータリーキルンの設計結果を図 3.2.3-4 に示す。実機ロータリーキルンは6つのモジュールとその架台から構成されている。設計に当たっては、マニプレーターで遠隔保守可能なよう、一般産業用のロータリーキルンをベースに、仏 ORANO 社のロータリーキルンから得られる情報等を参考にして、以下のような設計変更を行った。

- ・ 通常のボルトをナットランナ(マニプレーターに取り付ける治具)で回せる遠隔ボルトに変
 更
- モジュールをインセルクレーンで吊り上げるため、吊り金具を追加
- モジュールを正確な位置に取り付けるため、ラフガイドと位置決めピンを追加
- 熱電対はマニプレーターで交換可能な構造に変更

(3) キャニスタの搬送装置の設計結果

実機ロータリーキルンシステム設計のうち、キャニスタの搬送装置の設計結果を図 3.2.3-5 に 示す。本装置はキャニスタを実機ロータリーキルンから蓋の溶接装置に搬送するものである。ま ず、空のキャニスタを上方向に押し付けて実機ロータリーキルンの排出口に密着させた後に顆粒 体を充填する。顆粒体充填後、キャニスタを降下させ、封入装置まで台車で移送する。本装置は モジュールに分割されておらず、マニプレーター等で回復できないトラブル等が発生した場合に は、装置ごとメンテナンスエリアに移動させて保守することとした。

(4) キャニスタの蓋の溶接装置の設計結果

実機ロータリーキルンシステム設計のうち、キャニスタの蓋の溶接装置の設計結果を図 3.2.3-6 に示す。本装置は、窒素ガス置換により顆粒体が充填されたキャニスタ内の酸素濃度を 低減させた後、キャニスタの開口部に上蓋を溶接して密封する。本装置についても、キャニスタ の搬送装置と同様、マニプレーター等で回復できないトラブル等が発生した場合には、装置ごと メンテナンスエリアに移動させて保守することとした。

(5) 設備全体の配置検討結果

実機ロータリーキルンシステム設計として、実機ロータリーキルン、キャニスタの搬送装置、 およびキャニスタの蓋の溶接装置を含むシステム全体の配置検討結果を図 3.2.3-7 に示す。

実機ロータリーキルンの排出口から排出された顆粒体は、キャニスタに収容した後、搬送装置 を用いてキャニスタの蓋の溶接装置まで移動し、上蓋を溶接することにより密封する。

配置検討の結果、実機ロータリーキルンとキャニスタの蓋の溶接装置の設置面積は 3.1m× 3.1mとなり、目標とした 3m×3m程度の土台上に設置できる見通しが得られた。キャニスタの 搬送装置を加えると、搬送装置を移動させるためのレールの幅だけ面積が増加して、設置面積は 3.1m×3.9mとなるが、今後の設計詳細化によるキルンのさらなる短尺化や搬送装置のレールの 敷設方法の工夫等を行うことにより、さらなる長手方向寸法の短縮が図れる可能性がある。

なお、オプションである加熱プレス機を設置する場合、ロータリーキルンと横置きとしたキャ ニスタの蓋の溶接装置の間に加熱プレス機を設置し、ベルトコンベアーおよびロボットアームに てその間を繋ぐものとし、全体をコの字型に配置することで長手方向寸法の増加を抑える。

(6) 実機ロータリーキルンの炉心管の遠隔方保守手順の検討

炉心管に関しては、腐食や粉末による閉塞が生じる等、最もトラブルの発生が予測される部品 であることから、遠隔による保守手順の検討を行った。手順の設定に当たっては、設置に必要と なる面積の長手方向の短縮を考慮した。

- ① まず、以下の手順で上部ヒータを取り外す(図 3.2.3-8)。
 - I. 上部ヒータの遠隔ボルト6本をマニプレーターに取り付けたナットランナで緩める。
 - II. 4 ヵ所の釣り金具にインセルクレーンの吊り治具を取り付け、上部ヒータを吊り上げて 水平方向に移動させる。
- ② 次に、以下の手順で炉心管・原料供給フード・排出フードを一括で取り外す(図 3.2.3-9)。
 - I. 炉心管を固定している遠隔ボルト8本をマニプレーターに取り付けたナットランナで緩める。
 - II. 4 ヵ所の釣り金具にインセルクレーンの吊り治具を取り付け、炉心管を原料供給フード および排出フードとともに吊り上げて水平方向に移動させる。
 - III. インセルクレーンにて炉心管をメンテナンスエリアに移動する。
 - IV. メンテナンスエリアにて、溶液供給フードおよび排出フードを取り外す。
 - V. 予備あるいはメンテナンスエリアで修理した炉心管を逆の手順で取り付けて装置を復旧 させる。

3.2.3.5 廃棄物顆粒体製造技術評価のまとめ

平成 30 年度に実施した設計検討では、ロータリーキルンによる高レベル廃液からの顆粒体製 造装置について、遠隔保守性とセル内環境を考慮した装置の基本的な設計について検討し、マニ プレーターで装脱着可能なモジュールと呼ばれる機器や部品の集合体として設計すること等によ り、遠隔で保守可能な見通しを得ることができた。また、設備の基本的な設計の成果として遠隔 対応設備の概念図を作成した。

令和元年度の設計検討では、平成 30 年度の設計検討やNFDの実験で得られた成果等をフィ ードバックして装置の構造・寸法を見直すとともに、実機の概略仕様に関しても検討し、遠隔保 守性とセル内環境を考慮した装置の設計検討の詳細化を進めた。また設備の配置検討として、実 機ロータリーキルンから得られた顆粒体をキャニスタに封入するシステムについての配置図の作 成を行って、顆粒体製造装置の機器成立性を確認した。

2年間の設計検討により、ロータリーキルンを用いて高レベル放射性廃液を顆粒化してキャニ スタに封入する実機ロータリーキルンシステムについて、遠隔保守対応設備の概念設計を明らか にするとともに、3m×3m程度の小規模なスペースに設置できる可能性を示した。

孜 5. 2. 5 1 逸鹛床寸 * 冊修可能なロークソー イルンの床寸刈心刀如(十成 50 牛	表 3.2.3-1	遠隔保守·	補修可能なロータ	リーキルンの保守対応方針	(平成 30 年度
--	-----------	-------	----------	--------------	-----------

装置	構成部品	予想される異常事象	対応方針
		粉末による炉心管の 閉塞	管内治具により粉末による閉塞を解消する。
		炉心管内の粉末残留	管内治具により残留粉末を取り出す。
		炉心管接合部・摺動	粉末かみ込が発生したモジュールをマニプレー
		部等への粉末のかみ	ターとインセルクレーンで取り外し、接触保守
		込み	により分解・清掃することにより対応する。
	后心签	成法供外体で世紀	廃液供給と雰囲気ガス供給に係る部分を組み合
	がら	廃 (供 标 官 の 板 損 ・ 析 出 物 に ト ろ 閉 筆	わせてモジュール化し、マニプレーターとイン
		利田物による国委	セルクレーンで交換できるようにする。
		伝えなの神根	マニプレーターとインセルクレーンで交換でき
		炉心官切破損	るようにする。
		モーターや減速機の	モーターと減速機をそれぞれモジュール化し、
キルン			マニプレーターとインセルクレーンで交換でき
			るようにする。
	ヒータ	ヒータの故障	ヒータの上部と下部でそれぞれモジュール化
			し、マニプレーターとインセルクレーンで交換
		ᅒᆂᄔᇰᅛᄨ	できるようにする。
		熱電対の故障	マニブレーターで交換できるようにする。
	雰囲気調整部	流量計の故障	セル外へ移設する。
		ガス管の破損	廃液供給と雰囲気ガス供給に係る部分を組み合
			わせてモジュール化し、マニプレーターとイン
			セルクレーンで交換できるようにする。
			マニプレーターに上り粉末の詰まりを解消す
	顆粒体容器	粉末の詰り	、 - <i>、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、</i>
		接合部、摺動部、駆	粉末かみ込が発生したモジュールをマニプレー
加熱プレスへ の搬送装置		動機構への粉末のか	ターとインセルクレーンで取り外し、接触保守
	顆粒体容器搬	み込み	により分解・清掃することにより対応する。
	送コンベアー		モーターと減速機をそれぞれモジュール化し、
		モーターや減速機の	マニプレーターとインセルクレーンで交換でき
		以陧	るようにする。
	ハンドリング	ハンドリング装置の	マニプレーターとインセルクレーンで交換でき
	装置	故障	るようにする。

No	項目	仕様
1	廃液処理速度	70L/h
2	乾燥ゾーン出力	60kW
3	か焼ゾーン出力	20kW
4	顆粒化ゾーン出力	20kW
5	乾燥ゾーン長	0. 5m
6	乾燥ゾーン内廃液保持機構	液止め方式
7	液止め間隔	0. 4m
8	粉末の剥離・送り機構	剥離板方式
9	か焼ゾーン長	0. 2m
10	冷却ゾーン長	—
11	顆粒化ゾーン長	0. 3m
12	か焼〜顆粒化ゾーン間冷却機	_
	構	
13	混合機構	_
14	炉心管材料	SUS310S
15	炉心管厚み	7. 9mm
16	炉心管形状	直管
17	炉心管径	355. 6mm
18	吸気流量	40 Nm2/h
19	排気流量	1.97kL/min.
20	廃液温度	余熱なし
21	廃液組成	商用再処理施設のガラス固化直前
		の高レベル廃液
22	脱ガス処理系	水酸化ナトリウム水溶液によるト
		ラップ

表 3.2.3-2	ロータリー	ーキルンの概	略実機仕様の)検討結果	(令和元年度)
-----------	-------	--------	--------	-------	---------



図 3.2.3-1 遠隔保守性を考慮した実機ロータリーキルン設計の例



図 3.2.3-2 遠隔保守性、セル内環境、および加熱プレス機との取り合いを考慮した実機ロータ リーキルンの設計の例



(i) 遠隔ボルトを緩め、吊り金具を取り付ける

(ii) 上部ヒータの取り外し



(iii) 管内治具の取り外し



(iV) 炉心管の取り外し

図 3.2.3-3 実機ロータリーキルンにおける炉心管の交換手順の例



図 3.2.3-4 実機ロータリーキルンの概念設計



図 3.2.3-5 実機ロータリーキルンの概念設計(キャニスタの搬送装置)



図 3.2.3-6 実機ロータリーキルンの概念設計(キャニスタの蓋の溶接装置)



図 3.2.3-7 実機ロータリーキルンの概念設計(顆粒体製造封入システム全体の配置)



図 3.2.3-8 実機ロータリーキルンの保守交換(上部ヒータの取り外し)



図 3.2.3-9 実機ロータリーキルンの保守交換(炉心管の取り外し)

3.3 顆粒体高密度化/再廃液化技術開発【H28-R1】

3.3.1 顆粒体高密度化技術開発【H28-R1】

柔軟な廃棄物管理法では、ロータリーキルンで製造した顆粒体を細径キャニスタに装填して貯 蔵することにより、そのままでもガラス固化体と比較して貯蔵面積が大幅に低減するが、顆粒体 の高密度化をすることで貯蔵面積のさらなる低減が図れる可能性がある。このため、柔軟な廃棄 物管理法の実用化開発では、顆粒体を細径キャニスタに装填して顆粒体のまま貯蔵することを基 本とするが、オプションとして、顆粒体の高密度化システムの技術開発を行う。(図 3.3.1-1)。 本節では、前節までに示した顆粒体製造システムに対して、顆粒体を加熱プレスして高密度化す るための装置を追加設置する可能性を念頭に、顆粒体高密度化技術の開発を行う。

3.3.1.1 試験計画

図3.3.1-2に4年間の計画概要を示す。高密度化による貯蔵面積低減には、細径キャニスタ内 にできるだけ多くの質量の顆粒体を詰め込むことが重要であり、このためには、顆粒体内の空隙 を減少させることよりも、細径キャニスタ内に隙間なく装荷して顆粒体間の隙間を減少させるこ とが極めて効果的である。すなわち、加熱プレスで作製すべき高密度顆粒体は、その密度を上昇 させることに重きを置くよりも、その形状を、細径キャニスタの内径にちょうど入る大きさの円 盤状とすることが極めて効果的となる。さらに、顆粒体内空隙でなく、顆粒体間の隙間を減少さ せることは実効熱伝導係数の上昇に非常に効果的であり、この方針は、発熱元素の高密度充填に よる貯蔵時の発熱密度上昇の状態において、徐熱性能の向上効果をもたらすと期待できる。早期 開発のために、従来、核燃料サイクルにおいて考えられてきた放射能の強い核燃料ペレット (10mm φ 程度、密度 96 %以上)を作製する技術をできるだけ応用して、細径キャニスタ内径にせ まる大口径の高密度顆粒体を作製することを考えた場合、その密度目標は大幅に低減しても良い が、プレス面積が100倍以上に達する。このため、セル内での使用に実績や検討成果の豊富なプ レス機(最大荷重 20 トン以下程度)によって、顆粒体の高密度化に必要な荷重が確保できるかが 開発課題となる。ここで、核燃料ペレットの作製は比較的硬い酸化物や窒化物を用いるのに対し、 酸化物と硝酸塩の混合体である顆粒体は、一部硝酸塩成分の融点が 300℃以下であり容易に融点 近傍までの加熱ができ大幅な軟化が期待できる。したがって、プレス機最大荷重 20 トンを固定 目標として、顆粒体の焼成温度に応じた酸化物/硝酸塩比率や、加熱温度、プレスに必要な時間 が開発すべきパラメータとなる。一方、高密度顆粒体自体の密度は高い方がベターであるが、顆 |粒体の細径キャニスタへの充填率(空隙および隙間を含んだ充填密度)は 50 %以下であり、これ を大幅に引き上げる目安として 80 %程度以上を考える。

高密度パラメータの探索では、大口径・低荷重試験用に導入した加熱プレス機を用い、顆粒体 の物理的・化学的特性を決定するか焼温度別に高密度化試験を実施し、低荷重高密度化に有効な パラメータを探索する。また、令和元年度は、実規模サイズへの適用性を確認するために大口径 化および厚み増加の影響を確認する。また、顆粒体の高密度化システムが成立することを確認す る。

3.3.1.2 顆粒体の高密度化パラメータの探索 【H28~H30】

硝酸塩と酸化物の混合体におけるプレス試験[14]では、硝酸塩の融点以下の加熱条件での一軸

プレスを加えることによって高密度の酸化物硝酸塩混合体が得られており、顆粒体についてもそ の硝酸塩成分の融点以下に加熱した上で機械圧縮をかけることが有力な方法となる。試験に使用 する加熱プレス機として、低圧、大面積、長ストロークが可能な仕様(プレス荷重 200kN、サン プルロ径 10~50mm、ストローク最大 80mm、最大加熱温度 400 ℃)の加熱プレスを導入した。写 真を、図 3. 3. 1-3 に示す。

顆粒体の高密度化のプレス条件を探るに当たり、まず、硝酸ナトリウムおよび酸化セリウム粉 末混合粉末を簡易的な模擬顆粒体とした。各種硝酸塩の脱硝状態の文献値(表 3.3.1-1)から、 300、600、900 ℃のか焼温度で作製した顆粒体に対応する硝酸塩と酸化物のモル比率を、それぞ れ9:1、3:1、1:19と仮定し、それぞれの割合を混合比とした硝酸ナトリウムおよび酸化セリ ウム粉末混合粉末を準備した。これを、内径 10mm φ の金型に装荷し、プレス温度、プレス圧力、 プレス時間といった加熱プレス各パラメータの最適化を図った。

硝酸ナトリウム・酸化セリウム比 3:1 の模擬顆粒体に対し、荷重とプレス時間を固定してプ レス温度を変化させた場合の充填率の変化を図3.3.1-4に示す。加熱温度が高くなると、硝酸ナ トリウム結晶が柔らかくなり、プレスによって開気孔の減少が図られたため、密度が上昇したと 考えられる。したがって、顆粒体の高密度化においては低融点硝酸塩相の融点直下のプレス温度 を選択することが最適解であると言え、このことは低融点硝酸塩相を多く含む 600 ℃以下のか 焼温度で生成した顆粒体全体に対しても言える。なお、このパラメータにおいて、加熱温度 290 ℃にて充填率は 90 %以上となった。一方、硝酸ナトリウム・酸化セリウム比 1:19 の模擬 顆粒体に対して、プレス温度を変化させた場合の充填率の変化を図 3.3.1-5 に示す。高温焼成に より硝酸塩相の少ない顆粒体においては、硝酸ナトリウム融点を超えることによる充填率の増加 は発生しなかった。以上から、硝酸塩成分が多く含まれる顆粒体では、プレス温度を融点近傍ま で上昇させることで高密度化が容易になるということがわかった。なお、ここで、かさ密度、か さ体積、充填率等について整理しておく。かさ体積とは、粉末や高密度顆粒体を円柱に詰め込ん だ際の体積であり、顆粒体自体の真体積の他、閉気孔体積、開気孔体積、円柱との空隙を含む体 積であって、貯蔵時の円柱状キャニスタの顆粒体装荷部分の内容積に相当する。かさ密度は、顆 粒体の重量をかさ体積で除したものであり、円柱状キャニスタ内の顆粒体装荷部分の平均密度に 当たる。一方、充填率は、かさ体積に対する顆粒体自体の真体積の割合であり、円柱状キャニス タ内の顆粒体装荷部分が、空隙と理論密度の顆粒体でできていると見た場合に、顆粒体の体積割 合を示すものとする。なお、乾式密度計は開気孔を除いた顆粒体の体積を測定できる。つまり、 顆粒体の真体積と閉気孔体積を合わせた体積を測定していることになる。

次に、プレス圧力依存性を調べた結果を記載する。硝酸ナトリウム・酸化セリウム比 9:1 (300 ℃か焼対応)混合粉末について、プレス温度 300 ℃、保持時間 1000 秒、荷重を 0.2~2kN でプレスしたところ、図 3.3.1-6 に示すように、0.5kN 以上の荷重で閉気孔が減少し、100 %近 い充填率を示した。硝酸ナトリウム・酸化セリウム比 3:1 (600 ℃か焼対応)混合粉末につい て、プレス温度 300 ℃、保持時間 100 秒、荷重を 1~5kN でプレスしたところ、図 3.3.1-7 に示 すように、2kN 以上の荷重で閉気孔が減少し、95 %を超える充填率を示した。硝酸ナトリウ ム・酸化セリウム比 1:19 (900 ℃か焼対応)混合粉末について、プレス温度常温、保持時間 1000 秒、荷重 5~8kN でプレスしたところ、図 3.3.1-8 に示すように、8kN の荷重で若干閉気孔 が減少し、60 %程度であるが充填率も若干上昇した。セル内に配置可能な簡易なプレス装置で 大面積への荷重付与を考えた場合、本年度使用した 10mm φ の台座においては数 kN 以下の荷重で の閉気孔の減少が望まれるが、硝酸塩成分が多く含まれる低温焼成顆粒体では、10mm φ に対し 2kN 以下の荷重で高密度顆粒体が作製できる可能性が示された一方、硝酸塩成分の少ない高温焼 成顆粒体では大面積高密度顆粒体の作製は困難と考えられる。最後に、プレス時間依存性は、硝 酸ナトリウム・酸化セリウム比3:1 (600 ℃か焼対応)混合粉末について実施した。荷重 1kN、 プレス温度を 300 ℃固定として、プレス時間を 20~1000 秒とした。結果を図 3.3.1-9 に示す。 プレス時間の増加に応じて、充填率の増加が見られ、1000 秒においては 95 %を超える充填率に 達した。これにより、600 ℃焼成顆粒体に対して荷重 1kN であってもプレス時間を長く取ること により、閉気孔を減少させられることが期待される。

次に、以上の結果を踏まえて、簡易的な模擬廃液ではなく、3.2.1 に示した模擬廃液より作製 したか焼体を用いた高密度化試験を実施した。なお、顆粒体のか焼温度については 3.1 にて絞り 込んで 600 ℃か焼について実施した。作製した高密度顆粒体の一例を図 3.3.1-10 に示す。また、 図 3.3.1-11 にかさ密度および充填率の温度依存性を示す。温度依存性については顆粒体の低融 点硝酸塩成分の融点近傍 250~300 ℃と設定したが、250 ℃でも既に充填率 98 %以上の高密度 化が実現されており、280 ℃以上に温度を上昇させると逆に充填率は減少していった。280 ℃以 上に加熱してプレスした場合、試験後のプレス金型の内面に固着物が確認されたことから、高密 度顆粒体を円柱と見た際の表面の窪みによる空隙が増大したものと見られ、融解成分固着を防ぐ ためには 270 ℃程度以下の加熱に抑える必要がある。250 ℃での加熱と比して 270 ℃での充填 率の増加はわずかであるので、融解成分固着領域に対して裕度を持つために、250 ℃での加熱の 方が良いと考えた。なお、以降の試験は 250 ℃での加熱にて実施した。次に、充填率の荷重依 存性の試験としてさらに低荷重での試験を、これまでの 1cmφの金型(1g 装荷)に加え、3cmφの 金型(9g 装荷)を導入し、単位面積当たりの荷重を減少させたケースを含めて実施した。加熱温 度 250 ℃、プレス時間 100 秒とした。結果を図 3.3.1-12 に示す。荷重 0.13 ton/cm²、および 0.039 ton/cm² では、90 %を超える充填率が達成されたが、0.013 ton/cm² では 80 %の充填率 に若干及ばなかった。0.039 ton/cm²の荷重で作製した高密度顆粒体の外観写真を図 3.3.1-13 に 示す。きれいな円柱状の高密度顆粒体が作製できている。なお、0.039 ton/cm²は、直径 10cm 程 度の面積に対し5トン以下となるため、セル内での実績があり設置容易なプレス機の最大荷重を 十分に下回る数値である。

3.3.1.3 顆粒体高密度化システム成立性評価【R1】

令和元年度は、実規模サイズの高密度顆粒体の作製可能性について検討する。すなわち細径キ ャニスタと同程度の径であり、顆粒体製造速度を上回る速度で高密度顆粒体を製造するため必要 な高密度顆粒体製造速度すなわち厚みに関して検証する。このため、高密度化試験として 5cm ま での大口径化を図り、充填率の口径依存性を確認するとともに、厚みを増加させて充填率の厚み 依存性を確認する。それにより顆粒体高密度化システムが成立することを示す。

(1) 厚み依存性試験

70L/h で供給される廃液から製造される顆粒体は重量にして約 7kg/h であり、顆粒体の真密度は 3.5g/cm³のため、高密度顆粒体の充填率を 80 %とした場合、かさ体積にして 1 時間当たりに

2.5L 分の高密度顆粒体を製造する必要がある。高密度顆粒体の直径を細径キャニスタ内径 14.6cm と考え、クリアランスとして片側 0.1cm を減じた 14.4cm とした場合、細径キャニスタに 1 時間当たり 15.4cm の深さの装填が必要となる。すなわち、15 分に 1 回プレスするとした場合、 1 つの高密度顆粒体は約 4cm となるため、これを高密度顆粒体の厚さの目安と考える。令和元年 度は、厚さの絶対値として 4cm に近づけ、充填率の厚み依存性を確認した。内径 1cm の金型を用 い、600 ℃か焼の顆粒体を 250 ℃、1.0kN、100 秒でプレスして得た高密度顆粒体の厚みと充填 率のグラフを図 3.1.1-14 に示す。充填率は厚みに対して依存していないという結果であった。 したがって、4cm 程度までの厚みは、同じ充填率を得るために必要な単位体積当たり荷重を変化 させないと言える。

(2) 直径依存性試験

3.1 節にて述べたように、細径キャニスタの内径は14.6cmと定めた。本実用化開発では直径5 cm まで径を拡張し、充填率 80 %超の高密度顆粒体をセル内実績荷重約 20 トン以下で作製でき る見込みを示す。径 5cm の金型を用いて作製した高密度顆粒体の外観写真を図 3.3.1-15 に示す。 プレス条件は 250 ℃、荷重 8.3kN=圧力 0.043ton/cm²とした。径を 5cm まで拡張しても円板状の 高密度顆粒体が得られた。径 1cm、3cm、5cm の金型を用い、同等の圧力で加熱プレスして得られ た高密度顆粒体の直径に対する充填率のグラフを図 3.3.1-16 に示す。高密度顆粒体の充填率は 直径に関わらず同等の充填率を示した。ただし、金型内の温度分布から、温度制御をする熱電対 がヒータ近くに配置されていることから高密度顆粒体外縁付近と中央付近では温度分布が避けら れず、中央付近の温度が下がるため、5cmの金型を用いた場合は制御温度270 ℃とし、中央付近 が 250 ℃程度となるようにして高密度化を実施した。高密度化の本質は、部分的に融解させた 一部の硝酸塩成分が固相の酸化物成分の隙間に入り込むことで充填性を増すことにあるため、融 解成分の量を決めるプレス温度は重要なパラメータとなる。したがって、金型内の温度分布一様 性は重要となり、実機加熱プレス機においては均熱性を高く保有するものでなければならないと 言える。以上の考察を踏まえると、5cmφの試作においても本質的に必要とされる単位面積当た 面積当たり荷重も変わらないと言える。

(3)安全性評価

本実用化開発で示した顆粒体高密度化設備は、セル内での実績荷重を下回るものであり、その設備設計や放射線下での運転について成立性を有するものとなっている。

一方、安全性については、放射性物質の飛散が安全性を脅かす要素となる。高密度化を行う前の顆粒体は飛散防止(粒径10µm以上)を図っているため、そのプレス内への導入に際してはホッパーなど信頼性の高い方法にて実施することが可能でありその安全性は高い。プレス内は顆粒体の硝酸塩成分の融点近傍まで昇温するため、プレス中は破砕ではなく変形が発生するので浮遊性粒子の発生は少ないと考えられる。また、高密度顆粒体となった後は密度が上昇することにより破砕の可能性は大幅に減少する。以上のことから、高密度化設備が通常運転を行っている際の安全性は高いと言える。一方、設備や運転に異常が発生した際に顆粒体や高密度体の破砕に繋がる可能性を検討すると、顆粒体を装荷しているダイスが破壊される可能性が考えられ、これに対

応するためには、高密度化設備の最大荷重においても破壊が発生しないようダイスの厚みを増し て強度を強化しておく必要がある。本実用化開発で示した顆粒体高密度化設備はセル内での実績 荷重を下回るものであり、設備の設計不備や放射線下での運転異常は基本的に考えにくく異常発 生は起こりにくい上、最大荷重も抑えられていることからダイス等の強度強化も容易である。

したがって、本実用化開発においては、プレス荷重を抑えることでセル内での実績荷重を下回 る顆粒体高密度化設備を示すことができたことによって、成立性を有し、また通常運転時および 異常時における安全性も一定の高いレベルで確保することができると言える。

(4) まとめ

高密度化試験で得られた結果を基に、加熱プレスの基本パラメータとして、実機加熱プレス機の仕様を表3.3.1-2 に実機加熱プレス機の運転条件を表3.3.1-3 にまとめた。実機加熱プレス機の仕様として、最大荷重出力はセル内実績荷重、プレス径は細径キャニスタに準じた径とした。このような仕様を持つ実機加熱プレス機の概略設計図を図3.3.1-17 に示した。この実機加熱プレス機は各部をモジュール化し、遠隔保守性を考慮した構造となっている。得られた高密度顆粒体は加熱プレス機から取り出された後、細径キャニスタに装荷されるが、装荷途中の高密度顆粒体の欠けや破損、引っ掛かりを起こさないように寝かせた横置きの細径キャニスタに対して装荷することとした。実機加熱プレス機の運転条件は、排出速度70L/hの廃液から得られる顆粒体7kg/hを処理する必要があることから、径14.4cm・厚さ4cm・充填率85%の高密度顆粒体とすることで1個当たり2.3kgとなるので、1時間当たり4サイクル加熱プレスすれば良く、プレス時間は100秒とした。なお、顆粒体がセル内の湿潤空気に触れて含水率を増大させるのを低減させるため、ロータリーキルンから連続的に製造される顆粒体が1プレス分溜まった時点でプレスを1回実施していくこととする。

以上、廃棄物の貯蔵形態のオプションとしての高密度顆粒体の作製技術開発では、細径キャニ スタに準じた径の大口径高密度顆粒体を、廃棄物処理速度を確保しつつ、セル内実績荷重以下の 安全な荷重で作製できる見通しを得ることができた。したがってロータリーキルンから出力され た廃棄物顆粒体を加熱プレスで安全に高密度化するシステムも成立することがわかった。



図 3.3.1-1 顆粒体高密度化技術開発の位置付け

年度	計画概要
H28	・加熱プレス機の設計・製作 ・乾式密度計の導入
H29	・硝酸ナトリウムおよび酸化セリウム混合粉末による高密度化パラ メータ試験 ・試作顆粒体の高密度化試験
H30	・顆粒体の高密度化パラメータ試験 ・熱伝導率、吸湿性の測定
R1	・顆粒体の高密度化試験 ・安全性および成立性評価、概念仕様

4年間の目標

✓ 実機加熱プレス機の仕様・運転条件の基本パラメータを示す。

✓ 高密度顆粒体の基本的な仕様を示す。

図 3.3.1-2 4年間の計画概要



図 3.3.1-3 導入した加熱プレス機

		か焼温度 ℃			
兀奈 仔仕比 %		300	600	900	
Na	56.4	硝酸	塩	酸化物	
Fe	6.4		酸化物		
Zr	5.5	硝酸塩酸化物			
Mo	5.0	酸化物			
Ce	4.8	硝酸塩	暫	發化物	
Nd	4.6	硝酸	塩	酸化物	
Ru	3.4	データなし			
Cs	3.3	硝酸塩		酸化物	
Pd	2.3	硝酸塩酸化物		傻化物	
Ba	1.8	硝酸塩 酸化物		酸化物	
Sr	1.3	硝酸塩酸化物		酸化物	
La	1.3	硝酸塩 酸化物		酸化物	
Pr	1.1	硝酸塩 酸化物			
Sm	0.8	硝酸塩 酸化物		酸化物	
Y	0.7	硝酸塩 酸化		酸化物	
Rh	0.6	硝酸塩 酸化物		發化物	
Te	0.6	酸化物			
Eu	0.2	硝酸塩 酸化物		傻化物	
硝酸塩	mol %	(88.0)	(73.9)	(3. 4)	
酸化物	mol %	12.0	26.1	96.6	

表 3.3.1-1 顆粒体に存在する硝酸塩・酸化物モル比の推定



図 3.3.1-4 充填率のプレス温度依存性 NaNO3:CeO2=3:1



図 3.3.1-5 充填率のプレス温度依存性 NaNO3:CeO2=1:19



図 3.3.1-6 充填率の荷重依存性 NaNO3:CeO2=9:1



図 3.3.1-7 充填率の荷重依存性 NaNO3:CeO2=3:1







図 3.3.1-9 充填率のプレス時間依存性 NaNO3:CeO2=3:1



図 3.3.1-10 直径 1cm の高密度顆粒体の外観



図 3.3.1-11 充填率および密度の温度依存性



図 3.3.1-12 充填率の荷重依存性



図 3.3.1-13 直径 3cmの高密度顆粒体の外観



図 3.3.1-14 充填率の厚み依存性



図 3.3.1-15 直径 5cm の高密度顆粒体の外観



図 3.3.1-16 充填率の直径依存性



図 3.3.1-17 実機加熱プレス機の概略設計図

項目	考え方	仕様値
最大荷重出力	セル内実績荷重 20ton	20ton
最高温度	プレス温度(250 ℃)を超える	270 °C
プレス径	細径キャニスタ内径 14.6cm からクリアランス 0.1cm (片側)を考慮	14.4cm
ストローク	厚さ4cmの高密度顆粒体が成型できる長さ →高密度顆粒体の厚さ(4cm)、密度(85 %)、顆粒体の 高密度化前の充填率(約40 %)から設定	10cm
キャニスタへの 装荷方法	高密度顆粒体の破損や装荷異常を引き起こしにくい方 法	横置きで装荷

