

JAERI-M
93-218

溶解工程の臨界安全解析における
安全裕度の検討
(受託研究)

1993年11月

山本 俊弘・塩田 雅之*

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の間合わせは、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、
お申しこみください。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, 1993

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

溶解工程の臨界安全解析における安全裕度の検討

日本原子力研究所東海研究所燃料サイクル安全工学部

山本 俊弘・塩田 雅之*

(1993年10月12日受理)

回分式溶解槽モデルを対象として、燃焼度、ウラン及びプルトニウム以外のアクチニドや核分裂生成物の存在、溶液温度、溶液の化学的組成、燃料格子の配列等を変化させて臨界安全解析を行った。この結果、燃焼度 30000 MWD/T 及び 48000 MWD/T では、核分裂生成物やウラン及びプルトニウムの組成変化を考慮して臨界安全評価することにより、新燃料に比べそれぞれ 0.1 Δk , 0.15 Δk 以上実効増倍率が減少した。核分裂生成物の存在を考慮することにより更に 0.05 Δk 実効増倍率が減少したが、マイナーアクチニドの効果は小さい。また、現実の溶解槽での溶液中への燃料成分の溶解や溶液温度の上昇、最適減速とはならない不規則な燃料剪断片の配列などを考えると、さらに実効増倍率が減少する。本計算により安全評価用に設定されたモデルと実際の工程の間に存在する安全裕度の程度が明らかになった。

この報告書は、電源開発促進対策特別会計法に基づく科学技術庁からの受託として行った研究成果である。

東海研究所：〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方字白根 2-4

* (株)CRC 総合研究所

A Study of Safety Margins in Criticality Safety Analysis
of a Dissolution Process

Toshihiro YAMAMOTO and Masayuki SHIOTA*

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

(Received October 12, 1993)

Criticality safety analyses were executed for a batch type dissolver model changing such parameters as fuel burnup, with/without FPs and/or minor actinides, temperature and chemical components of fuel solution, fuel pitch and diameter of fuel rods. The results showed that the effective multiplication factor decreased by more than $0.1\Delta k$, $0.15\Delta k$ for the burnup of 30000MWD/T and 48000MWD/T, respectively compared to fresh fuel. The existence of fission products decreased the effective multiplication factor by more than $0.05\Delta k$, but the effect of minor actinides was slight. By taking into account of the fuel material in solution, temperature rise of the fuel solution and the irregular arrangement of fuel pieces, the neutron multiplication factor decreases further. Its study evaluated the safety margins between the safety assessment model for a dissolver and the real process.

Keywords: Dissolver, Burnup, Fission Products, Actinides, Effective Multiplication Factor, Criticality Safety Analysis, Safety Margin

This work was carried out by the Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI) under entrustment by the Science and Technology Agency (STA) of Japan

* CRC Research Institute, Inc.

目 次

1. はじめに	1
2. 計算対象及び計算方法	1
2.1 計算対象	1
2.2 計算方法	2
3. 計算結果	3
3.1 燃焼計算	3
3.2 最適減速条件の計算	3
3.3 臨界計算	4
4. 計算結果の検討	4
5. 結 論	5
謝 辞	5
参考文献	5
付 録	17

Contents

1. Introduction	1
2. Calculation Conditions and Method	1
2.1 Calculation Conditions	1
2.2 Calculational Method	2
3. Calculational Results	3
3.1 Burnup Calculation	3
3.2 Survey Calculation of Optimal Moderation	3
3.3 Criticality Calculation	4
4. Discussions	4
5. Conclusion	4
Acknowledgements	5
References	5
Appendix	17

1. はじめに

核燃料を取り扱うプロセスの臨界安全性の評価のためには、技術的に想定される最も厳しい条件を設定する。溶解槽での溶解工程では、燃料は新燃料、バケットの格子配列は最適減速条件、溶液温度は室温、また、溶液部を水（実際には燃料の溶解液）と仮定すれば、反応度的には最も厳しくなり、実際の工程との間に十分な安全裕度が存在することになる。

溶解工程における臨界性に影響を与える主要な臨界因子としては、①初期濃縮度、②燃焼度、③冷却期間、④格子配列、⑤溶液温度、⑥溶液部の化学的組成などが挙げられる。

②の燃焼度については、高い信頼性の確認が可能な場合には、燃焼に伴うウラン及びプルトニウムの組成変化を考慮することにより合理的な臨界設計が実現できる。この際、ウラン、プルトニウム以外にも他のアクチニドや核分裂生成物（FP）の存在を考慮することにより、より合理的な設計が可能となる。但し、中性子の吸収体として働くウラン、プルトニウム以外のアクチニドやFPは、その存在が確実に期待でき、かつ安定なものでなければならない。従って、それらの選定にあたっては特別の配慮が必要となってくる。

④の格子配列については、溶解槽では切断片の配列状態が特定できないため、最適減速となる格子配列を仮定することが最も安全側の設定となり、現実の配列条件に対して大きな安全裕度を持つことが期待できる。

⑤及び⑥の溶液部については、溶解が始まると燃料の成分が溶け込むが、溶液部を燃料溶解液とするよりも、常温の水反射体とするほうが反応度が厳しくなる。また、溶液部を燃料溶解液とした場合の遊離硝酸濃度は0規定としたほうが反応度が厳しくなる。

①の初期濃縮度と③の冷却期間については、設計時の処理対象燃料の仕様から予め明かであるので、反応度的に最も厳しい値を選定することにより変動しない臨界因子とすることが出来る。Shimura¹⁾らは溶解槽での溶解工程において核分裂生成物の考慮によって、溶解工程の処理能力がどれほど増大するかを検討している。本報では、上述の溶解工程における主要な臨界因子のうち②、④、⑤及び⑥をパラメータとして臨界安全解析を行い、その結果からそれらの臨界因子の変動が臨界安全評価に与える効果の大きさ（中性子増倍率に対する感度）を知ることにより、臨界安全性の評価と実際の化学プロセスとの間に潜在する安全裕度の大きさを把握することを目的としている。

2. 計算対象及び計算方法

2.1 計算対象

2.1.1 計算体系の概略

図1に対象とした回分式溶解槽の計算モデルを示す。モデルでは溶解槽を無限円筒として取り

1. はじめに

核燃料を取り扱うプロセスの臨界安全性の評価のためには、技術的に想定される最も厳しい条件を設定する。溶解槽での溶解工程では、燃料は新燃料、バケットの格子配列は最適減速条件、溶液温度は室温、また、溶液部を水（実際には燃料の溶解液）と仮定すれば、反応度的には最も厳しくなり、実際の工程との間に十分な安全裕度が存在することになる。

溶解工程における臨界性に影響を与える主要な臨界因子としては、①初期濃縮度、②燃焼度、③冷却期間、④格子配列、⑤溶液温度、⑥溶液部の化学的組成などが挙げられる。

②の燃焼度については、高い信頼性の確認が可能な場合には、燃焼に伴うウラン及びプルトニウムの組成変化を考慮することにより合理的な臨界設計が実現できる。この際、ウラン、プルトニウム以外にも他のアクチニドや核分裂生成物（FP）の存在を考慮することにより、より合理的な設計が可能となる。但し、中性子の吸収体として働くウラン、プルトニウム以外のアクチニドやFPは、その存在が確実に期待でき、かつ安定なものでなければならない。従って、それらの選定にあたっては特別の配慮が必要となってくる。

④の格子配列については、溶解槽では切断片の配列状態が特定できないため、最適減速となる格子配列を仮定することが最も安全側の設定となり、現実の配列条件に対して大きな安全裕度を持つことが期待できる。

⑤及び⑥の溶液部については、溶解が始まると燃料の成分が溶け込むが、溶液部を燃料溶解液とするよりも、常温の水反射体とするほうが反応度が厳しくなる。また、溶液部を燃料溶解液とした場合の遊離硝酸濃度は0規定としたほうが反応度が厳しくなる。

①の初期濃縮度と③の冷却期間については、設計時の処理対象燃料の仕様から予め明かであるので、反応度的に最も厳しい値を選定することにより変動しない臨界因子とすることが出来る。Shimura¹⁾らは溶解槽での溶解工程において核分裂生成物の考慮によって、溶解工程の処理能力がどれほど増大するかを検討している。本報では、上述の溶解工程における主要な臨界因子のうち②、④、⑤及び⑥をパラメータとして臨界安全解析を行い、その結果からそれらの臨界因子の変動が臨界安全評価に与える効果の大きさ（中性子増倍率に対する感度）を知ることにより、臨界安全性の評価と実際の化学プロセスとの間に潜在する安全裕度の大きさを把握することを目的としている。

