827. 再処理共除染工程におけるプルトニウム蓄積と 臨界安全性の評価

館盛勝一*, 阿見則男*, 三好慶典*

(1985年 6月14日 受理)

Assessment of Plutonium Accumulation in Mixer Settlers and Its Effect on Criticality Safety for Co-Decontamination Process in Fuel Reprocessing

By Shoichi TACHIMORI, Norio AMI and Yoshinori MIYOSHI

Build up of Pu in a co-decontamination process of fuel reprocessing due to shift of process parameters from normal conditions and its effect on nuclear criticality of the system were investigated with computer codes. Being based on the flow sheet of a Purex reprocessing plant, the calculation shows that Pu accumulates mainly in the aqueous phase of extraction stages under the conditions in which concentration of U increases in the organic phase, i.e. a decrease of the extractant flow rate or the TBP concentration, an increase of feed flow rate or U concentration, or a decrease of scrub acidity. Relating the maximum Pu concentration and the time required for maximum build up to the change of the flow sheet conditions, an effective neutron multiplication factor k_{eff} of the system involving Pu build up was calculated for the first mixer-settler bank of a model plant. The analysis revealed that the extractor would become critical in approximately 45 h at earliest provided that shift of the parameters stayed within a specified range during operation. Required performance of the process control instruments, safety margin in concentration limit, and other operation safety considerations necessary for the prevention of Pu build up in the extraction bank are discussed.

KEYWORDS: buildup, co-decontamination process, criticality safety, flow rate, fuel reprocessing, mixer settler, neutron multiplication factor, plutonium, process condition, Purex process, solvent extraction, TBP

1. 緒 言

核燃料サイクル施設の安全設計, 安全評価の重要項目の1つとして臨界安全がある。リスク評価の観点からは, 過去の臨界事故例において⁽¹⁾⁽²⁾, 重遮蔽を有する施設内で発生し, 放射能閉じ込め機能が維持された場合には, 従業員および公衆の放射線被曝が極めて少ないことは重視すべきであろう。しかし, その反面, 事故に伴う施設の運転停止, セル内汚染除去に要する経費, さらには施設安全性に対する信頼性の低下等, その影響は過小評価できない。

大型再処理工場では, 主要機器の大容量化が図られるため, 臨界安全設計における全濃度安全形状寸法の

採用は困難となり, 各種条件の制限を伴った工程管理による設計思想が重要となる。そのような設計においては, 機器形状, 配置のみならず, あらかじめ工程の定常運転時および異常運転時(制御系機器の性能変化, 故障, 誤操作等による)における工程内核燃料物質の挙動を把握し, 計測制御システム性能と臨界条件との関係を十分検討して妥当な制限値等の設定が行われる。

再処理の主工程である抽出工程では, 種々の組成に調整した溶液をあらかじめ設定された流量で抽出器内に注入し, 化学反応と物質移動により目的とする物質収支が達成できるように連続運転を行なっている。したがって, 溶液中の成分濃度や流量の変動は抽出器内

* 日本原子力研究所 (Japan At. Energy Res. Inst.)

の各物質の濃度分布に直接反映する。共除染工程においては定常運転条件下で Pu は U と共抽出され、濃度が増大しないため、従来の軽水炉燃料再処理施設では Pu 濃度が臨界安全上十分低いとして U 系のみについて臨界安全設計を行なっている。しかし、U(VI)と Pu(IV)のリン酸トリブチル(TBP)による抽出特性には差があることから、Pu が U とは別挙動をとり、濃縮されるフローシート条件があり得ることは予想できる。Rozenら、Poczynajloらは共除染工程において、Pu 濃度が増大する条件について理論計算により解析⁽³⁾⁻⁽⁶⁾し、KfK の Ochsenfeldらも同様に解析と実験により確認した⁽⁷⁾。

本稿では、臨界安全性の観点から、計算コードを用いた共除染工程抽出器内における Pu 蓄積現象と臨界条件の関係の解析と、工程条件を臨界安全な範囲内に

管理するのに必要な計測機器・制御系の性能条件について考察した結果を述べる。

II. 解析方法と条件

1. 抽出工程計算

共除染工程条件としては、中規模の LWR 燃料用再処理工場のミキサセトラ工程を想定し、U, Pu の濃度分布過渡変化は、Rev. MIXSET[®]により計算した。Rev. MIXSETでは、多段向流抽出工程(ミキサセトラ型抽出器)について時間的に変化のない濃度分布を計算する定常計算と、濃度や流量の変化も取り扱える過渡計算を行うことができる。また、Purex 工程の計算のために、U, Pu, 硝酸の分配係数や化学反応に関するデータが組み込まれ、容易に利用できるようになっている⁽⁸⁾。Fig.1に、共除染工程のフロー条件を示す。

