

高速炉燃料サイクルにおけるPUREX法 再処理の目標分離条件に関する検討

1997年3月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

複製又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。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松4-33

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所 技術開発推進部・技術管理室

Enquires about copyright and reproduction should be addressed to:Technology
Management Section, Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel Development
Corporation, 4-33 O-aza-Muramatsu, Tokai-mura, Naka, Ibaraki-ken, 319-11, Japan

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

高速炉燃料サイクルにおける PUREX 法再処理の目標分離条件に関する検討

駒 義和* 柴田淳広*
小山智造* 田中康正*
山名 元**

要旨

核燃料サイクルの開発の方向性について、核不拡散や環境負荷低減、経済性の向上といった観点で課題が提起されている。現時点で最重要の課題とされる高い経済性を達成するために、PUREX 法再処理のプロセス開発においては、目標とする除染係数を設定する作業が不可欠である。本検討では、低除染を指向する酸化物燃料—高速炉の体系を対象とし、PUREX 法再処理の抽出工程を最適化するため、主に再処理の観点から種々の制約条件を整理し、目標とする分離条件を評価した。また、U 及び Pu 製品の FP 除染について線量評価を行い、FBR 照射燃料から回収する製品に関して以下の特徴があることを見いだした。

- ・ U 及び Pu 製品についてそれぞれ 10^6 、 10^5 以上の除染係数が得られれば、線量に対する FP の寄与は無視できる。
- ・ U 製品は ^{232}U の寄与による線量の増加のために既存の U 加工施設での取り扱いが難しい。
- ・ Pu 製品の線量は軽水炉回収の Pu よりもやや低い (^{241}Am の寄与が小さい)。

これらの評価に基づき、暫定的ではあるが回収製品の仕様を求めた。仕様の概略は以下の通りである。

(1) Pu・Np・U 混合製品

U : Pu 比 1~2 : 1 (溶解液から予備的に一部の U を分離しない場合)

FP に対する除染係数 1000 (ただし詳細な検討要)

(2) U 製品 (燃料として再加工する場合)

FP に対する除染係数 1000 (ただし詳細な検討要)

α 汚染 許容

(3) 回収率

U, Pu, Np 99.9 % 以上 (再処理工程での廃棄物への移行量を 0.1 % 未満とする)

これらの製品をリサイクルするには、再処理以後の工程において遠隔により燃料製造を行う等の設備対応が前提となる。除染係数の詳細な検討には、原子炉や燃料製造側との連携を図り、燃料サイクルを総合的に評価する作業が必要である。

今後は、これらの仕様を満たす単一サイクル工程の抽出フローシートの検討を進める。

* 再処理技術開発部 アクチニドプロセス・分析開発室

** 再処理技術開発部 (現在 京都大学 原子炉実験所 助教授)

目次

1. はじめに	1
2. 目的	2
3. 前提とする燃料サイクルの形態	3
4. 抽出工程に対する要求条件	6
4.1 PUREX 法高度化の方向性	6
4.2 主分離工程での改善課題とその基本的方向性	6
5. 分離の方針	15
5.1 分離対象	15
5.2 分離目標の考え方	16
5.3 高速炉照射の U・Pu の取り扱い	19
5.4 U・Pu 分離回収条件の設定方針	21
5.5 抽出工程の構成と製品仕様	22
6. おわりに	25
引用文献	26
補足資料	27

図表目次

表 4-1	U・Pu の利用形態	13
表 5-1	U・Pu・MA 製品の取り扱いのオプション (高速炉体系)	17
表 5-2	U と Pu 製品の除染方針	19
表 5-3	製品の線量による除染係数の目標設定	21
図 3-1	アクチニドリサイクルの全体概念	4
図 3-2	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例	5
図 4-1	FBR 燃料再処理から発生する高レベル廃棄物 (HLW) の毒性の時間的推移	9
図 4-2	MA のリサイクルによる MA 核種の蓄積抑制効果の試算	10
図 4-3	アクチニドの回収による毒性低減効果 (FBR サイクル)	11
図 5-1	目標として設定する FP に対する除染係数の定性的な概念	22
図 5-2	抽出フローシートの構成概念	24

1. はじめに

数年来、核燃料サイクルの開発の方向性について、核不拡散や環境負荷低減、経済性の向上といった観点で課題が提起されている。これらは本来核燃料サイクルが対処すべきテーマであり、動燃は、様々なニーズに対応するべくいくつかの燃料サイクルオプションを検討し、また、提示してきている。原子力を取り巻く状況が大きく変化している状況ではあるが、燃料サイクルに対しては、再処理及び燃料技術開発、また、炉も含めたシステムエンジニアリング的な開発を柔軟にかつ円滑に進めることが求められていると認識される場所である。

現時点で最重要の課題とされる高い経済性を達成するためには、原子炉、燃料製造及び再処理の各分野間で燃料仕様について最適化を図る検討が不可欠である。これは、PUREX 法再処理のプロセス開発においては、目標とする除染係数を設定する作業に相当する。除染係数の設定を行うには、TBP 抽出における照射燃料中に存在する元素の挙動はもとより、燃料製造のプロセスオプション、原子炉での核的な影響等を考慮して行わなければならない。

本検討では、酸化物燃料—高速炉の体系を対象とし、PUREX 法再処理の抽出工程を最適化するため、主に再処理の視点から種々の制約条件を整理し、目標とする分離条件を評価した。

また、平成 7 から 8 年度にかけて動燃—原研間で抽出工程の高度化に関する共同研究（件名「高度化主分離プロセスに関する評価研究」）を進めている。この共同研究では、抽出工程の最適化について高速炉と軽水炉の体系を比較する作業を行うが、本検討の結果を反映する予定である。

2. 目的

動燃が継続的に開発を進めている酸化物燃料—高速炉体系の燃料サイクルにおける再処理の抽出工程について、その最適化を図るため、分離目標とする除染係数を検討する。

再処理についての課題を全般的に整理し、高速炉体系に特有の条件を考慮して照射燃料中に存在する元素の分離方針をまとめる。燃料サイクル内の各種の制約条件や技術のオプションを念頭に置き、目標とする分離条件を整理する。

また、検討の結果は、動燃—原研が共同で行う抽出工程の高度化に関する研究（件名「高度化主分離プロセスに関する評価研究」平成7～8年度）に反映させる。

3. 前提とする燃料サイクルの形態

新しい燃料サイクルオプションを検討する作業が継続して行われている^{1,2,3,4)}。平成6～7年度に行ったアクチニドリサイクルに関する検討では、酸化物燃料を用いた高速炉によるアクチニドの多重リサイクルについて主に議論を進めた^{3,4)}。図3-1に燃料サイクルの概念を示す。

燃料サイクルが解決すべき課題である

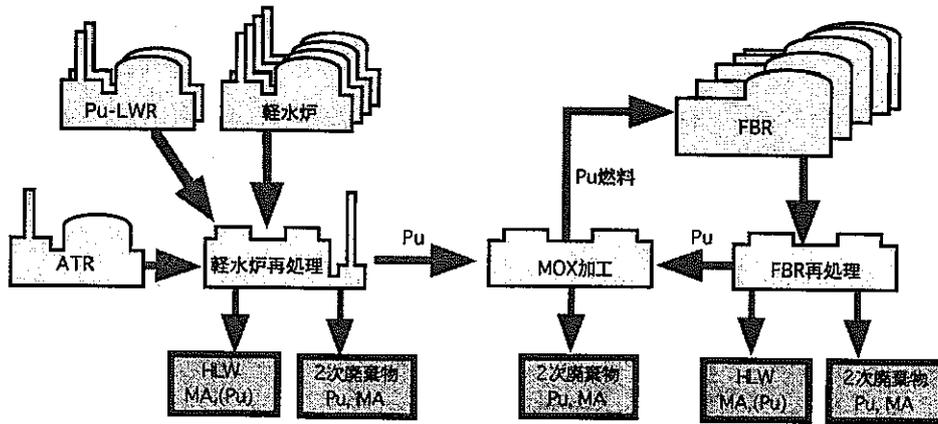
- 経済性の向上
- 環境負荷の低減
- 核拡散抵抗性の強化

を念頭に検討し、今後の研究開発の指針となるリファレンス概念を導いた⁴⁾。結果として得られた燃料サイクルは、

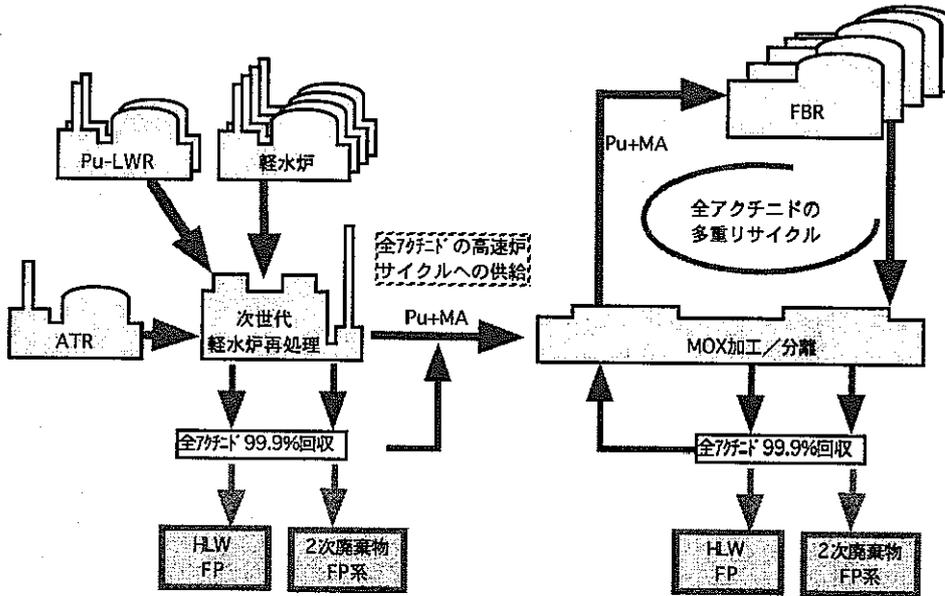
- U、Pu 及びマイナーアクチニド (MA; Np, Am, Cm) のリサイクル
- アクチニドの回収率の向上 (廃棄物への移行割合の低減)
- 遠隔燃料製造の適用と低除染再処理の許容 (燃料サイクルシステムの最適化)

などが特徴である。リサイクル形態の一つの例をブロックフローとして図3-2に示す。再処理は主に3段階の分離工程から構成される。照射燃料は溶解後、PUREX法によりU、Pu及びNpを回収した後、別の化学分離法によりAmとCmを相互に分離するものである。

本検討では、上述の体系におけるPUREX法の主分離工程について議論を進める。



現行（従来型）燃料サイクル概念



アクチニドリサイクル型燃料サイクル概念

HLW：高放射性廃棄物
FP：核分裂生成物
MA：マイナーアクチニド

図 3-1 アクチニドリサイクルの全体概念

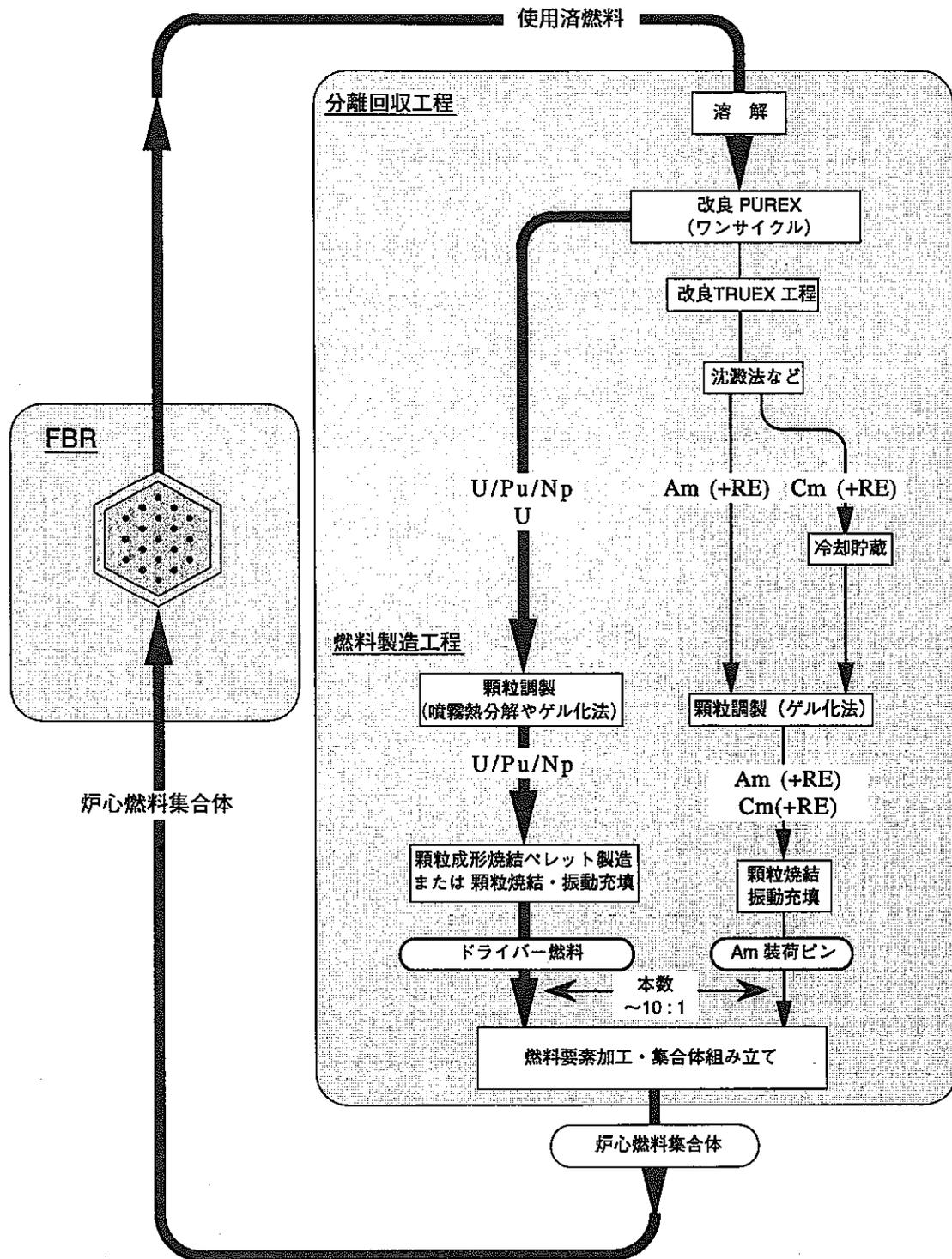


図 3-2 酸化物燃料をベースとしたアクチニドリサイクルの構成概念例

4. 抽出工程に対する要求条件

4.1 PUREX 法高度化の方向性

軽水炉燃料の PUREX 再処理技術については、仏国及び英国において大規模の商業プラントが稼働しており、かなりの技術レベルにまで到達したと言ってよい。一方、原子力や燃料サイクルをとりまく社会的な環境の変化は著しく、経済性、安全性、核不拡散問題、放射性廃棄物の問題、資源的な裕度の観点からの再処理リサイクル路線自体への疑問の台頭など、新たな境界条件が PUREX 再処理にも課されつつある。特に、高速炉サイクルの在り方について、アクチニドリサイクルや新型燃料を指向する動きが著しく、PUREX 再処理技術もこれとは無関係ではいられない。このような状況下を考慮して、PUREX 再処理の今後の在り方を探る上での評価基準を明確にしておく必要がある。