2. 計算対象及び計算方法

2.1 計算対象

2.1.1 計算体系の概略

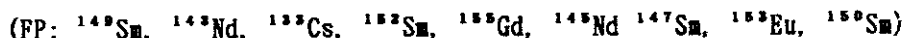
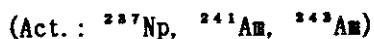
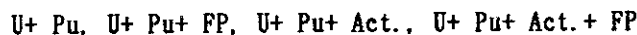
図1に対象とした回分式溶解槽の計算モデルを示す。モデルでは溶解槽を無限円筒として取り

扱った。中央のバケット部では燃料溶解液（又は水）中に燃料棒が等間隔で配列しているとした。バケット部の周りには燃料溶解液（又は水）が存在する。更にその周りに、水没も包含する30cm水反射体、または周辺部材や人の接近を考慮した2.5cm水反射体が存在するとした。また、反射体効果を評価するための基準として真空も考慮した。

2. 1. 2 燃料条件

燃料としてはPWR燃料とし、半径としては最大の0.4645cmを想定した。また、燃料半径の中性子増倍率への影響を調べるため、半径が0.4000cm及び0.4500cmのものも対象とした。更に、BWRの燃料ペレットの半径である0.625cmについても計算を行った。初期濃縮度は、反応度的に厳しい値を選定するという観点から4.1wt%に固定した。

燃料の燃焼度は0, 30000, 48000MWD/Tの三つの条件を評価した。冷却期間はモデルケースとして4年とし、照射時の比出力は38MW/Tとした。燃料組成は次の四つのケースを想定した。



バケット部の溶液は溶液部の溶液と同じ組成とした。

2. 1. 3 溶液部の状態

溶液部については、水の場合と燃料溶解液の場合とを考慮した。溶液中の核物質濃度や遊離硝酸濃度については、何らかの信頼性の高い方法で確認できればこれを臨界設計に反映することが考えられる。ここではモデルケースとして燃料溶解液の組成は400g(U+Pu) / ℓとした。また、このときの遊離硝酸濃度の影響を調べるため、硝酸濃度0規定、及び3規定の場合についても計算を行った。溶液部の原子個数密度を計算するために必要な密度式は、館盛²⁾らが導出した密度式(LMT式)を使用した。

溶液部の温度については15℃、及び沸騰状態のプロセス条件を考慮し100℃とした。但し、ここでは、温度による溶液部の密度変化を考慮するだけで、核データへの影響は考慮しなかった。なお、上述の密度式は100℃の溶液に適用することはできないが、ここでは密度式を100℃まで外挿することにより原子個数密度を計算した。

2. 2 計算方法

2. 2. 1 核種組成の計算

上記の燃料条件及び燃焼条件で30000, 48000MWD/Tの燃焼度に相当する核種組成をORIGEN2³⁾で計算した。付録AにORIGEN2の入力データリストを示す。

2. 2. 2 最適減速格子間隔の計算

バケット部では、図2に示すように燃料棒は等間隔の六角格子で配列しているとしている。この配列系において最適減速となる格子間隔を計算した。26群MGCLライブラリーより、MAIL⁴⁾コードにより燃料ペレット及び溶液部の実効マイクロ断面積を作成し、それを基にANISN-JR⁵⁾で面積等価な一次元円筒セル体系(図3)で実効増倍率を計算する。この実効増倍率が最大となる等価減速材半径を求める。この計算を三種類の燃料ピン径について行った。

2. 2. 3 臨界計算

バケット部は、2. 2. 2で求めた最適な等価減速材半径で燃料ピンが等間隔の六角格子で配列しているとする。この六角格子に面積等価な一次元円筒体系の単位セルに対して、ANISN-JRで26群のスペクトルを燃料領域及び減速材領域について計算した。そして、このスペクトルを用いて空間縮約を行った断面積を計算し、これをバケット部の断面積とする。溶液部、反射体部については、MAILで計算した断面積を使用する。この手法は、燃料棒の無限配列での最適減速条件が、溶解槽のような有限な体系でも中性子増倍率を最大にするという仮定に基づいている。これについては4章で後述する。

以上のように計算した断面積を図1の各領域に割り当て、KENO IV⁴⁾で実効増倍率を計算した。計算オプションは以下の通りである。

- ・ エネルギー群数 : 26
- ・ 一代当たりの中性子数 : 300
- ・ 計算世代数 : 105
- ・ スキップ世代数 : 5
- ・ 初期中性子発生分布 : 平坦
- ・ 中性子平均重み : 0.5

以上の計算の流れを図4に示す。

また、最適減速状態とは別に、減速材対燃料体積比の中性子増倍率への影響を調べるため、減速材対燃料体積比を0.5~3.5の範囲で変化させた計算も行った。

3. 計算結果

3. 1 燃焼計算

ORIGEN2で計算した各燃焼度でのウラン、プルトニウム、その他のアクチニド、及びFPの原子個数密度を表1に示す。

3. 2 最適減速条件の計算

最適減速条件を求める計算の例を図5及び図6に示す。これらの図には、燃焼度30000MWD/Tで、

2. 2. 2 最適減速格子間隔の計算

バケット部では、図2に示すように燃料棒は等間隔の六角格子で配列しているとしている。この配列系において最適減速となる格子間隔を計算した。26群MGCLライブラリーより、MAIL⁴⁾コードにより燃料ペレット及び溶液部の実効マイクロ断面積を作成し、それを基にANISN-JR⁵⁾で面積等価な一次元円筒セル体系(図3)で実効増倍率を計算する。この実効増倍率が最大となる等価減速材半径を求める。この計算を三種類の燃料ピン径について行った。

2. 2. 3 臨界計算

バケット部は、2. 2. 2で求めた最適な等価減速材半径で燃料ピンが等間隔の六角格子で配列しているとする。この六角格子に面積等価な一次元円筒体系の単位セルに対して、ANISN-JRで26群のスペクトルを燃料領域及び減速材領域について計算した。そして、このスペクトルを用いて空間縮約を行った断面積を計算し、これをバケット部の断面積とする。溶液部、反射体部については、MAILで計算した断面積を使用する。この手法は、燃料棒の無限配列での最適減速条件が、溶解槽のような有限な体系でも中性子増倍率を最大にするという仮定に基づいている。これについては4章で後述する。

以上のように計算した断面積を図1の各領域に割り当て、KENO IV⁴⁾で実効増倍率を計算した。計算オプションは以下の通りである。

- ・ エネルギー群数 : 26
- ・ 一世代当たりの中性子数 : 300
- ・ 計算世代数 : 105
- ・ スキップ世代数 : 5
- ・ 初期中性子発生分布 : 平坦
- ・ 中性子平均重み : 0.5

以上の計算の流れを図4に示す。

また、最適減速状態とは別に、減速材対燃料体積比の中性子増倍率への影響を調べるため、減速材対燃料体積比を0.5~3.5の範囲で変化させた計算も行った。

3. 計算結果

3. 1 燃焼計算

ORIGEN2で計算した各燃焼度でのウラン、プルトニウム、その他のアクチニド、及びFPの原子個数密度を表1に示す。

3. 2 最適減速条件の計算

最適減速条件を求める計算の例を図5及び図6に示す。これらの図には、燃焼度30000MWD/Tで、

燃料組成としてウランとプルトニウムのみを考慮したときの結果を、溶液部が水及び燃料溶解液それぞれの場合について示してある。この例では、燃料半径が最大(0.4645cm)のとき中性子増倍率が最大となっているが、検討した範囲では、燃焼度、燃料組成(FPやアクチニドの考慮)が異なっても同様な傾向を示す。

3.3 臨界計算

表2～6に臨界計算の結果を示す。また、燃焼度やFP、アクチニドを考慮することによる実効増倍率の変化を見るために、溶液部が水で完全水反射の条件の計算結果を図7に示す。また、バケット部の減速材対燃料体積比(燃料ピン径が0.929cmで、格子ピッチが1.14～1.97cmに対応)の実効増倍率への影響を見るために行った計算結果を表7と図8に示す。また、BWRのペレット径での臨界計算結果を表8に示す。

4. 計算結果の検討

表2～8、及び図7、図8より以下のことが言える。

- ・燃焼による燃料中のウラン及びプルトニウムの組成の変化を考慮することによって、燃焼度30000、及び480000MWD/Tではそれぞれ0.1Δk, 0.15Δk以上中性子増倍率が減少する。
- ・FPを考慮することにより更に約0.05Δk減少するが、ウラン及びプルトニウム以外のアクチニドの効果はそれほど顕著ではない(0.01Δk程度)
- ・溶液部が水の場合と燃料溶解液の場合とで比較すると、燃料溶解液の遊離硝酸が3規定のときで約0.07Δk、0規定のときで約0.04Δk中性子増倍率が水のときに対して減少する(図9参照)。
- ・溶液部における溶液の密度を100℃相当の密度とすると、15℃のときと比べて、溶液部が水のときと燃料溶解液のときでそれぞれ0.01Δk, 0.03Δk減少する(完全水反射時)(図10参照)。
- ・現実の溶解槽の減速材対燃料体積比を、変動要因を含めて広く1～1.5程度と考えると、最適減速条件では約0.06Δk～0.01Δkの裕度を持つ。
- ・燃料棒の無限配列で最適減速に相当する等価減速材半径と、溶解槽の中性子増倍率を最大にする等価減速材半径はともに約0.86cm(燃焼度:30000MWD/T、燃料組成:U+Pu、溶液部:水)で、両者はほぼ一致する。従って、2.2.3で示した臨界計算の流れは、本計算の体系に対しては妥当であると言える。
- ・PWRの燃料ペレットの径及びBWRの燃料ペレットの径での中性子増倍率の差は殆どなく、ペレット径の影響は小さい。

