

# 不要元素除去による高速炉リサイクル概念 「ORIENT サイクル」の炉心への影響評価

( 研究報告 )

2003 年 5 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 4 9  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課  
電話：029-282-1122（代表）  
ファックス：029-282-7980  
電子メール：[jserv@jnc.go.jp](mailto:jserv@jnc.go.jp)

**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 )  
2 0 0 3

# 不要元素除去による高速炉リサイクル概念 「ORIENT サイクル」の炉心への影響評価

( 研究報告 )

大木 繁夫

## 要 旨

不要元素除去による高速炉リサイクル概念である ORIENT サイクル (平成 13 年度検討概念) について、再処理後の新燃料に随伴する核分裂生成物 (FP: Zr, Mo, Pd, Cs, Ce, Nd, Sm 等) による炉心特性への影響を評価した。ナトリウム冷却酸化物燃料大型高速炉における 1 回リサイクル後の燃焼反応度 (燃料サイクル過剰反応度) の増加量は、湿式再処理ベースの ORIENT サイクルでは約 0.7 %  $k/kk'$ 、乾式再処理 (金属電解法) ベースの ORIENT サイクルでは約 0.3 %  $k/kk'$  である。増殖比は湿式ベース概念で約 0.05、乾式ベース概念で約 0.02 減少する。なお、Na ボイド反応度やドブプラ一係数も悪化するが、燃焼反応度や増殖比に比べ影響は小さい。

多重リサイクルを行った場合、随伴 FP の蓄積により炉心特性への影響はさらに悪化する。燃焼反応度の増加量は、湿式ベース概念では最大 2%  $k/kk'$ 、乾式ベース概念では最大 1%  $k/kk'$  程度となる。炉心特性への影響は大きく、FP 除去率の向上等のさらなる検討を必要とする。

---

本報告書は FBR サイクル実用化戦略調査研究フェーズ II 計画 (WBS) 111110 「大型 Na 炉の炉心・燃料設計研究」に係る平成 14 年度の検討結果をまとめたものである。

大洗工学センター システム技術開発部 中性子工学グループ

# Influences on Reactor Core Characteristics with Respect to the “ORIENT-Cycle” - Fast Reactor Recycle Concept Based on Removal of Impedimental Elements

OHKI Shigeo

## Abstract

“ORIENT-cycle” is a fast reactor recycle concept based on removal of impedimental elements. With respect to the ORIENT-cycle examples developed in 2001, this report summarizes influences on core characteristics caused by the remaining fission products (FPs) in recycled fuel such as Zr, Mo, Pd, Cs, Ce, Nd, Sm, etc. In the case of one ORIENT-cycle example based on aqueous reprocessing, burnup reactivity (fuel cycle excess reactivity) of a conventional large fast reactor (sodium-cooled, MOX fueled) increases by about 0.7 %  $k/kk'$  after the first recycle. For another kind of ORIENT-cycle example based on pyro-chemical reprocessing, burnup reactivity increases by about 0.3 %  $k/kk'$  after the first recycle. Breeding ratio decreases by about 0.05 for the aqueous reprocessing case, and by about 0.02 for the pyro-chemical reprocessing case. Sodium void reactivity and Doppler constant also deteriorate, but these influences are small compared with burnup reactivity and breeding ratio.

Due to the accumulation of FPs by multiple recycle, influences on the core characteristics become larger. Increment of burnup reactivity rises up to 2 %  $k/kk'$  for the aqueous reprocessing case, while 1%  $k/kk'$  for the pyro-chemical reprocessing case. To reduce the above-mentioned significant influences, we need more efforts on increase of FP extraction coefficients and so on.

# 目 次

1 . はじめに .....	1
2 . ORIENT サイクルにおいて炉心に移行する FP .....	2
2-1 ORIENT サイクル (湿式ベース概念、乾式ベース概念) .....	2
2-2 熱処理のみの場合 .....	3
3 . 炉心特性への影響評価方法 .....	9
4 . 炉心特性への影響評価結果 .....	17
4-1 湿式ベース ORIENT サイクル .....	17
4-2 乾式ベース ORIENT サイクル .....	17
4-3 熱処理のみのリサイクル .....	18
5 . まとめ .....	27
参考文献 .....	28

## 表リスト

表 1	ORIENT サイクルにおける FP 元素移行率の設定	4
表 2	熱処理のみのリサイクルにおける FP 元素移行率の設定	5
表 3	FP の同位体組成	13
表 4	酸化物燃料における残留 FP の化学形の仮定	14
表 5	ORIENT サイクルにおいて炉心燃料に随伴する FP の FP 等価係数と FP 体積割合	19
表 6	ORIENT サイクルにおけるリサイクルに伴う燃焼反応度及び増殖比の変化(平成 11 年度 Na-MOX レファレンス炉心)	20
表 7	熱処理のみのリサイクルを導入した場合に炉心燃料に随伴する FP の FP 等価係数と FP 体積割合	21
表 8	熱処理のみのリサイクルを導入した場合の燃焼反応度の変化(平成 11 年度 Na-MOX レファレンス炉心)	22

## 図リスト

図 1	ORIENT サイクル概念	6
図 2	ORIENT サイクルにおいて炉心側に移行する核分裂生成物(湿式、乾式ベース概念)	7
図 3	熱処理のみのリサイクルで炉心側に移行する核分裂生成物	8
図 4	平成 11 年度 Na-MOX レファレンス炉心	15
図 5	FP 等価係数(代表核種 $^{143}\text{Nd}$ )と FP 体積割合をパラメータとした燃焼反応度の変化(平成 11 年度 Na-MOX レファレンス炉心)	16
図 6	燃焼反応度変化に対する元素別寄与(ORIENT 湿式、1 回リサイクル後)	23
図 7	燃焼反応度変化に対する元素別寄与(ORIENT 乾式、1 回リサイクル後)	24
図 8	燃焼反応度変化に対する元素別寄与(熱処理のみ、1 回リサイクル後)	25
図 9	リサイクルに伴う燃焼反応度の増加	26

## 1. はじめに

ORIENT サイクル ( Optimization by Removing Impedimental Elements ) は、従来の「必要な燃料物質だけを純粋に回収する」という考え方から、「リサイクルの障害となる物質を取り除く」という考え方に発想を転換した新しいリサイクル概念であり、平成 13 年度にサイクル機構において編成された「新リサイクル技術検討会」において提案された。同検討会の活動により、現行の酸化物燃料を対象とした湿式再処理、並びに金属燃料を対象とした乾式再処理をベースに、高レベル廃棄物を処分するガラス固化体の発生本数低減を目標とした分離プロセス例が構築された。

平成 13 年度の炉心特性への影響評価においては、無限増倍係数 (  $k$  ) に着目したりサイクル平衡状態を直接解く評価方法が用いられた。そこでの結論は、ORIENT サイクルによる体系反応度への影響は比較的小さく、無限回りサイクル後で  $0.6\% \quad k/k'$  未満であった<sup>[1]</sup>。

本報告書で述べる平成 14 年度の炉心特性への影響評価では、平成 13 年度の概略評価を補完するために、**炉心設計者が炉心特性影響をイメージできる程度のより現実的な評価**を行うものとした。評価方法には FBR\* サイクル実用化戦略調査研究 ( F/S ) フェーズ I において、低除染燃料中の残留 FP\*\* の炉心影響評価に導入した FP 等価係数と FP 体積割合をパラメータとした方法<sup>[2]</sup>を用いた。

平成 13 年度の概略評価では ORIENT サイクルの体系反応度への影響は比較的小さく、炉心側に移行する FP の量を増やす余地が示された。また湿式再処理ベースの ORIENT サイクルの前処理工程である熱処理の改良検討が行われ、従来に比べ熱処理だけで除去できる FP 量が増加する見通しを得た。改良された熱処理のみで数回のリサイクルが成立すれば、再処理コストの大幅な削減が期待できる。そこで、もう一つの平成 14 年度検討項目として、**熱処理のみのリサイクルを導入しフル再処理を数回に一回程度とする可能性の検討**を、炉心特性に与える影響の観点から行うことにした。

---

\* FBR: 高速増殖炉 ( Fast Breeder Reactor ) の略称

\*\* FP: 核分裂生成物 ( Fission Product ) の略称

## 2. ORIENT サイクルにおいて炉心に移行する FP

本章では ORIENT サイクルにおいて炉心に移行する FP について概観する。まず、ガラス固化体の発生本数低減を目標とした平成 13 年度の検討内容をレビューし、その結果として湿式ベース概念、乾式ベース概念それぞれにおいて炉心に移行する FP がどのような元素組成となっているかを示す。さらに、熱処理のみでリサイクルを行う場合に炉心に移行する FP 元素組成について説明する。

### 2-1 ORINET サイクル（湿式ベース概念、乾式ベース概念）

平成 13 年度の ORIENT サイクルの検討では高レベル廃棄物を処分するガラス固化体の発生本数低減のため、以下に示す 安定・準安定元素、 発熱性元素、 Mo 及び白金属元素、が主な分離対象とされた。図 1 はそれら ORIENT サイクル概念を説明したものである。

#### 安定・準安定元素の分離

炉心反応度への影響の軽減と高レベル廃棄物の削減のため、中性子吸収が大きく且つ安定・準安定な元素を分離し、それらを（可能であれば）低レベル放射性廃棄物として浅地層処分する。分離対象となる安定 FP 元素は Mo, Xe であり、半減期 450 億年以上の準安定 FP 元素が Rb, Y, Ru\*, Rh, Te, Ba, La, Ce\*, Pr, Nd, Gd である（\* ただし、Ru と Ce については短寿命核種の崩壊に 4 年以上の期間が必要）。なお、中性子吸収が大きく且つ放射性を持つ Zr, Ag, Sm, Eu とその他の回収不能の FP 元素が高レベル放射性廃棄物側に移行する。