表 3.3.1-2 加熱プレスの基本パラメータ(実機加熱プレス機の仕様)

表 3.3.1-3 加熱プレスの基本パラメータ(実機加熱プレス機の運転条件)

項目	考え方	仕様値
顆粒体量	径 14.4cm、厚さ4cmの高密度顆粒体	2.3 kg
プレス荷重	径 14.4cm で、圧力 0.05ton/cm ² でプレス	8.2ton
プレス温度	高密度化試験で決定	250 °C
プレス時間	 ・ 高密度化に十分な時間の確保 ・ 70L/h から 7kg/h 顆粒体が生成、1h 当たり 4 サイ クルプレス実施 	100 秒

3.3.2 再廃液化技術開発(再委託先:原子力機構)【H28-R1】

3.3.2.1 試験計画

本事業では現行再処理廃液に対して将来技術である分離変換技術を適用することにより、1000 年後の潜在的有害度を大幅に低減することを目的としている。このために、柔軟な廃棄物管理法 と、50 年後に実用化されている分離変換技術を合わせて、1000 年後の潜在的有害度の大幅低減 という観点での MA の回収率を 95 %以上とすることを考えている。原子力機構における分離変 換技術研究で 2050 年頃の実用化を目指して開発が進められている「SELECT プロセス」は、再処 理プロセスと MA 分離プロセスを統合化し、U, Np, Pu を分離する再処理プロセスの抽出残液か ら 99.9 %以上の MA を回収する目途が立っている[15,16]。柔軟な廃棄物管理法では 50 年間保 管した顆粒体は再廃液化技術によって再溶解液として MA 分離工程に供給するが、その再溶解液 を「SELECT プロセス」における再処理プロセスの抽出残液に対する MA 抽出工程に繋げることを 考える。ここで柔軟な廃棄物管理法の再廃液化工程と「SELECT プロセス」の MA 抽出工程は、50 年後に建設される実用 MA 分離プラントを将来設計する際に最適化をすれば良い一方、柔軟な廃 棄物管理法の近々の導入採否判断に資するためには、将来の実用 MA 分離プラント設計が確実に 成立することを示す必要があり、また、柔軟な廃棄物管理法において最初に作製する顆粒体の仕 様について再廃液化の適否の観点からも決定する必要がある。これらの観点から、本事業で取り 組まなければならない課題を、再廃液化の観点から顆粒体の製造条件を確定すること、および顆 粒体の再廃液化とそれを MA 分離プロセスに供給する概念の成立性を確認することとした。なお、 1000 年後の潜在的有害度の大幅低減の観点から 95 %以上の目標値を持って回収すべき MA は Am のみであるが、Amの1~2桁低い1000年後潜在的有害度を有するCmも回収を確認すべき対象と 考える。また、Np は潜在的有害度の観点からはさらに小さいため回収すべき対象と考えないが、 溶解挙動や分離挙動の観点でAmやCmと異なる挙動を取ることが考えられるため、挙動を確認し ておくこととする。また、顆粒体再溶解時の条件最適化や、装置設計に必要な基盤データの取得 は、分離変換技術の研究開発の進展に合わせて実施することとし本事業の範囲外とした。

4年間の試験は次のように進めた。まず、MAを含まない模擬か焼体を作製し、そのか焼温度と、 溶解条件(硝酸濃度、温度(加圧による高温条件を含む。)、撹拌条件、溶解時間)により、再廃液 化に適したか焼条件と溶解パラメータを決定した。次に、NFDのロータリーキルンによって作 製した模擬顆粒体でその有効性を確認した。また、顆粒体については、顆粒体のままの状態と加 熱プレスを行った高密度顆粒体(プレス体)の溶解挙動を比較評価した。さらに、MA トレーサー を添加した模擬か焼体を作製して再廃液化試験を実施し、NFDのロータリーキルンによって作 製した模擬顆粒体と MA を添加したか焼体の再溶解特性を比較評価した。最後に、MA を添加した か焼体の再廃液化試験で得られた液を用いて溶媒抽出試験を実施した。すなわち、MA を添加し た試料をロータリーキルンに導入することは実験設備上の制約から行わないが、MA トレーサー を添加した RI か焼体の試験とともに、コールドのか焼体およびNFDにおいてロータリーキル ンを用いて作製したコールドの顆粒体について併せて再廃液化試験を実施し、これらの結果を比 較評価することで、MA を含有する顆粒体の MA 移行を検討した。溶媒抽出試験は、MA 分離工程の 最初の工程である MA・RE 一括回収工程における条件を模擬して実施し、これまでに行われてき た MA 分離技術の開発で得られたデータと比較して、MA について同等の抽出性能が得られている ことを確認した。

3.3.2.2 顆粒体再廃液化試験パラメータの検討 【H28-H30】

(1) か焼体作製および再廃液化条件

MA を含まない模擬か焼体を作製し、そのか焼温度と溶解条件(硝酸濃度、温度、撹拌条件、溶 解時間)により、再廃液化に適したか焼条件と溶解パラメータを決定した。か焼体を作製する模 擬廃液の組成は、再処理工場において高レベル廃液貯槽に保管される高レベル廃液を模擬し、表 3.3.2-1 に示した組成とした。模擬か焼体は、か焼温度を 300,600,900 ℃の3 種類とし、模擬廃 液を所定の温度にて 120 分間保持して作製した。再廃液化のための再溶解試験では、模擬か焼体 を乳鉢にて粉砕した後、3 M 硝酸加熱攪拌溶解、3 M 硝酸もしくは 13.14 M 硝酸加圧溶解させ た。3 M 硝酸加熱攪拌溶解では、ビーカーにか焼体を分取して 3 M 硝酸を加え、加熱攪拌溶解 を行った。沸騰条件で溶解時間は 12 時間とした。3 M および 13.14 M 硝酸加圧溶解では、テフ ロン容器にか焼体を分取し、3 M 硝酸または 13.14 M 硝酸を加えて密封し、SUS ジャケットに入 れて 180 ℃で 24 時間保持した。溶解後フィルターろ過を行い、ICP-MS および ICP-AES を用いて 金属イオン濃度の測定を行った。

図 3.3.2-1 に再溶解液への移行率を示した。Na と Ba はすべての条件で完全に溶解しているた め、グラフから省略した。Te をはじめとする複数の元素が、残渣となることが明らかとなった。 また、か焼温度の違いにより、各元素の残渣への移行割合が異なり、特に希土類元素は高いか焼 温度条件では、残渣への移行率が上昇した。今回測定したほとんどすべての金属元素が 300 ℃ では硝酸塩として存在するのに対して、900 ℃のか焼温度下ではほぼ酸化物を形成しているため 溶解量が減少し、残渣へ移行することが示された。白金族元素は高硝酸濃度、Te は低硝酸濃度 で溶解する溶解する傾向を示すが、これらの元素は残渣となっても MA の移行率への影響さえな ければ問題ないと考えられる。したがって、顆粒体の再溶解の観点からは、900 ℃のか焼温度で 作製する顆粒体は残渣が多くなるため MA 回収率に懸念があるが、か焼温度が低いほど残渣が減 少し好ましい結果となった。この知見を踏まえ、顆粒体の製造性や貯蔵性などを4.1節にて総合 的に勘案した結果、顆粒体のか焼温度は 600 ℃と設定したが、600 ℃のか焼温度の顆粒体の場 合、高硝酸濃度にて再廃液化することが適当と判断される。溶解時の加圧による効果は、実用プ ラントにおける工学規模の溶解槽の設計の問題を考慮すると、導入するほどのメリットが認めら れないため、以降の試験では加圧操作は行わないこととした。

(2) ロータリーキルンによって作製した顆粒体の再廃液化

次に、NFDにおいてロータリーキルンで 600 ℃の条件で作製された顆粒体を使用し、90 ℃ ~95 ℃の硝酸中に撹拌条件で24時間保持して再廃液化試験を行った。硝酸濃度は、3.0M, 6.0M, 13.1M とした。前項で述べた通り、実際の工程を想定して常圧での溶解操作とした。再廃液化した再溶解液と残渣の分析の結果を図 3.3.2-2 に示した。前項の結果と比べ、特に Te および白金 族元素に溶解しやすい傾向が見られる。MA と Pu を模擬している Ce および希土類元素に着目すると、Ce は 3.0M 硝酸への溶解では 70 % 程度が不溶解残渣へ移行するが、高酸濃度では移行率 が下がる傾向が見られ、13.1 M 硝酸ではほとんど溶解した。また、3.0 M 硝酸への溶解では Pr が 40~50 % 程度残るが、13.1 M 硝酸では希土類元素はほとんど完全に溶解した。

次に、この顆粒体を加熱プレスにて低充填(充填率 78 %)および高充填(充填率 94 %)の高密 度顆粒体として再溶解試験を実施した。顆粒体の貯蔵形態として顆粒体を高密度化することも検 討していることから、高密度顆粒体の再溶解の適否にも着目した。特に、溶解に要する時間が問題となると予想されることから、再廃液化試験時の液相の金属イオン濃度変化データを取得した。 条件は、上記で最も良好な溶解挙動を示した硝酸濃度 13.1Mにて実施した。結果を図 3.3.2-3 に示した。主要成分である Na は速やかに溶解し、高充填の高密度顆粒体であっても 60 分でほぼ完全に溶解した。他の元素は、異なった挙動を示し、高充填の高密度顆粒体の Ba が最も溶解が遅い傾向を示したが、試験開始 42 時間後にはほぼ完全に溶解が完了した。したがって、溶解に要する時間はやや違うものの実用的な時間範囲にあり、また、貯蔵形態が顆粒体の場合も高密度顆粒体の場合も溶解の到達点は同じであり、再廃液化に影響はないと言えると確認した。

以上より、本事業における再廃液化条件は「硝酸濃度 13.1M、90 ℃、撹拌、42 時間保持」と して、以降の試験を実施した。

(3) MA を添加したか焼体の再溶解特性

顆粒体の作製に使用した模擬廃液に MA のトレーサーを添加してか焼体を作製し、再廃液化試験を実施した。試験条件は前述の再廃液化条件の通りとした。その結果、再溶解液と不溶解残渣への移行割合は、各元素とも顆粒体と同様な結果となった。また添加した MA トレーサーの再溶解液への移行割合は、²³⁷Np が 92 %、²⁴¹Am が 97 %、²⁴⁴Cm が 92 %であった。²⁴¹Am について 95 % 以上回収できているため、MA の回収率としては十分な値が得られている。

3.3.2.3 顆粒体再廃液化および MA 分離性評価【R1】

柔軟な廃棄物管理法が対象としている高レベル廃液は、現行再処理工場の高レベル廃液貯槽で 貯留される濃縮高レベル廃液であり、「SELECT プロセス」の MA 分離工程の供給液である再処理 後の抽残液とは組成が異なる。さらに柔軟な廃棄物管理法によって顆粒体化、再溶解を経た再溶 解液が MA 分離工程に供給されることから、この再溶解液を MA 分離工程に供給可能であることを 確認することは、柔軟な廃棄物管理法の適用性を評価するに当たり重要である。平成 30 年度ま でに得られた知見を基に、コールドのか焼体、および MA トレーサーを添加した RI か焼体を作製 し、NFDにおいて作製された顆粒体と併せて再廃液化試験を実施した。さらに、MA トレーサ ーを添加した RI か焼体の溶解液を用いて溶媒抽出試験を実施した。これらによって、廃棄物顆 粒体の再廃液化および MA 分離性を評価し、柔軟な廃棄物管理方法の適用性を評価した。

(1) か焼体作製

模擬廃液をアルミナるつぼに入れ、ドライエア雰囲気とした電気炉にてか焼を行った。まず、 試料の水分を除くため 150 ℃で 120 分間加熱し、その後 600 ℃で 120 分間加熱した。顆粒体は 湿潤空気に長く触れさせずにキャニスタに封入することとしているため[17]、放冷後はデシケー ター内で保管した。か焼体は乳鉢にて粉末化した。RI か焼体は、²³⁷Np、²⁴¹Am、²⁴⁴Cm の RI トレー サーを各 1MBq 添加した RI 模擬廃液を用いて、前述と同様の手順で作製した。

(2) 再廃液化

セパラブルフラスコに上記のか焼体、RI か焼体試料、およびNFDにおいて作製された顆粒 体を分取し、13.1Mの硝酸を加えた。ホットスターラを用いて液温が 93±3 ℃、42 時間加熱した。 放冷後、ろ過を行い再溶解液と不溶解残渣を得た。再溶解液中の金属元素濃度の分析は、ICP-MS および ICP-AES で行った。RI か焼体の再溶解液中の非放射性金属元素の濃度測定はグローブボ ックス対応型 ICP-AES を使用した。RI の定量分析はα線およびγ線の半導体検出器を使用した。

(3) RI 溶媒抽出分離

前項で得られた RI か焼体再溶解液の酸濃度を約 3 M に調製し、水相として用いた。有機相は ノルマルドデカン (2-エチル-1-ヘキサノールを 20 %添加) で 0.1M に希釈した TDdDGA を用い た。バイアル瓶に等量の水相と有機相を入れて 3 分間振とうして RI 溶媒抽出分離を行った。5 分間静置し分相を目視で確認してから各相を分取した。これらの手順で得られた抽出後有機相と 抽出後水相をα線測定装置およびγ線測定装置で放射能測定を行った。

(4) 結果

再廃液化試験における不溶解残渣への金属元素の移行率を図3.3.2-4 に示した。これまでに実施した試験と同様の傾向を示し、RI 添加、か焼体、顆粒体ともほぼ同じ結果となったことから、 顆粒体における MA の再廃液化時の挙動は、RI か焼体のデータによって評価可能と判断した。Mo および Te の不溶解残渣への移行率は他の元素よりも高いが、希土類元素の不溶解残渣への移行 率はいずれも3%未満であり、不溶解残渣への移行はほとんど見られなかった。²³⁷Np、²⁴¹Am お よび²⁴⁴Cm の不溶解残渣への移行率はそれぞれ0.7%、0.6%および0.5%であり、本試験で用 いた手法によって99%以上の MA を再溶解液側に回収できることを確認した。また、Np を模擬 した Ce、および、Am と Cm を模擬した Nd、Eu は、これらの移行率のデータにより、良好に模擬 できていると評価できる。物質収支は、Ru 以外の元素については矛盾はなく、本試験における 試料の取り扱い方法並びに不溶解残渣および再廃液の分析方法が概ね妥当であったことを示して いる。Ru は再廃液化試験時のガラス容器上部に付着していることが確認されており、再廃液化 時にも Ru のトラップが必要となることがわかった。

RI か焼体の再溶解液を用いた溶媒抽出試験による各 RI の分配比を図 3.3.2-5 に示した。柔軟 な廃棄物管理法の再溶解液と、開発の進められている「SELECT プロセス」で想定されている硝 酸溶液の差によって、「SELECT プロセス」に別の開発課題を課さないことが重要であるが、得 られた分配比は「SELECT プロセス」の MA 分離工程の供給液である再処理後の抽残液の処理のた めに取得されたデータ[15]と大きな差はなかった。すなわち、洗浄溶媒を含む現行再処理廃液に 大量に含まれる Na の影響も小さく、また高硝酸濃度の再溶解液を希釈することによる MA 濃度の 低下に対しても、分配比の変動は小さいことを確認し、柔軟な廃棄物管理法と別途開発の進めら れている「SELECT プロセス」の接続性を確認した。²⁴¹Am および ²⁴⁴Cm の分配比はそれぞれ約 450 および 830 であり、1回の抽出操作で 99 %以上を有機相に回収することに成功した。すなわち、本業務で目標とする MA の回収率である ²⁴¹Am について 95 %以上を十分に達成可能な値が得られ た。一方、²³⁷Np の分配比は 0.494 であり、1回の抽出操作での ²³⁷Np の回収率は約 33 %であった。Np の有機相への回収率を上げる必要がある場合には、多段抽出を行うことが考えられる。

3.3.2.4 本開発のまとめ

(1) 操作要領

高レベル廃液の顆粒体を再廃液化する操作要領は以下の通り。

- ・顆粒体を溶解槽に投入。13.1M 硝酸を供給し撹拌および加熱。
- ・93~95 ℃にて 42 時間保持後、放冷。
- ・ろ過あるいは遠心分離にて不溶解残渣と再溶解液に分離。
- ・再溶解液を硝酸濃度 3M に調整し、MA 分離プロセスに供給する。
- ・不溶解残渣は、放射線測定を行うことで含有放射性核種を評価し、ガラス固化。

(2) 分離施設内への設置について

分離変換技術を導入した将来の核燃料サイクルのために開発が進められている「SELECT プロ セス」の概略フローと、柔軟な廃棄物管理法の導入概念を図3.3.2-6に示した。柔軟な廃棄物管 理法のうち廃液顆粒化および保管は、現行再処理工場の高レベル廃液貯槽に接続されて設置され、 本節で示した再廃液化設備は、将来設計が行われる MA 分離プラントの一部として、その前処理 設備の形で設置される。再廃液化設備では、廃棄物顆粒体を受け入れ、硝酸溶解を行い MA 分離 プロセスに供給する。再廃液化設備の規模は、MA 分離プロセスの処理性能に合わせて設計され ることになる。廃液顆粒化および保管というプロセスを経るため、現行再処理工場の処理能力と は独立に考えることが可能であり、柔軟に分離変換サイクルの設計を行うことが可能となる。一 方、SELECT プロセスでは Np はモノアミド抽出剤による再処理工程において分離されるが、柔軟 な廃棄物管理を導入した概念では、現行再処理工場の高レベル廃液貯槽で貯留される高レベル廃 液を顆粒化して保管することから、Np は再廃液化工程にて再溶解液に移行して MA 分離工程に供 給される。Np は水相中の価数によって溶媒抽出時の挙動が異なるため、今後の検討が必要であ る。また、再廃液化における不溶解残渣については、MA を再溶解液に十分な割合で移行させ、 不溶解残渣に移行しなければ、不溶解残渣の存在自体は MA 回収率に影響しない。白金族や Te、 Mo、Zr など不溶解残渣に移行する元素は、MA 分離工程の溶媒抽出プロセスにおいて、沈殿やク ラッドの発生源となることが知られており、再廃液化工程において不溶解残渣として除去されて いることは、むしろ好ましいと考えられる。

(3) 結論

NFDにおいて作製したコールドの模擬顆粒体の溶解試験と、MA トレーサーを添加したか焼 体の作製と溶解試験を実施し、これらの溶解液からの溶媒抽出データを取得する試験によって、 高レベル廃液の顆粒体を再廃液化し、MA の 99 %以上の再溶解液への回収を実用的な手法・時間 にて行うことができることを確認するとともに、再溶解液は、別途開発する MA プロセスに対し て問題なく接続でき、環境負荷低減効果を発揮するために必要な高い MA 分離効率を実現できる ことを示した。またこれらの結果より、高レベル廃液の顆粒体再溶解の操作要領や分離施設内へ の設置方法などの概念工程を確立することができた。今後の課題として、酸濃度低減や溶解加速 等の再溶解条件および再溶解液の MA 分離工程への供給時の溶液調整等の最適化に関する基盤デ ータの取得を行うとともに、分離変換技術の研究開発の進展に応じて、顆粒体再溶解に必要とな る溶解槽の処理速度や許容される保守頻度の観点から再廃液化プロセスの工学的な検討と、MA 分離設備全体としての最適化を行うことが必要と考えられる。

	濃度 [mo1 / L]		濃度 [mol / L]
Na	0. 583	Te	0.007
Fe	0.067	Cs	0.035
Sr	0. 013	Ba	0.017
Y	0.010	La	0.021
Zr	0.055	Ce	0.053
Mo	0.051	Nd	0.066
Ru	0. 039	Sm	0.012
Rh	0.007	Eu	0.002
Pd	0. 023		







図 3.3.2-2 NFDにおいてロータリーキルンを用いて作製された顆粒体の再廃液化結果 再溶解液および不溶解残渣への各元素の移行率(重量%)




図 3.3.2-3 NFDにおいてロータリーキルンを用いて作製された顆粒体の低密度プレス体 および高密度プレス体の再溶解時の液相中金属イオン濃度変化(g/L)



図 3.3.2-4 再廃液化試験における各元素の不溶解残渣への移行率(%)



図 3.3.2-5 RI 溶媒抽出分離後の²³⁷Np、²⁴¹Am および²⁴⁴Cm の分配比



図 3.3.2-6 SELECT プロセスの概略フローと柔軟な廃棄物管理法の設置概念

3.4 廃棄物顆粒体貯蔵技術開発【H28-R1】

3.4.1 廃棄物貯蔵設備設計(再委託先:日立GE) 【H28-R1】

(1) 4 年間の計画

安全で経済的な廃棄物貯蔵設備を設計するために、自然循環空気冷却方式の廃棄物顆粒体貯蔵 設備の概念設計を行い詳細熱伝導解析により熱的成立性を確認した。また、確定した貯蔵設備仕 様を基に貯蔵設備減容効果を評価した。平成 28 年度は顆粒体貯蔵設備の概念設計を行い、平成 29 年度は前年度結果を基に貯蔵設備減容効果を評価した。平成 30 年度は模擬廃棄物顆粒体基礎 特性試験で得られた物性値を基に詳細熱伝導解析のための予備的解析を行い、令和元年度は詳細 熱伝導解析により貯蔵設備の熱的成立性を確認し、確定した貯蔵設備仕様を基に貯蔵設備減容効 果を評価した。

(2) 廃棄物顆粒体貯蔵設備の概念設計【H28】

廃棄物顆粒体貯蔵設備の仕様を検討するための簡易熱伝導解析手法を設定し、キャニスタ径お よび顆粒体充填率をパラメータとした簡易熱伝導解析により、貯蔵設備の制約条件(冷却空気温 度<65 ℃、顆粒体最高温度<275 ℃)を満たす貯蔵設備仕様を設定した。冷却空気温度はコン クリートの温度制限値を基に設定し、顆粒体最高温度は硝酸ナトリウムの融点を基に設定した。 解析の結果、顆粒体最高温度を 275 ℃以下に保ちつつ通風管当たりの貯蔵量を大きくできるの はキャニスタ径 12.4cm、充填率 90 %の場合であることがわかった。[18]

(3) 廃棄物貯蔵設備の減容効果評価【H29】

廃棄物貯蔵設備の設備容積を求め、従来管理法と比較した際の減容効果および経済性効果を評価した。具体的には、顆粒体充填率等をパラメータとした簡易熱伝導解析を行い顆粒体貯蔵設備の所要容積を評価し、六ヶ所再処理ガラス固化体貯蔵設備のコストデータを基に貯蔵設備減容時の経済性効果を評価した。その結果、柔軟な廃棄物管理法(以下、本項では柔軟管理法と略す。)での設備容積は、従来管理法と比べて約 38~52 %(顆粒体充填率:50~90 %、キャニスタ内充填ガス:空気)低減することがわかり、貯蔵コストは約 17~46 %(顆粒体充填率:50~90 %、顆粒化開始までの期間:10 年、地層処分前貯蔵期間(Storage before Disposal: SD):32年)低減することがわかった。[19]

(4) 詳細熱伝導解析のための予備的解析【H30】

模擬廃棄物顆粒体基礎特性試験で得られた熱伝導率を基に、貯蔵施設の詳細熱伝導解析のため の予備的解析を実施した(詳細熱伝導解析とは汎用 3 次元熱流動解析コード STAR-CCM+を用いた 解析を指す)。予備的解析の1 つとして、これまで使用していた簡易熱伝導解析手法の精度を評 価した。具体的には、簡易熱伝導解析手法と STAR-CCM+を用いて、同一のインプット条件にて顆 粒体貯蔵設備解析を実施し、両者の解析結果を比較した。その結果、簡易熱伝導解析手法は、 STAR-CCM+より冷却空気最高温度で最大約 1 ℃、顆粒体最高温度で最大約 3 ℃高い値を示し、十 分な精度を有するとともにやや保守的な評価であることが明らかになった。[20]

(5) 顆粒体貯蔵設備の詳細熱伝導解析および貯蔵設備減容効果評価【R1】

① 模擬廃棄物顆粒体試験結果に基づく顆粒体貯蔵設備仕様の検討

模擬廃棄物顆粒体試験結果を含め、これまでの試験結果および解析結果を基に、顆粒体貯蔵設 備仕様を検討した。

i)顆粒体貯蔵設備設計条件

基本的な条件はこれまでの評価と同様であり、現行のガラス固化体貯蔵設備を最大限活用する ことを目標に、熱的制約条件(冷却空気温度<65 ℃、顆粒体最高温度<260 ℃)を満足する仕 様とした。顆粒体最高温度は、平成 30 年度に実施した模擬廃棄物顆粒体基礎特性試験を踏まえ て 260 ℃に設定した。また、通風管当たりの収納管本数は 7 本とした。顆粒体の充填率はか焼 温度 600 ℃の模擬廃棄物顆粒体の測定値である 44 %とし、真密度は 3.5 g/cm³とした。なお、 顆粒体熱伝導率はか焼温度 600 ℃における測定結果を基に設定した。

ii) キャニスタ肉厚

キャニスタの肉厚は、管材に対するバローの式に基づき、キャニスタおよび収納管の肉厚と径 の比がガラス固化体の場合と同等以上となるように設定し、結果として 2mm とした。しかし、実 際には腐食による減肉や内部ガス圧に対する引張強度やキャニスタ落下時の衝撃力に対する耐力 を考慮する必要がある。そこで、設定したキャニスタ肉厚の妥当性評価を行った。

キャニスタ内部ガス圧に対するキャニスタ必要肉厚 t は、腐食減肉を考慮した圧力容器胴体肉 厚設計等における圧力バランス式により評価した[21]。t:キャニスタ肉厚、d:キャニスタ内径、 P:内圧、σ:引張強度、f:安全率、δ:腐食減肉量である。

キャニスタ肉厚 t = $\frac{dPf}{2\sigma} + \delta$

内部ガス圧としては顆粒体中の含有水が放射線分解によりすべて水素化した場合 15atm になる と評価されており、これによる必要肉厚は 0.63mm と算定される。一方、キャニスタ落下等によ る衝撃力は重量に比例するため、キャニスタの重量に対する肉厚比がガラス固化体の場合と同等 以上となるように強度必要肉厚を確保する必要がある。キャニスタの落下による衝撃力をガラス 固化体の場合と同等以上とするには 0.35mm 以上の肉厚が必要である。また、キャニスタ材の腐 食減肉量は、腐食試験結果から貯蔵期間 50 年間で 53 µm 程度と評価されている。以上より、50 年間の内圧上昇、落下衝撃力および腐食減肉を考慮した必要最小肉厚は 0.68mm となり、設計仕 様値 2mm は妥当であることを確認した。以上の検討結果を表 3.4.1-1 に示す。

iii) 顆粒体貯蔵設備仕様の検討結果

上記の設計条件を基に実施した簡易熱伝導解析の結果を図 3.4.1-1 に示す。同図より、キャニ スタ内径は冷却空気制限温度が律速となり 14.6cm となった。この時の冷却空気温度は 64.9 ℃、 顆粒体最高温度は 225.5 ℃であった。以上の検討を基に決定した顆粒体貯蔵設備仕様を表 3.4.1-2 に示すとともに、その仕様を基に算出した通風管構成要素割合を図 3.4.1-2 に示す。同 図より顆粒体貯蔵はガラス材不要のため廃棄物貯蔵量を増大でき、かつキャニスタ径・本数の設 計自由度が大きいため、流路面積および伝熱面積を拡大し冷却空気温度・顆粒体最高温度制限を 満たしつつ廃棄物貯蔵量を約 1.95 倍に増加でき、貯蔵コストの大幅な削減が可能であることが

わかった。

② 顆粒体貯蔵設備の詳細熱伝導解析

平成 30 年度に使用した汎用熱流動解析コード STAR-CCM+を用いて、顆粒体貯蔵設備の詳細熱 伝導解析を行った。具体的には、ガラス固化体貯蔵棟に顆粒体を貯蔵するための再利用棟の仕様 選定と顆粒体貯蔵設備の熱的健全性確認の2 つを目的とする解析を実施した。前者で述べた「再 利用棟」とは、ガラス固化体が所定の期間貯蔵され搬出された後のガラス固化体貯蔵用の収納管 内に顆粒体を貯蔵することを想定したものである(現行の六ヶ所再処理設備のコスト見積ベース [22]ではガラス固化体は約 32 年後に搬出されることになっている。)。なお、解析手法・条件 については、平成 30 年度[20]と同様に、先行解析事例[4]に示されたものを踏襲した。

i) 解析ケースおよび形状モデル

解析ケース一覧を表 3.4.1-3、貯蔵設備の寸法仕様を表 3.4.1-4 に示す。表 3.4.1-4 において、 再利用設備の廃棄物充填率は、模擬廃棄物顆粒体試験結果が出る前の想定値を使用しており、再 利用設備の貯蔵容積は保守的な評価となる。また、解析形状モデル概要を図 3.4.1-3 に示す。解 析では通風管 1 本の 1/2 をモデル化した単管モデルを用いた。

再利用棟については、既存のガラス固化体貯蔵棟の収納管内に顆粒体用のキャニスタを装填す るものとした。再利用棟の解析モデルを図 3.4.1-4 に示す。再利用棟の顆粒体用キャニスタとし ては 2 種類を検討した。キャニスタ A では内筒管の内径をパラメータとし、顆粒体貯蔵時の温度 制限(顆粒体最高温度<260 ℃、冷却空気温度<65 ℃)を満足し、かつ顆粒体の貯蔵容積が最 大となる内筒管内径の最小値を評価した。一方、キャニスタ B では、内筒管の内径および内筒管 と外筒管を結ぶ伝熱板の厚さをパラメータとし、3 種類の伝熱板厚さについて、顆粒体貯蔵時の 温度制限を満足し、かつ顆粒体の貯蔵容積が最大となる内筒管内径の最大値を評価した。

顆粒体貯蔵専用設備については、通風管の中に7本の収納管を配置する方式とし、収納管同士の間隔を一定に保つためのスペーサを配置した。スペーサの軸方向間隔はキャニスタ高さと同一とし、キャニスタ中央部に比べて低温となるキャニスタ端部位置にスペーサを設置した。収納管およびキャニスタ等の寸法仕様は、これまでの知見に基づき顆粒体の貯蔵容積を最大化するように設定されたものである。専用設備の解析モデルを図3.4.1-5に示す。

ii)解析結果

再利用棟の解析結果の一例を図 3.4.1-6、解析結果のまとめを表 3.4.1-5 に示す。再利用棟の 場合、表 3.4.1-5 に示すように冷却空気温度はいずれのケースでも制限温度を十分に下回るため、 顆粒体最高温度の制限温度によりキャニスタ寸法を決定した。キャニスタ A ではキャニスタ外筒 管と内筒管に挟まれた空間に顆粒体を充填する構造になっており、内筒管の径が細いほど貯蔵容 積が増える。解析の結果、制限値の 260 ℃以下を満足するキャニスタ内筒管内径の下限値は 304mm と評価され、この時のキャニスタ 1 体当たりの顆粒体の貯蔵容積(上限値)は 68L となっ た。

一方、キャニスタ B ではキャニスタ内筒管の内部に顆粒体を充填する構造になっており、内筒 管の径が太いほど貯蔵容積が増える。解析の結果、厚さ 5mm の伝熱板を用いた場合の内筒管内径 の上限値は 162mm、15mm の場合は 180mm、25mm の場合は 185mm となった。これらの結果から各々

3.4.1-3

の顆粒体貯蔵容積の上限は、22L(厚さ 5mm)、28L(厚さ 15mm)、29L(厚さ 25mm)となった。 したがって、顆粒体の貯蔵容積の点でキャニスタAが有利であると評価された。