燃料組成としてウランとプルトニウムのみを考慮したときの結果を、溶液部が水及び燃料溶解液それぞれの場合について示してある。この例では、燃料半径が最大(0.4645cm)のとき中性子増倍率が最大となっているが、検討した範囲では、燃焼度、燃料組成(FPやアクチニドの考慮)が異なっても同様な傾向を示す。

3.3 臨界計算

表2～6に臨界計算の結果を示す。また、燃焼度やFP、アクチニドを考慮することによる実効増倍率の変化を見るために、溶液部が水で完全水反射の条件の計算結果を図7に示す。また、バケット部の減速材対燃料体積比(燃料ピン径が0.929cmで、格子ピッチが1.14～1.97cmに対応)の実効増倍率への影響を見るために行った計算結果を表7と図8に示す。また、BWRのペレット径での臨界計算結果を表8に示す。

4. 計算結果の検討

表2～8、及び図7、図8より以下のことが言える。

- ・燃焼による燃料中のウラン及びプルトニウムの組成の変化を考慮することによって、燃焼度30000、及び480000MWD/Tではそれぞれ0.1Δk, 0.15Δk以上中性子増倍率が減少する。
- ・FPを考慮することにより更に約0.05Δk減少するが、ウラン及びプルトニウム以外のアクチニドの効果はそれほど顕著ではない(0.01Δk程度)
- ・溶液部が水の場合と燃料溶解液の場合とで比較すると、燃料溶解液の遊離硝酸が3規定のときで約0.07Δk、0規定のときで約0.04Δk中性子増倍率が水のときに対して減少する(図9参照)。
- ・溶液部における溶液の密度を100℃相当の密度とすると、15℃のときと比べて、溶液部が水のときと燃料溶解液のときでそれぞれ0.01Δk, 0.03Δk減少する(完全水反射時)(図10参照)。
- ・現実の溶解槽の減速材対燃料体積比を、変動要因を含めて広く1～1.5程度と考えると、最適減速条件では約0.06Δk～0.01Δkの裕度を持つ。
- ・燃料棒の無限配列で最適減速に相当する等価減速材半径と、溶解槽の中性子増倍率を最大にする等価減速材半径はともに約0.86cm(燃焼度:30000MWD/T、燃料組成:U+Pu、溶液部:水)で、両者はほぼ一致する。従って、2.2.3で示した臨界計算の流れは、本計算の体系に対しては妥当であると言える。
- ・PWRの燃料ペレットの径及びBWRの燃料ペレットの径での中性子増倍率の差は殆どなく、ペレット径の影響は小さい。

5. 結論

以上の結果に示されるように、使用済燃料を用いる溶解槽のモデルプロセスにおいて、燃焼度、核分裂生成物やウラン及びプルトニウム以外のアクチニドの存在、溶液温度、溶液の化学組成、燃料剪断片の配列等が臨界安全評価に与える影響を明らかにした。現実の溶解槽での溶液中への燃料成分の溶解や溶液温度の上昇、最適減速とはならない不規則な燃料剪断片の配列などは中性子増倍率を減少させる効果を持っている。しかし、このうち燃料の溶解や溶液温度の上昇による中性子増倍率の減少の効果は一連の溶解工程の中で常に期待できるものではない。しかし、燃料として新燃料、燃料剪断片の配列を最適減速配列として臨界性を評価するだけでも、実際の工程における臨界性との間に大きな差が生まれ、この差は潜在的な安全裕度となっているといえる。

謝辞

本報告書は、科学技術庁から日本原子力研究所が受託した「再処理施設臨界安全性実証試験」の一部として実施され、臨界安全性実験データ検討ワーキンググループの下に設置された第四サブワーキンググループ（グループリーダー：動力炉・核燃料開発事業団の松本忠邦氏）のもとで検討された内容をまとめたものです。当サブワーキンググループの各委員の方々より様々な助言、ご指導を賜りました。ここに謝意を表します。

参考文献

- 1) S. Shimura et al., "Effect of Fission Products on Criticality Safety in LWR Fuel Reprocessing", International Seminar on Nuclear Criticality Safety, Tokyo, (1987).
- 2) 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 (溶液密度と原子個数密度の考察)", JAERI-M 83-047 (1983).
- 3) A. G. Croff; "ORIGEN2-A Revised and Updated Version of the Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code", ORNL-5621 (1980).
- 4) Y. Naito et al., "MGCL-PROCESSOR : A Computer Code System for Processing Multi-Group Constants Library MGCL", JAERI-M 9396 (1980).
- 5) R. Koyama et al., "ANISN-JR : A One-dimensional Discrete Ordinates Code for Neutron and Gamma-Ray Transport Calculations", JAERI-M 6954 (1977)
- 6) L. M. Petrie, N. F. Cross; "KENO IV An Improved Monte Carlo Criticality Program", ORNL-4938 (1975).

5. 結論

以上の結果に示されるように、使用済燃料を用いる溶解槽のモデルプロセスにおいて、燃焼度、核分裂生成物やウラン及びプルトニウム以外のアクチノイドの存在、溶液温度、溶液の化学組成、燃料剪断片の配列等が臨界安全評価に与える影響を明らかにした。現実の溶解槽での溶液中への燃料成分の溶解や溶液温度の上昇、最適減速とはならない不規則な燃料剪断片の配列などは中性子増倍率を減少させる効果を持っている。しかし、このうち燃料の溶解や溶液温度の上昇による中性子増倍率の減少の効果は一連の溶解工程の中で常に期待できるものではない。しかし、燃料として新燃料、燃料剪断片の配列を最適減速配列として臨界性を評価するだけでも、実際の工程における臨界性との間に大きな差が生まれ、この差は潜在的な安全裕度となっているといえる。

謝辞

本報告書は、科学技術庁から日本原子力研究所が受託した「再処理施設臨界安全性実証試験」の一部として実施され、臨界安全性実験データ検討ワーキンググループの下に設置された第四サブワーキンググループ（グループリーダー：動力炉・核燃料開発事業団の松本忠邦氏）のもとで検討された内容をまとめたものです。当サブワーキンググループの各委員の方々より様々な助言、ご指導を賜りました。ここに謝意を表します。

参考文献

- 1) S. Shimura et al.,; "Effect of Fission Products on Criticality Safety in LWR Fuel Reprocessing", International Seminar on Nuclear Criticality Safety, Tokyo, (1987).
- 2) 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 (溶液密度と原子個数密度の考察)", JAERI-M 83-047 (1983).
- 3) A. G. Croff; "ORIGEN2-A Revised and Updated Version of the Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code", ORNL-5621 (1980).
- 4) Y. Naito et al.,; "MGCL-PROCESSOR : A Computer Code System for Processing Multi-Group Constants Library MGCL", JAERI-M 9396 (1980).
- 5) R. Koyama et al.,; "ANISN-JR : A One-dimensional Discrete Ordinates Code for Neutron and Gamma-Ray Transport Calculations", JAERI-M 6954 (1977)
- 6) L. M. Petrie, N. F. Cross; "KENO IV An Improved Monte Carlo Criticality Program", ORNL-4938 (1975).

