

高速炉燃料再処理溶解液への晶析法の
適用に関する安全性の検討
— 原研・サイクル機構共同研究 —
(研究報告)

1999年7月

核燃料サイクル開発機構
東 海 事 業 所

本資料の全部または一部を複写・転載する場合は、下記にお問い合わせください。
〒319-1194 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 番地33
核燃料サイクル開発機構 東海事業所
運営管理部 技術情報室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :
Technical Information Section
Administration Division Tokai Works
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-33 Muramatsu, Naka-gun, Ibaraki 319-1194,
Japan.

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
1999

高速炉燃料再処理溶解液への晶析法の適用に関する安全性の検討

—原研・サイクル機構共同研究—

(研究報告)

東海事業所 環境保全・研究開発センター
先進リサイクル研究開発部 先進再処理技術開発グループ
柴田淳広、榎原哲朗、小山智造、
奥野 浩*、藤根幸雄*、朝倉俊英*、村崎 穣*

要旨

高速増殖炉燃焼燃料の再処理に当たり、溶解液からウランのみを回収し、後段の処理量の低減化を図る考え方がある。この目的で、晶析法の適用が検討されている。この報告書では、晶析法導入に伴う安全問題について検討した。まず再処理工程全体における晶析の位置付けを明確にし、処理規模及び対象燃料を規定した。次に、安全上問題となりうる臨界、遮蔽、火災・爆発、閉じ込め機能喪失についての可能性、及び留意しておくべき起因事象を検討した。このうち臨界に関して、晶析工程の臨界安全管理例について検討した。特に晶析装置については、平常時及び事故時に分けて評価モデルを設定し、評価の参考となるデータを臨界安全ハンドブックから抽出した。評価上重要な基本データである硝酸プルトニウムの理論密度は、結晶学データに基づき推算した。これらの情報に基づき、晶析装置の核的制限値を算出した。

* 日本原子力研究所東海研究所安全性試験研究センター燃料サイクル安全工学部

July, 1999年

Study on Safety of Crystallization Method Applied to Dissolver Solution in Fast Breeder Reactor Reprocessing

Atsuhiro SHIBATA, Tetsuro SAKAKIBARA, Tomozo KOYAMA,
Hiroshi OKUNO *, Yukio FUJINE *, Toshihide ASAOKA *, Minoru MURAZAKI *

Recycle Process Technology Group
Advanced Fuel Recycle Technology Division
Waste Management and Fuel Cycle Research Center
Tokai Works

Abstract

The crystallization method is proposed to apply for recovery of uranium from dissolution liquid, enabling to reduce handling materials in later stages of reprocessing used fast breeder reactor (FBR) fuels. This report studies possible safety problems accompanied by the proposed method. Crystallization process was first defined in the whole reprocessing process, and the quantity and the kind of treated fuel were specified. Possible problems, such as criticality, shielding, fire/explosion, and confinement, were then investigated; and the events that might induce accidental incidents were discussed. Criticality, above all the incidents, was further studied by considering exemplified criticality control of the crystallization process. For crystallization equipment, in particular, evaluation models were set up in normal and accidental operation conditions. Related data were selected out from the nuclear criticality safety handbooks. The theoretical densities of plutonium nitrates, which give basic and important information, were estimated in this report based on the crystal structure data. The criticality limit of crystallization equipment was calculated based on the above information.

Keyword: Crystallization, Fast Breeder Reactor, Reprocessing, Incident, Safety, Criticality, Handbook, Uranium, Plutonium, Nitrate, Theoretical Density

* Department of Fuel Cycle Safety Research, Nuclear Safety Research Center,
Tokai Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute

目次

1. はじめに	1
1.1 晶析法とは	1
1.2 晶析法を溶解液へ適用する目的	1
1.3 硝酸ウラニル六水和物 (UNH) の晶析	2
1.4 原子力分野での晶析法の適用例	3
1.5 晶析法に係る安全性検討の必要性	3
2. 工程概念・評価条件の設定	4
2.1 工程概念	4
2.2 評価条件	4
3. 安全上の問題の摘出	8
3.1 頂上事象からの検討	8
3.2 起因事象からの検討	9
4. 晶析工程の臨界安全管理の検討	14
4.1 再処理工程全体の臨界安全管理の留意点	14
4.2 晶析工程の臨界安全管理	15
5. 晶析装置の臨界安全性の検討	19
5.1 臨界安全評価モデルの設定	19
5.2 臨界安全ハンドブックの関連データ	22
5.3 硝酸プルトニウムの理論原子密度の推算	28
5.4 晶析装置の核的制限値の計算	31
6. おわりに	35

1. はじめに

高速炉体系における将来の湿式再処理技術では、低除染燃料の利用が成立することを前提に、工程を簡素化し Pu を一部の U とともに回収することを指向しており、PUREX 法の改良の他にイオン交換法、炭酸沈殿法、晶析法等の候補が挙げられる。このうち、晶析法は PUREX 法と組み合わせることにより廃棄物低減と経済性向上の可能性をもっている¹⁾。

1.1 晶析法とは

晶析法とは、目的成分濃度を過飽和とすることにより、製品を結晶として回収する方法である。過飽和溶液を得るには、溶媒を蒸発させて溶質濃度を上げる、あるいは溶液を冷却し溶解度を下げる等の方法がある。どの方法を使用するかは対象物質やその溶液に依存する。晶析法で 2 種類以上の物質が共存している溶液から目的成分を分離する場合には、それぞれの物質の濃度差や溶解度の差を利用して行う。晶析法は工業において汎く使用されており、製品が結晶で存在するものの多くは程度の差こそあれ晶析法で精製・製造されている。特に食品工業や薬品工業に多く適用例が見受けられる^{2~6)}。

1.2 晶析法を溶解液へ適用する目的

湿式再処理工程に晶析法を導入すれば、以降の工程における取扱液量や試薬の削減及び工程の簡素化により、経済性の向上と再処理工程での廃棄物発生量の低減が期待できる。

現行の湿式再処理法は、主として溶媒抽出工程から成り立っている PUREX 法である。この溶媒抽出工程に供給されるべき使用済燃料溶解液には、U が金属元素として最も多く含まれている。この U を抽出するために大量の硝酸と有機溶媒が工程内に投入されている。ここで PUREX 法の溶媒抽出工程に先立ち供給液中に最も多く含まれる U を粗分離できれば、溶媒抽出工程への供給液量や必要な試薬を大幅に削減することができる。晶析法は不純物を含む系から多量成分を結晶として分離回収することができる方法である。これを燃料溶解液に適用した場合には U のみを分離回収する事ができる。更に晶析工程での U の回収率設定によっては U, Pu 混合製品の Pu 富化度の調整も期待できる。図 1.1 に晶析法を導入した場合の再処理工程概念図を示す。

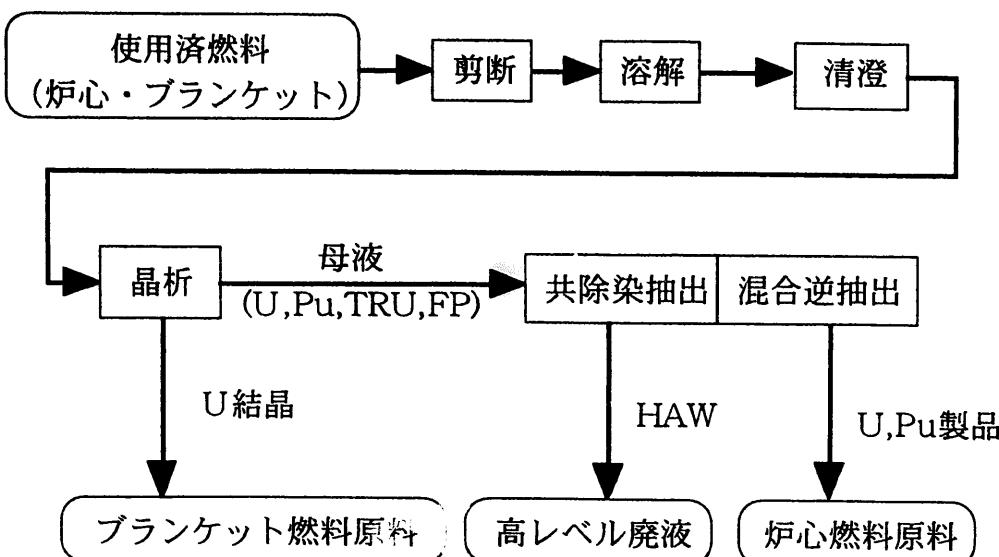


図1.1 晶析法導入時の再処理工程概念図

1.3 硝酸ウラニル六水和物 (UNH) の晶析

硝酸ウラニル-硝酸溶液の晶析温度を図 1.2 に示す⁷⁾。実線は UNH が析出した温度を、破線は溶液そのものが凝固した温度を示す。

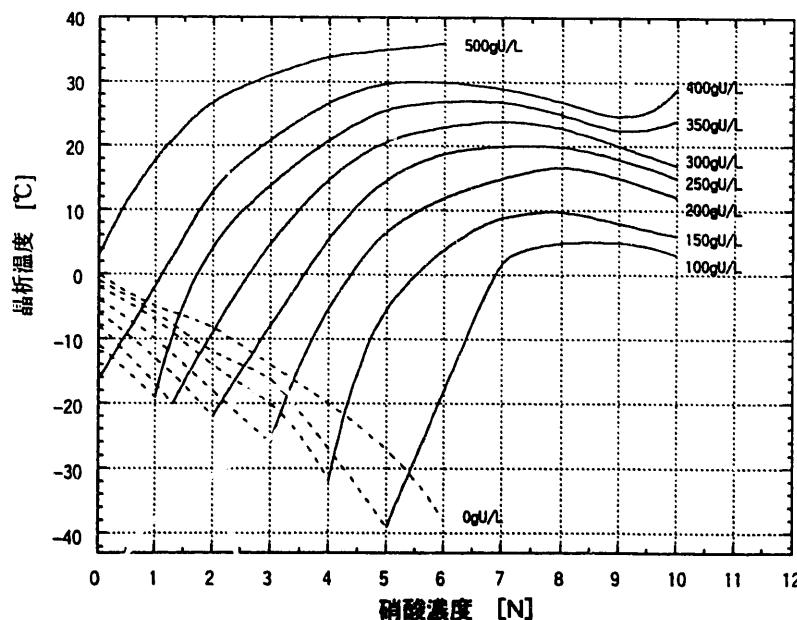


図1.2 UNH晶析温度の硝酸濃度依存性

溶解度の温度依存性が高い系に対しては、冷却晶析が適用される。硝酸ウラニルは比較的溶解度の温度依存性が高い。硝酸濃度が高くなるに従いその傾向は強くなり、しかも析出温度も高くなる。従って硝酸濃度が高いほうが、UNH の晶析回収には有利である。

一方、硝酸プルトニウムの晶析に関する試験は西独 Kernforschungszentrum Karlsruhe（以下、KfK；現在、独 Forschungszentrum Karlsruhe）⁸⁾ や動力炉・核燃料開発事業団（以下、動燃；現在、核燃料サイクル開発機構）⁹⁾において実施されているものの、硝酸プルトニウム析出の温度及び硝酸濃度依存性に関して、系統的にとられたデータの報告例はない。

1.4 原子力分野での晶析法の適用例

原子力分野において晶析法が実際に適用され、プラントとして操業された例はない。KfKにおいて、U 精製工程に晶析法を適用し硝酸ウラニル－硝酸溶液を－30℃まで冷却して硝酸ウラニル6水和物（UNH）結晶を95%以上回収する方法が検討された例がある¹⁰⁾。国内においては、東京電力株／三菱マテリアル株がKfK 同様に U 精製工程への晶析法適用を検討していた¹¹⁾。

1.5 晶析法に係る安全性検討の必要性

晶析法は核物質を結晶化し固体として回収する工程となるため、誤作動あるいは誤操作等により、核物質の予期せぬ集積が発生し臨界事故に至る懸念が否定できない。また既述したように、晶析法は原子力分野への適用例がなく臨界以外の安全性に関する知見も不十分である。従って晶析法の開発に際しては、並行してその安全性の研究も不可欠であり、開発を効率的に進めるため安全上問題となる項目を抽出し、解決案を検討しておく必要がある。

2. 工程概念・評価条件の設定

2.1 工程概念

第1章でも述べた通り、再処理工程の溶解液へ晶析法を適用する目的は①Uの粗分離による溶媒抽出工程及び関連する工程の負荷低減、②U,Pu混合製品のPu富化度の調整及びそれらによる再処理工程の簡素化である。晶析工程は、PUREX法でいう清澄工程と共に除染工程の間に設置される。その供給物は清澄液であり製品はUNH結晶及びPu富化度調整されたU,Pu,FP等を含む晶析母液である。

晶析工程はその主要な4要素(①調整槽、②晶析部、③固液分離部、④洗浄部)より構成される。各構成要素の主な役割は次の通りである。

調整槽は、晶析条件の再確認のためU濃度、硝酸濃度を測定し、必要に応じて調整するとともに、晶析部でのPuの晶析及びUNH結晶への混入防止のためPuを4価に還元する。晶析部は、調整液を10°C近傍まで冷却しUNHを析出させ、晶析母液とUNHスラリーとを分離する。固液分離部は、遠心分離によりUNHスラリーからUNH結晶と母液を分離する。洗浄部は、UNH結晶を洗浄する。図2.1に晶析工程の概念図を示す。

2.2 評価条件

2.2.1 供給燃料仕様

供給燃料は使用済FBR燃料とし、もんじゅを参考に設定した¹²⁾。表2.1に主要な仕様を示す。

表2.1 供給燃料仕様

初期 ²³⁵ U含有率 及びPu富化度	炉心部:初期 ²³⁵ U含有率 約0.3wt%
	初期Pu富化度 30 wt%
	軸プランケット:初期 ²³⁵ U含有率 約0.3wt%
径プランケット:初期 ²³⁵ U含有率	約0.3wt%
燃焼度	94,000 MWd/t(炉心部) 4,500 MWd/t(軸プランケット) 5,800 MWd/t(径プランケット)
冷却期間	1.5年(550日)
燃料組成 (500kgHM中)	U 455.1 kg Pu 44.9 kg (U/Pu=10.14)