#### 発熱性元素の分離

ガラス固化体の発熱量低減のため、発熱性 FP 元素（Sr, Cs）を分離する。これにより、ガラス固化体の設置間隔を縮めることができ貯蔵施設の有効利用を図ることができる。

#### Mo 及び白金属元素の分離

Mo 及び白金属元素（Ru, Pd）の分離はガラス固化体の廃棄物含有制限緩和に有効である。Mo はガラス固化体の耐久性低下の原因となる相分離物の主成分であり、Ru, Pd は現状のガラス固化プロセスにおける通電加熱炉の運転に悪影響を及ぼす元素である。

その他のニーズとして、核変換のための Tc 及び I の分離、有用元素である Se, Tc, Ru, Rh, Pd, Ag, Te の分離等が考慮されている。



現状の再処理技術（湿式、乾式（金属電解法））をベースに上記不要元素を取り除く分離プロセスを検討した結果、炉心側への FP 元素の移行率は表 1 のように得られている。燃焼度 15 万 MWd/t の高速炉使用済み燃料中の FP 元素組成に、湿式ベース及び乾式ベースそれぞれの ORIENT サイクルによる移行率を乗じて算出した再処理後の新燃料に随伴する FP 元素組成を図 2 に示す。

湿式ベース概念では、前処理工程での熱処理において、酸化・還元温度を従来より高めることにより（還元温度：1400～1500、酸化温度：1000）できるだけ多くの元素の除去を想定している。揮発性の Tc, Ru, Rh, Cs 等の除去率増加に加え、Sr, Mo も大部分除去されるとしている。さらに、再処理フローの後段には不要元素を最大限分離・回収する工程が検討されている。それらは、電解抽出工程（Zr, Mo の分離）、電解溶解工程（Se, Rh, Pd, Te の分離）、DC18C6\* 薄膜分離工程（Rb, Sr, Ag, Ba の分離）、イオン交換工程（その他の不要 FP の分離）である。結果として、炉心側に移行する主な FP は、Zr（移行率 0.4）、Mo から Pd にかけての遷移金属元素（移行率 0.1～0.2）、La から Sm にかけての希土類元素（移行率 0.3～0.5）、その他 Cs, Ba（移行率 0.1）となっている。

乾式ベース概念は、FBR サイクル実用化戦略調査研究において検討している金属電解法を大幅に変えずに、不要元素の分離・回収工程を追加したものである。不要元素の分離・回収工程として次の 3 つが検討された： 解体・ボンドナトリウム除去工程でのオフガスからの Rb 及び Te の回収、電解分離工程の残渣からの Tc 及び Pd の回収、

使用済み塩処理工程での希土類元素の回収、ハロゲン（I 等）の回収、Cs の回収。結果として、炉心側に移行する主な FP は Zr であり（移行率 0.75）、他に La から Nd までの希土類元素が若干見られる（移行率 0.03～0.06）、Zr を除き、乾式ベース概念の随伴 FP 量は湿式ベース概念に比べ少ない。

## 2-2 熱処理のみの場合

湿式ベース概念の検討の中で、酸化・還元温度を高め、できるだけ多くの元素の除去を目指した熱処理法が検討された。この熱処理のみでリサイクルを行う場合の炉心側への FP 移行率を表 2 に、燃焼度 15 万 MWd/t の高速炉使用済み燃料を熱処理した後に、新燃料に随伴する FP を図 3 に示す。Kr, I, Xe といった揮発性元素の移行率は 0.005 でほとんど分離される。Ge, Y, Zr, Nb, Rh, Pd, Sn, Ba 及び希土類元素については移行率が 1 であり、熱処理では除去されない。他の FP については、金属単体あるいは酸化物形態いずれかの低沸点を利用した酸化・還元除去による移行率が設定されており、主なものとして Mo, Tc, Te は 0.2、Ru, Cs は 0.1 となっている。

---

\* DC18C6: Dicyclohexyl-18-crown-6

表 1 ORIENT サイクルにおける FP 元素移行率の設定

原子番号	元素名	生成量 <sup>※1</sup> (g/tHM)	炉心への移行率		備考
			湿式分別	乾式分別	
34	Se	16	0.190	0.001	
35	Br	50	0.005	0.001	
36	Kr	1010	0.005	0.000	
37	Rb	890	0.100	0.001	準安定
38	Sr	1870	0.100	0.001	発熱
39	Y	1040	0.270	0.001	準安定
40	Zr	11000	0.370	0.750	
41	Nb	0	0.980	0.005	
42	Mo	13600	0.100	0.005	安定
43	Tc	3310	0.190	0.005	核変換
44	Ru	12400	0.100	0.005	準安定
45	Rh	3650	0.190	0.005	準安定
46	Pd	10900	0.190	0.005	
47	Ag	1010	0.190	0.005	
48	Cd	915	0.180	0.001	
49	In	40	0.980	0.001	
50	Sn	760	0.980	0.001	
51	Sb	18	0.980	0.001	
52	Te	2700	0.100	0.005	準安定
53	I	1450	0.005	0.001	核変換
54	Xe	19300	0.005	0.000	安定
55	Cs	15600	0.100	0.001	発熱/核変換
56	Ba	6850	0.100	0.001	準安定
57	La	4940	0.270	0.028	準安定
58	Ce	8940	0.270	0.058	準安定
59	Pr	4620	0.270	0.056	準安定
60	Nd	15100	0.270	0.058	準安定
61	Pm	235	0.470	0.058	
62	Sm	4740	0.470	0.001	
63	Eu	476	0.470	0.001	
64	Gd	563	0.270	0.029	準安定
65	Tb	33	0.970	0.056	
66	Dy	33	0.970	0.058	

※1 酸化物燃料、燃焼度150GWd/t、4年冷却の場合

(新リサイクル技術検討会, “FBR サイクルの特長を活かす新しいリサイクル技術”, 平成 14 年 1 月 より)

表2 熱処理のみのリサイクルにおけるFP元素移行率の設定

原子番号	元素名	炉心への移行率
32	Ge	1
33	As	0.2
34	Se	0.2
35	Br	0.005
36	Kr	0.005
37	Rb	0.2
38	Sr	0.2
39	Y	1
40	Zr	1
41	Nb	1
42	Mo	0.2
43	Tc	0.2
44	Ru	0.1
45	Rh	1
46	Pd	1
47	Ag	0.7
48	Cd	0.2
49	In	0.7
50	Sn	1
51	Sb	0.7
52	Te	0.2
53	I	0.005
54	Xe	0.005
55	Cs	0.1
56	Ba	1
57	La	1
58	Ce	1
59	Pr	1
60	Nd	1
61	Pm	1
62	Sm	1
63	Eu	1
64	Gd	1
65	Tb	1
66	Dy	1
67	Ho	1
68	Er	1

(新リサイクル技術検討会における検討に基づく)

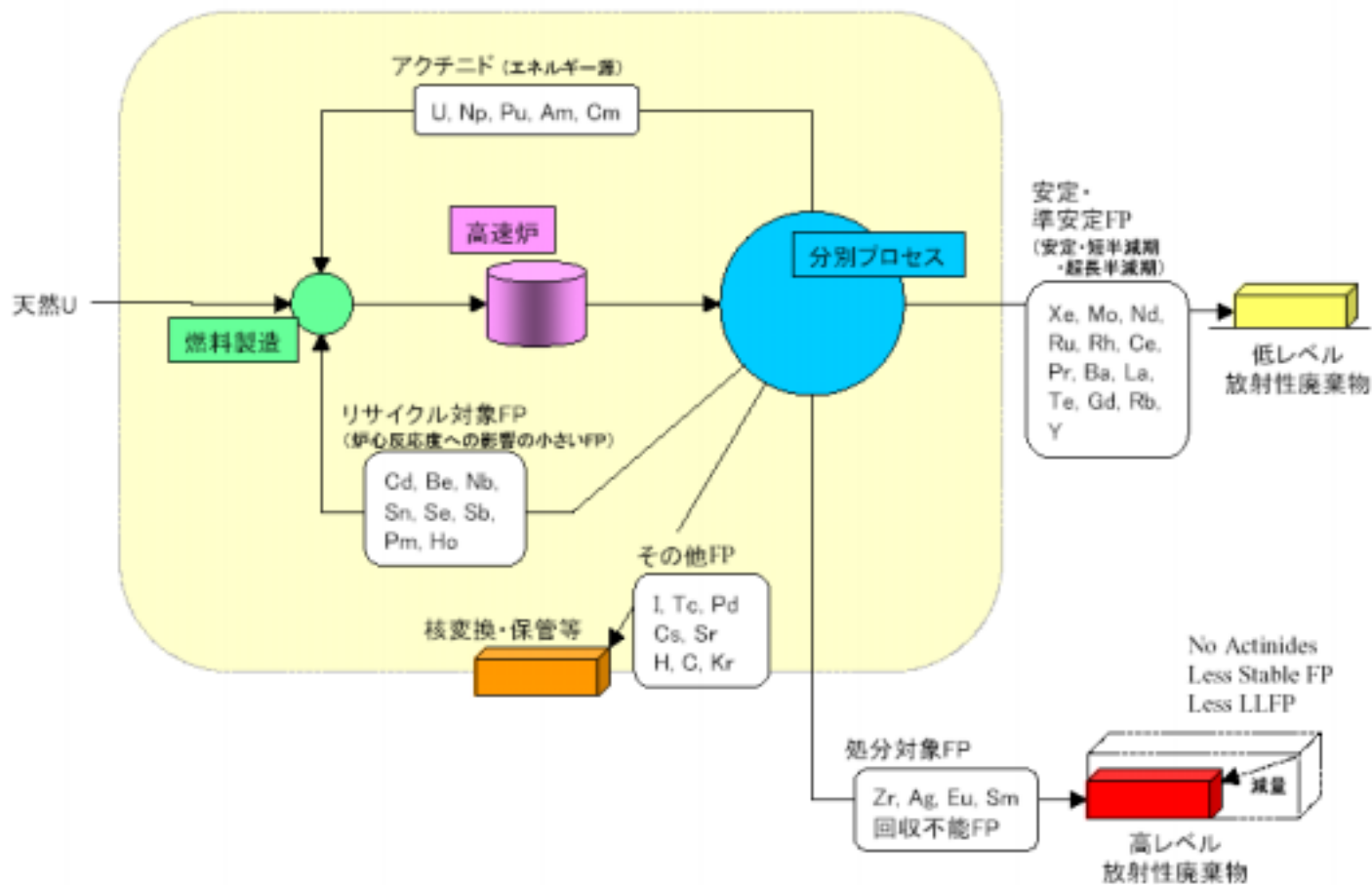


図1 ORIENT サイクル概念

(ORIENT: Optimization by Removing Impedimental Elements)