Fig. 1 Co-decontamination flow sheet of model reprocessing process

2. 臨界計算

モデル再処理工場の第 I 抽出器は17段のミキサセトラからなり、2つの Bank(各 9 段、8 段)に分割されているとした。Bank 間の中性子相互干渉は無視できると考えられるので、ここでは Pu 濃度の高い Bank(第 1～9 段)を対象にして臨界計算を行なった。

計算モデルを Fig.2 に示す⁽⁹⁾。各段のミキサセトラは、直方体形状(109 cm 長×32 cm 幅×32 cm 高)で、セトラ部の有機相と、水相の体積比は1.0、界面高さは全段15 cm とした。燃料溶液中の Pu 同位体比は ²³⁹Pu 100%、また、U 同位体比は ²³⁵U 2.3%、²³⁸U 97.7%とした。ミキサセトラ各段の有機相、水相中の原子

個数密度は、Pu, U の原子価をおおの 4 価、6 価として Rev. MIXSET による Pu 濃度、U 濃度および酸性度から硝酸水溶液として算出した⁽¹¹⁾。

O: Organic phase, A: Aqueous phase, *: Innerface distance
Fig. 2 Mixer settler model for calculation of criticality(Unit: cm)

臨界計算は、JACS システムのモンテカルロコード MULTI-KENO⁽¹²⁾を用い、中性子核定数ライブラリーには MGCL 26 群を用いた。計算条件はヒストリー数 30,000(中性子世代数 100, 1 世代当りの発生中性子数 300)で、ミキサセトラを周囲に反射材のない裸の体系として実効増倍係数を計算した。

III. 解析結果と考察

1. Pu の蓄積条件

共除染工程では、U と Pu が十分高い効率で抽出されているなら、有機プロダクト液中の Pu/U 比はフィードのそれと変わらず、運転中における Pu 濃度の変動幅も比較的小さい。モデル工程では、定常時のフィード液中の Pu 濃度は 2 g/l、また、プロダクト液中の濃度は 0.95 g/l であり、硝酸プルトニウム溶液の最小臨界濃度(7.8 g/l)以下である⁽¹³⁾。TBP-硝酸系では、Pu(IV)の抽出分配比 D_{Pu4} (有機相中の Pu(IV)濃度/水相中の Pu(IV)濃度)は U(VI)のそれより小さい。Fig. 3 は、分配比計算コード DIST により計算した 30% TBP-*n*-ドデカン-3 M 硝酸系における D_{Pu4} の平衡時水相中 U(VI)濃度に対する依存性を示し、水相中 Pu(IV) 濃度 C_{Pu4} をパラメータとしてある。

Fig. 3 Distribution ratio of Pu(IV) in 30% TBP-*n*-dodecane-3 M HNO₃ system

この図から、抽出系の U(VI)濃度が増大すると D_{Pu4} は減少して、Pu(IV)は有機相から水相に追い落とされ

ることがわかる。この時の U(VI)の分配比は 1 より十分大きいのでプロダクト有機相中の Pu 量は減少し、逆に水相(廃液)中に Pu が漏洩することになる。この現象を利用すれば Pu を U から分離することも可能となるが、その検討は別の機会に譲り、本稿では抽出器内 Pu 濃度が臨界上重大な大きさにまで上昇する現象に焦点をあてた。種々の条件下での U, Pu 濃度分布の変化を Rev. MIXSET を用いて調べると、抽出器内で Pu が蓄積するのは、有機相中の U 濃度を上昇させる方向に工程条件を変化させた時である。すなわち、その条件は、①抽出溶媒の流量減少あるいは TBP 濃度の減少、②フィード溶液の流量増加あるいは U 濃度(および Pu 濃度)の増大、③洗浄液の酸性度低下である。

Fig. 4 (a), (b) と 5 (a), (b) は、モデル工程の抽出溶媒流量が正常時の 319.2 l/h から 285 l/h (-10.7%) に減少した場合について、U, Pu の有機相と水相中の濃度分布が変化する様子を Rev. MIXSET によって計算したものである。横軸の数字は Fig. 1 に示したミキサセトラの各段の番号であり、図中の太い線は溶媒流量が減少する前の定常時の分布を示す。変化後 10~40 h 後の分布は 10 h ごとに、40 h 以後は 1 h ごとの分布曲線が描かれている。U については両相とも濃度は増大し、特に有機相の U 濃度はフィード流入段(第 9 段)付近から飽和値(118 g U/l)に近くなり、その領域が次第に有機相入口方向に拡大していくことが示されている。