2.2.2 晶析工程仕様

晶析法を導入した再処理プラントの処理量を100tHM/年(年間200日稼働)とする。これは、集中立地を仮定して年間10基のFBRから使用済燃料を受け入れ

た場合を想定したものであり、1日当たりの処理量は500kgHMとなる。

晶析工程に要求される仕様を、製品に要求される仕様から検討した。

晶析工程でのU回収率は、母液のPu富化度をFBR炉心燃料に必要な25% ($U/Pu=3$)するために70%とする。母液のU濃度は、体積量で供給液に対して3倍量の30%TBPによる溶媒抽出において、TBPへの重金属装荷度が約80%となる約250gU/Lとする。また母液の硝酸濃度は、同じ抽出系で最適な除染係数が期待できる硝酸濃度として3~4Nとする。晶析部の操作温度は、冷水程度で冷却可能な約10°Cとする。以上より供給液に必要とされる仕様が決定される。この仕様に基づく晶析工程での物質収支を表2.2に示す。ただし、この物質収支においては、UNH結晶への母液の混入は考慮していない。

表2.2 晶析工程物質収支

	供給液	UNH結晶	母液
U濃度 [g・L ⁻¹]	550	—	258
Pu濃度 [g・L ⁻¹]	54.2	—	84.9
U/Pu比 [-]	10.14	—	3.04
硝酸濃度 [N]	2.7	—	4.2
密度 [g・L ⁻¹]	1.84	—	1.61
液量 [L]	827	—	528
U [kg]	455.1	318	137
Pu [kg]	44.9	0	44.9
硝酸 [kg]	141	0	141
水 [kg]	540	144*	396

* : UNH結晶の水和水として

晶析工程の概念図を主要な物質収支を含めて図2.1に示す。なお、物質収支算出にあたっての溶液密度式は桜井らが報告しているものを使用した¹³⁾。但し同式の適用範囲はPu+U濃度<350g/L、硝酸濃度<5N、温度20~60°Cとされているが、本検討ではその範囲を越えて適用している。

2.2.3 晶析装置

晶析装置は薬品工業等の一般産業において工業的に使用されており、用途に応じて様々な装置が開発されている。槽の中央に攪拌器が収められ槽外から冷却を行う攪拌槽型の装置や、内筒と外筒の間に処理液が滞留し、外部ジャケットによる冷却及び内部スクリュによる結晶移送を行うキルン型の装置等がある。

再処理への適用を想定した場合には以下のようことが必要となる。

- ①溶解液への適用となるため、臨界制御が可能な形状であること

②セル内での使用となるため、保守性に優れ、小型であること
冷却方式や保守性等は今後の検討が必要であるが、臨界形状の確保のためには、
円柱形状の攪拌槽型や円環形状のキルン型の装置が適当であると考えられる。

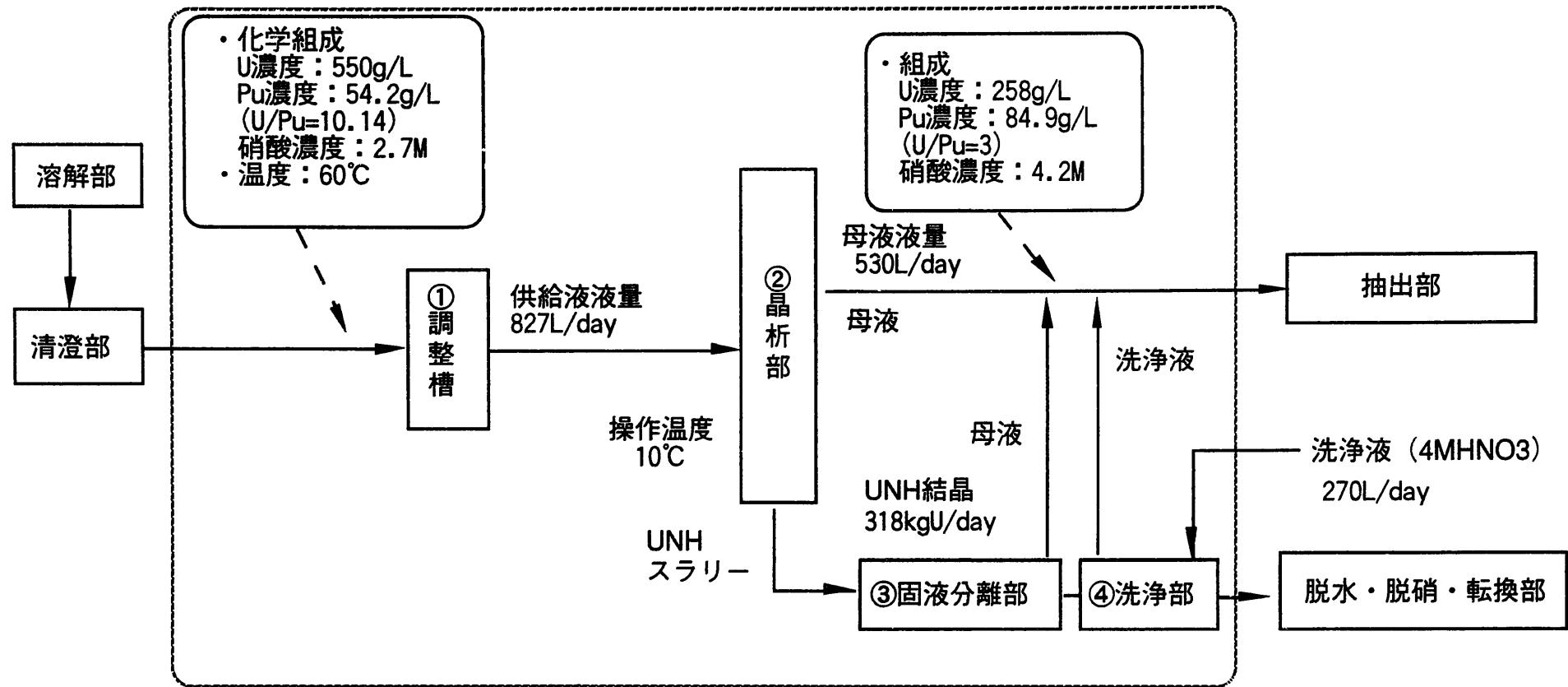


図2.1 晶析工程概念図

3. 安全上の問題の摘出

溶解液に晶析法を適用する際の安全問題を検討する。このアプローチとして、頂上事象（トップイベント）から検討する方法と、起因事象から検討する方法がある。

3.1 頂上事象からの検討

3.1.1 臨界

晶析に伴う臨界問題は、Puが本来溶液状であるプロセスの中で誤って析出を生ぜしめることによる反応度増加に尽きる。臨界の可能性が想定し得るとすれば、発生防止／拡大防止両方の手段を講じなければならない。拡大防止のためには反応度上昇を検知する新たな計装システムが不可欠である。

Puの析出を生じる原因ごとに以下検討する。

(a) Puの原子価調整ミス

Pu(IV)とPu(VI)は溶解度が大きく異なり、Pu(VI)は析出しやすい。その溶解度はUと大きく変わらない程度と考えられる。晶析を行う際には事前にPu(VI)をPu(IV)に還元し、PuがUと同時に析出することを防止しなくてはならない。この還元操作は晶析用の調整槽で行われることになると考えられるが、その際の誤操作等で還元が不十分であった場合にPu(VI)の析出が生じる可能性が高くなる。この際はUの結晶の中に散在する形でPuが存在することになる。

(b) 晶析条件過剰

溶解度に大きく効く因子は、金属濃度、酸濃度、温度である。金属濃度、酸濃度は高くなるほど、温度は低いほど析出しやすい。通常、所定の割合のUを析出させるべく、これらのパラメータは細かく制御されるが、その制御に失敗して極端に晶析しやすい条件にしてしまった場合、まずUが析出し、その後にPuが析出する。この際はUとPu(IV)がそれぞれ層状に存在することになり、局所的にPuの存在密度が非常に高くなるため、反応度も極めて高くなる。

3.1.2 遮蔽（被曝）

晶析に伴う被曝問題はあまり考えられない。線源の増加、遮蔽能力の減少、距離の近接化等、被曝量増加の要因が晶析の採用により新たに現れることは考えにくい。唯一あり得るのは、析出したUの脱水脱硝工程は本来Uだけを取り扱う工程であるが、何らかの理由でPuがこの工程へリークしてしまった場合であり、この際は中性子線量が増加することになる。

ただし晶析によるDFはせいぜい1000程度であり、かなりの γ 線量、中性子線量がそもそも存在する所であり、Puリーキでどれだけ中性子線量が増加して現実的な遮蔽問題が現出するかは詳しい検討が必要である。

3.1.3 火災爆発

晶析に伴う火災の危険性の増加もあまり考えられない。特に危険物を工程に持ち込むわけでもなく、温度条件も特別高いもの要しない。着火源となるものも不要である。唯一あり得るのは、晶析装置の冷却システムとして有機系の冷媒を採用し、それが燃えやすいものであったり、またプロセス内に漏洩して危険な化合物を生成したりする物質である場合である。

冷媒の選定に際してその点を十分留意する必要がある。

爆発に関しては、他産業の晶析プロセスでは粉じん爆発の評価をしていることもあり、今後詳しい検討を行う必要がある。

3.1.4 閉じこめ機能喪失

閉じこめ機能へのダメージ要因は摘出が難しい。従来の再処理設備における閉じこめへのダメージの想定の代表例としては、機器の腐食、温度上昇等によるオフガス中への移行、全電源喪失による負圧喪失等である。

晶析に伴う類似の問題としては、晶析装置で熱い液（蒸発濃縮後の溶解液等）を受け入れて後冷却するため、加熱冷却を繰り返すことによる熱負荷での材料へのダメージが考えられる。

3.2 起因事象からの検討

不安全事象につながる可能性のある起因事象全てをリストアップするのはプロセスと設備が定義できてからであるが、現在、晶析の採用で特に留意しておくべきと考えられる起因事象のみを以下に列挙する（図 3.1、表 3.1）。

3.2.1 晶析工程前の析出

晶析装置内で確実に析出させるためには、晶析装置の除熱量により所定量の析出が可能な範囲まで、HM 濃度、酸濃度、温度等のパラメータを析出しやすい値に事前に到達させておかねばならない。その時に僅かな外乱で想定外の場所で析出してしまう可能性が考えられる（図 3.2）。晶析装置前の機器配管類に加熱保温機能が必要であれば、その機能喪失による析出を想定せざるを得ない。

3.2.2 晶析装置表面でのスケーリング

晶析装置の冷却用電熱面で、析出した UNH 結晶が固着して伝熱を阻害する可能性が考えられる。晶析操作の中止や、固着物の突然の脱離による過冷却現象が想定される（図 3.3）。

3.2.3 晶析装置伝熱面の破損による冷媒の混入または母液の漏洩

何らかの理由で伝熱面が損傷し、冷媒と母液が直接接触した場合、これらの相

互作用を生じる可能性がある（図 3.4）。また、この場合冷却系統への放射能漏洩となる。

3.2.4 晶析条件下での未晶析

晶析装置内で本来析出する条件においても析出しない状態が現れる可能性がある（図 3.5）。具体的には攪拌の停止による温度の不均一のような原因が考えられる。この際、後刻攪拌の再開/過冷却により大量の析出が一挙に生じたり、Pu が析出したりすることが想定される。

3.2.5 晶析装置駆動部分の動作不良

晶析装置の方式にもよるが、スラリーの攪拌や結晶のハンドリングに攪拌翼やスクリューコンベア等が駆動部分として存在し、これらが動作不良を起こした場合は、晶析装置内での滞留等が考えられる（図 3.6）。

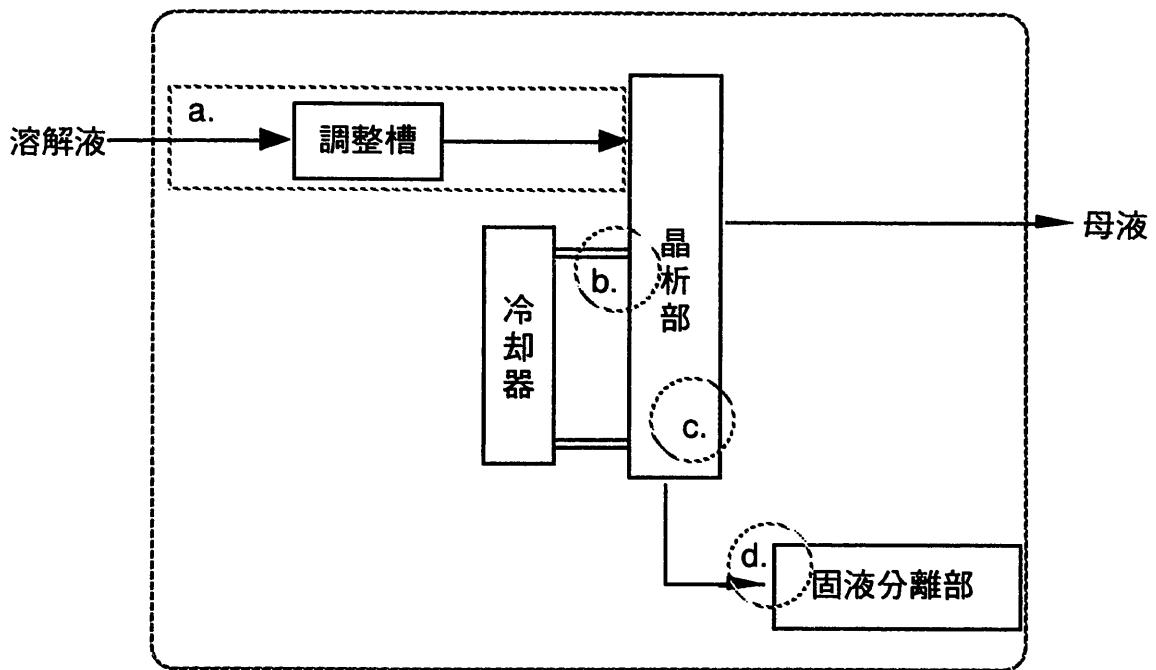
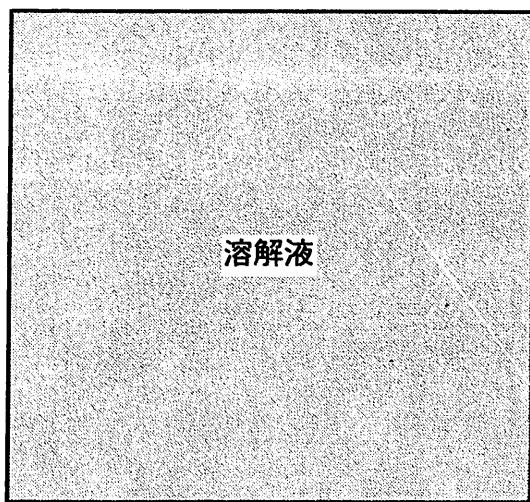


