

金属燃料リサイクルシステムの 臨界安全設計検討（I）

（研究報告）

2003年9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
電話：029-282-1122（代表）
ファックス：029-282-7980
電子メール：jserv@jnc.go.jp

Inquires 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)
2003

金属燃料リサイクルシステムの臨界安全設計検討 (I)

(研究報告)

中林 弘樹*、藤岡 綱昭*、佐藤 浩司*
青木 和夫**

要 旨

本報告書は、電力中央研究所および核燃料サイクル開発機構の共同研究である「金属燃料リサイクルシステムの設計評価」の内容に基づき、大型電解精製槽の臨界安全設計について検討したものである。

検討では、まず始めに臨界安全設計から見た大型電解精製槽の特徴を把握し、次に基本的な臨界安全性に対する特性を評価した上でこれらの特徴を踏まえた臨界安全設計の方法を検討した。最後に、保守的な想定の下での臨界安全性を解析・評価することによって、その安全裕度を確認した。

臨界安全設計に影響を与える特徴としては、工学的なプロセス成立条件から電解精製槽内に 130kg を超えるプルトニウムを保持する必要があると同時に、機器設計上の自由度を確保するため形状管理ではなく質量管理が基本となること、それらのプルトニウムは複数の化学形態で同時に分散して存在すること、さらにそれらの化学形態間の変化の大部分は制御可能であると考えられることなどが挙げられる。

これらの条件及び特徴を踏まえて、質量管理を基本としつつ多量のプルトニウムを安全に管理するために、プルトニウムの化学形態管理も行う臨界安全手法の適用を提案した。

最後に、その設計の下での臨界安全性を確認するために、通常運転状態よりも多くのインベントリを保持している状態を保守的な条件の下でモデル化して臨界解析を実施した。その結果、保守的な条件の下でも十分な安全裕度が確保できることを確認した。

今後の技術的課題としては、電解精製工程において想定される様々な条件下でのプルトニウムの挙動の把握、およびその化学的狀態を制御するための技術、システムの開発が挙げられる。

*システム技術開発部 再処理システムグループ

**新型炉技術開発株式会社

A Study of the Criticality Safety Design for the Metal Fuel Recycle System

H. Nakabayashi*, T. Fujioka*, K. Sato* and K. Aoki**

ABSTRACT

This report describes a study about the criticality safety design for the large-scale electrorefiner, which is designed in the activities of "The Design Study of Metal Fuel Recycle System(2002)", under the collaboration with Central Research Institute of Electric Power Industry.

First in the study, characteristics of the electrorefiner from the viewpoint of the criticality safety is grasped. Second, on the basis of properties estimated from electrorefining process conditions, methodologies of the criticality safety design for the electrorefiner is studied. Finally the criticality safety under the design is clarified by criticality safety analyses and estimations under conservative conditions.

There are characteristics effecting the criticality safety : (i) more than 130kg of plutonium is normally contained in the electrorefiner due to the industrial-scale process requirement, under not the geometrical control but the mass control because of flexibility for effective mechanical design, (ii) these plutonium exists in some different chemical forms in same time, and more (iii) transfer from one chemical form to another of plutonium is regarded as controlable.

On the basis of these properties, the chemical form management as a criticality safety methodology is proposed in order to deal with a large quantity of plutonium in the electrorefiner under the mass control.

Finally, models having larger inventory under conservative condition is constructed and analyzed to check the criticality safety. As a result, it is clarified that the criticality safety of the electrorefiner is maintained under conservative conditions.

To establish the chemical form control, plutonium behavior under the electrorefining process should be researched well. Monitor and control technologies of chemical forms of plutonium should also be developed.

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

** Advanced Reactor Technology Co., Ltd.

目次

1. はじめに.....	1
2. 評価の前提条件.....	3
3. 臨界安全設計の観点から見た電解精製槽の特徴.....	12
3.1 非減速系.....	12
3.2 複数の化学形態の共存.....	12
3.3 遠隔自動化されたマテリアルハンドリング.....	13
3.4 通常時で 130kg を超える Pu.....	13
4. 基本となる物質の臨界質量の計算と特性評価.....	15
4.1 電解精製工程で現れる核燃料物質の化学形態.....	15
4.2 Pu 同位体組成と MA.....	15
4.3 計算環境と計算モデル.....	15
4.4 HM-Zr 合金.....	16
4.5 LiCl-KCl 熔融塩系.....	18
4.5.1 LiCl-KCl-HM 系の臨界質量.....	19
4.5.2 Li の影響評価.....	21
4.6 Pu-Cd 系.....	24
4.7 PuO ₂	26
4.8 酸化物粉末における水分の影響.....	27
4.8.1 含水率と吸水率.....	27
4.8.2 ボイド無し時の均一化酸化物の臨界質量.....	30
4.8.3 燃料嵩密度を固定した場合の臨界質量計算.....	31
4.9 単体化学形態における臨界質量.....	33
5. 電解精製槽の臨界安全設計検討.....	34
5.1 質量管理の考え方.....	34
5.2 電解精製槽における質量管理適用上の問題点.....	34
5.3 化学形態管理.....	35
5.4 質量管理と化学形態管理による電解精製槽の臨界安全設計.....	38
5.4.1 陽極における HM-Zr 合金.....	38
5.4.2 液体 Cd 陰極中の Pu.....	39
5.4.3 熔融塩中の Pu.....	39
5.4.4 不溶解物としての酸化物.....	40
5.5 電解精製槽の臨界安全設計のアプローチ.....	43
6. 電解精製槽の臨界安全性評価.....	45
6.1 陽極（アセンブリ）の臨界安全性評価.....	45

6.1.1 陽極バスケット装荷量計算	45
6.1.2 陽極バスケット最大装荷量の計算	46
6.1.3 設計値からの算出.....	47
6.1.4 臨界安全性評価	48
6.2 液体 Cd 陰極の臨界安全性評価	49
6.2.1 液体 Cd 陰極回収量の計算	50
6.2.2 臨界安全性解析	51
6.3 大型 8 極電解精製槽の臨界安全性評価	54
7. おわりに.....	58
8. 参考文献	59

表目次

表 2-1	金属燃料燃料ピン炉心部分（平衡炉心装荷時）のインベントリ	4
表 2-2	ブランケット部分（平衡炉心装荷時）のインベントリ	5
表 2-3	燃料ピンのインベントリ（平衡炉心装荷時）	6
表 2-4	金属燃料燃料ピン（平衡炉心取り出し後4年冷却時）のインベントリ	7
表 2-5	ブランケット（平衡炉心取り出し後4年冷却時）のインベントリ	8
表 2-6	燃料ピンのインベントリ（平衡炉心取り出し後4年冷却時）	9
表 2-7	電解精製槽の主要設計値と運転条件	10
表 4-1	HM-Zr合金の臨界質量計算	16
表 4-2	燃料ピン六角セル体系での臨界質量計算	18
表 4-3	評価に用いたLiCl-KCl共晶塩の物理特性	19
表 4-4	LiCl-KCl-HM系の臨界質量評価モデル諸条件	19
表 4-5	LiCl-KCl-HM系の臨界質量評価結果	20
表 4-6	Pu-Li系評価のための諸データ	21
表 4-7	LiCl-KCl-HM均質無限系での ⁶ Liの効果	24
表 4-8	Pu-Cd系計算に用いた諸量	25
表 4-9	Pu飽和時の金属Cdの臨界性	26
表 4-10	PuCd ₆ の臨界質量計算	26
表 4-11	PuO ₂ の臨界質量計算	27
表 4-12	評価点の諸量（サンプル）	30
表 4-13	電解精製槽で現れる化学形態の単体臨界質量	33
表 5-1	電解精製槽の臨界安全設計の概要	44
表 6-1	陽極の臨界安全性評価モデルと解析結果	49
表 6-2	液体Cd陰極における物質密度	51
表 6-3	液体Cd陰極の臨界安全性評価モデルの解析結果	53
表 6-4	大型8極電解精製槽の臨界安全性評価の解析結果	56

図目次

図 1-1	大型 8 極電解精製槽	2
図 2-1	炉心燃料処理用電解精製槽における溶融塩中の各元素濃度変化	11
図 3-1	臨界安全設計の観点から見た電解精製槽の特徴	14
図 4-1	金属燃料燃料ピンの臨界本数計算モデル	17
図 4-2	Li/Pu 数密度比と Pu 濃度	22
図 4-3	Li/Pu 数密度と中性子無限増倍率 (k_{∞})	22
図 4-4	H ₂ O-PuO ₂ 均質無限体系における H/Pu 数密度比と中性子無限増倍率 (k_{∞})	23
図 4-5	Li/Pu 数密度比を増加させた場合の系の中性子スペクトルの変化	23
図 4-6	Li リッチな系の核種実効断面積 (Li/Pu 数密度比=約 90000)	24
図 4-7	Pu-Cd 系の中性子無限増倍率変化	25
図 4-8	PuO ₂ -H ₂ O 均一混合体系の臨界質量 (球体系)	30
図 4-9	燃料嵩密度を固定した場合の含水率変化に対する臨界質量の変化	31
図 5-1	化学形態管理	36
図 5-2	化学形態管理を行う場合の核的制限値	37
図 5-3	不溶解物に対する核的制限値の設定の考え方	42
図 6-1	陽極アセンブリの形状	45
図 6-2	燃料ピン周密配列の単位セル	46
図 6-3	液体 Cd 陰極の形状	50
図 6-4	液体 Cd 陰極の臨界安全性評価モデル	53
図 6-5	大型 8 極電解精製槽解析モデル (Case-B)	55

1. はじめに

ここでは、電力中央研究所と核燃料サイクル開発機構の共同研究である「金属燃料リサイクルの設計検討」において設計された電解精製槽の臨界安全設計について検討した結果を述べる。「金属燃料リサイクルの設計検討」では年間38ton-HMの金属燃料を金属電解法によって再処理する実用化プラントの設計研究を行っている。この検討で提示された電解精製槽は、一年（稼働日数200日）当たり炉心燃料および径ブランケット38ton-HMを5基の電解精製槽で処理できるよう大型化されたもので、一電解精製槽当たり8基の電極を同時に装填することができる（図 1-1）。

プロセス条件及び収率は実験などの実績データに基づいて設定されているため、決められた時間内に所定の処理量を達成できるように電極表面積（電極の大きさ）が定められる。また、析出時の電極の大きさおよびハンドリング等の兼ね合いから、極端に狭隘な機器内部構造を必要とする形状管理を臨界設計として適用することは困難であると考えられ、したがって基本とする臨界安全設計は質量管理に基づくものとされた。

一方で、Puの電解が可能になるためには、熔融塩中のHM濃度が10wt%以上、およびPu/U比が3/1以上という条件が必要であり、かつ電解精製槽の大型化に伴い保持する熔融塩量が増加したため、電解精製槽中には通常運転時においても約130kgのPuが存在することとなった。このような多量のPuの取扱は単純な質量管理の下では原理的に許容しがたいことである。一方で、電解精製槽に存在しているPuの実際の状態から考慮するならば、たとえ130kgであっても臨界安全上の裕度を十分有していることは確認できる。すなわち、従来の臨界安全設計の方法論の枠内では、金属電解法の電解精製槽における臨界安全設計は過度に保守的な解しか得られないことが明らかとなる。この既存の原則論と実際との間のギャップを埋めるために、電解精製槽における臨界安全上の特徴を踏まえた新たな臨界安全設計の方法論を検討・構築すると同時に、その方法論の成立性及び妥当性を確認する必要がある。

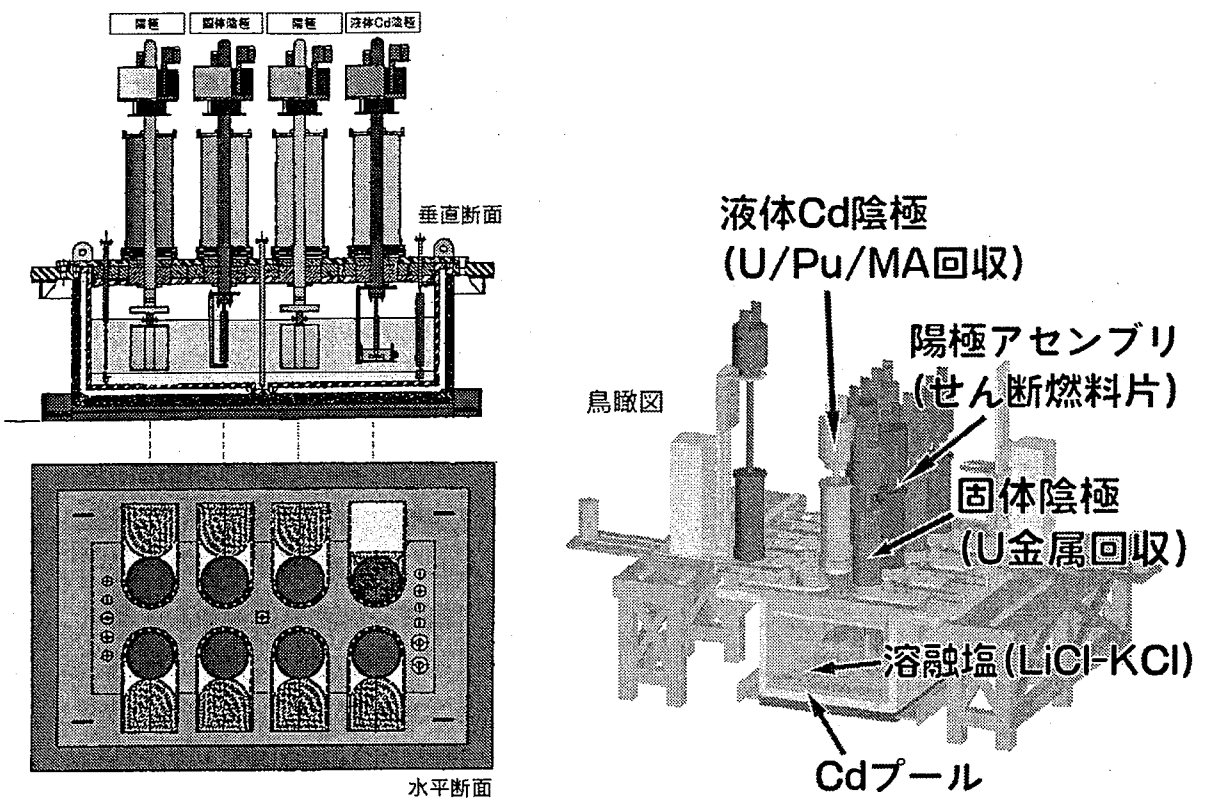


図 1-1 大型 8 極電解精製槽

2. 評価の前提条件

本評価は「金属燃料リサイクルシステムの設計評価」について平成14年度までに実施された内容を対象としている。従って、機器・プロセス等の評価モデルはこの時点での設計（幾何形状、反射条件、標準取扱量等の設計値）を基にしている。また、臨界評価に必要な物質質量およびPu富化度、同位体組成などの燃料条件もこの設計に従って設定している。ただし、MAについては検討の前提となる組成における核分裂性MAの比率が低いいため、対象から省くものとした。

表 2-1から表 2-6には処理対象の金属燃料の集合体仕様および組成を、表 2-7には電解精製槽の仕様を、さらに図 2-1には炉心燃料処理用電解精製槽における溶融塩中の元素量の変化を示す。

表 2-1 金属燃料燃料ピン炉心部分（平衡炉心装荷時）のインベントリ

燃料タイプ		内側炉心燃料	外側炉心燃料
バッチ当たりの燃料交換体数 [体/バッチ]		69	35
燃料集合体当たりの燃料ピン本数 [本/体]		331	
上部軸ブランケット長 [cm]		15	
下部軸ブランケット長 [cm]		15	
炉心燃料長 [cm]		85	
燃料半径 [cm]		0.375	
燃料ピン半径 [cm]		0.425	
炉心燃料部重金属インベントリ [g/pin]（核種組成[wt%]） 軸ブランケット含まず			
U	U234	0.2058 (0.06)	0.1899 (0.06)
	U235	0.0350 (0.01)	0.0345 (0.01)
	U236	0.1051 (0.03)	0.0950 (0.03)
	U238	346.2104 (99.90)	321.4329 (99.90)
	U小計	346.5563	321.7523
Pu	Pu238	0.4904 (1.0)	0.6819 (1.0)
	Pu239	33.4603 (68.0)	46.1200 (68.0)
	Pu240	12.7939 (26.0)	17.6349 (26.0)
	Pu241	1.2304 (2.5)	1.6918 (2.5)
	Pu242	1.2304 (2.5)	1.6918 (2.5)
	Pu小計	49.2053	67.8205
MA	Np237	0.1927 (13.0)	0.2676 (13.0)
	Am241	0.7750 (52.4)	1.0790 (52.3)
	Am242m	0.0219 (1.5)	0.0345 (1.7)
	Am243	0.2671 (18.0)	0.3712 (18.0)
	Cm242	0.0000 (0.0)	0.0000 (0.0)
	Cm243	0.0044 (0.3)	0.0000 (0.0)
	Cm244	0.1795 (12.1)	0.2503 (12.1)
	Cm245	0.0394 (2.7)	0.0604 (2.9)
	MA小計	1.4799	2.0630
HM総インベントリ		397.242	391.636
Pu富化度 [wt%]		12.4	17.3
MA装荷率 [wt%]		0.37	0.53

