

乾式リサイクルシステムの臨界安全設計概念検討
(研究報告)



2001年6月

核燃料サイクル開発機構
大洗工学センター

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

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

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

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

乾式リサイクルシステムの臨界安全設計概念検討

(研究報告)

中林 弘樹*、田中 博*

要 旨

乾式再処理法は、すでに実用化されている湿式再処理法と大きく異なる原理を利用し、経済性・環境負荷低減性・核不拡散抵抗性への大幅な改善が期待されている再処理法である。乾式再処理法に関する研究は現在までに世界各国で行われてきたが、実規模プラントを想定した臨界安全設計についてはほとんど行われてこなかった。

本設計研究では代表的な乾式再処理法である金属電解法、酸化物電解法、フッ化物揮発法についての臨界安全設計概念を検討した。

第 1 章では、乾式リサイクルシステムの臨界安全設計に必要な各種物質の基本的な臨界計算を行った結果についてまとめた。第 2 章から第 4 章まではそれぞれ金属電解法、酸化物電解法、フッ化物揮発法について臨界安全設計の検討内容をまとめた。第 5 章では乾式リサイクルシステムでの臨界事故とその終息手段について考察した。

検討の結果、金属電解法の電解槽においては、質量管理を行う単一ユニット内部の燃料物質が全て一つの物質形態になる場合を想定する既存の臨界安全管理の考え方と異なる臨界管理の概念が必要であるが、酸化物電解法、フッ化物揮発法では従来の方から従った臨界安全設計を行うことが可能であることがわかった。

本検討で設定された最大許容限度および核的制限値は単純モデルの臨界データに基づいたもので、詳細な機器設計等を利用することにより再評価する余地がある。また、検討した臨界安全設計が想定される異常事象下において十分な安全性を確保できるかについては、今後異常事象の選定、異常事象解析を含めた臨界安全性評価を行う必要がある。

*システム技術開発部 再処理システムグループ

A Conceptual Study of the Criticality Safety Design for Pyrochemical Reprocessing Systems

H. Nakabayashi* and H. Tanaka*

ABSTRACT

Pyrochemical reprocessing systems, which are based on the different physical principles from the existing aqueous reprocessing systems, are expected to be the more economical, more reductible of environmental impact and higher proliferation-resistant. Though many researches and experiments for the development of those systems have been done in many countries there are few studies on the criticality safety design.

In this study, the criticality safety design are performed for three pyrochemical reprocessing systems, the metal electrorefining process which has been developed by the Argonne National Laboratory (ANL) in the U.S, the oxide electrowinning process which has been developed by the Research Institute of Atomic Reactors (RIAR) in Russia and the fluoride volatility process which has been developed by the ANL in the U.S, the Japan Atomic Energy Reserch Institute (JAERI) in Japan, etc.

As a result of this study, the ordinal criticality safety management methods can directly be applied both to the electrowinning process and to the fluoride volatility process. However, for the electrorefiner vessel used in the metal-electrorefining process, the ordinal methods, in which the only one chemical state is supposed for the all fissile nuclide in the individual unit, cannot be applied directly because the different chemical states co-exist in the electrorefiner by the operation. It is proposed the different idea for this case in the study. And these results are useful to design any pyrochemical reprocessing plants.

Because subcritical limits are determined by criticality data of simple models in this study, these limits should be reevaluated based on the detailed hardware design. Futhermore, the criticality safety evaluation with the contingency analysis must be performed to certify that the design has an adequate safety clearance to the anticipated anomaly events.

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

目次

第 1 章 核的制限値設定のための基礎データ	1
1-1 臨界解析のモデル化.....	1
1-2 基本モデルの推定臨界下限値.....	2
1-3 安全係数	3
第 2 章 金属電解法の臨界安全設計	7
2-1 プロセス概要.....	7
2-2 単一ユニットと臨界管理手段の選定.....	8
2-3 各機器・プロセスの臨界安全設計.....	11
2-3.1 せん断装置の臨界安全設計	11
2-3.2 電解槽からカソードプロセッサまでの臨界安全設計.....	12
2-3.3 射出成型機の臨界安全設計	22
2-3.4 ピンプロセッサの臨界安全設計.....	23
2-3.5 エレメントセトラの臨界安全設計.....	24
2-4 臨界安全性の観点から見た電解槽のスケールアップ.....	24
2-5 金属電解法の臨界安全性評価.....	26
2-6 核的制限値の緩和方策.....	30
2-7 課題	30
2-8 金属電解法の臨界管理設計まとめ.....	31
第 3 章 酸化物電解法の臨界安全設計	37
3-1 プロセス概要.....	37
3-2 単一ユニットと臨界管理手段の選定.....	38
3-3 各機器・プロセスの臨界安全設計.....	39
3-3.1 脱被覆装置の臨界安全設計	39
3-3.2 電解槽の臨界安全設計	39
3-3.3 析出物粉碎装置の臨界安全設計.....	40
3-3.4 塩除去装置の臨界安全設計	40
3-3.5 分級装置の臨界安全設計	41
3-3.6 混合装置の臨界安全設計	41
3-3.7 振動充填装置の臨界安全設計	41
3-4 酸化物電解法の臨界安全性評価.....	42
3-5 核的制限値の緩和方策.....	43
3-6 課題	43

3-7	酸化物電解法の臨界管理設計まとめ	44
第 4 章 フッ化物揮発法の臨界安全設計		49
4-1	プロセス概要	49
4-2	単一ユニットと臨界管理手段の選定	50
4-3	各機器・プロセスの臨界安全設計	50
4-3.1	脱被覆装置の臨界安全設計	50
4-3.2	フッ化塔の臨界安全設計	51
4-3.3	フィルタ/トラップ類の臨界安全設計	51
4-3.4	凝縮・揮発器の臨界安全設計	51
4-3.5	ガスブレンダの臨界安全設計	52
4-3.6	酸化物転換装置の臨界安全設計	52
4-3.7	分級装置の臨界安全設計	52
4-3.8	振動充填装置の臨界安全設計	52
4-3.9	その他の機器の臨界安全設計	53
4-4	核的制限値の緩和方策	53
4-5	課題	54
4-6	フッ化物揮発法の臨界管理設計まとめ	54
第 5 章 乾式リサイクルシステムにおける臨界事故についての考察		60
5-1	臨界事故	60
5-2	臨界事故の終息手段	64
5-3	臨界事故についての考察	65
第 6 章 参考文献		66
付録 1 基本体系の臨界計算結果		68
付録 1-1	計算概要	68
付録 1-2	Pu 金属	69
付録 1-3	U-Pu-Zr 三元合金 (U/Pu/Zr = 70/20/10 wt%)	71
付録 1-4	U-Pu-Zr 三元合金 (U/Pu/Zr = 80/10/10 wt%)	73
付録 1-5	PuO ₂	75
付録 1-6	混合酸化物 (Pu 富化度 : 30wt%)	81
付録 1-7	PuF ₄	84
付録 1-8	PuCd ₆	90
付録 1-9	PuCl ₃	91
付録 1-10	LiCl-KCl-PuCl ₃ (PuCl ₃ 濃度 : 20wt%)	92

付録 2 機器構造材を想定した体系の臨界計算結果.....	93
付録 2-1 金属 Pu	93
2-1.1 るつぼ材料.....	93
2-1.2 カソードプロセッサ	94
2-1.3 射出成形機.....	95
2-1.4 コンクリート	96
付録 2-2 PuO ₂	97
2-2.1 電解槽.....	97
2-2.2 コンクリート	98

図目次

図 1-1 推定臨界下限値サーベイのための解析モデル	1
図 2-1 電解槽とカソードプロセッサの計量点と単一ユニットの関係	10
図 2-2 平衡時の熔融塩中 Pu 濃度と不溶解性 Pu 反応物量の時間変化例	14
図 2-3 化学形態管理の臨界安全設計の考え方 (例: 電解槽)	16
図 2-4 相互安全係数による核的制限値の求め方	18
図 2-5 電解槽の核的制限値設定概念図	21
図 2-6 電解槽の各燃料形態に対応する核的制限値の相互関係	22
図 2-7 電解槽処理量を増大させた場合の核的制限値	26
図 2-8 臨界安全性評価のための電解槽モデル	28
図 2-9 電解槽モデルの各要素が臨界性に与える影響	29
図 2-10 熔融塩中 Pu と不溶解性 Pu 反応物の核的相互作用評価モデル	29
図 2-11 臨界管理上の課題が解決されていない場合の金属電解法の核的制限値	32
図 2-12 化学形態管理を適用した場合の金属電解法の核的制限値	33
図 3-1 グラファイト反射体とした場合の臨界解析モデル	42
図 3-2 質量管理を主とした場合の酸化物電解法の核的制限値	45
図 3-3 形状管理を主とした場合の酸化物電解法の核的制限値	46
図 4-1 質量管理を主とした場合のフッ化物揮発法の核的制限値	55
図 4-2 形状管理を主とした場合のフッ化物揮発法の核的制限値	56
図 5-1 過去に起きた臨界事故の規模	63
付録 図 1 るつぼの単純化モデル	93
付録 図 2 るつぼモデル計算結果	93
付録 図 3 カソードプロセッサの単純化モデル	94
付録 図 4 カソードプロセッサモデルの計算結果	94
付録 図 5 射出成形機の単純化モデル	95
付録 図 6 射出成形機単純化モデルの計算結果	95
付録 図 7 金属 Pu-コンクリート反射体モデル	96
付録 図 8 金属 Pu-コンクリート反射体モデルの計算結果	96
付録 図 9 酸化物電解法-電解槽単純化モデル	97
付録 図 10 酸化物電解法-電解槽単純化モデル計算結果	97
付録 図 11 PuO ₂ -コンクリート反射体モデル	98
付録 図 12 PuO ₂ -コンクリート反射体モデル計算結果	98

表目次

表 1-1 基本形状の推定臨界下限値計算結果.....	4
表 1-2 乾式リサイクルシステムの機器を想定した反射条件による推定臨界下限値サー ベイ結果.....	5
表 1-3 CEA-R3114 の安全係数.....	6
表 2-1 金属電解法核的制限値の設定根拠と制限値緩和方策(1/3).....	34
表 2-2 金属電解法核的制限値の設定根拠と制限値緩和方策(2/3).....	35
表 2-3 金属電解法核的制限値の設定根拠と制限値緩和方策(3/3).....	36
表 3-1 酸化物電解法核的制限値の設定根拠と制限値緩和方策(1/2).....	47
表 3-2 酸化物電解法核的制限値の設定根拠と制限値緩和方策(2/2).....	48
表 4-1 フッ化物揮発法核的制限値の設定根拠と制限値緩和方策(1/3).....	57
表 4-2 フッ化物揮発法核的制限値の設定根拠と制限値緩和方策(2/3).....	58
表 4-3 フッ化物揮発法核的制限値の設定根拠と制限値緩和方策(3/3).....	59
付録 表 1 臨界計算インプット例.....	99

第 1 章 核的制限値設定のための基礎データ

1-1 臨界解析のモデル化

臨界安全設計において設定する臨界管理因子の最大許容限度および核的制限値は、各国のハンドブック(1)-(6)に記載されているもの、および臨界実験データと計算より求めた推定臨界下限値から求める。本検討においては三つの乾式リサイクルシステムを取り扱い、想定する核燃料物質の形態も多岐にわたるため、同一の計算コード及び核データを使用して臨界下限値を求めた。

計算コードは日本原子力研究所で開発された連続エネルギーモンテカルロ法による中性子輸送計算コード MVP(7)、核データは JENDL-3.2(8)（一部核種については ENDEF/B-VI）を使用した。計算の詳細については付録 1 および 2 あにまとめる。

臨界安全管理では形状管理と質量管理（容積管理）が管理方法の主体であり、これに加えてその他の臨界パラメータについての管理を併用する。そのため、核的制限値の設定においてまず必要となるのは形状および質量（容積）についての推定臨界下限値である。

詳細な機器設計がなされていない段階でその核的制限値を設定するには、最も保守的なモデルでの推定臨界下限値を基準とする。解析モデルは形状、燃料形態、燃料物質密度、組成、反射条件（境界条件）から構成される（図 1-1）。これらは臨界パラメータであり、臨界管理設計で管理をしないとした因子については保守的な設定を行い、臨界管理因子と設定した因子についてパラメータサーベイを行う。

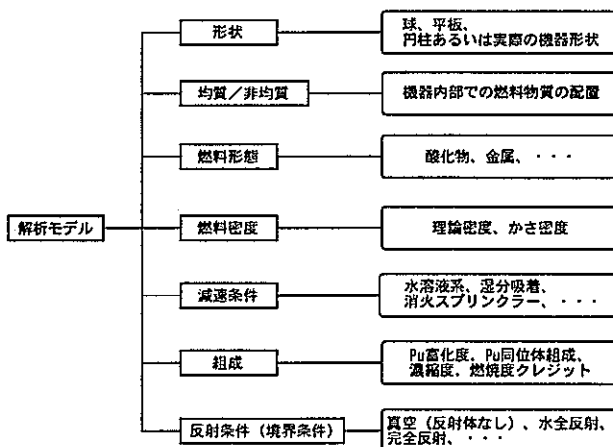


図 1-1 推定臨界下限値サーベイのための解析モデル

形状管理の場合、基本は無限円筒形状と無限平板形状である。無限円筒形状は軸方向が無限長の円柱に核燃料物質を満たした場合に未臨界と推定される最大の円柱直径である。無限平板体系では水平方向に無限に広がる平板に燃料物質を満たした場合に未臨界と推定される最大の平板厚さが推定臨界下限値となる。円柱と平板のどちらを用いるかは対象となる機器のおおまかな形状から決定する。

質量管理の場合、燃料物質がとる形状は不定である。この場合、おなじ質量で最も中性子実効増倍率が大きくなる体系でモデル化する。形状が不定の場合、その臨界性を決定するのは体系から漏洩する中性子の量であり、漏洩が最小となる体系は体積に対して表面積の最も小さい球形状である。そのため、質量管理の推定臨界下限値は燃料物質が完全に球形状になったときに未臨界と推定される最大の質量である。

1-2 基本モデルの推定臨界下限値

乾式リサイクルシステムで取り扱う8種類の物質形態について基本形状（球、無限円柱、無限平板）の推定臨界下限値を計算によって求めた。ただし、本検討では推定臨界下限値を計算結果が $k_{eff}+3\sigma < 0.95$ となる条件を満たした値という意味で用いる。すなわち、特に実験データなどを用いて評価した値ではない。結果を表 1-1 にまとめる。反射条件として反射体のない場合と水全反射に等価な厚さ 20cm の水反射体を設定した場合を考えた。水全反射の想定は一般的な機器構造物の反射体効果を単純化したもので、十分な安全裕度が見込まれる。ただし、構造物の材料や厚さによっては水全反射よりも高い反射体効果をもたらすことがあるので、乾式リサイクルシステムで用いる構造材のうち特に注意しなくてはならない機器については特殊な反射条件を課した解析モデルでの推定臨界下限値を計算した（表 1-2）。

次章以降で検討した各再処理方式での核的制限値設定はこれらの結果に基づいて行った。形状管理においては、実際の機器形状に応じてその制限値を設定するのが現在一般的となっているが、本検討では詳細な機器設計情報なしで行っているため、形状管理に関しては無限円筒、無限平板を想定し、安全裕度として古典的な安全係数を乗ずる方法をとった。すなわち、本検討で示される形状管理の核的制限値はそれ以上厳しい値となることはないという目安にすぎない。

また、付録 1 には結果のより詳細なデータを示してある。

1-3 安全係数

計算によって得られた推定臨界下限値から核的制限値を求めるには、推定臨界下限値にあらかじめ決めておいた安全係数をかけることとした。安全係数は異常事象時の安全裕度を持たせるためのもので、本検討ではフランス原子力庁（CEA）が臨界ハンドブック^⑥内で示した安全係数をそのまま用いるものとする（表 1-3）。

なお、現在では形状管理については上記のように安全係数を用いて設計することではなく、詳細な機器のモデリングにより計算から直接設計値を求める。ただし、この方法は機器の詳細な設計データが利用できる場合であり、本件で検討を行う乾式リサイクルシステムについては個々の機器設計データが十分でないことから、上記のように基本形状の推定臨界下限値に安全係数をかけるやり方で求めた。

表 1-1 基本形状の推定臨界下限値計算結果

燃料物質形態	物質組成	密度 [g/cm ³] (HM密度 / Pu密度)	Pu同位体比	反射条件	推定臨界下限値			
					質量 [kg-Pu] (球半径)	無限円筒直径 [cm]	無限平板厚さ [cm]	
Pu金属	Pu : 100 wt%	19.86 (19.86/19.86)	Pu239 : 100 wt%	反射体無し	8.36 (4.65 cm)	-	-	
				水20cm	4.49 (3.78 cm)	-	-	
			FBR級 (Pu f : 65 wt%)	反射体無し	11.23 (5.13 cm)	-	-	
				水20cm	6.25 (4.22 cm)	-	-	
U-Pu-Zr三元合金	U : 80 wt% Pu : 10 wt% Zr : 10 wt%	15.8 (14.22/1.58)	Pu239 : 100 wt%	反射体無し	103.28 (24.99 cm)	-	-	
				水20cm	41.43 (18.43 cm)	-	-	
				FBR級 (Pu f : 65 wt%)	反射体無し	168.01 (29.39 cm)	-	-
					水20cm	80.94 (23.04 cm)	-	-
	U : 70 wt% Pu : 20 wt% Zr : 10 wt%	15.8 (14.22/1.58)	Pu239 : 100 wt%	反射体無し	57.42 (16.31 cm)	-	-	
				水20cm	22.41 (11.92 cm)	-	-	
			FBR級 (Pu f : 65 wt%)	反射体無し	82.05 (18.37 cm)	-	-	
				水20cm	37.18 (14.11 cm)	-	-	
PuO ₂	重金属中 Pu : 100 wt%	11.46 (10.11/10.11)	Pu239 : 100 wt%	反射体無し	20.80 (7.89 cm)	11.05	5.78	
				水20cm	9.56 (6.09 cm)	7.08	1.40	
			FBR級 (Pu f : 65 wt%)	反射体無し	28.07 (8.72 cm)	12.32	6.56	
				水20cm	13.97 (6.91 cm)	8.31	2.11	
MOX	重金属中 Pu : 30 wt%	11.46 (10.11/3.03)	FBR級 (Pu f : 65 wt%)	反射体無し	84.73 (18.83 cm)	27.66	17.62	
				水20cm	39.74 (14.63 cm)	18.96	7.24	
PuF ₄	重金属中 Pu : 100 wt%	7.20 (5.46/5.46)	Pu239 : 100 wt%	反射体無し	44.66 (12.50 cm)	17.95	10.04	
				水20cm	16.84 (9.03 cm)	10.82	2.63	
				FBR級 (Pu f : 65 wt%)	反射体無し	62.75 (14.00 cm)	20.26	11.52
					水20cm	26.40 (10.49 cm)	13.09	4.07
PuC ₆	重金属中 Pu : 100 wt%	10.15 (2.65/2.65)	Pu239 : 100 wt%	反射体無し	144.24 (23.51 cm)	-	-	
				水20cm	101.48 (20.91 cm)	-	-	
PuCl ₃	重金属中 Pu : 100 wt%	5.70 (3.94/3.94)	Pu239 : 100 wt%	反射体無し	137.85 (20.29 cm)	-	-	
				水20cm	42.34 (13.69 cm)	-	-	
LiCl-KCl-PuCl ₃	重金属中 Pu : 100 wt%	2.08 (0.42/0.42)	Pu239 : 100 wt%	反射体無し	-	-	-	
				水20cm	2531.07 (112.89 cm)	-	-	

※FBR燃料級Pu同位体組成: Pu-238/239/240/241/242 = 3/53/25/12/7 (Pu-fissile : 65 wt%)

表 1-2 乾式リサイクルシステムの機器を想定した反射条件による推定臨界下限値サーベイ結果

燃料物質形態	物質組成	密度 [g/cm ³] (M密度/Pu密度)	Pu同位体比	反射条件	推定臨界下限値	備考
					質量 [kg-Pu]	
Pu金属	Pu : 100 w%	19.86 (9.86/19.86)	Pu-239 : 100 w%	水20cm	4.49	
				厚さ5cmのグラファイト	4.51	るつぼを模擬
				Puと同質量の金属U + 厚さ5cmのグラファイト	4.24	カソードプロセッサを模擬
				Pu質量の7/2倍の金属U + Pu質量の1/2倍の金属Zr + 厚さ5cmのグラファイト	4.01	射出成型機を模擬
				厚さ40cmのコンクリート	4.42	建屋構造材を模擬
PuO ₂	Pu : 100 w%	11.46 (0.11/10.11)	Pu-239 : 100 w%	水20cm	9.56	
				厚さ5cmのグラファイト	10.58	RIA R法電解槽を模擬
				厚さ40cmのコンクリート	9.28	建屋構造材を考慮

表 1-3 CEA-R3114 の安全係数

臨界管理因子		安全係数	
		非均質系	均質系
質量	二重装荷が考えられる場合	0.43	0.43
	二重装荷が物理的にあり得ない場合	0.70	0.85
容積		0.75	0.85
形状	円筒直径	0.85	0.90
	平板厚さ	0.75	0.85

第 2 章 金属電解法の臨界安全設計

2-1 プロセス概要

米国アルゴンヌ研究所 (ANL) にて研究開発された金属電解法 (ANL 法) (9)-(11) で再処理される燃料は、U-Pu-Zr の三元合金金属燃料である。ここでは、三元合金燃料の代表的な組成を、Pu が 20wt%、Zr が 10wt%、U が 70wt% と仮定する。

再処理の主工程である FP と重金属の分離操作は電解槽内で行われる。せん断された使用済み燃料は陽極の働きをするバスケット内に入れられ、電解液 (熔融塩) 中で通電することにより、重金属は熔融塩中に電気的に還元・溶解される。熔融塩中に溶解した重金属は、陰極で酸化・析出する。U は、固体陰極を用いて U 単体金属として回収されるが、Pu は液体 Cd を陰極として用いて Cd との金属間化合物の形で回収する。どの元素が陰極で酸化・析出するか、析出物がどのような形態であるかは、熱力学的法則に支配され、主たる因子は電解電位、関与する物質の濃度及びその活量である。また、溶解量および析出量は、電荷の保存に従い、通電した電気量 (アンペア h) に比例する。

電析操作によって得られた固体陰極回収物には熔融塩が付着している。また、液体陰極では Cd との混合物が回収物であるため、そのままの状態では燃料原料とはならない。そこで、カソードプロセッサによって精製操作を行う。カソードプロセッサでは、真空引きされた加熱炉内に回収物を入れ、塩および Cd が蒸発するまで加熱することによって蒸留を行う。これによって、不純物である塩、Cd は蒸留され、容器内には金属状態の U あるいは U-Pu 合金のインゴットが残される。

カソードプロセッサにより蒸留処理されて得られる U-Pu 合金のインゴットは、燃料製造のため射出成型機に送られる。射出成型機は熔融した金属を真空引きされた鑄型に吸入させることにより、燃料ピンの形状に加工する装置である。U-Pu インゴットは、富化度および燃料組成調整のための U 金属インゴットおよび Zr 金属インゴットと同じるつぼに入れられ、熔融される。U・Pu・Zr が均一に混じり合った後、ピン形状の鑄型に射出し、冷却固化される。その後、ピンプロセッサにおいて鑄型から取り出し、長さをそろえるために燃料端をせん断し、エレメントセトラで燃料被覆管内に挿入・封印されて製品となる。

本検討では、全工程を通じてマテリアルハンドリングは遠隔による自動運転とし、十分な安全機構を取り入れたコンピューター制御による物質収支管理を行うので、原則として誤操作による多重装荷は起こり得ないとする。また、プロセス上水などの減速材を必要とせず、セル内および機器内部は高純度のアルゴンガスにより雰囲気制御されるため、全体として乾燥系を想定する。

2-2 単一ユニットと臨界管理手段の選定

金属電解法で用いられる主要な機器として、燃料集合体解体機、燃料せん断機、電解槽、カソードプロセッサ、射出成型機、ピンプロセッサ（射出後に鑄型から燃料エレメントを取り出して長さをそろえる装置）、エレメントセトラ（燃料エレメントを被服管に装荷し Na ボンドを充填後、端栓溶接を行う装置）、集合体組立機が上げられる。さらに細かな機器として、陽極バスケット、固体陰極、液体陰極、カソードプロセッサのつば、射出成型機のつば、射出成形用モールド（鑄型）などがある。臨界安全設計を行う場合、まずこれらの個々の機器が形状管理による設計が可能かどうかを判断する。全ての工程で減速材と燃料物質が混在することは考えられていないので、本検討では減水率等は考慮しない。

集合体解体機では、燃料集合体のラッパー管をはずし燃料ピンを取り出すので、燃料物質はまだ密封されている状態である（すなわち工程内で核燃料物質は完全に閉じ込められている）。このような場合には、最小単位である燃料ピンを単位とするアイテム数と燃料ピン内の核燃料物質の質量の管理によって臨界安全性を確保する。質量の計量は受け入れ時だけで、払い出し時には燃料ピンの数と ID の確認だけでよい。しかし、最小処理単位は燃料集合体なので、燃料集合体に含まれる本数の燃料ピンがどのような配置をとっても未臨界状態を維持できるようにする必要がある。

せん断機では、燃料ピンを指定された長さにせん断し、陽極バスケットに装荷する操作を行う。形状管理を行うには機器の形状が比較的簡単である必要があるが、せん断機は駆動機器等が複雑で、かつ密閉構造ではないので、形状管理を行うには問題が多い。そのため、質量管理を主たる臨界安全管理手段とする。せん断によって燃料物質は非密封状態となるので、払い出し時にも核燃料物質の計量が必要となる。すなわち、臨界管理因子である質量は、せん断機内で取り扱う燃料物質（重金属）の質量であり、これは燃料ピンの搬入の際の重量測定と、せん断後の燃料片の重量測定およびサンプルの化学分析によって管理することとする。なお、せん断の際に切り屑などによって機器内部に滞留を生じる可能性が十分考えられるので、質量制限値は「搬入量+滞留量」に課せられ、バッチ終了後の滞留量は、バッチ開始前の滞留量と搬入量の合計と搬出量の差から推定する（ただし核的制限値は、この推定での不確かさを十分考慮した安全裕度を含まなくてはならない）。この場合の単一ユニットは、搬入の測定点と搬出時の測定点までの区間である。

電解槽では、燃料物質がその内部で様々な形態に変化するため、形状管理を行

うことは不可能であると考えられる。なぜならば、形状管理を行う場合にはその工程で発生する可能性のある最も密度の高い物質の形状が制限値となるが、金属 Pu や三元合金などの固体の安全形状寸法は数 cm 程度と非常に小さく、そのようなサイズの電解槽では期待される処理能力をもつことはできなくなる。そのため、電解槽においても質量管理を主たる臨界安全管理手段とする。電解槽に搬入される燃料物質は陽極バスケットに装荷された状態で、これは前段階で重量と同位体組成が測定されている。陽極バスケット内の燃料物質は溶解操作により電解液内に移動し、陽極バスケット内には被覆管ハルと不溶解残渣が残る。溶解操作後取り出された陽極バスケットは、重量測定され、内容物の化学分析により燃料物質が確実に溶解したことを確認する。

溶解した燃料物質を取り出すのは、固体陰極と液体陰極である。質量管理の単一ユニットを決定するには、これら取り出された燃料物質の量を確定できるポイント（出側の計量点）を見つける。取り出されたばかりの陰極回収物には塩や Cd 等の不純物が多く混ざり、サンプリングによる均一性も保証されない。そのため、次工程のカソードプロセッサによる処理を終えた段階でのサンプリングまで電解槽から回収された物質の量の確定ができないことになる。すなわち、陽極バスケットによる装荷から、電解槽を経て、カソードプロセッサによる処理が終了するまでを単一ユニットと規定しなくてはならない（図 2-1）。カソードプロセッサでは、回収物は一旦溶解されるのでこの過程で均一化されるものと考えられる。そうすると、この単一ユニットの質量制限値は、陽極バスケットからカソードプロセッサに至る間で、最も重金属密度が高い物質の質量によって決定されることになる。十分な運転管理（電位および溶融塩中濃度の管理）により電解槽における単体 Pu 金属の析出を回避するとしても、同じ単一ユニット内にあるカソードプロセッサ操作中の Pu 金属液相が基準となる。この問題については後で詳しく取り扱うことにする。

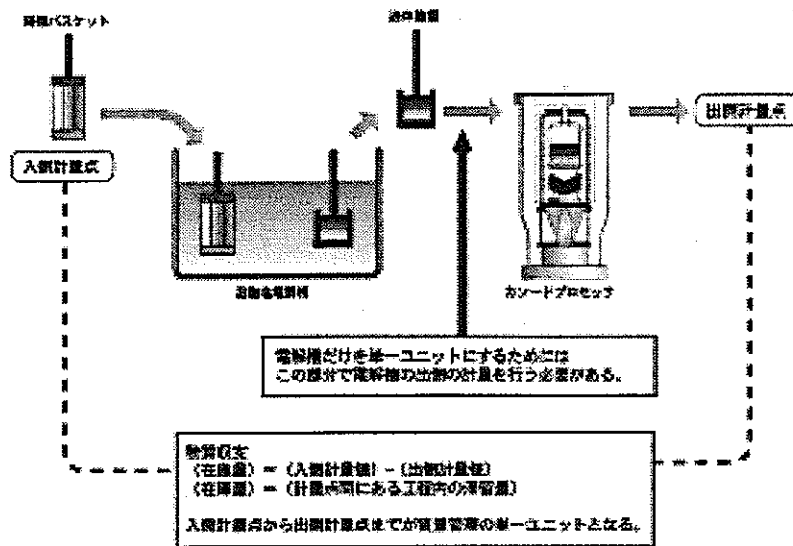


図 2-1 電解槽とカソードプロセッサの計量点と単一ユニットの関係

射出成型機は、原料である金属インゴットを熔融混合するつぼ部分と射出を行う鑄型部分に分かれる。この機器も機器全体を形状管理によって設計することは困難であると考えられるので、質量管理を主たる臨界安全管理手段とする。射出成形された燃料ピンの一部は、製品仕様を満足しているかどうかの検査に供されるので、搬出物質の量の確定が可能となる。すなわち、射出成型機はそれ単体が単一ユニットである。

ピンプロセッサでは射出成形された燃料から鑄型（モールド）を取り外し、長さを均一にするため端部をせん断する。非密封の燃料物質を取り扱うが、工程内で物質の同位体組成・化学形態が変化しない。端部切断の際に滞留物が発生することが考えられる。そのためピンプロセッサでは質量管理を行うが、同位体組成が変化しないため搬出時に同位体組成を分析する必要はなく、計量は搬入物質と搬出物質の重量測定のみである。したがって、ピンプロセッサが単体の単一ユニットである。

エレメントセトラでは、ピンプロセッサにより同じ長さにそろえられた射出成形燃料をボンド材とともに燃料被覆管に詰めて溶接する工程を行う。ピンプロセッサと同様に内部で燃料の形態は変わらない。エレメントセトラでは取扱物の加工等を行わないため滞留物の発生はないものと考えられるが、工程機器の複雑さから考えて形状管理は適用しがたいので、質量管理とする。単体で単一ユニットを構成する。

集合体組立機は、集合体解体機と同様、密封された燃料物質を取り扱うが質量

管理とし、単体で単一ユニットを構成する。

以上の検討において金属電解法では大きく7つの単一ユニットが規定でき、

- ・ 集合体解体機（質量管理 [密封]）
- ・ せん断装置（質量管理）
- ・ 電解槽からカソードプロセッサ（質量管理）
- ・ 射出成型機（質量管理）
- ・ ピンプロセッサ（質量管理）
- ・ エレメントセトラ（質量管理）
- ・ 集合体組立機（アイテム管理）

それ以外に、工程間に一時貯蔵場所を設定することが考えられるが、貯蔵する容器を密封の単一ユニットとし、複数ユニットでの安全性を確保できるよう適切な距離あるいは固体中性子吸収材により臨界安全管理を行うものとする。

また、金属電解法ではバッチ処理でプロセスを運転するが、核的制限値＝バッチサイズでないことに注意する必要がある。すなわち、核的制限値はプロセス設計におけるバッチ当たりの処理量（バッチサイズ）とユニット内滞留量を合わせた値となるので、バッチサイズは核的制限値よりも低い値となる。

なお、ここまでの段階では電解槽とカソードプロセッサをまとめて単一ユニットとしているが、このような設計では工業規模で成立し得る機器の設計は困難となる。そのため、この件については以後でより詳細な再検討を行うこととする。

2-3 各機器・プロセスの臨界安全設計

2-3.1 せん断装置の臨界安全設計

せん断装置は質量管理を行う単一ユニットである。せん断装置は、使用済み燃料の燃料ピンを受け入れる。単一ユニット内で、受け入れた燃料物質の組成、形態の変化はない。また、湿分および水その他の減速材が存在しないことを設計により担保する。そのため、核的制限値を決定するためのモデルでは、燃料形態は三元合金である。燃焼度クレジットを考慮しない場合、新燃料でもっとも高いPu富化度（20wt%/合金）と、Pu同位体比はFBR級新燃料のPu同位体組成（Pu-238/239/240/241/242 = 3/53/25/12/7）を想定する。この条件で20cm厚さの水反射体を想定した場合の球形状三元合金の推定臨界下限質量は37.18kg-Pu（三元合金質量で186kg）である。自動運転により二重装荷を排除する設計を行うの

で、最大許容限度は 37.18kg-Pu、安全係数 0.85 を用いると核的制限値は 31.60kg-Pu である。

搬入量は、使用済み燃料の照射記録から計算することにより確定する。搬出量は、せん断後の燃料ピンをサンプリングし化学分析すると共に、搬出される物質全ての秤量を行う。サンプリング及び秤量は独立した 2 つ以上の装置で行うことで多重化する。

機器内部での滞留は、せん断屑として発生すると考えられる。発生する滞留量は、1 バッチの処理が終わる毎に、搬入量と搬出量を計量し、バッチ開始前の滞留量と併せて現在の滞留量を推定する。バッチ終了後の滞留量がある基準を上回った場合に、機器内部のクリーンアップを行うことを義務づけると共に、定期的にクリーンアップするようにする。

2-3.2 電解槽からカソードプロセッサまでの臨界安全設計

電解槽からカソードプロセッサまでのプロセスは、乾式リサイクルシステムの臨界安全設計上最も特徴的な部分である。ANL で行われている臨界管理については公開文献⁽¹⁹⁾に詳しいが、本検討では独自に臨界管理設定の根拠と方法を考察した。

前述したように陰極析出物をカソードプロセッサに搬入する前に、その析出物中の燃料物質の量を正確に測定することが不可能であれば、電解槽とカソードプロセッサをそれぞれ独立の単一ユニットと見なすことができない。カソードプロセッサでは金属 Pu の液相が存在する可能性があるため、核的制限値および最大許容限度は金属 Pu を基準に決定される。すなわち、電解槽とカソードプロセッサが臨界管理上のユニットとして分離できない場合、陽極・陰極を含む電解槽からカソードプロセッサまでに最大存在できる Pu 量はこの金属 Pu での最大許容限度以下でなくてはならないが、これは表 1-2 より 4.24kg-Pu となる。これに質量管理における安全係数 0.85 をかけると核的制限値は 3.60kg-Pu となる。すなわち、平常時に電解槽及びカソードプロセッサで取り扱える Pu 量は 3.60kg 以下に制限されることになる。