5. 結論

以上の結果に示されるように、使用済燃料を用いる溶解槽のモデルプロセスにおいて、燃焼度、核分裂生成物やウラン及びプルトニウム以外のアクチノイドの存在、溶液温度、溶液の化学組成、燃料剪断片の配列等が臨界安全評価に与える影響を明らかにした。現実の溶解槽での溶液中への燃料成分の溶解や溶液温度の上昇、最適減速とはならない不規則な燃料剪断片の配列などは中性子増倍率を減少させる効果を持っている。しかし、このうち燃料の溶解や溶液温度の上昇による中性子増倍率の減少の効果は一連の溶解工程の中で常に期待できるものではない。しかし、燃料として新燃料、燃料剪断片の配列を最適減速配列として臨界性を評価するだけでも、実際の工程における臨界性との間に大きな差が生まれ、この差は潜在的な安全裕度となっているといえる。

謝辞

本報告書は、科学技術庁から日本原子力研究所が受託した「再処理施設臨界安全性実証試験」の一部として実施され、臨界安全性実験データ検討ワーキンググループの下に設置された第四サブワーキンググループ（グループリーダー：動力炉・核燃料開発事業団の松本忠邦氏）のもとで検討された内容をまとめたものです。当サブワーキンググループの各委員の方々より様々な助言、ご指導を賜りました。ここに謝意を表します。

参考文献

- 1) S. Shimura et al.,; "Effect of Fission Products on Criticality Safety in LWR Fuel Reprocessing", International Seminar on Nuclear Criticality Safety, Tokyo, (1987).
- 2) 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 (溶液密度と原子個数密度の考察)", JAERI-M 83-047 (1983).
- 3) A. G. Croff; "ORIGEN2-A Revised and Updated Version of the Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code", ORNL-5621 (1980).
- 4) Y. Naito et al.,; "MGCL-PROCESSOR : A Computer Code System for Processing Multi-Group Constants Library MGCL", JAERI-M 9396 (1980).
- 5) R. Koyama et al.,; "ANISN-JR : A One-dimensional Discrete Ordinates Code for Neutron and Gamma-Ray Transport Calculations", JAERI-M 6954 (1977)
- 6) L. M. Petrie, N. F. Cross; "KENO IV An Improved Monte Carlo Criticality Program", ORNL-4938 (1975).

表1 ORIGIN2-82 コードによる PWR 型燃料の燃焼計算結果(原子個数密度)

単位 [$10^{24}/\text{cm}^3$]

元素	初期	ケース 1		ケース 2	
		30,000	MWD/T	48,000	MWD/T
U-235	9.64076E-04	3.42129E-04		1.67867E-04	
U-238	2.22651E-02	2.18612E-02		2.14897E-02	
PU-239	0.00000E+00	1.11368E-04		1.34881E-04	
PU-240	0.00000E+00	4.32838E-05		6.12420E-05	
PU-241	0.00000E+00	1.69366E-05		3.24654E-05	
PU-242	0.00000E+00	5.37936E-06		1.84853E-05	
CS-133	0.00000E+00	4.42045E-05		6.33751E-05	
ND-143	0.00000E+00	3.08731E-05		3.95631E-05	
ND-145	0.00000E+00	2.46531E-05		3.54350E-05	
SM-149	0.00000E+00	1.07443E-07		1.18429E-07	
SM-150	0.00000E+00	8.31694E-06		1.30358E-05	
SM-152	0.00000E+00	4.26009E-06		5.64981E-06	
EU-153	0.00000E+00	3.10819E-06		5.94892E-06	
GD-155	0.00000E+00	1.50904E-07		3.86358E-07	
NP-237	0.00000E+00	8.76419E-06		1.68709E-05	
AM-241	0.00000E+00	4.05358E-06		8.12092E-06	
AM-243	0.00000E+00	7.42409E-07		4.43399E-06	

表2 溶解槽の臨界計算結果 (1)

PWR 燃料		初期濃縮度4.1wt%		溶液部: 水, 15°C	
燃料組成	反射体	実効増倍率			
		0 MWD/T	30000MWD/T	48000MWD/T	
U+Pu	無し	0.8422±0.0048	0.7205±0.0039	0.6708±0.0036	
	1 inch水	0.9031±0.0039	0.7834±0.0042	0.7287±0.0037	
	完全水反射	0.9479±0.0040	0.8067±0.0041	0.7588±0.0034	
U+Pu+ FP	無し		0.6761±0.0036	0.6048±0.0032	
	1 inch水		0.7199±0.0039	0.6478±0.0029	
	完全水反射		0.7543±0.0033	0.6651±0.0031	
U+Pu+ アクチニド	無し		0.7224±0.0041	0.6551±0.0034	
	1 inch水		0.7682±0.0043	0.7120±0.0037	
	完全水反射		0.7973±0.0033	0.7345±0.0035	
U+Pu+ FP + アクチニド	無し		0.6655±0.0040	0.6001±0.0032	
	1 inch水		0.7120±0.0034	0.6452±0.0030	
	完全水反射		0.7433±0.0034	0.6674±0.0031	

表3 溶解槽の臨界計算結果 (2)

PWR 燃料		初期濃縮度4.1wt%		溶液部: 遊離硝酸3N, 15°C, 400g(U+Pu)/ℓ	
燃料組成	反射体	実効増倍率			
		0 MWD/T	30000MWD/T	48000MWD/T	
U+Pu	無し	0.7287±0.0047	0.6173±0.0038	0.5703±0.0030	
	1 inch水	0.8179±0.0041	0.6849±0.0036	0.6468±0.0030	
	完全水反射	0.8765±0.0045	0.7336±0.0031	0.6864±0.0029	
U+Pu+ FP	無し		0.5847±0.0036	0.5149±0.0028	
	1 inch水		0.6449±0.0034	0.5711±0.0029	
	完全水反射		0.6769±0.0036	0.6107±0.0031	
U+Pu+ アクチニド	無し		0.6106±0.0033	0.5649±0.0033	
	1 inch水		0.6913±0.0036	0.6288±0.0034	
	完全水反射		0.7264±0.0036	0.6743±0.0033	
U+Pu+ FP + アクチニド	無し		0.5735±0.0034	0.5106±0.0034	
	1 inch水		0.6369±0.0032	0.5587±0.0031	
	完全水反射		0.6774±0.0034	0.6004±0.0029	

表4 溶解槽の臨界計算結果 (3)

PWR 燃料		初期濃縮度4.1wt% 溶液部: 遊離硝酸0N, 15°C, 400g(U+Pu)/ℓ		
燃料組成	反射体	実効増倍率		
		0 MWD/T	30000MWD/T	48000MWD/T
U+Pu	無し	0.7796±0.0043	0.6547±0.0043	0.6143±0.0030
	1 inch水	0.8590±0.0042	0.7250±0.0040	0.6709±0.0033
	完全水反射	0.9167±0.0042	0.7705±0.0031	0.7158±0.0031
U+Pu+FP	無し		0.6174±0.0032	0.5528±0.0034
	1 inch水		0.6829±0.0036	0.6078±0.0031
	完全水反射		0.7180±0.0034	0.6382±0.0032
U+Pu+アクチニド	無し		0.6524±0.0035	0.6022±0.0034
	1 inch水		0.7159±0.0038	0.6540±0.0033
	完全水反射		0.7642±0.0032	0.6990±0.0038
U+Pu+FP+アクチニド	無し		0.6087±0.0034	0.5416±0.0027
	1 inch水		0.6692±0.0036	0.5997±0.0027
	完全水反射		0.7096±0.0031	0.6245±0.0027

表5 溶解槽の臨界計算結果 (4)

PWR 燃料		初期濃縮度4.1wt% 溶液部: 水、100°C		
燃料組成	反射体	実効増倍率		
		0 MWD/T	30000MWD/T	48000MWD/T
U+Pu	無し	0.8169±0.0048	0.7035±0.0043	0.6516±0.0036
	1 inch水	0.8883±0.0044	0.7612±0.0037	0.7134±0.0035
	完全水反射	0.9218±0.0044	0.7909±0.0033	0.7492±0.0038
U+Pu+FP	無し		0.6534±0.0035	0.5825±0.0028
	1 inch水		0.7086±0.0033	0.6348±0.0029
	完全水反射		0.7411±0.0034	0.6633±0.0031
U+Pu+アクチニド	無し		0.6937±0.0040	0.6473±0.0038
	1 inch水		0.7482±0.0036	0.6907±0.0034
	完全水反射		0.7832±0.0033	0.7329±0.0031
U+Pu+FP+アクチニド	無し		0.6486±0.0034	0.5788±0.0030
	1 inch水		0.7020±0.0033	0.6258±0.0031
	完全水反射		0.7330±0.0038	0.6542±0.0034

表6 溶解槽の臨界計算結果 (5)

PWR 燃料 初期濃縮度4.1wt% 溶液部: 遊離硝酸3N, 100°C, 400g(U+Pu)/ℓ				
燃料組成	反射体	実効増倍率		
		0 MWD/T	30000MWD/T	48000MWD/T
U+Pu	無し	0.7084±0.0038	0.5653±0.0032	0.5206±0.0032
	1 inch水	0.7878±0.0046	0.6471±0.0033	0.5942±0.0034
	完全水反射	0.8485±0.0041	0.6948±0.0034	0.6406±0.0027
U+Pu+FP	無し		0.5207±0.0035	0.4740±0.0030
	1 inch水		0.5956±0.0031	0.5373±0.0026
	完全水反射		0.6451±0.0032	0.5762±0.0026
U+Pu+アクチニド	無し		0.5529±0.0034	0.5086±0.0029
	1 inch水		0.6374±0.0034	0.5923±0.0028
	完全水反射		0.6813±0.0031	0.6348±0.0032
U+Pu+FP+アクチニド	無し		0.5240±0.0033	0.4631±0.0029
	1 inch水		0.5920±0.0037	0.5225±0.0029
	完全水反射		0.6396±0.0030	0.5671±0.0025

