

高速増殖炉を用いたゼロリリースサイクルへの検討について (報告書)

1997年11月

動力炉・核燃料開発事業団

© 動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation) 1997

資料の提供を受ける権利

資料の提供を受ける権利

資料の提供を受ける権利

この資料は、原子力発電所の安全対策に関する資料の提供に関する資料の提供を受ける権利を有する者に対して提供されるものである。この資料は、原子力発電所の安全対策に関する資料の提供を受ける権利を有する者に対して提供されるものである。この資料は、原子力発電所の安全対策に関する資料の提供を受ける権利を有する者に対して提供されるものである。

資料の提供を受ける権利

この資料は、原子力発電所の安全対策に関する資料の提供に関する資料の提供を受ける権利を有する者に対して提供されるものである。この資料は、原子力発電所の安全対策に関する資料の提供を受ける権利を有する者に対して提供されるものである。この資料は、原子力発電所の安全対策に関する資料の提供を受ける権利を有する者に対して提供されるものである。

この資料は、原子力発電所の安全対策に関する資料の提供に関する資料の提供を受ける権利を有する者に対して提供されるものである。この資料は、原子力発電所の安全対策に関する資料の提供を受ける権利を有する者に対して提供されるものである。この資料は、原子力発電所の安全対策に関する資料の提供を受ける権利を有する者に対して提供されるものである。

この資料は、原子力発電所の安全対策に関する資料の提供に関する資料の提供を受ける権利を有する者に対して提供されるものである。この資料は、原子力発電所の安全対策に関する資料の提供を受ける権利を有する者に対して提供されるものである。この資料は、原子力発電所の安全対策に関する資料の提供を受ける権利を有する者に対して提供されるものである。

複製またはこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒107-8445 東京都港区赤坂1-9-13
動力炉・核燃料開発事業団
 技術協力部 技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :**Technical Evaluation and Patent Office, Technology Management Division, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 9-13, 1-chome, Akasaka, Minato-ku, Tokyo 107-8445, Japan**

© **動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation) 1997**

高速増殖炉を用いたゼロリリースサイクルの検討について

報告書要旨

核燃料サイクルに関する勉強会
タスクフォース

1 タスクフォースの活動経緯

核燃料サイクルの将来の理想像の創出の検討を主題とする「核燃料サイクルに関する勉強会」に対し、定量的基礎データの提供を行うことを主たる目的として、平成9年2月、本社の核燃料サイクル技術開発部内にタスクフォースが設置された。東海事業所および大洗工学センターからのメンバーにより検討を重ねた結果として本書をまとめるに至った。

2 検討の概要

(1)検討ベース

動燃が実施してきている技術体系に立脚した検討を基本とした。具体的にはMOX燃料 (UO_2 及び PuO_2 の混合酸化物、以下同じ) およびPUREX法再処理を基本とするFBRサイクルにおいて、レーザ法による同位体分離や電子線加速器によるFP消滅等のいわゆるフロンティア技術の効果も期待した。MA (Np, Am, Cm) は全量リサイクルすることを目指す。これはすなわち動燃がこれまで述べてきた、いわゆるMAリサイクルの概念に相当する。リサイクルを対象とするFPは毒性への寄与が大きな核種とした。具体的には各年代において0.1%以上の寄与を示す11元素12核種 (^{14}C , ^{79}Se , ^{90}Sr , ^{93}Zr , ^{99}Tc , ^{107}Pd , ^{113m}Cd , ^{126}Sn , ^{129}I , ^{135}Cs , ^{137}Cs , ^{151}Sm) とした。

(2)前提条件

FBRは増殖性のみならず十分な安全性の確保できる設計を有するものとした。また、リサイクル活動における経済性や系外への放射性物質のリーク量等を考慮し、サイクルは合理的な範囲で短くすることを念頭においた。また定量評価においては1基のFBRでリサイクルが成立する「閉じた系」を前提とした。ただし、Pu増殖に見合うだけのウランの供給は必要である。

(3)達成目標

一つの閉じた系から発生するMAおよびFP全体の有する毒性がその系の運転に投入される天然ウランが持つ毒性のベースまで低減するのに要する時間が最短となるリサイクルシナリオの構築を目指す。そしてシナリオ成立に必要な要素技術の成実見通しの明確化を図ることとした。

(4)検討成果

①炉へのMAおよびFPの再装荷量の検討

より高い安全性を有する再臨界排除炉心(後述)において、MAおよびFPの再装荷限度量として以下の知見を得た。

- (a)MAはMOXに添加することで全量リサイクル可能である。
- (b)反応度の観点から、炉再装荷FP量には限界があり、炉心部へは5v%が限界である。またブランケット部は70v% (FP) — 30v% (減速材) と設定したが、最適化には至っていない。
- (c)FPのリサイクル形態は次の様に決定した。

^{90}Sr 等の中性子吸収断面積が小さくかつ短半減期の核種は炉に再装荷しても消滅効果は小さく、自然崩壊による毒性低減化と大差ないものの、このような毒性の支配的核種を炉内に保管管理できると言う事実を示せばPA上の効果は大きなものがある。

高速中性子に対する吸収断面積が熱中性子に対する吸収断面積より大きな核種は炉心部分に、逆の場合はブランケット部分に装荷することとした。

- (d)その結果、全12核種のリサイクルは不可能であり、 ^{126}Sn の平衡存在量はブランケット部装荷量(70v%)を上回ることになる。

また ^{14}C については中性子吸収断面積が不詳(ほとんどゼロ?)のため平衡量が把握できなかった。

②リサイクルシナリオの絞り込み

(a)MAは再処理で元素分離後、MOXとともにFBRにリサイクルする。

(b)FPの対象11元素についてはそれぞれ元素分離し、C、Sn、Cdについては元素状態で工学保管する。その他については対象9核種にまで同位体分離し、炉にリサイクルするものとする。

③毒性低減効果

毒性低減効果を計算により求めた。その結果、MAおよびFPの対象11元素(12核種)全量がリサイクル可能であれば約100年程度でその系に投入する天然ウランペースまで毒性は低減するが、上記シナリオに基づくケースでは長半減期の ^{14}C および ^{126}Sn の影響により毒性が天然ウランペースを下回るには数万年要することが明らかとなった。

④課題

再装荷できない長半減期核種への対策として専焼炉の導入や加速器の利用の可能性がある。後者については単色線の発生等、その技術確立までには長期間を要するものとする。

(5)概念成立に必要な技術評価

①再臨界排除炉心概念

集合体規模の炉心溶融時の対策として内部ダクトをもつ超大型集合体(六角形の対面距離約40cmで炉心を構成するFAIDUSと言う概念が提案されている。仮に溶融が発生しても発生集合体ごと下部プレナムへ燃料を排出できる構造でこれにより再臨界が排除される。

②再処理(元素分離)技術の高度化

大型炉心燃料の再処理については前処理工程部分がポイントとなるが、RETF技術の延長で対応可能と考える。

元素分離技術としてMA分離は既に見通しを得ている。一方、FPの分離については、現時点で考えられるスキームを提示した。原理的には可能であるが、コストアップ、回収率の改善等の課題がある。

③同位体分離

同位体分離技術は必須のものである。原理的には可能が示されているものの、実用化(大量処理)には技術のブレークスルーが必要となる。

④再装荷形態への加工

MA入りMOXの製造技術についてはAGFの整備状況を踏まえ、見通せる技術である。FPの炉へのリサイクルに関しては、最適形態(安定な化合物、効率的燃焼のための減速材との混合形態)について評価が必要となる。ただし、MA入りMOX用の遠隔加工技術が応用できるものとする。

(6)経済性見直し

推薦シナリオにおける経済性の検討において考慮すべき課題を以下にまとめた。

①元素分離高度化にともなうコスト増は否めない。

②同位体分離に関する経済性については現時点では全く見通しが立たない。

③再装荷形態への燃料加工においてはFPターゲットの製造工程の付加と言うアップ要因を考慮する必要がある。

④炉建設費については燃料集合体の構造が変わるものの、建設費への影響はないものと判断している。

⑤ガラス固化体の量の削減等による経済性のゲインが期待できるが、サイクル費全体に占める処分費の割合は微々たるものである。

(7)開発シナリオの提案

時間軸には第一の目標としてFBRによるPuリサイクルを完成させる。ついで先進的核燃料リサイクル技術の一つの姿であるFBRによるアクチノイドリサイクルを経て、クリティカルパスとなる同位体分離技術を克服することによりゼロリリース概念を実証する。同位体分離への負荷を低減する観点から広くシナリオの検討も行う。シナリオ検討においては「炉-サイクル-廃棄物」が一体となり、炉-サイクル固有の特性が引き出せるように境界条件の最適化を図っていかねばならない。

目次

はじめに (タスクフォースの設置について) 1

第1章 積極的解決策 2

1.1 核種の分別および消滅への道筋 2

1.1.1 FBRでの消滅の可能性評価 2

1.2 消滅対象核種の選定 4

1.3 炉心概念及び消滅特性の検討 7

1.3.1 目標 7

1.3.2 検討の方向性 7

1.3.3 FBRによるMA及びFP消滅特性評価 7

1.3.4 再臨界排除FBRの炉心概念 8

1.3.5 ゼロリリースサイクルにおける高速炉炉心概念の構築 10

1.3.6 高速炉でMAリサイクルの影響評価 11

1.4 加速器消滅の可能性 35

1.4.1 加速器の効率 35

1.4.2 光発生効率 35

1.4.3 ターゲット 35

1.5 加速器導入シナリオ 38

1.6 有用核種回収再利用計画 40

第2章 マイナス要因の極小化 45

2.1 分離(元素、同位体)/加工技術 45

2.1.1 分離技術評価(元素) 45

2.1.2 同位体分離技術評価 52

2.1.3 加工技術評価 52

2.2 廃棄物実績調査 94

2.3 リサイクルにおけるロス率評価 96

2.4 保管・管理のありかた検討 97

2.5 放出のための据切りレベル検討 98

第3章 サイクルの提案及び評価 99

3.1 多重リサイクルの考え方 99

3.1.1 基礎式 99

3.2 マスバランス 101

第4章 現行シナリオとの比較 105

4.1 エネルギー収支 105

4.1.1 電子線加速器による変換 105

4.2 毒性(ALI)低減効果の評価 108

4.3 経済性の検討 110

4.3.1 MOX/PUREXにおける経済性向上方策 110

4.3.2 ゼロリリースサイクルにおける経済性 110

第5章 開発シナリオの提案 114

おわりに	116
付記	117
参考文献	118
付図代表FP核種の断面積データ	120

はじめに (タスクフォースの設置について)

核燃料サイクルの将来の理想像創出の検討を主題とする「核燃料サイクルに関する勉強会」に対し、定量的基礎データの提供を行うことを主たる目的として、平成9年2月、核燃料サイクル技術開発部内にタスクフォースが設置された。東海事業所および大洗工学センターからのメンバーにより検討を重ねた結果として本書をとりまとめるに至った。

具体的な検討課題は、動燃が実施してきている技術体系に立脚して、エネルギー供給および増殖性能を担保しつつ高レベル廃棄物のゼロリリースを可能とするリサイクル体系の考え方を整理することにある。MOX燃料(UO_2 及び PuO_2 の混合酸化物、以下同じ)およびPUREX法再処理を基本とするLMFBRサイクルにおいて、レーザ法による同位体分離や電子線加速器によるFP消滅等のいわゆるフロンティア技術の効果も期待した。

タスクフォースメンバーは東海事業所および大洗工学センターから関係者を集めた。また、事務局を核燃料サイクル技術開発部および東海事業所技術開発推進部アクチニドリサイクルグループに置いた。

第1章 積極的解決策

1.1 核種の分別および消滅への道筋

1.1.1 FBR での消滅の可能性評価

核分裂によるエネルギー確保において、核分裂生成物（以下、FP）の生成は避けられない。その中でも半減期の長い核種は、いわゆる「核のごみ」特に高レベル放射性廃棄物の発生、蓄積は安全確保技術の追求と共に原子力の影の部分であった。高レベル放射性廃棄物の処理、処分は現在、ガラス固化を中心とした技術開発が進められており、最終的には地中深くに埋設処分されようとしている。

一方、科学的可能性を前面に押し出し、原子力がエネルギーシステムとして十分整合性を有することを検証することは重要であり、ここでは「自ら整合性のある原子力システム」概念の構築に努めることにする。^[1] 廃棄物を処分するかわりに発生しないようにする方策であることから「積極的解決策」と定義する。自ら整合性のある原子力システムとは、原子核の中に潜むエネルギーを最大限に引き出し効率よく使用する一方、有害物質である放射性物質をシステム内に閉じこめ、システム内で消滅することを原則としたもので「調和」を「利用」より高位の理念としたものである。

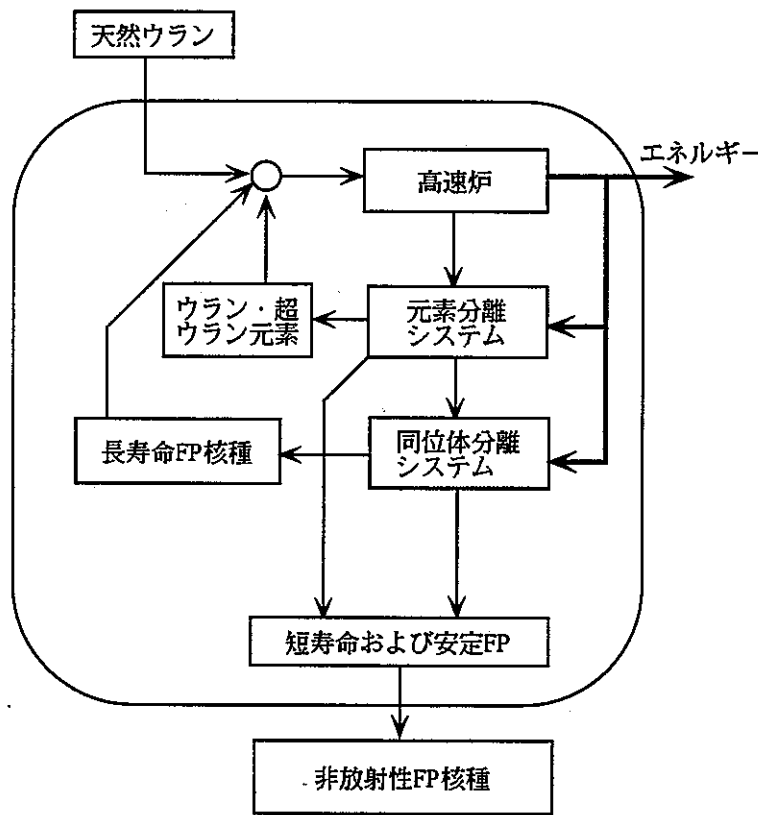


図 1.1.1: 自ら整合性のある原子力システム

現在、原子力の中心である低濃縮ウラン燃料による軽水炉では、天然ウランの僅かしか利用することができない。天然ウランは中性子を吸収してそのまま分裂するか、プルトニウムのような超ウラン元素となり、これが再び核分裂し、エネルギーを放出し、次第に核分裂生成物へと変化していく。核分裂生成物の多くは放射性物質であるが、これも中性子との反応により非放射性元素に変換されていく。従って、ここで検討する「自ら整合性のある原子力システム」とは、天然ウランを最大限に核燃料物質に変換させ、その後核分裂させてエネ

ルギーを確保しつつ、放射性物質を消滅させていこうとするものであり、システム内部に存在している放射能を外部に漏らさないことを目指すものである。このような概念を実現させるためには、天然ウランを有効に活用できる高速炉サイクルを前提に議論すべきである。ここでは、高速炉による天然ウランの転換を基本に超ウラン元素を有効に利用するために必要な再処理を中核としたサイクルを想定とする。

このシステムにおいて、供給を受ける核物質として天然ウランのみを想定し、(サイクルが平衡に達し、燃焼前後で物質諸量に変化を生じなくなった段階を想定、当然、サイクル開始時には外部からプルトニウムなどを必要量が供給される。) 図 1.1.1 に示すように系外に放出するものを非放射性物質のみとすることを旨とする。

1.2 消滅対象核種の選定

ゼロリリース燃料サイクル検討を進めるに当たり、対象とする MA 及び FP 核種を調査した。軽水炉使用済み燃料から取り出される物質は、濃縮度 4.1% のウラン燃料を用いた燃焼度 44000MWD/t の 1GWe 級軽水炉 (PWR) を年間 250 日稼働し、6TWhe の発電量を得た場合に生じる使用済み燃料から取り出される物質は、3 年間冷却後では以下ようになる。

U(0.9%²³⁵U) 16.2t

Pu 185Kg

MA 19.3Kg (Np:11.3Kg, Am:7.2Kg, Cm:0.9Kg)

FP 780Kg (¹³⁵⁺¹³⁷Cs:35Kg, ⁹⁹Tc:17Kg, ⁹³Zr:16Kg, ¹⁰⁷Pd:5Kg, ¹²⁹I:4Kg,
⁹⁰Sr:12Kg, ⁷⁹Se:0.13Kg, ¹²⁶Sn:0.62Kg, etc)

(炉心の HMinventry 72.88ton)

また、高速炉での消滅物質のリサイクルを考えた場合、高速炉での主な FP 生成量を調査しておく必要がある。その結果を表 1.2.1 に示す。想定した高速炉の仕様を表 1.2.2 に示す。

これを基にして、第 1 ステップの検討における消滅対象核種を以下の観点から選定した。MA に関しては、半減期が長く、かつ生成量が多い、²³⁷Np (半減期:214 万年)、²⁴¹Am (半減期:432 年)、²⁴³Am (半減期:7380 年) を選定した。²⁴⁴Cm (半減期:18.1 年) については、Am との分離が困難なため、Am と同様に扱う必要があるが、半減期が短いため、貯蔵して Pu に変換してから利用するというオプションも考えられるが、今回は対象核種として含めることとした。

FP 核種については、経口摂取による放射性毒性指標が長期期間に渡り、全毒性の 99.9% を占める核種を対象とする。¹ ただし、希ガスである Kr, Xe は経口毒性の考え方が適用されず、かつ再加工の困難さから除外した。また、娘核種についても短半減期であり、かつ親核種を消滅させることで同時に消滅しうるので除外した。その結果、(⁷⁹Se, ⁹⁰Sr, ⁹³Zr, ⁹⁹Tc, ¹⁰⁷Pd, ^{113m}Cd, ¹²⁶Sn, ¹²⁹I, ¹³⁵⁺¹³⁷Cs, ¹⁵¹Sm) を選定した。さらに、酸化物中の酸素同位体、及び不純物炭素、窒素の放射化で生じる ¹⁴C も対象とした。この場合、同位体分離がなされることを条件とした。

想定した高速炉より 1GWe の電力を得るときに生じる FP の放射性毒性の経年変化を図 1.2.1(1) に示す。供給天然ウランの毒性に関しては、1GWe の電力を発生するために炉内で消費されるウランの減少分を補う量を基とした。サイクルが平衡状態に達した場合でアクチニドの全量をサイクルしたとすれば、この単位発電を得るために入力した核物質 (天然ウラン) の毒性と放出される毒性の出力 (FP) を比較したものとなる。下図 (2) に総毒性と核種ごとの毒性の比を示す。経過年数による毒性の寄与核種がわかる。供給天然ウランも総毒性との比で示した。付図に JENDL-3.2 ベースの主要な FP 核種の断面積を示す。^[34] また、全 FP 核種平均の吸収断面積も合わせて示す。

¹経口毒性による放射性毒性は、ICRP Publication 30 に示された年摂取限度 (ALI = Annual Limits of Intake) で放射エネルギーを除いたもので、その核種に対する ALI の倍数で示される。

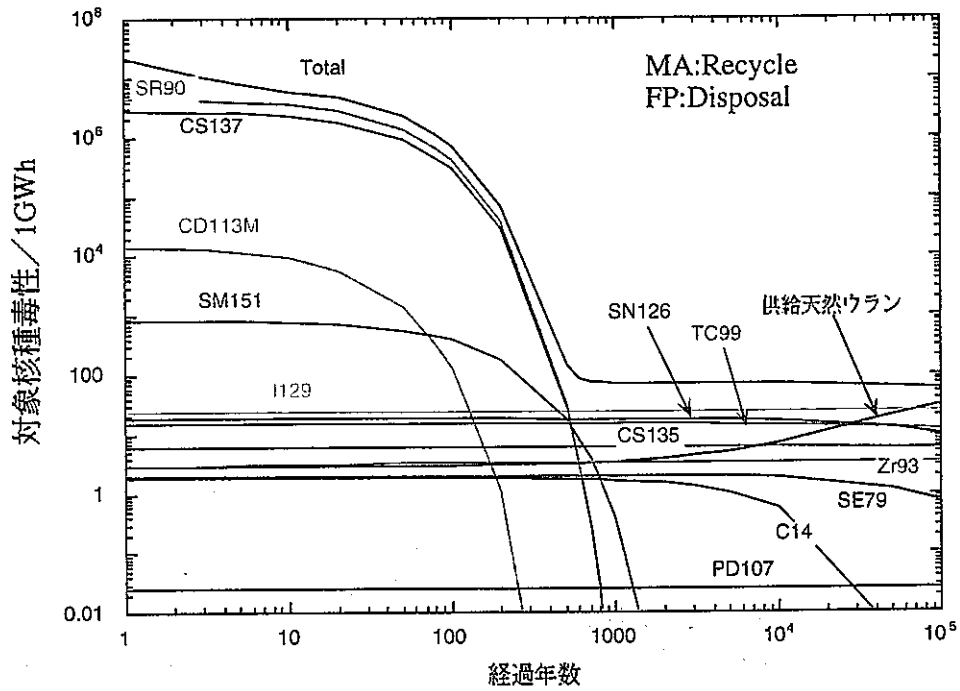
表 1.2.1: FBR 炉心での FP 生成量

核種	質量数	総生成量 g/GWh	FP 合計重量比 (%)	対象 FP 重量比 (%)
SE	79	0.0160	0.02	0.10
SR	90	0.8354	0.80	5.43
ZR	93	1.5876	1.52	10.32
TC	99	2.4327	2.32	15.82
PD	107	1.3522	1.29	8.79
CD	113	0.0016	0.00	0.01
SN	126	0.1635	0.16	1.06
I	129	0.7802	0.75	5.07
CS	135	4.2461	4.06	27.61
CS	137	3.5358	3.38	22.99
SM	151	0.4257	0.41	2.77

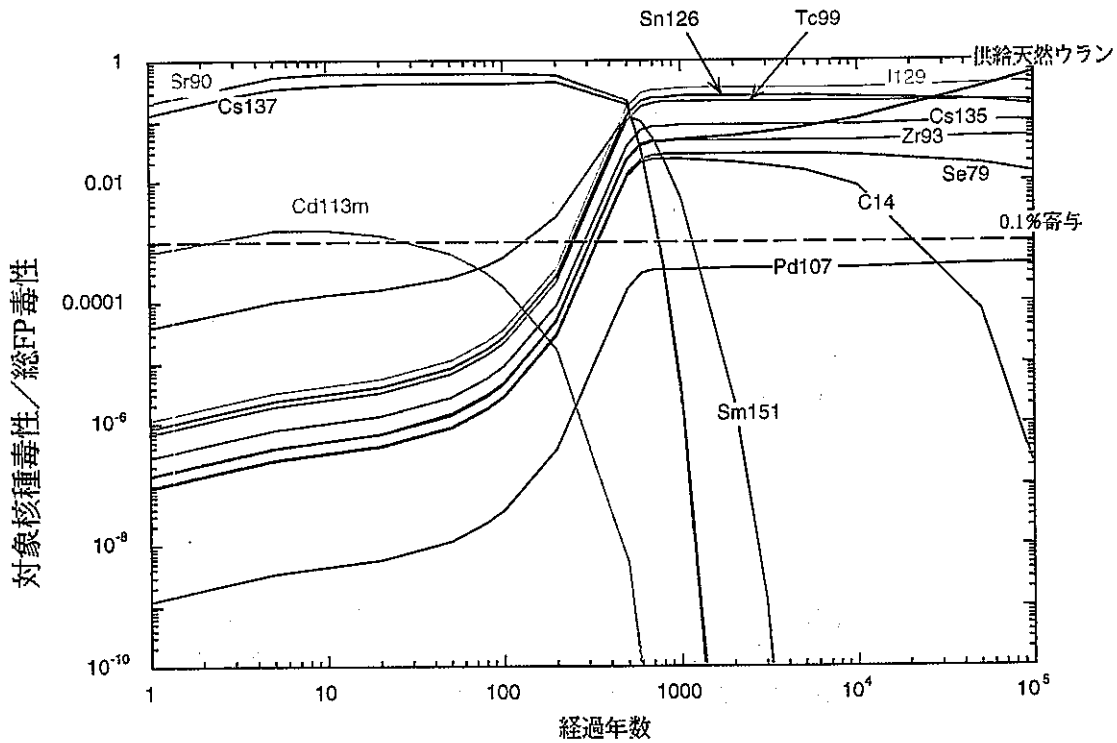
表 1.2.2: 想定した FBR

電気出力	1	GWe
増殖比	約 1.05	
熱効率	0.392	
熱出力	2548	GW

	コア燃料	軸ブランケット	径ブランケット
熱出力 GW	2.38	0.14	0.03
取替バッチ数	3	3	4
燃焼日数	1095.75 日	1095.75 日	1461 日
燃料仕様			
HM 量 (ton)	29.0	21.6	8.0
組成	平均 Pu 富化度 22.7%, U 濃縮度 0.2%	U 濃縮度 0.2%	U 濃縮度 0.2%
O/M	U=2 Pu,Np,Am=1.98	2	2
窒素濃度 ppm/HM 重量	100	100	100
炭素濃度 ppm/HM 重量	100	100	100
平均燃焼度 MWd/t	90000	7022	5140
比出力 MW/t	82.1	6.4	3.5
中性子束 n/cm ² sec	2.94e15	1.16e15	6.42e14



(1)対象核種の放射性毒性



(2)対象核種の放射性毒性寄与

図 1.2.1: FP 核種の毒性と寄与率

1.3 炉心概念及び消滅特性の検討

ゼロリリースサイクル検討の一環として、FBRにおける放射性廃棄物(MA、FP)の消滅特性評価を行った。また、安全性向上とMA及びFP消滅を達成する炉心概念を検討した。

1.3.1 目標

炉心概念検討における目標を以下のように設定した。

- (1) 燃料増殖： $BR \geq 1$
- (2) 放射性廃棄物消滅：HIが天然U鉱石並(MA,LLFP消滅)
- (3) 安全性確保：
 - (a) ATWSへの対応
 - (b) 再臨界排除等

1.3.2 検討の方向性

検討は、まず、MA及びFP消滅基本特性を、通常のFBRによるパラメータサーベイ(パラメータ：FP添加率、FPピン装荷位置(炉心、ブランケット)、MA添加の有無、等)より把握した。次に、この結果を基にして、再臨界排除FBR(内部ダクト付き大型燃料集合体使用)のMA及びFP消滅可能性及び安全に関する炉心特性を評価した。また、MA消滅の場合、1回の装荷で十分な消滅率が達成する事が困難なため、MAをリサイクルする必要がある。高速炉でMAリサイクルが炉心特性の観点から可能かどうかを評価した。

1.3.3 FBRによるMA及びFP消滅特性評価

1.3.3.1 解析条件

高速炉炉心への装荷法としては、以下のものが考えられる。

- (1) MA(N_p , A_m , C_m)を炉心に均質装荷
- (2) MA(N_p , A_m , C_m)入り集合体を炉心に非均質装荷(少数体)
- (3) N_p を炉心に均質装荷、 A_m と(C_m)をブランケットに装荷
- (4) FPを炉心に均質装荷
- (5) FPをブランケットに装荷(減速材付き集合体)
- (6) MA及びFPを炉心に均質装荷
- (7) MAを炉心に均質装荷、FPをブランケットに装荷(減速材付き集合体)
- (8) N_p を炉心に均質装荷、 A_m 、(C_m)及びFPをブランケットに装荷(減速材付き集合体)
- (9) N_p 及び一部FPを炉心に均質装荷、 A_m 、(C_m)及びFPをブランケットに装荷(減速材付き集合体)

今回は、このうち代表的な装荷方法として、(1),(4),(5),(6),(7)を選定した。評価項目は、炉心特性(燃焼反応度、反応度係数等)、MA及びFPのマスバランスとした。また、今回の解析では、FPは12核種の他に、全核種を対象とした場合も解析した。MA及びFPをブランケット領域に装荷する場合は、母材として不活性物質を使用した。また、ブランケット領域でのFP消滅においては、消滅効率を上げるために減速材物質を使用した。図1.3.1に1GWeレファレンス炉心の構成を、図1.3.2にブランケット領域の装荷するFP集合体の構成を示す。

1.3.3.2 解析結果

表1.3.1~1.3.3にFP装荷炉心の炉心特性を、表1.3.4~1.3.7にFP消滅特性の解析結果を示す。また、図1.3.3~1.3.6にFP添加率と1GWe FBRの炉心特性の関係を、図1.3.7~1.3.8にFP添加率と1GWe FBRの消滅量の関係を示す。表1.3.8にはFP装荷位置(中性子スペクトル変化)による消滅特性の比較を示す。

今回の解析より以下のことが明らかになった。²

(1) 対象 FP が全核種の場合

- (a) 燃料中に FP を添加した場合、FP 添加率 30%で、燃焼反応度が約 5%、増殖比が約 1.02 となる。FP の消滅量は約 144Kg となる。炉心特性の観点からは、FP 添加率 30%以下とする必要がある。

(2) 対象 FP が 12 核種の場合

- (a) 燃料中に FP を添加した場合、FP 添加率 30%で、燃焼反応度が約 5%、増殖比が約 1.0 となる。FP の消滅量は約 81Kg となる。炉心特性の観点からは、FP 添加率 30%以下とする必要がある。燃料中に全 FP 核種を添加した場合と 12 核種を分離して添加した場合で、同一添加率で有れば、炉心特性上大きな差はない。FP 消滅量は、全 FP 核種を添加した場合の方が大きい。
- (b) 燃料中に MA(5%) と FP を添加した場合、FP 添加率 30%で、燃焼反応度が約 3.6%、増殖比が約 0.98 となる。FP の消滅量は約 77Kg となる。MA の消滅量は 53Kg となる。炉心特性の観点からは、FP 添加率 30%まで可能である。
- (c) ブランケットに減速材 ($Al_2O_3, ZrH_{1.7}$) を使用して FP を添加した場合、FP 添加率 30%で、燃焼反応度が 1.3~1.5%、増殖比が約 1.17 となる。FP の消滅量は 30~39Kg となる。炉心特性上はブランケット領域では、FP 添加率を大幅に上げることが可能である。また、減速材を使用しているため、 ^{90}Sr および ^{137}Cs の消滅率は燃料中に添加した場合より大きくなっている。
- (d) 燃料中に MA(5%) を、ブランケットに減速材 ($ZrH_{1.7}$) を使用して FP を添加した場合、FP 添加率 30%で、燃焼反応度がほぼゼロ%、増殖比が約 1.14 となる。FP の消滅量は約 30Kg となる。MA の消滅量は 86Kg となる。炉心特性の観点からは、MA 添加率 5%、FP 添加率 30%以上が可能であると考えられる。

1.3.4 再臨界排除 FBR の炉心概念

1.3.4.1 背景と目的

高速中性子を利用する FBR 炉心は運転状態において最大反応度体系にないことから、炉心損傷事故 (CDA : core disruptive accident) 時に燃料が移動 集中すると再臨界となる可能性がある。この時、万一即発臨界に至った場合には、機械的エネルギーの発生により放射性物質が炉容器から格納系内に放出される可能性がある。このため CDA 時の再臨界問題は FBR 開発の初期 (1950 年代) からその安全上の特徴として重要な研究対象の一つとされてきた。これは高圧系である LWR において LOCA がその安全上の特徴とされてきたことに対応している。また、許認可においても、「FBR の運転経験が僅少であることに鑑み」、CDA は設計基準外事象ではあるが評価の対象とされている。

しかし多数基が建設される FBR の実用化の時代を見通す段階に至り、炉心損傷が生じても再臨界が生じない炉心概念への要求が高まってきた。この理由の一つは、一般公衆にとって CDA 時の再臨界のような問題は不安の種でしかないこと、従って理想として、FBR を含む核燃料サイクル全体において、定常運転時もまた事故時においても、放射性物質の「ゼロリリース」が追求されるべきとの考え方である。

このような時代の要求を先取して、炉心安全性研究の分野では炉心損傷時の再臨界を排除するための炉心の条件や方策の検討が研究対象となり、具体的な提案も為されるようになってきた。

以下ではこのような背景を踏まえ、現状、検討されている実用化段階における炉心安全性の確保の考え方について述べるとともに、再臨界排除の炉心概念について示す。

1.3.4.2 炉心安全性確保の基本と FBR の安全上の特徴

炉心安全性確保の基本は「止める (炉停止)」「冷やす (冷却)」「閉じこめる (格納)」である。FBR では、冷却材である Na のサブクール度が大きく、低圧システムであり、また自然循環においても高い冷却能力を有し得ることから、崩壊熱レベルの出力であれば運転員の対応操作のための時間余裕は LWR と比べて一般に大き

²消滅量などは繰り返し装荷を考慮しない、1 サイクル時のみの特性評価

い。また CDA 時にも、再臨界による機械的エネルギーの発生によって最終ヒートシンクへの冷却材循環パスが喪失するようなことがない限り、LWR に比して崩壊熱の冷却は容易である。すなわち FBR では炉停止が達成できれば冷却は容易であり、また炉心が健全なまま冷却できれば格納は問題にさえならない。また、たとえ炉心が損傷状態にあっても 1 次冷却材バウンダリと冷却材循環パスとが健全でかつ冷却が達成できれば、やはり格納は問題にならない。

よって FBR では「異常発生時の確実な炉停止」と、「炉心損傷時の再臨界事象の排除」の 2 点の実現によって、LWR と比較して遥かに安全なプラントが実現できるものと考えられる。

炉停止を確実にするための方策としては SASS(自己作動型炉停止装置)等の工学的方策と、上部 Na プレナム付き炉心(ゼロボイド炉心)やスペクトルシフト炉心等の固有な安全特性の賦与(自己制御性と呼ぶ)とがある。一般には後者の方がより確実であると考えられるかもしれないが、実際にはそのような固有の特性を与えると炉心核設計の自由度が減少すること、また、そのような炉心核特性は検証が困難であり、かつ投入される負の反応度は速くも大きくもないことから、実際の確実性、実現性という点で、実証炉にも導入が予定されているキュリー点方式 SASS のような方策が、故障の可能性が皆無とは言えないまでも、複数設置(多重性)により何体かの作動は期待できること、試験が容易であること、負の反応度投入が速くかつ十分な量であること、等から、有望な方策と期待されている。

1.3.4.3 炉心損傷時の再臨界排除のための炉心設計に対する要求

炉心損傷時の再臨界排除を達成するためには、再臨界を駆動する正の反応度要因を炉心設計によって予め制限し、かつ炉心損傷が発生した時に再臨界を抑制する負の反応度要因を設計により備えることが必要である。

(1) 冷却材沸騰に起因する再臨界の排除：ボイド反応度の制限

大型の FBR では冷却材の沸騰時、喪失時に正のボイド反応度効果となるため、冷却材の沸騰によって一気に再臨界(ここでは即発臨界の意)とならぬような制限が必要である。これまでの研究により、ボイド反応度が問題となる ULOF 事象の場合、通常的设计³の炉心では 5~6% のボイド反応度までならばドブラーや破損燃料の分散などによってその正の反応度効果を抑制・相殺できることが判っている。MA や FP を炉心に添加する場合、反応度係数は炉心安全上は不利となる方向である。従ってこの場合にはその添加量を添加しない場合と比較して反応度係数が大きく変化しない範囲に留めるとの方針は、炉心安全性の観点からも妥当である。即ち、MA 添加でも各種反応度係数が大きく変化しなければ上記の結論は不変である。

(2) 溶融燃料移動に起因する再臨界の排除：燃料流出の促進

FBR の炉心には、最小臨界量を十分に上回る燃料インベントリがある。従って、炉心損傷後の再臨界防止のためには、中性子吸収材を炉心へ投入する、fertile 燃料を投入することによって希釈する、あるいは再臨界は燃料の集中化によって生ずるのであるから、燃料が集中化する運動を妨げる、といった方法が考えられる。

しかし炉心内に他の物質を投入する方法は基本的に制御棒を炉心内に挿入するのと同様であり(すなわち多様性がない)、制御棒が挿入できなかった場合に初めて生じる炉心損傷であるにもかかわらず、その時に更に他の物質を炉心内に投入できると考えるのは説明にやや困難があるとともに、もし挿入できるのであれば、炉心損傷が生じる前に SASS のような機構によって炉停止に十分な中性子吸収材を挿入して損傷を未然に防ぐことに努力を傾注すべきであろう。

従って溶融燃料移動に起因する再臨界の防止には、燃料が集中化する運動をまず妨げることとし、更に燃料の集中化とは逆に、炉心からの燃料の流出を促進することを考える。なぜなら、一般に高温の(従って一般には圧力の高い)炉心へ外部から物を投入することは難しくとも、高温の炉心から炉心外へ融体を排出することは自然な流れであるからである。

³MOX 燃料均質 2 領域炉心、炉心高さ 1m、上下ブランケット付。原型炉、実証炉、SPX 等

1.3.4.4 再臨界排除炉心の概念

ここで提示する内部ダクト付超大型燃料集合体 (FAIDUS: fuel assembly with an internal duct structure) で構成された炉心概念は、これまでに設計された例の多い MOX 燃料の大型炉を基本としている。即ち均質 2 領域の 1~1.5GWe 程度の大型炉である。この炉心では燃料集合体のピン数は本来は 1519 本ピン束の配列 (中心ピンを第 1 列として 23 列) であるところ、中央の 169 本分 (8 列) を内部ダクトとした 1350 ピンの超大型集合体であり、この内部ダクトは制御棒案内管として利用されると共に、炉心損傷時には図 1.3.9 に示す如く熔融燃料排出経路となる。

図 1.3.10 に超大型集合体を示す。内部ダクトは制御棒案内管を兼ねることから、低圧プレナムに接続している。これは内部ダクトが燃料排出経路として働く際にも低圧部へ燃料が排出されることになるので有利な配置である。なお、従来の集合体/炉心の設計では制御棒チャンネルは燃料集合体と同じ大きさの単位でしか配置できなかった。しかし本設計では集合体の大きさに捕らわれる必要はなくなる。本提案では 169 ピン束分をとっているが、制御棒の大きさは集合体の大きさの範囲内で任意にとることが可能である。

新概念では各集合体の中に流出経路があるためにラッパー管壁を破って燃料が径方向に移動することに期待していない。というよりも、径方向の運動→集中化を禁じた炉心概念であり、運動は大型集合体内での軸方向の燃料運動のみである。すなわち旧概念では燃料の 3 次元の運動を考慮する必要があったが、新概念では集合体内での概略 1 次元の運動×集合体数と問題が単純化されている。⁴

1.3.4.5 再臨界排除炉心の炉心特性解析

図 1.3.11 に再臨界排除炉心の解析モデルを示す。また、表 1.3.9 に 1GWe レファレンス炉心と再臨界排除炉心の仕様及び炉心特性の比較を示す。表 1.3.10 に再臨界排除高速炉の FP 装荷炉心の炉心特性を、表 1.3.11 に再臨界排除高速炉における放射性 FP の消滅特性を示す。また、図 1.3.12 には、FP 添加率と再臨界排除炉心の炉心特性の関係を、図 1.3.13 には、FP 添加率と再臨界排除炉心の消滅量の関係を示す。今回の解析より以下のことが明らかになった。

- (1) 再臨界排除 FBR の炉心特性は、通常の 1GWe クラス FBR の炉心特性と大きな相違はない。但し、Na ボイド反応度は、燃料集合体中心の Na がなくなった場合、負となる。
- (2) 燃料中に FP を添加した場合、FP 添加率 30% で、燃焼反応度が約 5.2%、増殖比が約 1.0 となる。FP の消滅量は約 88Kg となる。
- (3) ブランケットに減速材を使用し FP を添加した場合、FP 添加率 30% で、燃焼反応度が 1.6%、増殖比が約 1.22 となる。炉心特性上はブランケット領域では、FP 添加率を大幅に上げることが可能である。
- (4) 炉心への MA 添加 5%、FP 添加 30% 以下、ブランケットへの FP 添加 30% 以上が可能であり、MA 及び FP 消滅ポテンシャルが高い。

1.3.5 ゼロリリースサイクルにおける高速炉炉心概念の構築

今までの検討結果を基にして、安全性向上 (再臨界排除) と対象とする全ての核種を消滅させるゼロリリースサイクルにおける高速炉炉心概念を構築した。

1.3.5.1 対象 MA 及び FP 核種消滅モデル

(1) MA

MA については以下の核種、装荷法を採用した。

- ・核種 (FBR 平衡炉心取り出し組成) : $^{241,242m,243}\text{Am}$
- ・装荷方法 : 燃料中に均質装荷 (3wt%)

(2) FP

- ・核種 : ^{79}Se , ^{93}Zr , ^{99}Tc , ^{107}Pd , ^{129}I , ^{134}Cs , ^{151}Sm

⁴原産会議 : CDA シナリオの評価検討会 (主査 : 清水彰直若狭湾エネルギー研究所長) のアイデアを、御好意により使用

- ・ 装荷方法：炉心燃料集合体内に FP ピンを装荷
 (FP：⁹⁹Tc, ¹⁰⁷Pd, ¹⁵¹Sm)、(3 v/o)
 ブランケット領域に減速材付き FP ピン集合体を装荷
 (FP：⁷⁹Se, ⁹³Zr, ¹²⁹I, ¹³⁵Cs)、(70 v/o)

図 1.3.14 に炉心燃料集合体の構成を、図 1.3.15 にはブランケット装荷の FP ピン数剛体の構成を示す。また、図 1.3.16 には、ゼロリリースサイクルにおける炉心構成を示す。

1.3.5.2 解析結果及びまとめ

表 1.3.12 にゼロリリースサイクルにおける高速炉の炉心特性を、表 1.3.13 には MA 及び FP のマスバランスを示す。これらの結果をまとめると以下のようになる。

- (1) ゼロリリース高速炉炉心(再臨界排除炉心)の炉心特性は、通常の 1GWe クラス FBR と比べて、大きな相違はない。再臨界排除の観点から、安全特性の優れた炉心である。
- (2) MA 及び FP 装荷した場合でも (MA：炉心に 3%、FP：炉心に 3%、ブランケット領域に 70%)、増殖比を 1.0 に保つことができる。
- (3) FP 及び MA 消滅に関しては、対象としたほぼ全ての核種を消滅することができた。FP の消滅量は約 90Kg/年となる。MA の消滅量は約 56Kg/年が達成できる。
- (4) ゼロリリースサイクルにおける安全性向上と MA 及び FP 消滅を達成する高速炉炉心が構築できた。

1.3.6 高速炉で MA リサイクルの影響評価

高速炉は熱中性子炉と比べて、核分裂/中性子吸収の割合が大きいため Pu や MA の高次化が進みにくく、MA リサイクルが炉心特性へ与える影響は小さいと考えられる。表 1.3.14 に MA リサイクルが炉心特性へ与える影響の解析結果を示す。その結果、MA のリサイクルについては、炉心特性の観点からは、高速炉はその影響が小さく、十分に MA マルチリサイクルが可能であることが分かった。FBR はブランケット域から新鮮な Pu, MA の供給をうけるので Pu, MA の組成は一定に保たれる。これを平衡サイクルと呼ぶ。ただし、FP 装荷に径ブランケットを用いた場合、径ブランケットの減損ウランからの²³⁹Pu リッチな Pu が供給されず、Pu フィッサル特性は悪化することもある。

表 1.3.1: FP 装荷高速炉の炉心特性、FP 全核種、MA 無し

ケース	レファレンス	ケース 1	ケース 2
FP 装荷方法 (母材種類)		炉心	←
FP 装荷割合 (v/o) [炉心/径ブランケット]	0/0	10/0	30/0
MA 装荷割合 (w/o)	0	←	←
炉心燃料	酸化物燃料	←	←
燃焼日数	365	←	←
バッチ数 (炉心/ブランケット)	3/4	←	←
炉心高さ (cm)	100	←	←
上・下軸ブランケット厚さ(cm)	30	←	←
Pu 富化度 (内側炉心/外側炉心)	15.4/19.1	17.5/21.4	24.6/28.1
燃焼反応度 (% Δk/kk')	1.42	2.32	4.97
最大高速中性子束 (n/cm ² -s)	2.73E+15	2.80E+15	3.13E+15
最大高速フルエンス (n/cm ²)	2.58E+23	2.65E+23	2.96E+23
最大線出力 (W/cm)	385	374	398
増殖比	1.26	1.19	1.02
炉心平均燃焼度 (MWd/t)	73600	81300	103200
MA装荷量 (kg/cycle)	0	0	0
MA消滅量 (kg/cycle)	-30.7	-	-
FP装荷量 (kg/cycle)	0	362.3	1086.9
FP消滅量 (kg/cycle)	-66	48.3	143.5

表 1.3.2: FP 装荷高速炉の炉心特性 (対象 FP は 12 核種、MA 炉心に装荷せず)

ケース	レファレンス	ケース 3	ケース 4	ケース 5	ケース 6
FP 装荷方法 (母材種類)		炉心	←	径ブラ(AI203)	径ブラ(ZrH1.7)
FP 装荷割合 (v/o) [炉心/径ブランケット]	0/0	10/0	30/0	0/30	0/30
MA 装荷割合 (w/o)	0	←	←	←	←
炉心燃料	酸化物燃料	←	←	←	←
燃焼日数	365	←	←	←	←
バッチ数 (炉心/ブランケット)	3/4	←	←	←	←
炉心高さ (cm)	100	←	←	←	←
上・下軸ブランケット厚さ(cm)	30	←	←	←	←
Pu 富化度 (内側炉心/外側炉心)	15.4/19.1	17.8/21.7	25.3/28.9	15.3/19.3	15.3/19.3
燃焼反応度 (% Δk/kk')	1.42	2.39	5.00	1.34	1.51
最大高速中性子束 (n/cm ² -s)	2.73E+15	2.79E+15	3.08E+15	2.77E+15	2.72E+15
最大高速フルエンス (n/cm ²)	2.58E+23	2.64E+23	2.91E+23	2.62E+23	2.57E+23
最大線出力 (W/cm)	385	373	393	395	396
増殖比	1.26	1.18	1.00	1.16	1.17
炉心平均燃焼度 (MWd/t)	73600	81400	103400	75300	75300
MA装荷量 (kg/cycle)	0	0	0	0	0
MA消滅量 (kg/cycle)	-30.7	-	-	-	-
FP装荷量 (kg/cycle)	0	362.3	1087.7	412.3	412.3
FP消滅量 (kg/cycle)	-66	28.3	80.8	39.3	30.2

表 1.3.3: FP 装荷高速炉の炉心特性 (対象 FP は 12 核種、MA 炉心に装荷)

ケース	レファレンス	ケース7	ケース8	ケース9
FP 装荷方法 (母材種類)		炉心	←	径ブラ(ZrH1.7)
FP 装荷割合 (v/o) [炉心/径ブランケット]	0/0	10/0	30/0	0/30
MA 装荷割合 (w/o)	0	5	←	←
炉心燃料	酸化物燃料	←	←	←
燃焼日数	365	←	←	←
バッチ数 (炉心/ブランケット)	3/4	←	←	←
炉心高さ (cm)	100	←	←	←
上・下軸ブランケット厚さ(cm)	30	←	←	←
Pu 富化度 (内側炉心/外側炉心)	15.4/19.1	17.2/21.3	24.3/28.6	14.9/18.8
燃焼反応度 (% Δk/kk')	1.42	0.98	3.62	0.04
最大高速中性子束 (n/cm ² ·s)	2.73E+15	2.87E+15	3.00E+15	2.71E+15
最大高速フルエンス (n/cm ²)	2.58E+23	2.72E+23	2.84E+23	2.56E+23
最大線出力 (W/cm)	38.5	381	375	402
増殖比	1.26	1.12	0.98	1.14
炉心平均燃焼度 (MWd/t)	73600	81600	103600	75500
MA装荷量 (kg/cycle)	0	353.9	276.1	392.8
MA消費量 (kg/cycle)	-30.7	74.6	52.8	86.2
FP装荷量 (kg/cycle)	0	362.3	1087.7	412.3
FP消費量 (kg/cycle)	-66	26.0	77.0	29.8

表 1.3.4: 高速炉における放射性 FP の消滅特性 (FP 炉心装荷、MA 炉心に装荷せず)

核種	半減期 (年)	炉心部					
		装荷割合 [10v/o] [生成考慮せず]			装荷割合 [30v/o] [生成考慮せず]		
		装荷量 (kg/cycle)	取り出し (kg/cycle)	消滅率 (%)	装荷量 (kg/cycle)	取り出し (kg/cycle)	消滅率 (%)
(Se-79)	65000	0.72	←	←	2.17	←	←
Sr-90	29	21.19	21.13	0.29	63.57	63.37	0.32
Zr-93	1530000	36.12	35.18	2.60	108.35	105.67	2.47
¹⁰¹ Nb-93m	14	37.09	34.70	6.46	111.28	104.34	6.23
Tc-99	214000	62.39	53.12	14.85	187.16	160.06	14.48
Pd-107	6500000	32.02	24.22	24.36	96.05	73.24	23.75
¹⁰⁹ (Cd-113m)	14	0.04	←	←	0.11	←	←
(Sn-126)	100000	3.11	←	←	9.34	←	←
I-129	15700000	15.90	15.86	0.24	47.71	47.59	0.24
Cs-135	2300000	77.57	73.40	5.38	232.70	220.72	5.15
Cs-137	30	67.91	67.60	0.45	203.74	204.24	-0.25
Sr-151	90	8.19	4.88	40.33	24.56	15.06	38.69
TOTAL		362.25	333.97	7.81	1086.74	1005.92	7.44

*1Nb-93, Cd-113で代用

()の核種は未計算

1 cycle=1年

表 1.3.5: 高速炉における放射性 FP の消滅特性 (FP ブランケット 装荷、MA 炉心に装荷せず)