この測定上の問題が最も影響の大きい問題であり、電解槽から取り出した陰極析出物の計量手段を確立することは金属電解法の工業規模での成立性を左右する重要な課題である。

ここでは何らかの測定手段によりこの陰極析出物中の Pu 量を計測手段があるものと仮定して以下の議論を継続し、その課題を指摘するだけにとどめる。その

ため、以下の議論では電解槽とカソードプロセッサが独立の単一ユニットを構成できると仮定する。

ところで上記のように考えたとしても、電解槽とカソードプロセッサは陰極を共有するため、臨界管理上のつながりがある。すなわち、析出物をそのままカソードプロセッサに入れて処理を行うため、カソードプロセッサの核的制限値を超える量を析出させることは運転管理上禁止されなくてはならない。このことから、電解槽で一度に扱える燃料物質の量はカソードプロセッサの核的制限値と処理速度、および電解槽で同時処理できる陰極の数によって決定されることになる。

そこでまず始めにカソードプロセッサの核的制限値を決定する。Puの融点がUの融点よりも低いことからカソードプロセッサの処理中には高純度の液相金属Puが生成する可能性がある。このため、この単一ユニット内において最も核的に厳しい状態は単体の金属Puである。20cmの水反射体を付けた球形の金属Pu (Pu-239 : 100wt%) の推定臨界下限質量は4.49kg-Puである。実際の機器においてPuの近傍には共析出した金属Uおよびグラファイト製のつぼがあり、これらの材質は水よりも有意な反射体として働く可能性がある。そこで、Puと同質量の金属Uと厚さ5cmのグラファイト反射体を想定してPuの推定臨界下限質量を計算すると4.24kg-Puとなった(表1-1)。この値は水全反射の場合よりも250g程度小さい。自動運転により二重装荷および過剰析出の可能性を排除する事ができると仮定しているため、安全係数0.85を用いると核的制限値は3.60kg-Puとなる。

次に電解槽における核的制限値を決定する。以下の理由により、電解槽においては合理的な設計を行うために通常の質量管理の考え方を越える特殊な方法を必要とする。熔融塩中に溶解しているPuを電解によって液体Cd陰極へ回収するには、熔融塩中のPu/U比をある一定値(2程度)以上にすることが必要である⁽¹⁴⁾。これは熱力学的な要請であり、Puに比べてU原子が多く存在する場合にはPuの電析が起きない。そのために、液体Cd陰極による析出操作を行うときには前もってUだけを回収し、Pu/U比を適切な値に調整しなくてはならない。一方、Pu濃度が小さくなれば電極回収の効率が低下するので、Pu回収効率を高くするために熔融塩中にある一定以上のPu(熔融塩中基準量)を溶解させておく。この値は設計にもよるが、ANL電解槽の通常時最大で熔融塩重量に対して約7wt%のPu濃度である⁽¹³⁾。このため、電解槽内部には熔融塩に溶解した状態で大量のPuが「常に」存在することになる(図2-2)。この特殊な理由により、燃料の処理の度に電解槽内のPu存在量を0にすることができない。また、熔融塩中のPu濃度であるから、電解槽の熔融塩装荷量が増加すればそれに溶解しているPuの質量は大きくなる。しかし、熔融塩に溶解した状態のPu(LiCl-KCl-PuCl₃)の臨界質量はきわめ

て大きく、例えば通常の工程でのPu濃度を超えるPu濃度20wt%の熔融塩で20cm厚さの水反射体を想定してもその推定臨界下限質量は2531kg-Puである（熔融塩重量にして約12t）。このことから、熔融塩に溶解している状態ではきわめて大きな安全裕度を持っていると言える。

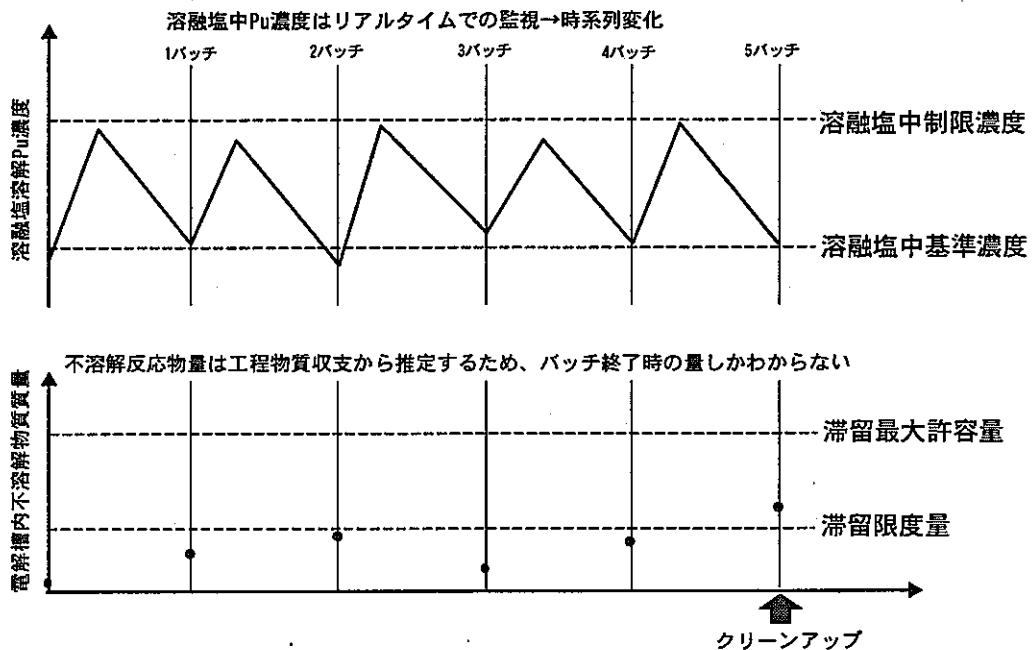


図 2-2 平衡時の熔融塩中 Pu 濃度と不溶解性 Pu 反応物量の時間変化例

ところが、通常の質量管理による臨界安全設計の原則に従えば、単一ユニット内の全ての Pu 量が単一の物質形態となった場合での推定臨界下限値を基準としてその核的制限値を決定することになっている。電解槽では Pu は装荷される三元合金、溶解後の塩化物、他の不純物との反応によって発生する不溶解反応物（様々な形態が考えられるがここでは酸化物：PuO₂を想定）、液体陰極に回収される PuCd₆など様々な形態で存在している。前記の考え方では、電解槽中の全ての Pu が最も重金属密度の高い形態（上記中では酸化物）になったとしても未臨界を確保できるように最大許容限度および核的制限値を設定しなくてはならない。ところが、PuO₂の推定臨界下限値は9.56kg-Puなので、電解槽に存在する全ての Pu の量が9.56kg-Puを越えてはならないことになる。この値は熔融塩に溶解した状態の Pu の臨界質量の300分の1でしかない。電解槽内の Pu の量は

$$[\text{工程処理量 (バッチサイズ)}] + [\text{熔融塩中基準量}]$$

$$+ [\text{不溶解反応物量 (工程内滞留物量)}]$$

であり、これが 9.56kg-Pu とすると、必要な熔融塩中基準量と許容できる不溶解反応物量を差し引くと1バッチで処理できる Pu 量はわずかとなる。すなわち、このような臨界設計の考え方では実用化レベルの処理能力を持つ電解槽の設計は困難となる。

そこで、Pu が単一ユニット内で複数の形態を持つ場合に、それぞれの形態における核的制限値を設定し、運転管理によりある形態にある Pu が他の形態へ急激に変化しないように保証する。すなわち、臨界管理因子として物質形態も考慮することによって、物質形態毎に核的制限値を設定する（図 2-3）。これを「化学形態管理」と呼ぶことにする。たとえば、単体で存在する Pu 酸化物の推定臨界下限値が 9.56kg-Pu、同じく Pu 濃度 20wt% の熔融塩単体の推定臨界下限値が 2531kg-Pu であるが、5kg-Pu の Pu 酸化物と 200kg-Pu の Pu が溶解した熔融塩が同時に機器内に存在していたとしても（機器内の Pu 総量は Pu 酸化物の推定臨界下限値を超えるが）未臨界を保持できる（ただし熔融塩中の 200kg の Pu が全て酸化物に移行した場合は臨界となる）。

この考え方により、電解槽では陽極に装荷した Pu（三元合金）、熔融塩中に溶解している Pu（ PuCl_3 ）、不溶解性反応物として滞留する Pu（ PuO_2 ）および液体陰極に回収される Pu（ PuCd_6 ）の4形態についてそれぞれの最大許容限度・核的制限値を設定する。ただし、これらは同時に電解槽の中で存在するため核的相互作用に対する影響を考慮して設定する必要がある。また、この考え方は大量の Pu が複数の化学形で比較的安定に分散して存在している場合を前提としているため、分散している Pu が急激に一つの化学形へと移行しないように運転管理を行う必要がある。

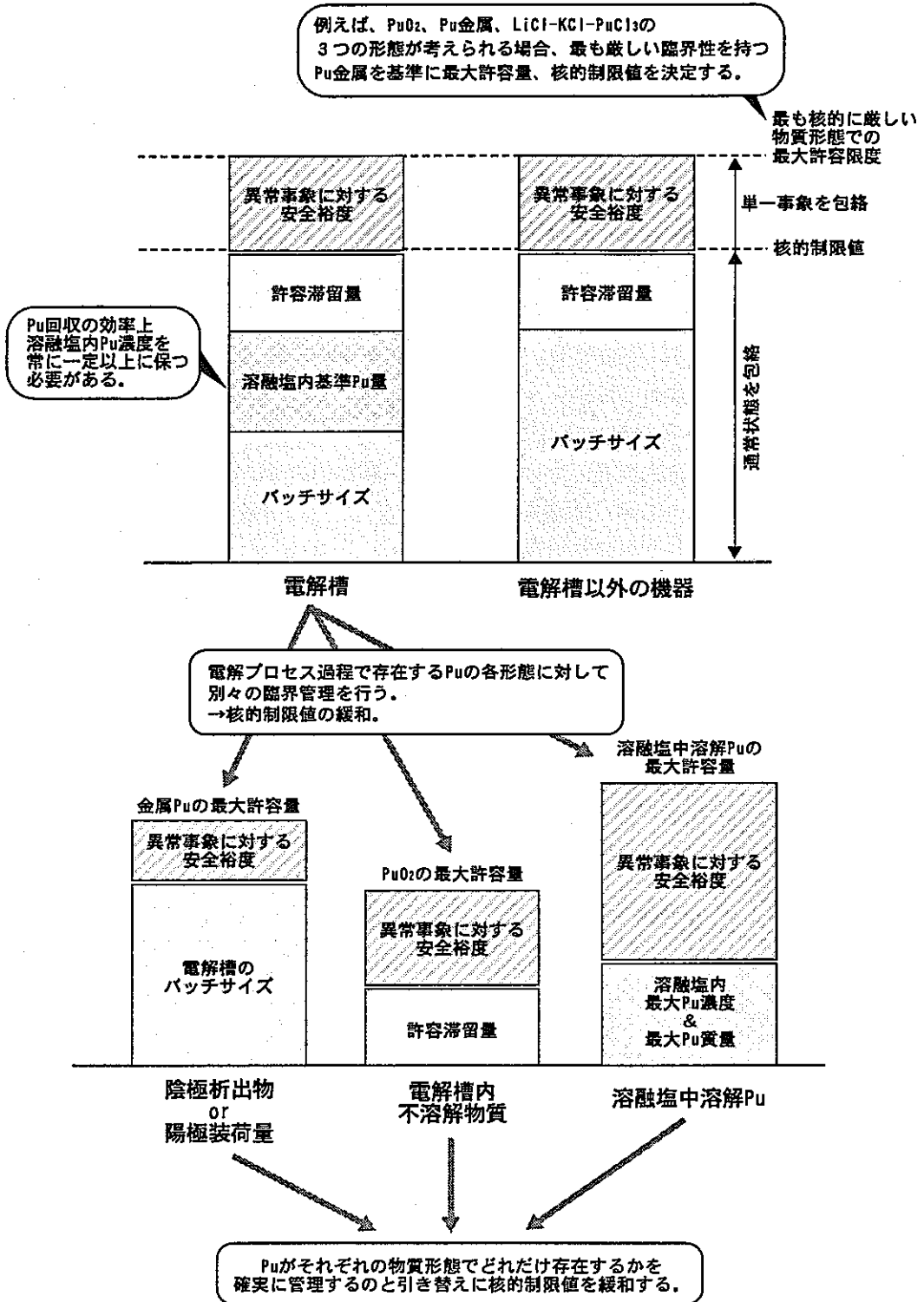


図 2-3 化学形態管理の臨界安全設計の考え方 (例：電解槽)

Pu の回収効率を高めるために、設計では通常状態で Pu が約 7wt%程度、HM 全体でも～15wt%程度を想定する。そこで熔融塩中 Pu 濃度の制限値として HM 全てが Pu であった場合でも臨界安全を確保できるように 15wt%に+5wt%の裕度を見込んで 20wt%の Pu 濃度を最大許容濃度、15wt%を核的制限濃度とする。

熔融塩に対する重金属の飽和濃度は温度によって変化する。通常時 500℃程度での運転を行うが、ヒーター等の単一故障により加熱源が喪失することを考えた場合、熔融塩中に溶解している全ての Pu が塩化物 PuCl_3 の結晶として析出した場合でも臨界安全性を確保しなくてはならない。そのため、電解槽に供給する熔融塩の最大量はこの制約を受けることになる。ただし、加熱源及びその電源の独立多重化を行い、その動作に十分な信頼性が得られる場合には単一故障時での加熱源の喪失は考えなくても良くなる。このような設計を行う場合には上記制約を課さなくても臨界安全性を確保可能となる。 PuCl_3 の推定臨界下限値は 42.34kg-Pu である。

ところで固体陰極による U の回収については、熔融塩中の Pu/U 比がきわめて大きな場合 (10^5 以上) でない限りは Pu の析出が物理的に生じないので、臨界管理としては固体陰極電解工程における熔融塩中 Pu/U 比の管理をおこなうのみで、固体陰極析出物の質量は臨界上の管理対象とはならない。

以上の議論より熔融塩中に溶解している状態では Pu の限量が比較的大きいことがわかったので、電解槽における Pu の質量管理の要は熔融塩以外に存在している Pu の量を管理することといえる。溶解している以外の Pu は陽極及び陰極に存在する量と不溶解物として容器内のどこかに存在する量である。電極に存在する Pu 量に関しては、カソードプロセッサの核的制限値に拘束されているのでここでは問題の対象ではない。現在の知見では、電解槽内で発生する不溶解物がどのような化学形態をもつかを特定するほどの情報が不足しているが、ここでは酸化物を想定する。電解槽内部に酸素や水分が存在した場合、熔融塩中の重金属と酸素が反応して酸化物が析出する可能性がある⁽¹⁵⁾。そこで、電解槽内で発生する不溶解物を PuO_2 と想定すると、その推定臨界下限質量は 9.56kg-Pu である。ただしこれはレアケースであり、10kg 近い Pu がすべて析出させるほどの酸素あるいは水分の混入は安全設計により排除されなくてはならない。通常プロセス運転時にこの種の不溶解物精製の原因となるのはアルゴンガス中のごく微量の酸素分や FP 中に含まれる酸素原子等である。アルゴンカバーガスの大規模な異常やセル内への水分の進入を想定しなくてはならないような設計では、核的制限値設定のためのモデルに減速条件が加わるため、今回の検討の前提では取り扱えない。そのため、これらの異常は技術的に想定されるいかなる場合にでも生じないように設計する必要がある。

さらに、不溶解 Pu 反応物と熔融塩中の Pu、陰極析出物中の Pu 間に働く核的相互作用を考慮しなくてはならない。実際の運転データが存在しないためこの核的相互作用のモデル化は極めて困難であり、実際にどの程度の安全裕度を考えればよいかを定量的に設定することは難しい。そこで、単一ユニットの推定臨界下限値にこの相互作用の影響をふまえた安全係数をかけることにする。この考え方を図 2-4 に示す。すなわち、電解槽内で同時に存在する複数の物質形態各々の核的制限値は、単一状態の推定臨界下限値に核的相互作用のための安全係数を掛けて最大許容量を求め、さらに単一ユニットの安全係数を掛け合わせることで算出する。ここで、この安全係数を相互安全係数と呼ぶことにする。電解槽中の各形態にある Pu 間に働く相互作用に対する相互安全係数を 0.7 と設定する。この 0.7 という安全係数は単一ユニットで二重装荷を考慮しない質量管理において、非均質効果を考えた場合に適用される安全係数の値である。したがって、詳細な設計情報が得られれば、考えている対象について技術的に想定できるすべての状態で 0.7 が合理的でかつ十分な安全係数であることを確認する必要がある。

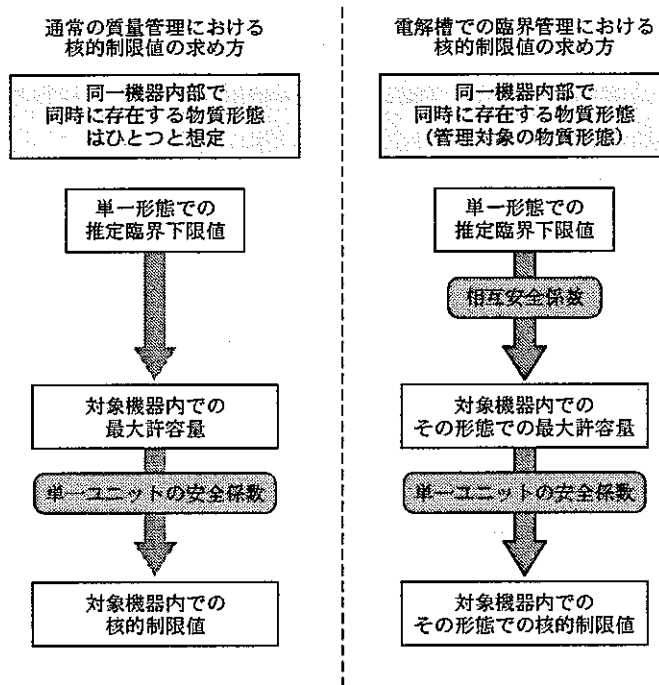


図 2-4 相互安全係数による核的制限値の求め方

ところで、電解槽内で不溶解物がどの程度発生しているかを知るには、熔融塩中の Pu 濃度の測定、熔融塩容積の測定およびバッチ受入量と払出量を計測する必要がある。バッチの払出量は工程終了時にしか知ることができないため、不溶解物の急激な発生を直ちに検出するのは困難である。そのため、安全係数として二

重装荷を考慮する場合に一般的な 0.43 を用いる。そうすると、新たに設定した相互安全係数を 9.56kg に掛けて最大許容限度 6.69kg-Pu、さらに 0.43 を掛けることによって核的制限値 2.87kg-Pu となる。この場合では、不溶解物が球状に PuO_2 の理論密度で集積し、なおかつ水反射体と同等の反射条件で囲まれた状態でも未臨界であるので、十分な安全裕度を有していると考えられる。また、熔融塩中の Pu が急激に不溶解物に変化するような事象を素早く検知するためにリアルタイムでの Pu 濃度監視システムの開発が課題となる。さらに、核的制限値を超える不溶解物（正確には物質収支より計算される不明量）が発生したと思われる場合には電解槽のクリーンアップが必要となる。同時に物質収支の健全性を検証するために定期的なクリーンアップも行う。

熔融塩中の Pu についても不溶解 Pu 反応物と同様に核的相互作用を考慮した制限値を設定する。 PuCl_3 の推定臨界下限値は 42.34kg-Pu である。熔融塩中 Pu については濃度測定によりその量を直接的に計量できると仮定している。安全係数として 0.85 を適用すると、最大許容限度は相互安全係数 0.7 を掛けて 29.63kg-Pu、これに先の安全係数 0.85 を掛けると核的制限値は 25.18kg-Pu である。以上より、熔融塩中 Pu の核的制限値は濃度で熔融塩に対して 15wt%、質量で 25.18kg-Pu となる。

陽極に装荷する三元合金も相互安全係数と単独の安全係数を掛けてその最大許容限度と核的制限値を設定する。Pu 富化度 20wt% の U-Pu-Zr 三元合金の推定臨界下限値は 37.18kg-Pu である。ここで、三元合金中の Pu の同位体比は新燃料組成 (Pu-f: 65wt%) を用いている。燃料のせん断の際に Pu 同位体比の測定も行うため、ここで同位体管理を行うのは容易である。また、ブランケットについては Pu-f の割合は新燃料組成よりも高いが、Pu 富化度は非常に少ないため上記の設定は十分保守的であると見なせる（すなわち、ブランケット燃料の場合は Pu 富化度管理でパスできる）。相互安全係数 0.7 と安全係数 0.85 を考慮すると、陽極一基に装荷する三元合金の最大許容限度は 26.00kg-Pu、核的制限値は 22.11kg-Pu である。ただし、電解操作平衡時には陽極から入量する Pu 量と陰極で回収する Pu 量が平衡しているので、陽極に装荷できる Pu 量は液体陰極の核的制限値以下におさえなくてはならない。そのため、陽極に装荷できる Pu 量は、同時に装填可能な陽極数、液体陰極数および液体陰極の核的制限値から次式で決定される。

$$(\text{陽極 1 基に装荷可能な Pu}) = (\text{液体陰極数}) \times (\text{液体陰極の核的制限値}) \div (\text{陽極数})$$

この式より求まる Pu 量が上記で設定した三元合金の核的制限値 22.11g-Pu 以下であればよい。

以上より、電解槽の臨界安全設計は、熔融塩中 Pu 濃度管理および電解槽内不溶

解物滞留量の質量管理を併用し、なおかつ陽極装荷物、陰極回収物中の Pu の質量管理を行うものとする。すなわち金属電解法電解槽の臨界安全設計—化学形態管理の要点は、

- ・ 核分裂性物質が1つの機器内に同時に複数の物質形態で存在することを前提とする。
- ・ それら複数の形態毎に核的制限値を設定しそれぞれ独立に管理する。
- ・ それらの物質形態間の核的相互作用を考慮するために相互安全係数を用いる。

このように一つの単一ユニット内部での燃料物質の化学形態毎に核的制限値を設けるような臨界安全管理の方法は従来手法と異なるものであり、その実現性と信頼性を十分に調査する必要がある。以上の議論で構築した臨界安全管理手段の成立性を確保するには、以下の課題を解決する必要がある。

- ・ 電解終了後における電極析出物中の Pu 量を正確に測定する手段
- ・ 熔融塩中 Pu 濃度のリアルタイム監視方法
- ・ 正確な物質収支計算手法
- ・ 溶解 Pu が不溶解物に変化する過程の特定と防止方法の確立（溶解 Pu の化学的安定性）
- ・ 相互安全係数が妥当な安全裕度を含むことを証明

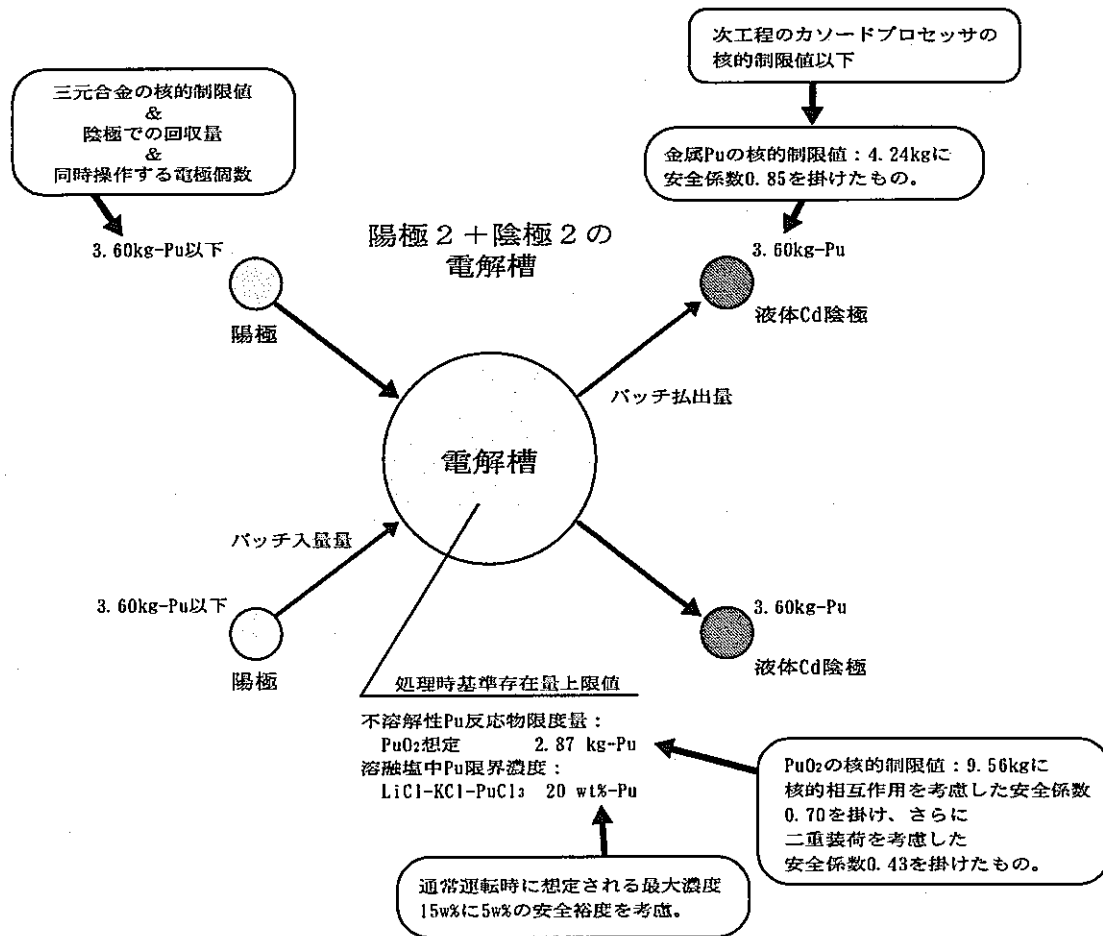


図 2-5 電解槽の核的制限値設定概念図

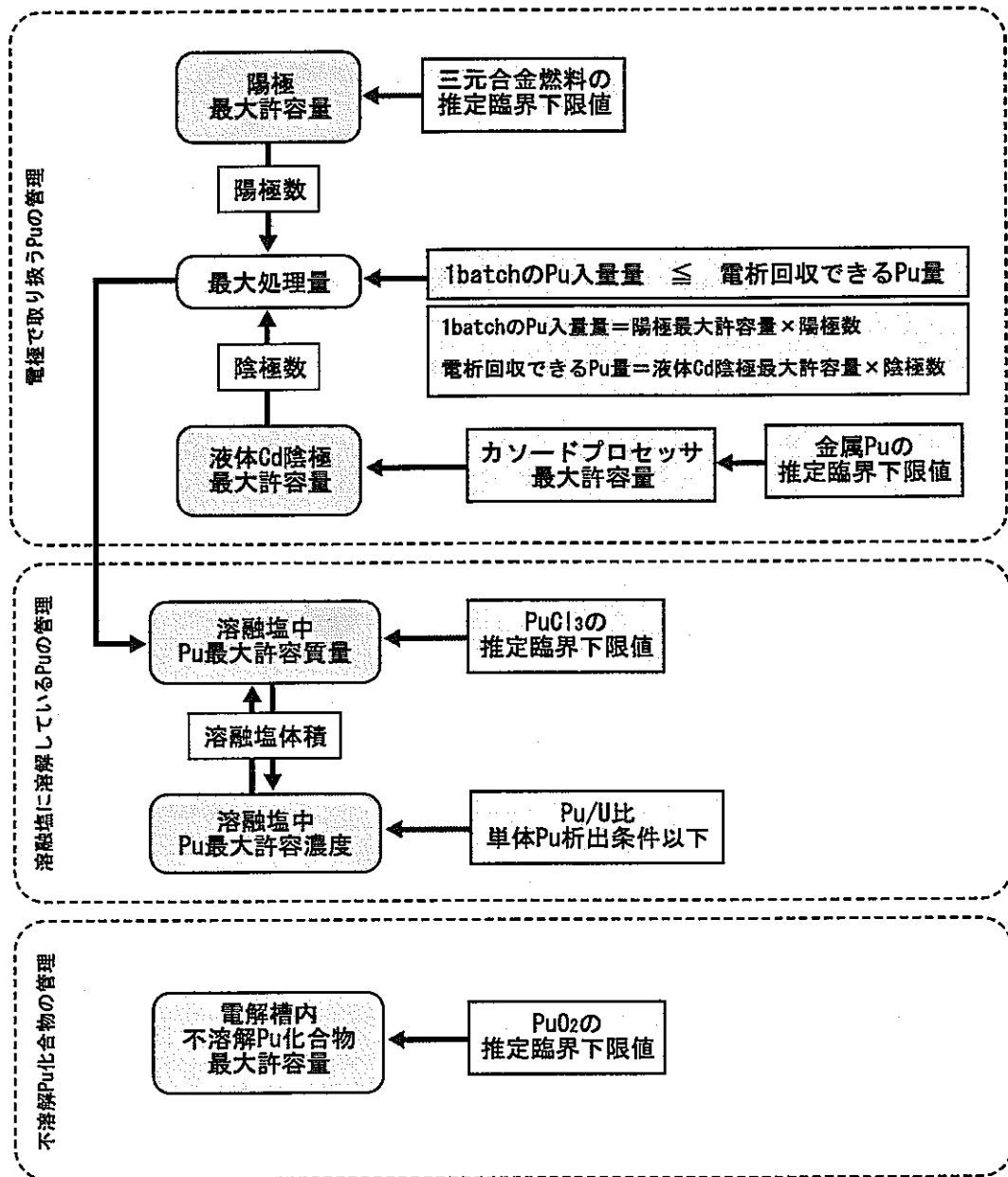


図 2-6 電解槽の各燃料形態に対応する核的制限値の相互関係

2-3.3 射出成型機の臨界安全設計

射出成型機は質量管理を行う単一ユニットである。単一ユニットの適用範囲は、射出成型機本体と溶融するつば、モールドパレット（鋳型）を含む。受入物質は、カソードプロセッサで処理した U-Pu 合金、富化度調整用の U 金属と三元合金材

料の Zr 金属である。受入物質は、溶融るつばに投入する前に組成および重量の測定を行い確認する。るつばには前回のバッチ時の滞留が考えられるので、これも入量時に測定の必要がある。払出量の計量は、射出された燃料ピンの重量測定とサンプリングによって行う。そのため、空のモールドの重量測定を事前に行う。また、射出後に溶融るつば内に残存した燃料物質についても重量測定を行う。ここでは溶融処理により処理物質は均一に混合すると仮定するので、るつば内残存物と射出燃料の組成は同一とみなされ、るつば内残存物の組成分析は必要ない。射出成型機では溶融物の飛沫等が考えられるので、定期的なクリーンアップを行うものとする。

射出成形のため個別に入れられたインゴットを溶融・混合するので、最も Pu 密度の高いのは溶融前の U-Pu 合金である。U-Pu 合金はカソードプロセッサでの処理の後に組成分析されるため、臨界管理に Pu 同位体組成管理および Pu 富化度管理を適用できる。しかし、これらを適用した場合、規定外の組成をもった析出物が得られた場合に、射出成型機に投入する前に組成調整を行う必要が発生する。また、陰極析出物の U-Pu 混合比率の上限が設定されなければ、この混合比を前提とした核的制限値設定が行えないので、現状では同位体管理および富化度管理を適用せず U-Pu 合金を金属 Pu (Pu 同位体組成 : Pu-239 が 100%) と金属 U に分離した形を想定するのが妥当と思われる。カソードプロセッサ同様にるつば材料および同時に処理する U、Zr 金属が効果的な反射材となり得るので、反射条件については詳細な検討の必要がある。ここでは新燃料組成に応じた混合比率 (Pu/U/Zr = 20/70/10 wt%) を適用し、Pu 質量の 7/2 倍の金属 U と 1/2 倍の金属 Zr、るつば材料を想定して厚さ 5cm のグラファイト反射体を仮定する (表 1-2)。自動運転により二重装荷を排除する設計を行うので、最大許容限度は 4.00kg-Pu、安全係数 0.85 を用いると核的制限値は 3.40kg-Pu である。最終的な製品である三元合金は Pu20wt%、Zr10wt% の合金であるため、一度に成形可能な三元合金燃料は最高で 17.0kg となる (るつばに装荷した材料全てが射出可能で、機器内の滞留量が無い場合)。この場合、カソードプロセッサでの核的制限値が 3.6kg-Pu であるので、もしこれが直接射出成型機に受け入れられた場合には 200g-Pu 超過してしまう。そこで、射出成型機への受入量は射出成型機の核的制限値から機内の滞留量分を差し引いた量以下に調整する必要がある。

2-3.4 ピンプロセッサの臨界安全設計

ピンプロセッサを質量管理を行う単一ユニットとする。ピンプロセッサでは、燃料物質の形態や組成に変化はないが、射出時のモールドを取り外し、燃料ピンの長さ調整のために射出成型燃料の端部を切り落とす処理をする。そのため、切

り落とし作業時にせん断片などが滞留する可能性がある。計量は、入量する射出成形燃料の重量と、払い出す燃料ピン、剥落モールド片、せん断燃料の重量についておこなう。剥落モールドについては燃料物質の付着量を測定する必要がある。また、燃料物質の滞留を防止するために定期的なクリーンアップを行う。

内部で燃料の形態・組成に変化がないため、Pu 富化度及び Pu 同位体管理を適用可能である。三元合金新燃料の組成を用いると、その推定臨界下限値は 20cm 厚さの水反射体を想定した場合で 37.18kg-Pu である。自動運転により二重装荷を排除する設計を行うので、最大許容限度は 37.18kg-Pu、安全係数 0.85 を用いると核的制限値は 31.60kg-Pu である。これは三元合金質量にして 158kg になる。

2-3.5 エレメントセトラの臨界安全設計

エレメントセトラは質量管理を行う単一ユニットである。エレメントセトラでは、燃料物質の形態、組成の変化はなく、加工処理も行わない。計量は、入量する燃料ピンの重量と、使用するボンド材及び被覆管材の重量、払出は溶接後の燃料ピンの重量について行う。加工を行わないので滞留物が発生する可能性は低いですが、定期的な点検を行う。

内部で燃料の形態・組成に変化がないため、Pu 富化度及び Pu 同位体管理を適用可能である。三元合金新燃料の組成を用いると、その推定臨界下限値は 20cm 厚さの水反射体を想定した場合で 37.18kg-Pu である。自動運転により二重装荷を排除する設計を行うので、最大許容限度は 37.18kg-Pu、安全係数 0.85 を用いると核的制限値は 31.60kg-Pu である。

エレメントセトラ以後の工程では、燃料物質を密封された状態で取り扱うのでアイテム管理となる。

2-4 臨界安全性の観点から見た電解槽のスケールアップ

金属電解法においてスケールアップによるコスト削減を考えた場合に、その可能性が高いと思われるのが電解槽である。他の機器は基本的に質量管理による臨界管理上の制限によって、一度に取り扱うことのできる燃料物質の量が決まっているので、機器の大型化を行うことができない。ここでは、電解槽のスケールアップの効果を臨界安全上の観点から考察する（図 2-7）。