表7 減速材対燃料体積比の実効増倍率への影響

燃料組成:U+Pu 燃焼度:30000MWD/T 溶液部: 水		
減速材対燃料体積比	実効増倍率	
	水反射体無し	完全水反射
0.5	0.5443±0.0033	0.6809±0.0038
1.0	0.6334±0.0041	0.7489±0.0037
1.5	0.6901±0.0040	0.7954±0.0041
2.0	0.7161±0.0041	0.8052±0.0036
2.5	0.7232±0.0042	0.8098±0.0035
3.0	0.7183±0.0041	0.7994±0.0037
3.5	0.7102±0.0039	0.7906±0.0033

表8 燃料ペレットの径が臨界計算結果に与える影響

燃焼度:30000MWD/T 溶液部: 水 15°C			
燃料組成	反射体	ペレット径(mm)	
		9.29 (PWR)	12.5 (BWR)
U+Pu	無し	0.7205±0.0039	0.7214±0.0040
	1 inch水	0.7834±0.0042	0.7801±0.0040
	完全水反射	0.8067±0.0041	0.8034±0.0042

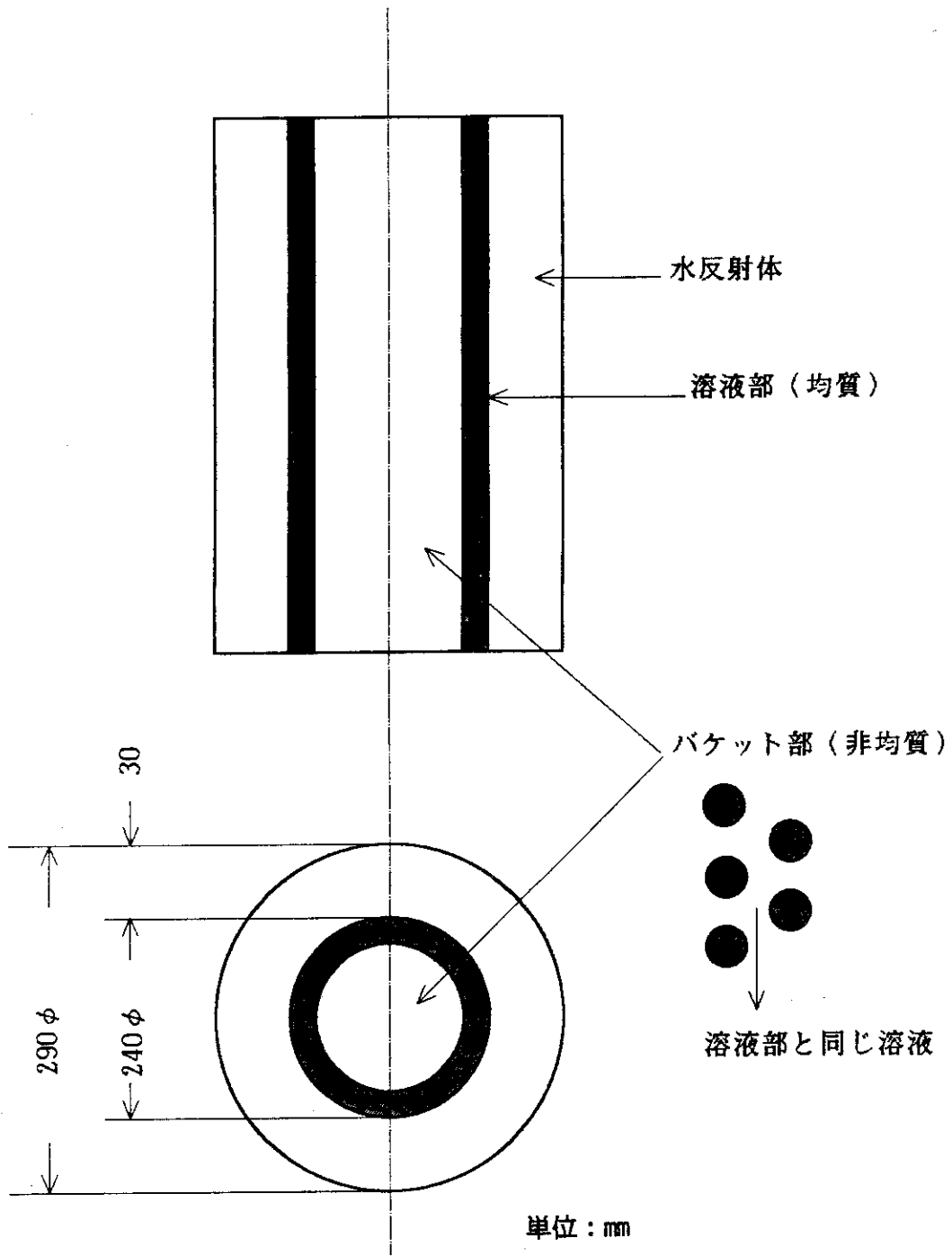


図1 溶解槽の計算モデル

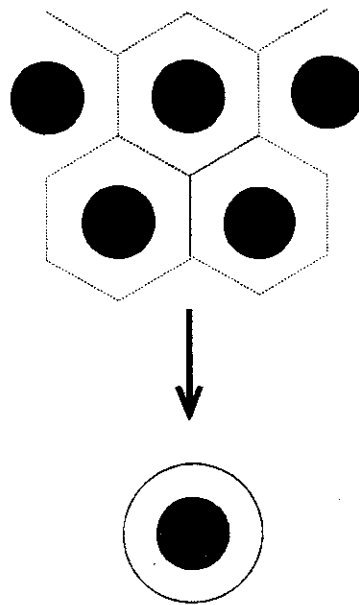
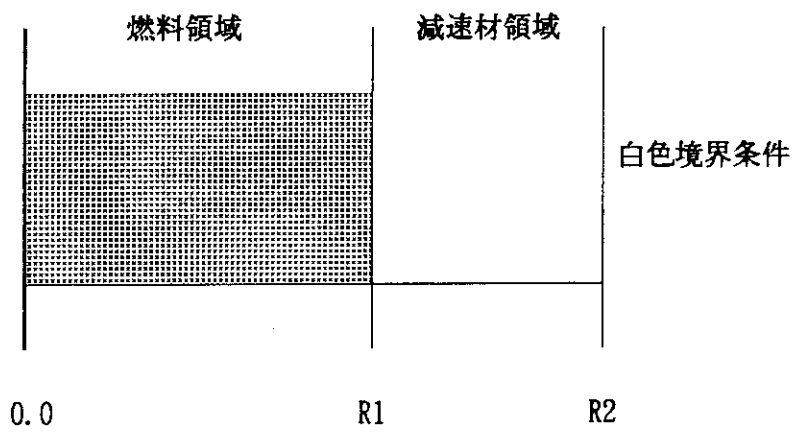