表 2-2 ブランケット部分（平衡炉心装荷時）のインベントリ

燃料タイプ		軸方向ブランケット	径方向ブランケットピン
バッチ当たりの燃料交換体数	[体/バッチ]	104 (内側+外側)	20
燃料集合体当たりの燃料ピン 本数	[本/体]	331	127
上部軸ブランケット長	[cm]	15	—
下部軸ブランケット長	[cm]	15	—
ブランケット部分燃料長	[cm]	30	115
燃料半径	[cm]	0.375	0.69
燃料ピン半径	[cm]	0.425	0.74
ブランケット部重金属インベントリ [g/pin]			
U	U234	0.0842 (0.06)	1.2205 (0.05)
	U235	0.0145 (0.01)	0.1969 (0.02)
	U236	0.0436 (0.03)	0.5906 (0.03)
	U238	140.3672 (99.90)	2008.8189 (99.90)
	U小計	140.5095	2010.8269
HM総インベントリ		140.5095	2010.8269

※軸方向ブランケットは30cm長さ分のインベントリ

表 2-3 燃料ピンのインベントリ (平衡炉心装荷時)

燃料タイプ		内側燃料	外側燃料
HM	[g/pin]	537.7510	532.1453
U	[g/pin]	487.0658	462.2618
Pu	[g/pin]	49.2053	67.8205
MA	[g/pin]	1.4799	2.0630
Zrインベントリ	[g/pin]	59.7501	59.1273
燃料ピンインベントリ	[g/pin]	597.5011	591.2726
炉心部密度	[g/cm ³]	11.75	11.59
軸ブランケット部密度	[g/cm ³]	11.78	11.78
燃料+ブランケット均質化密度	[g/cm ³]	11.76	11.64

表 2-4 金属燃料燃料ピン（平衡炉心取り出し後4年冷却時）のインベントリ

燃料タイプ		内側炉心燃料	外側炉心燃料
炉心燃料部重金属インベントリ [g/pin] (核種組成[wt%]) 軸ブランケット含まず			
U	U234	0.1489 (0.05)	0.1726 (0.06)
	U235	0.0350 (0.01)	0.0345 (0.01)
	U236	0.0876 (0.03)	0.0863 (0.03)
	U238	279.5657 (99.90)	277.9456 (99.89)
	U小計	279.8371	278.2391
Pu	Pu238	0.4991 (0.97)	0.6819 (1.17)
	Pu239	33.7011 (65.59)	36.7026 (62.90)
	Pu240	14.2476 (27.73)	17.4363 (29.88)
	Pu241	1.6726 (3.26)	1.8817 (3.22)
	Pu242	1.2610 (2.45)	1.6487 (2.83)
	Pu小計	51.3814	58.3513
MA	Np237	0.2058 (12.34)	0.2590 (11.36)
	Am241	0.8538 (51.18)	1.2603 (55.30)
	Am242m	0.0263 (1.57)	0.0432 (1.89)
	Am243	0.3109 (18.64)	0.4057 (17.80)
	Cm242	0.0000 (0.00)	0.0000 (0.00)
	Cm243	0.0044 (0.26)	0.0086 (0.38)
	Cm244	0.2189 (13.12)	0.2503 (10.98)
	Cm245	0.0482 (2.89)	0.0518 (2.27)
	MA小計	1.6682	2.2788
HM総インベントリ		332.887	338.869
Pu富化度 [wt%]		15.4	17.2

表 2-5 ブランケット (平衡炉心取り出し後4年冷却時) のインベントリ

燃料タイプ		軸方向ブランケット		径方向ブランケットピン	
炉心燃料部重金属インベントリ [g/pin] (核種組成[wt%])					
U	U234	0.0639	(0.05)	1.0630	(0.06)
	U235	0.0232	(0.02)	0.3543	(0.02)
	U236	0.0407	(0.03)	0.5906	(0.03)
	U238	126.8882	(99.90)	1906.2992	(99.89)
	U小計	127.0160		1908.3071	
Pu	Pu238	0.0087	(0.09)	0.0394	(0.05)
	Pu239	8.2530	(89.82)	75.4331	(94.66)
	Pu240	0.8599	(9.36)	4.0551	(5.09)
	Pu241	0.0610	(0.66)	0.1575	(0.20)
	Pu242	0.0058	(0.06)	0.0000	(0.00)
	Pu小計	9.1884		79.6850	
MA	Np237	0.0232	(57.14)	0.1969	(83.33)
	Am241	0.0174	(42.86)	0.0394	(16.67)
	Am242m	0.0000	(0.00)	0.0000	(0.00)
	Am243	0.0000	(0.00)	0.0000	(0.00)
	Cm242	0.0000	(0.00)	0.0000	(0.00)
	Cm243	0.0000	(0.00)	0.0000	(0.00)
	Cm244	0.0000	(0.00)	0.0000	(0.00)
	Cm245	0.0000	(0.00)	0.0000	(0.00)
	MA小計	0.0407		0.2362	
HM総インベントリ		136.245		1988.228	
Pu富化度 [wt%]		6.7		4.0	

※軸方向ブランケットは30cm長さ分のインベントリ

表 2-6 燃料ピンのインベントリ (平衡炉心取り出し後 4 年冷却時)

燃料タイプ		内側燃料	外側燃料
HM	[g/pin]	469.1318	475.1143
U	[g/pin]	406.8531	405.2551
Pu	[g/pin]	60.5698	67.5397
MA	[g/pin]	1.7089	2.3195
FPインベントリ	[g/pin]	68.3626	58.2000
Zrインベントリ*	[g/pin]	59.7501	59.1273
燃料ピンインベントリ	[g/pin]	597.2445	592.4416

※Zrは燃焼により変化しないものと仮定。

表 2-7 電解精製槽の主要設計値と運転条件

	炉心燃料処理用	径ブランケット処理用
胴部形状	直方体 (W2720×D1220×H950)	
内部容積 [L]	3152.5	
電極ポート数 [基]	8	
陽極同時装填数 [基]	4	
固体陰極同時装填数(最大) [基]	3 (4)	
液体Cd陰極同時装填数 [基]	1	
処理対象	内側および外側炉心燃料 (軸ブランケット含む)	径ブランケット燃料
処理能力 [日]	同時電解モード (液体Cd陰極同時使用時) : 固体陰極3基 (20時間/基×3基同時装填×1回/日) 液体Cd陰極2基 (10時間/基×2回/日)	
溶融塩層		
電解液	LiCl-KCl共晶塩	
標準容量 [kg]	1700 (新溶融塩装荷時) 2552 (所定量の燃料溶解後の電解操業時)	
塩相深さ [mm]	301 (新溶融塩装荷時) 378 (所定量の燃料溶解後の電解操業時)	
定常操業時HM濃度(対塩) [wt%]	10.67	
定常操業時TRU/U比 [wt]	2.45/1	
定常操業時Pu/U比 [wt]	3.00/1	
定常操業時U溶解量 [kg]	42.9	
定常操業時Pu溶解量 [kg]	128.8	
定常操業時MA溶解量 [kg]	9.5	
陽極		
陽極構成	W100×D30×H240の直方体形状バスケット4個 を十字型に組み合わせたものを1基の陽極とする。 (陽極アセンブリ)	
装荷物質	1cm長にせん断された 炉心燃料ピン	3cm長にせん断された 径ブランケット燃料ピン

表 2-7 電解精製槽の主要設計値と運転条件

	炉心燃料処理用	径ブランケット処理用
アセンブリ当たりの装荷量 (平均値)	18本分のせん断燃料片 (7.34kg-U+1.14kg-Pu)	5.5本のせん断燃料片 (10.86kg-U+0.45kg-Pu)
固体陰極		
形状	φ 50mmの円柱	
陰極材質	鉄	
標準回収量[/電極]	9.9kg-U	11.5kg-U
液体陰極		
形状	φ 260mm×H150mmの円筒	
るつぼ材質	BeO	
標準装荷Cd [kg]	31kg	
標準回収量[/電極]	1.1375kg-U 2.275kg-Pu 0.075kg-MA	1.1326kg-U 2.265kg-Pu 0.007kg-MA
その他		
Cdプール用Cd装荷量 [kg]	1000	

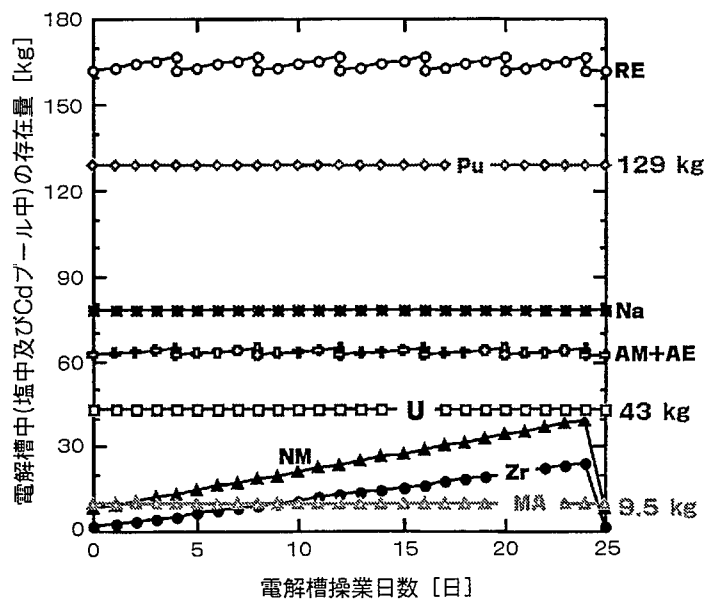


図 2-1 炉心燃料処理用電解精製槽における溶融塩中の各元素濃度変化

3. 臨界安全設計の観点から見た電解精製槽の特徴

具体的な臨界設計について検討する前に、ここで金属燃料の電解精製槽において臨界安全設計の観点から見た特徴を考察する。すなわち、電解精製槽ではその臨界安全設計を進めるにおいて留意すべき以下に示す4つの特徴が見受けられる(図 3-1)。

- (1) 非減速系である。
- (2) Puは複数の異なった化学物質に分かれて同時に共存している。
- (3) Puを含む燃料物質の受入/払出は遠隔自動化されたマテリアルハンドリングによって行う。
- (4) 通常運転時で130kgを超えるPuを一つの装置内に保持している。

以下、上記の特徴について一つずつ説明する。

3.1 非減速系

金属電解法の電解精製工程では原則として減速材となる核種、材料を使用しない。後述するように、熔融塩に含まれる軽元素Liは減速材としての働きを持たない。また、電解精製槽が設置されるセルおよび電解精製槽内部は、特別に純度管理されたAr雰囲気であるため、空気中で取り扱う場合に考慮しなくてはならない湿分の影響も除外できる(ただし厳密には、Ar雰囲気制御の異常事象の取扱如何による)。

一般に臨界質量は減速材が存在する系の方が小さくなるので、この特徴は臨界安全設計上好ましいものである。

減速材の及ぼす影響の定量的評価については後述する。

3.2 複数の化学形態の共存

陽極アセンブリに装荷されたせん断燃料(TRU-Zr合金)は、電解精製槽内で熔融塩に浸漬されて電解操作を受けると、合金中のHMはイオンとなり熔融塩中に溶解する。一方、陰極ではHMのイオンが還元析出し、固体陰極ではUの単体金属が、液体Cd陰極ではUの単体金属に加え、PuあるいはMAとCdの化合物(PuCd_x等)が析出する。電解工程での物質の移動はファラデーの法則に従うため、電流効率が100%であると仮定するならば、陽極でHMが溶解したと同時に陰極で等電荷量のHMイオンが析出する。少なくとも、通電した電流量に相当する量を大きく超える量の物質が析出することはない。

また、熔融塩中のHMイオンは、酸素と結合すると熔融塩に不溶の酸化物となってしまう。通常、電解精製槽内は厳格に雰囲気管理されているが微量の不純物として酸素あるいは湿分が混入することが考えられる。

従って、電解精製槽中では、

- (1) 陽極にあるTRU-Zr合金
- (2) 熔融塩中のHMイオン
- (3) 固体陰極に析出したUの単体金属
- (4) 液体Cd陰極に析出したUの単体金属およびPuCd_x
- (5) 不純物と反応して生成した不溶解物（酸化物など）

が同時に存在しており、かつ通常運転時では全てのHM（あるいはPu）がある特定の化学形態へ変化するということが起きない。この特徴は異常時を考慮すると必ずしも成り立たないが、そのような事象に対する考察は第5章で行う。

なお、これらの物質の密度（すなわちPu原子の数密度）は異なるため、臨界質量もそれぞれの化学形態で異なる。

3.3 遠隔自動化されたマテリアルハンドリング

「金属燃料リサイクルシステムの設計評価」で設計されたプラントは、バッチ処理方式で、主要な物質の移動には遠隔の搬送機器を用いる。また通常の操業は自動化されており、操作員が逐次機器操作を行うことはない。

機器同士が配管で接続されていない部分では、圧力差等による意図しない物質移送が起きえない。また人が介在しない自動運転のため、チェックミスや誤操作による誤移送が生じがたい。したがって、自動運転システムが適切に構築されているならば、これら人間の誤操作に対する安全裕度を設ける必要がなくなる。すなわち、質量管理において人間の誤操作（主にダブルバッチ）に対する安全裕度として一般に設定されている安全係数0.43を用いる必要がない（先例として、JNC東海事業所のプルトニウム燃料センター第三開発室が挙げられる）。

3.4 通常時で 130kg を超える Pu

本対象プラントの電解精製槽の処理量は、1バッチ当たり4.6kg-Puである。ところが、機器の大型化に伴い内部に装荷する熔融塩の量が増加し、一方で電解に必要なPu濃度条件が存在することから、絶対量では熔融塩中に129kgのPuが常時溶解していることとなっている。

十分工学的に成立する速度でUおよびPuの電解回収を行うための条件として、熔融塩中のPu濃度が一定以上である必要がある。また特に、液体Cd陰極でのPu回収が可能であるためにはUに比べてPuの濃度が高い必要がある。これらを満たすために、「金属燃料リサイクルシステムの設計評価」での電解精製工程における熔融塩中濃度は、HM濃度10.67wt%、Pu/U重量濃度比3/1と設定された。また、電解精製槽は8極の電極を同時に装荷できるよう大型化され、幅272cm、奥行き122cmとなっている。そこに電極を装荷したときに、電極が十分熔融塩に浸漬される深さまで熔融塩が満たされている必要があり、そのために1000LのLiCl-KCl

熔融塩を注入する。従って、濃度条件を満たすためには約1000L (1700kg) の熔融塩に対し、42.9kgのU、128.8kgのPu、9.5kgのMAを溶解させる必要がある。このように、熔融塩中のPu量は、純粋にプロセス上の要請から決められる。

さらに電解精製槽の下部に液体Cdのプールを設けているが、Puが溶解している熔融塩と接触しているためいくらかのPuはこのCdプール層へ移動し、平衡状態を作る。この平衡状態におけるCdプール内のPu濃度は温度及び熔融塩中Pu濃度に依存して決まる。この限界量はCdに対するPuの飽和濃度で3.62wt%である。

以上より、電解精製プロセスを成立し得るには熔融塩中およびCdプール中のPu溶解分にバッチ処理分を加えて130kgを超えるPuが系内に存在することになる。

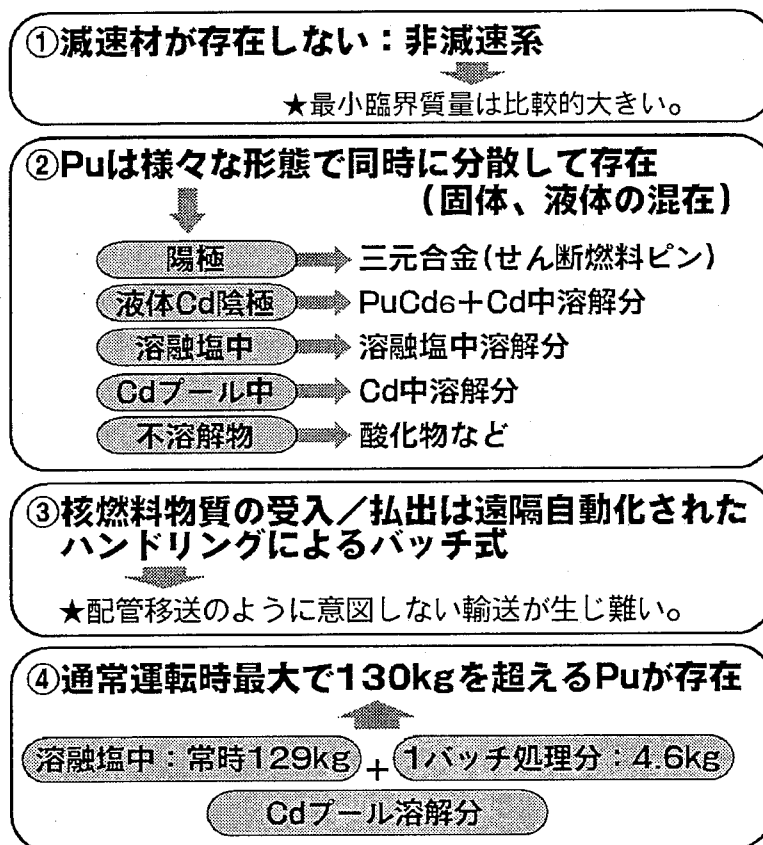


図 3-1 臨界安全設計の観点から見た電解精製槽の特徴

4. 基本となる物質の臨界質量の計算と特性評価

4.1 電解精製工程で現れる核燃料物質の化学形態

金属電解法電解精製工程の特徴の一つは、一つの工程の中で燃料物質（臨界上注意を要するのはPu）が様々な化学形態へと変化していくことである。従って臨界安全設計では、これら複数の化学形態のいずれをとっても臨界安全を保証できるようにする必要がある。