顆粒体貯蔵の専用設備の解析結果を図 3.4.1-7 に示す。顆粒体の最高温度は 221 ℃、冷却空 気温度は 64.7 ℃であり、どちらも制限値を満足した。したがって、顆粒体貯蔵専用設備の熱的 健全性を確認することができ、成立性を確認することができた。

③ 柔軟管理法適用時の廃棄物貯蔵容積評価および経済性評価

上記で設定した設備仕様にて、柔軟管理法適用時の廃棄物貯蔵設備の容積評価および経済性評 価を行った。

i) 廃棄物貯蔵容積評価条件

評価時のパラメータとして、SDは 32年、40年、顆粒化開始までの期間は 10年、0年とし、 両パラメータの組み合わせによる4種類のケースについて評価した(ケース1:SD32年、顆粒化 開始までの期間 10 年、ケース 2 : SD32 年、顆粒化開始までの期間 0 年、ケース 3 : SD40 年、顆 粒化開始までの期間 10 年、ケース 4 : SD40 年、顆粒化開始までの期間 0 年)。ケース 1 は本評 価の基本ケースであり、SD は六ヶ所再処理設備のガラス固化体貯蔵設備コストデータ[22]を基 に 32 年と設定し、顆粒化開始までの期間は顆粒化技術の実用化までの開発目標期間を基に 10 年 (ロータリーキルンによる確証試験4年、実機実証3年、許認可・工事3年)と設定した。ケー ス 2~4 は、ケース1との比較評価として、我国の再処理を巡る今後の不確実性を考慮し SD およ び顆粒化開始までの期間を変動させたものであり、SD40年は六ケ所再処理工場から発生するガ ラス固化体を再処理期間終了まですべて貯蔵することを想定したもの、顆粒化開始までの期間 0 年は六ヶ所再処理工場の運開が遅延する可能性を想定し設定したものである。また、ガラス固化 体貯蔵設備については、H29 年度[19]と同様に六ヶ所再処理設備のガラス固化体貯蔵設備コスト データおよび設備構成概念[22] (図 3.4.1-8) をベースとし、再処理設備運開後から 32 年経過 した後に地層処分を開始した場合は第1棟を再利用することとした。なお、ケース1の再利用棟 の顆粒体貯蔵にはキャニスタ A を採用し、ケース 1 およびケース 2 においては既設の再利用棟を 最大限利用して新設する第3棟の容積最小化を図った。

ii) 廃棄物貯蔵容積評価結果

ケース 1、2 の評価結果およびケース 3、4 の評価結果を、それぞれ表 3.4.1-6 および表 3.4.1-7 に示す。これらの表では、廃棄物貯蔵に必要な通風管本数を示している。通風管本数は 六ヶ所再処理から発生するガラス固化体数 40000 本に相当する総廃棄物量について、キャニスタ 内廃棄物充填率を基に各ケースの処理処分条件に応じて決まる必要貯蔵容積として評価した。な お、通風管はガラス固化体1体の廃棄物重量を 400kg で通風管1本当たり9段積装荷するとし、 顆粒体の場合はキャニスタ7本配置で9段積装荷するものとした。ケース1の場合、顆粒化開始 前 10 年間に発生する高レベル廃棄物はガラス固化されるが、六ヶ所再処理設備運開当初の稼働 率 80 %を考慮すると 8000 体となり、第1棟の 889 本の通風管内に貯蔵される。再処理設備運 開 10 年目以降は顆粒体貯蔵用キャニスタが発生し、第2棟から順次装荷される。顆粒体貯蔵用 キャニスタはガラス固化体に比べ約 1.95 倍の高レベル廃棄物が充填可能なため、第2棟の 889 本の通風管内にはガラス固化体換算で 15632 体相当の廃棄物が貯蔵される。さらに、顆粒体貯蔵 用キャニスタは再処理開始後 32 年までに第 3 棟の通風管 496 本に装荷された時点で、第 1 棟の ガラス固化体が地層処分に供されるため、ガラス固化体取り出し後の第 1 棟が顆粒体の貯蔵に再 利用できる。しかし、再利用棟は貯蔵効率が高くないため、高レベル廃棄物量はガラス固化体換 算で 7648 体 (8000 体の約 96 %相当量) が収納される。以上の結果、ケース 1 の廃棄物貯蔵容 積(通風管所要本数) は従来管理法と比べて約 29 %の低減となった。同様の評価によりケース 2 の廃棄物貯蔵容積は約 49 %低減、ケース 3 で約 39 %低減、ケース 4 で約 49 %低減となった。 ここで、ケース 1 に比べケース 2 の低減率が大きくなったのは、早期の顆粒化開始により第 1 棟 およびその再利用において効率的な顆粒体貯蔵が可能となったためである。また、ケース 1 に比 ベケース 3 の低減率が大きくなったのは、地層処分の遅延により貯蔵効率の低い第 1 棟を再利用 しなくなったためである。ケース 2 とケース 4 の低減率が同じなのは、いずれの棟でも効率的な 顆粒体貯蔵が可能なためである。

iii) 経済性評価条件·方法

ガラス固化体貯蔵設備費は 7400 億円で建設等投資額、運転保守費、その他諸経費から成って いる[22]。廃棄物貯蔵設備の経済性評価は、建設費と保守管理費に分けコストは通風管本数に比 例するとして、通風管当たりのコスト単価を用いて算定した。なお、再利用設備は建設費をゼロ とし保守管理費のみが発生するものとした。

iv)経済性評価結果

ケース 1、2 の評価結果およびケース 3、4 の評価結果を、それぞれ表 3.4.1-8 および表 3.4.1-9 に示す。また、柔軟管理法の貯蔵コストを従来管理法の場合と比較したものを図 3.4.1-9 に示す。これらの結果よりケース 1 の貯蔵コストは 2502 億円低減し、従来管理法の貯蔵コス ト 7400 億円に対して約 34 %低減、ケース 2 の貯蔵コストは 3388 億円低減して約 46 %低減と なった。また、ケース 3 の貯蔵コストは 3388 億円低減し、従来管理法の貯蔵コスト 8675 億円に 対して約 39 %低減、ケース 4 の貯蔵コストは 4235 億円低減して約 49 %低減となった。以上よ り、貯蔵コストの低減には顆粒化技術の早期導入が重要であることが明らかになった。また、廃 棄物地層処分の時期については不透明性があるが、地層処分の時期が再処理開始 32 年から遅延 した場合はより一層顆粒化貯蔵のコストメリットが顕著になることがわかった。

④ まとめ

模擬顆粒体試験結果(充填率、密度、熱伝導率等)を基に、解析モデルを用いて廃棄物顆粒体 貯蔵設備の概念設計および詳細熱伝導解析・評価を行い、熱的制限値を満足することを確認し、 熱的成立性と貯蔵容積を評価した。その結果、柔軟管理法では貯蔵容積を大幅に削減でき、経済 性を大幅に向上できることがわかった。

(6) 4年間の成果まとめ

廃棄物顆粒体貯蔵設備については、詳細熱伝導解析の結果、表 3.4.1-2 に示す仕様にて貯蔵設備の熱的制限を満たしつつ最も効率的に貯蔵できることがわかり、通風管当たりの廃棄物重量を

3.4.1-5

ガラス固化体貯蔵設備と比べて約 1.95 倍増加できることがわかった。また、柔軟管理法におけ る貯蔵容積は従来管理法と比べ約 29~49 %減容できることがわかり、貯蔵コストについても約 34~49 %低減できることがわかった。以上の結果から、最適化した廃棄物顆粒体貯蔵設備仕様 の熱的成立性を確認した。また、顆粒体貯蔵による貯蔵容積減容効果を評価し、経済性に大きく 寄与することを確認した。

No	項目	単位	評価結果	備考
1	ትャニスタ内径 d	mm	146	顆粒体充填率44%の場合
2	キャニスタ内圧P	N/mm ²	1.5	含水率0.3%の水分がすべて放射線分 解により水素化⇒15気圧
3	引張強度 σ	N/mm ²	520	SUS304
4	安全率 f	_	3	静荷重の場合、鋳鉄4、鋼3
6	耐内圧肉厚 t ₁	mm	0.63	$t_1=d*P/2\sigma*f$
7	耐衝擊肉厚 t ₂	mm	0.35	t ₂ =5*(ρc/ρg)*(146/420) ² ρg=2.67, ρc=3.5*0.44=1.54
8	腐食減肉δ	mm	0.053	50年間の腐食減肉 53µm
9	最終肉厚 t	mm	0.68	(耐内圧vs耐衝撃)最大厚+腐食量

表 3.4.1-1 顆粒体貯蔵キャニスタ肉厚妥当性評価結果

表3.4.1-2 廃棄物顆粒体貯蔵設備仕様

No.	項目	単位	ガラス固化体 貯蔵設備	顆粒体 貯蔵設備(案)	備考
1	廃棄物充填率	%	25	44	42 mm 15 mm
2	キャニスタ本数	本	1	7	43 cm 13 cm
3	キャニスタ内径	cm	42.0	14.6	
4	キャニスタ肉厚	cm	0.5	0.2	л ћ 1
5	キャニスタ外径	cm	43.0	15.0	こう キ 顕 え き 類
6	キャニスタ内高	cm	123	123	108 01 108 02 100 02 100 00 00 00 00 00 000 0
7	充填高さ	cm	108.3	108.3	
8	充填物比重	g∕ cm³	2.67	3.5	
9	収納管内径	cm	46.0	15.4	
10	収納管肉厚	cm	1.0	0.3	顆粒体 収納管
11	通風管内径	cm	58.0	58.0	\$r=79
12	冷却空気温度	°C	<65	64.9	
13	顆粒体最高温度	°C	<500	225.5	通風管
14	通風管当たりの廃棄物重量	kg	901	1759	□
15	同上相対値	_	1.0	1.95	

				収納管内の	キャニスタの寸	法パラメータ	
解析ケー	ース	解析体系	収納管数	キャニスタ 積上段数	内筒管内径 (mm)	伝熱板厚さ (mm)	備考
	A1				290	-	
ケース1 A2 A3 A4		単管	1	0	300	-	
		(再利用)	1	9	310	-	
					320	-	
	B1				100		
	В2			9	120	Б	
	В3				150	5	
	В4				180		
	В5				120	-	
ケース2	B6	単管(再利用)	1		150		
	В7				180	10	
	B8				200		
	В9				150		
	B10				180	25	
	B11				200		
ケース	3	単管 (専用)	7	9	_	_	

表 3.4.1-3 詳細熱伝導解析ケース一覧

表 3.4.1-4 月	貯蔵設備の構造寸法仕様
-------------	-------------

No	項目	単位	再利用設備	専用設備	備考
1	廃棄物充填率	%	40.3%	44.0%	
2	雰囲気ガス	_	空気	空気	
3	収納管本数	本	1	7	1通風管当たり
4	キャニスタ内径	cm	42.0 *1	14.6	
5	キャニスタ外径	cm	43.0 *1	15.0	
6	キャニスタ肉厚	cm	0.5 *1	0.2	
7	キャニスタ積段数	_	9	9	1収納管当たり
8	キャニスタ外高さ	cm	133.3	133.3	
9	キャニスタ内高	cm	122.7	122.7	
11	廃棄物充填高さ	cm	108.3	108.3	
12	間接空気厚(片側)	cm	0.5	0.2	
13	収納管内径	cm	44.0	15.4	
14	収納管外径	cm	46.0	16.0	
15	収納管肉厚	cm	1.0	0.3	
16	収納管ピッチ	cm	_	19.34	
17	通風管内径	cm	58.0	58.0	

注記) *1: 顆粒体貯蔵用の2重構造キャニスタの外筒管の寸法を示す。

	P	内筒管の寸	·法		顆粒体			冷却空気		
ケース	伝熱板 厚さ	内径	外径 *1	充填体積 *2	最高温度	許容温度	空気流量 *3	出口温度	許容温度	備考
	(mm)	(mm)	(mm)	(L)	°C	°C	kg∕s	°C	°C	
ケース1−A1	-	290	296.9	75.1	295.2		0.435	53.9		
ケース1−A2	_	300	307.1	69.8	267.2		0.426	52.3	05.0	+ 7 4 4
ケース1−A3	_	310	317.4	64.4	245.4	260.0	0.415	51.0	65.0	+7-23A
ケース1−A4	_	320	327.6	58.7	223.8		0.402	49.8		
∕τ−ス2−Β1	5	100	102.4	8.5	133.0		0.410	34.9		
∕τ−ス2−B2	5	120	122.9	12.2	171.0		0.220	36.4		
ケース2−B3	5	150	153.6	19.1	230.0		0.273	38.9		
ケース2−B4	5	180	184.3	27.6	302.0		0.309	41.6		
ケース2-B5	15	120	122.9	12.2	146.5		0.220	36.4		
ケース2−B6	15	150	153.6	19.1	200.0	260.0	0.260	38.9	65.0	キャニスタB
ケース2−B7	15	180	184.3	27.6	260.0		0.300	41.6		
ケース2−B8	15	200	204.8	34.0	303.0		0.320	43.5		
ケース2-B9	25	150	153.6	19.1	192.0		0.272	38.9		
ケ−ス2−B10	25	180	184.3	27.6	250.0		0.300	41.6		
ケ−ス2−B11	25	200	204.8	34.0	291.0		0.320	43.5		

表 3.4.1-5 再利用棟の解析結果

注記) *1: キャニスタ内筒管の外径は次式の肉厚を用いて算出した。(内筒管肉厚=0.0119x内筒管内径)

*2: キャニスタ1体当たりの顆粒体充填体積を示す。

*3: 通風管1本当たりの空気流量を示す。

	従来訇	管理法		柔 (顆粒化 地層処	軟管理派 :開始ま :分前貯	まケース での期 蔵期間	.1 間10年 32年)	柔軟管理法ケース2 (顆粒化開始までの期間0年 地層処分前貯蔵期間32年)			
項目	貯蔵物	固化体 換算量	貯蔵通 風管数	項目	貯蔵物	固化体 換算量	貯蔵通 風管数	項目	貯蔵物	固化体 換算量	貯蔵通 風管数
単位	—	体	本	単位	-	体	本	単位	—	体	本
第1棟	ガラス 固化体	8000	889	第1棟	ガラス 固化体	8000	889	第1棟	顆粒体	15632	889
第2棟	ガラス 固化体	8000	889	第2棟	顆粒体	15632	889	第2棟	顆粒体	15632	889
第3棟	ガラス 固化体	8000	889	第3棟	顆粒体	8720	496	第3棟	顆粒体	736	42
第4棟	ガラス 固化体	8000	889	第1棟再	顆粒体	7648	889	第1棟再	顆粒体	8000	455
第1棟再	ガラス 固化体	8000	889								
計		40000	4445	計		40000	3163	計		40000	2275
低減率			ベース	低減率			-29%	低減率			-49%

表3.4.1-6 廃棄物貯蔵時の通風管本数内訳 (ケース1、2)

	従来管	管理法		柔軟管理法ケース3 (顆粒化開始までの期間10年 地層処分前貯蔵期間40年)				柔軟管理法ケース4 (顆粒化開始までの期間0年 地層処分前貯蔵期間40年)			
項目	貯蔵物	固化体 換算量	貯蔵通 風管数	項目	貯蔵物	固化体 換算量	貯蔵通 風管数	項目	貯蔵物	固化体 換算量	貯蔵通 風管数
単位	—	体	本	単位	—	体	本	単位	—	体	本
第1棟	ガラス 固化体	8000	889	第1棟	ガラス 固化体	8000	889	第1棟	顆粒体	15632	889
第2棟	ガラス 固化体	8000	889	第2棟	顆粒体	15632	889	第2棟	顆粒体	15632	889
第3棟	ガラス 固化体	8000	889	第3棟	顆粒体	15632	889	第3棟	顆粒体	8736	497
第4棟	ガラス 固化体	8000	889	第4棟	顆粒体	736	42				
第5棟	ガラス 固化体	8000	889								
計		40000	4445	計		40000	2709	計		40000	2275
低減率			ベース	低減率			-39%	低減率			-49%

表 3.4.1-7 廃棄物貯蔵時の通風管本数内訳 (ケース 3、4)

表3.4.1-8 廃棄物顆粒体貯蔵コストの内訳 (ケース1、2)

	従来管	管理法		柔軟管理法ケース1 (顆粒化開始までの期間10年 地層処分前貯蔵期間32年)				柔軟管理法ケース2 (顆粒化開始までの期間0年 地層処分前貯蔵期間32年)			
項目	貯蔵物	建設/ 経費	運転保守	項目	貯蔵物	建設/ 経費	運転保守	項目	貯蔵物	建設/ 経費	運転保守
単位	_	億円	億円	単位	_	億円	億円	単位	_	億円	億円
第1棟	ガラス 固化体	1275	460	第1棟	ガラス 固化体	1275	460	第1棟	顆粒体	1275	460
第2棟	ガラス 固化体	1275	460	第2棟	顆粒体	1275	460	第2棟	顆粒体	1275	460
第3棟	ガラス 固化体	1275	460	第3棟	顆粒体	711	257	第3棟	顆粒体	60	22
第4棟	ガラス 固化体	1275	460	第1棟再	顆粒体	0	460	第1棟再	顆粒体	0	460
第1棟再	ガラス 固化体	0	460								
小計		5100	2300	小計		3261	1637	小計		2610	1402
合計			7400	合計			4898	合計			4012
低減額			ベース	低減額			-2502	低減額			-3388

	従来管	管理法	-	柔軟管理法ケース3 (顆粒化開始までの期間10年 地層処分前貯蔵期間40年)				柔軟管理法ケース4 (顆粒化開始までの期間0年 地層処分前貯蔵期間40年)			
項目	貯蔵物	建設/ 経費	運転保守	項目	貯蔵物	建設/ 経費	運転保守	項目	貯蔵物	建設/ 経費	運転保守
単位	—	億円	億円	単位	_	億円	億円	単位	_	億円	億円
第1棟	ガラス 固化体	1275	460	第1棟	ガラス 固化体	1275	460	第1棟	顆粒体	1275	460
第2棟	ガラス 固化体	1275	460	第2棟	顆粒体	1275	460	第2棟	顆粒体	1275	460
第3棟	ガラス 固化体	1275	460	第3棟	顆粒体	1275	460	第3棟	顆粒体	713	257
第4棟	ガラス 固化体	1275	460	第4棟	顆粒体	60	22				
第5棟	ガラス 固化体	1275	460								
小計		6375	2300	小計		3885	1402	小計		3263	1177
合計			8675	合計			5287	合計			4440
低減額			ベース	低減額			-3388	低減額			-4235

表 3.4.1-9 廃棄物顆粒体貯蔵コストの内訳 (ケース 3、4)



図 3.4.1-1 簡易熱伝導解析結果(キャニスタ内径と各温度の関係)



図 3.4.1-2 廃棄物顆粒体貯蔵の特徴と通風管内構成要素割合



図 3.4.1-3 解析形状モデルの概要



図 3.4.1-4 再利用棟の解析モデル



図 3.4.1-5 専用設備の解析モデル



図 3.4.1-6 再利用棟解析結果 (ケース A4、B3 の解析結果)







図 3.4.1-8 ガラス固化体貯蔵設備コストデータおよび貯蔵設備概念



図3.4.1-9 廃棄物顆粒体貯蔵コスト比較結果

3.4.2 貯蔵廃棄物の材料化学安定性評価(再委託先:大阪大学)【H28-R1】

3.4.2.1 概要と実験体系構築

廃棄物顆粒体の保管時において、顆粒体自体の変化を考えた場合、顆粒体は FP/MA の持つ放射 能・崩壊熱によって温度上昇のみならず放射線照射を受け、これによる化学変化が主要な課題と なる。放射線の線質は、長期的な時間領域(>300 年~2000 年)ではα線が支配的となるが、顆 粒体による保管期間は 50 年程度を想定しており、その時間領域においては、¹³⁷Cs や ⁹⁰Sr からの β線およびγ線、すなわち低 LET 線 (Linear Energy Transfer: LET) による放射線分解が支配 的と考えられる。顆粒体に含まれる成分(NaNO3、微量のH2O)から考えて、水素やNOx(NOおよ び NO₂)といったガスの発生が想定される。そこで、廃棄物顆粒体貯蔵時の放射線環境を模擬し た実験体系(照射体系および生成物質の分析体系)を構築した。γ線源として、大阪大学産業科 学研究所量子ビーム科学研究施設のコバルト照射線源(Rabbit11、2016 年 10 月 1 日時点で 167.7TBq)を用いた。コバルト線源に対して同心円状に照射試料を配置し長時間照射を行った。 吸収線量(Gy)の校正は、フリッケ線量計(1mM-FeSO₄ / 0.4mM-H₂SO₄ 水溶液)や CTA(三酢酸セル ロース)線量計を用いて行った。線量率は、線源から 10cm の距離で 2.3kGy/h (2017 年 3 月時 点)であったことから、距離・照射の調節によって数 kGy~サブ MGy の範囲の線量が実用的に得 られることを確認した。照射後の分析体系としては、PDD 検出器(Pulsed Discharge Detector)を有するガスクロマトグラフ装置(水素検出) (GL Science, GC4000 DSF-D2)およ び化学発光法に基づく微量濃度ガス分析装置(NOx 検出) (Horiba, APNA-370)を導入した。予 備試験を行った結果、いずれも ppb オーダーの高感度で水素および NOx を検出可能であることを 確認した。NOx 計測については、環境中に存在する NOx (0.005~0.03ppm の幅で日々変動) が測 定精度を大きく悪化させることがわかり、この影響を排除するため、グローブボックスを設置し て希ガス(アルゴン)に置換し、その内で計測を行えるよう改良した。

3.4.2.2 か焼体模擬物質へのγ線照射によるガス発生の線量依存性

構築した実験体系を用いて、廃棄物顆粒体模擬物質へのγ線照射を行い、想定される生成物質 (水素や NOx 等)の線量依存性を測定した。硝酸塩粉末(か焼なし)を用いて 40~430kGy の線 量範囲において水素および NOx 発生の線量依存性を測定した結果を図 3.4.2-1 および図 3.4.2-2 に示す。ばらつきはあるもののいずれのガスについてもおよそ線量に比例して発生量は増加した。 データがばらつく要因としては、試料の含水率を制御しておらず、粒径・表面積などの性状も均 ーではないことが可能性として考えられた。

高密度か焼体(か焼温度:600 $\[mathcal{C}$ 、900 $\[mathcal{C}$)について γ 線照射および NOx 分析を行った結果、 いずれの試料も NOx は検出されなかった。焼結によって表面積を小さくすることでガスの放出が 著しく抑制されることがわかった。粉末状か焼体(か焼温度:300 $\[mathcal{C}$ 、600 $\[mathcal{C}$ 、900 $\[mathcal{C}$)につい ても同様の γ 線照射・NOx 計測を行った結果、高密度か焼体よりも NOx 発生が見られたことから、 顆粒体の表面積が NOx 放出量に寄与することがわかった。ただし、か焼なしの粉末体よりは発生 が著しく抑制された。か焼によって水分が除去されることや化学結合の変化が影響を与える可能 性が考えられた。

3.4.2.3 か焼体模擬物質へのγ線照射によるガス発生の含水率依存性

廃棄物顆粒体模擬物質を用いてγ線照射を行い、生成物質(水素および NOx)の含水率依存性 を評価した。水素についての結果を表 3.4.2-1 に、NOx についての結果を表 3.4.2-2 にまとめる。 粉末状か焼体(か焼温度:300、600、900 ℃、水分:約0%、1%、3%)を用いてγ線照 射・ガス分析を行った結果、水素および NOx ともに、含水率が高いほど発生量が増加する傾向が 見られた。水素については、水分を排除することで検出限界以下に抑制されたが、水分を含ませ るとか焼温度に関わらず水素発生が検出された。NOx についても、水分を排除することで生成量 は抑制されたが、NOx 発生はか焼温度に最も依存し、か焼温度が 900 ℃では含水率が高い場合

(3%)でも発生は抑制された。システム成立性を考える上では、水素については可能な限り水 分を排除することが重要となる。NOx についても水分の含有によって発生が促進されるが、か焼 温度が低い場合(300℃)は顕著な影響があるものの、600℃以上であれば水分の有無によらず ガス発生量を十分低いレベルに抑えられるという見通しが得られた。

硝酸成分と吸着水の共存する環境において NOx 生成に至るパスがあることが示唆され、以下のような反応機構が考えられた。水溶液中では、水分解生成物の 1 つである水和電子(e⁻aq)が 硝酸イオンとの反応性が非常に高く、さらに水分子と逐次的に反応して NO₂ を生成することが知 られている。水分の存在によってわずかに含水した顆粒体においても局所的に以下の反応が進む ものと考えられる。

$$e_{aq}^{-} + NO_3^{-} \rightarrow NO_3^{2-}$$
 $k = 9.7 \times 10^9 (M^{-1} s^{-1})$

$$NO_3^{2-} + H_2O \rightarrow NO_2 + 2OH^ k = 7.2 \times 10^4 (M^{-1}s^{-1})$$

ただし NO₂ は水中においては以下の再結合反応も起こすため、一部は亜硝酸アニオンおよび硝酸イオンに戻ると考えられる。

 $NO_2 + NO_2 + H_2O \rightarrow NO_2^- + NO_3^- + 2H^+$ $k = 1.0 \times 10^8 (M^{-1}s^{-1})$

3.4.2.4 か焼体の化学安定性評価のまとめ【R1】

廃棄物顆粒体模擬物質への γ線照射を行って、含水率や焼成温度など、複合的な条件の変化に よるガス発生への影響を調べるとともに、これまで得られた結果を基に、長期にわたる分解反 応・分解量の予測および化学安定性評価のまとめを行い、顆粒体製造時の湿分管理条件に反映し た。

バイアル瓶に入れた試料(10 g)をアルゴン脱気した後、阪大産研・コバルト照射施設 (Rabbit11、167.7TBq)において 400 - 500kGy 程度のγ線照射を行った。照射後、瓶内の気相 部をガスクロマトグラフ(水素検出)、および化学発光法に基づく微量濃度ガス分析装置(NOx 検出)で測定した。実験条件および水素に関する評価結果を表 3.4.2-3 に、NOx に関する評価結 果を表 3.4.2-4 にまとめる。

まず、平成 30 年度に調べた含水率の条件は約 0→1 %と変化させたが、含水率の仕様につい て令和元年度に検討した結果、600 ℃でか焼した顆粒体について、表 3.2.2-4 に示すように仕様 値は 0.3 %、目標値は 0.1 %と設定した。そのため、さらに低い含水率に制御したか焼体を用 いて、より詳細な含水率依存性の確認を行うこととした。ガス発生量はこれまでよりさらに少な いことが予想されるため、照射試料の増加(5→10 g)や、ガスクロマトグラフでは注入量増加 (100→500 µl)を行う等の対処を施すことで、感度を向上させた。含水率が 1 桁小さい粉末状 か焼体(か焼温度:600 ℃、含水率:0.1 %、0.2 %)について、水素およびNOx 発生量を調べた。(図 3.4.2-1,-2)。水素については、検出限界に近いレベルで極微量検出された(含水率 0.1 %では 4.9×10⁻⁸mol、含水率 0.2 %では未検出。)。50 年後の発生量(試料 10g 当たり)について線形外挿により見積もると、含水率 0.1 %では 9.9×10⁻⁴mol となる。これは含有している水の物理量(2.8×10⁻⁴mol)よりも多く、含水率 0.1 %では水分がすべて水素に変換されると考える必要がある。一方、含水率が 1 %や 3 %の粉末状か焼体(か焼温度 600 ℃)では、水分自体が多いため水素の発生効率(G 値)自体は大きいものの、50 年後も約半分程度の水分が残留すると見積もられる。すなわち、水素の発生効率自体は含水率の減少に伴って大幅に小さくなるものの、含水率に比例して小さくなるわけではなく、顆粒体の仕様値である含水率 0.3 %程度の領域では、50 年間の保管期間中に 0.3 %程度の水分すべてが水素に変換されると考えておくのが安全側であると判断される。

同じ試料(か焼温度:600 ℃、含水率 0.1 %および 0.2 %)を用いて、NOx についても測定 を行った。いずれも検出され(3.9×10⁻¹¹および 9.8×10⁻¹¹ mol)、微量な含水によって NOx 発 生が増加する傾向も見られた。

次に顆粒状か焼体(600 ℃、脱水)について照射・ガス分析を行った。水素およびNOxの発生 量はかなり微量であった(水素;1.5×10⁻⁹ mol、NOx:1.2×10⁻¹¹ mol)。粉末よりも表面積が 小さくなるため発生量が低下することが予想されたが、粉末・顆粒いずれも発生量が最小検出限 界レベルであったため、表面積の変化に伴うガス放出効率の変化は明確とはならなかった。ただ、 いずれの性状でもガス放出効率は抑制されており、実用上の製造条件を厳しくするものではない ことがわかった。

3.1 において本業務で選定したか焼温度 600 Cの顆粒体よりも、か焼温度が若干低くなった顆 粒体については、放出量が増す方向(保守的でない方向)に変化する可能性がある。このため、か 焼温度を 500 Cとしたか焼体についての照射・ガス分析を行った。水素および NOx の発生量は かなり微量であった(水素:未検出、NOx: 2.9×10^{-11} mol)。これまでのか焼温度条件(300、 600、900 C)の結果から、300 Cと 600 Cでは顕著な差があったが、500 Cと 600 Cとの差は あまり見られないことから、か焼温度が 600 Cよりもやや低下した場合でも、600 Cでの試験 データから放出量を見積もることで保守性が崩れているとは言えないと考えられる。

以上の結果から、50年後のキャニスタ内圧を線形外挿により見積もった。細径キャニスタサ イズ仕様の値を用い(直径14.6cm、高さ108cm、プレナム部高さ14.4cm、充填密度44.2%)、 水素およびNOxの分圧を見積もった結果を、表3.4.2-1~表3.4.2-4の右欄に併せて示す。含水 率の少ない試料では、製造時に含まれる水分の全量が水素に変換されると考えると、含水率 0.1%で水素分圧は4.7atm程度であると試算される。水素発生は微量の水分にも敏感であり、 製造時に乾燥させた顆粒体を長時間湿潤空気に触れさせないように細径キャニスタに封入するこ とが重要となる。3.2.2.2(4)に示したように、顆粒体製造後に連続して細径キャニスタに封入 する場合、湿潤空気に触れる時間を保守的に考えると顆粒体の含水率は0.3wt%となる。この 仕様値から50年間貯蔵中の内圧上昇を見積もると最大15atm弱となるが、これはキャニスタの 機械的強度から見ると十分に低い値である。すなわち、顆粒体製造後に連続して細径キャニスタ に封入することで、製造時の湿分制御は特に必要ないことがわかった。また、貯蔵中の爆発防止 のため細径キャニスタ内の酸素を一定程度低減することも重要であり、キャニスタ封入位置には 窒素ガスをフローしておく等の対策が必要になる可能性がある。一方、NOx については、およそ 発生量が小さく、か焼温度が 600 ℃ であれば多少の水分を含んでいても NOx 分圧は 0.1 atm 以 下に抑制されると見積もられた。水分を含むと NOx 発生は促進されるものの、分圧上昇に対する 細径キャニスタ機械強度の観点から小さいと見積もられる。

以上から、NOx についてはか焼温度が 500 ℃ 以上であれば多少の水分を含んでも発生量は抑 制されたが、水素発生は微量の水分にも敏感であり、顆粒体製造時の水分管理が重要となること が示された。また、キャニスタ内の内圧上昇は水素・NOx を合わせて水分 0.1 %当たり 5 atm 以 下と見積もられることから、表 3.2.2-4 に示す含水率の仕様(0.3 %)を満たせば、表 3.4.1-5 に示す評価項目(キャニスタ内圧)を満たすことが確認できた。