PUREX 再処理の改善に係わる一般的な視点から見た評価課題（目標）を以下に示す。

- (1) 経済性の向上
- (2) 低レベル廃棄物の発生量と放射性廃棄物への核種の移行量の削減
- (3) 一部廃棄物の最終的な処理処分の最適化
- (4) ^{14}C , ^3H などの放出放射能の量
- (5) MA (Np, Am, Cm) ・ FP の回収
- (6) アクチニド元素の回収率の向上
- (7) 核不拡散性の強化
- (8) 回収製品の利用形態に適合する仕様の設定
- (9) 燃料利用の高度化に対する適応
- (10) 爆発／火災／臨界などの事故リスク
- (11) 従事者被ばくの低減など定常時リスクの削減
- (12) 運転性の向上など

本共同研究では主分離工程の改善について検討するので、上記の課題に対する抽出工程（主分離工程）における取り組み方を明確にしていく。軽水炉再処理と高速炉再処理に対して異なる評価基準が適用されるべきであることを極めて重要な点として捉えて論じていく。

4.2 主分離工程での改善課題とその基本的方向性

前述の課題について主分離工程に係わる改善の基本的な方向性をまとめた。

(1) 経済性の向上

PUREX 再処理工場の経済性の低さの要因を具体的に解析しなければ明快な解は得られないが、技術的には①プラントの建設費の問題と、②運転稼働率や保守コストといった運転コストの問題の両方に関係するであろう。

プラントの建設費の問題は、ヘッドエンド部分や周辺設備などの建設費の高さや、全体的なエンジニアリング上のオーバーマージンなどが本質的な原因であって、抽出工程そのものの設計に依存する部分は大きくはない。しかしながら、抽出工程の短縮（プロセスボリュームの削減）は、配管類や貯槽類の削減、計装や関連ユーティリティの削減、セル容積の低減などを一般的に期待でき、さらに分離工程での試薬供給量の低減など分離に係わるマスフローの低減に結びつけられれば、試薬供給設備の削減、酸回収工程の縮小、廃液処理工程の縮小、など広く間接的にプラントを合理化する効果が期待できるはずである。独国の提案する IMPUREX にもこの思想が見える。

運転コストについては、運転維持に必要なオペレータの削減、使用ユーティリティの削減、稼働率の向上、製品仕様の緩和による歩留まり率の強化、などの視点から、抽出工程の簡素化、回収製品仕様の緩和、装置のスループットの強化などが有効となる。

さらに、二次廃棄物の発生量の削減は、廃棄物処理にかかるコストを低下させるので、二次廃棄物の発生量の少ない抽出工程を目指すことが重要である。

(2) 低レベル廃棄物の発生量と放射性廃棄物への核種の移行量の削減

低レベル廃棄物及び高レベル固体廃棄物などの発生量を低減することは、廃棄物の処理処分コストを下げるだけでなく、本来の原子力の在り方として大変重要である。抽出工程での廃棄物発生量の低減対象としては、抽出ラフィネート（サイクル数の削減）、廃溶媒の低減（サイクル数の削減、リサイクル利用）、溶媒洗浄廃液の削減、廃液中の塩類の削減などを挙げることができる。

(3) 一部廃棄物の最終的な処理処分の最適化

再処理全体としての重要問題として¹²⁹Iと¹⁴Cの回収とその処分の問題があるが、主分離工程としての問題は特にない。

(4) ¹⁴C, ³Hなどの放出放射能の量

¹⁴Cの回収が主にオフガス系において行われてゆくべきであることを前提とすると、抽出工程における¹⁴Cの制御のニーズは高くないと考えられる。³Hについては下北工場の設計に見られるように、回収酸系の独立によってなるべくプラント内に保持する方向性が望まれるが、経済的な観点での方法の最適化が望まれる所である。また、プラント内に保持した³H水を何らかの方法で安定に保持する

技術を併せて開発する必要がある。廃液ストリームを中心とした抽出工程としての対策の可能性を検討する価値がある。

(5) MA (Np, Am, Cm) ・ FP の回収

現行の U・Pu リサイクル体系では、MA (Np, Am, Cm) や FP はガラス固化体として安定に地層処分する方策が進められている。地層処分においては、放射性核種の放出によるリスクが十分低くなるようにシステムが構築される。このため、リスク低減の観点からは、ガラス固化体に含まれる MA や FP を消滅することの意義は大きくない。

再処理で発生する高レベル廃棄物の毒性（年摂取限度 ALI）については、アクチニドが主に寄与する（図 4-1）²⁾。FP による寄与が数 100 年でかなり減衰するのに対し、Am の寄与は 10^7 年までの時間スケールに対して支配的である。

核物質の利用において、潜在的な毒性を有する物質の生成を本質的に抑制するという観点に立てば、MA を含むアクチニド核種の回収は非常に重要である。MA 回収の優先度は、Am と Cm が高く、次いで Np ということになる。

MA 核種は原子炉内において中性子吸収や核分裂する。このとき、一般に核分裂と中性子捕獲断面積の比 (σ_f/σ_a) が軽水炉に対して高速炉の方が高く、MA は高速炉内で燃焼させることが可能である。MA をリサイクルする燃料サイクルが構築できれば、MA の生成量をかなり抑制することができる（図 4-2）³⁾。

アクチニドリサイクルはこれらの考え方に基づき、MA を回収し高速炉で積極的に燃焼する方針としている。

FP 元素の回収は、リスク低減のための長半減期核種の消滅の他に、白金族元素等の有用金属の回収が挙げられる。この実現の必要性については今後の議論を待つ必要があるが、大きな経済的負担なしにこれらが実現できるならこれらを目指すべきであると考えられる。回収の実施の是非にかかわらず、⁹⁹Tc のような主要な長半減期核種については、再処理工程内の挙動を追跡評価することは必要である。

(6) アクチニド元素の回収率の向上

リサイクルの対象となる物質の回収率は高いことが望ましいが、技術的に達成可能な目標を設定する必要がある。

高放射性廃棄物の毒性を低減する上では、長期にわたり存在しうる毒性を低減することが重要であろう。特に、人工バリアが放射性物質の閉じ込めを担保しうる時間スケールにおいて、毒性が低減していることが好ましい。これは、言い換えれば、ガラス固化体の埋設後数千年のうちに十分に低い毒性レベルに低下することである。図 4-3 には毒性の低減を評価した一例を示す²⁾。アクチニド元素が

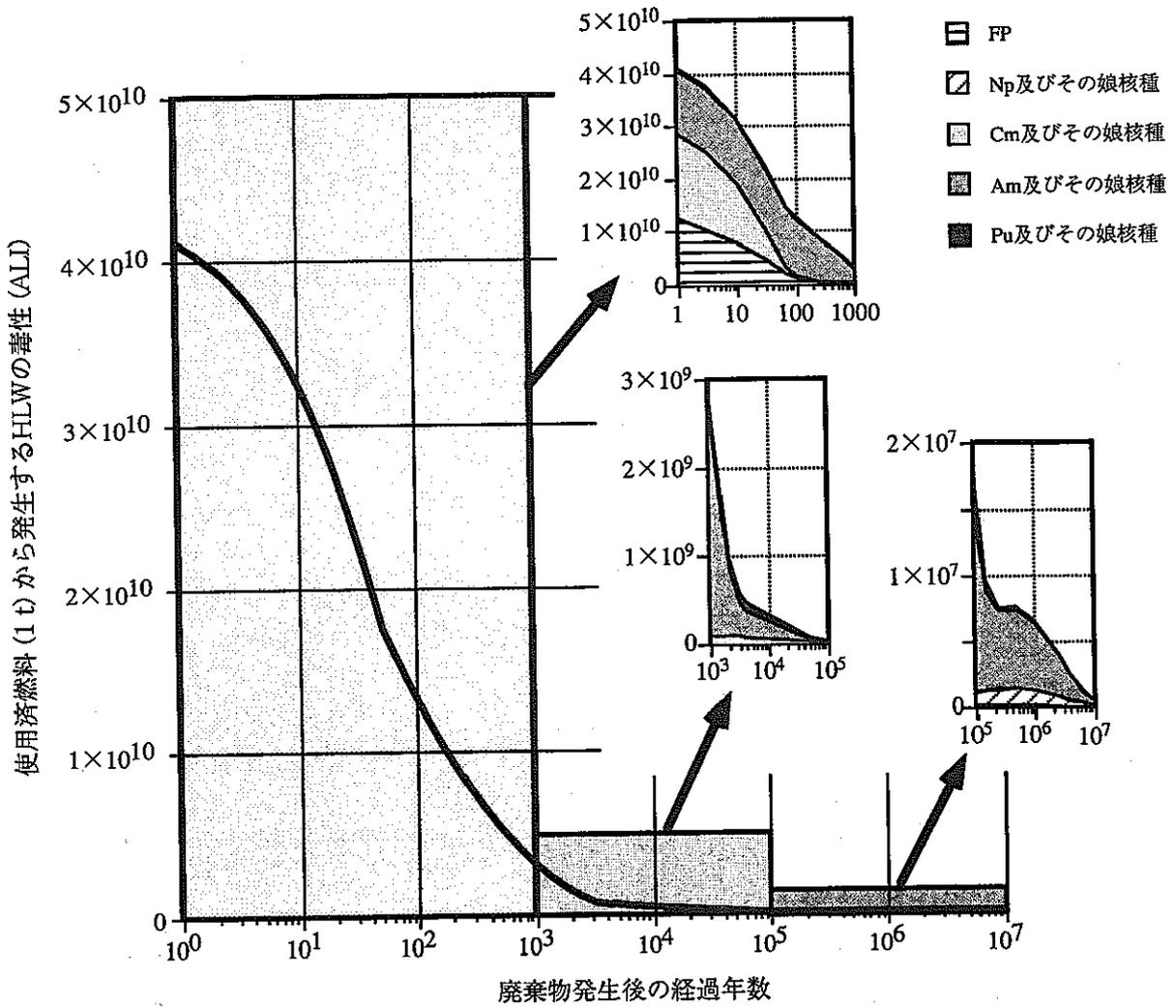
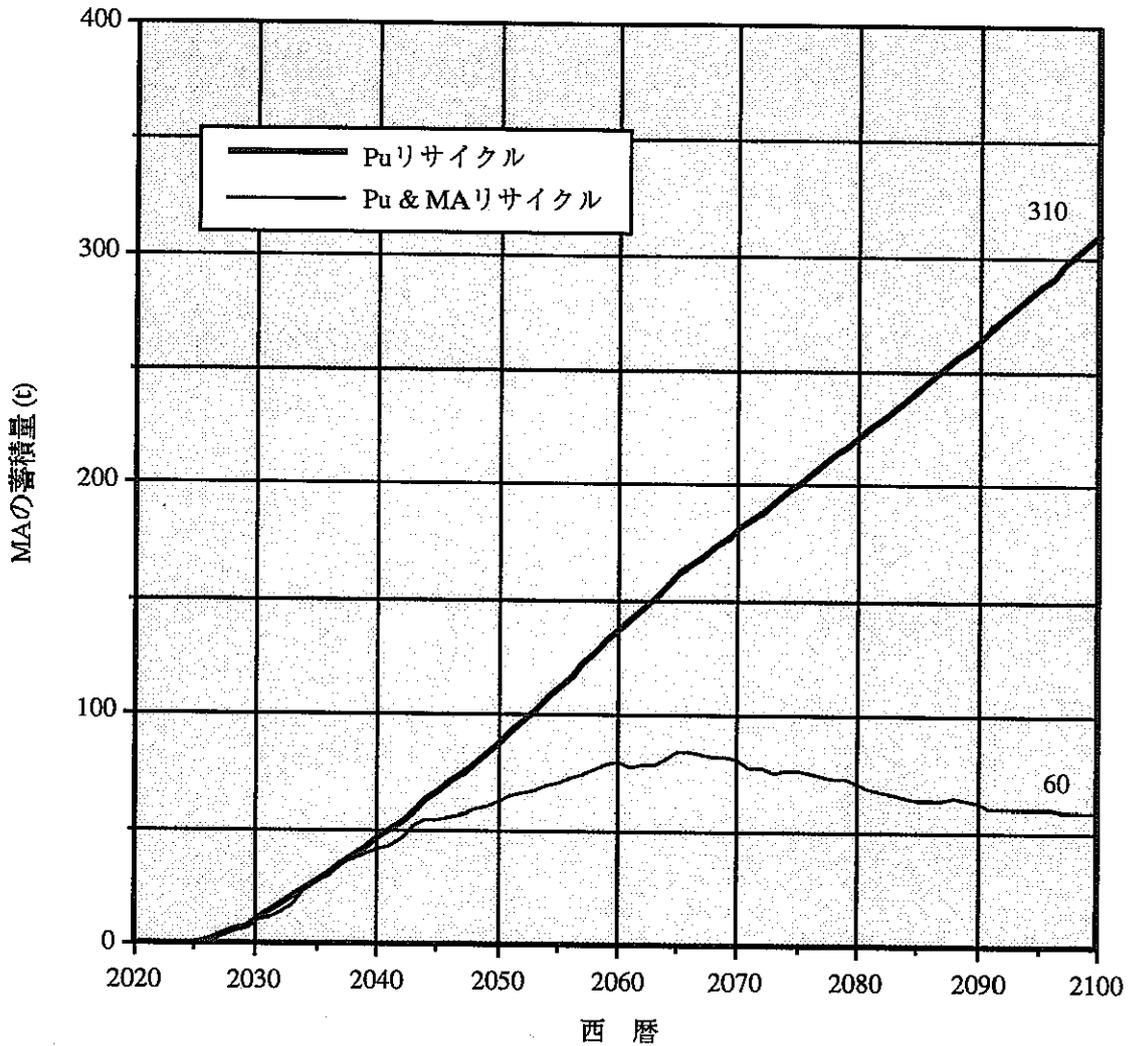


図 4-1 FBR 燃料再処理から発生する高レベル廃棄物 (HLW) の毒性の時間的推移

—原子力発電設備容量 100万kWe/年の伸びのケース—



	原子力発電設備の伸び	
	100万KWe/年	150万KWe/年
2025～2100年での MA生成量 (t)	約310 (Np67, Am230, Cm15)	約390 (Np86, Am284, Cm19)
MAリサイクル時の 2100年での MA生成量 (t)	約60 (炉内38, 燃料サイクル20, 廃棄物 0.5)	約82 (炉内54, 燃料サイクル28, 廃棄物0.6)
リサイクルによる MA燃焼率 (%)	81 (Np88, Am83, Cm24)	79 (Np87, Am80, Cm17)