電解槽の容量をスケールアップしたとしても、一つの液体陰極に一度に回収できる Pu 量には制限がある。これは、液体陰極の制限がカソードプロセッサの核的

制限値によって拘束されているためである。そのために、一度に大量の Pu を一つの電解槽で取り扱うとなると、使用する液体陰極の数が増加する。すなわち、液体陰極についてはスケールアップが不可能である。以上より電解槽の Pu の単位処理量（バッチサイズ）は液体陰極回収量の整数倍となる。陽極については、三元合金での核的制限値のためスケールアップの可能性はあるが、一つの陽極に多くの三元合金を装荷した場合にはその溶解プロセスの効率が悪化することが考えられる。

一方、熔融塩中に溶解している Pu の基準濃度はバッチサイズに関係なく熱力学的要請より決定される。ただし、バッチサイズが大きくなると熔融塩中の Pu 存在量の最大値が大きくなり、その状態でも制限濃度以下を確保するために熔融塩装荷量が増大する（濃度＝質量÷体積）。熔融塩装荷量が増大した場合、溶解している Pu の単位濃度に相当する Pu 質量が大きくなるため、濃度監視の精度が厳しくなるというデメリットが生じる（たとえば 100kg の 1wt% は 1kg であるが、200kg では 2kg である。このため濃度計の誤差が 1wt% ある場合に電解槽容量が 2 倍になるとその濃度計の情報から得られる質量の不確かさは倍増することになる）。さらに、大型化により熔融塩の濃度分布の変動幅も増大する可能性がある。

また、電解槽内の不溶解物の許容量もバッチサイズに関係なく決められるので、これもスケールアップの利点はない。電解槽が大型化するとクリーンアップ時の作業が難しくなることも予想できる。

以上より、臨界管理上からみた電解槽のスケールアップには重大な問題が多い。特に熔融塩中の Pu 濃度測定に対する精度要求が厳しくなるため、臨界安全管理の設計上好ましくない影響を与える。

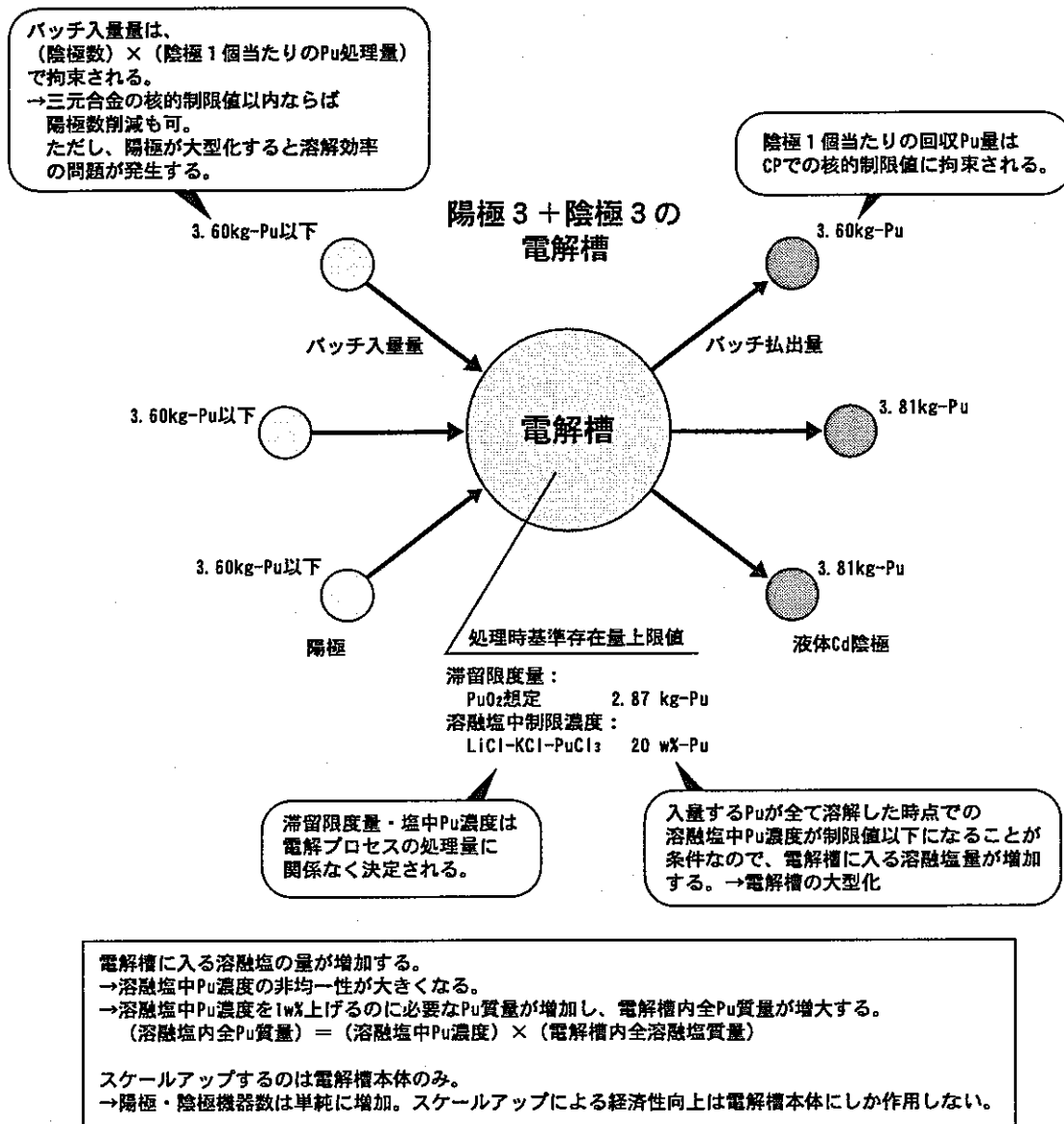


図 2-7 電解槽処理量を増大させた場合の核的制限値

2-5 金属電解法の臨界安全性評価

以上で設定した最大許容限度が実際にどのぐらいの安全裕度を含んでいるかを、いくつかのモデルで検証した。

ここで、前述の議論で設定した核的制限値が実際の体系においてどの程度の裕度があるかを定量的に評価する。まず、電解槽における裕度を確かめるために、非常に保守的な電解槽モデルを考えた(図 2-8)。このモデルにおいては、陰極

を模擬した金属球3ヶ、熔融塩および電解槽と外部水反射体をもったモデルの中性子実効増倍率が1の場合を基準とした。

このモデルにおいては、実際のプロセスでは存在しないPu金属（同位体組成はFBR級燃料組成）の析出を想定し、その質量をパラメータとして臨界となる状態を計算によって求めた。その結果、陰極に相当する3つのPu金属球がそれぞれ約9.67kgになったところで臨界となる事がわかった。これは設定した液体陰極の核的制限値（3.60kg）の2.67倍に相当する量である。すなわち、この電解槽モデルにおいては金属Puの析出と質量異常が同時に起きてはじめて臨界となる。これは二重偶発性原理に基づいた臨界安全設計を十分に満たす。実際には陰極に析出する場合に完全な球体を形成することは考えにくいこと、金属Puが析出したとしてもその密度が完全な理論密度になることは考えにくいこと、電解槽周りの反射条件が厳しいことから、実際の安全裕度は十分に大きいと考えられる。また、この解析では、モデルの各部分が臨界性にどの程度の影響を持っているかについても計算を行った（図2-9）。その結果、モデルの臨界性を決める主要な要素は一つの電極に析出するPu量であり、熔融塩単独や機器周りの反射条件は大きな影響を持たない。また、陰極同士の相互作用もほとんど影響を与えないことが分かる。これは体系が非減速系であるため、中性子の平均自由行程が長く、漏洩が起きやすいためである。そのため、広く分散したPuや十分な距離のあるPuの間には大きな核的相互作用が起きにくい。

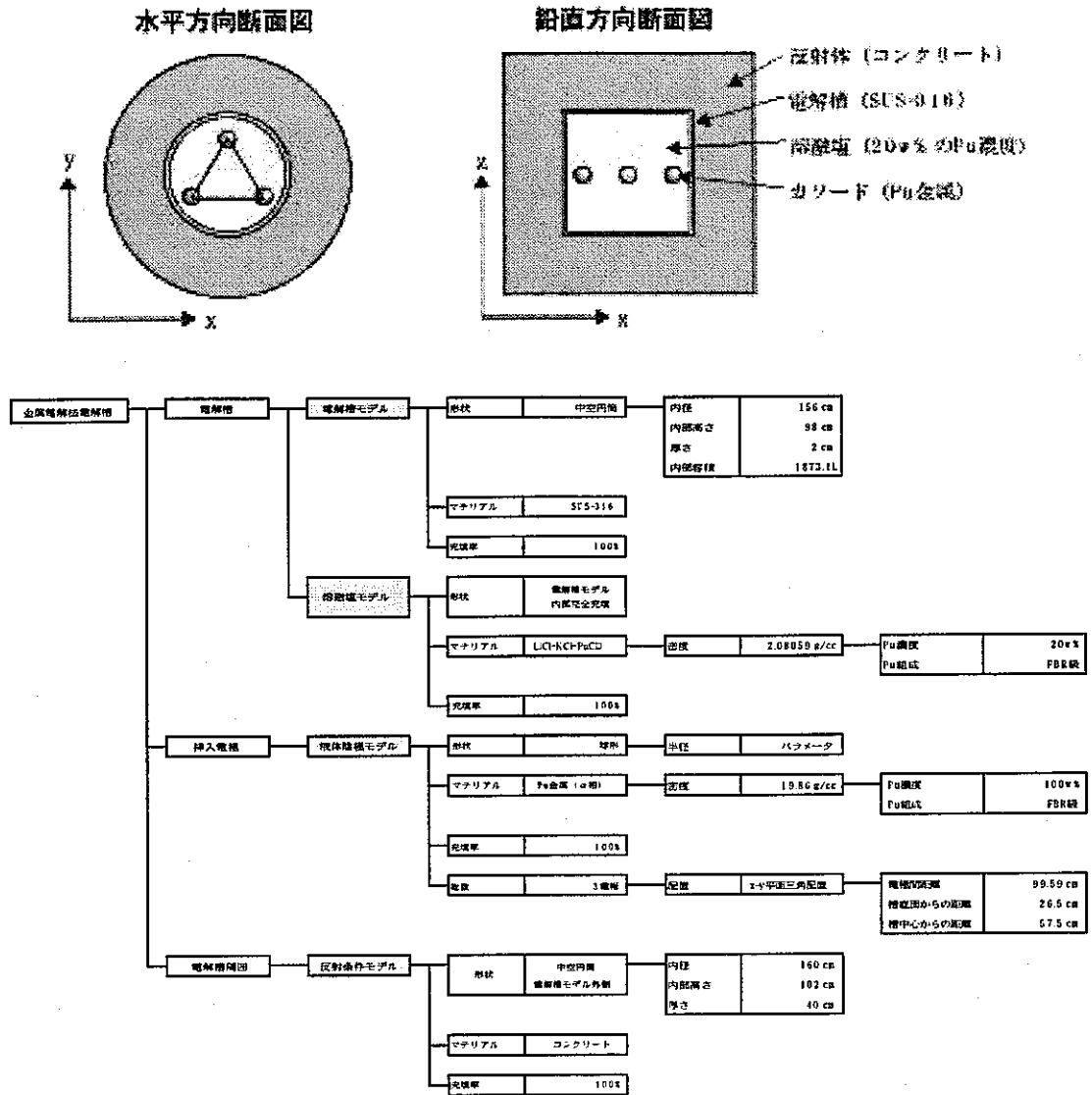


図 2-8 臨界安全性評価のための電解槽モデル

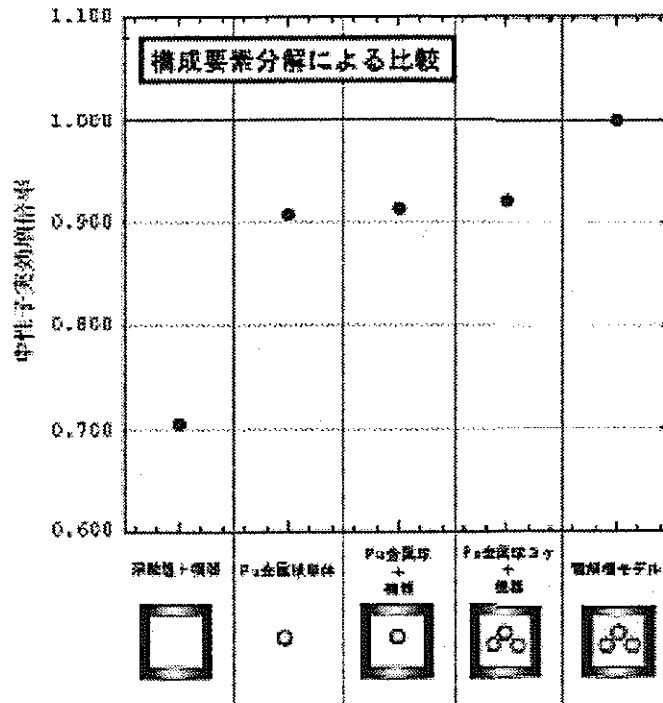


図 2-9 電解槽モデルの各要素が臨界性に与える影響

さらに、同時に存在する熔融塩中の Pu (PuCl_3) と不溶性 Pu 反応物 (PuO_2) の間の裕度を確認するために図 2-10 のようなモデルでの臨界計算を行った。Pu 同位体組成は Pu-239 が 100wt% とした。この場合、最大許容限度 (異常時の最大量) の PuO_2 (2.87kg-Pu) が真球を形成し、その周りに核的制限量 (平常時の最大量) の PuCl_3 (25.18kg-Pu) が析出したケースで、どちらも理論密度である。機器等の反射体効果を考慮して厚さ 20cm の水反射体を想定する。この場合でも中性子実効増倍率 ($k+3\sigma$) は 0.91454 となり 0.95 を十分下回ることが確認された。

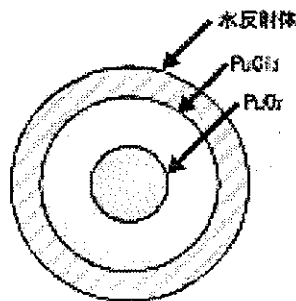


図 2-10 熔融塩中 Pu と不溶性 Pu 反応物の核的相互作用評価モデル

2-6 核的制限値の緩和方策

今回の検討で設定した最大許容限度および核的制限値について、より詳細なモデル化や管理手段を適用することによってより合理的な裕度をもたすように再評価できるものがある。

まず始めに反射条件の設定について考える。全体的に反射条件として水全反射を想定したが、実際の機器設計情報（構造材の材質、厚さ、サイズ等）を用いることにより実際の反射条件に改めることが可能となる。一般的に水全反射の想定は反射体異常に対する裕度も含んでいるので、実際の反射条件を課すことにより核的制限値は増加する可能性が高い。表 1-1 には反射体を想定しない場合の推定臨界下限値も記載されているので、反射条件の緩和により最大どのぐらいまでの核的制限値の緩和が見込めるかを推測することができる。

次に Pu の同位体組成である。特に電解槽以降では Pu 同位体組成として核分裂性核種の Pu-239 が 100wt% と設定したが、これは照射済みブランケット燃料を単独で処理する場合を考慮したためである。照射済みブランケットの Pu 同位体組成は Pu-239 が～95wt% ほどであるのが一般的なので、ブランケット燃料の単独処理が行われる場合には緩和裕度はない。また、この場合には炉心燃料とブランケット燃料の混合処理を前提とした場合に、ブランケット燃料のみの連続誤装荷が生じた場合も包含できる。しかし、運転管理により炉心燃料とブランケット燃料の混合処理が確実に行われることが保証できるならば、Pu 同位体組成を緩和することが可能である。ただし、この場合には十分な裕度が得られる Pu 同位体組成の上限值（同位体組成管理の最大許容限度）を設定する必要があるが生じる。

最後に射出成型機については Pu 富化度 100wt% を仮定しているが、カソードプロセスから送られてくる U-Pu 合金の U/Pu 割合を管理/確認することによって Pu 富化度管理を適用することが可能である。この方法を用いるには液体陰極で回収される U と Pu の割合を管理/保証する必要がある。さらに Pu の割合が高い回収物が得られたときには、射出成型機に持ち込む前に U を加えて混合調整する必要があるが生じる。

また、受入燃料について燃焼度クレジットを適用することにより燃料せん断工程および陽極では FP による核的反応度の低下を考慮した核的制限値の設計を行うことができる。

2-7 課題

上記の臨界安全設計を成立させるためには以下に示す 3 つの課題がある。

一つは、二重装荷を防止するための手段（物質移動管理）の確立である。金属電解法では燃料物質の移動がバッチ操作によるものであり、全てのプロセスにおいて質量管理を適用する。そのため、二重装荷を想定して核的制限値を決めるならば安全係数を 0.85 から 0.43 まで下げなくてはならない。すなわち、二重装荷が起きることを想定しない場合とした場合ではその核的制限値に 2 倍の差ができる。これはプロセスの処理能力を大幅に低減させることとなる。遠隔自動操作では、再処理施設安全審査指針の臨界安全に規定されている「運転員の単一誤操作」を除外できるが、機器の単一故障又は誤動作によって二重装荷が発生し得ないことを保証する必要がある。

二つ目は、電解槽から取り出した直後の陰極回収物中に含まれる重金属を計量する手段を開発することである。これができなければ、前述したように電解槽とカソードプロセッサをそれぞれ独立した単一ユニットとして扱うことが不可能となり、本検討について再評価する必要が生じる。

最後に熔融塩中の Pu/U 濃度のリアルタイムの測定である。固体陰極への Pu の析出は Pu/U 比の制御により防止することとしているので Pu/U 濃度の監視ができない場合には固体陰極への Pu 析出を想定した臨界安全設計を行う必要が発生する。特に計量手段に関してはその精度、誤差および測定時間も大きなファクターとなる。

上記 3 つの問題を解決すれば基本的には本検討の臨界安全設計を実現できる。また他の課題として、質量管理一般に言えることだが、厳格な物質収支管理と工程内滞留物量の正確な計量が上げられる。

2-8 金属電解法の臨界管理設計まとめ

はじめに、上記課題として取り上げた項目が解決されない場合の単一ユニットと核的制限値を図 2-11 にまとめる。これは現行の技術のみでプラントを建設した場合の核的制限値である。一方、課題が解決されて本書で提案している化学形態管理が適用できる場合の単一ユニットと核的制限値を図 2-12 にまとめる。また、その設定根拠と核的制限値の緩和方策を表 2-1～表 2-3 にまとめる。

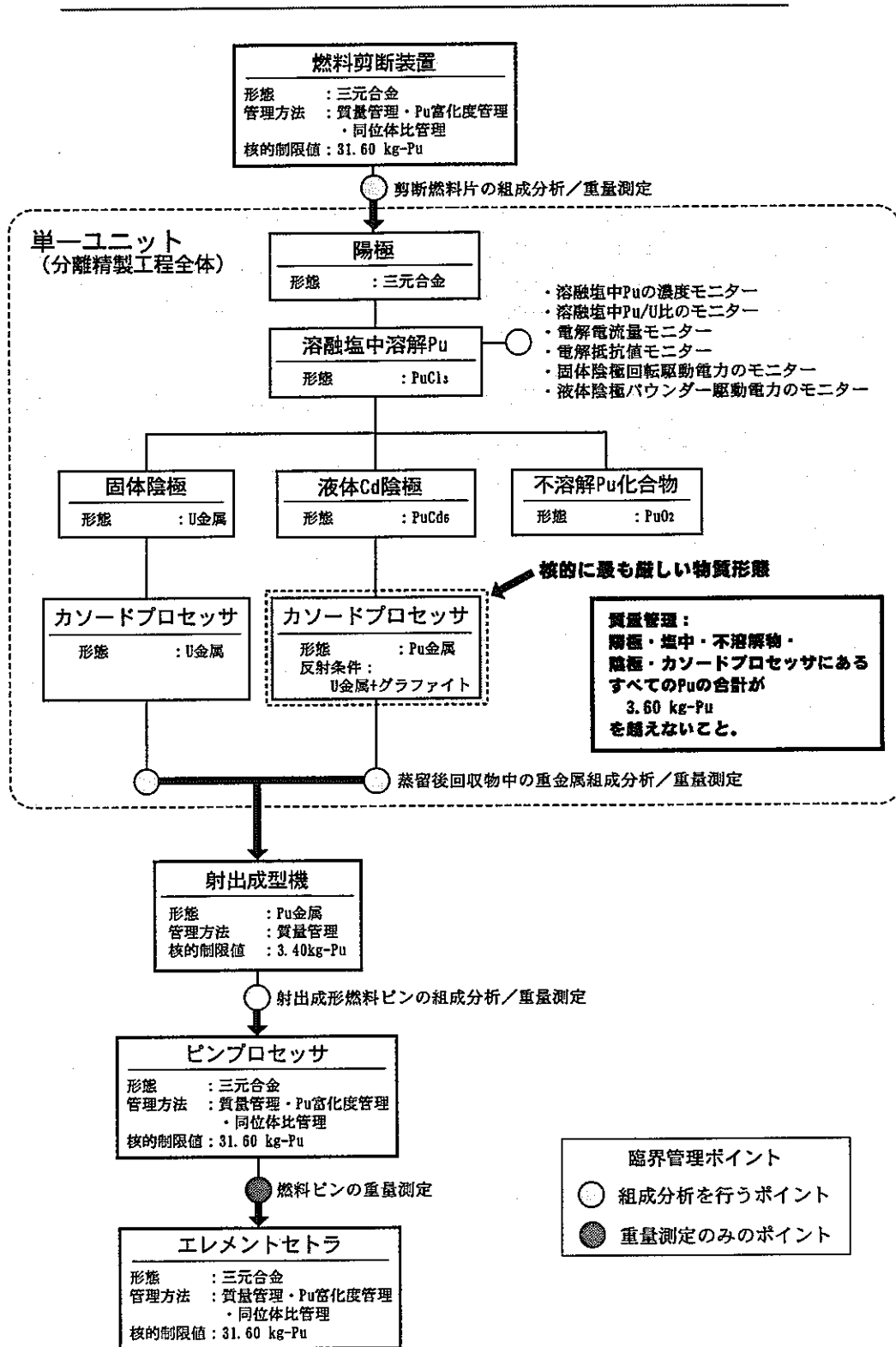


図 2-11 臨界管理上の課題が解決されていない場合の金属電解法の核的制限値

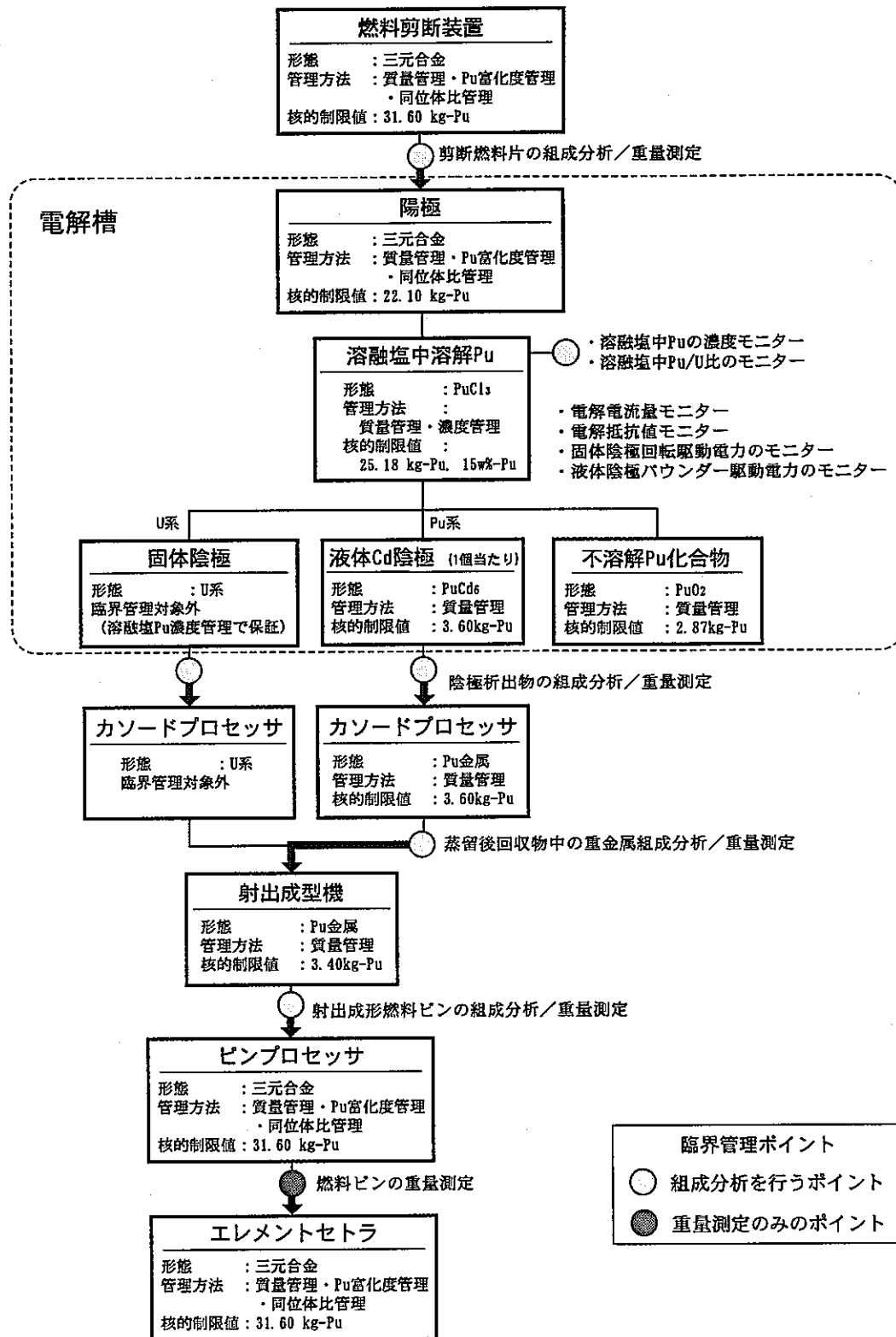


図 2-12 化学形態管理を適用した場合の金属電解法の核的制限値

表 2-1 金属電解法核的制限値の設定根拠と制限値緩和方策(1/3)

機器/プロセス	管理対象	臨界管理方法	最大許容値/核的制限値	モデル				
				項目	設定値	設定根拠	緩和方策	備考
燃料剪断機	機器内Pu	質量管理 同位体組成管理 Pu富化度管理	37.18 / 31.60 kg-Pu	形態	U-Pu-Zr三元合金	機器内で物質形態の変化無し	-	二重装荷を防止できる手段の適用を前提とする。
				密度	15.8 g/cm ³	燃料物性値より	-	
				形状	球	-	-	
				Pu組成	FBR燃料級組成	新燃料組成 Pu-238/239/240/241/242 = 3/53/25/12/7 wt% (機器内でPu組成の変化無し)	燃焼度クレジットの適用	
				Pu富化度	20 wt%	新燃料富化度 (機器内でPuの分離無し)	燃焼度クレジットの適用	
				反射条件	水20cm	機器等の反射体効果を考慮するため保守的に想定	詳細な機器設計に基づく現実的な反射条件の適用	
				核的相互作用	なし	-	-	
安全係数	0.85	二重装荷を考慮しない場合の一般的な値	-					
電解槽	陽極装荷Pu	質量管理 同位体組成管理 Pu富化度管理	26.00 / 22.10 kg-Pu	形態	U-Pu-Zr三元合金	装荷する物質の形態(陽極へのPu析出を想定せず)	-	二重装荷を防止できる手段の適用を前提とする。
				密度	15.8 g/cm ³	燃料物性値より	-	
				形状	球	-	-	
				Pu組成	FBR燃料級組成	新燃料組成 Pu-238/239/240/241/242 = 3/53/25/12/7 wt% (機器内でPu組成の変化無し)	燃焼度クレジットの適用	
				Pu富化度	20 wt%	新燃料組成	燃焼度クレジットの適用	
				反射条件	水20cm	機器等の反射体効果を考慮するため保守的に想定	詳細な機器設計に基づく現実的な反射条件の適用	
				核的相互作用	相互安全係数 0.7	電解槽内で共存する他の形態のPuとの相互作用を考慮	-	
	安全係数	0.85	二重装荷を考慮しない場合の一般的な値	-				
	溶融塩中溶解Pu	質量管理 濃度管理	29.63 / 25.18 kg-Pu 15 / 20 wt%	形態	PuCl ₃	Pu塩化物の析出結晶化を想定	-	二重装荷を防止できる手段の適用を前提とする。 溶融塩中のU/Pu比のリアルタイムの監視。(Pu濃度の監視と固体陰極へのPu析出の防止)
				密度	5.7 g/cm ³	理論密度	-	
				形状	球	-	-	
				Pu組成	Pu-239 : 100 wt%	照射済みブランケット燃料処理を考慮	炉心燃料とブランケット燃料の混合処理を行い、同位体組成管理を適用する。	
				Pu富化度	100 wt%	機器内でPuの分離可能性有り	-	
				反射条件	水20cm	機器等の反射体効果を考慮するため保守的に想定	詳細な機器設計に基づく現実的な反射条件の適用	
濃度設定(濃度管理)				20 wt%-PuCl ₃	プロセス上想定する最大HM濃度に+5%の裕度を設定。さらに全てのHMがPuと想定。	溶解している状態でのPuの臨界量は非常に大きいので、これ以上の濃度を設定することは可能。		
核的相互作用	相互安全係数 0.7	電解槽内で共存する他の形態のPuとの相互作用を考慮	-					
安全係数	0.85	二重装荷を考慮しない場合の一般的な値	-					

表 2-2 金属電解法核的制限値の設定根拠と制限値緩和方策(2/3)

機器/プロセス	管理対象	臨界管理方法	最大許容値/核的制限値	モデル				
				項目	設定値	設定根拠	緩和方策	備考
電解槽	不溶性Pu反応物 (ホールドアップ)	質量管理	6.69 / 2.87 kg-Pu	形態	PuO ₂	電解槽中で発生する不溶性Pu反応物をPuO ₂ と仮定し、その蓄積を想定	実際に発生する不溶性反応物の特性を調査	二重装荷を防止できる手段の適用を前提とする。 電解槽中に発生する不溶性Pu反応物の計量は、電解プロセスの入出量の収支から間接的に推定するため、多めの裕度を持たせている。
				密度	11.46 g/cm ³	理論密度	-	
				形状	球	-	-	
				Pu組成	Pu-239 : 100 wt%	照射済みブランケット燃料処理を考慮	炉心燃料とブランケット燃料の混合処理を行い、同位体組成管理を適用する。	
				Pu富化度	100 wt%	機器内でPuの分離可能性有り	-	
				反射条件	水20cm	機器等の反射体効果を考慮するため保守的に想定	詳細な機器設計に基づく現実的な反射条件の適用	
				核的相互作用	相互安全係数 0.7	電解槽内で共存する他の形態のPuとの相互作用を考慮	-	
	安全係数	0.43	二重装荷を考慮する場合の一般的な値。不溶性反応物の蓄積を探索するまでに時間がかかることを考慮し、十分な安全裕度を設定。	不溶性反応物を直接検知する手段の開発。不溶性反応物の発生メカニズムの解明と防止手段の適用。				
	固体陰極	管理対象外	-	形態	金属U	溶解液中のU/Pu比管理によりPuの析出は防止できると想定。 付着塩に含まれるPuは極微量。	-	
	液体陰極	質量管理	4.24 / 3.60 kg-Pu	形態	設定モデルはカソードプロセッサのモデルと同様 液体陰極析出物はPuCd6であり、カソードプロセッサで想定する金属Puに比較してその取扱制限量は大きい。核的相互作用に対する安全係数は考慮しなくても十分な安全裕度が見込める。			複数の陰極を同時に装荷、電解処理する場合には、Puが一つの陰極に集中析出しないような機構・防止策を設ける。
	密度							
	形状							
Pu組成								
Pu富化度								
反射条件								
核的相互作用								
安全係数								
カソードプロセッサ	機器内Pu	質量管理	4.24 / 3.60 kg-Pu	形態	金属Pu	液体陰極回収物 (PuCd6) の蒸留過程で単体の金属Puが発生する可能性。	-	二重装荷を防止する手段の適用を前提とする。
				密度	19.86 g/cm ³	理論密度	-	
				形状	球	-	-	
				Pu組成	Pu-239 : 100 wt%	照射済みブランケット燃料処理を考慮。	電解槽において炉心燃料とブランケット燃料の混合処理を行い、同位体組成管理を適用する。	
				Pu富化度	100 wt%	機器内でPuの分離可能性有り (UとPuの融点の違い)	-	
				反射条件	Puと同質量の金属U反射体+厚さ5cmのグラファイト反射体	共回収される金属Uとるつば材料であるグラファイトの反射体効果を考慮	詳細な機器設計に基づく現実的な反射条件の適用	
				核的相互作用	なし	-	-	
				安全係数	0.85	二重装荷を考慮しない場合の一般的な値	-	

表 2-3 金属電解法核的制限値の設定根拠と制限値緩和方策(3/3)

機器/プロセス	管理対象	臨界管理方法	最大許容値/核的制限値	モデル				
				項目	設定値	設定根拠	緩和方策	備考
射出成型機	機器内Pu	質量管理	4.00 / 3.40 kg-Pu	形態	金属Pu	カソードプロセッサから送られてくる原料として金属Puを想定	カソードプロセッサから送られてくる原料をU-Pu合金とし、その混合割合と均質性を保証する。	二重装荷を防止する手段の適用を前提とする。
				密度	19.86 g/cm ³	理論密度	—	
				形状	球	—	—	
				Pu組成	Pu-239 : 100 wt%	照射済みブランケット燃料処理を考慮	電解槽において炉心燃料とブランケット燃料の混合処理を行い、同位体組成管理を適用する。	
				Pu富化度	100 wt%	入量物質として単体の金属Puを想定	カソードプロセッサにおいてUと混合していることを保証し、Pu富化度管理を適用する。	
				反射条件	三元合金組成に則した重量の金属Uと金属Zrの反射体+厚さ5cmのグラフィイト反射体	混合する金属U、金属Zrとるつぼ材料であるグラフィイトの反射体効果を考慮	詳細な機器設計に基づく現実的な反射条件の適用。	
				核的相互作用	なし	—	—	
安全係数	0.85	二重装荷を考慮しない場合の一般的な値	—					
ピンプロセッサ	機器内Pu	質量管理 同位体組成管理 Pu富化度管理	37.18 / 31.60 kg-Pu	形態	U-Pu-Zr三元合金	射出成形処理に段階でPu富化度調整とZrとの混合が確実に行われている。	—	二重装荷を防止する手段の適用を前提とする。
				密度	15.8 g/cm ³	燃料物性値	—	
				形状	球	射出燃料ピンは非密封状態	—	
				Pu組成	FBR燃料級組成	新燃料組成 Pu-238/239/240/241/242 = 3/53/25/12/7 wt% (機器内でPu組成の変化無し)	—	
				Pu富化度	20 wt%	新燃料富化度 (前工程で調整済み)	—	
				反射条件	水20cm	機器等の反射体効果を考慮するため保守的に想定	詳細な機器設計に基づく現実的な反射条件の適用	
				核的相互作用	なし	—	—	
安全係数	0.85	二重装荷を考慮しない場合の一般的な値	—					
エレメントセトラ	機器内Pu	質量管理 同位体組成管理 Pu富化度管理	37.18 / 31.60 kg-Pu	形態	U-Pu-Zr三元合金	機器内部で物質形態の変化なし	—	二重装荷を防止する手段の適用を前提とする。
				密度	15.8 g/cm ³	理論密度	—	
				形状	球	射出燃料ピンは非密封状態	—	
				Pu組成	FBR燃料級組成	新燃料組成 Pu-238/239/240/241/242 = 3/53/25/12/7 wt% (機器内でPu組成の変化無し)	—	
				Pu富化度	20 wt%	新燃料富化度 (射出成形工程で調整済み)	—	
				反射条件	水20cm	機器等の反射体効果を考慮するため保守的に想定	詳細な機器設計に基づく現実的な反射条件の適用	
				核的相互作用	なし	—	—	
安全係数	0.85	二重装荷を考慮しない場合の一般的な値	—					