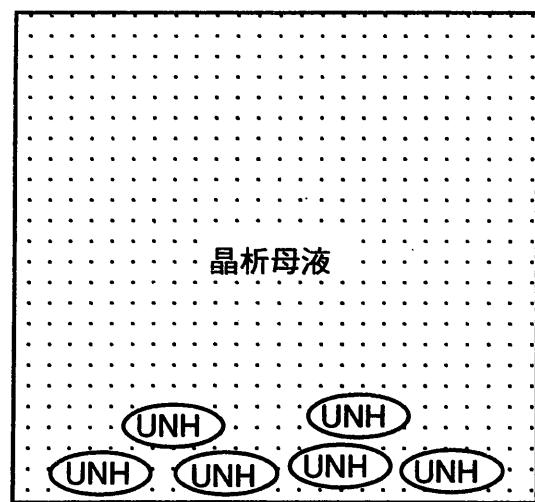
図3.1 晶析工程概略図

表 3.1 晶析工程での起因事象

発生箇所	起因事象	イメージ図
調整槽 (図 3.1 の a)	晶析工程前の析出	図 3.2
晶析装置 (図 3.1 の b)	晶析装置伝熱面でのスケーリング	図 3.3
晶析装置 (図 3.1 の b)	晶析装置伝熱面の破損	図 3.4
晶析装置 (図 3.1 の c)	晶析条件下での未晶析	図 3.5
晶析装置 (図 3.1 の c,d)	駆動部分の動作不良	図 3.6



平常時



異常時

図3.2 晶析工程前の析出

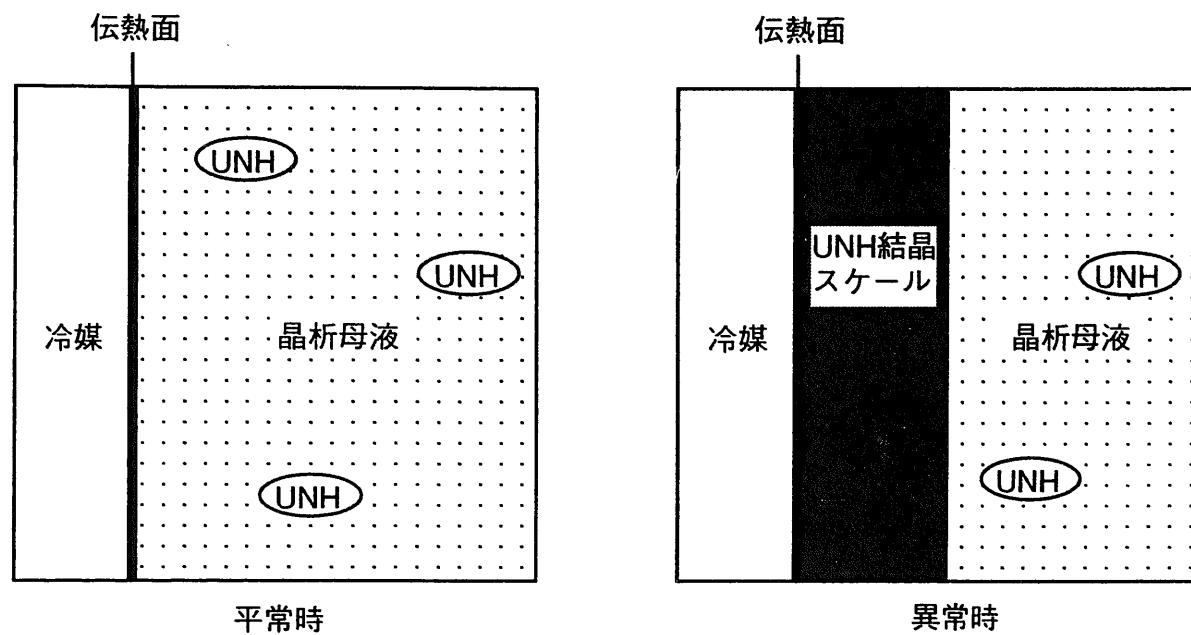


図3.3 晶析装置伝熱面でのスケーリング

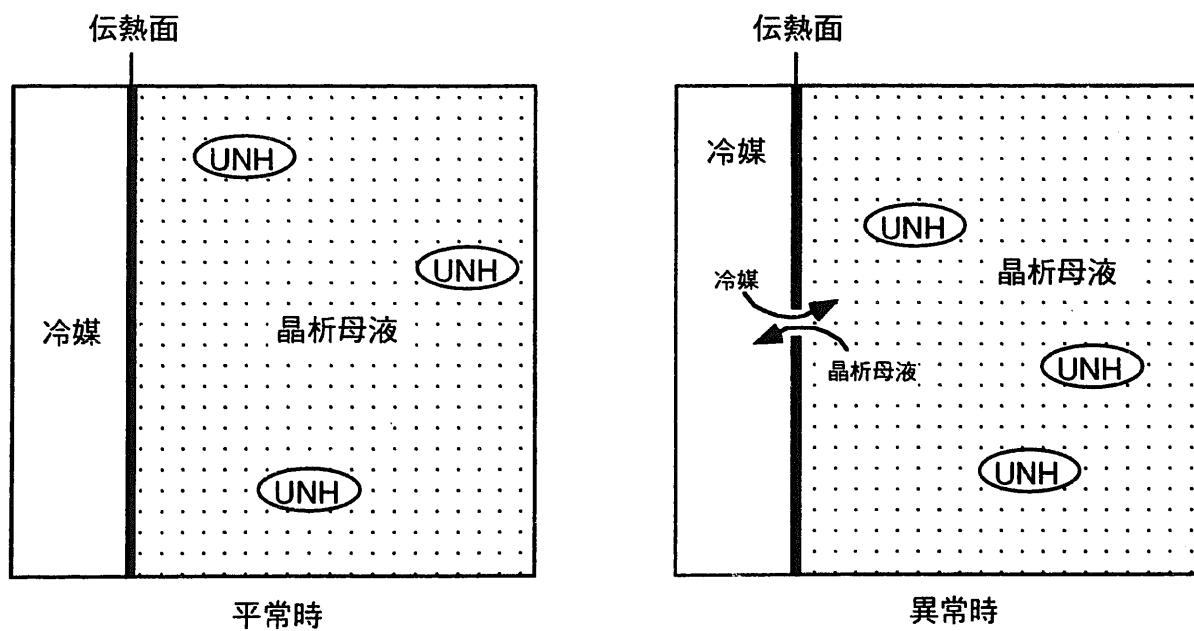


図3.4 晶析装置伝熱面の破損

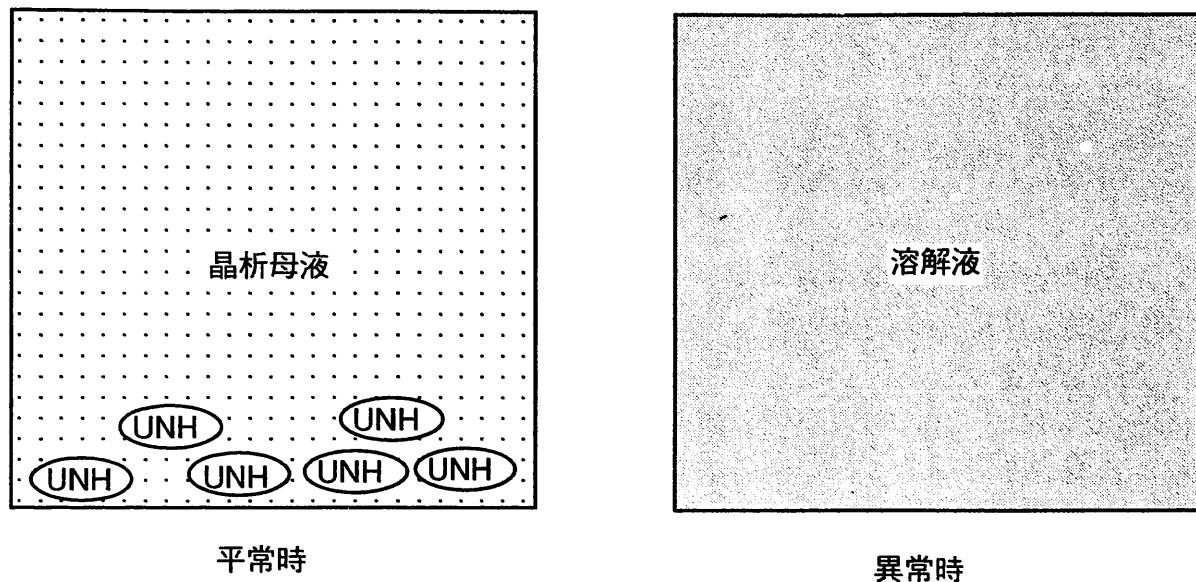


図3.5 晶析条件下での未晶析

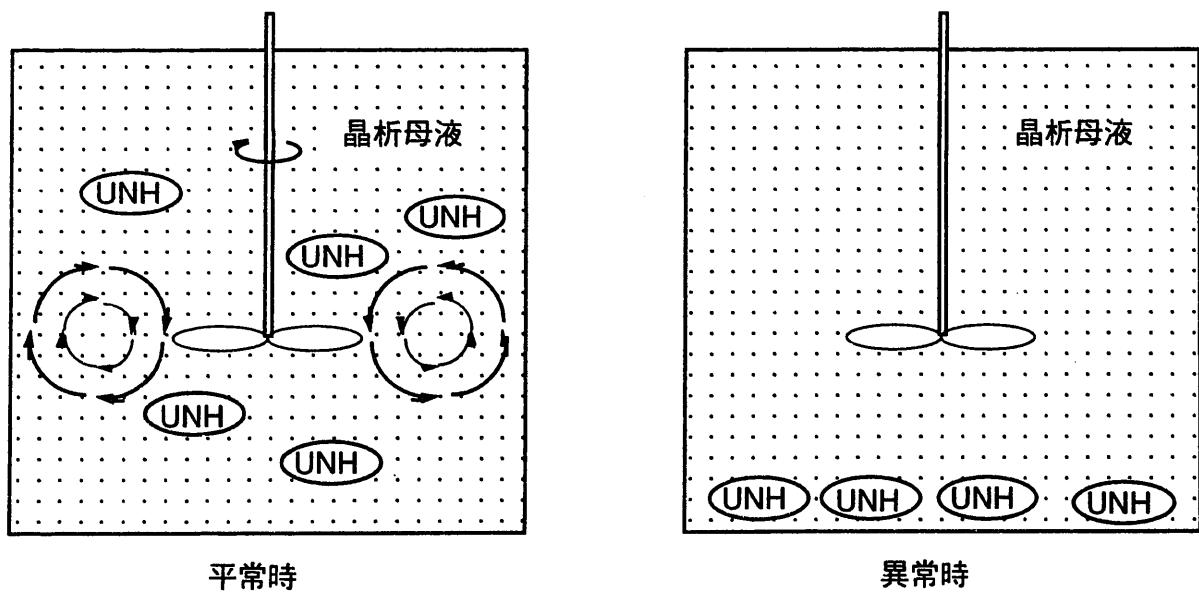


図3.6 駆動部分の動作不良

4. 晶析工程の臨界安全管理の検討

第3章で検討した通り、晶析法の採用により最も大きな影響を受ける安全問題は臨界である。遮蔽、火災爆発、閉じこめ等、臨界以外の安全問題には本質的には大きく影響しない。運転上の影響は多少考えられるが、安全問題を扱う本研究の対象ではない。

よって本章以降は臨界安全管理に問題を絞って検討を行うこととする。

4.1 再処理工程全体の臨界安全管理の留意点

晶析を採用した場合の再処理工程全体において臨界安全管理が行われる範囲の例を図4.1に、臨界管理方法の例を図4.2に示す。晶析工程そのものを除く他工程の臨界安全管理について、通常の再処理工程と異なり特に留意すべき点としては以下のものがあげられる。

- (1)溶解以後、晶析工程までの間は、Uの溶解限界に近いため、何らかの理由（保温材の欠落、加熱ヒータの故障等）で異常な析出が生じる可能性がある。その場合、Uの析出に伴うPu含有率の増加が溶液部で生じる。よって、それぞれの異常の発生可能性を検討の上、適切なPu含有率を設計条件に選定しなければならない。
- (2)晶析工程に供給する溶解液中のPuの原子価が、析出挙動を左右する大きな因子となる。晶析装置をPu100%で設計しない場合には、Puの析出を防止するためその原子価調整工程における調整ミス防止が臨界管理上極めて重要になる。溶解やヨウ素追い出し時の加熱処理等を担保しなくてはならない。
- (3)晶析工程以後、U結晶を扱う工程は燃料製造まで長きにわたる。本来ここにはPuは存在しないため、これらは臨界安全管理対象からはずすべきである。臨界安全管理を行わないとするなら、晶析工程から出た時点で、Puが有意量存在しないことを確認しなくてはならない。その方法としては分析と核計装の2通りが考えられる。

分析はその必要とする時間が長く、工程内ホールドアップが大きくなる点、分析作業に運転員が多数必要になる点等から、望ましいとは言いがたい。核計装で短時間のうちにPuがないことを確認することが運転上は望ましい。しかしこの計装は安全上重要な設備となり、この類の核計装はハルモニタや、固体廃棄物内に有意量の核物質が存在しないことを確認する設備としての使用例しかないのが現実である。よって信頼性向上、その確認に今後かなりの開発を要すると考えられる。

4.2 晶析工程の臨界安全管理

晶析工程の臨界安全管理を考える際は、以下の点が最も重要である。

○工程内での Pu の析出を想定するか否か

⇒①想定するなら適切な（高い）Pu 含有率を設定し、これに合わせた各機器の臨界設計を行う。

⇒②想定しないなら各機器は通常の Pu 含有率で臨界設計を行い、Pu 析出防止のためのプロセスパラメータ（温度、U 濃度、硝酸濃度、原子価）値の担保を厳重に行うこととする。

②は現実の細かな設備設計の問題となるため、ここで詳細を論じる事は非現実的である。よって以下、①を採用した場合の機器設計について検討することとする。

Pu の析出を想定するなら、その含有率の上限値を設定しなければならない。実際の Pu 析出時には、まず濃度の高い U が析出し、その後 Pu が析出すると考えられる。その際 Pu が単独で結晶として存在するか、既に析出している U と混在するかは、晶析装置の構造に依存する。現在その装置型式は選定されていないため、ここでは最も厳しい条件の、Pu 結晶単独存在、すなわち Pu100%を想定した臨界設計を試みることとする。