図 3.4.2-1 硝酸塩粉末(か焼なし)へのγ線照射によるH2発生量の線量依存性



図 3.4.2-2 硝酸塩粉末(か焼なし) へのγ線照射による NOx 発生量の線量依存性

Sample				H ₂ (mol)		
	Moisture	ρ (g/ml)	Weight used (g)	Measured (540 kGy)	Extrapolated to 11 GGy	50 年後の分圧 (atm)
 Powder Calcine300 	0.0 %	3.3	3.3	<3E-9 (n. d.)	<7E-5 (n. d.)	<1.9
② Powder Calcine600	0.0 %	3.6	3.3	<3E-9 (n. d.)	<7E-5 (n. d.)	<1.9
③ Powder Calcine300	1.0 % (2.8mmol)	3.3	5.0	4.9E-8	1.0E-3	17
<pre>④ Powder Calcine600</pre>	1.0 % (2.8mmol)	3.6	5.0	6.8E-8	1.4E-3	23
⑤ Powder Calcine900	1.0 % (2.8mmol)	3.9	5.0	1.1E-7	2.3E-3	38
<pre>⑥ Powder Calcine300</pre>	3.0 % (8.3mmol)	3.3	5.0	3.1E-6	6.3E-2	138
<pre>⑦ Powder Calcine600</pre>	3.0 % (8.3mmol)	3.6	5.0	1.4E-7	2.8E-3	46
<pre>⑧ Powder Calcine900</pre>	3.0 % (8.3mmol)	3.9	5.0	3.2E-6	6.6E-2	138

表 3.4.2-1 粉末状模擬顆粒体からの水素発生量(mol)の含水率依存性(線量:540kGy)

Sample				NOx (mol))			50 年後の分圧 (atm)
	Moisture	ho (g/m1)	Weight used (g)	NO (550 kGy)	NO ₂ (550 kGy)	NOx (total) (550 kGy)	NOx (total) (11 GGy)	
 Powder Calcine300 	0 %	3.3	3. 3	2.3E-11	2.6E-10	2.8E-10	6.9E-6	0. 17
<pre>② Powder Calcine600</pre>	0 %	3.6	3. 3	-3.2E-11	1.6E-11	-1.6E-11	<4E-7 (n. d.)	<0.01
③ Powder Calcine300	1.0 %	3.3	5.0	4.7E-9	1.8E-8	2.3E-8	4.6E-4	7.8
<pre>④ Powder Calcine600</pre>	1.0 %	3.6	5.0	7.1E-11	1.4E-10	2.1E-10	4.2E-6	0.07
⑤ Powder Calcine900	1.0 %	3.9	5.0	4.8E-12 (n.d.)	5.9E-12 (n. d.)	<2E-11 (n. d.)	<5E-7 (n. d.)	<0.01
<pre>⑥ Powder Calcine300</pre>	3.0 %	3.3	5.0	3.7E-9	1.6E-8	1.9E-8	3.8E-4	6.4
⑦ Powder Calcine600	3.0 %	3.6	5.0	1. 4E-11 (n. d.)	4. 2E-12 (n. d.)	<2E-11 (n. d.)	<5E-7 (n. d.)	<0.01
<pre>⑧ Powder Calcine900</pre>	3.0 %	3.9	5.0	-4. 2E-12 (n. d.)	2.4E-12 (n.d.)	<2E-11 (n. d.)	<5E-7 (n. d.)	<0.01

表 3.4.2-2 粉末状模擬顆粒体からの NOx 発生量(mol)の含水率依存性(線量:445 kGy)

試料			H ₂ 発生の評価結果			
性状 か焼温度	含水率 (%) (mol)	Weight used (g)	H ₂ 発生量 (540 kGy)	H2発生量 (11 GGy)	G-values (molec./100eV)	50 年後の分圧 (atm)
① 粉末状 600 ℃	0.1 % (2.8E-4)	10.0	4.9E-8 (n.d.)	9.9E-4 (>all H ₂ 0)	8.7E-5	4.6 (all H ₂ 0)
② 粉末状 600 ℃	0.2 % (5.6E-4)	10.0	0. 0 (n. d.)	0.0 (>all H ₂ 0)	0.0 (n.d.)	9.2 (all H ₂ 0)
③ 顆粒 600 °C	0.0 %	10.0	1.5E-9	3.0E-5	2.7E-6	(0.25)
④ 粉末状 500 ℃	0.0 %	10.0	0. 0 (n. d.)	0. 0 (n. d.)	0. 0 (n. d.)	(0.0)

表 3.4.2-3 実験条件および水素発生の評価結果(令和元年度実施)

表 3.4.2-4 NOx 発生の評価結果	(令和元年度実施)
-----------------------	-----------

試料	Ν	TOx 発生量(mo (540 kGy)	1)	NOx 発生量	G-values	50 年後の分圧
	NO NO ₂		NOx	(11 GGy)	(molec./100eV)	(atm)
試料①	5.4E-11	-1.4E-11	3.9E-11	7.9E-7	6.9E-8	0.007
試料②	1.2E-10	-2.3E-11	9.8E-11	2.0E-6	1.8E-7	0.016
試料③	8.9E-12 (n.d.)	3.0E-12 (n.d.)	1.2E-11 (n.d.)	2.4E-7 (n.d.)	2.1E-8	0.002
試料④	1. 5E-11 (n. d.)	1.4E-11 (n.d.)	2.9E-11 (n.d.)	5.9E-7 (n. d.)	5.2E-8	0.005

3.4.3 貯蔵用キャニスタの健全性評価(再委託先:九州大学)【H28-R1】

顆粒体を安全かつ長期間にわたり貯蔵する上で、キャニスタ(貯蔵容器)の健全性を腐食や材 料強度の劣化の観点から検討することは必要不可欠である。ガラス固化体の貯蔵にすでに使用さ れているキャニスタ材を用いることを考えると、硝酸塩成分を残している顆粒体が長期間にわた ってキャニスタ材に接する際の腐食やそれに伴う材料強度の劣化についての長期的影響の確認が 必要となる。本節では、模擬顆粒体を用いたキャニスタ材の加速腐食試験を行って、50年間に わたるキャニスタの健全性を確認することを目的とした。本業務で想定している貯蔵システムで は、現在のガラス固化体の貯蔵に使用されているキャニスタと同じ材料を用いることを基本とし、 顆粒体貯蔵用キャニスタ材として SUS304L ステンレス鋼を選定した。一方、模擬顆粒体は、燃料 再処理工程で発生する高レベル廃液をロータリーキルンで乾燥・焼成して得る観点から、水分を 除いて得られる硝酸塩または酸化物との混合物の形とした。

平成 28-30 年度の腐食試験では、顆粒体成分の中で含有量の最も多い NaNO₃を模擬顆粒体とし、 300 ℃から 600 ℃の温度条件下で、SUS304L との加速腐食試験を実施するとともに、貯蔵時の温 度に近い 200 ℃にて1年以上の長期腐食試験を実施した。また、高い腐食性が予想される CsNO₃ または Ru(NO)(NO₃)₃ と NaNO₃ との混合硝酸塩、および模擬高レベル廃液から作製したか焼体を模 擬顆粒体とし、600 ℃の加速試験を実施した。主に加速試験後の腐食試験片に対して材料強度試 験として引張試験を実施した。

令和元年度は実環境での生成が予想される模擬顆粒体として、含水率の異なるか焼体を用いて 長期腐食試験(85日)を実施した。

(1) 硝酸塩および模擬顆粒体を用いた試験【H28-H30】

平成30年度までの研究から得られた知見を以下にまとめる。

- ・ 顆粒体に大量に含まれる NaNO₃による SUS304L の腐食機構は大気酸化と同様であり、腐食量はその影響が時間の経過とともに大きく軽減される放物線則に沿うことがわかった。また、長期試験(200 ℃、1 年以上)による試験結果から、その腐食量はキャニスタの健全性に影響を及ぼすには全く至らない程度であることがわかった。
- ・ 顆粒体に含まれる成分のうちで NaNO₃ 以外に大きな腐食性を持つ可能性が考えられる CsNO₃ あるいは Ru(NO)(NO₃)₃による腐食への影響は、CsNO₃ は NaNO₃ と同様であることがわ かったが、Ru(NO)(NO₃)₃ は腐食量が増加するだけでなく腐食機構が異なることが示唆され た。Ru(NO)(NO₃)₃ による腐食は放物線則に必ずしも沿わず、保守的に考えた場合には、腐 食影響が軽減されない直線則を上限として検討する必要があることがわかった。
- キャニスタの強度を引張強度から評価するために、試験片を新たに設計し、腐食試験後の 引張試験を行うことを可能にした。顆粒体の代わりに NaNO₃、CsNO₃ および Ru(NO)(NO₃)₃
 を使った加速試験後の試験片に対して、有意な強度低下は見られなかった。
- ・ 顆粒体として 18 金属元素を含む模擬か焼体を使った高温での加速試験の結果から、①Ruの影響があること、②水溶性を持つ腐食生成物ができる可能性があること、③か焼温度300 ℃と 600 ℃のものは 900 ℃のものより腐食性が小さくなることがわかった。なお、高温加速試験の結果からは、顆粒体においても Ruの影響が考えられるので、腐食影響が軽減されない直線則を上限として検討する必要があることが示唆されたが、実際の保管温

度における腐食メカニズムを確認する必要があることがわかった。

(2) 模擬顆粒体を用いた試験および評価まとめ【R1】

令和元年度は貯蔵期間中の実環境(外的要因:照射によって生成する NOx ガス、残留水分な ど)での生成が予想される変質した模擬顆粒体と SUS304L ステンレス鋼に対して、キャニスタ内 での顆粒体の温度に近い 200 ℃における腐食試験および試験後分析を行った。これにより、キ ャニスタ候補材に対する顆粒体(または硝酸塩)による貯蔵期間 50 年での腐食速度の予測、材 料強度への影響を総合的に評価し、キャニスタの健全性が確保されることを確認する。

(2-1) 腐食試験方法

柔軟な廃棄物管理システムの構築の中の複数システム案とその成立性・安全性・経済性評価 (3.2.1項)において定めた製造時か焼温度 600 ℃にて作製する顆粒体について、その放射線分解 による顆粒体自体の実環境における変質は、3.4.2 項に示したように、残留水分による影響が大 きいことがわかっている。このため、実環境での変質した顆粒体として、模擬か焼体(か焼温度 600 ℃)が水分を含まないものと 3wt %程度 MC (Moisture Content)を含むものを使用して試 験を実施した。また、平成 30 年度の試験では、模擬か焼体を溶融状態とさせた高温での加速試 験において、Ru による腐食加速の影響があることがわかっているが、固体状態の顆粒体がキャ ニスタに接している状態での Ru による腐食影響を確認して長期予測性を向上させるため、キャ ニスタ内での顆粒体の温度に近い 200 ℃において、長期(試験期間 85 日)の腐食試験を実施し た。なお、模擬か焼体は 18 金属元素を含む模擬廃液からNFDが作製したものを用いた。また、 比較・参照のために、模擬か焼体の代わりに NaN0₃および NaN0₃-Ru (N0) (N0₃)₃ 試薬粉末を用いた 試験も同時に実施した。ここで、NaN0₃-Ru (N0) (N0₃)₃ は、平成 30 年度の試験と同様 Na:Ru 元素 比を9:1とした。それぞれ熱分解反応は次の通りである。

$NaNO_3 \rightarrow NaNO_2 + 1/2O_2 (600 \ ^{\circ}C \sim 800 \ ^{\circ}C)$	(3. 4. 3-1)
$NaNO_2 \rightarrow 1/2Na_2O + NO + 1/4O_2 (800 \ ^{\circ}C \sim)$	(3.4.3-2)
$\operatorname{Ru}(\operatorname{NO})(\operatorname{NO}_3)_3 \rightarrow \operatorname{RuO}_4 + \cdots (\sim 250 \ ^\circ\mathrm{C})$	(3.4.3-3)

試験温度 200 ℃においては、NaNO₃ は主に固体状態を保ったままであるが[23]、Ru(NO)(NO₃)₃ は、熱分解反応が起こり始め、その際 RuO₄ と NO_xが発生すると考えられている。阿部等はさらに 低い 150 ℃から Ru(NO)(NO₃)₃の熱分解反応験は起こると報告している[24]。

腐食試験では、従来通りアルミナ製タンマン管に板状 SUS304L 試験片(Cr:18-20%; Ni:9-13%; Mn:<2%; Si:<1%; C:<0.03%; Fe:bal)と模擬か焼体または硝酸塩を入れ、Ar ガス 雰囲気内にて、スウェージロック製キャップとステンレス管でそれらを封入したものを反応セル とし、高温乾燥器にて加熱した。か焼体または硝酸塩粉末に埋める形で試試験片を浸漬した状態 と粉末に非接触の状態(粉末に接さないように粉末上に試験片を吊るす形で粉末上部に置いた状態)にして、同じ反応セル内で腐食させた。試験片の表面は研磨紙:2000番を用いて機械研磨 を施した。

(2-2) 分析方法

腐食試験後の試験片は、特に浸漬した状態のものでは表面に固着物が見られることから、水洗 い後、アルコールおよびアセトン洗浄した。一部の試験片に対しては、X 線回折装置(リガク MiniFlex600-C)により 2 $\theta - \theta$ 法にて腐食層の結晶構造解析を行った。測定条件は、走査速度 10°/分、管電圧/電流 40 kV/15 mA であった。また、卓上電子顕微鏡(日立ハイテクノロジーズ TM3030Plus、以後 SEM/EDS と略す)を用いて試験片の表面観察および腐食生成物の分析を実施し た。

(2-3) 腐食試験結果・考察

図 3.4.3-1 に腐食後試験片(洗浄後)の外観写真を示す。(a)および(b)はか焼体粉末上部に 置いた試験片であり、金属光沢を残していたことから、わずかしか酸化・腐食を受けていないと 判断できる。一方、(c)および(d)はいずれもか焼体粉末に浸漬した試験片であり、表面が荒れ、 黒色を呈していることから、酸化・腐食がある程度進行しているものと考えられる。しかし、腐 食による重量減少は小さく、腐食生成物が水溶性である可能性も低いことが示唆された。(e)お よび(f)は NaNO₃-Ru(NO)(NO₃)₃粉末に浸漬した試験片および上部に置かれた試験片であり、(e)は その表面が大きく荒れ、重量減少も大きかったことから、表面に生じた腐食生成物が洗浄によっ て洗い流されたものと考えられる。一方、(f)は全面黒色を呈し重量増加を発生していた。表面 に生じた黒色物質は、後で示す X 線回折パターン等の分析結果から、鉄酸化物 Fe₃O₄ と考えられ る。

図 3.4.3-2 に腐食による重量変化を試験条件ごとにプロットした。NaNO₃-Ru(NO)(NO₃)₃粉末に 浸漬した場合、平成 30 年度試験の結果と同様に大きな重量減を生じており、Ru(NO)(NO₃)₃粉末 が存在すると固体状態であっても Ru による腐食の影響は大きいことがわかった。一方、模擬顆 粒体としてか焼体を使用して浸漬した場合はこのような大きな変化は見られなかったが、NaNO₃ 粉末に浸漬した場合より重量変化が大きいことから、か焼体に含まれる Ru の影響により腐食が 若干促進された可能性が考えられる。なお、か焼体による腐食は、①か焼体に含まれる水分量が 多いほど腐食による重量増加が大きいこと、②か焼体に浸漬した状態に置かれた試験片の方が上 部に置かれた試験片より腐食作用を強く受けることが明らかとなった。

図 3.4.3-3 は NaNO₃-Ru(NO)(NO₃)₃ 粉末で腐食した試験片の X 線回折パターンであり、 Ru(NO)(NO₃)₃の上部に置かれた試験片からは Fe や Cr の酸化物の存在が確認できる。一方、粉末 に浸漬した試験片からは SUS304L の回折パターンのみが見られる。これは、腐食による重量増加 の結果で述べた通り、腐食生成物が洗い流された結果、下地金属が露わになったためと考えられ る。図 3.4.3-4 はか焼体 (MC 0wt %)に腐食を受けた試験片の X 線回折パターンであるが、 SUS304L の回折パターンしか観察できないほど腐食量が少なかったことを示している。一方、図 3.4.3-5 はか焼体 (MC 3wt %)に腐食を受けた試験片の回折パターンであり、Fe や Cr 酸化物の 回折パターンが小さいながらも確認できる。以上のように表層に残留する主な腐食生成物はいず れも Fe や Cr の酸化物であるとわかった。

図 3.4.3-6 は NaNO₃-Ru (NO) (NO₃)₃粉末に浸漬した状態で腐食させた試験片表面の SEM/EDS 分析 結果であり、表面層の主な構成元素は Fe、Cr、Si、Ru、O であった。平成 30 年度の NaNO₃-Ru (NO) (NO₃)₃粉末を用いた加速試験でも見られたように Ru を介した Fe や Cr の酸化物生成の促

3.4.3-3

進が発生したと考えられる。一方、NaN0₃-Ru (N0) (N0₃)₃ 粉末上部で腐食させた試験片の表面腐食 層も、構成元素は同じで若干の Ru が観察された。この試験片は Ru (N0) (N0₃)₃ 粉末に接していな いにも関わらず Ru が観察されたことから、Fe や Cr の酸化物生成の促進は、低温での蒸発性の 高い Ru (Ru0₄ あるいは Ru0₄) が Ru0₂ などへの価数の変化によって、強い酸化作用を生じた結果 であると考えられる。一方、図 3.4.3-7 は、模擬か焼体 (MC 3wt %) に浸漬した試験片の表面 の SEM 像である。図で白く見える大きさ数 µm 程度の析出物は、主に Fe、Cr、Mo、Ba、Sr、O か ら構成されているが、析出物以外の場所では、Fe、Cr、Ni、およびごくわずかな Mo、Ba、Ru が 観察された。X 線回折法の結果を考慮すると、腐食層の主な成分は Fe-Cr-0 で構成される酸化物 であるが、Ru や Mo が Ru0₄ や MoO₃ として酸素の供給源となり、わずかに酸化を促進した可能性 が考えられる。なお、アルカリ土類金属の Sr および Ba は、それぞれ硝酸塩の分解温度は 542 ℃および 550 ℃であり、か焼体中での存在量が大きいために付着したのみであると考えら れ、腐食への関与は小さいのではないかと推察される。

模擬か焼体の腐食による重量増加と時間の関係を図 3.4.3-8 に示す。キャニスタ貯蔵期間 50 年の腐食量を予測するにあたっては、模擬か焼体に浸漬した状態に置かれた条件で得られた結果 を基に、腐食メカニズムを考察して長期予測を行う。まず、腐食層の主な成分は、ステンレス鋼 の大気酸化などでも観察される Fe-Cr-0 で構成される酸化物である。顆粒体の主成分である NaNO3の粉末による腐食よりも重量増加が大きく、模擬か焼体に含まれる腐食性 FP から生じる Ru04や MoO3、および過剰に含まれる水により、Fe-Cr-0 で構成される酸化膜の生成反応(ステン レス鋼の一般的な酸化反応)が促進されている可能性が考えられる。生成する酸化物層は緻密で あり、図 3.4.3-6 で観察されるような、NaN0₃-Ru(NO)(NO₃)₃粉末を用いた試験で形成されるクラ ックを伴い Ru を多く含む腐食層とは性質が異なる可能性が高い。ここで、長期予測を行うに際 しては、生成する酸化物層の状態が重要となる。すなわち、鋼材の表層酸化挙動として多く見ら れるように、生成する酸化物層が緻密で表層に残留する場合、長期腐食は時間とともに腐食速度 が抑えられる放物線則に従うが、酸化物層が割れやすく表層に全く留まらない場合は、時間とと もに腐食速度が減少しない直線則に従う。今回の試験結果からは、緻密な酸化物層を生じている ので放物線則に従うと考えられるが、Ru 等による酸化促進のメカニズムも影響していることか ら、保守的に考えた場合には、直線則にて、その安全性を確認する必要がある。これらの考察を 基に、模擬か焼体(MC 0wt %および 3wt %)と SUS304L を約 85 日、200 ℃で腐食試験を行った 結果を用いて、腐食の長期予測を行う。放物線則(dw² = K_P·t;dw:重量増加(mg/cm²)、K_P: 定数、t:時間(min))を適用した場合、水分量 0 wt %および 3 wt %のものに対して、50 年 間の重量増加は 0.45 mg/cm²および 0.67 mg/cm²となる。これらがすべて酸化膜であると仮定す ると、その厚さは 5.12 µm および 7.48 µm となり、ステンレス鋼の減肉厚さは、その半分 2.56 μm および 3.74 μm と予想される。一方、直線則(dw = K_L·t; K_L は定数)を仮定すると、水分量 0 wt %および 3 wt %のものに対して、50 年間の重量増加は 5.96 mg/cm²および 9.71 mg/cm²と なる。これらがすべて酸化膜であると仮定すると、その厚さは 64.7 μm および 105.1 μm となり、 ステンレス鋼の減肉厚さは、その半分 32.35 µm および 52.56 µm と予想される。

放物線則は、今回の腐食試験の時間範囲で見られたように、試料を覆う腐食層、例えば酸化膜 が保護膜的な性質を持つ場合に適用され、時間とともに酸化膜が成長するのに伴って、酸化膜の 内側と外側の酸素の濃度勾配が小さくなることにより、酸化速度が低下するメカニズムである。

しかし、Ru の存在等による腐食の促進が見られており、保守的に考えた場合、今回の試験時間 を超えた状態において、保護膜にクラックが生じて機能しない可能性を排除することはできず、 放物線則では腐食層の生成を過小評価している可能性がある。一方、直線則は腐食開始から腐食 速度が一定となる場合であり、腐食層が保護膜的な性質を一切持たない場合に適用される。酸化 過程を例に取ると、酸化物が生成しても緻密な保護膜とはならず、剥離やクラック生成が次々と 起こり、常に新しい表面が腐食させるものに曝されるため、腐食速度が低下しないケースであり、 例えば、超臨界水による鋼材腐食など激しい減肉を生じる際に見られるメカニズムである。直線 則を用いて長期腐食を予測すると、保護膜的な酸化膜の生成を阻害する要因を大きく捉え過ぎる ことになり、腐食層の生成量を過大評価することになる。したがって、実際の腐食量は放物線則 と直線則で予想される値の間に入ると考えるのが自然であり、今回得られている試験後観察から は、放物線則による予測値が実際の減肉量に近いと考えられる。しかし、本業務は、保守的に考 えた場合の健全性確認を行うことが目的であり、3.2.1 において定めた顆粒体の含水率の仕様で ある 0.3wt %を大きく上回る 3 wt %のか焼体を用いた試験結果に対し、直線則を用いた解析結 果による 53 µm を、59 年間にわたる減肉の保守的な減肉量の検討結果と考える。なお、キャニ スタの厚さは 3.4.1 にて 2 mmと想定しており、最大 53 µm 程度の減肉があってもキャニスタの健 全性には影響しないと言える。

(2-4) まとめ

令和元年度は顆粒体として含水率 0wt %および 3wt %の模擬か焼体を使って、キャニスタ候 補材 SUS304L に対し、85 日程度、200 ℃で腐食試験を実施し、次の結果を得た。①水分の存在 により腐食量が増加する、②模擬か焼体からの蒸発種や熱分解生成物(主に NO_X)との反応によ る腐食に比べて模擬か焼体が直接接触する場合の腐食の方が腐食作用が大きい。平成 28-30 年 度および令和元年度の成果から、キャニスタの健全性すなわち材料強度へ与える腐食の影響を次 のように考えた。顆粒体による SUS316L キャニスタ内面の長期腐食メカニズムは鋼材表面の酸化 反応である。200 ℃での長期腐食試験では、か焼体による腐食量は NaNO₃単独によるものより大 きいことが判明したが、その量は平成 30 年度までに実施した加速試験での腐食量より明らかに 少ない。一方、加速試験から得られた腐食試験片に対する引張試験の結果は、腐食させるものに よらず、それらの引張強度はわずかしか低下しないことを示していた。したがって、実環境に近 い温度(200 ℃)では腐食メカニズムによらず、キャニスタに与える健全性の影響は小さいと予 想される。また、キャニスタの減肉量はかなり保守的に予測しても、50 年間で最大 53 µm と見 積もられ、必要最小肉厚への影響は小さく、本業務での設計仕様値 2 muは妥当であると判断した。



図 3. 4. 3-1 腐食試験後(200 ℃、85 日)の試験片(洗浄後)外観写真。(a)模擬か焼体(MC 3wt %)上部に置いた場合;(b)模擬か焼体(MC 0wt %)上部に置いた場合;(c)模擬か焼体(MC 3 wt %)に浸漬した場合;(d)模擬か焼体(MC 0wt %)に浸漬した場合;
 (e) Ru(N0)(N0₃)₃粉末に浸漬した場合;(f) Ru(N0)(N0₃)₃粉末上部に置いた場合



図 3.4.3-2 腐食(200 ℃、85 日)による SUS304L の重量変化



図 3.4.3-3 Ru(NO)(NO₃)₃で腐食(200 ℃、85日)させた試験片のX線回折パターン (a) Ru(NO)(NO₃)₃粉末に浸漬した試験片、(b)粉末上部に置いた試験片



図 3.4.3-4 か焼体(MC 0wt %)で腐食(200 ℃、85日)させた試験片のX線回折パターン (a)か焼体粉末に浸漬した試験片、(b)粉末上部に置いた試験片



図 3.4.3-5 か焼体(MC 3wt %)で腐食(200 ℃、85日)させた試験片のX線回折パターン (a)か焼体粉末に浸漬した試験片、(b)粉末の上部に置いた試験片



図 3.4.3-6 Ru(NO)(NO₃)₃粉末に浸漬して腐食(200 ℃、85日)させた試験片表面の(a)SEM 像 および(b)EDX 分析結果




図 3.4.3-7 か焼体(MC 3wt %) に浸漬して腐食(200 ℃、85 日)させた試験片表面の (a) SEM 像および(b) EDX 分析結果



図 3.4.3-8 SUS304Lの腐食量と時間の関係(200℃)

3.5 柔軟な廃棄物管理法の有効性評価(再委託先:日立GE)【H28-R1】

3.5.1 環境負荷低減効果評価【H28-R1】

(1) 4 年間の計画

柔軟な廃棄物管理法(以下、本節では柔軟管理法と略す。)が廃棄物処理処分を巡る社会的・ 技術的状況変化に柔軟に対応して環境負荷低減に寄与することを確認するために、MA 回収率や 廃棄物処理処分条件等が変化した場合の、従来管理法に対する柔軟管理法の潜在的有害度および 処分場面積の低減効果を評価した。平成 28 年度および 平成 29 年度は、MA 回収率が変化した際 の潜在的有害度・処分場面積の低減効果をそれぞれ評価し、平成 30 年度は廃棄物処理処分条件 が変化した際の潜在的有害度・処分場面積への影響を評価した。令和元年度は、高含有ガラス固 化体採用時の処分場面積の低減効果を評価した。

(2) MA 回収率をパラメータとした潜在的有害度の低減効果評価 【H28】

柔軟管理法での顆粒体再廃液化・MA 分離における MA 回収性・分離性の影響を検討するため、 MA 回収率をパラメータとして柔軟管理法の潜在的有害度を解析・評価した。潜在的有害度とは 放射性核種が公衆に経口摂取された際の被ばく線量を表す量である。

① 潜在的有害度評価方法

本研究では、ガラス固化体単体の潜在的有害度を基に、多様な MA 分離状態のガラス固化体の 潜在的有害度を総合的に評価するために「総合潜在的有害度」という概念を導入した。

i) ガラス固化体単体の潜在的有害度

ガラス固化体単体の重量当たり有害度時間変化の評価には、標準的評価手法として公開されて いるデータベース[25]を用いた。

ii)総合潜在的有害度

柔軟管理法を六ヶ所再処理設備に適用した場合、顆粒化技術が適用されず MA を含んだガラス 固化体 (MA 非分離固化体)と、顆粒化技術が適用され MA が分離されたガラス固化体 (MA 分離固 化体)が混在する。そこで、MA 非分離固化体・MA 分離固化体のそれぞれの潜在的有害度・割合 を用いて、ガラス固化体全体の潜在的有害度を平均化したものを「総合潜在的有害度」と定義し た。総合潜在的有害度の概念を図 3.5.1-1 に示す。

② 潜在的有害度評価条件

i) 再処理前冷却期間 (CT)

我が国の軽水炉使用済燃料の発生量推移とこれまでの国内および海外再処理実績および今後の 六ヶ所再処理設備処理量推移を図 3.5.1-2 に示す。同図は、最新の核燃料サイクル状況[26][27] を反映したものである。同図によれば使用済燃料の CT は 10~30 年に分布することが予想される ので、本評価では平均として CT20 年を基準とした。

ii)顆粒化開始までの期間

顆粒化開始までの期間は10年を基準として±5年のケースを評価した。

③ 潜在的有害度評価結果

基準ケースとして、PWR の燃焼度 45GWd/t の使用済燃料を対象に CT20 年、顆粒化開始までの 期間 10 年とした際の総合潜在的有害度評価結果を図 3.5.1-3 に示す。同図は、MA 回収率が 95~ 99 %まで変動した際の炉取り出し後 1000 年の評価結果を示しており、柔軟管理法による総合潜

3.5.1-1

在的有害度が従来管理法に比べて約 76~79 %低減できることがわかった。また、顆粒化開始の 期間が 5 年に短縮できた場合は、約 88~91 %低減できた。一方、15 年に延長した場合は約 64 ~67 %の低減となった。以上より、総合潜在的有害度低減の観点からは、顆粒化開始までの期 間短縮が有効であり、MA 回収率は 95 %以上あれば十分であることがわかった。[18]

(3) MA 回収率をパラメータとした処分場面積の低減効果評価【H29】

柔軟管理法での顆粒体再廃液化・MA 分離における MA 回収性・分離性の影響を検討するため、 MA 回収率をパラメータとして柔軟管理法における処分場面積を解析・評価した。従来管理法で は高レベル廃棄物は再処理後すぐにガラス固化体となるが、柔軟管理法では高レベル廃棄物を顆 粒体として貯蔵し、地層処分直前に再廃液化・MA 分離を行いガラス固化体とするので、MA 分離 による発熱量低減のみならず、FP 減衰による発熱量低減が期待できる。

地層処分における基本的な条件は、岩盤条件(軟岩盤、硬岩盤)と定置方式(竪置、横置)が あるが、平成 29 年度は、熱的に厳しい硬岩盤で 2 つの定置方式における処分場面積を評価した (定置方式の概略図を図 3.5.1-4 に示す)。

① 処分場面積評価方法

柔軟管理法適用時には MA 非分離固化体と MA 分離固化体の両方が混在するため、その際の処分 場所要面積 W は、それぞれのガラス固化体 1 体当たりの処分場面積(占有面積) S および固化体 数量 N を基に、次式により評価した(定置方式が竪置の場合、定置段数 n を考慮する。)。

処分場面積 W=S(MA 分離) × N(MA 分離)/n + S(MA 非分離) × N(MA 非分離)/n

占有面積Sについては、ガラス固化体発熱量や処分場物性値等を入力データとした3次元熱伝 導解析を行い、ガラス固化体の廃棄物含有率、処分孔間隔、定置段数等を調整しつつ、固化体と 岩盤間に充填される緩衝材の最高温度が100℃以下となるように最適化した。また、固化体数 量Nは顆粒化開始までの期間に依存するため、顆粒化開始までの期間10年を基準とし、5年と 15年のケースも評価した。