第3章 酸化物電解法の臨界安全設計

3-1 プロセス概要

酸化物電解法はロシアの原子炉科学研究所 (RIAR) にて開発されたものである (16)・(18)。酸化物電解法で処理される燃料は MOX 燃料である。ここでは MOX 燃料の富化度を 30wt% であると想定する。酸化物電解法は脱被覆装置、電解槽、析出物粉碎機、塩洗浄機、混合機、分級装置、振動充填装置、燃料ピン溶接機から構成される。

再処理の主工程である FP と重金属の分離は電解槽で行われる。脱被覆装置で粉体にされた燃料は電解槽に投入され電解槽底部に堆積する。そこに塩素を吹き込むことにより重金属元素は還元されて熔融塩中に溶解する。溶解した U 及び Pu は 4 価の金属イオンとして存在する。そこで固体陰極を挿入し、塩素ガスを吹き込みながら電解槽容器を陽極として電解することにより U が固体陰極に UO_2 として回収される。酸化還元電位の違いにより Pu^{4+} は析出しない。U 回収後に陰極を取り出し、浴塩に直接酸素ガスと塩素ガスを吹き込むことによって Pu が酸化され PuO_2 が沈殿する。金属電解法と異なり U と Pu は分離回収可能であるが、その形態は酸化物となる。また、金属電解法と異なりその分離プロセスでは塩素および酸素ガスの吹き込み量と分圧が制御因子となる。さらに熔融塩中の Pu は全て沈殿物として回収されるため、金属電解法のように熔融塩中に一定濃度の Pu が常に存在することはない。

固体陰極で得られる UO_2 は焼結体であるので粉碎器によって粉末状にする。電解操作によって得られた回収物には塩が付着しているのをこれを水洗する。その後乾燥させることにより UO_2 あるいは PuO_2 の粉体が製品として得られる。

得られた粉体は後段の振動充填のために粒径によっていくつかのグループに分けられ、混合処理により富化度を調整される。その後に振動充填処理が行われ、燃料ピンが製造される。

全工程を通じて、マテリアルハンドリングは遠隔による自動運転とし、十分な安全機構を取り入れたコンピューター制御による物質収支管理を行うので、原則として多重装荷は起こり得ないとする (あるいはそのように設計できるものと仮定する)。

3-2 単一ユニットと臨界管理手段の選定

金属電解法の場合と同様に臨界管理上の単一ユニットを規定する。基本的には各プロセス機器を一つの独立した単一ユニットとして扱うことが可能であるが、酸化物電解法でも電解槽において回収物の直接分析が可能かどうかの問題となる。UO₂電解時にPuが析出するには、塩中のPu⁴⁺イオンを一旦PuO₂²⁺へと酸化させなくてはならないため、塩中の酸素分圧を監視することによって電極へのPuO₂の析出を防止できる。これにより電解回収物については臨界管理対象から除外できる。一方、酸素吹き込みによって析出するPuO₂粉体は電解槽から回収した段階では塩等が付着しており、化学分析と計量によってPu量を計量するのは困難である。この問題は金属電解法における液体陰極回収物と同じであり、本検討では計量が困難な場合と、何らかの測定手段により回収物中のPuを直接計量できる手段があるものとした場合の両方を考慮する。前者の場合で質量管理が主である場合には単一ユニットは電解槽から塩除去装置までとなる。一方、後者の場合電解槽、析出物粉碎装置および塩除去装置のそれぞれが単一ユニットとして扱える。

臨界管理手段については、粉体化した燃料物質を扱う工程については現行の施設（ウラン加工施設や核燃料物質取り扱い施設等）では質量管理となっている。ただし、粉体は流動性があるため形状管理を適用できる可能性がある。熔融塩電解槽の大きさは溶解させる重金属とプロセスに適切な熔融塩濃度からその容積が決定される。そのためPuO₂固体の安全形状を満足できないので、質量管理とする。脱被覆装置と、電解槽で粉体の形で得られたPuO₂を処理する以降の工程（塩除去装置、分級装置、混合装置、振動充填装置）では粉体の流動性を利用して形状管理を適用できる可能性がある。

ただし、粉体を取り扱う機器が粉体の完全な閉じ込め機構を持たず、複雑な外部形状（ヒーターの電熱線、軸部、突起物等）をしている場合、それらへの粉体の付着、滞留が十分考えられるので、その外部最大寸法が形状管理の核的制限値（寸法）を越えてはならない。あるいはそれらへの付着を防止するための方策（粉体の進入を防止するためのカバーを設置する等）を立てなくてはならない。このような粉体に対して形状管理を適用できる機器設計の開発は今後の課題であろう。

本報告書では、電解析出物の即時の軽量ができず、主として質量管理を用いる場合と、電解析出物の即時の計量が可能で、粉体に対する形状管理が行えるとした場合の両ケースについて臨界安全設計を検討した。

3-3 各機器・プロセスの臨界安全設計

3-3.1 脱被覆装置の臨界安全設計

脱被覆装置は燃料棒内の MOX 燃料を粉体化して取り出す。この方法にはハンマー打撃による機械的方法と酸化膨脹による方法があるが、手段そのものは臨界安全設計に関係しない。粉体化するプロセスであるため工程内滞留物の発生量が多いと思われるので、形状管理を適用するのが妥当である。燃料形態は MOX であり、処理前は焼結体、処理後は粉体である。熱脱被覆を行う場合、燃料形態が高次の酸化物となるが、重金属密度は二酸化物の方が大きい。また、Pu 富化度および Pu 同位体組成として新燃料時の値を用いることによりどのような燃焼状態の燃料物質より保守的となる。

形状管理では機器内の燃料物質が入る部分に燃料物質が完全に充填されても未臨界を確保できるサイズで機器設計を行う。形状管理の場合の安全係数 0.85 を想定すると、無限円筒形状で最大許容限度は直径 18.96cm、核的制限値は 16.00cm となる。機器の長さが決定されればその長さにおける安全形状を解析することにより、実際の最大許容限度／核的制限値を設定できる。

質量管理を行う場合には、最大許容量は 39.74kg-Pu、安全係数として 0.85 を考えると核的制限値は 33.77kg-Pu となる。

3-3.2 電解槽の臨界安全設計

電解槽には脱被覆工程で顆粒化された MOX 燃料が投入される。投入される MOX 燃料の同位体組成と重量は脱被覆後の化学分析等により測定される。しかし、Pu 回収段階で PuO₂ が単独で結晶化、沈殿するため推定臨界下限値の基準は PuO₂ である。また、金属電解法と異なり Pu 回収工程で塩中の Pu は全て PuO₂ として沈殿回収されるため、電解槽中の Pu インベントリーの最大値は始めに投入された量と、前バッチで回収できなかった PuO₂ やその他の部分に付着している Pu の量（工程内滞留量）を合わせたものである。（沈殿した全ての Pu を確実に回収できるならば、前バッチの残留量は考えなくても良い。すなわちこの理想的な場合には「Pu バッチサイズ＝核的制限値」となる。）

単一ユニットを規定する場合には金属電解法の電解槽と同様の問題がある。すなわち、プロセス回収物中に PuO₂ がどれだけ存在するかを取り出した直後に計量できない。この場合、単一ユニットは電解槽から塩除去装置までとなる。

水全反射を想定した PuO₂ の推定臨界下限値は 9.56kg-Pu であるので、最大許容限度は 9.56kg-Pu、安全係数 0.85 を見込むと核的制限値は 8.12kg-Pu となる。

この場合、機器構造材等の反射条件を水全反射で代替しているが、電解槽はグラフィイト製であり厚さによっては水よりも厳しい反射体効果を与える可能性がある。そのため詳細な機器設計が得られれば現実的な反射体を考慮し、安全裕度を確保する必要がある。

1 バッチ当たりの処理量を設定する場合には、通常状態でどのくらいの工程内滞留物が発生するかを評価し、どのくらいまでの工程内滞留物を許容できるかを設定する必要がある。現実には工程内に滞留する Pu の量を常に 0 にすることは困難であるので、1 バッチ=核的制限値とはならない。また、滞留量を低減し、滞留量の異常を検知するため定期的なクリーンアップを行う必要がある。

なお本検討では FBR 燃料を想定しているので、受入時に U 富化度の確認をする以外、U については臨界安全設計上特に制限値を設ける必要はないものと考えられる。ただし、電極に Pu が析出することを防止するために電解槽中の酸素分圧、塩素分圧を監視し、異常を検知した場合には速やかに適切な操作を行う必要がある。

3-3.3 析出物粉碎装置の臨界安全設計

析出物破碎装置に送られてくる物質は原則として陰極析出物の UO_2 である。そのため、電解槽内で十分な酸素分圧管理が行われていれば PuO_2 が同伴することはなく、臨界管理対象外となる。析出物に付着する塩などに微量の Pu が含まれる可能性があるため、これらの蓄積を考えると定期的なクリーンアップ操作を行う必要がある。

3-3.4 塩除去装置の臨界安全設計

このプロセスでは水と PuO_2 粉体が混合されるため質量管理では最適減速条件を満足する 500g-Pu 程度が最大許容限度となってしまう。しかし、このプロセスでは PuO_2 は流動性のある粉体として得られるので形状管理を適用することが可能と考えられる（湿式法における脱硝工程と同様）。ただし、粉体は減速材中に均一に混ざり合うという保証はないため、非均質効果を考慮した安全形状とする必要がある。

無限体系を想定した場合、軸方向に長い容器を制作することにより理論上は取扱制限質量に上限はない。ただし、電解槽から回収したばかりの析出物中の核燃料物質の計量を行うことができなければ、塩除去装置は電解槽と同じ単一ユニットに属することになるので装置の大型化は意味がない。また、機器をコンパクト

に設計したい場合には円環形状で臨界解析を行うことにより、実際的な形状/サイズで設計可能である。

3-3.5 分級装置の臨界安全設計

洗浄された酸化物粉末は乾燥後にその粒径に応じていくつかのグループに分類される。分級時には PuO_2 を直接取り扱うのが PuO_2 粉末は十分流動性があると思われるので形状管理を適用する。無限円筒形状を想定すると、最大許容限度は直径 7cm、核的制限値は 6cm となる。

一方、質量管理を行う場合には、その最大許容限度は 9.56kg-Pu、二重装荷を防止するための十分な方策を適用すると仮定しているので安全係数としては 0.85 を適用し、核的制限値は 8.12kg-Pu となる。

3-3.6 混合装置の臨界安全設計

混合装置は回収された PuO_2 と UO_2 粉末を混合して所定の Pu 富化度の燃料原料とする装置である。払出時には均一な新燃料組成の MOX 粉末が得られるが、原料投入は PuO_2 と UO_2 が別々に投入されることになるため PuO_2 を基準とした臨界安全設計を行う必要がある。原料と製品は共に流動性のある顆粒であるので形状管理が適用できると考えられる。無限円筒形状では塩除去装置と同様に最大許容限度が直径 7cm、核的制限値が 6cm となる。無限平板形状を適用する場合には最大許容限度が平板厚さ 1.40cm となる。

また、前工程も形状管理を用いる場合には入量時の計量が不要となる。また、後工程の分級装置も形状管理であれば払出時にも計量する必要はない。さらに形状管理では機器内滞留量は臨界管理上の問題とはならない。

質量管理を適用する場合には PuO_2 の推定臨界下限値を基準とし、最大許容限度が 9.56kg-Pu、核的制限値が 8.12kg-Pu となる。また前述したように UO_2 の量は臨界管理対象にはならない。質量管理を行う場合には滞留量が問題となるため、出入りする Pu 量の計量が必要となる。

3-3.7 振動充填装置の臨界安全設計

振動充填装置は粒径によってグループ分けされた MOX 粉末を所定の割合で燃料棒に加震充填する装置である。取り扱う燃料物質は MOX 燃料であり Pu 富化度管理と同位体組成管理が適用できる。また、機器全体が密封性のあるもので燃料

粒子が外部に逃げ出さないような構造になっていれば形状管理が適用できる。この場合、分級装置と同様に最大許容限度は円筒直径 18.96cm、核的制限値は 16cm である。

質量管理を行う場合は最大許容限度が 39.74kg-Pu、安全係数が 0.85 で、核的制限値が 33.77kg-Pu となる。

3-4 酸化物電解法の臨界安全性評価

以上で設定した最大許容限度がどの程度の安全裕度を持っているかを、いくつかのモデルで検証した。

電解槽において機器等の与える反射体効果を 20cm 厚さの水反射体で代替したが、電解槽の材料であるグラファイトは十分な厚みがある場合水反射体よりも大きな反射体効果をもたらす。そこで、設定した最大許容限度において水反射体の代わりに厚さ 5cm のグラファイト反射体を想定して臨界解析を行った(図 3-1)。その結果、 PuO_2 の最大許容限度 9.56kg-Pu の中性子実効増倍率(標準誤差の 3 倍を含む)は 0.9200 となり、0.95 を下回ることがわかった。

また、セル構造材であるコンクリートの与える反射体効果を調べるためにコンクリート全反射に相当する 40cm 厚さのコンクリート反射体を想定した場合の解析も行った。その結果、中性子実効増倍率は 0.9580 となり推定未臨界の基準である 0.95 をわずかに超過することがわかった。これらのことから、厚さ 5cm 以下のグラファイト製電解槽は設定した最大許容限度において臨界安全性を確保できるが、電解槽をコンクリート構造物内に埋め込む場合は最大許容限度の再評価を行う必要がある(表 1-2)。

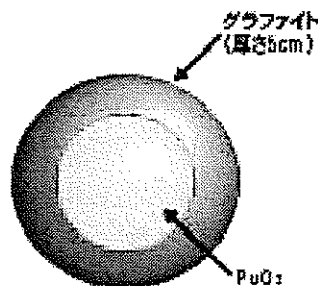


図 3-1 グラファイト反射体とした場合の臨界解析モデル

3-5 核的制限値の緩和方策

今回の検討で設定した最大許容限度および核的制限値について、より詳細なモデル化や管理手段を適用することによってより合理的な裕度をもたせるように再評価できるものがある。

まず始めに反射条件の設定について考える。全体的に反射条件を水全反射を想定したが、実際の機器設計情報（構造材の材質、厚さ、サイズ等）を用いることにより実際的な反射条件に改めることが可能となる。一般的に水全反射の想定は反射体異常に対する裕度も含んでいるので、実際の反射条件を課すことにより核的制限値は増加する可能性が高い。表 1-1 には反射体を想定しない場合の推定臨界下限値も記載されているので、反射条件の緩和により最大どのぐらいまでの核的制限値の緩和が見込めるかを推測することができる。

次に Pu の同位体組成である。特に電解槽以降では Pu 同位体組成として核分裂性核種の Pu-239 が 100wt%としたが、これは照射済みブランケット燃料を単独で処理する場合を考慮したためである。照射済みブランケットの Pu 同位体組成は Pu-239 が～95wt%ほどであるのが一般的なので、ブランケット燃料の単独処理が行われる場合には緩和裕度はない。また、この場合には炉心燃料とブランケット燃料の混合処理を前提とした場合に、ブランケット燃料のみの連続誤装荷が生じた場合も包含できる。しかし、運転管理により炉心燃料とブランケット燃料の混合処理が確実に行われることが保証できるならば、Pu 同位体組成を緩和することが可能である。ただし、この場合には十分な裕度が得られる Pu 同位体組成の上限值（同位体組成管理の最大許容限度）を設定する必要がある。同位体組成管理を確実に行うには脱被覆後に得られる粉体の状態で炉心燃料とブランケット燃料を混合調整するプロセスを付加する。この場合、主工程以後で Pu 同位体組成管理を容易に実現できる。

また、分級工程を富化度調整以後に移すことによって分級工程の臨界安全設計に Pu 富化度管理および Pu 同位体組成管理を適用できるようになる。

さらに、塩除去工程で水を使用しない方法を用いれば、工程内から減速材を排除できるので臨界安全管理上の不確定性を少なくできる。

また、受入燃料について燃焼度クレジットを適用することにより脱被覆工程では FP による核的反応度の低下を考慮した核的制限値の設計を行うことができる。

3-6 課題

本検討で示した形状管理の寸法は基本単純形状のものであり、実際の機器形状

を基にしたものではない。そのため、機器の詳細設計の段階でその形状に応じた核的制限値（最大寸法）を求める必要がある。

また、平滑な外表面を持たない機器で粉体の完全な閉じ込めが期待できない場合、内部の寸法を形状管理するだけでは不十分で、外部の凹凸部分に粉体が付着沈滞した場合でも未臨界となるように設計しなくてはならない。平滑な外表面を持たないとは、機器外部に突起物、くぼみあるいは他の補助機器が付帯している場合で、凹凸部や隙間に飛散・噴霧した粉体が進入し堆積を起こす可能性がある。もし、この場合で本来粉体が入る機器内部だけを対象として安全形状寸法とすると、外表面に堆積した粉体との核的相互作用により臨界となる可能性がある。このような事態を避けるために、

- ・ 機器外形最大寸法を臨界制限値以下とするような設計
- ・ 粉体を機器内に完全に閉じ込めたまま移送等の操作が行える設計

などの対策が必要となる。もし、機器の機能上これらの対策が施せない場合には形状管理ではなく質量管理に変更する必要がある。さらに、形状管理の寸法を機器外面にするか、内側で取るかで検査の難易度が大きく変わるので注意する必要がある。

また、電解析出物の計量の問題がある。ただし、後工程において形状管理が適用できるならば金属電解法ほど深刻ではない。しかし、払い出した量が確定するまで次のバッチの電解処理が行えないのは同様で、プロセス効率に与える影響は大きい。

最後に二重装荷の問題がある。これには金属電解法と同様、コンピュータ制御を介した遠隔操作によって操作員が直接操作できる環境を排除し、徹底した在庫管理を行うことで回避できるものと考えられる。その他の課題としては厳格な物質収支管理と工程内滞留物量の正確な計量、および電解操作時の酸素分圧の制御などがある。

3-7 酸化物電解法の臨界管理設計まとめ

電解析出物の即時の軽量ができず、主として質量管理を用いる場合と、電解析出物の即時の計量が可能で、粉体に対する形状管理が行えるとした場合の単一ユニットと核的制限値を図 3-2、図 3-3 にそれぞれまとめる。また、その設定根拠と核的制限値の緩和方策を表 3-1 にまとめる。

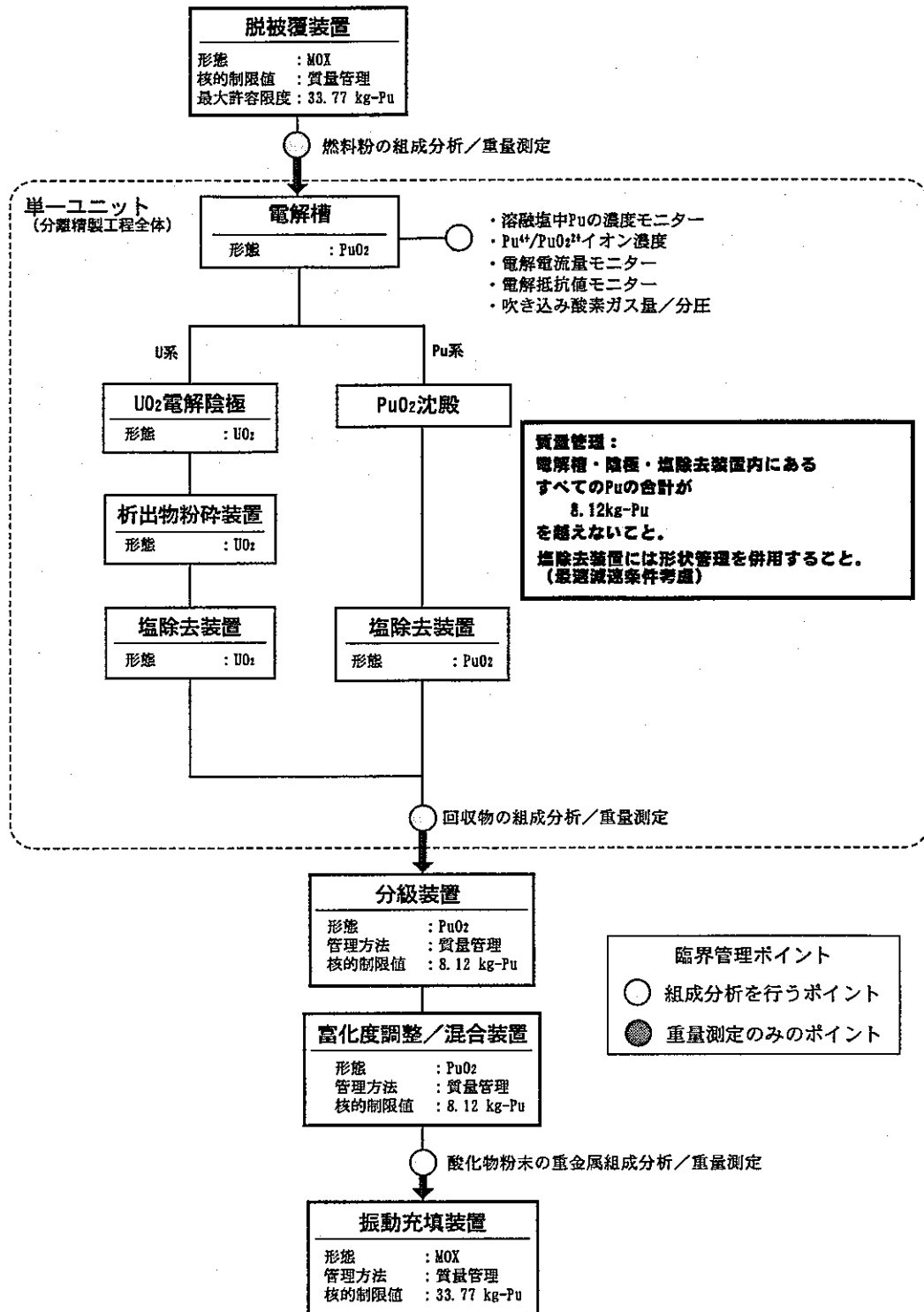


図 3-2 質量管理を主とした場合の酸化物電解法の核的制限値

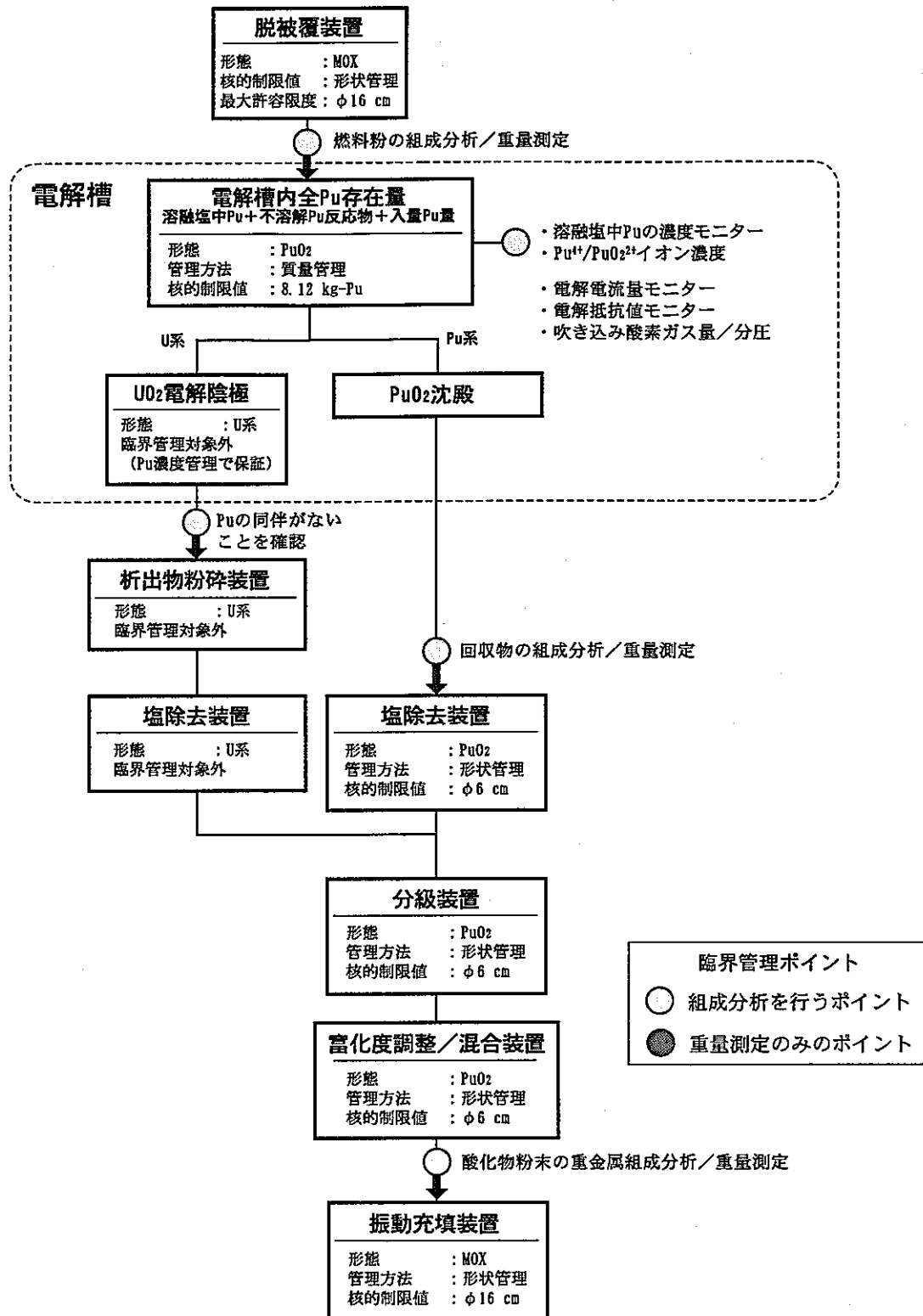


図 3-3 形状管理を主とした場合の酸化物電解法の核的制限値

表 3-1 酸化物電解法核的制限値の設定根拠と制限値緩和方策(1/2)

機器/プロセス	管理対象	臨界管理方法	最大許容値/核的制限値	モデル				
				項目	設定値	設定根拠	緩和方策	備考
脱被覆装置	機器形状 (機器内部最大直径)	形状管理 同位体組成管理 Pu富化度管理	18.96 / 16.00 cm	形態	MOX	機器内で取り扱う形態のうち、最も重金属密度の高い形態	-	質量管理を適用する場合： 最大許容量/核的制限値= 39.74/33.77 kg-Pu (二重装荷を防止できる手段の適用を前提とする。)
				密度	11.46 g/cm ³	理論密度	-	
				形状	無限円筒	-	詳細な機器設計に基づく現実的な形状/サイズの適用 (高さ・幅等の制限)	
				Pu組成	FBR燃料級組成	新燃料組成 Pu-238/239/240/241/242 = 3/53/25/12/7 wt% (機器内でPu組成の変化無し)	燃焼度クレジットの適用	
				Pu富化度	30 wt%	新燃料富化度 (機器内でPu富化度の変化無し)	燃焼度クレジットの適用	
				反射条件	水20cm	機器等の反射体効果を考慮するために保守的に想定	詳細な機器設計に基づく現実的な反射条件の適用	
				核的相互作用	なし	-	-	
安全係数	0.85	形状管理を行う場合の一般的な値	-					
電解槽	機器内Pu	質量管理	9.56 / 8.12 kg-Pu	形態	PuO ₂	機器内で取り扱う形態のうち、最も重金属密度の高い形態	-	二重装荷を防止できる手段の適用を前提とする。
				密度	11.46 g/cm ³	理論密度	-	
				形状	球	-	-	
				Pu組成	Pu-239 : 100 wt%	照射済みブランケット燃料処理を考慮	炉心燃料とブランケット燃料の混合処理を行い、同位体組成管理を適用する。	
				Pu富化度	100 wt%	機器内でPu分離操作有り	-	
				反射条件	水20cm	機器等の反射体効果を考慮するために保守的に想定	詳細な機器設計に基づく現実的な反射条件の適用	
				核的相互作用	なし	-	-	
安全係数	0.85	形状管理を行う場合の一般的な値	-					
塩除去装置	機器形状 (機器内部最大直径)	形状管理	7.08 / 6.00 cm	形態	PuO ₂	-	-	水使用を考慮した値 (形状管理)。 質量管理を適用する場合： 最大許容量/核的制限値= 9.56/8.12 kg-Pu (二重装荷を防止できる手段の適用を前提とする。)
				密度	11.46 g/cm ³	理論密度	-	
				形状	無限円筒	-	詳細な機器設計に基づく現実的な形状/サイズの適用 (高さ・幅等の制限)	
				Pu組成	Pu-239 : 100 wt%	照射済みブランケット燃料処理を考慮	炉心燃料とブランケット燃料の混合処理を行い、同位体組成管理を適用する。	
				Pu富化度	100 wt%	機器内でPu分離操作有り	-	
				反射条件	水20cm	機器等の反射体効果を考慮するために保守的に想定	詳細な機器設計に基づく現実的な反射条件の適用	
				核的相互作用	なし	-	-	
安全係数	0.85	形状管理を行う場合の一般的な値	-					

表 3-2 酸化物電解法核的制限値の設定根拠と制限値緩和方策(2/2)

機器/プロセス	管理対象	臨界管理方法	最大許容量/核的制限値	モデル				
				項目	設定値	設定根拠	緩和方策	備考
分級装置	機器形状 (機器内部最大直径)	形状管理	7.08 / 6.00 cm	形態	PuO ₂	-	-	質量管理を適用する場合： 最大許容量/核的制限値=9.56/8.12 kg-Pu (二重装荷を防止できる手段の適用を前提とする。)
				密度	11.46 g/cm ³	理論密度	-	
				形状	無限円筒	-	詳細な機器設計に基づく現実的な形状/サイズの適用 (高さ・幅等の制限)	
				Pu組成	Pu-239 : 100 wt%	照射済みブランケット燃料処理を考慮	炉心燃料とブランケット燃料の混合処理を行い、同位体組成管理を適用する。	
				Pu富化度	100 wt%	機器内でPu分離操作有り	-	
				反射条件	水20cm	機器等の反射体効果を考慮するために保守的に想定	詳細な機器設計に基づく現実的な反射条件の適用	
				核的相互作用	なし	-	-	
				安全係数	0.85	形状管理を行う場合の一般的な値	-	
富化度調整/混合装置	機器形状 (機器内部最大直径)	形状管理	7.08 / 6.00 cm	形態	PuO ₂	入替する時 (混合処理前) にはPuO ₂ とUO ₂ が別々。	-	質量管理を適用する場合： 最大許容量/核的制限値=9.56/8.12 kg-Pu (二重装荷を防止できる手段の適用を前提とする。) ※この値を適用する前に、UO ₂ の反射体効果を確認する必要がある。
				密度	11.46 g/cm ³	理論密度	?	
				形状	無限円筒	-	詳細な機器設計に基づく現実的な形状/サイズの適用 (高さ・幅等の制限)	
				Pu組成	Pu-239 : 100 wt%	照射済みブランケット燃料処理を考慮	炉心燃料とブランケット燃料の混合処理を行い、同位体組成管理を適用する。	
				Pu富化度	100 wt%	機器内でPu分離操作有り	-	
				反射条件	水20cm	機器等の反射体効果を考慮するために保守的に想定	詳細な機器設計に基づく現実的な反射条件の適用	
				核的相互作用	なし	-	-	
				安全係数	0.85	形状管理を行う場合の一般的な値	-	
振動充填装置	機器形状 (機器内部最大直径)	形状管理 同位体組成管理 Pu富化度管理	18.96 / 16.00 cm	形態	MOX	機器内で物質形態の変化無し	-	質量管理を適用する場合： 最大許容量/核的制限値=39.74/33.77 kg-Pu (二重装荷を防止できる手段の適用を前提とする。)
				密度	11.46 g/cm ³	理論密度	-	
				形状	無限円筒	-	詳細な機器設計に基づく現実的な形状/サイズの適用 (高さ・幅等の制限)	
				Pu組成	FBR燃料芯組成	新燃料組成 Pu-238/239/240/241/242 = 3/53/25/12/7 wt% (機器内でPu組成の変化無し)	-	
				Pu富化度	30 wt%	新燃料富化度 (機器内でPu富化度の変化無し)	-	
				反射条件	水20cm	機器等の反射体効果を考慮するために保守的に想定	詳細な機器設計に基づく現実的な反射条件の適用	
				核的相互作用	なし	-	-	
				安全係数	0.85	形状管理を行う場合の一般的な値	-	

第4章 フッ化物揮発法の臨界安全設計

4-1 プロセス概要

フッ化物揮発法は米国、仏国、旧ソ連、日本原子力研究所等で研究開発された再処理方法である^{(19)・(20)}。ここでは米国 ANL が設計したプラントを基にその臨界安全設計を行った、フッ化物揮発法で再処理される燃料は酸化物燃料である。脱被覆処理によって粉体化された酸化物燃料はフッ化塔に送られ、フッ素ガスと反応しフッ化物となる。その際にフッ化物の揮発性によって重金属元素と FP 元素が分離される。さらに U と Pu のフッ化物の揮発性の違いを利用して U と Pu を分離回収する。フッ化と揮発の制御は温度とフッ素ガス濃度で調整する。フッ化塔には流動床方式とフレーム炉方式がある。流動床方式はアルミナ流動床中で酸化物燃料とフッ素ガスを徐々に反応させる方式のもので、装置形状は平板である。フレーム炉方式は高温フレーム内へ酸化物燃料の粉体を落下させ、フレーム内部を通過する間に瞬間的にフッ化を行う方式である。フッ化揮発反応はまず U から始められ、全ての U がフッ化揮発した後 Pu のフッ化を始める。流動床方式では未反応の物質は流動床内に残存する。フレーム炉方式では未反応の物質はフレームを通り抜け装置底部に堆積する。フッ化された重金属元素のガスはトラップ(吸着塔)やフィルタを通して不純物(同時にフッ化揮発した FP 元素)が取り除かれ、凝縮・揮発器によって固化させてフッ素ガスと分離する。凝縮・揮発器は冷却器と加熱器の両方の機能を持ち、冷却によってフッ化ガスを固化し、加熱器によって再び気化させることができる。別々に分離回収された U と Pu は凝縮器でサンプリングされ、組成分析が行われた後再び気化されてガスブレンダに送られる。ガスブレンダでは気体の U および Pu のフッ化ガスを混合し、指定の Pu 富化度に調整する。混合処理の後、混合フッ化ガスは酸化物転換装置にて水素・水蒸気と高温加水分解反応を起こさせて酸化物粉末にされる。得られた酸化物粉末は分級装置によってその粒径によりいくつかのグループに分別され、振動充填装置において燃料ピンに充填される。

フッ化塔から酸化物転換装置まではパイプラインによって接続され移送経路は連続している。ただし、各プロセスでの処理はバッチ式であり機器間の移送もバッチ式で行われる。系統内でのフッ化ガスの固化を防止するため、加熱器および断熱材が設置されている。また、フッ化による反応物は UF_6 、 PuF_6 の 6 フッ化物であるが、高温・高放射線環境下ではより安定な 4 フッ化物に変化する傾向がある。4 フッ化物は昇華点が高いため配管や機器内壁に付着して工程内滞留物の原因となる。