臨界管理方法としては、運転管理の不要な、形状管理+中性子吸収材管理を採用する。これで機器設計の成立性に危うい点を認めれば、臨界管理方法の変更又は設計条件の緩和を指向する。

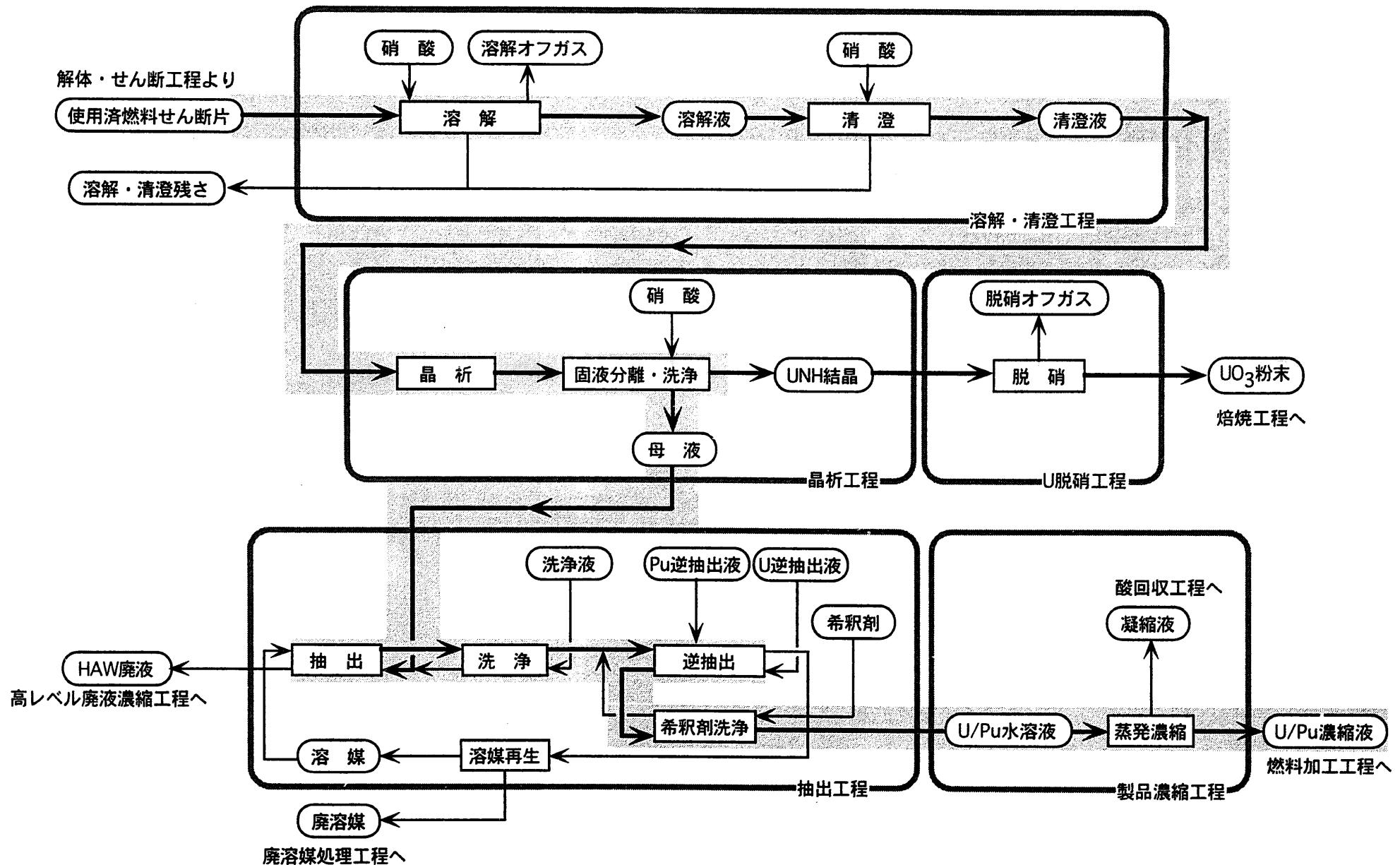
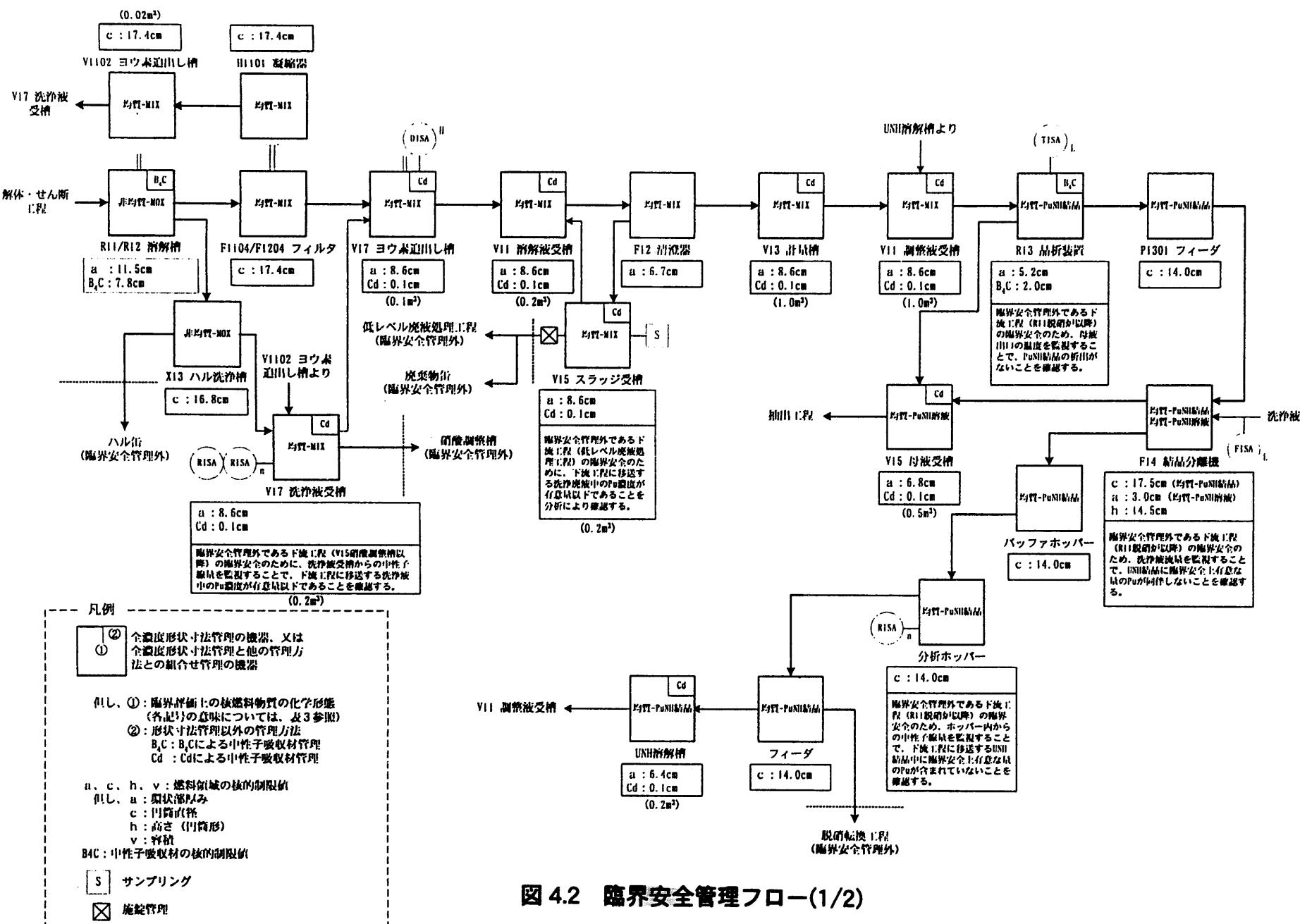


図4.1 臨界安全管理の範囲



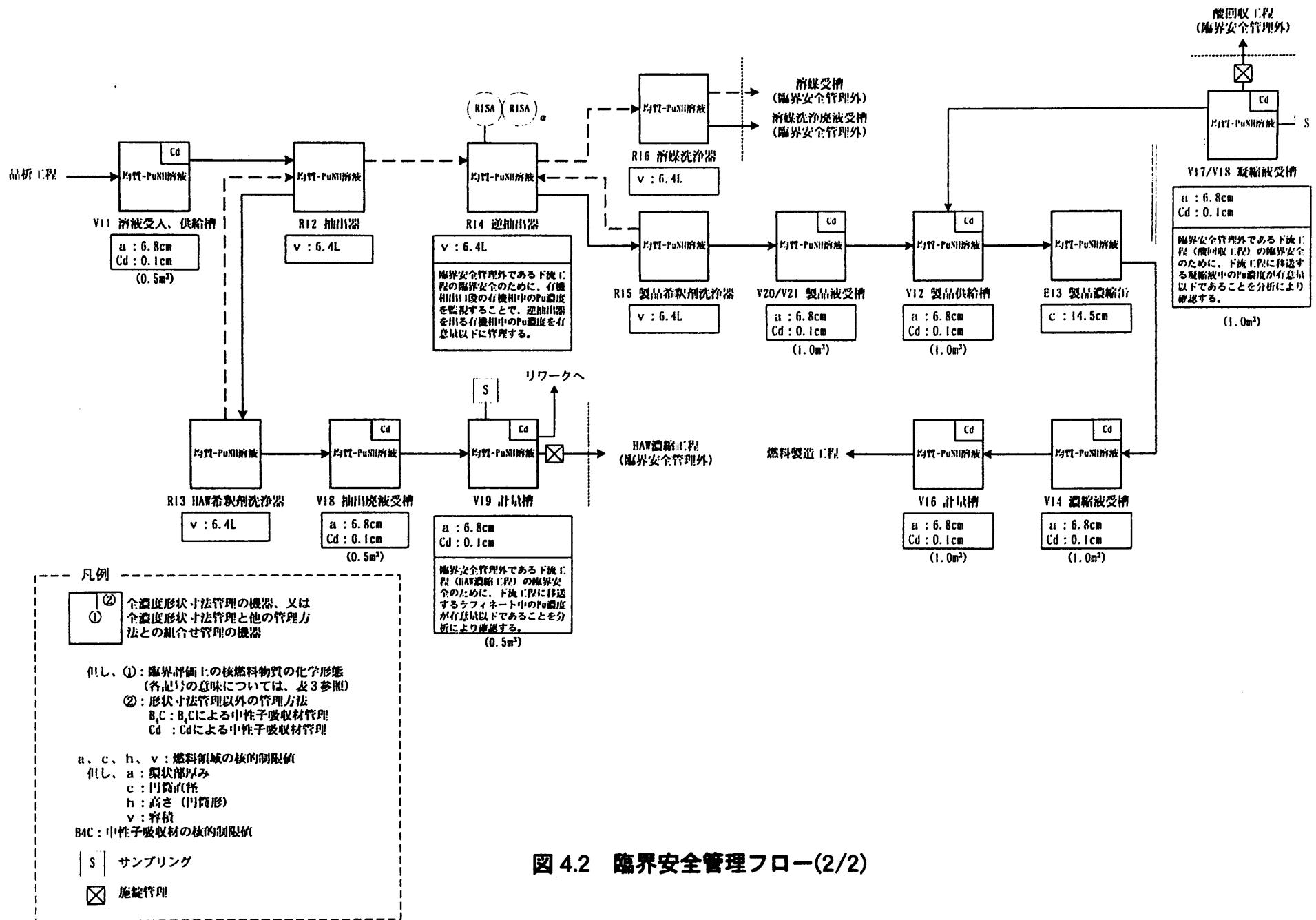


図 4.2 臨界安全管理フロー(2/2)

5. 晶析装置の臨界安全性の検討

この章では、臨界安全性の観点から晶析装置の寸法に対する制限を求める。第 5.1 節では基本的なモデル設定を行い、第 5.2 節では関連データを臨界安全ハンドブック等により調べる。更に、第 5.3 節では硝酸プルトニウム等の原子個数密度を結晶学的データにまで戻って推算する。第 5.4 節では、円環形状のモデルを具体的に設定し、臨界安全上最も厳しい状態に限定して、晶析装置の成立性を臨界安全性の観点から検討する。

5.1 臨界安全評価モデルの設定

第 2.2.3 項に記した晶析プロセスの概念・評価条件の設定に基づき、臨界安全評価モデルの設定を行う。ここでは、通常運転時の状態及び最も厳しい状態を想定した 2 つのモデルを設定し、表 5.1 にまとめた。ここで最も厳しい状態の想定としては、第 3 章に記したプルトニウムの析出を取り上げている。なお、通常運転時の状態及び最も厳しい状態を区別して評価する方式は日本の「臨界安全ハンドブック」¹⁴⁾では採用されていないが、通常時と事故時とでそれぞれ異なる中性子増倍率の制限値を設ける考え方は文献 15) に見られる。以下、各項目について説明を加える。

5.1.1 形状

第 2 章に記したように晶析装置の形式はまだ決まっていないが、攪拌槽型の場合は円柱形状、キルン型の場合は円環形状となる（円環の内側に中性子吸収材を貼付可能である）。円環形状は、燃料領域から漏洩した中性子の再入射を無視することにより燃料領域の厚さが同じ平板形状で近似できる。このため、円柱形状と平板形状の 2 つの形状を設定する。

5.1.2 反射条件

安全側の仮定として、通常運転時には完全水反射条件（文献 14）では 20cm 厚さの水）を設定する。これは、本来は水没状態を想定したものである。なお、反射条件としてウラン反射の方が水反射よりも厳しいという報告^{16), 17)}もある。これについては、関連のデータも少ないこともあり、可能性も含めて将来別途検討することとする。

5.1.3 Pu 富化度

第 2 章に記したように、原子炉側の条件から晶析工程での U/Pu 比を 3 度に設定する。このため、通常運転時には Pu 富化度として 25% とする。また、異常時には最も厳しい Pu 富化度 100% を設定する。

