

JAERI-M
91-184

ミキサセトラ工程のプルトニウム不均一
濃度分布の臨界性への影響

1991年11月

阿見 則男・三好 慶典・館盛 勝一

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公開している研究報告書です。
入手の問合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、
お申し込みください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡
東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.
Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division Department
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-
ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1991

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 ニッセイエプロ株式会社

ミキサセトラ工程のプルトニウム不均一濃度分布の臨界性への影響

日本原子力研究所東海研究所燃料安全工学部

阿見 則男・三好 慶典・館盛 勝一

(1991年10月8日受理)

再処理抽出工程では、有機溶媒流量減少のような工程異常時に4価プルトニウム(Pu(IV))が抽出器内に蓄積する可能性がある。このような蓄積で、Pu(IV)濃度がある限界を超えると第3相と呼ばれるPu(IV)、硝酸、TBPを高濃度で含む相が形成され、界面位や濃度分布、更に有機溶媒組成に大きく影響する。本報告では、界面位や濃度分布、有機溶媒組成等が抽出器の臨界性に及ぼす影響をMULTI-KENOを用いて調べた。多群核定数ライブラリはENDF/B-IVから作成したMGCL-26群および137群のデータセットを用いた。その結果、蓄積により高濃度になった有機相を、水相とみなして臨界計算を行っても K_{eff} の相違は1%程度であること、抽出器内で考えられる濃度範囲では燃料が抽出器中央に集まるような分布が K_{eff} をより大きくすること、TBP濃度が通常濃度の30%より高くなると K_{eff} が減少することがわかった。

Effect of Nonuniform Concentration Profile of Plutonium
in Mixer Settlers on Criticality of the Purex Process

Norio AMI, Yoshinori MIYOSHI and Shoichi TACHIMORI

Department of Fuel Safety Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received October 8, 1991)

In the Purex solvent extraction process, change of process conditions, such as a decrease of solvent flowrate, causes an accumulation of Pu(IV) in a mixer settler bank. When the concentration of Pu(IV) exceeds a certain concentration limit in the organic phase, a heavy organic phase, the third phase, forms. These phenomena, the accumulation and the third phase formation, remarkably affect concentration profile of Pu, liquid-liquid interfacial level of mixer settlers and composition of the solvent.

In the present study, some parameters which influence the criticality, k_{eff} , were examined. Effects of matrix solvent, concentration profile of Pu, interfacial levels and TBP content in the organic solvent on the k_{eff} value were examined by the Monte Carlo Code MULTI-KENO with MGCL 26 and 137 groups of constants library made from ENDF/B-IV.

The result of the analysis showed that the differences of k_{eff} value between the organic and the aqueous solutions were as small as approx. 1%, and the accumulation of Pu in a central part of system caused higher k_{eff} value, and TBP content higher than 30% in the organic solvent showed lower k_{eff} value than that of 30% TBP solvent.

Keywords: Mixer Settlers, Nonuniform Concentration Profile, The Third Phase, Plutonium, TBP, Monte Carlo Code, MULTI-KENO, Multigroup Constants Library, k_{eff} , Criticality

目 次

1. 序 論	1
2. 計算方法	1
2.1 計算条件	1
2.1.1 計算体系	1
2.1.2 水相と有機相の K_{eff} の比較計算の濃度条件	2
2.1.3 箱型10段体系の界面位および濃度分布のモデル化	2
2.1.4 TBP濃度の影響を調べるための計算の濃度条件	2
2.2 計算コード	3
2.2.1 溶液密度計算	3
2.2.2 多群核定数ライブラリ	3
2.2.3 臨界計算コード	3
3. 計算結果と考察	3
3.1 体系の大きさによる K_{eff} の変化	3
3.2 K_{eff} に関する水相と有機相の比較	3
3.3 界面位分布の臨界性への影響	4
3.4 濃度分布の臨界性への影響	4
3.5 TBP濃度の臨界性への影響	5
3.6 体系構成元素毎の臨界性への影響	5
4. まとめ	6
5. 今後の課題	6
参考文献	7
付録1 溶液の密度	26
付録2 原子個数密度	27

Contents

1. Introduction	1
2. Calculation Method	1
2.1 Calculation Model	1
2.1.1 Geometry of Extractor	1
2.1.2 Concentration Conditions for Comparison of k_{eff} Values between the Aqueous and the Organic Phases	2
2.1.3 Interfacial Level and Concentration Profiles of 10 Stages of Cuboid System	2
2.1.4 Concentration Conditions for Examine the Effect of TBP Content	2
2.2 Computer Code	3
2.2.1 Solution Density	3
2.2.2 Multigroup Constants Library	3
2.2.3 Effective Neutron Multiplication Factor	3
3. Results and Discussion	3
3.1 Scale Up Effect of Cuboid System on the k_{eff} Value	3
3.2 Comparison of k_{eff} Value between the Aqueous and the Organic Phases	3
3.3 Effect of Interfacial Level on k_{eff} Value	4
3.4 Effect of Concentration Profile on k_{eff} Value	4
3.5 Effect of TBP Content on k_{eff} Value	5
3.6 Effect of Atomic Number Density of Structural Element of System on k_{eff} Value	5
4. Summary	6
5. Future Perspective	6
References	7
Appendices 1 Solution Density	26
Appendices 2 Atomic Number Density	27

1. 序 論

リン酸トリブチル(TBP)を用いた再処理抽出工程では有機溶媒(30%TBP-n・dodecane)流量の減少等の工程異常時に4価プルトニウム(Pu(IV))が抽出器内に蓄積する事がある¹⁾。蓄積の結果、Pu(IV)の有機相中濃度がある限界(限界有機相中濃度:LOC)を超えると第3相と呼ばれるPu(IV)と硝酸およびTBPを高濃度で含む重い第2の有機相を生成し、水相、軽有機相、第3相の3相に分離する。筆者らが行った、Pu(IV)の代りに、第3相を生成する特性のある4価ウラン(U(IV))を用いた実験では、第3相は、有機-水相界面、すなわち抽出器内で中位に生じ、U(IV)濃度は平常時有機相濃度の数十倍(100~150g/ℓ)に達する場合もあり、硝酸濃度も数倍(0.5~1 M)高く、TBP濃度は50~70vol%の範囲にあった。一方、軽有機相ではTBP濃度は15vol%程度でありU(IV)濃度、硝酸濃度とも通常有機相中濃度よりも低かった。また、再処理抽出工程では水相-有機相界面は、ある変動幅で制御されており水相-有機相間にPu(IV)濃度差がある場合、抽出器内のPu質量分布は平常運転時においても変化すると考えられる。界面位の変動、蓄積や第3相のようなPu(IV)の不均一分布や局在化は、臨界安全上考慮すべき問題である。このような抽出器の臨界性評価ではこれまで多くの場合、有機相を水相とみなして解析を実施してきた。この背景には臨界計算に必要な原子個数密度の基となる有機溶液密度データが臨界計算に容易に用いられる形に整備されていないと言う事がある。界面位変動の臨界性への影響を調べるには水相と有機相の組成の違いを厳密に取扱わなければならない。この様な観点からPu不均一濃度分布の臨界性への影響を 1) 有機相を水相とみなして臨界計算を実施した場合に見込まれる K_{eff} の相違、2) 平常時、異常時を想定した界面位分布変動による K_{eff} の変化、3) 濃度分布変化による K_{eff} の変化、4) 第3相のようにTBP濃度が変化した場合の K_{eff} への影響、5) 体系を構成する元素のうち水素、炭素、窒素、酸素およびリンについて各々の原子個数密度の臨界性への影響、の5点に分けて解析した。

2. 計算方法

2.1 計算条件

2.1.1 計算体系

計算体系は主として箱型体系で反射体無しとした。これは、本研究の対象が再処理工程のミキサセトラ型抽出器であり、水没事故を含まない工程異常時についての解析に限ったからである。

水相と有機相の K_{eff} の比較のための計算には、箱型1段体系を用いた。TBP濃度の影響を調べるためには箱型1段体系を、また界面位分布や濃度分布、第3相生成の影響を調べるためには、箱型10段体系を用いた。箱型体系の大きさの決定には、実際の再処理工程のミキサセトラを参考とした。動力炉核燃料開発事業団(PNC)再処理工程²⁾のPuを含む抽出系1段当りの容積は、Pu精製工

1. 序 論

リン酸トリブチル(TBP)を用いた再処理抽出工程では有機溶媒(30%TBP-n・dodecane)流量の減少等の工程異常時に4価プルトニウム(Pu(IV))が抽出器内に蓄積する事がある¹⁾。蓄積の結果、Pu(IV)の有機相中濃度がある限界(限界有機相中濃度:LOC)を超えると第3相と呼ばれるPu(IV)と硝酸およびTBPを高濃度で含む重い第2の有機相を生成し、水相、軽有機相、第3相の3相に分離する。筆者らが行った、Pu(IV)の代りに、第3相を生成する特性のある4価ウラン(U(IV))を用いた実験では、第3相は、有機-水相界面、すなわち抽出器内で中位に生じ、U(IV)濃度は平常時有機相濃度の数十倍(100~150g/l)に達する場合もあり、硝酸濃度も数倍(0.5~1 M)高く、TBP濃度は50~70vol%の範囲にあった。一方、軽有機相ではTBP濃度は15vol%程度でありU(IV)濃度、硝酸濃度とも通常有機相中濃度よりも低かった。また、再処理抽出工程では水相-有機相界面は、ある変動幅で制御されており水相-有機相間にPu(IV)濃度差がある場合、抽出器内のPu質量分布は平常運転時においても変化すると考えられる。界面位の変動、蓄積や第3相のようなPu(IV)の不均一分布や局在化は、臨界安全上考慮すべき問題である。このような抽出器の臨界性評価ではこれまで多くの場合、有機相を水相とみなして解析を実施してきた。この背景には臨界計算に必要な原子個数密度の基となる有機溶液密度データが臨界計算に容易に用いられる形に整備されていないと言う事がある。界面位変動の臨界性への影響を調べるには水相と有機相の組成の違いを厳密に取扱わなければならない。この様な観点からPu不均一濃度分布の臨界性への影響を 1) 有機相を水相とみなして臨界計算を実施した場合に見込まれる K_{eff} の相違、2) 平常時、異常時を想定した界面位分布変動による K_{eff} の変化、3) 濃度分布変化による K_{eff} の変化、4) 第3相のようにTBP濃度が変化した場合の K_{eff} への影響、5) 体系を構成する元素のうち水素、炭素、窒素、酸素およびリンについて各々の原子個数密度の臨界性への影響、の5点に分けて解析した。

2. 計算方法

2.1 計算条件

2.1.1 計算体系

計算体系は主として箱型体系で反射体無しとした。これは、本研究の対象が再処理工程のミキサセトラ型抽出器であり、水没事故を含まない工程異常時についての解析に限ったからである。

水相と有機相の K_{eff} の比較のための計算には、箱型1段体系を用いた。TBP濃度の影響を調べるためには箱型1段体系を、また界面位分布や濃度分布、第3相生成の影響を調べるためには、箱型10段体系を用いた。箱型体系の大きさの決定には、実際の再処理工程のミキサセトラを参考とした。動力炉核燃料開発事業団(PNC)再処理工程²⁾のPuを含む抽出系1段当りの容積は、Pu精製工

程の15ℓおよび36ℓから100ℓ前後の範囲にある。これを参考に、解析には、1段当り23×70×20=32ℓのミキサセトラを用いた。段数の決定は、共除染工程異常時の濃度分布を参考とした。

共除染工程異常時の有機相中Pu(IV)濃度分布の計算例を図1に示す。17段の抽出器のうちPu濃度が高いのは1～9段である。したがってモデル抽出器は10段とした。箱型10段体系を図2に示す。箱型1段体系は10段体系の1段と同じ大きさであるがミキサとセトラの仕切は無い。水相と有機相の K_{eff} の比較計算では、参考のために円筒体系での計算を行った。これは、30φ×140H(cm)で、30cm厚さの水反射体付とした。円筒体系を図2に合せて示す。

2.1.2 水相と有機相の K_{eff} の比較計算の濃度条件

Pu濃度10～100g/ℓ、硝酸濃度0、0.2、0.5、1.0Mについて計算を行った。有機溶媒は、30vol%TBP-n・dodecaneとした。以後、TBP濃度はすべてvol%である。参考のため、円筒体系における水相と有機相の K_{eff} を計算したが、これに用いたPu濃度は10、20、40、80g/ℓとし、硝酸濃度は0.5Mとした。両体系ともPuは²³⁹Pu100%とした。