核種	半減期 (年)	ブランケット 部					
		装荷割合 [FP: 30v/o, 母材: A12O3]			装荷割合 [FP: 30v/o, 母材: ZrH1.7]		
		装荷量 (kg/cycle)	取り出し (kg/cycle)	消滅率 (%)	装荷量 (kg/cycle)	取り出し (kg/cycle)	消滅率 (%)
(Se-79)	65000	0.80	←	—	0.80	←	—
Sr-90	29	24.31	23.54	3.17	24.31	23.55	3.16
Zr-93	1530000	40.68	39.10	3.88	40.68	39.86	2.02
*Nb-93m	14	41.25	38.80	5.93	41.25	39.35	4.61
Tc-99	214000	69.44	61.35	11.66	69.44	63.97	7.87
Pd-107	6500000	34.84	28.01	19.60	34.84	30.75	11.74
** (Cd-113m)	14	0.04	←	—	0.04	←	—
(Sn-126)	100000	3.58	←	—	3.58	←	—
I-129	15700000	18.65	17.67	5.27	18.65	15.47	17.08
Cs-135	2300000	90.21	80.10	11.21	90.21	83.48	7.46
Cs-137	30	80.36	75.35	6.23	80.36	75.39	6.18
Sm-151	90	8.17	4.71	42.29	8.17	5.86	28.29
TOTAL		412.33	373.05	9.53	412.33	382.10	7.33

*Nb-93、Cd-113で代用

() の核種は未計算

1 cycle=1年

表 1.3.6: 高速炉における放射性 FP の消滅特性 (FP 炉心装荷、5%MA 炉心装荷)

核種	半減期 (年)	炉心部					
		装荷割合 [10v/o] [生成考慮せず]			装荷割合 [30v/o] [生成考慮せず]		
		装荷量 (kg/cycle)	取り出し (kg/cycle)	消滅率 (%)	装荷量 (kg/cycle)	取り出し (kg/cycle)	消滅率 (%)
(Se-79)	65000	0.72	←	—	2.17	←	—
Sr-90	29	21.19	21.13	0.27	63.57	63.39	0.28
Zr-93	1530000	36.12	35.28	2.33	108.35	105.88	2.27
*Nb-93m	14	37.09	34.92	5.87	111.28	104.83	5.79
Tc-99	214000	62.39	53.83	13.72	187.16	161.64	13.63
Pd-107	6500000	32.02	24.79	22.57	96.05	74.52	22.41
** (Cd-113m)	14	0.04	←	—	0.11	←	—
(Sn-126)	100000	3.11	←	—	9.34	←	—
I-129	15700000	15.90	15.87	0.23	47.71	47.60	0.23
Cs-135	2300000	77.57	73.82	4.83	232.70	221.66	4.75
Cs-137	30	67.91	67.63	0.42	203.74	202.87	0.43
Sm-151	90	8.19	5.16	36.96	24.56	15.67	36.20
TOTAL		362.25	336.29	7.16	1086.74	1009.70	7.09

*Nb-93、Cd-113で代用

() の核種は未計算

1 cycle=1年

表 1.3.7: 高速炉における放射性 FP の消滅特性 (FP ブランケット 装荷、MA 炉心装荷)

核 種	半減期 (年)	ブランケット 部					
		装荷割合 [FP: 30v/o, 母材: A12O3]			装荷割合 [FP: 30v/o, 母材: ZrH1.7]		
		装荷量 (kg/cycle)	取り出し (kg/cycle)	消滅率 (%)	装荷量 (kg/cycle)	取り出し (kg/cycle)	消滅率 (%)
(Se-79)	65000				0.80	←	—
Sr-90	29				24.31	23.55	3.16
Zr-93	1530000				40.68	39.89	1.94
¹ Nb-93m	14				41.25	39.37	4.55
Tc-99	214000				69.44	64.08	7.73
Pd-107	6500000				34.84	30.85	11.46
¹¹¹ (Cd-113m)	14				0.04	←	—
(Sn-126)	100000				3.58	←	—
I-129	15700000				18.65	15.51	16.81
Cs-135	2300000				90.21	83.55	7.38
Cs-137	30				80.36	75.39	6.18
Sm-151	90				8.17	5.92	27.47
TOTAL					412.33	382.54	7.23

*1Nb-93, Cd-113で代用
 () の核種は未計算
 1 cycle=1年

表 1.3.8: FP 装荷位置 (中性子スペクトル変化) による消滅特性比較

核 種	半減期 (年)	炉心部	炉心部	ブランケット	ブランケット
		30V/O	5%MA 30V/O	A12O3 30V/O	ZrH1.7 30V/O
		消滅率(%/年)	消滅率(%/年)	消滅率(%/年)	消滅率(%/年)
(Se-79)	65000	—	—	—	—
Sr-90	29	0.32	0.28	3.17	3.16
Zr-93	1530000	2.47	2.27	3.88	2.02
¹ Nb-93m	14	6.23	5.79	5.93	4.61
Tc-99	214000	14.48	13.63	11.66	7.87
Pd-107	6500000	23.75	22.41	19.6	11.74
¹¹¹ (Cd-113m)	14	—	—	—	—
(Sn-126)	100000	—	—	—	—
I-129	15700000	0.24	0.23	5.27	17.08
Cs-135	2300000	5.15	4.75	11.21	7.46
Cs-137	30	-0.25	0.43	6.23	6.18
Sm-151	90	38.69	36.2	42.29	28.29
TOTAL		7.44	7.09	9.53	7.33

*1Nb-93, Cd-113で代用
 () の核種は未計算

表 1.3.9: レファレンス炉心と再臨界排除炉心の仕様および炉心特性の比較

	100万kWe 基準炉心	再臨界排除炉心
炉心構成	均質2領域	←
炉心燃料	酸化物燃料	←
燃焼日数	365	←
炉心高さ (cm)	100	←
上・下軸ブランケット厚さ (cm)	30	←
燃料交換バッチ数; 炉心	3	←
; ブランケット	4	←
燃料集合体本数 ; 内側炉心	175	55
; 外側炉心	180	30
; 合計	355	85
燃料ピン本数 ; 内側炉心	47,425	74,250
; 外側炉心	48,780	40,500
; 合計	96,205	114,750
ブランケット燃料集合体本数	72	36
; ブランケット燃料ピン本数	19,512	54,684
制御棒領域集合体本数 (Na)	24	85
; ピン本数で換算	6,504	14,365
ピン径 (mm)	8.3	7.7
燃料ピン本数/集合体	271	1,350
集合体ピッチ (mm)	179.8	391.3
Pu 富化度 (w/o) ; 内側炉心	15.4	16.2
; 外側炉心	19.1	22.7
燃焼反応度(% $\Delta k/kk'$)	1.42	1.65
最大高速中性子束($n/cm^2\cdot s$)	2.66E+15	2.73E+15
最大高速フルエンス(n/cm^2)	2.52E+23	2.58E+23
最大線出力(W/cm)	384	359
増殖比	1.25	1.27
炉心平均燃焼度(MWd/t)	73,600	73,000
炉心ボイド反応度(% $\Delta k/kk'$)	2.746	2.534
中心Na領域含む(% $\Delta k/kk'$)		-1.009
ドブプラー反応度(% $\Delta k/kk'$)	-0.236	-0.235
ドブプラー係数(Tdk/dt)	7.60E-03	7.53E-03

表 1.3.10: 再臨界排除高速炉の FP 装荷炉心の炉心特性 (対象 FP は 12 核種、MA なし)

ケース	レファレンス	ケース 1	ケース 2	ケース 3
FP 装荷方法 (母材種類)		炉心	←	径ブラ(ZrH1.7)
FP 装荷割合 (v/o) [炉心/径ブランケット]	0/0	10/0	30/0	0/30
MA 装荷割合 (w/o)	0	←	←	←
炉心燃料	酸化物燃料	←	←	←
燃焼日数	365	←	←	←
バッチ数 (炉心/ブランケット)	3/4	←	←	←
炉心高さ (cm)	100	←	←	←
上・下軸ブランケット厚さ(cm)	30	←	←	←
Pu 富化度 (内側炉心/外側炉心)	16.2/22.7	18.8/25.7	26.4/33.8	16.1/22.9
燃焼反応度 (% Δk/kk')	1.65	2.85	5.16	1.58
最大高速中性子束 (n/cm ² ·s)	2.54E+15	2.69E+15	2.89E+15	2.55E+15
最大高速フルエンス (n/cm ²)	2.40E+23	2.55E+23	2.73E+23	2.41E+23
最大線出力 (W/cm)	359	344	359	365
増殖比	1.27	1.18	1.00	1.22
炉心平均燃焼度 (MWd/t)	73000	80800	102700	73500
MA 装荷量 (kg/cycle)	0	0	0	0
MA 消費量 (kg/cycle)	-	-	-	-
FP 装荷量 (kg/cycle)	0	406.4	1219.0	
FP 消費量 (kg/cycle)	-	30.3	87.7	

表 1.3.11: 再臨界排除高速炉の FP 装荷炉心の炉心特性 (FP 炉心装荷、MA なし)

核 種	半減期 (年)	炉心部					
		装荷割合 [10v/o] [生成考慮せず]			装荷割合 [30v/o] [生成考慮せず]		
		装荷量 (kg/cycle)	取り出し (kg/cycle)	消費率 (%)	装荷量 (kg/cycle)	取り出し (kg/cycle)	消費率 (%)
(Se-79)	65000	0.81	←	-	2.44	←	-
Sr-90	29	23.77	23.71	0.27	71.32	71.12	0.27
Zr-93	1530000	40.51	39.50	2.48	121.55	118.69	2.35
¹⁴¹ Nb-93m	14	41.61	39.05	6.15	124.80	117.44	5.90
Tc-99	214000	69.99	60.08	14.16	209.93	181.09	13.74
Pd-107	6500000	35.92	27.54	23.32	107.75	83.38	22.61
¹⁴¹ (Cd-113m)	14	0.04	←	-	0.12	←	-
(Sn-126)	100000	3.49	←	-	10.48	←	-
I-129	15700000	17.84	17.80	0.23	53.51	53.39	0.23
Cs-135	2300000	86.99	82.51	5.14	260.96	248.21	4.89
Cs-137	30	76.20	75.87	0.43	228.59	227.63	0.42
Sm-151	90	9.19	5.61	38.96	27.55	17.31	37.15
TOTAL		406.35	376.01	7.47	1218.99	1131.31	7.19

*1Nb-93、Cd-113で代用

()の核種は未計算

1 cycle=1年

表 1.3.12: ゼロリリースサイクルにおける高速炉の炉心特性

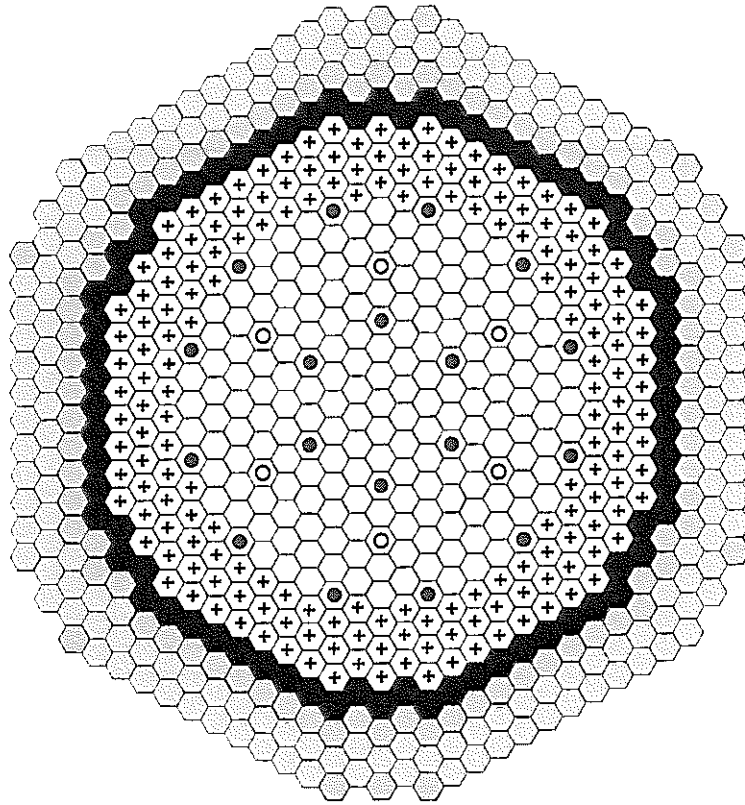
	基準炉心	再臨界排除炉心	ゼロリリース炉心(MA,FP)
炉心構成	均質 2 領域	←	←
炉心燃料	酸化物燃料	←	←
燃焼日数	365	←	←
炉心高さ (cm)	100	←	←
上・下軸ブランケット厚さ (cm)	30	←	←
燃料交換バッチ数; 炉心	3	←	←
; ブランケット	4	←	←
燃料集合体体数 ; 内側炉心	175	55	←
; 外側炉心	180	30	←
; 合 計	355	85	←
燃料ピン本数 ; 内側炉心	47,425	74,250	←
; 外側炉心	48,780	40,500	←
; 合 計	96,205	114,750	←
ブランケット又はFP集合体体数	72	36	←
ブランケット又はFP又は減速材ピン本数	19,512	54,684	←
制御棒領域集合体本数 (N a)	24	85	←
ピン本数で換算	6,504	14,365	←
ピン径 (mm)	8.3	7.7	←
燃料ピン本数/集合体	271	1,350	←
集合体ピッチ (mm)	179.8	391.3	←
F P 炉心部装荷割合(v/o)	—	—	3
F P ブランケット部装荷割合(v/o)	—	—	70
MA 炉心装荷割合(w/o)	—	—	3
P u 富化度 (w/o) ; 内側炉心	15.4	16.2	17.9
; 外側炉心	19.1	22.7	26.9
燃焼反応度(% $\Delta k/kk'$)	1.42	1.65	1.22
最大高速中性子束(n/cm ² -s)	2.66E+15	2.67E+15	2.86E+15
最大高速フルエンス(n/cm ²)	2.52E+23	2.53E+23	2.71E+23
最大線出力(W/cm)	384	359	389
増殖比 (平衡時BOCとEOCの平均)	1.25	1.27	1.02
炉心平均燃焼度(MWd/t)	73,600	73,000	77,100
炉心ポイド反応度(% $\Delta k/kk'$)	2.746	2.534	2.820
N a 領域を含む(% $\Delta k/kk'$)	0.26	-1.009	-0.397
ドブラー反応度(% $\Delta k/kk'$)	-0.236	-0.235	-0.139
ドブラー係数(Tdk/dt)	7.60E-03	7.53E-03	4.45E-03

表 1.3.13: ゼロリリースサイクル高速炉炉心における MA 及び FP のマスバランス

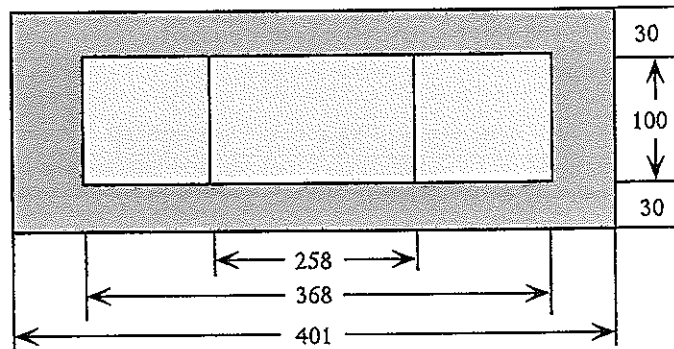
j g e e	年減期 (年)	炉 心 部			ブランケット部			e e e		
		装荷割合 [3v/o]			装荷割合 [70v/o]					
		装荷量 (kg/年)	取り出し (kg/年)	消滅率 kg (%)	装荷量 (kg/年)	取り出し (kg/年)	消滅率 kg (%)	装荷量 (kg/年)	取り出し (kg/年)	消滅率 kg (%)
Se-79	65,000	0.00	0.06	—	5.66	5.43	0.23 (4.12)	5.66	5.49	0.17 (3.04)
Zr-93	1,530,000	0.00	5.60	—	541.80	535.65	6.15 (1.13)	541.80	541.24	0.55 (0.10)
Tc-99	214,000	183.30	168.61	14.69 (8.02)	0.00	0.00	—	183.30	168.61	14.69 (8.02)
Pd-107	6,500,000	102.05	85.55	16.50 (16.17)	0.00	0.00	—	102.05	85.55	16.50 (16.17)
I-129	15,700,000	0.00	3.52	—	265.71	209.59	56.11 (21.12)	265.71	213.12	52.59 (19.79)
Cs-135	2,300,000	0.00	21.51	—	1451.96	1414.97	36.99 (2.55)	1451.96	1436.48	15.48 (1.07)
Sm-151	90	31.18	22.05	9.13 (29.28)	0.00	0.00	—	31.18	22.05	9.13 (29.28)
FP-TOTAL	—	—	—	—	—	—	—	2581.66	2491.06	90.59 (3.51)
Np-237	—	0.00	3.08	—	0.00	0.00	—	0.00	3.08	—
Am-241	—	215.07	142.03	73.03 (33.96)	0.00	0.00	—	215.07	142.03	73.03 (33.96)
Am-242m	—	8.87	12.86	-3.99 (-44.92)	0.00	0.00	—	8.87	12.86	-3.99 (-44.92)
Am-243	—	130.97	91.40	39.57 (30.21)	0.00	0.00	—	130.97	91.40	39.57 (30.21)
Cm	—	0.00	49.90	—	0.00	0.00	—	0.00	49.90	—
MA-TOTAL	—	354.90	299.27	55.63 (15.68)	0.00	0.00	—	354.90	299.27	55.63 (15.68)

表 1.3.14: MA リサイクルの影響

Item	Reference (Initial Core)	4th Recycle	8th Recycle
MA(wt%)	5	5	5
Pu Enrichment (wt%)	17.8(Inner) 21.6(Outer)	17.6(Inner) 21.3(Outer)	16.9(Inner) 20.4(Outer)
Burnup Reactivity (% $\delta k/k'$)	1.6	0.4	0.5
Na Void Reactivity	1.0(Ref.)	0.96 (Relative Value)	0.93 (Relative Value)
Doppler Coefficient	1.0(Ref.)	1.08 (Relative Value)	1.14 (Relative Value)
MA Transmutation Rate(%/cycle)	10.3	10.5	10.1



単位 : cm



炉心
 ブランケット

○	内側炉心	175 体
+	外側炉心	180 体
●	ブランケット	72 体
○	遮蔽体	252 体
⊙	主炉停止系制御棒	18 体
⊖	後備炉停止系制御棒	6 体
計		703 体

図 1.3.1: 想定炉心集合体配置図

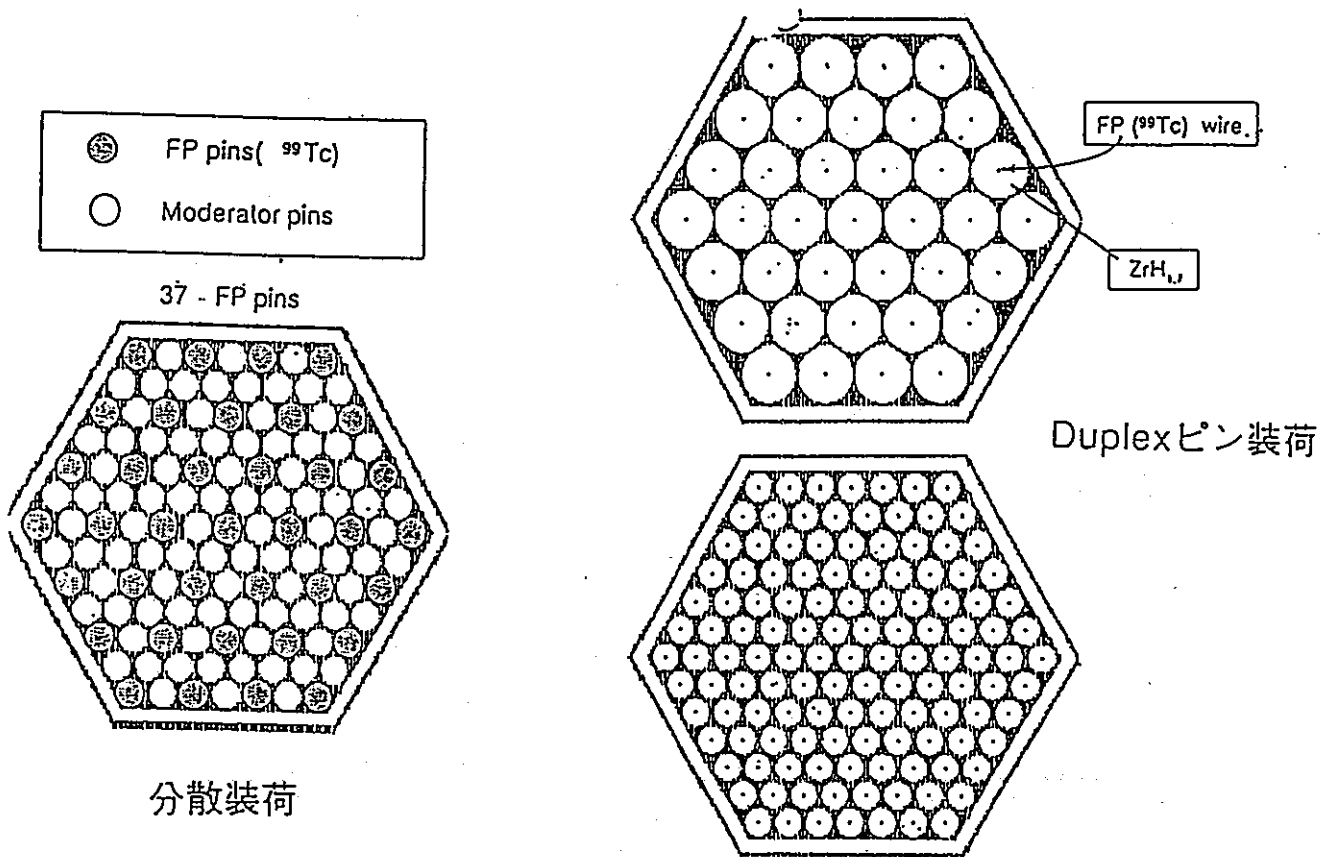


図 1.3.2: FP 入りピンの集合体内の装荷法

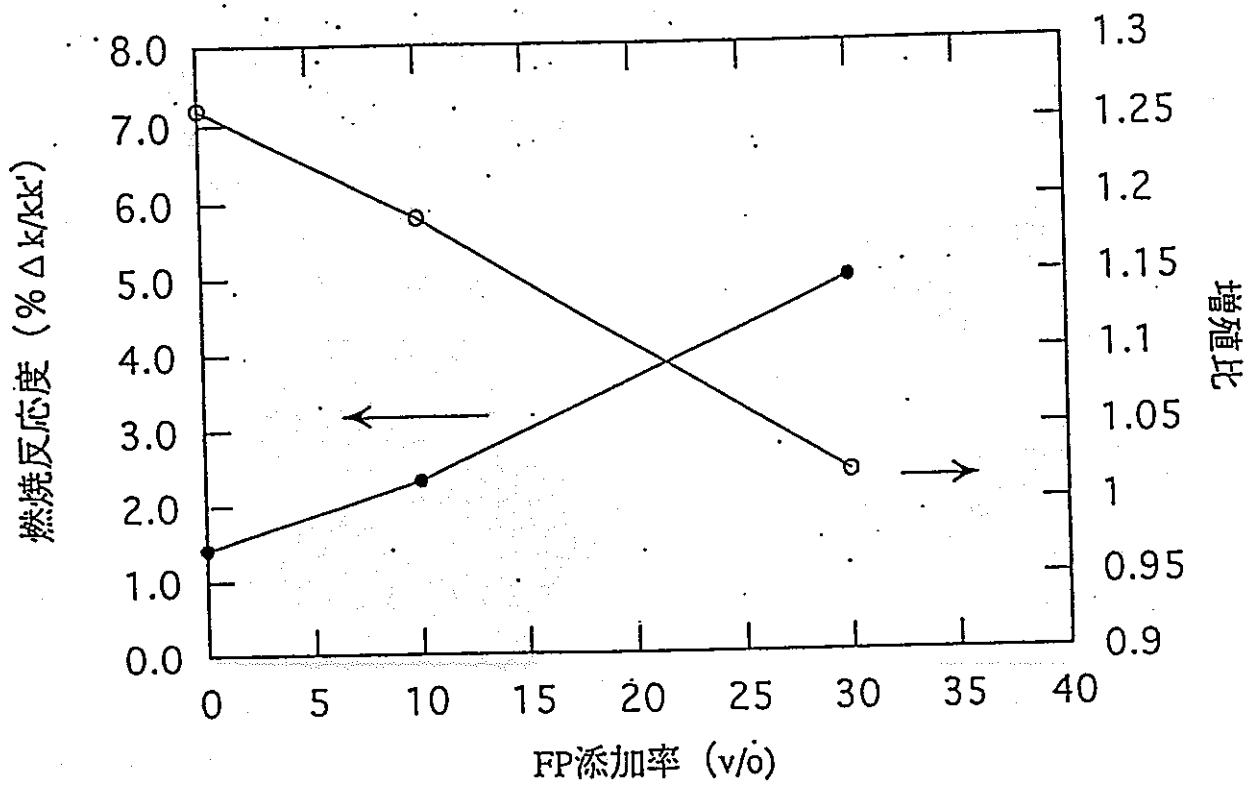


図 1.3.3: FP 添加率と 1GWeFBR の炉心特性の関係 (炉心装荷、FP : 全核種)

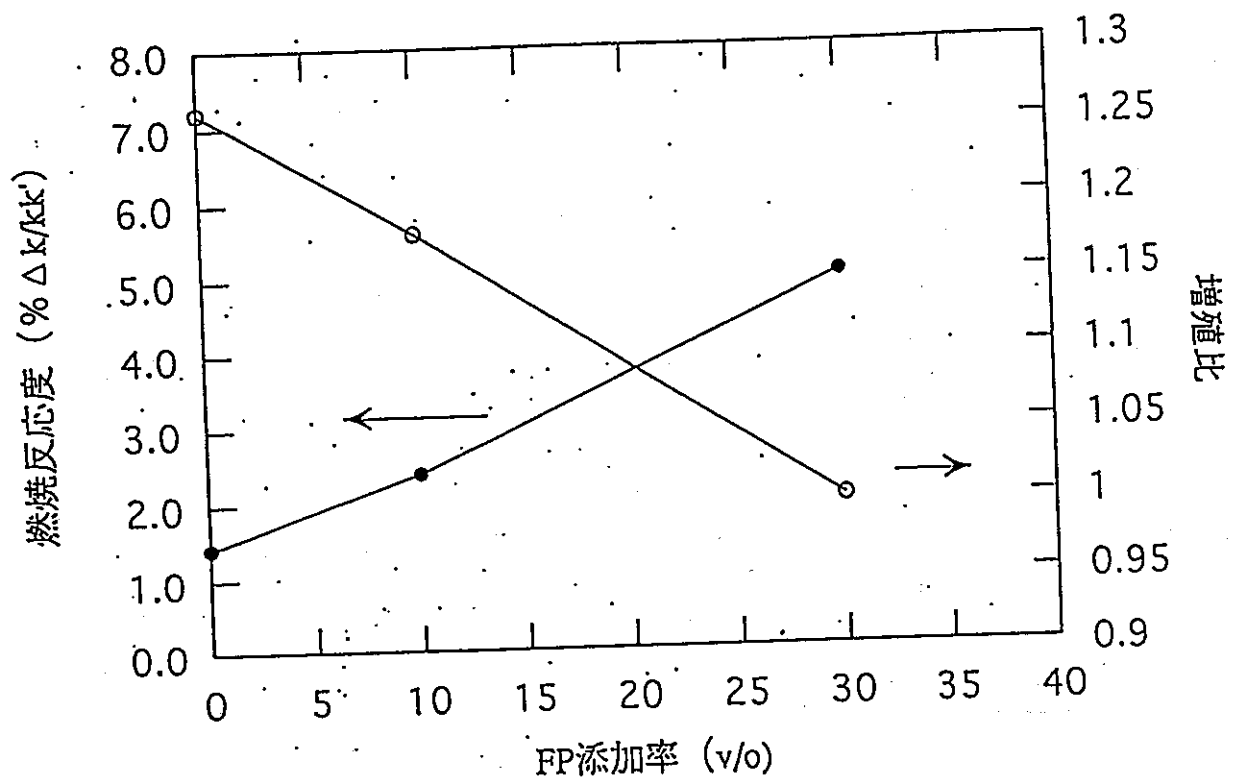


図 1.3.4: FP 添加率と 1GWeFBR の炉心特性の関係 (炉心装荷、FP : 12 核種)

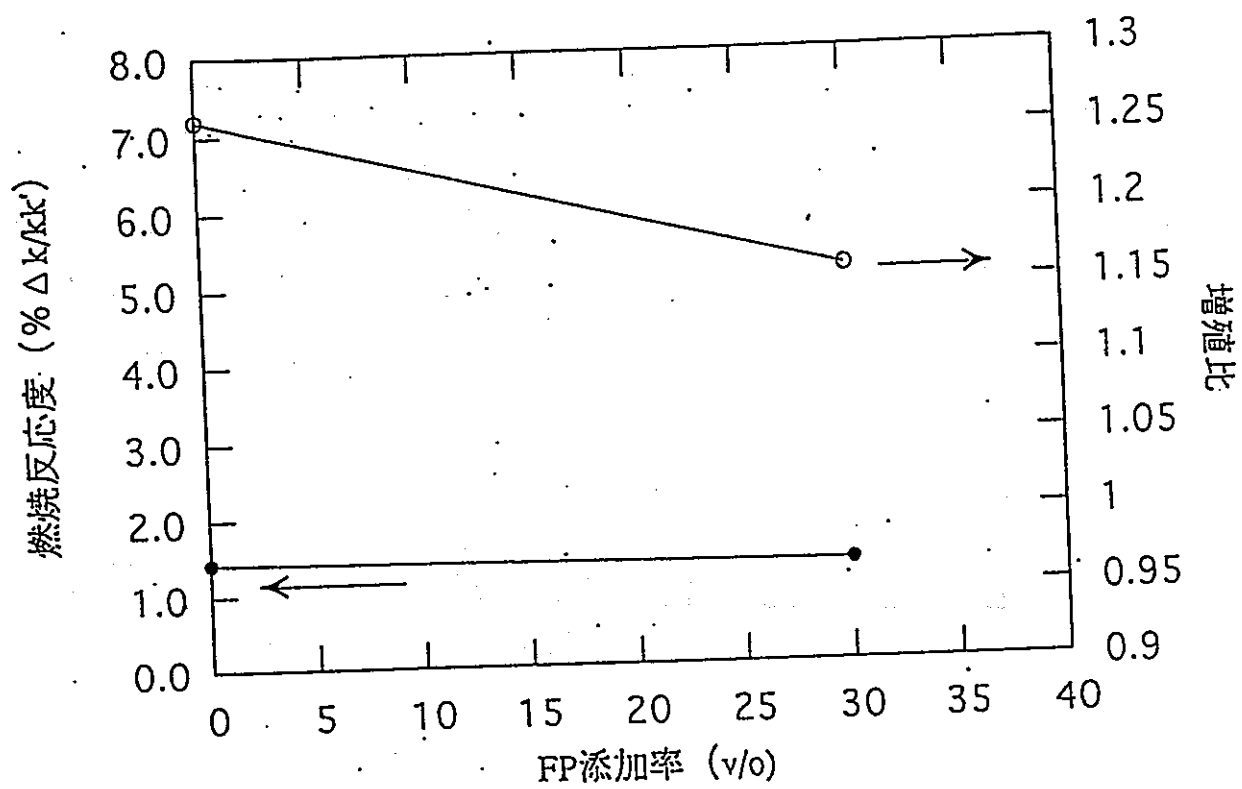


図 1.3.5: FP 添加率と 1GWeFBR の炉心特性の関係 (ブランケット装荷、FP: 12 核種)

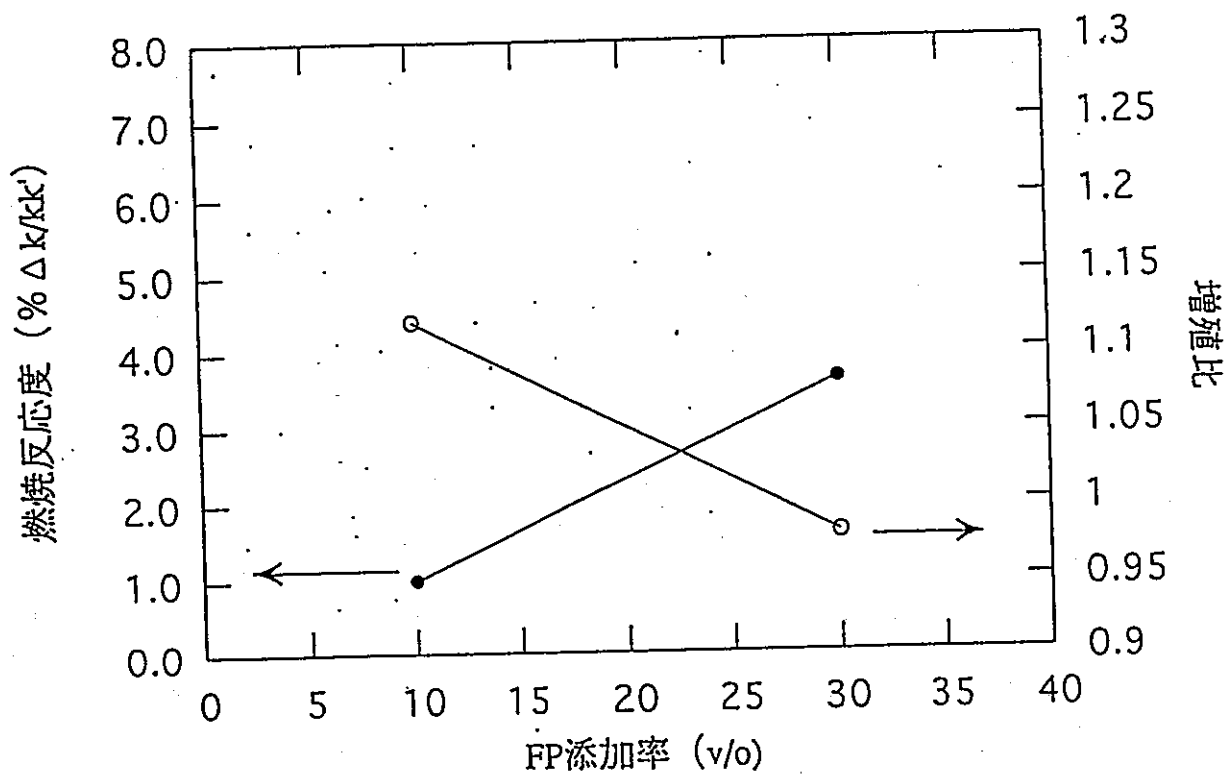


図 1.3.6: FP 添加率と 1GWeFBR の炉心特性の関係 (炉心装荷、5%MA、FP : 12 核種)

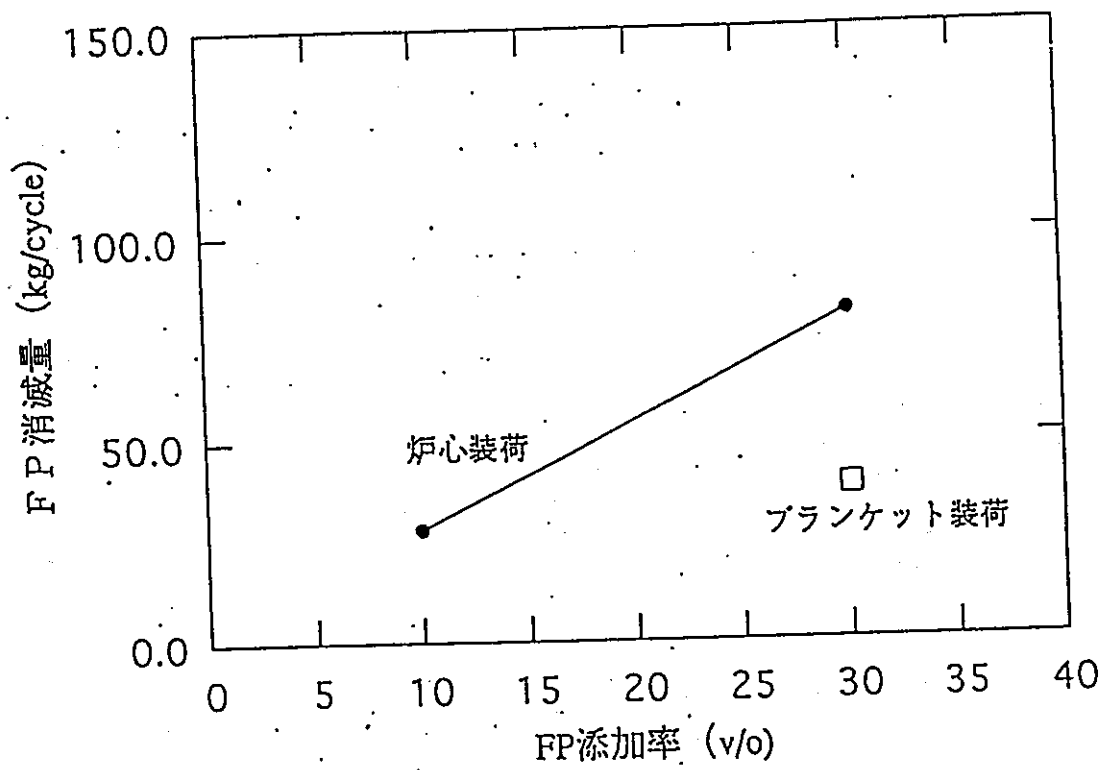


図 1.3.7: FP 添加率と 1GWeFBR の消費量の関係 (FP: 12 核種)

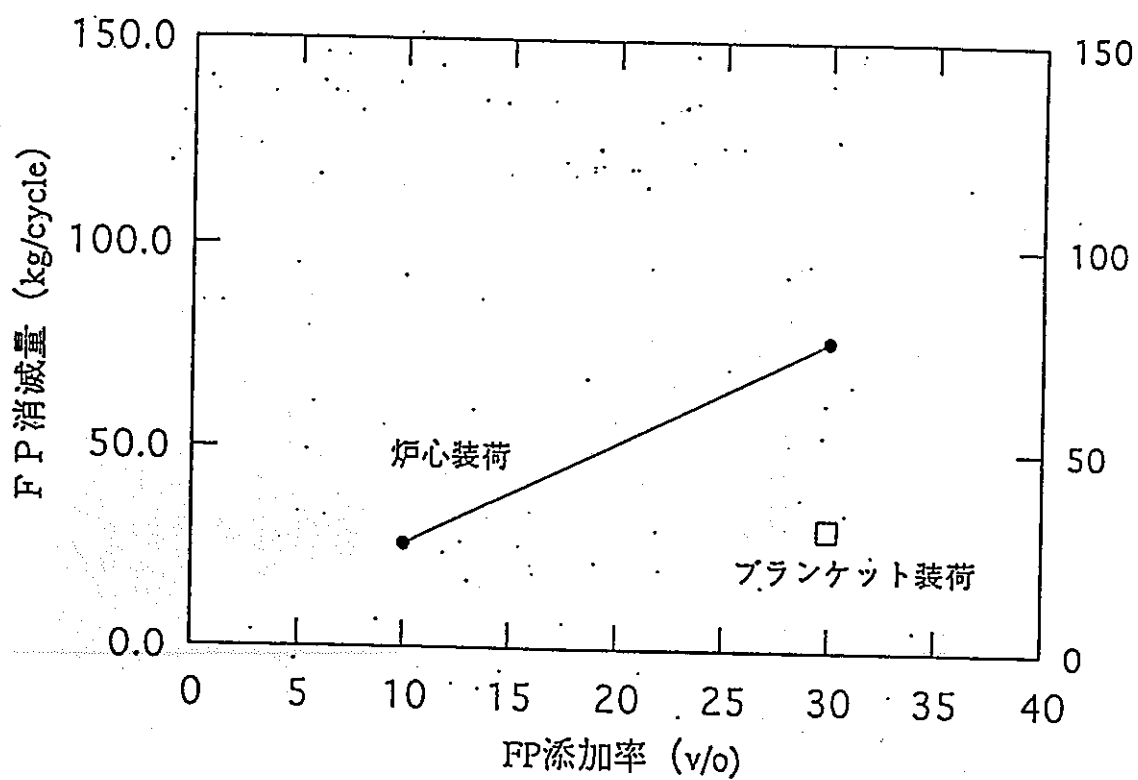


図 1.3.8: FP 添加率と 1GWeFBR の消費量の関係 (FP: 12 核種、MA 添加)

[集合体規模の炉心溶融時の対策]

- 内部ダクトを持つ超大型集合体で炉心を構成
FAIDUS (Fuel Assembly with an Internal Duct Structure)
 - ◆ 内部ダクトを制御棒チャンネルとして併用
 - ◆ 厚い、冷たい集合体壁で集合体破損伝播を防止
- 燃料溶融発生集合体
 - ◆ 溶融発生集合体毎に、下部プレナムへ燃料排出

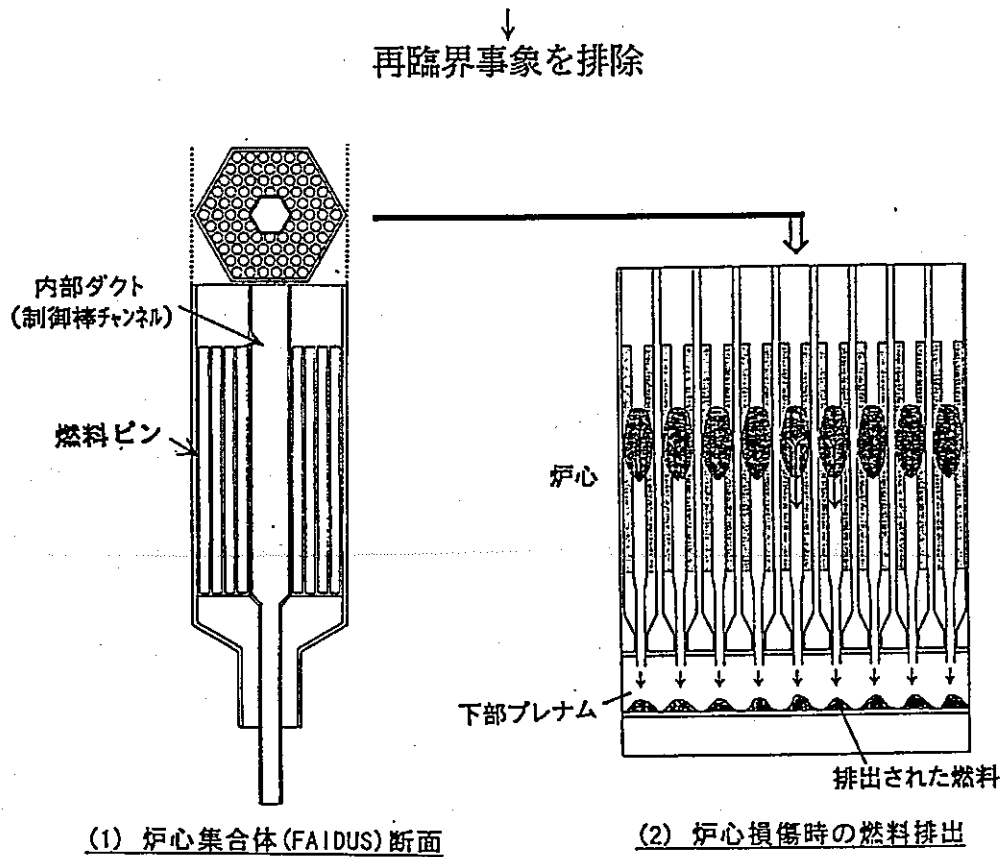


図 1.3.9: 集合体規模での炉心溶融対策

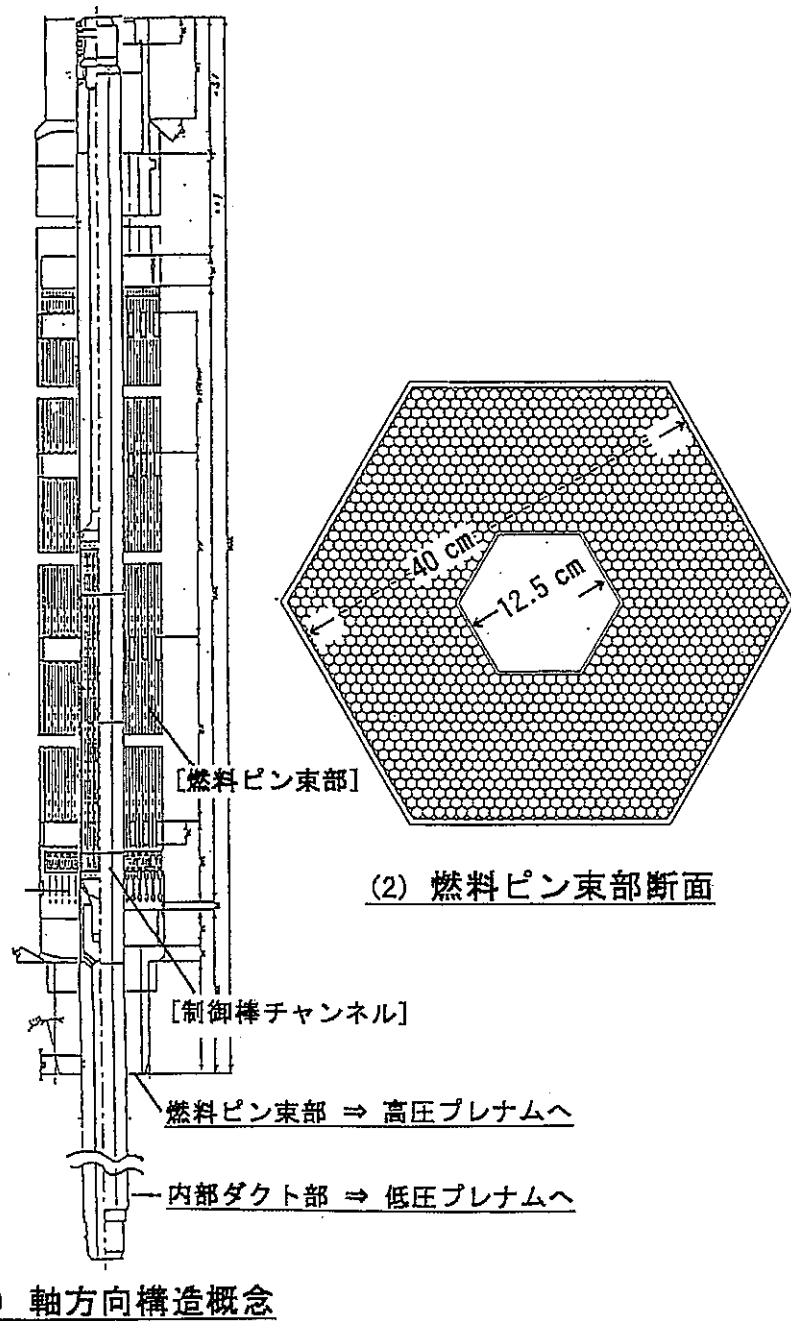
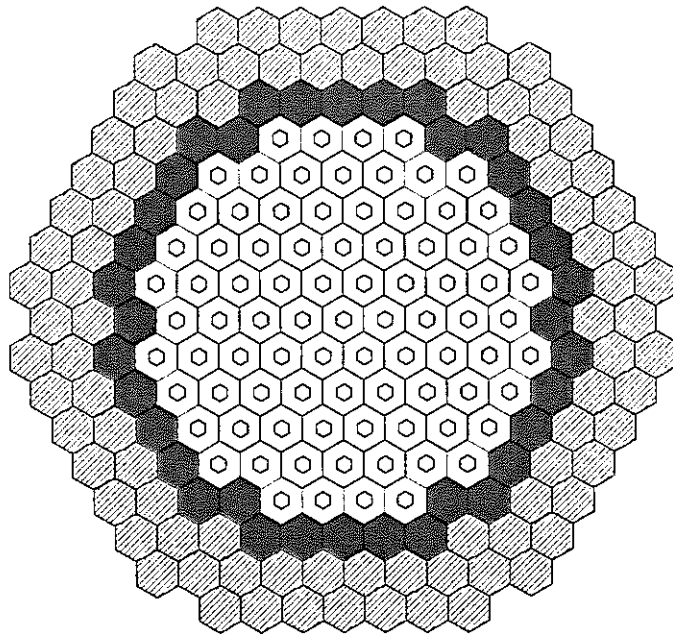
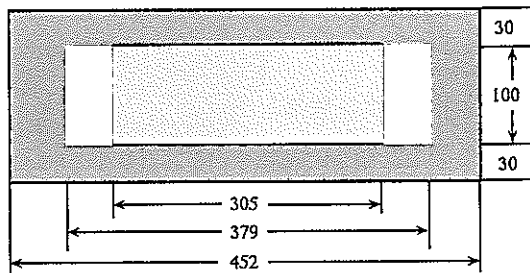


図 1.3.10: 内部ダクト付超大型燃料集合体



単位 : c.