図 4-2 MA のリサイクルによる MA 核種の蓄積抑制効果の試算

—MA リサイクルを開始した2025年以降の比較—

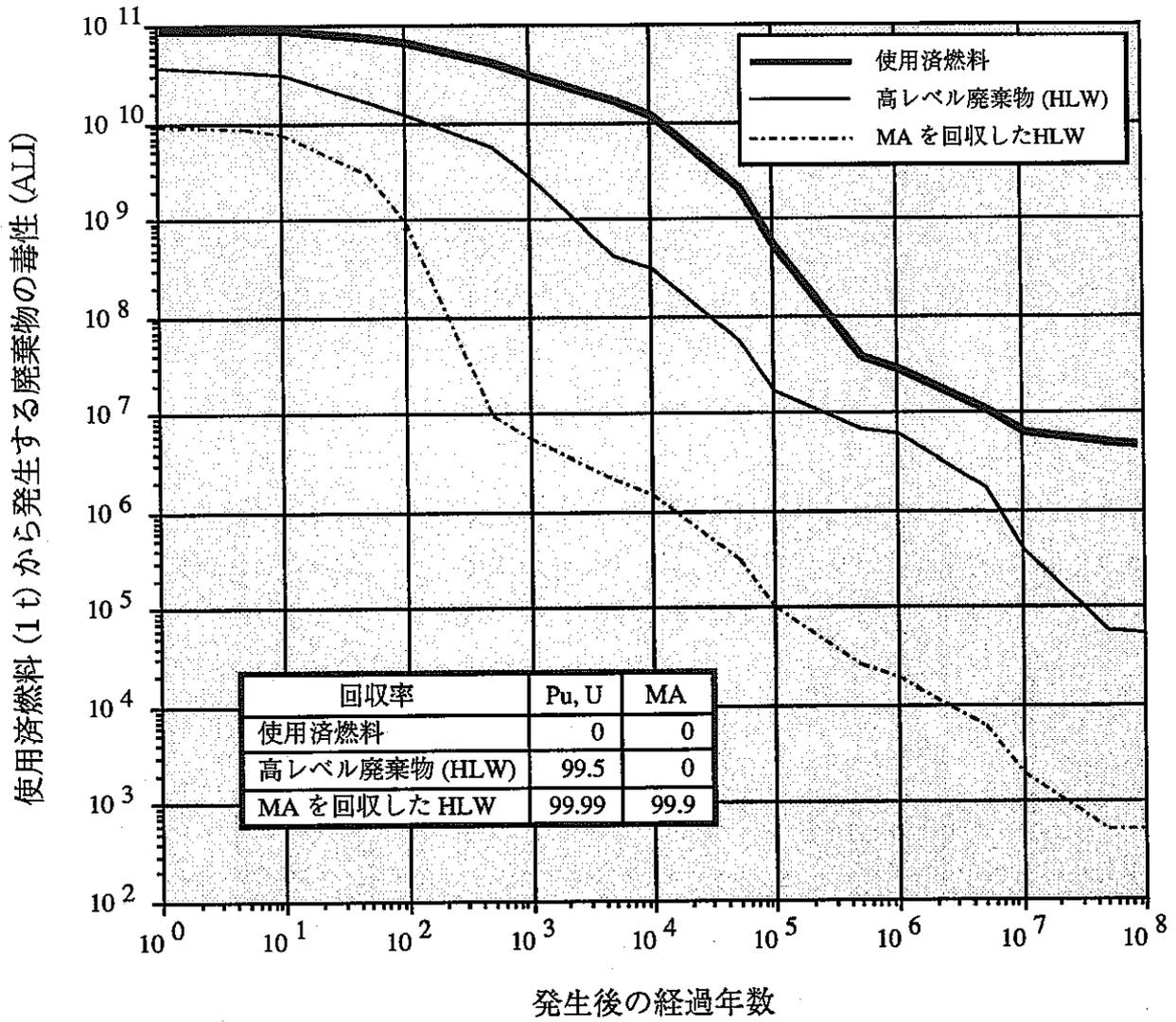


図 4-3 アクチニドの回収による毒性低減効果 (FBR サイクル)

毒性低減に最も寄与するので、その回収率の効果をまとめている。MA を 99.9 % 回収する場合には、現行のガラス固化体が数 10 万年後に到達するレベルに数 100 年程度で低下する。毒性を有意に抑制するためには、99.9 % 以上の回収率を達成することが望まれる。

また、上述のようなガラス固化体へのアクチニドの移行ばかりでなく、低中レベルあるいは施設からの放出も低減していく方向性が重要である。

(7) 核不拡散性の強化

核不拡散性を強化するためには、①工程自体に固有の核不拡散性を持たせた設計とすること、②計量管理（保障措置）が有効に行われるような設計であること、の 2 点が望まれる。

①のためには、兵器利用の姿からなるべく離れた状態でプラントを設計することが望ましいが、抽出工程内で Pu を他の成分と常に共存させるプロセスの採用が対応として考えられる。これらには、Pu を U や Np と共に回収するコプロセス化と回収製品の低除染化（一部の FP との共存）が含まれる。いずれも回収製品の兵器への転用時間を延ばす効果が期待されるが、Pu/U/Np 分離は Pu/FP 分離に比べて化学的に困難であることから、より適していると考えられる。製品の低除染化はむしろ過剰な製品仕様を見直す観点から議論すべきであろう。

②については工程が簡素でインベントリの分散や未確認インベントリ（工程内在庫）が少ない工程であるべきである。工程を簡素化することは、核物質の分散を抑制することに本質的に寄与する。

(8) 回収製品の利用形態に適合する仕様の設定

現在、東海再処理工場では、Pu 及び U 製品に対してかなり高い除染係数が得られている。Pu と U の分離についても、Pu 製品中の金属不純物 4000 ppm 以下という厳しい仕様が適用されている。これらの目標値が過剰に高いことは、過大な設備費用や施設稼働率の低下につながることになる。したがって、使用済み燃料からの分離回収に際しては、回収物の利用方法や保管状況、安全上の観点などを総合的に考慮して、最適の除染及び分離係数に留めるべきである。

最適な除染及び分離係数とは、Pu 製品中に許容される核分裂生成物や他のアクチニドの量、U 製品に許容される Pu や核分裂生成物の量の「Minimum Necessary」を意味する。

除染及び分離係数を回収製品の仕様として設定し、これに基づき分離プロセスの最適化を進めるが、仕様を求める際には、回収製品の利用のオプションを明確にしなければならない。軽水炉 MOX (Pu thermal) 利用や U の廃棄物としての処置も含めたオプションを表 4-1 に示す。

抽出分離による除染は、燃料製造プロセスに関して支障がなく、原子炉内で核的に有意な影響を及ぼさないことを必要とする。分離目標とする除染係数は、軽水炉燃料を前提とする場合には、元素ごとの詳細な検討を要すると思われるが、高速炉燃料については分離に対する要求は低い。

例えば、燃焼度 100 GWd/t の照射燃料はおよそ 10 % の FP を含むが、これを除染係数 100 で除去

する（100分の1に低減する）と、回収した核物質から再加工した炉心燃料中のFPは0.1%程度となる。これは、1 GWd/tの燃焼度に相当するFPを未照射燃料中に照射開始時点で既に保持することであり、この燃焼度までの運転コストが損失とはなるものの、核的な影響は非常に小さいと判断される。また、U・Puの多重リサイクルにより初期燃料中にFPが増加することになるが、DF100で10回リサイクルした場合においてもその増分は約10%にとどまり、無視しうるレベルである。

これらのことから、核的な影響が大きい白金族や希土類元素について100以上の除染係数を確保することにより核的な要求は満たせることになる。利用目的及び取り扱う施設の設備設計に応じて除染及び分離係数を最適化することが望まれる。

表 4-1 U・Pu の利用形態

	利用目的	施設分類
U 製品	軽水炉 U 燃料	U 施設（濃縮，加工）
	軽水炉 MOX 燃料	現行型 Pu 施設
	高速炉炉心燃料	現行型 Pu 施設／将来プラント*
	高速炉ブランケット燃料	U 施設／将来プラント
	廃棄物	管理・処分施設
Pu 製品	軽水炉 MOX 燃料	現行型 Pu 施設
	高速炉炉心燃料	現行型 Pu 施設／将来プラント

* 将来プラント：遠隔による燃料加工設備を導入したサイクルプラント

分離の指標である除染係数は、 α 核種/ $\beta\gamma$ 核種についてマクロに求めた値をよく用いる。この場合、元素ごとの分離の度合いは明確にならない。溶媒抽出は元素間の抽出挙動の違いを利用することから、抽出工程の設計といった観点からは元素ごとの除染係数を個別に求めることが望まれよう。

FBR 照射燃料より回収する U・Pu 製品の同位体組成は軽水炉燃料とは異なる。軽水炉回収の U は十分に除染することにより、遮へいすることなく取り扱うことができるが、高速炉照射による U・Pu 同位体及び分離後生成する娘核種による線量評価は重要であると考えられる。

また、将来の燃料サイクルプラントにおいて実現が期待されるゲル化による燃料製造技術など、新しい燃料製造プロセスに適合した回収製品の条件（金属濃度、酸濃度等）も考慮しなければならない。

(9) 燃料利用の高度化に対する適応

軽水炉と高速炉のいずれについても、燃料の燃焼度はより高められると想定され、fissile の有効利

用・毒性低減の観点からは短い冷却期間での再処理が望まれる。また、軽水炉では Puサーマル利用も加えて想定する必要がある。これらは、高い Pu/U 比での軽水炉再処理フローシート、FP 及び Pu 量の増加や Pu 同位体の高次化による溶媒損傷の加速といった課題をもたらす。これに対応できる工夫が必要である。

(10) 爆発／火災／臨界などの事故リスク

主分離工程における潜在的な火災／爆発／臨界のリスクは以下の点に集約される。

- ①溶媒や希釈剤の火災
- ②アジ化水素による異常反応
- ③溶媒と重金属の錯化合物の異常反応
- ④抽出器内 Pu 蓄積による臨界事象

これらは主として工学的な課題である。現行の PUREX 技術においてもこれらに対する対策は設計上取られているが、より合理的、あるいは、より受動的な安全確保の手段があれば新たな対策が望まれる。

(11) 従事者被ばくの低減など定常時リスクの削減

主分離工程を無保守設計することはほぼ達成されているので、この点において抽出工程を改良する強いインセンティブは存在しない。

(12) 運転性の向上など

運転性の強化としては、抽出工程の運転が簡単で安定することが主な目標である。このために、抽出工程運転条件の安定性の強化（変動許容余裕の拡大）、動的な特性の緩慢化、リアルタイムな計装機能の充実などが望まれる。一部の制御の自動化や自動停止機能の拡充などもこれに含まれる。

5. 分離の方針

PUREX 再処理もしくは抽出工程に関する上述のような一般的な議論に基づき、高速炉燃料体系における PUREX 法主分離工程の分離制御について基本的な考え方をまとめる。

5.1 分離対象

下記の 6 分類についてまとめる。

- (1) アクチニド元素 (U, Pu, Np, Am, Cm)
- (2) 短半減期 FP (^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{106}Ru etc.)
- (3) 長半減期 FP (^{99}Tc , ^{135}Cs , ^{129}I , ^{93}Zr etc.)
- (4) 有用金属 (白金族)
- (5) 放出核種 (^3H , ^{14}C , ^{129}I , ^{85}Kr)
- (6) 放射化核種 (^{59}Ni , ^{93}Mo , ^{36}Cl)

(1) アクチニド元素 (U, Pu, Np, Am, Cm)

Np 以後の人工重金属核種は fissile または fertile 性を有していることから、できるだけサイクル内で燃焼利用・保管することを基本とする。これは、天然 U から生成する人工長半減期核種はできるだけ管理利用する、すなわち、U-Pu サイクルのあるべき姿に近づける観点から行う。廃棄物からの被ばくリスク低減効果は少ないが、毒性低減の効果は期待できる。

抽出工程の分離方針は、

- Pu の U との共回収 (コプロセス化)。
- Np の Pu ストリームでの回収。
- Am・Cm はラフィネートから別途回収。

とする。このことから、Pu はプロセス内で U と共存した状態で管理し、一部の U 及び Np とともに回収することとなる。Am・Cm の回収は TBP 抽出では困難なので PUREX 工程には期待せず、抽出ラフィネートから別の方法により回収する。回収率はいずれも 99.9% を目標とする。U 及び Pu については、除染係数及びそれぞれ Pu と U の分離係数を最適化する必要がある。

(2) 短半減期 FP (^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{106}Ru etc.)

短半減期 FP は消滅処理あるいは回収・有効利用の有用性や技術的な成立性が現状では低いので、速やかにガラス固化処分し、社会環境からの安全な隔離を行う。

抽出工程では、従来通り抽出ラフィネートへ移行させる。抽出工程の除染係数を最適化する作業が必要である。

(3) 長半減期 FP (^{99}Tc , ^{135}Cs , ^{129}I , ^{93}Zr etc.)

廃棄物処分技術が技術的に保証できれば、積極的に消滅するための動機付けは低くなる。消滅効果が大きく、技術的な成立性及び経済的な見通しを有する手法が開発されれば追求すべきであるが、現時点では消滅処理には期待しないものとする。長半減期 FP は他の FP とともにガラス固化する前提とする。

抽出工程では、従来通り抽出ラフィネートへ移行させる。抽出工程の除染係数を最適化する作業が必要である。

(4) 有用金属 (白金族)

資源展望及び経済性を考慮し回収利用に需要があれば回収を図るべきである。将来技術として取り組む余地はあるが、当面はその必要性は低いと考えられるので、本検討では回収は考慮しない。

従来通り抽出ラフィネートへ移行させる。一部が不溶解残さへ移行する事実を踏まえ、抽出工程の除染係数の最適化が必要である。

(5) 放出核種 (^3H , ^{14}C , ^{129}I , ^{85}Kr)

放出に関して被ばく評価上極めて重要な核種 (^{14}C , ^{129}I) と影響度は低い ALARA の考え方に基づき取り扱う核種 (^3H , ^{85}Kr) に分けられる。 ^{14}C ・ ^{129}I は、直接的な被ばくリスク低減のための放出量低減 (回収) と安定固化が課題と考えられる。 ^{85}Kr は経済的に成立する固定技術がないかぎり大気拡散がもっとも合理的であり、 ^3H についてはプラント内保持減衰が経済的に可能であればこれを指向すべきと思われる。

抽出工程は従来と同様に特に考慮はしないものとする。

(6) 放射化核種 (^{59}Ni , ^{93}Mo , ^{36}Cl)

安定固化を指向する。廃棄物削減は燃料や炉側の設計対応での母材の削減が重要となる。

従来通り、高レベル廃棄物及び抽出ラフィネートへ移行させる。溶解液に含まれる成分については、抽出工程での除染係数の最適化が必要となる。

5.2 分離目標の考え方

高速炉体系において U、Pu 及び MA を製品として回収することを考えると、回収後の取り扱いの選択肢は表 5-1 のようにまとめられる。U 製品の利用方法は、燃料サイクルにおける U のマスバランス評価を基に設定する必要がある。基本的に再利用することが望ましいが、燃料サイクル内で余剰となった U については保管することとなる。これに対し、Pu と MA 製品は滞留量を最小限に抑えつつ逐次燃料に再加工してリサイクルすることが望まれる。

以下、各製品ごとに述べる。分離目標を除染係数として議論するが、現状では元素ごとに検討する材料が不足していることから、除染係数は FP 元素についてマクロに取り扱うこととする。

表 5-1 U・Pu・MA 製品の取り扱いのオプション（高速炉体系）

製品	取り扱い方法
U 製品	①サイト内でブランケット燃料に再加工してリサイクル利用。
	②サイト外の U 加工施設に払い出しブランケット燃料として再加工。
	③U 廃棄物としてサイト内または外に保管廃棄。
Pu 製品 (Pu・U・Np)	○サイト内で炉心燃料に再加工してリサイクル利用。
MA 製品 (Am, Cm)	○サイト内で炉心燃料に再加工（セル内での遠隔燃料製造）してリサイクル利用。