5.1.4 Pu 同位体比

基本的には、再処理される使用済燃料の最低燃焼度の設定によって決められる。「臨界安全ハンドブック」¹⁴⁾には、PWR 燃料の燃焼に伴う核種組成の安全側の仮定が記載

されている。これを表 5.2 に転記する（表に記されていない燃焼度の値は、直線内挿して得られる）。この表によると、燃焼度 22.5GWd/MtU での安全側の Pu 同位体個数比は、 $^{239}\text{Pu} : ^{240}\text{Pu} : ^{241}\text{Pu} : ^{242}\text{Pu} = 70 : 20 : 10 : 0$ である。 ^{241}Pu を ^{239}Pu で置き換えたのが、 $^{239}\text{Pu} : ^{240}\text{Pu} = 80 : 20$ である。ここでは、個数比ではなく重量比としたが、質量数の差が小さいので両者の差はごく僅かである。

5.1.5 Pu 濃度

第 2 章に記したように、通常運転時において U 濃度は 258 gU/L、U/Pu 比が 3 である。このため、Pu 濃度としては最大 100gPu/L 程度を考慮しておけばよい。また、異常時においては、Pu の析出も考慮する。このため、Pu 濃度の最大値としては、理論密度まで考慮する。硝酸プルトニウムの理論密度については第 5.3 節に記す。

5.1.6 燃料分布

通常運転時には硝酸ウラニルが析出して下に沈み、Pu 溶液がその上にあるという 2 層構造を想定する。最も厳しい状態においては全部の Pu が析出し、上部（円環形状では外側）は水という状態を想定する。

5.1.7 ウラン、MA、FP

簡単のため、マイナー・アクチニド (MA)、核分裂生成物 (FP) の存在を無視する。最も厳しい状態の想定においては、さらにウランの存在も無視する。 ^{235}U の濃縮度は天然ウラン（約 0.7wt%）以下であり、大部分が中性子吸収の大きな ^{238}U であるため、これを無視することは安全側であると考えられる（但し、金属に近い非減速体系においては平均中性子エネルギーが大きく ^{238}U の核分裂断面積が大きくなる¹⁸⁾ため、安全側であるか否かについては確認しておく必要がある）。これまで知られている検討の範囲では、臨界性に対する MA の影響は小さい^{19), 20)}。また、FP は中性子吸収効果が大きく、これを無視することは安全側の仮定である²¹⁾。

5.1.8 遊離硝酸

遊離硝酸濃度が高い方が、窒素原子核による中性子の吸収の影響で反応度が低下する¹⁴⁾。通常では遊離硝酸 3~4 規定程度で運転されるが、ここでは安全側の仮定として、遊離硝酸 0 規定を採用する。

5.1.9 温度

低濃度のプルトニウム溶液を除くと、温度の低下に従い反応度は上昇する。しかし、全般的に見ると温度の影響は小さい（10 度の変化で 0.1% $\Delta k/k$ 程度）¹⁴⁾ため、ここでは常温を仮定する。

表 5.1 晶析プロセスの臨界安全評価モデルの設定

項目	通常運転時の状態	最も厳しい状態
形状	円柱、平板	
反射条件	完全水反射	
Pu 富化度	母液 25 %	100 %
Pu 同位体 (重量比)	$^{239}\text{Pu} : ^{240}\text{Pu} = 80 : 20$	
Pu 濃度	100 gPu/L	理論密度
燃料分布	上層 Pu 溶液、下層硝酸ウラニル	全部の Pu 析出
ウラン	考慮	無視
MA、FP	無視	
遊離硝酸	0 N	
温度	常温	

表 5.2 PWR 燃料の燃焼に伴う核種組成の安全側の仮定（個数比）¹⁴⁾

燃焼度 [GWd/MtU]	$\frac{^{235}\text{U}}{\text{U}}$ $(\frac{^{235}\text{U}}{\text{U}})_{\text{ini}}$	$\frac{^{239}\text{Pu}}{\text{Pu}}$	$\frac{^{240}\text{Pu}}{\text{Pu}}$	$\frac{^{241}\text{Pu}}{\text{Pu}}$	$\frac{^{242}\text{Pu}}{\text{Pu}}$
0	1	1	0	0	0
5	0.88	0.95	0.05	0	0
15	0.70	0.80	0.15	0.05	0
30	0.40	0.60	0.25	0.15	0
50	0.20	0.50	0.25	0.15	0.10

5.2 臨界安全ハンドブックの関連データ

第 5.1 節では、通常運転時の状態及び最も厳しい状態を想定した 2 つの晶析プロセスの臨界安全評価モデルを設定し、表 5.1 にまとめた。この章では、国内外の臨界安全ハンドブックにおける関連データを調べてみた。

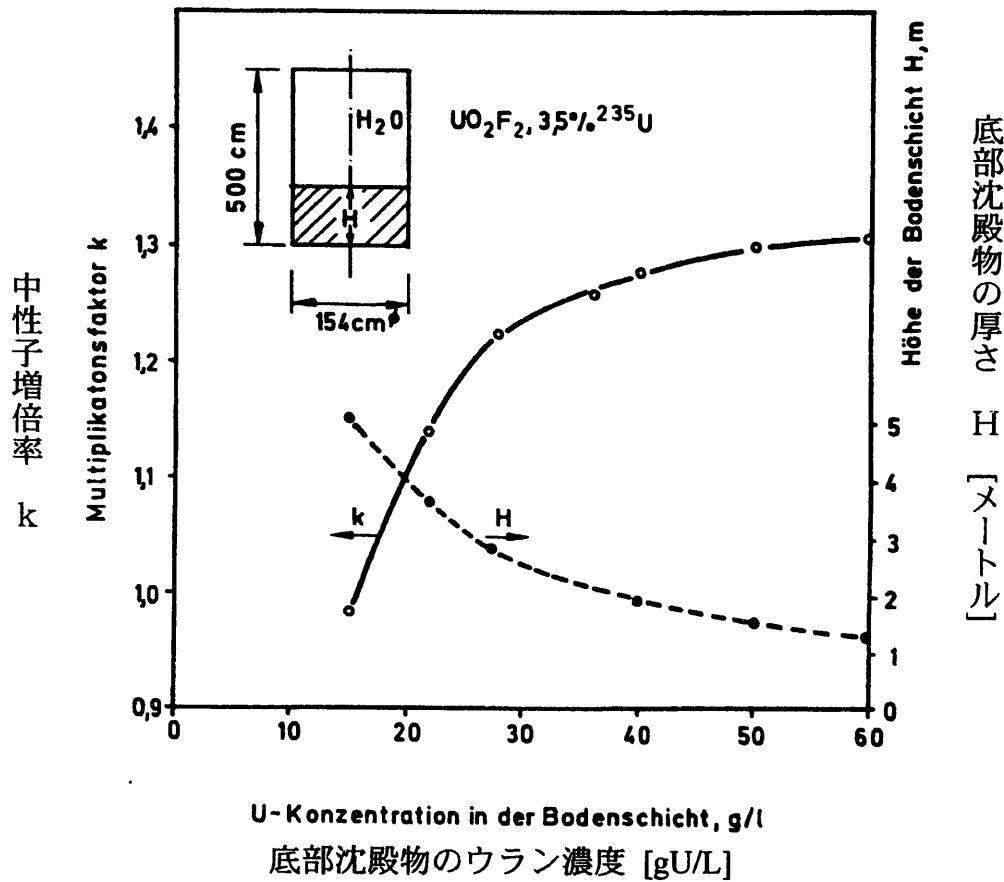
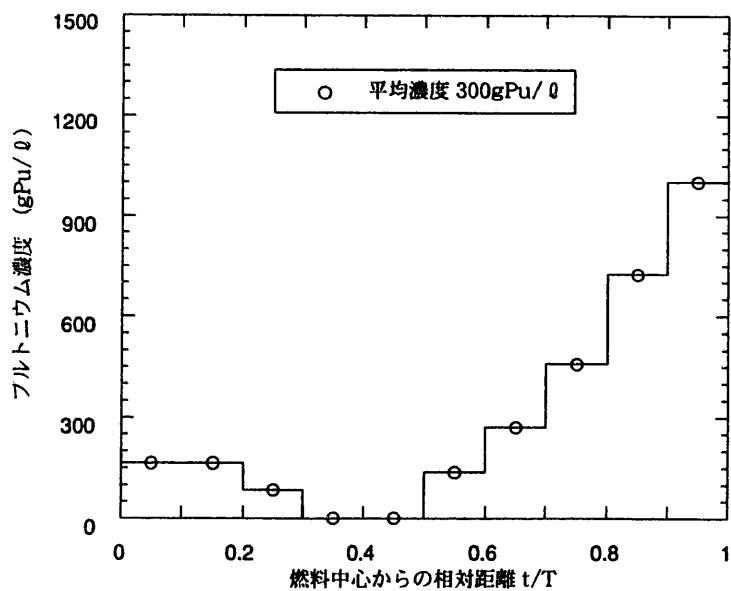
5.2.1 通常時モデル

燃料が 2 層に分離した場合の臨界データは、臨界安全ハンドブックには見当たらぬ。関連のデータとしては、ドイツのハンドブック²²⁾にタンク底部での弗化ウラニル濃度上昇に伴う反応度上昇の計算例がある（図 5.1）。また、日本の臨界安全ハンドブック改訂準備資料²¹⁾には、硝酸ウラニル及び硝酸プルトニウムを対象にした最も厳しい濃度分布についての計算結果が記されている。硝酸プルトニウムの例を図 5.2 に示す。混合硝酸ウラニル体系へ適用するには、この図に示された結果を算出する際に使用されている最適燃料濃度分布計算コード OPT-SN²³⁾を一部改良する必要がある。

5.2.2 異常時モデル

硝酸プルトニウム水溶液の臨界条件データの図はフランスの臨界安全手引き²⁴⁾にある。しかし、手元にある図は非常に見にくいので、ここでは最近公開された米国の臨界安全手引き²⁵⁾から²³⁹Pu-H₂O 体系における無限長円柱での臨界直径を図 5.3 に、無限平板での臨界厚さを図 5.4 にそれぞれ示す。

なお、20cm 水反射体付き硝酸プルトニウム (²³⁹Pu:²⁴⁰Pu=80:20) の最小臨界値については、フランスの基準²⁶⁾には無限円柱直径が 18.6cm、無限平板厚さが 7.7cm と記されている。また、日本の臨界安全ハンドブックのデータ集には、²⁴⁰Pu/²³⁹Pu = 20 wt%（これは、およそ²³⁹Pu:²⁴⁰Pu=83:17 に相当）での 30cm 水反射体付き硝酸プルトニウムの臨界条件データが記載されている。円柱形状及び平板形状に対応する図をそれぞれ図 5.5 及び図 5.6 に示す。推定臨界量の最小値は、それぞれ 22.0cm、9.7cm である。これらはフランスの値より大きい。違いの原因については、今後検討する。

図 5.1 タンク底部での弗化ウラニル濃度上昇に伴う反応度上昇の計算例²²⁾図 5.2 十分な水反射体付き硝酸プルトニウム水溶液 ($^{239}\text{Pu}:2^{40}\text{Pu}=5:1$, 平均プルトニウム濃度 300gPu/L, 硝酸モル濃度 0) の平板体系 (厚さ 10cm) において最大反応度を与える最適濃度分布 (但し、燃料中心を対称とする燃料分布中の極小値は 1 点しか許されていない)²¹⁾