□ 炉心 ■ ブランケット

- 内側炉心 55体
- 外側炉心 30体
- ブランケット 36体
- ▨ 遮蔽体 90体

TOTAL 211体

図 1.3.11: 再臨界排除炉心 (内部ダクト付超大型燃料集合体炉心)

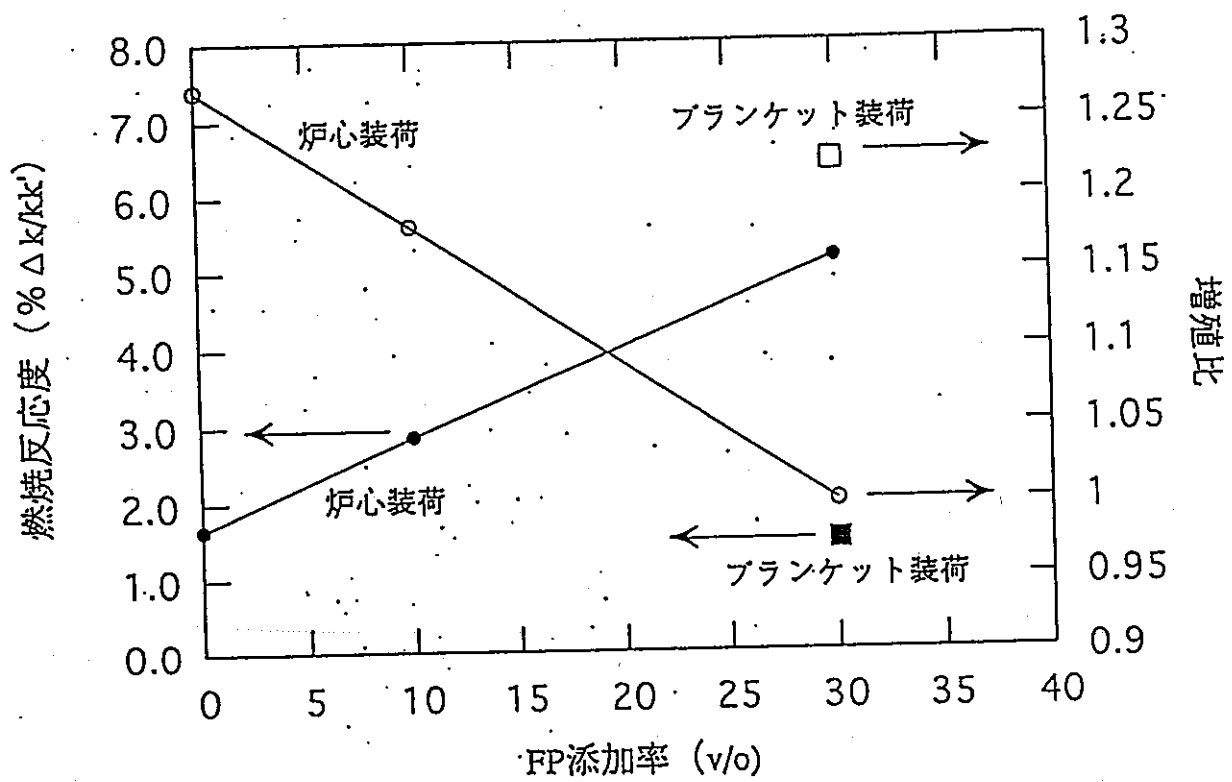


図 1.3.12: FP 添加率と再臨界排除炉心の炉心特性の関係 (FP: 12 核種)

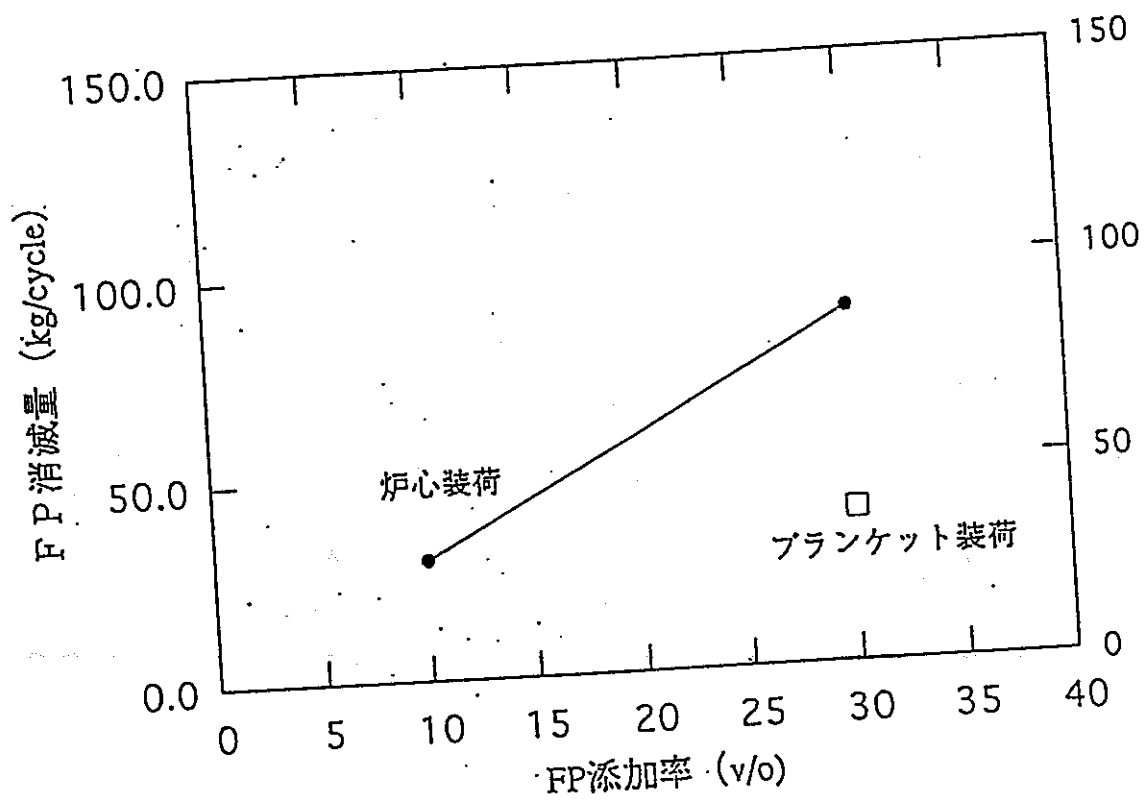


図 1.3.13: FP 添加率と再臨界排除炉心の消費量の関係 (FP : 12 核種)

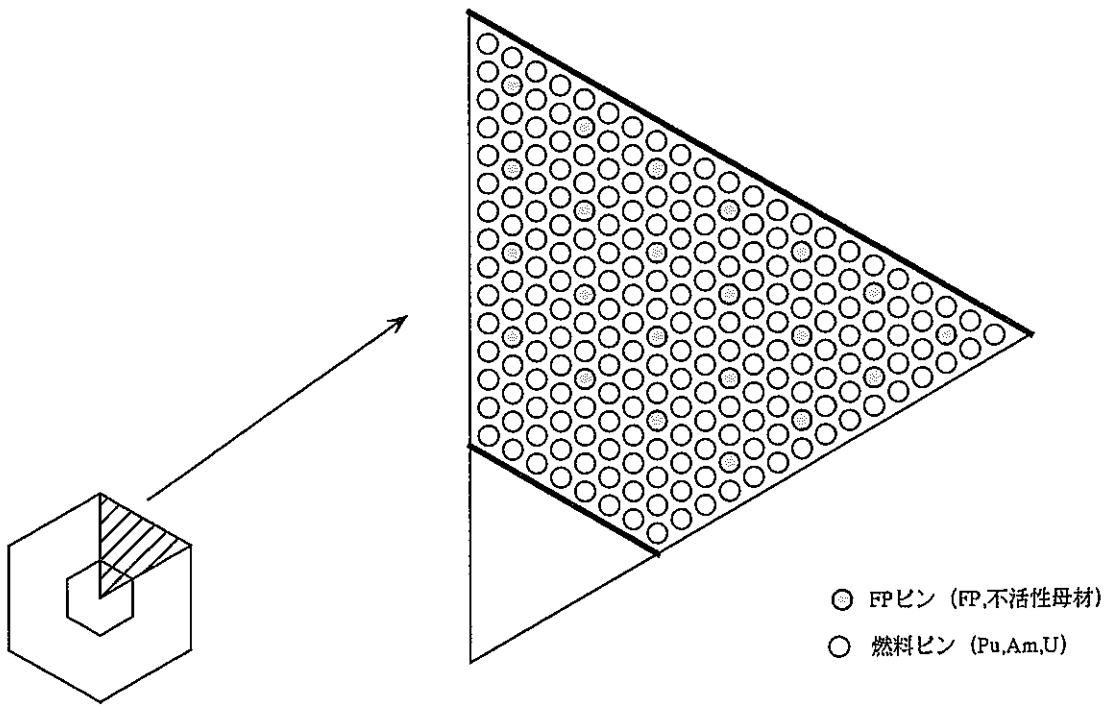


図 1.3.14: 炉心燃料集合体の構成 (例)

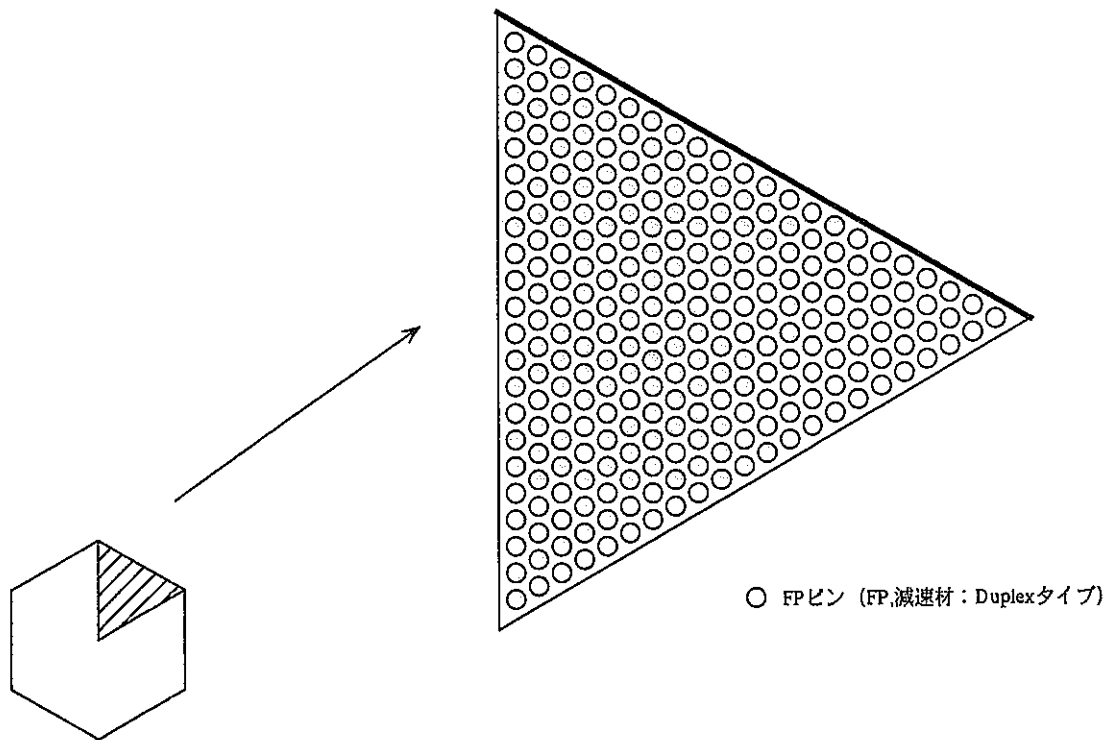
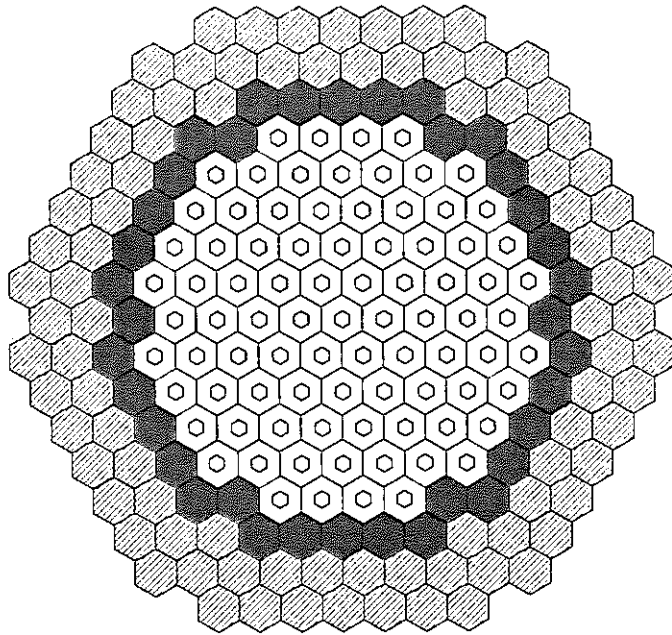
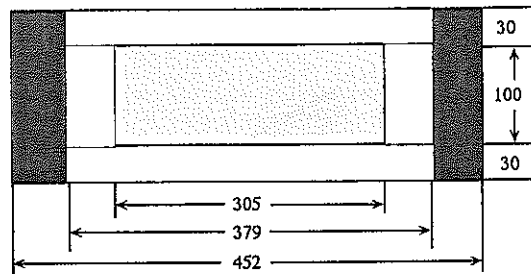


図 1.3.15: ブランケット装荷のFP集合体内の構成 (例)



単位 : a



燃料心
 ブランケット
 FPピン集合体

内側燃料心 55体
 (MA及び一部FP装荷)

外側燃料心 30体
 (MA及び一部FP装荷)

FPピン集合体 36体

遮蔽体 90体

TOTAL 211体

図 1.3.16: ゼロリリース高速炉心 (再臨界排除炉心)

1.4 加速器消滅の可能性

核分裂により生じた中性子を含めて、原子核と相互作用する粒子は、様々なものが存在する。核変換では、加速器は原則として種々の粒子を任意のエネルギーで加速出来るので多様な方法に対応出来る装置である。それに加え、加速器を用いた核消滅は、原理的に完全消滅が出来るという利点がある。一方では、このような反応は吸熱反応なので、原理的にはエネルギー収支がそのままではマイナスになる。

核変換で重要なひとつのパラメータは、処理すべきインベントリの量である。そのため、高速炉による消滅を主体とした場合、全システムとしてのエネルギー収支は消滅炉でのFP等の消滅量に大きく依存する。一方、物資のリサイクルや廃棄物の低減は今国際的な課題になっている。加速器を用いて、原子炉では消滅しにくい核種を含めて長寿命核種を量の多寡に関わらず処理するならば、限りなくゼロリリースに近い系を実現することが出来る。使用γ線は、消滅率の評価で述べるように、単色度が高いほど望ましいが開発要素が増す。加速器消滅システムを決定するパラメータとしては、γ線吸収断面積、加速器の効率、ビームエネルギーの利用効率がある。γ線吸収断面積は、現在のところ原子核の系統的性質である巨大共鳴を利用することが現実的であるが、基本となる核データの収集も重要である。

1.4.1 加速器の効率

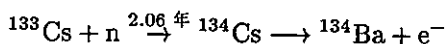
電子加速器は、粒子を加速する加速管、加速管にエネルギーを供給するクライストロン、クライストロンを運転する高圧電源、及び付帯設備からなる。大電力の加速管の効率は図 1.4.1 に示すように、設計により 90%程度までは可能である。^[2] クライストロンの効率は、通常の方法では 65%程度が限界で、高圧電源は 90~95%の効率が一般的である。よって、加速器の効率はおよそ 50%で運転出来る。付帯設備運転費や、メンテナンス費用は必ずしも明瞭でないが、加速器運転コストの数割程度であろう。またクライストロンの効率はエネルギー回収等で改善出来る可能性がある。大電流安定加速については、少々の開発要素があるが、動燃の開発経験では問題は電流によるビームダイチューニング対策や装置の寿命等であり原則として克服出来ると考えられる。

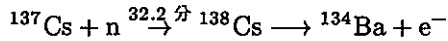
1.4.2 光発生の効率

電子線から核変換に必要な 14 MeV 程度の X 線を取り出す方法のなかで核消滅に必要な、 $10E18$ 個オーダーの光子を取り出せることが実証されてものは現在は存在しないが、候補としては自由電子レーザ、逆コンプトン散乱装置がある。電子エネルギーから光エネルギーへの変換効率は MeV オーダーでは低く、大阪大-レーザー総研で検討されている $10e15$ フラックスのスーパーキャビティ 300 MeV 電子蓄積リングからの 1.6 MeV 単色光子を取り出す計画から概算すると、1 周当たりのエネルギー変換率は 0.1%以下である。よって、リング内の電子ビームの長寿命化が重要な条件となり、一般的にビームのエネルギー回収が光発生装置では必要になる。現在の技術では、蓄積リング内のビーム寿命は 1 日程度になっており、ビーム制御技術はほぼ確立しているが、放射ロス(この場合はリングの大きさによるが 1kW/h 程度)があるので、線形加速器を組み合わせた電子エネルギーの RF 回収も含めた検討することが重要である。

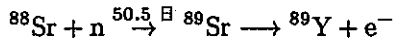
1.4.3 ターゲット

消滅処理を実際に行う照射用ターゲットでは、消滅対象核種の成分が高いことが望まれる。セシウムの場合では、使用済み燃料(1年プール保管)中の全セシウムアイソトープ核分裂収量 41.61 中、 ^{135}Cs は 6.73、 ^{137}Cs は 6.23 であり、同時に安定な ^{133}Cs が 6.77 含まれている(値は軽水炉)。ここで、高速炉消滅によるセシウム同位体比の変化を計算する必要があるが、高速炉での FP 消滅処理を行い平衡処理量に近付け炉では消滅しにくい核種を残して後(30年程度)、群分離しターゲット加工することが考えられる。ターゲット組成は、炉で使用する酸化物燃料の酸素の(γ, n) 敷居エネルギーが、15.67 MeV、中重核の巨大共鳴ピークは 15MeV 程度であるので 14 MeV の単色、準単色光子を用いれば二次放射化は原則として生じない。 ^{133}Cs 、 ^{137}Cs の中性子捕獲反応は、



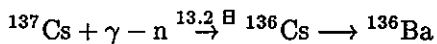
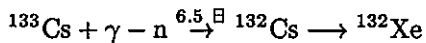


であり、加速器消滅で長寿命核種を作り出すことはない。Sr の場合は $^{87-88}\text{Sr}$ が安定核である。



これ以外の反応は、使用済み燃料から発生する収量や寿命(著しい超寿命も含む)により除外出来る。ただし Sr の場合は、巨大共鳴のピークに近付けるため γ 線エネルギーは 15 MeV 程度が望ましい。ターゲットでは、kg 級の核変換が行われるので大量の中性子が光発生する。そのエネルギーは光核反応エネルギーの残り 3 MeV 程度である。半径 1m 長さ 1m の円筒体系での中性子密度は処理量から平均 $10E14$ 程度と予想され、これは高速炉炉心の中性子フルエンスと同等である。

加速器により最終的にゼロリリースの系を構築するには、消滅炉により、十分に対象核種だけが残った照射体系を得ることが重要である。これには、ブランケット部に加速器で処理可能な核種以外が残らない集合体をリサイクルで作成することが候補として考えられる。群分離を仮定し、50 巨大共鳴断面積が同じと仮定すると、



なる反応が発生し、両者とも安定核種になるが、消滅エネルギーは同位体分離しない場合でも 2 倍程度である。Sr の場合も軽水炉燃料中の核分裂収量比で $^{78,88}\text{Sr} : ^{90}\text{Sr}$ は、6.21 : 5.94 であり、この Cs の場合と同様である。

Transmission of CI(solid) and CG(dashed)

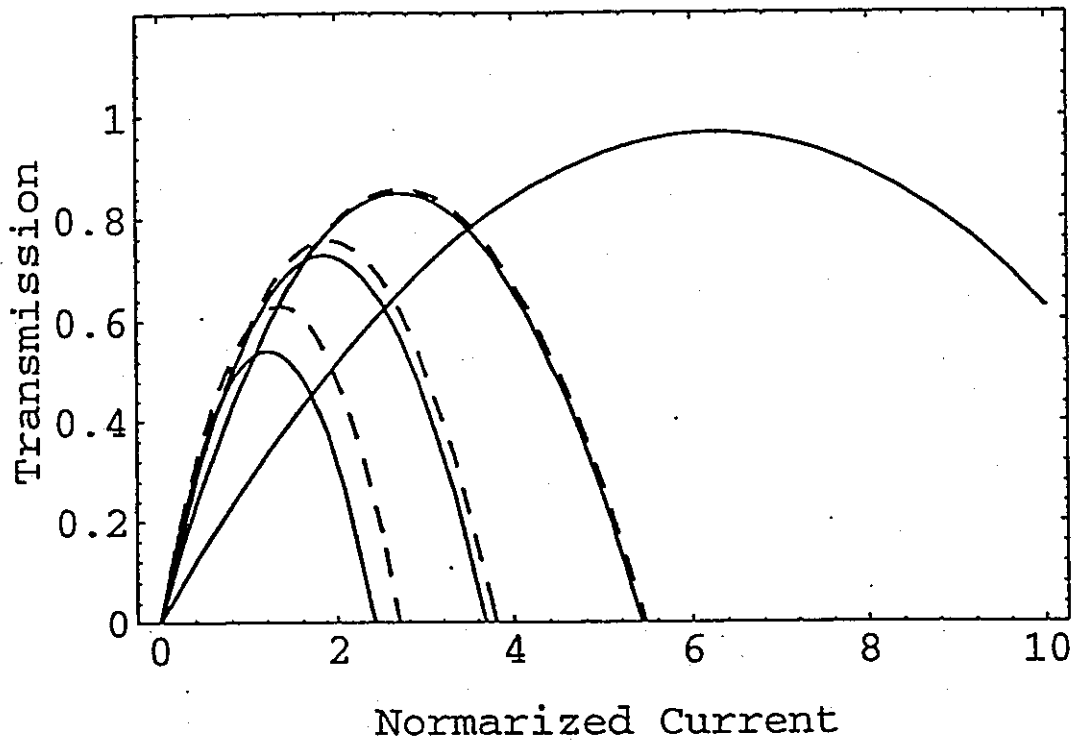


図 1.4.1 加速管の効率。実線と半線は、加速管の電波導入法の違いによる。効率曲線のピークが高いものから、加速管のエネルギー吸収が大きい順になっている。

1.5 加速器導入シナリオ

1章に示されたように、FBRを用いた消滅処理では、速中性子吸収断面積の小さな核種が多重サイクルの後も消えずに燃え残ることがわかる。具体的な核種としては、 ^{79}Se 、 ^{90}Sr 、 ^{129}I 、 ^{137}Cs である。また、ゼロリリースに則り、 ^{14}C も検討範囲に入れた。この内、 ^{129}I については、熱中性子吸収断面積が約30バーンと比較的大きいので、適当な減速材により熱中性子化した処理が考えられる。 ^{79}Se および ^{126}Sn については、熱および速中性子吸収断面積が測られておらず消滅処理対象核種とする場合には、消滅率の定量的評価のために中性子吸収断面積を測定することが必要となる。 ^{90}Sr および ^{137}Cs については、熱中性子吸収断面積は測定されているものの、高速中性子に対する吸収断面積は計算による評価値しかなく、今後詳細な測定が必要である。

このように、現状の中性子核データに関する情報は不足しているものの、現在の評価済み核データライブラリー（計算値）を用いた計算では、原子炉による消滅率が小さいとされる ^{79}Se 、 ^{90}Sr 、 ^{129}I 、 ^{137}Cs 及び ^{14}C の5核種に対し、以下に、電子線加速器（ γ 線発生装置）を用いた各種核変換方法について消滅に必要となるエネルギーの概算を示す。

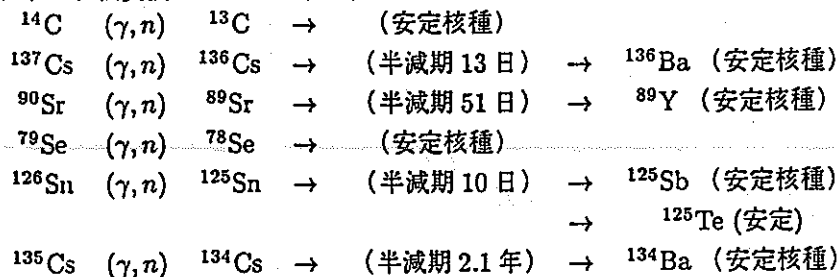
ゼロリリース核燃料サイクルは、原子炉による大量処理と加速器による限定核種の最終処理を組み合わせることにより可能になる。光核反応処理をする光発生体系によって具体的装置が異なる。

(1) ケース1 プレームス γ 線

Cs, Sr, Snといった質量の核種をプレームス γ 線で消滅処理する場合、1核種核変換するのに必要となる電子線のビームエネルギーは、約4ないし5 GeVである。^[3] この値は、核種依存性は大きくない。よって、Cも同様である。同位体が混在する場合は、それらも同等に核変換されることになる。

プレームス γ 線による核変換方法の長所は、電子線の加速エネルギーが比較的小さくすみ、施設がコンパクトになることである。また、核反応生成物の種類に限られるため、 ^{14}C 、 ^{79}Se 、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs などでは、短寿命核種あるいは安定核種だけが生成される。 ^{126}Sn は、半減期2.77年の ^{125}Sb を生成する。また、 ^{137}Cs に ^{135}Cs が混在する場合は、半減期2.1年の ^{134}Cs を生成する。

以下に、核変換チェーンを示す。



(2) ケース2 準単色 γ 線（レーザ逆コンプトン光）

レーザ光を高速の電子線に衝突させると跳ね返ってくる光は、電子線からエネルギーをもらい準単色の γ 線となる。この準単色 γ 線を用いて1核種核変換するために必要となる γ 線エネルギーは、約0.85 GeVである。^[3]

ケース1の場合に比べ核変換に必要なエネルギーは約4~5倍向上する。一方、電子線の加速エネルギーは、ケース1に比べ約10倍必要なので、施設が大きくなる。現在得られているレーザ逆コンプトン光は実験室レベルのもので、工学的利用に当たっては大電流化に関する技術開発が必要である。また、電気から γ 線へのエネルギー変換効率をケース1と同じとするためには、レーザで散乱された電子ビームを再利用できるようビーム集束系等の開発が必要である。即ち、高効率化に関する基礎研究が必要な段階にある。

(3) ケース3 単色 γ 線

単色 γ 線源が、将来的に実現した場合、これを消滅処理に適用することを考える。光核反応巨大共鳴断面積のピーク値と電子対生成断面積の比から、1核種核変換するのに必要な単色 γ

線のビームエネルギーは、約 0.4GeV となる。

単色 γ 線は、理想的な消滅処理装置となりうるが、この装置は、現状では存在しない。ただし、単色 γ 線発生方法に関する理論的提案はいくつかある。

(4) ケース4 単色 γ 線+微細構造ピーク

単色 γ 線があり、さらにピーク断面積値が大きい微細構造がある場合、消滅処理効率は、改善される。これまでの光核反応断面積測定のエネルギー分解能は数百 keV であり、微細構造についてはよくわかっていない。微細構造に関し分解能のよい測定データを得ること、特に、 ^{90}Sr 、 ^{126}Sn 、 ^{137}Cs 等に対し、実験データを得ることが今後必要である。

微細構造ピークを利用して核変換を行うと特定の核種だけが効率的に核変換されるので同位体分離の負担は少なくなりうる。ただし、微細構造により効率がどのくらい改善されるかは核種により大きく異なり、この点に関しては、微細構造に関する基礎研究が必要である。高エネルギー分解能での実験が最近開始されている。[4]

これらの結果をまとめて表 1.5.1 に示す。

ケース	1 核種核変換に必要な照射ビームエネルギー
1	4.0 GeV
2	0.85 GeV
3	0.4 GeV
4	0.4 GeV 以下

1.6 有用核種回収再利用計画

FP の中には、白金族元素など稀少かつ有用性の高い元素が含まれており、分離回収に関する研究開発が行われている。主なものを表 1.6.1 に示す。Pd, Rh, Ru, Tc, Mo などの有用な元素の使用済燃料中における存在比と再処理後の不溶解残さと高レベル廃液への分配比を図 1.6.1 に示す。図 1.6.2 に回収フローを示す。図 1.6.3、1.6.4 に示すように鉛抽出法を基本に不溶解残渣から有用元素を分離することができる。特に、パラジウムに関しては、質量数 107 の核種のみが放射性であり、この同位体分離はパラジウムの活用と放射性核種の消滅という要件を同時に満たしている。

表1.6.1 白金族元素等の分離回収に係る研究開発の現状

項 目	目 的	内 容	成 果
<p>電解法による 高レベル廃液からの 白金族元素分離</p>	<p>直接通電メルターの運転性向上、ガラス固化体の高減容化及び有用金属の回収を目的として、<u>高レベル廃液中の白金族元素を分離回収する。</u></p>	<p>廃液からルテニウムを分離するためにCe(IV)を添加し、これによる酸化作用によりRuO₄として揮発分離する。Ce(IV)は消耗していくので、これを電気化学的に再生させ、繰り返し酸化剤として作用させる。パラジウムについては陰極還元により白金電極上に電析回収し、ロジウムについては水銀陰極でアマルガムとして回収する。</p>	<p>模擬廃液を用いた電解試験によりルテニウム回収率に対する電位、共存元素の影響を詳細に把握した。また、ロジウム及びパラジウムの電解除去特性についても模擬廃液を用いて調べた。</p>
<p>電解還元法による核燃料 再処理溶解液からの 白金族元素等除去</p>	<p>再処理工程において複雑な挙動を呈するルテニウム及びテクネシウムを除去することを目的として、<u>使用済燃料溶解液</u>からこれらの元素を分離する。</p>	<p>電解還元により溶解液中のルテニウム及びテクネシウムを電極上に電析回収する。このときパラジウム、ロジウム等も同時に電析回収される。ルテニウムについては電析はさせずに、電解により非抽出性の化学形態にする方法も考えられる。</p>	<p>コールド試験（ピーカースケール）により模擬溶解液（ウランを含む）中のRu、Pd、Rh、Ag、Mo、Zr等の酸化還元電位を調べ、最適な電析条件を見いだすとともに、電位操作により選択的な析出分離が可能であることを実証した。</p>
<p>不溶解残渣及び高レベル 廃液か焼体からの 有用金属回収</p>	<p><u>不溶解残渣及び高レベル廃液か焼体中に主成分として含まれる白金族元素等の有用金属を利用するために、分離・精製技術を開発する。</u></p>	<p>不溶解残渣及びか焼体に鉛、ガラス形成剤及び還元剤を添加し加熱溶解させ、鉛相中に白金族元素等を抽出する。この鉛相を硝酸に溶解し、ルテニウムをスラッジとして回収する。硝酸中に僅かに溶解したルテニウムをオゾン吹き込みにより酸化揮発回収した後、溶媒抽出を主体として湿式法によりロジウム及びパラジウムの相互分離精製を行う。</p>	<p>鉛抽出法により不溶解残渣及び高レベル廃液か焼体中の有用元素を粗分離回収できることを実証するとともに、ルテニウムオゾン酸化回収法についてコールド試験を行い、高収率で回収できることを明らかにした。また、硝酸酸性系においてロジウムとパラジウムを相互分離するのに最適な抽出溶媒を見いだした。</p>

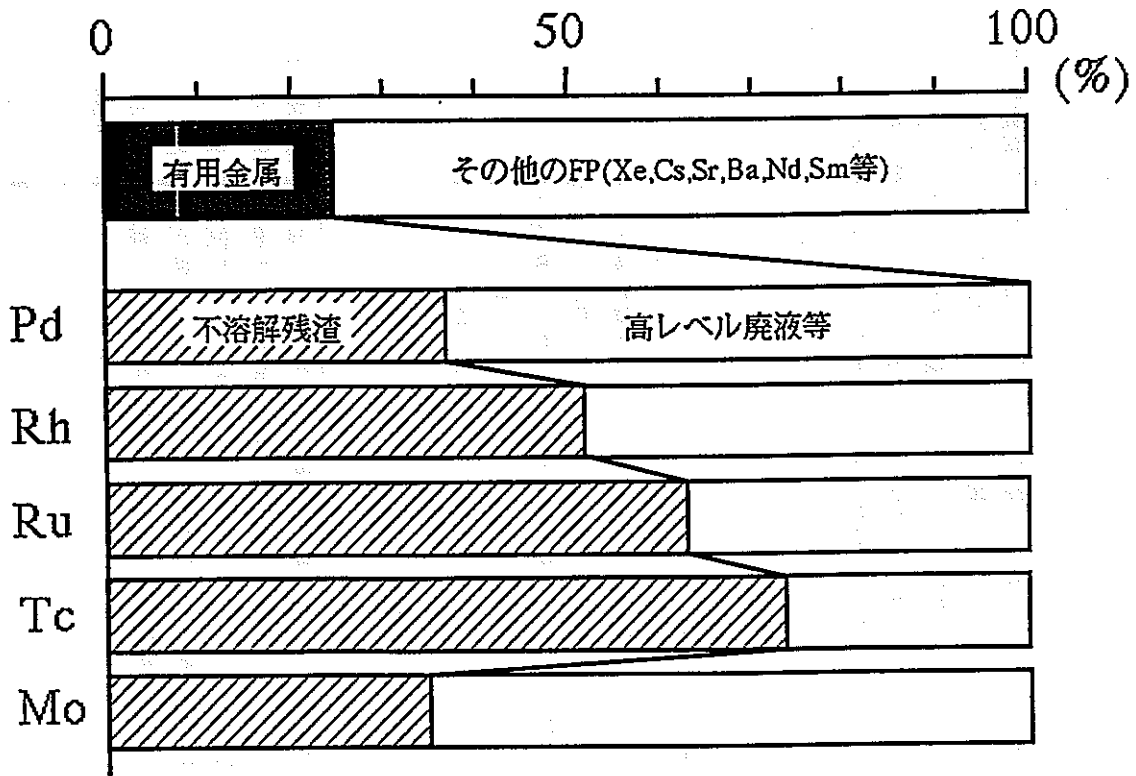


図 1.6.1: 使用済燃料中に生成する有用元素の不溶解残渣と高レベル廃液間の分配

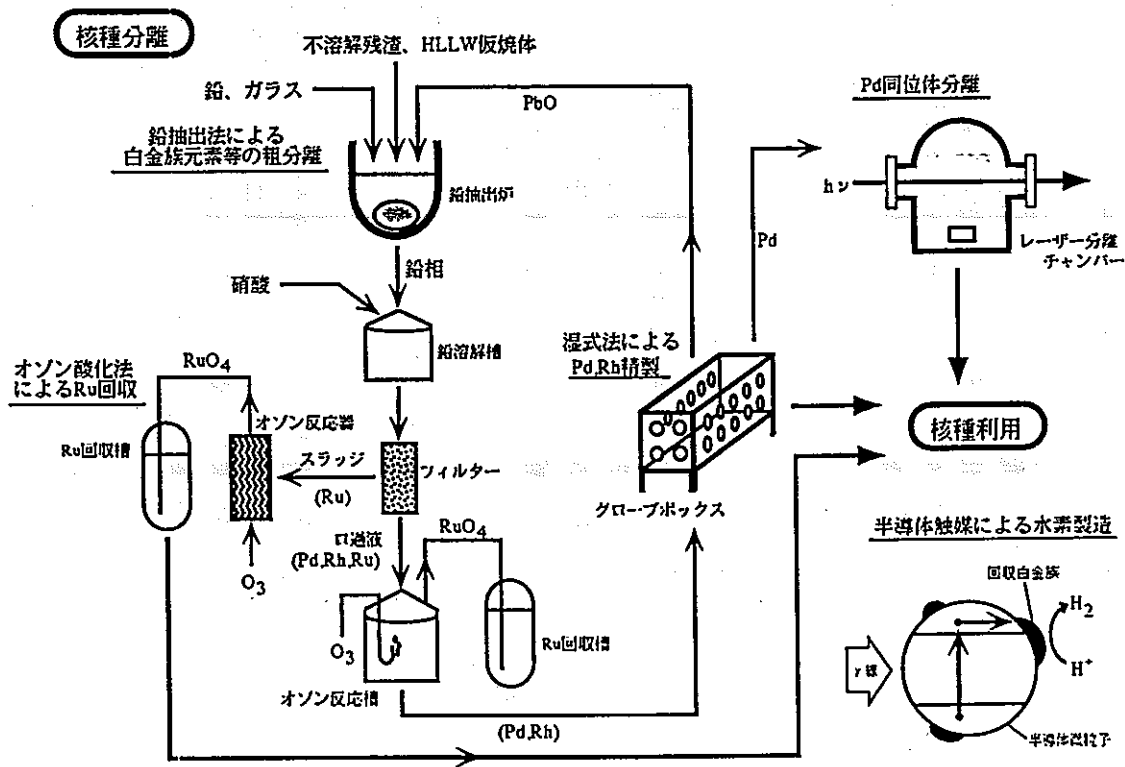


図 1.6.2: 高レベル放射性廃棄物からの有用核種回収、利用

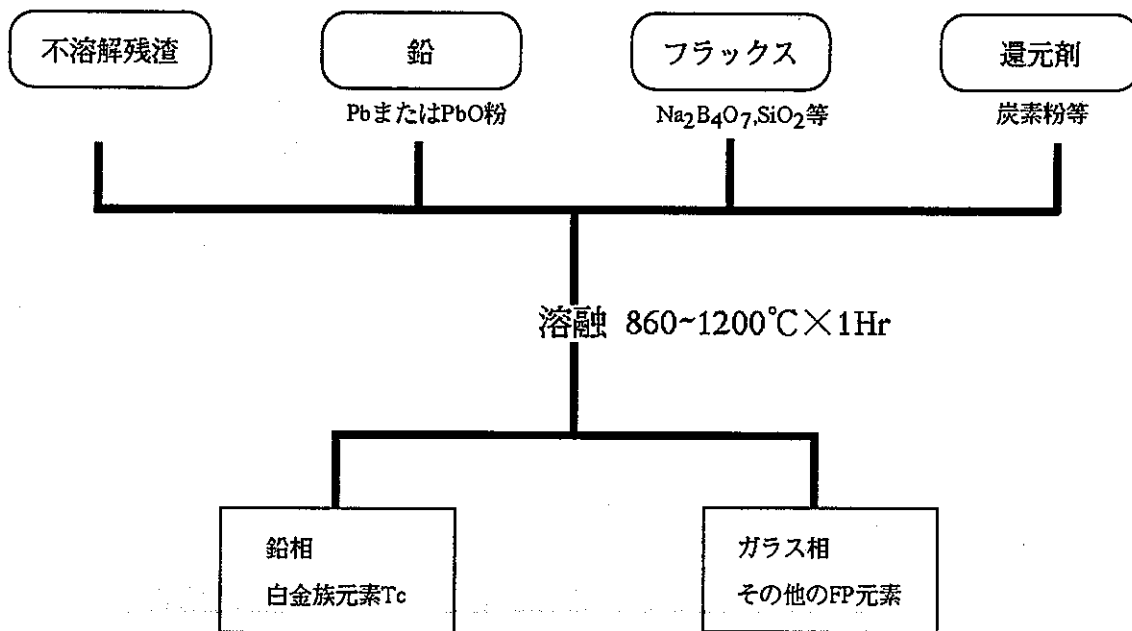


図 1.6.3: 鉛抽出法の概要

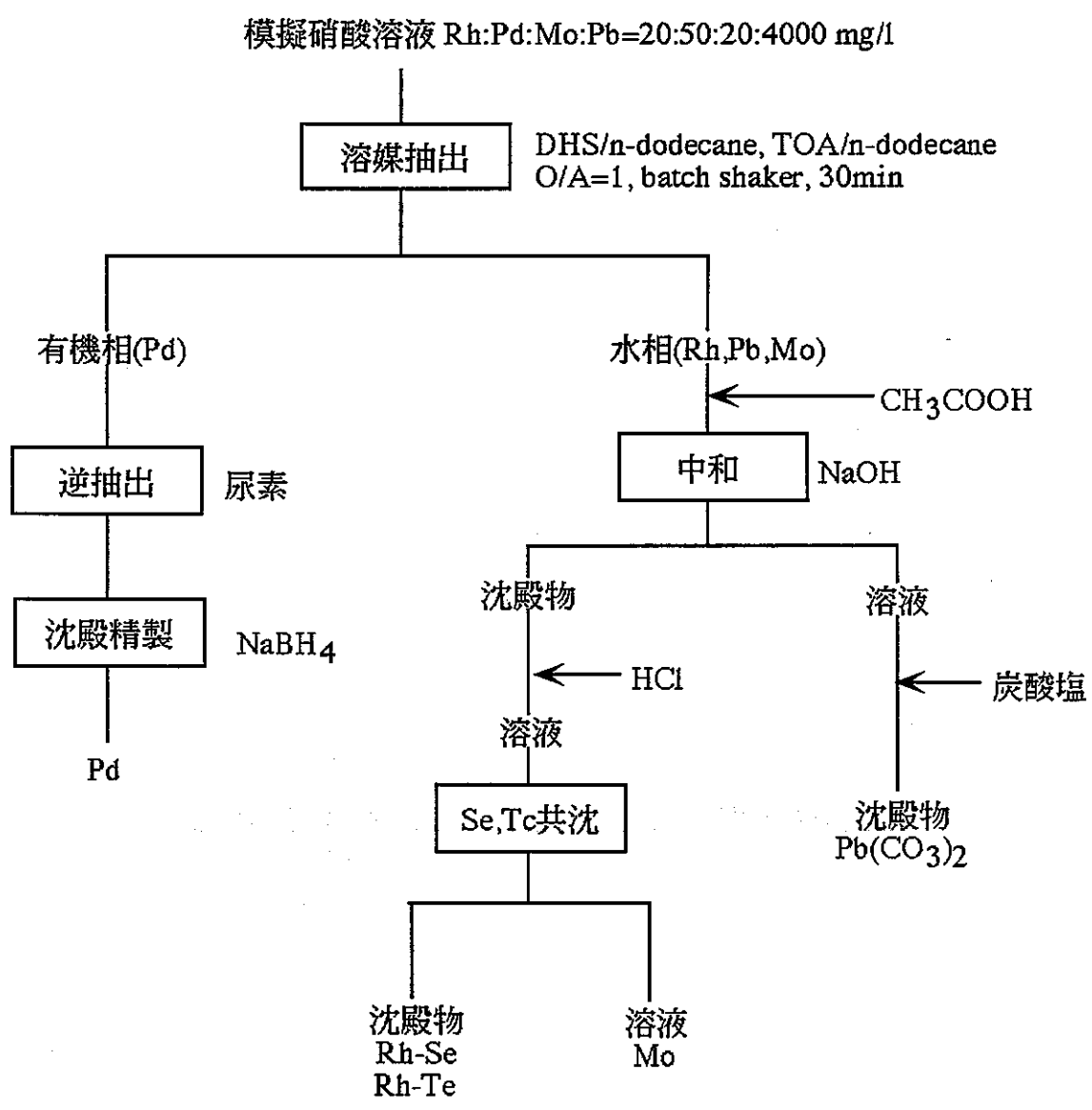


図 1.6.4: 鉛相の硝酸溶解液からの Pd/Rh の相互分離、精製フロー

第 2 章 マイナス要因の極小化

2.1 分離 (元素、同位体) / 加工技術

2.1.1 分離技術評価 (元素)

本項では以下について述べる。

- ・ 分離技術の現状
- ・ 分離フローモデル (1 章で示す 11 種の消滅対象元素の分離について作成)
- ・ 消滅対象元素の分離回収量評価

なお前提として、ここでは湿式分離技術を対象としている。

2.1.1.1 分離技術の現状

(1) 国内外での分離技術

高レベル廃棄物のより合理的な処分システム確立のため、高レベル廃液から目的に応じて元素を分離する技術開発は各国で行われてきている。^[5] 図 2.1.1 に、いわゆる " 湿式群分離技術 " の概念を示す。^{[5],[6]} 当然ながら、図 2.1.1 に示す元素を対象とした研究例は多い。

現状を以下のように示す。

- ・ 表 2.1.1 : TRU 分離技術 (各国で様々な抽出剤を用いたプロセスが開発されている。本技術の詳説が目的ではないので、ここでは概要に留める。) ^{[6],[7]} 等
- ・ 表 2.1.2 : Tc, 白金族分離技術^{[8],[9],[10]} 等
- ・ 表 2.1.3 : Sr, Cs 分離技術^[11]

(2) PNC での技術開発

- ・ 図 2.1.2 : 酸化物燃料をベースとしたアクチニドリサイクルの構成概念^{[12],[13]} (内容については後述。)
- ・ 表 1.6.1 : TRU 以外の元素分離技術 (有用金属の回収, ガラス固化体の減容, メルター操作性向上等の観点から, 白金族, Tc, Mo, Sr, Cs の分離回収技術開発が行われている。)

2.1.1.2 元素の構成

分離フローモデルを述べる前に、使用済み燃料中 FP の元素別構成、分離技術の開発対象である元素、1 章で設定した全消滅対象元素についての量的な関係を示し、以降の参考とする。(使用済み燃料中 FP の計算条件については、1 章と同一である。)

次のように示す。

- ・ 図 2.1.3 : 全 FP 元素の重量構成

(全 FP に対する消滅対象元素, 分離研究例のある元素/オフガス処理系に回収される元素の内訳を合わせて示す。分離研究例のある元素/オフガス処理系に回収される元素は, Sr, Cs, Ru, Pd, Rh, Tc, Ag, Kr, Xe, I である。)

- ・ 図 2.1.4 : 消滅対象元素の重量構成

(以上の内, 分離研究例のある元素/オフガス処理系に回収される元素の内訳を合わせて示す。)

- ・ 図 2.1.5 : 全 FP から分離研究例のある元素/オフガス処理系に回収される元素を除いたものの重量構成

以上より、量的関係の観点から以下が示唆される。

- ・ 消滅対象元素は全 FP 中の約 34%(重量) を占める。(図 2.1.3)
- ・ 消滅対象元素全体の約 67%(重量) は、分離研究例のある元素及びオフガス処理系に回収される元素である。(図 2.1.4)

- ・今回設定した消滅対象元素の内、(選択的にこれらを分離するという意味で)分離研究例のある元素またはオフガス処理系に回収される元素以外の元素は、Zr, Sm, Cd, Sn, Se である。(従ってこれらの元素の分離を検討する必要がある。) (図 2.1.4)
- ・図 2.1.5の元素の内、消滅対象元素は約 22%(重量)を占める。それらは、Zr, Sm が大部分(重量で約 90%)である。
- ・図 2.1.5の元素中では、ランタニド元素(以下、Ln 元素という。)が約 53%(重量)を占める。以下、Mo, Zr, Ba と続く。
- ・消滅対象元素全体として回収率(重量)を上げるには、Cs, Zr, Pd 等(量的に多い元素)の回収率を上げることが寄与する。
- ・Ln 元素からの Sm 分離については重要な検討項目の一つである。(Ln 元素分離のみの場合、Nd, Ce 等の量的に多い元素が同伴することになるため。また、Sm の消滅対象元素全体に占める割合(重量)も約 9%と比較的多い。)

2.1.1.3 分離フローモデル

以上をベースに大略フローとして、分離フローモデルのプロトタイプを構成した。なお、以下を前提としている。

- ・ TRU は分離してリサイクルする。
- ・ TRU 分離については、PNC で検討中の図 2.1.2の概念をベースとする。また、構成に当たって考慮した点を以下に示す。
- ・一つの工程で、できるだけ多種類の元素を分離する。
- ・この時、消滅対象でない元素についても、有用元素の回収及び下流の工程負荷軽減等の観点から分離する。
- ・溶媒抽出を適用する場合は、ベースとした骨格フロー(図 2.1.2)とできるだけ同一の抽出系を用いる。
- ・電解還元で分離できる元素は、可能な限り分離する。

(1) 全消滅対象元素の分離の場合

分離フローモデルを図 2.1.6(1-3)に示す。以下、各ステップの説明を順に述べる。電解還元工程の設置場所については後述する。

(a) ヨウ素分離 オフガス系で回収されたものを、分離回収する。

- ・ヨウ素吸着剤からのヨウ素分離が容易になるような吸着剤の選定、あるいは開発が必要である。
- ・加工技術評価における燃料形態の検討が必要である。
- ・六カ所再処理プラントの設計では、オフガス中ヨウ素のフィルタへの回収率は 99.6^[14]

(b) 不溶解残渣からの Tc, Pd の回収 不溶解残渣中の消滅対象元素(Tc, Pd)を回収する。同時に白金族も回収する。

- ・核燃料技術開発部で開発中の、不溶解残渣からの有用元素回収技術が適用できる。
- ・上記工程概要を図 7 に示す。不溶解残渣からの Tc の回収は現在 R&D の対象とはなっておらず、検討が必要である。
- ・Tc は図 2.1.7の溶媒抽出においては水相に移行する。但し、その上流のオゾン酸化工程及び溶媒抽出後の沈殿工程での移行挙動は不明である。図 2.1.6では本技術をベースとした Tc 分離を想定している。上記 Tc の挙動によっては工程が図 2.1.7より増加する。
- ・不溶解残渣中の燃料の構造材からの元素、Zr, Fe, Cr 等は、鉛抽出されない。^[15]
- ・Ru, Rh は、有効利用あるいはガラス固化する。
- ・Mo は、ガラス固化体の減容の観点からガラス固化体に持ち込まない。
- ・本ステップの簡略化の可能性については後述する。