2.1.3 箱型10段体系の界面位および濃度分布のモデル化

箱型10段体系の濃度条件は一般的な軽水炉燃料再処理の濃度分布を参考に想定した。Puのinventory(4830g)を保存したモデルの簡略化の為、また臨界計算で K_{eff} が1.0に近くなるように考慮し、基本形(パターン1)は図3に示すようにPu濃度が有機相で全段20g/ℓ、水相で全段10g/ℓとし、Puに共存するU(VI)濃度分布は、有機相で全段68g/ℓ、水相で全段12g/ℓとした。硝酸濃度についても有機相全段0.25M、水相全段3.0Mとした。また、界面位は全段中位(10cm)にあるとした。Pu濃度分布変化の影響のみに着目したため異常時にもU(VI)濃度、硝酸濃度は、このままとした。基本形を基に界面位分布の変化および濃度分布の変化をパターン化した体系を用いて臨界計算を実施した。これらの体系では、濃度分布や界面位分布は、便宜上抽出器中央に関して対称な分布を持つとした。第3相に関するいくつかの特性は、U(IV)を用いて行った1段の攪拌槽による実験結果によった。第3相の代表的な特性を表1に示す。解析に用いた界面位置を第3相がない場合を表2-1、第3相がある場合を表2-2に示す。また、これらの界面位分布の変化を図4に示す。解析に用いた濃度分布を第3相がない場合を表3-1および図5-1に、第3相がある場合を表3-2および図5-2に示す。

尚、燃料は、天然Uと²³⁹Pu100%とし、有機溶媒は、30%TBP-n・dodecaneとした。TBP濃度の影響は別に議論する。

2.1.4 TBP濃度の影響を調べるための計算の濃度条件

通常の軽水炉燃料再処理では、TBP濃度は30%である。前述の通り第3相中では、TBP濃度は50～70%であり、Puは高濃度に蓄積している。一方、軽有機相ではTBP濃度は15%程度でありPu濃度も低いため解析対象から除外した。したがって、TBP濃度30～100%、硝酸濃度0.5M、Pu(IV)濃

度20、40、100g/ℓとした。Puは²³⁹Pu 100%である。

2.2 計算コード

2.2.1 溶液密度計算

プルトニウム、ウラン混合系の密度式として、筆者らのU(VI)-硝酸系でのデータや文献値を回帰分析した結果の式を用いている³⁾。有機相の溶液密度は、TBP濃度30%の時は各成分が溶液中で占める体積の情報等から推定した式によっている⁴⁾。TBP濃度30%以外では、TBPやn・dodecaneの密度およびTBP濃度30%の時の密度から推定した(付録)。水相原子個数密度およびTBP濃度30%の有機相原子個数密度の計算は、プログラム化してありU、Pu、硝酸の濃度等を入力として断面積セツト作成プログラム-MAIL⁵⁾の入力に合ったフォーマットで出力される。

2.2.2 多群核定数ライブラリ

多群核定数ライブラリは、ENDF/B-IVから作成したMGCL⁶⁾を用いた。このうち、箱型10段体系では26群データセツトを、箱型1段体系では有機溶媒中のリン(³¹P)を考慮するために137群データセツトを用いた。円筒体系には137群データセツトを用いた。

2.2.3 臨界計算コード

箱型体系は、1段、10段ともMULTI-KENO⁷⁾を用いた。箱型10段体系の計算は中性子発生数500、世代数210、スキップ数10とした。箱型1段体系では中性子発生数500、世代数410、スキップ数10とした。円筒体系ではKENO-IVを用い、中性子発生数500、世代数210、スキップ数10とした。

3. 計算結果と考察

3.1 体系の大きさによる K_{eff} の変化

はじめに、一定濃度の箱型体系(unit)を1段から16段まで配列した場合の K_{eff} の変化を調べた。Pu濃度40g/ℓ、硝酸濃度0.5 Mの有機相という条件でunit数に対する K_{eff} の変化を表4に示す。また、この関係を図6に示す。これによれば、unit数8までは体系の大きさとともに K_{eff} は増加するがunit数8と16とでは計算結果の3σをとると有意な差はない。10段の体系は適当な大きさである。

3.2 K_{eff} に関する水相と有機相の比較

箱型1段体系での K_{eff} の計算結果を硝酸濃度毎に表5に示す。このうち硝酸濃度0.5 Mの場合について図7に示す。参考のための円筒体系での計算結果を表6に、また図8に示す。次に K_{eff}

度20、40、100g/ℓとした。Puは²³⁹Pu 100%である。

2.2 計算コード

2.2.1 溶液密度計算

プルトニウム、ウラン混合系の密度式として、筆者らのU(VI)-硝酸系でのデータや文献値を回帰分析した結果の式を用いている³⁾。有機相の溶液密度は、TBP濃度30%の時は各成分が溶液中で占める体積の情報等から推定した式によっている⁴⁾。TBP濃度30%以外では、TBPやn-dodecaneの密度およびTBP濃度30%の時の密度から推定した(付録)。水相原子個数密度およびTBP濃度30%の有機相原子個数密度の計算は、プログラム化してありU、Pu、硝酸の濃度等を入力として断面積セツト作成プログラム-MAIL⁵⁾の入力に合ったフォーマットで出力される。

2.2.2 多群核定数ライブラリ

多群核定数ライブラリは、ENDF/B-IVから作成したMGCL⁶⁾を用いた。このうち、箱型10段体系では26群データセットを、箱型1段体系では有機溶媒中のリン(³²P)を考慮するために137群データセットを用いた。円筒体系には137群データセットを用いた。

2.2.3 臨界計算コード

箱型体系は、1段、10段ともMULTI-KENO⁷⁾を用いた。箱型10段体系の計算は中性子発生数500、世代数210、スキップ数10とした。箱型1段体系では中性子発生数500、世代数410、スキップ数10とした。円筒体系ではKENO-IVを用い、中性子発生数500、世代数210、スキップ数10とした。

3. 計算結果と考察

3.1 体系の大きさによる K_{eff} の変化

はじめに、一定濃度の箱型体系(unit)を1段から16段まで配列した場合の K_{eff} の変化を調べた。Pu濃度40g/ℓ、硝酸濃度0.5 Mの有機相という条件でunit数に対する K_{eff} の変化を表4に示す。また、この関係を図6に示す。これによれば、unit数8までは体系の大きさとともに K_{eff} は増加するがunit数8と16とでは計算結果の3σをとると有意な差はない。10段の体系は適当な大きさである。

3.2 K_{eff} に関する水相と有機相の比較

箱型1段体系での K_{eff} の計算結果を硝酸濃度毎に表5に示す。このうち硝酸濃度0.5 Mの場合について図7に示す。参考のための円筒体系での計算結果を表6に、また図8に示す。次に K_{eff}

を差の形(有機相の K_{eff} -水相の K_{eff})にして図 9に示す。図中誤差表示は、 1σ である。それぞれの硝酸濃度で K_{eff} の差がPu(IV)濃度の変化により ± 0.02 程度の範囲で連続的に変化しているが、酸性度に対する相関はないように思われる。計算結果の 3σ を考慮し、全体的に見れば、 K_{eff} はPu(IV)濃度 $40\text{g}/\ell$ より低い側で有機相が大きく高濃度側で水相が大きい。その差は少なくともPu(IV)濃度が $30\text{g}/\ell$ 付近で 0.01 程度、また $70\text{g}/\ell$ 付近で -0.01 程度ある(図 9 破線)。Pu(IV)濃度 $70\text{g}/\ell$ 付近では、 K_{eff} の絶対値が 0.9 程度であり、相対的に水相の K_{eff} が 1.1% 程度大きい。

1% 程度の差は、 K_{eff} が 1.0 に近い場合には重要となる。このような議論は信頼性の高い密度データを基に行うべきものである。後述のように、燃料以外の体系構成元素のうち水素の臨界性への影響は他の元素より大きい。例えば、臨界計算のための溶液密度 1% ちがうとそのぶん溶媒が増減する結果となる(付録)。この溶媒の増減にともなって水相なら $10\sim 18\text{g}$ の水($0.5\sim 1\text{ mol}$)、有機相では $8\sim 15\text{g}$ の有機溶媒($0.040\sim 0.075\text{mol}$: 30% TBPとして)が変化する。この中の水素原子数は、水相で $1\sim 2\text{ mol}$ 、有機相で $1\sim 2\text{ mol}$ となる。溶液 1ℓ 中のH原子数は、水相、有機相とも $90\sim 110\text{mol}$ の範囲にあり、 $1\sim 2\text{ mol}$ のH原子数の変化は $1\sim 2\%$ の変化に対応する。 $1\sim 2\%$ のH原子数の違いは、燃料濃度が同じであれば K_{eff} に $1\sim 2\%$ の差として反映する。水相、有機相とも信頼性の高い密度式が必要である。

3.3 界面位分布の臨界性への影響

界面位分布毎の K_{eff} 計算値を表 7に示す。パターン1→4にしたがって K_{eff} は 0.781 から 0.845 へと順次変化しており、抽出器中央で界面位が低い分布が K_{eff} を大きくする事がわかる。計算誤差の 3σ は約 0.006 であり、パターン1→2以外では有意な差がある。また、これらとは逆の抽出器両端で界面位が低く、中央で高いパターン5では基準系と殆ど差がない結果となった。界面位の低下は、本解析のように有機相でPu濃度が高い場合、その段のPu inventoryが増加することと同じである。これは、次節の濃度分布が抽出器中央で高くなる変化の場合も同様であり、そこでまとめて考える。

3.4 濃度分布の臨界性への影響

濃度分布毎の K_{eff} 計算値を表 8に示す。パターン1から5までは、第3相の生成を伴わない濃度分布変化、パターン6から9は第3相の生成を想定した濃度分布変化である。抽出器中央で順次濃度が高くなるパターン1から4にしたがって K_{eff} は 0.781 から 0.890 に変化した(パターン5については後述)。抽出器中央で濃度がより高くなる分布が K_{eff} を大きくする。計算誤差の 3σ は約 0.007 であり、全部のパターン間に有意な差が有る。次に第3相が生じた場合の K_{eff} の変化を図 10に示す。図中誤差表示は、 1σ である。第3相が生成し、体積が 0 から $6440\text{m}\ell \times 2$ 段に増加(図 4 界面位パターン6~8、および図 5-2 濃度パターン6~9参照)すると K_{eff} が 0.987 から 1.007 へ増加した。この第3相の厚さは抽出器深さの 20% に当たるが、筆者らのU(IV)-U(VI)系での小型ミキサセトラ実験ではセトラのほとんどが第3相となった場合があり、この様なときには K_{eff} は更に大き

くなる。本節では、Pu濃度変化のみに着目したため、第3相のTBP濃度変化は考慮していない。

TBP濃度変化の影響は、次節に述べた。燃料の抽出器内での偏りを見るために抽出器の段数とそれに含まれるPu量の関係調べた。これを図 11に示す。図では、左側に濃度分布の変化、右側に界面位分布の変化について示した。縦軸には抽出器段数とこれに対応した長さ、横軸は抽出器全体のPu-inventoryの%量をとった。Pu濃度分布、界面位分布とも抽出器中央に対して左右対称に設定したので縦軸の値は中央から両側へ数えた段数(長さ)となる。基本形では、Puは水相、有機相で一様に分布しているため段数とPu量の関係は、直線となる。界面位が抽出器中央で下がったり、濃度分布が抽出器中央で高くなったりすると、その程度に従い基本形の直線から下に凸の曲線に変化する。図には、それぞれの体系に対応する K_{eff} をあわせて示した。濃度分布パターン3では K_{eff} は0.843であり界面位分布により同じ程度の K_{eff} が0.845となるパターン4と比較して見ると界面位変化による方が曲線の変位が小さい。また、濃度分布パターン5は、各段での水相と有機相の平均濃度を界面位分布変化のパターン4と同じにした濃度分布である。濃度分布パターン5の体系の K_{eff} は、0.830であり、界面位分布パターン4に対する $K_{eff}=0.845$ より小さい。これは、一箇所に比較的高濃度の領域があり、そのまわりに濃度の低い領域がある場合より、ある領域で平均的に中程度の濃度である方が K_{eff} が大きくなることを示している。すなわち、燃料の偏りが同じでも界面位分布の変化の方が濃度分布の変化よりも臨界性に対する影響が大きい。

3.5 TBP濃度の臨界性への影響

TBP濃度が変化した場合の K_{eff} の変化を表 9および図 12に示す。燃料は、 $^{239}\text{Pu}100\%$ のみとした。TBP濃度が30%から第3相で想定される50~70%に変化すると燃料濃度20、40、100g/lとも K_{eff} は減少した。TBP濃度変化に伴う溶媒組成の変化は次のとおりである。1 molずつのTBPとn-dodecane中に水素原子はそれぞれ27および $26 \times$ アボガドロ数個含まれる。しかし、単位体積(1 l)当りの分子数を比較するとTBPでは3.66 molであり、n-dodecaneでは4.38 molである。また、TBPとn-dodecaneの混合では、体積変化は殆どない。このため一定体積のTBP-n-dodecane系でTBPが増加すると水素原子数が減少する。単位体積(1 l)のTBPとn-dodecaneには同数($12 \times$ アボガドロ数個)の炭素原子が含まれており、やはりTBPの増加により炭素原子数は減少する。逆に酸素、リンはn-dodecaneには含まれておらずTBPの増加により原子数が増加する。