(1) U 製品

考えられる利用のオプションごとにまとめる。

①ブランケット燃料としての利用（低除染を許容する将来プラントでの加工を想定）

高速炉での燃焼を想定する場合、核的に 100 以上の除染係数が必要となる。また、燃料製造において、残留核種及び U 同位体の娘核種による従事者被ばくが許容限度以下となるように除染する必要はある。

将来的な燃料製造プラントにおいて、セル内での遠隔燃料製造技術を導入することを想定すると、除染係数への要求は緩和され、FP と α の両方について低除染が許容されると考えられる。遠隔燃料製造は、従事者の被ばく低減、多重リサイクルによる U・Pu 組成の変化に対応するために必要な技術であると認識されている。

一方、燃料製造工程の包蔵設備としてグローブボックスを選択する場合には、現行の燃料製造施設と同等の除染レベルが要求される。したがって、グローブボックスでの取り扱いの可否が除染係数の設定基準となる。このとき、U 自身の放射能 (^{232}U の娘核種など) を考慮することが必要である。また、設備を U あるいは Pu 施設として位置づけるかにより必要となる α 除染のレベルが変化する。

高レベル放射性物質研究施設 (CPF) にて実施した高速炉燃料再処理試験では、第一サイクル分離のフローシートでほとんどの FP に対して 10^4 以上の除染係数が得られている⁶⁾。

核的に十分な裕度を有する範囲において再処理抽出工程の簡素化を進めていく前提から、最低限の除染目標として除染係数 1000 を設定する。このとき、遠隔による燃料製造工程の導入など、下流工程の設備が十分に対応できることが必須である。

低除染化を図る結果、製品に同伴する不純物が以後の燃料製造等の工程において悪影響が有意に

もたらされることは避けなければならない。例えば、高温状態において揮発しうる白金族系の元素が製品に混入する可能性が懸念される。燃料製造工程等からの気体や液体の放出上の管理基準を満たすよう、放射性核種の放出経路及び量をより詳細に評価することが必要である。

②ブランケット燃料としての利用（既存の加工施設を想定）

U加工施設に払い出して加工する場合には、U加工施設の安全条件を満たすよう、かなり高いFP除染が必要となる。特に α 線放射核種の残留、U自身の放射能を考慮することが必要である。

また、U施設の立地評価に適合する必要がある。廃液等の放出による影響を考慮する。

その他、再処理施設から燃料加工施設へのU製品の輸送（輸送容器の遮へい条件等）を考慮する必要がある。

③保管廃棄（廃棄物としての処分）

廃棄物管理の基準により除染係数を求める。このためには、U/Pu系廃棄物の区分や線量レベルを予め設定することが必要である。また、U自身の放射能、廃棄物の輸送に係る評価も必要である。

(2) Pu製品（Pu・Np・U混合製品）

Pu製品はNpとUを含み、FPについては低除染を指向するものとし、炉心燃料としてリサイクルすることを前提とする。製品へのU混合の割合は、工程内・製品中でのUとPuの共存を明示し、かつ、燃料の富化度調整に支障がない範囲とする。Puの高レベル放射性物質研究施設(CPF)にて実施した常陽の照射燃料を用いた向流多段抽出ホット試験では、U/Pu比が約1.3であるPu製品を回収している⁷⁾。フローシート設計上可能であり、混合回収を明示する前提から、U/Pu比の下限は1とすべきである。また、U/Pu比の上限は燃料の富化度調整での余裕を考慮すべきであるが、2程度の値であれば調整は十分に可能と考えられる。以上から、UとPuに対し1~2程度の範囲でUを混合することが適当と思われるが、具体的な数値は分配工程のフローシートを評価した上で決定することになる。

抽出工程の前処理として溶解液に晶析操作を施し、一部のUを硝酸塩として予備的に分離することにより、抽出工程の処理を軽減する方策が考えられる。この場合、供給液中のU濃度がPu濃度よりも低下する（U/Pu比が <1 となる）可能性がある。上述の値の範囲を下回ることになるが、このような組成の供給液の処理では、還元剤を不必要とするフローシートが構築でき、U・Puの共回収をより容易に実現する工程となりうる。このため、本検討では、晶析法のように溶解液から一部のUを分離するオプションは除外する。

Pu製品がNpを含みかつ低除染を指向することから、燃料製造は遮へい能力を有する包蔵設備（セル）内での遠隔燃料製造を想定する^{3,4)}。除染係数の下限は原子炉において核的に許容される限度であり、100以上の値が必要となる。目標とする除染係数は、U製品を燃料として再利用する場合

と同様に 1000 とする。値については、製造ラインからの廃液・放出管理も考慮に入れ詳細な検討を行うべきである。

(3) MA 製品 (Am, Cm)

MA 製品は PUREX 法の抽出工程において回収する必要はない。抽出ラフィネートに確実に移行することだけが必要である。

最終的にターゲット燃料してリサイクルする場合には、不活性な母材を採用する必要性があるが、U や Pu について特に高い分離係数は必要ない。希土類の除染目標については別途詳細な検討が必要である。

U と Pu 製品について除染の方針をまとめると表 5-2 のようになる。

表 5-2 U と Pu 製品の除染方針

製品	取り扱い方法	除染の方針
U 製品	①ブランケット燃料加工 (将来プラント)	<ul style="list-style-type: none"> ・グローブボックスでの製造の可否 (娘核種の評価も要) が判断基準。 ・グローブボックス製造の場合、Pu 系の設備とすれば α 除染を厳しくする必要はない。 ・遠隔製造の場合、炉内で核的に問題とならない程度の除染 (100~1000 程度) が目標の下限。燃料製造以降の工程からの放出評価が必要。
	②ブランケット燃料加工 (既存 U 加工施設)	<ul style="list-style-type: none"> ・現行と同等のレベル ($10^7 \sim 10^8$ 程度) が必要。ただし、娘核種の評価が要。 ・施設からの放出評価、輸送時の被ばく評価が必要。
	③保管廃棄	<ul style="list-style-type: none"> ・廃棄物の分類 (U/Pu 系, 線量等) に依存。 ・輸送時の被ばく評価が必要。
Pu 製品 (Pu・U・Np)	○炉心燃料加工 (将来プラント)	<ul style="list-style-type: none"> ・炉内で核的に問題とならない程度の除染 (100~1000 程度) が目標の下限。燃料製造以降の工程からの放出評価が必要。 ・Np をともに回収する。 ・U とともに回収する (Pu:U=1:1~2, 値はフローシート評価を基に設定)。

5.3 高速炉照射の U・Pu の取り扱い

FBR 照射燃料より回収する U・Pu 製品の同位体組成は軽水炉燃料とは異なる。U や Pu 製品を既存の施設で取り扱うことを考えるとき、高速炉照射に由来する U や Pu の同位体組成が線量評価上問題ないことを確認しておかねばならない。

回収 U 及び Pu の放射能と残留する FP の放射能からの線量（遮へい）について比較評価した。計算では、再処理における除染係数はすべての FP 元素について同じ値を適用し、製品に残留する FP の寄与を考慮した。また、取扱いの指標として東海再処理工場のアンバーエリアの線量管理上の数値を参考とした。（計算の詳細については補足資料を参考のこと。）

(1) U 製品

PWR、FBR（軽水炉より回収した Pu 燃料を照射）の使用済み燃料について γ 線線量を計算した。

PWR 燃料からの回収製品の線量レベルは、 10^6 以上の除染係数が得られれば FP の寄与は無視できるレベルとなる。線量の観点からは 10^6 の除染係数が得られる再処理工程の設計が望ましいと考えられる。

Ru は最も除染の難しい FP の一つであるが、東海再処理工場では ^{106}Ru について全工程で 7.0×10^6 の除染係数が得られている⁸⁾。軽水炉燃料再処理での U 製品について 10^6 以上の除染係数を得るという目標設定は、現行の施設運営とほぼ一致することから、妥当なもの判断できる。

FBR 照射燃料より回収した U 製品も 10^6 以上の除染係数で FP による寄与がほぼ無視できるようになる。FP を十分に除染する（ 10^6 以上の除染係数を得る）場合について、PWR 燃料と FBR 燃料から回収した U を比較すると、FBR 燃料からの製品の方が線量が一桁ほど高い。このため、FBR 照射に由来する U の取り扱いには何らかの遮へいが必要となる。10 kg の UO_2 粉末を $25 \mu\text{Sv/h}$ 以下の線量当量率で取り扱うためには約 22 cm 厚さのコンクリート遮へいを要することになるため、FBR 回収 U の U 施設での加工は難しいと判断される。

線量に寄与する核種は、主に ^{232}U とその娘核種である。 ^{232}U は α 崩壊で ^{228}Th に壊変後、トリウム系列で放射線壊変していく。

(2) Pu 製品

PWR、FBR（軽水炉より回収した Pu 燃料を照射）、FBR（FBR 燃料より回収した Pu 燃料を照射）の使用済み燃料について中性子及び γ 線線量を計算した。

Pu 製品の線量の傾向はいずれの燃料の場合にも大きな差異はなく、 10^5 以上の除染係数であれば FP の寄与は無視できるレベルとなる。線量に主として寄与するのは中性子線である。十分に除染する場合には、FBR 照射燃料からの Pu 製品の方が軽水炉燃料回収製品に比べて線量が低い傾向となる。これは、Pu の同位体組成が若干異なり、FBR 照射燃料中の Pu には ^{241}Pu が少なく、結果として再処理後に生成する ^{241}Am の寄与が小さくなることによる。

Pu 製品はいずれの炉の燃料についても 10^5 以上の除染係数を得ることで現行の方法と同様に取り扱うことが可能と考えられる。

以上の結果を表 5-3 にまとめる。

表 5-3 製品の線量による除染係数の目標設定

	PWR 使用済み燃料からの回収	FBR 使用済み燃料からの回収
U 製品	・ 10^6 以上の除染係数が得られれば、FP の寄与は無視できるレベルとなる。	・ 10^6 以上の除染係数が得られれば、FP の寄与は無視できるレベルとなる。 ・ 既存の U 加工施設での取り扱いは難しい (^{235}U の寄与による)。
Pu 製品	・ 10^5 以上の除染係数が得られれば、FP の寄与は無視できるレベルとなる。	・ 10^5 以上の除染係数が得られれば、FP の寄与は無視できるレベルとなる。 ・ 線量は軽水炉回収の場合よりもやや低い (^{241}Am の寄与が小さい)。

5.4 U・Pu 分離回収条件の設定方針

FBR 使用済み燃料から回収する U 及び Pu 製品の FP の除染係数についてそれぞれまとめる。

(1) U 製品

- ・ 原子炉内での核的な影響や物性に対する効果などから求められる燃料不純物の仕様を満たす必要がある。この値を確定するには、燃料サイクルの各分野間で整合を図る作業が必須である。ここでは、将来的には燃料仕様が従来に比べ緩和されることを想定し、単サイクルの抽出工程においても達成可能と考えられる 10^3 を暫定値とする。
- ・ 既存の U 加工施設での取り扱いに困難を生じるものと予測されることから、燃料製造は遮へいを施した条件で行うことを仮定する。線量に対する FP の寄与が無視できるようになる 10^6 を上限の値とする。
- ・ 保管する場合にはより高い除染が必要となることを想定し、 10^6 以上を目標とする。

(2) Pu 製品

- ・ 下限の値は U 製品と同様に 10^3 とする。遮へいを施して遠隔で燃料を製造する場合にはこれを目標値とする。
- ・ 従来型燃料を従来の方法で製造する場合には、 $10^5 \sim 10^6$ の除染係数が得られるようにする。

いずれも FBR 燃料として再加工する場合には、Pu や MA 等の α 汚染は許容するものとする。

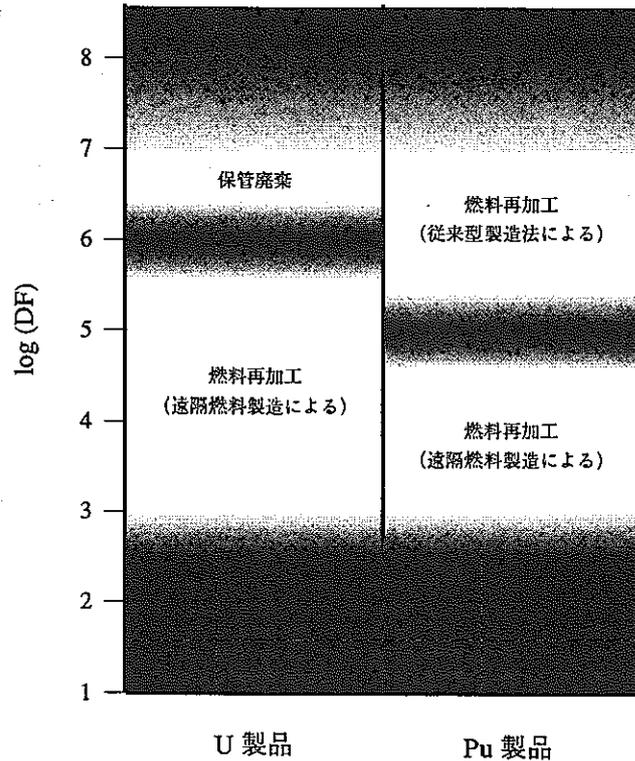


図 5-1 目標として設定する FP に対する除染係数の定性的な概念

FP の除染について、要求される除染係数のレベルを各製品ごとに定性的にまとめると図 5-1 のようなイメージとなる。

今回の評価は燃料製造以降の過程の工程・設備について十分な議論を行った上で計算したものではない。除染係数の値をより詳細に求めるためには、燃料製造の技術開発や、総合的安全評価を交えた最適化作業が不可欠である。また、元素ごとの除染の難易度を踏まえて行う必要がある。

5.5 抽出工程の構成と製品仕様

上述の検討から基本的な工程概念をまとめる。

(1) 工程の簡素化による設備の削減

- ・ 除染係数の最適化による単サイクル分離（精製工程の削除）の実現
- ・ 抽出工程の短縮化に伴う中間貯槽等の設備、発生廃液量及び廃液処理設備の削減

(2) Pu・Np・U の共回収

- ・ 分配工程の U 洗浄（再抽出）部の削除による Pu・U 共回収
- ・ ある程度の範囲の U/Pu 比に対する対応
- ・ 共除染工程での Np(VI) の抽出及び分配工程での Np(V) の逆抽出の実現

(3) 廃液・廃棄物発生量の低減

- ・工程の簡素化による発生廃液量の削減
 - ・ソルトフリー技術（ソルトフリー洗浄剤や電解酸化法等）の適用による最終的な廃棄物量の低減
- (4) 廃液への放射性核種の移行の低減
- ・抽出ラフィネート（高レベル廃液）への U・Pu・Np の移行量の低減
 - ・溶媒洗浄廃液等（低レベル廃液）への U・Pu・Np の移行量の低減（必要であればこれらからの回収も含める）
 - ・ ^3H の閉じ込めを考慮した酸回収工程の設計
- (5) 他工程と整合するフローシート設計
- ・前処理工程として適用する晶析法との整合（供給液条件、分配工程の還元剤条件等）
 - ・抽出ラフィネートから Am・Cm を回収する TRUEX 法との良好な接続
 - ・ゲル化法を適用した燃料製造に適合する製品組成の確保
- (6) 機器設計の最適化
- ・抽出器（遠心抽出器／パルスカラム）の適正な適用
 - ・U・Pu 共回収をハード的に保証する設計の実現
- (7) 安全への対応
- ・抽出器内での Pu の蓄積や重合体の生成を防ぐフローシート設計