電解精製工程で現れる化学形態は、陽極に装荷するせん断HM-Zr合金燃料ピン、熔融塩中に存在する金属イオン（化学的には塩化物の形態）、Cd液体陰極で回収されるCd金属間化合物、および電解槽中に侵入してきた酸素原子と熔融塩中の金属イオンが反応して生成する酸化物である。

4.2 Pu 同位体組成と MA

システム設計においては、電解精製槽が炉心燃料処理（軸ブランケット混合処理）と径ブランケット燃料処理と、それぞれ専用に分けられている。取り扱う燃料形態でPu同位体組成が最も厳しいのは照射後の径ブランケット燃料で、4年冷却後の時点で平均Pu-fissile率が94.86wt%である。臨界設計上は炉心燃料処理用電解精製槽と径ブランケット燃料処理用電解精製槽は区別しない（核的制限値を共用する）ため、想定するモデルでのPu同位体組成は保守的に考えてPu239のみのものである。ただし、電解精製槽への入量物質（陽極バスケット内のせん断燃料）評価ではPu富化度の高い炉心燃料を考慮する方が保守的であるので、平衡炉心装荷時（未照射）の外側炉心燃料を基本とする。

また、MAに関しては基本となる物質の臨界質量の計算では考慮しないものとする。

4.3 計算環境と計算モデル

臨界質量（正確には最大許容限度質量）の計算には、日本原子力研究所が開発した連続エネルギー法に基づく汎用中性子輸送計算モンテカルロコードMVPと、核データJENDL-3.2を組み合わせ実施した。なお、塩素についてはMVP用のJENDLライブラリにデータがないためENDEF/B-VIの核データを用いた。

計算に用いたヒストリー等は個々の計算において多少変更しているが、おおむね総ヒストリー数は300万、バッチ当たり2万ヒストリーで、捨てバッチは50である（有効ヒストリー数は200万）。

幾何形状としては、臨界質量を計算する場合は最も中性子漏洩の少ない球形状を仮定する。反射条件は特に記載しなければ厚さ20cmの軽水反射体である（水全反射条件と等価）。

最大許容増倍率の判定は、上記計算条件で得られた中性子増倍率 k_{eff} にその標準偏差の三倍 (3σ) を加えた値 ($k+3\sigma$) が0.95以下となる最大のものであるとした。 3σ はモンテカルロ法自体の不確かさに対する裕度であり、 $k<0.95$ は計算コードによって評価された体系が未臨界と言えるための保証である。

4.4 HM-Zr 合金

電解精製工程の処理対象物として、せん断されたHM-Zr燃料ピンを電解精製槽に受け入れる。炉心燃料ピンは長さ1cmほどにせん断されて所定量が陽極バスケットに装荷される。陽極バスケット4個を十字型に組み立てて1基の陽極アセンブリとする。大型8極電解精製槽はこの陽極アセンブリ4基を同時に装填し、電解を行う。

まず最も単純な系としてHM-Zr合金の臨界質量を計算した(表4-1)。金属炉の燃料部はHM-Zr合金製であり、平衡装荷燃料の外側炉心燃料ピンの炉心燃料部分には一本当たり67.8gのPuが含まれているため、表4-1の臨界質量は燃料ピンに換算すると約800~1300本分(集合体にして2.4~4.0体)に相当する。

表 4-1 HM-Zr 合金の臨界質量計算

	外側炉心燃料相当		内側炉心燃料相当
理論密度 [g/cm ³]	15.8		
スミア密度 [%TD]	100	75	100
組成 [wt%]	HM/Zr = 90/10		
Pu富化度 [wt%]	17.2		12.3
Pu同位体比 [wt%]	Pu238/239/240/241/232 = 1/68/26/2.5/2.5		
U同位体比 [wt%]	U234/235/236/238 = 0.06/0.01/0.03/99.9		
MA装荷量 [wt%]	なし		
幾何形状	球		
反射条件	20cm厚さの軽水反射体		
臨界質量 [kg-Pu]	55	89	89
[kg-fissile]	39	63	63
[kg]	357	521	812

実際に扱うHM-Zr合金は燃料ピンの形状である。このような場合、非均質性の影響を考慮する必要がある。金属電解法では有意な量の減速物質を使用しないため、燃料ピン同士が近接するほど中性子増倍率は高くなる。そこで、最もPu富化度の高い外側炉心燃料ピンを稠密配列で束ねたモデル(図4-1)によって、燃料ピンバンドルが臨界となるときの燃料ピン配列数(燃料ピン本数)を求めた。

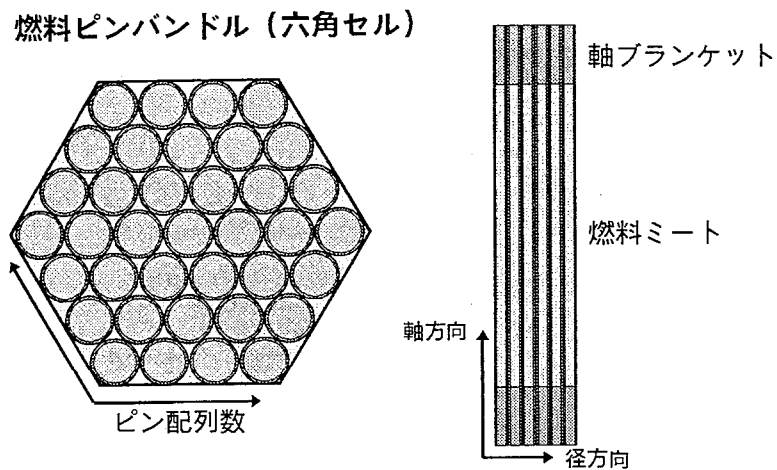


図 4-1 金属燃料燃料ピンの臨界本数計算モデル

このモデルでは外周が円状になっていないため、中性子の漏洩が控えめに評価されるが、ピン配列数が十分大きい場合にはこの影響は無視できるほど小さくなる。計算結果を表 4-2に示す。

表 4-2 燃料ピン六角セル体系での臨界質量計算

	外側炉心燃料	内側炉心燃料
燃料タイプ	HM-Zr合金	
組成 [wt%]	HM/Zr = 90/10	
軸方向ブランケット長 [cm]	上部/下部 = 15/15	
炉心燃料長 [cm]	85	
燃料部半径 [cm]	0.375	
被服管厚さ [cm]	0.425	
炉心部燃料スミア密度 [g/cm ³]	11.59	11.75
炉心部Pu富化度 [wt%]	17.2	12.3
炉心部MA含有率/HM [wt%]	0.52	0.37
U同位体比 [wt%]	U234/235/236/238 = 0.06/0.01/0.03/99.9	
Pu同位体比 [wt%]	Pu238/239/240/241/232 = 1/68/26/2.5/2.5	
MA組成 [wt%]	Np237/Am241/242m/243/Cm242/243/244/245 = 53.31/18.37/12.35/2.71/13.25 ※核データに無い核種(Am242m, Cm243)は無視した。	
燃料ピンセル配列	六角周密配列(図 4-1参照)	
燃料ピン間ギャップ	完全ボイド	
反射条件	厚さ20cmの水反射体	
未臨界最大ピン配列数 [列]	23	32
ピン本数 [本]	1519	2977
Pu量 [kg]	103	146

4.5 LiCl-KCl 溶融塩系

金属電解法電解精製槽では、電解浴としてLiCl-KCl共晶塩を用いる。プロセス設計においては、UおよびPuの工学的電解条件として溶融塩中のHM濃度が10.66wt%、Pu/HM重量比が3/1であると決められている。運転手順では新しい溶融塩に対して燃料を次々と溶解させていき、上記濃度条件に達した後で電解精製プロセスを開始する。理論上は、溶融塩中の正負のイオン存在量に対して電気的中性が成立するため、ファラデーの法則により酸化反応によって陽極で溶解するのに要した同電荷量の陽イオンが陰極において同時に還元析出する。したがって、電解精製の間中、溶融塩中のHM濃度は変化しない。ただし、本評価に当たってはHM濃度（Pu濃度）に対する反応度変化を広い範囲で評価するため、規定濃度条件から20wt%・Puまで扱った。

4.5.1 LiCl-KCl-HM 系の臨界質量

LiCl-KCl-HM系の臨界質量を評価するのに、以下の条件での臨界質量を評価した(Case1~4)。評価に用いた諸量を表 4-3、表 4-4に示す。

表 4-3 評価に用いた LiCl-KCl 共晶塩の物質特性

密度	[g/cm ³]	1.7
LiCl/KCl混合組成	[wt%]	44/56
⁶ Li/ ⁷ Li同位体比	[wt%]	7.5/92.5
LiCl分子量		42.3936
KCl分子量		74.5510

表 4-4 LiCl-KCl-HM 系の臨界質量評価モデル諸条件

	Case-1	Case-2	Case-3	Case-4
HM濃度 [wt%]	10.66	10.66	20.00	20.00
Pu/HM重量比 (Pu富化度)	3/1 (72wt%)	1/0 (100wt%)	3/1 (72wt%)	1/0 (100wt%)
HM同位体比 (U/Pu/MA)	平衡炉心 新燃料組成	Pu239:100wt%	平衡炉心 新燃料組成	Pu239:100wt%
バルク密度 [g/cm ³]	1.9028		2.1250	
Pu-fissile密度 [g/cm ³]	0.1034	0.2028	0.2167	0.4250
Li/Pu比 [wt%]	29.0	20.8	13.8	9.9
幾何形状	球			
反射条件	20cm厚さの水反射体			

評価結果を表 4-5に示す。

表 4-5 LiCl-KCl-HM 系の臨界質量評価結果

	Case-1	Case-2	Case-3	Case-4
バルク密度 [g/cm ³]	1.9028		2.1250	
Pu-fissile密度 [g/cm ³]	0.1034	0.2028	0.2167	0.4250
Li/Pu比 [wt%]	29.0	20.8	13.8	9.9
臨界半径 [cm]	無限体系における keff: 0.748	308	234	113
臨界質量 [kg-Pu]		24988	16497	2557
[kg-fissile]		24988	11680	2557
[kg]		234411	114565	12785

これらの結果より、設計標準状態の熔融塩では臨界になり得ないこと、および設計標準状態の3倍の熔融塩中Pu濃度においてもその臨界質量は2.5ton-fissileと極めて大きいことが分かる。

「金属燃料リサイクルシステムの設計評価」で設計された大型8極電解精製槽は通常運転中で約1900kgの熔融塩（128.8kg-Pu）を内蔵するが、これはCase-4の臨界質量の15%程度である。したがって、熔融塩体系では十分な安全裕度を有していると言える。

4.5.2 Liの影響評価

Liは質量数が6および7の軽元素である。中性子工学において一般に、軽い元素は効果的な減速材として働き、系の中性子増倍率に対して正の寄与をする。そこでLiCl-KCl-HM系におけるLiの影響を評価するために、単純なLi-Pu系でLi/Pu数密度比を変化させた場合の、中性子無限増倍率の変化を評価した。計算に用いた諸量を表4-6に示す。

表4-6 Pu-Li系評価のための諸データ

Li金属密度	[g/cm ³]	0.534
Pu金属密度	[g/cm ³]	19.86
Li同位体比	[wt%]	⁶ Li/ ⁷ Li = 7.5/92.5
Pu同位体比	[wt%]	²³⁹ Pu : 100
⁶ Li質量数		6.0151
⁷ Li質量数		7.0160
²³⁹ Pu質量数		239.0522
Li/Pu数密度比評価範囲		0.009~90000

計算モデルは無限均質系で、Pu金属とLi金属が所定のLi/Pu数密度比を満足する割合で均一に混合している。Li/Pu数密度比とPu濃度の関係を図4-2に示す。これら計算結果を図4-3に示す。

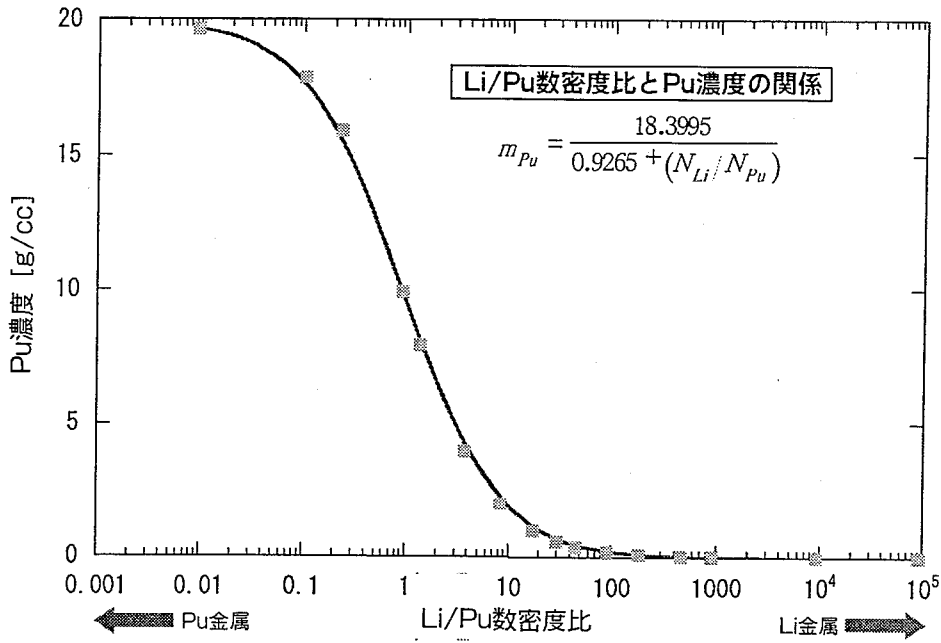


図 4-2 Li/Pu 数密度比と Pu 濃度

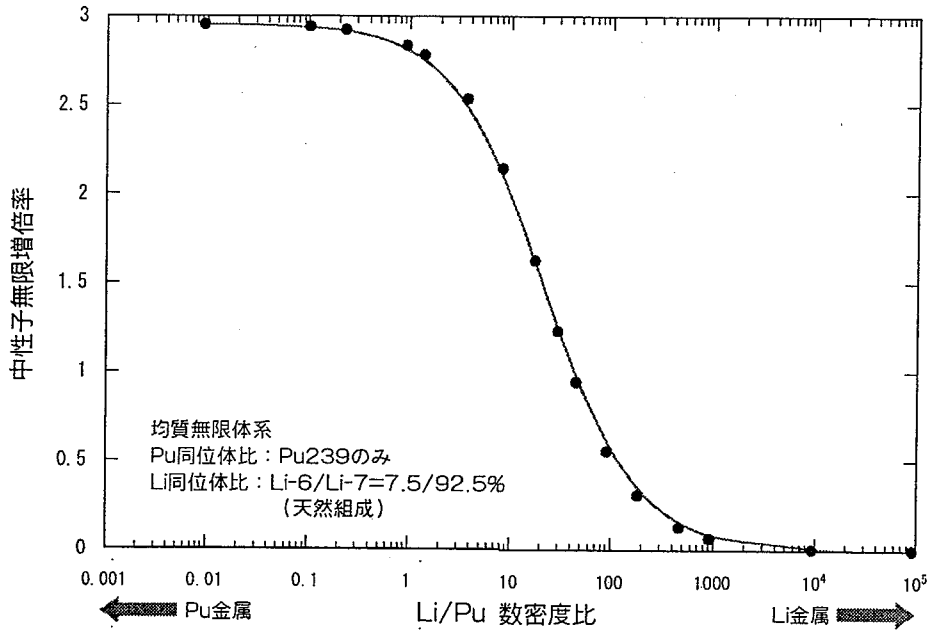


図 4-3 Li/Pu数密度と中性子無限増倍率 (k_{∞})

減速効果を比較するために、 H_2O/Pu 均質無限体系における計算結果を図 4-4 に示す。これらと比較すると、減速系である H_2O-PuO_2 系において見られる中性子実効増倍率変化のゆがみのようなものがLi-Pu系では見られず、Liリッチの状態においても、Liによる中性子無限増倍率の増加の寄与がないことが分かる。こ