(新リサイクル技術検討会, “FBR サイクルの特長を活かす新しいリサイクル技術”, 平成 14 年 1 月 より)

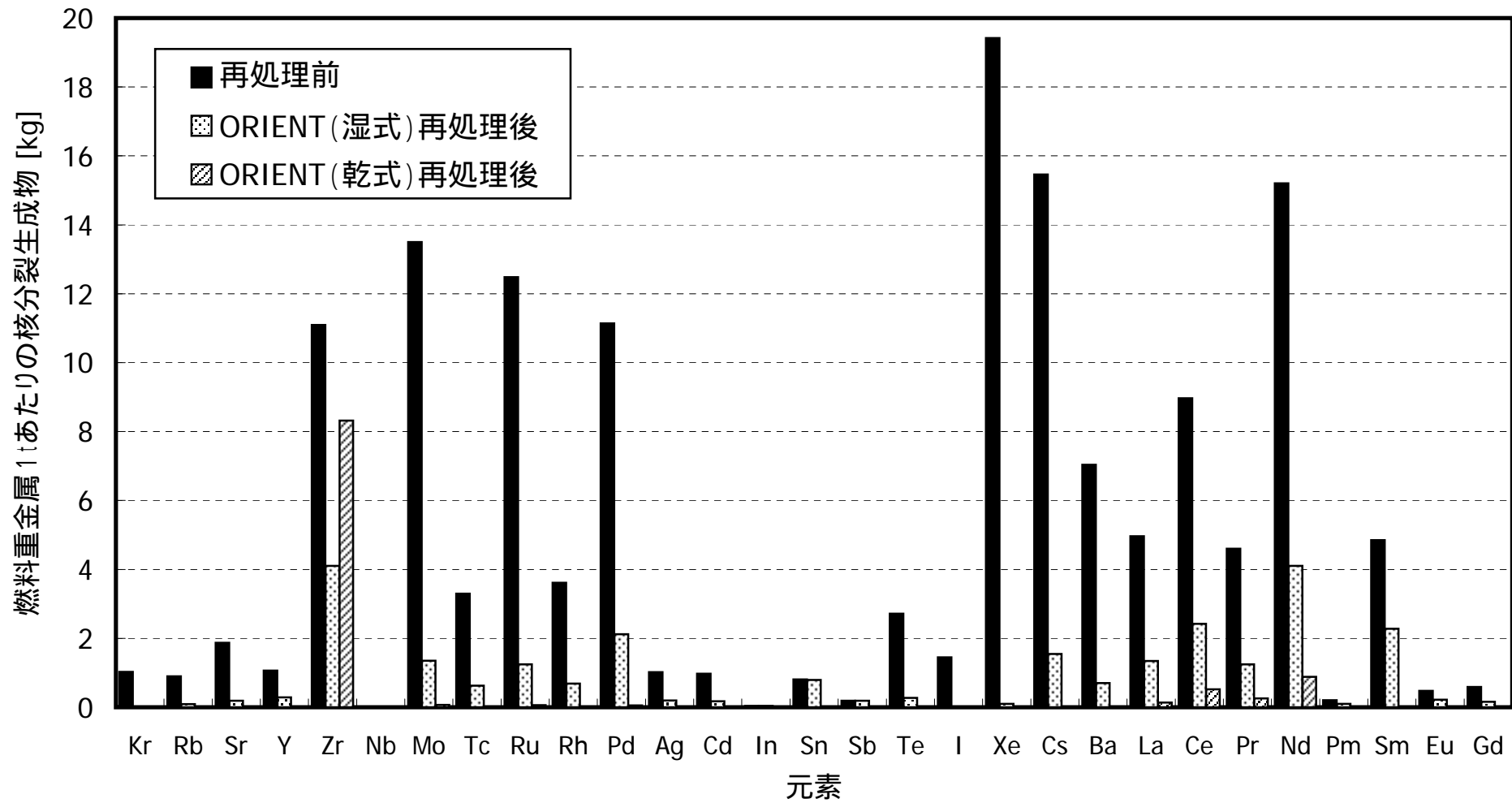


図2 ORIENTサイクルにおいて炉心側に移行する核分裂生成物(湿式、乾式ベース概念)

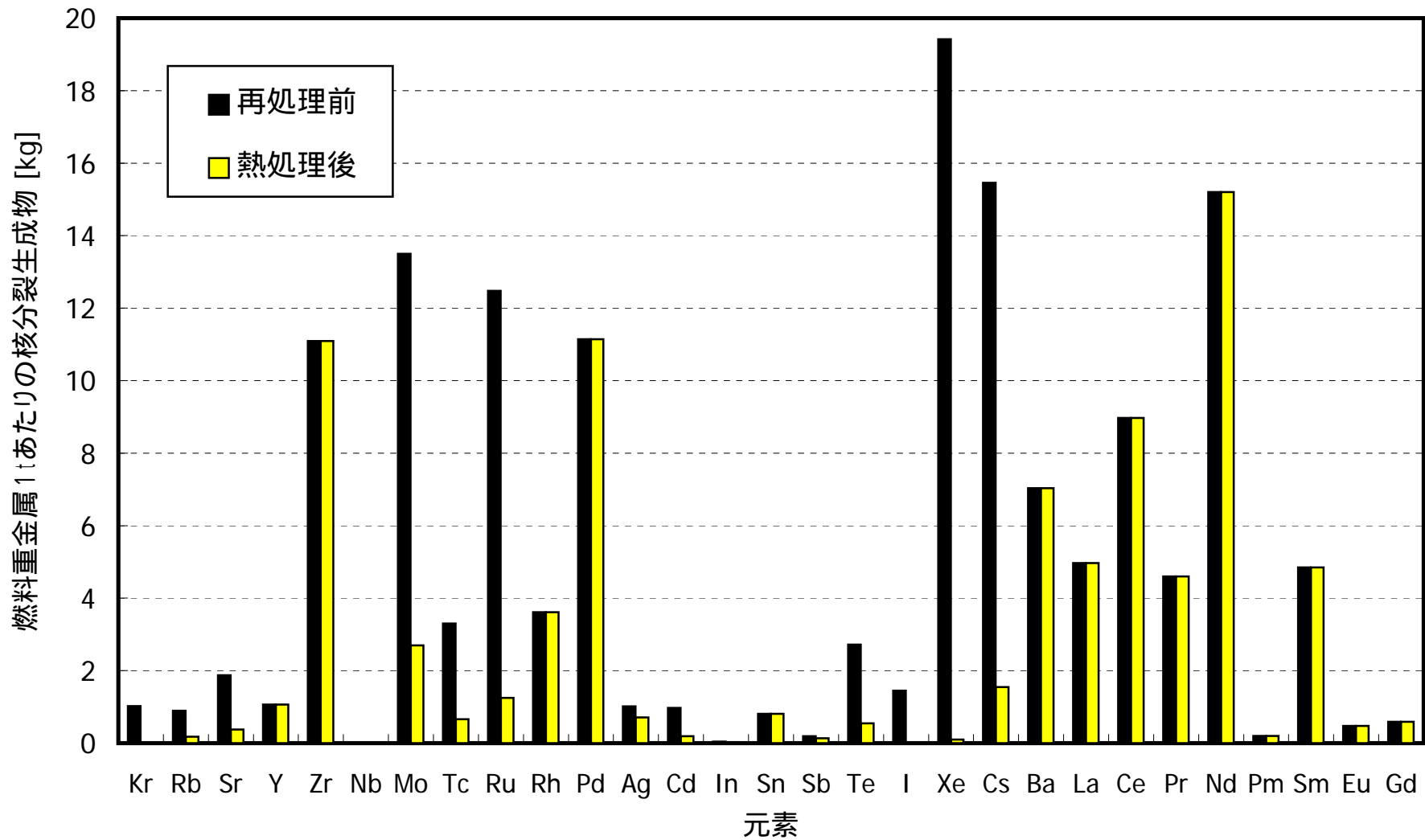


図3 熱処理のみのリサイクルで炉心側に移行する核分裂生成物

### 3. 炉心特性への影響評価方法

炉心特性への影響評価には、F/S フェーズ I で低除染燃料中の残留 FP の炉心影響評価に用いた簡易的方法を適用した。同方法は代表 FP 核種 ( $^{143}\text{Nd}$ ) を基準とした FP 等価係数と燃料中の FP 化合物の体積割合をパラメータとして炉心特性影響を評価するものである。同評価方法の詳細については参考文献[2]を参照するものとし、ここでは概要のみを示す。