3.6 体系構成元素毎の臨界性への影響

前節では、TBP濃度が変化すると溶媒を構成する種々の元素の個数密度が変化し、 K_{eff} に影響することがわかった。本節では、溶媒を構成する元素のうち、硝酸とTBP-n-dodecaneの成分元素である水素、炭素、窒素、酸素およびリンについてそれぞれの原子個数密度が臨界性に及ぼす影響を調べた。基準系は、30%TBP-n-dodecane-0.5 M HNO_3 -Pu(HNO_3)₄系とし、Pu 100g/lとした。予備的な解析で、リンは体系の臨界性に殆ど影響しないことが分かったので、その他の元素の影響の計算ではリンのない体系とした。解析は、着目元素の個数密度のみを基準系に対して1/5

から2倍まで変化させ、その他の元素の個数密度を固定した一連の計算結果によった。従って、現実に存在しない溶液も含まれる。また、Puについては、10および200g/lの場合について同様に解析した。リンおよび炭素が全く含まれない場合の計算値から水相についての推察ができる。計算結果を表 10-1~10-3および図 13に示す。図には、TBP濃度が30から70%に変化した場合に対応した各元素の個数密度変化も合わせて示した(基準点からの矢印)。その結果、水素原子数の変化が最も影響が大きく、炭素が僅かに影響し、酸素、窒素は殆ど影響しないことがわかった。これらの傾向は、Pu濃度10および200g/lでも同様であった。

4. まとめ

実験結果および考察についてまとめると次のとおりである

- (1) 本報告で想定した条件では、計算結果の3 σ を考慮し、全体的に見れば、 K_{eff} はPu(IV)濃度40g/lより低い側で有機相が大きく高濃度側で水相が大きい。その差は少なくともPu(IV)濃度が30g/l付近で0.01程度、また70g/l付近で-0.01程度ある。Pu(IV)濃度70g/l付近では、 K_{eff} の絶対値が0.9程度であり、相対的に水相の K_{eff} が1.1%程度大きい。
- (2) 界面位分布および濃度分布変化の臨界性への影響は、Pu濃度100g/l以下の領域では、H/Puの小さい、すなわちPu濃度が高い領域の拡大(界面位の低下)やPu濃度の増加により K_{eff} が増加する傾向にある。また、同じ燃料の偏り量に対して界面位分布の変化の方が濃度分布の変化より臨界性に対する影響は大きい。
- (3) TBP濃度が30%から第3相で想定される50~70%に変化すると燃料濃度20、40、100g/lで K_{eff} は減少した。これは主として水素原子の減少に起因している。
- (4) 体系を構成する水素、炭素、窒素、酸素およびリンのうち水素の原子個数密度が最も臨界性に影響があり、その他の元素の影響は僅かであった。

5. 今後の課題

今後、パルスカラム型装置を想定した体系について計算を行う。また、臨界計算を実施するに当たり、有機相をどのように扱うかについての詳細な検討は、信頼性の高い有機相密度式によらなければならない。水相についても溶液として存在する範囲について明確にし、更に信頼性の高い密度式を整備すると共に現在実施している安全側の解析(例えば硝酸濃度 0 Mの水溶液)がどの程度の裕度があるかについて検討する必要がある。

から2倍まで変化させ、その他の元素の個数密度を固定した一連の計算結果によった。従って、現実に存在しない溶液も含まれる。また、Puについては、10および200g/lの場合について同様に解析した。リンおよび炭素が全く含まれない場合の計算値から水相についての推察ができる。計算結果を表 10-1~10-3および図 13に示す。図には、TBP濃度が30から70%に変化した場合に対応した各元素の個数密度変化も合せて示した(基準点からの矢印)。その結果、水素原子数の変化が最も影響が大きく、炭素が僅かに影響し、酸素、窒素は殆ど影響しないことがわかった。これらの傾向は、Pu濃度10および200g/lでも同様であった。

4. まとめ

実験結果および考察についてまとめると次のとおりである

- (1) 本報告で想定した条件では、計算結果の3 σ を考慮し、全体的に見れば、 K_{eff} はPu(IV)濃度40g/lより低い側で有機相が大きく高濃度側で水相が大きい。その差は少なくともPu(IV)濃度が30g/l付近で0.01程度、また70g/l付近で-0.01程度ある。Pu(IV)濃度70g/l付近では、 K_{eff} の絶対値が0.9程度であり、相対的に水相の K_{eff} が1.1%程度大きい。
- (2) 界面位分布および濃度分布変化の臨界性への影響は、Pu濃度100g/l以下の領域では、H/Puの小さい、すなわちPu濃度が高い領域の拡大(界面位の低下)やPu濃度の増加により K_{eff} が増加する傾向にある。また、同じ燃料の偏り量に対して界面位分布の変化の方が濃度分布の変化より臨界性に対する影響は大きい。
- (3) TBP濃度が30%から第3相で想定される50~70%に変化すると燃料濃度20、40、100g/lで K_{eff} は減少した。これは主として水素原子の減少に起因している。
- (4) 体系を構成する水素、炭素、窒素、酸素およびリンのうち水素の原子個数密度が最も臨界性に影響があり、その他の元素の影響は僅かであった。

5. 今後の課題

今後、パルスカラム型装置を想定した体系について計算を行う。また、臨界計算を実施するに当たり、有機相をどのように扱うかについての詳細な検討は、信頼性の高い有機相密度式によらなければならない。水相についても溶液として存在する範囲について明確にし、更に信頼性の高い密度式を整備すると共に現在実施している安全側の解析(例えば硝酸濃度 0 Mの水溶液)がどの程度の裕度があるかについて検討する必要がある。

から2倍まで変化させ、その他の元素の個数密度を固定した一連の計算結果によった。従って、現実に存在しない溶液も含まれる。また、Puについては、10および200g/lの場合について同様に解析した。リンおよび炭素が全く含まれない場合の計算値から水相についての推察ができる。計算結果を表 10-1~10-3および図 13に示す。図には、TBP濃度が30から70%に変化した場合に対応した各元素の個数密度変化も合わせて示した(基準点からの矢印)。その結果、水素原子数の変化が最も影響が大きく、炭素が僅かに影響し、酸素、窒素は殆ど影響しないことがわかった。これらの傾向は、Pu濃度10および200g/lでも同様であった。

4. まとめ

実験結果および考察についてまとめると次のとおりである

- (1) 本報告で想定した条件では、計算結果の3 σ を考慮し、全体的に見れば、 K_{eff} はPu(IV)濃度40g/lより低い側で有機相が大きく高濃度側で水相が大きい。その差は少なくともPu(IV)濃度が30g/l付近で0.01程度、また70g/l付近で-0.01程度ある。Pu(IV)濃度70g/l付近では、 K_{eff} の絶対値が0.9程度であり、相対的に水相の K_{eff} が1.1%程度大きい。
- (2) 界面位分布および濃度分布変化の臨界性への影響は、Pu濃度100g/l以下の領域では、H/Puの小さい、すなわちPu濃度が高い領域の拡大(界面位の低下)やPu濃度の増加により K_{eff} が増加する傾向にある。また、同じ燃料の偏り量に対して界面位分布の変化の方が濃度分布の変化より臨界性に対する影響は大きい。
- (3) TBP濃度が30%から第3相で想定される50~70%に変化すると燃料濃度20、40、100g/lで K_{eff} は減少した。これは主として水素原子の減少に起因している。
- (4) 体系を構成する水素、炭素、窒素、酸素およびリンのうち水素の原子個数密度が最も臨界性に影響があり、その他の元素の影響は僅かであった。

5. 今後の課題

今後、パルスカラム型装置を想定した体系について計算を行う。また、臨界計算を実施するに当たり、有機相をどのように扱うかについての詳細な検討は、信頼性の高い有機相密度式によらなければならない。水相についても溶液として存在する範囲について明確にし、更に信頼性の高い密度式を整備すると共に現在実施している安全側の解析(例えば硝酸濃度 0 Mの水溶液)がどの程度の裕度があるかについて検討する必要がある。

参 考 文 献

- 1) 館盛 勝一、阿見 則男、三好 慶典：「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」、日本原子力学会誌、28、543(1968)。
- 2) 権田 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)
- 3) 桜井 聡、館盛勝一：「プルトニウム(IV)-ウラン(VI)-硝酸水溶液系の密度式の改良」、
JAERI-M 88-127(1988)
- 4) 館盛 勝一、阿見 則男、三好 慶典：「ウラン、プルトニウム溶液系の臨界計算・I」、
JAERI-M 83-047(1983)
- 5) 小室雄一、他：「断面積セット作成プログラム MAIL 3.0 使用手引書」、
JAERI-M 90-126(1990)
- 6) Y.NAITO, et al., 「MGCL-PROCESSOR: A Computer Code System for Processing Multigroup
Constants Library MGCL」, JAERI-M 9369(1981)
- 7) Y.NAITO, et al., 「MULTI-KENO: A Monte-Carlo Code for Criticality Safety Analysis」,
JAERI-M 83-049(1983)

表1 代表的な第3相の特性 (U(IV)を用いた実験による)

	アクチノイド(IV)濃度 (g/l)	硝酸濃度 (M)	体積 (ml)	水分量 (g/l)	TBP濃度 (%)
第3相	109.0	0.69	2.8	7.9	65.2
軽有機相	15.2	0.27	7.7	1.8	14.3
水相	20.7	3.2	9.6	-	-

表2-1 解析に用いた界面位 (第3相がない場合)

段	界面位 (cm)				
	パターン				
	1	2	3	4	5
1	10	12.8	14.4	16.0	7.2
2	10	10.8	11.6	14.0	9.2
3	10	9.6	10.0	10.0	10.4
4	10	8.8	7.6	6.0	11.2
5	10	8.0	6.4	4.0	12.0
6	10	8.0	6.4	4.0	12.0
7	10	8.8	7.6	6.0	11.2
8	10	9.6	10.0	10.0	10.4
9	10	10.8	11.6	14.0	9.2
10	10	12.8	14.4	16.0	7.2

表 2-2 解析に用いた界面位 (第 3 相がある場合)

段	界面位 (cm)			
	パターン			
	1	2	3	4
1	10	10	10	10
2	10	10	10	10
3	10	10	10	10
4	10	10	10	10
5	10	9.6 - 10.4	9.2 - 10.8	8 - 12
6	10	9.6 - 10.4	9.2 - 10.8	8 - 12
7	10	10	10	10
8	10	10	10	10
9	10	10	10	10
10	10	10	10	10
第3相厚さ	0	8 mm	16 mm	40 mm

表 3-1 解析に用いたPu(IV)濃度分布 (第 3 相がない場合)

段	Pu(IV)濃度 (g/l)				
	パターン				
	1	2	3	4	5*
1	20	14	10	1	12
2	20	17	12	2	13
3	20	20	17	12	15
4	20	23	26	35	17
5	20	26	35	50	18
6	20	26	35	50	18
7	20	23	26	35	17
8	20	20	17	12	15
9	20	17	12	2	13
10	20	14	10	1	12

* パターン5のみ各段で水相と有機相が同じ濃度とした

表3-2 解析に用いたPu(IV)濃度分布 (第3相がある場合)

		Pu(IV)濃度 (g/l)							
		パターン 6		パターン 7		パターン 8		パターン 9	
段		有機相	水相	有機相	水相	有機相	水相	有機相	水相
1		1	1	1	1	1	1	1	1
2		2	2	2	2	2	2	2	2
3		5	4	5	4	5	4	5	4
4		12	8	12	8	12	8	12	8
5		46	20	41.3	20.8	36.1	21.7	17.5	25
6		69	31	63.5	32.3	57.6	33.7	36.3	38.8
7		46	20	46	20	46	20	46	20
8		12	8	12	8	12	8	12	8
9		5	4	4	4	4	4	4	4
10		2	2	2	2	2	2	2	2
第3相	5	0	0	80	80	80	80	80	80
第3相	6	0	0	100	100	100	100	100	100

表4 体系の大きさによる K_{eff} の変化

unit数	K_{eff}
1	0.8822 ± 0.0021
2	1.0308 ± 0.0021
4	1.0875 ± 0.0020
8	1.1071 ± 0.0019
16	1.1123 ± 0.0019