- ・ 後述のマスバランス評価で重要となる不溶解残渣への元素の移行率について、CPF(Chemical Processing Facility) での試験結果を表 2.1.4 に示す。^[14] 本工程の負荷を減らすために、できるだけ溶解して不溶解残渣の発生を減らすことが望ましい。
- (c) 改良 PUREX 法 ここでは消滅対象元素は分離されないが、工程の概要等を示す。^[15]
- ・ 図 2.1.8 にフロー図を示す。ここでは U, Pu, Np を分離する。
 - ・ DF を 1.0×10^3 程度として精製工程を省略している。
 - ・ Np は原子価を調整して、U/Pu 製品とともに回収する (CPF での試験では、ほぼ 100% の Np が回収されている)。^[16]
 - ・ U, Pu はほぼ完全に回収される (回収率 99.5% 以上)。^[17]
- (d) 改良 TRUEX 法 ここでは Am, Cm を分離する。Am, Cm と同伴する Ln 元素の挙動が、消滅対象元素の一つである Sm (Ln 元素) の分離と関連して重要となる。
- ・ 図 2.1.9 にフロー図を示す。溶媒として CMPO を用いる (TRUEX 法) をベースに改良を加えたフローである。^[18]
 - ・ Ln 元素は、TRUEX 法では Am, Cm 側に移行する。改良 TRUEX 法では Ln 元素をできるだけ製品から除く努力がなされており、SETFICS 法^[18]では La~Nd までの軽い元素については、それらの殆どを除去することに成功している。この場合、本検討の消滅対象元素である Sm は、製品と廃液側にほぼ 1:1 に分かれる結果となっている。^[18]
 - ・ 本検討の場合、まず、本工程で全 Sm をいずれか一方に移行させる方が工程が簡素になり望ましい。いずれに同伴させるかについては FP 中の Ln 元素の重量構成 (図 2.1.3 参照) より、原子番号 Sm 以上の元素量の方が Nd までの元素量に比べて圧倒的に少なく、定性的ではあるが Am, Cm 側に移行させた方が、下流の Ln 元素からの Sm 分離工程 (後述) の負荷は少なくなると思われる。ここでは原子番号で Sm 以上の Ln 元素を製品側に移行させることを想定している。
 - ・ Am, Cm の回収率は、CPF での試験でほぼ 95% 以上が得られている。^[19]
- (e) Am, Cm, Ln 分離 イオン交換、沈殿法、新溶媒による抽出等様々な方法の開発が各国で行なわれている。^[6] ^[20] ここでは前述の議論より、Sm は Cm に同伴して分離されることを想定している。
- (f) Sm 分離 Cm/Ln 元素から Sm を分離する。
- ・ 新規に検討が必要な技術であるが、レアアース間の分離は極めて難しいとされている (レアアースイオン間の化学的挙動が極めて類似しているため)。
 - ・ レアアース製造業界では、鉍石からの工業的精製技術があり、Sm 分離を含む例を図 2.1.10 に示す。長大なプロセスである。^[21]
 - ・ 定性的ではあるが、望ましい分離技術を考察する。レアアース間の分離精製技術を大別すると分別法 (沈殿法、結晶法)、イオン交換法、溶媒抽出法となる。この内、分別法 (沈殿法、結晶法) では精製可能な元素が限られており、Sm の報告例は無いようである。^[21]
 - ・ 溶媒抽出法では幾つかの工業的精製法があるが、数百段のミキサセトラを必要とする。これは、Ln 元素間の分離係数が小さいことに起因している。(表 2.1.5 に TBP-硝酸の分離係数の例を示す。^[21]) 従って、Sm 選択性の非常に高い抽出剤が開発されないと段数が非常に多くなる。
 - ・ イオン交換法は、重希土の系統的な分離には一般に用いられている。^[21] 回収率/精製率向上に対して工程規模が増加するという点では溶媒抽出と同様である。
 - ・ 極めて定性的ではあるが、本工程での取扱い量が他の工程より少ないこと、イオン交換の方が稼働部がなく工程規模が若干小さくなるであろうとの推定から、図 2.1.6 にはイオン交換法を挙げている。
 - ・ なお、ここでは炉側で許容され得る限り Sm を Cm にできるだけ共存させる。(これにより、Sm 分離工程の負荷 (回収率/回収 Sm の純度) を低減させる。また、回収 Sm の純度が同じ条件の

下では、FP 燃料中に装荷する消滅対象元素全体の量を、Cm に同伴させた Sm の分だけ増やせる。)

- (g) 電解還元 電解還元によって分離可能な元素を全て回収する。本技術は再処理技術開発部で開発中である。^{[9] [22] [23]} 酸化還元電位を目安とすると、電解還元で分離可能な元素は消滅対象元素の中では、Tc, Ag, Ru, Rh, Pd である。(これらは既に R&D の対象である。なお、消滅対象元素の内これら以外の元素 Zr, Sr, Cs, Se, Cd, Sn の酸化還元電位は負であることから、本工程での回収は想定していない。)

以下に本工程の概要を示す。

- ・ 定電流電解により、図中の元素を析出させ一括して回収する。
- ・ 定電位電解により、各元素を分別回収する。本工程の適用場所としては、溶解液/改良 PUREX 及び TRUEX のラフィネートと 3 箇所ある。いずれが優れているかは、各々以下に示す利害得失があり決定し難い。
- ・ 溶解液: Tc, Ru, Pd 等クラッド生成や除染上 PUREX 工程で問題となる元素が分離され、PUREX 工程の負荷は減る方向。但し、臨界管理上工程機器の設計は複雑になる。
- ・ 改良 PUREX ラフィネート: Tc, Ru 等除染上 TRUEX 工程で問題となる元素が分離され、TRUEX 工程の負荷は減る方向。臨界管理の観点からの機器設計は上記よりシンプルになる。
- ・ 改良 TRUEX ラフィネート: 臨界管理の観点からの機器設計は上記よりシンプルになる。但し、改良 PUREX 及び TRUEX 工程の負荷は増える方向。

図では、3つのケースについて示している。

- (h) Zr 分離 ここまでのステップで、残る分離対象元素は Cs, Zr が大部分となる。Zr は、PUREX 工程ではスクラップ段で選択的に洗浄(水相に移行させる)している元素であり、他の FP より比較的分配係数が大きいことから、TBP/硝酸系での抽出分離を想定し、ここでまず Zr を分離する。(Nb については、Zr の娘核種であり、半減期も短いので Zr と挙動を同じくすると考えられる。)

- (i) Cs, Sr 分離 次に上記からのラフィネート中の消滅対象核種の内、量の多い Cs, Sr を分離対象とする。

- ・ Cs, Sr の分離研究例は豊富であるが対象が酸性溶液であることから、中和ないし液性をドラスティックに変更する必要のないプロセスが望ましい。(廃棄物や付帯設備の増加を避ける。)
- ・ この観点からの候補については文献^[11]に纏められており、表 2.1.3 はこれらを示している。これらについて経済性評価を行えるレベルにはないが、下流で微量の Se, Cd, Sn 分離を行う必要があるため沈殿法を避け(一部共沈による工程の複雑化の可能性)、ここでは溶媒抽出とイオン交換法のいずれかを想定している。
- ・ 以上の内 Dicarbolid/NB/TCM による溶媒抽出は、Cs, Sr が同一溶媒で抽出でき且つホット試験の実績がある。但し、溶媒/試薬の価格、安全性/取扱い易さ、その系での段数等を考慮して他の方法も含めて総合的に判断する必要がある。(なお、後述の物質収支評価では Dicarbolid/NB/TCM による試験データを使っている。)

- (j) Se, Cd, Sn 分離 最後に Se, Cd, Sn を分離する。再処理の分野ではこれらを特定して選択的に分離する技術開発例は見られず、検討が必要な技術である。Se, Cd, Sn の消滅対象元素全体に占める割合(重量)は、約 3.4% である。

- ・ 取り扱う対象物中(この工程での供給液)の元素構成としては、Mo, Ba が大部分である。一方で、分離対象元素である Se, Cd, Sn の量は極めて少ない。従って、プロセスの負荷削減及びこれらの回収製品の純度を上げるためには、Mo, Ba を前もって分離除去する方が好ましい。
- ・ この工程での供給液を分離しないで又は一部の非消滅対象元素(例えば量の多い Mo, Ba 等)を除去した状態で炉に戻しても成立すれば、これ以上の分離が不要若しくは分離工程での負荷が低減するが、ここでは、全消滅対象元素を分離するフローをまず描くこととする。

- ・ Se, Sn, Cd の溶媒抽出法は幾つかあるようであるが、それらの溶媒抽出操作はかなり複雑であり且つ対象濃度が低い (スループットが増加する)。^[24]
- ・ 沈殿法では分離対象元素量が少なく、一旦固体として扱う場合精製率が低くなりそうである。分離対象外の元素を沈殿させるには (沈殿後の溶液から Se, Cd, Sn を回収)、構成元素の族が広範囲であり、試薬数の増加が見込まれる。
- ・ イオン交換法は、回収率/精製率向上に対して工程規模が増加するという点では Sm 分離の場合と同様である。
- ・ ここでは極めて定性的ではあるが、本工程での取扱い量が他の工程より少ないこと、イオン交換の方が稼働部がなく工程規模が若干小さくなるであろうとの推定等から、図 2.1.6 ではイオン交換法を挙げている。
- ・ 3 元素とも互いに族が異なることから、図 2.1.6 では各元素について別々のイオン交換プロセスを配した図としている。

(k) Se, Cd, Sn 分離以降

- ・ 各イオン交換塔からの溶離液、及び各ステップからのガラス固化対象元素を含む硝酸溶液系以外の液を、濃縮操作可能なように調整する。調整は、各フローの液性が他種類であるほど複雑になる。
- ・ ガラス固化前に除くべき白金族及び Sr, Cs はこれまでのステップで除去されている。Mo が Se, Cd, Sn 分離の段階で分離されていない場合は Mo を除き、ガラス固化体とする。

(l) 他種類の燃料の処理 1 章で想定する各パターンの燃料については、基本的に次のように対応する。

- ・ FP/U,Pu/TRU 混合燃料：図 2.1.6 のラインで処理
- ・ FP 燃料：不溶解残渣は図 2.1.6 と同様に。溶解液は CMPO で Sm を含む Ln 元素の一部あるいは全部を抽出し Sm を分離、ラフィネートは図 2.1.6 と同様のラインで処理。
- ・ 特定 FP 燃料：不溶解残渣は図 2.1.6 と同様に。溶解液は各々相当する FP のラインで処理。
- ・ FP 燃料+U,Pu 燃料 and/or TRU 燃料 一体集合体：FP 燃料は分離してピン剪断。

(m) その他 各元素の回収率を 100% とした場合の、各ステップ毎の元素の構成及び回収した側の元素の構成 (重量) の変化を図 2.1.11 (図 2.1.6 (1/3) の場合) に示す。FP 構成の推移が大略把握できる。

(2) 6 元素の分離の場合

1 章で示す 6 元素を分離する際の分離フローモデルを、図 2.1.12 に示す。図 2.1.6 との違いは以下である。

- ・ Se, Cd, Sn 分離工程が不要になる。
- ・ Sr/Cs 分離工程は Cs 分離のみとなる。

2.1.1.4 物質収支の評価

図 2.1.6 のフローを基に物質収支を計算し、以下を評価する。

- ・ 各消滅対象元素の回収量及び回収率
- ・ 同伴する他の元素量及び回収 FP の純度
- ・ (同伴元素を含む) 分離回収した消滅対象 FP "製品" の量

ここで回収率、純度とは、特定 FP あるいは全消滅対象元素に対して、以下を示す。

回収率 : $\frac{\text{回収した重量}}{\text{処理前の使用済燃料中の重量}}$

純度 : $\frac{\text{回収した重量}}{\text{回収した重量} + \text{同伴元素重量}}$

これは、炉側での計算と合わせて、FP を消滅させるコンセプトの成立性及び現時点での現実的な消滅対象元素の選択等を検討するために行うものである。計算の詳細を表 2.1.6 に示す。表 2.1.7 に結果を纏めたものを示す。各消滅対象元素の回収量/回収率、同伴する他の元素量/回収 FP の純度、(同伴元素を含む) 分離回収した消滅対象 FP "製品" の量は、当然ながら各工程での各元素の移行率に依存し、これらの設定が重要となる。表 2.1.6 の計算では、以下を考慮している。

- ・ 計算対象元素については、初期値 (分離前の使用済燃料の状態) で重量 0.1g 以上の FP については全て物質収支をとっている。これらは 37 種である。
- ・ U, Pu, Np, Am, Cm についても、次の観点から物質収支をとっている。
即ち、これらは改良 PUREX/TRUEX 工程で大部分が分離されるが、多少なりとも消滅対象 FP の”製品”に混入し純度を下げる。特に U, Pu は、元々の存在量自体が FP 元素よりはるかに多いため、ここで回収 FP の純度への影響を評価する。
- ・ 移行率については基本的に、得られるものは実験値/文献値などを基に設定している。
- ・ 電解還元工程の適用箇所は、回収率が小さくなる改良 TRUEX 工程の下流とする。(保守側での評価を行う。)

表 2.1.6 の構成及び計算に用いた移行率を表 2.1.8 に示す。

以上の結果を纏めた表 2.1.7 から、消滅対象元素トータルの結果として以下となった。

- ・ 対象元素の回収率約 82%
- ・ それらの純度約 96%
- ・ 同伴元素も含めた回収物全重量は約 800Kg。

また、表 2.1.7 より次のことが示唆される。

- ・ 全体としての純度及び Cs 分離までの純度は比較的高い。よって、改良 PUREX/TRUEX 工程での U, Pu, Am, Cm の回収率は、“回収 FP の純度” という観点からは現状で十分である。
- ・ Se, Cd, Sn の純度が低い。これは、これらの存在量が共存元素に比べ少ないことによる。ここまでに存在量の多い元素 Mo, Ba を除いておくことが、これらの純度を向上させる。
- ・ Zr, Tc の回収率が低い。これは改良 TRUEX 工程でこれらの約半分が溶媒に留まることを見込んだことによる。(溶媒に留まる量を減少させることが、これらの回収率を向上させる。)

図 2.1.6 は、消滅対象元素全てを高率で回収することを想定した、いわば理想状態のものである。回収率/純度や消滅対象元素を減らせば、当然ながら工程はシンプルになる。表 2.1.7 において移行率を変えて計算を行えば、様々なケースの FP 燃料の組成/量が推定でき、これによって「消滅の対象とする核種」、「炉の成立性/条件」、「分離に必要な工程の規模」との関係フィジビリティスタディを通して評価できる。これについては 4 章に示す。(今回新たに想定したプロセスに関して、移行率の”数値”自体の信頼性の細かい議論は、現時点では余り意味がない(そもそもプロセス自体のデータが無いか不足している)。そのオーダーと回収率/純度に与える影響が重要である。)

2.1.1.5 検討課題

(1) プロセス簡素化の方策

プロセスを簡素化するための課題等について挙げる。

・ 不溶解残渣処理の簡素化

不溶解残渣中では Mo, Tc, Ru, Rh, Pd は金属間結合を形成しており、このことが溶解工程でこれらが溶けない要因である。^[25] 前述の鉛抽出はこれを断ち切る手段として用いている。従って、硝酸溶解後に鉛を除去するか残渣を再溶解して液性を電解還元用に調整できれば、以降は電解還元で処理できる。この場合のフローを図 2.1.13(図 2.1.6(1/3) の場合) に示す。また、さらに簡素な方法は不溶解残渣を発生させない溶解である。

・ 元素分離の簡素化

元素分離においてプロセスを簡素にするには、選択性の高い抽出剤/イオン交換体の開発が必要である。これらには、機能-構造変換ホストによる抽出材の開発(合成の容易な鎖状のプレホストへの金属イオンの配位を利用し、新たな金属イオン捕捉場を組織化しようとするもの)^[26]、分子刷り込み法による高選択性を有するイオン交換樹脂の調整^[27]等、精密な選択性を持たせるための研究が行なわれている。これらにより、“複数の分離対象元素を同時に分離できる”抽出剤/イオン交換体が開発されれば、図 2.1.14 に示した如くシンプル化が図れる。(各々については参考文献を参照。)

(2) 回収率向上

以上に寄与する項目を以下に挙げる。

- ・ Zr, Tc, Ru, Rh の改良 TRUEX 工程での挙動を把握し、ラフィネートへの移行率を上げること。
または、溶媒洗浄工程廃液から回収すること。
- ・ 現行 R&D 項目の回収率/純度の向上。
- ・ Mo, Ba の簡素な回収。

(3) プロセス規模の検討

図 2.1.6におけるプロセス規模を極めてラフに推定する。改良 PUREX 工程を一単位とすると、その概ね 15~20 倍程度の分離工程が付加されると考えられる。(各工程は凡そ次のような規模と推定：有用金属回収 \approx ~4 電解還元 \approx ~2 改良 TRUEX \approx ~2Am/Cm, 希土類分離 \approx ~2 Sm 分離 \approx 1Zr 分離 \approx 1Cs, Sr 分離 \approx ~2Se, Cd, Sn 分離 \approx 3, これらは定量的に厳密なものではない。)

2.1.1.6 その他

Mo の扱いについて補足する。現在、高レベル廃液を濃縮すると Mo は Zr と共沈する他、他の元素も一部沈殿する。(図 2.1.15 参照) [28] ここでこれによる Mo 分離を考慮しなかったのは、他の多数の元素も沈殿と溶液側に別れるので、目的元素の両者からの回収は工程が増えることによる。

2.1.2 同位体分離技術評価

選定した核種のうち同位体がほとんど存在しない⁹⁹Tc以外の核種について原子法による同位体分離の可能性について検討する。原理的にはこれら元素を原子レーザー同位体分離法によって分離することは可能である。ただし、図 2.1.16 に示す同位体シフトと中性子数の関係から見ると、Ba 以下の元素は同位体シフトが小さいため、例えばレーザーウラン濃縮法に準じた方法では十分な同位体選択性を期待できない。しかしながら、円偏光レーザー光によって原子番号が奇数番の核スピンのない同位体とそれ以外のものを分離するスキームがある。(表 2.1.9) この方法によって Sr, Cd, Sn, Sm 等の各元素について同位体分離を行える可能性がある。Se についても⁷⁷Se の生成量が少ないため⁷⁹Se と一緒に分離してしまえば同位体分離を行える可能性がある。Sr については、生産量の多い⁸⁸Sr があるため⁹⁰Sr のみを単独で取り出すことはできない。Zr についても Sr と同様に⁹³Zr のみを分離するのは難しい。他の元素についても同様の考え方で検討することができる。ただし、以上はあくまでも原理的かつ初歩的な検討であり、各元素について遷移確率の高い準位があるか、励起できるレーザーがあるのか、さらには元素の融点、蒸気圧などを調べて総合的に判断する必要がある。

レーザー法で困難なものについては遠心法、イオン交換法、化学法などがある。大量の同位体分離を行うことでは遠心分離法が実用的であるが、取り扱える物質形態、同位体組成などの制約も多い。新しい試みでは、イオンサイクロトロン共鳴加熱による同位体の特定加熱による分離があるが、元素、核種の制約が少ないが、現時点では分離係数が非常に低い。^[29] また、クラウンエーテルによる溶媒抽出で Zr や Cr の同位体分離に成功したとの報告^[30] があるが、これは核スピンによる核のゆがみを利用したもので偶数核と奇数核の分離までしか行えない。今後、これらの方法の適用も検討することが必要と思われる。

現在、有用元素回収のための同位体分離試験研究として¹⁰⁷Pd のレーザー分離試験を行っている。図 2.1.17 に試験装置の概略を示す。円偏光レーザーにより、パラジウムに高い同位体選択性が図 2.1.18 に示すようにある。

なお、ここでの同位体分離は取扱量が多く、かつ放射線レベルの高いものでもあり設備設計を困難なものにすることも考慮せねばならない。

2.1.3 加工技術評価

現在の高速炉用 MOX 燃料ペレットの製造工程は、原料の UO₂ 粉末、MOX 粉末または PuO₂ 粉末を用いて、燃料ペレットを製造する工程である。工程は、原料の秤量-混合-造粒-成形-焼結-検査という手順からなっている。

主要な工程フローを図 2.1.19 に示す。

各工程でのペレット製造設備はグローブボックスという閉じられた系の中で使用され、多量の粉末を取り扱うことから、飛散した粉末が特に設備駆動部に付着しやすく、それが製造工程における原料ロス率の増大の主要な要因となる。

もんじゅ燃料製造においては、平成元年度の製造開始から平成 5 年度にかけてプルトニウムの工程内滞留が顕在化し、平成 5 年度末には原料 Pu 約 1600kg メタルに対して工程内滞留の Pu メタル量が約 70kg (4.3%) にまで達した。

このため、粉末の防止対策として MOX 粉末に適したフィルタ内蔵型サイクロン集粉機を開発し、設備から飛散する粉末を捕集し、捕集した粉末を工程へリサイクルすることにより、有効利用を図るなどの改善を行った。

その結果、平成 8 年度には原料 Pu 約 2200kg メタルに対して工程内滞留の Pu メタル量が約 9.5kg (0.43%) にまで減少した。工程内滞留量はロス量とは異なるものであるが、ロス量を推定する一つの目安になり得る。

今後は、さらなる製造設備のコンパクト化、工程の簡素化等による工程管理技術に加え粉末性状の改良等の高度化を達成し、ロス率の低減に努めていくこととしている。

また、サイクル全体でのロス率の低減化や核燃料資源の有効利用等の観点から、今後、燃料加工においては、マイナーアクチニド (MA) や少量の FP を無理に分離せず、サイクル内に可能な限り閉じ込め、再度核燃料として高速炉で有効に利用して行くことが必須となる。これらの MA や FP を含む燃料の製造では、高線量となり、遮蔽を施してもグローブボックスで行うことは不可能であり、セル構造の施設が前提となる。また、工程内滞留や被ばくが極力抑えられること、加工コストの低減化が期待できる製法であることが求められる。

これらの必要条件を満たす燃料製法の中で最も有望なものとして、振動充填法があげられる。

振動充填法は再処理から得られた Pu, U, MA 等の溶液から直接、顆粒燃料を製造し、これを被覆管内に振動充填して燃料ピンを製造する方法である。基本的な製造フローを図 2.1.20 に示す。振動充填燃料の設計、製造、照射挙動評価については、スイスの PSI 研究所が世界で最も豊富な経験と実績を有しているが、当研究所により数種の模擬 FP を多量に添加した実験が行われ、均質なゲルが生成され、FP や MA などの元素を少なくとも数千 ppm 以上添加してもゲル化プロセスとしては問題ないことの見通しが示されている。参考として、PSI 研究所での顆粒燃料製造プロセスを図 2.1.21 に示す。また、この製法により製造されたガスゲン炉照射用 UO_2 顆粒燃料の金相、SEM 写真を図 2.1.22 に示す。

振動充填法による燃料製造では、従来の MOX 燃料製造で見られるような粉末の飛散、滞留は大幅に減少できることが期待できる反面、湿式工程が主工程となるため、ゲル化に至る廃液、廃油の発生とその処理法の確立が大きな課題となる。振動充填法におけるロス率評価として、各工程における廃棄物形態とその量及び今後の課題について 2.3 に示す。

また、振動充填法に適した顆粒燃料製造技術としては、ゲル化法では先進的湿式 MOX 構想で検討している外部ゲル化法や脱硝粉に適当なバインダーを混入し、転動造粒する方法も考えられる。

2.1.3.1 装荷燃料の形態に関する検討

FP を炉に装荷する場合には、以下のケースが考えられる。現段階では炉心及び径ブランケット域に装荷する場合も完全なターゲット型とするが、ここでは、考慮範囲を広くとる。

装荷領域 炉心或いはブランケット（対象核種により装荷域が異なる）

装荷方式 以下のケースに分類する。

- ・均質ゲル化燃料の場合、FP と Pu/U などを均質に混合した顆粒を製造し、これを振動充填するか、ペレット燃料にして充填する。
- ・不均質ゲル化燃料の場合、Pu/U 顆粒をゲル化法により製造し、これに FP の粉末を加え、それらを混合して振動充填するか、ペレット燃料にして充填する。
- ・ターゲット燃料の場合、FP の酸化物や窒化物等の均一粒子をゲル化法等の湿式法で製造し、これを MgO や MgN などの不活性母材中に均一に分散混合させるか母材中に固溶させたペレット燃料として充填する。

上記の条件のもとに、炉に装荷する際の最適な燃料形態についての検討を行った。

燃料形態としては、酸化物、窒化物、金属等が考えられるが、これらの燃料形態を決める上で重要なポイントとして、FP 化合物が燃料として高い融点と熱伝導率を有すること、SUS 被覆管材の主要構成成分である Fe, Ni, Cr との共存性の良いこと、冷却材である Na との両立性に優れること、再処理時の硝酸溶解性に優れることなどがあげられる。

また、ターゲット燃料の母材には、上記の特性の他に、中性子吸収断面積が小さく、照射時の構造安定性に優れることが求められる。

ここでは、代表的な FP 核種として、Zr, Tc, Pd, I, Cs, Sm, Cd について取り上げ、具体的な燃料形態の選定に当たっての考え方とそれぞれの核種についての候補形態について検討した。

その結果、Tc, Pd については、化学的安定性と SUS 被覆管材との共存性の観点から、それぞれ金属単体の方が化合物系に比べて望ましいと考えられる。

Zr については、被覆管材との良好な共存性に加えて、酸化物の振動充填燃料を装荷燃料とする場合、Zr をこの燃料中に混合することにより、燃料と被覆管との化学的相互作用 (FCCI) による腐食を抑制するために必要な燃料中の O/M をコントロールし、酸素ポテンシャルを低減化させる酸素ゲッターとしての役割も期待できることから金属単体の方が望ましいと考えられる。一方、Zr は硝酸塩を生成することから、均質ゲル化法による振動充填燃料として混合することも可能と考えられる。

I については、化学的安定性の観点から、NaI あるいは CeI_3 などの化合物系が望ましいと考えられる。

Cs と Sm については、室温あるいは約 150 °C の空气中で酸化しやすく、酸化物を生成すること及びこれらの酸化物は、他の化合物に比べて熱物性と化学的安定性に優れるという観点から、酸化物系が望ましいと考えら

れる。

Cdについては、硝酸塩を生成し、また希硝酸に可溶であることから、均質ゲル化法による振動充填燃料として混合することが可能と考えられる。また、熱物性と化学的安定性の観点から、酸化物系も候補として考えられる。

また、ターゲット燃料については、酸化物系と窒化物系の両方が考えられる。熱伝導度や冷却材のNaとの両立性、再処理溶解性の観点からは、酸化物燃料よりも窒化物燃料の方が優れるが、熱物性や化学的安定性の観点からは酸化物系の方が優れる。また、母材の選定に当たっては、母材とFP核種との共存性や母材の照射中の構造安定性などについての評価も重要であるが、これらのデータはほとんど取得されていないため、これらの基礎データを整備して、母材の種類とFP核種との最適な組み合わせを選定することが今後の重要な課題となる。

表 2.1.1: 酸性溶液から 3 価のアクチニドを分離する溶媒抽出法

抽出剤	特徴
酸性有機リン抽出剤	HDEHP <ul style="list-style-type: none"> ・低酸濃度溶液からの抽出が必要 (→脱硝工程等が必要) ・高濃度硝酸溶液での逆抽出 (→製品は高濃度硝酸溶液となる) ・EU/JRC, Chalmers Tech. Univ. (CTHプロセス) 等で回収プロセスとして選定された ・三価アクチニドと希土類の分離を行う方法はTALSPEAK法として知られている
	DIDPA <ul style="list-style-type: none"> ・HDEHPに比べ比較的高い酸濃度で抽出が可能 ・原研で研究開発
中性有機リン抽出剤	TBP <ul style="list-style-type: none"> ・PUREXの抽出条件とは異なり、高濃度のTBP、塩析剤が必要となる。 ・CTHプロセスが適用された
	CMPO <ul style="list-style-type: none"> ・高酸度の溶液から抽出が可能 (→脱硝工程不要) ・TBP及び炭化水素希釈剤と混合して使用 ・ANLで開発、PNCで内部検討中
	TRPO <ul style="list-style-type: none"> ・1M未満の酸濃度の溶液から抽出 ・中国で研究開発
アミド系抽出剤	diamide <ul style="list-style-type: none"> ・CMPOと同様の環境に適用 ・仏/CEAで開発中(DIAMID法)

表 2.1.2: Tc, 白金族の分離

方法	抽出剤等	機関	備考
溶媒抽出法	Alamine 336-TBP/Kerosene	South Carolina大学(米)	Ru,Rhの分離良好。Pdの分配係数1.95
	TBP+硝酸ナトリウム等 高濃度TBP	ORNL(米)	7価のTcを対象
	TOA-CCl ₄	Comenius大学(チェコ)	Tc, Pdの抽出
	第3アミン	UdSSR, DDR	Rhの抽出
	dinonylnaphthalene sulphonic acid	Loughborough大学(英)	Rhの抽出
	パラフィン系炭化水素	化研(株)(日本)	Ruの抽出
溶媒金属抽出法	鉛(鉛抽出法)	PNL, 名古屋大学, PNC等	極微量の白金族を鉱物から回収する唯一の実用的方法 Tcの回収も行う
	溶解マグネシウム	ORNL(米)	溶解Mg中への溶解度の差を利用してRuとPdを分離する
沈殿法(Tcの分離)	HLWをギ酸で脱硝	原研	98%以上のTcを沈殿として回収
	HLWからの水酸化法 による共沈分離	東北大学	
活性炭吸着法	活性炭	原研	Tcの回収
	活性炭+dimethylxym(Pd用)	PNL	Pd,Rh,Ruの回収
	活性炭+phenylthiourea(Rh, Ru用)		
	活性炭 活性炭+dimethylxoxime	Karl Marx大学	Pdの回収
イオン交換法	強弱塩基性陰イオン交換樹脂	SRI	Tcの回収(Sr,Cs分離後のHLWから)
	陰イオン交換樹脂	Hanford	Pd,Rh,Tcの回収(アルカリ性高レベル廃液より)
	抽出クロマトグラフ	Karlsruhe	Ru,Pdの回収
電解還元法		PNC	表2.1.4参照 Ru, Rh, Pd,Tcの回収

表 2.1.3: Cs の分離法

	Reagent	Advantages	Disadvantages	Development status
Precipitation	Phoshotungstic	Insoluble	Solid/liquid separation	Large scale usu at Hanford
Solvent extraction	Crown XVII/TBP	High specific	Crown ethers not commercially available	Inactive laboratory scale trials
Ion exchange	M APM suspension	High specific bed	Toxicity of NB Solid/liquid separation	Fully active pilot trials
	Mordenite	Good specificity; directly converted by calcination to insoluble product	Relatively low loading(15%)	Fully active pilot trials

Crown XVII---bis 4,4'(5)[1-hydroxy-2-ethyl-hexyl]benzo-18-crown-6;
 NNS --- dinonylnaphthalene sulphonic acid;
 TBP --- tributylphosphate
 NB --- nitrobenzene
 TCM --- trichloromethane
 APM --- ammonium phosphomolybdate

Sr の分離法^[1]

Method	Reagent	Advantages	Disadvantages	Development status
Precipitation	Lead sulphate carrier	Insoluble product	Solid/liquid separation	Large scale usu at Hanford
Solvent extraction	Crown XVI/TBP/PEG	High specific	Crown ethers not commercially available	Inactive laboratory scale trials
	Dicarbolid/NB/TCM	High specific	Toxicity of NB Poor loading kinetics; difficult to elute	Fully active pilot trials
Ion exchange	Antimonic acid	Good specificity		
	Mordenite	Good specificity; directly converted by calcination to insoluble product	Relatively low loading(15%)	Fully active pilot trials

Crown XVII---bis 4,4'(5)[1-hydroxyheptyl]cyclohexo-18-crown-6;
 NNS --- dinonylnaphthalene sulphonic acid;
 TBP --- tributylphosphate
 NB --- nitrobenzene
 TCM --- trichloromethane
 PEG --- polyethylene glycol

表 2.1.4: 不溶解残渣への元素の移行
不溶解残渣組成割合

試験 No.	燃料の種類	平均燃焼度 (MWd/t)	溶解条件			不溶解残渣含有元素割合 (W/O)				
			硝酸濃度(M)	溶解温度 (°C)	溶解時間 (hr)	Mo	Pd	Ru	Rh	Tc
5	「常陽」Mk-I 燃料	40100	3.3→1.8	90	10	18.0	6.7	32.2	6.6	9.4
10	「常陽」Mk-II 燃料	31700	3.5→2.7	97	13	22.2	9.0	7.4	7.8	5.2
13	「常陽」Mk-II 燃料 C型特殊燃料	54100	4.4→2.5	104	12	24.2	11.6	20.2	8.5	8.8
16-1	「常陽」Mk-II 燃料 C型特殊燃料	54100	8.7→6.9	115	4	28.1	14.6	2.7	7.0	12.9
16-2			3.5→一定*1	100	8.5	23.2	12.9	3.4	7.0	10.3
16-3			3.5→8.0*1	115	4	28	15.7	3.3	9	12.1
16-4			3.5→8.5*1	95	4	27.6	14.9	3.4	8.5	12.4

注 *1: 溶解時に硝酸溶液を追加して、硝酸濃度を調整した

「常陽」Mk-II C型特殊燃料の残渣中Pu含有量

試験 No.	溶解試験条件		MOX質量(g)		不溶解 残渣 発生量 (g)	不溶解 残渣Pu 含有量 (mg)	Pu含有率(%)	
	硝酸濃度 (M)	溶解温度 (°C)	PuO2	UO2			[残渣中のPu]	[MOX中のPu]
16-1	8.7→6.9	115	31.4	87.5	1.8	7.2		0.023
16-2	3.5→一定*1	100	31.4	87.2	1.7	30.0		0.096
16-3	3.5→8.0*1	115	31.4	87.3	1.7	3.3		0.010
16-4	3.5→8.5*1	95	31.8	88.6	1.7	5.0		0.016

注 *1: 溶解時に硝酸溶液を追加して、硝酸濃度を調整した

表 2.1.5: TBP-硝酸レアアース系での隣接元素間の分離係数
TBP-硝酸レア・アース系での隣接元素間の分離係数
水相: 硝酸レア・アース、有機相: 50%V/V TBP-Shellsol A

水相濃度 Ln2O3 g/l	Ce/La	Pr/Ce	Nd/Pr	Sm/Nd	Gd/Sm	Dy/Gd	Ho/Dy	Er/Ho	Yb/Er
460	1.7	1.75	1.5	2.26	1.01	1.45	0.92	0.96	0.81
430	—	—	—	—	—	1.2	0.96	0.65	—
310	—	—	—	2.04	1.07	1.17	0.94	0.82	—
220	—	—	—	1.55	0.99	1.08	0.89	0.78	—
125	—	—	—	1.58	0.82	0.92	0.83	0.72	—
60	—	—	—	1.4	0.78	0.89	0.77	0.70	0.63

表 2.1.6: 物質収支計算 (1/9)
3年冷却 発生量 (CO+BL)

		前処理工程									
	1. SF	2.溶解液		3.不溶解残渣		4.ヨウ素フィルタ		5.オフガス			
		移行率		移行率		移行率		移行率			
GE	7.03E+01	1.000	7.03E+01	1E-06						1.0000	GE
AS	2.16E+01	1.000	2.16E+01	1E-06						1.0000	AS
SE	2.54E+03	1.000	2.54E+03	1E-06						1.0000	SE
BR	8.18E+02	1E-06		1E-06		0.996	8.15E+02	0.004	3.27E+00		BR
KR	1.59E+04	1E-09		1E-09				1.000	1.59E+04		KR
RB	1.39E+04	1.000	1.39E+04	1E-06						1.0000	RB
SR	3.01E+04	1.000	3.01E+04	1E-06						1.0000	SR
Y	1.66E+04	1.000	1.66E+04	1E-06						1.0000	Y
ZR	1.70E+05	1.000	1.70E+05	1E-06	1.70E-01					1.0000	ZR
NB	2.62E-01	1.000	2.62E-01	1E-06						1.0000	NB
MO	2.05E+05	0.750	1.54E+05	0.250	5.13E+04					1.0000	MO
TC	5.24E+04	0.900	4.72E+04	0.100	5.24E+03					1.0000	TC
RU	1.91E+05	0.970	1.85E+05	0.030	5.73E+03					1.0000	RU
RH	5.92E+04	0.920	5.44E+04	0.080	4.73E+03					1.0000	RH
PD	1.59E+05	0.860	1.37E+05	0.140	2.23E+04					1.0000	PD
AG	1.55E+04	1.000	1.55E+04	1E-06						1.0000	AG
CD	1.30E+04	1.000	1.30E+04	1E-06						1.0000	CD
IN	8.09E+02	1.000	8.09E+02	1E-06						1.0000	IN
SN	1.17E+04	1.000	1.17E+04	1E-06						1.0000	SN
SB	3.34E+03	1.000	3.34E+03	1E-06						1.0000	SB
TE	4.14E+04	1.000	4.14E+04	1E-06						1.0000	TE
I	2.32E+04	1E-06		1E-06		0.996	2.31E+04	0.004	9.28E+01		I
XE	2.96E+05	1E-09		1E-09				1.000	2.96E+05		XE
CS	2.46E+05	1.000	2.46E+05	1E-06	2.46E-01					1.0000	CS
BA	9.67E+04	1.000	9.67E+04	1E-06						1.0000	BA
LA	7.59E+04	1.000	7.59E+04	1E-06						1.0000	LA
CE	1.38E+05	1.000	1.38E+05	1E-06	1.38E-01					1.0000	CE
PR	7.19E+04	1.000	7.19E+04	1E-06						1.0000	PR
ND	2.30E+05	1.000	2.30E+05	1E-06	2.30E-01					1.0000	ND
PM	6.81E+03	1.000	6.81E+03	1E-06						1.0000	PM
SM	6.93E+04	1.000	6.93E+04	1E-06						1.0000	SM
EU	7.70E+03	1.000	7.70E+03	1E-06						1.0000	EU
GD	7.35E+03	1.000	7.35E+03	1E-06						1.0000	GD
TB	5.06E+02	1.000	5.06E+02	1E-06						1.0000	TB
DY	4.29E+02	1.000	4.29E+02	1E-06						1.0000	DY
HO	1.18E+01	1.000	1.18E+01	1E-06						1.0000	HO
ER	1.47E+01	1.000	1.47E+01	1E-06						1.0000	ER
U	2.70E+07	1.000	2.70E+07	1E-06	2.70E+01					1.0000	U
NP	2.25E+04	1.000	2.25E+04	1E-06						1.0000	NP
PU	4.86E+06	1.000	4.86E+06	0.0001	4.86E+02					1.0000	PU
AM	1.77E+05	1.000	1.77E+05	1E-06	1.77E-01					1.0000	AM
CM	3.63E+04	1.000	3.63E+04	1E-06						1.0000	CM

T,He及び初期値E-01未満の元素は無視する。

E-01未満の元素はTRACEとし空欄。

物質収支計算 (2/9)

		白金族回収 (鉛抽出)									
	入量	Ru製品		Tc製品		Pd製品		その他残滓			
		移行率		移行率		移行率		移行率			
GE											GE
AS											AS
SE											SE
BR											BR
KR											KR
RB											RB
SR											SR
Y											Y
ZR	1.70E-01	0.0050	8.52E-04	0.0050	8.52E-04	0.0050	8.52E-04	0.9850	1.68E-01	1.0000	ZR
NB											NB
MO	5.13E+04	0.0050	2.56E+02	0.0050	2.56E+02	0.0050	2.56E+02	0.9850	5.05E+04	1.0000	MO
TC	5.24E+03	0.0050	2.62E+01	0.9850	5.17E+03	0.0050	2.62E+01	0.0050	2.62E+01	1.0000	TC
RU	5.73E+03	0.9850	5.65E+03	0.0050	2.87E+01	0.0050	2.87E+01	0.0050	2.87E+01	1.0000	RU
RH	4.73E+03	0.0050	2.37E+01	0.0050	2.37E+01	0.0050	2.37E+01	0.9850	4.66E+03	1.0000	RH
PD	2.23E+04	0.0050	1.11E+02	0.0050	1.11E+02	0.9850	2.19E+04	0.0050	1.11E+02	1.0000	PD
AG											AG
CD											CD
IN											IN
SN											SN
SB											SB
TE											TE
I											I
XE											XE
CS	2.46E-01	0.0050		0.0050		0.0050		0.9850	2.42E-01	1.0000	CS
BA											BA
LA											LA
CE	1.38E-01	0.0050		0.0050		0.0050		0.9850	1.36E-01	1.0000	CE
PR											PR
ND	2.30E-01	0.0050		0.0050		0.0050		0.9850	2.27E-01	1.0000	ND
PM											PM
SM											SM
EU											EU
GD											GD
TB											TB
DY											DY
HO											HO
ER											ER
U	2.70E+01	0.0050	1.35E-01	0.0050	1.35E-01	0.0050	1.35E-01	0.9850	2.66E+01	1.0000	U
NP											NP
PU	4.86E+02	0.0050	2.43E+00	0.0050		0.0050		0.9850	4.79E+02	1.0000	PU
AM	1.77E-01	0.0050		0.0050		0.0050		0.9850	1.74E-01	1.0000	AM
CM											CM

Ru純度 0.931 Tc純度 0.925 Pd純度 0.985

T,He及び初期値E-01未満の元素は無視する。

E-01未満の元素はTRACEとし空欄。

物質収支計算 (3/9)

改良PUREX							
	Raf.+ Solv. wash		U/Pu		U		
	移行率		移行率		移行率		
GE	0.9990	7.02E+01	0.0009		0.0001		1.0000
AS	0.9990	2.16E+01	0.0009		0.0001		1.0000
SE	0.9990	2.54E+03	0.0009	2.29E+00	0.0001	2.54E-01	1.0000
BR							
KR							
RB	0.9990	1.38E+04	0.0009	1.25E+01	0.0001	1.39E+00	1.0000
SR	0.9990	3.01E+04	0.0009	2.71E+01	0.0001	3.01E+00	1.0000
Y	0.9990	1.65E+04	0.0009	1.49E+01	0.0001	1.66E+00	1.0000
ZR	0.9990	1.70E+05	0.0009	1.53E+02	0.0001	1.70E+01	1.0000
NB	0.9990	2.62E-01	0.0009		0.0001		1.0000
MO	0.9990	1.54E+05	0.0009	1.38E+02	0.0001	1.54E+01	1.0000
TC	0.9990	4.71E+04	0.0009	4.25E+01	0.0001	4.72E+00	1.0000
RU	0.9990	1.85E+05	0.0009	1.67E+02	0.0001	1.85E+01	1.0000
RH	0.9990	5.44E+04	0.0009	4.90E+01	0.0001	5.44E+00	1.0000
PD	0.9990	1.37E+05	0.0009	1.23E+02	0.0001	1.37E+01	1.0000
AG	0.9990	1.55E+04	0.0009	1.40E+01	0.0001	1.55E+00	1.0000
CD	0.9990	1.30E+04	0.0009	1.17E+01	0.0001	1.30E+00	1.0000
IN	0.9990	8.08E+02	0.0009	7.28E-01	0.0001		1.0000
SN	0.9990	1.17E+04	0.0009	1.06E+01	0.0001	1.17E+00	1.0000
SB	0.9990	3.34E+03	0.0009	3.01E+00	0.0001	3.34E-01	1.0000
TE	0.9990	4.14E+04	0.0009	3.73E+01	0.0001	4.14E+00	1.0000
I							
XE							
CS	0.9990	2.46E+05	0.0009	2.21E+02	0.0001	2.46E+01	1.0000
BA	0.9990	9.66E+04	0.0009	8.70E+01	0.0001	9.67E+00	1.0000
LA	0.9990	7.58E+04	0.0009	6.83E+01	0.0001	7.59E+00	1.0000
CE	0.9990	1.38E+05	0.0009	1.24E+02	0.0001	1.38E+01	1.0000
PR	0.9990	7.19E+04	0.0009	6.47E+01	0.0001	7.19E+00	1.0000
ND	0.9990	2.30E+05	0.0009	2.07E+02	0.0001	2.30E+01	1.0000
PM	0.9990	6.80E+03	0.0009	6.13E+00	0.0001	6.81E-01	1.0000
SM	0.9990	6.93E+04	0.0009	6.24E+01	0.0001	6.93E+00	1.0000
EU	0.9990	7.69E+03	0.0009	6.93E+00	0.0001	7.70E-01	1.0000
GD	0.9990	7.34E+03	0.0009	6.62E+00	0.0001	7.35E-01	1.0000
TB	0.9990	5.06E+02	0.0009	4.55E-01	0.0001		1.0000
DY	0.9990	4.28E+02	0.0009	3.86E-01	0.0001		1.0000
HO	0.9990	1.18E+01	0.0009		0.0001		1.0000
ER	0.9990	1.47E+01	0.0009		0.0001		1.0000
U	0.0010	2.70E+04	0.5400	1.46E+07	0.4590	1.24E+07	1.0000
NP	0.0010	2.25E+01	0.9980	2.25E+04	0.0010	2.25E+01	1.0000
PU	0.0010	4.86E+03	0.9980	4.85E+06	0.0010	4.86E+03	1.0000
AM	0.9990	1.77E+05	0.0009	1.59E+02	0.0001	1.77E+01	1.0000
CM	0.9990	3.63E+04	0.0009	3.27E+01	0.0001	3.63E+00	1.0000

注) Pu/U=1/3

E-01未満の元素はTRACEとし空欄。

物質収支計算 (4/9)

改良TUREX										
	Raf.		L-RE		MA/H-RE		Solv. wash			
	移行率		移行率		移行率		移行率			
GE	0.9990	7.01E+01	0.0009		0.0001		0.0000		1.0000	GE
AS	0.9990	2.16E+01	0.0009		0.0001		0.0000		1.0000	AS
SE	0.9990	2.54E+03	0.0009	2.29E+00	0.0001	2.29E-01	0.0000		1.0000	SE
BR										BR
KR										KR
RB	0.9990	1.38E+04	0.0009	1.25E+01	0.0001	1.25E+00	0.0000	1.38E-01	1.0000	RB
SR	0.9990	3.01E+04	0.0009	2.71E+01	0.0001	2.71E+00	0.0000	3.01E-01	1.0000	SR
Y	0.0010	1.65E+01	0.9980	1.65E+04	0.0009	1.49E+01	0.0001	1.65E+00	1.0000	Y
ZR	0.5000	8.51E+04	0.0090	1.53E+03	0.0010	1.70E+02	0.4900	8.34E+04	1.0000	ZR
NB	0.9990	2.61E-01	0.0009		0.0001		0.0000		1.0000	NB
MO	0.9990	1.53E+05	0.0009	1.38E+02	0.0001	1.38E+01	0.0000	1.54E+00	1.0000	MO
TC	0.5000	2.36E+04	0.0090	4.24E+02	0.0010	4.71E+01	0.4900	2.31E+04	1.0000	TC
RU	0.5000	9.26E+04	0.0090	1.67E+03	0.0010	1.85E+02	0.4900	9.07E+04	1.0000	RU
RH	0.5000	2.72E+04	0.0090	4.89E+02	0.0010	5.44E+01	0.4900	2.66E+04	1.0000	RH
PD	0.9990	1.36E+05	0.0009	1.23E+02	0.0001	1.23E+01	0.0000	1.37E+00	1.0000	PD
AG	0.9990	1.55E+04	0.0009	1.40E+01	0.0001	1.40E+00	0.0000	1.55E-01	1.0000	AG
CD	0.9990	1.30E+04	0.0009	1.17E+01	0.0001	1.17E+00	0.0000	1.30E-01	1.0000	CD
IN	0.9990	8.07E+02	0.0009	7.27E-01	0.0001		0.0000		1.0000	IN
SN	0.9990	1.17E+04	0.0009	1.06E+01	0.0001	1.06E+00	0.0000	1.17E-01	1.0000	SN
SB	0.9990	3.34E+03	0.0009	3.01E+00	0.0001	3.01E-01	0.0000		1.0000	SB
TE	0.9990	4.13E+04	0.0009	3.72E+01	0.0001	3.72E+00	0.0000	4.14E-01	1.0000	TE
I										I
XE										XE
CS	0.9990	2.45E+05	0.0009	2.21E+02	0.0001	2.21E+01	0.0000	2.46E+00	1.0000	CS
BA	0.9990	9.65E+04	0.0009	8.69E+01	0.0001	8.69E+00	0.0000	9.66E-01	1.0000	BA
LA	0.0010	7.58E+01	0.9980	7.57E+04	0.0009	6.82E+01	0.0001	7.58E+00	1.0000	LA
CE	0.0010	1.38E+02	0.9980	1.38E+05	0.0009	1.24E+02	0.0001	1.38E+01	1.0000	CE
PR	0.0010	7.19E+01	0.9980	7.17E+04	0.0009	6.47E+01	0.0001	7.19E+00	1.0000	PR
ND	0.0010	2.30E+02	0.9980	2.30E+05	0.0009	2.07E+02	0.0001	2.30E+01	1.0000	ND
PM	0.0010	6.80E+00	0.5000	3.40E+03	0.4950	3.37E+03	0.0040	2.72E+01	1.0000	PM
SM	0.0010	6.93E+01	0.0010	6.93E+01	0.9900	6.86E+04	0.0080	5.54E+02	1.0000	SM
EU	0.0010	7.69E+00	0.0010	7.69E+00	0.9900	7.61E+03	0.0080	6.15E+01	1.0000	EU
GD	0.0010	7.34E+00	0.0010	7.34E+00	0.9900	7.27E+03	0.0080	5.88E+01	1.0000	GD
TB	0.0010	5.06E-01	0.0010	5.06E-01	0.9900	5.01E+02	0.0080	4.04E+00	1.0000	TB
DY	0.0010	4.28E-01	0.0010	4.28E-01	0.9900	4.24E+02	0.0080	3.42E+00	1.0000	DY
HO	0.0010		0.0010		0.9900	1.17E+01	0.0080		1.0000	HO
ER	0.0010		0.0010		0.9900	1.45E+01	0.0080	1.17E-01	1.0000	ER
U	0.0010	2.70E+01	0.0010	2.70E+01	0.0010	2.70E+01	0.9970	2.70E+04	1.0000	U
NP	0.0010		0.0010		0.0010		0.9970	2.25E+01	1.0000	NP
PU	0.0010	4.86E+00	0.0010	4.86E+00	0.9970	4.85E+03	0.0010	4.86E+00	1.0000	PU
AM	0.0010	1.77E+02	0.0010	1.77E+02	0.9970	1.76E+05	0.0010	1.77E+02	1.0000	AM
CM	0.0010	3.63E+01	0.0010	3.63E+01	0.9970	3.61E+04	0.0010	3.63E+01	1.0000	CM

E-01未満の元素はTRACEとし空欄。

物質収支計算 (5/9)