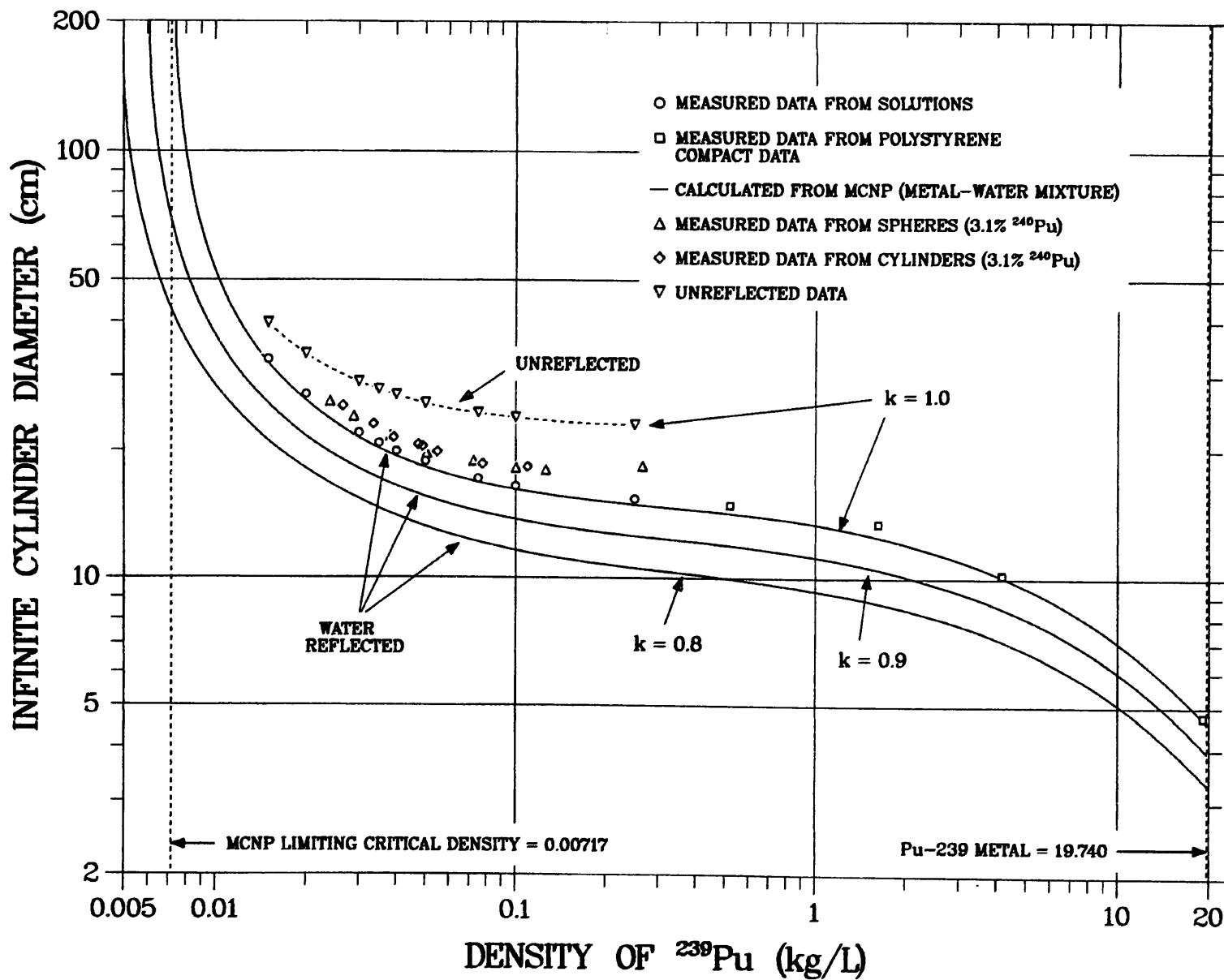


図 5.3 均質 $^{239}\text{Pu}-\text{H}_2\text{O}$ の無限円柱直径と ^{239}Pu 密度との関係²⁵⁾

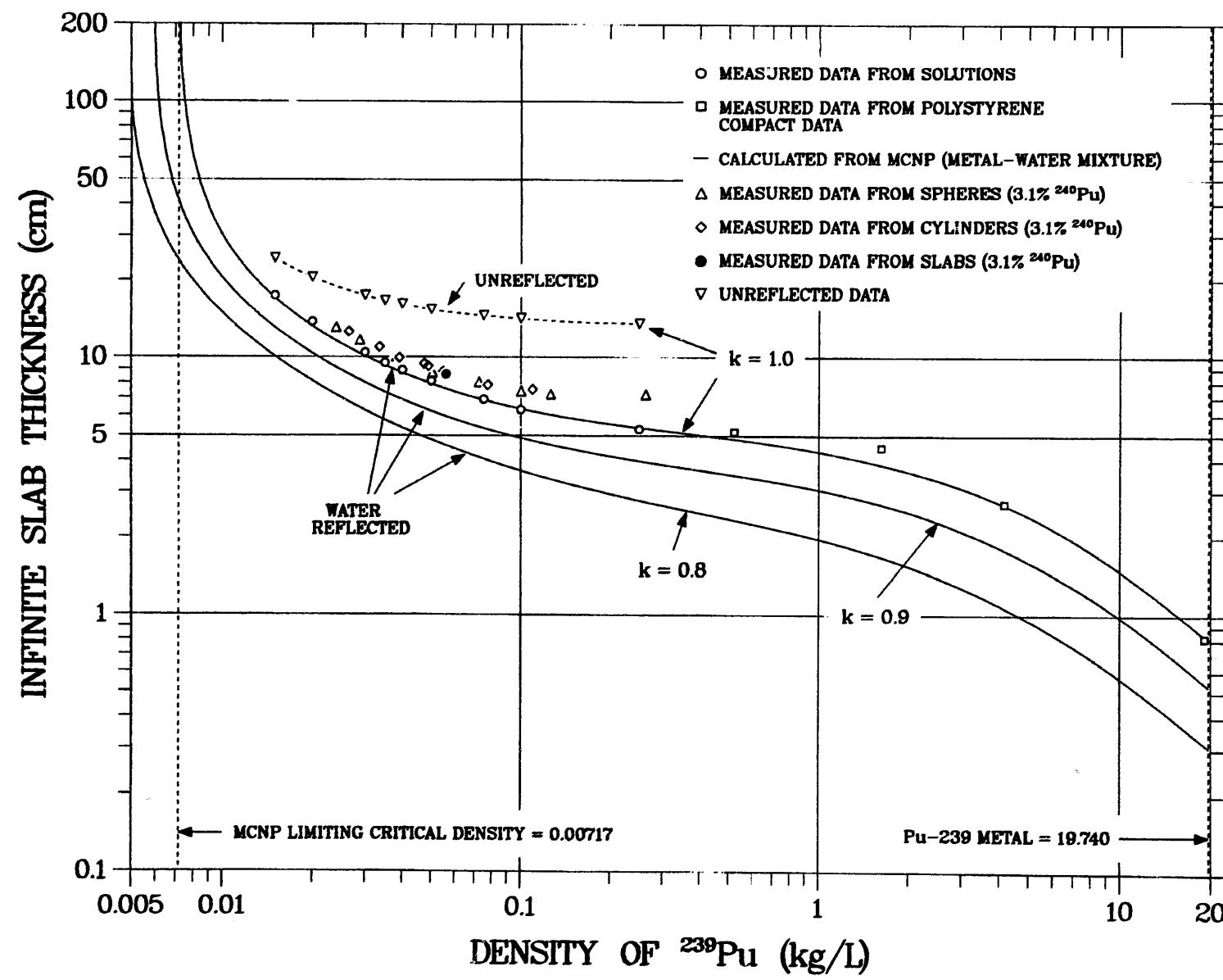


図 5.2.4 均質 $^{239}\text{Pu}-\text{H}_2\text{O}$ の無限平板厚さと ^{239}Pu 密度との関係²⁵⁾

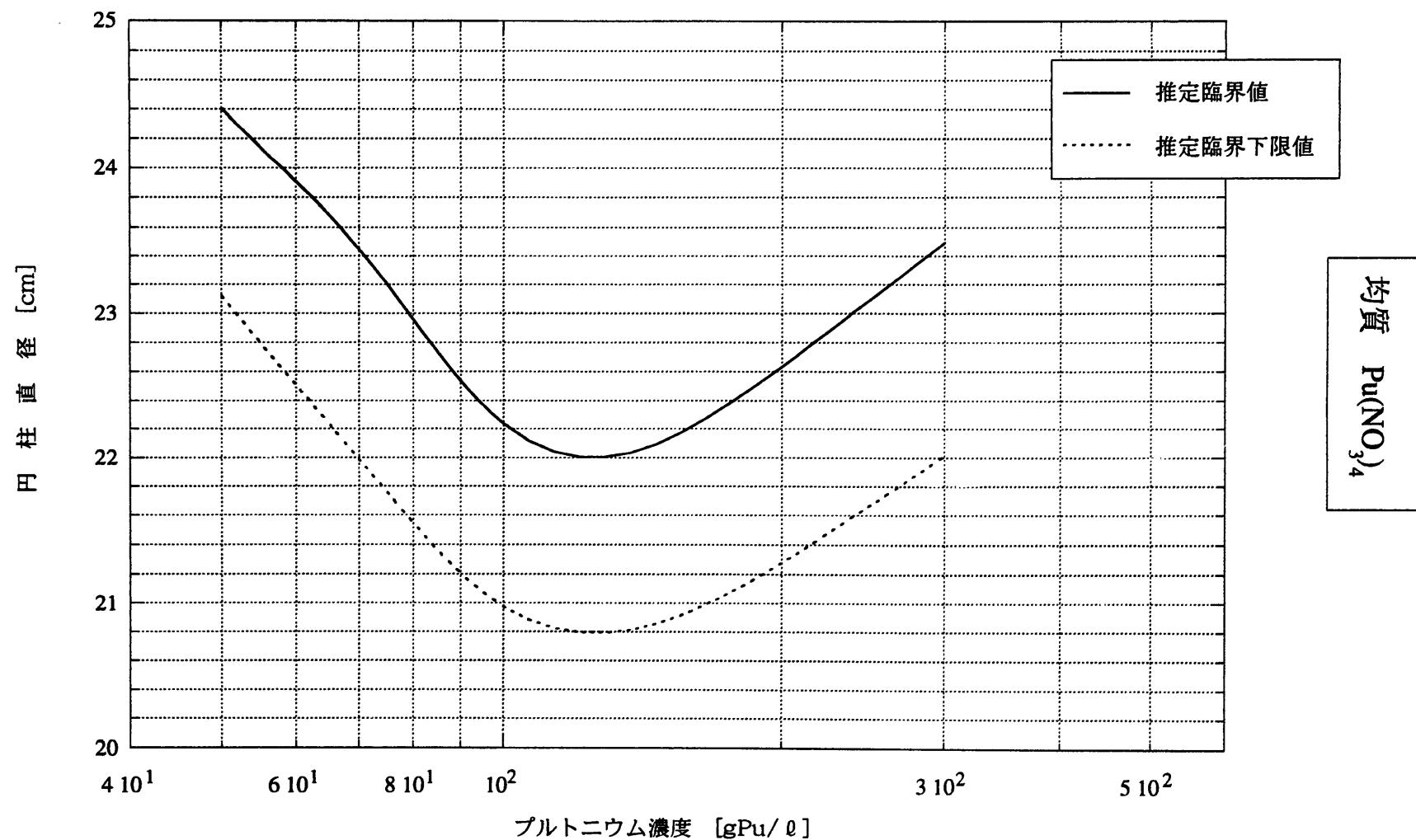


図 5.5 均質 $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ 水溶液の臨界データ（無限円柱直径、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}=20\text{ wt\%}$ 、水反射体付き）¹⁴⁾

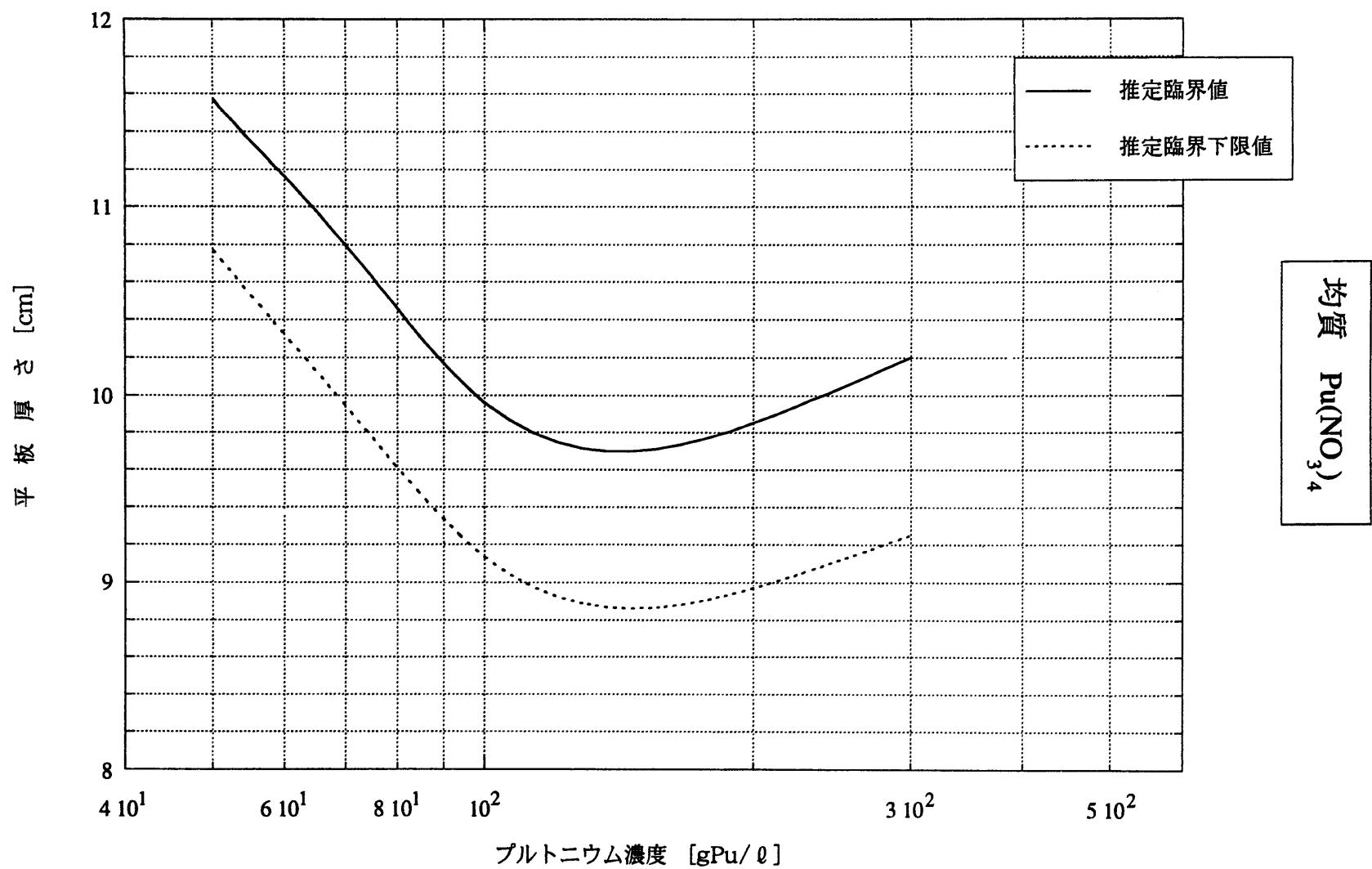


図 5.6 均質 $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$ 水溶液の臨界データ（無限平板厚さ、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}=20\text{ wt\%}$ 、水反射体付き）¹⁴⁾

5.3 硝酸プルトニウムの理論原子密度の推算

5.3.1 背景

晶析法の臨界安全性を評価するためには、生成する結晶中のプルトニウムの原子密度が重要となる。しかし、晶析法で生成する結晶は主に硝酸ウラニル(VI)で、その中にプルトニウムがどの程度、どのような形で含まれるかは明らかではない。そこで、いくつかの結晶の生成を仮定し、その各々について、プルトニウムの原子密度を結晶学データを用いて推算する。

5.3.2 推算の結晶

以下の3種の結晶が生成する場合を考えて、原子密度を推算する。

- ① 硝酸プルトニウム(IV)5水塩単結晶
- ② 硝酸プルトニル(VI)6水塩単結晶
- ③ 硝酸ウラニル(VI)/プルトニウム(IV)またはプルトニル(VI)6水塩単結晶

①、②は、溶液中のプルトニウムが単独で単結晶を生成した場合に、③は、硝酸ウラニル(VI)単結晶の中のウラニルイオンが、一定の比率でプルトニウム(IV)イオンまたはプルトニル(VI)イオンと置換された場合に相当する。

5.3.3 原子密度の推算

(1) 硝酸プルトニウム(IV)5水塩単結晶

表5.3に、硝酸プルトニウム(IV)単結晶の結晶学データを示す。単位胞は、 $11.14\text{ \AA} \times 22.58\text{ \AA} \times 10.51\text{ \AA}$ の直方体で、1単位胞当り、プルトニウム原子は8個含まれている。従って、原子密度は、

$$8 / \{(11.14 \times 10^{-8}) \times (22.58 \times 10^{-8}) \times (10.51 \times 10^{-8})\} = 3.026 \times 10^{21}/\text{個} \cdot \text{cm}^{-3}$$

となる。

(2) 硝酸プルトニル(VI)6水塩単結晶

表5.4に、硝酸プルトニウム(VI)単結晶の結晶学データを示す。単位胞は、 $13.099\text{ \AA} \times 7.961\text{ \AA} \times 11.497\text{ \AA}$ の直方体で、1単位胞当り、プルトニウム原子は4個含まれている。従って、原子密度は、

$$4 / \{(13.099 \times 10^{-8}) \times (7.961 \times 10^{-8}) \times (11.497 \times 10^{-8})\} = 3.336 \times 10^{21}/\text{個} \cdot \text{cm}^{-3}$$