② 処分場面積評価条件

処分場面積解析体系および処分場物性値を図 3.5.1-5 に示す[28]。硬岩盤の場合、ガラス固化体の定置深度:1000m、環境温度:45 ℃とした(軟岩盤の場合は 500m、30 ℃)。また、ガラス固化体の発熱量は、PWR 燃焼度 45GWd/t の CT20 年の使用済燃料の核種重量および発熱量[29]を使用し、ガラス固化体の廃棄物含有率 15wt %(Na₂0 分を含めると 25wt %)および製造時発熱量 2.3kW/本[30]を制約条件として評価した。

③ 処分場面積評価結果(横置)

横置方式における 3 次元熱伝導解析の解析条件および解析結果をまとめて表 3.5.1-1 に示す。 同表より、MA 非分離固化体の固化体 1 体当たりの占有面積は 41.7m²/体、MA 分離固化体の占有面 積は MA 含有率 5 %および 1 % (MA 回収率 95 %および 99 %)のどちらでも 20.8m²/体となっ た。この解析結果を基にした処分場所要面積の評価結果を図 3.5.1-6 に示す。同図より、顆粒化 技術を再処理設備運開後 10 年で導入した場合、柔軟管理法の処分場所要面積は従来管理法に対 し約 42~43 % (MA 回収率 95~99 %の場合)低減できることがわかった。

④ 処分場面積評価結果(竪置)

竪置方式における 3 次元熱伝導解析の解析条件および解析結果をまとめて表 3.5.1-2 に示す。

同表より、固化体1体当たりの占有面積は MA 分離・MA 非分離ともに 44.4m²/体となるが、MA 分離固化体の場合は定置段数を2段にできるため、実質的には MA 分離固化体の占有面積は 22.2m²/体となる。また、この解析結果を基にした処分場所要面積の評価結果を図 3.5.1-7 に示す。同図より、顆粒化技術を再処理設備運開後 10 年で導入した場合、柔軟管理法の処分場所要面積は従 来管理法に対し約 42~43 % (MA 回収率 95~99 %の場合)低減できることがわかった。[19]

(4) 廃棄物処理処分条件をパラメータとした潜在的有害度・処分場面積への影響評価【H30】

潜在的有害度に対する影響評価

潜在的有害度に影響する廃棄物処理処分条件は、潜在的有害度の主要因子であるガラス固化体中の MA(特に²⁴¹Am)の存在量に関係する①CT、②MA回収率である。これらの影響については平成 28 年度に評価しており、①CT については図 3.5.1-8 に示す結果が得られており、CT が 5~30 年となっても MA 回収率が 99 %の場合の潜在的有害度は 1/100 とほとんど変わらない。また、 ②MA 回収率についても前記図 3.5.1-3 の通り、潜在的有害度への影響は小さい。

2 処分場面積に対する影響評価

処分場面積に影響する廃棄物処理処分条件としては、①岩盤種類、②CT、③地層処分前貯蔵期 間(SD)、④MA回収率がある。④MA回収率の変動による影響評価は(3)記載の通りであり、ここ では①~③の変動による処分場面積への影響を評価した。なお、平成 30 年度の評価では定置方 式を横置に統一した。

i)処分場面積評価方法

評価方法は平成 29 年度と同様であり、ガラス固化体 1 体当たりの処分場面積および固化体数 量を基に、処分場所要面積を評価した。なお、顆粒化開始までの期間は 10 年を基準とした。

ii)処分場面積評価方法

岩盤種類は軟岩盤、硬岩盤の2つを設定した。また、CT は平均20年、最大30年とし、SD は 現行の六ヶ所再処理設備の設計条件である32年と貯蔵設備の寿命期間として50年を設定した。 MA 回収率は従来管理法:0%、柔軟管理法:95%とした。

iii)処分場面積評価結果

解析結果のまとめとして、従来管理法と比較した柔軟管理法の相対処分場所要面積評価結果を 図 3.5.1-9 に、従来管理法および柔軟管理法の処分孔間隔を図 3.5.1-10 に示す。図 3.5.1-9 よ り、軟岩盤における処分場所要面積の低減効果は約 37~48 %、硬岩盤における低減効果は約 42 ~54 %となった。硬岩盤の方が低減効果が大きかったのは、硬岩盤の方が環境温度が高く熱的 に厳しい条件であり、図 3.5.1-10 に示すように従来管理法では処分孔間隔を大きくする必要が あることから、MA 分離による発熱量低減効果がより顕著に現れたためであると考えられる。な お、ケース④では、発熱量低減により理論上は処分孔間隔をさらに狭くすることができるが、処 分孔の構造的安定性の制約から 2.5d 以下にできず[28]、固化体の廃棄物含有率を高くして固化 体数量を減らしたため、最大の低減効果が得られている。

CT の変動による影響については、CT が長くなるほど低減効果も大きくなることがわかった。 一方、SD の変動による影響については、軟岩盤と硬岩盤で傾向が異なった(SD が長くなると、 軟岩盤では低減効果が大きくなるが、硬岩盤では小さくなった。)。SD が長くなれば FP 減衰に よりガラス固化体の発熱量は低減し、MA 分離による発熱量変化は相対的に大きくなるが、硬岩 盤では環境温度が高く処分孔間隔を広く確保する必要があり、図 3.5.1-10 に示すように MA 分離 による発熱量変化に対する処分孔間隔の低下割合(柔軟管理法)が FP 発熱量変化に対する処分 孔間隔低下割合(従来管理法)より相対的に小さいため、上記のような現象が起きたものと考え られる。[20]

(5) 高含有ガラス固化体採用時の処分場面積低減効果評価【R1】

高含有ガラス固化体は、CT が長い場合は²⁴¹Am 等の増加により発熱量が大きくなるが、柔軟管 理法を適用して MA を分離することにより、ガラス固化体 1 体当たりの占有面積を保持しつつ固 化体数を低減し、処分場面積を低減できることが期待される。そこで、高含有ガラス固化体を採 用した場合の処分場面積の低減効果を評価した。

① 高含有ガラス固化体採用時の処分場面積評価方法・条件

i)評価方法

高含有ガラス固化体を採用した場合のガラス固化体数および処分場面積の評価手順を図 3.5.1-11 に示す。評価自体は、基本的には平成 29 年度および平成 30 年度と同様であり、柔軟 管理法の顆粒化技術が適用されず MA を含んだガラス固化体は MA 非分離固化体、顆粒化技術が適 用され MA が分離されたガラス固化体は MA 分離固化体と称することとする。

従来管理法については、ガラス固化体発熱量、坑道隔離距離、処分孔間隔等を入力パラメータ として、処分場熱的物性値を基に 3 次元熱伝導解析により緩衝材最高温度 Tc1 が 100 ℃の制限 値を守る範囲で最小のガラス固化体 1 本当たりの占有面積 S1 を求める。ここで、ガラス固化体 発熱量は、現行の廃棄物含有率 k1 を有するもの(MA 非分離固化体)とする。また、坑道隔離距 離、処分孔間隔は岩盤の構造的安定性条件を満足するものとする。

一方、柔軟管理法については、占有面積 S1 は従来管理法と同じとし、廃棄物含有率をパラメ ータとした 3 次元熱伝導解析を行い、緩衝材最高温度 Tc2 が従来管理法の場合と同等となる廃棄 物含有率 k2 を求める(MA 分離固化体)。高含有ガラス固化体の廃棄物含有率は、昨今の研究開 発動向を基に最大 35wt %とした[31]。柔軟管理法のガラス固化体数 N2 は、従来管理法の 40000 体に対し 40000×k1/k2 体として求められる。なお、柔軟管理法と従来管理法でガラス固化体 1 体当たりの占有面積を等しくすることは必要条件ではないが、ここでは固化体数により相対的な 処分場面積を評価した。

ii)評価条件

評価条件は平成 30 年度と同様に、岩盤条件は軟岩盤と硬岩盤とし、CT は 20 年と 30 年、SD は 32 年と 50 年とした。ガラス固化体の MA 回収率は従来管理法では 0 %、柔軟管理法では 95 % とした。ガラス固化体の定置方式は堅置に統一した。その他、各々の岩盤における定置深度や処 分場熱的物性値は平成 30 年度に設定したものを使用した。堅置方式での各々の岩盤の構造安定 性の制限値(最小値)は、軟岩盤の場合は坑道隔離距離が坑道径 D の 2.6 倍、処分孔間隔は処分 孔径 d の 3 倍、硬岩盤の場合は坑道隔離距離が坑道径 D の 2 倍、処分孔間隔は処分孔径 d の 2 倍 である[28]。

② 処分場面積評価結果(軟岩盤)

ケース1(CT:20年、SD:32年)およびケース2(CT:30年、SD:32年)の3次元熱伝導解 析の解析条件および解析結果をまとめて表 3.5.1-3に示す。同表より、ケース1の場合、MA 非

3.5.1-4

分離固化体は処分孔間隔 3.2d、坑道隔離距離 2.6D、2 段積で緩衝材最高温度は 95.8 ℃であるの に対し、MA 分離固化体は処分孔間隔と坑道隔離距離を MA 非分離固化体と同じとし、MA 分離によ り廃棄物含有率を 143 %に高めることができ、緩衝材最高温度は 96.4 ℃となった。両者の緩衝 材最高温度を同等とするため廃棄物含有率を微調整した結果のガラス固化体容積率は 0.706 であ る。一方、ケース 2 の場合、MA 非分離固化体では処分孔間隔 3d、坑道隔離距離 2.6D、2 段積で 緩衝材最高温度は 92.1 ℃であるのに対し、MA 分離固化体は MA 分離により廃棄物含有率を 165 %に高めることができ、緩衝材最高温度は 92.5 ℃となった。両者の緩衝材最高温度を同等 とするため廃棄物含有率を微調整した結果のガラス固化体容積率は 0.610 である。これらの解析 結果を基に評価した処分場所要面積の評価結果を表 3.5.1-4 に示す。同表より、柔軟管理法によ る処分場面積低減効果は、それぞれ約 24 % (ケース 1) 、約 31 % (ケース 2) となった。ケー ス1よりケース 2 の方が低減効果が大きくなったのは、ケース 2 の CT が 30 年と長く、²⁴¹Am の蓄 積量が多くなったため、MA 分離の効果が大きく寄与したためである。

次に、ケース 3 (CT: 20 年、SD: 50 年) およびケース 4 (CT: 30 年、SD: 50 年)の解析条 件・結果を表 3.5.1-5 に示す。ケース 3 の場合、MA 非分離固化体は処分孔間隔 3.2d、坑道隔離 距離 2.6D、3 段積で緩衝材最高温度は 95.2 ℃であるのに対し、MA 分離固化体は MA 分離により 廃棄物含有率を 165 %に高めたことで緩衝材最高温度は 94.2 ℃となった。両者の緩衝材最高温 度を同等とするため廃棄物含有率を微調整した結果のガラス固化体容積率は 0.597 である。一方、 ケース 4 の場合、MA 非分離固化体は処分孔間隔 3.2d、坑道隔離距離 2.6D、3 段積で緩衝材最高 温度は 98.6 ℃であるのに対し、MA 分離固化体は MA 分離により廃棄物含有率を 212 %に高めた ことで緩衝材最高温度は 98.4 ℃となった。両者の緩衝材最高温度を同等とするため廃棄物含有 率を微調整した結果のガラス固化体容積率は 0.470 である。これらの解析結果を基に評価した処 分場所要面積の評価結果を表 3.5.1-6 に示す。同表より、柔軟管理法による処分場面積低減効果 は、それぞれ約 32 % (ケース 3)、約 42 % (ケース 4) となった。ケース 3 およびケース 4 の 低減効果がケース 1 およびケース 2 よりも大きくなったのは、SD が 50 年と長く、ガラス固化体 発熱量に占める発熱性 FP (¹³⁷Cs、⁹⁰Sr 等)が減衰するため、²⁴¹Am の寄与が相対的に高まり、MA 分離の効果が大きくなったためである。

③ 処分場面積評価結果(硬岩盤)

軟岩盤と同様に、ケース 5 (CT: 20 年、SD: 32 年) およびケース 6 (CT: 30 年、SD: 32 年) の解析条件・結果を表 3.5.1-7 に示すとともに、ケース 5 およびケース 6 の処分場所要面積の評 価結果を表 3.5.1-8 に示す。柔軟管理法による処分場面積低減効果は、それぞれ約 22 % (ケー ス 5) 、約 29 % (ケース 6) となった。また、ケース 7 (CT: 20 年、SD: 50 年) およびケース 8 (CT: 30 年、SD: 50 年) の解析条件・結果を表 3.5.1-9 に示すとともに、ケース 7 およびケー ス 8 の処分場所要面積の評価結果を表 3.5.1-10 に示す。柔軟管理法による処分場面積低減効果 は、それぞれ約 31 % (ケース 7) 、約 40 % (ケース 8) となった。したがって、硬岩盤につい ても、上記②の軟岩盤と同様の傾向を示すことがわかった。

④ まとめ

六ヶ所再処理から発生する高レベル廃棄物を対象に、高含有ガラス固化体を採用した場合の処 分場所要面積を評価した。評価結果のまとめとして、顆粒化開始までの期間 10 年の場合の相対 処分場所要面積を図 3.5.1-12 に示す。

- ・軟岩盤において高含有ガラス固化体を採用した場合、柔軟管理法の処分場所要面積は従来管理
 法に比べて約 24~42 %低減した。一方、硬岩盤条件において高含有ガラス固化体を採用した
 場合は、従来管理法に比べて約 22~40 %低減した。
- ・柔軟管理法は、廃棄物顆粒体の貯蔵によりガラス固化体地層処分において MA 分離技術と同時 に高含有ガラス固化体の技術開発成果の採用を可能とするため、廃棄物処理処分条件によらず 環境負荷低減とともに経済性の向上に大きく貢献することが期待される。

(6) 4年間の成果まとめ

潜在的有害度については、PWR45GWd/t・CT20 年・顆粒化開始までの期間 10 年を基準とすると 約 76~79 % (MA 回収率 95~99 %)の低減効果があることがわかった。潜在的有害度低減には、 顆粒化開始までの期間が比較的大きく影響し、早期の顆粒化開始(柔軟管理法適用)が有効であ ることが明らかとなった。また、MA 回収率や廃棄物処理処分条件の変動による影響は小さく、 MA 回収率の変動影響は約 3 %程度であった。

処分場面積については、定置方式や岩盤種類等によって低減効果が異なるが、顆粒化開始まで の期間 10 年・横置方式においては、柔軟管理法による処分場面積低減効果は約 37~54 %の範 囲で得られることがわかった。MA 回収率の変動による影響は約 1 %程度であった一方、廃棄物 処理処分条件の変動による影響については、CT が大きくなった場合(CT20 年→CT30 年)は低減 効果が更に約 10 %程度増加し、SD が大きくなった場合(SD32 年→SD50 年)は低減効果が約± 5 %程度の範囲で増減することがわかった。また、処分場面積低減についても、早期の顆粒化開 始(柔軟管理法適用)が有効であることが明らかとなった。高含有ガラス固化体を採用した場合 は、柔軟管理法の適用により、従来管理法と比べて竪置方式の処分場面積を約 22~42 %の範囲 で低減できることがわかった。

以上の結果から、柔軟管理法は、廃棄物処理処分条件によらず環境負荷低減に大きく貢献する ことができ、MA 分離技術と同時に高含有ガラス固化体の技術開発成果の採用を可能とすること から、経済性向上にも大きく貢献できることがわかった。

No	項目		単位	MA非分離	MA	分離	備考
1		燃料タイプ	_	Р	PWR/45GWd/t		
2	解	使用済燃料冷却	—	再如	见理前20年》	令却	
3	析	岩盤条件		硬粒	皆盤/深度100)0m	空洞安定性制限
4	~ 件	処分体定置方式	_		横置方式		• 坑道隔離距離≧2D
5		MA含有率(MA回収率)	_	100%(0%)	5%(95%)	1%(99%)	
6		処分孔間隔	m	13.32(6d)	6.66(3d)	6.66(3d)	d=2.22m(孔径)
7		坑道隔離距離	m	≧10(2D)	≧10(2D)	≧10(2D)	D=5m(坑道径)
8	鼦	廃棄体ピッチ	m	3.13	3.13	3.13	
9	析	廃棄体占有面積	m²/本	41.7	20.8	20.8	定置段数は1
10	結	緩衝材最高温度	°C	96.9	93.9	92.6	処分場3次元熱伝
11	果	最高温度発生年	年	30	20	20	導解析結果
12		温度調整係数	_	1	0.942	0.917	MA非分離温度
13		補正後緩衝材温度	_	96.9	96.9	96.9	基準

表 3.5.1-1 横置方式における 3 次元熱伝導解析結果

表 3.5.1-2 堅置方式における 3 次元熱伝導解析結果

No		項目	単位	MA非分離	MA	分離	備考
1		燃料タイプ	_	P'	WR/45GWd	/t	
2	解	使用済燃料冷却	_	再如	见理前20年》	令却	
3	析	岩盤条件		硬装)0m	空洞安定性制限	
4	余 件	処分体定置方式	_		竪置方式		・処分れ面隔≤2d ・坑道隔離距離≧2D
5		MA含有率(MA回収率)	_	100%(0%)	5 % (95%)	1 % (99%)	
6		処分孔間隔	m	4.44(2d)	4.44(2d)	4.44(2d)	d=2.22m(孔径)
7		坑道隔離距離	m	10(2D)	10(2D)	10(2D)	D=5m(坑道径)
8	鼦	廃棄体占有面積	m ² /本	44.4	44.4	44.4	
9	析	処分体定置段数(n)	_	1	2	2	
10	結	緩衝材最高温度	°C	93.3	90.9	89.7	処分場3次元熱伝
11	果	最高温度発生年	年	30	20	20	導解析結果
12		温度調整係数	_	1.0	0.951	0.927	MA非分離温度
13		補正後緩衝材温度	_	93.3	93.3	93.3	基準

			出 / 上	ケー	-71	ケー	-72	供老
NO		垻 日	₽1⊻	MA非分離	MA分離	MA非分離	MA分離	加方
1		使用済燃料冷却	-	再処理前	20年冷却	再処理前30年冷却		
2	解	再処理後冷却	-	地層処分前	前32年冷却	地層処分前	前32年冷却	
3		岩盤条件		軟岩盤/淵	架度500m	軟岩盤/>	架度500m	空洞安定性制限
4	イ件	処分体定置方式	-	竪置	方式	竪置	方式	•坑道隔離距離≧2.6D
5		MA含有率(MA回収率)	-	100%(0%)	5%(95%)	100%(0%)	5%(95%)	
6		処分孔間隔	m	7.10(3.2d)	7.10(3.2d)	6.66(3d)	6.66(3d)	d=2.22m(孔径)
7		坑道隔離距離	m	13(2.6D)	13(2.6D)	13(2.6D)	13(2.6D)	D=5m(坑道径)
8	叡	処分体定置段数(n)	-	2	2	2	2	
9	析	固化体占有面積	m ² /本	46.2	46.2	43.3	43.3	*1
10	結	廃棄物含有率	%	100	143	100	165	処分場3次元熱伝導
11	果	緩衝材最高温度	°C	95.8	96.4	92.1	92.5	解析結果
12		最高温度発生年	年	20	20	30	20	MA 北八 就 泪 庄 甘 淮
13		ガラス固化体容積率	-	1	0.706	1	0.610	MA开力碰温度基华

表 3.5.1-3 3 次元熱伝導解析結果 (ケース 1、2)

			出上	ケー	ス1	ケー	-ス2
		垻 日	甲世	従来管理法	柔軟管理法	従来管理法	柔軟管理法
	МΔ	占有面積	m²/体	46.2	46.2	43.3	43.3
ガ	非分離	体数割合	%	100	20	100	20
ラ		体数	万体	4	0.8	4	0.8
ス		面積小計	4 km²	1.85	0.370	1.73	0.346
固	МА	占有面積	m²/体	_	46.2	—	43.3
化		体数割合	%	_	80	—	80
1 个 加.	分	固化体容積率	_	_	0.706	—	0.610
公分	離	体数	万体	0	2.26	0	1.95
場		面積小計	4 km²	0	1.04	0	0.845
面	•	体数合計	万体	4	3.06	4	2.75
積	台計	面積合計	4 km ²	1.85	1.41	1.73	1.19
	āΤ	面積比率	_	1	0.765	1	0.688

表 3.5.1-4 処分場所要面積評価結果 (ケース 1、2)

			ж/ т	ケー	·Z3	ケー	-ス4	供去
NO		垻 日	₽1⊻	MA非分離	MA分離	MA非分離	MA分離	頒考
1		使用済燃料冷却	-	再処理前	20年冷却	再処理前30年冷却		
2	解	再処理後冷却	-	地層処分前	前50年冷却	地層処分前	前50年冷却	
3		岩盤条件		軟岩盤/淵	架度500m	軟岩盤/淵	架度500m	空洞安定性制限
4	イ件	処分体定置方式	-	竪置	方式	竪置	方式	•坑道隔離距離≧2.6D
5		MA含有率(MA回収率)	-	100%(0%)	5%(95%)	100%(0%)	5%(95%)	
6		処分孔間隔	m	7.10(3.2d)	7.10(3.2d)	7.10(3.2d)	7.10(3.2d)	d=2.22m(孔径)
7		坑道隔離距離	m	13(2.6D)	13(2.6D)	13(2.6D)	13(2.6D)	D=5m(坑道径)
8	鼦	処分体定置段数(n)	-	3	3	3	3	
9	析	固化体占有面積	m²/本	30.8	30.8	30.8	30.8	*1
10	結	廃棄物含有率	%	100	165	100	212	処分場3次元熱伝導
11	│果	緩衝材最高温度	°C	95.2	94.2	98.6	98.4	解析結果
12		最高温度発生年	年	40	30	400	30	MA 北八 谢 泪 庄 甘 淮
13		ガラス固化体容積率	-	1	0.597	1	0.470	MA开力碰温度基华

表 3.5.1-5 3 次元熱伝導解析結果 (ケース 3、4)

	-	•					
		古 D	出生	ケー	-ス3	ケース4	
		垻 日	甲位	従来管理法	柔軟管理法	従来管理法	柔軟管理法
	ма	占有面積	m²/体	30.8	30.8	30.8	30.8
ガ	非	体数割合	%	100	20	100	20
ラ	分 離	体数	万体	4	0.8	4	0.8
ス		面積小計	4 km ²	1.23	0.246	1.23	0.246
固		占有面積	m²/体	—	30.8	_	30.8
化伏	ма	体数割合	%	—	80	_	80
14 加	分	固化体容積率	—	—	0.597	_	0.471
必分	離	体数	万体	0	1.91	0	1.51
場		面積小計	4 km ²	0	0.588	0	0.464
面	•	体数合計	万体	4	2.71	4	2.31
積	台計	面積合計	4 km ²	1.23	0.835	1.23	0.711
		面積比率	_	1	0.678	1	0.577

表 3.5.1-6 処分場所要面積評価結果 (ケース 3、4)

			ж / т	ケー	-ス5	ケー	-ス6	/# *
No		· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	単≌	MA非分離	MA分離	MA非分離	MA分離	偏ろ
1		使用済燃料冷却	-	再処理前	20年冷却	再処理前	30年冷却	
2	解	再処理後冷却	-	地層処分前	前32年冷却	地層処分前	前32年冷却	
3		岩盤条件		硬岩盤/深	程度1000m	硬岩盤/深	聚度1000m	空洞安定性制限
4	(件	処分体定置方式	-	竪置	方式	竪置	方式	・坑道隔離距離≧2D
5		MA含有率(MA回収率)	-	100%(0%)	5%(95%)	100%(0%)	5%(95%)	
6		処分孔間隔	m	6.66(3d)	6.66(3d)	5.55(2.5d)	5.55(2.5d)	d=2.22m(孔径)
7		坑道隔離距離	m	10(2D)	10(2D)	10(2D)	10(2D)	D=5m(坑道径)
8	留	処分体定置段数(n)	-	1	1	1	1	
9	析	固化体占有面積	m ² /本	66.6	66.6	55.5	55.5	*1
10	結	廃棄物含有率	%	100	138	100	160	処分場3次元熱伝
11	果	緩衝材最高温度	°C	97.2	96.7	96.9	97.5	導解析結果
12]	最高温度発生年	年	8	10	10	20	MA非分離温度
13		ガラス固化体容積率	-	1	0.720	1	0.632	基準

表 3.5.1-7 3 次元熱伝導解析結果 (ケース 5、6)

	項目			ケー	-ス5	ケー	-ス6
				従来管理法	柔軟管理法	従来管理法	柔軟管理法
	МΔ	占有面積	m²/体	66.6	66.6	55.5	55.5
ガ	非	体数割合	%	100	20	100	20
ラ	分 離	体数	万体	4	0.8	4	0.8
ス		面積小計	4 km ²	2.66	0.533	2.22	0.444
固		占有面積	m²/体	_	66.6	—	55.5
化	МА	体数割合	%	—	80	—	80
14 加	分	固化体容積率	—	—	0.720	_	0.632
分	離	体数	万体	0	2.30	0	2.02
場		面積小計	4 km ²	0	1.53	0	1.12
面	•	体数合計	万体	4	3.10	4	2.82
積	台計	面積合計	4 km ²	2.66	2.07	2.22	1.57
	āΤ -	面積比率	_	1	0.776	1	0.706

表 3.5.1-8 処分場所要面積評価結果 (ケース 5、6)

	<u>а</u> <u>т</u> <u>н</u>		<u>ж</u> /т	ケー	-ス7	ケー	-78	供去
No		垻 日	₽1⊻	MA非分離	MA分離	MA非分離	MA分離	頒考
1		使用済燃料冷却	-	再処理前	20年冷却	再処理前	30年冷却	
2	解	再処理後冷却	-	地層処分前	前50年冷却	地層処分育	前50年冷却	
3		岩盤条件		硬岩盤/深	聚度1000m	硬岩盤/浮	程度1000m	空洞安定性制限
4	イ件	処分体定置方式	-	竪置	方式	竪置	方式	・処分れ间隔≤2d ・坑道隔離距離≧2D
5		MA含有率(MA回収率)	-	100%(0%)	5%(95%)	100%(0%)	5%(95%)	
6		処分孔間隔	m	7.99(3.6d)	7.99(3.6d)	7.99(3.6d)	7.99(3.6d)	d=2.22m(孔径)
7		坑道隔離距離	m	10(2D)	10(2D)	10(2D)	10(2D)	D=5m(坑道径)
8	ਿ	処分体定置段数(n)	-	2	2	2	2	
9	析	固化体占有面積	m ² /本	40.0	40.0	40.0	40.0	*1
10	結	廃棄物含有率	%	100	165	100	202	処分場3次元熱伝
11	果	緩衝材最高温度	°C	96.4	96.9	97.3	97.4	導解析結果
12		最高温度発生年	年	30	20	400	30	MA非分離温度
13		ガラス固化体容積率	-	1	0.612	1	0.496	基準

表 3.5.1-9 3 次元熱伝導解析結果 (ケース 7、8)

	_						
			玉字	ケー	-ス7	ケー	-ス8
	· 」 · 」 · 」 · 」 · 」 · 」 · 」 · 」 · 」 · 」			従来管理法	柔軟管理法	従来管理法	柔軟管理法
	М	占有面積	m²/体	40.0	40.0	40.0	40.0
ガ	A	体数割合	%	100	20	100	20
ラ	 チ 分 離	体数	万体	4	0.8	4	0.8
ス		面積小計	4 km²	1.60	0.320	1.60	0.320
固		占有面積	m²/体		40.0	—	40.0
化体	М	体数割合	%	—	80	—	80
1/平 加	A 分	固化体容積率			0.613	_	0.496
分	離	体数	万体	0	1.96	0	1.59
場		面積小計	4 km²	0	0.785	0	0.635
面		体数合計	万体	4	2.76	4	2.39
積	台計	面積合計	4 km ²	1.60	1.10	1.60	0.955
		面積比率	_	1	0.690	1	0.597

表 3.5.1-10 処分場所要面積評価結果 (ケース 7、8)



図 3.5.1-1 総合潜在的有害度評価概念



図 3.5.1-2 使用済燃料の再処理前冷却期間



図 3.5.1-3 総合潜在的有害度の MA 回収率依存性



竪置方式(例:2段積配置)

※定置段数を考慮すると、実質的には22.2m²/本となる

図 3.5.1-4 2つの定置方式の概略図



※固化体より200m下方を本解析体系の境界条件として設定している。

図 3.5.1-5 処分場面積解析体系および処分場物性値





図 3.5.1-6 横置方式の処分場所要面積評価結果



図 3.5.1-7 堅置方式の処分場所要面積評価結果



図 3.5.1-8 潜在的有害度の再処理前冷却期間依存性



柔軟管理法(再処理前冷却期間(CT)、地層処分前貯蔵期間(SD))

図 3.5.1-9 相対処分場所要面積評価結果



※1: 図中の点線は各々の岩盤における最小処分孔間隔を示す

※2:図中の凡例「従来管理法」はMA非分離固化体、「柔軟管理法」はMA分離固化体を示す





図 3.5.1-11 高含有ガラス固化体採用時の処分場面積評価手順



図 3.5.1-12 相対処分場所要面積評価結果(顆粒化開始までの期間 10年)

3.5.2 MA/FP 発熱量低減効果評価【H28-R1】

(1) 4年間の計画

柔軟管理法が、発熱量低減効果により MA 含有燃料製造の信頼性向上に寄与することを確認す るため、FBR および ADS の導入シナリオを基にアクチニドマスバランスを解析し、MA 含有燃料の 発熱量を評価した。平成 28 年度は FBR および ADS の導入シナリオを検討し、平成 29 年度は柔軟 管理法の発熱量低減効果を評価するためのアクチニド核種の物量経時変化の解析・評価手法を検 討した。平成 30 年度および令和元年度は、MA 核変換システムとして FBR および ADS を導入した 場合の MA 含有燃料単位重元素重量当たりの発熱密度(W/kgHM)をそれぞれ評価し、柔軟管理法に よる発熱量低減効果を評価した。なお、回収アクチニドは高除染であることから FP は燃料中に ほとんど混入しないと仮定した。

(2) FBR および ADS の導入シナリオの検討[18] 【H28】

柔軟管理法の有効性として、潜在的有害度低減等の環境負荷低減とともに、MA 含有燃料の発 熱量低減による製造性向上や、ガラス固化体の FP 発熱量の低下による減容化が期待される。こ こでは、MA 含有燃料の発熱量低減による柔軟管理法の有効性評価のため、MA 核変換システムと して FBR および ADS の導入シナリオを検討し、柔軟管理法の有効性評価ケース、条件を設定した。

① FBR 移行サイクルの主要仕様

FBR 移行サイクルにおける原子炉システムおよび核燃料サイクルシステムを表 3.5.2-1 に示す。 FBR 導入は 2060 年(導入速度:0.51GWe/年)、第二再処理設備容量は 550t/年(50 年運転)と した。なお、設定した第二再処理設備容量は、後述するマスバランス評価のために設定した値で あり、再処理法に依存しないものである。

② アクチニドマスバランス評価

表 3.5.2-1 に示した種々の条件を基に、軽水炉使用済燃料、Pu、MA のマスバランスを評価し、 FBR 移行期の基本仕様の妥当性を確認した。

i)軽水炉使用済燃料のマスバランス評価

第二再処理で処理される軽水炉使用済燃料累積量を図 3.5.2-1 左図に示す。第二再処理には 23550 トンの軽水炉使用済燃料が供され、50 年間の運転後、930 トンの 60GWd/tUO₂使用済燃料が 残ることを確認した。

ii) Pu マスバランス評価

第二再処理による供給 Pu 量および FBR 立ち上げに必要な所要 Pu 量の推移を図 3.5.2-1 右図に 示す。評価の結果、2110 年時点で Pu は所要量に対して過不足なく供給されることがわかった。 また、余剰 Pu は FBR 導入期間を通じて最大 10 トンであり、制限量 30 トンを守って FBR 立上が 可能であることを確認した。

iii) MA マスバランス評価

柔軟管理法における MA マスバランス評価結果を図 3.5.2-2 に示す。同図の「MA 発生量」とは 第二再処理で処理される使用済燃料中および六ヶ所再処理で貯蔵された顆粒体中の MA 総量を指 し、「MA 分離量」とは FBR 初装荷燃料製造に供給される MA 量を指す。柔軟管理法の場合には六 ヶ所由来の 44 トンの顆粒体の MA が加わるため、燃料製造上の制限値の 5 %を守って 2060 年か ら 2110 年までの FBR 立上用初装荷燃料に装荷しても 25 トンの六ヶ所由来の MA が余剰となり、 FBR 取替燃料にも添加して MA 核変換を行うことが必要であることがわかった。