図2 バケット部の格子配列の計算モデル

反射境界条件



R1: 燃料ペレット半径

R2: 等価減速材半径

図3 ANISN-JR 計算モデル

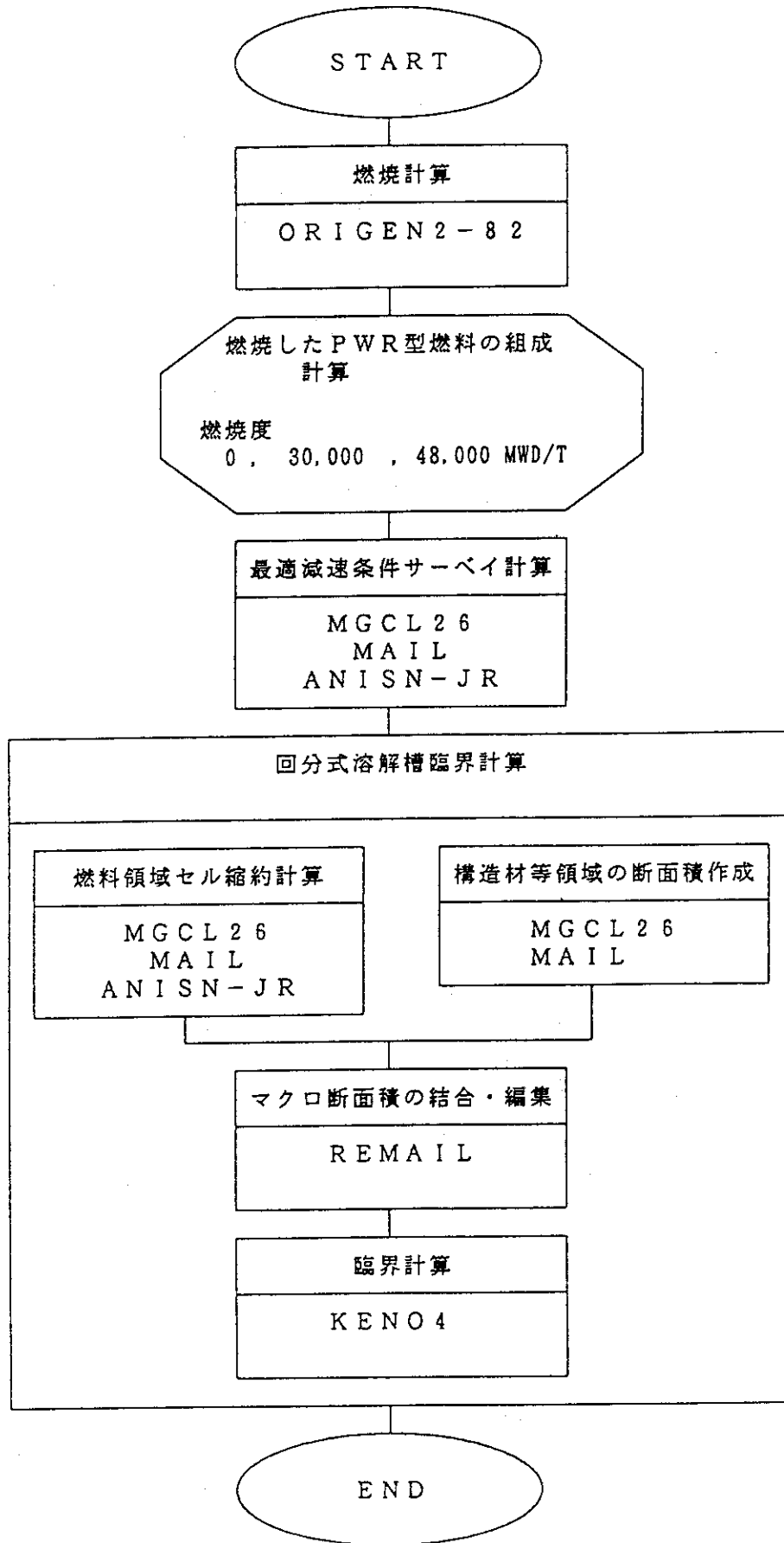
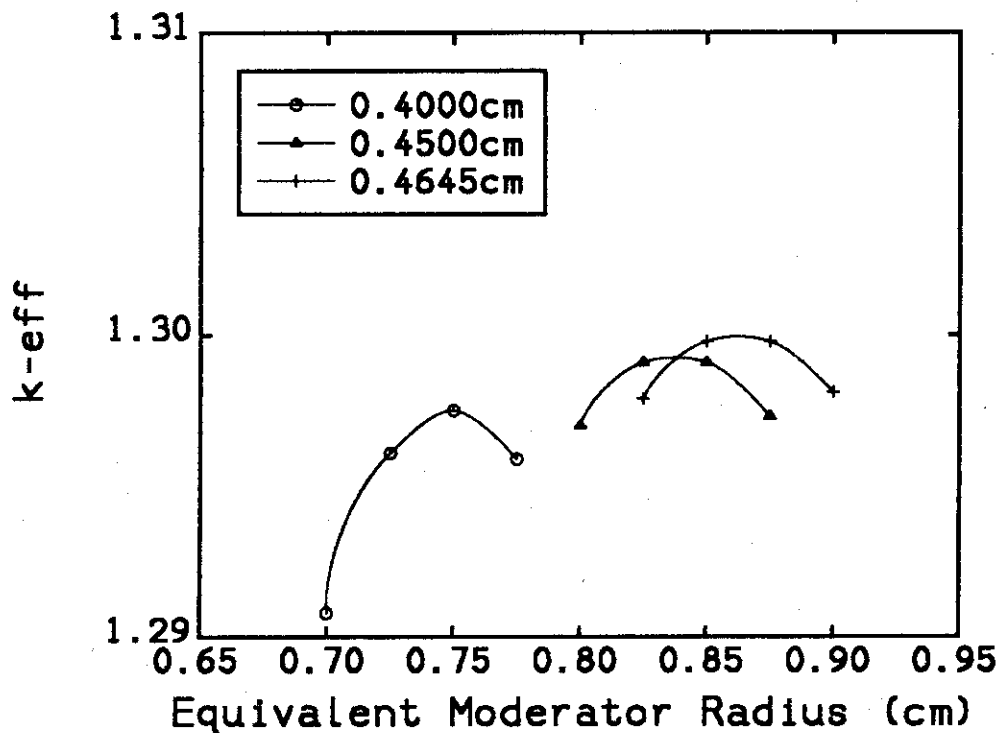
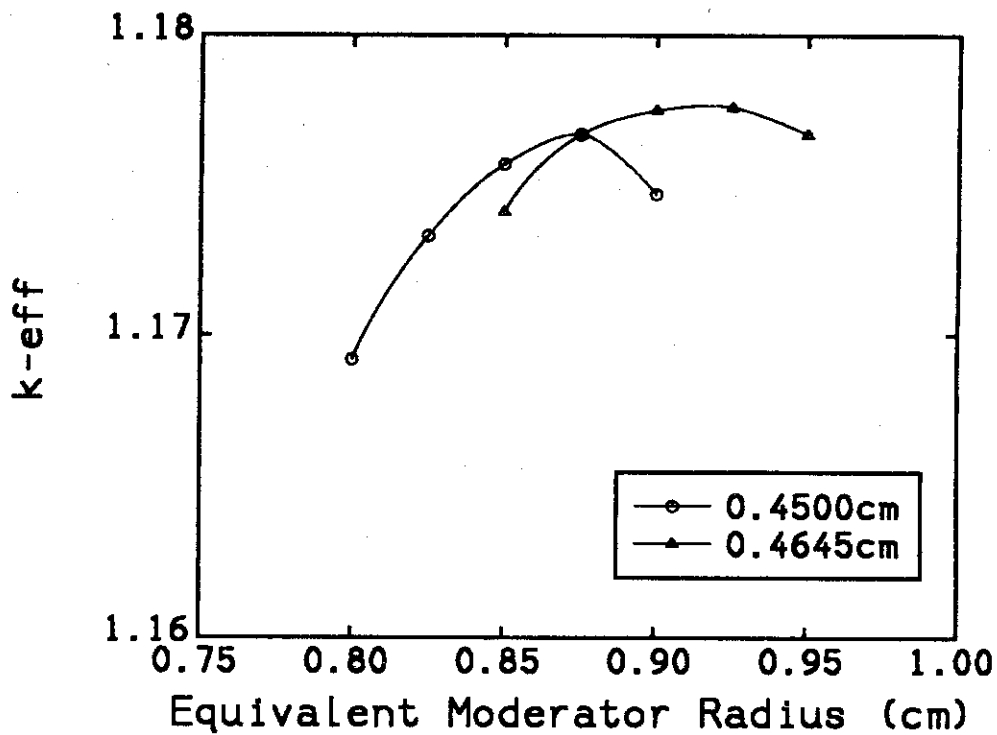


図4 臨界計算の流れ



(U+Pu 燃料, 燃烧度 30 GWD/T, 溶液部 水)

図5 最適減速格子間隔の計算



(U+Pu 燃料, 燃烧度 30 GWD/T, 溶液部 燃料溶解液)