これは、Li/Pu数密度比を増加させていった場合の系の中性子スペクトルの変化(図4-5)からもわかるようにLiは実質的に減速材とは言えない。

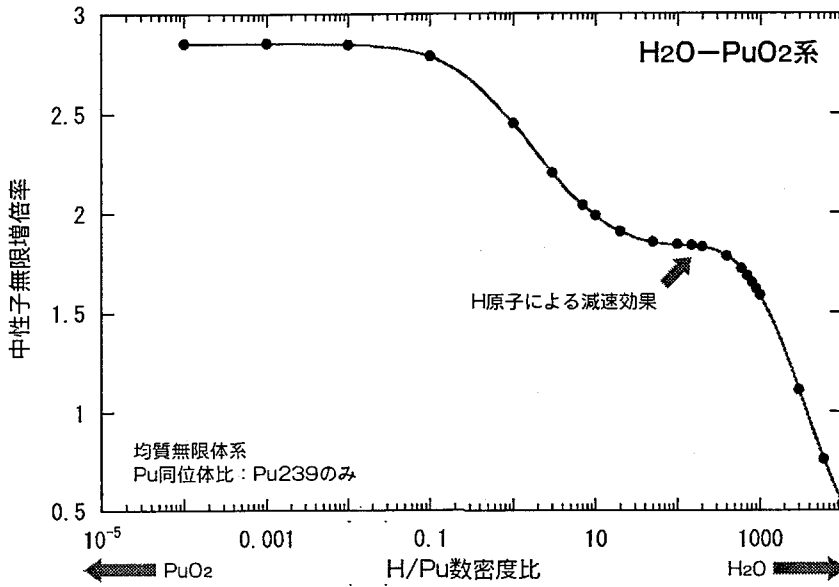


図 4-4 H₂O-PuO₂均質無限体系におけるH/Pu数密度比と中性子無限増倍率 (k_{∞})

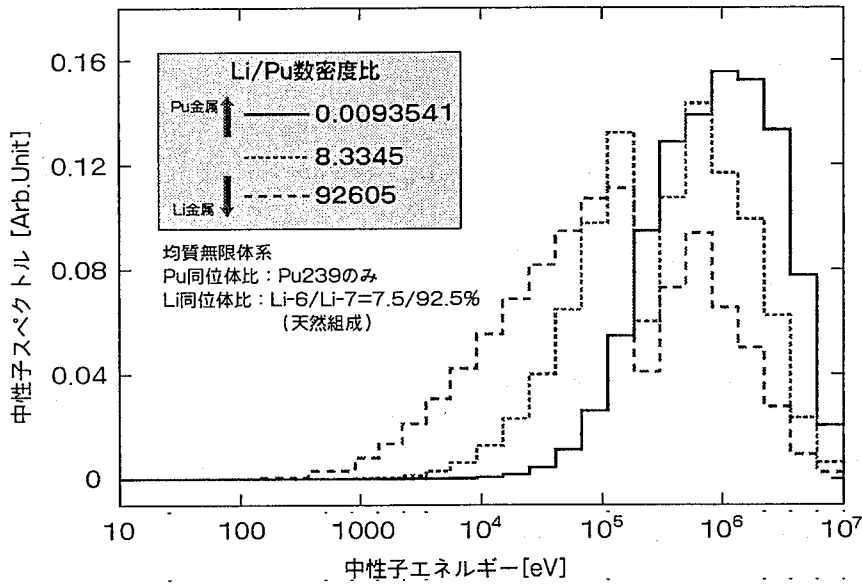


図 4-5 Li/Pu 数密度比を増加させた場合の系の中性子スペクトルの変化

より詳しく見るために、Liが全体の99.999vol% (Li/Pu数密度比が約90000)のLiリッチの系における核種の実効断面積を図4-6に示す。散乱断面積は⁶Li、⁷Liもほぼ同じ値でエネルギーに対してほぼ一定であるが、吸収断面積は $1/v$ 則に従

って低エネルギー領域ほど高く、かつ⁶Liの吸収断面積は0.1~100barnの間と非常に大きい。したがって、中性子は散乱により熱中性子領域まで減速される前に⁶Liによってほとんど吸収されてしまうことが分かる。

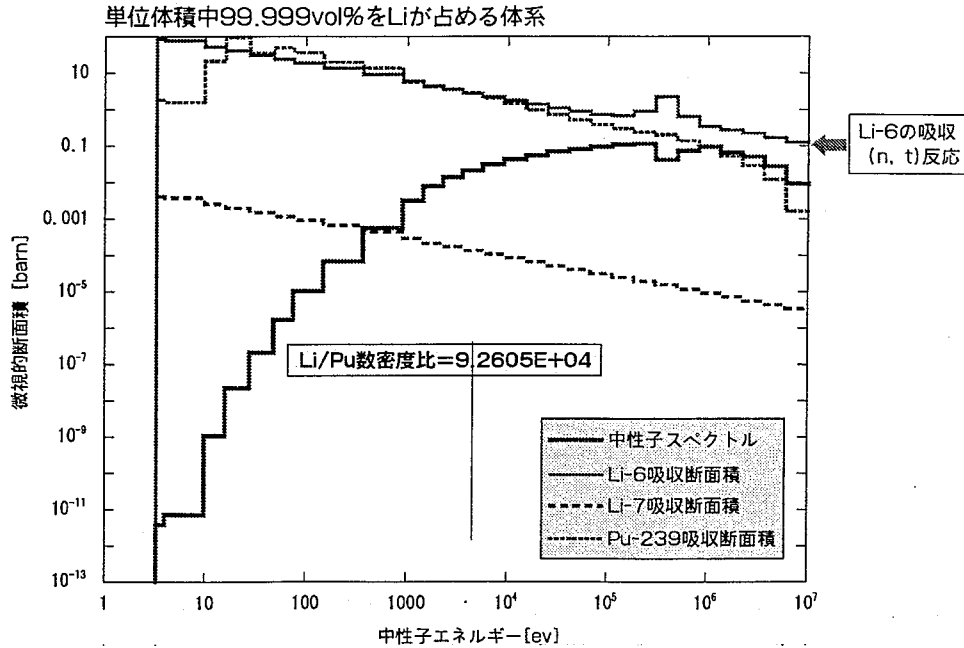
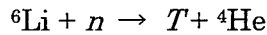


図 4-6 Li リッチな系の核種実効断面積 (Li/Pu 数密度比=約 90000)

⁶Liの吸収断面積が大きいのは、



の(n, t)反応のためである。⁶Liの(n, t)反応微視的断面積は熱中性子 (Maxwell分布) に対して平均833barnと¹Hの0.294barnに比べて3000倍ほど大きい [JENDL-3.3]。一方の⁷Liは0.04barn程度である。このことから、⁶Liの存在を考慮することは非保守側の設定となる (表 4-7)。

表 4-7 LiCl-KCl-HM均質無限系での⁶Liの効果

評価モデル	1.1節のCase-1	左モデルで ⁶ Liなしの場合
Li同位体比	天然組成 (⁶ Li/ ⁷ Li = 7.5/92.5)	⁶ Li/ ⁷ Li = 0/100
中性子無限増倍率	0.748	1.189

4.6 Pu-Cd 系

CdはPu/MA回収用の液体陰極および電解精製槽下部のCdプールに用いる。CdはPuと接触時にはPuをわずかに溶解し、その飽和濃度は3.62wt%程度である。

一方、液体陰極において所定の電圧をかけてPuを回収する際にはPuはCdと金属間化合物PuCd_xを形成する。

まず、Pu-Cd無限体系においてCd/Pu数密度比を変化させて、中性子無限実効増倍率の変化を調べた(図 4-7)。これより、Puの増加にあわせて中性子無限増倍率は単調に増加しており、減速等の複雑な現象は現れないことが確認できる。

表 4-8 Pu-Cd 系計算に用いた諸量

Cd密度	[g/cm ³]	8.64
Pu金属密度	[g/cm ³]	19.86
Cd同位体比	[wt%]	天然組成
Pu同位体比	[wt%]	Pu239のみ

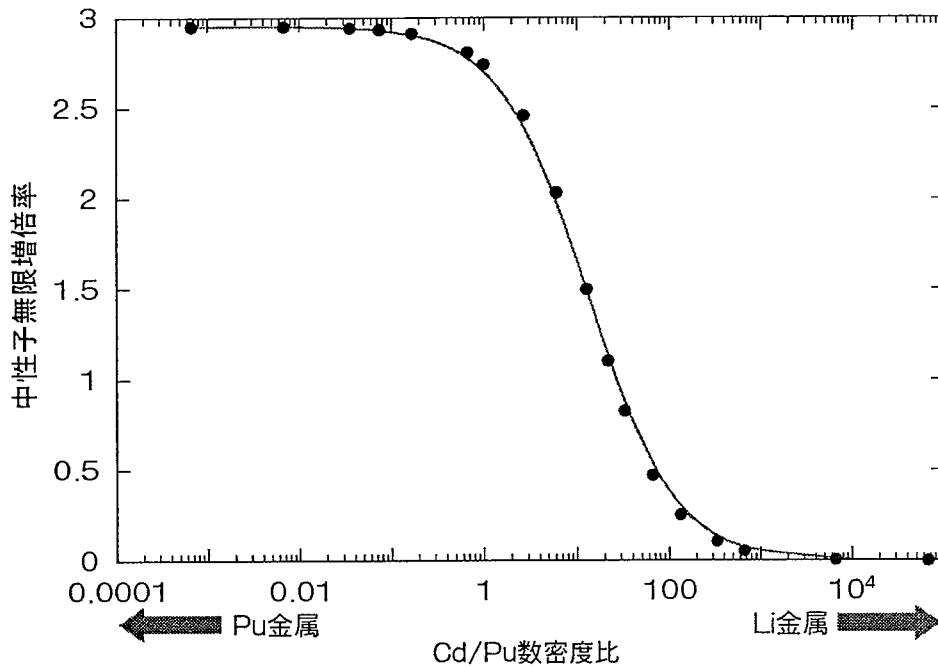


図 4-7 Pu-Cd 系の中性子無限増倍率変化

次に飽和濃度での臨界質量を求める計算を行ったが(表 4-9)、この濃度では無限体系においても未臨界であった。

表 4-9 Pu 飽和時の金属 Cd の臨界性

Pu濃度	[wt%]	3.62
Pu同位体比	[wt%]	Pu239のみ
バルク密度	[g/cm ³]	8.30
反射条件		厚さ20cm水反射体
中性子無限増倍率		0.533

次に、Puとの間で生成する金属間化合物中最も密度の高いPuCd₆について臨界質量を評価した（表 4-10）。

表 4-10 PuCd₆の臨界質量計算

密度	[g/cm ³]	9.28	
Pu密度	[g/cm ³]	2.43	
Pu同位体比	[wt%]	Pu239のみ	Pu238/239/240/241/232 = 1/68/26/2.5/2.5
幾何形状		球	
反射条件		厚さ20cmの水反射体	
臨界質量	[kg-Pu]	120	194
	[kg-fissile]	120	137
	[kg]	459	743

4.7 PuO₂

熔融塩中にカチオンとして溶解しているPuは酸素に曝された場合、熔融塩に不溶解性のPuO₂あるいはPu₂O₃を形成する。ここではPuO₂の臨界質量を評価した。臨界質量に大きく影響する高密度については、100%TD、80%TD、40%TDを扱った。40%TD（4.5g/cm³）は一般に粉末密度として扱われている値（3.5～4.0g/cm³）に保守的なマージンを加えたもので、80%TDは粉末を極めて理想的な混合状態で振動充填（機械的な操作のみ）した際に達成しうる最大の密度である。

なお、金属燃料リサイクルプラントではArセルで厳重な雰囲気管理がなされるため、異常時を考慮しても塩中で生成した酸化物に多量の水分が接近することは考えにくく、従って含水率および吸水率は考慮していない。ただし、水分の影響を大まかに把握するため次項以降でその基本的な特徴を検討する。

表 4-11 PuO₂の臨界質量計算

化学形態		PuO ₂		
密度	[g/cm ³]	11.46	9.17	4.5
	[%TD]	100	80	40
Pu同位体比	[wt%]	Pu239のみ		
含水率	[wt%]	0.0		
幾何形状		球		
反射条件		厚さ20cmの水反射体		
臨界質量	[kg-Oxide]	10.84	15.12	47.14
	[kg-Pu]	9.56	13.33	41.57

4.8 酸化物粉末における水分の影響

酸化物燃料製造など、直接水を使用しない非減速系の環境においても、酸化物粉末が周囲雰囲気中の水分を吸湿することによる影響を考慮する必要がある。水分子は酸化物の表面に付着し、最大条件では系は酸化物と水によって完全に満たされる（すなわちボイド無しの状態）。したがって、理論密度の酸化物には水分は吸着することができず、またある嵩密度の酸化物に対してもそのボイド空間を満たせばそれ以上の水の付着は物理的に起きえない。ここでは、

- (1) ボイド無しの状態での酸化物-水均一系の臨界質量
- (2) 酸化物嵩密度を固定し、含まれる水の量をパラメーターとしたときの臨界質量の変化

を評価した。

4.8.1 含水率と吸水率

燃料物質（例えばPuO₂）の嵩密度を d_{bulk} 、その理論密度を d_{th} とする。この場合、充填密度比は $s = \frac{d_{bulk}}{d_{th}} \times 100 [\%TD]$ である。物質全体の密度を $w [g/cm^3]$ とする

と、吸水率（水分吸着率）および含水率の定義は以下の通りである。

$$\text{吸水率} : R = \frac{(\text{含まれる水の重量})}{(\text{燃料物質の重量})} \times 100 = \frac{d_{wat}}{d_{bulk}} \times 100 [\text{wt}\%]$$

$$\text{含水率} : r = \frac{(\text{含まれる水の重量})}{(\text{物質の重量})} \times 100 = \frac{d_{wat}}{w} \times 100 = \frac{d_{wat}}{d_{bulk} + d_{wat}} \times 100 [\text{wt}\%]$$

これより、

吸水率から含水率への換算： $r = \frac{R}{100 + R}$

含水率から吸水率への換算： $R = \frac{r}{100 - r}$

の関係が成り立つ。

ここで、燃料物質の嵩密度 d_{bulk} と理論密度 d_{th} が分かっているときに、この燃料物質が取りうる最大の吸水率 R_{max} 及び含水率 r_{max} を知りたい。

物質中で、燃料物質の占める体積は

$$\text{燃料物質} : V_f = \frac{d_{bulk}}{d_{th}} [\text{cm}^3]$$

である。すなわち、充填密度 s [%TD] の燃料物質中に存在できる水の量は、単位体積の中で燃料物質によって占められていない空隙体積 $V_{void} = 1 - V_f [\text{cm}^3]$ 内に水分子が充満した場合であるから、水の理論密度を ρ_{wat} とすると、

$$\text{最大吸水率} : R_{max} = \frac{(1 - V_f) \rho_{wat}}{d_{bulk}} \times 100 = \left(\frac{1}{d_{bulk}} - \frac{1}{d_{th}} \right) \rho_{wat} \times 100 [\text{wt}\%]$$

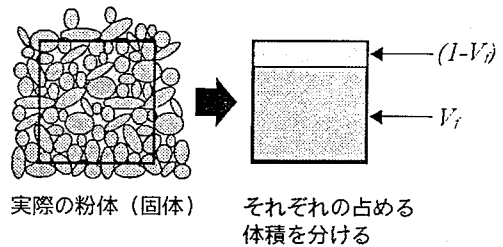
$$\begin{aligned} \text{最大含水率} : r_{max} &= \frac{(1 - V_f) \rho_{wat}}{d_{bulk} + (1 - V_f) \rho_{wat}} \times 100 [\text{wt}\%] \\ &= \frac{\left(1 - \frac{d_{bulk}}{d_{th}} \right) \rho_{wat}}{d_{bulk} + \left(1 - \frac{d_{bulk}}{d_{th}} \right) \rho_{wat}} \times 100 \end{aligned}$$

例えば、嵩密度 7.00g/cm^3 の MOX 粉末（理論密度 11.08g/cm^3 ）を取り扱う場合を考えてみる。この粉末の充填密度比は $63\% \text{TD}$ である。 1cm^3 の空間において MOX が占める体積は $7.00/11.08 = 0.63 \text{cm}^3$ 、すなわち水分子は $1 - 0.63 = 0.37 \text{cm}^3$ の空間を占めることが可能である。これより水密度を 1.00g/cm^3 とすると、最大含水率は $5.0 \text{wt}\%$ となる。この体系の臨界質量のサーベイでは、含水率を $0 \sim 5.0 \text{wt}\%$ の間でサーベイ計算を実施すればよいことが分かる。

現実には $5 \text{wt}\%$ の水が混ざった酸化物は粉体と言うよりもスラリーであり、空気中の湿分等の吸着ではこのような状態にはならない。酸化物燃料製造工程で $5 \text{wt}\%$ ほどの高い含水率を考慮するのは成形の際に混ぜるステアリン酸等の有機高分子試薬の影響を考慮するため、従って空気中湿分の吸着のみを考慮する場合には一般に吸水率を用い、 $\sim 1\%$ までを評価する。

また、上式より求めた最大含水率から 1cm^3 中に含まれる水の最大質量を求める

水分子が入り込めるのは固体粒子同士の間の隙間



には、

$$w \frac{r}{100} = d_{wat}$$

$$w = d_{wat} + d_{bulk}$$

を連立して解くと、

$$d_{wat} = \frac{r}{100-r} d_{bulk}$$

と求まる。最大吸水量の場合はその定義より、 $d_{wat} = R \times d_{bulk}$ である。

一方、理論密度 d_{th} と最大含水率 r_{max} から物質全体の密度 w [g/cm³] を計算する場合（すなわち、理論密度が既知の物質にある含水率を持たせたとき、その物質の嵩密度を計算したい場合）、

$$V_{wat} = 1 - V_f$$

$$d_{bulk} = d_{Th} \times V_f$$

$$d_{wat} = \rho_{wat} \times (1 - V_f)$$

より、

$$1 = \frac{d_{bulk}}{d_{Th}} + \frac{d_{wat}}{\rho_{wat}}$$

含水率の定義より、

$$d_{wat} = w \times \frac{r_{max}}{100}$$

$$d_{bulk} = w \times \left(1 - \frac{r_{max}}{100} \right)$$

を代入すると、

$$1 = \frac{1}{d_{Th}} w \frac{100 - r_{max}}{100} + \frac{1}{\rho_{wat}} w \frac{r_{max}}{100}$$

$$= \frac{w}{100} \left(\frac{100 - r_{max}}{d_{Th}} + \frac{r_{max}}{\rho_{wat}} \right)$$