酸化物転換装置ではフッ化ガスに水素ガスと水蒸気を吹き込み、高温で加水分解反応を起こすことにより酸化物へと転換する。生成する酸化物は粒子状である。

4-2 単一ユニットと臨界管理手段の選定

フッ化物揮発法で用いられる主要な機器として、脱被覆装置、フッ化塔、トラップ/フィルタ類、凝縮・揮発器、ガスブレンダ、酸化物転換装置、分級装置、振動充填装置が上げられる。

フッ化塔から酸化物転換装置まではパイプラインによって連続的に接続されており、燃料形態は気体の PuF_6 である。通常気体であるから形状管理が適用できる。上で述べたように PuF_6 は熱分解などで固体の PuF_4 に変化する可能性があり、形状管理の対象は重金属密度の高い PuF_4 の固体を基準とする。

脱被覆装置、酸化物転換装置、分級装置、振動充填装置で取り扱うのは粉体状の燃料であるから、現行の方法では質量管理となるが、酸化物電解法と同様に形状管理を適用できる可能性がある。本報告書では質量管理を用いた場合と、形状管理を用いた場合の二つのケースにおける臨界安全設計を検討した。

全ての工程機器を形状管理とした場合、個々の機器を独立した単一ユニットと見なせる。また、工程内滞留物の発生は臨界安全上の問題とはならない。ただし、配管等との核的相互作用を考慮する必要がある。

4-3 各機器・プロセスの臨界安全設計

4-3.1 脱被覆装置の臨界安全設計

脱被覆装置は酸化物電解法と同様であり、形状管理では機器内の燃料物質が入る部分に燃料物質が完全に充填されても未臨界となるようなサイズで機器設計を行う。無限円筒形状、形状管理の場合の安全係数 0.85 を想定すると、最大許容限度は直径 18.96cm、核的制限値は 16.00cm となる。機器の長さが決定されればその長さにおける安全形状を解析することにより、実的な最大許容限度/核的制限値を設定できる。

脱被覆装置が形状管理であり、次工程のフッ化塔も Pu 富化度 100wt% を想定した形状管理であるため、フッ化塔に払い出す際の計量および組成分析は臨界安全上必要とはされない。

また、質量管理とした場合、最大許容量は 39.74kg-Pu、核的制限値は 33.77kg-Pu

となる。

4-3.2 フッ化塔の臨界安全設計

フッ化塔には脱被覆後の MOX 粉体が投入される。2 段階のフッ化操作によって始めに U がフッ化揮発し、次に Pu をフッ化揮発する。U フッ化後は PuO_2 が単独で存在する。 PuO_2 と PuF_4 では PuO_2 のほうが重金属密度が高いため最大許容限度・核的制限値の設定には PuO_2 を想定する。流動床方式では容器形状は平板形状であるので、 PuO_2 の無限平板形状における推定臨界下限、すなわち厚さ 1.40cm が最大許容限度となる。形状管理を適用する際の安全係数 0.85 を用いて核的制限値は 1.19cm となる。フッ化塔には容器構造材、加熱器、断熱材などの装置が取り付けられているためこれらの反射体効果を厚さ 20cm の水反射体で代替した。

ここでは無限平板形状としたが、実際の機器の高さおよび幅が確定すればそれに対する平板厚さを求めることによって現実的な核的制限値を設定することが可能となる。

4-3.3 フィルタ/トラップ類の臨界安全設計

フッ化塔でフッ化され気化した燃料物質は配管を通して移送される。フッ化直後には不純物が混在しているためフィルタやトラップを設置してガスの精製を行う。配管でつながれている場合、容器間の圧力差やバルブ故障などによって燃料物質の予想外の移送が発生する可能性が考えられるため、湿式法と同様にこれらを考慮した臨界安全設計を行う必要がある。そこで、フッ化塔直後のフィルタあるいはトラップ装置に PuO_2 が誤移送された場合でも臨界安全性を確保できるような形状管理を行う。装置形状を無限円筒とすると、 PuO_2 を基準とした最大許容限度は円筒直径 7.08cm、安全係数 0.85 を考慮して核的制限値を 6.00cm とする。

この装置によって PuO_2 がこれ以降の工程に誤移送されることを防止できるならば、以降の工程では PuF_4 を基準とした臨界設計を行うことができる。

4-3.4 凝縮・揮発器の臨界安全設計

凝縮・揮発器では気体の燃料物質を冷却し固化する。プロセス上は PuF_6 を想定するが前述のように PuF_6 は放射線や熱によって PuF_4 へと変化するため、臨界設計は PuF_4 を基準として行う。装置形状を無限円筒とすると、 PuF_4 の推定臨界下限値は直径 10.82cm である。これより、最大許容限度は直径 10.82cm、安全係数 0.85 を考慮して核的制限値を 9.19cm とする。

4-3.5 ガスブレンダの臨界安全設計

ガスブレンダでは分離回収した UF_6 と PuF_6 のガスを混合し、指定の Pu 富化度の混合フッ化ガスとする。 UF_6 ガスの移送失敗を考慮すると PuF_4 を基準とした臨界設計を行う必要がある。装置形状を無限円筒と仮定すると、凝縮・揮発器と同様に最大許容限度は 10.82cm、核的制限値は 9.19cm である。

ガスブレンダにおいて指定 Pu 富化度への混合が確実に行われたことを確認すれば、これ以降の装置では Pu 富化度管理および同位体組成管理を適用することが可能となる。

4-3.6 酸化物転換装置の臨界安全設計

酸化物転換装置では混合処理されたフッ化ガスを水素・水蒸気と高温で反応させ、高温加水分解により酸化物に転換する。この装置内で形成される可能性のある燃料形態は混合フッ化ガス、 PuF_4 、MOX である。最も厳しい仮定をするならば、混合フッ化ガスのうち PuF_6 が分解によって PuF_4 の固体としてガスから分離し、その後高温加水分解を行えば単独で PuO_2 が生成する。このような想定を考慮すれば、密度の高い PuO_2 を基準にその核的制限値を設定する必要がある。

さらに、高温加水分解反応を起こすために水素ガスと水蒸気を用いるが、これらによる減速効果が考えられる。水蒸気の供給量等を制限することも考えられるが、保守的には水- PuO_2 系における非均質減速効果を考慮した安全形状とする。

4-3.7 分級装置の臨界安全設計

酸化物転換によって得られた酸化物の粉体はその粒径によっていくつかのグループに分類される。ガスブレンダにおいて Pu 富化度の調整と確認が行われているので、Pu 富化度管理と同位体組成管理を適用し、燃料形態として新燃料組成の MOX 燃料を基準とする。装置を円筒形状で作るとすれば、最大許容限度は直径 18.96cm、安全係数 0.85 を考慮して核的制限値は 16cm である。

質量管理であれば、最大許容量は 39.74kg-Pu、核的制限値 33.77kg-Pu となる。

4-3.8 振動充填装置の臨界安全設計

振動充填装置については酸化物電解法のそれと同じで、形状管理を行う場合の

機器寸法最大許容限度は円筒直径 18.96cm、核的制限値は 16cm である。

また、質量管理を行う場合は最大許容限度が 39.74kg-Pu、核的制限値が 33.77kg-Pu となる。

4-3.9 その他の機器の臨界安全設計

フッ化物揮発法では配管による接続とフッ素ガスの回収・排気があるので、 PuF_6 ガスがこれら主工程以外の経路に流入し蓄積する可能性がある。そのため、これら主工程以外の経路についても臨界安全設計を行う必要がある。バッファリングが行える場合にはバッファ装置を臨界安全形状にし、そこで一旦蓄積させた物質の組成を分析し Pu の混入がないことを確認してから以降の装置に移送する。このようにすれば以降の工程は臨界安全対象から除外できる。またバッファを二重化することによってそれ以降の工程で連続移送ができる。しかし、バッファリングを行わず、連続的に物質を移送する場合には全ての工程機器を臨界安全設計の対象とし、万一 PuF_6 ガスの流入が起きた場合にはそれを直ちに検知して速やかに流入を遮断するための安全装置を設置する必要がある。

4-4 核的制限値の緩和方策

今回の検討で設定した最大許容限度および核的制限値について、より詳細なモデル化や管理手段を適用することによってより合理的な裕度をもたすように再評価できるものがある。

まず始めに反射条件の設定について考える。全体的に反射条件を水全反射を想定したが、実際の機器設計情報（構造材の材質、厚さ、サイズ等）を用いることにより実際の反射条件に改めることが可能となる。一般的に水全反射の想定は反射体異常に対する裕度も含んでいるので、実際の反射条件を課すことにより核的制限値は増加する可能性が高い。表 1-1 には反射体を想定しない場合の推定臨界下限値も記載されているので、反射条件の緩和によってどの程度核的制限値を緩和できるかが推測できる。ただし、フッ化物揮発法では機器間を結ぶ配管の与える核的相互作用を考慮する必要がある。

次に Pu の同位体組成である。特にフッ化塔以降では Pu 同位体組成として核分裂性核種の Pu-239 が 100wt%としたが、これは照射済みブランケット燃料を単独で処理する場合を考慮したためである。照射済みブランケットの Pu 同位体組成は Pu-239 が～95wt%ほどであるのが一般的なもので、ブランケット燃料の単独処理が行われる場合には緩和裕度はない。また、この場合には炉心燃料とブランケット

燃料の混合処理を前提とした場合に、ブランケット燃料のみの連続誤装荷が生じた場合も包含できる。しかし、運転管理により炉心燃料とブランケット燃料の混合処理が確実に行われることが保証できるならば、Pu 同位体組成を緩和することが可能である。ただし、この場合には十分な裕度が得られる Pu 同位体組成の上限値（同位体組成管理の最大許容限度）を設定する必要がある。同位体組成管理を確実に行うには脱被覆後に得られる粉体の状態で炉心燃料とブランケット燃料を混合調整するプロセスを付加するのがよい。そうすれば主工程以後で Pu 同位体組成管理を容易に実現できる。

本検討において形状管理の機器形状として無限円柱形状および無限平板形状を仮定したが、実際の機器サイズが決定すればその円柱長さあるいは平板長さで推定臨界下限値を求めればよい。この機器サイズは運転上の問題や機器製作上の制約に依存するため、まずそれらの諸条件を明らかにして工学的に最も妥当な機器サイズを設計する必要がある。

また、受入燃料について燃焼度クレジットを適用することにより脱被覆工程では FP による核的反応度の低下を考慮した核的制限値の設計を行うことができる。

4-5 課題

フッ化物揮発法では全機器を形状管理にすることが可能となる。パイプラインで結ばれた機器については、通常運転時に機器外へのガスおよび粉体の漏洩は考えなくてもよいが、脱被服工程および分級工程以降の工程では粉体を機器内に完全に閉じ込めるように機器設計を行う必要がある。そのため酸化物電解法と同様に、粉体の機器外表面への付着堆積を十分考慮した設計を行う必要がある。

また、フッ化物揮発法の特徴である配管接続の部分において PuF_6 ガスが予想外の系統にリークするのを想定し、排気系などの主要系統以外に対しても臨界設計を行う必要がある。また、機器外に漏れた場合に発生する事象を検討しなくてはならない。

4-6 フッ化物揮発法の臨界管理設計まとめ

質量管理を主とした場合と形状管理を主とした場合の単一ユニットと核的制限値をそれぞれ図 4-2 にまとめる。また、その設定根拠と核的制限値の緩和方策を表 4-1～表 4-3 にまとめる

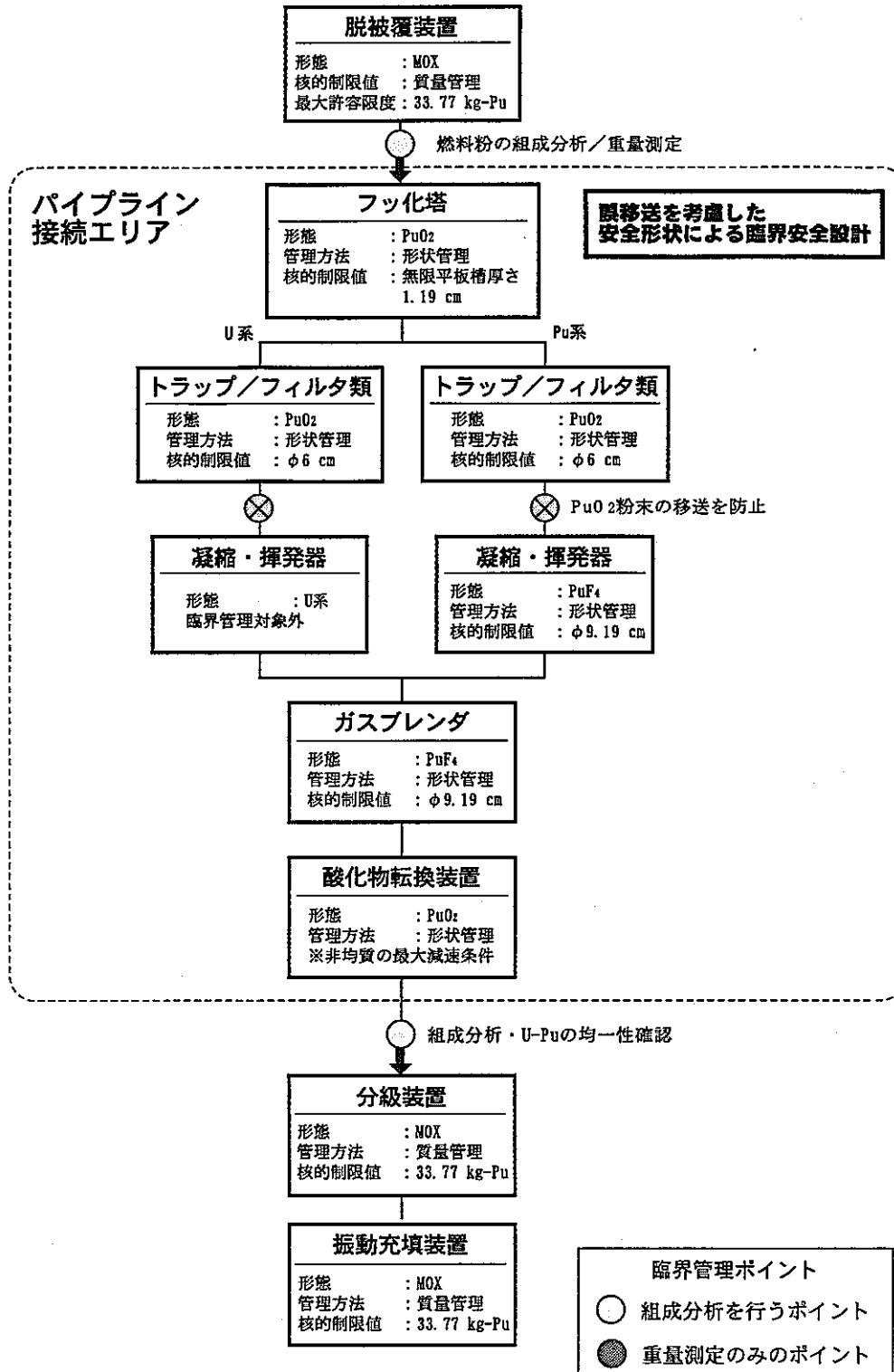


図 4-1 質量管理を主とした場合のフッ化物揮発法の核的制限値

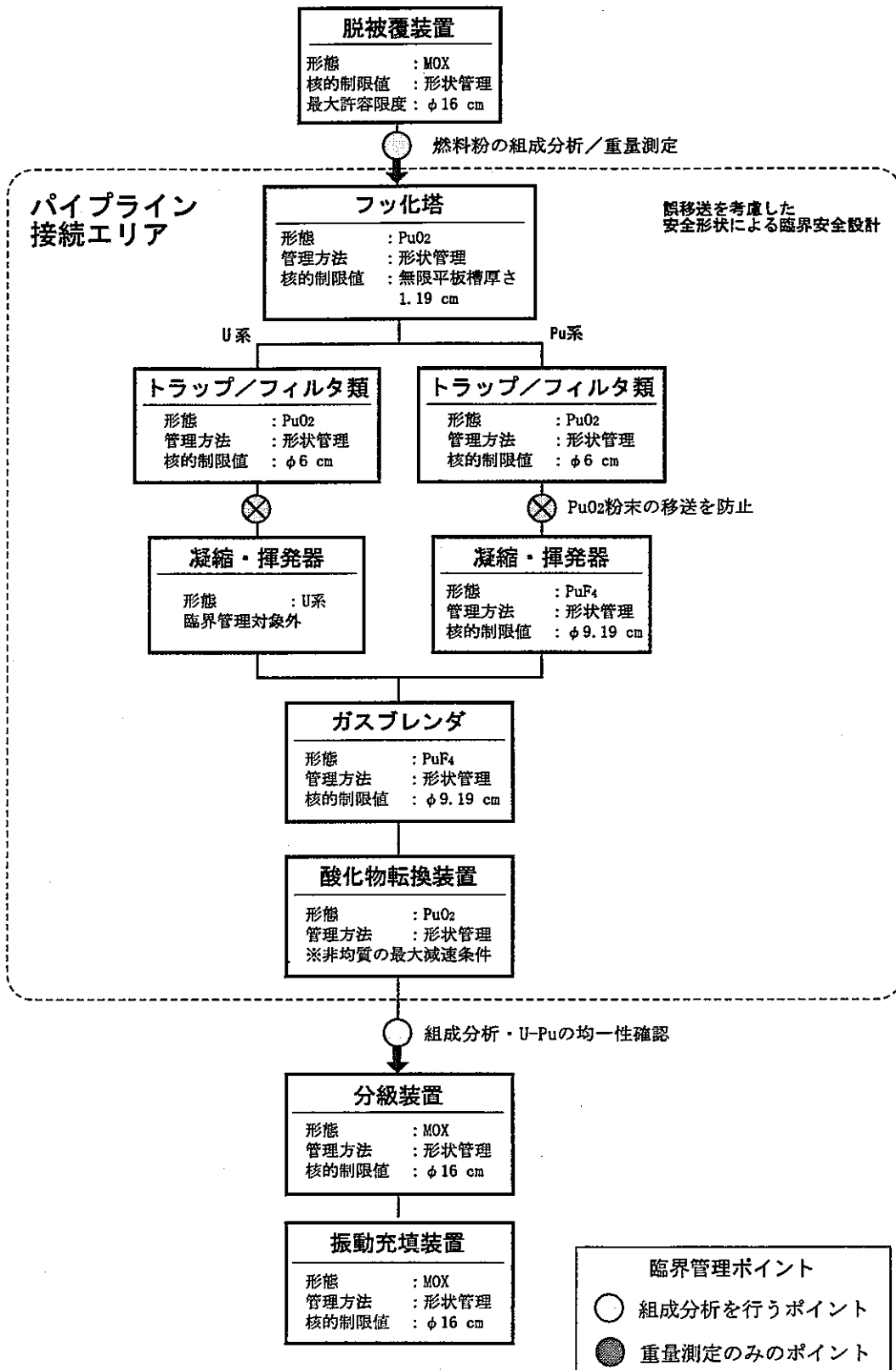


図 4-2 形状管理を主とした場合のフッ化物揮発法の核的制限値

表 4-1 フッ化物揮発法核的制限値の設定根拠と制限値緩和方策(1/3)

機器/プロセス	管理対象	臨界管理方法	最大許容値/核的制限値	モデル				
				項目	設定値	設定根拠	緩和方策	備考
脱被覆装置	機器形状 (機器内部最大直径)	形状管理 同位体組成管理 Pu富化度管理	18.96 / 16.00 cm	形態	MOX	機器内で取り扱う形態のうち、最も重金属密度の高い形態	-	質量管理を適用する場合： 最大許容量/核的制限値＝ 39.74/33.77 kg-Pu (二重装荷を防止できる手段の適用を前提とする。)
				密度	11.46 g/cm ³	理論密度	-	
				形状	無限円筒	-	詳細な機器設計に基づく現実的な形状/サイズの適用(高さ・幅等の制限)	
				Pu組成	FBR燃料級組成	新燃料組成 Pu-238/239/240/241/242 = 3/53/25/12/7 wt% (機器内でPu組成の変化無し)	燃焼度クレジットの適用	
				Pu富化度	30 wt%	新燃料富化度 (機器内でPu富化度の変化無し)	燃焼度クレジットの適用	
				反射条件	水20cm	機器等の反射体効果を考慮するために保守的に想定	詳細な機器設計に基づく現実的な反射条件の適用	
				核的相互作用	なし	-	-	
				安全係数	0.85	形状管理を行う場合の一般的な値	-	
フッ化塔	機器形状 (機器内部最大厚さ)	形状管理	2.40 / 1.19 cm	形態	PuO ₂	機器内で取り扱う形態のうち、最も重金属密度の高い形態	-	質量管理を適用する場合： 最大許容量/核的制限値＝ 9.56/8.12 kg-Pu (二重装荷を防止できる手段の適用を前提とする。)
				密度	11.46 g/cm ³	理論密度	-	
				形状	無限平板	-	詳細な機器設計に基づく現実的な形状/サイズの適用(高さ・幅等の制限)	
				Pu組成	Pu-239 : 100 wt%	照射済みブランケット燃料処理を考慮	炉心燃料とブランケット燃料の混合処理を行い、同位体組成管理を適用する。	
				Pu富化度	100 wt%	機器内でPuの分離可能性有り	-	
				反射条件	水20cm	機器等の反射体効果を考慮するために保守的に想定	詳細な機器設計に基づく現実的な反射条件の適用	
				核的相互作用	なし	?	-	
				安全係数	0.85	形状管理を行う場合の一般的な値	-	
トラップ/フィルタ類	機器形状 (機器内部最大直径)	形状管理	7.08 / 6.00 cm	形態	PuO ₂	前工程(フッ化塔)からのPuO ₂ の誤移送を想定	-	質量管理を適用する場合： 最大許容量/核的制限値＝ 9.56/8.12 kg-Pu (二重装荷を防止できる手段の適用を前提とする。)
				密度	11.46 g/cm ³	理論密度	-	
				形状	無限円筒	-	詳細な機器設計に基づく現実的な形状/サイズの適用(高さ・幅等の制限)	
				Pu組成	Pu-239 : 100 wt%	前工程の条件と統一	前工程の条件の見直し	
				Pu富化度	100 wt%	前工程の条件と統一	前工程の条件の見直し	
				反射条件	水20cm	機器等の反射体効果を考慮するために保守的に想定	詳細な機器設計に基づく現実的な反射条件の適用	
				核的相互作用	なし	-	-	
				安全係数	0.85	形状管理を行う場合の一般的な値	-	

表 4-2 フッ化物揮発法核的制限値の設定根拠と制限値緩和方策(2/3)

機器/プロセス	管理対象	臨界管理方法	最大許容値/核的制限値	モデル				
				項目	設定値	設定根拠	緩和方策	備考
凝縮・揮発器	機器形状 (機器内部最大直径)	形状管理	10.82 / 9.19 cm	形態	PuF4	トラップ/フィルタによりPuO2の流入が生じないと想定	-	質量管理を適用する場合： 最大許容量/核的制限値= 16.84/14.31 kg-Pu (二重装荷を防止できる手段の適用を前提とする。)
				密度	7.20 g/cm3	理論密度	-	
				形状	無限円筒	-	詳細な機器設計に基づく現実的な形状/サイズの適用(高さ・幅等の制限)	
				Pu組成	Pu-239 : 100 wt%	照射済みブランケット燃料処理を考慮	炉心燃料とブランケット燃料の混合処理を行い、同位体組成管理を適用する。	
				Pu富化度	100 wt%	ウラン系の機器に対するPuF6ガスの誤移送を考慮	-	
				反射条件	水20cm	機器等の反射体効果を考慮するために保守的に想定	詳細な機器設計に基づく現実的な反射条件の適用	
				核的相互作用	なし	-	-	
				安全係数	0.85	形状管理を行う場合の一般的な値	-	
ガスブレンダ	機器形状 (機器内部最大直径)	形状管理	10.82 / 9.19 cm	形態	PuF4	-	-	質量管理を適用する場合： 最大許容量/核的制限値= 16.84/14.31 kg-Pu (二重装荷を防止できる手段の適用を前提とする。)
				密度	7.20 g/cm3	理論密度	-	
				形状	無限円筒	-	詳細な機器設計に基づく現実的な形状/サイズの適用(高さ・幅等の制限)	
				Pu組成	Pu-239 : 100 wt%	照射済みブランケット燃料処理を考慮	炉心燃料とブランケット燃料の混合処理を行い、同位体組成管理を適用する。	
				Pu富化度	100 wt%	混合処理するUF6ガスの未移送を想定	-	
				反射条件	水20cm	機器等の反射体効果を考慮するために保守的に想定	詳細な機器設計に基づく現実的な反射条件の適用	
				核的相互作用	なし	-	-	
				安全係数	0.85	形状管理を行う場合の一般的な値	-	
酸化物転換装置	機器形状 (機器内部最大直径)	形状管理	8.31 / 7.00 cm	形態	PuO2	混合ガス中のPuF6のみがPuF4に分解・固化し、その後高温加水分解によってPuO2を単独で形成する可能性を考慮。	PuF6の分解を防止する手段の適用	質量管理を適用する場合： 最大許容量/核的制限値= 13.97/11.87 kg-Pu
				密度	11.46 g/cm3	理論密度	-	
				形状	無限円筒	-	詳細な機器設計に基づく現実的な形状/サイズの適用(高さ・幅等の制限)	
				Pu組成	FBR燃料級組成	新燃料組成 Pu-238/239/240/241/242 = 3/53/25/12/7 wt% (Pu組成は富化度調整時に確認済み)	-	
				Pu富化度	100 wt%	PuF6の分解によるPuの分離を考慮。	-	
				反射条件	水20cm	機器等の反射体効果を考慮するために保守的に想定	詳細な機器設計に基づく現実的な反射条件の適用	
				核的相互作用	なし	-	-	
				安全係数	0.85	形状管理を行う場合の一般的な値	-	

表 4-3 フッ化物揮発法核的制限値の設定根拠と制限値緩和方策(3/3)

機器/プロセス	管理対象	臨界管理方法	最大許容値/核的制限値	モデル				
				項目	設定値	設定根拠	緩和方策	備考
分級装置	機器形状 (機器内部最大直径)	形状管理 同位体組成管理 Pu富化度管理	18.96 / 16.00 cm	形態	MOX	機器内で物質形態の変化無し	-	質量管理を適用する場合： 最大許容量/核的制限値= 39.74/33.77 kg-Pu
				密度	11.46 g/cm ³	理論密度	-	
				形状	無限円筒	-	詳細な機器設計に基づく現実的な 形状/サイズの適用 (高さ・幅等 の制限)	
				Pu組成	FBR燃料級組成	新燃料組成 Pu-238/239/240/241/242 = 3/53/25/12/7 wt% (機器内でPu組成の変化無し)	-	
				Pu富化度	30 wt%	新燃料富化度 (機器内でPu富化度の変化無し)	-	
				反射条件	水20cm	機器等の反射体効果を考慮するために保守 的に想定	詳細な機器設計に基づく現実的な 反射条件の適用	
				核的相互作用	なし	-	-	
				安全係数	0.85	形状管理を行う場合の一般的な値	-	
振動充填装置	機器形状 (機器内部最大直径)	形状管理 同位体組成管理 Pu富化度管理	18.96 / 16.00 cm	形態	MOX	機器内で物質形態の変化無し	-	質量管理を適用する場合： 最大許容量/核的制限値= 39.74/33.77 kg-Pu
				密度	11.46 g/cm ³	理論密度	-	
				形状	無限円筒	-	詳細な機器設計に基づく現実的な 形状/サイズの適用 (高さ・幅等 の制限)	
				Pu組成	FBR燃料級組成	新燃料組成 Pu-238/239/240/241/242 = 3/53/25/12/7 wt% (機器内でPu組成の変化無し)	-	
				Pu富化度	30 wt%	新燃料富化度 (機器内でPu富化度の変化無し)	-	
				反射条件	水20cm	機器等の反射体効果を考慮するために保守 的に想定	詳細な機器設計に基づく現実的な 反射条件の適用	
				核的相互作用	なし	-	-	
				安全係数	0.85	形状管理を行う場合の一般的な値	-	

第5章 乾式リサイクルシステムにおける臨界事故についての考察

5-1 臨界事故

ANL、RIAR、ハンフォード等過去の乾式リサイクル試験施設における臨界事故の発生は報告されていない。そのため、乾式リサイクルシステムにおいて臨界事故が発生した場合の、発生原因、現象・挙動、事故規模、自然終息の可能性といったことに対する明確な知見がない。さらに、乾式リサイクルシステム特有の条件下における臨界事故についての研究もほとんどなされていない。

それに対して湿式リサイクルプラントでは現在までに25件の臨界事故の発生が報告されている⁽²¹⁾⁻⁽²³⁾。また、実用化してからの期間も長く、この間に臨界事故の現象を解明するための研究活動も活発に行われ、現在も継続している。

一方、リサイクルプラントではないが、臨界集合体および臨界実験装置において発生した臨界事故（この場合は操作員が意図せずに臨界となった場合）は17件、さらに金属Pu取り扱い施設における臨界事故が1件報告されている。これらの多くは金属のUあるいはPuを使用しており、乾式リサイクルシステムと同様に非減速系である。そのため、これらの事故事例を基に乾式リサイクルシステムで発生する臨界事故の現象・規模を推察することが可能である。

事故規模が重要な理由は臨界事故が発生した場合に、核分裂反応によって発生する揮発性FP (Kr, Sr, I, Xe) が排気系を通して環境に放出されるため、安全評価時には想定した事故において放出される放射性物質の量が規定値以下であるかどうかが焦点となる。その際に最も重要なのが発生するFPの量、すなわち核分裂数である。また、事故によって機械的なエネルギーが発生する可能性があれば、そのような場合でも施設の閉じ込めの機能が損なわれないことを確認する必要がある。この機械的エネルギーも核分裂数によって影響される。

図5-1に過去の臨界事故事例における臨界到達から未臨界状態に至るまでの継続時間、事故発生直後のバースト核分裂数および事故終息までの総核分裂数を示す。継続時間では減速系である溶液系の事故で比較的長い継続時間（数秒～数日）である。一方、非減速系である金属系の事故では全て短時間（～数秒）で事故が終息している。また、溶液系の一部の事故では事故終息のために人為的な操作が必要であったことが報告されているが、金属系では人為的操作を行う以前に事故が終息している。

その一方で、臨界事故規模を示す総核分裂数は溶液系、金属系ともおなじ程度のオーダー（ $10^{15} \sim 10^{19}$ ）である。これより、金属系ではほんのわずかの時間に溶

液系の総核分裂数とおなじだけの核分裂反応が発生していることがわかる。すなわち、瞬間最大発生エネルギーは金属系のほうが大きくなる。総核分裂数は臨界事故発生時のソースタームを決定するが、バースト核分裂数は発生する機械的エネルギーの大きさと関係があるので、乾式リサイクルシステムで発生する臨界事故は破壊力を伴った機械的エネルギーの発生の可能性があると考えられる。実際にロスアラモス国立研究所の臨界集合体 GODIVA やローレンス・リバモア国立研究所の臨界集合体の事故では、臨界集合体の U 金属が破壊・溶融したことが報告されている。ただし、破壊の規模としては建家等に損害を与えるほどのものではなく、集合体機器の骨組みを曲げたり、金属片を飛ばしたりした程度のものであった。最も大きな破壊力を発生させる環境は、金属の核燃料物質の周りに液体が存在する場合であり、この場合核分裂エネルギーによって発生した熱により溶融した金属と液体が反応し、蒸気爆発を発生させる。これは FBR の安全性で最も関心の高い炉心崩壊事故と同様であり、代表的な事故事例が SL-1 である。乾式リサイクルシステムにおいても溶融塩と液体金属との反応が考えられる。

米国 DOE のハンドブック⁽²⁴⁾においては、乾式再処理と同様に臨界事故の経験のない固体状態の核燃料物質を取り扱う施設（臨界実験施設、核燃料貯蔵施設等）においては、上記の原子炉破壊実験の結果以上の事故は考えにくいとしてその上限である 5×10^{18} を、臨界事故を想定する場合に推奨される事故規模としている。さらに粉体状態の核燃料物質を取り扱う施設では 2×10^{17} を想定する事故規模としている。

事故終息のメカニズムとしては、上記の破壊力の発生および核分裂反応時の発熱による燃料物質の溶解によって燃料物質が変形・分離することが考えられる。溶液系での事故のように臨界と未臨界の間を振動する可能性がないわけではないが、一般に固体の燃料物質は重金属密度が高く単位質量のもつ反応度が高いため、ほんの少しの変形であっても大きな負の反応度をおこしやすい。そのため長時間の臨界状態を維持させるには多くの条件を満足させなくてはならず、自然状態でそのような条件を満たすことはまれであると考えられる。

以上をまとめると、乾式リサイクルシステムにおいて発生する臨界事故の特徴として推測されるのは、

- ・ 臨界事故によって発生する総核分裂数は湿式系での事故以下である。
- ・ 事故の継続時間は数秒であり、自然終息する可能性が高い。
- ・ バースト核分裂数が大きく、破壊力の発生を伴う可能性がある。
- ・ 周りに液体が存在すると液-液反応による蒸気爆発の発生が考えられる。

実際の国内における施設認可においては、原子力安全委員会の定めた安全審査指針に準拠した設計がなされていることが求められる。再処理施設では、「再処理施設安全審査指針」が定められているが、これは湿式法（ピューレックス法）に限定したものである。乾式再処理施設については独立に同様の指針の策定がなされる必要がある。現行の再処理施設安全審査指針における臨界事故の取り扱いとは設計基準事象扱いであり、多重防護の考えに則った工学的安全設計が要求され、その安全評価を行わなくてはならない。一方、ウラン加工施設安全審査指針では適切な臨界安全設計がなされている場合には臨界事故を評価する必要はないが、JCO 事故の結果策定された特定のウラン加工施設安全審査指針においては臨界安全設計の如何に関わらず臨界事故を評価するよう求められている。このような安全指針の流れからいっても、乾式再処理施設の安全審査では臨界事故に対する評価はさけられないものであり、発生防止を十分に図ることによって立地評価事故扱いとすることが可能となったとしても、結局のところ評価で用いる想定事故規模をどのくらいにするのが妥当かを決定する必要がある。