一方、Pu の濃度分布は U のそれと全く別のパターンを示している。すなわち、有機相、水相両方に Pu 濃度ピークが現れ、時間とともに水相出口(有機相入口: 第 1 段)方向へ成長移動している。特に、水相中の Pu 濃度は有機相のそれより大きく、最高時に約 30 g/l にも達している。以上の現象は、次のように説明される。有機相が U で飽和されている領域の先端付近では、U の水相中濃度も 100 g/l 以上になり、そこでは Fig. 3 に示したように Pu の分配比は 1 より小さくなっている。

水相に逆抽出された Pu は水相出口(第 1 段)方向に流されるが、そこでは有機相中 U 濃度がまだ低いため再度抽出される。この Pu を含む有機相が隣りの段に移るとそこでは U で飽和されるため、Pu は再度逆抽出される。このように、Pu は抽出器内でリサイクルしながら蓄積する。水相中の Pu は、やがて第 1 段側から廃液中に漏洩し始め、その結果、Pu の濃度ピークは成長から減衰へと変化して一定値に落ち着く。

以上の説明は、前述の工程変動条件の中の①と②に対応し、③の場合の現象は少し異なる。

Fig. 4 (a), (b) Change of Pu(IV) concentration profile of the aqueous and organic phase with 10.7% decrease of solvent flow

Fig. 5 (a), (b) Change of U(VI) concentration profile of the aqueous and organic phase with 10.7% decrease of solvent flow

洗浄液の酸性度が低下するとUとPuは共にその分配比が小さくなり、洗浄段(第10~17段)で水相中に逆抽出され、フィード流入段(第9段)の方へ移送される。抽出段(第1~9段)では酸性度上昇によって有機相に抽出される。したがって、UとPuはリサイクルし、その結果、有機相のUによる飽和が始まる。Uで飽和した有機相が生成すると、Puは①、②の場合と同様にその飽和領域の先端部でリサイクル蓄積して、Pu濃度ピークが現れる。このようにして蓄積するPuの量(濃度)と蓄積速度は、それぞれの場合について条件変動の大きさに依存する。

一方、Puピークが抽出段を移動し始めると、Puピーク部を中心としたミキサセトラ内のPuとUの相対濃度分布は①~③のどの場合でも極めて類似のパターンを示した。Fig. 6(a)~(c)に、それぞれの場合について、条件変化と水相Pu最高濃度および到達時間の関係を示す。横軸には、フロー条件を絶対値(l/h, M)および定常条件(Fig. 1参照)を100(%)とした時の率で示してある。いずれも定常運転条件からの変動幅が増すとともにPu最高濃度と到達時間は徐々に増大し、その後急に急激な立ち上がりがある。条件変動幅がさらに大きくなると、これらの値は再度減少し始める。急激な立ち上がりが見られる条件変化率は、抽出剤、フィードの場合は約10%、洗浄液の場合は約70%である。すなわち、これらの条件下では、有機相内のU飽和領域の成長移動が極めて遅いため、Puのリサイクル蓄積のピーク部分の移動も遅く、廃液への漏洩は起き難い。したがって、Puはフィードから1hに約300gの割合で流入し、流出量はほぼゼロであることから、数100hを経た時のインベントリーは定常時の100倍にはなると考えられる。しかしながら、計算時間が極めて長くなるため、最大濃度は求めることができなかった。

Fig. 6(a)~(c) Build up of Pu in extractor with decrease of solvent flow, increase of feed flow and decrease of acidity of scrub solution

(a) Decrease of solvent flow

(b) Increase of feed flow

(c) Decrease of acidity of scrub solution

2. Pu 蓄積時の臨界解析

以上の結果では、抽出器内 Pu 濃度は明らかに最小臨界濃度(7.8 g/l)を越えている。そこで、抽出器内の水相、有機相の U, Pu 濃度分布に対応した系の中性子実効増倍係数(k_{eff})を求めた。Fig. 7 は、抽出溶媒の流量を 319.2 l/h からそれぞれ 292 l/h (-8.5%), 285 l/h (-10.7%) に減少させた時の水相の最大 Pu 濃度の経時変化(破線)と、その時のミキサセトラ Bank の k_{eff} (実線)をプロットしたものである。

Fig. 7 Variations of maximum concentration of Pu and k_{eff} of mixer settler system with decrease of solvent flow