したがって、

$$w = \frac{100}{\frac{100 - r_{max}}{d_{Th}} + \frac{r_{max}}{\rho_{wat}}}$$

$$= \frac{100 d_{Th} \rho_{wat}}{\rho_{wat} (100 - r_{max}) + d_{Th} r_{max}}$$

前の例と逆に、MOX（理論密度11.08g/cm³）が5wt%の含水率を持つ場合、上式から $w = 7.37$ [g/cm³] と求まる。内MOXは $7.37 \times (1 - 0.05) = 7.00$ 、水は $7.37 \times 0.05 = 0.37$ 、MOXの嵩密度比は63%TDとなり、前の計算の結果と一致する。

4.8.2 ボイド無し時の均一化酸化物の臨界質量

理論密度 11.46g/cm^3 でPu239のみからなるPuO₂を基準物質とし、その嵩密度を $0.009\sim 11.46\text{g/cm}^3$ (0~99%含水率)まで変化させボイド空間に水を完全充填すると考えた場合の系の臨界質量を計算した。計算モデルは全て球体系かつ内部均一で、周りに20cm厚さの水反射体条件を課した。評価点のいくつかについて、その諸量を表 4-12に、計算結果のグラフを図 4-8に示す。

表 4-12 評価点の諸量 (サンプル)

含水率	[wt%]	0	3	5	10	50	90	99
吸水率	[wt%]	0.00	3.09	5.26	11.11	100	900	9900
PuO ₂ 嵩密度	[g/cm ³]	11.46	8.46	7.15	5.04	0.920	0.110	0.01
	[%TD]	100	74	62	44	8	0.96	0.09
水体积率	[vol%]	0	26	38	56	92	99	100
水重量	[g/cm ³]	0	0.26	0.38	0.56	0.92	0.99	1
バルク密度	[g/cm ³]	11.46	8.72	7.52	5.60	1.84	1.10	1

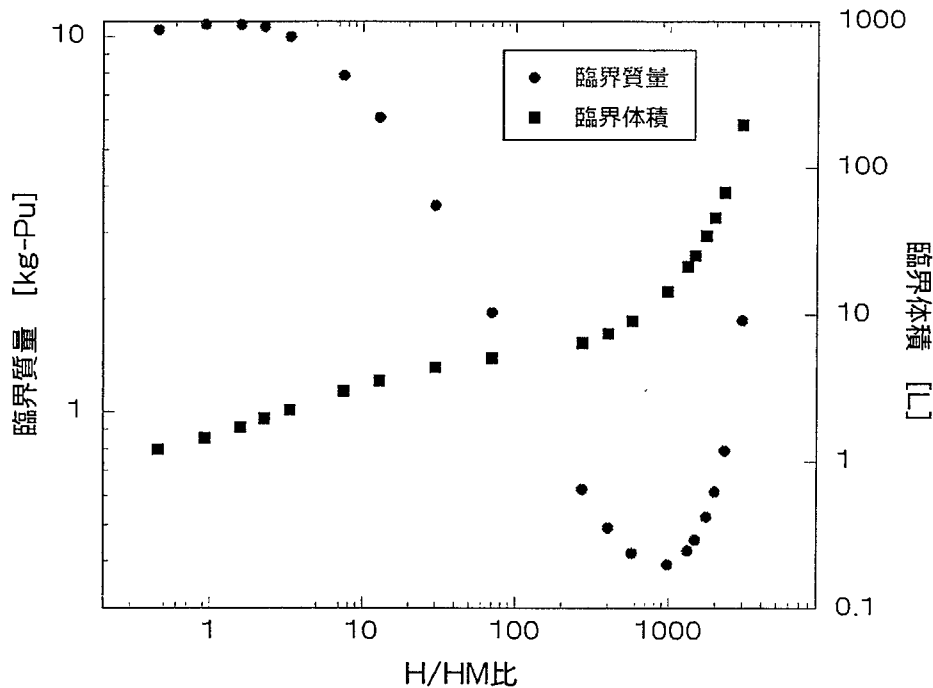


図 4-8 PuO₂-H₂O均一混合体系の臨界質量 (球体系)

粉末取扱工程において陽に水溶液を取り扱わない場合に問題となるのは含水率が0~5wt%の間であるから、上の結果ではH/HM比が0~1.5 (粉末嵩密度が7.0

～11.46g/cm³) 程度の範囲である。この範囲では含水率が増加すると、臨界質量はかえって大きくなる。すなわち、水分の増加による減速効果よりも燃料密度の低下による中性子漏洩の効果の方が強い。したがって、含水率がこの範囲内にあると考えられる工程でPuO₂粉体の嵩密度が変化するときには、含水率を考えない理論密度のPuO₂が最も保守的となる。

4.8.3 燃料嵩密度を固定した場合の臨界質量計算

次に、燃料の嵩密度を固定して含水率を変化させた場合の臨界質量の変化を計算した。対象は40%TD、63%TD、80%TD、100%TDの4つである。40%TDは完全な粉体系を想定したモデルであり、63%TDはペレット製造でのタップ密度（焼結前工程における最高密度）を考慮したもの、80%TDは振動充填によって達成される最高の密度を考慮したものである。結果を図 4-9に示す。

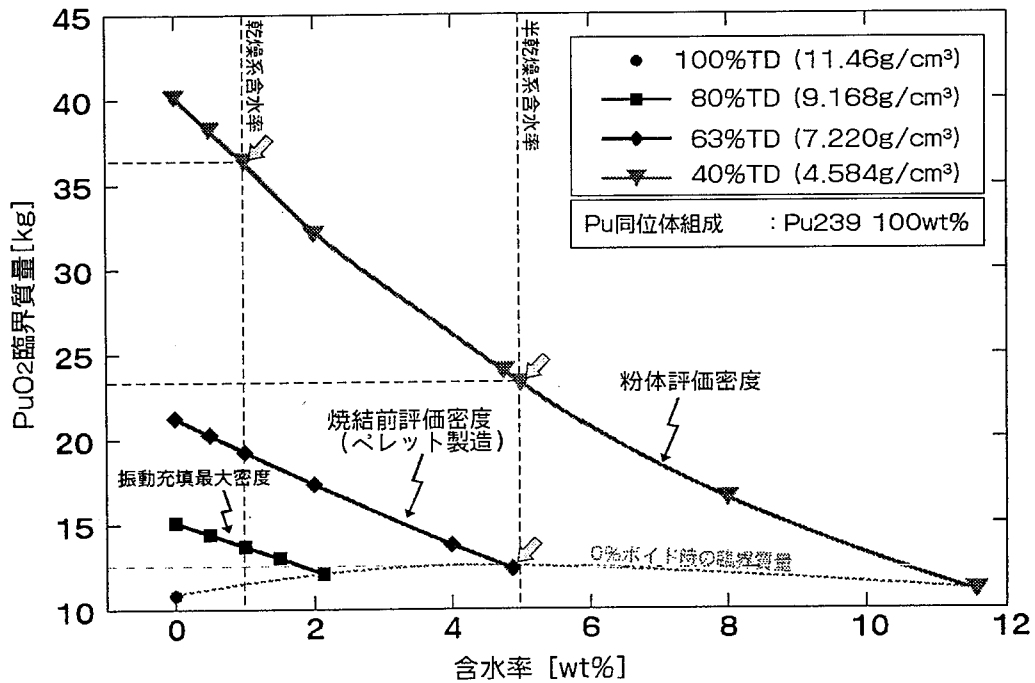


図 4-9 燃料嵩密度を固定した場合の含水率変化に対する臨界質量の変化

このグラフ中で示した乾燥系含水率（実際には1wt%の吸水率で定義されており、厳密には1.01wt%の含水率）は雰囲気空気からの水分吸着を考慮した場合の減速条件であり、半乾燥系含水率（5wt%）はペレット製造で燃料粉体に添加するステアリン酸等の有機高分子試薬の減速効果を保守的にモデル化する場合に用いる値である。

この結果より二つのことが言える。一つは、嵩密度が固定されている場合、最

も臨界質量が小さくなるのはボイド空間が全て水で充填されている場合（その燃料高密度における最大含水条件）である。もう一つは、空気雰囲気中非減速系で酸化物燃料を取扱う場合において、工程内での燃料高密度の変動に対する明確な上限値を設けられない時には、理論密度で評価を行うことが最も保守的であるということである（グラフ中、0%ボイド時の臨界質量曲線上の変動）。

4.9 単体化学形態における臨界質量

以上の解析評価の結果を表 4-13にまとめる。

表 4-13 電解精製槽で現れる化学形態の単体臨界質量

化学形態	主な出現箇所	評価条件	臨界質量
炉心燃料ピン	陽極アセンブリ	<ul style="list-style-type: none"> ・外側炉心燃料ピン ・六角周密配置バンドル ・バンドル外部に20cm厚さの水反射体 	103kg-Pu (1519本)
HM-Zr合金	陽極アセンブリ	<ul style="list-style-type: none"> ・球形状、100%TD ・Pu富化度：17.2wt% (外側炉心燃料同等) ・平衡炉心装荷燃料の核種組成 (MAなし) ・20cm厚さの水反射体 	55kg-Pu (357kg)
		<ul style="list-style-type: none"> ・球形状、75%TD ・Pu富化度：17.2wt% (外側炉心燃料同等) ・平衡炉心装荷燃料の核種組成 (MAなし) ・20cm厚さの水反射体 	89kg-Pu (579kg)
LiCl-KCl-Pu	電解精製槽	<ul style="list-style-type: none"> ・球形状 ・Pu濃度：20wt% ・Pu同位体比：Pu239のみ ・20cm厚さの水反射体 	2557kg-Pu (12785kg)
PuCd ₆	液体Cd陰極	<ul style="list-style-type: none"> ・球形状 ・Pu同位体比：Pu239のみ ・20cm厚さの水反射体 	120kg-Pu (459kg)
		<ul style="list-style-type: none"> ・球形状 ・Pu同位体比：平衡炉心装荷燃料の組成 ・20cm厚さの水反射体 	194kg-Pu (743kg)
PuO ₂	電解精製槽	<ul style="list-style-type: none"> ・球形状、100%TD ・Pu同位体比：Pu239のみ ・20cm厚さの水反射体 	9.56kg-Pu (10.84kg)
		<ul style="list-style-type: none"> ・球形状、40%TD ・Pu同位体比：Pu239のみ ・20cm厚さの水反射体 	41.57kg-Pu (47.14kg)

5. 電解精製槽の臨界安全設計検討

5.1 質量管理の考え方

臨界安全設計における質量管理とは、ある定められた範囲（機器あるいは領域で、単一ユニットと定義される）に存在できる核燃料物質の量を制限することである。一般に、その単一ユニットへの受入量および払出量を計量し、単一ユニット内の在庫量が課せられた制限値（核的制限値）以下となるように運転管理することで実装する。現時点での単一ユニット内に内在する核燃料物質の量は過去の受入量および払出量の差の総和によって明らかになる（したがって、実際に内部にある核燃料物質を直接計量する必要はない）。

本検討で取り扱う電解精製槽はそれ自体が単一ユニットとして規定されるものである。したがって、電解精製槽へ核燃料物質を受け入れる場合には、受け入れられる核燃料物質の量と電解精製槽に内在する核燃料物質の量が明らかでなくてはならない。その為には、電解精製槽から払い出す核燃料物質の量を常に計量する必要がある。

単一ユニット内部の核燃料物質が複数の化学形態、幾何学的配置を取る場合には、それらの内で最も核的に厳しい（すなわち臨界質量が小さい）状態においても未臨界であるように核的制限値を設定する。この化学形態あるいは幾何学的配置の変化は通常時だけでなく、技術的に想定しうるあらゆる状況が含まれる。

5.2 電解精製槽における質量管理適用上の問題点

電解精製槽において単純に質量管理を適用するとした場合、電解精製槽で現れる化学形態の内、最も臨界質量が小さな化学形態を基本とする。すなわち、前章での評価結果から、これは不溶解物である酸化物 PuO_2 となる。最も厳しい条件を課した場合、100%の理論密度で9kg-Puである。もっとも、理論密度に近い状態にするには機械的な圧縮力と高温による焼結が必要なため、この想定は厳しすぎると考えられる。よって、燃料製造などで粉末を扱う工程の臨界評価に用いる40%TDを想定した場合、臨界質量は41kg-Puである。核的制限値は、これに安全係数をかけたものとするため30kg-Pu程度まで縮減する。

PuO_2 は熔融塩中のPuイオンが侵入してきた酸素原子と化合してできるものであり、設計標準（すなわち通常運転時の理想的な状態）としてはその発生は想定されていない。しかしながら、工学的に考えて完全に酸素原子の侵入を防止できるとするのは非合理的であり、Arガス雰囲気制御システムという動的な機構に依存しているため、そのシステムの故障等の事象が限りなく起きえないというような条件下でなければ、発生量の過多に関わらず PuO_2 の発生そのものは除外できない。そして、少しの量であっても発生するならば、またその発生を制御しない

ならば、発生を前提とした保守的な条件設定を基準とするのが臨界安全設計の基本的な考え方にならう。なぜならば、単純な質量管理では単一ユニットに出入りする核燃料物質の量を管理するだけであり、それらが内部でどのような形態を取るかまでは管理しないからである。

すなわち、このような単純な質量管理の下では電解精製槽で取り扱えるPuの上限は高々30kg程度であり、設計で求められる130kgの取扱は不可能となる。

一方で、通常運転状態では電解精製槽に内蔵するPuのほとんどは熔融塩中に存在している。この状態での臨界質量は極めて大きい。それは、設計標準濃度の3倍の濃度条件であっても臨界質量は2.5ton-Puに達する。また、酸素が侵入したとしても、熔融塩中にUイオンが共存していればUイオンが先に酸化物を形成する性質があるため、急激なPu酸化物の生成は阻害されることが定性的に理解できる。これらのことから考えれば130kg-Puは十分高い安全裕度を有している。

以上の議論から、電解精製槽では最も厳しい臨界質量の化学形態と、通常の取扱状態での臨界質量の差が極めて大きく、単純な質量管理の下では通常状態で大きな安全裕度を持っているという特徴を十分生かし切れず、結果として極めて保守的な設計に縛られることになる。

すなわち、単純な質量管理だけで電解精製槽における所定量の取扱が困難になるのは、対象とする電解精製槽（単一ユニット）内にある核燃料物質の形態を管理しないということに起因して課せられる保守性が原因である。したがって、原理的に考えれば、単一ユニット内の核燃料物質の形態を管理、すなわち工学的に監視・制御可能であれば、この保守的な要求を緩和することが期待できる。

5.3 化学形態管理

ここで、単一ユニット内部の核燃料物質の化学形態を管理することを化学形態管理と定義する。質量管理に化学形態管理を併用した場合、単一ユニット内の核燃料物質の化学形態と、その化学形態における質量制限を決める。より一般化すると、単一ユニット内に複数の化学形態が共存するような系において、それぞれの化学形態にある核燃料物質の質量を制限し、全ての化学形態に上限いっぱいの核燃料物質が存在したとしても、その共存系が未臨界であるように各制限値を設定するものとする（図 5-1）。