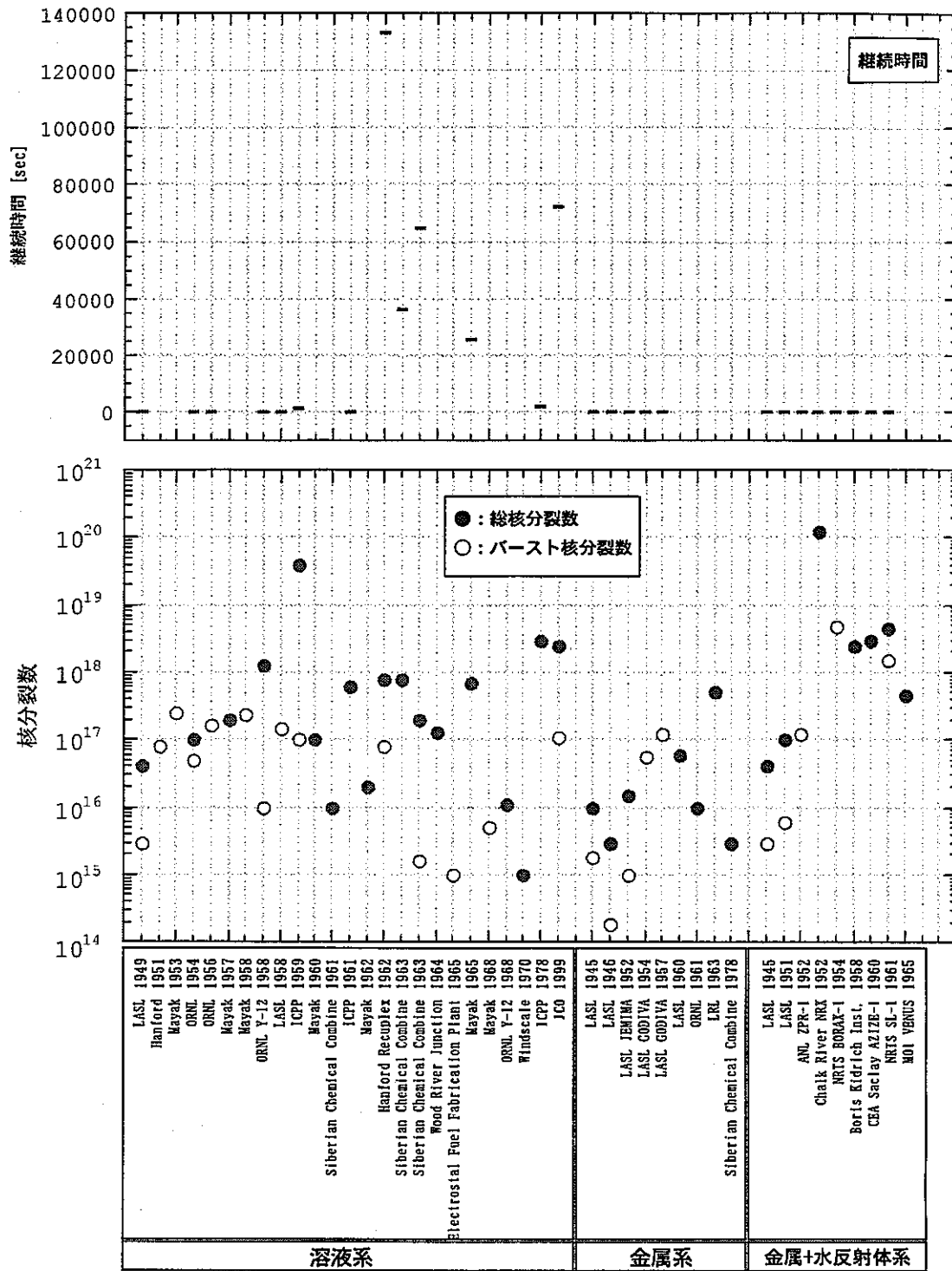


図 5-1 過去に起きた臨界事故の規模

5-2 臨界事故の終息手段

臨界事故が起きることが技術的に想定される場合、事故をすみやかに終息させてその拡大を可能な限り緩和させる手段を用意する必要がある。湿式リサイクルプラントでは配管を通した可溶性中性子吸収材の投入や溶液のドレインが考えられている。乾式リサイクルプラントでは前項で述べたとおり、事故時の発生エネルギーによって自然終息する可能性が高いと考えられる。しかし、この自然終息が必ず起きると保証することは困難であるため、考えられる範囲でその終息手段を提供する必要がある。

乾式リサイクルシステムにおいて想定される臨界事故の終息で問題となるのは、燃料物質が固体の場合である。溶融塩など液体の場合は湿式と同じく、可溶性中性子吸収材の投入や液体のドレイン等により終息させることが可能である。固体の状態で集中している場合、中性子吸収材であろうとその近傍に物体を配置すれば反射体として働く。そのため、制御棒やスクラム棒などを使用することはできない。結局、何らかの方法で燃料物質の固体を変形・分離させるか、周りにある物質を移動させて反射体効果を減少させる必要がある。

臨界集合体においては、スクラム用に燃料物質をパージさせる装置がついている場合があるが、乾式リサイクルシステムではどこにどのような形で燃料物質が存在することになるか特定できないため、前もって燃料物質自体をパージさせる機構を作ることは困難である。

減速系においては中性子の平均自由行程が短いので中性子吸収が大きな役割を持つが、非減速系においては平均自由行程が長いため中性子の漏洩がキーポイントとなる。そこで周りの反射条件を変えることによって臨界事故を終息させる手段が考えられる。具体的には、あらかじめ機器に反射体を設置しておき、機器内で臨界事故が発生した場合にその反射体を排除することによって体系に負の反応度を投入し、事故を終息させることが可能である。このような安全装置は一部の臨界実験装置にも取り入れられている。ただしこの場合では、あらかじめ設置した反射体の効果を越える負の反応度を投入することはできないため非常に大きな反応度を持つ臨界事故では不十分である。しかし、そのような大きな臨界事故では前述したような自己崩壊による自然終息が期待できる。

また、臨界事故終息用の機構が取り付けられていない場所や、その安全装置が動作しなかった場合にはマニピュレーター等のハンドリング装置で燃料物質の除去をおこなって臨界事故を終息させることが考えられる。ただし、この場合には対放射線性に優れたハンドリング装置が必要となり、実際に使用する機器がこのような環境下で十分な信頼性を発揮できるか確認する必要がある。

5-3 臨界事故についての考察

以上、乾式リサイクルシステムでの臨界事故終息手段について考察したが、どのような事故においても確実に対応可能な終息手段を提供することは現状では困難であると考えられる。そのため、臨界事故が起きないように安全設計をおこなない臨界事故を設計基準事象より除外するか、臨界事故現象の研究によって自己終息性があることを証明するなどの対策が必要であると考えられる。

第 6 章 参考文献

- (1) "Guidelines for Preparing Criticality Safety Evaluations at Department of Energy Non-reactor Nuclear Facilities", *DOE-STD-3007-93*, 1993)
- (2) "Nuclear Safety Guide TID-7016 Revision 2", Oak Ridge National Laboratory, (1978)
- (3) Pruvost, N. L. and Paxton, H. C. : "Nuclear Criticality Safety Guide", *LA-12808*, Los Alamos National Laboratory, (1996)
- (4) "臨界安全ハンドブック", 科学技術庁原子力安全局核燃料規制課 編, (1988)
- (5) "臨界安全ハンドブック第 2 版", *JAERI 1340*, 日本原子力研究所, (1999)
- (6) "Guide de Criticite, Parts I, II, III," (in French) CEA-R3114, Commissariat a l'Energie Atomique, (1967).
- (7) Mori, T. and Nakagawa, M. : "MVP/GMVP: General Purpose Monte Carlo Codes for Neutron and Photon Transport Calculations based on Continuous Energy and Multigroup Methods". *JAERI/DataCode-94-007*, (1994).
- (8) K. Shibata, et al. : "Japanese Evaluated Nuclear Data Library, Version-3 ---JENDL-3---," *JAERI-1319*, (1990)
- (9) Laidler, J. J. and et al. : "Development of Pyroprocessing Technology," *Progress in Nuclear Energy*, Vol.31, No. 1/2, pp.131, (1997)
- (10) McFarlane, H. F. and Lineberry, M. J. : "The IFR Fuel Cycle Demonstration", *Progress in Nuclear Energy*, Vol.31, No.1/2, pp.155, (1997)
- (11) "Electrometallurgical Techniques for DOE Spent Fuel Treatment Final Report", Board on chemical Sciences and Technology national Research Council, (2000)
- (12) Leil, R. M. and et al. : "Nuclear Criticality Safety Program at Fuel Cycle Facility", *Proceeding of the Fourth International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing and Wast Management*, (1994)
- (13) Mariani, R. D. and et al. : "Criticality Safety Strategy for the Fuel Cycle Electrorefiner at Argonne National Laboratory West", *Proc. of Global'93*, (1993)
- (14) Ackerman, J. P., : "Chemical Basis for Pyrochemical Reprocessing of Nuclear Fuel,"

- Ind. Eng. Chem. Res., 29, 140, (1991)
- (15) Bond, W. R., Jansen, G., Jr., and Mudge, L. K. : "Demonstration of the Salt Cycle Process in a High-level Radiochemical Facility," BNWL-355, (1966)
- (16) Shiba, O. V and et al. : "Technology of Pyroelectrochemical Reprocessing and Production of Nuclear Fuel," Proc. of Global'93, pp.1344, (1993)
- (17) Bychkov, A. V. and et al. : "Pyroelectrochemical Reprocessing of Irradiated Uranium - Plutonium Oxide Fuel for Fast Reactors," Proc. of Global'93, pp.1351, (1993)
- (18) Bychkov, A. V., Vacolvo, K. and et al. : "Pyroelectrochemical Reprocessing of Irradiated FBR MOX Fuel", *Proc. of Global'97*, pp.912, (1997)
- (19) Levitz, N. M. : "A Conceptual Design Study of a Fluoride-Volatility Plant for Reprocessing LMFBR Fuels", *ANL-7583*, (1969)
- (20) 日本原子力研究所 再処理研究室 "乾式再処理における F₂ 二段フッ化法の開発," JAERI-M No.6393, (1976)
- (21) McLaughlin, T. P., Frolov, V. V. and et al. : "A Review of Criticality Accidents 2000 Revision", *LA-13638*, (2000)
- (22) Kathren, R. L. and et al. : "Health Physics Following a Nuclear Excursion : the LRL Incident of 26 March 1963", *Health Physics*, Vol.10, pp.183-192, (1964)
- (23) Frolov, V. V. and et al. : "A Review of Criticality Accidents Which Occured in the Russian Industry", *Proc. Fifth Int. Conf. on Nuclear Criticality Safety*, (1995)
- (24) "Nuclear Fuel Cycle Facility Accident Analysis Handbook," NUREG/CR-6410, U.S DOE, (1998)

付録 1 基本体系の臨界計算結果

乾式リサイクルシステムの臨界安全設計を行う際に、その最大許容限度・核的制限値を決める基準とするために、乾式リサイクルシステムで取り扱う物質形態の基本形状（球、無限円筒、無限平板）での推定臨界下限値を計算した。

付録1-1 計算概要

本計算は、日本原子力研究所において開発された連続エネルギーモンテカルロ法による中性子輸送計算コード「MVP」に同研究所で作成された中性子断面積データセット JENDL-3.2 を組み合わせて行った。なお、塩素の中性子断面積データは JENDL-3.2 に含まれていないので、その代わりに米国で作成された中性子断面積データセット ENDEF-B/VI のデータを使用した。

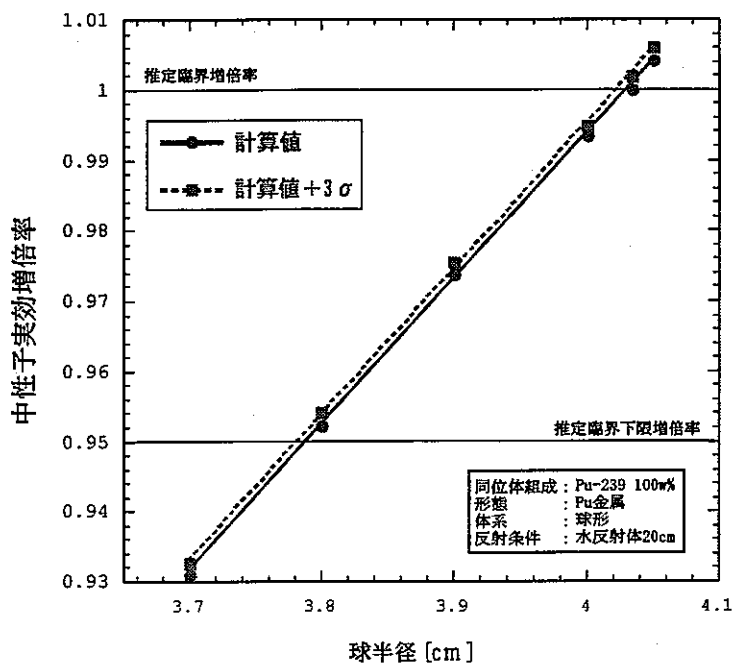
モンテカルロ計算のヒストリー設定は、総ヒストリー3000000、バッチ当たりのヒストリー数 20000 で、計算初期の捨てバッチ数は 50 とした。

計算は金属電解法、酸化物電解法、フッ化物揮発法で取り扱う 8 種類の物質形態（Pu 金属、U-Pu-Zr 三元合金、PuO₂、MOX、PuF₄、PuCd₆、PuCl₃、LiCl-KCl-PuCl₃）について行った。それぞれの物質形態の密度としては理論密度を想定した。

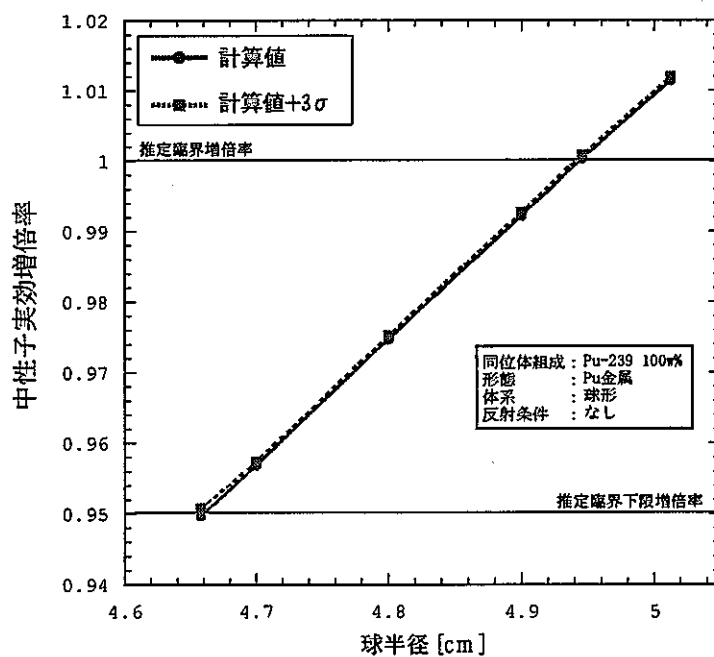
反射条件は臨界安全設計で原則とされる水全反射に相当する厚さ 20cm の水反射体のついたモデルと、その反射体条件の緩和によってどの程度まで臨界値が増加するかを概算するために反射体をつけないモデルの 2 種類を用意した。

付録1-2 Pu 金属

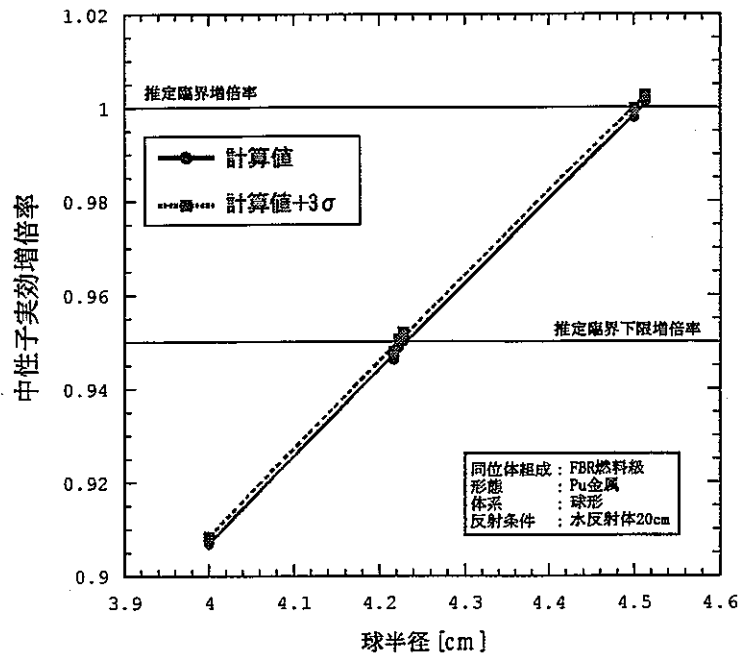
・球形状、Pu 同位体組成：Pu-239 100 wt%、20cm 厚さ水反射条件



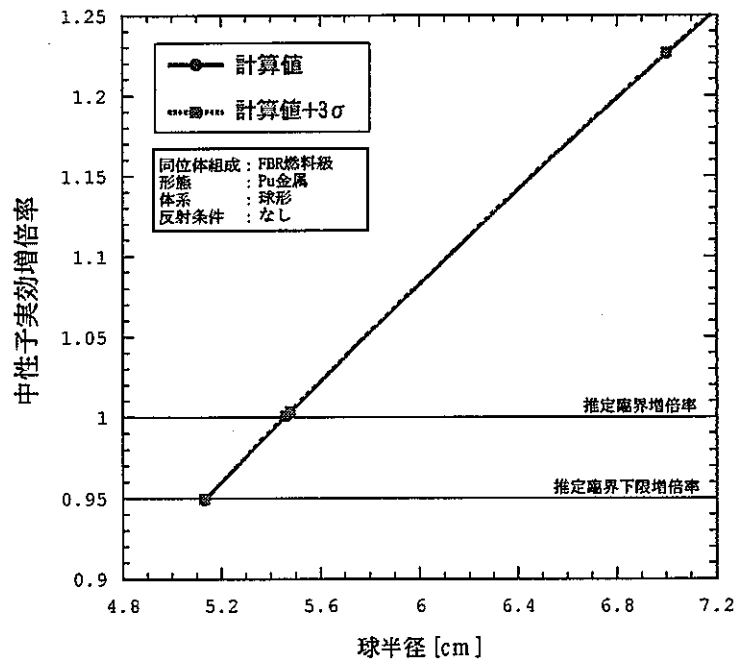
・球形状、Pu 同位体組成：Pu-239 100 wt%、反射体なし



・球形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、20cm 厚さ水反射体

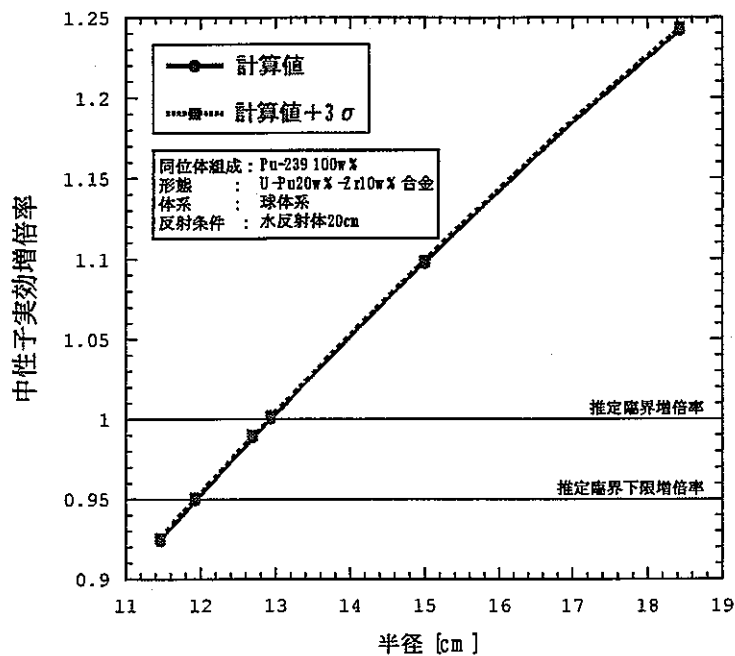


・球形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、反射体なし

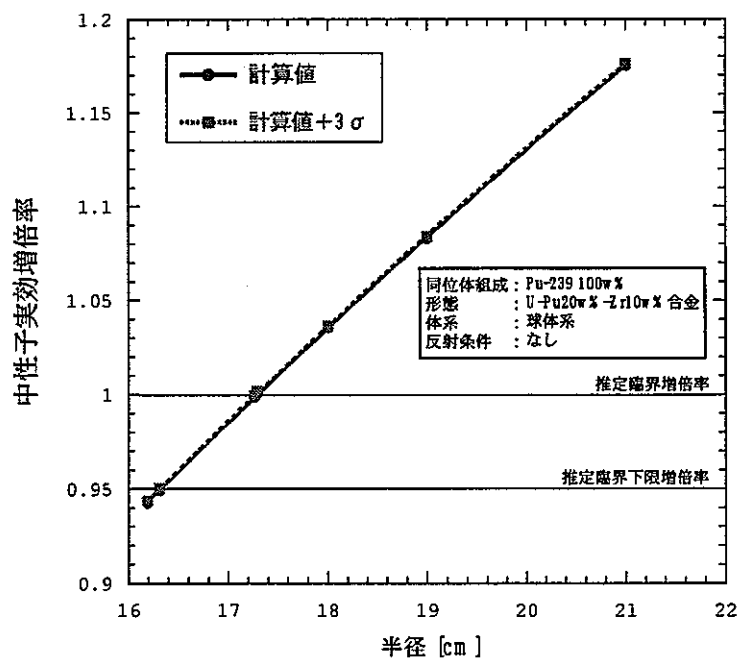


付録1-3 U-Pu-Zr 三元合金 (U/Pu/Zr = 70/20/10 wt%)

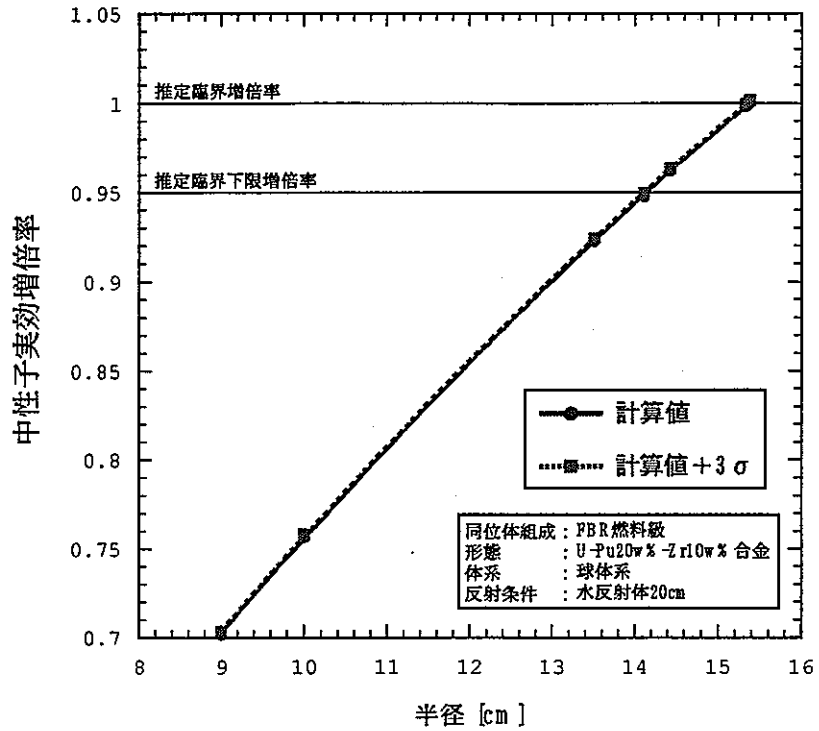
・球形状、Pu 同位体組成 : Pu-239 100 wt%、20cm 厚さ水反射条件



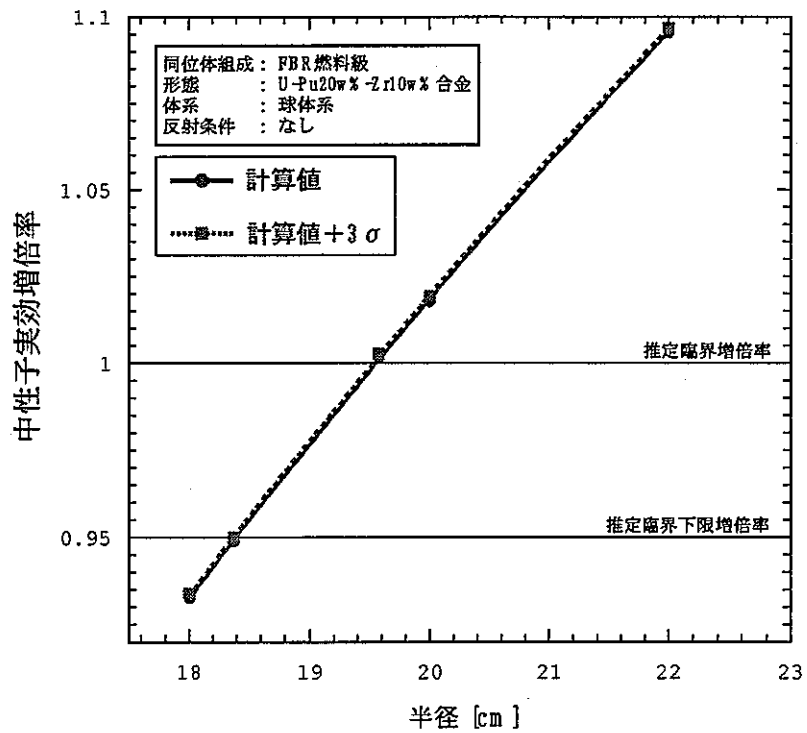
・球形状、Pu 同位体組成 : Pu-239 100 wt%、反射体なし



・球形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、20cm 厚さ水反射条件

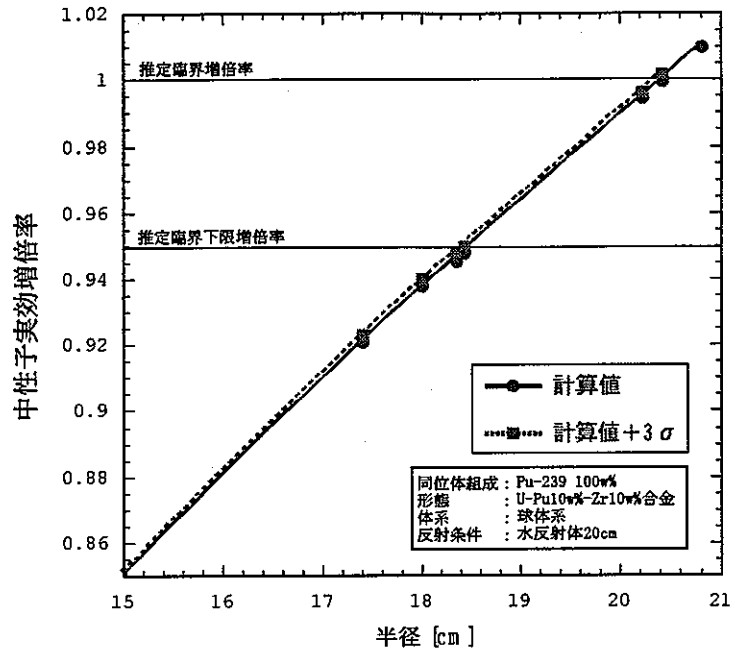


・球形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、反射体なし

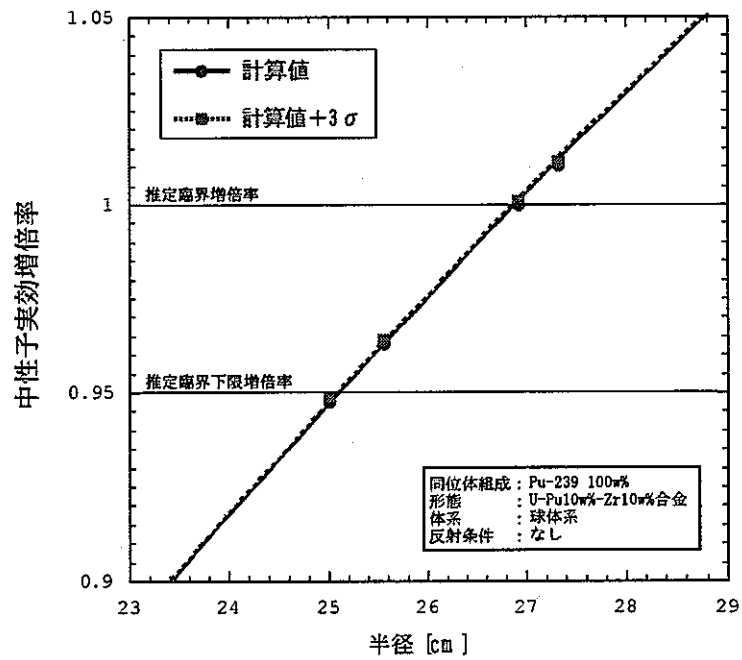


付録1-4 U-Pu-Zr 三元合金 (U/Pu/Zr = 80/10/10 wt%)

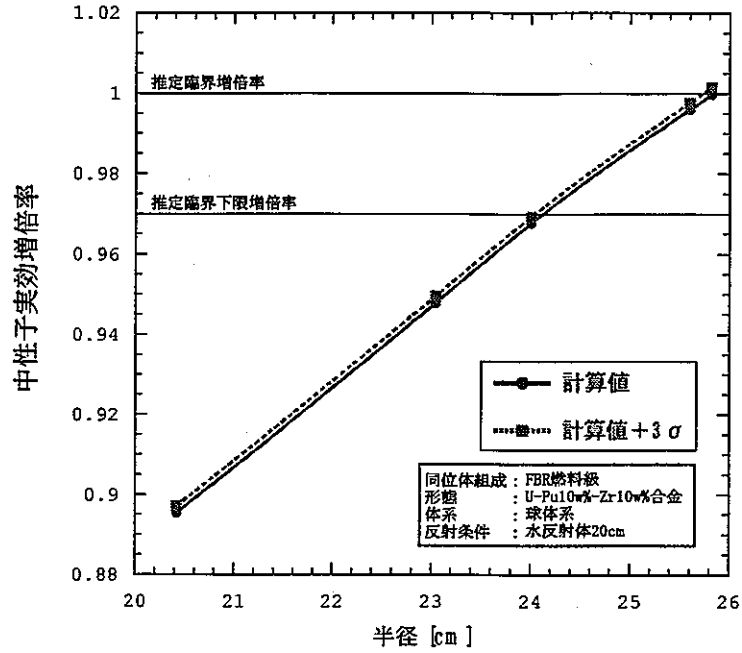
・球形状、Pu 同位体組成 : Pu-239 100 wt%、20cm 厚さ水反射条件



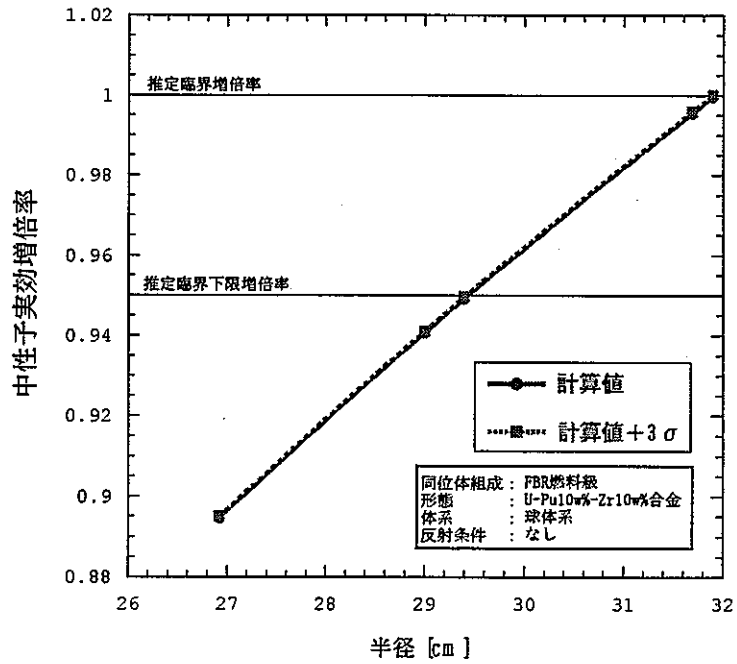
・球形状、Pu 同位体組成 : Pu-239 100 wt%、反射体なし



・球形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、20cm 厚さ水反射条件

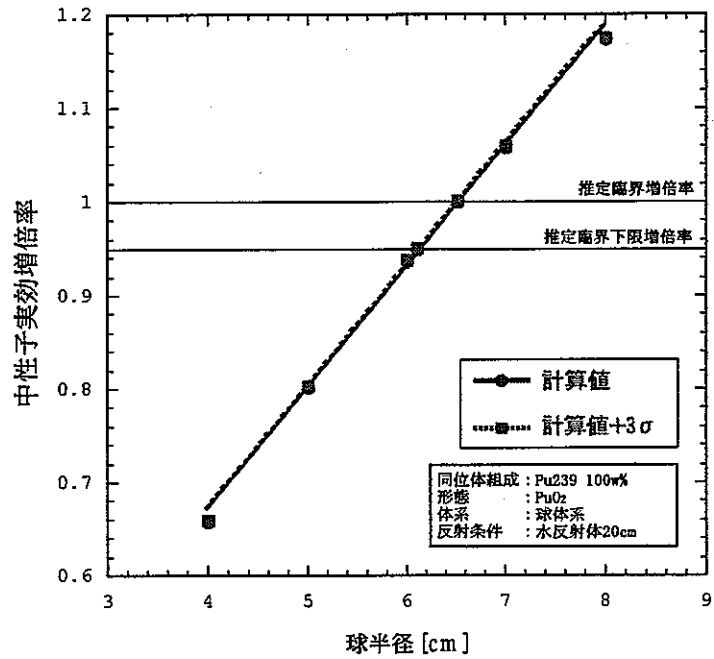


・球形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、反射体なし

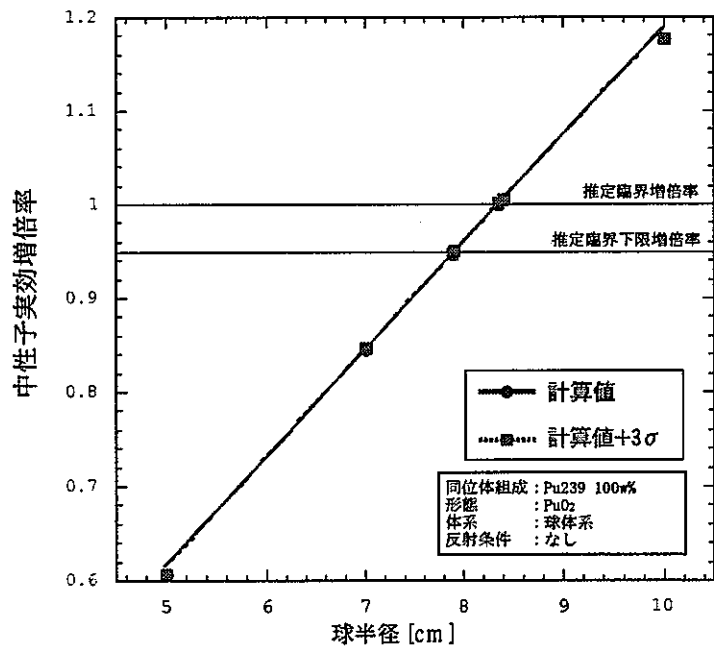


付録1-5 PuO₂

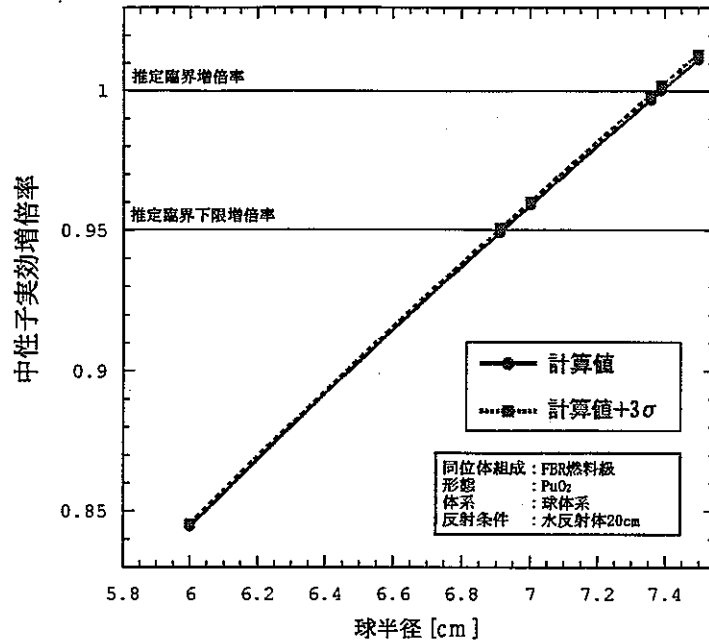
・球形状、Pu 同位体組成：Pu-239 100 wt%、20cm 厚さ水反射条件



