

本資料は 年 月 日付にて登録区分
変更する。
2001. 6. 20 [技術情報室]

高燃焼度燃料再処理の検討(4)

— 燃焼度の管理(1) —

1989年2月

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

本資料は、核燃料サイクル開発機構の開発業務を進めるために作成されたものです。したがって、その利用は限られた範囲としており、その取扱には十分な注意を払ってください。この資料の全部または一部を複写・複製・転載あるいは引用する場合、特別の許可を必要としますので、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2001

ZN8430 89-006

内 部 資 料

PNC ~~18430-89-002~~

1 9 8 9 年 2 月



高燃焼度燃料再処理の検討(4)

—燃焼度の管理(1)—

須 藤 俊 幸* 古 川 博 章*

要 旨

高燃焼度燃料の初期濃縮度は現状の軽水炉の初期濃縮度よりも高くなり、しかもバーナブルポイズンの使用なども予定されているため、臨界安全設計としての濃縮度を初期濃縮度ないしそれよりも若干高めに設定するならば機器設計に対しきわめて強い制約が加わることとなる。ところが、軽水炉燃料の高燃焼度化は言ってみれば「できるだけ効率的に燃やしつつして」しまつて残留濃縮度をできるだけなくすことにあるのであるから、このような燃料に対し初期濃縮度を上回る臨界安全設計上の濃縮度を設定することは、はなはだ不合理、不経済である。

このような動機を出発点として、本報告では、まず東海再処理工場への適用性を離れて検討することとして、一般論として高燃焼度燃料再処理において実用的な燃焼度管理の考え方を臨界安全設計との関連で整理した上で、いくつかの測定物と測定ポイントにつき精度、簡便性などの観点から比較検討を加え、新しい燃焼度管理の方法の成立性について検討する。

* 更処理工場処理部化学処理第一課

目 次

| | |
|------------------------|----|
| 1. 序 | 1 |
| 2. 実用的燃焼度管理の考え方 | 3 |
| 3. 測定対象 | 5 |
| 3.1 相関関係 | 5 |
| 3.2 燃焼度の測定 | 6 |
| 3.2.1 FP | 6 |
| 3.2.2 TRU | 6 |
| 3.3 冷却期間の補正 | 7 |
| 4. 測定箇所と測定方法 | 9 |
| 4.1 受入プールでの非破壊測定 | 9 |
| 4.2 溶解槽での測定 | 9 |
| 4.2.1 サンプル分析 | 9 |
| 4.2.2 インライン測定 | 10 |
| 4.2.3 排気モニターでの測定 | 10 |
| 5. まとめと今後の課題 | 11 |

1. 序

軽水炉産業では、軽水炉の経済性の向上を目指して燃料の高燃焼度化が進められているところであるが、燃料の高燃焼度化を進めるためには初期濃縮度を高めることが必要となってくる。ただ、むやみに初期濃縮度をあげることは濃縮コストをあげることになってしまうため、高燃焼度燃料再処理用基準燃料 ($55 \text{ GWD}/\text{T}$, 3年冷却) の選定にあたって我々は、この点に留意して低い濃縮度で $55 \text{ GWD}/\text{T}$ の燃焼度が得られるよう初期濃縮度を $4 \text{ W}/\text{O}$ と選定した。¹⁾ 現在のところ高燃焼度燃料の設計仕様が十分に固まったとはいえない状況にあり、初期濃縮度にしても最高 $4.5 \text{ W}/\text{O}$ まで検討されている模様である。

一方施設の臨界安全設計では、バーナブルポイズンを使わないケースでは、全く燃焼していない場合すなわち未照射のときが臨界上最も厳しい条件であるので、初期濃縮度に対して安全であるように設計する。またバーナブルポイズンを使うケースでは、少し燃焼したときの方が全く燃焼していない場合よりも臨界上厳しくなるといわれており、この場合には初期濃縮度よりも若干高めに臨界安全設計としての濃縮度を設定する。ちなみに東海再処理工場の臨界安全設計では現状の BWR 及び PWR の初期濃縮度がそれぞれ $2 \text{ W}/\text{O}$ 前半、 $3 \text{ W}/\text{O}$ 前半であるのに対し、濃縮度 $4 \text{ W}/\text{O}$ で臨界設計を行っている。