表5 箱型体系での K_{eff} 計算結果

有機溶媒 : 30%TBP-n · dodecane, 硝酸濃度 : 0, 0.2, 0.5, 1.0 M

Pu濃度(g/l)	K_{eff}	
	有機相	水相
硝酸濃度 0 M		
20	0.7230 ± 0.0017	0.7230 ± 0.0017
40	0.8707 ± 0.0020	0.8658 ± 0.0021
60	0.9048 ± 0.0022	0.9048 ± 0.0022
80	0.9384 ± 0.0023	0.9393 ± 0.0021
硝酸濃度 0.2 M		
20	0.7338 ± 0.0017	0.7204 ± 0.0018
40	0.8652 ± 0.0020	0.8622 ± 0.0021
60	0.9100 ± 0.0021	0.9113 ± 0.0023
80	0.9287 ± 0.0022	0.9310 ± 0.0022
硝酸濃度 0.5 M		
10	0.5356 ± 0.0013	0.5327 ± 0.0014
20	0.7225 ± 0.0018	0.7155 ± 0.0018
40	0.8641 ± 0.0021	0.8534 ± 0.0021
60	0.8993 ± 0.0022	0.9029 ± 0.0022
80	0.9171 ± 0.0021	0.9320 ± 0.0021
100	0.9330 ± 0.0022	0.9394 ± 0.0022
硝酸濃度 1.0 M		
20	0.7169 ± 0.0016	0.7060 ± 0.0018
40	0.8413 ± 0.0020	0.8378 ± 0.0020
60	0.8796 ± 0.0022	0.8969 ± 0.0022
80	0.9140 ± 0.0022	0.9278 ± 0.0022

表6 円筒体系での K_{eff} 計算結果

硝酸濃度 : 0.5 M, 有機溶媒 : 30%TBP-n · dodecane

Pu濃度(g/l)	K_{eff}	
	有機相	水相
10	0.7901 ± 0.0017	0.7847 ± 0.0018
20	1.0313 ± 0.0024	1.0259 ± 0.0023
40	1.2004 ± 0.0024	1.2000 ± 0.0026
60	1.2635 ± 0.0028	1.2670 ± 0.0029
80	1.2982 ± 0.0031	1.2933 ± 0.0028

表7 界面位分布の変化と K_{eff} の関係

界面位パターン	K_{eff}
1	0.7811 ± 0.0022
2	0.7840 ± 0.0021
3	0.8269 ± 0.0023
4	0.8455 ± 0.0019
5	0.7795 ± 0.0021

表 8 Pu濃度分布の変化と K_{eff} の関係

濃度分布パターン	K_{eff}	第3相厚さ (mm)
1	0.7811 ± 0.0022	0
2	0.8102 ± 0.0023	0
3	0.8426 ± 0.0024	0
4	0.8901 ± 0.0022	0
5	0.8296 ± 0.0021	0
6	0.9866 ± 0.0025	0
7	0.9990 ± 0.0027	4
8	0.9970 ± 0.0026	16
9	1.0070 ± 0.0027	40

表 9 TBP濃度変化と K_{eff} の関係
硝酸濃度 : 0.5 M

TBP濃度(%)	Pu濃度(g/l)	K_{eff}
10	20	0.7100 ± 0.0017
20	20	0.7228 ± 0.0017
30	20	0.7255 ± 0.0017
50	20	0.7172 ± 0.0018
70	20	0.7095 ± 0.0018
90	20	0.6818 ± 0.0017
100	20	0.6694 ± 0.0017
10	40	0.8485 ± 0.0019
20	40	0.8627 ± 0.0020
30	40	0.8642 ± 0.0021
50	40	0.8427 ± 0.0020
70	40	0.8390 ± 0.0021
90	40	----- ± -----
100	40	0.7947 ± 0.0020
20	100	0.9229 ± 0.0023
30	100	0.9260 ± 0.0022
50	100	0.9114 ± 0.0021
70	100	0.9098 ± 0.0023
90	100	0.8723 ± 0.0023
100	100	0.8508 ± 0.0022

表10-1 体系構成元素毎の K_{eff} への影響

基準系の原子個数密度 (b/cm) Pu:100g/ℓ、30%TBP-n・dodecane、硝酸濃度:0.5M						K_{eff}
Pu	H	C	N	O	P	
2.519E-4	6.140E-2	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	6.140E-4	0.9260 ± 0.0022
原子個数密度 (b/cm) Pu: 10g/ℓ						K_{eff}
Pu	H	C	N	O	P	
2.519E-5	1.228E-2	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	0.0583 ± 0.0006
2.519E-5	3.070E-2	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	0.2752 ± 0.0012
2.519E-5	6.140E-2	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	0.5086 ± 0.0012
2.519E-5	9.210E-2	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	0.5778 ± 0.0011
2.519E-5	1.228E-1	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	0.5828 ± 0.0010
2.519E-5	6.140E-2	0.0	1.309E-3	6.382E-3	0.0	0.4407 ± 0.0012
2.519E-5	6.140E-2	1.396E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	0.4770 ± 0.0011
2.519E-5	6.140E-2	5.582E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	0.5729 ± 0.0013
2.519E-5	6.140E-2	2.791E-2	2.618E-4	6.382E-3	0.0	0.5214 ± 0.0013
2.519E-5	6.140E-2	2.791E-2	2.618E-3	6.382E-3	0.0	0.4992 ± 0.0012
2.519E-5	6.140E-2	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	6.140E-4	0.51045 ± 0.0013
2.519E-5	6.140E-2	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	1.228E-3	0.50917 ± 0.0012

表10-2 体系構成元素毎の K_{eff} への影響

原子個数密度 (b/cm) Pu:100g/ℓ						K_{eff}
Pu	H	C	N	O	P	
2.519E-4	6.140E-3	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	0.0538 ± 0.0005
2.519E-4	3.070E-2	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	0.4897 ± 0.0020
2.519E-4	9.210E-2	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	1.1667 ± 0.0022
2.519E-4	1.228E-1	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	1.3122 ± 0.0020
2.519E-4	6.140E-2	5.582E-3	1.309E-3	6.382E-3	0.0	0.8359 ± 0.0022
2.519E-4	6.140E-2	1.396E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	0.8688 ± 0.0023
2.519E-4	6.140E-2	4.187E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	0.9819 ± 0.0022
2.519E-4	6.140E-2	5.582E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	1.0248 ± 0.0023
2.519E-4	6.140E-2	2.791E-2	2.618E-4	6.382E-3	0.0	0.9286 ± 0.0022
2.519E-4	6.140E-2	2.791E-2	6.545E-4	6.382E-3	0.0	0.9303 ± 0.0022
2.519E-4	6.140E-2	2.791E-2	2.618E-3	6.382E-3	0.0	0.9288 ± 0.0021
2.519E-4	6.140E-2	2.791E-2	1.309E-3	1.276E-3	0.0	0.9055 ± 0.0022
2.519E-4	6.140E-2	2.791E-2	1.309E-3	3.191E-3	0.0	0.9177 ± 0.0022
2.519E-4	6.140E-2	2.791E-2	1.309E-3	9.573E-3	0.0	0.9417 ± 0.0024
2.519E-4	6.140E-2	2.791E-2	1.309E-3	1.276E-2	0.0	0.9526 ± 0.0023
2.519E-4	6.140E-2	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	0.9260 ± 0.0022
2.519E-4	6.140E-2	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	3.070E-4	0.9256 ± 0.0022
2.519E-4	6.140E-2	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	1.228E-3	0.9344 ± 0.0023

表10-3 体系構成元素毎の K_{eff} への影響

原子個数密度 (b/cm) Pu:200g/ℓ						K_{eff}
Pu	H	C	N	O	P	
5.038E-4	1.228E-2	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	0.1730 ± 0.0011
5.038E-4	3.070E-2	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	0.5230 ± 0.0019
5.038E-4	6.140E-2	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	0.9629 ± 0.0023
5.038E-4	9.210E-2	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	1.2216 ± 0.0022
5.038E-4	1.228E-1	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	1.3703 ± 0.0022
5.038E-4	6.140E-2	0.0	1.309E-3	6.382E-3	0.0	0.8447 ± 0.0022
5.038E-4	6.140E-2	1.396E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	0.9102 ± 0.0024
5.038E-4	6.140E-2	5.582E-2	1.309E-3	6.382E-3	0.0	1.0672 ± 0.0022
5.038E-4	6.140E-2	2.791E-2	2.618E-4	6.382E-3	0.0	0.9590 ± 0.0023
5.038E-4	6.140E-2	2.791E-2	6.544E-4	6.382E-3	0.0	0.9593 ± 0.0022
5.038E-4	6.140E-2	2.791E-2	2.618E-3	6.382E-3	0.0	0.9683 ± 0.0022
5.038E-4	6.140E-2	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	6.140E-4	0.9701 ± 0.0022
5.038E-4	6.140E-2	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	1.228E-3	0.9729 ± 0.0023