これらを踏まえたフローシートの概略を図 5-2 に示す。

主要な仕様は以下の通りである。

(1) Pu・Np・U 混合製品

U : Pu 比 1 ~ 2 : 1

FP に対する除染係数 1000（ただし詳細な検討要）

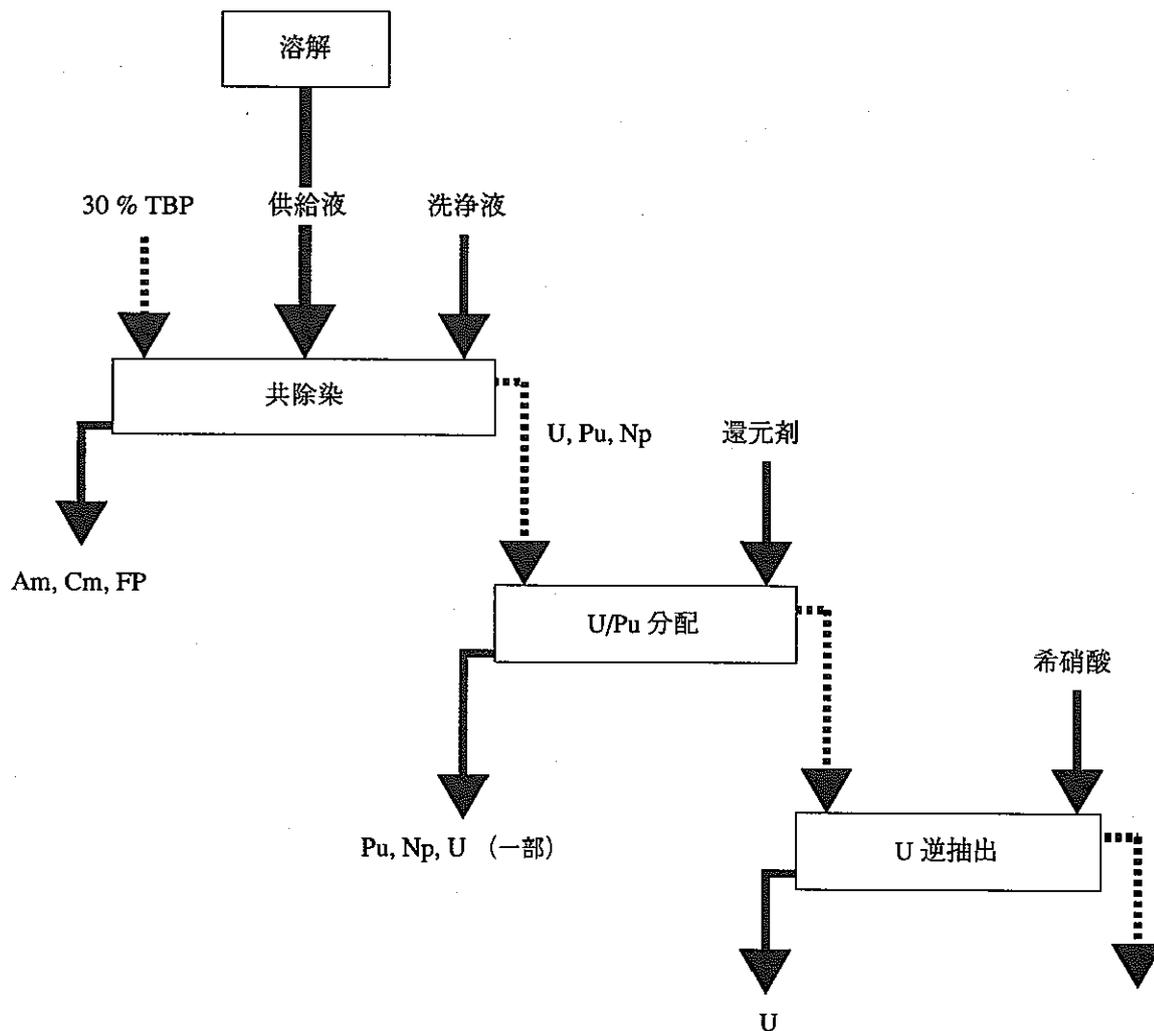
(2) U 製品（燃料として再加工する場合）

FP に対する除染係数 1000（ただし詳細な検討要）

α 汚染 許容

(3) 回収率

U, Pu, Np 99.9 % 以上（再処理工程での廃棄物への移行量を 0.1 % 未満とする）



フローシートに関する主な特徴

- 除染係数の最適化による単サイクル分離（精製工程の削除）の実現
- 分配工程のU洗浄（再抽出）部の削除によるPu・U共回収
- 共除染工程でのNp(VI)の抽出及び分配工程でのNp(V)の逆抽出の実現
- ソルトフリー技術（ソルトフリー洗浄剤や電解酸化法等）の適用による最終的な廃棄物量の低減
- 抽出ラフィネート（高レベル廃液）へのU・Pu・Npの移行量の低減
- 溶媒洗浄廃液等（低レベル廃液）へのU・Pu・Npの移行量の低減（必要であればこれらからの回収も含める）
- 他工程と整合するフローシート設計
- 抽出器内でのPuの蓄積や重合体の生成を防ぐフローシート設計

図 5-2 抽出フローシートの構成概念

6. おわりに

先進的核燃料サイクルの体系における再処理に対する要求事項や U・Pu の利用方法を整理し、U 及び Pu 製品の回収に関する基本的な考え方をまとめた。また、U 及び Pu 製品の FP 除染について線量評価を行い、FBR 照射燃料から回収する製品に関して以下の特徴があることを見いだした。

- ・U 及び Pu 製品についてそれぞれ 10^6 、 10^5 以上の除染係数が得られれば、線量に対する FP の寄与は無視できる。
- ・U 製品は ^{232}U の寄与による線量の増加のために既存の U 加工施設での取り扱いが難しい。
- ・Pu 製品の線量は軽水炉回収の Pu よりもやや低い (^{241}Am の寄与が小さい)。

これらの評価に基づき、低除染を指向する再処理—燃料製造体系を前提とし、暫定的ではあるが回収製品の仕様を求めた。仕様の概略は以下の通りである。

(1) Pu・Np・U 混合製品

U : Pu 比 1~2 : 1 (溶解液から予備的に一部の U を分離しない場合)

FP に対する除染係数 1000 (ただし詳細な検討要)

(2) U 製品 (燃料として再加工する場合)

FP に対する除染係数 1000 (ただし詳細な検討要)

α 汚染 許容

(3) 回収率

U, Pu, Np 99.9 % 以上 (再処理工程での廃棄物への移行量を 0.1 % 未満とする)

今回の検討は、再処理の視点から燃料サイクルを見た結果であり、原子炉や燃料製造側との連携は図っていない。低除染を指向する燃料サイクルに基づく燃料を議論する際には、「燃料仕様の最適化」という燃料サイクル全体に関わる大きな課題を解決することが本質的に求められる。検討を深めるためには、燃料最適化評価検討や燃料製造プロセスの候補技術評価、各工程における被ばく及び放出、環境評価等を総合的に評価する作業が必要となろう。

本検討では除染係数をすべての FP に対して一律に値を設定したが、各元素について化学的に評価することが必要である。今後は、CPF において実施した既存のホット試験データを整理し、これに基づき体系的なフローシート研究を行い、除染係数の最適化作業を進めていく。また、抽出工程での分離において問題となる元素について、フローシート研究ができる環境の整備 (計算コードの整備) も併せて行っていく。

引用文献

- 1) 先進リサイクルシステム検討グループ, 「先進リサイクルに係わる研究 検討グループ H5 年度報告書」, PNC ZN9410 94-159, 1994
- 2) 笹尾信之 他, 「新しい燃料サイクル・アクチニドリサイクル」, エネルギーレビュー, 14(6), 20-23, 1994
- 3) アクチニドリサイクル研究開発計画策定タスクフォース, 「アクチニドリサイクルに関わる研究開発計画の検討結果」, PNC ZN8410 95-178, 1994
- 4) 遠藤秀男 他, 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, PNC ZN8410 95-197, 1995
- 5) 塩月正雄 他, 将来日本の原子力発電体系におけるアクチニドリサイクルの諸量評価, PNC ZN9410 94-309, 1994
- 6) 滑川卓志 他, 「主要核分裂生成物及びアクチニド核種の抽出分離挙動 -高速炉燃料再処理試験における移行率のまとめ-」, PNC TN 8410 92-213, 1992
- 7) 根本慎一 他, 「再処理プロセス高度化に関する研究」, PNC ZNR410 95-805Z, 1995
- 8) H. Yamana et al., Results of ^{106}Ru and ^{95}Zr Decontamination Studies in the Co-decontamination Cycle of the Tokai Reprocessing Plant, Solvent Extraction 1990, 1990

補足資料

高速炉照射燃料から回収した U・Pu の取り扱いにおける遮へい条件の予備評価

使用済み燃料から回収した U 及び Pu を取り扱いの線量（遮へい）について高速炉と軽水炉照射による同位体組成の違いを考慮して比較評価した。また、U 及び Pu のそれぞれの娘核種と製品に一部残留する FP 放射能からの寄与も含めて評価した。

1. 線源条件

U と Pu のそれぞれについて以下に示す製品を評価対象とした。線源は半径 11 cm の球状の酸化物粉末 (UO_2 もしくは PuO_2) とし、質量は $10 \text{ kg}_{\text{HM}}$ とした。

(1) U 製品

- ① 軽水炉照射燃料より回収した U
- ② 高速炉照射燃料（軽水炉より回収した Pu 燃料を照射）より回収した U

いずれも冷却時間 3 年、再処理より 3 年経過（U 娘核種の影響を評価するため）したもの。

(2) Pu 製品

- ① 軽水炉照射燃料より回収した Pu
- ② 高速炉照射燃料（軽水炉より回収した Pu 燃料を照射）より回収した Pu
- ③ 高速炉照射燃料（FBR 燃料より回収した Pu 燃料を照射）より回収した Pu

いずれも冷却時間 5 年、再処理より 1 年経過のもの。

2. 計算方法

燃焼計算を表-1 の条件で行い、U、Pu、FP それぞれの線源スペクトルを求めた。次に再処理における FP の除染係数 (DF) を $10^3 \sim \infty$ に設定し、表計算により U または Pu の γ 線スペクトルと FP の γ 線スペクトルを DF ごとに合成した。この線源スペクトルを用いて遮へい計算を行った。燃焼計算には核種生成崩壊計算コード ORIGEN2M86 を用いた。遮へい計算には一次元遮へい計算コード ANISND、群定数ライブラリ DLC-23E を用いた。なお、再処理における DF はすべての FP 元素について同じ値を適用した。

参考のために、ORIGEN2M86 の入力データを表-3 及び 4 に、ANISND の入力データの一例を表-5 に示す。また、遮へい計算に用いた線量率変換係数及び遮へい材物性値を表-6、7 に示す。

2.1 U 製品の計算手順

U の自発核分裂半減期が長く、また α 放射能が小さいため (α, n) 反応も少ないので、中性子による

効果は無視した。以下の手順で計算を行った。

- ① ORIGEN2M86にて、照射計算及び崩壊計算を行い、U + daughterの γ 線18群線源強度（冷却期間3年、再処理より3年経過）とFPの γ 線18群線源強度（冷却時間6年）を得る。
- ② 表計算により、U + daughterの γ 線18群線源スペクトルとDFに応じたFPの γ 線18群の線源スペクトルを合成する。
- ③ ANISNDにて、遮へい計算を行う。

2.2 Pu製品の計算手順

以下の手順で計算を行った。

- ① ORIGEN2M86にて、照射計算及び崩壊計算を行い、FPの γ 線18群線源強度（冷却時間6年）及びPuの同位体組成（冷却期間5年、再処理直後）を得る。得られたPuの同位体比を表-8及び9に示す。
- ② Puの同位体組成を入力し、中性子線量評価システムSKYLARK2のSKY0モジュール（ORIGEN-S）を用い、Pu + daughterの中性子線22群、 γ 線18群の線源強度（再処理より1年経過）を得る。

なお、高速炉照射燃料（FBR燃料より回収したPu燃料を照射）より回収したPu製品については、Puの同位体組成は「将来日本の原子力発電体系におけるアクチニドリサイクルの諸量評価、PNC ZN9410 94-309 (1994)」の「表A-1 アクチニドリサイクルにおけるFBR炉心装荷・取出燃料組成等の推移 (Case-1 MOX)」から2090年のPu同位体組成を引用した。

- ③ 表計算により、Pu + daughterの γ 線18群線源スペクトルとDFに応じたFPの γ 線18群の線源スペクトルを合成する。

なお、高速炉照射燃料（FBR燃料より回収したPu燃料を照射）より回収したPu製品については、FPの γ 線の線源強度は高速炉照射燃料（軽水炉より回収したPu燃料を照射）のものを用いた。

- ④ ANISNDにて、遮へい計算を行う。

3. 結果と考察

U製品の評価結果を図-1～3に、Pu製品の評価結果を図-4～7に示す。図には目安として東海再処理工場のアンバーエリアの線量制限値を付記した。線量制限値は通常作業を行う場所では $25\mu\text{Sv/h}$ 、最高値は $500\mu\text{Sv/h}$ である。また、Puについては中性子と γ 線の寄与を $DF=\infty$ の場合の内訳として示した。

3.1 U製品

- (1) PWR 回収製品の場合、人が直接ハンドリングできるようにするためには、少なくとも 10^6 以上の除染係数が必要である。(図-1)
- (2) FBR 回収製品も PWR 回収製品と同様に、 10^6 以上の除染係数で FP からの線量寄与がほぼ無視できるようになる。しかし、U の線量は PWR の場合に比べ、ほぼ一桁ほど高い。そのため、 $25 \mu\text{Sv/h}$ を担保するには空気では約 55 cm、コンクリートでは約 25 cm の遮へい（距離）が必要である。また、 $DF = 10^3$ のとき $25 \mu\text{Sv/h}$ を担保するには約 80 cm 厚のコンクリートが必要である。(図-2 及び 3)
- (3) FBR 燃料からの回収 U は、PWR 燃料からの回収製品に比べ、 ^{232}U の割合がほぼ一桁高い(図-8)。 ^{232}U は半減期が 70 年と相対的に短く、 α 崩壊により ^{228}Th に壊変し、以降はトリウム系列で崩壊していく。FBR 燃料からの U 製品の線量が高い原因は、 ^{232}U の娘核種による寄与であると考えられる。

3.2 Pu製品

- (1) PWR、FBR（軽水炉より回収した Pu 燃料を照射）、FBR（FBR 燃料より回収した Pu 燃料を照射）のいずれの製品についても線量の傾向は大きな差異はなく、 10^5 以上の除染係数で FP からの線量寄与がほぼ無視できるようになる。しかし、そのときでも $25 \mu\text{Sv/h}$ を担保するにはコンクリートで約 60 cm の距離が必要である。(図-5 ~ 7)
- (2) 十分に除染する場合には、FBR 照射燃料からの Pu 製品の方が軽水炉燃料回収製品に比べて線量が低い傾向となる。これは、Pu の同位体組成が若干異なり、FBR 照射燃料中の Pu には ^{241}Pu が少なく、結果として再処理後に生成する ^{241}Am の寄与が小さくなることによる(図-9)。
- (3) 遮へい材がコンクリートの場合、線量に主として寄与するのは中性子線である。遮へい材が空気の場合は逆に γ 線が主として寄与する。(図-4 ~ 7)