Am/Cm/RE分離										
	(H-RE)		Am		Cm		Sm			
	移行率		移行率		移行率		移行率			
GE										GE
AS										AS
SE	0.9700	2.22E-01	0.0100	2.29E-03	0.0100	2.29E-03	0.0100	2.29E-03	1.0000	SE
BR										BR
KR										KR
RB	0.9700	1.21E+00	0.0100	1.25E-02	0.0100	1.25E-02	0.0100	1.25E-02	1.0000	RB
SR	0.9700	2.63E+00	0.0100	2.71E-02	0.0100	2.71E-02	0.0100	2.71E-02	1.0000	SR
Y	0.9700	1.44E+01	0.0100	1.49E-01	0.0100	1.49E-01	0.0100	1.49E-01	1.0000	Y
ZR	0.9700	1.65E+02	0.0100	1.70E+00	0.0100	1.70E+00	0.0100	1.70E+00	1.0000	ZR
NB	0.9700	0.00E+00	0.0100	0.00E+00	0.0100	0.00E+00	0.0100	0.00E+00	1.0000	NB
MO	0.9700	1.34E+01	0.0100	1.38E-01	0.0100	1.38E-01	0.0100	1.38E-01	1.0000	MO
TC	0.9700	4.57E+01	0.0100	4.71E-01	0.0100	4.71E-01	0.0100	4.71E-01	1.0000	TC
RU	0.9700	1.80E+02	0.0100	1.85E+00	0.0100	1.85E+00	0.0100	1.85E+00	1.0000	RU
RH	0.9700	5.28E+01	0.0100	5.44E-01	0.0100	5.44E-01	0.0100	5.44E-01	1.0000	RH
PD	0.9700	1.19E+01	0.0100	1.23E-01	0.0100	1.23E-01	0.0100	1.23E-01	1.0000	PD
AG	0.9700	1.36E+00	0.0100	1.40E-02	0.0100	1.40E-02	0.0100	1.40E-02	1.0000	AG
CD	0.9700	1.13E+00	0.0100	1.17E-02	0.0100	1.17E-02	0.0100	1.17E-02	1.0000	CD
IN	0.9700	0.00E+00	0.0100	0.00E+00	0.0100	0.00E+00	0.0100	0.00E+00	1.0000	IN
SN	0.9700	1.02E+00	0.0100	1.06E-02	0.0100	1.06E-02	0.0100	1.06E-02	1.0000	SN
SB	0.9700	2.92E-01	0.0100	3.01E-03	0.0100	3.01E-03	0.0100	3.01E-03	1.0000	SB
TE	0.9700	3.61E+00	0.0100	3.72E-02	0.0100	3.72E-02	0.0100	3.72E-02	1.0000	TE
I										I
XE										XE
CS	0.9700	2.14E+01	0.0100	2.21E-01	0.0100	2.21E-01	0.0100	2.21E-01	1.0000	CS
BA	0.9700	8.43E+00	0.0100	8.69E-02	0.0100	8.69E-02	0.0100	8.69E-02	1.0000	BA
LA	0.9700	6.62E+01	0.0100	6.82E-01	0.0100	6.82E-01	0.0100	6.82E-01	1.0000	LA
CE	0.9700	1.20E+02	0.0100	1.24E+00	0.0100	1.24E+00	0.0100	1.24E+00	1.0000	CE
PR	0.9700	6.27E+01	0.0100	6.47E-01	0.0100	6.47E-01	0.0100	6.47E-01	1.0000	PR
ND	0.9700	2.01E+02	0.0100	2.07E+00	0.0100	2.07E+00	0.0100	2.07E+00	1.0000	ND
PM	0.9300	3.13E+03	0.0100	3.37E+01	0.0100	3.37E+01	0.0500	1.68E+02	1.0000	PM
SM	0.0100	6.86E+02	0.0100	6.86E+02	0.0200	1.37E+03	0.9700	6.65E+04	1.0100	SM
EU	0.9600	7.31E+03	0.0100	7.61E+01	0.0200	1.52E+02	0.0500	3.81E+02	1.0400	EU
GD	0.9600	6.98E+03	0.0100	7.27E+01	0.0200	1.45E+02	0.0100	7.27E+01	1.0000	GD
TB	0.9700	4.86E+02	0.0100	5.01E+00	0.0100	5.01E+00	0.0100	5.01E+00	1.0000	TB
DY	0.9700	4.11E+02	0.0100	4.24E+00	0.0100	4.24E+00	0.0100	4.24E+00	1.0000	DY
HO	0.9700	1.13E+01	0.0100	1.17E-01	0.0100	1.17E-01	0.0100	1.17E-01	1.0000	HO
ER	0.9700	1.41E+01	0.0100	1.45E-01	0.0100	1.45E-01	0.0100	1.45E-01	1.0000	ER
U	0.9700	2.62E+01	0.0100	2.70E-01	0.0100	2.70E-01	0.0100	2.70E-01	1.0000	U
NP										NP
PU	0.9700	4.70E+03	0.0100	4.85E+01	0.0100	4.85E+01	0.0100	4.85E+01	1.0000	PU
AM	0.0100	1.76E+03	0.9500	1.67E+05	0.0100	1.76E+03	0.0300	5.28E+03	1.0000	AM
CM	0.0100	3.61E+02	0.0100	3.61E+02	0.9500	3.43E+04	0.0300	1.08E+03	1.0000	CM

Am純度 0.9922967 Cm純度 0.9067699 Sm純度 0.9041003

E-01未満の元素はTRACEとし空欄。

物質収支計算 (6/9)

電解還元									
	母液		Pd		Tc		Ru/Rh/Ag		
	移行率		移行率		移行率		移行率		
GE	0.9970	6.99E+01	0.0010		0.0010		0.0010		1.0000
AS	0.9970	2.15E+01	0.0010		0.0010		0.0010		1.0000
SE	0.9970	2.53E+03	0.0010	2.54E+00	0.0010	2.54E+00	0.0010	2.54E+00	1.0000
BR	0.9970								0.9970
KR	0.9970								0.9970
RB	0.9970	1.38E+04	0.0010	1.38E+01	0.0010	1.38E+01	0.0010	1.38E+01	1.0000
SR	0.9970	3.00E+04	0.0010	3.01E+01	0.0010	3.01E+01	0.0010	3.01E+01	1.0000
Y	0.9970	1.65E+01	0.0010		0.0010		0.0010		1.0000
ZR	0.9970	8.48E+04	0.0010	8.51E+01	0.0010	8.51E+01	0.0010	8.51E+01	1.0000
NB	0.9970	2.61E-01	0.0010		0.0010		0.0010		1.0000
MO	0.9970	1.53E+05	0.0010	1.53E+02	0.0010	1.53E+02	0.0010	1.53E+02	1.0000
TC	0.0480	1.13E+03	0.0010	2.36E+01	0.9500	2.24E+04	0.0010	2.36E+01	1.0000
RU	0.0280	2.59E+03	0.0010	9.26E+01	0.0010	9.26E+01	0.9700	8.98E+04	1.0000
RH	0.0980	2.66E+03	0.0010	2.72E+01	0.0010	2.72E+01	0.9000	2.45E+04	1.0000
PD	0.0480	6.55E+03	0.9500	1.30E+05	0.0010	1.36E+02	0.0010	1.36E+02	1.0000
AG	0.1780	2.76E+03	0.0010	1.55E+01	0.0010	1.55E+01	0.8200	1.27E+04	1.0000
CD	0.9970	1.29E+04	0.0010	1.30E+01	0.0010	1.30E+01	0.0010	1.30E+01	1.0000
IN	0.9970	8.05E+02	0.0010	8.07E-01	0.0010	8.07E-01	0.0010	8.07E-01	1.0000
SN	0.9970	1.17E+04	0.0010	1.17E+01	0.0010	1.17E+01	0.0010	1.17E+01	1.0000
SB	0.9970	3.33E+03	0.0010	3.34E+00	0.0010	3.34E+00	0.0010	3.34E+00	1.0000
TE	0.9970	4.12E+04	0.0010	4.13E+01	0.0010	4.13E+01	0.0010	4.13E+01	1.0000
I									
XE									
CS	0.9970	2.45E+05	0.0010	2.45E+02	0.0010	2.45E+02	0.0010	2.45E+02	1.0000
BA	0.9970	9.62E+04	0.0010	9.65E+01	0.0010	9.65E+01	0.0010	9.65E+01	1.0000
LA	0.9970	7.56E+01	0.0010		0.0010		0.0010		1.0000
CE	0.9970	1.38E+02	0.0010	1.38E-01	0.0010	1.38E-01	0.0010	1.38E-01	1.0000
PR	0.9970	7.16E+01	0.0010		0.0010		0.0010		1.0000
ND	0.9970	2.29E+02	0.0010	2.30E-01	0.0010	2.30E-01	0.0010	2.30E-01	1.0000
PM	0.9970	6.78E+00	0.0010		0.0010		0.0010		1.0000
SM	0.9970	6.90E+01	0.0010		0.0010		0.0010		1.0000
EU	0.9970	7.67E+00	0.0010		0.0010		0.0010		1.0000
GD	0.9970	7.32E+00	0.0010		0.0010		0.0010		1.0000
TB	0.9970	5.04E-01	0.0010		0.0010		0.0010		1.0000
DY	0.9970	4.27E-01	0.0010		0.0010		0.0010		1.0000
HO									
ER									
U	0.9970	2.70E+01	0.0010		0.0010		0.0010		1.0000
NP									
PU	0.9970	4.85E+00	0.0010		0.0010		0.0010		1.0000
AM	0.9970	1.76E+02	0.0010	1.77E-01	0.0010	1.77E-01	0.0010	1.77E-01	1.0000
CM	0.9970	3.61E+01	0.0010		0.0010		0.0010		1.0000

0.9934365

0.9585152

E-01未満の元素はTRACEとし空欄。

物質収支計算 (7/9)

Zr抽出						
	Raf.		Zr			
	移行率		移行率			
GE	0.9990	6.98E+01	0.0010		1.0000	GE
AS	0.9990	2.15E+01	0.0010		1.0000	AS
SE	0.9990	2.53E+03	0.0010	2.53E+00	1.0000	SE
BR						BR
KR						KR
RB	0.9990	1.38E+04	0.0010	1.38E+01	1.0000	RB
SR	0.9990	2.99E+04	0.0010	3.00E+01	1.0000	SR
Y	0.9990	1.65E+01	0.0010		1.0000	Y
ZR	0.1000	8.48E+03	0.9000	7.63E+04	1.0000	ZR
NB	0.9990	2.60E-01	0.0010		1.0000	NB
MO	0.9990	1.53E+05	0.0010	1.53E+02	1.0000	MO
TC	0.5000	5.66E+02	0.5000	5.66E+02	1.0000	TC
RU	0.5000	1.30E+03	0.5000	1.30E+03	1.0000	RU
RH	0.9990	2.66E+03	0.0010	2.66E+00	1.0000	RH
PD	0.9990	6.54E+03	0.0010	6.55E+00	1.0000	PD
AG	0.9990	2.76E+03	0.0010	2.76E+00	1.0000	AG
CD	0.9990	1.29E+04	0.0010	1.29E+01	1.0000	CD
IN	0.9990	8.04E+02	0.0010	8.05E-01	1.0000	IN
SN	0.9990	1.17E+04	0.0010	1.17E+01	1.0000	SN
SB	0.9990	3.32E+03	0.0010	3.33E+00	1.0000	SB
TE	0.9990	4.12E+04	0.0010	4.12E+01	1.0000	TE
I						I
XE						XE
CS	0.9990	2.44E+05	0.0010	2.45E+02	1.0000	CS
BA	0.9990	9.61E+04	0.0010	9.62E+01	1.0000	BA
LA	0.9990	7.55E+01	0.0010		1.0000	LA
CE	0.9990	1.37E+02	0.0010	1.38E-01	1.0000	CE
PR	0.9990	7.16E+01	0.0010		1.0000	PR
ND	0.9990	2.29E+02	0.0010	2.29E-01	1.0000	ND
PM	0.9990	6.78E+00	0.0010		1.0000	PM
SM	0.9990	6.90E+01	0.0010		1.0000	SM
EU	0.9990	7.66E+00	0.0010		1.0000	EU
GD	0.9990	7.32E+00	0.0010		1.0000	GD
TB	0.9990	5.04E-01	0.0010		1.0000	TB
DY	0.9990	4.26E-01	0.0010		1.0000	DY
HO	0.9990		0.0010		1.0000	HO
ER	0.9990		0.0010		1.0000	ER
U	0.1000	2.70E+00	0.9000	2.43E+01	1.0000	U
NP	0.9990	0.00E+00	0.0010	0.00E+00	1.0000	NP
PU	0.1000	4.85E-01	0.9000	4.36E+00	1.0000	PU
AM	0.9990	1.76E+02	0.0010	1.76E-01	1.0000	AM
CM	0.9990	3.61E+01	0.0010	3.61E-02	1.0000	CM

Zr 0.9681314

物質収支計算 (8/9)

Sr/Cs分離								
	Raf.+ Solv. wash		Sr		Cs			
	移行率		移行率		移行率			
GE	0.9970	6.96E+01	0.0020		0.0010		1.0000	GE
AS	0.9970	2.14E+01	0.0020		0.0010		1.0000	AS
SE	0.9970	2.52E+03	0.0020	5.06E+00	0.0010	2.53E+00	1.0000	SE
BR								BR
KR								KR
RB	0.9970	1.37E+04	0.0020	2.75E+01	0.0010	1.38E+01	1.0000	RB
SR	0.0500	1.50E+03	0.9400	2.81E+04	0.0100	2.99E+02	1.0000	SR
Y	0.9970	1.64E+01	0.0020		0.0010		1.0000	Y
ZR	0.9970	8.46E+03	0.0020	1.70E+01	0.0010	8.48E+00	1.0000	ZR
NB	0.9970	2.60E-01	0.0020		0.0010		1.0000	NB
MO	0.9970	1.52E+05	0.0020	3.06E+02	0.0010	1.53E+02	1.0000	MO
TC	0.9970	5.64E+02	0.0020	1.13E+00	0.0010	5.66E-01	1.0000	TC
RU	0.9970	1.29E+03	0.0020	2.59E+00	0.0010	1.30E+00	1.0000	RU
RH	0.9970	2.65E+03	0.0020	5.32E+00	0.0010	2.66E+00	1.0000	RH
PD	0.9970	6.52E+03	0.0020	1.31E+01	0.0010	6.54E+00	1.0000	PD
AG	0.9970	2.75E+03	0.0020	5.52E+00	0.0010	2.76E+00	1.0000	AG
CD	0.9970	1.29E+04	0.0020	2.59E+01	0.0010	1.29E+01	1.0000	CD
IN	0.9970	8.02E+02	0.0020	1.61E+00	0.0010	8.04E-01	1.0000	IN
SN	0.9970	1.16E+04	0.0020	2.33E+01	0.0010	1.17E+01	1.0000	SN
SB	0.9970	3.31E+03	0.0020	6.65E+00	0.0010	3.32E+00	1.0000	SB
TE	0.9970	4.10E+04	0.0020	8.23E+01	0.0010	4.12E+01	1.0000	TE
I								I
XE								XE
CS	0.0500	1.22E+04	0.0100	2.44E+03	0.9400	2.30E+05	1.0000	CS
BA	0.9970	9.58E+04	0.0020	1.92E+02	0.0010	9.61E+01	1.0000	BA
LA	0.9970	7.53E+01	0.0020	1.51E-01	0.0010		1.0000	LA
CE	0.9970	1.37E+02	0.0020	2.75E-01	0.0010	1.37E-01	1.0000	CE
PR	0.9970	7.14E+01	0.0020	1.43E-01	0.0010		1.0000	PR
ND	0.9970	2.29E+02	0.0020	4.59E-01	0.0010	2.29E-01	1.0000	ND
PM	0.9970	6.76E+00	0.0020		0.0010		1.0000	PM
SM	0.9970	6.88E+01	0.0020	1.38E-01	0.0010		1.0000	SM
EU	0.9970	7.64E+00	0.0020		0.0010		1.0000	EU
GD	0.9970	7.29E+00	0.0020		0.0010		1.0000	GD
TB	0.9970	5.02E-01	0.0020		0.0010		1.0000	TB
DY	0.9970	4.25E-01	0.0020		0.0010		1.0000	DY
HO	0.9970		0.0020		0.0010		1.0000	HO
ER	0.9970		0.0020		0.0010		1.0000	ER
U	0.9970	2.69E+00	0.0020		0.0010		1.0000	U
NP	0.9970		0.0020		0.0010		1.0000	NP
PU	0.9970	4.83E-01	0.0020		0.0010		1.0000	PU
AM	0.9970	1.75E+02	0.0020		0.0010		1.0000	AM
CM	0.9970	3.60E+01	0.0020		0.0010		1.0000	CM

E-01未満の元素はTRACEとし空欄。

物質収支計算 (9/9)

イオン交換分離									
	廃液		Se		Cd		Sn		
	移行率		移行率		移行率		移行率		
GE	0.9700	6.75E+01	0.0100		0.0100		0.0100		GE
AS	0.9700	2.08E+01	0.0100		0.0100		0.0100		AS
SE	0.0100	2.52E+01	0.9700	2.45E+03	0.0100	2.52E+01	0.0100	2.52E+01	1.0000
BR									BR
KR									KR
RB	0.9700	1.33E+04	0.0100	1.37E+02	0.0100	1.37E+02	0.0100	1.37E+02	1.0000
SR	0.9700	1.45E+03	0.0100	1.50E+01	0.0100	1.50E+01	0.0100	1.50E+01	1.0000
Y	0.9700	1.59E+01	0.0100	1.64E-01	0.0100	1.64E-01	0.0100	1.64E-01	1.0000
ZR	0.9700	8.20E+03	0.0100	8.46E+01	0.0100	8.46E+01	0.0100	8.46E+01	1.0000
NB	0.9700	2.52E-01	0.0100		0.0100		0.0100		1.0000
MO	0.9700	1.48E+05	0.0100	1.52E+03	0.0100	1.52E+03	0.0100	1.52E+03	1.0000
TC	0.9700	5.47E+02	0.0100	5.64E+00	0.0100	5.64E+00	0.0100	5.64E+00	1.0000
RU	0.9700	1.25E+03	0.0100	1.29E+01	0.0100	1.29E+01	0.0100	1.29E+01	1.0000
RH	0.9700	2.57E+03	0.0100	2.65E+01	0.0100	2.65E+01	0.0100	2.65E+01	1.0000
PD	0.9700	6.33E+03	0.0100	6.52E+01	0.0100	6.52E+01	0.0100	6.52E+01	1.0000
AG	0.9700	2.67E+03	0.0100	2.75E+01	0.0100	2.75E+01	0.0100	2.75E+01	1.0000
CD	0.0100	1.29E+02	0.0100	1.29E+02	0.9700	1.25E+04	0.0100	1.29E+02	1.0000
IN	0.9700	7.78E+02	0.0100	8.02E+00	0.0100	8.02E+00	0.0100	8.02E+00	1.0000
SN	0.0100	1.16E+02	0.0100	1.16E+02	0.0100	1.16E+02	0.9700	1.13E+04	1.0000
SB	0.9700	3.21E+03	0.0100	3.31E+01	0.0100	3.31E+01	0.0100	3.31E+01	1.0000
TE	0.9700	3.98E+04	0.0100	4.10E+02	0.0100	4.10E+02	0.0100	4.10E+02	1.0000
I									I
XE									XE
CS	0.9700	1.19E+04	0.0100	1.22E+02	0.0100	1.22E+02	0.0100	1.22E+02	1.0000
BA	0.9700	9.30E+04	0.0100	9.58E+02	0.0100	9.58E+02	0.0100	9.58E+02	1.0000
LA	0.9700	7.30E+01	0.0100	7.53E-01	0.0100	7.53E-01	0.0100	7.53E-01	1.0000
CE	0.9700	1.33E+02	0.0100	1.37E+00	0.0100	1.37E+00	0.0100	1.37E+00	1.0000
PR	0.9700	6.92E+01	0.0100	7.14E-01	0.0100	7.14E-01	0.0100	7.14E-01	1.0000
ND	0.9700	2.22E+02	0.0100	2.29E+00	0.0100	2.29E+00	0.0100	2.29E+00	1.0000
PM	0.9700	6.55E+00	0.0100		0.0100		0.0100		1.0000
SM	0.9700	6.67E+01	0.0100	6.88E-01	0.0100	6.88E-01	0.0100	6.88E-01	1.0000
EU	0.9600	7.33E+00	0.0100		0.0100		0.0100		0.9900
GD	0.9600	7.00E+00	0.0100		0.0100		0.0100		0.9900
TB	0.9700	4.87E-01	0.0100		0.0100		0.0100		1.0000
DY	0.9700	4.12E-01	0.0100		0.0100		0.0100		1.0000
HO									0.0000
ER									0.0000
U	0.9700	2.61E+00	0.0100		0.0100		0.0100		1.0000
NP									NP
PU	0.9700	4.69E-01	0.0100		0.0100		0.0100		1.0000
AM	0.9700	1.70E+02	0.0100	1.75E+00	0.0100	1.75E+00	0.0100	1.75E+00	1.0000
CM	0.9700	3.49E+01	0.0100	3.60E-01	0.0100	3.60E-01	0.0100	3.60E-01	1.0000

Se純度 0.3990244 Cd純度 0.7773845 Sn純度 0.7585697

E-01未満の元素はTRACEとし空欄。

表 2.1.7: 物質収支計算結果

消滅対象元素	燃料中の量 (g)	回収元素量 (g)	回収率 (%)	同伴元素量 (g)	純度(-) (%)	回収物全量 (g)
I	2.32E+04	2.31E+04	9.96E-01	8.15E+02	9.66E-01	2.39E+04
Tc(残渣中)	5.24E+03	5.17E+03	9.85E-01	4.20E+02	9.25E-01	5.59E+03
Tc(溶液中)	4.72E+04	2.24E+04	9.50E-01	9.69E+02	9.59E-01	2.34E+04
Tc(全体)	5.24E+04	2.76E+04	5.26E-01	1.39E+03	9.52E-01	2.90E+04
Pd(残渣中)	2.23E+04	2.19E+04	9.85E-01	3.35E+02	9.85E-01	2.23E+04
Pd(溶液中)	1.36E+05	1.30E+05	9.50E-01	8.56E+02	9.93E-01	1.30E+05
Pd(全体)	1.59E+05	1.52E+05	9.53E-01	1.19E+03	9.92E-01	1.53E+05
Sm	6.93E+04	6.65E+04	9.59E-01	7.05E+03	9.04E-01	7.36E+04
Zr	1.70E+05	7.63E+04	4.48E-01	2.51E+03	9.68E-01	7.89E+04
Cs	2.46E+05	2.30E+05	9.34E-01	6.57E+02	9.97E-01	2.30E+05
Sr	3.01E+04	2.81E+04	9.34E-01	3.16E+03	8.99E-01	3.13E+04
Se	2.54E+03	2.45E+03	9.61E-01	3.68E+03	3.99E-01	6.13E+03
Cd	1.30E+04	1.25E+04	9.61E-01	3.58E+03	7.77E-01	1.61E+04
Sn	1.17E+04	1.13E+04	9.61E-01	3.59E+03	7.59E-01	1.49E+04
合計	7.78E+05	6.29E+05	8.09E-01	2.76E+04	9.58E-01	6.57E+05

表 2.1.8: 物質収支計算に用いた移行率 (1/2)

工程	対象元素	設定値	備考
不溶解残渣への移行(表7-1)	Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Pu	Mo-0.25, Tc-0.1, Ru-0.03, Rh0.08, Pd-0.14, Pu-0.0001	CPF試験結果 ^[14] を基に設定。
	希ガス Xe, Kr	1.0E-09	表2.1.8では、0.1g未満はTrace量として記載していない。(以下、表2.1.8について同様。)
	上記以外の元素	1.0E-06	液として残渣に同伴することを想定。同伴量が0.1g以上の元素はCs, Ce, Nd, U, Amである。
溶解液への移行(表7-1)	Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Pu	各々について [1.0-不溶解残渣への移行率]	不溶解残渣へ移行しないものは、溶解液に移行する。
	希ガス Xe, Kr	1.0E-09	
	I, Br	1.0E-06	BrはIと同族(7A)であることよりIと同様の挙動を想定。
	上記以外の元素	1.0	
ヨウ素フィルタへの移行(表7-1)	I, B	0.996	文献 ^[13] より。 BrはIと同族(7A)であることよりIと同様の挙動を想定。
	上記以外の元素	0.0	
7741への移行(表7-1)	I, B	0.004	1.0-ヨウ素フィルタでの吸着率
	希ガス Xe, Kr	1.0	不溶解残渣及び溶解液への移行が0.1g未満であり、結果的に1.0が7741へ移行することになる。
不溶解残渣からの(表7-2)	Mo, Tc, Ru, Rh, Pd	0.985	他3カ所への液としての同伴[0.05×3]を除いたもの。
	ここでの全元素(上記及びCs, Ce, Nd, U, Am)	他への同伴率0.005	液として他に同伴することを想定。
改良PUREX(表7-3)	U, Pu, Np	ラフィネートへの移行率0.001	
	Am, Cm	ラフィネートへの移行率0.999	DFのオーダーが1.0E-09(改良PUREXの設定値)及び改良PUREX法試験結果等をベース
	FP	Uへの移行率0.0001, Puへの移行率0.0009	

物質収支計算に用いた移行率 (2/2)

工程	元素	設定値等	備考
改良TRUEX (表7-4)	レアアース	Y, La~Nd: Ln廃液へ0.998, Am/Cm閉へ0.0009, ラフィネートへ0.001 Sm~Er: Ln廃液へ0.001, Am/Cm閉へ0.99, ラフィネートへ0.001 Pm: Ln廃液へ0.5, Am/Cm閉へ0.495, ラフィネートへ0.001	本文Sm分離に関する議論より。 Pmは中間的な挙動を想定。
	Zr, Tc, Ru, Rh	ラフィネートへ0.5, 溶媒洗浄工程へ0.49, Ln廃液へ0.0009, Am/Cm閉へ0.0001	溶媒からのスクラップが他元素より困難な ことを想定。
	他の元素	Ln廃液へ0.0009, Am/Cm閉へ0.0001, ラフィネートへ0.999	改良TRUEX法試験結果等をベース
Am, Cm, RE分離 (表7-5)	Sm	回収率0.97	他3カ所への同伴[0.01×3]を除いたもの。
	Eu, Pm	Smへの同伴0.05	周期表上のSmの両隣の元素及びAm, Cmに ついて他元素より多い同伴を想定。
	Am, Cm	Smへの同伴0.03	
	他の元素	Smへの同伴0.01	
電解還元 (表7-6)	Tc, Ru, Rh, Pd, Ag	回収率: Tc-0.95, Ru-0.97, Rh-0.9, Pd-0.95, Ag-0.82	PNC試験結果を基に設定。
	ここでの上記を 含む全元素	他への同伴率0.001	
Zr分離 (表7-7)	Zr	回収率0.9	
	U, Pu	Zrへの同伴率0.9	Zrと同様に抽出される。
	Tc, Ru	Zrへの同伴率0.5	PUREXプロセスで溶媒に移行しやすい傾向がある ことより。
	他の元素	Zrへの同伴率0.01	
Cs, Sr分離工 程(表7-8)	Cs, Sr		
Se, Cd, Sn分離 工程(表7-9)	Se, Cd, Sn	回収率0.97	
	ここでの上記を 含む全元素	他への同伴率0.01	

表 2.1.9: 核変換対象核種の円偏光を用いたレーザー同位体分離関連データ (1/3)

元素	質量数	同位体組成 (%)	核スピン	イオン化ポテンシャル	融点 (°C)	沸点 (°C)
Se	76	4.33×10^2	0	9.75eV	221	685
	77	3.39	1/2			
	78	6.58	0			
	79	13.8	7/2			
	80	21.9	0			
	82	54.4	0			
Sr	86	0.407	0	5.695eV	770	1384
	87	3.56×10^1	9/2			
	88	40.7	0			
	89	2.24×10^2	0			
	90	58.9	0			
Zr	90	0.693	0	6.84eV	1870	4377
	91	13.5	5/2			
	92	16.3	0			
	93	20.3	0			
	94	22.3	0			
	95	3.97×10^2	0			
Nb	93	8.59×10^1	9/2	6.88eV	2467	4740
	93m	4.45×10^4	9/2			
	94	0.191	0			
	95	99.7	0			
	95m	3.38×10^2	0			
Pd	104	4.09	0	8.336eV	1552	2200
	105	30.1	5/2			
	106	25.9	0			
	107	19.4	5/2			
	108	15.9	0			
	110	4.70	0			

核変換対象核種に関する円偏光を用いたレーザー同位体分離関連データ (2/3)

元素	質量数	同位体組成 (%)	核スピン	イオン化ポテンシャル	融点 (°C)	沸点 (°C)
Cd	108	2.22×10^3	0	8.994eV	321	764
	109	1.61×10^3	5/2			
	110	9.50	0			
	111	33.4	1/2			
	112	21.7	0			
	113	14.9	1/2			
	113m	0.275	11/2			
	114	11.7	0			
	115m	1.98×10^4	11/2			
	116	8.53	0			
Sn	114	1.57×10^3	0	7.342eV	232	2260
	115	0.427	1/2			
	116	5.06	0			
	117	9.38	1/2			
	118	9.64	0			
	119	9.65	1/2			
	119m	1.71×10^2	3/2			
	120	9.67	0			
	121m	1.04×10^2	0			
	122	10.5	0			
	123	5.83×10^2	0			
124	14.8	0				
126	30.7	0				
I	127	44.05	5/2	10.454eV	113.6	183
	129	55.95	7/2			

核変換対象核種に関する円偏光を用いたレーザー同位体分離関連データ (3/3)

元素	質量数	同位体組成 (%)	核スピン	イオン化ポテンシャル	融点 (°C)	沸点 (°C)
Cs	133	31.7	7/2	3.893eV	28	558
	134	1.16	0			
	135	36.6	7/2			
	137	30.5	7/2			
Sm	146	2.72×10^{-3}	0	5.64eV	1072	1803
	147	16.6	0			
	148	12.1	0			
	149	26.5	7/2			
	150	5.21	0			
	151	14.4	7/2			
	152	18.36	0			
154	6.80	0				

(1) 高レベル廃棄物のより合理的な処分システムの確立

- ・ 元素、核種の性状に応じた処分

超長寿命核種 (TRU, Tc)

発熱量の多い核種 (Cs, Sr)

- ・ 高レベル廃棄物の減容化

(2) 高レベル廃液中の元素の有効利用(2)

- ・ Tc,白金族元素――資源として貴重な元素

- ・ Cs, Sr -----熱源、放射線源

- ・ TRU -----アイソトープ利用。核分裂性物質、親物質としての利用

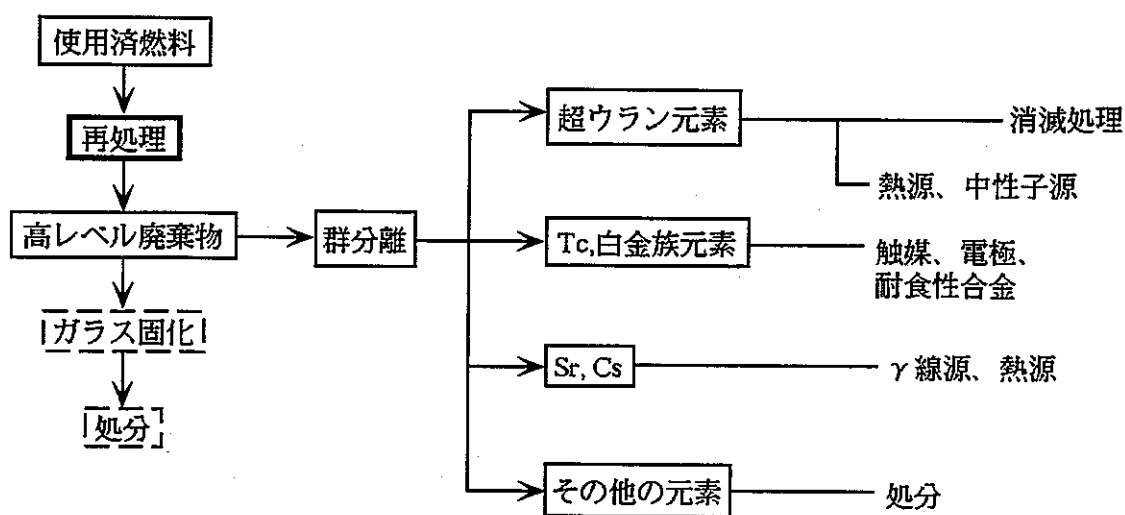


図 2.1.1: 群分離による高レベル廃液処理処分の概念

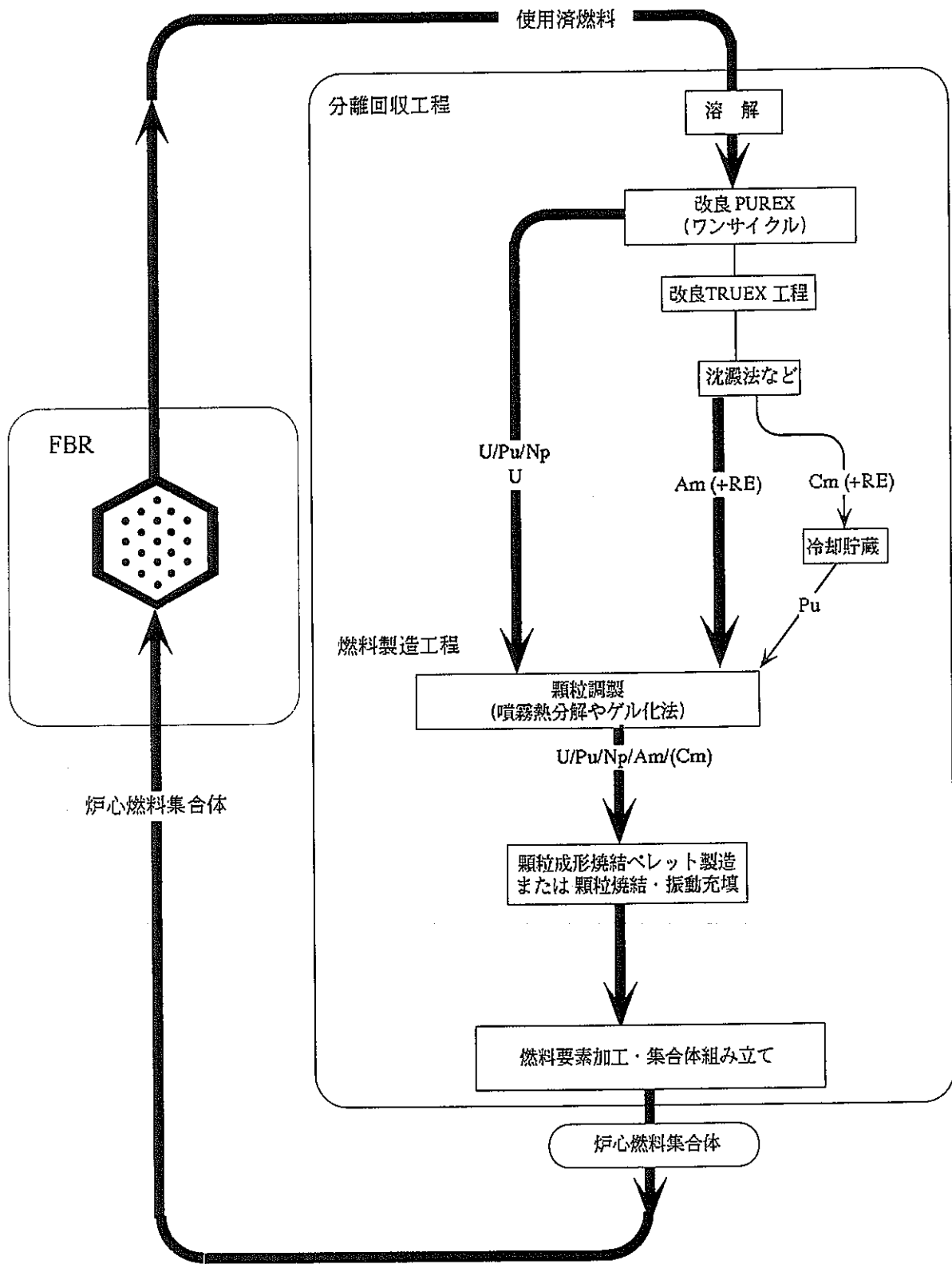


図 2.1.2: アクチノイドリサイクル構成概念

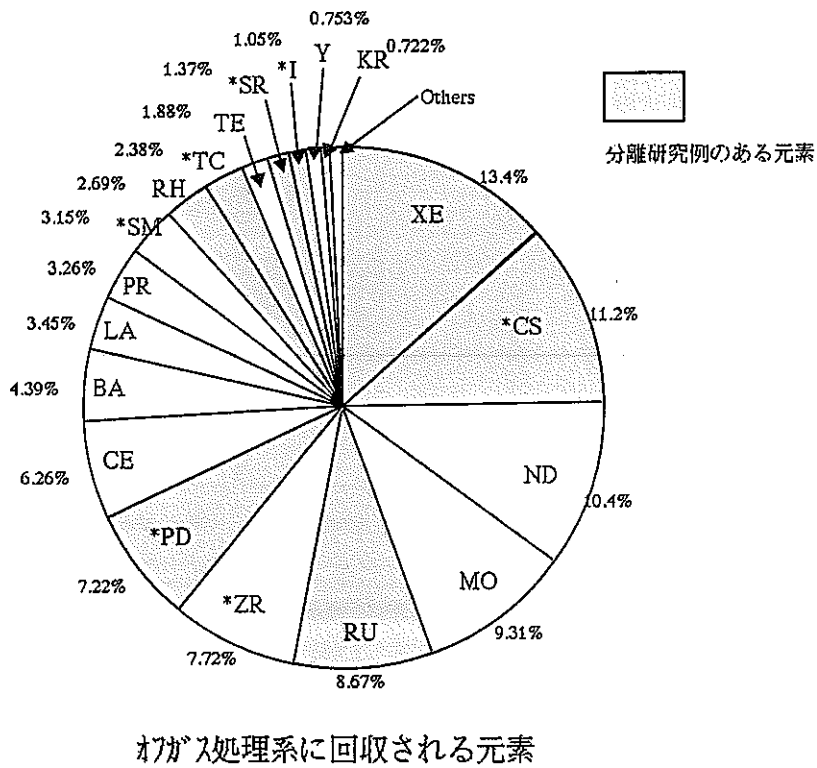
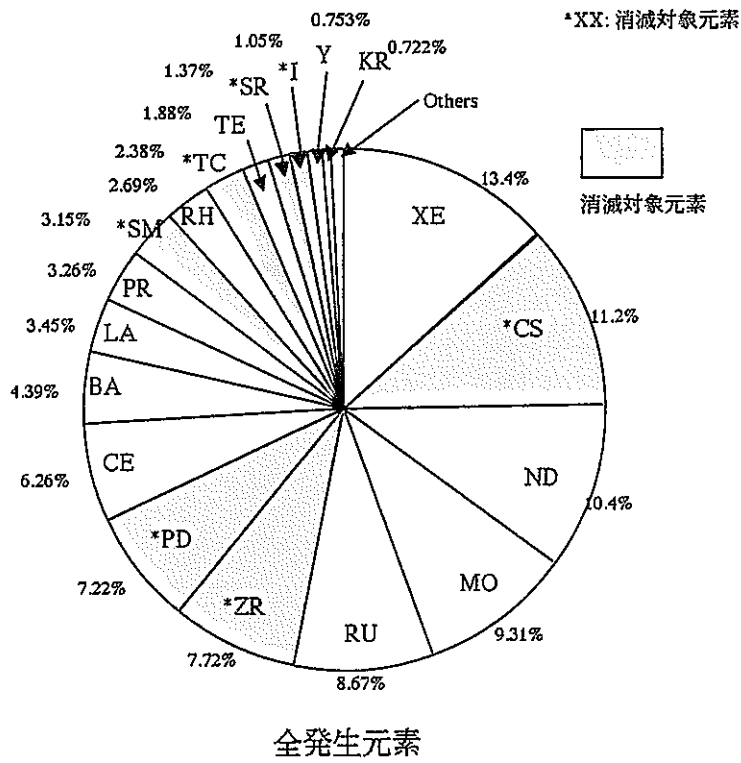


図 2.1.3: 使用済燃料中の FP 元素の重量構成

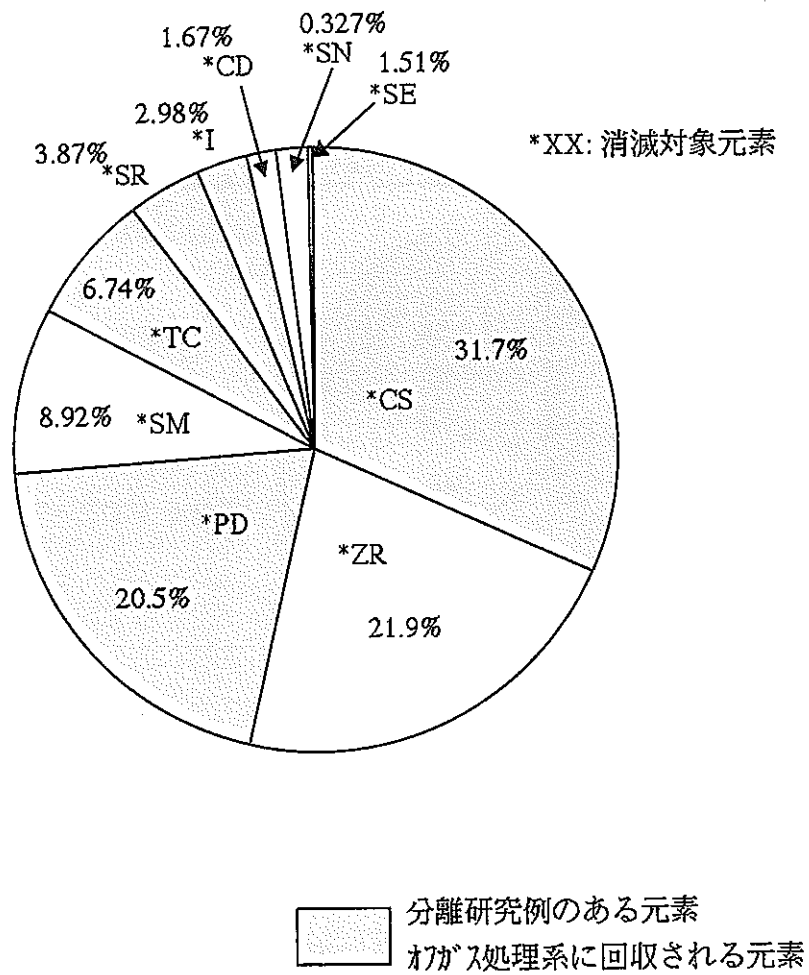


図 2.1.4: 消滅対象元素の重量構成

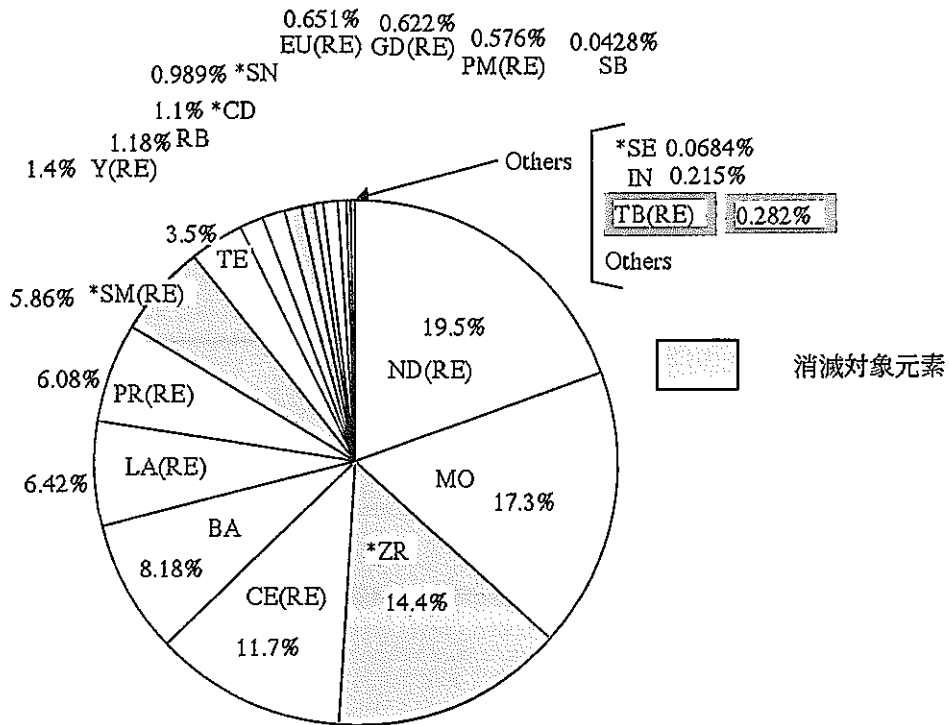
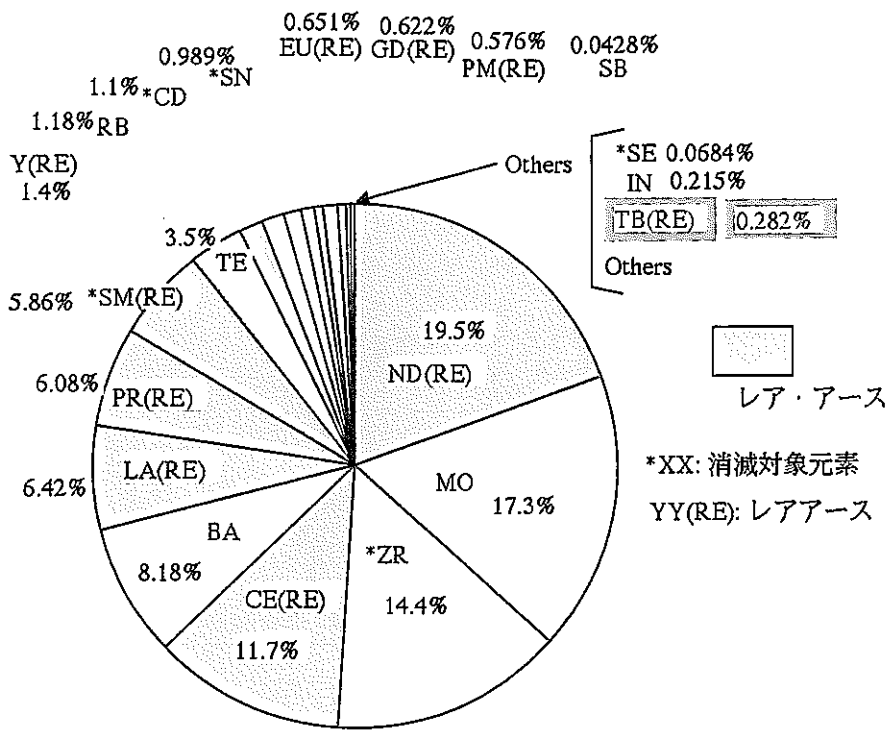