となる。

(3) 硝酸ウラニル(VI)/プルトニウム(IV)またはプルトニル(VI)6水塩単結晶

この場合には、硝酸ウラニル(VI)の単結晶を考え、ある比率でウラニル(VI)イオンがプルトニウム(IV)イオンまたはプルトニル(VI)イオンで置換されると考える。比率は、最大で、溶液中のウラン/プルトニウムのモル濃度比になる。ここでは、ウラニル(VI)イオンがプルトニウム(IV)イオンまたはプルトニル(VI)イオンと置換されることによる結晶構造の乱れは無視する。

表5.5に、硝酸ウラニル(VI)単結晶の結晶学データを示す。単位胞は、 $13.08\text{ \AA} \times 8.02\text{ \AA} \times 11.45\text{ \AA}$ の直方体で、1単位胞当り、ウラン原子は4個含まれている。従って、置

換前のウラン原子密度は、

$$4 / \{(13.08 \times 10^{-8}) \times (8.02 \times 10^{-8}) \times (11.45 \times 10^{-8})\} = 3.33 \times 10^{21} / \text{個} \cdot \text{cm}^{-3}$$

となる。ゆえに、プルトニウム原子密度は

$$3.33 \times 10^{21} \cdot x / \text{個} \cdot \text{cm}^{-3}$$

となる。ここで、xは、ウラニルイオンのプルトニウム置換率 [-] である。

表 5.3 $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ の結晶学データ ²⁷⁾

結晶系	斜方晶系 <i>orthorhombic</i>
格子定数 [Å]	$a = 11.14 \pm 0.02, b = 22.58 \pm 0.03, c = 10.51 \pm 0.03$
単位胞当りの Pu 原子数	8
結晶学的密度 [$\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$]	2.90
実測密度 [$\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$]	2.896

単位胞の形：直方体

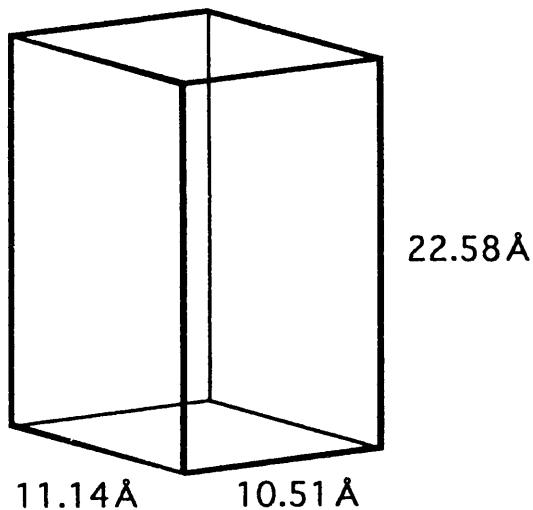


表 5.4 $\text{PuO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ の結晶学データ ²⁸⁾

結晶系	斜方晶系 <i>orthorhombic</i>
格子定数 [Å]	$a = 13.099, b = 7.961, c = 11.497$
単位胞当りの Pu 原子数	4
結晶学的密度 [$\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$]	—
実測密度 [$\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$]	—

単位胞の形：直方体

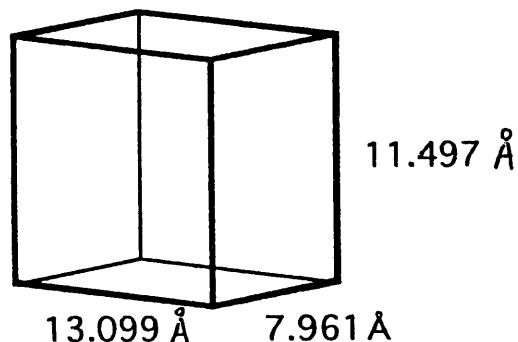
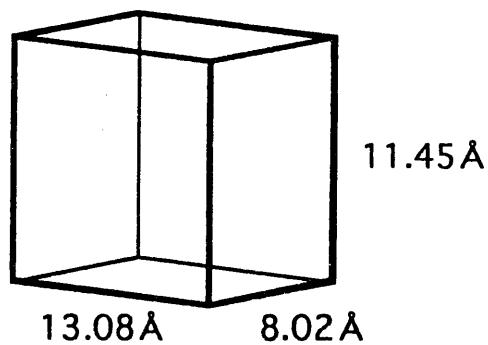


表 5.5 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ の結晶学データ²⁹⁾

結晶系	斜方晶系 <i>orthorhombic</i>
格子定数 [Å]	$a = 13.08, b = 8.02, c = 11.45$
単位胞当りの U 原子数	4
結晶学的密度 [g·cm ⁻³]	2.772
実測密度 [g·cm ⁻³]	2.742

単位胞の形：直方体



5.4 晶析装置の核的制限値の計算

この節では、現実的なキルン型の晶析装置を想定し、その核的制限値を求める。これにより、核的制限値が晶析に必要なホールドアップが確保できる寸法になることを確認する。なお、計算コードの妥当性を確認するため、類似体系で検証計算を行う。

5.4.1 晶析装置の想定

図 5.7 にキルン型の晶析装置の例を示す。内径 36cm、外径 45cm、長さ 1.6m の円環の中を溶解液が移動できる構造になっている。駆動部を含む装置全体は、 20° に傾いた台に固定されており、螺旋形の羽根が付いた内側の円筒が回転する。溶解液を N-1 から供給し、UNH 結晶が N-2 から、晶析母液が N-3 から排出される構造になっている。内円筒（ステンレス鋼製）の肉厚を 5mm とし、その内側に 2.5cm 厚の炭化ホウ素 (B_4C) を貼付けた。

5.4.2 解析モデル

晶析装置の解析モデルを図 5.8 に示す。安全側の仮定として、装置の長さを無限長とした 1 次元円筒モデルを設定した。最も厳しい状態として円環の内側に硝酸プルトニウム・五水和物 ($PuNH$) が付着した体系を想定し（ここでは径方向の分布は考慮していない）、その厚さを x cm と表した。なお、表 5.1 に記したように、Pu 同位体組成は $^{239}Pu:^{240}Pu=80:20$ とした。外側は 30cm 厚さの水を設定した。計算に用いた原子個数密度を表 5.6 にまとめた（前節及び参考文献 14) 及び 30) 参照）。

5.4.3 計算コード及び核データ

計算コードとしては、連続エネルギーモンテカルロ法中性子輸送計算コード MCNP-4A³¹⁾ と最新の評価済核データ JENDL-3.2³²⁾ を用いた。この組合せで、これまで原研の定常臨界実験装置 STACY を用いたウラン溶液燃料体系の臨界解析が行われた。

5.4.4 検証計算

上記の計算コード及び核データの組合せを用いて、水反射体が付いたプルトニウム燃料体系を解析して、その妥当性を確認した。対象は、最近進められている国際臨界安全ベンチマーク実験評価プロジェクト (ICSBEP)³³⁾ の成果の中から以下の 2 つの体系を選択した。(1) プルトニウム球を 25cm 厚さの水で巻き付けた体系で、ICSBEP の中では水反射体が付いたプルトニウム金属燃料体系として唯一のもの³⁴⁾、(2) 水反射体が付いた硝酸プルトニウム水溶液体系で、プルトニウム濃度が 412gPu/L と高濃度のもの³⁵⁾（寸法の違う 2 件）である。検証計算の計算条件及び結果を表 5.7 及び表 5.8 に示す。いずれの中性子増倍率計算結果も 1 より小さいが、誤差は 1% 以内なので、問題にするほどではないと考える。

5.4.5 核的制限値の計算

中性子増倍率 $k_{eff}=0.95$ となる $PuNH$ の厚さを求め、これを核的制限値とする。 $PuNH$ の厚さ x と中性子増倍率 k_{eff} の関係は、計算値を x の 2 次曲線に当てはめて求めた。

計算には MCNP-4A と JENDL-3.2 の組合せを用いた。但し、世代当たりの中性子数を 1500、有効世代数を 300、無視した初期世代数を 10 とした。計算結果を表 5.9 及び図 5.9 に示す。これらの図表に示すように、 $k_{\text{eff}} \leq 0.95$ に対応する PuNH の厚さが $x = 10.6$ cm と求められた。この核的制限値であれば晶析に必要なホールドアップが確保でき、製作誤差や安全裕度を考慮しても晶析装置が成立する。

表 5.6 晶析装置臨界安全解析モデルの原子個数密度

物質	密度 [g/cm ³]	核種	原子個数密度 [10 ²⁴ /cm ³]
炭化ホウ素 (B ₄ C)	2.51	¹⁰ B	2.1663×10^{-2}
		¹¹ B	8.7746×10^{-2}
		C	2.7359×10^{-2}
ステンレス鋼 (SUS-304)	7.91	C	3.1729×10^{-4}
		Si	1.6962×10^{-3}
		Cr	1.7408×10^{-2}
		Mn	1.7343×10^{-3}
		Fe	5.7872×10^{-2}
		Ni	8.1116×10^{-3}
硝酸プルトニウム・五水和物 Pu(NO ₃) ₄ •5H ₂ O	2.90	H	3.0261×10^{-2}
		¹⁴ N	1.2060×10^{-2}
		¹⁵ N	1.2104×10^{-2}
		O	5.1443×10^{-2}
		²³⁹ Pu	2.4229×10^{-3}
		²⁴⁰ Pu	6.0319×10^{-4}
水	0.998	O	3.3368×10^{-2}
		H	6.6736×10^{-2}

表 5.7 水反射体付きのプルトニウム金属球体系に対する検証計算

世代当たりの発生中性子数	10,000
有効世代数	100
無視した初期世代数	10
中性子増倍率計算結果	0.999048 ± 0.00076

表 5.8 水反射体付きの硝酸プルトニウム溶液平板形状体系に対する検証計算

ケース番号	Case 39	Case 44
世代当たりの発生中性子数	1,000	1,000
有効世代数	500	500
無視した初期世代数	30	30
中性子増倍率計算結果	0.99615 ± 0.00127	0.99162 ± 0.00126

表 5.9 晶析装置モデルにおける PuNH の厚さ x と中性子増倍率 k_{eff} の関係

PuNH の厚さ x [cm]	中性子増倍率 k_{eff}
9.5	0.9074 ± 0.0012
10.0	0.9282 ± 0.0012
10.5	0.9447 ± 0.0011
11.0	0.9638 ± 0.0012
11.5	0.9770 ± 0.0012
∞	1.4890 ± 0.0010