たとえば、単一ユニット内にA、B、Cの化学形態で核燃料物質が共存する場合、それぞれの形態における核的制限値を a 、 b 、 c とするならば、系の状態が

$$\text{Aの形態にある量} : x < a$$

$$\text{Bの形態にある量} : y < b$$

$$\text{Cの形態にある量} : z < c$$

にあるならば、系全体の量がそれぞれの核的制限値以上にあつたとしても臨界管

理に抵触しない：

$$\text{系内に含まれる総量} : (x+y+z) > a \text{ or } b \text{ or } c$$

$$(x+y+z) < (a+b+c)$$

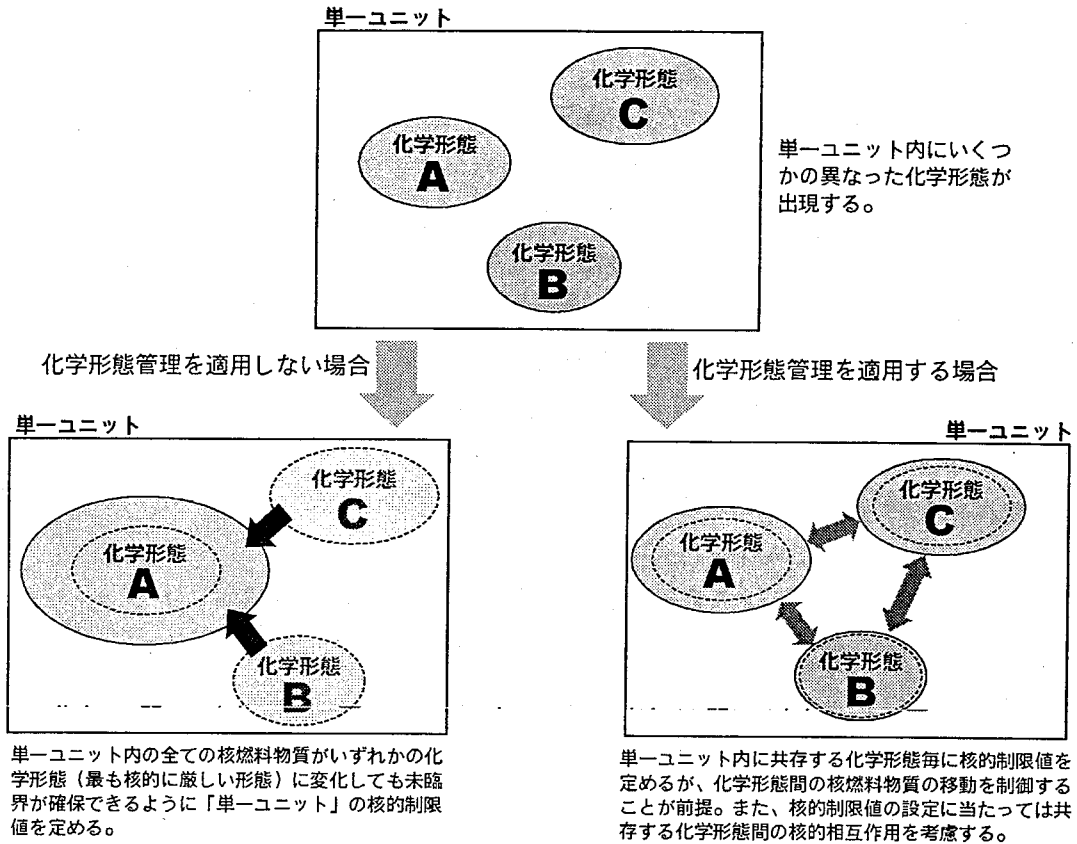


図 5-1 化学形態管理

この前提が成り立つのは、それぞれの形態にある核燃料物質の量が各々の核的制限値以下にあるよう管理できることと、共存する全ての形態で核的制限値に等しい量の核燃料物質が存在した場合にでも系が十分未臨界であることである。このことは、各形態の核的制限値を設定する際には、あらかじめ共存する形態間での核的相互作用を考慮し、その影響分を安全マージンに加えることを意味する（図 5-2）。

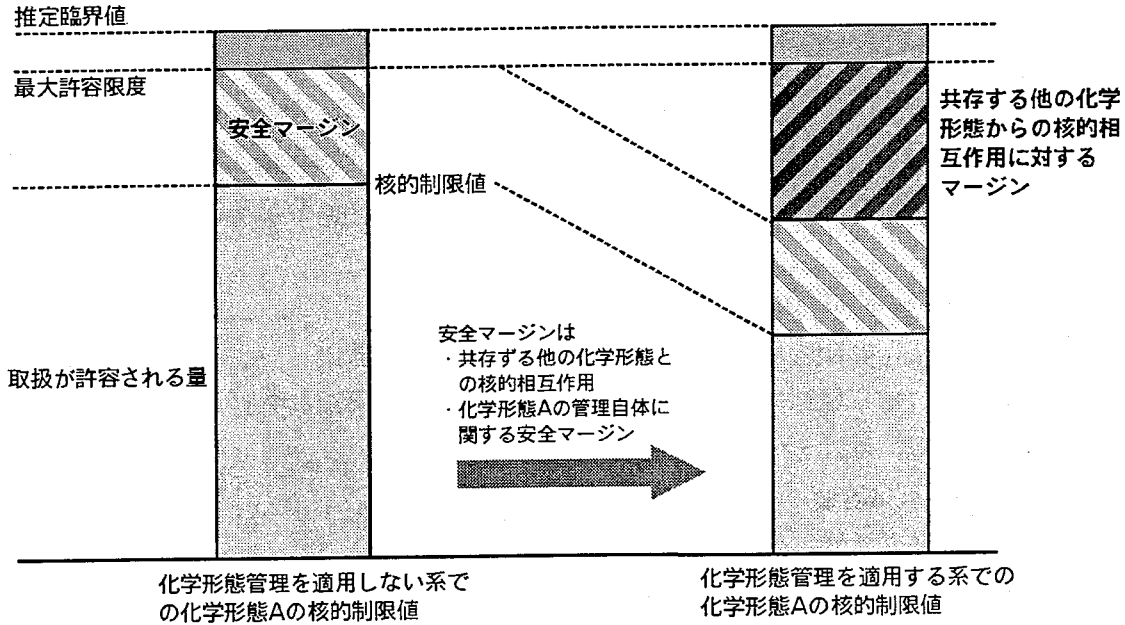


図 5-2 化学形態管理を行う場合の核的制限値

したがって、

- ・系内の核燃料物質が特定の化学形態に自発的に変化しない。
(系内に共存する複数の化学形態は平衡状態にある。)
- ・物質の状態を監視、制御しうる技術的手段が提供されている。
- ・物質が自発的に変化するとしても、監視手段の応答に比べて十分緩やかな変化である。

などの条件が満たされる必要がある。

これは例えば、chop&leach方式の湿式再処理システムにおける溶解工程を考えれば理解できる。この工程では単一ユニットである溶解槽内部において、核燃料物質は、せん断燃料片(混合酸化物)→硝酸溶液へと化学形態が変化する。この変化は自発的であり、系内の核燃料物質が全てせん断燃料にある場合(工程の初期状態)から、すべて硝酸に溶解した状態(工程の最終状態)とその中間である酸化物と硝酸溶液が共存する状態のいずれにおいても未臨界である必要がある。この場合、反応は自発的であり、かつその反応を制御する方法が提供されていないため化学形態管理を適用することはできない。

一方、電解精製槽では外部から電流を流さない限り、あるいは外部から還元剤の提供が無い限り、陽極での溶解(三元合金から熔融塩溶液への変化)は生じず、したがって陰極における析出(熔融塩溶液からU金属あるいはPuCd_xへの変化)も生じない。すなわち、これらの反応は自発的ではない。一方、熔融塩中に溶解しているPuは外部から酸化剤(酸素等)が提供されなければ自発的に不溶解物を生成することはない。したがって、外部から与える電流および酸素などの不純物

管理を徹底することによって、Puの化学形態を工学レベルで制御することは不可能とはいえない。

化学形態管理を適用する場合に、電解精製槽における陽極や陰極のように物理的に分割できるものを「サブユニット」と称する。サブユニットとして要素分解することにより、複雑な化学形態管理を適用する系の臨界安全設計検討や臨界安全性評価を構造化することができる。

5.4 質量管理と化学形態管理による電解精製槽の臨界安全設計

電解精製槽で現れる4つの化学形態を管理する。すなわち、

- ・ 陽極におけるHM-Zr合金
- ・ 液体Cd陰極におけるCd化合物
- ・ 熔融塩溶液
- ・ 不溶解物(酸化物を代表とする)

5.4.1 陽極における HM-Zr 合金

陽極に装荷するHM-Zr合金は、電解精製槽へ入量する量として厳格に計量管理される。せん断燃料はせん断工程においてサンプルが化学分析され、その組成が明らかになっている。したがって、陽極バスケットに装荷する段階で、装荷物のバッチIDおよび重量が確認され、陽極に保持する核燃料物質の組成および総量が確認される。

設計の範囲内で、最も保守的に見積もったHM-Zr合金の臨界質量は、組成が外側炉心燃料と同値でかつスミア密度が100%TDの条件のものであり、55kg-Puである。炉心燃料処理用電解精製槽では軸ブランケット部分を区別せずに取扱い、燃焼後のものも含めて平衡炉心装荷用の外側炉心燃料より富化度の高い燃料は取り扱わない。径ブランケット燃料処理用電解槽では、取り出し後の径ブランケットのPu同位体組成は炉心燃料のものに比べPu239の割合が95%程度とかなり厳しい値だが、Pu富化度自体が数%であるため、炉心燃料を取り扱う陽極の方が保守的である。さらに、燃料として用いられる合金のスミア密度は75%TDなので、上記HM-Zr合金での評価値は十分保守的である。

一方、せん断燃料片を入れる陽極バスケットの容量は有限であり、装荷時になんらかのミスをして過剰装荷したと想定しても、その容量以上のものは入らない。従って、燃料バスケットの内容積自体が最終的な制限値と成りうる。よって、上述した最も保守的なHM-Zr合金を燃料バスケットの容積いっぱいまで装荷しても臨界とはならないよう陽極バスケットの大きさを制限することで臨界安全性を向上することができる。

以上から、陽極で扱う核燃料物質の形態は設計上限定されたものであり、明確

な上限を規定できる。また臨界管理として、陽極に入れる核燃料物質の組成および質量を確認する（質量管理とPu富化度管理、Pu同位体管理）とともに、陽極バスケットの容積を制限（容積管理）する。また運転中も陰極電位と通電電流量を監視する。

5.4.2 液体Cd陰極中のPu

液体Cd陰極で現れるPuの化学形態は、飽和溶解した液体Cd相およびCdと結合してできる金属間化合物PuCd_xである。PuCd_xにはPuCd₆とPuCd₁₁が考えられるが、ここではPuの密度の高いPuCd₆を考える。

PuCd₆の臨界質量は、Pu同位体組成がPu239のみの場合で120kg-Puである。

液体Cd陰極における最大のPu回収量は、陰極容器に予め装荷されるCdの量によって制限される。実際には装荷したCd全てがPuCd₆になることは技術的に困難ではあるが、そのように仮定した場合、設計標準で装荷する30kgのCdが全てPuCd₆になったとしても回収されるPuは10.67kg-Puであり、臨界質量より十分少ない量である。一方、物理的な条件としては陰極容器の大きさがあり、この容器を満たした状態以上のPuCd₆は回収できない。

したがって、液体Cd陰極の臨界安全管理としては、電解精製槽に装填する前に陰極に装荷するCdの質量を管理するとともに、陰極容器自体の容積を制限（容積管理）する。また運転中も陰極電位と通電電流量を監視する。

5.4.3 熔融塩中のPu

LiCl-KCl溶液の設計基準状態は10.66wt%-HM、Pu/U=3/1である。炉心燃料処理用電解槽ではPu同位体比が炉心燃料のものと同じとなるため、この体系では無限増倍率は0.95を超えない。径ブランケット燃料処理用ではPu239が95%程度であり、保守的にPu239のみとした場合、臨界質量は25ton-Puである。熔融塩中Puの濃度分布の非均一性を考慮して保守的な想定、すなわちPu濃度20wt%の熔融塩溶液を考慮した場合でも、臨界質量は2.5ton-Puに達する。

したがって熔融塩に溶解している状態では、設計上の数値128.8kg-Puは十分安全な量であることが分かる。

HM-Zr合金の電解精製槽内における形態変化（すなわち、熔融塩中Pu濃度の上昇）は、外部から所定の電圧で電流を流した場合、および還元剤が投入された場合にのみ生じる。また、たとえ極性を逆転して電解を行っても析出するのはU金属であるので、熔融塩中Pu濃度は変化せず、また陽極での臨界安全に対しても特に大きな問題とはならない（本リサイクルプラントで使用するUは劣化ウラン相当）。したがって、印可する電圧および通電させる電流、電解槽への還元剤の投入を管理することによって化学形態管理を実施することが可能である。

5.4.4 不溶解物としての酸化物

不溶解物は、電解精製槽中のPuが他の酸化性の物質（酸素など）と反応して生成する。ここでは、生成される不溶解物をPuO₂で代表する。PuO₂の臨界質量は100%TDで9.56kg-Pu、保守的に見積もった粉末密度である40%TDで41.57kg-Puである。

短期間あるいは長期間のいずれであっても、十分な量の反応物質が供給されて通常時に熔融塩中に溶解している128.8kg-Puが全て不溶解物（酸化物）に変化した場合には、いずれの臨界質量もオーバーする。したがって、熔融塩中に溶解しているPuを如何に安定に保持するか、すなわち熔融塩中のPuイオンと反応して不溶解物を生成する不純物を如何に管理するかが、不溶解物の化学形態管理の要となる。原則的には、不溶解物（酸化物）として存在するPuの許容限量を、その臨界質量から工学的な安全マージンを差し引いて定め、これに抵触しない範囲の下で電解精製槽の運転を行い、もし許容限度に達すれば不溶解物のクリーンアウトを実施しゼロクリアする。

不溶解物の化学形態管理を行うには次のような技術的問題がある。

- (1) 不溶解物として存在しているPu量の把握
- (2) 通常時および異常事象時も含めた化学形態変化の制御

生成した不溶解物は、比較的微少な粒子として熔融塩中を浮遊しているか、あるいは比重によって底部に沈殿すると想定される。したがって、その全体量を直接計量するのは極めて困難である。また、熔融塩層およびCdプール層は常時攪拌されているため、これら不溶解物の粒子はその流れに乗って移動するものと考えられる。このことから、分布の均一性が保証されないため、熔融塩のサンプリングに含まれる不溶解物の量から全体量を推定するのも難しい。一方、熔融塩は不透明であるため、それらの存在位置や隔たりの様子を直接視認するのも無理である。したがって、全体量を把握するには、電解精製槽への受入と払出量の差分から間接的に評価せざるを得ない。また、この方法自体の精度・信頼性、長期間の運転による誤差の伝搬等の影響は、全て制限値を設定する際の安全マージンに含まれなくてはならない。

もう一つは、不溶解物の化学形態自体の制御である。これは前述したように、Puイオンと反応する不純物の管理でもある。この問題は時間軸に対して長期的なもの、短期的なもの、すなわち通常運転時の微量な不純物の侵入が長期間にわたって起きる場合と、雰囲気制御の異常などにより極短時間に多量の不純物が侵入する場合とで分けて扱う必要がある。というのも、後者は明らかな異常事象であり、特別な対処（すなわち発生防止策と影響緩和策）が必要とされ、かつ発生そのものをできる限り排除できる設計が望まれるが、前者は通常の運転範囲内にあり、明確な逸脱なしに事故の発生をもたらす可能性があり、かつ通常状態において

て不純物の侵入を完全に阻止することを要求するのは技術的に非合理的となるからである。したがって、前者はある程度の不純物の侵入を許容して検討しなくてはならず、後者はまず発生をできるだけ防止することを目指すと共に、万が一発生した場合の対処を検討しなくてはならない。

臨界安全ハンドブックでは、最大許容限度は異常時（単一故障時）においてもこれを超えない値と定義されており、一方の核的制限値は通常運転の変動範囲内で超えてはならない値と定義されている（図 5-3）。通常運転時において不溶解物の発生はある量までは許容されるが、核的制限値を超えることは許されない。この状態は異常状態ではなく、あくまで通常運転における変動の範囲内という扱いである。一方、最大許容限度の役割は、異常事象（単一故障等）が発生した場合にでも系が未臨界であるための安全マージンである。異常事象による不溶解物の発生が途中で確実に停止できない場合、系のPuが全量不溶解物となることを想定しなくてはならないため、この場合系（ここでは熔融塩中）に含まれるPuの量は不溶解物の核的制限値に拘束される。一方、異常が発生したとしても、進展の途中で不溶解物の発生を確実に停止できるならば、第一準位の核的制限値は異常事象が終息されるまでに発生する最大の不溶解物の量を設定することが原理上可能である。また、異常事象を完全に排除できるのであれば、核的制限値を最大許容限度に限りなく近づけることができる。すなわち、最大許容限度は臨界質量の評価により一意的に決まるが、核的制限値は実際の設計環境においてどこまでの変動や異常事象が想定されるかを考慮して決める必要がある。一般的に質量管理でよく用いられる安全係数は、経験的な安全マージンを異常時の変動及び平常時の変動を含めた形で提供するもので、経験が少なく原始的な設計によるシステムの場合に用いられるが、高精度高信頼性の工程管理を基盤とする近代的な工学システムでは過剰な安全裕度を提供することになる。

ところで、二重偶発性原理にしたがうと、技術的に発生が想定できない独立した二つ以上の異常事象が起きない限り臨界とはならないことが求められる。この場合に異常事象による不溶解物の発生を排除した設計とするには、異常発生による不溶解物の臨界にいたるまで、技術的に想定できないような事象が独立系で、少なくとも2段にわたって提供されていなくてはならない。

なお、不溶解物の発生に関しては、U酸化物とPu酸化物の優先度や安定性、酸化物以外の不溶解物の可能性等まだ不明な点が多く、具体的に核的制限値を定めるためには試験などにより実際のデータおよび現象の解明を行い、合理的な安全マージンを設定できる知見をそろえる必要がある。