FP 等価係数  $\alpha$  は、燃料に付随する残留 FP を代表核種 ( $^{143}\text{Nd}$ ) で置き換えたときの、両者の中性子捕獲反応の比として定義する：

$$\alpha = \frac{\sum_{i \in \text{FP}} \sigma_c^i N_i}{\sigma_c^{\text{Nd143}} N_{\text{Nd143}}^{(\text{reference})}} \quad (1)$$

ここで、 $\sigma_c^i$  は核種  $i$  の中性子捕獲反応断面積、 $N_i$  は核種  $i$  の個数密度である。FP 等価係数の分母と分子において FP 化合物が燃料を占める体積は同一とし、燃料中の FP 体積割合自体は独立したパラメータとして扱う。

平成 11 年度 Na-MOX\* レファレンス炉心 (図 4 に炉心平面図を示す)<sup>[3]</sup> の炉心燃料に FP が混入する場合の燃焼反応度の変化を、FP 等価係数と FP 体積割合をパラメータとしてプロットしたものを図 5 に示す。FP 等価係数及び FP 体積割合の増加に伴い、燃焼反応度の増加する様子が見られる。このようなプロット図を用意しておけば、FP 組成と量が変化するたびに炉心燃焼解析を行う必要はなく、FP 等価係数と FP 体積割合を算出するだけで炉心特性への影響を簡単に求めることができる。

FP による炉心特性の悪化の原因としては、その中性子吸収効果がまず思い浮かぶが、新燃料から燃料中に存在する残留 FP の場合、FP が燃料体積を占有する効果も重要であることを忘れてはならない。図 5 の FP 等価係数  $\alpha = 0$  (中性子吸収効果が全く無いことを意味する) のラインが、燃料体積占有効果の大きさを示している。

次に、主要な炉心特性について FP による炉心特性影響を見てみよう。平成 11 年度 Na-MOX レファレンス炉心の炉心燃料に、FP 等価係数  $\alpha = 1$  の FP が 5 vol% 混入した場合の主な炉心特性への影響は次のとおりである：

・ Pu 富化度の増加	+1.1 wt% (Pu/HM)
・ 燃焼反応度**の増加	+0.9 % k/kk'
・ 増殖比の減少	-0.06
・ Na ボイド反応度の増加	+0.1 × 10 <sup>-2</sup> k/kk'
・ ドブラー定数の絶対値の減少	-1.0 × 10 <sup>-3</sup> Tdk/dT

\* Na-MOX: ナトリウム冷却、混合酸化物燃料使用の意

\*\* 「燃料サイクル過剰反応度」の意

残留 FP による炉心特性の影響の中で、炉心設計において特に注意しなければならないのは燃焼反応度の増加、続いて増殖比の減少であることがわかる。他の炉心特性影響は比較的小さい。次章で平成 13 年度 ORIENT サイクルの炉心への影響評価結果を示すが、そこでは燃焼反応度及び増殖比の変化に着目することにする。

以下では、その他の計算条件を列挙する。

#### 対象炉心

対象炉心は平成 11 年度 Na-MOX レファレンス炉心<sup>[3]</sup>とする。同炉心の熱出力は 3800 MW<sub>th</sub>、運転サイクル長さは 540 EFPD、炉心燃料の燃料交換バッチ数は 5、炉心取出平均燃焼度は 15 万 MWd/t である。残留 FP は炉心燃料部にのみ混入するものと仮定し、軸方向または径方向ブランケットへの混入は無いものとした。よって、炉心特性影響は保守的に評価されることになる。

#### 残留 FP の組成

残留 FP の元素別重量を表 1 に、各元素の同位体組成を表 3 に示す。これらは ORIGEN2 コードを用いて計算したものであり、取出燃焼度 15 万 MWd/t、燃焼期間 540 日×5 サイクル = 2700 日、冷却期間 4 年間の条件で算出した。ここで、ORIGEN2 コード付属の高速炉用 1 群断面積セット「LMFBR: Advanced oxide, LWR-Pu/U/U/U, Core」を用いた。また、FP 収率データは <sup>239</sup>Pu のものを選択した。

#### 残留 FP の化学形

本評価で仮定した酸化物燃料中に残留する FP の化学形及び密度を表 4 に示す。これらは参考文献[2]で仮定していたものと若干異なる。残留 FP の化学形については、照射後の酸化物燃料中の FP 化学形についての文献情報<sup>[4]</sup>や ORIENT サイクルの移行率設定過程での議論を参考に見直しを行った。加えて、FP 化合物の密度も最新の文献値<sup>[5]</sup>にアップデートした。参考文献[2]との違いは次のとおりである：

- ・ 参考文献[2]では Mo を全て金属として扱ったが、ここでは半分が金属、半分が酸化物 MoO<sub>3</sub> であるとした。
- ・ 参考文献[2]ではアルカリ土類金属( Sr, Ba )が Zr とともに 3 元の酸化物( SrZrO<sub>3</sub>, BaZrO<sub>3</sub> )を形成すると仮定したが、本評価では 1 価の酸化物 ( SrO, BaO ) になるものとした。
- ・ CdO Cd(metal), SnO<sub>2</sub> Sn(metal)： 参考文献[4]での化学形の分類に従い、化学形を変更。



- $\text{NbO}_2$ ,  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ,  $\text{Ce}_2\text{O}_3$ ,  $\text{CeO}_2$  : 参考文献[5]の旧版から最新版への化学形の変更に合わせた。
- Rb, In, Sb, Te, Cs の 5 元素が完全に揮発するという仮定を無くし、移行率に従って随伴するものとした。
- 化合物密度のアップデートで違いの大きかったものは、 $\text{Eu}_2\text{O}_3$  の 14% 減少である。その他、 $\text{ZrO}_2$ , Tc(metal),  $\text{Gd}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Tb}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Dy}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Ho}_2\text{O}_3$  で 3 ~ 4% の減少が見られた。

以上が FP 化学形及び密度の見直し箇所である。なお、参考文献[2]の乾式 RIAR 法について上記の変更を行ったところ、FP 等価係数と FP 体積割合の値に有意な変化は生じないことを確認した。

#### 核データ

炉心計算に用いた核データは、F/S フェーズ I における炉心設計に採用された JENDL-3.2\*に基づく統合炉定数「ADJ98」(JFS3J32.ADJ98.Y9902)である。FP 等価係数の算出には ORIGEN2 コード付属の高速炉用 1 群断面積セット「LMFBR: Advanced oxide, LWR-Pu/U/U/U, Core」を使用した。

#### 多重リサイクル評価方法

多重リサイクルの評価方法は、参考文献[2]で用いた次の簡易的な方法であり、リサイクル中の FP 核変換を厳密に模擬したものではない。k 回りサイクル後の新燃料中の FP 質量  $m^{(k)}$  を、k-1 回りサイクル後の新燃料中の FP 質量  $m^{(k-1)}$  と 1 回目再処理前の使用済燃料中の FP 質量  $m^{(0)}$  を用いて、漸化式

$$m^{(k)} = T(m^{(k-1)} + m^{(0)}),$$

$$\text{ただし, } m^{(1)} = Tm^{(0)}$$
(2)

により与える。ここで、 $T$  は炉心燃料への FP 移行率を表す。無限回りサイクル後の FP 質量は、等比級数の和となり、

$$m^{(\infty)} = \frac{1}{1-T} m^{(1)} = \frac{T}{1-T} m^{(0)}$$
(3)

のように与えられる。

この簡易評価方法が妥当性を持つためには、リサイクルにより蓄積する FP 質量が小さいことが必要である。例えば  $T = 0.1$  以下ならば、1 回りサイクル後の FP 質量  $m^{(1)}$  と無限回りサイクル後の FP 質量  $m^{(\infty)}$  との違いは約 10% 以下である。10% 以下のマイ

---

\* JENDL: Japanese Evaluated Nuclear Data Library

ナーな部分の核変換を厳密に追いかけて精度を追求しても、努力の割に得られるものは少なからう。

FP 移行率が比較的大きい場合でも、FP の核変換により FP 等価係数あるいは FP 体積割合が大きく変わらないならば、核変換を厳密に追いかける必要はない。化学形が類似しかつ等しい移行率を持った FP 元素群(遷移金属元素、希土類元素のまとまり)を扱うならば、簡易評価法の妥当性は保たれる。FP 等価係数が中性子照射による核変換で有意な変化を生じないことは、参考文献[2]においていくつかの再処理方式について確認している。

式(2)及び式(3)で示される簡易的な多重リサイクル評価方法は、あくまでも上述の前提の下に妥当といえるものである。ORIENT サイクルのように FP 移行率が 0.1 を大きく超える少数の元素が選択的に残る場合(乾式ベース概念の Zr などはその最たる例)には、近似モデルの誤差が大きくなると考えられる。今回の目的が最確評価ではないことから、この近似的取り扱いは大きな問題ではないと考えているが、計算結果の扱いには注意する必要がある。リサイクル中の核変換の効果については、次年度以降、必要に応じて評価するものとしたい。