関係式 : $k_{\text{eff}} = 0.18386 + 0.11017x - 0.00358x^2$

$k_{\text{eff}} = 0.95$ に対応する PuNH の厚さ $x = 10.62$ cm

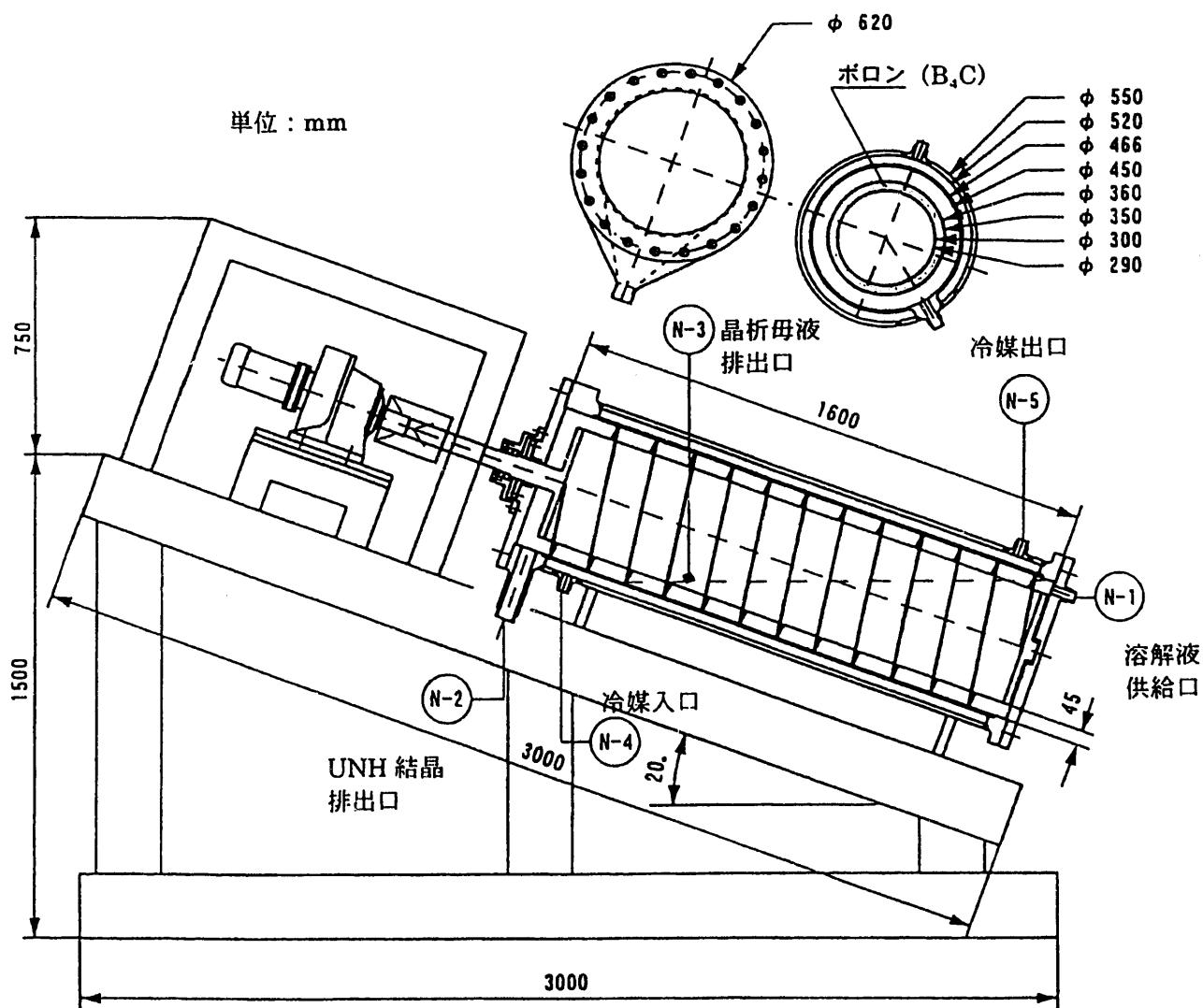


図 5.7 晶析装置の機器概念図

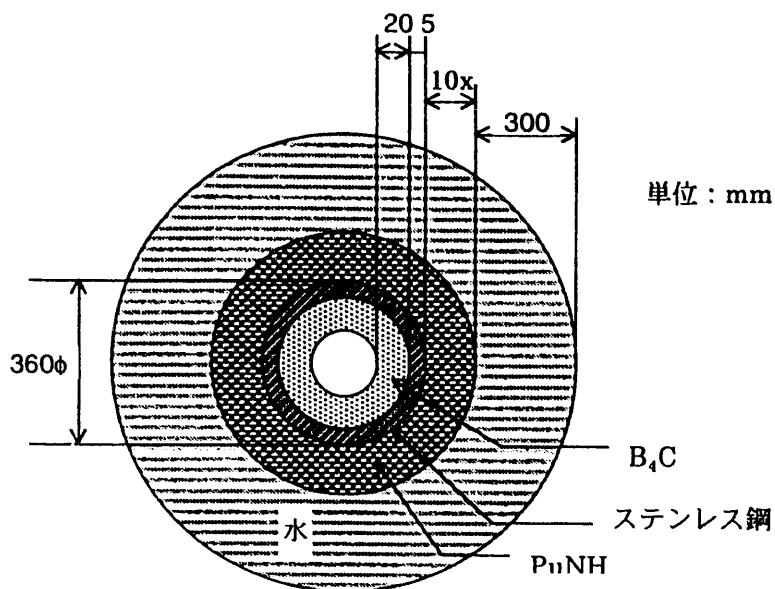
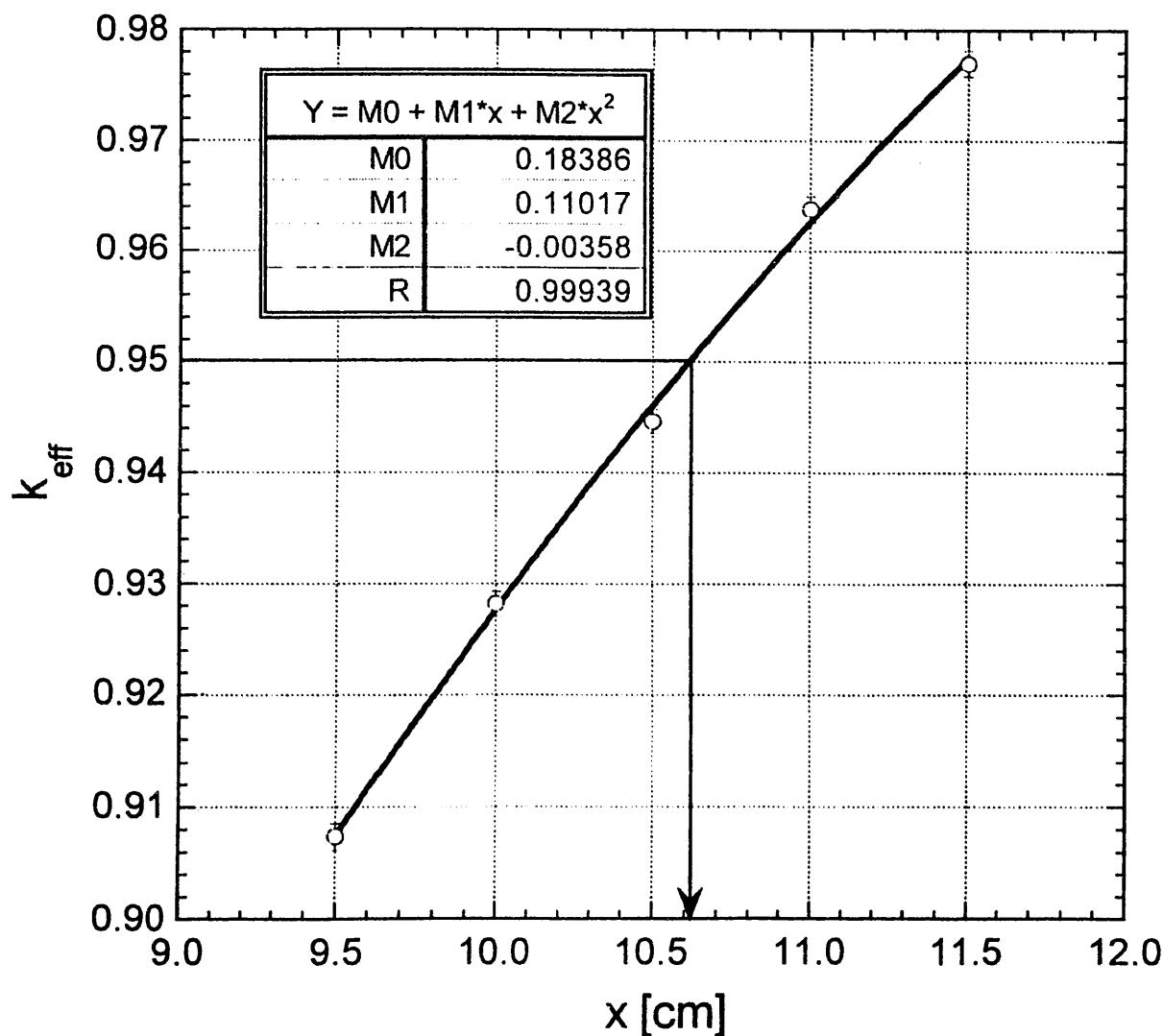


図 5.8 晶析装置の臨界解析モデル

図 5.9 晶析装置モデルにおける $PuNH$ の厚さ x と中性子増倍率 k_{eff} の関係

6. おわりに

FBR 再処理という長期的な課題の中で、湿式再処理法における選択肢の中の1つとして晶析法が検討されている。本研究は、安全性を開発の初期段階から考慮して、施設規模や工学上の制約を把握することを目的として、原研とサイクル機構（旧・動燃）の共同研究として実施した。

晶析法は、溶解度が分子の種類及び温度により異なることを利用した分離法で、工学分野では広く用いられている。本研究で対象としたのは、FBR 再処理における溶解液からのウランの分離工程である。はじめに、もんじゅを参考にして工程概念及び評価条件を設定し、これに対して安全上の問題として、臨界、遮蔽、火災爆発及び閉じ込め機能喪失にいたるシナリオについて考えた。さらに、これとは逆に、いくつかの異常事象を想定し、これを起因とした異常事象の進展についても検討した。

本研究では、この中で臨界安全の問題に限定し、まず晶析法を採用した再処理工程全体の臨界安全管理の範囲とその方法についてまとめた。

晶析工程の中心になる晶析装置の安全評価については、特別に検討を加えた。初めに、臨界安全評価モデルを設定した。関連のデータを国内外の臨界安全ハンドブックから選び出すとともに、特に基本となる硝酸プルトニウムについては結晶学データに基づき推算した。さらに、キルン式の晶析装置を設定し、硝酸プルトニウム析出という最も厳しい状態に基づくモデルに対して臨界安全解析を実施し、溶解液の入る円環厚さの核的制限値を 10.6 cm と求めた。この核的制限値であれば、晶析に必要なホールドアップが確保でき、製作誤差や安全裕度を考慮しても晶析装置が成立する。

この結果は、硝酸プルトニウム析出でも臨界にならないとする保守的な設定による。今後、プルトニウムの溶解度についての試験を実施して、その挙動を明らかにすることにより、プルトニウム析出の可能性を限定しうると期待している。また、反応度上昇を引き起こす可能性がある装置を限定できるのであれば、プルトニウムの存在あるいは反応度を直接的・間接的に測定する監視系の設置も考えうる。簡易で、しかも信頼性が高い反応度測定方法についての開発が望まれる。

今回の研究では臨界安全の問題を重点的に取り上げた。本研究は予備的なものであり、晶析工程の設計がより具体的になった段階でさらに見直す必要がある。また、核燃料施設に特有の遮蔽や放射性物質の閉じ込めといった問題、さらには一般的な工業分野と共に粉塵爆発などの安全上の問題も今後考慮していく必要がある。

参考文献

- 1) 山名ら、「先進的 MOX 燃料リサイクル技術開発」、エネルギーレビュー、第 16 卷 第 4 号、pp.12-17、(1996).
- 2) 豊倉ら、「晶析 I, II Joice Design Manual Series」、(1983).
- 3) 豊倉ら、「化学装置設計・操作シリーズ 改訂晶析」化学工業社、(1988).
- 4) 「改訂増補 工業操作シリーズ No.14 晶析操作」化学工業社、(1974).
- 5) 河西ら、「プロセス設計シリーズ 5 晶析・分離・乾燥を中心とする設計」、化学工学協会編、丸善、(1975).
- 6) 河上ら、「晶析装置」、化学工場、第 25 卷 第 9 号、P.29-33、(1981).
- 7) R. G. Hart et al, "Crystallization Temperatures of Uranyl Nitrate - Nitric Acid Solutions", *Progress in Nucl. Energy III*, Vol.2, (1958).
- 8) E. Henrich et al, "A new concept for product refining in the Purex process", *Atomkernenergie-Kerntechnik*, Vol.48, No.4, (1986).
- 9) 大内ら、「硝酸プルトニウム・ウラニル溶液の晶析試験」、動燃技報、No.79、(1991).
- 10) E. Henrich et al, "Combination of TBP Extraction and Nitrate Crystallization for Spent Nuclear Fuel Reprocessing", *I. Chem. E. Symposium Series* No.103, (1988).
- 11) 倉嶋ら、「再処理工程における晶析精製法の検討(IV)」、(社) 日本原子力学会 1992 年秋の大会要旨集、G53、(1992).
- 12) 動力炉・核燃料開発事業団、「リサイクル機器試験施設 (RETF) の設置後における再処理施設からの放出放射能量について」、PNC TN8410 92-237, (1992).
- 13) S. Sakurai and S. Tachimori, "Density Equation of Aqueous Solution Containing Plutonium(IV), Uranium(VI) and Nitric Acid", *J. Nucl. Sci. Technol.*, 33, 187, (1996).
- 14) 科学技術庁原子力安全局核燃料規制課編、「臨界安全ハンドブック」、にっかん書房 (1988).
- 15) F.G. Welfare and J.T. Taylor, "Application of Calculated k-eff's," *Proc. Int. Top. Mtg. on Safety Margins in Criticality Safety*, November 26-30, 1989, San Francisco, pp.37-42 (1989).
- 16) S.R. Bierman et al, "Criticality Experiments with Subcritical Clusters of Low Enriched UO₂ Rods in Water with Uranium or Lead Reflecting Walls," *Nucl. Technol.*, 47, 51 (1980).
- 17) B.M. Durst, "Effect of Heavy Metal Reflectors on the Criticality of Water-Flooded Fuel Rod Arrays," *Trans. Am. Nucl. Soc.*, 35, 283-285 (1980).
- 18) Y. Komuro, H. Tsunoda and J. Sakurai, "Neutron Cross Section Data in Multigroup Constant Library MGCL for Criticality Safety Analysis," *JAERI-M87-092* (1987).
- 19) 大村博志・笠羽道博・片倉純一、「廃棄物の臨界に及ぼす超ウラン元素の影響」、臨界安全短期研究会報告書、*KURRI-TR-257*, 68-72, (1984).
- 20) 山本俊弘・塩田雅之、「溶解工程の臨界安全解析における安全裕度の検討」、*JAERI-M93-218* (1993).
- 21) 奥野浩ら、「臨界安全ハンドブック改訂準備資料」、*JAERI-Tech95-048* (1995).

- 22) W. Heinicke, H. Krug, W. Thomas, W. Weber and B. Gmal, "Handbuch zur Kritikalität," Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) mbH (1985).
- 23) H. Okuno and T. Sakai, "Non-Uniformity Effect on Reactivity of Fuel in Slurry," *Proc.of Intl. Conf. on the Physics of Reactors, PHYSOR 96*, L-74 - L-82 (1996).
- 24) "Guide de Ciricité," CEA-R-3114 (1967).
- 25) N.L. Pruvost and H.C. Paxton, "Nuclear Criticality Safety Guide," *LA-12808, UC-714* (1996).
- 26) L. Maubert, "Standard du Criticité - Valeurs Minimales Critique," CEA-N-2051 (1978).
- 27) E. Staritzky, *Anal. Chem.*, **28**, 2021-2 (1956).
- 28) R. J. deSando, "Mound Laboratory Progress Report for Chemistry, October to December 1966", MLM-1399, p. 48(1966): through "The Chemistry of the Actinide Elements, 2nd edition", (Chapman and Hall, London, New York, 1986), Ed. by J. J. Katz, G. T. Seaborg, L. R. Moss, vol. 1, p. 763.
- 29) "The Chemistry of the Actinide Elements, 2nd edition", (Chapman and Hall, London, New York, 1986), Ed. by J. J. Katz, G. T. Seaborg, and L. R. Moss, vol. 1, p. 763.
- 30) 須山賢也ら、「断面積セット作成プログラム MAIL3.1」、*JAERI-Data/Code 98-004* (1998).
- 31) J.F.Briesmeister, "MCNP-Ageneral Monte Carlo N-Particle Transport Code Version 4A", LA-12625-M, (1993)
- 32) T. Nakagawa, K. Shibata, S. Chiba, T. Fukahori, Y. Nakajima, Y. Kikuchi, T. Kawano, Y. Kanda, T. Ohsawa, H. Matsunobu, M. Kawai, A. Zukeran, T. Watanabe, S. Igarasi, K. Kosako, T. Asami, " Japanese Evaluated Nuclear Data Library version 3 revision-2: JENDL-3.2," *J. Nucl. Sci. Technol.*, **32**, 1259-1271 (1995).
- 33) J.B. Briggs, V.F. Dean, L. Scott, "The International Criticality Safety Benchmark Evaluation Project," *Proc. of the 5th Int. Conf. on Nuclear Criticality Safety*, Albuquerque, NM, Sept. 17 - 21, 1995, Vol.1, 1A•28 (1995).
- 34) R.W. Brewer, "Benchmark Critical Experiment of a Water Reflected Alpha-Phase Plutonium Sphere," *NEA/NSC/DOC(95)03/I*, Volume I, PU-MET-FAST-011 (September 1998 Edition).
- 35) N.H. Kuehn, "Water-Reflected Slabs of Plutonium Nitrate Solutions," *NEA/NSC/DOC(95)03/I*, Volume I, PU-SOL-THERM-025 (September 1998 Edition).