4. 今後の進め方

今回の評価は、燃料製造以降の工程や設備等の取り扱い条件について十分な議論を行った上で計算したものではないため、遮へい評価モデルは、球状の線源を遮へい材が包み込んでいる単純なものである。したがって、除染係数の目標値をより詳細に求めるためには、燃料製造の技術開発や、総合的安全評価を交えた最適化作業が不可欠である。

また、今回の評価では再処理における除染係数はすべての FP 元素について同じ値を適用した。しかしながら、元素ごとに除染の難易度は異なるため、元素ごとの線量寄与の感度解析を行う必要もある。

表-1 燃焼計算条件

炉型	LWR	FBR (軽水炉回収 Pu)
燃焼度, MWd/t	4.5 万	15 万
比出力, MW/tHM	38.0	67.7
燃料組成	表-2 参照	表-2 参照
ライブラリ	PWRUD50	FBRLWRC
入力データ	表-3 参照	表-4 参照

表-2 燃料組成

核種	組成 (wt%)	
	LWR	FBR
U-235	4.5	2.0295E-1
U-238	95.5	8.0976E+1
Pu-238	—	3.0113E-2
Pu-239	—	1.267E+1
Pu-240	—	4.9028E+0
Pu-241	—	4.7052E-1
Pu-242	—	6.7002E-1
Am-241	—	7.5284E-2

表-5 ANISND 入力データ

1	** PWR RECYCLE Pu 10kg DF = INFINITY SHELTER = CONCRETE									
2	15\\									
3	1	0	3	8	3	1				
4	0	2	60	0	40	3				
5	4	43	48	0	36	44				
6	0	0	1	0	0	35				
7	0	0	0	0	1	2				
8	0	0	0	1	1	0				
9	16**									
10	0.0	0.0	0.0001	1.420892	0.0	0.0				
11	0.0	0.0	0.0	0.5	0.0002	0.0				
12	0.0	0.0								
13	T									
14	13\\									
15	1000	1001	1002	1003	8000	8001				
16	8002	8003	12000	12001	12002	12003				
17	13000	13001	13002	13003	14000	14001				
18	14002	14003	20000	20001	20002	20003				
19	26000	26001	26002	26003	94390	94391				
20	94392	94393	94400	94401	94402	94403				
21	T									
22	17**									
23	10R 1.081E-1	50R 0.0	10R 9.192E-1	50R 0.0	10R 2.527E+0	50R 0.0				
24	10R 1.260E+1	50R 0.0	10R 3.190E+1	50R 0.0	10R 4.863E+1	50R 0.0				
25	10R 2.522E+2	50R 0.0	10R 2.981E+2	50R 0.0	10R 6.631E+1	50R 0.0				
26	10R 3.131E+2	50R 0.0	10R 3.587E+2	50R 0.0	10R 2.089E+2	50R 0.0				
27	10R 8.640E+1	50R 0.0	10R 6.069E-2	50R 0.0	10R 0.0	50R 0.0				
28	10R 0.0	50R 0.0	10R 0.0	50R 0.0	10R 0.0	50R 0.0				
29	10R 0.0	50R 0.0	10R 0.0	50R 0.0	10R 0.0	50R 0.0				
30	10R 0.0	50R 0.0	10R 6.239E-1	50R 0.0	10R 2.928E+0	50R 0.0				
31	10R 1.520E+1	50R 0.0	10R 3.775E+1	50R 0.0	10R 1.140E+2	50R 0.0				
32	10R 1.260E+2	50R 0.0	10R 2.198E+2	50R 0.0	10R 3.839E+2	50R 0.0				
33	10R 2.163E-7	50R 0.0	10R 1.118E+3	50R 0.0	10R 2.158E+3	50R 0.0				
34	10R 2.086E+4	50R 0.0	10R 5.113E+4	50R 0.0	10R 5.000E+5	50R 0.0				
35	10R 5.745E+6	50R 0.0	10R 8.442E+6	50R 0.0	10R 1.078E+8	50R 0.0				
36	10R 4.215E+9	50R 0.0								
37	T									
38	3*									
39	F	1.0								
40	T									
41	1*									
42	F	0.0								
43	4**									
44	9I	0.0	49I	10.45	210.5					
45	5*									
46	F	1.0								
47	6**									
48	0.0	0.0604938	0.0907407	0.1370371	0.2117284	1N	4			
49	7**									
50	-.9759000	-.9511897	-.7867958	-.5773503	-.2182179	1M	4			
51	8\\									
52	10R	1	50R	2						
53	9\\									
54	37	41								
55	10\\									
56	4R	37	4R	38	4R	39	4R	40		
57	8R	41	8R	42	8R	43	8R	44		
58	11\\									
59	0	5	29	33						
60	0	6	30	34						
61	0	7	31	35						
62	0	8	32	36						
63	0	1	5	9	13	17	21	25		
64	0	2	6	10	14	18	22	26		
65	0	3	7	11	15	19	23	27		
66	0	4	8	12	16	20	24	28		
67	12**									
68	0.0	1.052E-2	3.032E-3	2.199E-3	3Q	4				
69	0.0	5.717E-3	4.393E-2	6.554E-5	2.288E-4	1.904E-2				
70		2.374E-3	6.791E-4	3Q	8					
71	19\\									
72	2R	3								
73	T									

表-6 線量率変換係数

中性子			ガンマ線		
群	エネルギー (eV)	mSv/h n/sec/cm ²	群	エネルギー (eV)	mSv/h photon/sec/cm ²
1	1.490E+7	4.008E-3	1	1.000E+7	8.730E-5
2	1.220E+7	3.262E-3	2	8.000E+6	7.450E-5
3	1.000E+7	2.942E-3	3	6.500E+6	6.339E-5
4	8.180E+6	2.942E-3	4	5.000E+6	5.396E-5
5	6.360E+6	3.060E-3	5	4.000E+6	4.597E-5
6	4.960E+6	3.018E-3	6	3.000E+6	3.951E-5
7	4.060E+6	2.784E-3	7	2.500E+6	3.456E-5
8	3.010E+6	2.570E-3	8	2.000E+6	3.012E-5
9	2.460E+6	2.506E-3	9	1.660E+6	2.618E-5
10	2.350E+6	2.526E-3	10	1.330E+6	2.191E-5
11	1.830E+6	2.580E-3	11	1.000E+6	1.825E-5
12	1.110E+6	2.322E-3	12	8.000E+5	1.512E-5
13	5.500E+5	9.778E-4	13	6.000E+5	1.139E-5
14	1.100E+5	1.191E-4	14	4.000E+5	8.699E-6
15	3.350E+3	7.414E-5	15	3.000E+5	6.178E-6
16	5.830E+2	8.014E-5	16	2.000E+5	3.602E-6
17	1.010E+2	8.592E-5	17	1.000E+5	2.577E-6
18	2.900E+1	8.952E-5	18	5.000E+4	9.722E-6
19	1.010E+1	9.146E-5	*	1.000E+4	—
20	3.060	9.094E-5			
21	1.120	8.752E-5			
22	4.140E-1	7.350E-5			
*	1.000E-2	—			

* 下限エネルギー

表-7 各遮へい材の物性値

遮へい材	元素	原子個数密度 atoms/barn·cm	密度 g/cm ³
空気	H	7.199E-9	0.001205
	C	7.585E-7	
	N	3.910E-5	
	O	1.054E-5	
コンクリート	H	5.717E-3	2.3
	O	4.393E-2	
	Mg	6.554E-5	
	Al	2.288E-4	
	Si	1.904E-2	
	Ca	2.374E-3	
	Fe	6.791E-4	
UO ₂	O	7.749E-3	1.96
	U-235	4.433E-6	
	U-238	3.852E-3	
PuO ₂	O	1.052E-2	2.0
	Pu-239	3.661E-3	
	Pu-240	1.574E-3	

表-8 U·Pu 同位体比 (PWR)

核種	冷却期間 (y)							
	照射直後	1.0	2.0	3.0	5.0	6.0	8.0	10.0
U-232	4.80E-10	9.57E-10	1.33E-09	1.61E-09	1.99E-09	2.11E-09	2.27E-09	2.35E-09
U-233	5.28E-10	7.84E-10	1.04E-09	1.30E-09	1.78E-09	2.04E-09	2.53E-09	3.02E-09
U-234	2.80E-06	4.76E-06	6.77E-06	8.77E-06	1.27E-05	1.47E-05	1.86E-05	2.24E-05
U-235	1.06E-02							
U-236	6.15E-03	6.16E-03						
U-237	1.35E-05	5.03E-11	4.79E-11	4.57E-11	4.15E-11	3.95E-11	3.59E-11	3.26E-11
U-238	9.83E-01							
U-239	6.29E-07	0.00E+00						
U-total	1.00E+00							
Pu-236	2.03E-07	1.60E-07	1.26E-07	9.94E-08	6.19E-08	4.88E-08	3.04E-08	1.89E-08
Pu-237	3.19E-08	1.24E-10	4.84E-13	1.89E-15	2.88E-20	1.12E-22	1.71E-27	2.60E-32
Pu-238	2.17E-02	2.30E-02	2.32E-02	2.32E-02	2.32E-02	2.31E-02	2.30E-02	2.29E-02
Pu-239	5.34E-01	5.41E-01	5.45E-01	5.48E-01	5.55E-01	5.58E-01	5.64E-01	5.70E-01
Pu-240	2.32E-01	2.31E-01	2.33E-01	2.35E-01	2.38E-01	2.39E-01	2.42E-01	2.45E-01
Pu-241	1.52E-01	1.45E-01	1.39E-01	1.33E-01	1.23E-01	1.18E-01	1.08E-01	9.90E-02
Pu-242	6.00E-02	5.99E-02	6.03E-02	6.07E-02	6.14E-02	6.18E-02	6.25E-02	6.31E-02
Pu-243	1.55E-05	9.11E-18	9.17E-18	9.23E-18	9.35E-18	9.40E-18	9.51E-18	9.60E-18
Pu-244	3.68E-06	3.67E-06	3.70E-06	3.72E-06	3.77E-06	3.79E-06	3.83E-06	3.87E-06
Pu-total	1.00E+00							

表-9 U・Pu 同位体比 (FBR)

核種	冷却期間 (y)							
	照射直後	1.0	2.0	3.0	5.0	6.0	8.0	10.0
U-232	9.11E-09	1.39E-08	1.76E-08	2.04E-08	2.42E-08	2.54E-08	2.70E-08	2.77E-08
U-233	2.17E-09	2.44E-09	2.71E-09	2.98E-09	3.50E-09	3.78E-09	4.32E-09	4.86E-09
U-234	2.47E-05	3.27E-05	4.11E-05	4.94E-05	6.60E-05	7.42E-05	9.04E-05	1.06E-04
U-235	8.08E-04	8.12E-04	8.16E-04	8.21E-04	8.29E-04	8.33E-04	8.42E-04	8.50E-04
U-236	4.57E-04	4.65E-04	4.74E-04	4.82E-04	4.99E-04	5.07E-04	5.24E-04	5.41E-04
U-237	5.32E-06	3.19E-10	3.04E-10	2.89E-10	2.63E-10	2.50E-10	2.28E-10	2.07E-10
U-238	9.99E-01							
U-239	1.78E-06	0.00E+00						
U-total	1.00E+00							
Pu-236	9.18E-08	7.22E-08	5.67E-08	4.46E-08	2.75E-08	2.16E-08	1.33E-08	8.22E-09
Pu-237	3.85E-08	1.49E-10	5.82E-13	2.26E-15	3.42E-20	1.33E-22	2.01E-27	3.03E-32
Pu-238	3.85E-03	4.23E-03	4.30E-03	4.29E-03	4.24E-03	4.22E-03	4.17E-03	4.12E-03
Pu-239	6.00E-01	6.01E-01	6.02E-01	6.03E-01	6.05E-01	6.06E-01	6.08E-01	6.10E-01
Pu-240	3.20E-01	3.21E-01	3.21E-01	3.22E-01	3.23E-01	3.23E-01	3.25E-01	3.26E-01
Pu-241	4.30E-02	4.10E-02	3.91E-02	3.73E-02	3.40E-02	3.25E-02	2.96E-02	2.70E-02
Pu-242	3.31E-02	3.31E-02	3.32E-02	3.32E-02	3.34E-02	3.34E-02	3.35E-02	3.36E-02
Pu-243	1.43E-06	7.38E-18	7.39E-18	7.41E-18	7.43E-18	7.44E-18	7.47E-18	7.49E-18
Pu-244	1.11E-06	1.12E-06	1.12E-06	1.12E-06	1.12E-06	1.12E-06	1.13E-06	1.13E-06
Pu-total	1.00E+00							