表3 FPの同位体組成

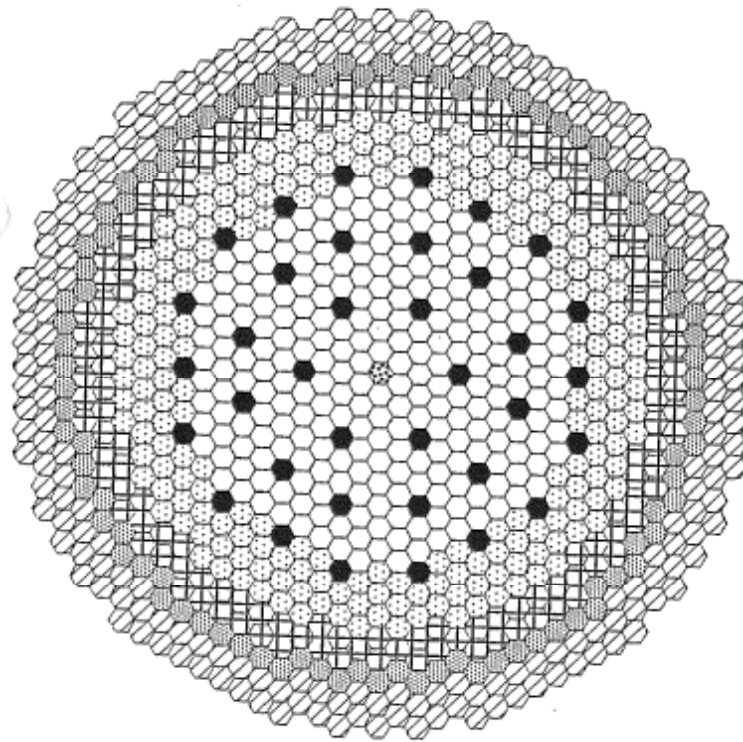
< 計算条件 >					
計算コード		ORIGEN2			
断面積ライブラリ		LMFBR: Advanced oxide, LWR-Pu/U/U/U, Core			
新燃料組成 (重量比)					
(Pu+Am)/(U+Pu+Am)		=0.192			
U-235/U-238		=0.003			
Pu-238/Pu-239/Pu-240/Pu-241/Pu-242/Am-241		=0.03/0.52/0.27/0.095/0.07/0.015			
取出燃焼度		15万 MWd/t			
燃焼期間		2700 day			
比出力		55.6 MW/t			
冷却期間		4 year			
核種	組成比 [at%]	核種	組成比 [at%]	核種	組成比 [at%]
Ge-72	7.32	Pd-104	7.21	Ba-134	8.87
Ge-73	10.40	Pd-105	25.36	Ba-135	0.08
Ge-74	19.76	Pd-106	30.78	Ba-136	3.01
Ge-76	62.52	Pd-107	17.09	Ba-137	12.31
As-75	100.00	Pd-108	15.41	Ba-138	75.73
Se-76	0.09	Pd-110	4.16	La-139	100.00
Se-77	3.33	Ag-109	99.99	Ce-140	53.02
Se-78	6.90	Ag-110m	0.01	Ce-142	46.82
Se-79	14.19	Cd-110	17.04	Ce-144	0.16
Se-80	22.15	Cd-111	30.34	Pr-141	100.00
Se-82	53.33	Cd-112	21.00	Nd-142	1.38
Br-81	100.00	Cd-113	13.51	Nd-143	24.44
Kr-82	0.64	Cd-114	10.77	Nd-144	23.92
Kr-83	16.43	Cd-116	7.35	Nd-145	17.45
Kr-84	31.57	In-113	2.31	Nd-146	16.73
Kr-85	4.57	In-115	97.69	Nd-148	10.11
Kr-86	46.79	Sn-115	0.47	Nd-150	5.96
Rb-85	31.37	Sn-116	8.49	Pm-147	100.00
Rb-87	68.63	Sn-117	9.55	Sm-146	0.01
Sr-86	0.87	Sn-118	9.98	Sm-147	22.41
Sr-87	0.01	Sn-119	9.99	Sm-148	15.44
Sr-88	44.15	Sn-120	9.77	Sm-149	20.54
Sr-90	54.96	Sn-122	10.21	Sm-150	8.09
Y-89	99.98	Sn-124	13.81	Sm-151	10.04
Y-90	0.02	Sn-126	27.73	Sm-152	17.85
Zr-90	2.01	Sb-121	38.24	Sm-154	5.62
Zr-91	13.47	Sb-123	47.41	Eu-151	4.83
Zr-92	16.50	Sb-125	14.36	Eu-152	0.56
Zr-93	20.13	Te-123	0.02	Eu-153	63.19
Zr-94	22.11	Te-125	5.05	Eu-154	16.92
Zr-96	25.78	Te-125m	0.01	Eu-155	14.50
Mo-95	21.73	Te-126	0.73	Gd-152	0.26
Mo-96	1.71	Te-128	24.86	Gd-154	9.19
Mo-97	22.04	Te-130	69.33	Gd-155	17.70
Mo-98	26.14	I-127	27.44	Gd-156	38.99
Mo-100	28.38	I-129	72.56	Gd-157	9.82
Tc-98	0.01	Xe-128	0.29	Gd-158	20.51
Tc-99	99.99	Xe-129	0.01	Gd-160	3.52
Ru-100	3.53	Xe-130	0.66	Tb-159	100.00
Ru-101	29.21	Xe-131	15.78	Dy-161	39.82
Ru-102	35.78	Xe-132	22.99	Dy-162	37.95
Ru-104	31.20	Xe-134	31.00	Dy-163	14.36
Ru-106	0.28	Xe-136	29.27	Dy-164	7.88
Rh-103	100.00	Cs-133	32.08	Ho-165	100.00
		Cs-134	0.61	Er-166	75.63
		Cs-135	38.90	Er-167	24.37
		Cs-137	28.42		

表4 酸化物燃料における残留FPの化学形の仮定

元素	分類	化学形	密度* [g/cm <sup>3</sup> ]
Ge		GeO <sub>2</sub>	4.25
As	Volatile		
Se	Volatile		
Br	Volatile		
Kr	Volatile (Noble Gas)		
Rb		Rb <sub>2</sub> O	4.0
Sr		SrO	4.7
Y	Rare Earth	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	5.03
Zr	Early Transition Metal	ZrO <sub>2</sub>	5.68
Nb	Early Transition Metal	Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	4.55
Mo	Early Transition Metal	Mo (metal) / MoO <sub>3</sub>	10.28 / 4.696
Tc	Early Transition Metal	Tc (metal)	11
Ru	Noble Metal	Ru (metal)	12.45
Rh	Noble Metal	Rh (metal)	12.41
Pd	Noble Metal	Pd (metal)	12.023
Ag	Noble Metal	Ag (metal)	10.49
Cd		Cd (metal)	8.65
In		In (metal)	5.77
Sn		Sn (metal)	7.265
Sb		Sb (metal)	6.697
Te		TeO <sub>2</sub>	5.9
I	Volatile		
Xe	Volatile (Noble Gas)		
Cs		Cs <sub>2</sub> O	4.65
Ba		BaO	5.72
La	Rare Earth	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	6.51
Ce	Rare Earth	CeO <sub>2</sub>	7.65
Pr	Rare Earth	Pr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	7.07
Nd	Rare Earth	Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	7.28
Pm	Rare Earth	Pm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	7.75**
Sm	Rare Earth	Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	8.35
Eu	Rare Earth	Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	7.42
Gd	Rare Earth	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	7.407
Tb	Rare Earth	Tb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	7.53**
Dy	Rare Earth	Dy <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	7.81
Ho	Rare Earth	Ho <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	8.23**
Er	Rare Earth	Er <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	8.64

\* 出典： J.A.Dean (editor), "Lange's Handbook of Chemistry (fifteenth edition)", McGraw-Hill (1999).

\*\* (データ不詳のため前後元素値より推定)



熱出力	3800 MW <sub>th</sub>
運転サイクル長さ	540 EFPD
燃料交換バッチ数	5 (炉心), 5 (ブランケット)
炉心取出平均燃焼度	15万MWd/t
等価炉心直径 [cm]	457
炉心高さ [cm]	120
軸ブランケット厚さ [cm]	1.2 (上部), 10 (下部)
Pu富化度 [wt%]	16.3 (IC), 18.5 (OC)
Pu同位体組成比 [wt%] (P8/P9/P0/P1/P2/A1)	3 / 52 / 27 / 9.5 / 7 / 1.5
体積比 (燃料/構造材/冷却材) (IC: SASS付)	40.2 / 19.8 / 40.0
(OC)	46.5 / 21.3 / 32.2

○ 内側炉心燃料集合体 (SASS付)	246体
⊙ 外側炉心燃料集合体	216体
⊕ 筐ブランケット集合体	150体
⊗ SUS遮蔽体	96体
⊖ B <sub>1</sub> C遮蔽体	210体
● 主炉停止系制御棒	36体
⊗ SUS集合体	1体
合 計	955体