図6 最適減速格子間隔の計算

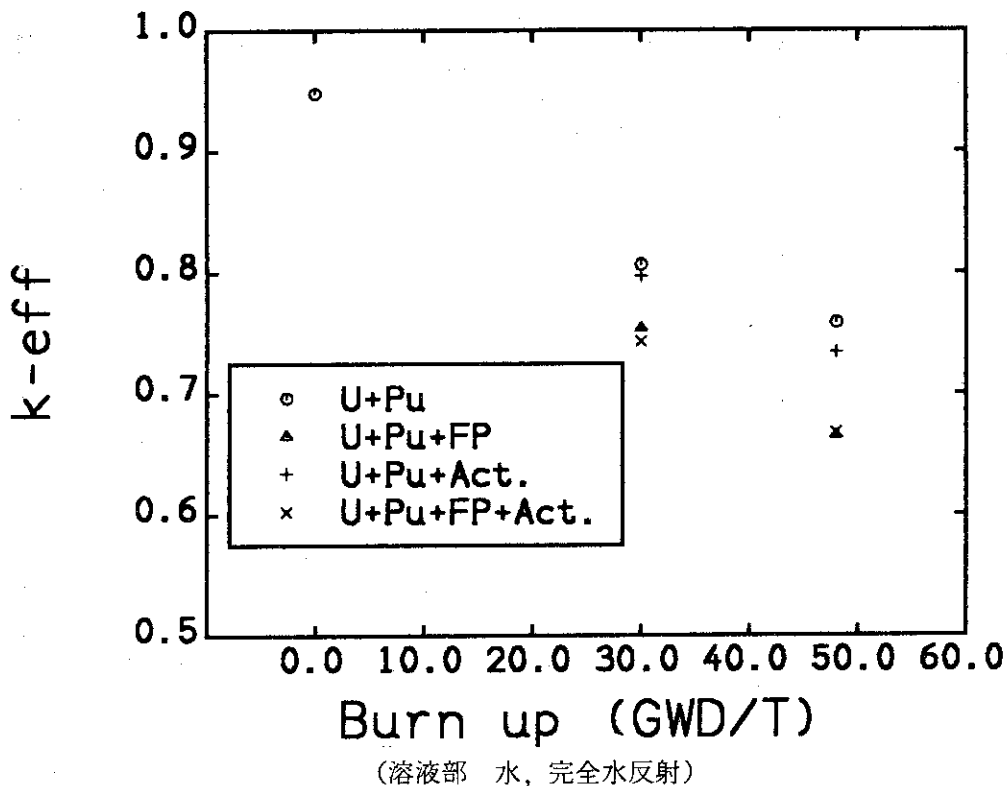


図7 溶解槽における燃焼度及びFP, アクチニドの効果

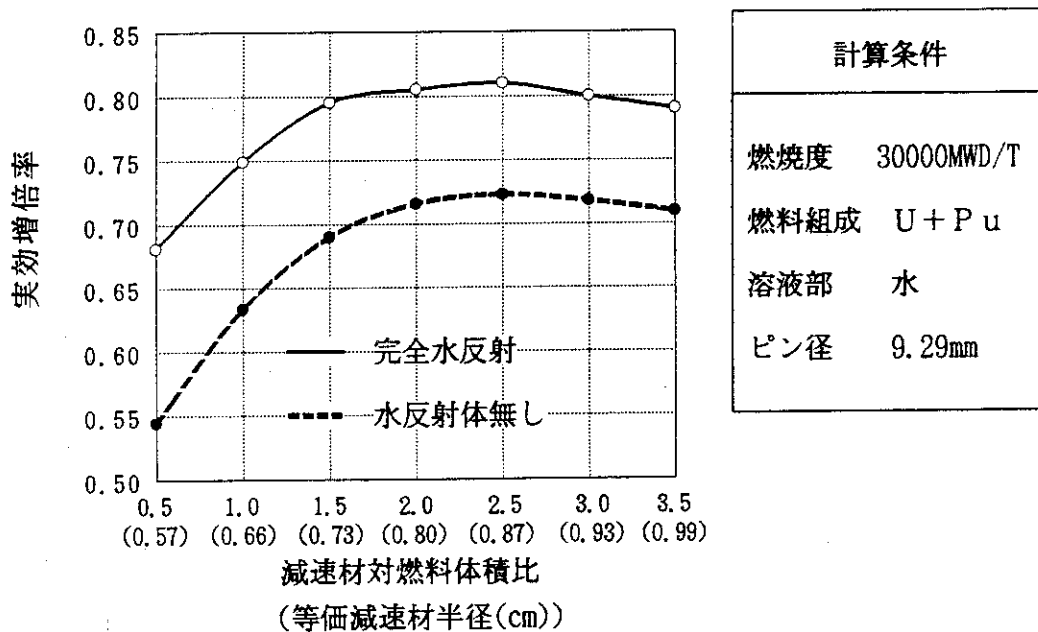


図8 減速材対燃料体積比による実効増倍率の変化

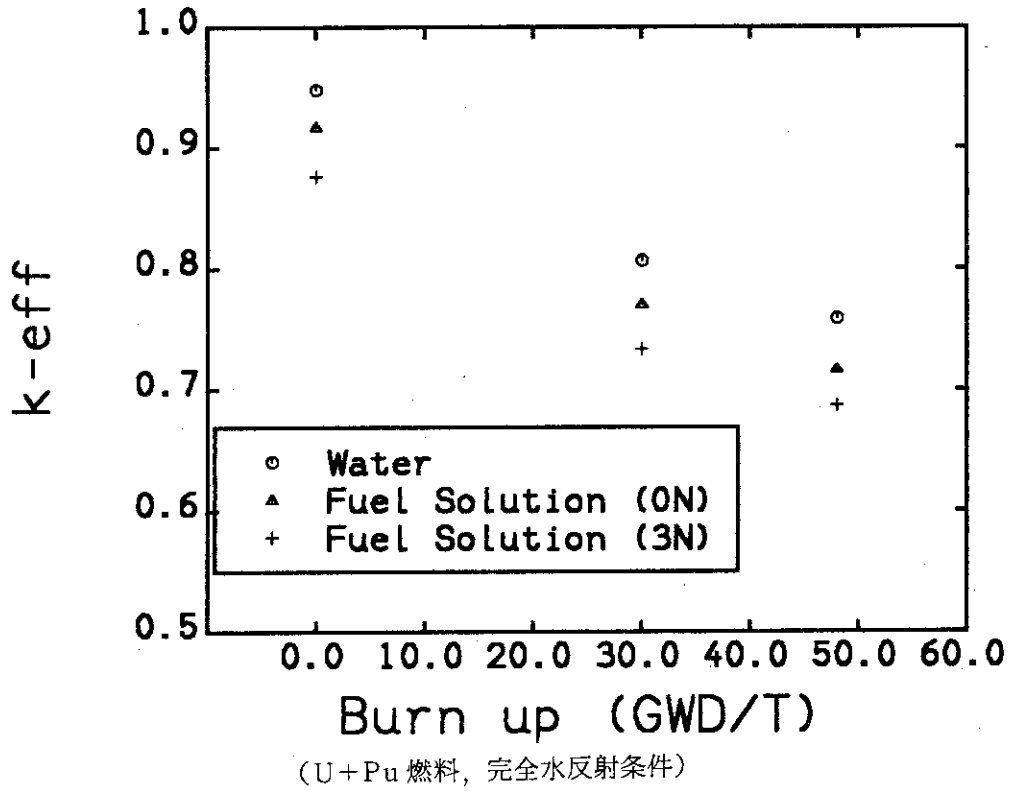


図9 溶解槽における溶液部の化学的組成の効果

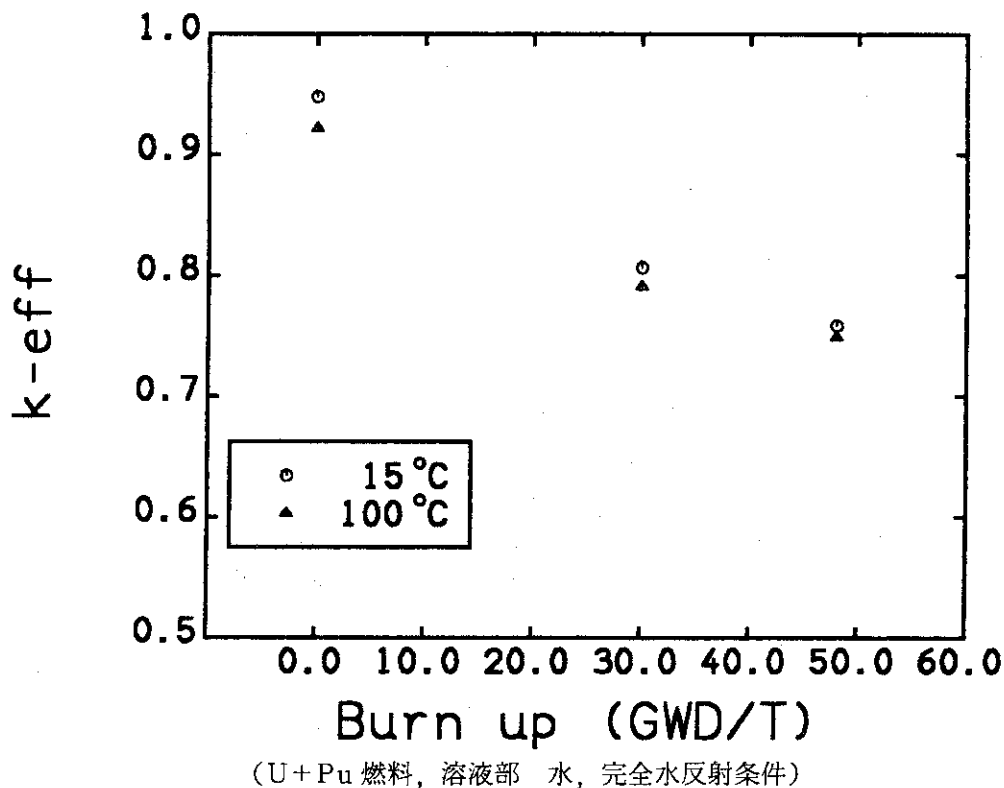


図10(1) 溶解槽における溶液部の温度の効果

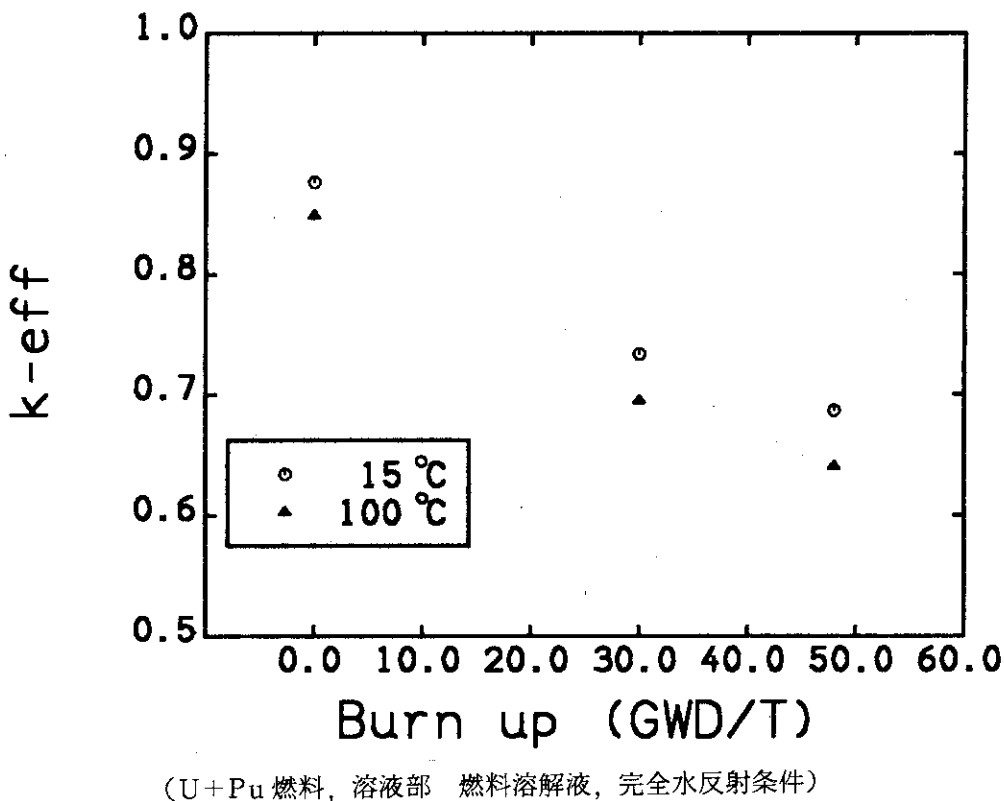


図10(2) 溶解槽における溶液部の温度の効果

付録 ORIGEN2-82 入力データリスト

燃焼度 30 GWD/T

LISTING OF INPUT DATA ON UNIT : 5

INPUT UNIT	WRITE UNIT	CARD NUMBER	CARD IMAGE
5	50	1	
5	50	2	
5	50	3	
5	50	4	TIT CORE(PWR) FUEL(4.10% EU)
5	50	5	BAS ONE METALIC TON OF U-FUEL
5	50	6	RDA LIBRARY SET
5	50	7	LIP 0 0 0
5	50	8	LIB 0 1 2 3 204 205 206 9 0 0 1 1
5	50	9	PHO 101 102 103 10
5	50	10	RDA
5	50	11	INP -1 1 1 1 1
5	50	12	OPTH 24*8
5	50	13	OPTF 8 3 8 8 3 3 18*8
5	50	14	OPTA 8 3 8 8 3 3 18*8
5	50	15	MDV -1 1 0 1.0
5	50	16	RDA
5	50	17	BUP
5	50	18	IRP 9.5 38.0 1 2 4 2
5	50	19	IRP 49.5 38.0 2 3 4 0
5	50	20	IRP 89.5 38.0 3 4 4 0
5	50	21	IRP 189.5 38.0 4 5 4 0
5	50	22	IRP 389.5 38.0 5 6 4 0
5	50	23	IRP 589.5 38.0 6 7 4 0
5	50	24	IRP 789.5 38.0 7 2 4 0
5	50	25	RDA
5	50	26	DEC 2249.5
5	50	27	BUP
5	50	28	RDA
5	50	29	HED 1 * CHARGE
5	50	30	HED 2 * BURN-1
5	50	31	HED 3 * COOL-1
5	50	32	OUT 3 1 -1 0
5	50	33	STP 2
5	50	34	2 922350 41000.0 922380 959000.0 0 0.00
5	50	35	0
5	50	36	END

燃焼度 48 GWD/T

LISTING OF INPUT DATA ON UNIT : 5

INPUT UNIT	WRITE UNIT	CARD NUMBER	CARD IMAGE
5	50	1	-1
5	50	2	-1
5	50	3	-1
5	50	4	TIT
5	50	5	BAS
5	50	6	RDA
5	50	7	LIP
5	50	8	LIB
5	50	9	PHO
5	50	10	RDA
5	50	11	INP
5	50	12	OPTL
5	50	13	OPTF
5	50	14	OPTA
5	50	15	MOV
5	50	16	RDA
5	50	17	BUJ
5	50	18	IRP
5	50	19	IRP
5	50	20	IRP
5	50	21	IRP
5	50	22	IRP
5	50	23	IRP
5	50	24	IRP
5	50	25	IRP
5	50	26	RDA
5	50	27	DEC
5	50	28	BUJ
5	50	29	RDA
5	50	30	HED
5	50	31	HED
5	50	32	HED
5	50	33	OUT
5	50	34	STP
5	50	35	2