図 2.1.5: 全 FP から分離研究例のある元素及びオフガス処理系に回収される元素を除いたものの重量構成

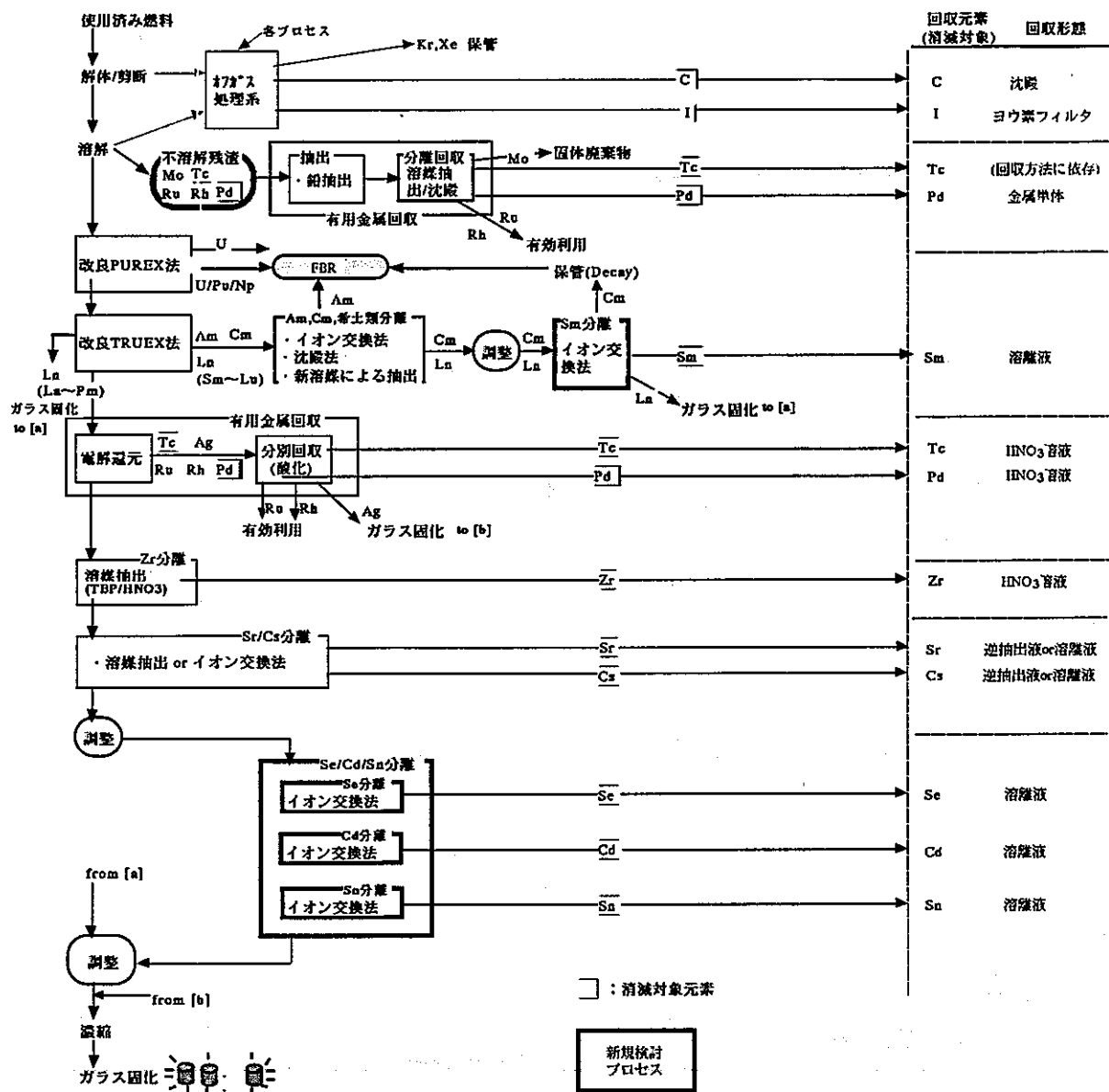
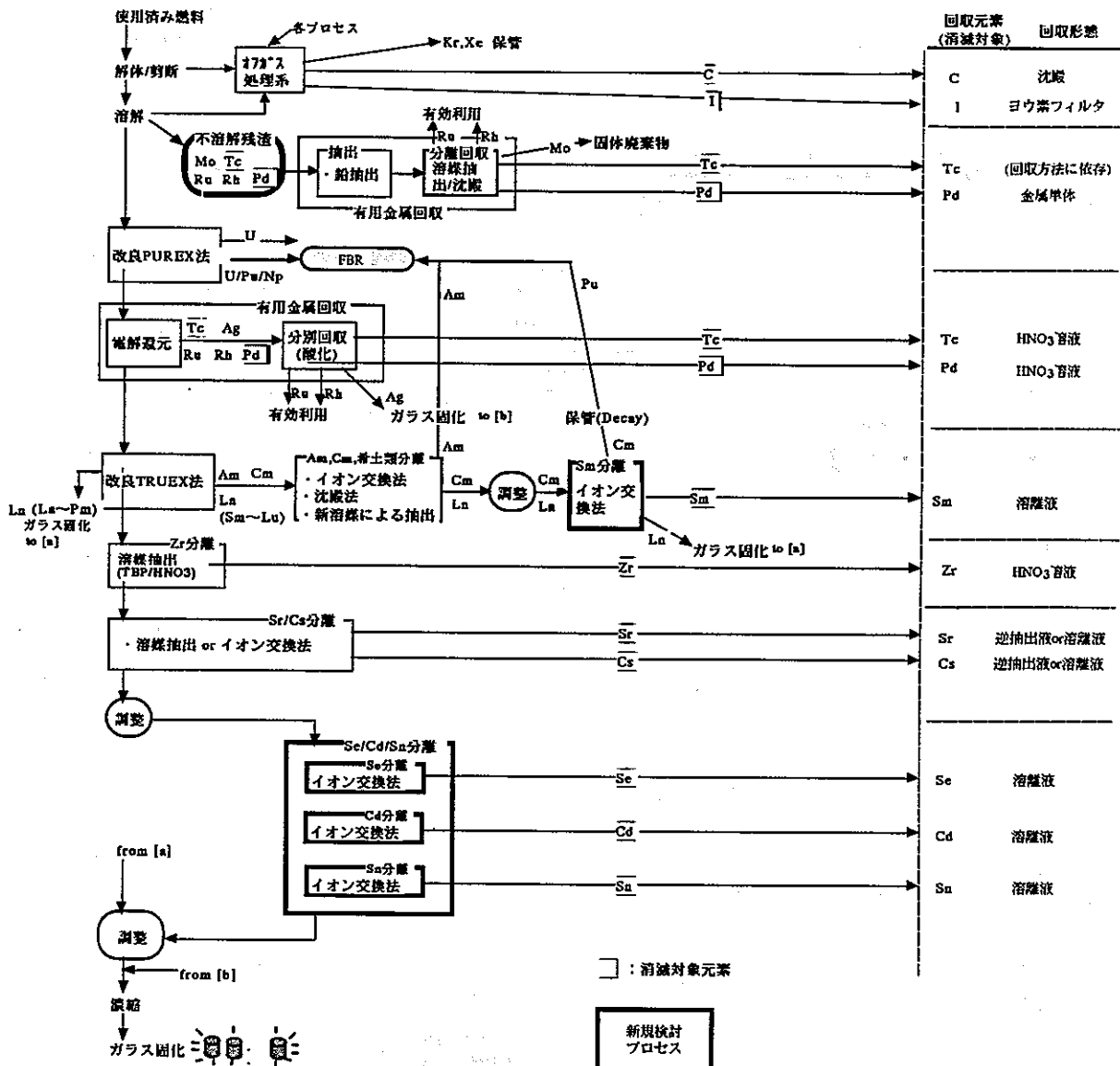
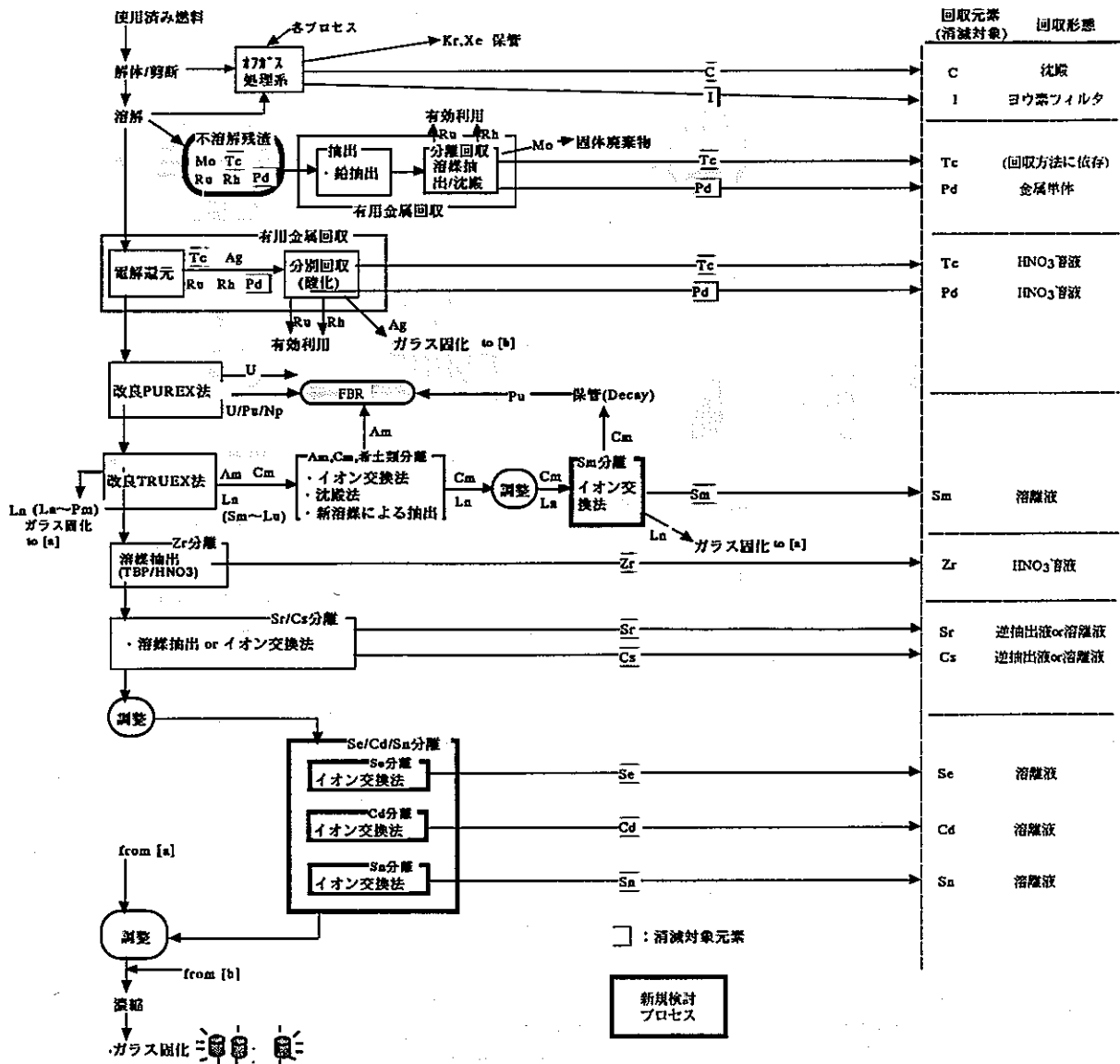


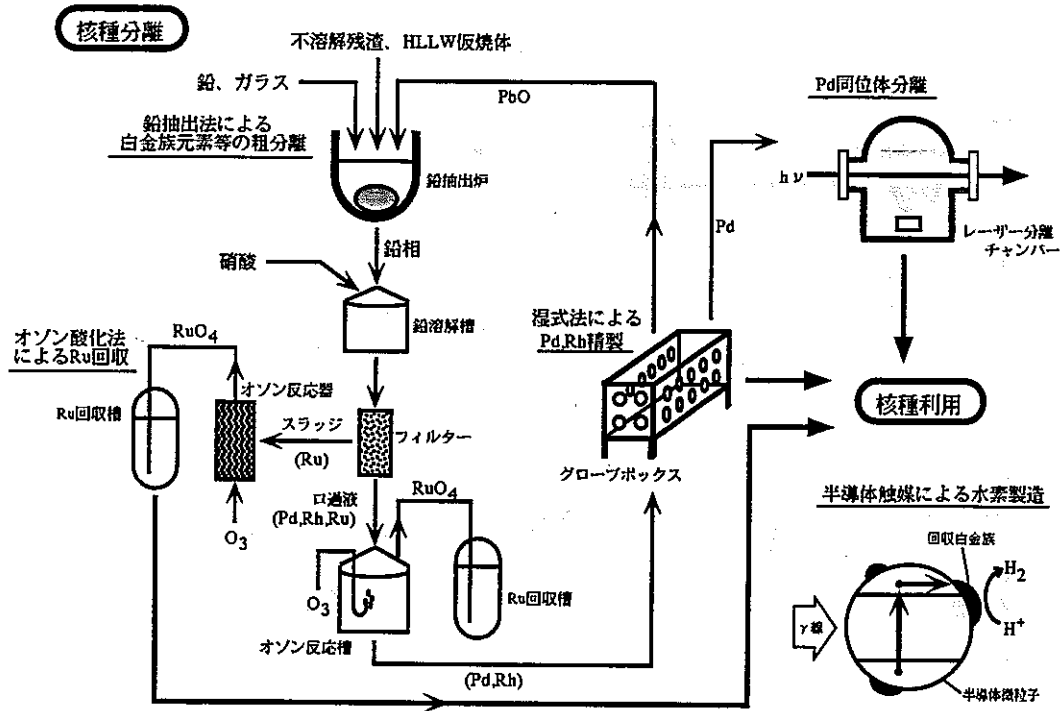
図 2.1.6: 分離フローモデル (1/3)



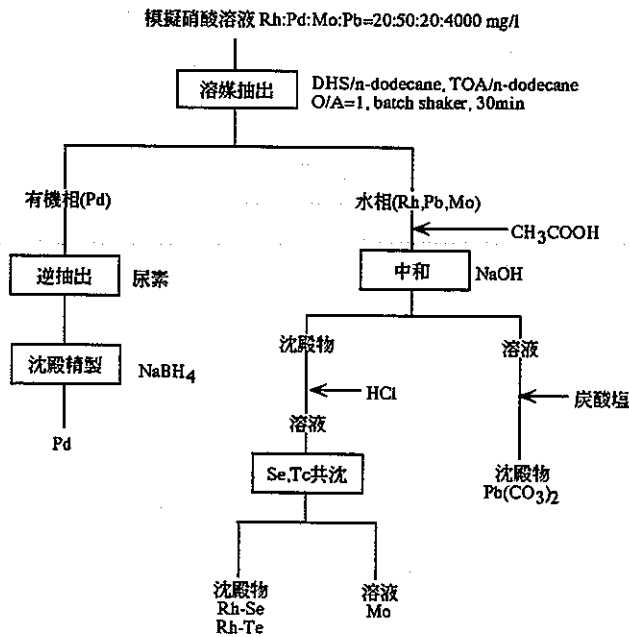
分離フローモデル (2/3)



分離フローモデル (3/3)



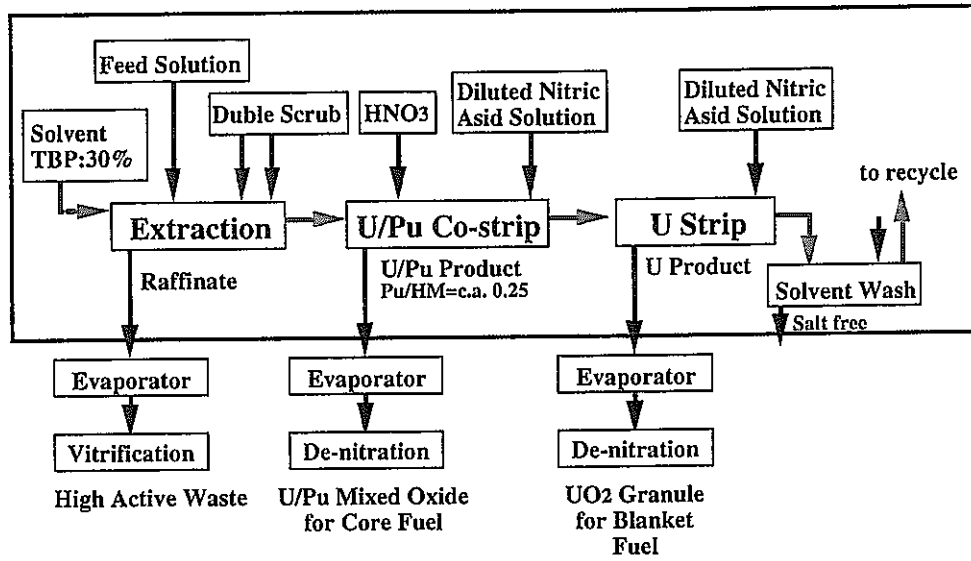
高レベル放射性廃棄物からの有用核種回収・利用



鉛相の硝酸溶解液からのPd/Rh相互分離、精製フロー

図 2.1.7: 有用金属回収工程概要

Single cycle U/Pu co-extraction flowsheet



Application of crystallization process

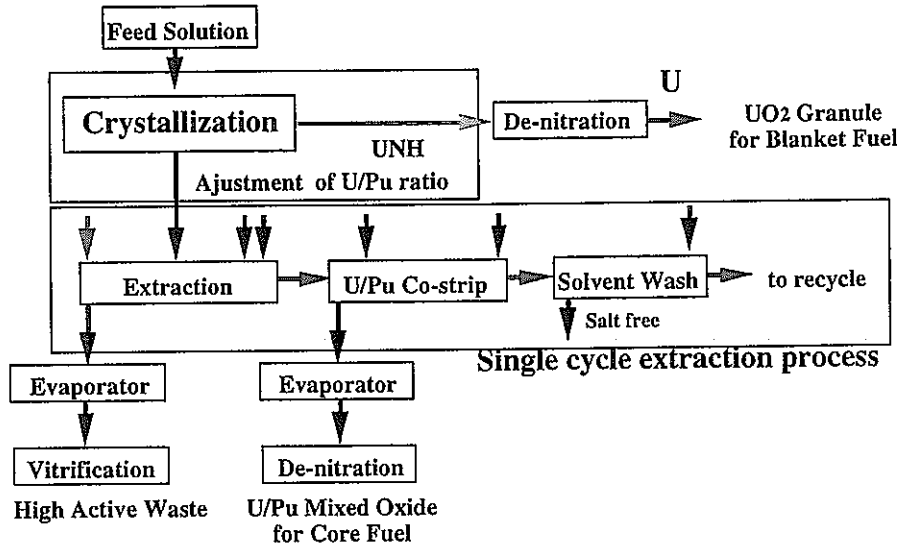


図 2.1.8: 改良 PUREX フローシート

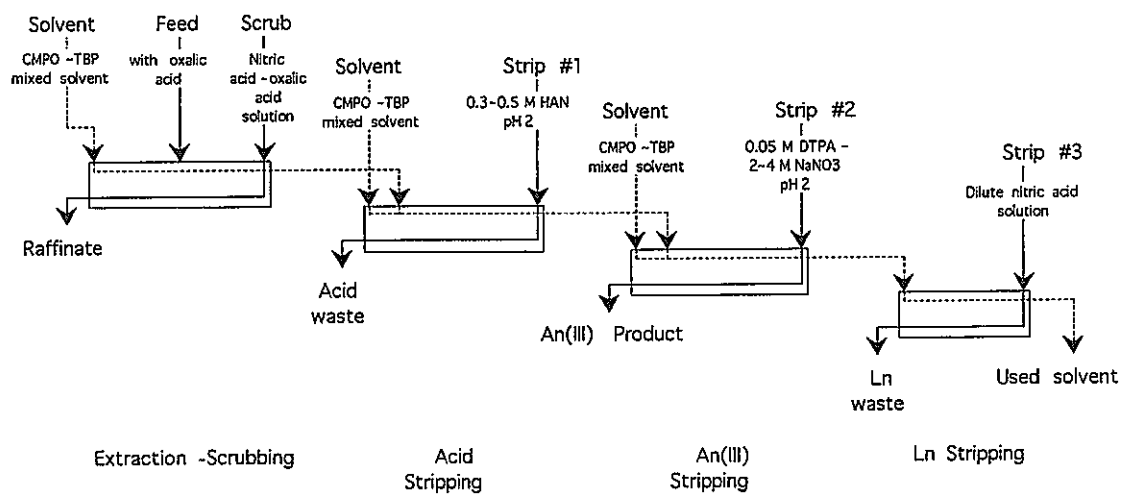


図 2.1.9: 改良 PUREX 法 (SETFICS 法) のフローシート [18]

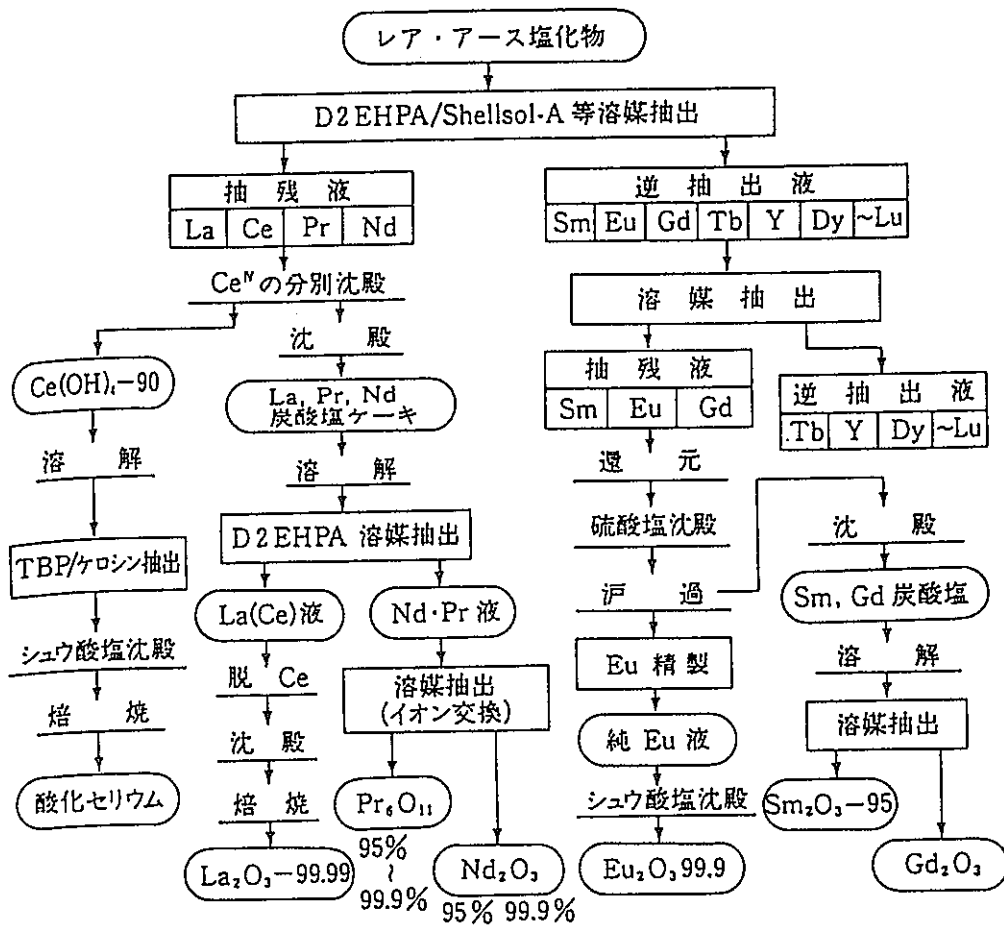
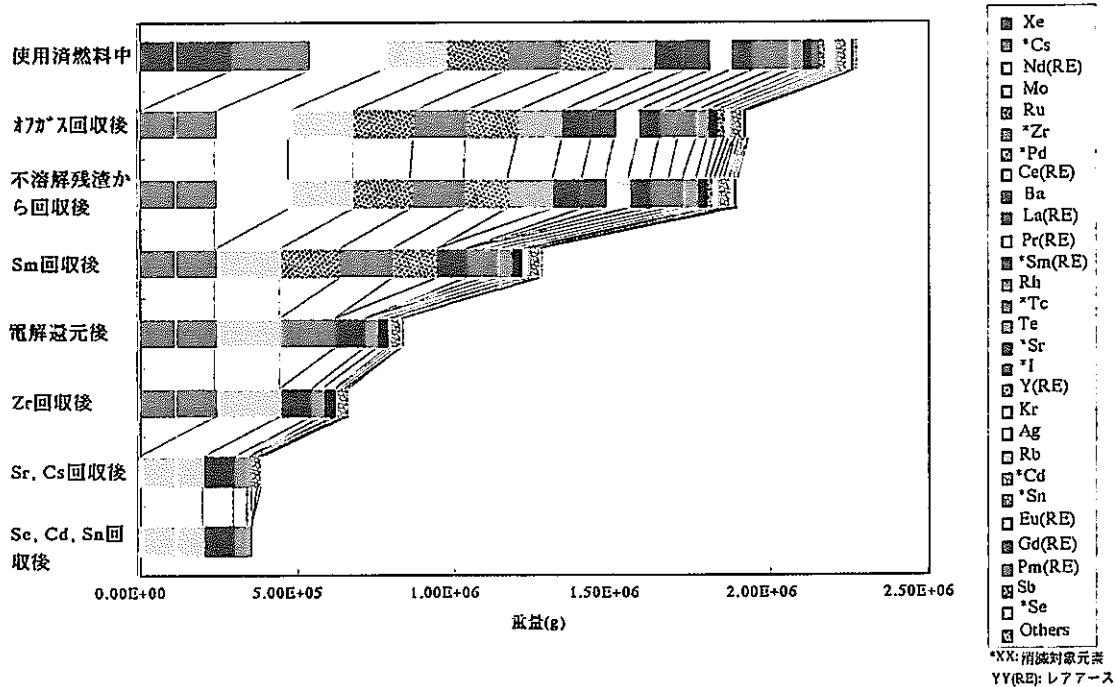


図 2.1.10: レア アースの分離精製系統図 [21]



各ステップ毎の元素構成の変化 (1/2)

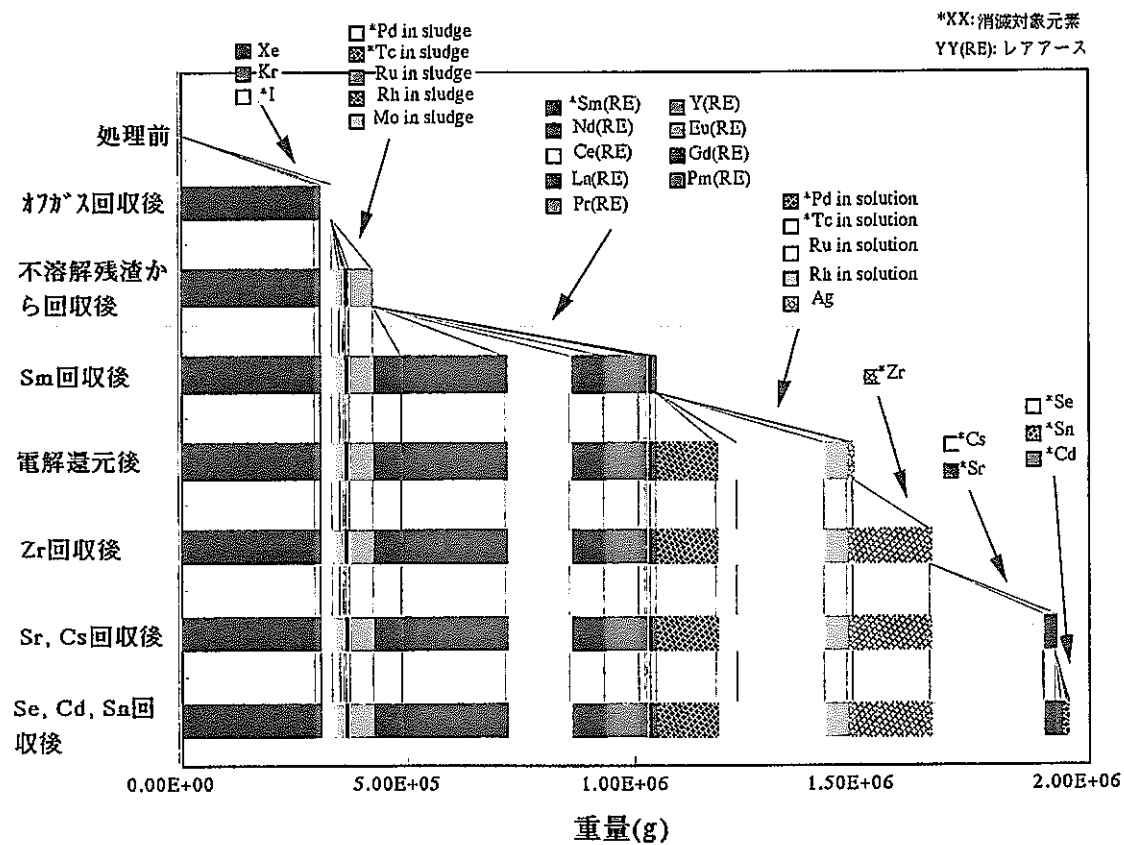


図 2.1.11: 各ステップ毎の元素構成の変化 (2/2)

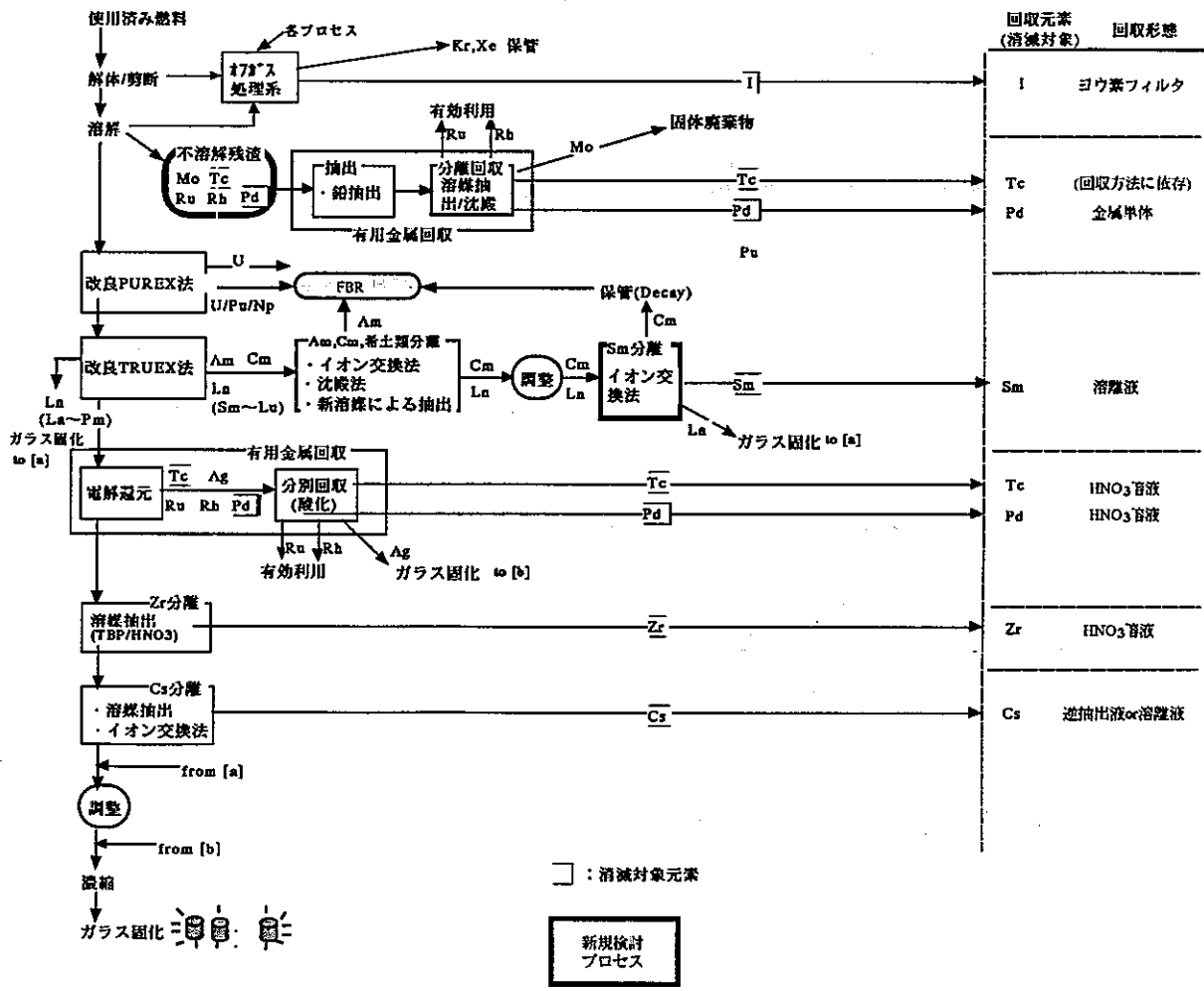
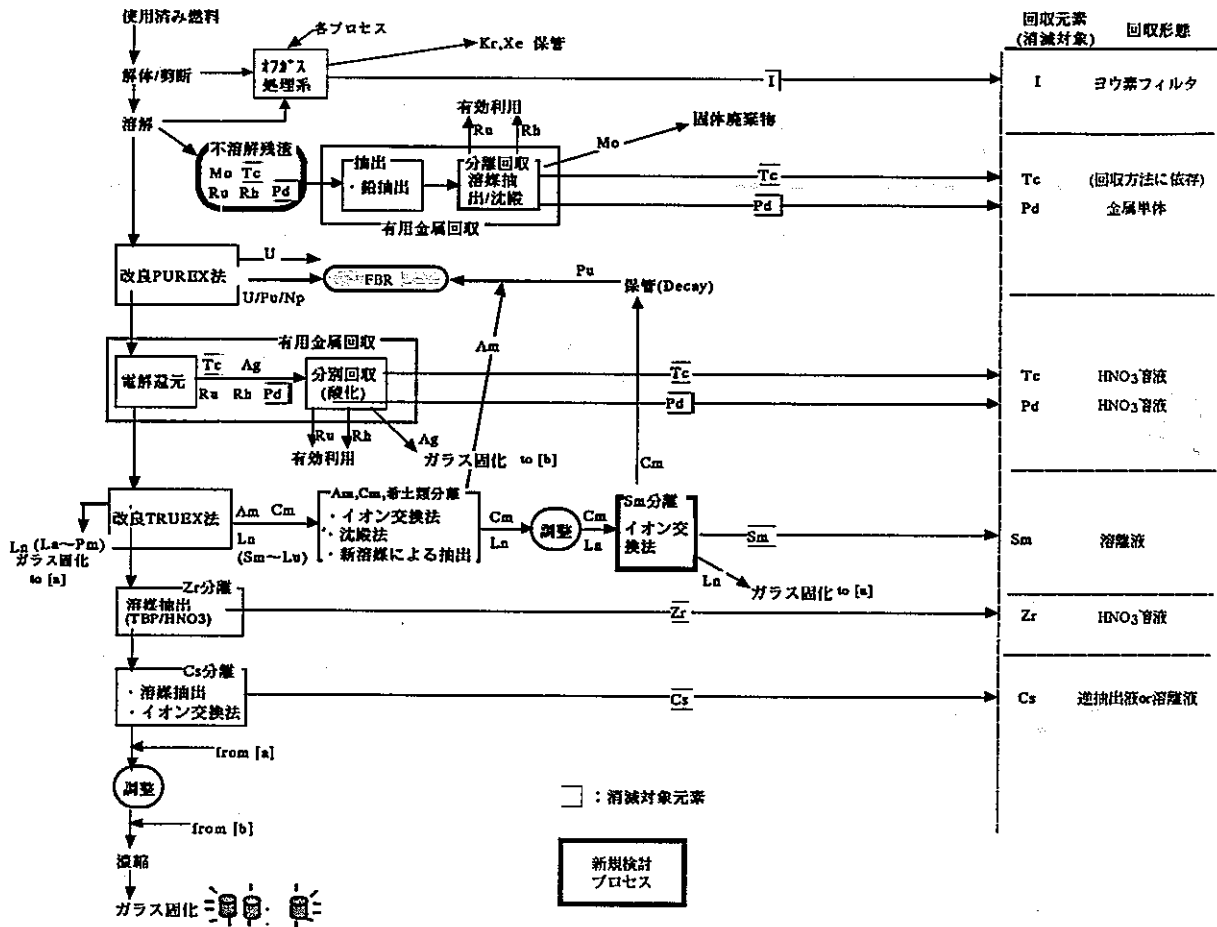
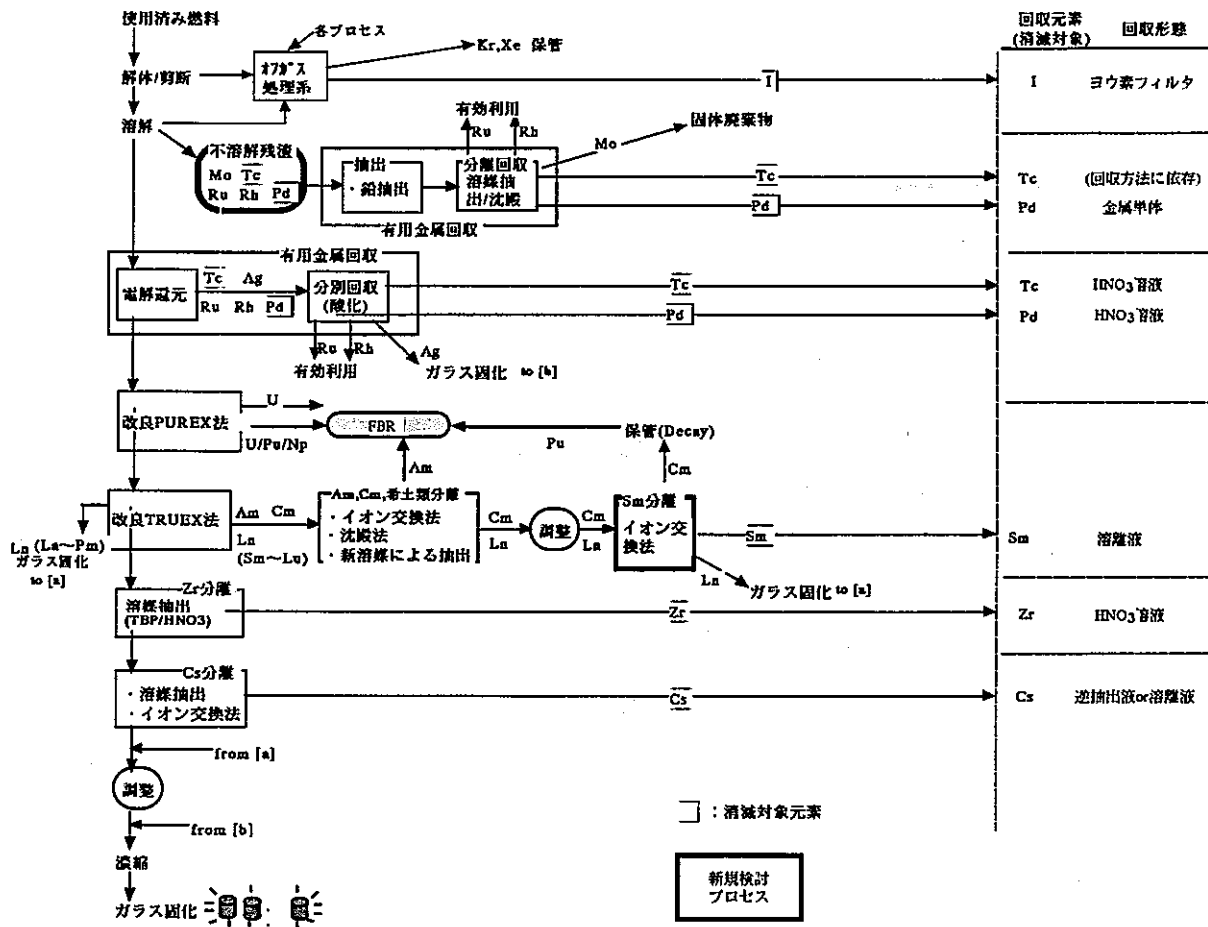


図 2.1.12: 6 元素の分離フローモデル (1/3)



6 元素の分離フローモデル (2/3)



分離フローモデル(6元素分離の場合)

6元素の分離フローモデル(3/3)

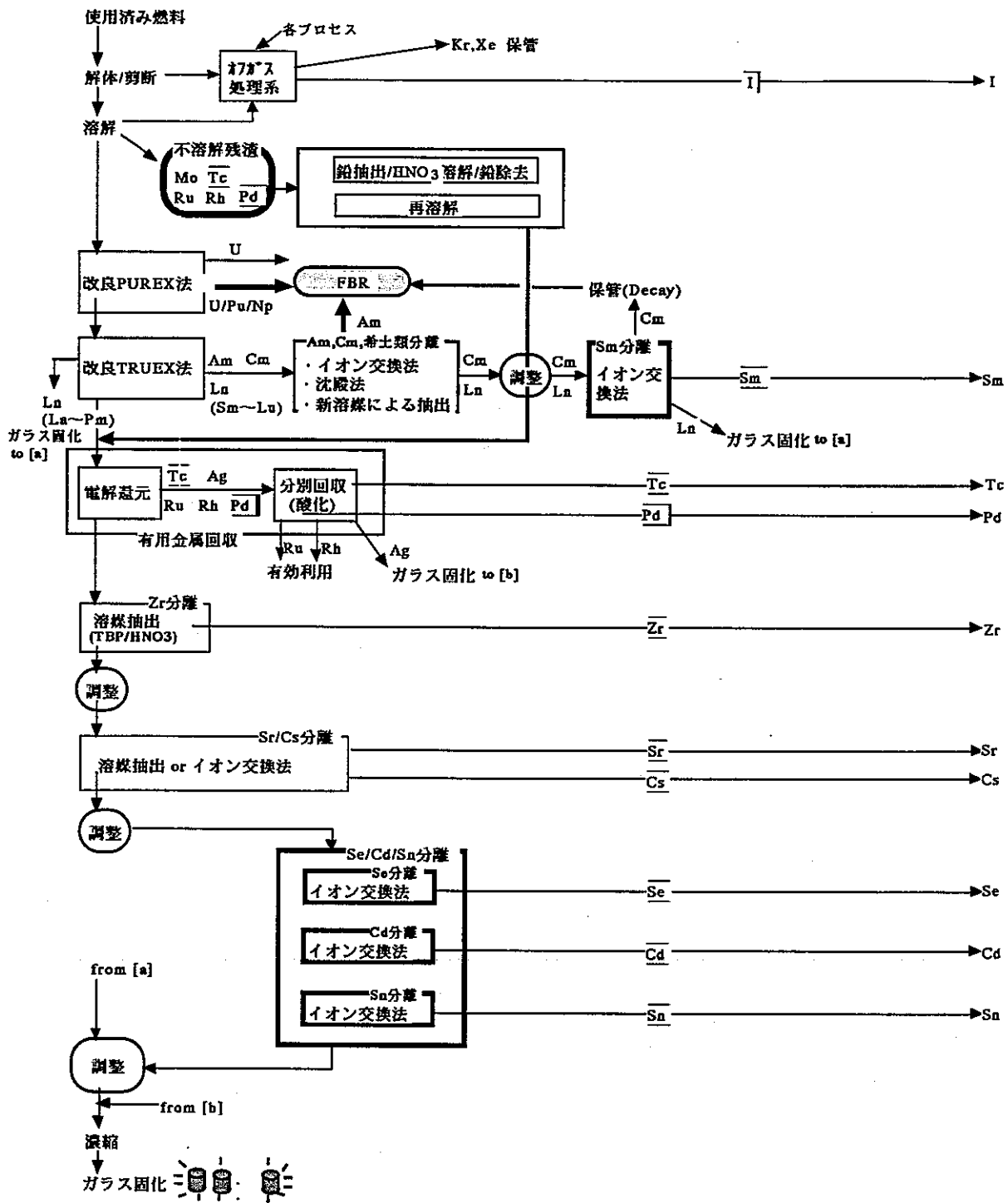


図 2.1.13: 分離フロー (不溶解残渣からの回収の簡素化)

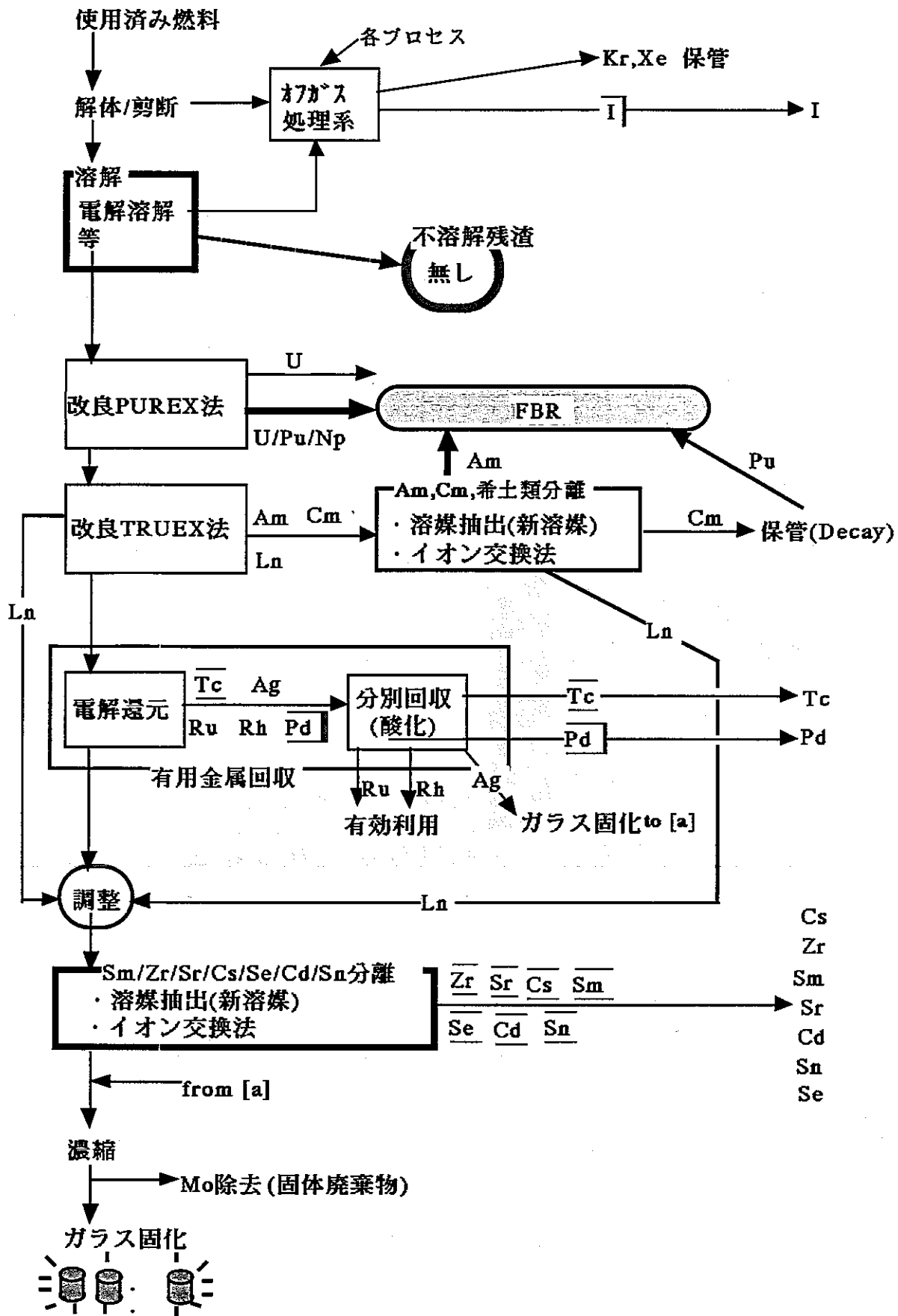


図 2.1.14: 簡素化した分離フロー例

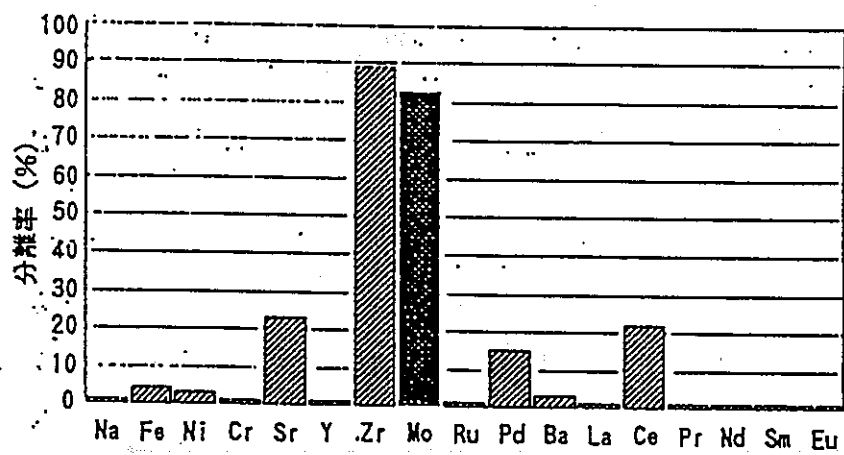


図 2.1.15: 沈殿物分離による実高レベル廃液中の各元素の分離率 [27]