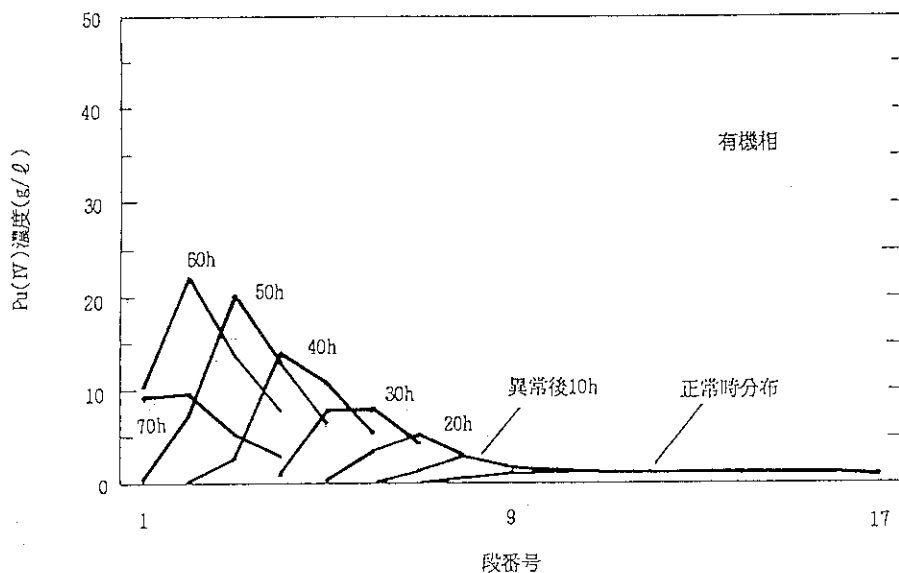


図1 共除染工程異常時のPu(IV)濃度分布計算例

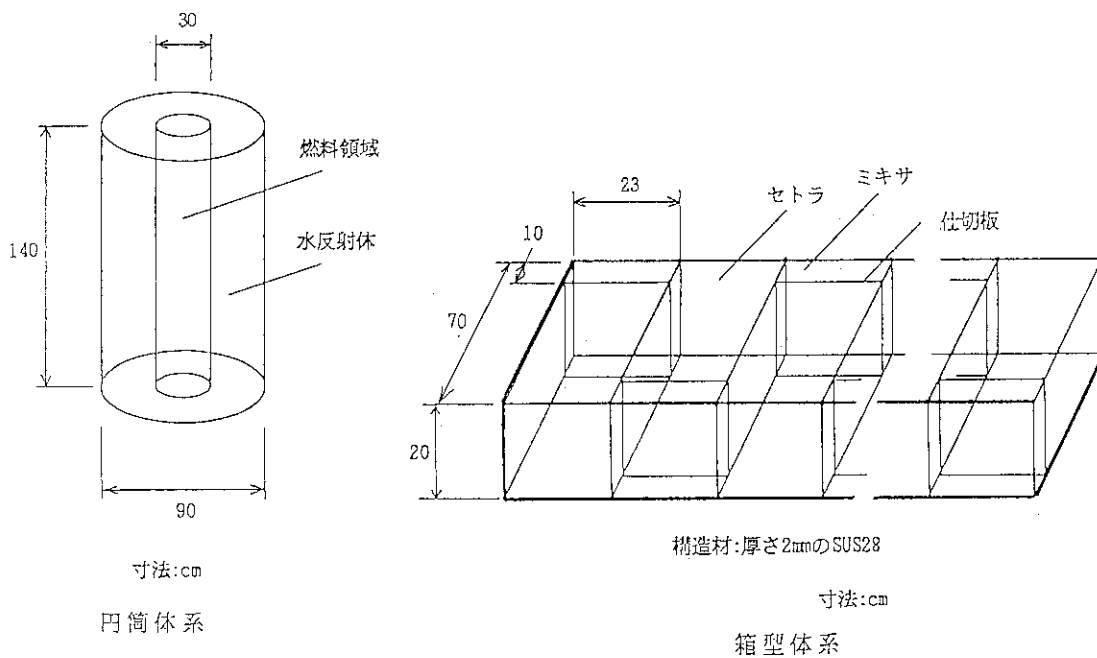


図2 計算に用いた体系

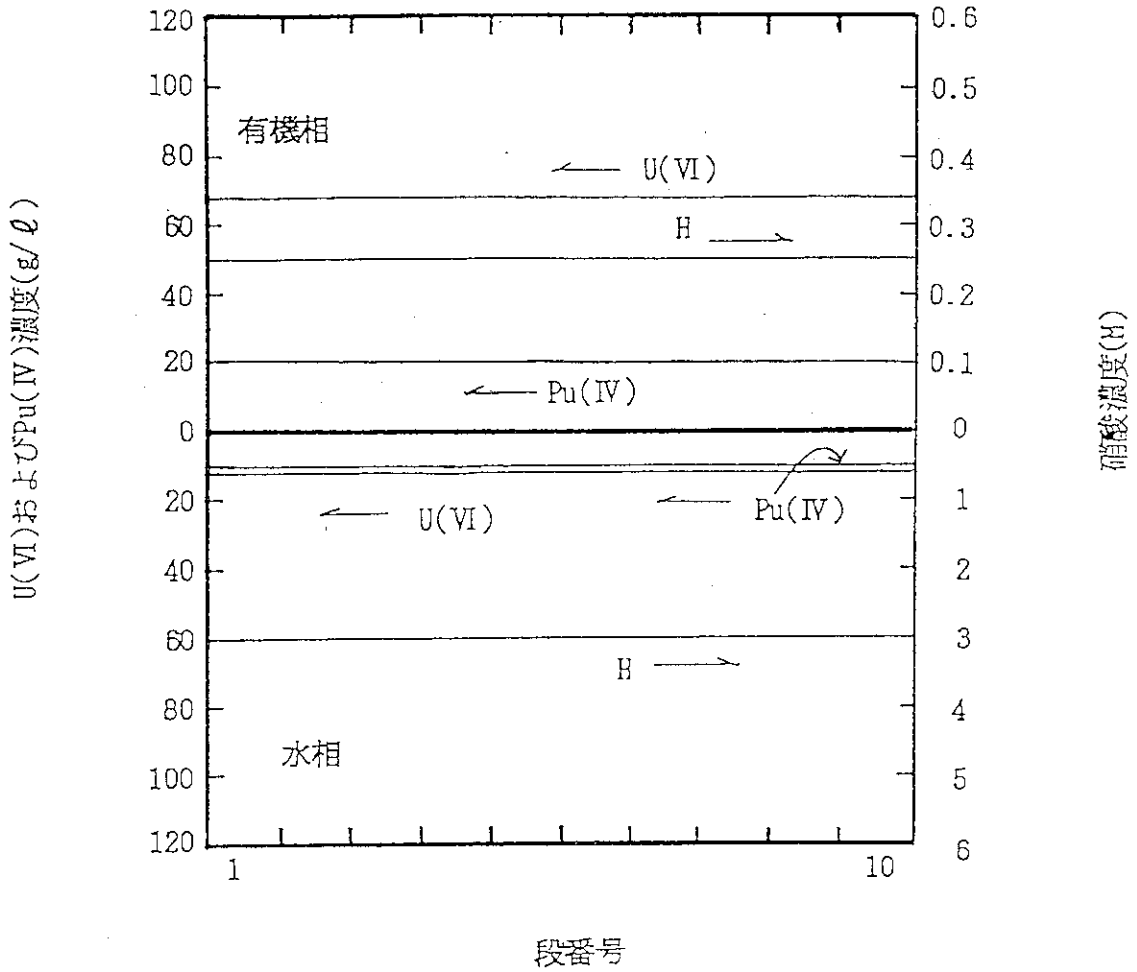


図3 モデル抽出器の基本濃度分布

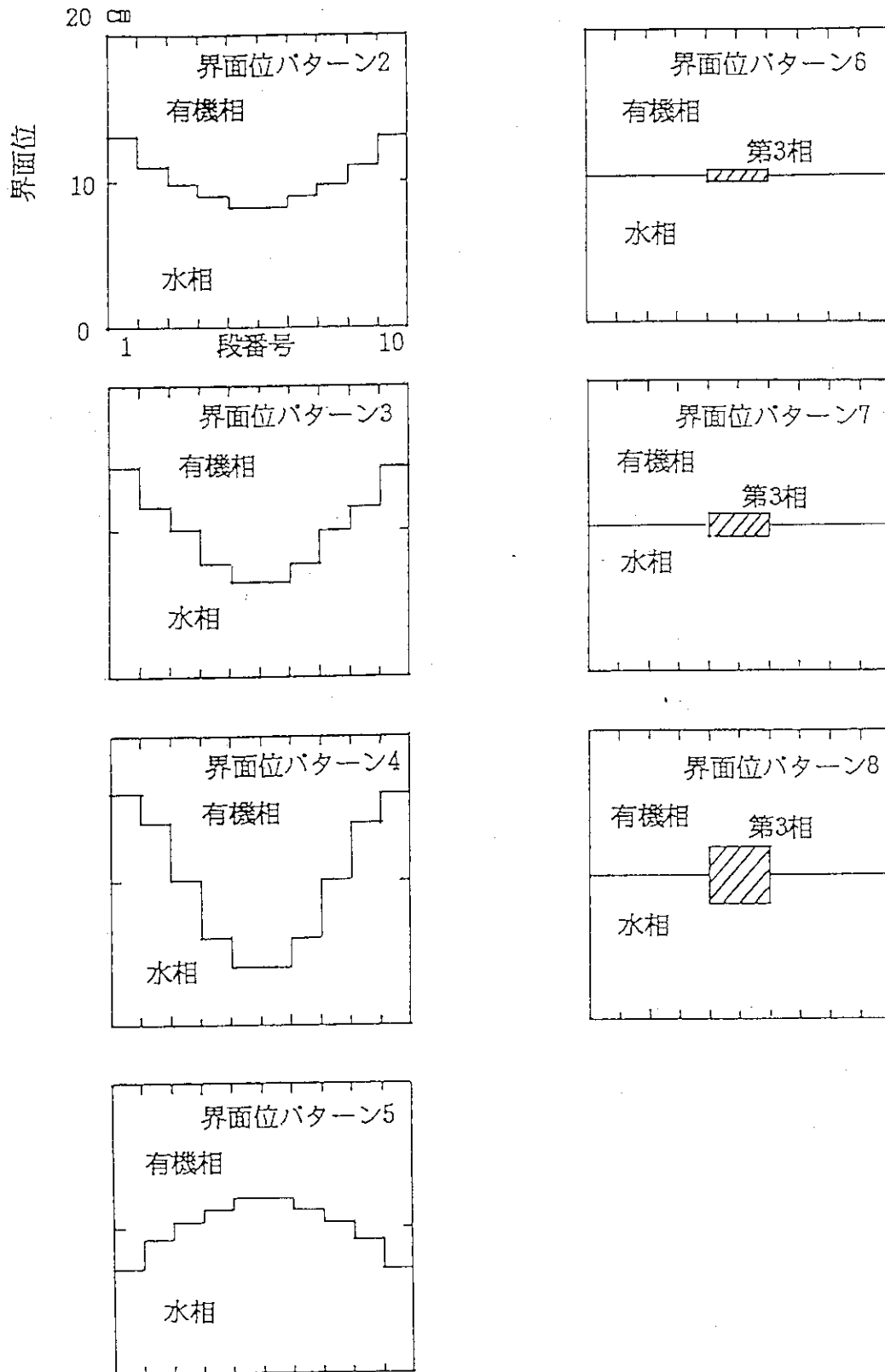


図4 界面位分布の変化

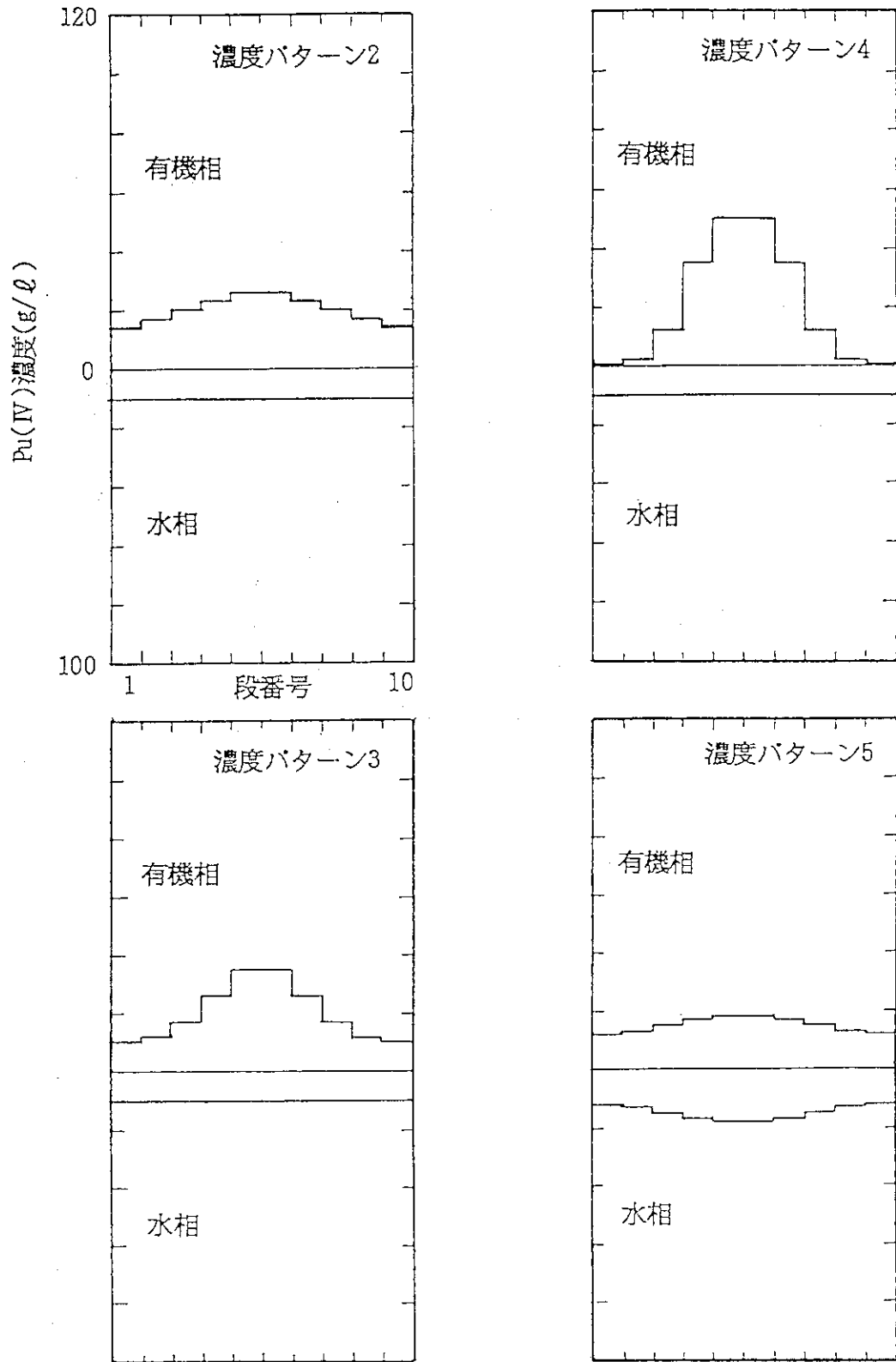


図 5 - 1 濃度分布の変化

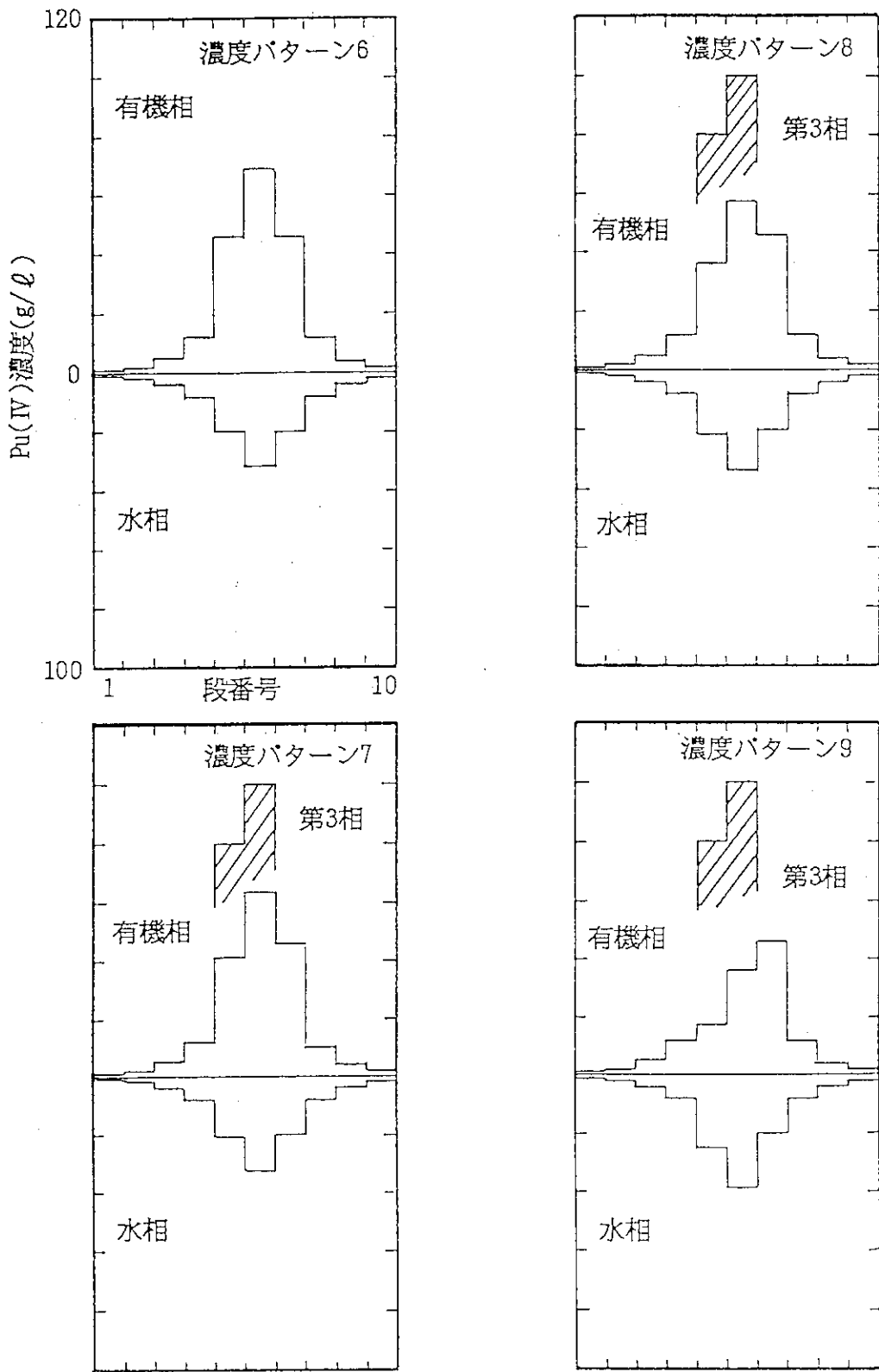


図5-2 濃度分布の変化 (つづき)