③ MA 核変換システム導入シナリオ設定

柔軟管理法の燃料発熱量低減の可能性を踏まえ、FBR および ADS による MA 核変換シナリオと して 2 つのシナリオ (柔軟管理法 I、II) を検討した。FBR サイクルおよび ADS サイクルにおけ る従来管理法、柔軟管理法 I、IIのシナリオ概略図をそれぞれ図 3.5.2-3 および図 3.5.2-4 に示 す。柔軟管理法 I は、六ヶ所再処理廃棄物のみを顆粒化し、第二再処理で発生する MA とともに FBR 等にて核変換するものである。柔軟管理法 I における FBR 導入後 10 年ごとの初装荷燃料の 発熱密度の変化を図 3.5.2-5 に示す。FBR 初装荷燃料の最大発熱密度は約 12W/kgHM (Heavy Metal: HM) となり、別途計算した従来管理法での FBR 初装荷燃料の最大発熱密度(約 11W/kgHM) より高い結果となった。一方、柔軟管理法 II は、六ヶ所再処理廃棄物のみならず、第 二再処理以降発生する廃棄物も顆粒化するものである。柔軟管理法 II における FBR 導入後 10 年 毎の初装荷燃料発熱密度の変化を図 3.5.2-6 に示す。FBR 初装荷燃料の最大発熱密度は 9W/kgHM 程度となり、柔軟管理法 I や従来管理法と比較して発熱密度を低減することができた。したがっ て、柔軟管理法 II を採用することにより、MA 含有初装荷燃料の発熱量低減が可能であることが 確認された。[18]

(3) アクチニド核種の物量経時変化の解析・評価手法の検討【H29】

FBR および ADS の導入シナリオを基に、柔軟管理法の発熱量低減効果を評価するためのアクチ ニド核種の物量経時変化の解析・評価手法を設定した。

① 簡便アクチニド燃焼解析コード開発

FBR や ADS の MA 含有燃料発熱量評価においては、CT が異なる種々のタイプの軽水炉使用済燃 料や顆粒体から得られるアクチニドの重量組成を初装荷燃料組成とし、FBR や ADS によるアクチ ニド多重リサイクル解析を行う必要がある。そこで、簡便にアクチニド燃焼を解析できるコード を開発し、単純化した長期マスフローと組み合わせた物量経時変化評価手法を設定した。

i) 簡便アクチニド燃焼解析コードの基本仕様

本開発で採用したアクチニド燃焼解析簡便コードの主要基本仕様および燃焼方程式を表 3.5.2-2 に示す。本開発コードの基本モデルは ORIGEN コードと同じであり、エネルギー1 群、空間1点近似モデルである[32]。また、基本方程式は連立1次核種燃焼・減衰方程式である。

ii) ORIGEN コードのベンチマーク解析による検証

簡便アクチニド燃焼解析コードの妥当性と解析精度を把握するため、幅広く標準的に使われて いる ORIGEN コードによるベンチマーク解析を行った。燃焼末期における同位元素組成のベンチ マーク計算結果を図 3.5.2-7 に示す。簡便燃焼コードによるアクチニド各核種の重量は ORIGEN コードとほぼ一致した。したがって、簡便燃焼コードは妥当であり、ORIGEN コードとほぼ同等 の精度を有していることがわかった。

② MA 核変換評価における燃料バッチ MA リサイクル法の導入

FBR から取り出された MA は炉外滞在期間を経て炉心に装荷されるが、時期のずれにより同じ 炉心に戻らず、別の炉心に装荷されることになるため、特定の炉心に着目して MA を多重リサイ クルさせると、多種類の履歴の MA を同時に取り扱う必要があり複雑である。本研究の目的は 種々廃棄物管理法における MA 含有燃料発熱量の差異を評価して柔軟管理法の課題や有効性を明 らかにすることであり、MA 核変換の全体について一般性のある評価が重要である。そこで、簡 便で長期的な履歴をカバーした評価を行うために、炉心着目に代わる新たな MA リサイクルモデ ルを導入した。FBR 核変換炉心の燃料バッチモデル概念を図 3.5.2-8 に示す。FBR 炉心は 4 バッ チから成り、1 サイクルごとに初装荷燃料は 1/4 ずつ取替燃料に置き換えられ、初装荷燃料に続 く取替燃料(取替 1、取替 2 等)はすべて 4 サイクル期間炉内に滞在する。以上より、新たな MA リサイクルモデルとして、4 タイプのバッチに着目し、長期 MA リサイクルのマスバランスを評 価することで長期の履歴をカバーする手法を導入することとした。

③ 従来管理法における燃料バッチ MA リサイクル解析結果

従来管理法における核変換サイクルごとの燃料バッチの初期 MA 核種別含有率の変化を図 3.5.2-9に示す。FBR 初装荷燃料の MA 含有率は 4.1 %、第 1 次核変換による MA 取り出し変換率 は約 40 %であり、公開資料[33]における変換率とほぼ一致した。 特に MA 主成分である²⁴¹Am は 顕著に減少しており、FBR による核変換は環境負荷低減に有効であることがわかった。また、 FBR 新燃料の発熱密度の変化を図 3.5.2-10に示す。新燃料の発熱密度は初期燃料に対して取替 1、 取替 2 では約 2 倍に上昇し、最大 16.4W/kgHM となった。発熱量に寄与する主たる核種は²⁴¹Am、 ²³⁸Pu、²⁴⁴Cm であり、取替 1 では²⁴¹Am 量は減少するが²³⁸Pu 量および²⁴⁴Cm 量が増え、発熱量が大 幅に増加している。発熱量増加に寄与する主たる核変換系列は、²⁴¹Am の中性子吸収による核変換 とそれに続く崩壊であり、加えて²³⁷Np の核変換による²³⁸Pu の生成であると推察される。[19]

(4) FBR 導入時の MA 含有燃料発熱量の低減効果評価【H30】

MA 核変換システムとして FBR を導入した場合において、柔軟管理法適用によるアクチニド核 種の物量変化、MA 含有燃料の発熱量を解析し、柔軟管理法の燃料製造性に対する有効性を評価 した。評価ケースは、ケース1:柔軟管理法I(MA リサイクル遅延なし)、ケース2:柔軟管理 法IIの MA リサイクル 14 年遅延で MA 初装荷燃料含有率5%、ケース3:柔軟管理法IIの MA リサ イクル 28 年遅延で MA 初装荷燃料含有率5%、ケース4:柔軟管理法IIの MA リサイクル 28 年遅 延で MA 初装荷燃料含有率3.5%、の4 種類とした。

① FBR 新燃料発熱量解析評価条件

FBR 新燃料発熱量評価の主要条件を表 3.5.2-3 に示す。FBR の MA 含有燃料の発熱量評価におい ては、CT が異なる種々のタイプの軽水炉使用済燃料や顆粒体から得られるアクチニドを初装荷 燃料として、FBR によるアクチニド多重リサイクル解析を行った。解析には、H29 年度に開発し た簡便アクチニド燃焼解析コードを使用した。

② 柔軟管理法 I における新燃料発熱量評価結果

柔軟管理法 I における新燃料発熱密度の変化(ケース 1)を図 3.5.2-11 左図に示す。同図よ り新燃料発熱密度の最大は取替 3 で 20.2W/kgHM となり、従来管理法での最大発熱密度 16.4W/kgHM に比べて増加した。発熱主要核種は²⁴⁴Cm と²³⁸Pu である。柔軟管理法 I が従来管理法 に比べ新燃料発熱量が高くなったのは、六ヶ所再処理発生の MA を装荷して核変換したため、 ²⁴¹Am および²³⁷Np の装荷量が増えて²⁴⁴Cm および²³⁸Pu の生成量が増えたことが影響していると考 えられる。燃料製造時の発熱量については、初期組成の MA 含有率 5 %(発熱密度 15W/kgHM) 程 度であれば既存技術が適用可能であると言われている[34]。したがって、FBR 新燃料発熱密度の 目標値は 15W/kgHM 以下となり、柔軟管理法 I においては燃料製造性の観点から発熱量低減対策 が課題となることが明らかになった。

③ 柔軟管理法 II における新燃料発熱量評価結果

i) MA リサイクル 14 年遅延の場合

六ヶ所再処理発生の MA をリサイクルすることを前提に第二再処理発生の MA についても顆粒化 貯蔵し、1 サイクルすなわち 14 年貯蔵後にリサイクルする 14 年遅延リサイクルについて、新燃 料発熱密度を解析評価した(ケース 2)。ケース 2 における発熱密度変化を図 3.5.2-11 右図に 示す。新燃料発熱密度は取替燃料 2 で最大となるが 12.5W/kgHM であり、柔軟管理法II は従来管 理法および柔軟管理法I に比べて発熱量を約 24 %および約 38 %低減できることがわかった。 新燃料発熱量低減の要因は、第二再処理で発生した MA を直ちに FBR 新燃料に添加して FBR によ る燃焼・核変換に供するのではなく、FP とともに顆粒化して 1 サイクル分の 14 年間貯蔵し、次 のサイクルにおいて MA を分離して新燃料に添加したことにより、発熱量の大きい ²⁴⁴Cm(半減期 18 年)の減衰が進み発熱密度への寄与が減ったためであると考えられる。

ii) MA リサイクル 28 年遅延の場合

上記と同様に MA 遅延期間を 28 年とした場合(ケース 3)の発熱密度変化を図 3.5.2-12 左図 に示す。新燃料発熱密度は取替燃料 3 で最大の 9.3W/kgHM となり、さらなる発熱量低減効果が得 られ、柔軟管理法II(ケース 3)は従来管理法に比べて発熱量を約 43 %低減できることがわか った。また、MA 初期含有率を 5 %から 3.5 %に変動させた場合(ケース 4)の発熱密度変化を 図 3.5.2-12 右図に示す。新燃料発熱密度は取替燃料 3 で最大の 10W/kgHM となり、ケース 3 での 9.3W/kgHM よりも増加した。これにより、FBR 初装荷燃料 MA 含有率は燃料製造上の制約(上限) である 5 %とすることが妥当であることがわかった。[20]

(5) ADS 導入時の MA 含有燃料発熱量の低減効果評価【R1】

ADS 導入時のアクチニド核種量、MA 含有燃料発熱量を解析し、柔軟管理法 II の燃料製造性に対 する有効性を評価した。

① ADS 新燃料発熱量解析評価条件

ADS 新燃料発熱量評価の主要条件を表 3.5.2-4 に示す。JAEA が開発している ADS による MA 核 変換は、Pu および MA の窒化物から成る燃料を炉心に装荷し、加速器により駆動された陽子ビー ムを Pb-Bi ターゲットに照射して発生する中性子により未臨界状態の炉心内燃料の MA 核変換を 行う[35]。ADS 炉心の初装荷燃料 Pu は第二再処理において軽水炉 UO₂ および混合酸化物 (Mixed Oxide: MOX) の使用済燃料から分離して供給し、取替燃料 Pu は使用済 ADS 燃料の再処理により 得られるものを再装荷し外部から供給しないものとする。

ADS 初期燃料のアクチニド核種組成を表 3.5.2-5 に示す。初装荷燃料の MA は第二再処理から 供給されるが、取替燃料の MA は使用済 ADS 燃料の残留 MA と FBR 再処理から供給される。ADS 炉 心は1 バッチで構成され、実効運転日数 600 日ごとに全炉心の燃料が取り替えられる。ADS 燃料 の取り出し燃焼度は 200GWd/t、炉外滞在期間は3 年である。以上より、ADS 燃料の核変換に伴う 核種組成変化と新燃料発熱量は1 バッチ炉心1 点近似モデルにより燃焼→冷却→再処理→燃料加 工を1 サイクルとする繰り返し計算により解析評価することができる。解析には、平成30年度 と同様に簡便アクチニド燃焼解析コードを使用した。

ADS 新燃料発熱量の評価ケースをまとめて表 3.5.2-6 に示す。これらのケースは、平成 30 年度と同様に、従来管理法や柔軟管理法 I ・ II の廃棄物管理法の違いおよび遅延期間の違いによる影響等を評価するために設定した。なお、ADS における廃棄物管理法の概略図は図 3.5.2-4 に示されている。

② ADS 新燃料発熱量評価結果

i) 従来管理法 (ケース1) における評価結果

従来管理法では、第二再処理で発生した MA は Pu とともに ADS 燃料加工設備に供給されて新燃 料原料となり、ADS 炉心において核変換される。使用済 ADS 燃料は ADS 再処理設備において再処 理され、MA は再び燃料加工設備で新燃料に添加され、ADS 炉心による核変換サイクルを繰り返す。 ADS サイクルは炉心燃焼期間が約 2 年、冷却、再処理、加工の炉外滞在期間が約 3 年であり、1 サイクルの期間は約 5 年である。また、原子力発電を担う FBR の使用済燃料から分離回収される MA は、全量 ADS 取替燃料に添加して ADS 核変換に供される。

ケース1における初期、移行期、平衡期の ADS 燃料の Pu 核種含有率の変化を図 3.5.2-13、各 核変換サイクルの初期、末期の Pu 含有率および Pu 変換率の変化を図 3.5.2-14 に示す。核変換 サイクル番号は取替(燃料)番号と対応している。核変換サイクルの進行に伴い²³⁹Pu は大きく減 少する一方、²³⁸Pu は大きく増加するのが特徴であるが、Pu 含有率は初期の 40 %に対して移行期 の取替 5 で最大 42 %となり、それ以降は大きく変化しない。これは、²³⁹Pu は初期量が多く、か つ核反応断面積が大きいため減少量が大きくなっており、²³⁸Pu は FBR から供給される MA の²⁴¹Am の核変換→崩壊より生成されたものと解釈される。核変換サイクルの末期における Pu 変換率は 2 %程度となった。

また、ADS 燃料の MA 核種含有率の変化を図 3.5.2-15、核変換サイクルの初期、末期の MA 含有 率および MA 変換率の変化を図 3.5.2-16 に示す。核変換サイクルの進行に伴い²³⁷Np は 12 %から 6 %、²⁴¹Am は 41 %から 28 %に減少する一方、²⁴³Am は 7 %から 12 %、²⁴⁴Cm は 1 %から 8 % に増加するのが特徴であるが、MA 含有率は初期の 60 %に対して移行期の取替 5 で最大 58 %と なり、それ以降は大きく変化しない。このように、MA 核種は核変換に伴い高次化が進み、相対 的により重元素割合が多くなる。また、核変換サイクルの末期における MA 変換率は 10 %程度 とほぼ一定で推移する。

ADS 新燃料発熱密度の変化を図 3.5.2-17 に示す。ADS 新燃料発熱密度は、初期の 75W/kgHM から核変換サイクルの進行に伴い増加し、移行期の取替 5 で 315W/kgHM になり、平衡期の取替 12 で 372W/kgHM に達した。この結果、従来管理法における ADS 新燃料発熱密度は、FBR による MA 核変換の場合の目標最大発熱密度 15W/kgHM より約 25 倍大きいことがわかった。

ii)柔軟管理法I(ケース2)における評価結果

柔軟管理法 I は、ADS による MA 核変換において初装荷 MA を六ヶ所再処理で発生し顆粒化貯蔵 された MA としたケースである。ケース 2 における MA および Pu の供給元、条件、流れをケース 1 と比較して図 3.5.2-18 に示す。ケース 2 においては、初装荷燃料の Pu は第二再処理から供給 される LWR の UO₂および MOX 使用済燃料から発生したものであるが、MA は第二再処理での UO₂お よび MOX 使用済燃料からの MA に加え、六ヶ所再処理顆粒体の MA を含んだものである。取替燃料の Pu および MA はケース1 と同様に ADS 使用済燃料に残留した Pu/MA であり、追加 MA は FBR 使用済燃料に含有されていたものである。

ケース1とケース2における初期、移行期、平衡期の ADS 新燃料の Pu 核種含有率および MA 核 種含有率の変化をそれぞれ図 3.5.2-19 および図 3.5.2-20 に示す。ケース2の Pu 核種含有率は 核変換時期によらずケース1の場合とほぼ同じであり、²³⁹Pu が 1/4~1/5 程度に減少する一方、 ²³⁸Pu がその分増加し、Pu 核種全体としては初期の 40 %から 42 %程度に増加した。また、ケー ス2の MA 核種含有率は軽水炉(Light Water Reactor : LWR)の UO₂使用済燃料の MA のみから構 成されるため、相対的に ²³⁷Np が多く ²⁴¹Am が少ないが、移行期および平衡期においてはケース 1 とほぼ同一の組成となった。これは初期組成が異なっていても、サイクルが進むにつれて追加 MA により置換されていくためと解釈される。

ケース1とケース2における新燃料発熱密度変化を図 3.5.2-21に示す。ケース2の新燃料発 熱密度は初期サイクルでは 66W/kgHM であるが、移行期で 305W/kgHM、平衡期で 370W/kgHM と大 幅に増加し、ケース1と同様の傾向を示した。以上の検討より、ADS による MA 核変換において 初装荷燃料の MA 組成の違いが新燃料発熱密度に及ぼす影響は小さいこと、従来管理法や柔軟管 理法Iではサイクル平衡期の発熱密度が大幅に増加して燃料製造性へ大きく影響する可能性のあ ることが示された。

iii)柔軟管理法Ⅱ(ケース3)における評価結果

柔軟管理法 II (ケース 3) は、FBR 使用済燃料から発生する MA を顆粒化して貯蔵 (ケース 4~ 6 では ADS の MA や SF も貯蔵) し、所定の期間遅延 (減衰) させた MA を ADS 新燃料に追加する ことで、新燃料の発熱量を低減するものである。ケース 3 での遅延期間としては FBR による MA 核変換の場合を参考に 28 年とした。ケース 3 における MA および Pu の供給元、条件、流れを図 3.5.2-22 に示す。ケース 3 においては、初装荷燃料 Pu はケース 2 と同様に第二再処理から供給 される LWR の UO₂および MOX 使用済燃料から発生したものとした。一方、MA については、ii)の 結果から新燃料発熱密度に対する初装荷燃料の MA 組成の違いの影響が小さいことがわかったた め、ケース 3 以降の初装荷燃料 MA は六ヶ所再処理顆粒体に含まれる MA とした。取替燃料の Pu および MA はケース 2 と同様に使用済 ADS 燃料に残留するものとしたが、取替燃料に追加する MA は 28 年遅延させた FBR 使用済燃料由来の顆粒体 MA とした。

ケース3における初期、移行期、平衡期のADS 新燃料のPu 核種含有率および MA 核種含有率の 変化をそれぞれ図3.5.2-23 左図および図3.5.2-24 左図に示す。ケース3のPu 核種含有率につ いては、²³⁸Pu が移行期以降20%となり、ケース2に比べ増加しているのが特徴である。一方、 MA 核種含有率については、発熱密度への寄与の大きい²⁴⁴Cm がケース2より大きく低減した。こ れは、ケース3ではFBR 発生のMA を FP と一緒に顆粒化して28年間貯蔵後にADS 新燃料とした ことにより、半減期18年の²⁴⁴Cm が大幅に減少したためである。

ケース 3 における新燃料発熱密度変化を図 3.5.2-25 左図に示す。ケース 3 の新燃料発熱密度 は移行期で 249W/kgHM、平衡期で 293W/kgHM で、従来管理法より約 21 %減少するものの、²⁴⁴Cm の寄与はなお大きく、平衡期で約半分を占めている。これは、ADS 新燃料 MA には ADS 使用済燃 料からの残存分も含まれるためである。また、ケース 3 はケース 2 に比べて ²⁴¹Am や ²³⁸Pu の割合 が増加している。以上の検討より、ADS による MA 核変換において FBR 発生 MA の遅延リサイクル による発熱量低減効果は十分ではなく、ADS 使用済燃料残留 MA の対策が重要であることがわか った。

iv) ケース4における評価結果

ケース 3 における FBR 発生 MA の遅延リサイクル効果の検討結果を踏まえて、ADS 使用済燃料 残留 MA のリサイクル遅延効果(ケース 4) について評価した。本ケースでは、FBR 使用済燃料に 加え、ADS 使用済燃料に対しても顆粒化処理を行うものである。遅延期間としては FBR 発生 MA の遅延リサイクルと同様に 28 年とした。ケース 4 における MA および Pu の供給元、条件、流れ を図 3.5.2-22 に示す。ケース 4 においては初装荷燃料の Pu および MA はケース 3 と同様とした。 取替燃料の Pu および追加 MA はケース 3 と同一であるが、取替燃料に残留する MA は 28 年遅延さ せた ADS 使用済燃料由来の顆粒体 MA とした。

ケース4での初期、移行期、平衡期の ADS 新燃料の Pu 核種含有率および MA 核種含有率の変化 をそれぞれ図 3.5.2-23 右図および図 3.5.2-24 右図に示す。ケース4の Pu 核種含有率はケース 3 と大きく変わらないが、²⁴⁴Cm がケース 3 に比べ移行期で 1/4、平衡期で 1/5 と大きく低減した。 ケース4では FBR 発生の MA と同時に ADS 使用済燃料に残留する MA が FP とともに顆粒化され 28 年間貯蔵後に ADS 新燃料とするため、半減期 18 年の²⁴⁴Cm が大幅に減少するためである。

ケース4における新燃料発熱密度変化を図 3.5.2-25 右図に示す。同図より、ケース4の新燃 料発熱密度は移行期で 174W/kgHM、平衡期で 187W/kgHM で、従来管理法より約 50 %減少し、 ²⁴⁴Cm の低減効果が大きいことがわかった。また、ケース 4 においては、発熱量の主要部分を ²³⁸Pu が占めるようになり、さらなる発熱量の低減には ²³⁸Pu 対策が必要であることも明らかとな った。以上の検討より、ADS による MA 核変換において FBR 発生 MA とともに ADS 使用済燃料残留 MA を遅延リサイクルさせることにより、発熱量を大幅に低減できることがわかった。

v) ケース5における評価結果

ケース 4 での ADS 使用済燃料残留 MA のリサイクル遅延効果の検討結果を踏まえ、ADS 使用済 燃料遅延による残留 MA および残留 Pu のリサイクル遅延効果(ケース 5) について評価した。本 ケースでは、ケース 4 のように ADS 使用済燃料に対して顆粒化処理を行わず、燃料形態で貯蔵す るものである。遅延期間としては FBR 発生 MA の遅延リサイクルと同様に 28 年とした。ケース 5 における MA および Pu の供給元、条件、流れを図 3.5.2-26 に示す。ケース 5 においては初装荷 燃料の Pu/MA はケース 4 と同様とした。取替燃料に追加する MA もケース 4 と同様であるが、取 替燃料に残留する Pu/MA は ADS 使用済燃料を 28 年遅延させた後にリサイクルするものとした。

ケース5での初期、移行期、平衡期の ADS 新燃料の Pu 核種含有率および MA 核種含有率の変化 をそれぞれ図 3.5.2-27 左図および図 3.5.2-28 左図に示す。ケース5 の移行期から平衡期の ²³⁸Pu 含有率はケース 4 と比べて大きく低減した。これは、ケース 5 では ADS 使用済燃料に残留する Pu を MA とともに使用済燃料の形で 28 年間貯蔵しその後 ADS 新燃料としたことにより、半減期 87 年の ²³⁸Pu が有意に減少したためである。一方、MA 核種含有率についてはケース 4 と大きな違 いはなかった。これは、MA 遅延リサイクルに関してはケース 5 とケース 4 は同等になっている ためである。 ケース 5 の新燃料発熱密度変化を図 3.5.2-29 左図に示す。ケース 5 の新燃料発熱密度は移行 期で 138W/kgHM、平衡期で 139W/kgHM で、従来管理法より 63 %の減少となった。以上の検討よ り、ADS による MA 核変換において FBR 発生 MA とともに ADS 使用済燃料残留 Pu/MA を遅延リサイ クルさせることにより、発熱量はケース 4 よりさらに低減できることがわかった。

vi) ケース6における評価結果

ケース 5 における ADS 使用済燃料のリサイクル遅延効果の検討結果を踏まえて、リサイクル遅 延期間の効果について評価した(ケース 6)。遅延期間は 42 年とした。ケース 6 における MA・ Pu の供給元、条件、流れを図 3.5.2-26 に示す。ケース 6 およびケース 5 の違いは ADS 使用済燃 料のリサイクル遅延期間(28 年および 42 年)の違いのみであり、他の条件は同一である。

ケース6での初期、移行期、平衡期の ADS 新燃料の Pu 核種含有率および MA 核種含有率の変化 をそれぞれ図 3.5.2-27 右図および図 3.5.2-28 右図に示す。ケース6の²³⁸Pu 含有率はケース5 に比べて低減した。ケース6の新燃料発熱密度変化を図 3.5.2-29 右図に示す。ケース6の新燃 料発熱密度は移行期で 119W/kgHM、平衡期で 118W/kgHM で、従来管理法より 68 %の減少となっ た。以上の検討より、ADS による MA 核変換において ADS 使用済燃料の遅延リサイクルは発熱量 の低減に有効であることがわかった。しかし、ADS 使用済燃料の遅延リサイクルでは、FBR 供給 の MA 顆粒体の貯蔵に加え ADS 使用済燃料を貯蔵する設備を追加する必要があり、取替燃料に供 する Pu が不足し余剰 Pu の供給が必要となる等の課題が生じることに留意する必要がある。

③ まとめ

ADS による MA 核変換において柔軟管理法 I および II を適用した場合の ADS 新燃料発熱量を評価し、従来管理法と比較した際の発熱量低減効果を評価した。

- ・従来管理法(ケース1)での ADS 新燃料発熱密度は平衡期にて最大 372W/kgHM となり、六ヶ所 再処理廃棄物を顆粒化する柔軟管理法I(ケース2)でも最大 370W/kgHM となり、発熱量を低 減することができなかった。
- ・柔軟管理法Ⅱ(ケース3~6)においては、FBR使用済燃料から発生する MA を顆粒化し28 年間 貯蔵し遅延リサイクルする場合(ケース3)、ADS 新燃料発熱量は従来管理法より約21%低 減した。また、ADS使用済燃料に残留する MA を顆粒化し遅延リサイクルする場合(ケース4) は、ADS 新燃料発熱量は従来管理法より約50%低減した。
- ・ケース3および4での結果を踏まえ、さらなる低減効果を得るためにADS使用済燃料を貯蔵し 使用済燃料中に残留するPuおよびMAを遅延リサイクルするケース(ケース5、6)を検討し た。その結果、遅延期間28年の場合(ケース5)は従来管理法より約63%低減でき、遅延期 間42年の場合(ケース6)は約68%低減できることがわかった。ただし、ケース5および6 ではADS使用済燃料の貯蔵設備追加や不足Puの確保等の課題が生じる。

(6) 4年間の成果まとめ

FBR および ADS による MA 核変換において柔軟管理法(柔軟管理法Ⅰ、Ⅱ)を適用した場合の MA 含有燃料の発熱量低減効果を評価した。柔軟管理法Ⅰは六ヶ所再処理廃棄物のみを顆粒化し 第二再処理で発生する MA とともに FBR および ADS にて核変換するものであるが、FBR の場合は MA 含有燃料の発熱量最大値が約 20.2W/kgHM となり、従来管理法での 16.4W/kgHM に比べ約 23 % 増加した。また、ADS の場合、最大値は 370W/kgHM となり、従来管理法での最大値 372W/kgHM と あまり変わらなかった。一方、柔軟管理法 II は六ヶ所再処理廃棄物のみならず第二再処理廃棄物 も顆粒化するものであるが、第二再処理由来の顆粒体を所定の期間貯蔵した後に核変換システム に供する遅延リサイクルを導入することにより、FBR の場合は MA 含有燃料の発熱量最大値が 9.3W/kgHM (遅延期間 28 年)となり、従来管理法と比べて約 43 %低減できることがわかった。 また、ADS の場合、最大値は 293W/kgHM (遅延期間 28 年)となり、従来管理法と比べて約 21 % 減少することがわかった。ADS の場合、ADS 使用済燃料中の MA や Pu も遅延リサイクルさせると、 発熱量は約 50 %以上低減できる。以上の結果から、柔軟管理法 II は FBR および ADS の核変換シ ステムにおいて MA 含有燃料発熱量を大幅に低減し、燃料製造の信頼性向上に大きく寄与するこ とを確認した。

シ	マステム	主要条件(案)
	原子力発電量	•2030年以降:約25.5GWe 一定
原子炉 システム	軽水炉	 ・2030年~2060年: 燃料燃焼度45GWd/t ・2060年~2100年: 燃料燃焼度60GWd/t ・プルサーマル: 2060年以降なし⇒PulはFBR立ち上げに優先
	FBR	・FBR導入:2060年開始、0.51GWe/年または1.53GWe/3年 ・FBR炉心:高転換型FBR炉心
	炉外滞在期間	•軽水炉サイクル:4年、FBR サイクル:5年
燃料 サイクル システム	再処理	 ・第二再処理:2060年開始、軽水炉・FBR両用型 550t/年×50年 ・LWR-SF再処理:余剰 Pu<30tで処理量平準化を目標 ・FBR 再処理:2100年開始、FBR専用、~200t/年
	MA含有燃料	▪FBR 用燃料: MA 含有率は最大5% 重量率以下 ▪ADS用燃料: MA 含有率は約 60% 重量率

表 3.5.2-1 FBR 移行サイクル条件

※SF:使用済燃料(Spent Fuel)

No	項目	ORIGEN2	簡便燃焼コード	備考
1	基本方程式	連立1次動特性 微分方程式	連立1次動特性 微分方程式	
2	エネルギー群数	エネルギー1群	エネルギー1群	
3	空間モデル	1点近似モデル	1点近似モデル	
4	取り扱い事象・核種	全核種燃焼、冷却	アクチニド燃焼、冷却	
	(1)アクチニド	対象(59核種)	対象(22核種)	
	(2)核分裂生成物	対象	非対象	
5	断面積ライブラリー	最新ライブラリー JENDLE4.0	最新ライブラリー JENDLE4.0	
6	取り扱い核反応種類	核分裂、吸収、n,2n 反応、n,3n反応	核分裂、吸収、 n,2n反応	n,3n反応断面 積は3桁小さい
7	数値解法	Matrix Exponential 法	Matrix Exponential 法	

表 3.5.2-2 アクチニド簡便燃焼コード仕様

システム		項目	単位	仕様	備考	
原子炉 システム	FBR炉心燃料	燃焼度	GWd∕t	150		
		装荷金属重量	t/GWe	48.9		
		運転月数	月	26		
		稼働率	%	95		
		バッチ数	—	4		
		比出力	MW/tHM	50.1		
		Pu富化度	%	20		
		増殖比	—	1.03	ブランケット含む	
燃料 サイクル システム	六ケ所再処理	再処理容量	tHM/年	800		
		顆粒化MA重量	t	44.4	運開10年後以降	
	第二再処理	再処理容量	tHM/年	550	FBR再処理を兼用	
		LWR−SF燃焼度	GWd/t	UO ₂ :45,60	(第二再処理後の	
			GWd/t	MOX:33、45	FBR再処理要領は	
		FBR-SF燃焼度	GWd/t	MOX:150	200tHM/年)	
		炉外滞在年数	年	5		
	燃料加工	MA含有率	%	5%以下		
		MA遅延	年	0,14,28,42		