よく知られているように低濃縮ウラン系の臨界データは濃縮度に強く依存する。(図 1-1, 2 参照²⁾) 例えば表 1-3³⁾ からわかるように硝酸ウラニル系の無限円筒 (20 cm 水反射) の最小臨界寸法は、濃縮度 $4 \text{ W}/\text{O}$ のとき 45.6 cm であるのに対し濃縮度 $2 \text{ W}/\text{O}$ になると無限大となって、なんら臨界上の心配をせずに機器設計ができることになる。したがって同じ処理能力のある機器 (例えばパルスカラム) を設計する場合濃縮度を $4 \text{ W}/\text{O}$ にすると機器寸法が非常に長細くなってしまい、このような縦長の機器を収納するようなセルをつくることは耐震設計上からも好ましいことではない。他方濃縮度が $2 \text{ W}/\text{O}$ であるとする、なんら臨界上の心配をせずに機器設計をすることができる。したがって再処理施設の設計において処理量をあげるためには、臨界設計上の濃縮度をいくらに設定するかということはきわめて重要である。

前述したように高燃焼度燃料の初期濃縮度は現状の軽水炉の初期濃縮度よりも高くなり、しかもバーナブルポイズンの使用なども予定されているため、臨界安全設計としての濃縮度を初期濃縮度ないしそれよりも若干高めに設定するならば機器設計に対しきわめて強い制約が加わることとなる。ところが、軽水炉燃料の高燃焼度化は言ってみれば「できるだけ効率的に燃やしつくして」しまつて残留濃縮度をできるだけなくすことにあるのであるから、このような燃焼度の高い使用済の燃料に対し初期濃縮度を上回る臨界安全設計上の濃縮度を設定することは、はなはだ不合理、不経済である。すなわち残留濃縮度が低いことに対応して、臨界設計上の濃縮度も低めに設定するべきである。

このとき臨界安全設計の基本原則である「二重偶発性の原理」に従えば、受け入れる使用済燃料の残留濃縮度の確認は、払い出し側の燃焼データだけでなくこれと独立した方法により確認しなければならないこととなる。この状況への対応方法としては大きくわけて2通り考えられよう。第一の立場は、燃料受入時に燃焼度と相関関係にある物理量を測定して、その結果から燃焼度を求め、燃焼度から残留濃縮度を求める方法で、現在開発が進められている「燃焼度モニター」による方法はその代表である。第二の立場は、残留濃縮度の担保を確認することをあきらめて、燃料溶解時に可溶性の中性子毒を添加する方法である。すなわち、第一の立場は受入貯蔵工程から低い濃縮度で臨界設計したいとする立場であり、第二の立場は受入貯蔵工程にたいしては高い濃縮度で設計し、溶解工程以降を低い濃縮度で設計しようとする立場である。

第一の方法については大きく分けて γ 線を測定する方法と中性子線を測定する方法とがあるが、後述するように測定原理上二重偶発性原理を満たすことが困難であることや、機器の開発、製作のコストあるいは保守のコストといったデメリットをどう評価するかがポイントである。

第二の方法については使用する可溶性中性子毒の抽出工程への影響や発生廃棄物処理の検討が必要になることに加え、臨界安全管理上可溶性中性子毒の品質管理が必要となることの運転管理上の負荷や例えばガドリニウムを使う場合高価であるといったデメリットをどう評価するかがポイントである。

これに対し我々は第一と第二の立場の折衷的な立場をとっており、第三の燃焼度の管理方法として、溶解槽での溶解液の分析結果あるいは溶解データをもとにした管理方法を検討した。この方法は、溶解槽までは高い濃縮度の臨界設計を必要とするが、第一の方法のように機器の開発等の費用は不要となるばかりでなく、二重偶発性原理との両立も可能であり、第二の方法のように可溶性毒物使用に伴うデメリットも回避できる。

本報告では、まず東海再処理工場への適用性を離れて検討することとして一般論として高燃焼度燃料再処理において実用的な燃焼度管理の考え方を臨界安全設計との関連で整理した上で、いくつかの測定物と測定ポイントにつき精度、簡便性などの観点から比較検討を加え、我々の方法の成立性について考える。最後にまとめをおこない、今後の検討課題について述べる。