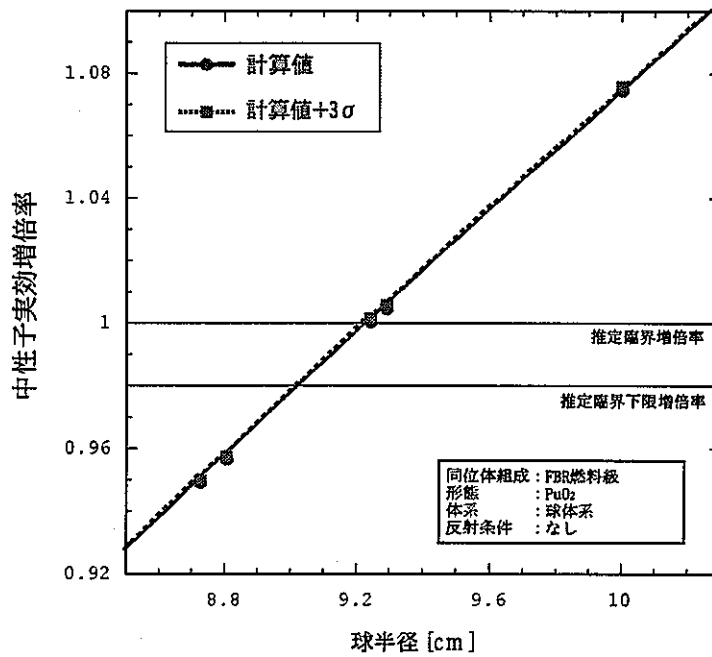
・球形状、Pu 同位体組成：Pu-239 100 wt%、反射体なし



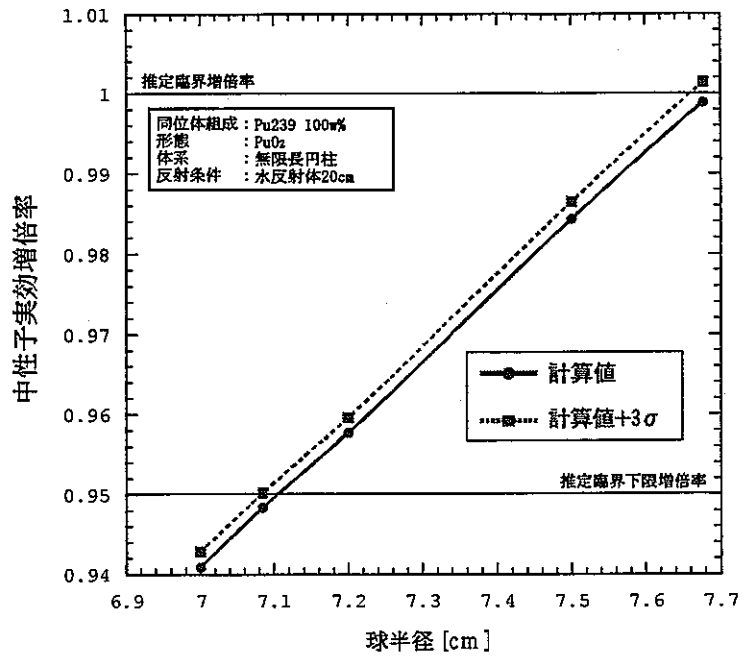
・球形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、20cm 厚さ水反射条件



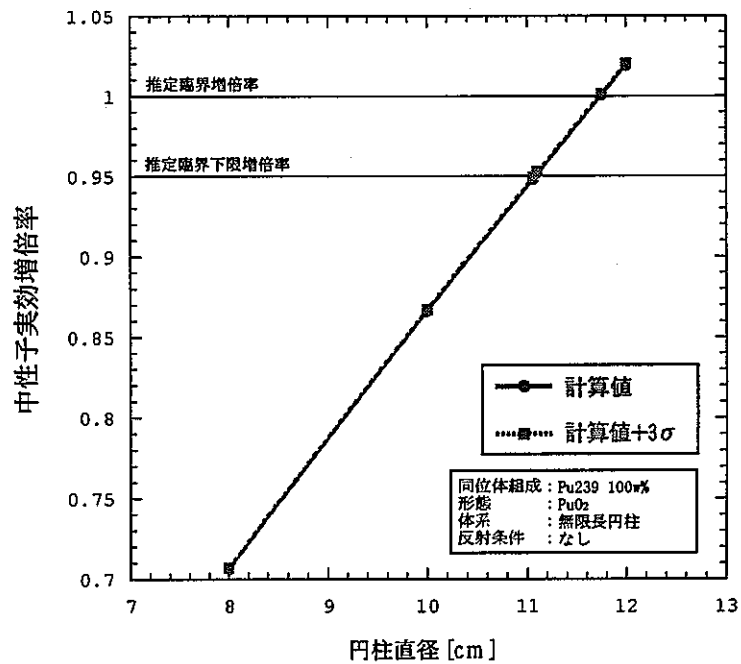
・球形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、反射体なし



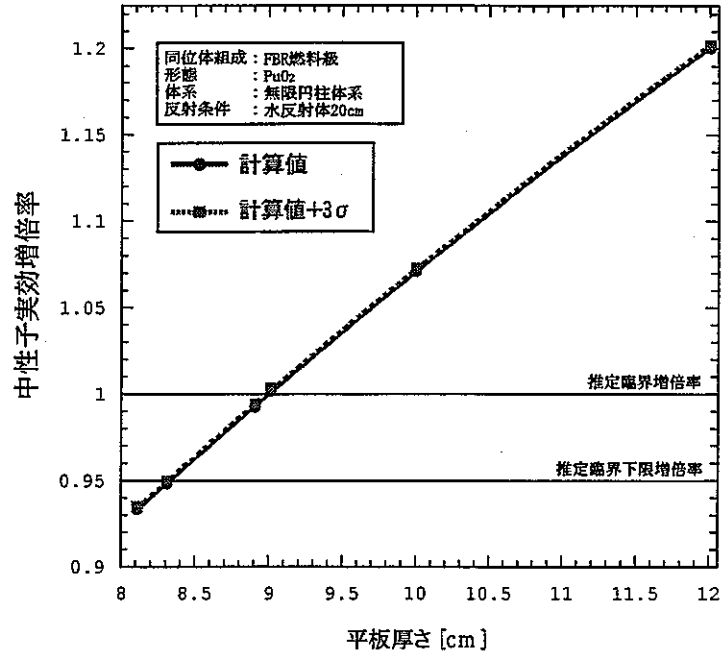
・無限円筒形状、Pu 同位体組成：Pu-239 100 wt%、20cm 厚さ水反射条件



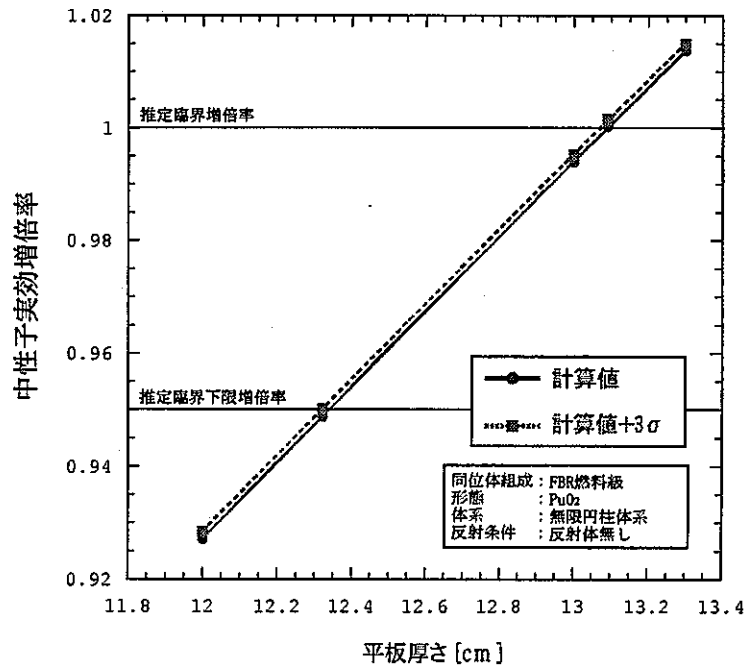
・無限円筒形状、Pu 同位体組成：Pu-239 100 wt%、反射体なし



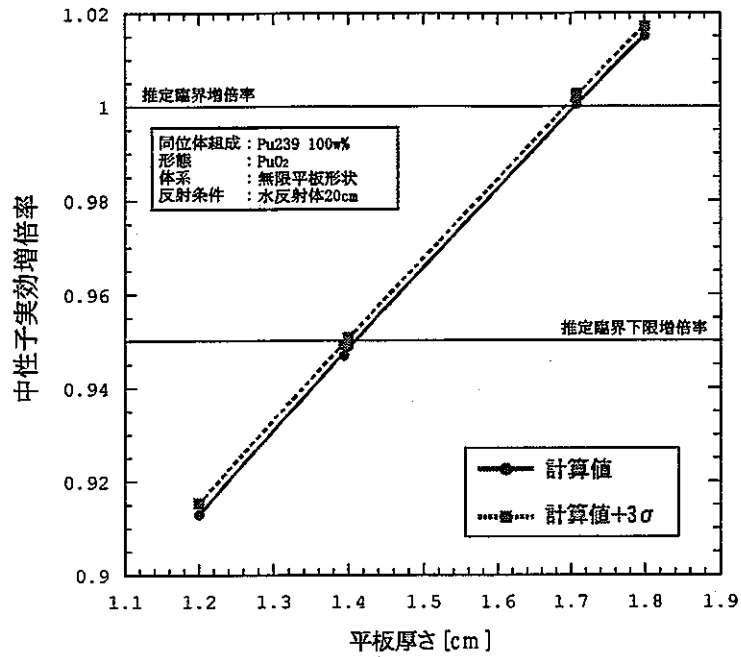
・無限円筒形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、20cm 厚さ水反射条件



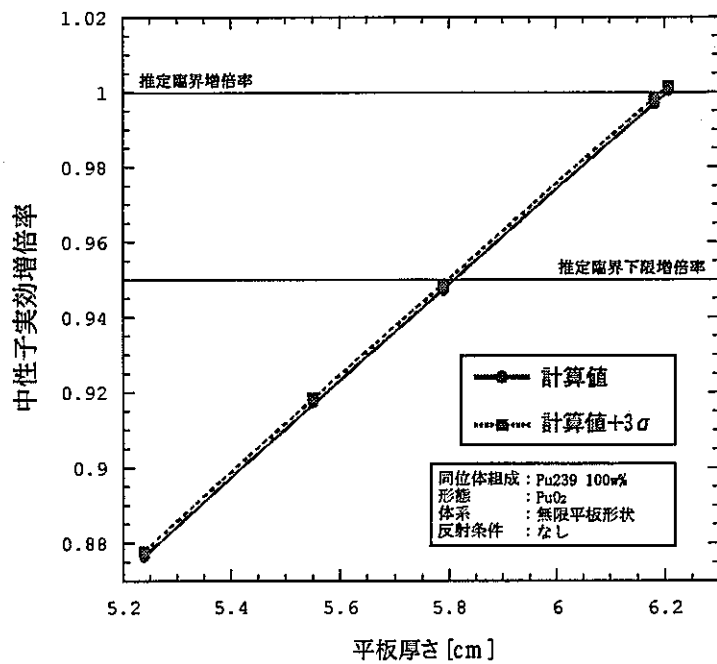
・無限円筒形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、反射体なし



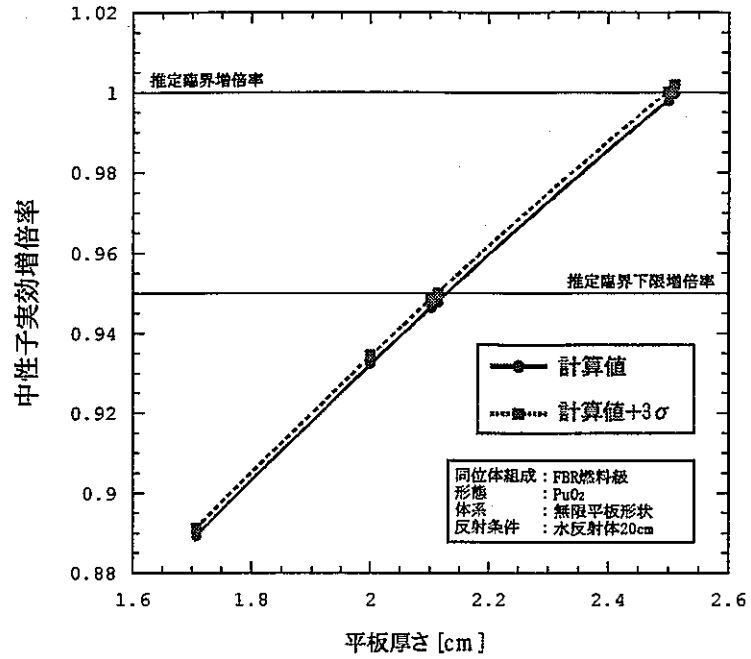
・無限平板形状、Pu 同位体組成：Pu-239 100 wt%、20cm 厚さ水反射条件



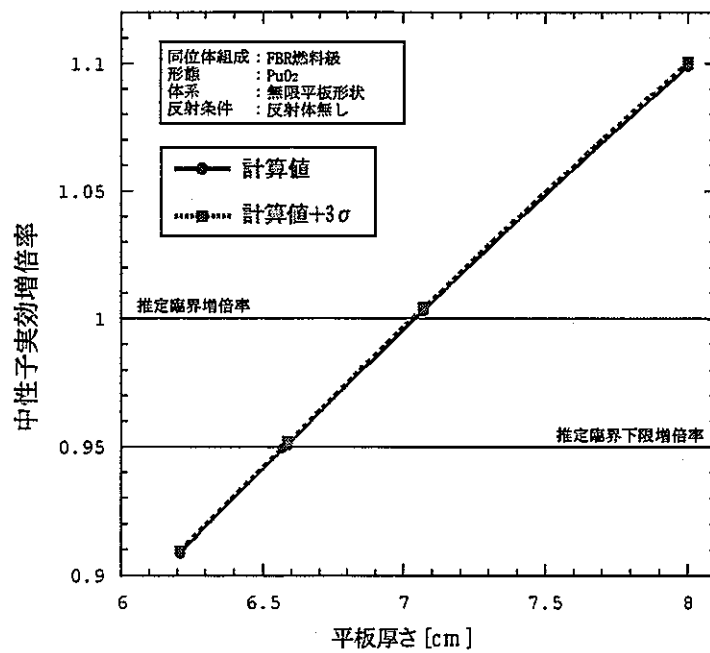
・無限平板形状、Pu 同位体組成：Pu-239 100 wt%、反射体なし



・無限平板形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、20cm 厚さ水反射条件

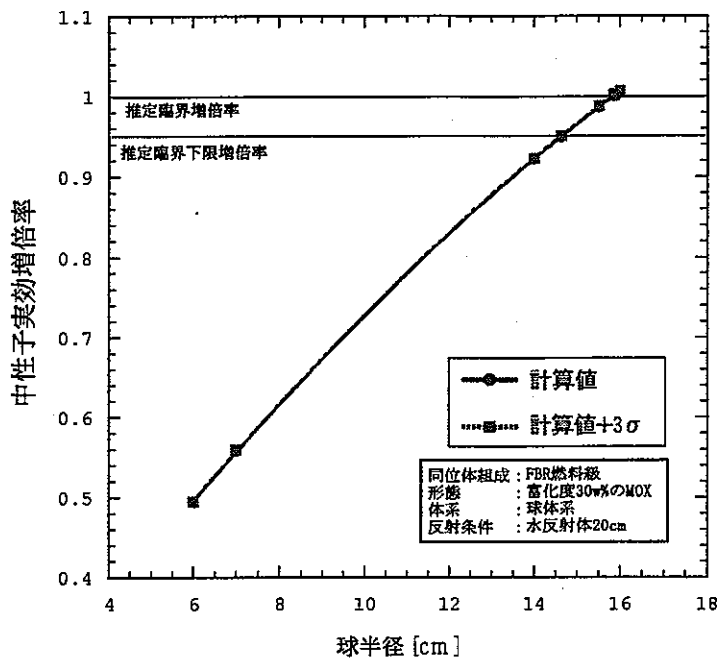


・無限平板形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、反射体なし

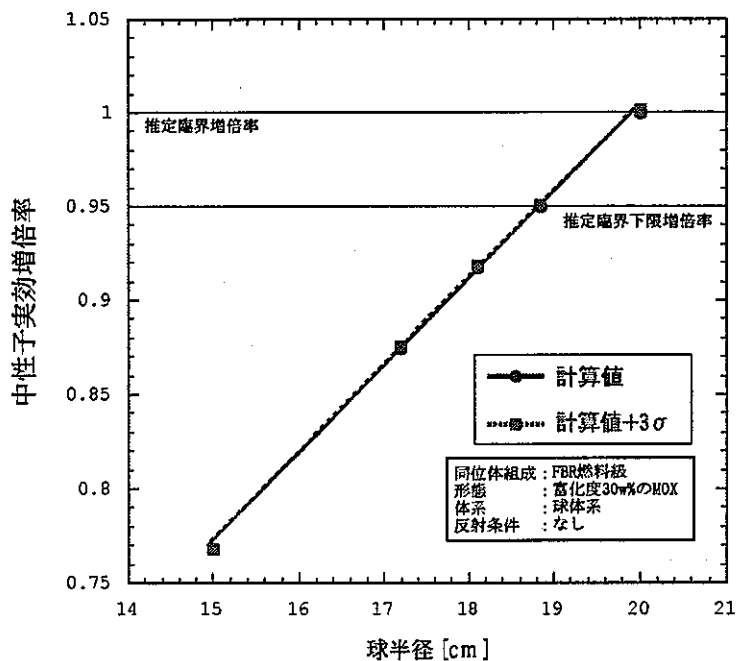


付録1-6 混合酸化物 (Pu 富化度 : 30wt%)

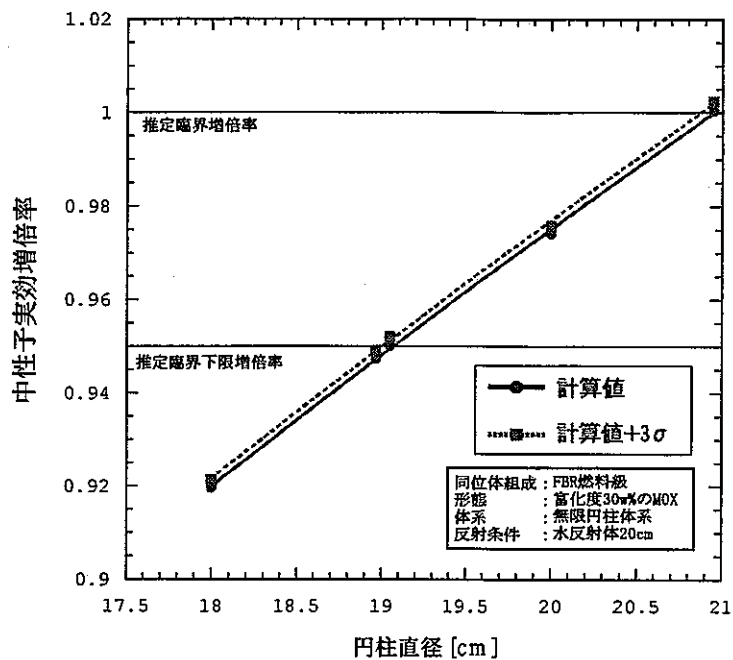
・球形状、Pu 同位体組成 : FBR 燃料級、20cm 厚さ水反射条件



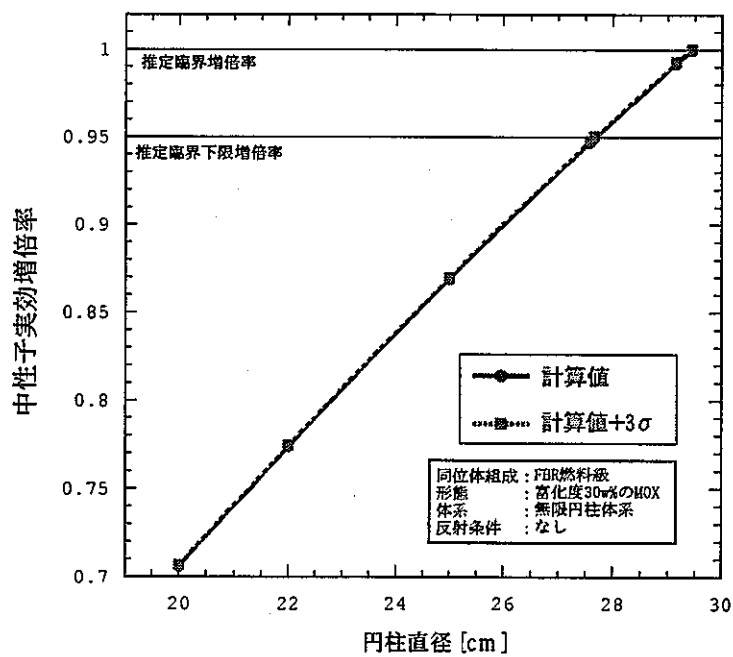
・球形状、Pu 同位体組成 : FBR 燃料級、反射体なし



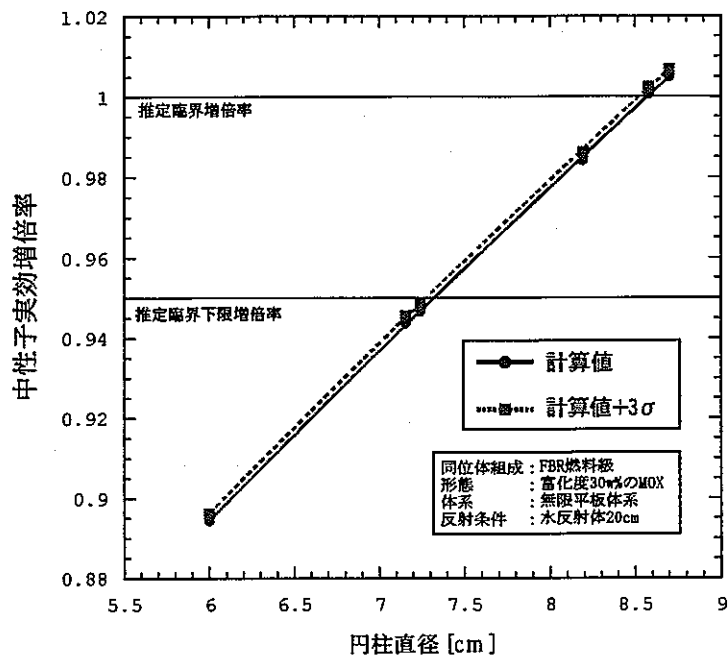
・無限円筒形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、20cm 厚さ水反射条件



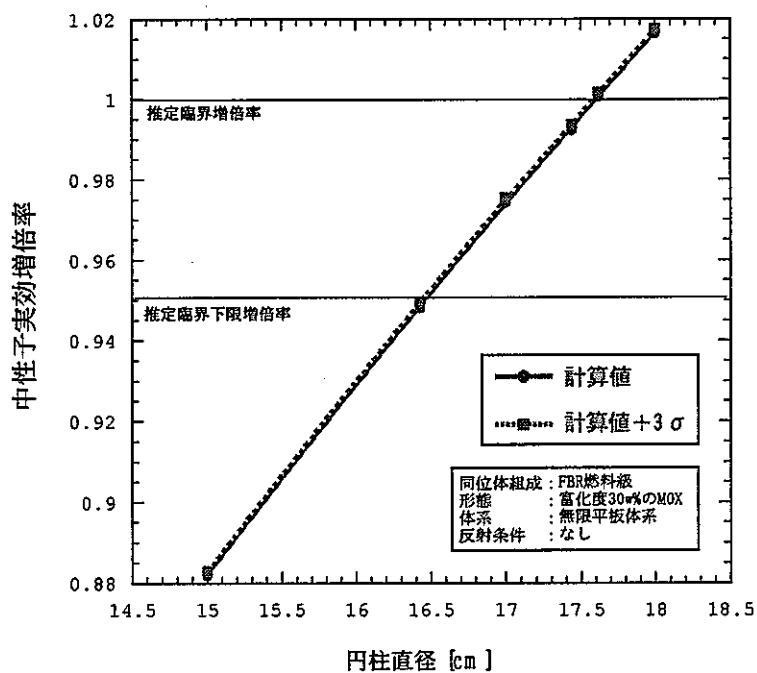
・無限円筒形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、反射体なし



・無限平板形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、20cm 厚さ水反射条件

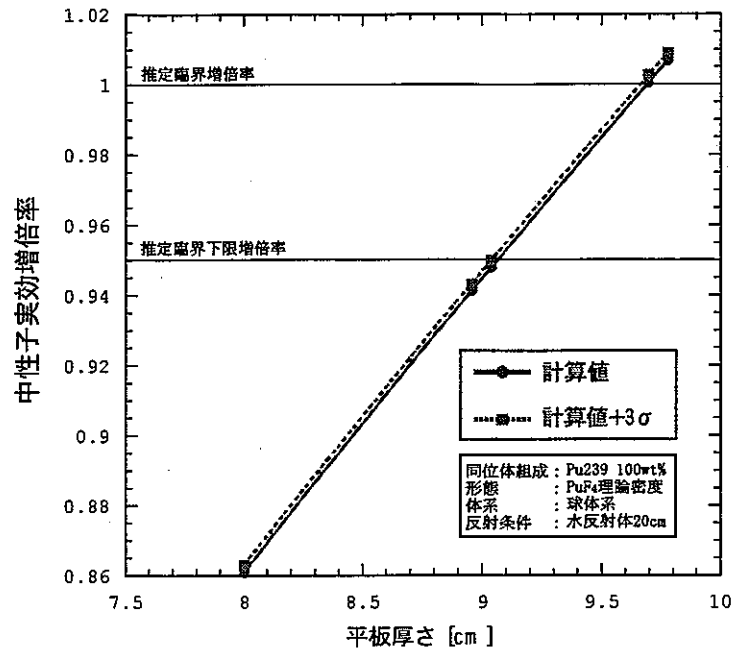


・無限平板形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、反射体なし

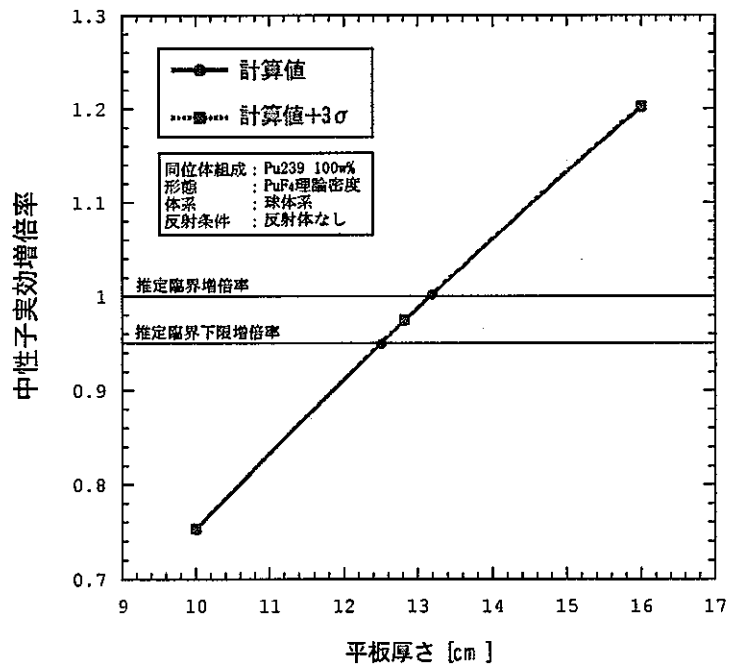


付録1-7 PuF₄

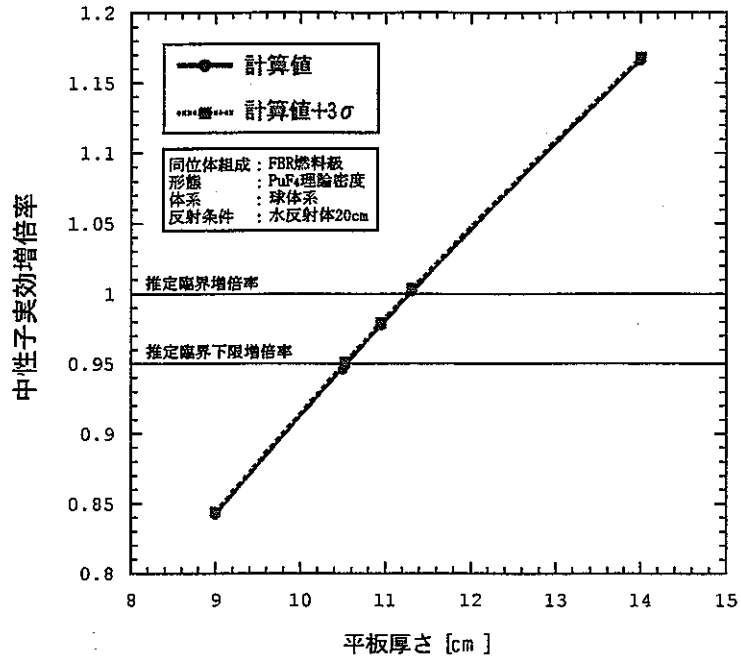
・球形状、Pu 同位体組成：Pu-239 100 wt%、20cm 厚さ水反射条件



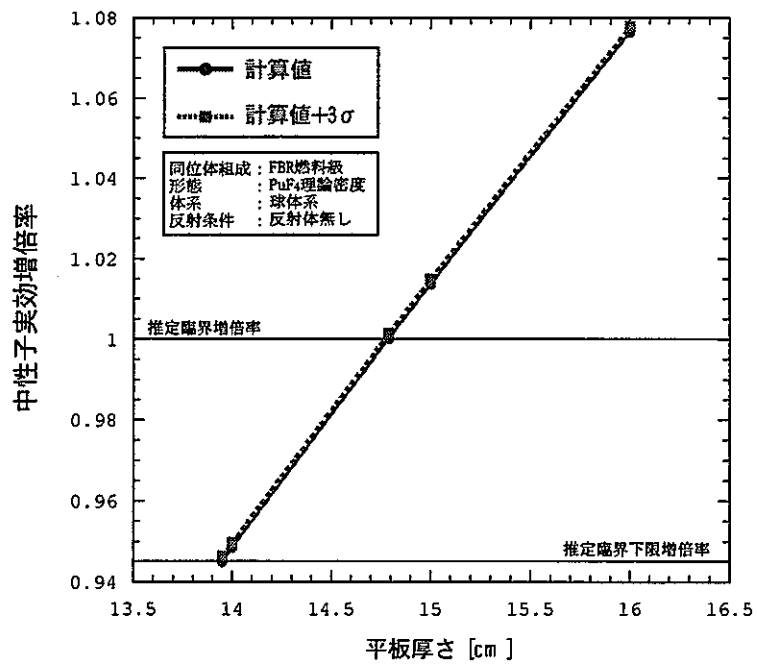
・球形状、Pu 同位体組成：Pu-239 100 wt%、反射体なし



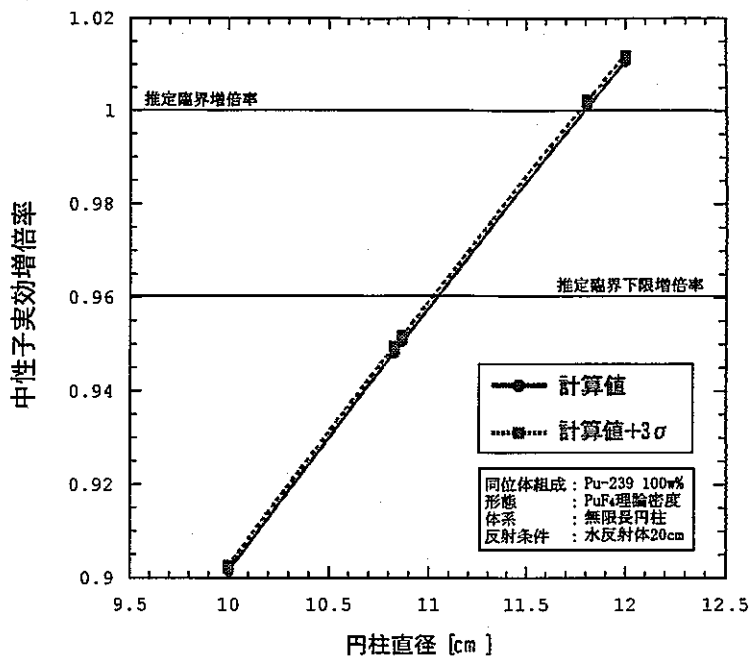
・球形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、20cm 厚さ水反射条件



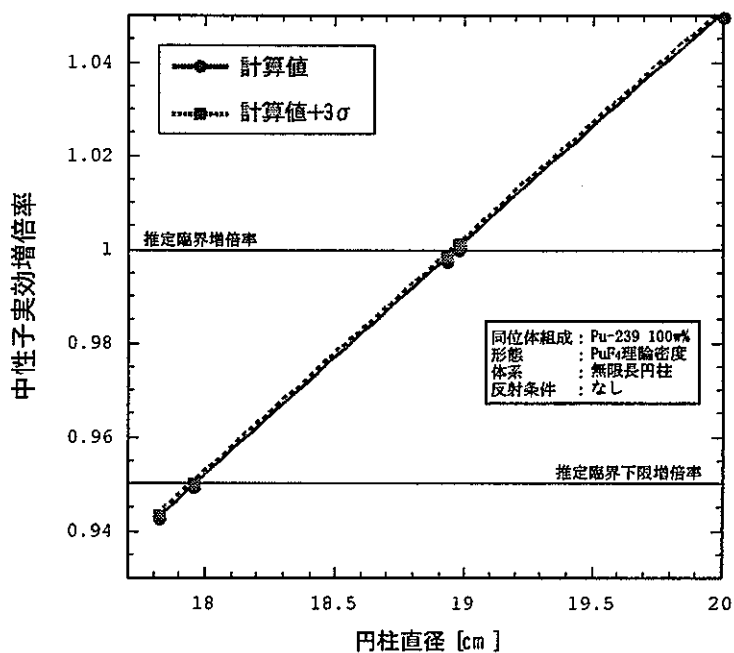
・球形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、反射体なし