図4 平成11年度 Na-MOX レファレンス炉心

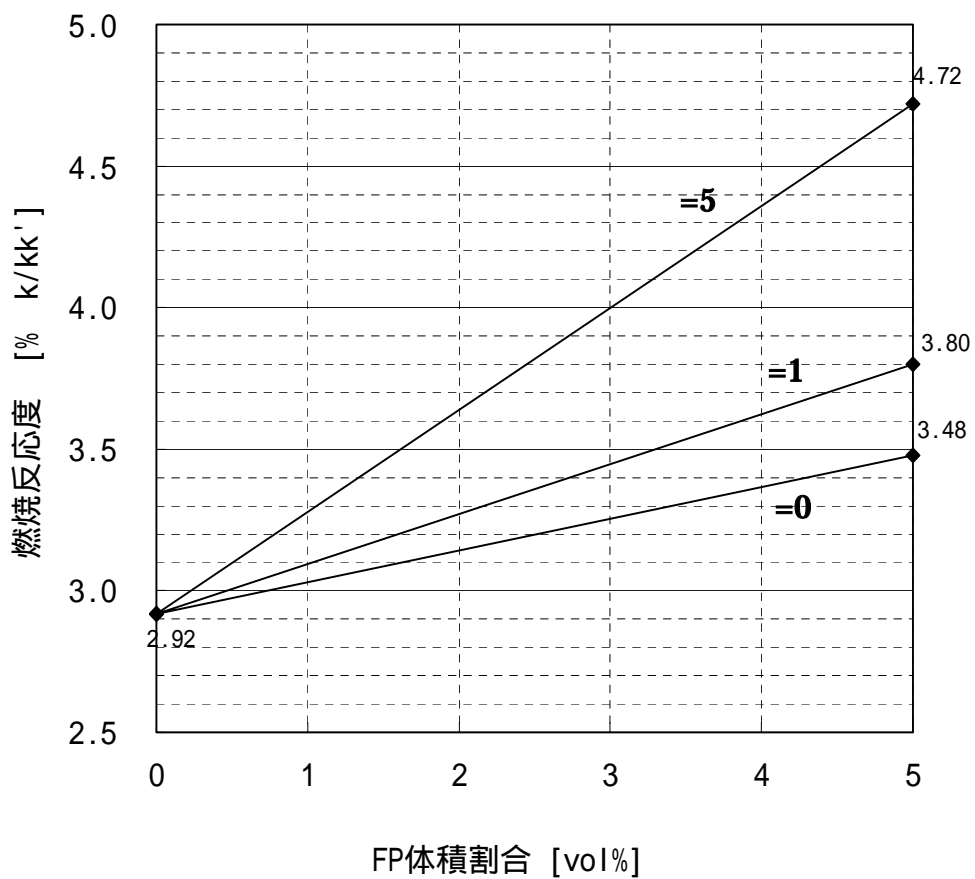


図5 FP等価係数（代表核種 $^{143}\text{Nd}$ ）とFP体積割合をパラメータとした燃焼反応度の変化（平成11年度Na-MOXレファレンス炉心）

## 4. 炉心特性への影響評価結果

本章では、平成 13 年度に検討された湿式ベース及び乾式ベースの ORIENT サイクル概念について、再処理後の新燃料に随伴する FP による炉心特性への影響の評価結果を示す。さらに、熱処理のみのリサイクルの導入の可能性について、炉心特性への影響の観点から考察する。対象炉心は平成 11 年度 Na-MOX レファレンス炉心であり、炉心燃料部のみに残留 FP が混入するものとしている。炉心特性影響は、燃焼反応度及び増殖比に着目する。

### 4-1 湿式ベース ORIENT サイクル

湿式ベースの ORIENT サイクルにおいて、新燃料に随伴する FP の FP 等価係数と FP 体積割合を表 5 に、燃焼反応度及び増殖比への影響を表 6 にまとめる。1 回りサイクル後の FP 等価係数は 1.0、FP 体積割合は約 4% であり、そのときの燃焼反応度の変化量は  $+0.7\% \quad k/kk'$ 、増殖比の変化量は  $-0.05$  である。燃焼反応度に影響を与える FP の元素別寄与を図 6 に示す。Zr、Mo から Pd にかけての遷移金属元素、La から Eu にかけての希土類元素、その他 Cs、Ba の寄与が見られる。図 6 の元素別寄与は中性子吸収効果と燃料体積占有効果に分けて示しているが、Zr、Mo、Cs、Ba、そして La から Nd までの軽希土類元素では燃料体積占有効果の占める割合が大きい。

多重リサイクルを行った場合、随伴 FP は蓄積し、燃焼反応度はさらに増加、増殖比はさらに減少する。簡易評価方法による大まかな予測として、無限回りサイクル後の FP 体積割合は約 10%、燃焼反応度の変化量は約  $+2\% \quad k/kk'$ 、増殖比の変化量は  $-0.15$  程度となる。

燃焼反応度及び増殖比の変化量は、FBR サイクル実用化戦略調査研究 (F/S) において低除染燃料による最大変化量として暫定的に取り合っているそれぞれ  $+0.5\% \quad k/kk'$ 、 $-0.04$  (乾式 RIAR 法による再処理の場合) を大幅に上回る。よって、平成 13 年度の湿式ベース ORIENT サイクルを F/S 対象炉心を用いて構成することには課題があり、検討を必要とする。FP 除去率のさらなる向上や、随伴 FP が炉心燃料以外のブランケットへ分布することの考慮により、炉心特性影響を設計対応の可能なレベルまで緩和させる余地は残されている。

### 4-2 乾式ベース ORIENT サイクル

乾式ベースの ORIENT サイクルについて、新燃料に随伴する FP の FP 等価係数と FP 体積割合を表 5 に、燃焼反応度及び増殖比への影響を表 6 に示した。1 回りサイクル後の FP 等価係数は 0.3、FP 体積割合は約 2% であり、そのときの燃焼反応度の変化量は  $+0.3\% \quad k/kk'$ 、増殖比の変化量は  $-0.02$  である。燃焼反応度に影響を与える FP の元素別寄与を図 7 に示すが、乾式ベース概念では Zr が支配的な元素であることがわかる。

数回のリサイクルにより F/S の低除染燃料による炉心特性影響を上回り、無限回リサイクル後には、FP 体積割合が約 7%、燃焼反応度の変化量は約+1%  $k/kk'$ 、増殖比の変化量は-0.05 程度となる（簡易評価として）。乾式ベース概念の方が、湿式ベース概念よりも炉心特性への影響は小さい。

### 4-3 熱処理のみのリサイクル

熱処理のみのリサイクルを導入した場合の FP 等価係数と FP 体積割合を表 7 に、燃焼反応度への影響を表 8 に示した。ここで、熱処理のみのリサイクルを毎回行うケースと、熱処理のみのリサイクルと ORIENT 湿式ベースのフル再処理によるリサイクルを交互に繰り返すケースの 2 つを検討した。

熱処理のみの 1 回リサイクル後の FP 等価係数は 1.0、FP 体積割合は 12% であり、そのときの燃焼反応度の変化量は +2.0%  $k/kk'$  である。図 8 は燃焼反応度の変化に対する FP の元素別寄与を示したものである。Mo や Cs といった元素の除去率向上は図られているが、なお各 FP 元素による燃焼反応度の増加量は ORIENT サイクル湿式・乾式ベース概念（図 6 及び図 7 を参照）を大きく上回っている。

熱処理のみでリサイクルを重ねると燃焼反応度が急激に増加し、3~4 回のリサイクル後には変化量が +5%  $k/kk'$  に達してしまう（図 9 参照）。これでは炉心特性への影響が大きすぎ、熱処理のみの連続したリサイクルを現実的な選択肢とすることは不可能である。

次に、熱処理のみのリサイクルと ORIENT 湿式ベースのフル再処理によるリサイクルを交互に繰り返すケースを見てみよう。その場合、図 9 に示すように燃焼反応度はリサイクルとともにジグザグに変化しながら増加していく。熱処理のみで連続してリサイクルするときのような急激な増加は起こらないが、それでも、ORIENT 湿式ベースの再処理によるリサイクルを連続して行う場合に対し、2%  $k/kk'$  の燃焼反応度の増加を考慮しなければならない。

以上のように、熱処理のみのリサイクルの導入を検討したが、今回設定した暫定的な FP 除去率では炉心特性への影響が大きすぎ、現実的な選択肢ではない。FP 除去率の改善によっては、熱処理のみのリサイクルとフル再処理によるリサイクルの組み合わせの可能性は残されている。その場合、随伴 FP の受け入れに特化した炉心概念の検討を視野に入れることも考えられる。



表5 ORINETサイクルにおいて炉心燃料に随伴するFPのFP等価係数とFP体積割合

	リサイクル回数				
	1	5	10	30	
ORINET(湿式ベース概念)					
FP等価係数	1.0	1.1	1.2	1.2	1.3
FP体積割合	4.1%	6.0%	6.6%	8.2%	11%
ORINET(乾式ベース概念)					
FP等価係数	0.3	0.2	0.2	0.2	0.2
FP体積割合	2.1%	5.7%	6.9%	7.3%	7.3%

\* FP等価係数 =  $(\sum_i c_{i,FP} N_i) / (c_{Nd143} N_{Nd143})$  (  $c$  : 捕獲断面積、 $N$  : 数密度 )

\*\* FP体積割合 =  $V_{FP0x} / (V_{UO2} + V_{PuO2} + V_{MAO2} + V_{FP0x})$

表6 ORIENTサイクルにおけるリサイクルに伴う燃焼反応度及び増殖比の変化（平成11年度Na-MOXレファレンス炉心）

	リサイクル回数				
	1	5	10	30	
燃焼反応度 [% k/kk']					
ORIENTサイクル（湿式ベース概念）	+0.7	+1.1	+1.2	+1.6	+2.2
ORIENTサイクル（乾式ベース概念）	+0.3	+0.7	+0.9	+0.9	+0.9
乾式RIAR法（参考）	+0.4	-	-	-	+0.5
増殖比					
ORIENTサイクル（湿式ベース概念）	-0.05	-0.07	-0.08	-0.11	-0.15
ORIENTサイクル（乾式ベース概念）	-0.02	-0.04	-0.05	-0.05	-0.05
乾式RIAR法（参考）	-0.03	-	-	-	-0.04

表7 熱処理のみのリサイクルを導入した場合に炉心燃料に随伴するFPのFP等価係数とFP体積割合

	リサイクル回数									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
熱処理のみのリサイクル										
FP等価係数	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	-	-	-	-	-
FP体積割合	12%	20%	27%	33%	37%	-	-	-	-	-
熱処理とORINET(湿式)の繰り返し										
FP等価係数	1.0	1.0	1.0	1.1	1.0	1.1	1.0	1.1	1.0	1.1
FP体積割合	12%	7%	17%	9%	18%	10%	19%	10%	19%	10%

\* FP体積割合 =  $V_{FP0x} / (V_{U02} + V_{Pu02} + V_{MA02} + V_{FP0x})$

\*\* FP等価係数 =  $(\sum_i c_i N_i) / (c_{Nd143} N_{Nd143})$  (  $c$  : 捕獲断面積、 $N$  : 数密度 )