なお、本報告では我々の選定した高燃焼度燃料用基準燃料 (PWR で 55 GWD/T , 3年冷却) に対して ORIGIN-II によって計算した結果をもとに検討を行った。

また、本報告では未臨界度モニターは検討の対象外とした。

2. 実用的燃焼度管理の考え方

序でも述べたように、再処理施設に受け入れた燃料の燃焼度を管理する目的は、再処理施設の臨界安全設計を過重なものとしなため、受け入れる燃料の残留濃縮度を払い出し側のデータとは独立に確認する方法として、燃焼度と残留濃縮度との相関関係及び測定しようとする物理量と燃焼度との相関関係に着目して、燃焼度を管理することによって、残留濃縮度の管理をすることである。

ここで再処理施設に受け入れる使用済燃料の残留濃縮度は、軽水炉燃料の高燃焼度化の目的からして「できるだけ燃やしつつして」しまっていることから通常はかなり低いことに留意する必要がある。ちなみに高燃焼度燃料再処理用基準燃料 (55 GWD/T , 3年冷却) の場合、残留濃縮度はウラン換算で高々 2 W/O 程度である。

ここでは、「実用的」な燃焼度の管理を検討する上で、受入貯蔵工程から溶解工程において高い燃焼度での臨界設計の必要性及び燃焼度管理で必要とされる精度について検討する。

まず第一に臨界設計上の濃縮度については、受入貯蔵能力あるいは溶解処理能力をどう評価するかがポイントである。受入貯蔵能力を高くしておきたいということの動機は、後ろの工程の安定性にかかっている。後ろの工程の安定運転に不安があるならば、貯蔵能力を高くして受入スケジュールへの影響を食い止めたいところである。しかし、前年度に受け入れた燃料を今年度中に再処理できるならば、さほど「コンパクトな貯蔵」ということにこだわる必然性はなく、少々「ルーズな貯蔵」でも特に問題ないと考えられる。また溶解槽にしても、大きな処理能力をもつ溶解槽を1基持つのとこれを2基とか3基でまかなうのでは、安定運転という観点からは溶解槽が複数あったほうがよく、この点でも高い濃縮度でこれらの工程を設計することは必ずしも問題となるものではない。

また原子炉内での燃焼の途中で燃料の破損が起きた等の理由により燃焼度が低い「なま焼き」の燃料を受け入れて、燃焼度の測定で受入基準の燃焼度を満たさない場合を考えると、このような基準を満たさない燃料を再び原子炉に再装荷することもどこかの貯蔵プールに永久に貯蔵することも非現実的であり、なんらかの方法により再処理できるような設計が再処理施設に求められるであろう。

したがって再処理施設の臨界安全設計は使用済燃料の受入プールから少なくとも溶解槽までは、残留濃縮度に対しかなり大きな裕度を見込んだ臨界安全設計が必要となってこよう。そして溶解槽以降は、低い濃縮度で設計することとなる。

第二に精度について検討する。序でも述べたように低濃縮ウラン系において臨界寸法は濃縮度に強く依存している。このため例えば機器の臨界設計濃縮度を 3 W/O にした場合、高燃焼度燃料再処理用基準燃料の残留濃縮度は高々 2 W/O 程度であるため大きな安全裕度をもっているばかりでなく、残留濃縮度が 3 W/O 以下であることを確認するには、燃焼度で言って約 30 GWD/T 程度

(または3サイクル)以上の燃焼があることを確認すればよい。すなわち、設計上臨界安全裕度が大きい場合、受入基準を満たしているかどうかの確認のための燃焼度測定では、さほどの精度を必要としないと考えられる。

一方燃焼度がいくらであるかというような管理を要求すると後述するように測定データに対し冷却期間と初期濃縮度の補正を必要とし、このためには2つのうち1つの情報が払い出し側からの情報として必要になって、二重偶発性原理と両立しない。