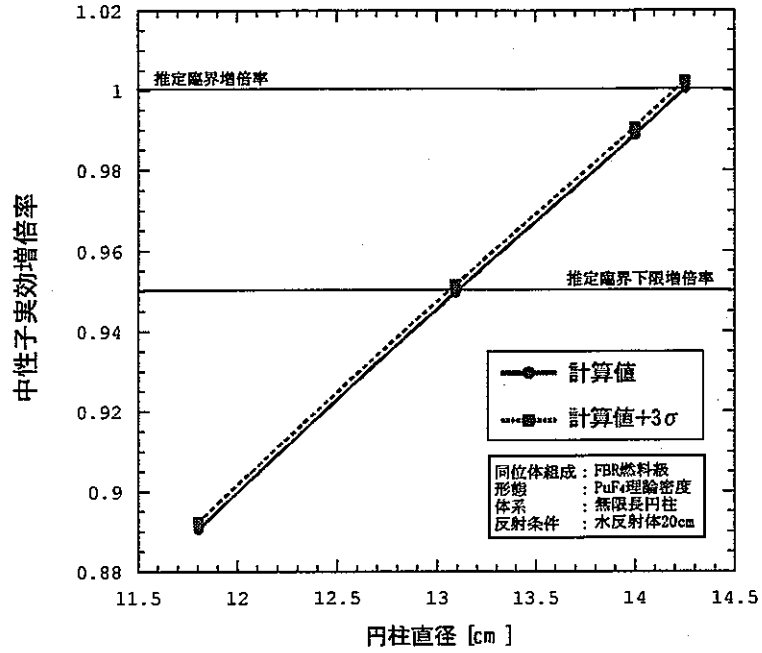
・無限円筒形状、Pu 同位体組成：Pu-239 100 wt%、20cm 厚さ水反射条件



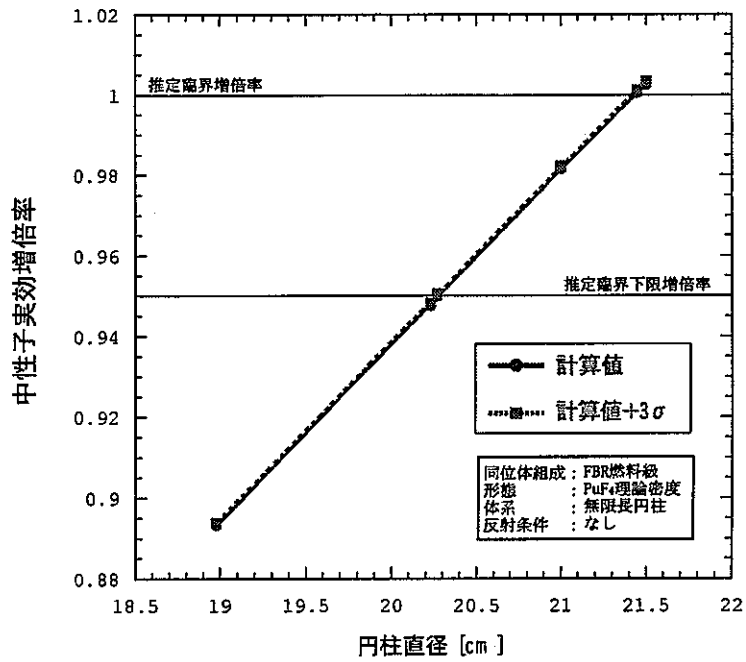
・無限円筒形状、Pu 同位体組成：Pu-239 100 wt%、反射体なし



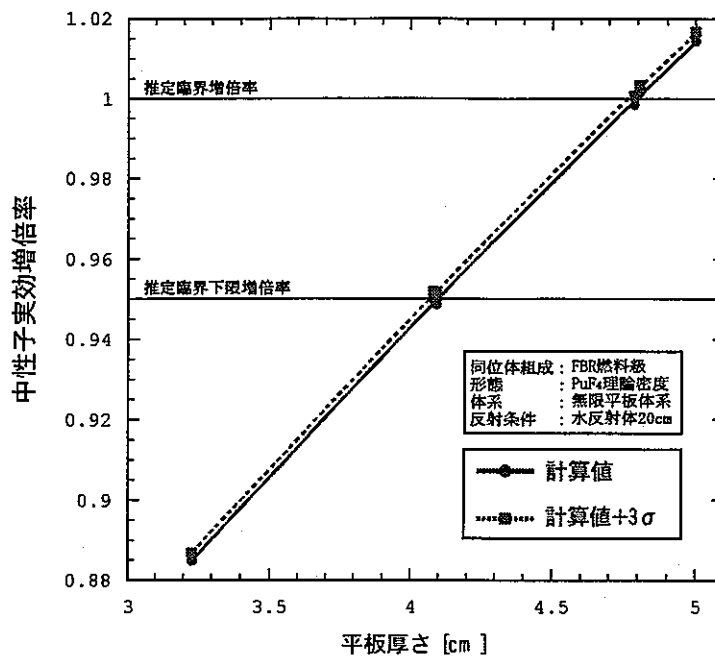
・無限円筒形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、20cm 厚さ水反射条件



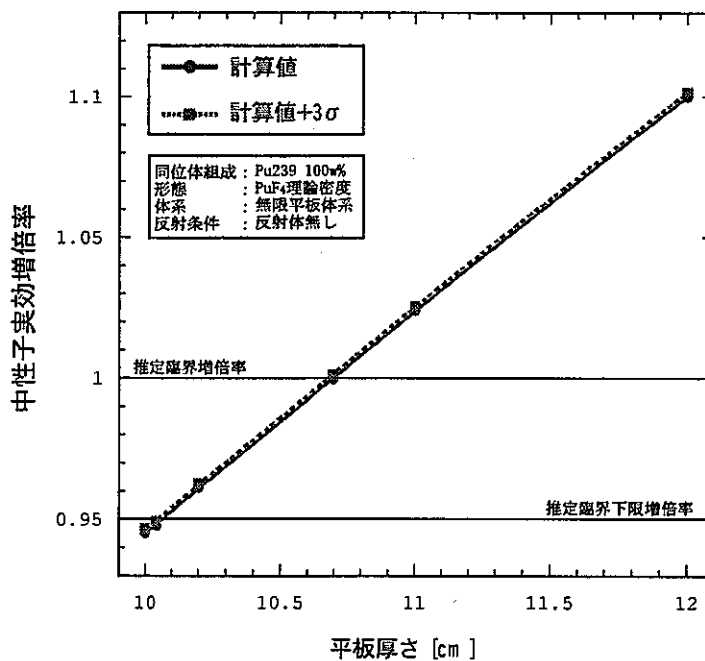
・無限円筒形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、反射体なし



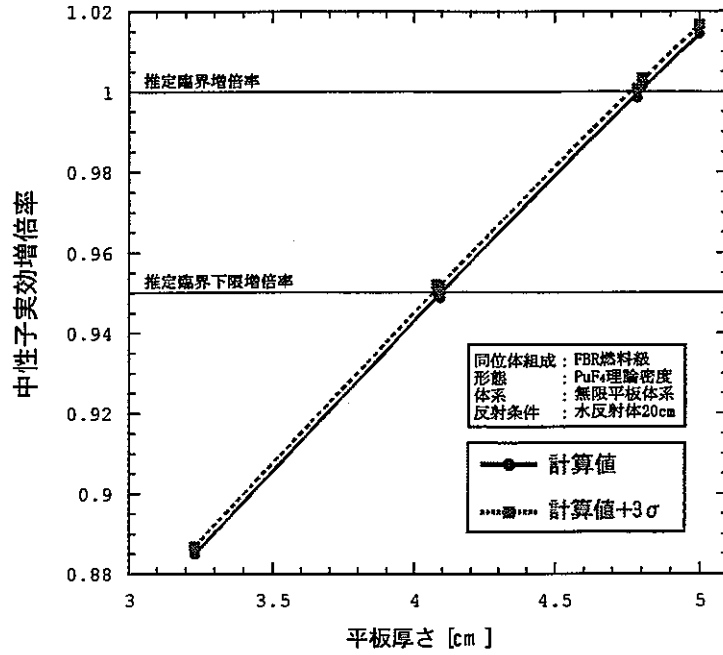
・無限平板形状、Pu 同位体組成 : Pu-239 100 wt%、20cm 厚さ水反射条件



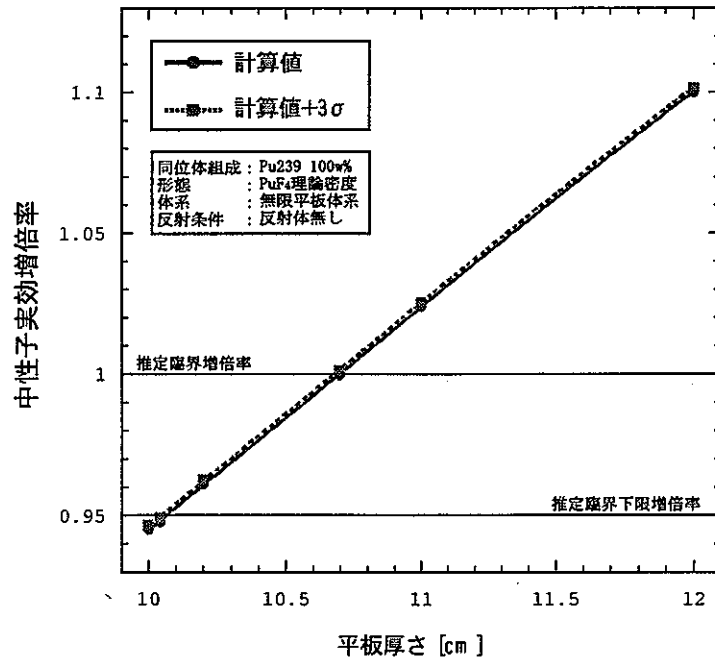
・無限平板形状、Pu 同位体組成 : Pu-239 100 wt%、反射体なし



・無限平板形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、20cm 厚さ水反射条件

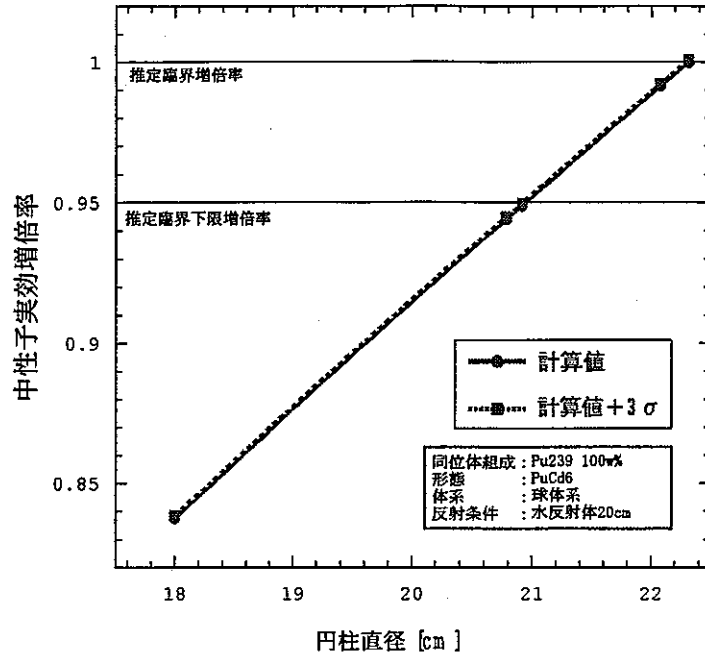


・無限平板形状、Pu 同位体組成：FBR 燃料級、反射体なし

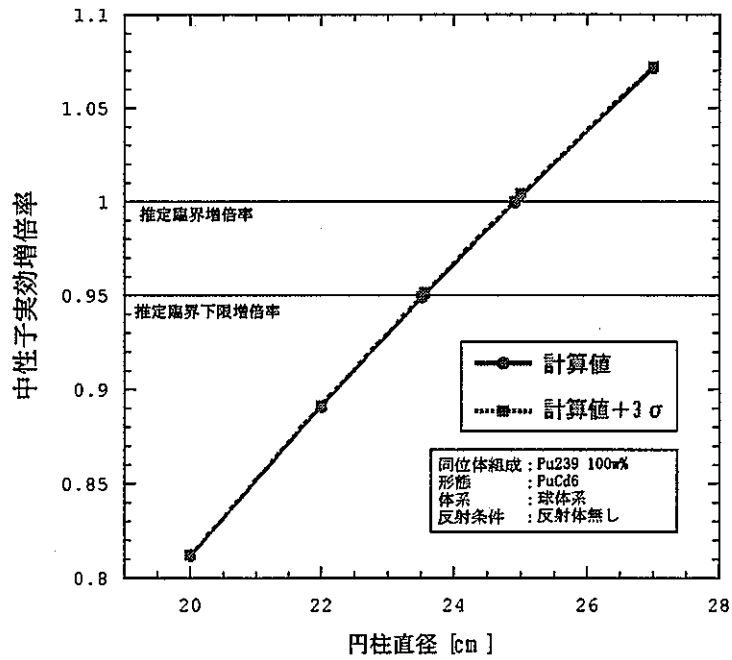


付録1-8 PuCd₆

・球形状、Pu 同位体組成：Pu-239 100 wt%、20cm 厚さ水反射条件

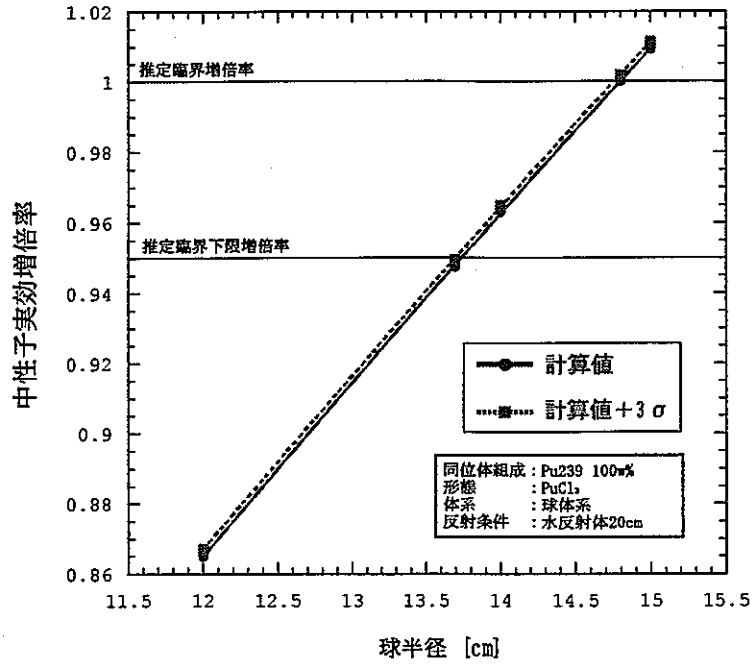


・球形状、Pu 同位体組成：Pu-239 100 wt%、反射体なし

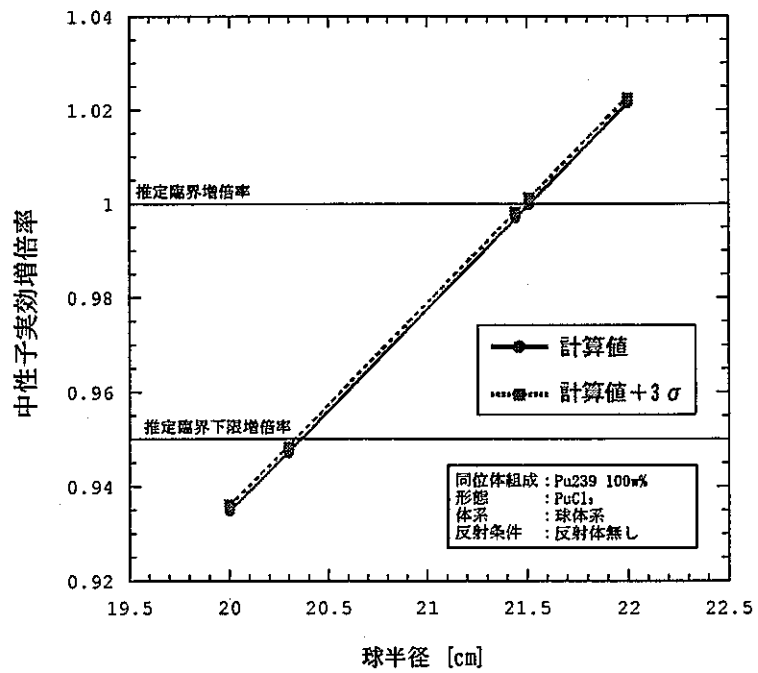


付録1-9 PuCl₃

・球形状、Pu 同位体組成：Pu-239 100 wt%、20cm 厚さ水反射条件

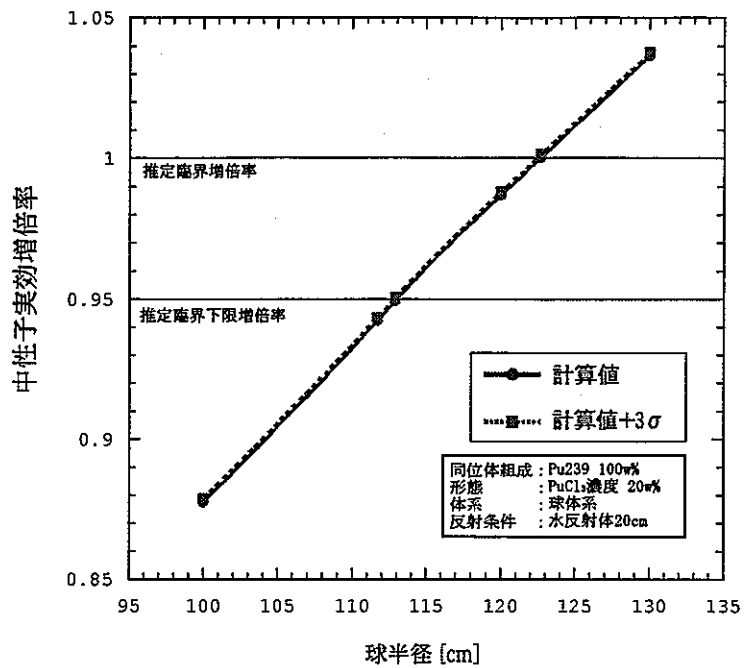


・球形状、Pu 同位体組成：Pu-239 100 wt%、反射体なし



付録1-10 LiCl-KCl-PuCl₃ (PuCl₃濃度 : 20wt%)

・球形状、Pu 同位体組成 : Pu-239 100 wt%、20cm 厚さ水反射条件

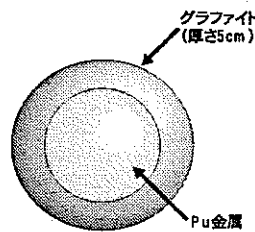


付録 2 機器構造材を想定した体系の臨界計算結果

付録2-1 金属 Pu

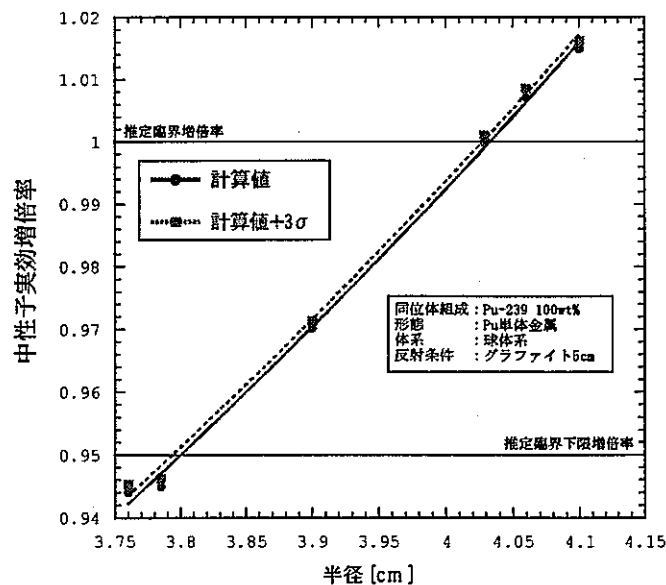
2-1.1 るつば材料

カソードプロセッサ、射出成形機において燃料物質が入るるつばはグラファイト製を想定している。グラファイトは中性子吸収断面積が小さいため十分な厚みがある場合、水全反射よりも高い反応度をもたらす。その効果を確認するために、まずるつばの反射体効果を単純に模擬したモデル(厚さ 5cm のグラファイト反射体)を想定した臨界計算を行った(付録 図 1)。



付録 図 1 るつばの単純化モデル

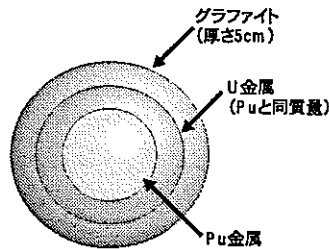
その結果、このモデルでの推定臨界下限値は 4.51kg-Pu であった。これは厚さ 20cm の水反射体モデル(水全反射と等価)よりも多い値であった。



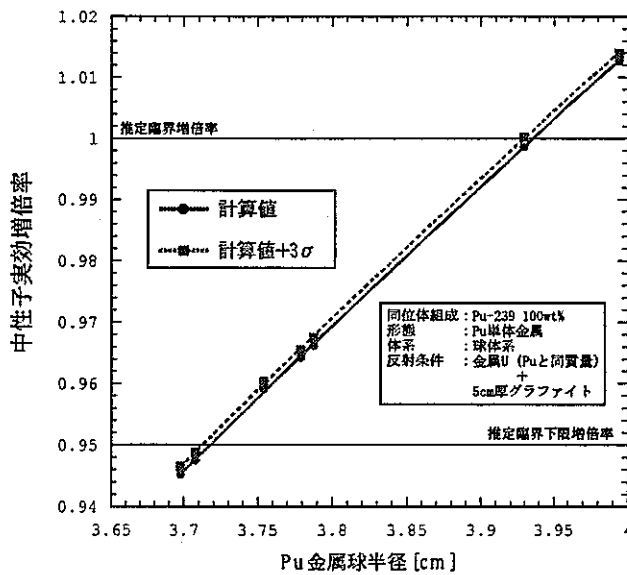
付録 図 2 るつばモデル計算結果

2-1.2 カソードプロセッサ

次に液体陰極で回収した燃料物質をカソードプロセッサで蒸留している時の反射条件を考える。回収物は PuCd_6 と U 金属であるが、高温蒸留によって Cd が蒸留され、グラファイト製のつば内には Pu と U が残される。この場合の最も核的に厳しい状態を単純モデル化したのが付録 図 3 である。これは Pu と同質量の U が単体の金属 Pu の周りに存在し、かつるつば構造材のグラファイトを厚さ 5cm で取り囲んだモデルである。この計算結果（付録 図 4）では推定臨界下限値は 4.24kg-Pu となった。これは厚さ 20cm の水反射体モデル（水全反射と等価）よりも小さい値で、核的に厳しくなる。このことから、カソードプロセッサの最大許容値／核的制限値を決める基準はこのモデルでの推定臨界下限値 4.24kg-Pu を基準としなくては考えられる異常事象に対応できないことがわかる。



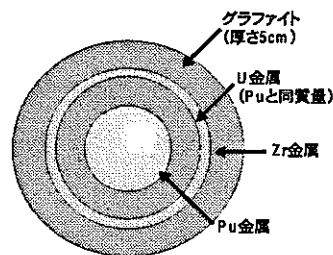
付録 図 3 カソードプロセッサの単純化モデル



付録 図 4 カソードプロセッサモデルの計算結果

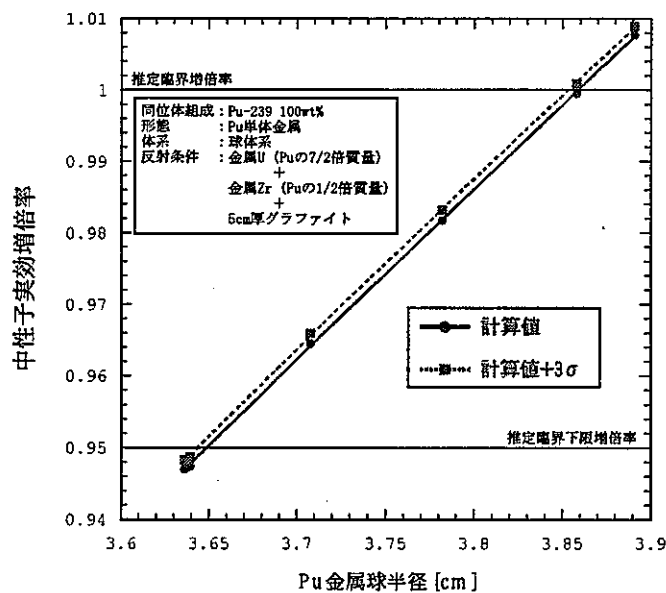
2-1.3 射出成形機

射出成形機では、カソードプロセッサの状態に加えてより多くのU金属と Zr金属が存在する。射出成形機では新燃料の規格通りの組成に調整するため、ここではUが70wt%、Puが20wt%、Zrが10wt%としたので、それに応じた質量比の反射体を付録 図 5 のように単純モデル化した。



付録 図 5 射出成形機の単純化モデル

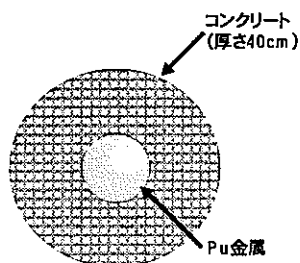
この計算結果は4.01kg-Puとなったので、射出成形機の最大許容値/核的制限値の設定にはこの値を用いた。現実にははじめに装荷する材料として単体のPu金属を投入しない限りはUとPuの分離が生じるとは考えにくいので、このモデルは十分な安全裕度を含んでいる。もし、管理によって単体のPu金属の投入の可能性を排除できるのであればU-Puは混合した状態で核的制限値の設定を行うことが可能となると考えられる。



付録 図 6 射出成形機単純化モデルの計算結果

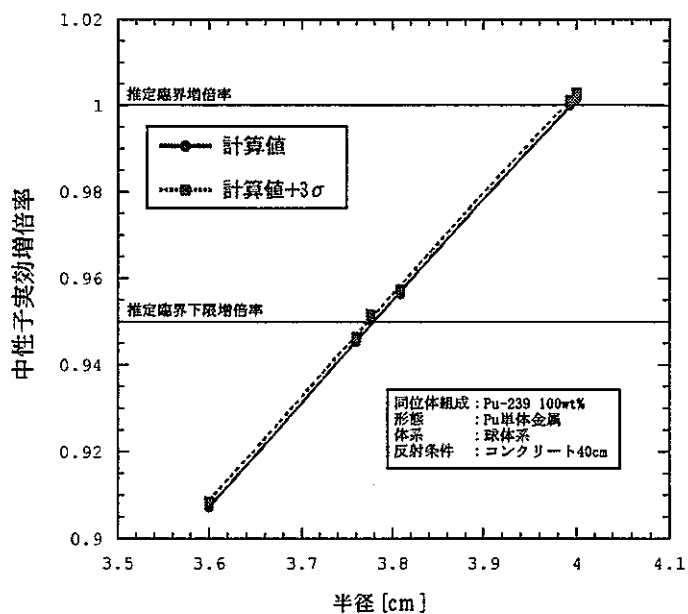
2-1.4 コンクリート

セル構造材であるコンクリートの反射体効果を計算した。機器をセル床等に埋め込む場合にはコンクリートの反射体効果を考慮する必要がある。モデルは付録図 7 で、厚さ 40cm のコンクリートのもたらず反射体効果は無限に広がるコンクリートの反射体効果と等価である。



付録 図 7 金属 Pu-コンクリート反射体モデル

計算の結果、推定臨界下限値は 4.42kg-Pu であった。



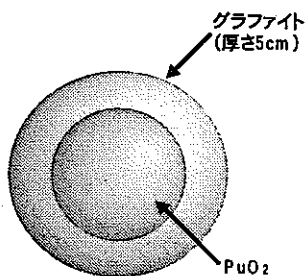
付録 図 8 金属 Pu-コンクリート反射体モデルの計算結果

付録2-2 PuO₂

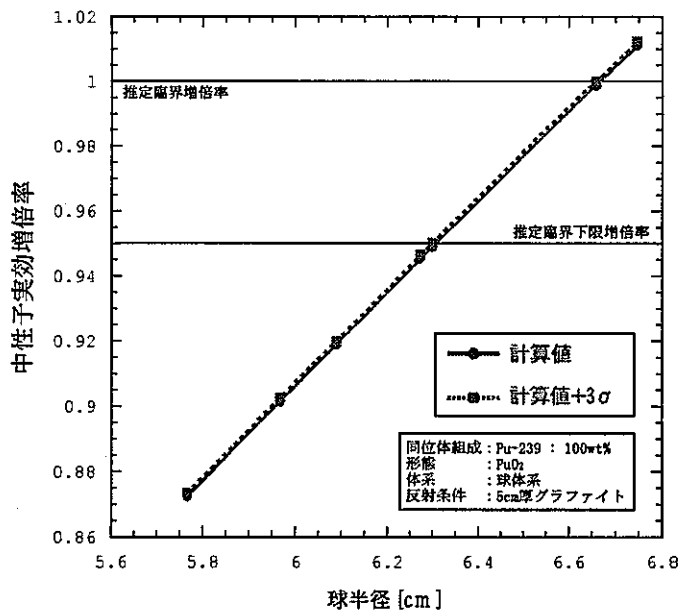
2-2.1 電解槽

酸化物電解法の電解槽はパイログラファイト製を想定している。金属電解法と同様にグラファイトの反射体効果を単純化モデルで確認する（付録 図 9）。

計算結果より、推定臨界下限値は 10.58kg-Pu であり、これは水全反射の場合よりも大きい値である。すなわち、電解槽の核的制限値設定の基準を水全反射にした場合、十分余裕があるといえる。



付録 図 9 酸化物電解法—電解槽単純化モデル

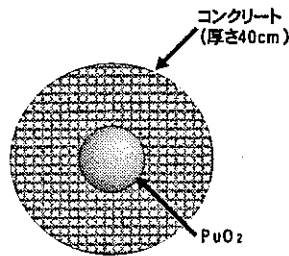


付録 図 10 酸化物電解法—電解槽単純化モデル計算結果

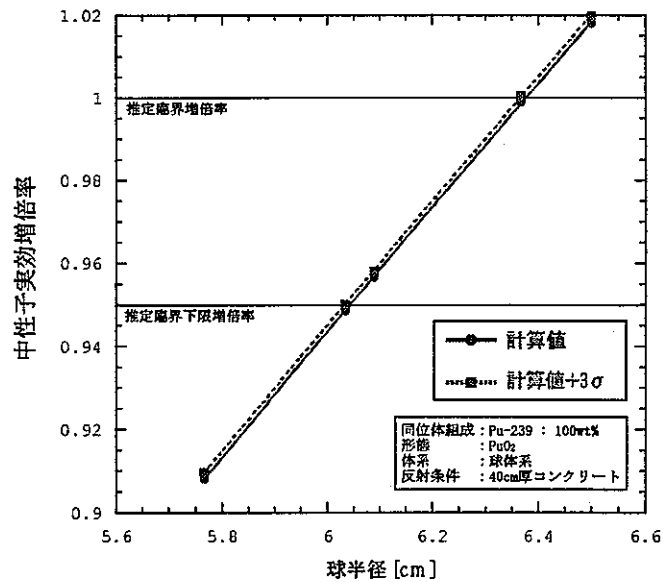
2-2.2 コンクリート

セル構造材のコンクリートが与える反射体効果を調べるために付録 図 11 の単純モデルで計算を行った。

その結果推定臨界下限値は 9.28kg-Pu であり、これは水全反射の場合よりも小さい値であることがわかった (付録 図 12)。このことより、機器をセル床等に埋め込む場合には水全反射の推定臨界下限値を基準として設定した核的制限値は再評価する必要がある。



付録 図 11 PuO₂-コンクリート反射体モデル



付録 図 12 PuO₂-コンクリート反射体モデル計算結果

付録 表 1 臨界計算インプット例

```

MVP: Pu Metal Sphere with White Reflector
Phase : alpha(19.86g/cm^3)
* ... options ...
*
NEUTRON
NO-LATTICE RUSS-ROUL NO-RESTART
FISSION EIGEN-VALUE FLUX-PRINT
**EDIT-MACR-DATA(02202000)
EDIT-MICR-DATA(02202020)
DYNAMIC-MEMORY( 18000000 )
**DYNAMIC-MEMORY( 5500000 )
NO-UNIVERSE-DEPENDENT-TALLY
**NO-REPRODUCIBLE-RUN
ONE-ZONE
* ... end of options ...

% NG=70
NGROUP(<NG>) NMEMO(45) TCPU(0)

* ... History number control ...
NPART(3000000) NHIST(20000) IRAND(199310182)
NSKIP(50)
NBANK(<NINT(1.1*%NHIST)>) NFBANK(<%NHIST>)
ETOP(1.0E+7) EBOT(1.0E-5) EWCUT(4.5)
ETHMAX(4.5) AMLIM(250.)

***** CROSS SECTION DATA *****
*
$XSEC
* Pure Pu-239 Metal : 300K
& IDMAT(1)
PU9003J3( 5.00296E-02)
* Light Water : 300K
& IDMAT(3)
H01H03J3( 6.66210E-2)
O06003J3( 3.33105E-2)
$END XSEC

$GEOM
*****
***** BODY DATA *****
*****
% RAD = 3.91712

```

```

% THICK = 20.000

% REF_RAD = <RAD + THICK>

SPH ( 100 0.0 0.0 0.0 <RAD> )
SPH ( 200 0.0 0.0 0.0 <REF_RAD> )
END

/**** Zones ****
*** reflection conditions ***
* 0 =: Inner Void
* -1000 =: Void
* -2000 =: Mirror Refraction
* -3000 =: White Reflection

*** Material ID Mapping ***
% PU100 = 1, WATER = 2

BND : Boundary : -1000 : -200
REF : Reflector: <WATER> : +200 -100
FIS : fissile : <PU100> : 100

$END GEOMETRY

*** RESPLA 70 Group Energy Structure ***
ENGYB (
0.10000E+08 0.60655E+07 0.36790E+07 0.22310E+07 0.13530E+07 0.82100E+06
0.50000E+06 0.30250E+06 0.18300E+06 0.11100E+06 0.67340E+05 0.40850E+05
0.24780E+05 0.15030E+05 0.91180E+04 0.55300E+04 0.35191E+04 0.22394E+04
0.14251E+04 0.90690E+03 0.36726E+03 0.14873E+03 0.75501E+02 0.48052E+02
0.27700E+02 0.15968E+02 0.98770E+01 0.40000E+01 0.33000E+01 0.26000E+01
0.21000E+01 0.18550E+01 0.15000E+01 0.13000E+01 0.11500E+01 0.11230E+01
0.10970E+01 0.10710E+01 0.10450E+01 0.10200E+01 0.99600E+00 0.97200E+00
0.95000E+00 0.91000E+00 0.85000E+00 0.78000E+00 0.62500E+00 0.50000E+00
0.40000E+00 0.35000E+00 0.32000E+00 0.30000E+00 0.28000E+00 0.25000E+00
0.22000E+00 0.18000E+00 0.14000E+00 0.10000E+00 0.80000E-01 0.67000E-01
0.58000E-01 0.50000E-01 0.42000E-01 0.35000E-01 0.30000E-01 0.25000E-01
0.20000E-01 0.15000E-01 0.10000E-01 0.50000E-02 1.00000E-05
)

% NR = %NREG
% NRG = NR*NG
NSOUR(1) KSOUR(4)
PSPAC( 0.0 0.0 0.0 <RAD*0.7> 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 )
IFISM(PU9003J3) SOUR(1.0)
/

```