表 3.5.2-3 FBR 新燃料発熱量評価条件

表 3.5.2-4 ADS 新燃料発熱量評価条件

システム		項目	仕様			
ADS システム	ADS炉心燃料	熱出力	800MWt			
		燃焼度	120GWd/tHM			
		装荷金属重量	4t/GWe			
		運転日数	600日			
		バッチ数	1			
		比出力	200MW/tHM			
		Pu富化度	40%			
		MA装荷量	2.4t			
		MA富化度	60%			
		再処理前期間	3年			
燃料 サイクル システム	ADS再処理	初装荷燃料	Pu: 第二再処理供給			
			MA: 第二再処理または六ヶ所顆粒体供給			
		取替燃料	Pu: 残留Puのみで構成(外部供給なし)			
			MA: FBR再処理または六ヶ所顆粒体供給			
	第二再処理	LWR-SF 燃焼度	UO ₂ : 45GWd/tHM、60GWd/tHM			
			MOX: 33GWd/tHM、45GWd/tHM			
		FBR-SF 燃焼度	MOX: 150GWd/tHM(MA非含有リサイクル)			
	六ヶ所再処理	顆粒体燃焼度	33GWd/tHM、45GWd/tHM			
		顆粒体CT				

No	1	2	3	
惑 出 元	二再発生	FBR	六ヶ所発生	
光生儿	LWR	平衡	顆粒体	
Np237	1.932E-01	1.220E-01	3.262E-01	
Np238	1.533E-10	2.869E-09	6.639E-11	
Np239	8.906E-08	1.648E-07	6.713E-08	
Am241	6.834E-01	6.076E-01	5.800E-01	
Am242	9.761E-09	2.005E-07	4.236E-09	
Am242m	8.196E-04	1.494E-02	3.541E-04	
Am243	1.036E-01	1.865E-01	7.811E-02	
Cm242	1.977E-06	4.640E-05	8.565E-07	
Cm243	1.956E-04	1.861E-03	1.420E-04	
Cm244	1.419E-02	5.970E-02	1.308E-02	
Cm245	4.212E-03	6.846E-03	1.923E-03	
Cm246	2.981E-04	4.753E-04	1.899E-04	

1.0 0.9 Np237 0.8 Np238 0.7 Np239 0.6 0.5 0.4 Am241 Am242 Am242m Am243 Cm242 Cm243 0.3 Cm244 0.2 Cm245 Cm246 0.1 0.0 LWR 平衡 顆粒体 二再発生 FBR 六ヶ所発生

表 3.5.2-5 ADS 初期燃料のアクチニド核種組成

表 3.5.2-6 ADS 新燃料発熱量評価ケースまとめ

	廃棄物 管理法	初装荷燃料		取替燃料					
ケース		Pu	MA	追加MA		残留Pu		残留MA	
				供給元	遅延期間	供給元	遅延期間	供給元	遅延期間
1	従来管理法	第二再 (UO ₂ /MOX-SF)	第二再 (UO ₂ /MOX-SF)	FBR-SF	5年	ADS-SF	5年	ADS-SF	5年
2	柔軟管理法 I	第二再 (UO ₂ /MOX-SF)	第二再 (UO ₂ /MOX-SF+ 六ヶ所顆粒体)	FBR-SF	5年	ADS-SF	5年	ADS-SF	5年
3	柔軟管理法 Ⅱ	第二再 (UO ₂ /MOX-SF)	第二再 (六ヶ所顆粒体)	FBR 顆粒体	28年	ADS-SF	5年	ADS-SF	5年
4	柔軟管理法 Ⅱ	第二再 (UO ₂ /MOX-SF)	第二再 (六ヶ所顆粒体)	FBR 顆粒体	28年	ADS-SF	5年	ADS 顆粒体	28年
5	柔軟管理法 Ⅱ	第二再 (UO ₂ /MOX-SF)	第二再 (六ヶ所顆粒体)	FBR 顆粒体	28年	ADS-SF	28年	ADS-SF	28年
6	柔軟管理法 Ⅱ	第二再 (UO ₂ /MOX-SF)	第二再 (六ヶ所顆粒体)	FBR 顆粒体	28年	ADS-SF	42年	ADS-SF	42年

★1:網掛け部は前ケースからの変更箇所を示す。 ※1:網掛け部は前ケースからの変更箇所を示す。 ※2:「遅延期間5年」はADSでの1サイクル期間(炉内滞在期間:2年+炉外滞在期間3年)を指し、「遅延期間28年/42年」は核種を減衰させるために設定した貯蔵期間を指す。



図 3.5.2-1 FBR 移行期の軽水炉使用済燃料量推移と Pu マスバランス推移



図 3.5.2-2 FBR 移行期の MA マスバランス推移(柔軟管理法)



図 3.5.2-3 FBR サイクルにおける従来管理法および柔軟管理法 I・Ⅱの概略図



図 3.5.2-4 ADS サイクルにおける従来管理法および柔軟管理法 I・Ⅱの概略図



図 3.5.2-5 柔軟管理法 I における FBR 初装荷燃料の発熱密度評価結果



図 3.5.2-6 柔軟管理法 II における FBR 初装荷燃料の発熱密度評価結果



図 3.5.2-7 簡便燃焼コードベンチマーク解析結果



<u>FBR核変換炉心の燃料バッチ構成概念</u>

通常、炉心全体模擬の燃焼解析により MAリサイクル評価

図 3.5.2-8 FBR 核変換における燃料バッチモデル概念


図 3.5.2-9 FBR 新燃料の MA 含有率の変化(従来管理法)



図 3.5.2-10 FBR 新燃料の発熱密度の変化(従来管理法)



図 3.5.2-11 FBR 新燃料発熱密度の変化(ケース1、2)



図 3.5.2-12 FBR 新燃料発熱密度の変化(ケース 3、4)





図 3.5.2-14 ADS 新燃料の Pu 含有率および変換率の変化(従来管理法、ケース 1)







図 3.5.2-16 ADS 新燃料の MA 含有率および変換率の変化(従来管理法、ケース 1)



図 3.5.2-17 ADS 新燃料の発熱密度の変化(従来管理法、ケース1)



※朱記部は、前ケースからの変更箇所を示す

図 3.5.2-18 ケース1およびケース2における Pu/MA 流れ



図 3.5.2-19 ADS 新燃料の Pu 核種含有率の変化(ケース1、2)



図 3.5.2-20 ADS 新燃料の MA 核種含有率の変化(ケース 1、2)



図 3.5.2-21 ADS 新燃料の発熱密度の変化(ケース1、2)



※朱記部は、前ケースと比べて変更のあった箇所を示す

図 3.5.2-22 ケース 3 およびケース 4 における Pu/MA 流れ



図 3.5.2-23 ADS 新燃料の Pu 核種含有率の変化(ケース 3、4)



図 3.5.2-24 ADS 新燃料の MA 核種含有率の変化(ケース 3、4)



図 3.5.2-25 ADS 新燃料の発熱密度の変化 (ケース 3、4)



図 3.5.2-26 ケース5およびケース6における Pu/MA 流れ



図 3.5.2-27 ADS 新燃料の Pu 核種含有率の変化(ケース 5、6)



図 3.5.2-28 ADS 新燃料の MA 核種含有率の変化(ケース 5、6)



図 3.5.2-29 ADS 新燃料の発熱密度の変化(ケース5、6)

3.6 研究推進【R1】

本業務では、研究開発の効率的かつ効果的な遂行を目的として、各研究項目の担当責任者が集 まって議論する推進会議を実施したほか、研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にし て研究を進めるために、進捗確認および研究項目間の整合性検討を行う研究推進を実施した。ま た、広く意見を聴きながら研究を進めるため 10 名の各専門分野のリーダーに技術評価委員をお 願いし、研究進捗状況の説明を行った。研究推進・技術評価に関わる令和元年度の会合を下記に 示す。その結果、担当者間の十分な情報共有とともに各専門分野からの意見を踏まえて、研究開 発を効率的かつ効果的に遂行することができた。

なお、令和元年度の成果の公表として、国内学会で11件、国際会議で5件の発表を行った。

(1) 令和元年度の技術評価委員への説明、推進会議、研究項目間打ち合わせの概要

- ・文部科学省(以下、MEXTと略記。)公募柔軟な廃棄物管理法実施全体概要打ち合わせ
 - 日時 2019年5月24日(金) 12:30~15:00
 - 場 所 日立GE海岸工場
 - 出席者 深澤 哲生、遠藤 慶太、山下 淳一、鈴木 晶大、遠藤 洋一
 - 主な議事 柔軟な廃棄物管理法適用効果のうち貯蔵設備低減効果および処分場面積低減に よる環境負荷低減効果の評価パラメータの制約条件に関する打ち合わせを行っ た。
- ・MEXT 公募 柔軟な廃棄物管理法の九大試験詳細打ち合わせ
 - 日 時 2019年6月3日(月) 10:00~12:30
 - 場 所 九州大学
 - 出席者 稲垣 八穂広、有馬 立身、鈴木 晶大
 - 主な議事 貯蔵中の顆粒体によるキャニスタ内面腐食に関し3年間の試験で明らかになっ たルテニウムによる特異な腐食についての検討を行った。
- ・MEXT 公募 柔軟な廃棄物管理法実施全体概要打ち合わせ
 - 日 時 2019年7月3日(水)11:00~17:30
 - 場 所 JAEA 東海
 - 出席者 松村 達郎、石井 翔、伴 康俊、鈴木 晶大、遠藤 洋一
 - 主な議事 貯蔵後の顆粒体の再廃液化の本年度試験パラメータを検討するために、3年間 の模擬顆粒体製造および試験条件パラメータの詳細を確認した。
- ・MEXT 公募 柔軟な廃棄物管理法の照射試験実施内容詳細打ち合わせ
 - 日 時 2019年7月12日 (金) 9:00~12:00
 - 場 所 大阪大学
 - 出席者 室屋 裕佐、鈴木 晶大
 - 主な議事 貯蔵中の顆粒体の自己放射線分解の本年度試験では、製造段階で発生する吸湿 量見積と同レベルの吸湿量をパラメータとした試験を実施することとした。

- ・MEXT 公募 柔軟な廃棄物管理法の再溶解詳細条件打ち合わせ
 - 日 時 2019年7月19日 (金) 9:00~12:00
 - 場 所 JAEA 東海
 - 出席者 松村 達郎、石井 翔、伴 康俊、鈴木 晶大、遠藤 洋一
 - 主な議事 貯蔵後の顆粒体の再廃液化試験に関して、3年間の模擬顆粒体製造および試験 条件パラメータの詳細から、本年度試験条件の詳細を打ち合わせた。
- ・MEXT 公募 柔軟な廃棄物管理法 技術評価委員への進捗状況説明
 - 日 時 2019年8月1日(木) 14:00~16:00
 - 場 所 日本原燃株式会社(以下、JNFLと略記。)
 - 出席者 兼平 憲男(以上、技術評価委員)、深澤 哲生、山下 淳一、鈴木 晶大
 - 主な議事 事業の進捗状況について説明を行い、特に有効性評価についてどのようなアウ トプットが出せるのか検討することとなった。
- ・MEXT 公募 柔軟な廃棄物管理法 技術評価委員への進捗状況説明
 - 日 時 2019年8月7日 (水) 15:00~17:00
 - 場 所 JNFL 東京事務所
 - 出席者 兼平代理:石尾 貴宏(以上、技術評価委員)、深澤 哲生、山下 淳一、 鈴木 晶大
 - 主な議事 柔軟な廃棄物管理法の有効性評価において、潜在的有害度低減に付随して発生 する貯蔵設備低減や処分場面積低減について説明を行った。
- ・MEXT 公募 柔軟な廃棄物管理法 共存性試験打ち合わせ
 - 日 時 2019年8月8日 (木) 9:00~12:00
 - 場 所 九州大学
 - 出席者 稲垣 八穂広、有馬 立身、鈴木 晶大
 - 主な議事 貯蔵中の顆粒体によるキャニスタ内面腐食に関する試験詳細パラメータ設定と して、使用する模擬顆粒体および試験期間・温度の詳細を打ち合わせた。
- ・MEXT 公募 柔軟な廃棄物管理法 第1回研究推進会議
 - 日 時 2019年9月12日 (水) 19:45~22:00
 - 場 所 富山県民小劇場会議室
 - 出席者 稲垣 八穂広、有馬 立身、室屋 裕佐、松村 達郎、石井 克典、川口 浩一、 深澤 哲生、遠藤 慶太、山下 淳一、鈴木 晶大、遠藤 洋一
 - 主な議事 各再委託先も含め実施している試験や検討のうち顆粒体の製造および再廃液化 について得られつつある成果の整合性の検討を実施した。

- ・MEXT 公募 柔軟な廃棄物管理法に関する西地区研究推進会議
 - 日 時 2020年1月14日 (火) 13:30~17:00
 - 場所 新橋駅前ビル1号館4階 Philport 大会議室
 - 出席者 稲垣 八穂広、有馬 立身、室屋 裕佐、川口 浩一、深澤 哲生、渡邉 大輔、 山下 淳一、鈴木 晶大、遠藤 洋一
 - 主な議事 各再委託先も含め実施している試験や検討のうち顆粒体の貯蔵に関して、九大、 阪大、日立GEで得られつつある成果の整合性の検討を実施した。
- ・MEXT 公募 柔軟な廃棄物管理法 平成 30 年度技術評価委員会
 - 日 時 2020年1月16日 (木) 13:30~16:30
 - 場所 新橋駅前ビル1号館4階 Philport 大会議室
 - 出席者 黒崎 健、勝村 庸介、池田 泰久、阿部 仁、佐藤 正知、松本 史朗、兼平 憲男 (以上、技術評価委員)、松村 達郎、深澤 哲生、鈴木 晶大、遠藤 洋一
 - 主な議事 技術評価委員に事業の進捗状況について説明を行い、実機ロータリーキルンに おける製造装置の構造、貯蔵時の取り扱いの制約などのコメントを得た。
- (2) 令和元年度の国内学会(原子力学会)における成果の公表状況

2019 年秋の大会

- 日 時 2019年9月13日 (木) 14:45~16:15
- 場 所 富山大学 五福キャンパス
- 共通題目: MA 分離変換技術の有効性向上のための柔軟な廃棄物管理法の実用化開発
 - ・副題:(16)顆粒体製造技術開発の進捗状況
 - 発表者:遠藤 洋一、鈴木 晶大、大内 敦
 - 要旨:将来確立する MA 分離変換技術への適用を目指し、再処理後の高レベル廃液を 乾燥・か焼・顆粒化し貯蔵する柔軟な廃棄物管理法の実用化開発を進めている。 高レベル廃液を模擬した非放射性硝酸溶液を連続式ロータリーキルンに注入し、 一連のプロセスで乾燥・か焼・顆粒化し、模擬顆粒体を得ることができた。模 擬顆粒体を加熱プレスすることで、低荷重で充填率 93 %・直径 3.0cm の高密 度体の作製に成功した。
 - ・副題:(17)顆粒体製造設備の基本的な設計

発表者:川口 浩一、瀬川 智臣、石井 克典、鈴木 晶大

- 要旨:使用済核燃料の再処理で発生する高レベル放射性液体廃棄物を中間貯蔵に適し た安定な形態にするための、ロータリーキルンの概念設計検討を行った。遠隔 保守に対応するため、遠隔ハンドリング装置で分割可能な構造とした。
- ・副題:(18) HLW 顆粒体のキャニスタ封入前の吸湿による貯蔵時化学安定性への影響
 発表者:室屋 裕佐、鈴木 晶大、遠藤 洋一
 要旨:HLW 顆粒体の貯蔵時化学的安定性に関して、吸湿させた模擬顆粒体へのγ線照

射を行ったところ放射線分解による NOx や H₂の発生が増えることがわかり、 顆粒体製造後は湿潤空気になるべく触れさせずにキャニスタに封入する必要が あることがわかった。

・副題:(19)顆粒体再溶解時のAm, Cm, Npの再廃液化挙動 発表者:松村 達郎、石井 翔、鈴木 晶大

- 要旨:MA を添加した模擬 HLW か焼粉末の再溶解試験を実施し、再溶解時の移行挙動 について評価を行った。MA はほぼ希土類元素と同様な挙動を示すことを確認 した。
- ・副題:(20)模擬顆粒体実測物性値による貯蔵容積低減効果評価
 発表者:遠藤 慶太、深澤 哲生、星野 国義、鈴木 晶大
 要旨:NFDにて測定された模擬顆粒体の熱伝導率を基に顆粒体貯蔵時の貯蔵設備容
 - 積および経済性を評価した。
- ・副題:(21)FBRサイクルシナリオにおける柔軟な廃棄物管理法の有効性
 - 発表者:深澤 哲生、遠藤 慶太、星野 国義、鈴木 晶大
 - 要旨:FBR 導入後の燃料サイクルシステムにおいて、柔軟な廃棄物管理法を適用した 場合の、MA 含有燃料製造時の発熱量低減効果について評価した結果を報告し た。

2020 年春の年会

(2020年3月16日~18日に福島大学で開催予定であったが、新型コロナウィルス感染拡大防止対策のために開催中止となった。研究発表に関しては、2月27日に予稿集が公開されたことを以て発表は成立したものとして、学会で認定された。)

共通題目: MA 分離変換技術の有効性向上のための柔軟な廃棄物管理法の実用化開発

- ・ 副題: (22) システム概念仕様の検討
 - 発表者:鈴木 晶大、遠藤 洋一、稲垣 八穂広、有馬 立身、室屋 裕佐、松村 達郎、 石井 克典、深澤 哲生
 - 要旨:柔軟な廃棄物管理システム全体の概念仕様、および各要素である顆粒体製造技 術・顆粒体貯蔵技術・再廃液化技術の概念仕様の検討状況を報告した。
- ・副題:(23)高レベル廃棄物顆粒体製造用ロータリーキルンの運転パラメータの検討 発表者:遠藤 洋一、鈴木 晶大
 - 要旨:高レベル廃液を連続注入しながら乾燥・か焼・顆粒化して高レベル廃棄物顆粒 体を製造するためにロータリーキルン法を選定し、顆粒体作製技術を開発して いる。実験室規模のロータリーキルン試験装置で要素試験を実施し、得られた 結果を基に実機ロータリーキルンへの適用性を検討した。

・副題:(24)顆粒体製造設備の基本的な設計(その2)

発表者:川口 浩一、石井 克典、鈴木 晶大

- 要旨:使用済核燃料の再処理で発生する高レベル放射性液体廃棄物を中間貯蔵に適し た安定な形態にする顆粒体製造設備の主要な構成要素であるロータリーキルン について、設備のコンパクト化を目指した設計検討を行った。
- ・副題: (25)処分場面積への岩盤種類等の影響評価

発表者:遠藤 慶太、星野 国義、深澤 哲生、鈴木 晶大

- 要旨:柔軟管理法適用時の処分場面積低減効果について、地層処分場の岩盤種類、使 用済燃料の再処理前冷却期間等をパラメータとし評価した。
- ・副題:(26)HLW顆粒体の製造条件の違いによる貯蔵時化学安定性への影響 発表者:室屋 裕佐、鈴木 晶大、遠藤 洋一
 - 要旨:HLW 顆粒体の貯蔵時化学的安定性に関して、含水率や焼成温度など、か焼体の 条件を複合的に変化させて、放射線分解により発生する水素および NOx の発生 量評価や反応機構の検討を行った。
- (3) 令和元年度の国際会議における成果の公表状況
 - International High-Level Radioactive Waste Management Conference (IHLRWM)
 米国・ノックスビル、2019年4月14日~4月17日、Global, pp. 421-424, (2019)
 題目: Investigating Conditions for Manufacturing Uniform Simulated High-Level
 Waste Granules Using A Batch Type Rotary Kiln
 発表者:鈴木 晶大、遠藤 洋一、水迫 文樹、大内 敦、松島 健一
 要旨:バッチ式ロータリーキルン試験装置を用いて、元素分布が一様な高レベル廃棄物
 顆粒体の作製技術開発の進捗を報告した。
 - ・International High-Level Radioactive Waste Management Conference (IHLRWM) 米国・ノックスビル、2019年4月14日~4月17日、IHLRWM, pp. 411-415, (2019)
 - 題目:Effect of Calcination Temperature on Microphase Structure in Simulated High-Level Waste Calcine
 - 発表者:遠藤 洋一、鈴木 晶大
 - 要旨:模擬高レベル廃液を種々の温度でか焼し、組成ミクロ分布を SEM/EDS で微細組織 観察並びに局所元素分析することでミクロ領域での化合物形成や相分離の様子を 観察した結果を報告した。
 - International Nuclear Fuel Cycle Conference (Global2019)

米国・シアトル、2019 年 9 月 22 日~26 日、Global, pp. 1130-1135, (2019)

題目:Compatibility of Pellet Form Storage of High-Level Waste with a Flexible

Waste Management System

発表者:鈴木 晶大、遠藤 洋一、深澤 哲生、室屋 裕佐、松村 達郎

要旨:高レベル廃棄物を高密度顆粒体として貯蔵した場合の柔軟な廃棄物管理システム の成立性を示した。

International Nuclear Fuel Cycle Conference (Global2019)
米国・シアトル、2019年9月22日~26日、Global, pp. 493-497, (2019)
題目: Status of Research and Development of Fabricating Large-Size High-Level
Waste Pellet by Hot Press
発表者:遠藤 洋一、鈴木 晶大
要旨:細径キャニスタに準じた径の高密度顆粒体の作製技術開発の進捗を報告した。

 \cdot The $43^{\rm rd}$ Scientific Basis for Nuclear Waste Management (SBNWM)

オーストリア・ウィーン、2019年10月21日~24日

題目: Investigation of Calcined HLW Storage to Apply Minor Actinide Partitioning & Transmutation technology to SNF from LWR 発表者:遠藤 洋一、鈴木 晶大、石井 克典、松村 達郎、深澤 哲生

要旨:高レベル廃液に柔軟な廃棄物管理法を適用して再廃液化することによる高レベル 廃液の組成変化を調べた。

4. 結言

4.1 令和元年度の成果【R1】

本業務では、令和元年度の実施計画に従って研究開発を行い、次のような成果を得た。

(1) 柔軟な廃棄物管理システムの構築

本業務における技術開発・評価を反映した結果を基に、柔軟な廃棄物管理システム構成技術の 基本仕様を検討・評価するとともに、整合性のあるシステム概念仕様を設定することにより柔軟 な廃棄物管理システムを構築した。

これにより、実用化手法を用いた柔軟な廃棄物管理システムの実用化開発を完了した。

(2) 廃棄物顆粒体製造技術開発

① ロータリーキルン法模擬顆粒体製造試験

模擬廃液を用いて顆粒体製造プロセス制御試験を行い、顆粒体製造設備運転条件の基本パラ メータを示すとともに、脱ガス処理系を含めたロータリーキルンによる顆粒体製造システムの安 全性・成立性評価を行った。

これにより、柔軟な廃棄物管理システム概念仕様および顆粒体製造技術基本仕様を満たす廃棄物顆粒体製造技術の開発を完了した。

② 模擬廃棄物顆粒体基礎特性試験

顆粒体製造プロセス試験にて作製した顆粒体の組成ミクロ分布、粒度分布、密度、熱伝導率を 測定し、ロータリーキルンによって作製する顆粒体の概念仕様を示した。

これにより、柔軟な廃棄物管理システム概念仕様で作製・保管する顆粒体仕様を示した。

③ 廃棄物顆粒体製造技術評価(再委託先:原子力機構)

製造技術開発結果の検討・評価を踏まえ、ロータリーキルンによる高レベル廃液からの顆粒体 製造装置について、前年度の設計検討結果にロータリーキルン法模擬顆粒体製造試験結果を取り 入れつつさらなるコンパクト化を図り、遠隔保守性とセル内環境を考慮した装置の設計検討の詳 細化を進めるとともに、セル内配置に関する設計検討を実施して、顆粒体製造装置の機器成立性 を確認した。

これにより、廃棄物顆粒体製造設備のセル内向け概念仕様を構築した。

(3) 顆粒体高密度化/再廃液化技術開発

① 顆粒体高密度化技術開発

ロータリーキルンにて作製した顆粒体の高密度化を実施し、高密度化設備の基本パラメータを 示すとともに、顆粒体高密度化システムの安全性・成立性評価を行った。

これにより、顆粒体の高密度化の成立性・効果を確認し、柔軟な廃棄物管理システム概念仕様 および顆粒体製造技術基本仕様を満たす高密度顆粒体の作製技術の開発と柔軟な廃棄物管理シス テム概念仕様を満たす高密度顆粒体が成立することを示した。

廃液再生技術開発(再委託先:原子力機構)

NFDにおいて作製したコールドの模擬顆粒体の硝酸溶液への溶解試験、および MA トレーサーを添加したか焼体の作製と溶解試験を実施するとともに、これらの溶解液からの溶媒抽出データを取得して、廃棄物顆粒体の再廃液化および MA 分離性を評価した。

これにより、貯蔵後の顆粒体を MA 分離工程につなげるための再廃液化工程における硝酸溶液 への MA の回収と、溶液の MA 分離工程への適合性を確認した。

(4) 廃棄物顆粒体貯蔵技術開発

廃棄物顆粒体貯蔵設備設計(再委託先:日立GE)

廃棄物顆粒体貯蔵設備の詳細熱伝導評価を行い、熱的制限値を満足して成立することを確認した。また、確定した貯蔵設備仕様にて柔軟管理法における貯蔵設備容積を評価し、従来管理法と 比べて貯蔵容積を大きく低減できることを確認した。

これにより、最適化した廃棄物顆粒体貯蔵設備仕様にて熱的成立性を確認したとともに、顆粒体貯蔵による貯蔵容積減容効果を評価した。

・② 貯蔵廃棄物の材料化学安定性評価(再委託先:大阪大学)

顆粒体作製条件の最終仕様近傍のか焼温度や含水率等の条件にて、模擬顆粒体へのγ線照射を 行い生成物質(水素および NOx ガス)の測定を行うとともに、これまでに得られた結果を総合して、 長期にわたる分解反応・分解量の予測および化学安定性評価を行って、製造時湿分管理条件に反 映した。

これにより、高放射線影響等を考慮した顆粒体貯蔵時の材料化学変化や安定性を評価し長期貯蔵の成立性を確認するとともに、そのために必要な化学環境条件を示した。

③ 貯蔵用キャニスタの健全性評価(再委託先:九州大学)

実環境(外的要因:NOx ガス、水分など)での生成が予想される変質した顆粒体によるキャニ スタ材である SUS304L ステンレス鋼への腐食試験および試験後分析を行うとともに、顆粒体によ る貯蔵期間 50 年での腐食速度の予測、材料強度への影響を総合的に評価した。

これにより、廃棄物顆粒体貯蔵時のキャニスタの耐食性試験、外的要因による影響を評価し、 健全性確保を確認した。

(5)柔軟な廃棄物管理法の有効性評価(再委託先:日立GE)

① 環境負荷低減効果評価

高含有ガラス固化体採用時の処分場面積を評価し、高含有化に伴うガラス固化体発熱量増加を 考慮しても、従来管理法と比べて処分場面積を大きく低減できることを確認した。

これにより、柔軟管理法は廃棄物処理処分条件によらず潜在的有害度および処分場面積を大幅に低減し、環境負荷低減に大きく貢献することを確認した。

② MA/FP 発熱量低減効果評価

ADS 導入時のアクチニド核種量、MA 含有燃料発熱量を解析し、遅延リサイクルの導入により、

従来管理法と比べて ADS 新燃料発熱量を大きく低減できることを確認した。

これにより、柔軟管理法は FBR および ADS の核変換システムにおいて MA 含有燃料発熱量を大幅 に低減し、燃料製造の信頼性向上に大きく貢献することを確認した。

(6) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めるとともに、広く意見を聴 きながら研究を進めるため技術評価委員会を開催した。

4.2 柔軟な廃棄物管理法実用化開発の4年間の成果【H28-R1】

本業務では、4年間の計画的な研究により柔軟な廃棄物管理法に関する以下の成果を得た。

(1) 柔軟な廃棄物管理システムの構築

現行再処理において発生する高レベル廃棄物に対して、将来確立する MA 分離変換技術を適用 することができれば、MA 分離後の廃棄物の潜在的有害度を大幅に低減させることが可能となる。 柔軟な廃棄物管理法は高レベル廃棄物を MA 分離変換技術確立まで貯蔵することを提案するが、 その実用化開発においては、まず、MA 分離変換技術が確立し運用されるまでの現行再処理高レ ベル廃棄物の貯蔵期間について、約50年間と設定した。約50年間の高レベル廃棄物の貯蔵形態 として、ガラス固化体、硝酸廃液、か焼体、か焼体粉末、か焼体を一定以上のサイズにまとめた 顆粒体、か焼体をペレット状とした高密度顆粒体を検討した。この中から、MA 分離コストおよ び貯蔵コスト等の観点から大きな弱点が存在しない貯蔵形態として、顆粒体が最有力と結論し、 本事業で開発を行うこととした。顆粒体の製造技術として、ロータリーキルン法、流動床仮焼法、 マイクロ波焼結法について比較検討した。高温焼成による全量の酸化物化を図ると再溶解が困難 となり MA 分離性が低下することから、アルコールや水ではなく低融点硝酸相をバインダーとし て用いる造粒が可能な手法として、ロータリーキルン法を選定した。

次に、柔軟な廃棄物管理システムを構成する各要素技術の選択肢を組み合わせた複数のシステ ム案を比較検討した。システム案のパラメータとして、顆粒体の物理的・化学的特性を支配する 顆粒体製造時のか焼温度と高密度化の有無を設定した。顆粒体はか焼時の最高温度(か焼温度) に応じてその化学形態が異なる。すなわち、300 ℃程度の低温焼成であれば一部の MA 等が酸化 物化するが硝酸塩成分が非常に多いものとなり、900 ℃以上の焼成であればほぼ酸化物となり、 その中間の温度では硝酸塩成分と酸化物成分が混在した化学形態をとる。このため、顆粒体のか 焼温度は 300 ℃~900 ℃のうちの適切な温度と考え、300 ℃、600 ℃、900 ℃をか焼温度とし た顆粒体を貯蔵するシステム案を3ケース構築した。また、ロータリーキルンで作製した顆粒体 を加熱プレスにより高密度化し、貯蔵面積の一層の低減を図るオプションを考え、か焼温度3ケ ース×高密度化有無の2ケースの合計6ケースの条件で作製した顆粒体を貯蔵するシステム案を 設定した。