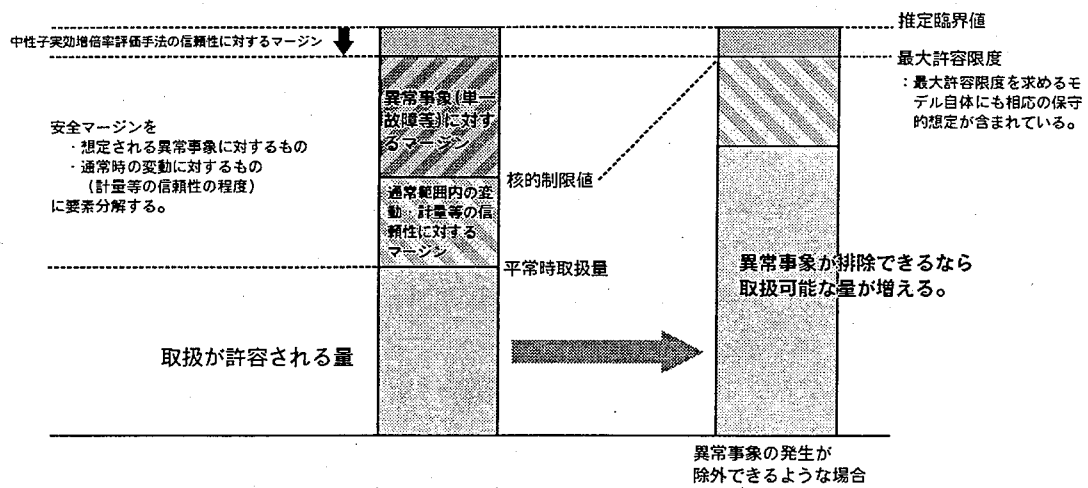


図 5-3 不溶解物に対する核的制限値の設定の考え方

5.5 電解精製槽の臨界安全設計のアプローチ

以上の検討を踏まえ、電解精製槽の臨界安全設計のアプローチを表 5-1にまとめる。各サブユニットの核的制限値を決定するには、どれだけの安全マージンを考慮すればよいかの根拠となる知見が不足しているため、ここではその手段を列記するにとどめる。

表 5-1 電解精製槽の臨界安全設計の概要

サブユニット	主たる臨界管理	備考
陽極アセンブリ	[陽極バスケットの容積管理] 陽極バスケット内容積の制限	物理的に装荷できる最大量を制限する。
	[装荷物の質量管理] 装荷するせん断燃料の質量とIDの確認	電解精製槽への受入量の管理
	[電解の運転管理] 陽極電位と電流量の監視	溶解量の間接制御と電位逆転の防止。
固体陰極	[電解の運転管理] 陰極電位と電流量の監視	U以外の元素の析出防止と析出量の間接制御。
	[電解の運転管理] 熔融塩中Pu/U濃度比の監視	Pu金属の析出防止。 電流パスの異常検知。
	[質量管理] 回収物中Pu（付着物）の質量管理	電解精製槽の質量管理。
液体Cd陰極	[陰極容器の容積管理] 陰極内容積の制限	物理的に陰極に装荷できるCd量（すなわち回収されるPuの量）を制限する。
	[装荷するCd量の管理] Cd装荷量の質量管理	陰極に回収されるPuの量（反応によって生成するPuCd ₂ の量）を制限する。
	[電解の運転管理] 陰極電位と電流量の監視	析出量の間接制御。 電流パスの異常検知。
	[電解の運転管理] 熔融塩中Pu/U濃度比の監視	回収物中のPu/U比の制御。
	[質量管理] 回収物中Puの質量管理	電解精製槽の質量管理。
熔融塩層	[濃度管理] サンプリングによる熔融塩中HMの濃度監視	電極析出物の間接制御。 熔融塩中のPuインベントリ管理。
	[容積管理] 液位の測定	熔融塩中のPuインベントリ管理。
Cdプール層	[濃度管理] サンプリングによるCdプール中HMの濃度監視	Cdプール中のPuインベントリ管理。
	[容積管理] 液位の測定	Cdプール中のPuインベントリ管理。
不溶解物	[質量管理] 電解精製槽インベントリと受入・払出量の差から間接的に評価。	直接計量不可能な不溶解物の蓄積防止。
	[Ar純度管理] Arカバーガス中の不純物モニタリング	不溶解物の発生抑制と発生量の間接的予測。

6. 電解精製槽の臨界安全性評価

化学形態管理が成立するには、共存する化学形態（サブユニット）間の中性子相互作用を評価し、技術的にみて想定される如何なる場合にでも臨界とはならないことを確認する必要がある。本章では、まずサブユニット単体の臨界安全評価を行って個々のサブユニットが十分な安全裕度を有しているかを確認し、最後に電解精製槽の体系における臨界安全性の評価を行った。

6.1 陽極（アセンブリ）の臨界安全性評価

陽極バスケットにはせん断された三元合金燃料を装荷する。この陽極バスケットは鉄製のパンチング板あるいはメッシュでできており、中心の取り付けリグにバスケット4個を図 6-1のように十字型に組み立てて1基の陽極（アセンブリ）とする。電解操作中は取り付け軸を中心にして回転させる。

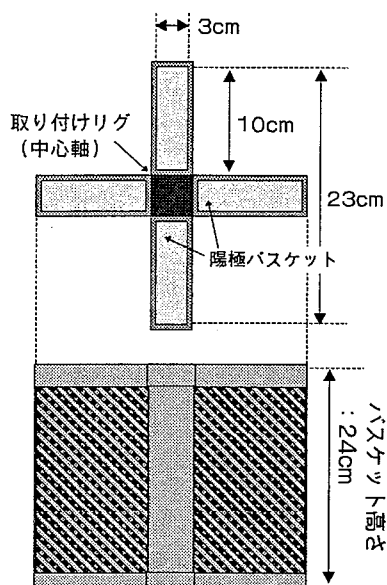


図 6-1 陽極アセンブリの形状

6.1.1 陽極バスケット装荷量計算

通常運転時では、装荷する燃料の種類および質量を管理し、炉心燃料処理用電解精製槽では1陽極当たり燃料ピン18本、径ブランケット燃料処理用電解精製槽の陽極では5.5本装荷する。

装荷される燃料片の配列は管理しないため、その配列は核的に最も厳しい状態を想定する。評価対象は非減速体系であるため、体系の臨界性は核燃料物質の密度と質量に比例するので、最も密に詰めた状態を想定する。

6.1.2 陽極バスケット最大装荷量の計算

バスケットに燃料棒を詰める時に最大どのくらい装荷できるかを計算する。円柱を最も密に詰め込むのは図 6-2 のような配列の場合であり、図中の単位セルが規則的に並んでいるものと考えられる。バスケットに燃料棒を順に並べていくとき全部でどれくらい入るかは、バスケットの断面にどれだけこの単位セルが並べられるかということから考えられる。

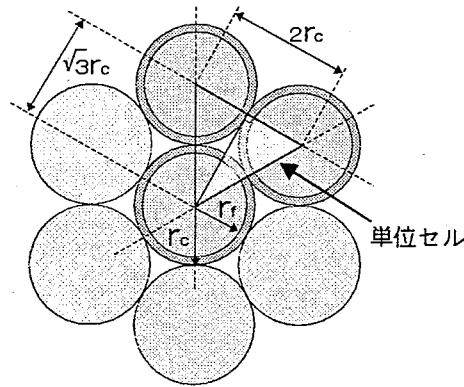


図 6-2 燃料ピン周密配列の単位セル

ここで、燃料部の半径を r_f [cm]、被服管外径を r_c [cm]、単位セル内に占める燃料部の断面積を A_f [cm²]、単位セルの断面積を A_{cell} [cm²]、燃料ピンの燃料部断面積を a_f [cm²] とすると、

$$A_f = \left(\frac{1}{6} \pi r_f^2 \right) \times 3 = \frac{1}{2} \pi r_f^2$$

$$A_{cell} = \frac{1}{2} \times 2r_c \times 2r_c \cos \frac{\pi}{6} = \sqrt{3} r_c^2$$

これより、単位セル内に燃料の占める体積の比は、

$$\frac{A_f}{A_{cell}} = \frac{\pi r_f^2}{2\sqrt{3} r_c^2}$$

バスケットの底面積を A_{basket} [cm²] とすると、バスケットの底面積の中で燃料の占める体積は、

$$A_{fuel_in_basket} = \frac{\pi r_f^2}{2\sqrt{3} r_c^2} A_{basket}$$

燃料ピン1本の断面積は $a_f = \pi r_f^2$ であるから、バスケットに並べる事のできる燃

料ピンの数は、

$$N_{fuel} = \frac{A_{fuel_in_basket}}{a_f} = \frac{\pi r_f^2 A_{basket}}{2\sqrt{3} r_c^2 a_f}$$

ただし、この本数はバスケットの底面積に並べることが可能な燃料ピンの本数であって、一般に、せん断されていない燃料ピンの長さはバスケットの高さとは一致しないため、実際に完全な燃料ピンを何本装荷できるかは別に計算する必要がある。

バスケットの高さを H_{basket} [cm] とすると、最も詰め込んだ場合のバスケット内の燃料の質量は、

$$m_{fuel_in_basket} = N_{fuel} \cdot (a_f H_{basket} \rho_{fuel}) = \frac{\pi r_f^2}{2\sqrt{3} r_c^2} A_{basket} H_{basket} \rho_{fuel} \text{ [g]}$$

ここで ρ_{fuel} [g/cm³] は燃料の密度である。

次にバスケットに装荷した燃料ピンが、せん断されていない燃料ピン何本に相当するかを計算する。せん断されていない燃料ピンの長さ（燃料ミート部長さ）を h_f [cm] とすると、燃料ピン1本の燃料質量は

$$m_f = \pi r_f^2 h_f \rho_{fuel}$$

であるから、バスケットに最大詰め込むことのできる燃料ピンの本数は、

$$n_{fuel} = \frac{m_{fuel_in_basket}}{m_f} = \frac{1}{2\sqrt{3}} \frac{1}{r_c^2} \frac{A_{basket} H_{basket}}{h_f}$$

6.1.3 設計値からの算出

設計条件からのデータは以下の通りである：

$$A_{anode} = (3.0 \times 10.0) \times 4 + 3.0 \times 3.0 = 129 \text{ [cm}^2\text{]}$$

$$H_{anode} = 24.0 \text{ [cm]}$$

$$r_c = 0.425 \text{ cm}$$

$$h_f = 115 \text{ [cm]}$$

$$\rho_{fuel} = 11.64 \text{ [g/cm}^3\text{]} \cdots (\text{Homogenized})$$

ここで、不明な設計値を以下のように仮定する。

$$\text{燃料部半径： } r_f = 0.375 \text{ [cm]} \quad \text{被服管内径と同じと仮定}$$

$$\text{燃料重金属密度： } \rho_{fuel} = 10.474 \text{ [g/cm}^3\text{]}$$

$$\text{燃料Pu密度： } \rho_{fuel_Pu} = 1.335 \text{ [g/cm}^3\text{]}$$

外側新燃料インベントリ（軸ブラ含む）より算出（均質化値）
これより、陽極の装荷量極限（外側燃料炉心部のみ装荷時）は、

$$N_{fuel} = 191 \text{ 本配列}$$

$$m_{HM_in_anode} = 21.29 \text{ [kg-HM]}$$

$$m_{Pu_in_anode} = 2.71 \text{ [kg-Pu]}$$

$$n_{fuel} = 40 \text{ 本}$$

なお、通常の装荷量は陽極1基あたり炉心燃料18本であるから、最もPu量の多い平衡炉心装荷時の外側炉心燃料ピン（軸ブランケット含む）の場合でも

$$m_{HM_nominal} = 9.58 \text{ kg-HM}$$

$$m_{Pu_nominal} = 1.22 \text{ kg-Pu}$$

程度である。

したがって、上記で計算した最大量に至るには、2.2バッチ以上の過装荷を生じなくてはならない。なおかつ装荷した燃料の配置が、上述したような規則正しく周密な配列でなくてはならない。

6.1.4 臨界安全性評価

陽極の臨界安全性評価を、通常装荷状態、せん断燃料最大装荷状態、HM-Zr合金最大充填状態の場合について行い、通常状態と極端な保守的条件を想定した場合との結果の差から安全マージンを定量的に把握した。

通常状態（Case-A）として、軸ブランケット部分を含まない外側炉心燃料ピンを18本分装荷した場合を設定した。装荷せん断燃料片は均質化して扱った。また、燃料装荷高さより上の部分には設計標準状態のLiCl-KCl-HM熔融塩が充填されているものとした。外周条件として20cm厚さの水反射体を想定した。この場合、せん断燃料内には1.247kg-Pu、熔融塩中には0.279kg-Puが含まれており、全体で1.526kg-Puが存在している。

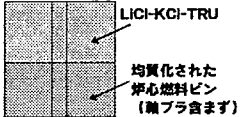
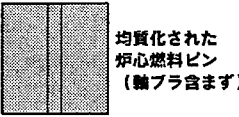
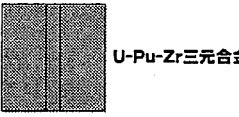

せん断燃料最大装荷状態（Case-B）は、周密配列にした炉心燃料部だけの燃料ピンを陽極バスケットの内容積に完全充填した場合で、3.712kg-Puが装荷された状態で、上記6.1.2 で計算した軸ブランケットを含む場合よりも保守的な想定である。

次に、陽極バスケットに100%TDのHM-Zr合金（外側炉心燃料部相当の組成）を完全充填した場合（Case-C）を評価した。この場合、陽極内には7.044kg-Puが存在している。さらに、この場合で体系が球形状となった場合（Case-C.sph）も評価した。現実的に100%TDのHM-Zr合金を陽極で取り扱うことはあり得ず、またその量も陽極の内容積が許す最大の量を仮定している。さらに、形状も球を

想定することにより、陽極を取り扱う工程で現実的に考えられる全ての条件を包絡するモデルである。

結果を表 6-1にまとめる。

表 6-1 陽極の臨界安全性評価モデルと解析結果

陽極解析モデル	Case-A	Case-B	Case-C	Case-C.sph
幾何モデル	 陽極アセンブリ形状	 陽極アセンブリ形状	 陽極アセンブリ形状	 球形状
燃料形態	稠密セル配置の均質化炉心燃料ピン (軸ブラ含まず)	稠密セル配置の均質化炉心燃料ピン (軸ブラ含まず)	U-Pu-10Zr三元合金 (100%TD)	U-Pu-10Zr三元合金 (100%TD)
Pu富化度およびPu同位体比	Pu富化度 : 17.3wt% Pu同位体比 : Pu238/239/240/241/242= 1/68/26/2.5/2.5 (外側炉心燃料ピン燃料部分相当)			
Pu量	1.526kg 燃料部分 : 1.247kg 熔融塩部分 : 0.279	3.712kg	7.044kg	
MA装荷	装荷率 : 0.512wt% Np237/Am241/Am243/Cm244/Cm245 = 13.2/53.2/18.3/12.3/3.0		なし	
反射条件	厚さ20cmの水反射体+構造材 (1cm厚のSUS)			
$k_{\text{eff}}+3\sigma$	0.225	0.337	0.455	0.553

以上の解析結果より、最も厳しい想定モデルにおいても十分な未臨界度にあることが分かった。また、標準状態はさらに大きな安全裕度を有していることが確認できた。

6.2 液体 Cd 陰極の臨界安全性評価

液体Cd陰極は図に示すように円筒状の容器に所定量の液体Cdを装填したもので、絶縁のため容器材料は酸化ベリリウム(BeO)製である。また、容器を保持するためSUS製のサポートが外側に取り付けられている。電流は電極軸から直接液

体Cdに供給され、それ以外の部品は絶縁されている。

標準状態では、30kgのCdが装填された状態で電解精製槽の電極ポートに取り付けられる。一つの電解精製槽に一度に取り付けられる液体Cd陰極は1基で、約10時間の電解操作で1.1375kgのUと2.275kgのPu、0.075kgのMAを回収する。

Uは固体陰極と同様に、単体金属として熔融塩-電極界面に析出する。これを放置すると熔融塩-電極界面がUによって覆われてしまい、PuおよびMAの回収ができなくなることから、析出したU金属を液体Cdに沈めるための装置(スクレイパ)が取り付けられている。液体Cd内に沈められたU金属は一部は液体Cd内に溶解するが、溶解度を越えた分は単体で存在するか、Cdとの化合物を形成する。

PuおよびMAは単体では電析することができず、Cdとの化合物(金属間化合物PuCd₅)という形で電析する。

回収物の量はファラデーの法則に従う。一方、回収物の組成(U/Pu比)は熔融塩中の組成と密接な関係があり、これは経験則から求められており設計値である熔融塩中Pu/U比が3/1の場合、液体Cd陰極に回収されるHMのPu/U率は2/1とされている。

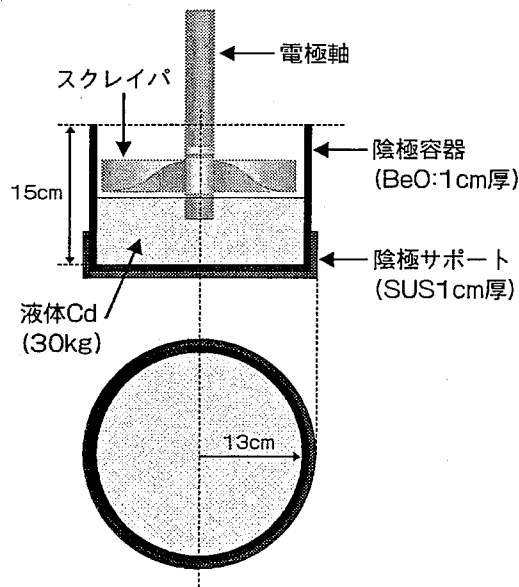


図 6-3 液体 Cd 陰極の形状

6.2.1 液体 Cd 陰極回収量の計算

装荷されるCdの量から生成されるPuCd₅の最大量を計算する。
初期変数として、

装荷金属Cd重量： m_{Cd} [g]