表 8 熱処理のみのリサイクルを導入した場合の燃焼反応度の変化（平成11年度Na-MOXレファレンス炉心）  
 （単位：% k/kk'）

	リサイクル回数									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
熱処理のみのリサイクル	+2.0	+3.5	+4.7	+5.7	+6.6	-	-	-	-	-
熱処理とORINET(湿式)の繰り返し	+2.0	+1.3	+2.9	+1.6	+3.2	+1.8	+3.3	+1.8	+3.4	+1.9

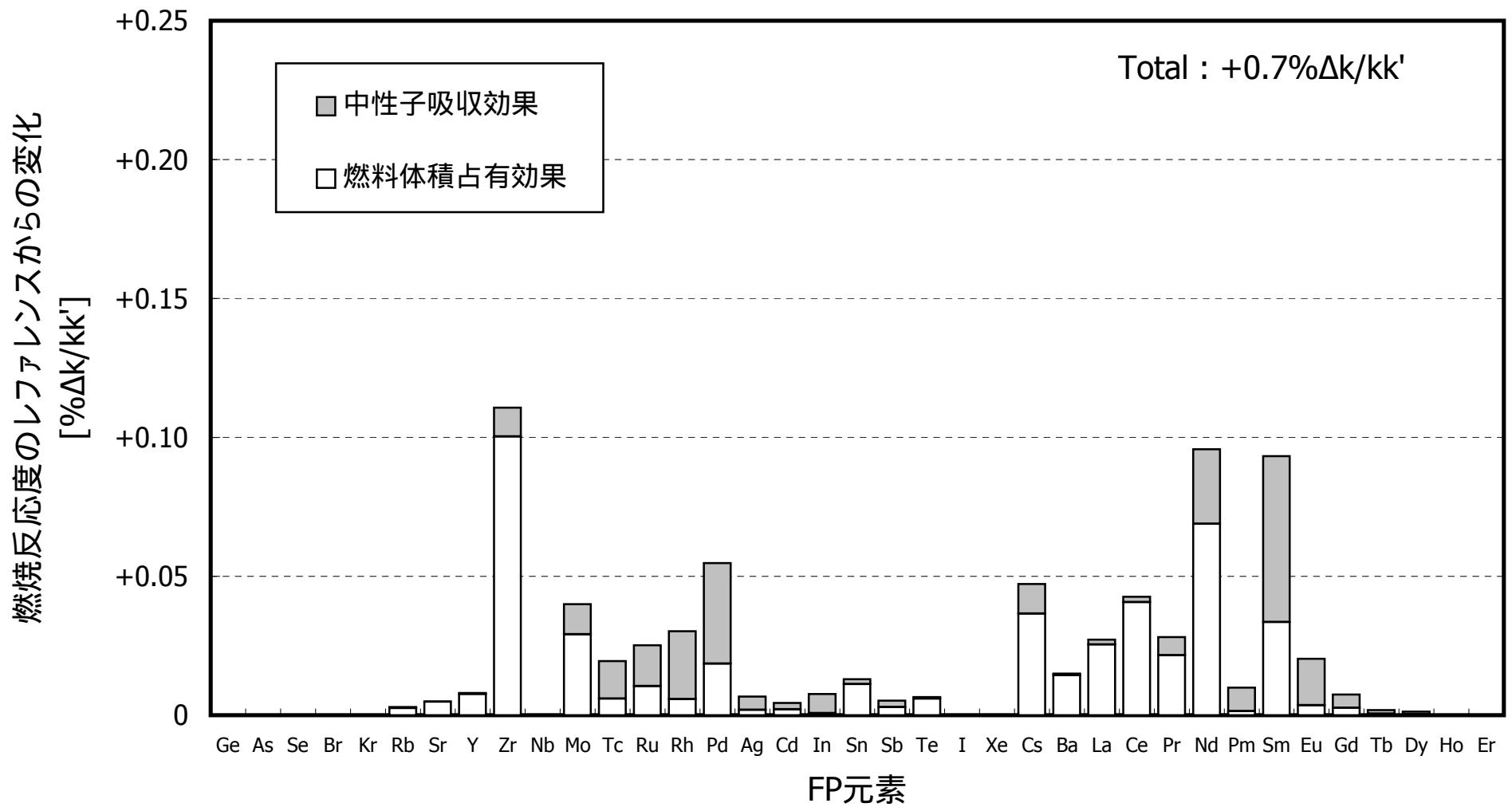


図6 燃焼反応度変化に対する元素別寄与 (ORIENT湿式、1回リサイクル後)

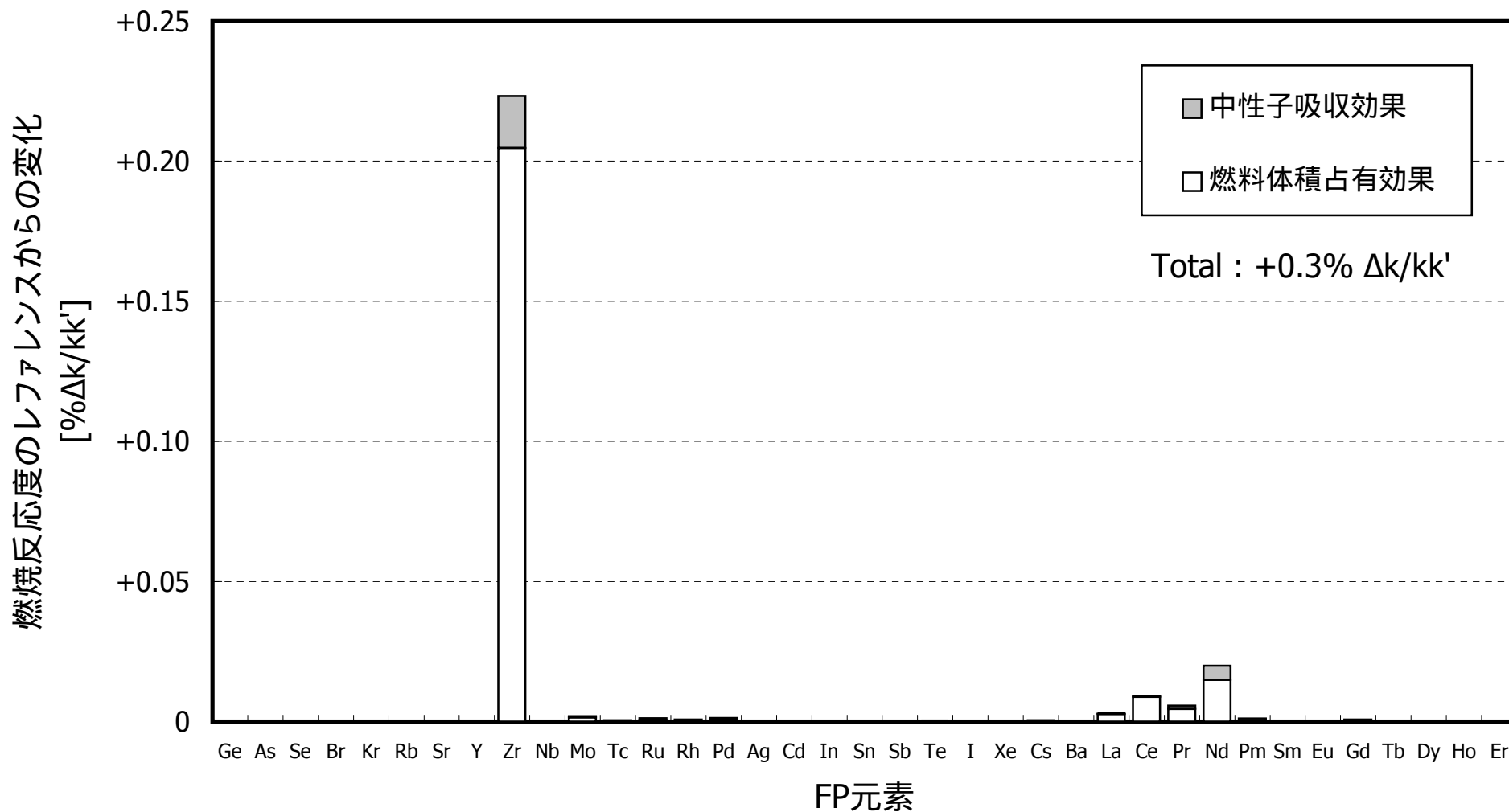


図7 燃焼反応度変化に対する元素別寄与 (ORIENT乾式、1回リサイクル後)