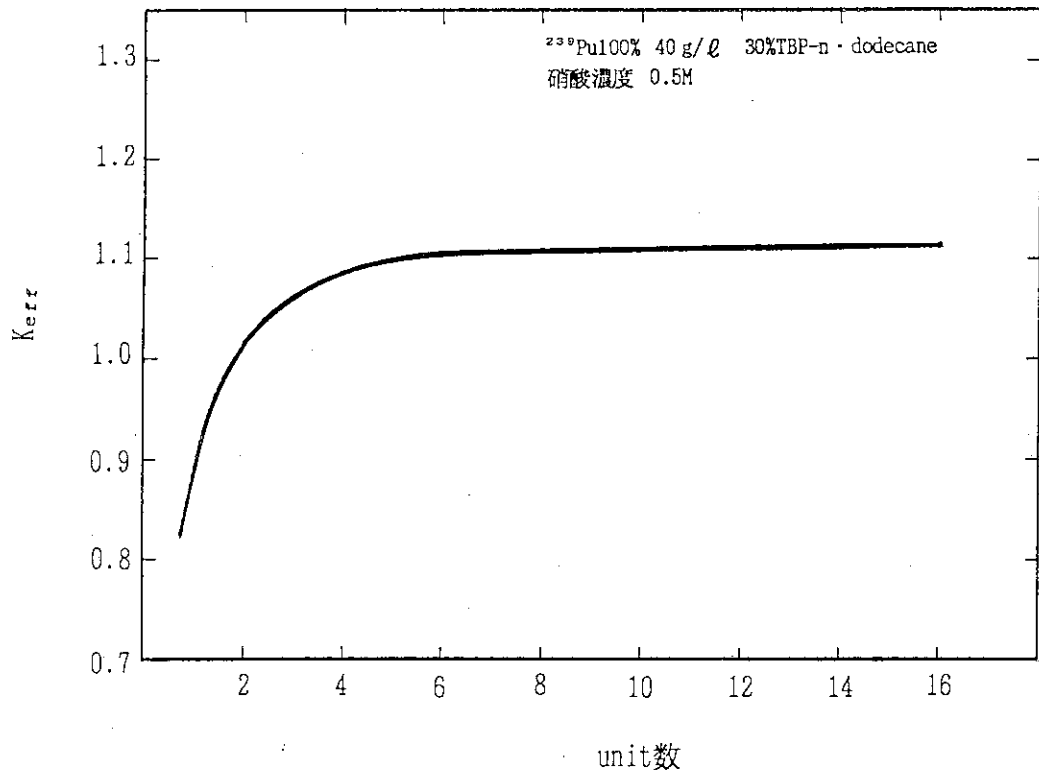


図6 体系の大きさによる K_{err} の変化

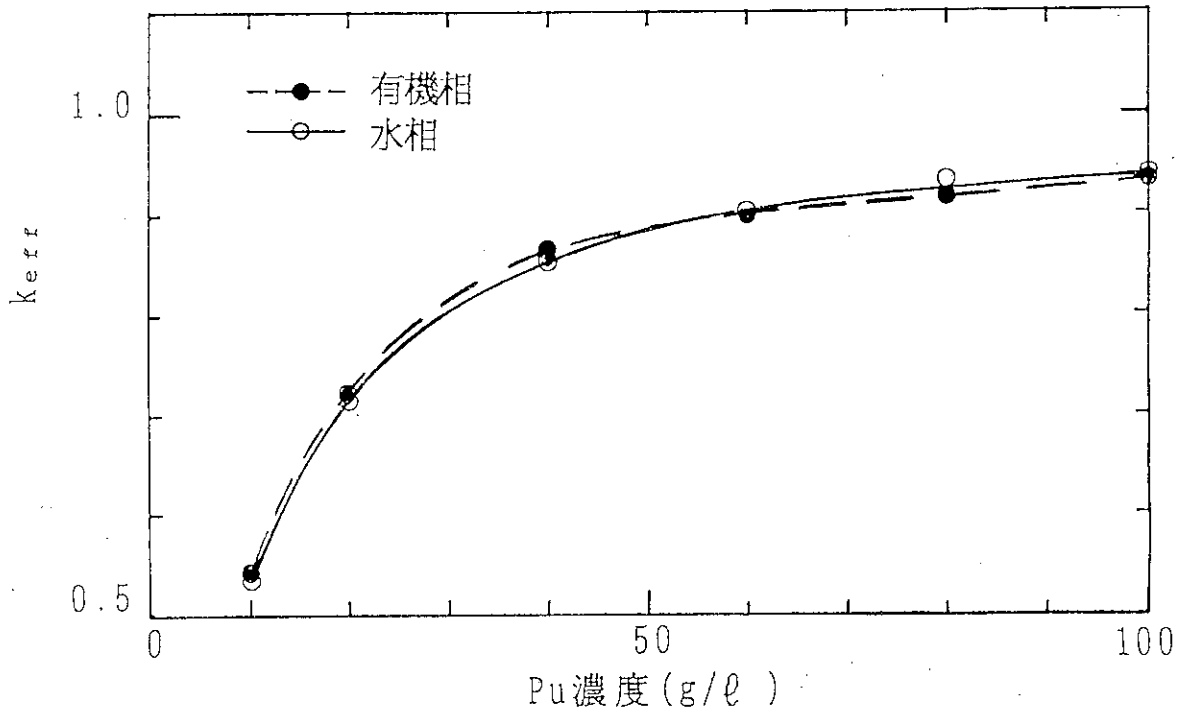


図7 箱型1段体系における水相と有機相の K_{err} の比較

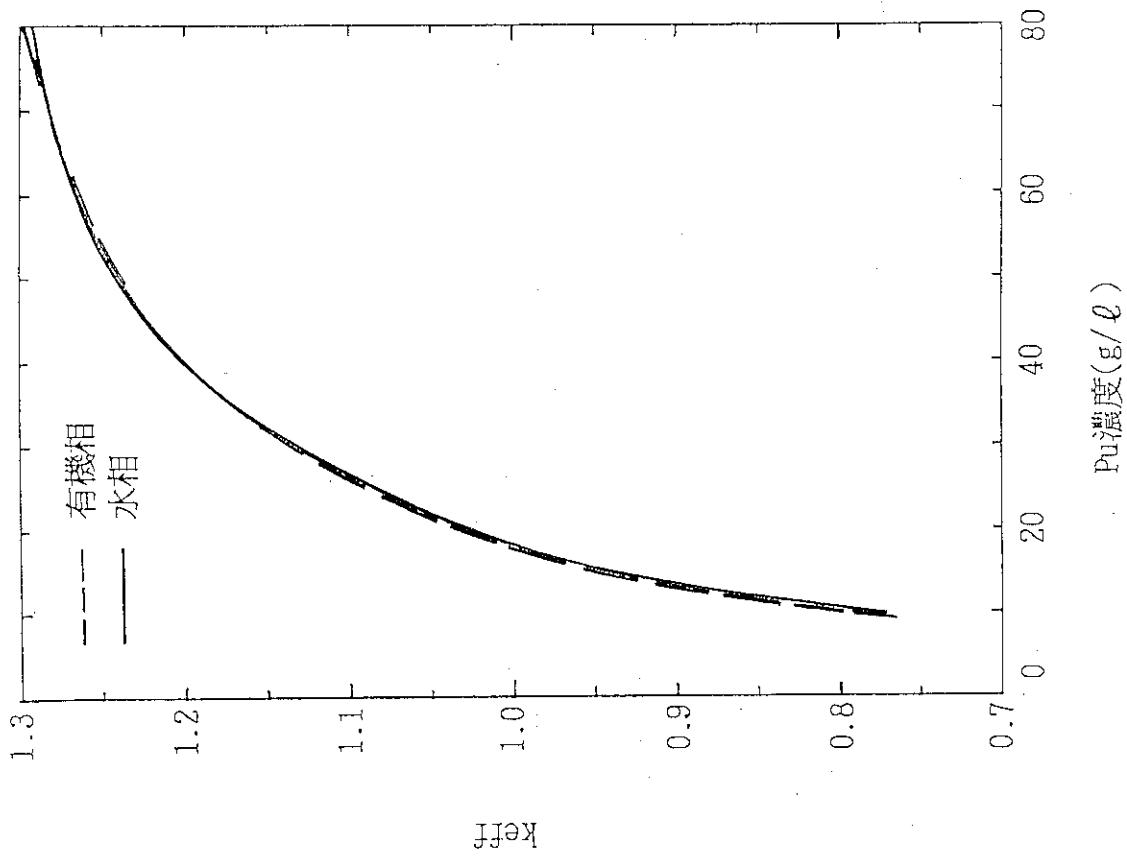


図8 円筒体系における水相と有機相の K_{eff} の比較

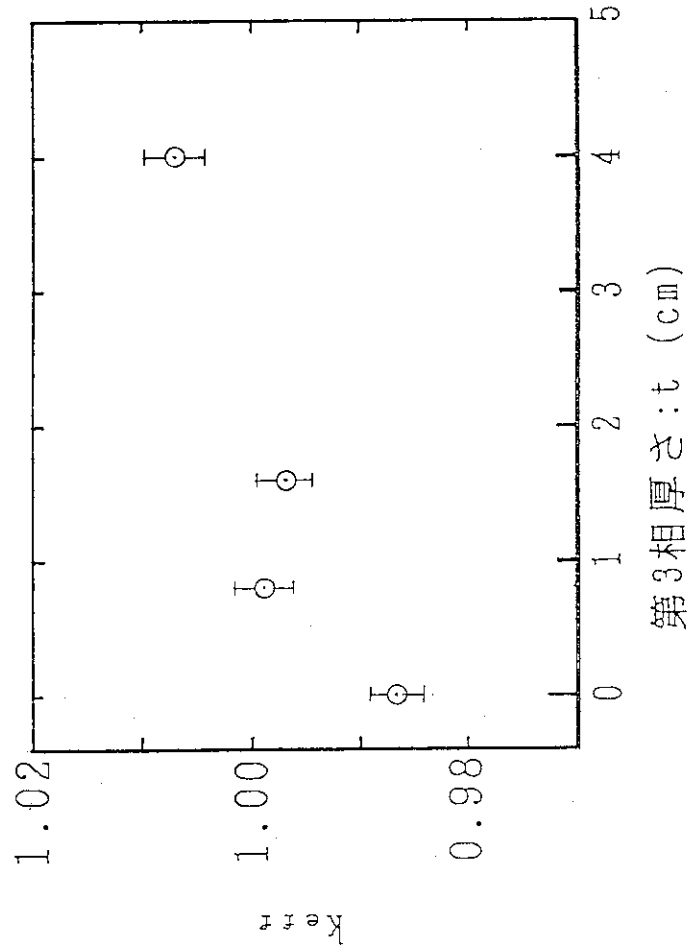


図10 第3相厚さの変化に伴う K_{eff} の変化

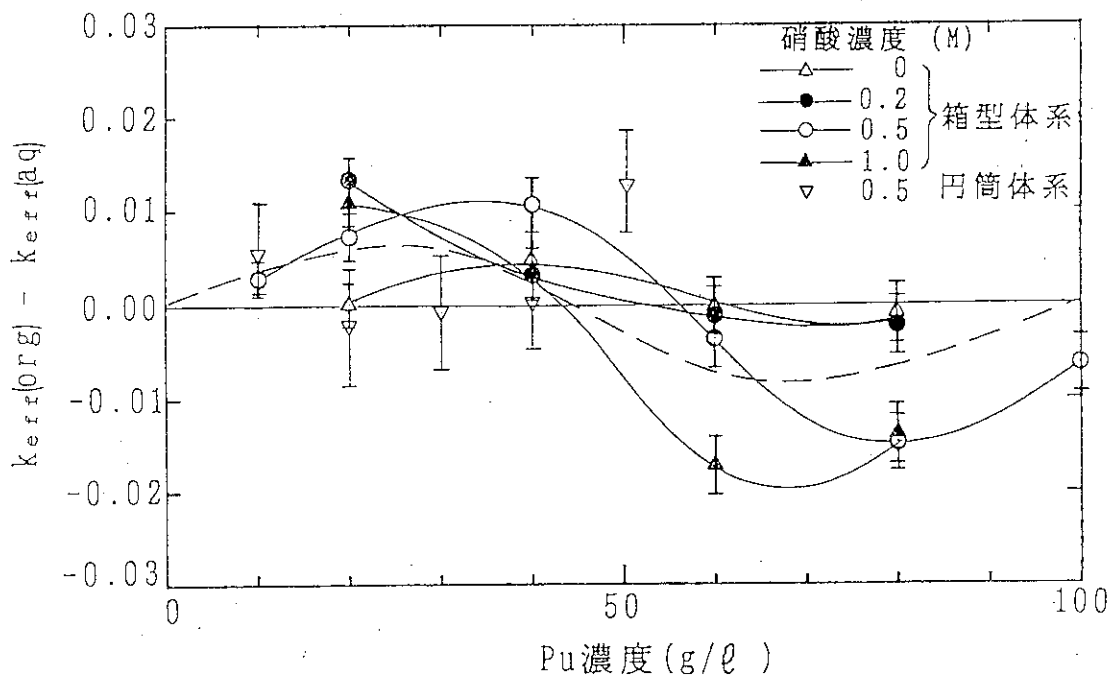


図9 中性子実効増倍係数に関する水相と有機相の比較

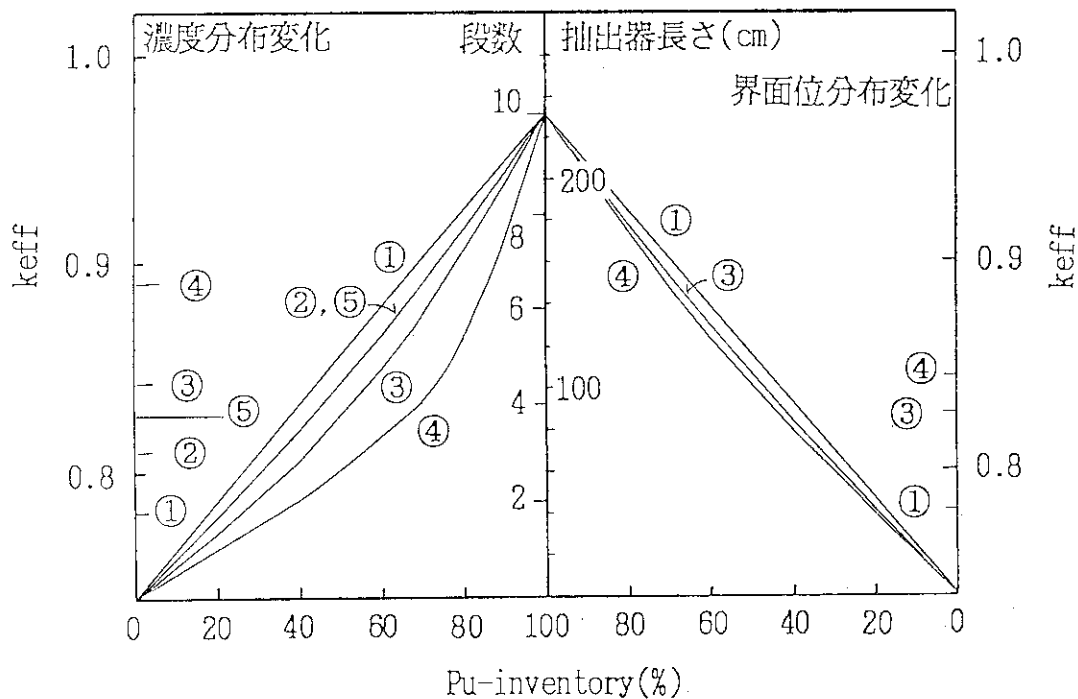


図11 抽出器段数とPu-inventory(%)の関係

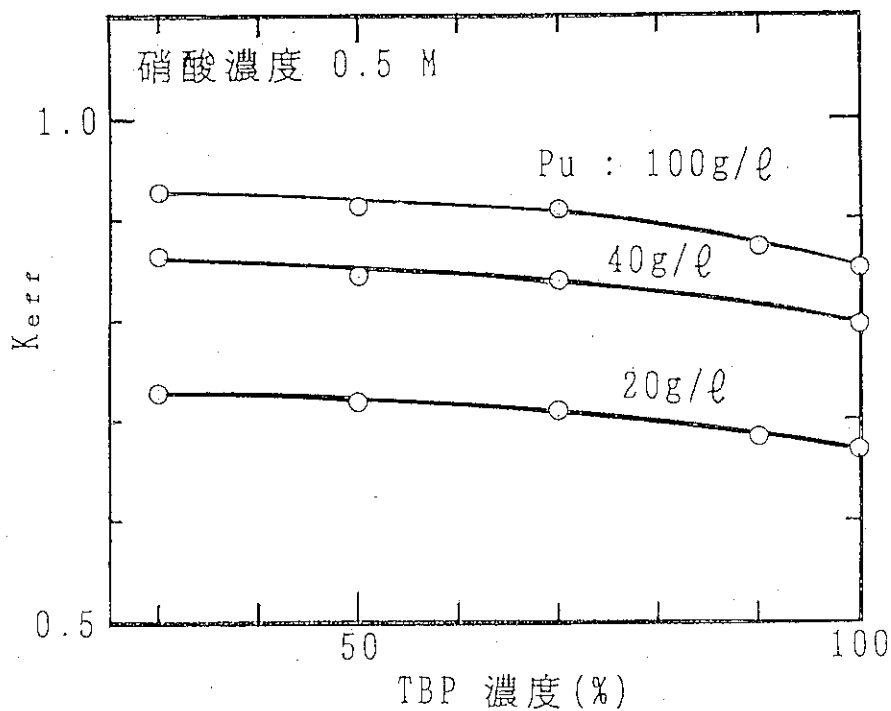


図12 TBP濃度の変化に伴う K_{err} の変化

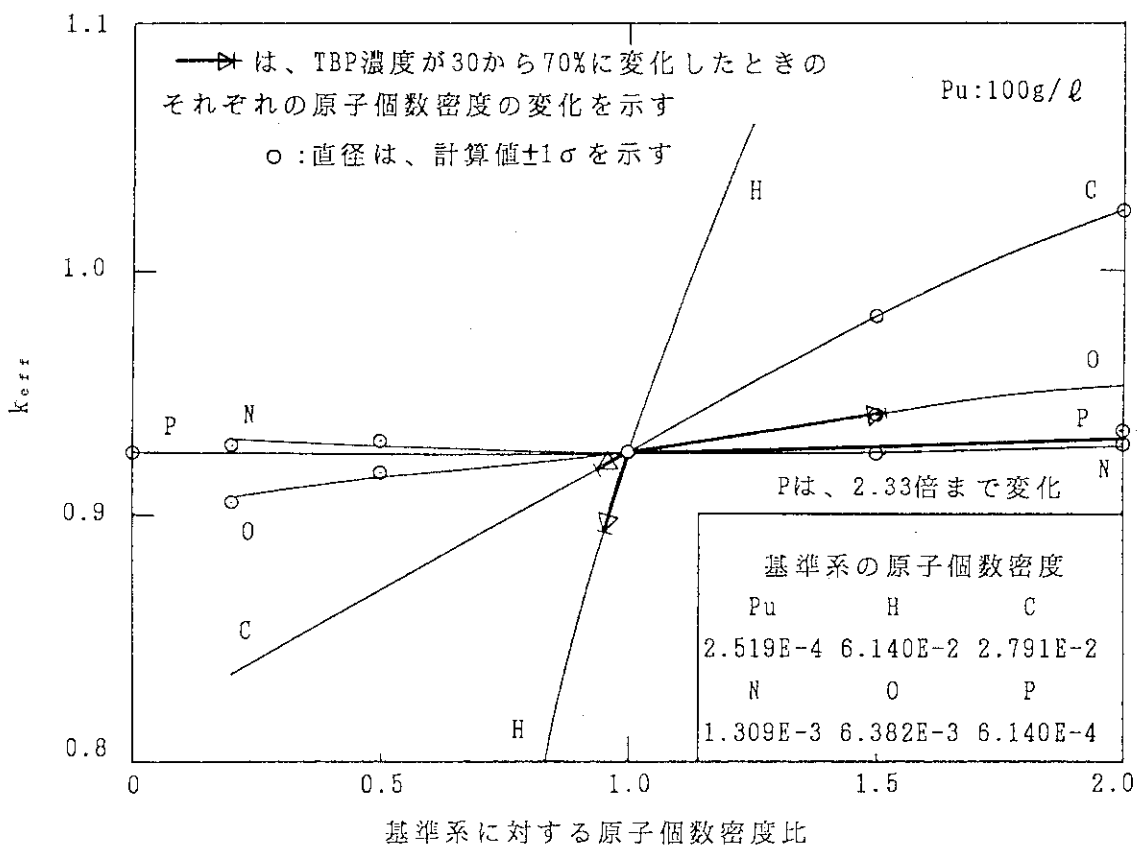


図13 体系構成元素毎の K_{err} への影響

付録 1 溶液の密度

水溶液系の密度式を示す

$$\begin{aligned} \rho = & 0.99833 + 1.6903 \times 10^{-3} \times [\text{Pu}] + 1.4276 \times 10^{-3} \times [\text{U}] + 3.9956 \times 10^{-2} \times [\text{H}] \\ & - 8.696 \times 10^{-8} \times [\text{Pu}]^2 - 1.087 \times 10^{-7} \times [\text{U}]^2 - 8.513 \times 10^{-4} \times [\text{H}]^2 - 5.442 \times 10^{-6} \times T^2 \\ & - 4.4889 \times 10^{-5} \times [\text{Pu}] \times [\text{H}] - 1.31 \times 10^{-6} \times [\text{Pu}] \times T - 1.564 \times 10^{-5} \times [\text{U}] \times [\text{H}] \\ & - 9.487 \times 10^{-7} \times [\text{U}] \times T - 8.684 \times 10^{-5} \times [\text{H}] \times T \end{aligned}$$

ここで Tは温度(°C)、[Pu]、[U]はそれぞれ25°CにおけるPu(IV)およびU(VI)濃度(g/ℓ)、
[H]は硝酸濃度(mol/ℓ)である。

25°Cの30%TBP-n・dodecane系の密度は、

$$\rho_{25} = 0.835 + 0.318[\text{UN}] + 0.340[\text{PN}] + 0.028[\text{HN}] + 0.0037[\text{H}_2\text{O}]$$

で計算できる。ここで、[H₂O]は、

$$[\text{H}_2\text{O}] = 0.492 - 0.942[\text{UN}] - 0.986[\text{PN}] - 0.306[\text{HN}]$$

また、UN、PN、HNは、それぞれ硝酸ウラニル、硝酸プルトニウム、および硝酸の濃度(mol/ℓ)である。

TBP濃度30%以外では、以下の様な考察により溶液密度を求めた。

解析の条件から硝酸は、0.5Mに固定されておりPuが増加しただけ有機溶媒が減少するものとした。まず、溶質のないTBP濃度0%の点、30%の点、100%の点は、それぞれ0.745g/mℓ、0.835g/mℓ、0.975g/mℓと解っている。次に、30%TBPの密度式から硝酸濃度0.5Mの時の密度を計算し、0.850g/ℓを得る。この密度増加分をTBP濃度30~100%のところでも採用し、硝酸濃度0.5Mの密度を得た。TBP濃度0%では、硝酸、Puとも抽出されないののでn・dodecaneのみの密度と30%TBP-硝酸濃度0.5Mの間を結んだ。この、硝酸濃度0.5M-TBP濃度0~100%の線を基準とし、TBP濃度30%の点で計算したPu濃度増加による密度増加分だけ平行に持ち上げ、Pu濃度10~100g/ℓに対応した密度を得た。