これら各システム案の整合性および特徴を、本事業で実施した試験結果を含めて、顆粒体製造 容易性、貯蔵時熱特性、貯蔵時安定性、キャニスタ健全性、再廃液化特性から整理した。まず、 顆粒体製造容易性については、バッチ式ロータリーキルン試験装置での試験結果から、製造時か 焼温度が 300 ℃、600 ℃の場合の顆粒化挙動は、低融点硝酸塩相による粘結が有効に働き、顆 粒化が容易に進行することがわかった。また、か焼温度が 900 ℃の場合の顆粒化挙動は残存硝 酸塩による粘結はほとんど見られず、やや安定性確保に注意が必要な工程であるが、水蒸気導入 による一部酸化物の水酸化物化とその溶融によって粘結を進められる可能性を示した。一方、製 造時には、Ru 揮発や有機物の顆粒体への残留といった安全上の懸念も存在する。製造時の Ru 揮 発については、か焼温度に関わらず同程度の焼成時蒸発がみられた。低温での蒸発乾固時に顕著 な蒸発があると考えられるため、揮発した Ru をトラップすることで対処する。廃液に含まれる TBP 等有機物の影響としては、顆粒化時には沸騰蒸発を短時間で発生させるためにレッドオイル の生成はないと考えられるが、有機物が残留したままの保管は放射線分解や化学反応の観点で危 険性がありうる。有機物を含んだ模擬廃液の焼成試験により製造時か焼温度が 300 ℃の場合の みわずかに有機物が残留する可能性があるとわかったため、この対策として顆粒体製造前の廃液 から有機物をあらかじめ除去しておく必要がある。次に、貯蔵時熱特性評価の概要を述べる。柔 軟な廃棄物管理システムでは細径キャニスタ内に空隙を有した状態で顆粒体を装荷する方法と、 細径キャニスタに準じた径を持つ高密度顆粒体を装荷する方法を考えている。いずれも細径キャ ニスタの中心部において顆粒体の溶融(酸化物/硝酸塩混合物の場合は一部成分の溶融)を発生 させないように除熱性を確保する必要がある。円筒内に装荷した模擬顆粒体による熱伝導率測定 から、300 ℃、600 ℃、900 ℃いずれのか焼温度の場合でもキャニスタ装填時の顆粒体の熱伝導 率は高密度顆粒体に対して 1/5 程度と低かった。とはいえ、キャニスタの簡易熱伝導解析を実施 したところ、顆粒体装荷時におけるキャニスタ中心温度は、熱伝導率低下と発熱密度低下がちょ うど打ち消し合い、高密度顆粒体での貯蔵と同等の除熱性を有するとわかった。したがって、い ずれのケースの顆粒体でも熱的に成立することがわかった。次に貯蔵時安定性評価として、貯蔵 時における顆粒体自体の変化を調べるために、模擬顆粒体に対する y 線照射試験を実施した。顆 粒体の放射線分解による NOx や H2 の発生は、か焼温度を上昇させるほど、高密度顆粒体として 比表面積を下げるほど、また顆粒体の吸湿による含水率を低減させるほど、抑制される傾向がみ られた。6 ケースのいずれの顆粒体を用いた場合でも細径キャニスタ内の内圧上昇は小さかった。 しかし、発生した水素とキャニスタ内に残存した酸素は爆発的反応を起こしうるため、細径キャ ニスタ封入時に窒素フロー等により内部の酸素濃度を低減することおよび顆粒体の吸湿を 0.3wt %までに制限することで十分に水素濃度を低減させることができる。次に、キャニスタ健 全性の評価のため、模擬顆粒体とキャニスタ内面との共存性を試験した。キャニスタ内面の表層 にわずかな酸化層の形成が認められたが、いずれの顆粒体を用いたケースでも顕著な差は見られ なかった。最後に、保管後の顆粒体を分離技術に接続するための顆粒体の再廃液化特性は、か焼 温度を 300 ℃、600 ℃とした模擬顆粒体では硝酸に比較的容易に溶解し高い MA 回収率が確保で きる。か焼温度を 900 ℃とした場合に高い MA 回収率を達成するためには、硝酸への溶解後の残 渣をさらにアルカリ溶解法を用いて溶解する必要が生じると考えられる。以上の検討の結果から、 6 ケースの顆粒体を用いた柔軟な廃棄物管理システムとも克服困難な課題があると評価された項 目は1つもなく、いずれのケースにおいても安全性の高いシステムが成立可能であった。

次にこの6つのシステム案の中から開発するべきシステム案を判断するために、各システムの 経済性および環境負荷低減効果を検討した。環境負荷低減効果についてはコストでは図れない指 標であるため、経済性の観点よりも優先して考えた。環境負荷低減効果については、柔軟な廃棄 物管理システムの有効性向上のためには顆粒化開始時期を少しでも早めることが最もかつ圧倒的

4 - 4

に効果が高いことがわかっているため、技術開発期間が顆粒化開始時期に影響するかどうかを評価した。その結果、300 ℃か焼の顆粒体および高密度顆粒体を使用するシステムについては、か焼前の廃液中から TBP およびその劣化物をあらかじめ除去するための吸着システムの開発によっ て導入時期が数年遅れる可能性が生ずる。また、900 ℃か焼の顆粒体および高密度顆粒体を使用 するシステムでは製造時の炉心管の開発によって導入時期が数年遅れる可能性がある。一方、 600 ℃か焼の顆粒体および高密度顆粒体を使用するシステムにおいては、特にほかのシステムと 比較して顆粒化開始時期に影響する点はないので、この2種類の顆粒体を使用するシステムを本 事業で開発すべきシステムとした。すなわち、600 ℃か焼の顆粒体を用いるシステムを主案とし、 600 ℃か焼の高密度顆粒体を作製するためのプレス機をオプションとして顆粒体製造システムに 付加できるシステムを、柔軟な廃棄物管理実用システムと考えた。

最後に、柔軟な廃棄物管理実用システムの概念仕様と各要素技術の基本仕様を検討した。柔軟 な廃棄物管理実用システムは顆粒体製造設備、顆粒体貯蔵設備、顆粒体再廃液化設備の3つの設 備で構成される。顆粒体製造設備は、現行再処理施設内に設置し、顆粒体の製造を行うとともに 細径キャニスタへの充填を行うこととした。顆粒体貯蔵設備では、基本的に現行ガラス固化体貯 蔵建屋を共用して、約50年間の細径キャニスタの貯蔵を行うこととした。顆粒体再廃液化設備 は、将来建設される MA 分離施設内の上流側工程にて再廃液化を行うこととした。また各設備で 必要とされる基本仕様を定めた。

なお、今後残された課題としては、以下が挙げられる。

- ・本事業では、六ケ所および東海の再処理施設の公開情報をもとに現行再処理施設を想定し、
 顆粒体製造設備を施設内に追加することを提案しているが、今後特定の再処理施設の追設計
 画に反映させていく必要がある。
- ・本事業では、原子力機構にて開発が進められている「SELECT」プロセスをもとに 2070 年頃
 稼働する MA 分離設備を想定し、その内部に廃液再生プロセスを置くことを提案した。MA 分
 離技術開発の今後の進展に合わせて、MA 分離施設の設計検討に反映させていく必要がある。

(2) 廃棄物顆粒体製造技術開発

本事業の顆粒体製造技術開発では、ロータリーキルン内で高レベル廃液が顆粒体となるまでの 一連のプロセスを蒸発乾燥プロセス、脱硝か焼プロセス、顆粒化プロセスに切り分け、それぞれ バッチ式ロータリーキルンや静的加熱試験による試験を行い、各プロセスに最適な運転条件を検 討した。また、連続式ロータリーキルン試験装置を用いて、これら3つの単プロセスを一本のロ ータリーキルン内で同時に実現することが可能であることを示した。また、実機ロータリーキル ンについて、本事業の連続式ロータリーキルン試験装置の設計情報や試験結果、仏 ORANO 社の情 報、原子力機構内における運転・保守経験等についての調査に基づき、設計検討における基本方 針を策定するとともに、遠隔保守・補修可能な実機顆粒体製造装置の基本的な設計検討を実施し た。

さらに、柔軟な廃棄物管理システムの構築にて定めた顆粒体製造技術基本仕様に基づいて、製 造技術の要素技術の仕様を検討した。18 金属元素を含む模擬硝酸廃液(模擬廃液)を用いた試 験結果の評価を踏まえ、実機ロータリーキルンの設計方針および運転条件を定めた。実機ロータ リーキルンの主な運転条件は、乾燥ゾーンの温度を 250 ℃程度以上に保つことで膜沸騰による 混合で成分均一化を図り、か焼ゾーンで最高温度 60 0 ℃でか焼する。その後、仏国では考慮さ れていない顆粒化ゾーンの開発を進め 270 ℃で顆粒化することで浮遊しやすい微細粉を減少さ せることとした。回転速度や傾斜角度は、か焼・顆粒化に必要な時間を確保するよう、それぞれ 10rpm、0.5°と選定した。ロータリーキルンで得られる顆粒体の仕様は、粒径 10 µm 以上であり、 特定元素の凝集は 0.1 mm 以下、密度は 3.5 g/cm³、熱伝導率は室温で 0.8 W/m/K、残存硝酸イオ ンは約 30 wt %、細径キャニスタへの封入作業終了時の顆粒体含水量は 0.3 wt %とした。また、 実機ロータリーキルンは、70L/h の再処理廃液を連続的に乾燥・か焼・顆粒化処理可能とし、遠 隔保守性を考慮してインセルクレーンやマニプレーターで各モジュールを脱装着可能でありなが ら、現行再処理施設への接続が容易であるように 3m×3m 程度の台座に設置可能なコンパクトな 設計を実施した。その結果、約 3m×4m の小規模なスペースにロータリーキルンから顆粒体の細 径キャニスタへの封入までのシステムを設置できることを示した。

なお、今後残された課題として、以下が挙げられる。

- ・本事業では、顆粒体製造設備を現行再処理施設後段に設置することを想定し、現行再処理施設に関する公開情報を参照して開発・設計を行ったが、今後は特定の再処理設備内セルの正確なスペースや保守機器、電源設備や安全管理値等の具体的数値等を直接参照して、顆粒体製造設備設計の調整が必要。
- ・本事業では、試験に使用した小型ロータリーキルン試験装置の成果を外挿する形で70L/hの 実機ロータリーキルンの設計を行ったため、実際に適用される実機サイズあるいは中間サイズのロータリーキルンを製作して、本事業で予測される性能の確認が必要。
- ・実際の放射性廃液を使用した試験による顆粒体製造設備の耐放射線性、遠隔保守性等の確認。

(3) 顆粒体高密度化/再廃液化技術開発

① 顆粒体高密度化技術開発

廃棄物顆粒体の高密度貯蔵のオプションとして、高密度顆粒体の作製技術開発を実施した。か |焼温度 300 ℃、600 ℃、900 ℃の模擬顆粒体の加熱プレスによる高密度化試験を実施したとこ ろ、いずれも 8kN/10mmφ以下での高密度化が可能であった。特に低温か焼の顆粒体については、 柔らかい硝酸塩比率が高いため、さらなる低荷重での高密度化が可能であり、細径キャニスタに 準じた径 14.4cm の大口径高密度顆粒体(厚さ 4cm・充填率 85 %)をセル内実績荷重 20 トン以下 で作製できる見通しを得た。また、遠隔保守性を考慮したプレス機のセル内配置を検討した。実 機加熱プレス機は各部をモジュール化し、遠隔保守性を考慮した構造となっている。ロータリー キルンから連続的に製造される顆粒体は、顆粒体がセル内の湿潤空気に触れて含水率を増大させ るのを低減させるため、1 プレス分溜まった時点でプレスを1回実施していくこととした。得ら れた高密度顆粒体は加熱プレス機から取り出された後、細径キャニスタに装荷されるが、装荷途 中の高密度顆粒体の欠けや破損、引っ掛かりを起こさないように寝かせた横置きの細径キャニス タに対して装荷し封入することとした。実機加熱プレス機の運転条件は、排出速度 70L/h の廃液 から得られる顆粒体 7kg/h を処理する必要があることから、径 14.4cm・厚さ 4cm・充填率 85 % の高密度顆粒体とすることで1個当たり2.3kgとなるので、1時間当たり4サイクル加熱プレス すれば良く、プレス時間は100秒とした。以上、廃棄物の貯蔵形態のオプションとしての高密度 顆粒体の作製技術開発では、細径キャニスタに準じた径の大口径高密度顆粒体を、廃棄物処理速

度を確保しつつ、セル内実績荷重以下の安全な荷重で作製できる見通しを得ることができた。したがって、ロータリーキルンから出力された廃棄物顆粒体を加熱プレスで安全に高密度化するシステムも成立することがわかった。

なお、今後残された課題として、以下が挙げられる。

- ・本事業では、顆粒体高密度化設備を再処理施設の後段に実機ロータリーキルンとともに設置することを想定し、現行再処理施設に関する公開情報を参照して開発・設計を行ったが、今後は特定の再処理設備内セルの正確なスペースや保守機器、電源設備や安全管理値等の具体的数値等を直接参照して、顆粒体高密度化設備の設計や配置の調整が必要。
- ・本事業では、5cmφまでの加熱プレス機による成果を外挿する形で14.4cmのプレス機の設計を 行っているため、実際に適用される実機サイズでのプレス機を製作して、本事業で予測される 性能を十分発揮できるかの確認が必要。
- ・実際の放射性廃液を使用した試験により、顆粒体高密度化設備の耐放射線性、遠隔保守性等の 確認。

② 廃液再生技術開発

柔軟な廃棄物管理システムでは、現行再処理廃液に対して将来技術である分離変換技術を適用 することにより、1000 年後の潜在的有害度を大幅に低減することを目的としている。このため に、柔軟な廃棄物管理法と、50 年後に実用化されている分離変換技術を合わせて、1000 年後の 潜在的有害度の大幅低減という観点で MA の回収率を 95 %以上と定めた。まず、MA の模擬元素 として Nd を使用した 18 金属元素の模擬廃液を用いた顆粒体の再溶解試験を行った。顆粒体の再 溶解の観点からは、900 ℃のか焼温度で作製する顆粒体は残渣が多くなるため MA 回収率に懸念 があるが、か焼温度が低いほど残渣が減少し好ましい結果となった。この知見含めて柔軟な廃棄 物管理システムの構築にて顆粒体のか焼温度を 600 ℃と決定したが、600 ℃でか焼した顆粒体 の場合、高硝酸濃度にて再廃液化することが適当と判断された。次に実際に、²³⁷Np、²⁴¹Am、²⁴⁴Cm をトレーサーとして添加した RI 模擬高レベル廃液を用いて RI 模擬か焼体を作製し、それを酸溶 液等で再廃液化する試験を行ったところ、準備試験で使用していた模擬元素である Nd と同様に、 99 %程度の回収率を得られることが確認できた。また、この再溶解液の MA 分離技術への接続性 を確認した。接続性確認では、柔軟な廃棄物管理法の再溶解液と、開発の進められている 「SELECT プロセス」で想定されている硝酸溶液の差によって、「SELECT プロセス」に別の開発 課題を課さないことが重要となるが、試験によって得られた分配比は「SELECT プロセス」の MA 分離工程の供給液である再処理後の抽残液の処理のために取得されたデータと大きな差はなかっ た。すなわち、洗浄溶媒を含む現行再処理廃液に大量に含まれる Na の影響も小さく、また高硝 酸濃度の再溶解液を希釈することによる MA 濃度の低下に対しても、分配比の変動は小さいこと を確認し、柔軟な廃棄物管理法と別途開発の進められている「SELECT プロセス」の接続性を確 認することができた。

また、これらの成果を踏まえて、顆粒体再溶解技術基本仕様に基づき、要素技術の仕様を検討 した。顆粒体は約 50 年間の貯蔵の後、再溶解・再廃液化して別途原子力機構で開発が進められ ている MA 分離工程に接続する。保管後の顆粒体の硝酸による再溶解で得られた廃液の溶液部を 分離技術に供給し、再溶解時の不溶解残渣はガラス固化する。模擬廃液を用いた一連の試験によ って、高レベル廃液の顆粒体を再廃液化し、MA の 99 %以上の再溶解液への回収を実用的な手法・時間にて行うことができることを確認するとともに、再溶解液は、開発中の MA 分離プロセスによって MA を抽出分離可能であることを確認した。これらの結果より、高レベル廃液の顆粒体再溶解の操作要領や分離施設内への設置方法などの概念工程を確立した。

今後残された課題として、廃液再生で導入する装置は 50 年後に稼働している分離施設内に設置するものであるため、これらの装置仕様は分離変換技術の進展に応じて具体化すれば良いと考え、最適化を行わなかったことから、以下が挙げられる。

- ・酸濃度低減や溶解加速等の再溶解条件および再溶解液の MA 分離工程への供給時の溶液調整等の最適化に関する基盤データの取得。
- ・分離変換技術の研究開発の進展に応じて、顆粒体再溶解に必要となる溶解槽の処理速度や許容 される保守頻度の観点からの再廃液化プロセスの工学的な検討。
- ・顆粒体再廃液化設備は、将来建設される MA 分離施設内に設置するため、2070 年頃に稼働する MA 分離技術の進展に合わせた MA 分離施設内装置としての最適化が必要。

(4) 廃棄物顆粒体貯蔵技術開発

貯蔵方法については、技術開発要素を極力減らすため、現行再処理工場で実用化されているガ ラス固化体の貯蔵施設を参考とし、ドラフト力を利用した自然循環空気冷却式の乾式ボールト施 設への貯蔵を、早期実現に最も近い貯蔵方法として採用した。顆粒体の発熱密度はガラス成分が 含まれない分ガラス固化体より大きいが、施設の構造は変更せず、顆粒体を収納するキャニスタ の径を小さくすることにより、冷却効率の向上を図ることとした。模擬廃棄物顆粒体基礎特性試 験で得られた顆粒体の融点や熱伝導率、顆粒体充填率をパラメータとした熱伝導解析を実施し、 熱的成立性を確認するとともに貯蔵設備仕様設定を行った。

また、顆粒体の長期貯蔵においては、放射線分解によるガス発生によるキャニスタ内圧上昇や 顆粒体による腐食に対するキャニスタの健全性確保が課題となる。放射線照射試験は、50 年間 程度の保管を想定しているためγ線照射とし、H2発生による内圧上昇と、NOx 発生による顆粒体 の物性変化および腐食特性の変化を検討した。顆粒体貯蔵時の放射線分解による変化は、NOx お よびH2ガスがわずかに発生することであるとわかった。ガス発生は、NOx に関し、顆粒体が湿潤 空気から吸収する水分量をパラメータに照射試験を実施したところ、水分が多い場合には H2 の みならず NOx も発生するものの、水分を抑制すると放出量を大幅に低減できることがわかった。 また、NOx については、か焼温度が 500 ℃ 以上であれば多少の水分を含んでも発生量はわずか であった。一方、H₂発生は微量の水分にも敏感であり、顆粒体製造時の水分管理が重要となるこ とが示され、顆粒体の含水率仕様に反映した。また、キャニスタ内の内圧上昇は H2・NOx を合わ せて水分 0.1 %当たり 5 atm 以下と見積もられることから、含水率の仕様(0.3 %)を満たせ ば、実用上問題ないことがわかった。ただし、安全性の観点からキャニスタ内部の酸素を抑制す る必要があり、キャニスタ封入時に囲いを設けその中に窒素をフローさせる方法を提案した。一 方、キャニスタの内面腐食については、顆粒体による SUS316L キャニスタ内面の長期腐食メカニ ズムは鋼材表面の酸化反応であるが、Ruの影響により酸化量の増加を生じることがわかった。 50 年間の腐食減肉量について保守的に直線則にて検討を行ったところ、50 年間で最大 53 µm と 見積もられた。

これらの成果を踏まえて、柔軟な廃棄物管理システムの構築にて定めた顆粒体貯蔵技術基本仕様に基づき、貯蔵技術要素技術の仕様を検討した。早期実現のために細径キャニスタに封入された顆粒体は現行ガラス固化体貯蔵建屋を共用して貯蔵する。この際、ガラス固化体よりも高充填貯蔵となるために貯蔵面積は低減できるメリットを保持したまま、現行建屋の自然空冷下で、顆粒体中の低融点硝酸塩成分を融解させないように除熱する。模擬顆粒体のキャニスタ内充填率や実効熱伝導率の測定結果を用い熱伝導解析を実施した結果を踏まえて設計を行ったところ、内径14.6cm、肉厚2mm、外径15cm、細径キャニスタを通風管内に7本配置することで、その他の設計はすべて現行貯蔵建屋のままで、貯蔵容積をガラス固化貯蔵と比べ約29~49%減容、貯蔵コストを約34~49%低減できることがわかった。キャニスタ健全性の観点からは、顆粒体含水率の仕様(0.3%)下で50年間を想定した保管期間にわたる放射線分解による脱ガスでの内圧上昇は最大15atm、腐食は最大でも53 µm とわかり、キャニスタ肉厚の設計仕様値として設定した2mmにて十分な強度や腐食しろを確保できることを確認した。

なお、今後残された課題として、以下が挙げられる。

- ・顆粒体貯蔵時の放射線分解については、γ線以外の効果や、発生したガスの再結合による内 圧上昇の抑制効果を確認して、現在のやや過剰に保守的な推定値を精査すること。
- ・キャニスタ内面腐食については、Ru による酸化増加を保守的に推定しているのでメカニズ ム精査が必要であり、これらを通じて、貯蔵期間の延長に対してどのような裕度を有するの か確認評価すること。
- ・貯蔵設備設計については、熱的成立性に関する物性値のばらつきによる裕度の適切性の評価
 を図るとともに、具体的な現行貯蔵設備への適用性確認および最適化、また将来の専用貯蔵
 設備については設備全体の最適化。

(5) 柔軟な廃棄物管理法の有効性評価

柔軟な廃棄物管理法の有効性評価では、環境負荷低減効果および FBR/ADS 新燃料の MA/FP 発熱 量低減効果を評価した。まず、環境負荷低減効果評価では、潜在的有害度低減効果および処分場 面積低減効果を、MA 回収率と廃棄物処理処分条件をパラメータとして解析した。95 %以上の MA 分離割合が確保され、廃棄物顆粒化が再処理稼働後 10 年以内なら、高い有害度低減効果を実現 できることを明らかにした。また、柔軟な廃棄物管理法は将来実用化が予想される MA 分離変換 技術の適用対象廃棄物を拡大し、処分場面積を低減して環境負荷低減に寄与するため、廃棄物処 理処分条件が変動した場合の処分場面積への影響を評価した。さらに、MA 回収率を 99 %、 95 %、柔軟法(顆粒化技術)導入時期を再処理後5年、10年、15年、処分場定置方式を横置、縦 置と変化させて評価した結果、柔軟法の処分場面積は、従来法より約 37 %~約 49 %低減でき ること、MA 回収率の影響は小さく、柔軟法導入時期の影響は比較的大きいことを示した。これ らの結果を踏まえ、本事業で提案した柔軟な廃棄物管理実用システムの効果は、高レベル廃棄物 貯蔵容積を 25 %以上低減させ、総合潜在的有害度を 75 %以上低減させ、高レベル廃棄物処分 場面積を 20 %以上低減させるものと定めた。このように定めた効果の範囲内で、例えば、PWR 45GWd/t・CT20 年・顆粒化開始までの期間 10 年を基準とすると、約 76~79 % (MA 回収率 95~ 99 %)の低減効果がある。

一方、柔軟な廃棄物管理法は廃液の中期保管方法として、本事業で提案した用途以外にも FBR

や ADS サイクルの中で冷却期間を設けることが可能となるため、燃料製造時の発熱を抑制できる 可能性がある。このため、MA/FP 発熱量低減効果評価のため、まず、MA 核変換システムとして FBR または ADS の導入シナリオを検討し、柔軟な廃棄物管理法の有効性評価ケース、条件を設定 した。FBR または ADS が導入される FBR 移行サイクルの基本的条件を設定するため、FBR 移行サ イクルのアクチニドマスバランスを評価し、第2再処理工場設備容量および FBR 発電設備容量を 設定した。次に、アクチニド燃焼・冷却解析簡便コードを開発し、ORIGEN コード解析のベンチ マーク計算により十分な精度で発熱量を評価できることを確認した。そのコードを用いた解析に より、FBR および ADS での MA 核変換時の一時貯蔵による ²⁴⁴Cm の発熱の大幅低減により、FBR の 燃料製造時の発熱量目標を達成できる可能性、および ADS の燃料製造時にも従来知見の延長上で 達成可能と考えられるレベルの発熱量を達成できることを示した。

なお、今後残された課題として、以下が挙げられる。

- ・有効性評価では、六ケ所再処理設備の運転開始時期が遅れたことによって、さらなる使用済 核燃料の再処理前冷却期間の増加効果等について微調整を行う必要がある。
- ・本事業では、潜在的有害度低減および将来サイクルでの発熱量低減の効果を最大化するように、現行再処理や将来サイクルへの柔軟な廃棄物管理法の導入シナリオを検討したが、潜在的有害度低減や発熱量低減について現世代に担わせるべき適切な費用対効果の考え方は入っておらず、これらの議論の進展を踏まえ、またリードする形で適切な最適解を提案する必要がある。

以上のように、4 年間の計画的な研究により柔軟な廃棄物管理法の実用化手法を開発するべく、 ロータリーキルン法顆粒化試験および高密度化試験等により実用的な顆粒体製造技術開発を行う と同時に、製造した模擬廃棄物顆粒体の基礎特性試験結果を基に、顆粒体貯蔵設備設計、長期貯 蔵の材料化学的安定性やキャニスタの健全性評価、廃液再生確認試験により柔軟な廃棄物管理法 の実用化に向けた技術開発を行った。また、廃棄物処理処分条件が変化した場合の潜在的有害度 や処分場面積の低減効果を評価して柔軟な廃棄物管理法の有効性を確認するとともに、MA 含有 燃料の発熱量減少により燃料製造の信頼性・経済性向上に寄与する可能性について評価を行った。 また、本業務における各要素技術開発により、柔軟な廃棄物管理実用システムの定量的な有効性 を含むシステムの概念仕様の設定を行うとともに、各要素技術の基本仕様、および装置仕様、運 転条件や操作要領を示すことができた。

我が国は約17,000トンの使用済燃料を保管しており、これらの処分後の潜在的有害度を低減 することは足元の課題である。現世代の責任として対策を確実に進めるために、核燃料サイクル のみならず、MA分離変換技術をこれらに適用可能とすることが重要であり、本業務で実用化開 発した柔軟な廃棄物管理システムの現行再処理施設での採用を強く期待するものである。

参考文献

- [1] 経済産業省 資源エネルギー庁編, 「エネルギー基本計画 2014」, 2014 年 4 月.
- [2] 原子力委員会研究専門部会分離変換技術検討会,「分離変換技術に関する研究開発の現状 と今後の進め方」,2009年3月.
- [3] 日本原子力学会 分離変換・MA リサイクル研究専門委員会, 「分離変換技術はどこまで成熟 したか?」, 日本原子力学会誌 Vol.52 No.12 (2010).
- [4] 九州大学,平成26年度 文部科学省 原子力システム研究開発事業「マイナーアクチニド分 離変換技術の有効性向上のための柔軟な廃棄物管理法の研究開発 成果報告書」,平成27年 3月.
- [5] ATOMICA 高レベル廃液の処理, (04-07-02-07).
- [6] 加藤良幸ら,「 硝酸ウラニル溶液のマイクロ波加熱直接脱硝法による脱硝反応機構の解 明」,日本原子力学会和文論文誌,Vol.4,No.1 (2005).
- [7] 荒川秀雄,伊与田隆蔵,"キルン内の原料移動および温度分布",鉄と鋼 13(1963)1861-1868.
- [8] V. Petijean, R. De Vera, J. H. Hollebecque, T. Flament, F. Pereira, Mendes, and A. Prod' homme, "La Hague Continious Improvement Program: Enhancement of the Vitrification Throughput", WM' 06 Conference, February 26 March 2, 2006, Tucson, USA.
- [9] 日本原燃株式会社, 六ヶ所再処理施設新規制基準に対する適合性【重大事故等への対策:冷却機能の喪失による蒸発乾固】ルテニウムの除去に係る検討状況, 平成26年5月7日.
- [10] Y. Nagasaka, A. Nagashima, Int. J. Thermophys., 12(1991)769.
- [11] 化学便覧基礎編改訂 5 版,日本化学会編,平成 16 年 2 月 20 日発行, II-71.
- [12] E. Chauvin, R. Do Quang, F. Drain, and F. Fereira Mendes, "French Industrial Vitrification Plant: 30 Years old, Robust and still innovating", Proceedings of Global 2009, Paris France, September 6-11 2009, 349-355.
- [13] W. Baehr, "Industrial vitrification process for high-level liquid waste solutions", IAEA BULLETIN, 4/1989, 43-46.
- [14] 鈴木, 稲垣, 有馬ら, 日本原子力学会 2016 年春の年会(東北大学) 1N02.
- [15] Yasutoshi Ban, Hideya Suzuki, Shinobu Hotoku, Tomohiro Kawasaki, Hiroshi Sagawa, Nao Tsutsui, and Tatsuro Matsumura, "Extraction of Trivalent Rare Earths and Minor Actinides from Nitric Acid with N,N,N',N'- Tetradodecyldiglycolamide (TDdDGA) by Using Mixer-Settler Extractors in a Hot Cell", Solv. Extr. Ion Exch., Vol. 37, No. 1, 27-37(2019).
- [16] Yasutoshi Ban, Hideya Suzuki, Shinobu Hotoku, Nao Tsutsui, Yasuhiro Tsubata, and Tatsuro Matsumura, "Minor Actinides Separation by N,N,N',N',N'',N'' - Hexaoctyl Nitrilotriacetamide (HONTA) Using Mixer-settler Extractors in a Hot Cell", Solv. Extr. Ion Exch., Vol. 37, No. 7, 489-499(2019).
- [17] 室屋,鈴木,遠藤,日本原子力学会 2019 年秋の大会(富山大学) 3B12.

- [18] 平成 28 年度 文部科学省 原子力システム研究開発事業「MA 分離変換技術の有効性向上の ための柔軟な廃棄物管理法の実用化開発」成果報告書,平成 29 年 3 月.
- [19] 平成 29 年度 文部科学省 原子力システム研究開発事業「MA 分離変換技術の有効性向上の ための柔軟な廃棄物管理法の実用化開発」成果報告書,平成 30 年 3 月.
- [20] 平成 30 年度 文部科学省 原子力システム研究開発事業「MA 分離変換技術の有効性向上の ための柔軟な廃棄物管理法の実用化開発」成果報告書,平成 31 年 3 月.
- [21] 上坂充他, 「原子炉構造工学」原子力教科書 オーム社, 平成 21 年 4 月.
- [22] 電気事業連合会,「原子燃料サイクルのバックエンド事業コストの見積について」電気事業連合会,平成16年1月.
- [23] 田川博章, 横浜国大環境研紀要 14(1987)41.
- [24] 阿部仁, 真崎智郎, 天野祐希, 内山軍蔵, JAEA-Research 2014-022.
- [25] 西原健司,「使用済核燃料の潜在的放射性毒性評価のためのデータベース」JAEA-Data/Code 2010-012,日本原子力研究開発機構,2010年9月.
- [26] 経済産業省 資源エネルギー庁編「長期エネルギー需給見通し」, 平成27年7月.
- [27] 日本原燃,「再処理事業変更許可申請書の一部補正の主な内容について」,2015年11月 16日.
- [28] 核燃料サイクル開発機構、「わが国における高レベル放射性廃棄物 地層処分の技術的信頼 性-地層処分研究開発第2次取りまとめ-総論レポート」、JNC TN1400 99-020、平成11 年11月26日.
- [29] 安藤良平ら、「使用済燃料軽水炉燃料の核種組成評価」, JAERI-Resreach 99-041, 日本原 子力研究所, 1999 年 2 月.
- [30] 「高レベル廃棄物管理に対する分離変換技術導入効果の検討」,原子力委員会研究開発専 門部会第1回分離変換技術検討会資料第1-3-1号,平成20年9月19日.
- [31] 平成 26 年度~平成 28 年度 文部科学省 原子力システム研究開発事業,「ガラス固化体の 高品質化・発生量低減のための白金族元素回収プロセスの開発」.
- [32] 西原健司ら、「アクチニド核種のマスバランス解析に基づく群分離・核変換サイクルの導入シナリオと効果の検討」, JAEA Research 2006-081.
- [33] 「日本原子力研究開発機構における核変換技術に関する研究開発の現状について」,原子 力委員会研究開発専門部会第4回分離変換技術検討会資料第4-1-2号,平成20年12月 12日.
- [34] 「MA 変換 -均質型/非均質型/階層型-の特徴と課題について」,原子力委員会研究開発専門部会第6回分離変換技術検討会資料第6-1-2号,平成21年1月21日.
- [35] 辻本和文,「加速器駆動核変換システム(ADS)に関する研究開発の現状と将来計画」,高 エネルギー加速器科学研究奨励会第7回特別講演会,平成29年10月12日.