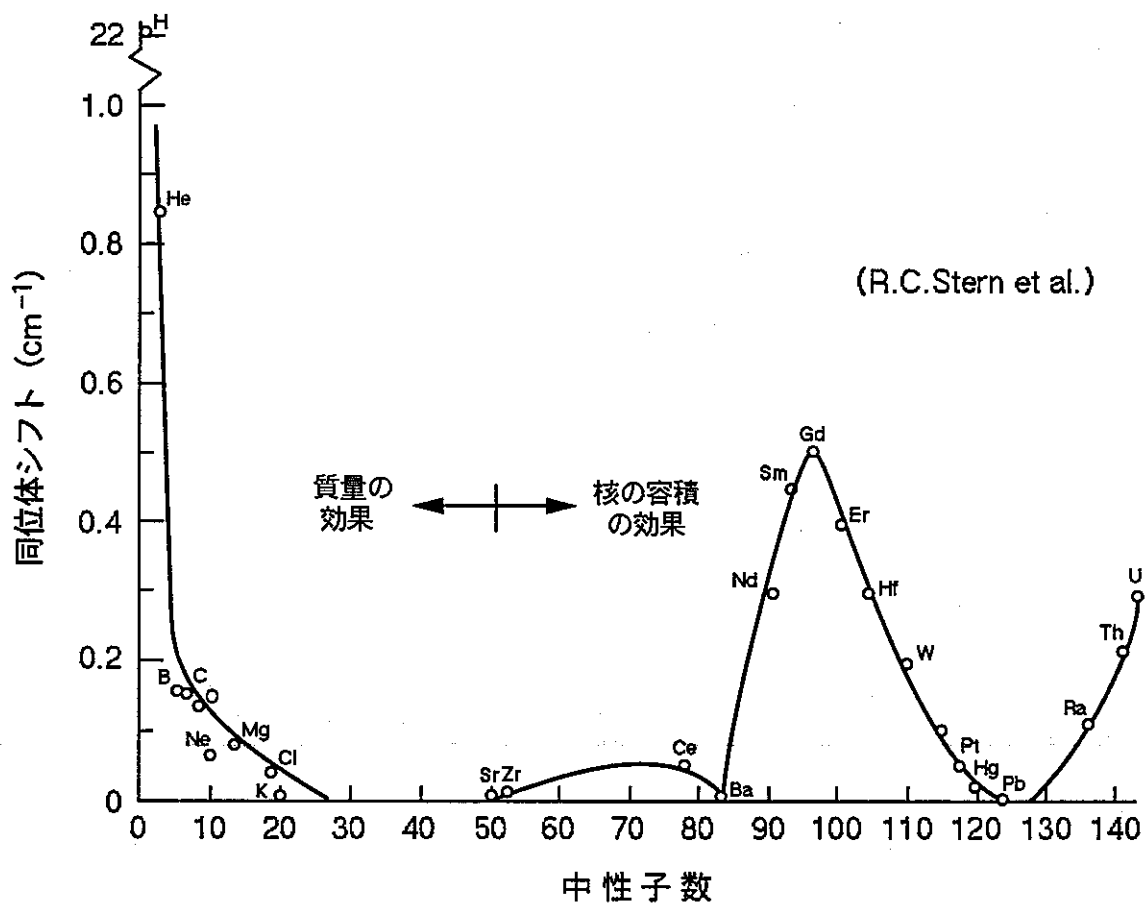


図 2.1.16: 同位体シフトと中性子数の関係

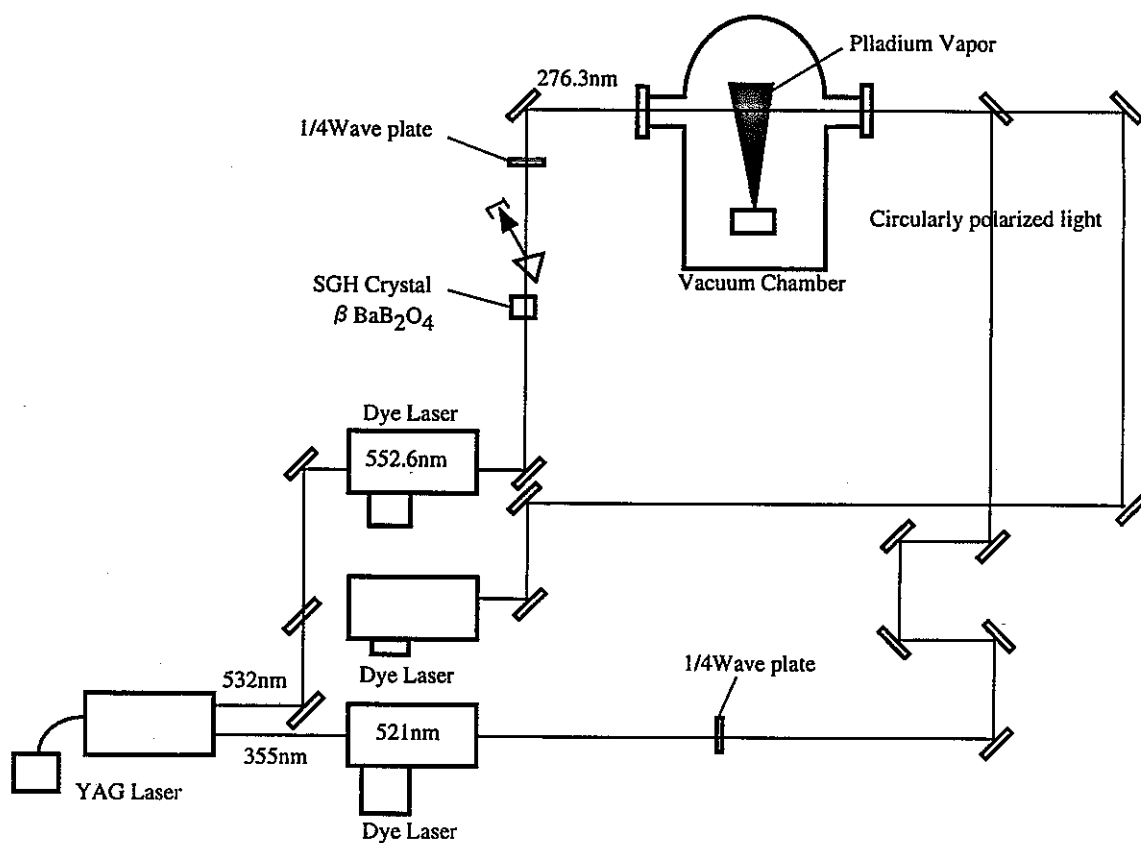


図 2.1.17: パラジウムのレーザー同位体分離試験装置概略

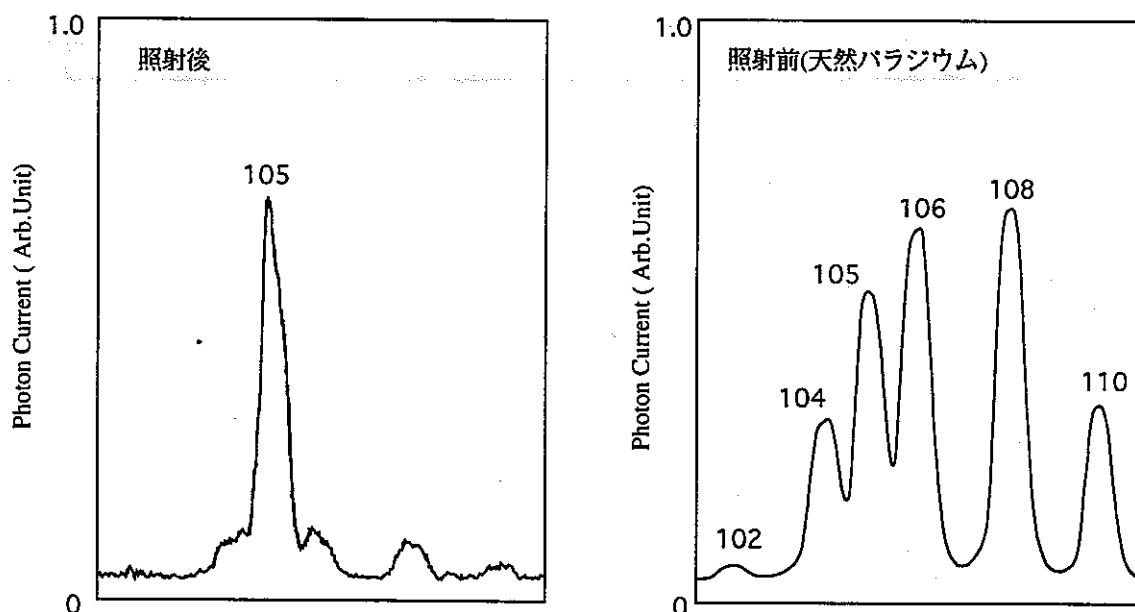


図 2.1.18: 円偏光レーザー (3 波長) によるパラジウム同位体分離選択

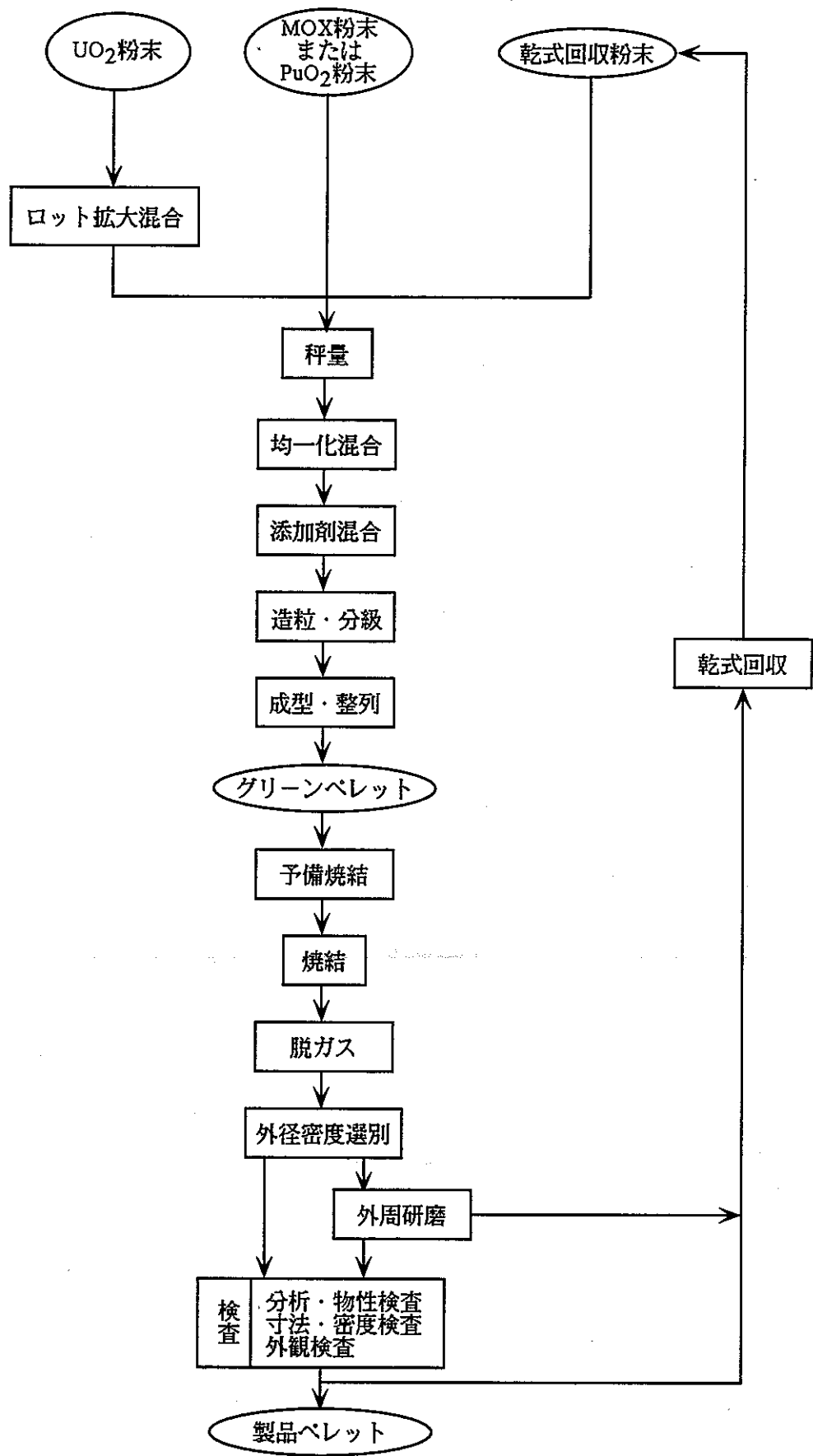


図 2.1.19: 高速炉用 MOX 燃料ペレット製造フロー

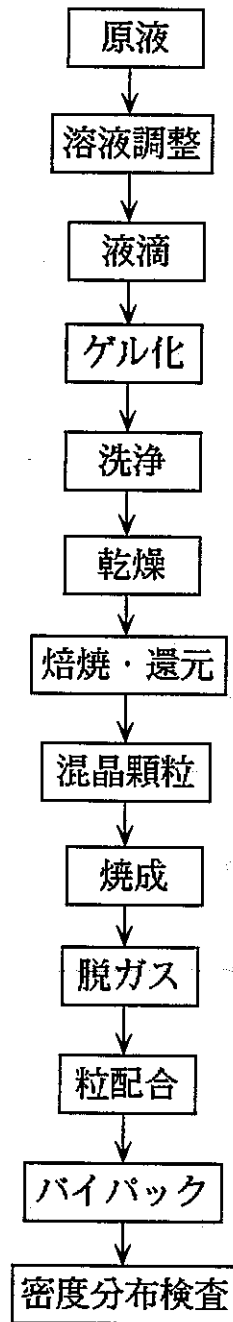


図 2.1.20: 振動充填法による燃料製造基本フロー

COMPARISON OF GELATION PROCESSES

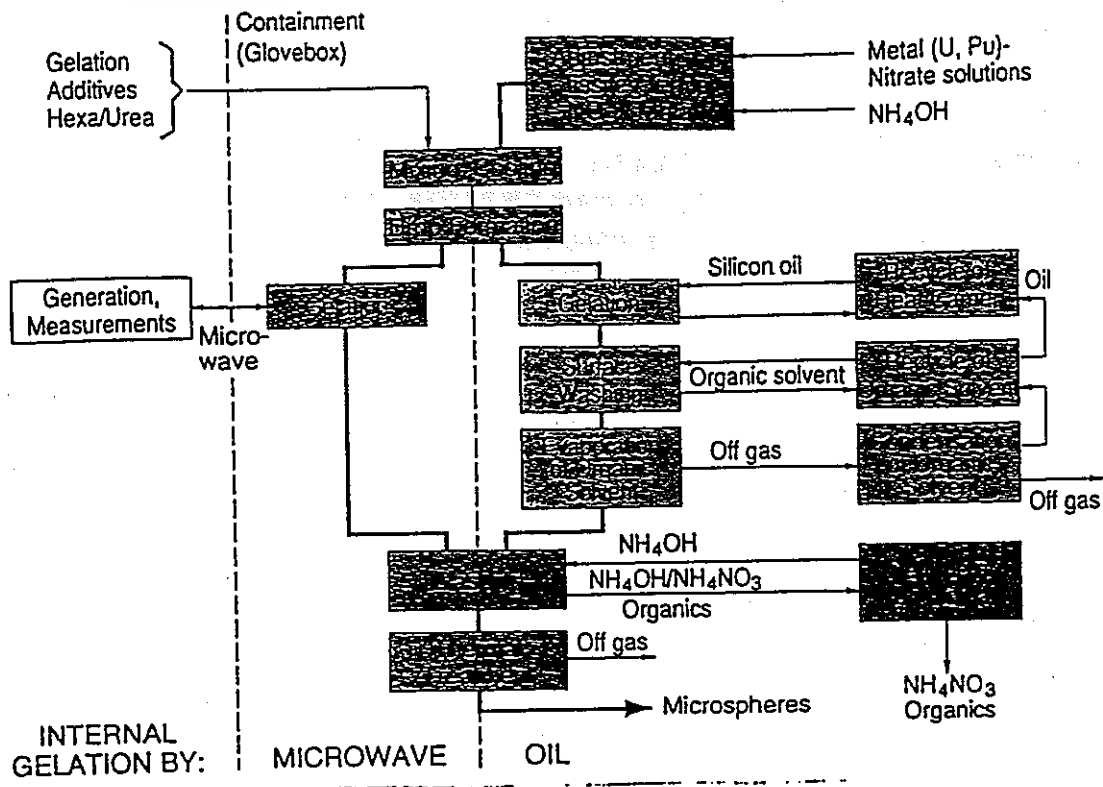


図 2.1.30: PSI 研究所における顆粒燃料製造フロー

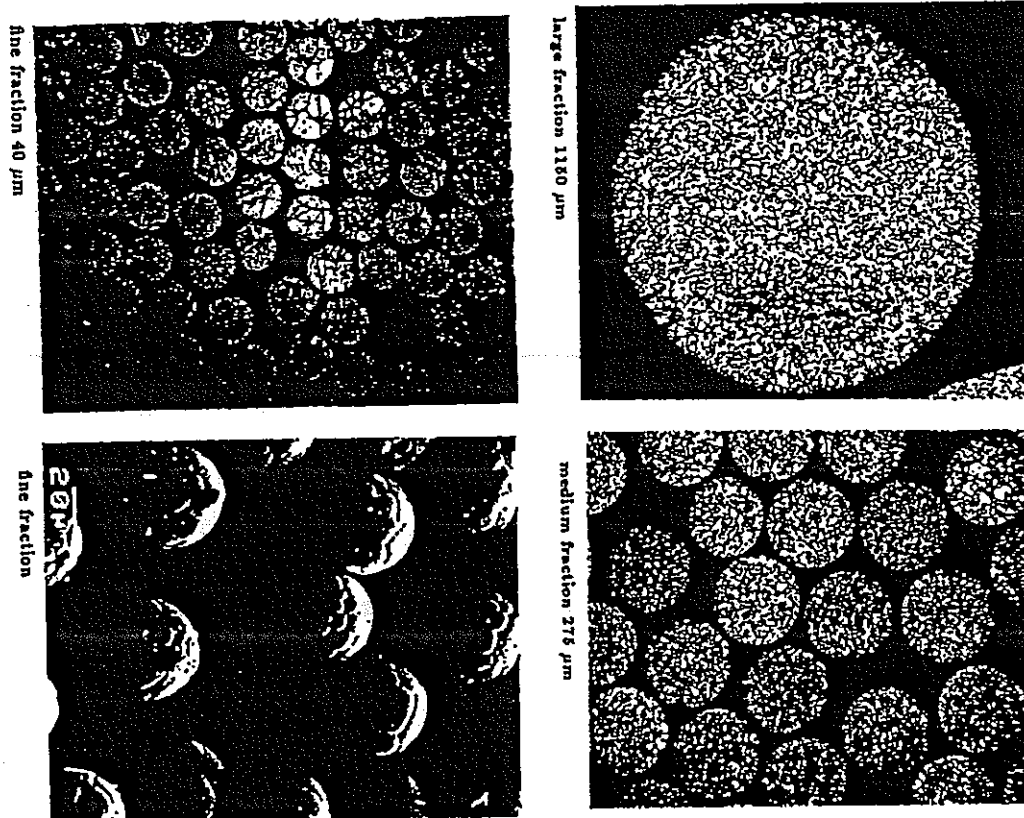


図 2.1.31: PSI 研究所で製造したガスゲン炉照射用 UO₂ 顆粒燃料の金相、SEM 写真

2.2 廃棄物実績調査

Pu 第3 開発室での平成3 年10 月から平成4 年9 月までの1 年間の燃料製造に伴う各製造工程における廃棄物発生量を図 2.2.1 に示す。仕上げ検査工程、粉末調整工程及び分析、物性工程における廃棄物発生量が全工程の中でも高くなっており、仕上げ検査工程と粉末調整工程では $500\mu\text{Sv/hr}$ をこえる高線量の廃棄物の発生量が高くなっている。^[31]

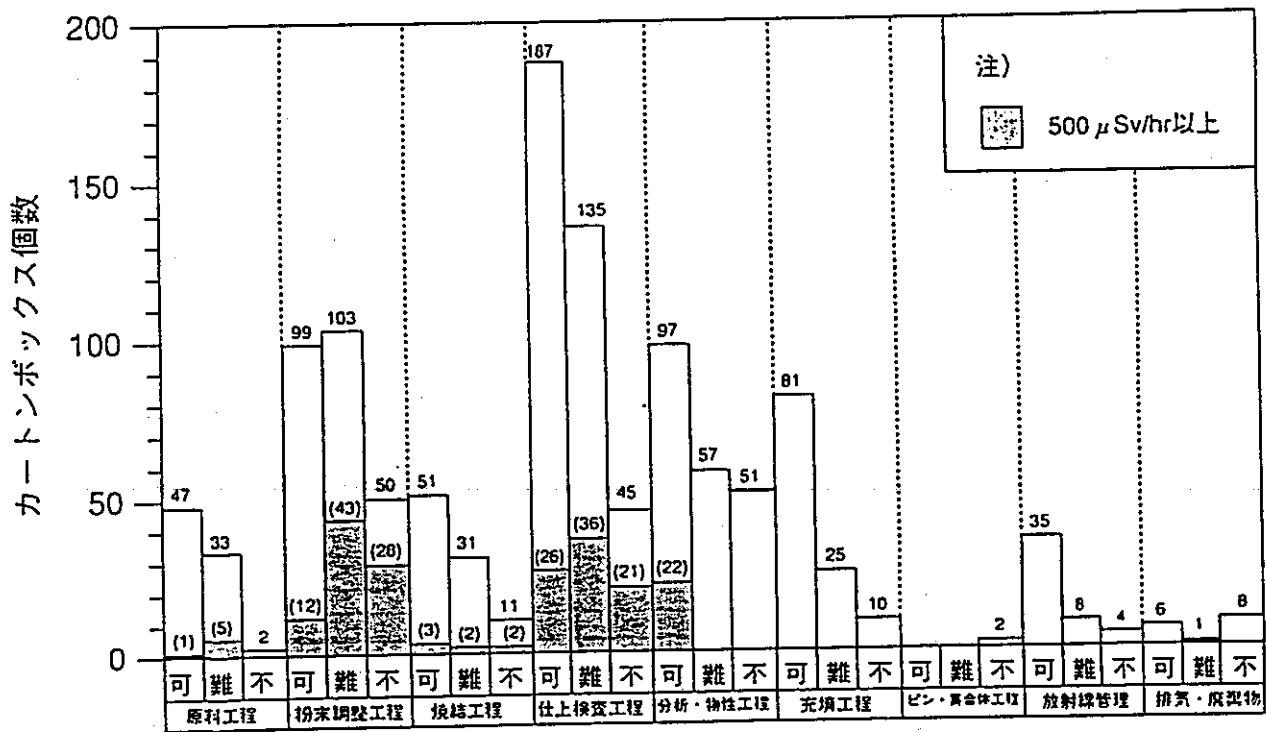


図 2.2.1: Pu 第 3 開発室工程別放射性廃棄物発生量 (H3.10~H4.9)

2.3 リサイクルにおけるロス率評価

振動充填法（内部ゲル化法）による燃料製造は、図 2.1.21 に示すように、Pu, U, MA 等を含む硝酸溶液にヘキサメチレンテトラアミン（HMTA）や尿酸などを原溶液に対して容量で約 20% 加え、液滴を生成する。

液滴生成工程において、硝酸原溶液を約 400ℓ（200ℓ バッチ容器を 2 基）とすると、硝酸アンモニウム廃液等が約 480ℓ 発生することになる。硝酸アンモニウムの処理法はまだ確立されておらず、今後は例えば硝酸イオンとアンモニウムイオンを分離して処理する等の処理法を確立することが課題となる。

ゲル化工程では、生成した溶液をシリコンオイル等に滴下させ、四塩化炭素等の溶媒で洗浄することによりゲル球を得る。このため、シリコンオイル等の廃油（約 50～100ℓ）と四塩化炭素等の廃溶媒（原溶液の約 2～3 倍量）が発生する。これらの処理法についてもまだ確立されていないため、廃油固化や廃溶媒中の塩の脱塩技術の確立などが今後の課題である。

また、ゲル球の焙焼・還元、焼成工程では不良品顆粒などの少量の高線量廃棄物が発生するため、これらの廃棄物処理技術の確立が今後の課題となる。

各工程において発生するこれらの廃棄物量、形態などは、今後、スイス PSI 研究所との共同研究で実施する Pu-U-Np 酸化物の顆粒燃料製造試験において詳細が明らかになるが、現行の MOX 燃料ペレット製造での工程内滞留量が 0.43% であり、また、海外ではフランス COGEMA の MELOX プラントにおける製造ロス率の目標が 0.1% に設定されていること等から、当面の目標としてロス率を 0.1% 以下に設定していく必要があると考えられる。

2.4 保管・管理のありかた検討

廃棄物の長期に渡る保管、管理は現在の構想では考慮されていない。数10年の半減期の核種の崩壊を待つために長期に渡り、保管管理する際に必要となる条件、方策などを定量的に評価することはできなかった。理想的なケースにおいては、廃棄物の保管管理の期間は少なくとも数10年程度とし、使用済燃料の再処理までの猶予期間に対して長すぎないレベルに留めることとなる。この場合、現在のガラス固化、地層処分構想における高レベル廃棄物をガラス固化するまでの保管期間と同様である。

2.5 放出のための裾切りレベル検討

サイクル活動を通じて、Pu, MA, 及び装荷対象のFPの増減がなくなる平衡状態のサイクルを想定し、転換により減少するウランの不足分供給を系への入力とし、そのサイクルで生じる廃棄物量を出力とする。このとき、入力したウランの放射性毒性を目安に生じる放射性廃棄物の毒性を比較することにする。系内には、全サイクル活動を通じて、一定量の物質が滞在することになるが、この量はこのサイクルにおける初装荷時に別系で生じたものを供給されたものでこのサイクルで生み出したものではない。

従って、今回の検討では平衡に達したサイクルで1回のサイクルで不足するウラン量に対する発生する放射性毒性量を比較することとし、供給したウランの毒性をもって裾切りレベルとすることを検討する。言い換えれば、入力した毒性と出力された毒性を比較し、出力レベルを入力レベル以下にすることを第一の裾切りレベルと想定する。今後は、数値目標を明確化することが重要となり、裾切りレベルを正当に定まった後にこのレベル以下に放出量を抑えることを目標とする。即ち、排出する廃棄物の非放射性化が究極の目標となる。

第 3 章 サイクルの提案及び評価

3.1 多重リサイクルの考え方

3.1.1 基礎式

FBR に装荷した Pu 及び MA(Np, Am, Cm) の同位体組成はサイクル特性が平衡状態となっていれば、その同位体組成は変化しない状態を想定できる。特に、増殖比を 1 にとれば、量も変化しない。即ち、ブランケット域の効果で新鮮な Pu (MA) が供給され、かつ炉心内部でも生成と崩壊 (分裂) が相互に作用し、生成量と消滅量が等しくなり、結果的に装荷時と取出時に量的な変化がないことになる。ただし、FBR の初装荷時などでサイクル外部から Pu などを供給した場合には FBR 平衡状態の組成比との異なりをサイクルを繰り返すごとに徐々に是正されていく。この点に関する詳しい解析は参考文献^[32]に譲る。

同様に、ある FP 核種を炉内に一定量を装荷した場合に、装荷したものが炉内の中性子による反応で他の核種に変化した量と分裂で生じるその核種の量が等しければ、燃焼前後でその FP 核種の量は変化しないことになる。言い換えれば、そのサイクルでは、その FP 核種が発生しなかったことになる。全ての量が平衡に達した FBR サイクルでは、装荷した FP 核種の装荷量 C と中性子反応による変換率 (消滅率) δ 、及び分裂での生成量 N の間には、消滅量と生成量が等しくなる条件で

$$N = (1 - \delta)C \rightarrow C = N / (1 - \delta) \quad (3.1)$$

が成り立つ。消滅率が 10% であれば、生成量の 10 倍の量が炉に装荷されることになる。装荷する FP が数種類の場合には、核変換後に生じる核種に他の装荷核種が含まれ、他の装荷核種の生成量を考慮して、装荷核種 j の変換により装荷核種 i が生じる割合を σ_{ij} と表せば ($i = j$ の場合は、消滅率となる) 以下の連立方程式を得る。

$$\begin{Bmatrix} N_1 \\ N_2 \\ \vdots \\ N_n \end{Bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 - \delta_1 & \sigma_{12} & \dots & \sigma_{1n} \\ \sigma_{21} & 1 - \delta_2 & \dots & \sigma_{2n} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \sigma_{n1} & \sigma_{n2} & \dots & 1 - \delta_n \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} C_1 \\ C_2 \\ \vdots \\ C_n \end{Bmatrix} \quad (3.2)$$

(n は考慮対象核種数)

ただし、通常の場合は、他の核種の生成率は低いが、対象核種に同一元素の異なる同位体が含まれる場合などでは他核種の生成率が無視できなくなる。これを解けば、各装荷核種の平衡時装荷量 C_i を求めることができる。

ただし、ここでの計算は、ウラン以外のサイクル物質の量の変化しない平衡サイクルを想定したもののだが、炉への装荷量が許す範囲で他の系 (例えば、軽水炉や現行高速炉) で生じたサイクル対象 FP 核種を平衡量以上に装荷することができ、他の系で生じたものを消滅させることができる。

これからわかるように装荷する核種、すなわち発生させたくない核種を相当量 FBR に装荷せねばならない。1 章で求めたように炉への装荷量には中性子経済や炉心安全性から装荷限度量が存在し、選定核種の総装荷量はその限度内でなければ平衡状態にはならない。核種の装荷率を抑えて、平衡時の装荷量を限度内にすることもできるが、この場合、装荷できない残り量は廃棄物側へ移行する。

即ち、装荷する核種の装荷量とガラス固化体への移行量を以下のように捉える。

回収率 再処理工程で使用済燃料中から、目的の核種を回収できる割合 ϵ 。但し、回収できない分については、ガラス固化体へ移行するものとする。

漏洩率 サイクル外へ移行する割合、上記の回収率で回収しえない分に漏洩率 λ を乗じた量 $C(1 - \epsilon)\lambda$ が系外へ漏れる。

装荷率 回収した装荷核種を炉内へ再装荷する割合 ζ 。通常は 1 とするが、炉への装荷量制限から、この値を 1 以下に調整することもあり得る。装荷しない量は全量ガラス固化体へ移行する。

滞留率 回収した核種を装荷用燃料加工する際に工程機器などに付着し、滞留する割合 ξ
 消滅率 或いは変換率、炉内での中性子照射で消滅（変換）する割合 δ

を考慮すれば、図 3.1.1 に示すようになる。このうち、装荷率のみ人為的に操作するものである。漏洩率は限りなく 0 としなければならない。検討している FP サイクルでは、取り扱う FP 量が大幅に増えるため、現行のシステムでの漏洩率では、そのまま漏洩量が比例して増えてしまい、消滅効果が無意味となる。

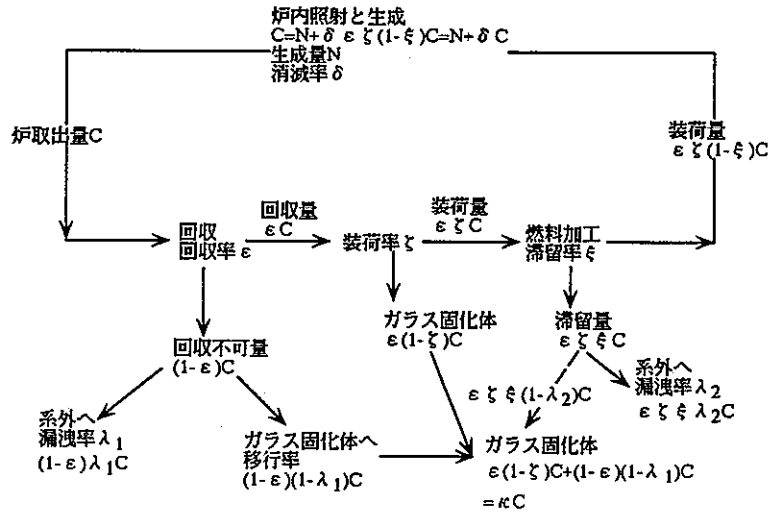


図 3.1.1: 装荷核種の移行量

これより見かけの消滅率は、 $\hat{\delta} = \delta \epsilon \zeta (1 - \xi)$ 、他装荷核種の生成率 $\hat{\sigma} = \sigma \epsilon \zeta (1 - \xi)$ を得る。この関係を連立一次方程式へ代入すれば、炉内平衡存在量 C が求められる。また、ガラス固化体への移行率は、 $\kappa = \epsilon (1 - \zeta) + (1 - \epsilon) (1 - \lambda)$ で与えられる。

3.2 マスバランス

図 3.2.1 に示すような Pu と U のみを再処理で回収し、再度増殖比 1 の FBR に装荷していくサイクル（現行サイクル）を考えれば、サイクル（バッチ）ごとに不足するウランを供給し、FP と MA が廃棄物として排出される。放出される核種に指標 i を付けて、ガラス固化体移行率を κ_i 、回収直後を開始時間とした場合の時間 t 経過後の重量を $f_i(t)$ 、放射能-重量換算係数 q_i （=崩壊定数*アボガドロ数/質量数）及び年経口摂取限度 (ALI) を $Z_i(Bq)$ とすれば、放出される全核種による放射性毒性は、

$$a_i(t) = \kappa_i q_i / z_i f_i(t) \quad (3.3)$$

で与えられる。（冷却期間が 0 であれば、 $f_i(0) = N_i$ である。）安定核種では、崩壊定数を 0 とすれば、この式で表せる。移行率を考慮しているので回収されないで廃棄物側に移行する U, Pu も考慮できる。1 サイクルを数回のバッチに分けてもバッチごとのサイクル間隔は 1 サイクル間隔なので結果は同一となるので、1 サイクルの間のバッチ数を考慮しないで扱うことができる。全核種で総和をとれば、1 回のサイクル活動で生じる放射性廃棄物の毒性総量の時間推移を表すことができ、

$$A(t) = \sum_{i=0}^n a_i(t) \quad (3.4)$$

としておく。

サイクル期間を Δ とし、 N 回のサイクル活動を通じて、初装荷時のサイクル開始時を時間開始のとき、発生する放射性毒性は、

$$A_N(t) = A(t - \Delta) + A(t - 2\Delta) + \dots + A(t - N\Delta) \quad (3.5)$$

で表すことができる。どのサイクル終了時での Pu 量 P とウラン量 U は一定なので、プルとウランの平衡時の組成を考慮して、完全にサイクル活動を終了した時点では、上記の移行した廃棄物と炉内に最終的に残存する核種の総和より、

$$A_{all}(N, t) = A_N(t) + A_{Pu}(P, t) + A_U(U - D_U, t) \quad (3.6)$$

となる。ここで、 $A_{Pu}(P, t)$ と $A_U(U, t)$ は、組成を考慮した Pu 量 P 、及びウラン量 U の場合の毒性を示す。

1 回のサイクルで不足するウラン量を D_U とすれば、各サイクル活動の開始時には、Pu 量 P とウラン量 $U + D_U$ が必要になる。全サイクル活動を N 回のサイクルとすれば、ウランの必要量は、 $U + (N - 1)D_U$ で表される。最終的な残存量を考えなければ、1 回のサイクルにおける放射性毒性の入出力の関係は、ウランの不足分の入力 $A_U(D_U, t)$ に対して、出力 $A(t)$ となる。

一方、図 3.2.2 に示すサイクルでは、サイクルされる核種は、U, Pu 以外に N_p , Am のマイナーアクチニド (MA) と FP の中から選定された装荷対象核種となる。装荷される N_p , Am 及び選定 FP を核種指標で $i = 1 \dots I$ とすれば、現行サイクルではガラス固化体への移行率 κ_i が 1 に近いものであったものが、図 3.1.1 に示す関係式で表される。回収率、漏洩率、滞留率、及び装荷率を考慮しなければ、 $\kappa_i = 0$ となり、サイクル活動でこれらの核種は発生しないことになる。発生重量 $f_i(t)$ 、は分裂生成及び炉へ装荷した核種の中性子による変換後の核種の和となる。ただし、このサイクル形態では、炉内に常に一定量滞在する核種は、Pu, U のみではなく、サイクル物質として選定した N_p , Am, 選定 FP になり、それらの量は 3.1 節で示した関係式で求められる。核種 i ($1 \leq i \leq I$) の炉内滞在量は C_i となり、毒性指標を $A_i(C_i, t)$ とすれば、

$$A_{all}(N, t) = A_N(t) + A_{Pu}(P, t) + A_U(U - D_U, t) + \sum_{i=1}^I A_i(C_i, t) \quad (3.7)$$

となる。ただし、 $A_N(t)$ 中の核種 i ($1 \leq i \leq I$) のガラス固化体への移行率が現行サイクルに比べて小さくなり、0 に近づけることもできる。上式の右辺第一項はサイクル回数により随時蓄積されていくが、2 項目以降はサイクル期間にわたり常に一定であり、別の系で生じたものである。従って、ここでも、最終的な残存量を考えなければ、1 回のサイクルにおける放射性毒性の入出力の関係は、ウランの不足分の入力 $A_U(D_U, t)$ に対して、出力 $A(t)$ となる。ウランの使用量に関しては本質的に大きな差はない。

現行サイクルにおける $A(t)$ と FP サイクルにおける $A(t)$ では、選定した核種のガラス固化体への移行率が異なることになる。

ガラス固化体へ移行しなくなる分については、炉での中性子照射による変換と核種抽出後の保管による自然崩壊による減少分であり、どちらもほとんどは変換後の核種は十分に短い半減期の核種や安定核種となる。

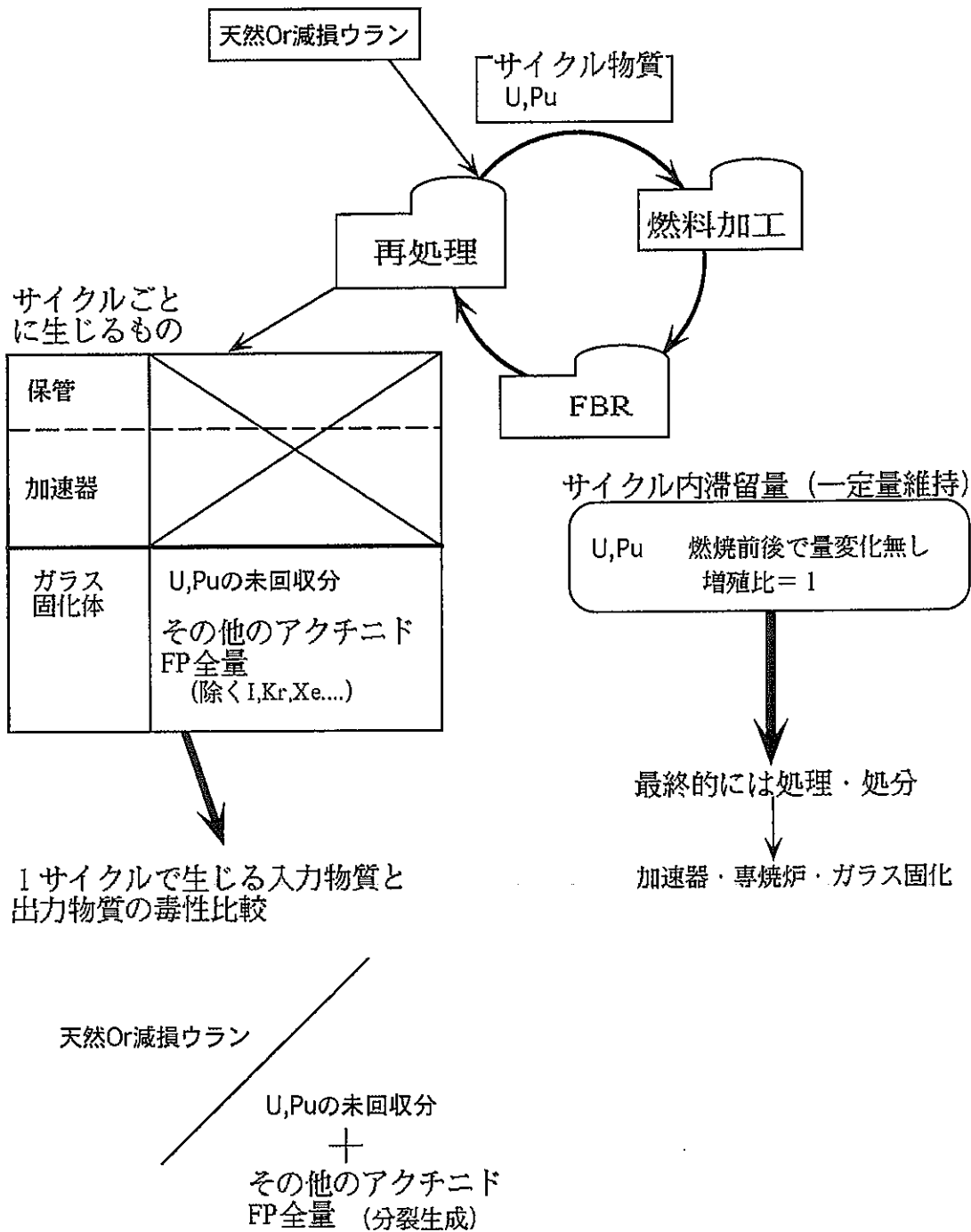


図 3.2.1: 現行サイクルの特性

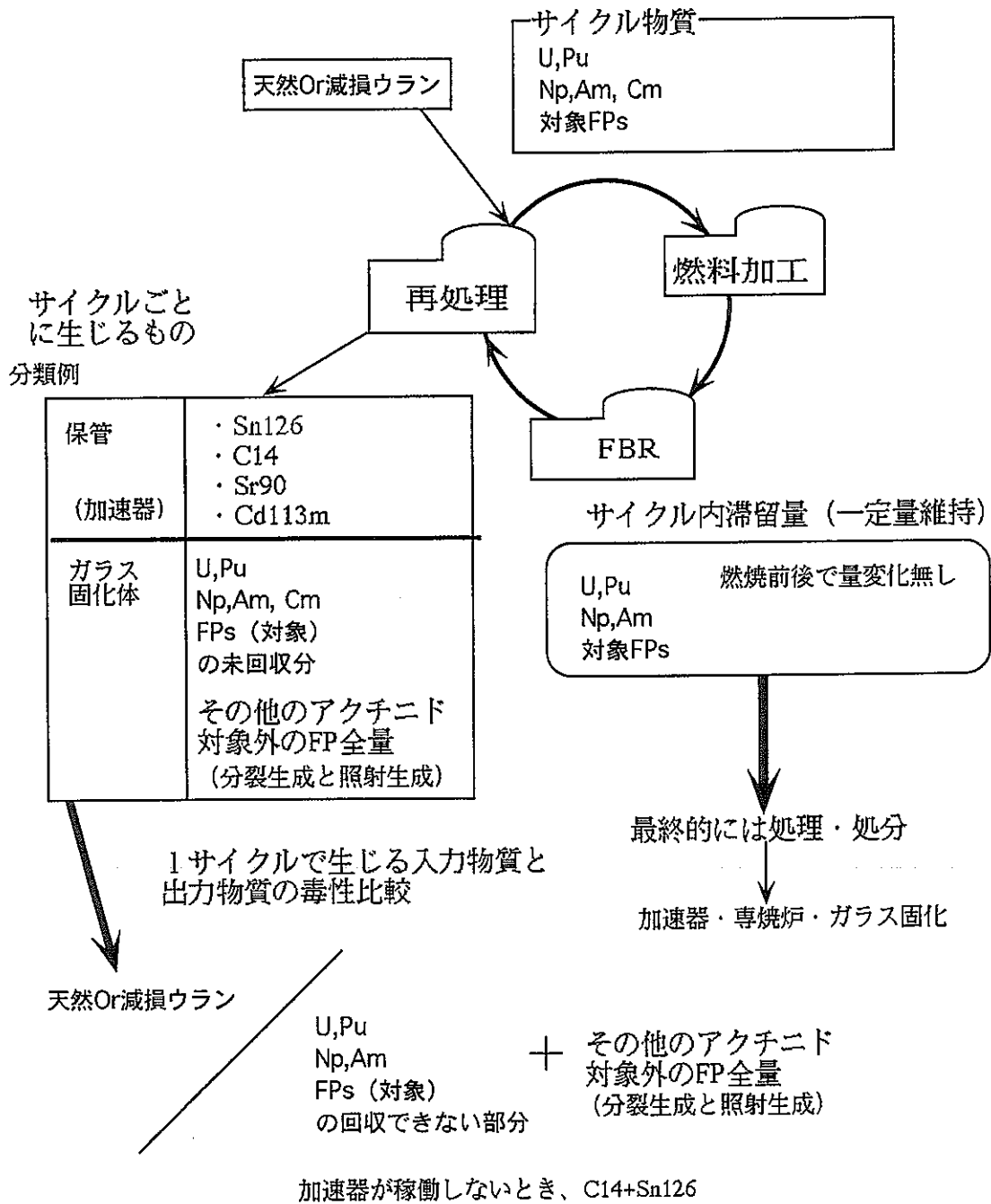


図 3.2.2: FP サイクルの特性

第4章 現行シナリオとの比較

4.1 エネルギー収支

4.1.1 電子線加速器による変換

ここでは、まず、加速器を用いた場合について、検討する。エネルギー収支に元素及び同位体分離に費やすエネルギーを見積っていない。

加速器を用いて、 ^{137}Cs や ^{90}Sr を消滅させることはエネルギーの収支から成立しにくい。計画している ^{137}Cs と ^{90}Sr の電子線加速器による γ 線光核反応でのエネルギー収支を示す。想定した高速炉の単位発電 (1GWe を想定) を行ったときに生じる量など検討のために必要なデータを表 4.1.1 に示す。

表 4.1.1: 加速器消滅エネルギー収支必要データ

	単位電力発生あたりに生じる燃焼直後の量 (g/GWh)	半減期 (年)	核子 1 個あたり変換に必要な供給エネルギー (GeV/N)
^{137}Cs	$C_0 = 3.67$	$T_c = 30.17$	$G_c = 0 \sim 10$
^{90}Sr	$C_0 = 0.87$	$T_c = 29.10$	$G_c = 0 \sim 10$

核子 1 個あたり変換に必要な供給エネルギー (GeV) は、加速器の効率と核子 1 個あたり変換に必要なビームエネルギーより決定できる。現在、1.4 章で述べたように値を低下させるための研究開発を推進している。加速器に供給するエネルギー量を E とし、変換できる核種量を ^{137}Cs の場合で代表させ、

$$X_c(\text{g/GWe}) = \frac{EM_c}{N_0 G_c H} \quad (4.1)$$

と求めることができる。ここで、 M_c, N_0, H はそれぞれ質量数、アボガドロ数、及び GeV と GWh の単位換算係数である。 ^{90}Sr の場合は、添字を c から s にすればよい。半減期が両核種とも 30 年程度であるので t 年間保管後、分離回収することで崩壊により核種量は減少していく。崩壊定数を $\lambda_c = \log 2/T_c$ であるから、

$$Q_c = \frac{C_0 e^{-\lambda_c t}}{X_c} = \frac{C_0 N_0 e^{-\lambda_c t}}{M_c} \quad (4.2)$$

で t 年間保管した場合でのエネルギー収支が表せる。これより、発電したエネルギーと加速器に供給するエネルギー量が等しくなるためには、冷却期間が 0 の状態で ^{137}Cs で核子 1 個あたり 1.39 GeV で変換できねばならない。 ^{90}Sr では、3.86 GeV であり、量核種とも変換するためには 1.02 GeV となることで初めて得られたエネルギーと等しい供給エネルギーで変換できる。発電エネルギーの 10% で変換する場合には、0.102 GeV まで核子 1 個あたりに必要な供給エネルギーを低下させねばならない。図 4.1.1 に ^{137}Cs の核子 1 個あたりに必要な供給エネルギーをパラメータに保管年数とエネルギー収支を示す。核子 1 個変換に要するエネルギーが 10 GeV/N の場合は、崩壊を待って約 80 年経過したものから ^{137}Cs だけを取り出して加速器ターゲットとすれば、発電エネルギーと等価なエネルギー量を投入することを示している。これより、核子 1 個変換に要するエネルギーが少なくとも 1 GeV/N を切らないと存在理由が消失する。

この値は 1 サイクルでの発電を基に算出したものだが、実際にはサイクルを随時繰り返していき、蓄積されていく。保管期間中に崩壊で量が減少するので発生量と崩壊による減少量が等しくなり、一定量に保たれることになる。1 サイクルを単位発電で正規化し、 k 回のサイクルを繰り返した時に蓄積されている核種量は、サイクル期間での崩壊率を δ_c とすれば、

$$n_k = C_0 \frac{\delta_c^k - 1}{\delta_c - 1} \quad (4.3)$$

となる。このとき、 k 回のサイクル活動で $k(\text{GWh})$ の発電が行われたことになる。従って、エネルギー収支は、サイクルごとに異なり、

$$Q_k = \frac{C_0 N_0 G_c H}{M_c} \times \frac{\delta_c^k - 1}{\delta_c - 1} \quad (4.4)$$

で表すことができる。図 4.1.2 に ^{137}Cs の場合についてサイクル回数とエネルギー収支について示す。

^{137}Cs と ^{90}Sr は分離後、保管することで崩壊により量が一定量に落ちつくため、保管管理が重要となる。これまで、炉内の中性子場による変換を考慮して再度装荷すべき FP 核種を選定したが、比較的短い寿命の核種は、 ^{90}Sr のように中性子反応が少なくても自然崩壊により量が減少するため長寿命の FP 核種と同等に炉内に再装荷することができる。ある意味では、炉内を保管庫にすることでもある。このようにすることで、少なくとも ^{137}Cs , ^{90}Sr の変換に特別に加速器によるエネルギー投入が必要とならず、サイクル内に長寿命核種と同様に一定量に維持できる。従って、元素分離と同位体分離を高速炉で発生したエネルギーの多くとも 10% 以内の消費で抑えることでエネルギー収支は満足できる可能性がある。しかしながら、現実的にはエネルギー消費以外の何者でもないこのような構想を正当化できる判断基準はありえない。

元素分離や同位体分離に費やすエネルギーは 4.3 節での経済性評価と合わせて行うものだが、現時点では明確にしえなかった。電子線消滅研究対象には同位体分離の必要性を考慮しえなかったなど総合評価とも合わせて今後の重要な課題である。ここで検討した同位体分離のロードを考慮すればエネルギー損失はさらに大きなものとなる。

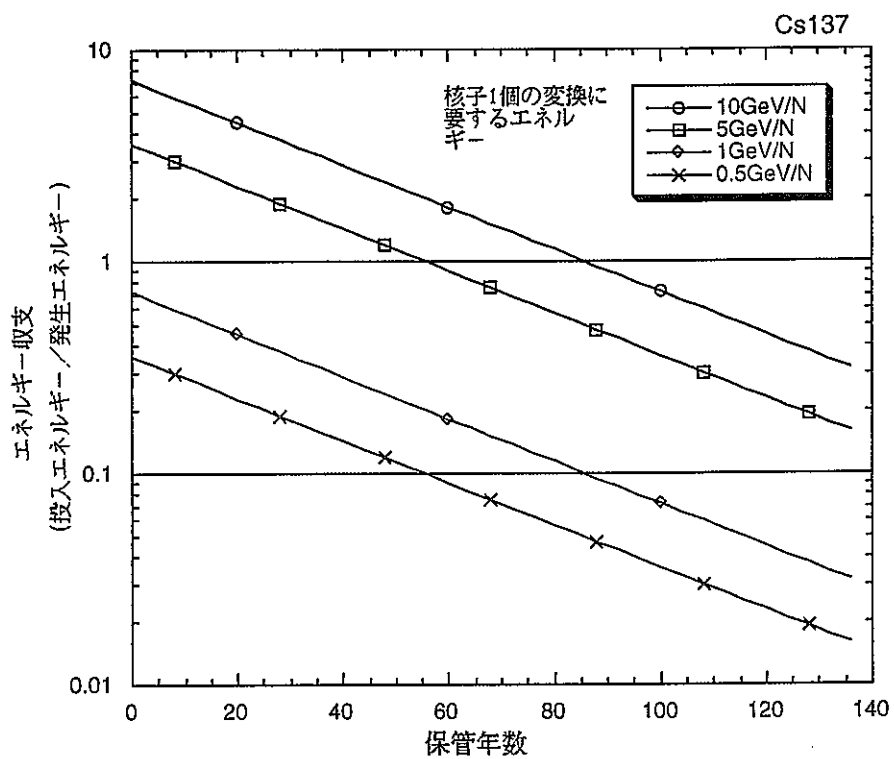


図 4.1.1: 保管年数とエネルギー収支 (Cs137 の場合)

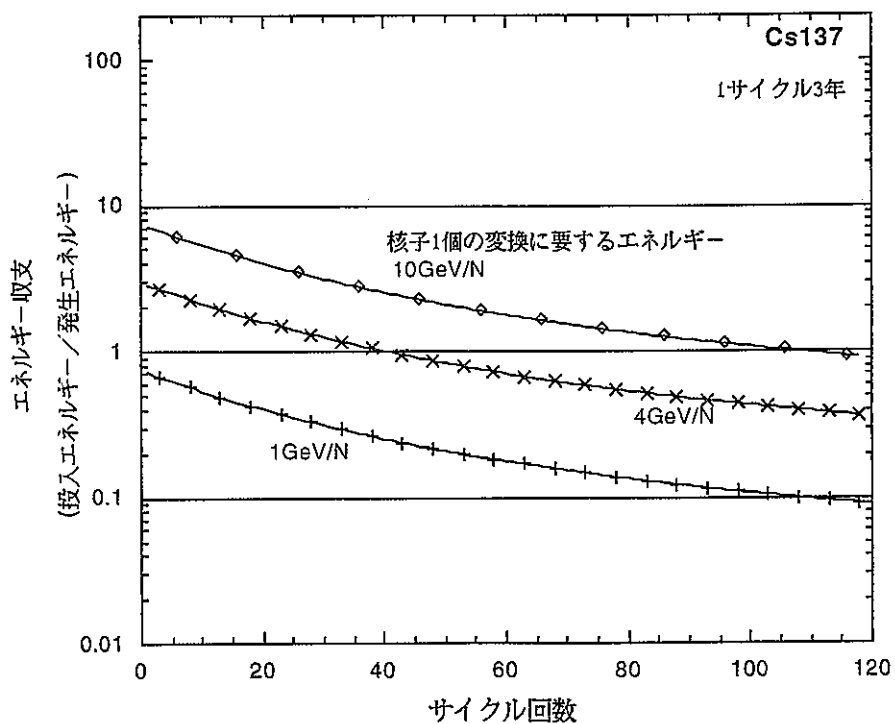


図 4.1.2: サイクル回数とエネルギー収支 (Cs137 の場合)