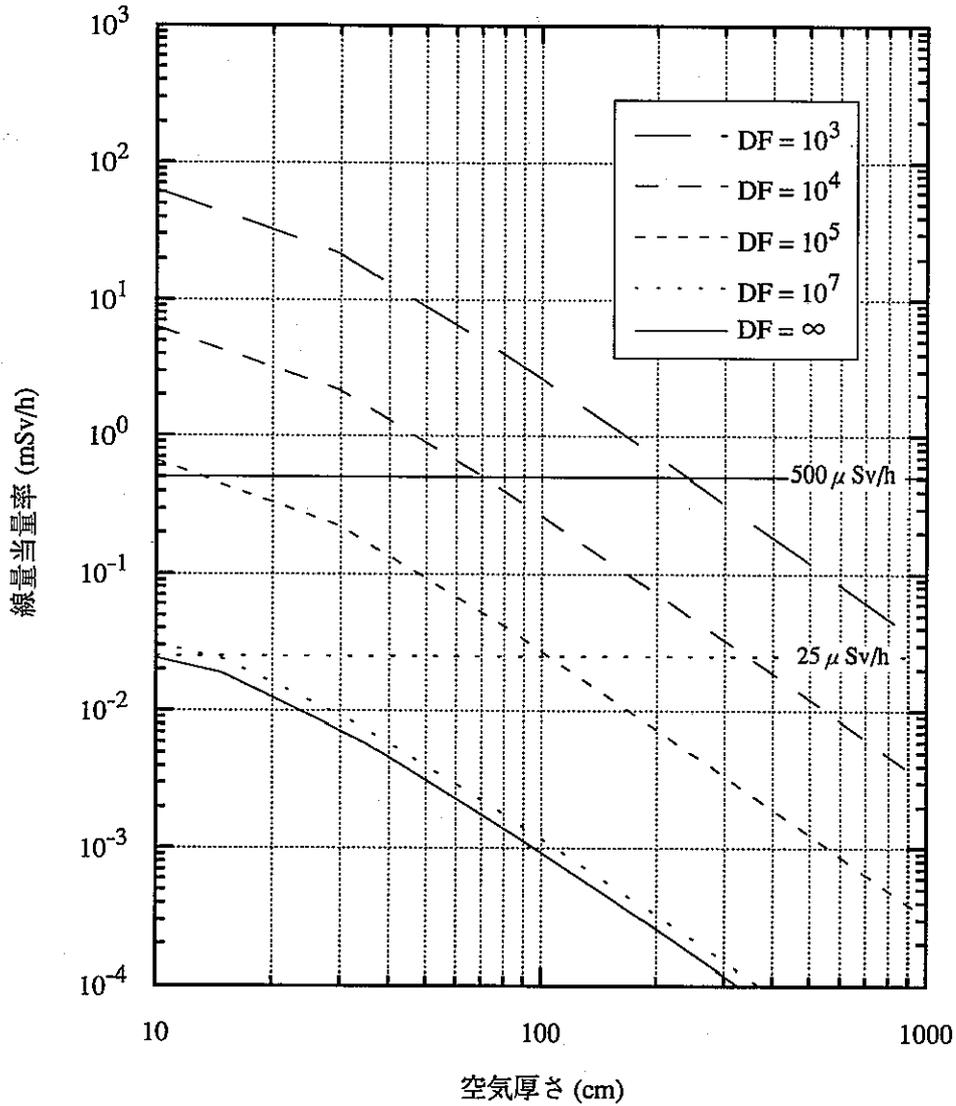


図-1 PWR 回収 U からの線量当量率の空気による減衰

PWR 燃料 燃焼度 4.5 万 MWd/t
 冷却期間 3 年、再処理後 3 年経過
 U 10 kg を球線源とし、直近から空気とした

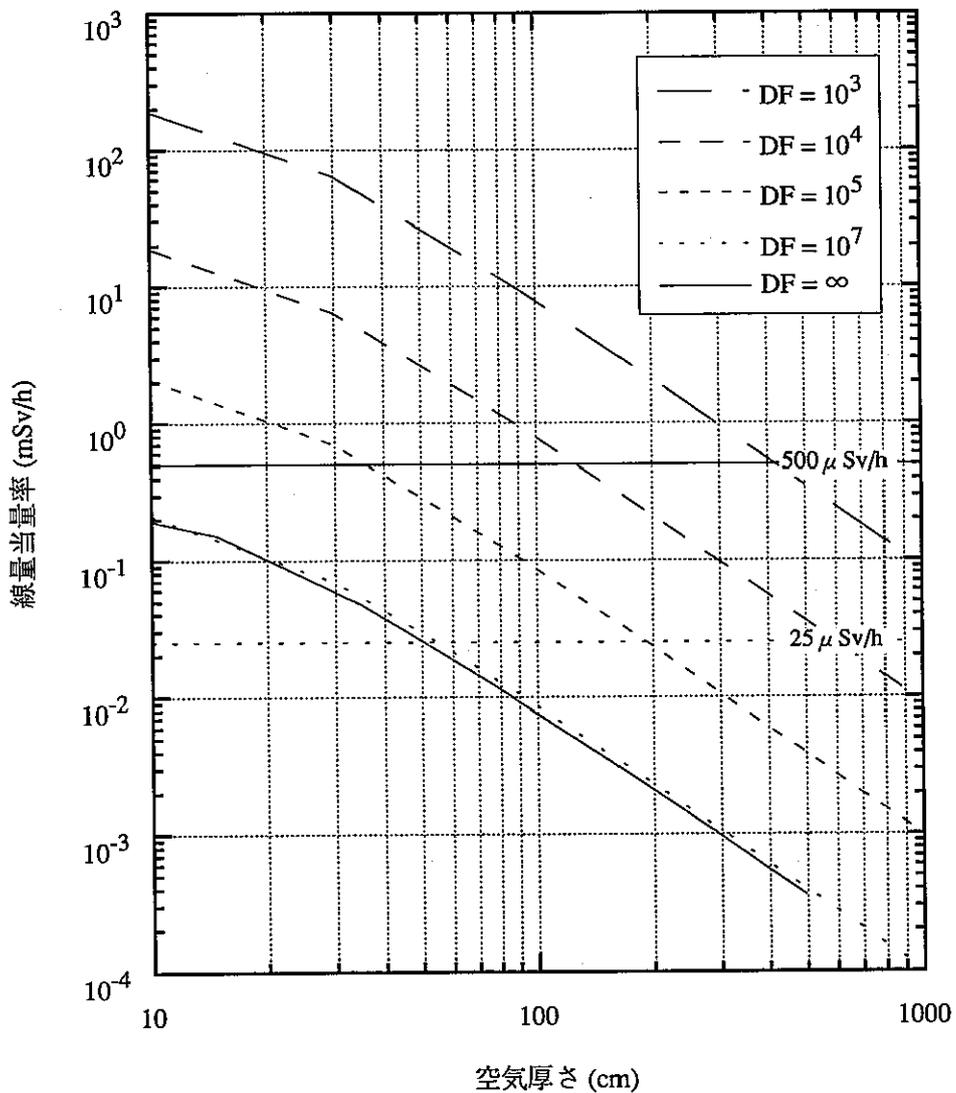


図-2 FBR 回収 U による線量当量率の空気による減衰

FBR 燃料 燃焼度 15 万 MWd/t
 冷却期間 3 年、再処理後 3 年経過
 U 10 kg を球線源とし、直近から空気とした

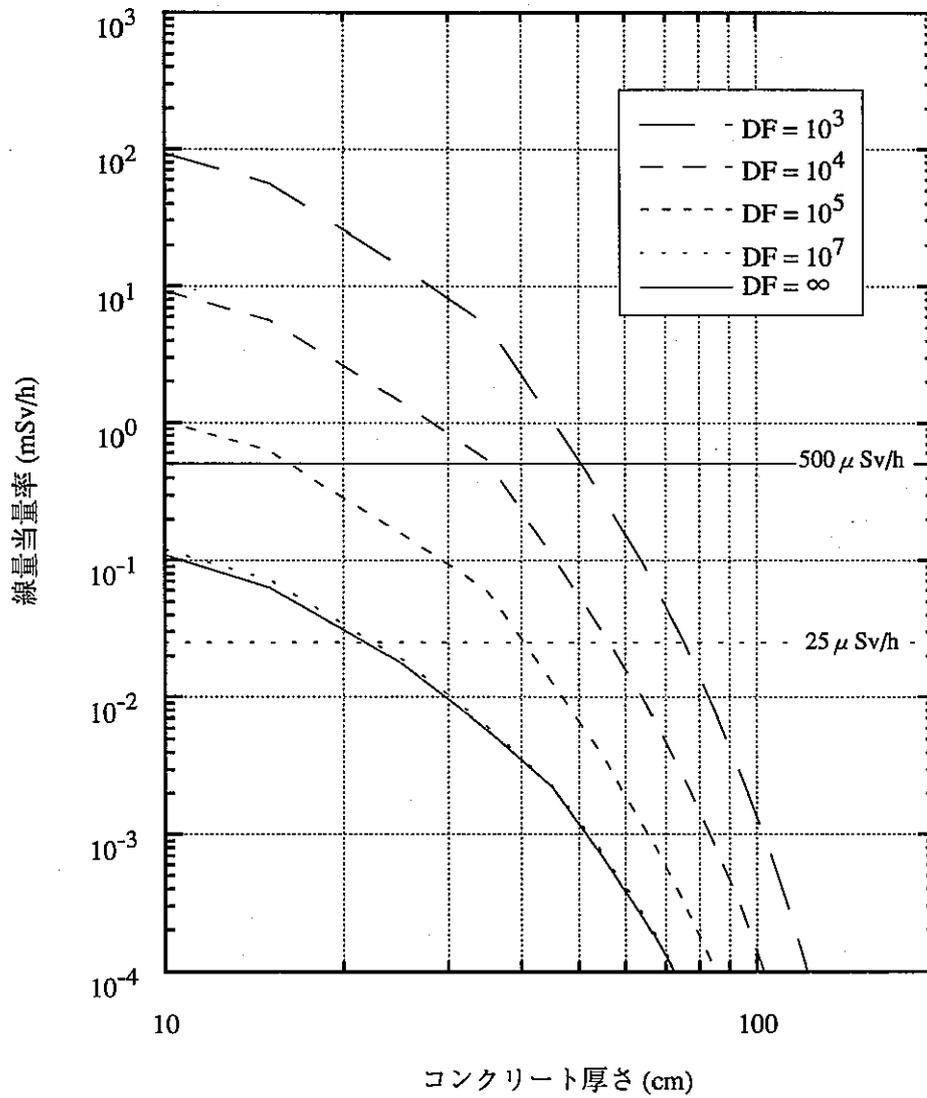


図-3 FBR 回収 U からの線量当量率の普通コンクリートによる減衰

FBR 燃料 燃焼度 15 万 MWd/t
 照射後 3 年、再処理後 3 年冷却
 U 10 kg を球線源とし、直近からコンクリートとした

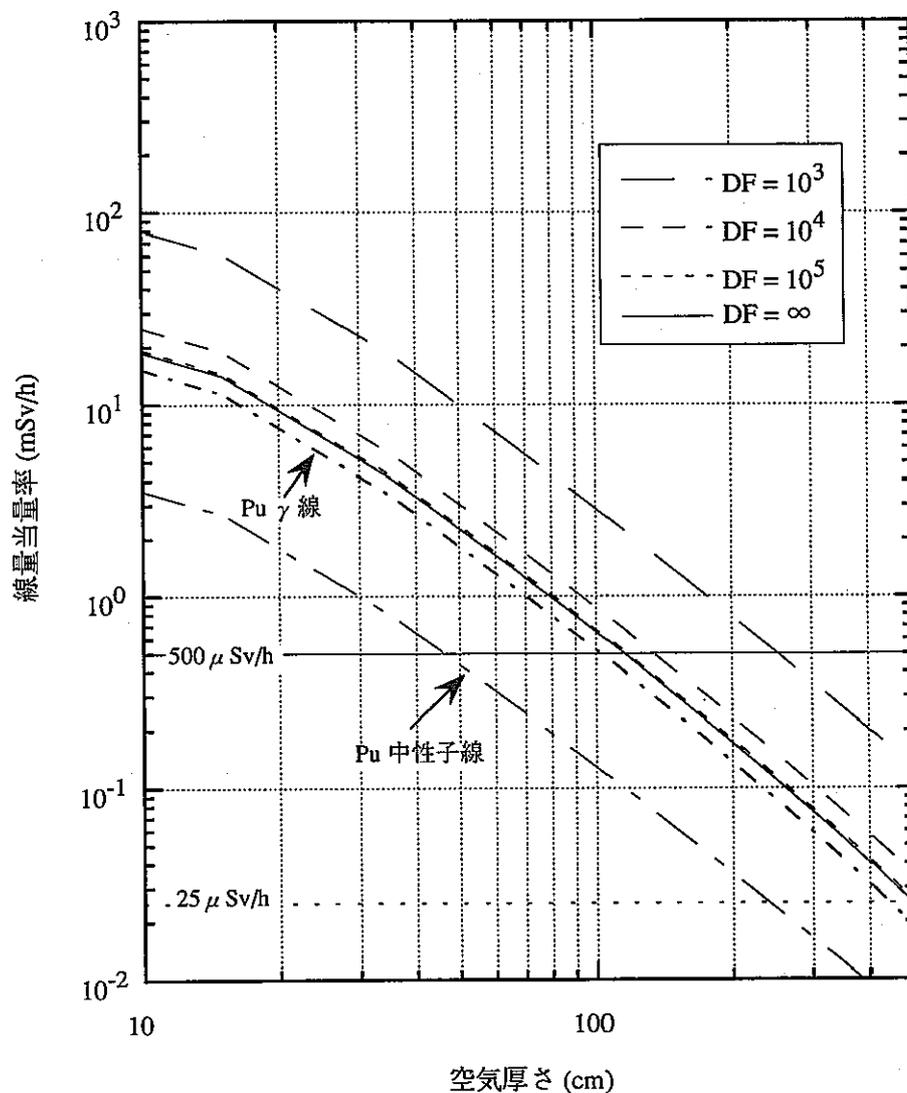


図-4 PWR 回収 Pu による線量当量率の空気による減衰

PWR 燃料 燃焼度 4.5 万 MWd/t
 冷却期間 5 年, 再処理後 1 年経過
 Pu 10 kg を球線源とし, 直近から空気とした

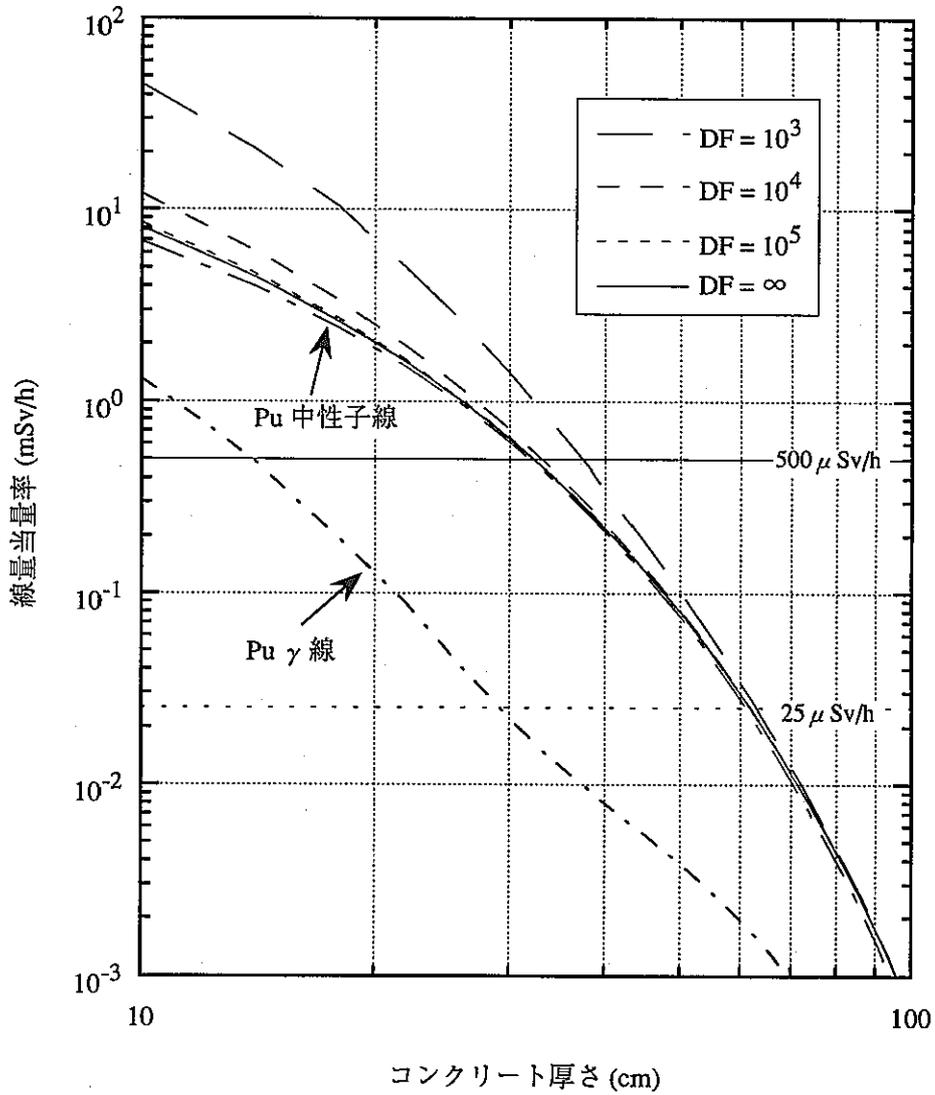