流量が 10.7% 減少した場合を例にとると、前述の Fig. 4(a)からもわかるように、Pu ピークは 9 段階から 1 段階方向に成長しながら移動し、それにつれて第 I 抽出器の k_{eff} は上昇する。第 I 抽出器の中央(第 5 段)に水相の Pu ピークがある時(変動後 45 h)は、中性子物理的には最も臨界になり易い濃度分布であるが、Pu 濃度は約 20 g/l とまだ低いため Fig. 7 から k_{eff} は約 0.93 である。すなわち、最大の k_{eff} には水相の Pu 濃度が最高(30.5 g/l)となる第 3 段にピークがきた約 60 h 後に到達し($k_{eff}=1.04$)その後減少している。Fig. 8 には最高濃度時の Pu, U 濃度分布を示す。一方、溶媒流量が 8.5% 減少した場合は、Pu 蓄積速度は小さいが最大濃度は前者より高くなり、変動後 100 h 後には $k_{eff}=1.10$ になっている。

ここで Fig. 7 から $k_{eff}=1.0$ 、すなわち臨界到達点をみると、水相中 Pu 最大濃度は約 27 g/l であり、流量減少が 10.7% では約 52 h 後、8.5% では約 81 h 後である。また、前者を例にとるなら、臨界到達後さらに 1 ドル(0.23% $\Delta k/k$)だけの反応度が添加され、即発臨界に達するまでの時間は約 0.5 h である。

Fig. 8 Concentration profile of fissile material at which k_{eff} of mixer settler bank is maximum with 10.7% decrease of solvent flow.

実際には、ミキサセトラ内の溶液は即発臨界到達以前に、温度上昇と放射線分解ガスの発生による反応度フィードバックがあり、さらに溶液の流れによる影響も考慮すると単純な現象ではないであろう。

Fig. 7 は処理燃料の U 濃縮度が 2.3% の場合であるが、臨界到達 Pu 濃度に対する U 濃縮度の影響を計算により求めたところ、4.0% では約 23 g Pu/l、0.7% では約 27 g Pu/l となった。

次に、工程フロー条件の変動によるミキサセトラ水相中の Pu 最高濃度の経時変化を Fig. 9 に示す。種々の変動による Pu 蓄積分布パターンが類似していることから、Fig. 7 で示したように、 $k_{eff}=1.0$ の Pu 濃度を 27 g/l とすると、種々の変動率とそれによる臨界到達時間との関係が Fig. 9 より求められる。図から、工程フロー条件の変動率が小さい時には臨界到達に要する時間が長く、変動率が大きいと到達時間が短いこと、変動率があまり大きいと廃液中への Pu 漏洩が速やかに起こって臨界状態には至らないことがわかる。また、最も早く臨界に到達する変動条件は 10~20% の間にあり、その場合の最小到達時間は 40 数 h である。

前章でも述べたように、Pu 蓄積原因が一部の有機相の U による飽和であることから、抽出溶媒とフィード溶液の変動条件のもとで、フィード中の U が第 I 抽出器を通過する間に全量抽出されると仮定した時のプロダクト有機相の U 飽和度(相対飽和度: 横軸)と最大到達 Pu 濃度(縦軸)との関係をプロットすると、Fig. 10 に示すように各条件変動に対しほぼ共通の曲線が得られる。フィード溶液の流量増大(□印)と U/Pu 濃度

Fig. 9 Variations of maximum concentration of Pu in aqueous phase after change of flow conditions

Fig. 10 Dependence of Pu accumulation in aqueous phase on relative saturation of organic phase with U(VI) at extraction bank

増大(Δ 印)の場合は、流入する Pu 量も増大するので、最大濃度は図の曲線より大きくなる。図から、Pu 濃度が 27 g/l を越すのは、相対飽和度が約 $76 \sim 82\%$ の間である(動燃事業団再処理工程正常時の相対飽和度は約 72%)。Fig. 11 は、工程フロー条件の定常条件からの変動率(横軸)と有機プロダクト相対飽和度(縦軸)の関係を示し、臨界に達する相対飽和度領域に対応した工程条件変動率を読み取ることができる。Fig. 11 と 6(c)の結果から、モデル工程が臨界状態に達する条件をまとめると、次の(1)~(3)のいずれかである。

(1) 抽出溶媒の流量あるいは TBP 濃度が約 $7 \sim$

13% 減少した時

(2) フィード溶液の流量あるいは U/Pu 濃度が約 $7 \sim 16\%$ 増大、または U のみの濃度が $7 \sim 15\%$ 増大した時

(3) 洗浄液の酸性度が 1 M 以下に減少した時

そして変動率が大きい方が早く臨界状態に到達する。

一般的に、実際の工程は絶えず条件変動を伴い、その上下限は制御系の性能に依存すると考えられるが、計測制御系が、例えば、工程条件の変動を上記(1)~(3)の値に近い最大幅で管理する性能を有する場合でも、工程条件が臨界に達し得る値に長時間維持される確率