4.2 毒性 (ALI) 低減効果の評価

表 1.3.13 に示すゼロリリースサイクル高速炉において、炉へ FP 核種⁷⁹Se, ⁹³Zr, ⁹⁹Tc, ¹⁰⁷Pd, ¹²⁹I, ¹³⁵Cs, ¹⁵¹Sm を装荷することによる毒性低減効果を示す。これらの核種は分裂での生成量と炉へ装荷した量に対する消滅量が等しくなり、結果的に生成しないことに相当する。同様に、⁹⁰Sr, ^{113m}Cd, ¹³⁷Cs のような短半減期の核種は分離後、保管管理することで自然崩壊による減少量と分裂生成量が等しくなり、これも結果的に生成しなかったことになる。これらの核種は、炉内での消滅効果は低いが、半減期がサイクル時間に対して、数倍であり、1 サイクル（径ブランケット装荷で 4 年）期間で消滅するため、炉内に再度装荷することを想定した。⁹⁰Sr, ^{113m}Cd, ¹³⁷Cs のような核種は、保管場所が炉内、外を問わない。図 4.1.1 に想定した高速炉において、1 サイクルで発生する FP 全量と⁷⁹Se, ⁹³Zr, ⁹⁹Tc, ¹⁰⁷Pd, ¹²⁹I, ¹³⁵Cs, ¹⁵¹Sm, ⁹⁰Sr, ^{113m}Cd, ¹³⁷Cs の生成が抑えられたケース、の毒性低減効果を回収率 100% の場合において示す。結果的に毒性寄与の大きな核種である¹²⁶Sn, (¹⁴C) の発生を抑制することはできなかった。表 4.1.1 に平衡時の炉内滞留量を示す。これは、¹²⁶Sn の滞留量が消滅率の低さから多量になってしまうことによるものである。図中の天然ウランの毒性は、サイクル活動により、1 サイクル時に新たに供給する減損ウランの量から毒性指標を求めたもので、入力毒性と出力毒性を比較したものになる。

表 4.2.1: 平衡時炉内体積量の把握 (計算値)

想定炉 燃焼度90000MWd/ton
出力 100万kWe
炉心 全HM量(29ton 3バッチ
径ブランケット 35ton(HM相当) 4バッチ
FP 70%V/O装荷

核種	質量数	半減期(年)	消滅率(炉心) / 3年	消滅率(ブランケット) / 4年	分裂生成量 (Kg/バッチ)	炉心平衡量(Kg/バッチ)	ブランケット平衡量 (Kg/バッチ)	密度 g/cc	体積 g	装荷是非
C14	14	5730	断面積データ無		0.0054	?	?			装荷せず
SE79	79	650000		0.0412 *	0.0813		1.974	6.80	2.90E-04	径ブランケット
SR90	90	29	0.0692 **	0.0912 **	4.0450		44.364	2.60	1.71E-02	径ブランケット
ZR93	93	1530000	0.0723 *	0.0113 *	8.0527		712.627	6.53	1.09E-01	径ブランケット
TC99	99	214000	0.5630 *	Core	12.3317	21.904		11.50		Core
PD107	107	6500000	0.6050 *	Core	6.8407	11.307		5.80		Core
CD113M	113	14	0.1380 **	0.1797 **	0.0074		0.041	8.64	4.75E-06	径ブランケット
SN126	126	1000000	0.0000 *	0.0002 ***	0.8284		4142.013	5.76	7.19E-01	装荷せず
II29	129	15700000	0.0069 *	0.2112 *	3.9543		18.723	4.93	3.80E-03	径ブランケット
CS135	135	2300000	0.1358 *	0.0255 *	21.5100	158.35	843.529	1.87	4.51E-01	径ブランケット
CS137	137	30	0.0670 **	0.0883 **	17.1053	255.43	193.768	1.87	1.04E-01	径ブランケット
SM151	151	90	0.6770 *	Core	2.1269	3.14		7.70		Core

消滅率は
*) 炉心解析コードCitationによる自然崩壊を含まない中性子照射による消滅結果
**) 半減期の短い核種で、炉内存在時間での自然崩壊分を足し合わせた結果
***) 中性子束を既算した燃焼計算コードORIGEN-IIによる計算結果

UO2 HM密度 9.65 g/cc
装荷体積
バッチあたり 0.71 G

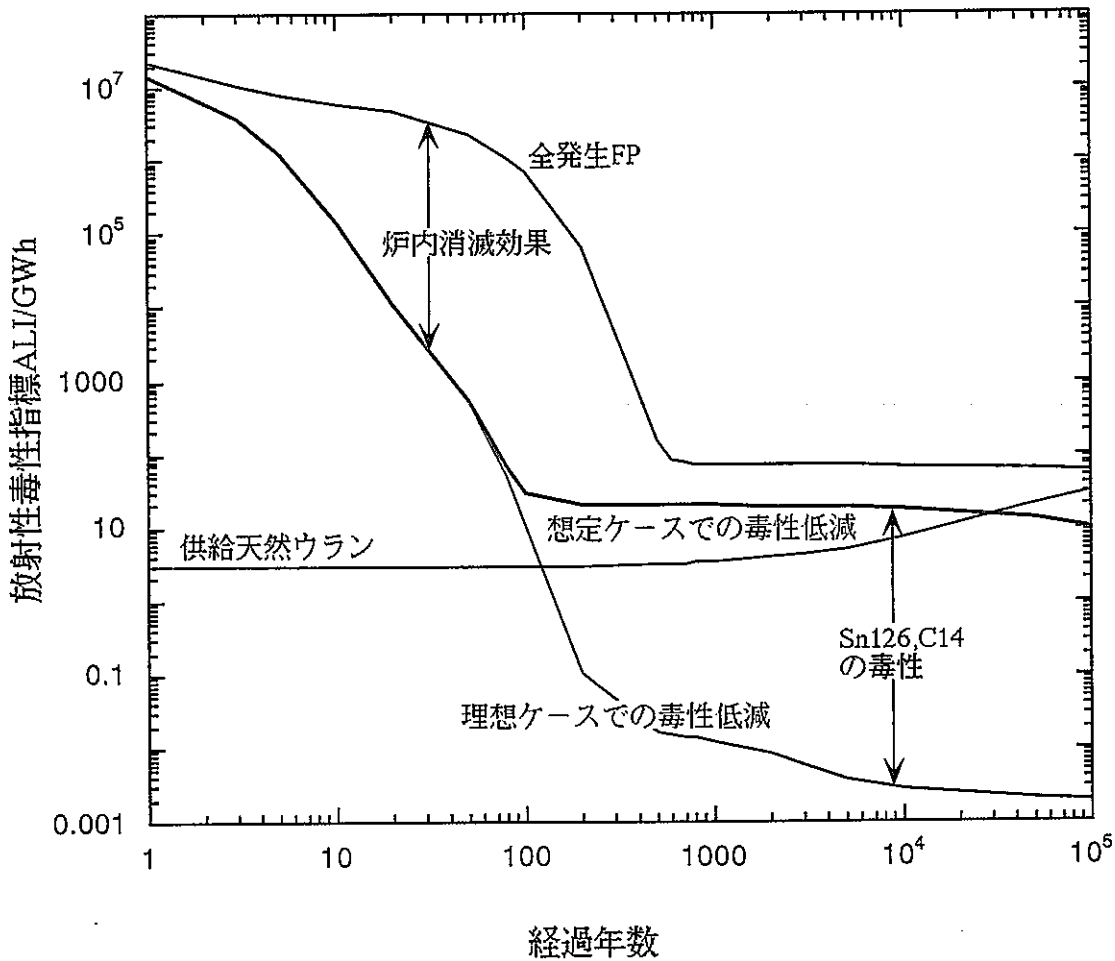


図 4.2.1: 毒性低減効果 (回収率 100%)

4.3 経済性の検討

4.3.1 MOX/PUREX における経済性向上方策

動燃はこれまでに、MOX 燃料および PUREX 再処理をベースとした FBR リサイクルシステムの経済性目標とその達成に向けての課題を明らかにしてきている。LWR サイクルコストに匹敵する FBR サイクルコストの達成のために必要な燃焼度、炉建設費、再処理および製造単価の目標について表 4.3.1 に示した。

表 4.3.1: FBR サイクルの経済性目標

燃焼度	150MWd/t 以上
炉建設費	FBR=LWR × 1.0
再処理費	FBR=LWR × 2.5
燃料製造費	FBR=LWR × 3.0

平成 7 年の第 28 回「報告と講演の会」においては、現行技術体系の改良でこの目標が達成できることを紹介している。^[33] ここで現行技術とは、MOX 燃料はグローブボックス内で製造、それが可能となるよう十分な除染係数が期待できる再処理フローシートを採用（MA リサイクル概念は採用していない）、また炉はこのような燃料を用いたもので 2 次系削除等を採用した概念、と整理することができる。

その後、燃料サイクルの分野においては炉・再処理・燃料の境界条件を見直すことによる現行技術のさらなる高度化技術として「先進的な湿式 MOX プラント概念」を提案し、一層の経済性向上の可能性について言及してきている。経済性の観点からは、主として再処理の低除染化（1000ppm 程度の FP 含有）によるプロセス簡略化による物量の抜本的削減の効果が大きい。これにより MA リサイクル機能を付加することに伴うコスト上昇（約 10% 程度と推定）を吸収し、なお十分な経済性を有する体系であるとしている。

以上の経済性検討の概略（燃料サイクル分野のみ）を図 4.3.1 に示した。

ここで上げられた課題についてはプルトニウム燃料第 3 開発室 (Pu-3) の運転経験や建設中のリサイクル機器試験施設 (RETF) における試験等により順次解決されるものと考えている。

4.3.2 ゼロリリースサイクルにおける経済性

ゼロリリースサイクルの経済性については、全ての要素技術の成立性見通しが不確定であるため、定量的検討は不可能である。定性的な範囲で今後考慮すべき課題を以下にまとめた。

(1) 元素分離（再処理）

図 4.3.2 は現行 PUREX 法に付加される 11 元素分離のために必要な工程を示している。これより明らかなように大幅なコスト増は否めない。基本となる PUREX 法のプロセス条件と適合したブレイクスルー技術の開発が必要となろう。

対象核種のリサイクルの考え方を見直せばプロセス構成も変わってくる。最終工程の Se/Cd/Sn の分離については省略できる可能性もある。これら 3 元素について、まず ^{113m}Cd 減衰のための工学保管を行う。その後 ¹²⁶Sn は炉への再装荷可能量を上回っているため、比較的毒性への影響が小さい ⁷⁹Se とともにガラス固化体として処分するシナリオに変更すれば後続する同位体分離の作業もなくなるので経済性は改善される。

U, Pu 及び MA のリサイクルまでにおいては電気化学的精製法（乾式再処理法）の経済的優位性が報告されている。しかしながら、炉への再装荷量の限界から同位体分離は必須の工程であり、ここへの原材料の供給と言う再処理の役割を考えれば、高純度精製可能な分離技術が必要となる。乾式法は析出させる金属の選択性はそれほど鋭いものではないとされており、技術的に高純度精製と言う要件を満足しないものと評価する。

(2) 同位体分離

原理的な可能性が示されているものの、実用化時代の大量処理のためにはには技術のブレークスルーが必要となる。現時点ではそのような要素技術の成立性評価ができないため、同位体分離に関するコスト推定は全く見通せない。

(3) 再装荷形態への燃料加工技術

上述した「先進湿式 MOX プラント」概念では低除染係数で MA を含有した MOX を遠隔にて加工するものとしており、その際の経済性についても評価してきている。ゼロリリースサイクルにおいては MOX に含まれる FP 量が大幅に増加するものの、加工技術は基本的に同じものである。コスト評価上は FP の MOX への混合工程の付加およびブランケット部装荷の FP ターゲットの製造工程の付加と言うアップ要因を考慮する必要がある。

(4) 炉建設費

再臨界排除炉心を採用することになるが、これにより炉心部分が大型化することはなく、また、経済性向上に大きな効果を示す 2 次系削除等とも整合しうる概念である。このため、炉建設費については軽水炉の 1.0 倍と言う目標を満たすものとする。

(5) 高レベル廃棄物処分の負担軽減

ゼロリリースサイクルの概念によりガラス固化される FP 量が減少するためガラス固化工程のコンパクト化および固化体の量の削減が期待できる。このため経済性においていくらかのゲインが期待できよう。ただし、上記 FBR サイクルの経済性検討において用いた高レベル廃棄物処分費 (OECD-NEA のデータを参考) は再処理費の約 4.5% 程度であり、従ってサイクル費全体への効果は微々たるものとする。

(6) FP の工学保管 (^{113m}Cd)

現行の高レベル廃棄物処分シナリオにおいてはガラス固化体の発熱量管理のために 30~50 年程度の工学保管を考慮している。このため ^{113m}Cd を工学保管するとしても、その発生量も小さいことから、新たな負担発生にはつながらないものとする。

さらに、 ^{90}Sr (場合によっては、 ^{137}Cs も) 同様に工学保管することが賢明な場合もありえる。

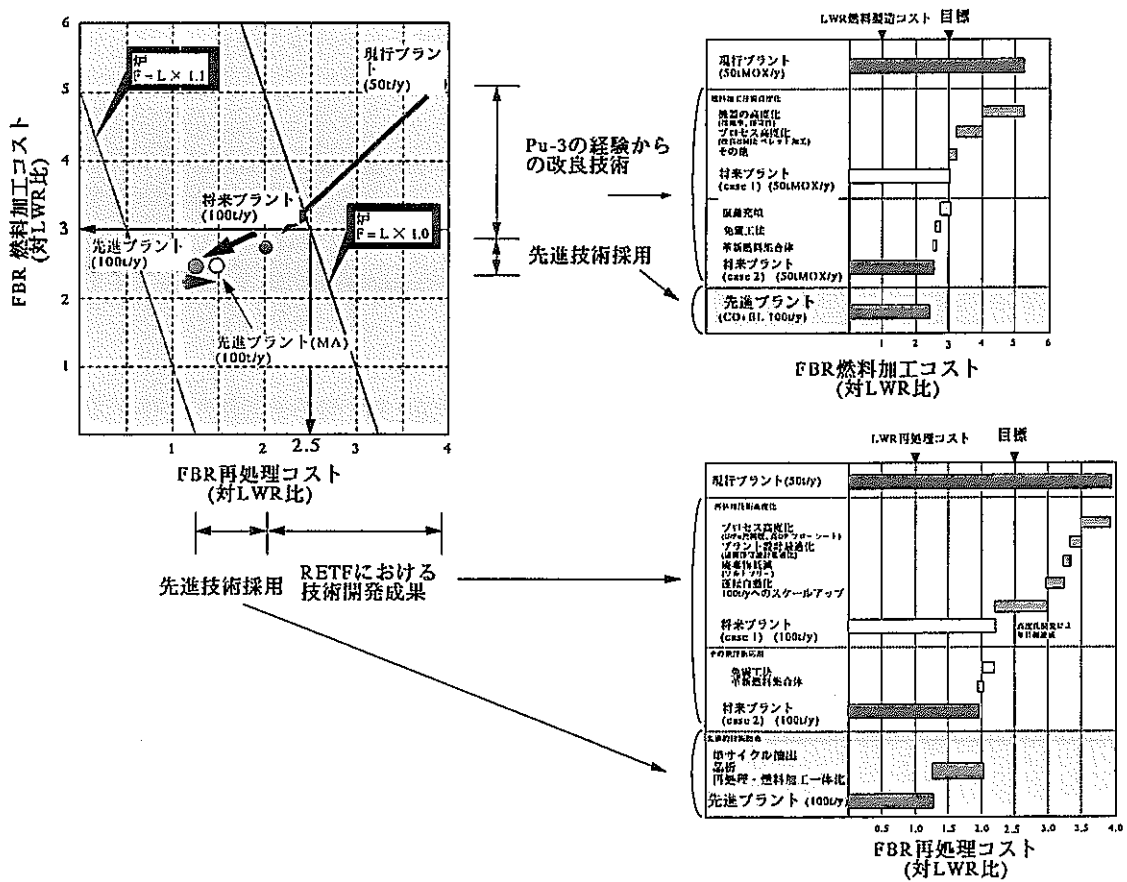


図 4.3.1: MOX/PUREX 技術における経済性向上方策

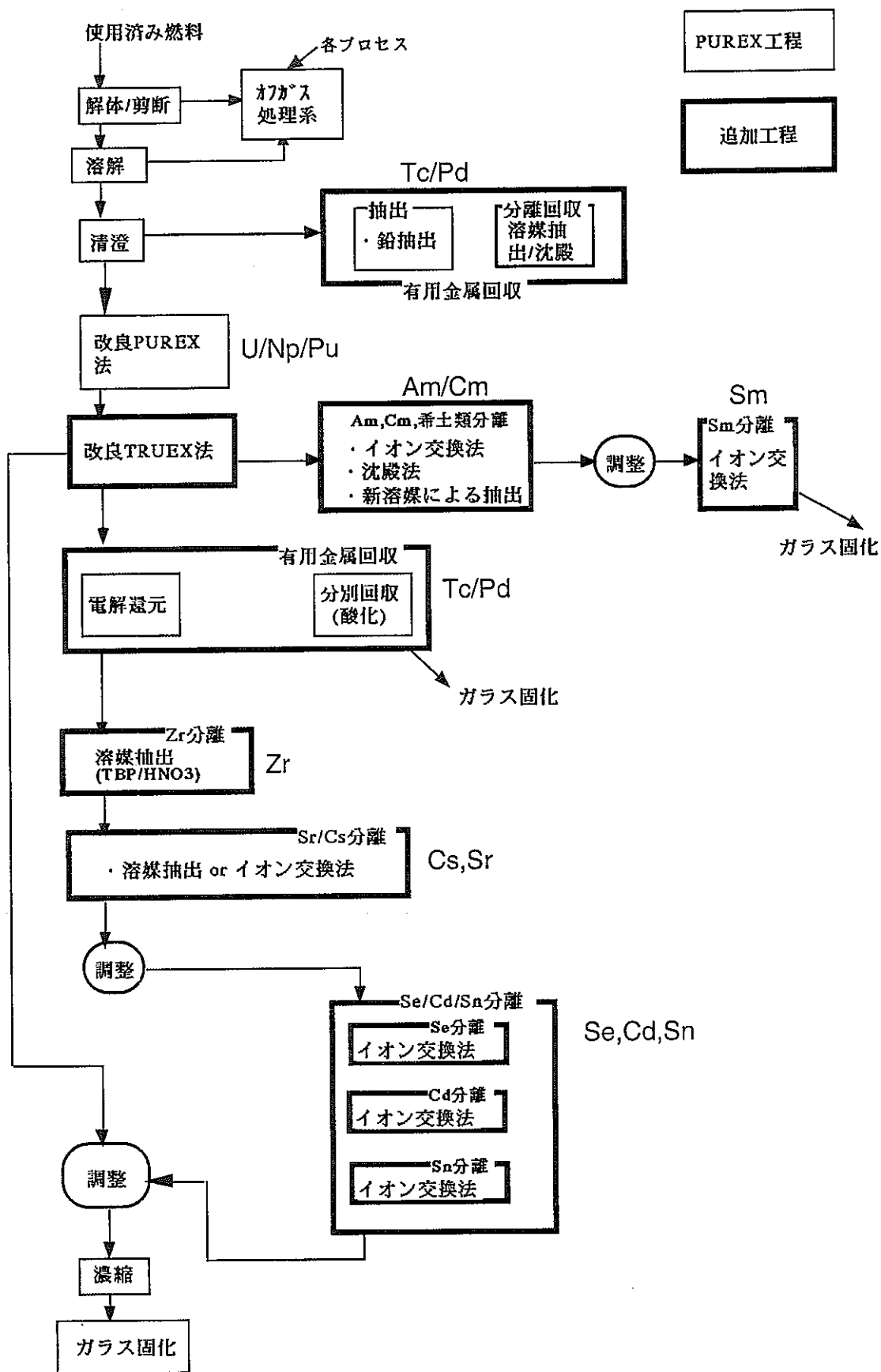


図 4.3.2: 分離工程比較

第5章 開発シナリオの提案

提案してきたゼロリリースサイクルは事業団が開発を進めてきたMOX燃料およびPUREX法再処理によるFBRシステムを基本としている。従って、その概念の実現に向けてのアプローチは従来からのFBRシステム開発シナリオを着実に解決していくことにより開けてくるものとする。

(1) 開発ステップ

時間軸的には次の3段階の開発ステップを提案する。なお、現状で成立性が見通せない同位体分離技術および消滅のための電子線加速器技術については並行して基礎的な研究開発を進めていく必要がある、他機関との協力等による効率の展開が望まれる。

(a) FBRサイクルの実証

第一の目標としてFBRによるPuリサイクルを実証することである。すなわち、第3プルトリウム燃料開発室(Pu-3)で製造された燃料により高速増殖原型炉「もんじゅ」が臨界を達成した。「原型炉」規模でサイクルの輪を閉じるためには再処理の実証が必要であり、このためリサイクル機器試験施設(RETf)を早期に完成させ、必要な技術確認を行うべきである。

これら施設の試験や定常運転の実績及び経験に基づき、経済性や安全性向上のために改良すべきポイントが把握できる。

(b) FBRによるアクチニドリサイクルの実証

平成6年の「報告と講演の会」で提案したFBRによるアクチニドの利用の概念の実証であり、原子力長計(平成6年)で言う「先進的核燃料リサイクル」技術の一つの姿でもある。MAのリサイクルを技術的に達成するとともに、MAリサイクル機能の付加と言う経済性へのインパクトに対する解としての低除染再処理の導入に伴う諸課題、すなわち再処理技術や燃料製造技術の高度化等を解決していく努力が必要である。先進的な再処理技術の実証にはRETfが利用できるが、遠隔での燃料製造技術の実証の場の整備が必要となる。

(c) FBRによるゼロリリース概念の実証

クリティカルパスとなる同位体分離技術の克服が最大の課題となろう。

同位体分離における作業量を軽減するためには、炉へのFP再装荷限度量の引き上げのための最適化設計を進めることも重要である。また、エネルギー効率は低くなるものの、高速中性子場では消滅効率の悪い核種のみを対象とした「専焼炉」を導入し、これとFBRとを組み合わせる2段階サイクル概念も考えられる。最適なFPリサイクルフローの検討が必要となる。

経済性の評価で抽出した諸課題は当然ながら解決されなければならない。

今回の検討範囲からは除外したが、完全なるゼロリリース達成のためにはプロセスからのリークを抑える以外にハル等の放射化生成物およびデコミッションングで発生する廃棄物の処理方策にまで言及しなければならない。

(2) 開発体制

ゼロリリースサイクルの実現に至る第一歩として、どのようなシナリオがもっともフィージブルであるかを徹底的に評価する必要がある。この検討には「炉-サイクル-廃棄物」が一体となり、炉・サイクル固有の特性が引き出せるように境界条件の最適化を図っていかねばならない。本検討はMOX/PUREX技術の延長上に見通せるフィージビリティを評価した訳であるが、他の燃料形態あるいは再処理方法の組み合わせについての評価も実施し、最も合理的なシナリオを構築すべきであろう。消滅の観点からのFBR/消滅炉/加速器の組み合わせ、あるいは

元素分離の観点からの湿式/乾式の組み合わせ等によるブレイクスルーの追求も必要となり、このため、原子力以外の異分野との技術交流や多機関参画型の検討体制としていくべきであろう。

(3) 評価尺度の検討

毒性低減目標をより高く置けば、そのために必要なコストは当然上がってくる。この単純な要件に加え、再臨界排除炉心（これ自身は経済性に大きな影響を与えない）の導入に代表される安全性の一層の追求、消滅効率を上げるとすると増殖性が犠牲となる、等々、各種の要求条件は複雑に関係しあっている。提案されるいくつかの概念のうち、どれが最も社会に受け入れられるものかを評価するためには、これらの条件を一つの評価尺度にまとめることが必要となる。動燃の独善的な尺度でなく、広く社会一般の評価を得た合理的な関係式として整理していくべきである。

おわりに

従来共同作業の少なかった炉部門とサイクル部門がこのような形で協力して一つのFBRサイクル概念を構築できたことは特筆すべきことであろう。タスクフォース活動を開始した時には想像すらしなかった「新法人」設立と言う現状を考える時、このような共同作業は今後の事業展開の中で一つの先例として大きな意味をもってくるものと考ええる。

本報告書は各担当が分担執筆している。各分担分はそれぞれの分野の専門家によるものであるためその技術的内容に問題は無く、かつ高い水準のものと考ええる。しかしながら、タスクフォースの運営を任された主査としての力不足のため、細部においての整合は必ずしもとりきれていない状態である。ここで示された情報を原材料として、より洗練された形に本検討を仕上げていくべきと考ええる。

ここで、提案した概念を現実的なものとするためには、経済性と環境負荷低減性を相互に満たしうるサイクルを確立することが重要であり、元素分離、特に同位体分離に対する経済負荷を早急に見積もることが重要と考える。

最後に、藤家原子力委員長代理がゼロリリース（SCNES）という新しい方向性を示され、それに対する検討の機会を与えていただき、かつ的確な御助言をいただいたことに感謝いたします。

付記

核燃料サイクルに関する勉強会タスクフォースメンバーと、本報告書作成に関する役割分担は次のとおり。

(核燃料サイクルに関する勉強会タスクフォースメンバー)

	氏名	所属		
主査	小島久雄	東海事業所	技術開発推進部	アクチニド・リサイクル・グループ
副主査	若林利男	大洗工学センター	基盤技術開発部	炉心室
委員	五十嵐寛	東海事業所	環境技術開発部	環境技術第一開発室
委員	上田吉徳	東海事業所	再処理技術開発部	プラント設計開発室
委員	河野秀作	東海事業所	核燃料技術開発部	プルトニウム燃料開発室
委員	明珍宗孝	東海事業所	核燃料技術開発部	先端技術開発室
委員	原田秀郎	東海事業所	核燃料技術開発部	先端技術開発室
委員	遠山伸一	大洗工学センター	基盤技術開発部	先進技術開発室
委員	丹羽 元	大洗工学センター	基盤技術開発部	リスク評価室
委員	家田芳明	本社	経営改革企画本部	
メンバー	平尾和則	大洗工学センター	システム開発推進部	サイクル室
	(小野 清)			
事務局	田中健哉	本社	核燃料サイクル技術開発部	プルトニウム燃料開発室
事務局	杉山顕寿	本社	核燃料サイクル技術開発部	フロンティア研究推進室
事務局	篠田佳彦	東海事業所	技術開発推進部	アクチニド・リサイクル・グループ

(執筆、役割分担)

はじめに (タスクフォース設置について)	(小島)
第1章 積極的解決策	
1.1 FBRでの消滅の可能性評価	(篠田)
1.2 消滅可能性核種の選定	(若林、篠田)
1.3 炉心概念及び消滅特性の検討	(若林、丹羽)
1.4 加速器消滅の可能性	(遠山、原田)
1.5 加速器導入シナリオ	(遠山、原田)
1.6 有用核種回収再利用計画	(明珍、篠田)
第2章 マイナス要因の極小	
2.1 分離 (元素、同位体) /加工技術 評価	(上田、明珍、篠田)
2.2 廃棄物実績調査	(河野)
2.3 リサイクルにおけるロス率評価	(河野)
2.4 保管・管理のありかた検討	(河野)
2.5 放出のための裾切りレベル検討	(篠田)
第3章 サイクルの提案及び評価	
3.1 多重リサイクルの考え方	(篠田)
3.2 マスバランス	(篠田)
第4章 現行シナリオとの比較	
4.1 エネルギーバランス	(篠田)
4.2 毒性 (ALI) 低減効果の評価	(篠田)
4.3 経済性評価	(小島)
第5章 開発シナリオの提案	(小島)
おわりに	(小島)

参考文献

- [1] 藤家洋一、リサイクル文明が求める原子力-その全体像と長期展望、日本電気協会新聞
- [2] 原田、Analysis of beam envelope by transverse space charge effect PNC TN9410 97-056 (公開資料)
- [3] 原田、FP の消滅処理研究 PNC TN8410 92-083 (公開資料)
- [4] J. Nucl. Sci. Tech. 32, [11], p.1189 (1995).
- [5] 日本原子力学会「消滅処理」研究専門委員会、消滅処理研究の現状-新しい原子力技術の可能性を求めて-、p167, 1994年8月
- [6] 森田、核燃料サイクルバックエンドを支えるアクチノイド元素群分離技術、日本原子力学会誌 Vol. 34, No.7, 1992年
- [7] 日本原子力学会「次世代燃料」研究専門委員会、「プルトニウム及びアクチノイド燃料(仮題)」, 小沢-[核種分離技術], 1997年発刊予定
- [8] 近藤, 久保田ら, 群分離法の開発:使用済燃料中に含まれる有用元素の回収及び利用法(文献調査), JAERI-M 91-147, 1991年9月
- [9] 小沢ら, 特許願 P9201004E 核燃料再処理溶液から有用金属を回収する方法
- [10] 明珍ら,「RECOVERY AND UTILIZATION OF VALUABLE METALS FROM SPENT NUCLEAR FUEL」, Proceedings of the 1993 International Conference on Nuclear Waste Management and Environmental Remediation, Vol.2, CZECH REPUBLIC, 1993年9月
- [11] IAEA, Feasibility of Separation and Utilization of Caesium and Strontium from High Level Liquid Waste, TECHNICAL REPORTS SERIES No. 356, 1993年
- [12] 遠藤, 駒ら, MOX 燃料-高度化 PUREX を用いた先進的核燃料リサイクルにおけるレファレンス概念についての予備的検討-リサイクル形態に係わる解析評価, 日本原子力学会 1995 春の年会予稿集, 1995年3月
- [13] 駒ら,「THE CONCEPT OF SEPARATION PROCESS FOR RECOVERY OF AMERICIUM AND CURIUM」, GLOBAL 97' 横浜, 1997年10月
- [14] (株)日本原燃産業, 再処理事業指定申請書及び同添付書類, 平成元年3月
- [15] 根本ら, 高速炉照射済燃料の溶解に関する研究, 動燃技報 No.95, 1995年9月
- [16] 上田, 紙谷ら, POTENTIAL REPROCESSING IMPROVEMENTS IN THE ADVANCED FUEL RE-CYCLE SYSTEM, GENES-2 敦賀, 1996年10月
- [17] 根本ら, 高速炉燃料再処理での Np と Pu の回収, 動燃技報 No.99, 1996年9月
- [18] 日本原子力学会「次世代燃料」研究専門委員会,「プルトニウム及びアクチノイド燃料(仮題)」, 小沢-[酸化物燃料の湿式再処理], 1997年発刊予定小沢
- [19] 駒ら, 溶媒抽出による三価アクチノイドとランタニドの分離, 動燃技報 No.101, 1997年3月
- [20] 小沢ら, ENHANCING ACTINIDES SEPARATION BY CONSOLIDATED PUREX AND TRUEX PROCESSES INTENSIFIED BY SALT-FREE REQUISITE, Global.95, 1995年9月
- [21] 新金属協会,「新金属早わかりシリーズ No.2 レア・アース 新版」
- [22] 小泉ら, Electrolytic Extraction of Platinum Group Metals from Dissolver Solution of Purex Process, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 30, No.11, 1993年11月
- [23] 佐野ら, 再処理プロセスにおける希少金属の電解採取に関する研究, 日本原子力学会 1997 春の年会予稿集, 1997年3月
- [24] イエ・ア・マズレンコ, 溶媒抽出便」, 日ソ通信社
- [25] H. KLEYKAMP ら,「THE CHEMICAL STATE OF THE FISSION PRODUCTS IN OXIDE FUELS」, Journal of Nuclear Materials 131 p221-246, 1985
- [26] 小夫家, 小久保, 日本化学会第 67 春季年回、講演要旨集 217 頁 平成 5 年 3 月等
- [27] Goto, M., M. Matsumoto, K. Kondo and F. Makashio, J. Chem. Eng. Jpn, 20, 157-164, 1987
- [28] 米谷ら, 高レベル放射性廃棄物の高減容処理研究, 動燃技報 No.98, 1996年6月

- [29] 河井ら、イオンサイクロトロン共鳴加熱によるカリウム同位体比の変動実験、日本原子力学会 1997 年秋の大会 予稿集 III
- [30] 藤井ら、クラウンエーテルによるジルコニウム同位体分離、日本原子力学会 1997 年秋の大会 予稿集 III
- [31] PNC PN 8420 93-003TRU リサイクル研究に関する検討報告書 (1992.12)
- [32] 山名、長期的原子力利用に伴うアクチニド核種の生産と蓄積の特性、日本原子力学会 1997 年春の年会
- [33] 動燃事業団、第 28 回 報告と講演の会予稿集
- [34] 原研、核データセンター、CD-ROM 版 JENDL-3.2 グラフ及びデータ集

付図代表 FP 核種の断面積データ

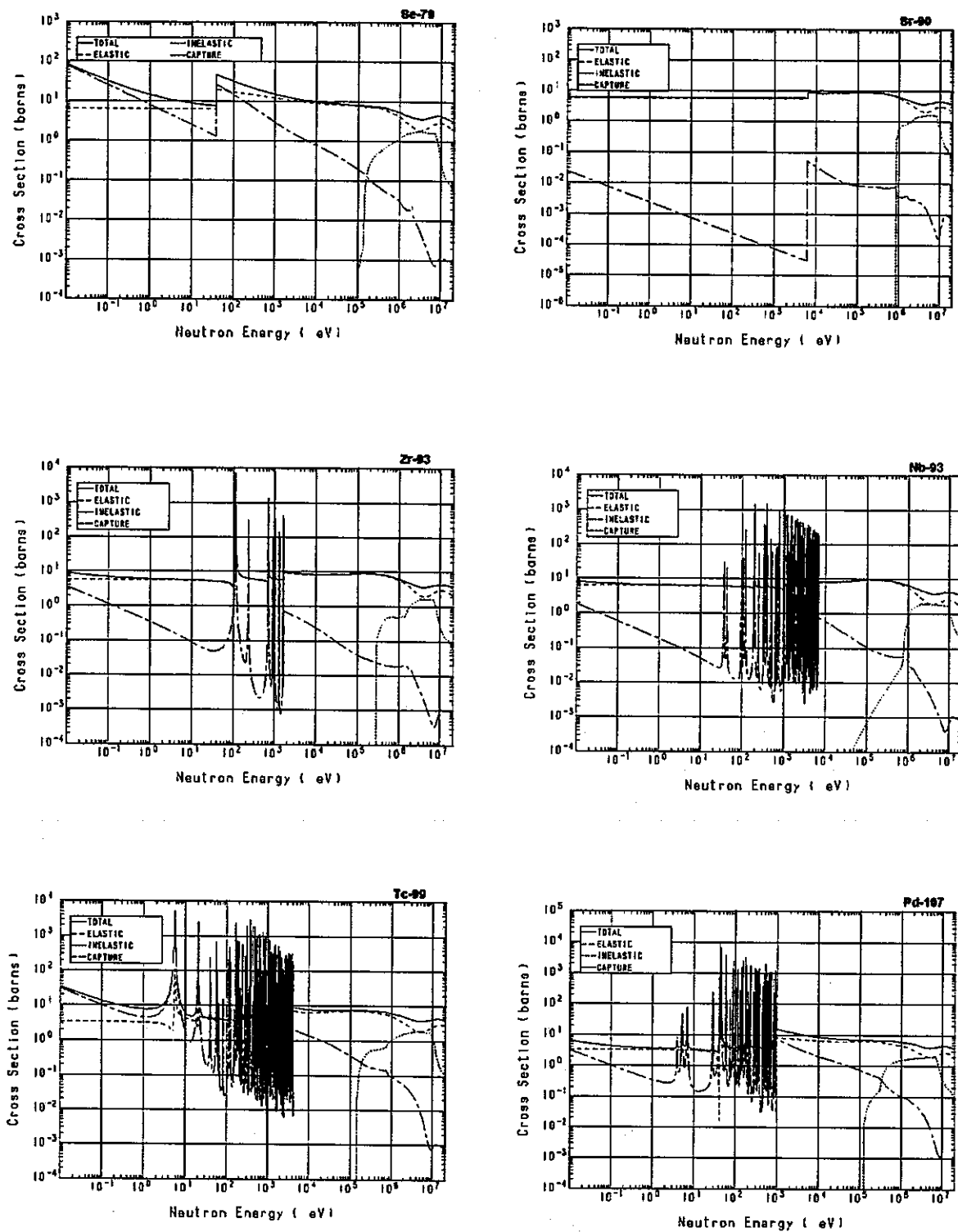


図 0.0.1: 付図 断面積 1/2

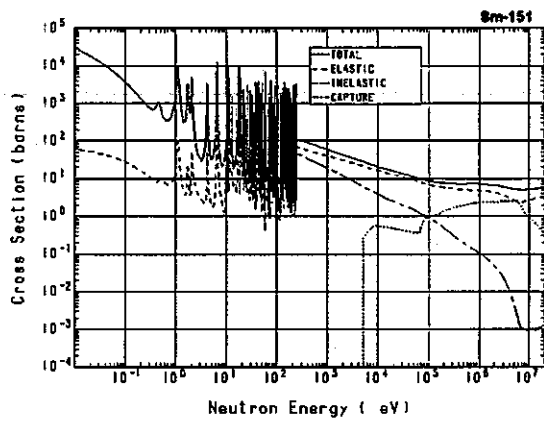
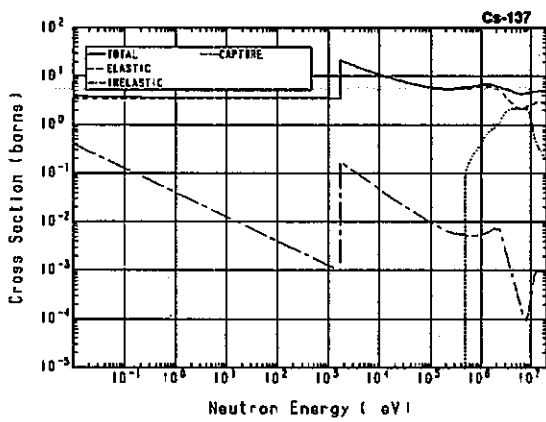
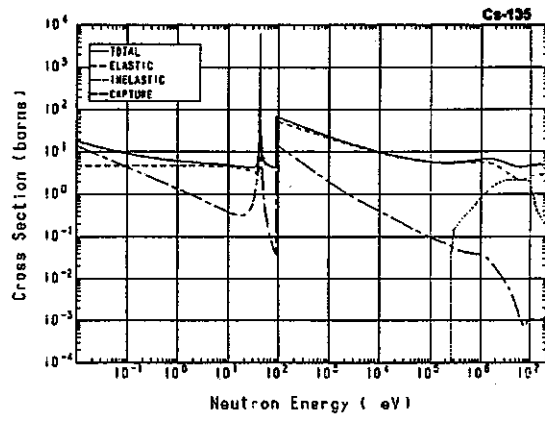
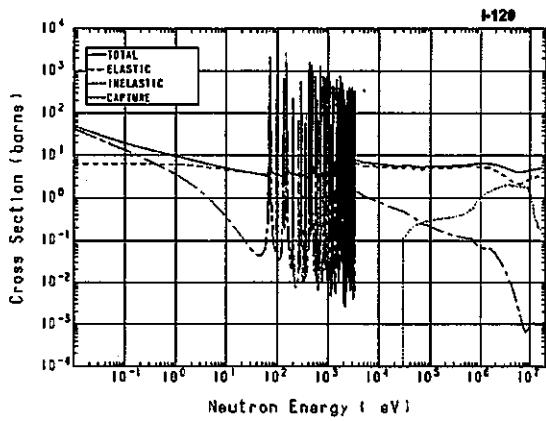
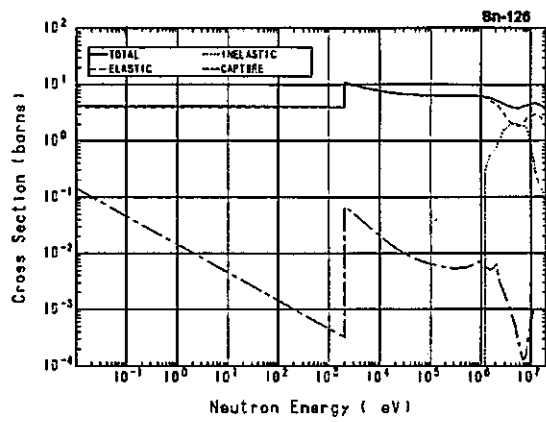
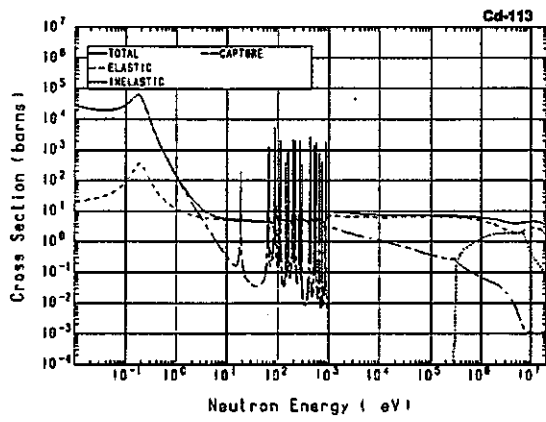


図 0.0.2: 付図 断面積 2/2

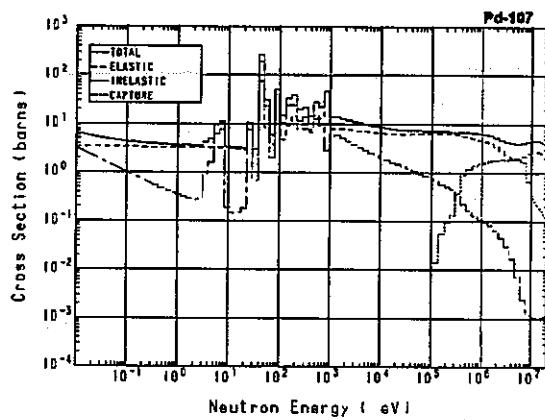
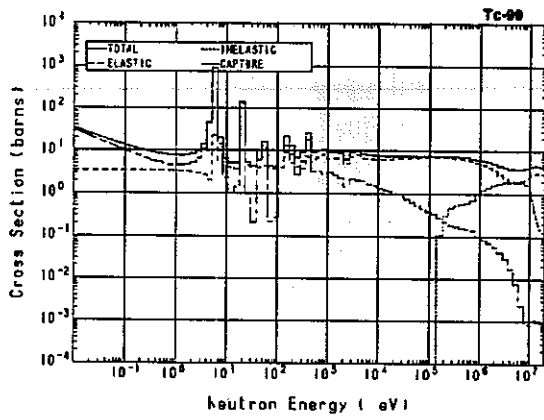
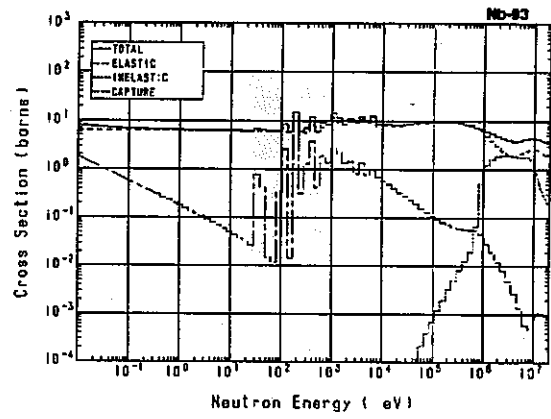
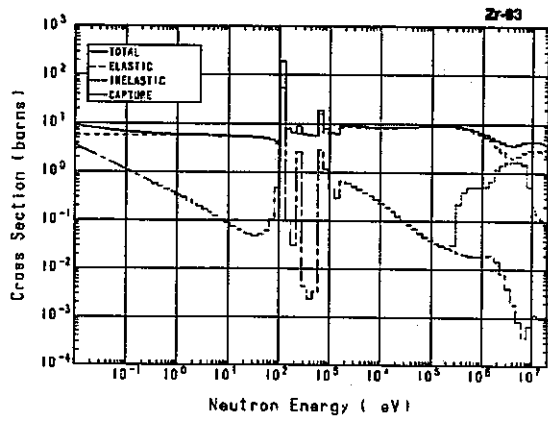
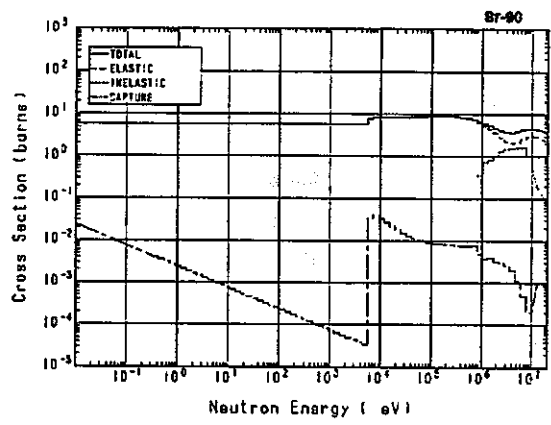
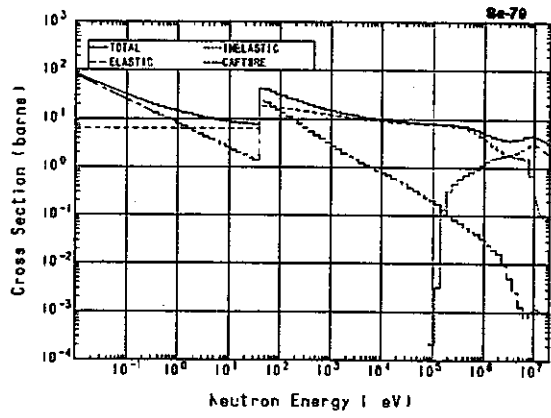


图 0.0.3: 付图 断面積 1/2—70 群平均

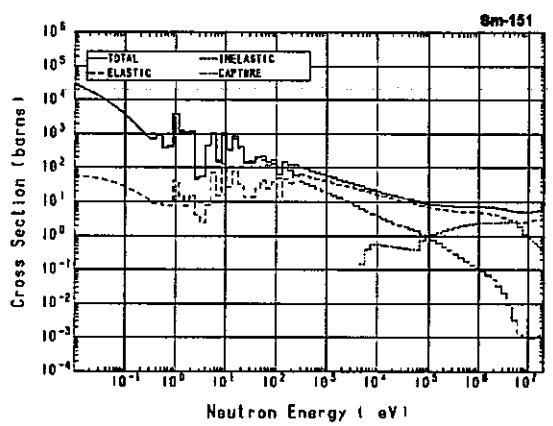
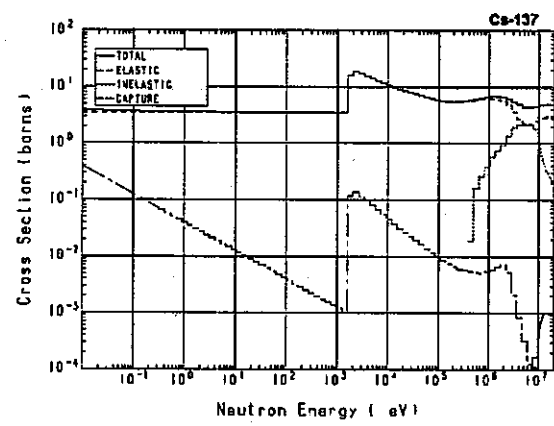
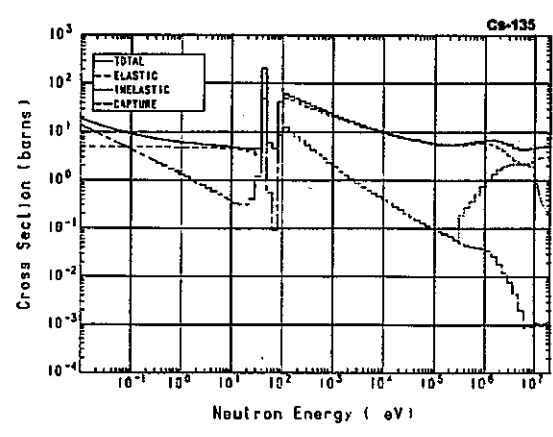
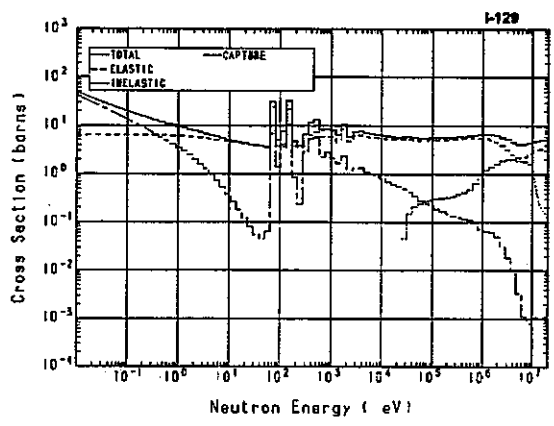
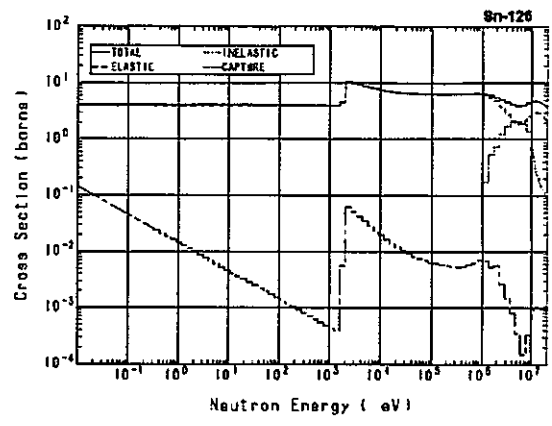
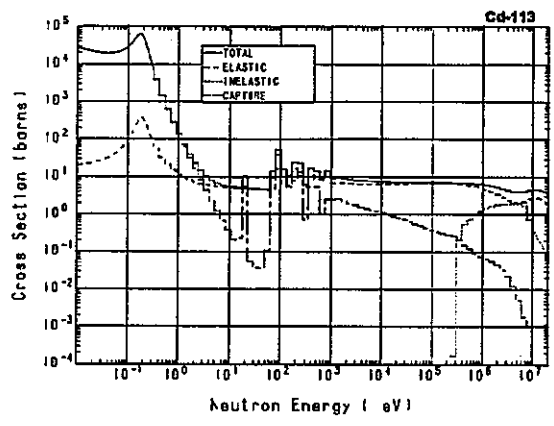


图 0.0.4: 付图 断面積 2/2—70 群平均