原子個数密度は、溶液重量から溶質重量を引いた残りが溶媒重量であるとして決定している。

アボガドロ数を断面積単位としてA=0.6022とすれば、それぞれの原子数は、

$$\text{Pu} : [\text{PN}] \times A$$

$$\text{U} : [\text{UN}] \times A$$

$$\text{O} : (8[\text{UN}] + 12[\text{PN}] + 3[\text{HN}] + [\text{H}_2\text{O}] + 4[\text{TBP}]) \times A$$

$$\text{H} : ([\text{HN}] + 2[\text{H}_2\text{O}] + 27[\text{TBP}] + 26[\text{DOD}]) \times A$$

$$\text{C} : (12[\text{TBP}] + 12[\text{DOD}]) \times A$$

$$\text{P} : [\text{TBP}] \times A$$

で計算できる。ここで、[TBP]、[DOD]は、それぞれTBPおよびn・dodecaneのmol濃度である。

尚、断面積セット作成プログラムへの入力は、原子個数/lmℓである。

付録 2 原子個数密度

本報告で臨界計算に用いた体系の原子個数密度を示す。

水溶液

濃度		溶液密度 (g/cm)	原子個数密度 (b/cm)			
Pu (g/l)	H M		Pu	H	N	O
20	0	1.028	5.038E-5	6.601E-2	2.015E-4	3.361E-2
40		1.061	1.008E-4	6.549E-2	4.031E-4	3.395E-2
60		1.094	1.511E-4	6.497E-2	6.046E-4	4.430E-2
80		1.127	2.015E-4	6.445E-2	8.061E-4	3.464E-2
20	0.2	1.035	5.038E-5	6.577E-2	3.220E-4	3.379E-2
40		1.068	1.008E-4	6.525E-2	5.235E-4	3.413E-2
60		1.101	1.511E-4	6.472E-2	7.250E-4	3.447E-2
80		1.134	2.015E-4	6.418E-2	9.266E-4	3.448E-2
10	0.5	1.030	2.519E-5	6.569E-2	4.019E-4	3.390E-2
20		1.046	5.038E-5	6.542E-2	5.026E-4	3.407E-2
40		1.079	1.008E-4	6.487E-2	7.042E-4	3.440E-2
60		1.111	1.511E-4	6.432E-2	9.057E-4	3.473E-2
80		1.144	2.015E-4	6.377E-2	1.107E-3	3.506E-2
100		1.176	2.519E-4	6.321E-2	1.309E-3	3.538E-2
20	1.0	1.064	5.038E-5	6.480E-2	8.037E-4	3.451E-2
40		1.096	1.008E-4	6.423E-2	1.005E-3	3.483E-2
60		1.128	1.511E-4	6.365E-2	1.207E-3	3.514E-2
80		1.160	2.015E-4	6.307E-2	1.408E-3	3.546E-2

水溶液

天然 U 12g/l: ^{238}U :3.036E-5, ^{235}U :9.108E-8

濃度			溶液密度 (g/cm)	原子個数密度			
Pu (g/l)	U (g/l)	H (g/l)		Pu (b/cm)	H (b/cm)	N (b/cm)	O (b/cm)
1	12	3	1.119	2.519E-6	6.251E-2	1.877E-3	3.605E-2
2			1.121	5.038E-6	6.248E-2	1.887E-3	3.606E-2
4			1.124	1.008E-5	6.241E-2	1.908E-3	3.609E-2
8			1.130	2.015E-5	6.227E-2	1.948E-3	3.614E-2
10			1.133	2.519E-5	6.220E-2	1.968E-3	3.616E-2
12			1.136	3.023E-5	6.213E-2	1.988E-3	3.619E-2
13			1.137	3.275E-5	6.210E-2	1.998E-3	3.620E-2
15			1.140	3.779E-5	6.203E-2	2.018E-3	3.623E-2
17			1.143	4.283E-5	6.196E-2	2.039E-3	3.625E-2
18			1.145	4.534E-5	6.193E-2	2.049E-3	3.627E-2
20			1.148	5.038E-5	6.186E-2	2.069E-3	3.629E-2
20.8			1.149	5.240E-5	6.183E-2	2.077E-3	3.630E-2
21.7			1.150	5.467E-5	6.180E-2	2.086E-3	3.631E-2
25			1.155	6.298E-5	6.168E-2	2.119E-3	3.636E-2
31			1.165	7.809E-5	6.148E-2	2.180E-3	3.643E-2
32.3			1.167	8.137E-5	6.143E-2	2.193E-3	3.645E-2
33.7			1.169	8.490E-5	6.138E-2	2.207E-3	3.647E-2
38.8			1.176	9.774E-5	6.120E-2	2.258E-3	3.653E-2

有機溶液 (30%TBP)

天然 U 68 g/l : ^{238}U :1.708E-4, ^{235}U :1.204E-6

濃度			溶液密度 (g/cm)	原子個数密度					
Pu (g/l)	U (g/l)	H (g/l)		Pu	H	C	N	O	P
20	68	0	0.8650	5.038E-5	6.680E-2	3.030E-2	2.015E-4	3.439E-3	6.468E-4
40			0.8931	1.008E-4	6.580E-2	2.989E-2	4.031E-4	3.958E-3	6.380E-4
60			0.9212	1.511E-4	6.479E-2	2.948E-2	6.046E-4	4.478E-3	6.292E-4
80			0.9494	2.015E-4	6.379E-2	2.907E-2	8.061E-4	4.997E-3	6.204E-4
20	68	0.2	0.8703	5.038E-5	6.635E-2	3.008E-2	3.220E-4	3.745E-3	6.419E-4
40			0.8985	1.008E-4	6.535E-2	2.966E-2	5.235E-4	4.265E-3	6.331E-4
60			0.9266	1.511E-4	6.434E-2	2.925E-2	7.250E-4	4.784E-3	6.243E-4
80			0.9548	2.015E-4	6.334E-2	2.884E-2	9.266E-4	5.304E-3	6.155E-4
10	68	0.5	0.8643	2.519E-5	6.617E-2	2.994E-2	4.019E-4	3.945E-3	6.390E-4
20			0.8784	5.038E-5	6.567E-2	2.973E-2	5.026E-4	4.205E-3	6.346E-4
40			0.9066	1.008E-4	6.467E-2	2.932E-2	7.042E-4	4.724E-3	6.258E-4
60			0.9347	1.511E-4	6.367E-2	2.891E-2	9.057E-4	5.244E-3	6.170E-4
80			0.9628	2.015E-4	6.267E-2	2.849E-2	1.107E-3	5.763E-3	6.082E-4
100			0.9912	2.519E-4	6.167E-2	2.805E-2	1.309E-3	6.321E-3	5.986E-4
20	68	1.0	0.8919	5.038E-5	6.455E-2	2.916E-2	8.037E-4	4.970E-3	6.224E-4
40			0.9200	1.008E-4	6.354E-2	2.875E-2	1.005E-3	5.490E-3	6.138E-4
60			0.9483	1.511E-4	6.254E-2	2.831E-2	1.207E-3	6.037E-3	6.042E-4
80			0.9768	2.015E-4	6.155E-2	2.785E-2	1.408E-3	6.603E-3	5.945E-4
80	0	0.25	0.9561	2.015E-4	6.323E-2	2.878E-2	5.380E-3	9.567E-4	6.143E-4
100	0		0.9843	2.519E-4	6.223E-2	2.837E-2	5.900E-3	1.158E-3	6.055E-4

有機溶液 (30%TBP)

天然 U 68 g/l : ^{238}U :1.708E-4, ^{235}U :1.204E-6

濃度		溶液密度 (g/cm)	原子個数密度 (b/cm)					
Pu (g/l)	H M		Pu	H	C	N	O	P
1	0.25	0.9348	2.519E-6	6.541E-2	2.975E-2	5.047E-4	4.485E-3	4.349E-4
2		0.9362	5.038E-6	6.536E-2	2.973E-2	5.148E-4	4.511E-3	6.345E-4
5		0.9404	1.260E-5	6.521E-2	2.967E-2	5.450E-4	4.589E-3	6.331E-4
10		0.9475	2.519E-5	6.496E-2	2.956E-2	5.954E-4	4.719E-3	6.309E-4
12		0.9503	3.023E-5	6.486E-2	2.952E-2	6.155E-4	4.771E-3	6.301E-4
13		0.9517	3.275E-5	6.481E-2	2.950E-2	6.256E-4	4.797E-3	6.296E-4
14		0.9531	3.527E-5	6.476E-2	2.948E-2	6.357E-4	4.823E-3	6.292E-4
15		0.9454	3.779E-5	6.471E-2	2.946E-2	6.458E-4	4.849E-3	6.287E-4
17		0.9573	4.283E-5	6.461E-2	2.942E-2	6.659E-4	4.901E-3	6.279E-4
17.5		0.9580	4.409E-5	6.459E-2	2.941E-2	6.710E-4	4.914E-3	6.276E-4
18		0.9587	4.534E-5	6.456E-2	2.940E-2	6.760E-4	4.927E-3	6.274E-4
20		0.9615	5.038E-5	6.446E-2	2.936E-2	6.962E-4	4.979E-3	6.265E-4
23		0.9658	5.794E-5	6.431E-2	2.929E-2	7.264E-4	5.057E-3	6.262E-4
26		0.9700	6.550E-5	6.416E-2	2.923E-2	7.566E-4	5.135E-3	6.239E-4
35		0.9826	8.817E-5	6.371E-2	2.905E-2	8.473E-4	5.369E-3	6.199E-4
36.1		0.9842	9.094E-5	6.365E-2	2.902E-2	8.584E-4	5.397E-3	6.194E-4
36.3		0.9845	9.144E-5	6.364E-2	2.902E-2	8.604E-4	5.403E-3	6.194E-4
41.3		0.9916	1.040E-4	6.339E-2	2.890E-2	9.108E-4	5.544E-3	6.169E-4
46		0.9983	1.159E-4	6.316E-2	2.880E-2	9.581E-4	5.677E-3	6.146E-4
50		1.004	1.260E-4	6.296E-2	2.871E-2	9.984E-4	5.790E-3	6.127E-4
57.6		1.015	1.451E-4	6.258E-2	2.853E-2	1.075E-3	6.005E-3	6.090E-4
63.5		1.023	1.600E-4	6.229E-2	2.840E-2	1.135E-3	6.172E-3	6.061E-4
69		1.031	1.738E-4	6.201E-2	2.827E-2	1.190E-3	6.328E-3	6.034E-4

有機溶液

濃度			溶液密度 (g/cm)	原子個数密度 (b/cm)					
Pu (g/l)	H (M)	TBP (%)		Pu	H	C	N	O	P
20	0.5	30	0.876	5.038E-5	6.560E-2	2.984E-2	5.026E-4	4.133E-3	6.563E-4
20		50	0.932		6.415E-2	2.896E-2		5.906E-3	1.100E-3
20		70	0.978		6.196E-2	2.775E-2		7.625E-3	1.529E-3
20		90	1.008		5.889E-2	2.639E-2		9.243E-3	1.934E-3
20		100	1.017		5.726E-2	2.545E-2		9.990E-3	2.121E-3
40		30	0.907	1.008E-4	6.473E-2	2.944E-2	7.042E-4	4.703E-3	6.476E-4
40		50	0.961		6.335E-2	2.860E-2		6.455E-3	1.086E-3
40		70	1.006		6.190E-2	2.773E-2		8.224E-3	1.528E-3
40		90	1.034		5.914E-2	2.627E-2		9.841E-3	1.932E-3
40		100	1.041		5.751E-2	2.543E-2		1.059E-2	2.119E-3
100		30	0.991	2.519E-4	6.140E-2	2.791E-2	1.309E-3	6.382E-3	6.140E-4
100		50	1.045		6.120E-2	2.717E-2		8.052E-3	1.032E-3
100		70	1.085		5.831E-2	2.611E-2		9.682E-3	1.439E-3
100		90	1.111		5.582E-2	2.478E-2		1.122E-2	1.823E-3
100		100	1.120		5.432E-2	2.401E-2		1.193E-2	1.940E-3

構造材:SUS28

原子個数密度 (b/cm)						
C	Si	Mn	S	Ni	Cr	Fe
5.038E-5	6.560E-2	2.984E-2	5.026E-4	4.133E-3	6.563E-4	1.234E-5

構造材中のリン(^{31}P)は、無視した。