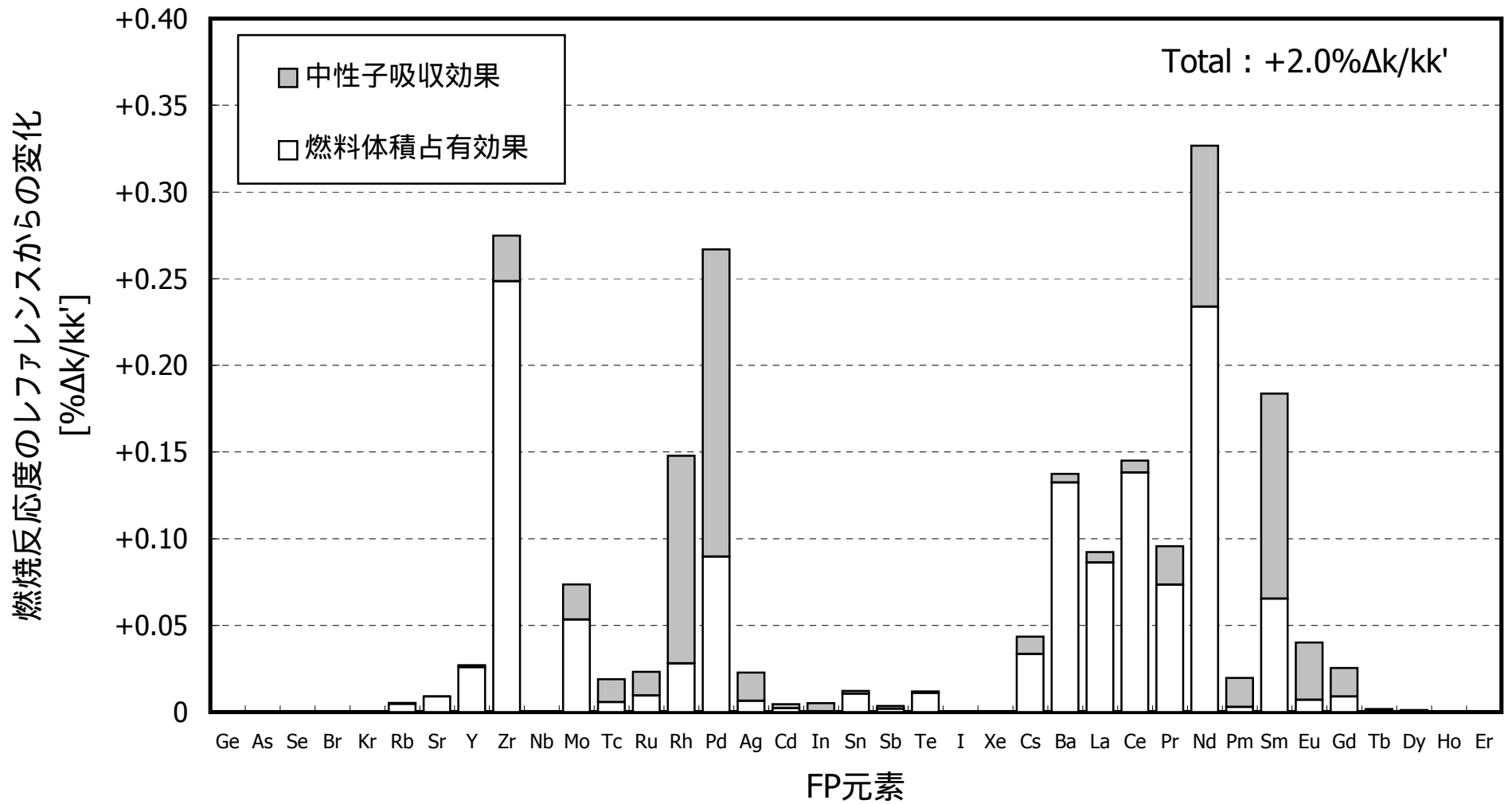


図8 燃焼反応度変化に対する元素別寄与(熱処理のみ、1回リサイクル後)

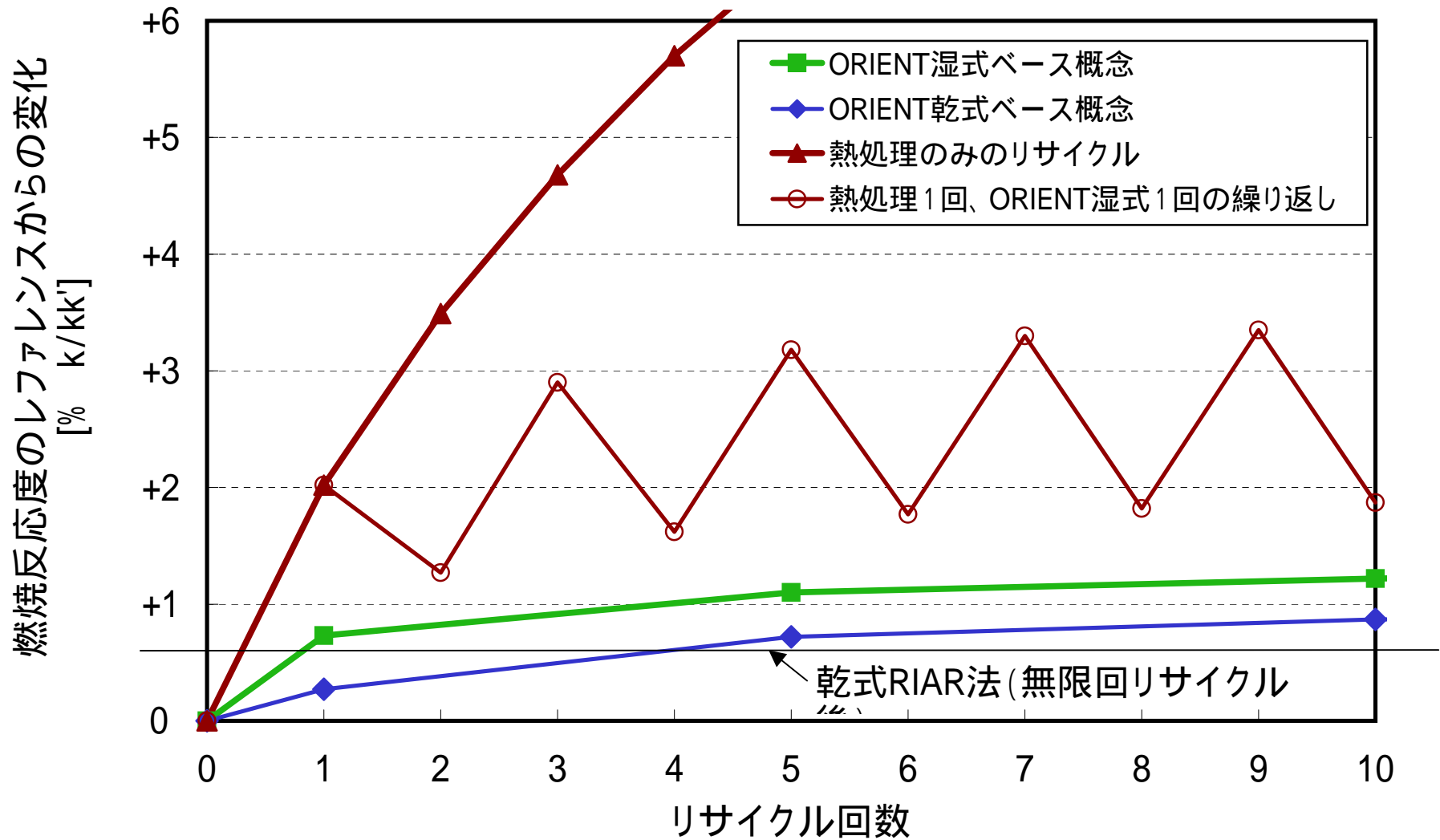


図9 リサイクルに伴う燃烧反応度の増加



## 5. まとめ

「リサイクルの障害となる物質を取り除く」という考え方に発想を転換した新しいリサイクル概念である ORIENT サイクル（平成 13 年度に検討された湿式ベース概念及び乾式ベース概念）について、再処理後の新燃料に随伴する FP による炉心特性への影響を評価した。1 回リサイクル後の燃焼反応度の変化量は、湿式ベース概念では  $+0.7\% \text{ k/kk}'$ 、乾式ベース概念では  $+0.3\% \text{ k/kk}'$  である。増殖比の変化量は、湿式ベース概念では  $-0.05$ 、乾式ベース概念では  $-0.02$  である。なお、Na ボイド反応度やドブラー係数も悪化するが、燃焼反応度や増殖比に比べ影響は小さい。

多重リサイクルを行った場合、随伴 FP の蓄積により炉心特性への影響はさらに悪化する。燃焼反応度の変化量は、湿式ベース概念では最大  $+2\% \text{ k/kk}'$ 、乾式ベース概念では最大  $+1\% \text{ k/kk}'$  程度となる。これらは FBR サイクル実用化戦略調査研究（F/S）において低除染燃料による燃焼反応度変化量の最大値として暫定的に取り合っている  $+0.5\% \text{ k/kk}'$  を大幅に上回る。平成 13 年度 ORIENT サイクルを F/S 対象炉心を用いて構成することには課題があり、検討を必要とする。FP 除去率のさらなる向上や、随伴 FP が炉心燃料以外のブランケットへ分布することの考慮により、炉心特性影響を設計対応の可能なレベルまで緩和させる余地は残されている。

熱処理のみのリサイクルの導入を検討したが、今回設定した暫定的な FP 除去率では 1 回リサイクル後の燃焼反応度の変化が  $+2.0\% \text{ k/kk}'$ 、3～4 回のリサイクル後には  $+5\% \text{ k/kk}'$  を超える。炉心特性への影響が大きすぎ、現実的な選択肢ではない。ただし、熱処理のみのリサイクルとフル再処理の組み合わせであれば、FP 除去率の改善によっては、熱処理のみのリサイクルとフル再処理の組み合わせの可能性は残されている。その場合、随伴 FP の受け入れに特化した炉心概念の検討を視野に入れることも考えられる。

## 参考文献

- [1] N. Takaki, *et al.*, “ “ORIENT-Cycle” – An Evolutional Recycle Concept with Fast Reactor for Minimizing High Level Waste – ”, *Proc. Seventh Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation*, October 14-16, 2002, Jeju, Korea, (2002).
- [2] 大木 繁夫, “低除染燃料中の残留 FP の炉心影響評価”, JNC TN9400 2002-066, (2002).
- [3] 池上 哲雄, 他, “ ナトリウム冷却炉の炉心・燃料設計検討 - 平成 11 年度報告 - ”, JNC TN9400 2000-068, (2000).
- [4] H. Kleykamp, “The Chemical State of Fission Products in Oxide Fuels at Different Stages of the Nuclear Fuel Cycle”, *Nucl. Tech.*, **80**, 412 (1988).
- [5] J. A. Dean (editor), “Lange's Handbook of Chemistry (fifteenth edition)”, McGraw-Hill (1999).