Pu金属間化合物Cd/Pu比： ε

定数は

PuおよびCdの平均質量数： M_{Pu} 、 M_{Cd}

アボガドロ数： N_A

装荷されたCdがすべてPuCd_εとなると想定する。ここでPuおよびCdの数密度を N_{Pu} 、 N_{Cd} 、求めるPuCd_ε、Pu量を m_{PuCd} 、 m_{Pu} とする。

Cdの数密度は、

$$N_{Cd} = m_{Cd} \frac{N_A}{M_{Cd}}$$

である。Cd原子 ε 個にPu原子が一つ反応することからPuの数密度は、

$$N_{Pu} = \frac{N_{Cd}}{\varepsilon}$$

求めるPuCd_εの質量は、

$$\begin{aligned} m_{PuCd} &= m_{Pu} + m_{Cd} = \frac{N_{Pu}}{N_A} M_{Pu} + m_{Cd} \\ &= \frac{N_{Cd}}{\varepsilon N_A} M_{Pu} + m_{Cd} \\ &= \frac{1}{\varepsilon N_A} \frac{m_{Cd} N_A}{M_{Cd}} M_{Pu} + m_{Cd} \\ &= m_{Cd} \left(\frac{M_{Pu}}{\varepsilon M_{Cd}} + 1 \right) \end{aligned}$$

設計標準では、 $m_{Cd} = 30\text{kg}$ 、 $M_{Pu} = 239.052$ 、 $M_{Cd} = 112.411$ であるから、陰極内に装荷されたCdが全て化合物を生成し、その化合物が全てPuCd₆と仮定すると、

$$m_{PuCd} = 40.633\text{kg}, m_{Pu} = 10.633\text{kg}$$

陰極容器底面積 ($\pi(13)^2 = 530.9[\text{cm}^2]$) より、このときのCd相の高さは8.25cmとなる。

表 6-2 液体 Cd 陰極における物質密度

Cd密度	8.650 g/cm ³ (固体)
	7.996 g/cm ³ (融点320.9℃)
PuCd ₆ 密度	9.28 g/cm ³
BeO密度	3.01 g/cm ³

6.2.2 臨界安全性解析

液体Cd陰極の運転モードを考慮し図 6-4に示す評価モデルを考慮する。Case-Aは運転管理が設計通りに実施された場合で、設計で定められた2.275kgのPuがCd相中に均質に存在するモデルである、Case-Bは、運転管理において回収

量の制御は成功したが、回収物の組成（Pu/U比）の制御に失敗した場合を想定したもので、設計で定められた3.4875kgのHMが全てPuであった場合である。Case-B'はCase-Bで回収されたPuのうち、液体Cd相へ飽和溶解（500°Cにおける飽和溶解度3.62wt%）している分を差し引いたPuがPuCd₆結晶として陰極容器下部に一様に沈殿した場合のモデルである。ここまでは設計で定められた標準状態における変動を包絡するものである。

Case-Cは陰極に装荷されたCdがすべてPuと反応し、PuCd₆となる場合の評価モデルで、現実的にこのような高い収率でPuCd₆への反応が起きる可能性は極めて低い。なぜならば、PuCd₆への反応は熔融塩とCdが接触している界面でしか生じることなく、ある一定以上のPuCd₆が生成されるとCd相の流動性が阻害され、熔融塩との界面がPuCd₆で覆われると考えられるためである。

さらに、Case-Dにおいては陰極に回収できるPuCd₆の物理的極限量をモデル化したもので、陰極容器にPuCd₆が完全充填された場合である。さらに、このCase-Dと等量のPuCd₆が球状になったモデルも評価した（Case-D.sph）。これは液体Cd陰極で起きうる変動全てを包絡する保守的なモデルである。

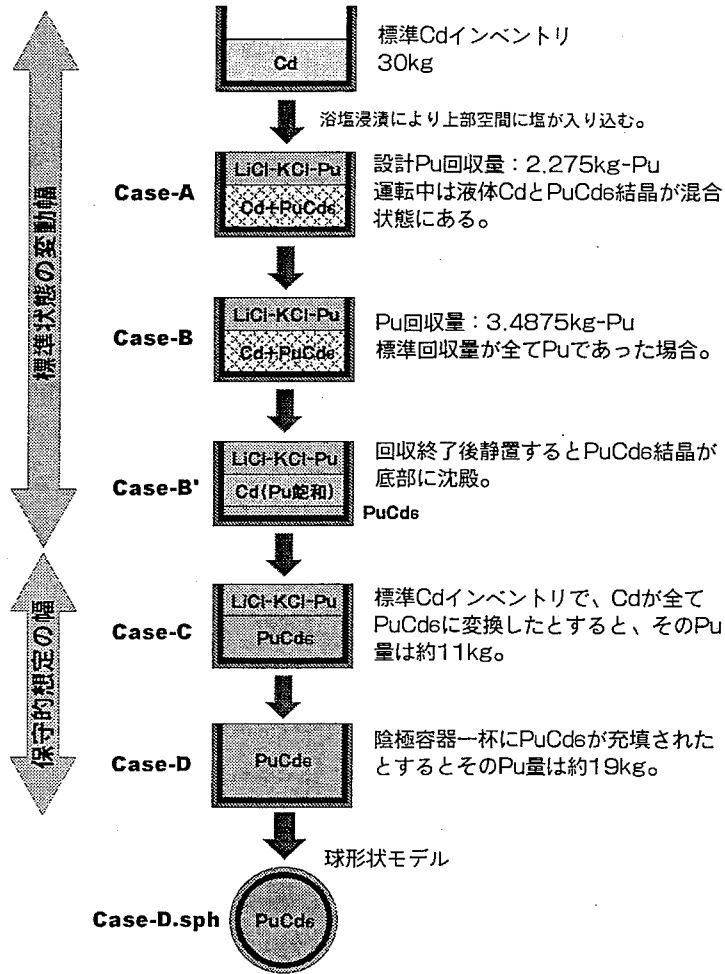


図 6-4 液体 Cd 陰極の臨界安全性評価モデル

なお、評価モデルではPu同位体比がPu239のみとした。これは径ブランケット処理用電解精製槽を想定する場合、取り出し後4年冷却の径ブランケット燃料では、PuのうちPu239の占める割合が約95%に達するためである。

表 6-3 液体 Cd 陰極の臨界安全性評価モデルの解析結果

評価モデル	Case-A	Case-B	Case-B'	Case-C	Case-D	Case-D.sph
Pu量	3.988 kg ^{※1}	5.057 kg ^{※2}		11.360 kg ^{※3}	19.339 kg	
Pu富化度	100wt%/HM					
Pu同位体比	Pu239のみ					
反射条件	構造材 (BeO : 1cm+SUS : 1cm) + 厚さ20cmの水反射体					
$k_{\text{eff}}+3\sigma$	0.186	0.225	0.253	0.434	0.571	0.596

※1：電析量2.275kg+残りCd中に溶解分0.886kg+上部溶融塩層内溶解分0.588kgを足し合わせた量。
(上部溶融塩は標準状態の濃度: 10.66wt%HM, Pu/U=3/1)

※2：電析量3.4875kg+残りCd中に溶解分0.757kg+上部溶融塩層内溶解分0.574kgを足し合わせた量。

※3：30kgのCdが完全反応した場合のPuCd₆に含まれるPu：10.633kg+上部溶融塩層内溶解分0.727kg

以上の解析結果より、最も厳しい想定モデルにおいても十分な未臨界度にあることが分かった。また、標準状態はその変動幅を考慮しても、さらに大きな安全裕度を有していることが確認できた。

6.3 大型 8 極電解精製槽の臨界安全性評価

大型 8 極電解精製槽には、同時に陽極 4 基、固体陰極 3 基、液体Cd陰極 1 基を装填することができる。これまでの評価結果から、この電解精製槽を構成するサブユニットは、単体では十分な安全裕度を有していることが確認された。ここではそれらを組み合わせて、実際の電解精製槽内の配置に模擬したモデルでの臨界安全性を確認する。

評価モデルとしては、20wt%のPuを溶解した熔融塩とPuが飽和濃度に達したCdプールのみで電極未装填の体系(Case-A)と、Case-Aに前述したサブユニット(陽極および液体Cd陰極)の最も保守的な球形状モデルをそれぞれ装荷した場合の体系(Case-B、図 6-5)を解析した。電極の中心間距離は設計に従って60cmとし、陽極、固体陰極、液体Cd陰極の配列も設計の通りである。槽のセル内への設置を考慮して、電解精製槽下部には1mの重コンクリートを設定すると共に、機器周囲には20cm厚さの水反射体を設置した。また、電解精製槽自体も、槽本体、ヒーター、熱遮蔽体をモデル化し反射条件を機器設計に近い形にモデル化した。

電解精製槽の底部形状は、設計においては中心に向かって緩やかな傾斜面をもつようになっているが、ここでは保守的に最も深い深さで一定としている。したがって、底部Cdプールの容量は設計値(1000kg-Cd)より増加している。

Case-Aは、Case-Bと比較することによって、電解精製槽内に装填される電極の影響を評価するためのモデルである。Case-Bの意味するところは、熔融塩中Pu濃度が通常値の約2.5倍まで増加した径ブランケット燃料処理用電解精製槽において液体陰極にその容量の極限までPuCd₆を回収し、かつ外側炉心燃料のせん断片を詰め込んだ陽極を装荷したというケースの極端なものである。さらにCase-Bから熔融塩とCdプールを除外したモデルCase-B'を評価することによって、電極のみの効果を見る。

設計値では、通常運転状態を基準として考えるならば、塩中に128.8kg、Cdプール中に37.56kg(飽和状態を仮定)、1バッチ分の処理量として4.55kgのPu存在し、その合計量は170.9kgである。したがって、Case-Bでは通常の3.3倍にあたるPuが存在していることになる。

解析結果を表 6-4に示す。

電解精製槽本体寸法：
W272×D122×H95cm
電極間隔：60cm（設計値）

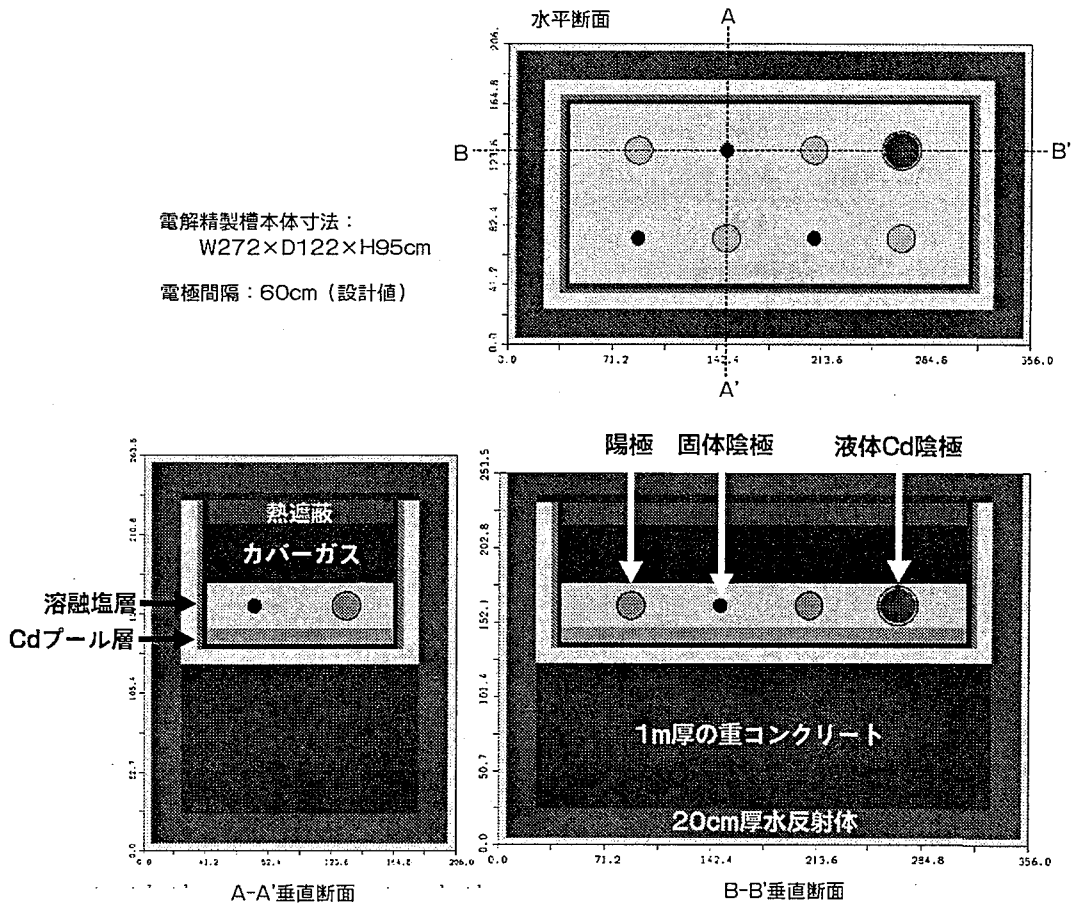


図 6-5 大型 8 極電解精製槽解析モデル(Case-B)

表 6-4 大型8極電解精製槽の臨界安全性評価の解析結果

	Case-A	Case-B	Case-B'
溶融塩	容量 : 1000L Pu濃度 : 20wt% Pu同位体比 : Pu239のみ Puインベントリ : 425.0kg		なし
Cdプール	容量 : 332L (液面高さ10cm) Pu濃度 : 3.62wt%(飽和濃度假定) Pu同位体比 : Pu239のみ Puインベントリ : 99.5kg		なし
陽極	なし	4基装荷 物質 : HM-Zr合金 組成 : 外側燃料炉心部相当 Puインベントリ : 7.1kg×4	
固体陰極	なし	3基装荷 物質 : 金属ウラン 組成 : 劣化ウラン相当	
液体Cd陰極	なし	1基装荷 物質 : PuCd ₆ 組成 : Pu239のみ Puインベントリ : 19.3kg	
反射条件	電解槽本体 : 3.5cm厚のSUS ヒーター : 3.5cm厚のSUS 側面熱遮蔽体 : 10cm厚のSUS 上部熱遮蔽体 : 15cm厚のSUS 上蓋 : 5cm厚のSUS 下部セルフフロア : 1m厚の重コンクリート 系外周に20cm厚さの水反射体		
総インベントリ	524.5 kg-Pu	572.2 kg-Pu	47.7 kg-Pu
$k_{\text{eff}}+3\sigma$	0.538	0.667	0.548

結果から、極めて保守的なインベントリ及び電極形状を想定したCase-Bにおいても十分な臨界安全裕度を持つことが分かった。また、Case-AおよびCase-B'の結果から電極と熔融塩の核的相互作用は比較的弱いことが確認できた。Case-AとCase-B'では系内に存在するPuの量がCase-B'の方が1/10以下であるのに中性子実効増倍率は同じ程度となっている。すなわち、多量のPuであっても熔融塩中に薄く存在している場合には臨界安全性が高い。さらに球形化した陽極及び液体Cd陰極単体での臨界解析結果がそれぞれ0.553、0.596（いずれも水反射条件）であったことと合わせて考えると、設計通りの電極配置では電極間の核的相互作用は弱く、単体のサブユニットの持つ中性子実効増倍率で系全体の中性子実効増倍率が決定されると言える。これは典型的な弱結合問題であるため、それぞれの電極での核分裂反応率を比較して、モンテカルロ法による計算が妥当であることを確認した。

核的相互作用は電極間距離に大きく依存することから、電極位置が変化するような事象が考えられる場合には評価の再検討を要する。

7. おわりに

金属電解法の電解精製工程の特徴を踏まえて、「金属燃料リサイクルシステムの設計評価」で設計検討されている大型電解精製槽の臨界安全設計について検討を実施した。

プラントの成立性を満たしうるプロセス上の条件より130kgを超える量のPuを扱う電解精製槽の臨界安全確保を質量管理を基本として実施するための検討を行った結果、Puの化学形態管理を組み合わせた臨界安全設計方針を提案した。

更に、この設計方針に基づいた臨界安全設計の妥当性を確認するために、通常状態より多くのPuが保守的な状態で存在していると仮定したモデルを構築し、その臨界解析を実施した結果、極めて保守的な想定の下においても十分な安全裕度を有していることが確認できた。

今後は、電解精製工程以外の工程における臨界安全設計についても検討し、金属燃料リサイクルのシステム全体を通じた整合性のある臨界安全設計方針を確立すると共に、その妥当性を検証する必要がある。

8. 参考文献

- (1) 西村友宏 他, “金属燃料リサイクルシステムの設計評価(その1) —リサイクル施設の前提条件、設計、評価—”, 日本原子力学会 2001年秋の大会, (2001)
- (2) 坂村義治 他, “金属燃料リサイクルシステムの設計評価(その2) —電解精製法によるU、Pu、MAの回収—”, 日本原子力学会 2001年秋の大会, (2001)
- (3) 藤岡綱昭 他, “金属燃料リサイクルシステムの設計評価(その5) —電解精製プロセスの検討—”, 日本原子力学会 2003年春の年会, (2003)
- (4) 中林弘樹, 田中博, “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)”, JNC TN9400 2001-072, 核燃料サイクル開発機構, (2001)
- (5) “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)
- (6) “臨界安全ハンドブック第2版”, *JAERI 1340*, 日本原子力研究所, (1999)
- (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) Mariani, R. D. and et al. : “Criticality Safety Strategy for the Fuel Cycle Electrorefiner at Argonne National Laboratory West”, *Proc. of Global'93*, (1993)