Fig. 11 Relationships between change of flow conditions and relative saturation of organic phase with U(VI)

は大きくはないであろう。またミキサセトラ工程の特徴として、水相、有機相の抽出器内滞留時間が比較的に長いこと、条件変動に対する応答が極めてゆっくりと進む。すなわち、上記解析結果においても、最適条件が維持された場合の臨界到達には約2日かかり、その間の対処の余裕は十分与えられる。

ところで、有機相中U濃度の増大は、Puの蓄積のみならず、Uによる飽和のために逆抽出されるFPのリサイクル蓄積や、反対にUとともに抽出されるFPの除染係数の低下といった好ましくない現象も生じることには注意すべきであろう。

IV. 結 論

以上得られた結果から、ミキサセトラよりなるモデル Purex-共除染工程においては、Pu蓄積に起因する臨界事故を防止するため、以下の条件を満足すれば良いと考えられる。

- (1) 抽出溶媒、フィード液の流量、濃度等の変動幅をフローシート条件の約7%以内に維持できる性能を有する計測制御器の設置
- (2) 酸性度が1M以下の洗浄液が工程に注入されることを阻止するシステム(分析、モニタ、インタロック等)の設置
- (3) 工程内のU、Pu濃度が上昇し始めても十分な安

全裕度を持って検知できるモニタ類(Puの場合は $k_{eff}=0.90$ を上限値とすれば、その濃度はFig. 7によれば、約17g/lである)の設置

- (4) 上記条件が必ずしも十分に満足できない時の安全策は、経済性を多少犠牲にして、フローシート条件を有機相のU相対飽和度が低い(70%以下)方向(溶媒流量増、TBP濃度大等)に変更することである。

本稿では、ミキサセトラ工程について解析を行なったが、パルスカラム工程では流量が大きいため、例えば、前者で2日間を要した濃度平衡が、後者では10h以内で到達するといった極めて迅速な応答が得られる。したがって、今後の大型再処理施設を念頭におけば、パルスカラム工程における類似の現象を詳細に検討した上で、計測制御機器の適切な性能、安全な濃度制限値(Pu蓄積が速い時は、 k_{eff} の低い値を管理値とする必要がある)等の安全設計条件を求める必要がある。

なお、本稿ではもっぱら Rev. MIXSETによる解析を行なったが、同様の解析を米国PUBGコードを用いて行なったところ、最高濃度、到達時間等に少々の差が認められた。今後の課題として特に、過渡変化を正確に追跡できる信頼性の高い工程シミュレーションコードの開発ならびにその実験的検証があげられる。

— 参 考 文 献 —

- (1) NICHOLS, J.P.: *Nucl. Safety*, 3, 71 (1961).
- (2) CAST, D.R.: *ibid.*, 21, 648 (1980).
- (3) ROZEN, A.M., et al.: *At. Energ.*, 37, 194 (1974).
- (4) ROZEN, A.M., ZELVENSKI, M. Ya.: *Radiokhimiya*, 18, 572 (1976).
- (5) *idem.*: *At. Energ.*, 46, 333 (1979).
- (6) POCZYNAJLO, A., ZALEWSKI, J.: *Nukleonika*, 24, 1193 (1979).
- (7) OCHSENFELD, W., et al.: Studies on fast reactor fuel reprocessing in Karlsruhe, *Proc. Symp. on Fast Reactor Fuel Reprocessing, Dounreay, UK, May 15 ~18, 1979*, p.77.
- (8) 樺田浩三, 他: Purex プロセス計算コード Revised MIXSET, PNCT 841-79-26, (1979).
- (9) 樺田浩三: 再処理工場運転員のための溶媒抽出工程演習と考察, PNCT 852-77-08, (1977).
- (10) 樺田浩三, 他: ミキサセトラ型抽出器に関する臨界解析法, PNCT 841-80-01, (1980).
- (11) 館盛勝一, 他: ウラン-プルトニウム溶液系の臨界計算・I (溶液密度と原子個数密度の考察), JAERI-M 83-047, (1983).
- (12) NAITO, Y., et al.: MULTI-KENO: A Monte Carlo code for criticality safety analysis, JAERI-M 83-049, (1983).
- (13) CARTER, R.D., et al.: "Criticality Handbook", ARH-600, (1968~72).