図-5 PWR 回収 Pu からの線量当量率の普通コンクリートによる減衰

PWR 燃料 燃焼度 4.5 万 MWd/t
 冷却期間 5 年, 再処理後 1 年経過
 Pu 10 kg を球線源とし, 直近からコンクリートとした

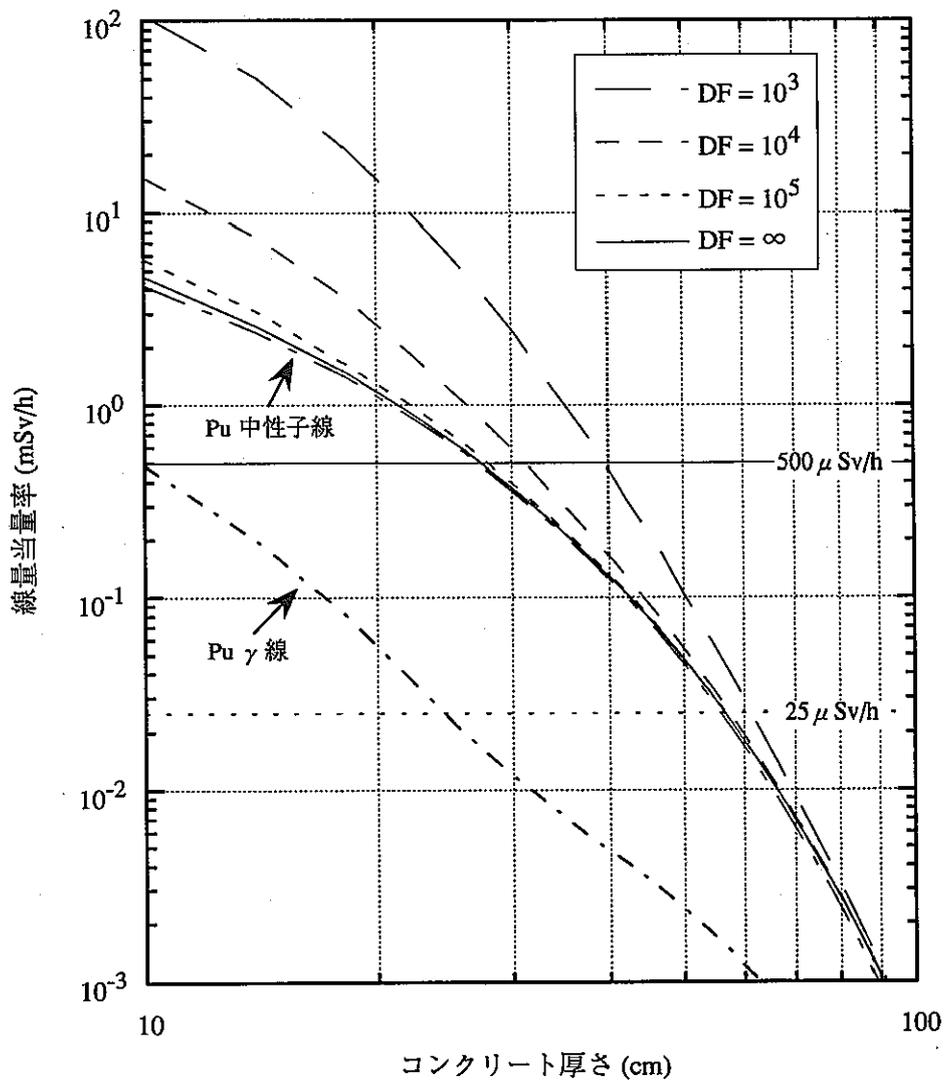


図-6 FBR 回収 Pu からの線量当量率の普通コンクリートによる減衰

FBR 燃料(軽水炉より回収した Pu 燃料を照射)
 燃焼度 15 万 MWd/t 冷却期間 5 年, 再処理後 1 年経過
 Pu 10 kg を球線源とし, 直近からコンクリートとした

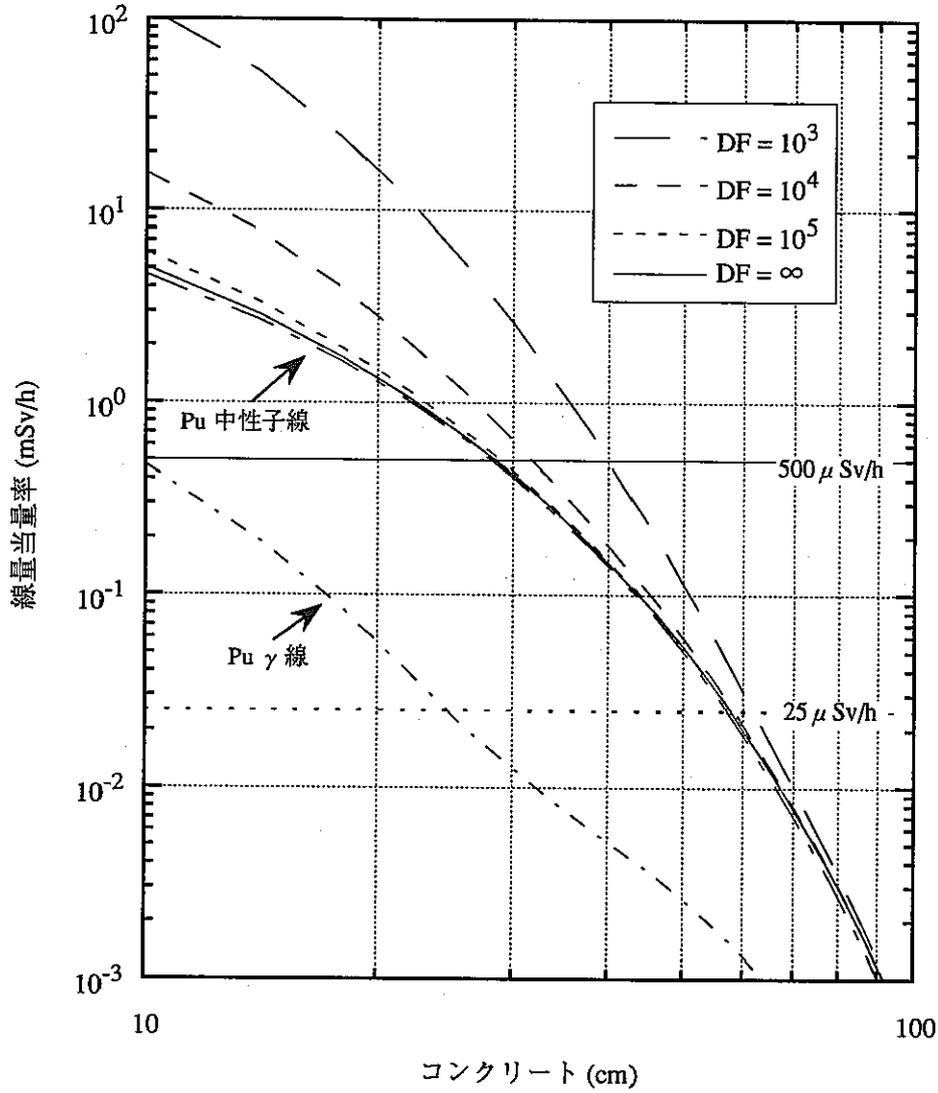


図-7 FBR 平衡炉心燃料回収 Pu からの線量当量率の普通コンクリートによる減衰

FBR 燃料(FBR 燃料より回収した Pu 燃料を照射)
 燃焼度 15 万 Mwd/t 冷却期間5年, 再処理後1年経過
 Pu 10 kg を球線源とし, 直近からコンクリートとした

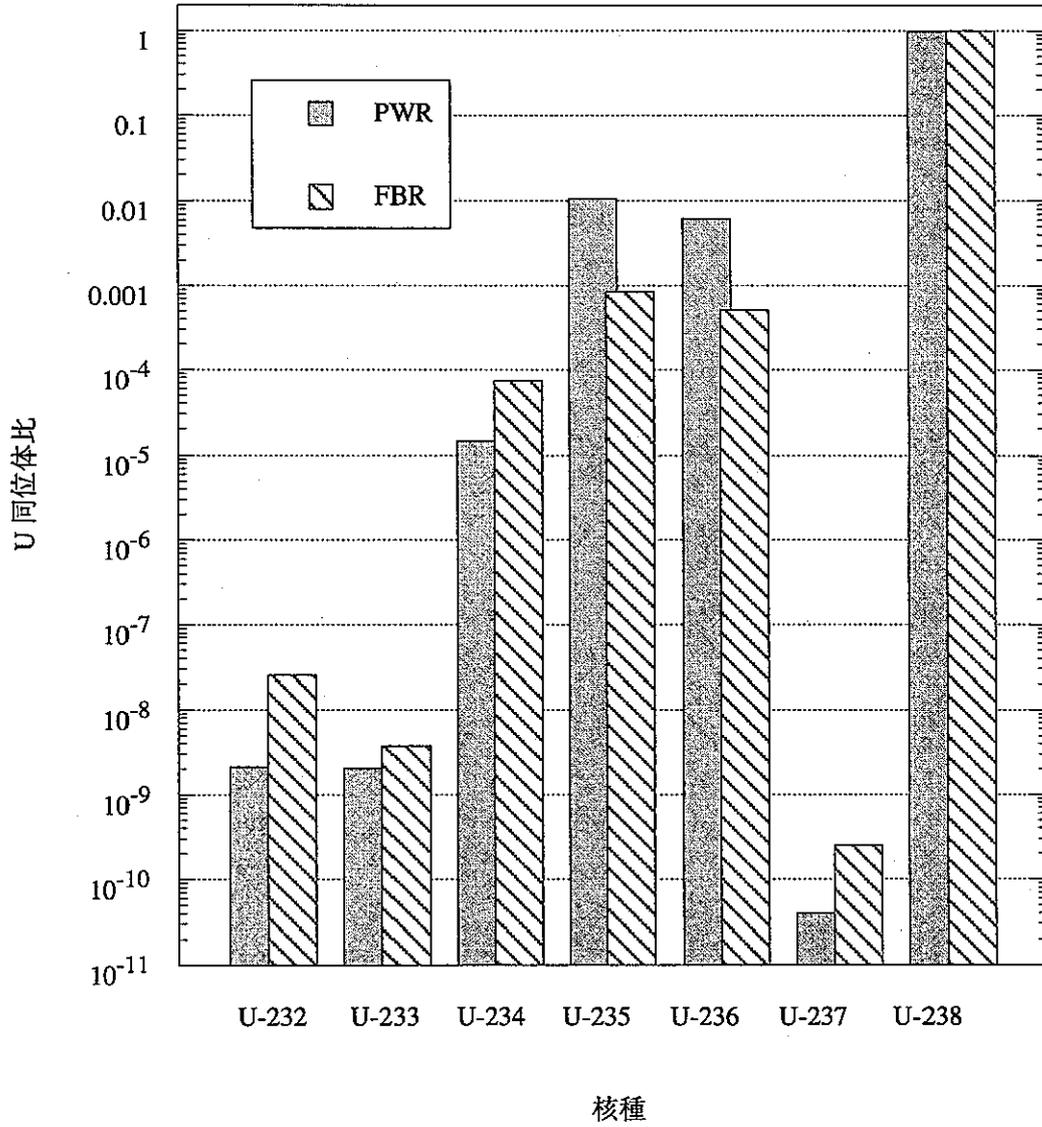


図-8 U 同位体比 (6年間冷却)

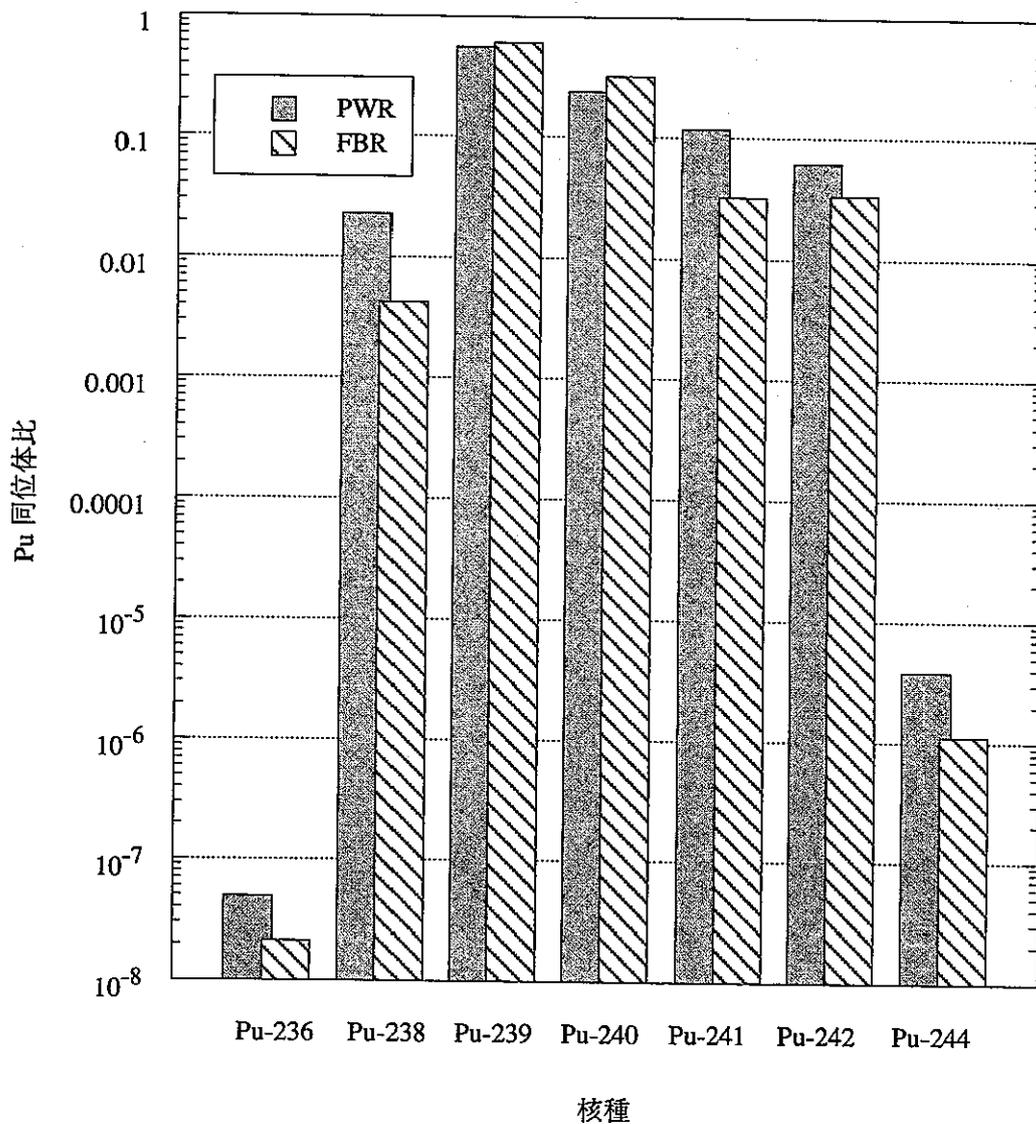


図-9 Pu 同位体比 (6年間冷却)

(FBR 燃料は軽水炉より回収した Pu 燃料から製造)