5	50	36	0
5	50	37	END

INPUT UNIT	WRITE UNIT	CARD NUMBER	CARD IMAGE
5	50	1	38.0
5	50	2	38.0
5	50	3	38.0
5	50	4	38.0
5	50	5	38.0
5	50	6	38.0
5	50	7	38.0
5	50	8	38.0
5	50	9	38.0
5	50	10	38.0
5	50	11	38.0
5	50	12	38.0
5	50	13	38.0
5	50	14	38.0
5	50	15	38.0
5	50	16	38.0
5	50	17	38.0
5	50	18	38.0
5	50	19	38.0
5	50	20	38.0
5	50	21	38.0
5	50	22	38.0
5	50	23	38.0
5	50	24	38.0
5	50	25	38.0
5	50	26	38.0
5	50	27	38.0
5	50	28	38.0
5	50	29	38.0
5	50	30	38.0
5	50	31	38.0
5	50	32	38.0
5	50	33	38.0
5	50	34	38.0
5	50	35	38.0
5	50	36	38.0
5	50	37	38.0

INPUT UNIT	WRITE UNIT	CARD NUMBER	CARD IMAGE
5	50	1	4
5	50	2	4
5	50	3	4
5	50	4	4
5	50	5	4
5	50	6	4
5	50	7	4
5	50	8	4
5	50	9	4
5	50	10	4
5	50	11	4
5	50	12	4
5	50	13	4
5	50	14	4
5	50	15	4
5	50	16	4
5	50	17	4
5	50	18	4
5	50	19	4
5	50	20	4
5	50	21	4
5	50	22	4
5	50	23	4
5	50	24	4
5	50	25	4
5	50	26	4
5	50	27	4
5	50	28	4
5	50	29	4
5	50	30	4
5	50	31	4
5	50	32	4
5	50	33	4
5	50	34	4
5	50	35	4
5	50	36	4
5	50	37	4

INPUT UNIT	WRITE UNIT	CARD NUMBER	CARD IMAGE
5	50	1	2
5	50	2	3
5	50	3	4
5	50	4	5
5	50	5	6
5	50	6	7
5	50	7	8
5	50	8	2
5	50	9	2
5	50	10	3
5	50	11	3
5	50	12	4
5	50	13	5
5	50	14	6
5	50	15	7
5	50	16	8
5	50	17	2
5	50	18	2
5	50	19	3
5	50	20	4
5	50	21	5
5	50	22	6
5	50	23	7
5	50	24	8
5	50	25	2
5	50	26	2
5	50	27	3
5	50	28	4
5	50	29	4
5	50	30	4
5	50	31	4
5	50	32	4
5	50	33	4
5	50	34	4
5	50	35	4
5	50	36	4
5	50	37	4

INPUT UNIT	WRITE UNIT	CARD NUMBER	CARD IMAGE
5	50	1	41000.0
5	50	2	922380
5	50	3	958000.0
5	50	4	0
5	50	5	0
5	50	6	0
5	50	7	0
5	50	8	0
5	50	9	0
5	50	10	0
5	50	11	0
5	50	12	0
5	50	13	0
5	50	14	0
5	50	15	0
5	50	16	0
5	50	17	0
5	50	18	0
5	50	19	0
5	50	20	0
5	50	21	0
5	50	22	0
5	50	23	0
5	50	24	0
5	50	25	0
5	50	26	0
5	50	27	0
5	50	28	0
5	50	29	0
5	50	30	0
5	50	31	0
5	50	32	0
5	50	33	0
5	50	34	0
5	50	35	0
5	50	36	0
5	50	37	0