以上より、受入貯蔵工程から溶解工程までは受け入れる使用済燃料の残留濃縮度に対し、高めあるいは初期濃縮度に設計濃縮度を設定すべきであり、このため安全裕度が大きい場合受入基準を満たしているかどうかの燃焼度の測定はあまり精度を必要としない。

3. 測定対象

3.1 相関関係

残留濃縮度を確認する最も直接的な方法は、溶解液をサンプリングしてウランとプルトニウムの同位体組成比を求めることであろうが、溶解液が非常に強い放射能を持つことからサンプリング作業及び分析作業の困難さが予想され、遠隔的あるいは間接的に確認したいということは自然な発想である。

この確認法の出発点は同位体組成が燃料の燃焼履歴と相関関係にあることである。すなわち、例えばある2つのFP核種の組成比を γ スペクトルから求め、この組成比の燃焼度依存性とU、Puの燃焼度依存性から残留濃縮度を求めるという手順をとる。

本節では第一にU、Puの燃焼度依存性とこれらと残留濃縮度との関係を示し、つぎに着目すべき測定対象の燃焼度依存性について、求められる特性について考察する。

残留濃縮度を求めるにはU、Puの量だけでなくそれぞれのfissile量が必要で、これとPu fissileのU-235への換算係数を適当に決め、ウラン換算の残留濃縮度を求める。このとき図3.1-1に示すように燃焼度と重量との相関関係を使っても、図3.1-2に示すような燃焼度と重量比との相関関係を使っても良いが、一般的に言って重量比を使うほうが精度がよいであろう。ここで図3.1-1及び図3.1-2では初期濃縮度と比出力の影響を示すため、①初期濃縮度4.0 W/o、比出力25 MW/T、②初期濃縮度4.0 W/o、比出力35 MW/T、③初期濃縮度4.5 W/o、比出力25 MW/Tの場合を示すとともに、炉取り出し後5年間の冷却のようすを示す。

これらの図より明らかなように、これらの量は比出力の影響はまったくないと言ってよく、初期濃縮度の依存性は、U-235及びPu fissile/U-235を除いてごくわずかである。初期濃縮度の補正としては、初期濃縮度4.0 W/oと4.5 W/oの図形の相似性からこの濃縮度近傍では比例配分で十分によい近似となろう。このとき初期濃縮度としては、受入燃料のデータを用いる。

ただ通常作業で受け入れる燃料のデータをみて受入基準（例えば20～30 GWD/T以上とする）を十分上回っているときは、初期濃縮度の補正をするまでもない場合もあろう。

次に測定対象の核種の燃焼度依存性について検討する。図3.1-3に燃焼度を横軸にとり、典型的な相関関係を示したが、これらの中で求められるべき相関関係としてはつぎの2点があげられよう。

- (イ) 相関関係が強いこと
- (ロ) 単調であること

(イ)の条件は、図中で(c)よりも(a)や(b)の方がよいということで、得られた測定値から燃焼度を求めるとき、相関性が強いと精度よく求まるという利点がある。また(ロ)については、得られた測定

値に対し燃焼度が一意的に決まるということである。「受入燃焼度」などといった基準を設けるならば、必ずしも全燃焼度にわたって(i)と(ii)の条件を満たす必要はなく、興味ある燃焼度近傍についてのみこれらの条件を満たせばよいこととなり、そのぶん測定対象の選択の範囲は広がる。

3.2 燃焼度の測定

本節では、燃焼度を求めるのに適した測定対象として何がよいかを検討するため、FP、TRU核種についてその燃焼度依存性を検討する。

3.2.1 FP

ある特定のFP核種を測定対象とする場合、多くのFP核種の中から選択的に測定可能であるためには、インベントリがある程度大きくなければならないことから、Kr-85, Ru-103, Ru-106, Cs-134, Cs-137, Ce-144の6核種を選定した。その燃焼度依存性を図3.2-1(a)~(f)に示す。さらにKr-85を除く5核種の放射能が非常に大きいことから対数目盛とした場合を図3.2-2(a)~(e)に示す。これらの図より特徴的な点を以下に示す。

- ①Cs-137は、比出力、初期濃縮度の影響がきわめて小さく、放射能が測定できるならば、きわめてよい精度で燃焼度が求められる。
- ②Cs-137の次に比出力、初期濃縮度の影響が小さい核種はKr-85である。
- ③Ru-103, Ru-106, Ce-144については比出力の影響はかなりある。
- ④これらの核種については初期濃縮度と比出力の影響では全般に比出力の影響の方が大きい。
- ⑤Ru-103, Ce-144は片対数グラフとすると、燃焼期間中インベントリはほぼ一定とみることができる。

ここにあげたKr-85以外の核種の放射能が非常に大きいことから、Cs-137に対する放射能比としてCs-134とCe-144を図3.2-3に示す。図より次の点が言えよう。

- ①Cs-134 / Cs-137, Ce-144 / Cs-137ともに燃焼度との相関関係は強い。
- ②Ce-144 / Cs-137の燃焼度依存性は非常に小さい。

最後に図3.2-3(b)と図3.2-2(a)よりCs-134 / Cs-137とPu/Uとの相関関係を求めると図3.2-4のようになり、この図よりCs-134 / Cs-137からPu/Uを求める場合冷却期間の補正はやらなくともほぼ一定のPu/Uを与え、初期濃縮度の補正を行わないと最大で約10%程度の誤差を与えることがわかる。

3.2.2 TRU

FPによる強い放射線場の中でTRU核種の放出する α, β, γ 線を検出することはほぼ不可能であり、中性子との相互作用を利用すべきである。この観点から(α, n)反応及び自発核分裂による中性子放出核種でインベントリの比較的大きなものとしてAm-241, Cm-242, Cm-244を選択した。

ただしこれらのうちで Cm-242 は半減期が 162.8 日と非常に短い。

全中性子発生数のこれら 3 核種からの寄与及びこれら 3 核種の中性子発生数の燃焼度依存性を図 3.2-5(a)~(c)及び図 3.2-6(a)~(c)に示す。また全中性子発生数と Pu/U 重量比との相関関係を図 3.2-7(a)~(b)に示す。図より以下の点が言えよう。

- ①全中性子数への寄与は、燃焼度の低い領域では Cm-242 が dominant であり、 40 GWD/T 程度を超えると Cm-244 が dominant となる。
- ②炉取り出し後 1 年程度の冷却期間を過ぎると全中性子数の 99% 異常は Cm-244 からの寄与となる。
- ③ 3 核種の比出力及び初期濃縮度の依存性は非常に弱い。
- ④図 3.2-7(a)~(b)より、中性子測定器の測定範囲は少なくとも、3 桁は必要である。
- ⑤全中性子数の測定が桁数程度の精度であっても、Pu/U 重量比の誤差は ± 0.002 、燃焼度で $\pm 10 \text{ GWD/T}$ 程度である。
- ⑥同じ桁数内での測定においては、(b)図からわかるように、小さい係数のところでは、精度よく Pu/U 重量比を与えることは困難と考える。
- ⑦例えば Pu/U が 0.01 以上 (燃焼度で 30 GWD/T 以上) であることの確認をする場合、全中性子数としては 5×10^8 以上の領域で 10% 程度の測定精度を要するであろう。

3.3 冷却期間の補正

図 3.1-1, 2 及び 3.2-1~6 では炉から取り出し後 5 年間の冷却期間のようすを示したが、これらの図より明らかなように炉から取り出し後インベントリが変化し、しかも核種によりその変化のようすが異なるため、燃焼度を求めるためには、測定対象の核種に応じた冷却期間の補正が必要と考えられる。

冷却期間の補正については、U, Pu の初期濃縮度依存性を払い出し側のデータを利用するのにならう方法とこれまでの図に示したような相関関係を利用する方法があろう。

まず相関関係を利用する場合では、冷却期間の補正を行うのに適当な相関関係は図 3.3-1 に示すように以下の 2 つのケースが考えられる。

- (イ) 燃焼中のインベントリがほぼ一定で、炉から取り出し後インベントリが急速に減少する場合。
- (ロ) 燃焼中のインベントリが単調に増加 (もしくは減少) し、炉から取り出し後インベントリがほぼ一定である場合。

(イ)は半減期が短い核種が該当し、(ロ)は半減期の長い核種が該当する。図 3.2-2(a)~(e)より、(イ)のケースとしては Ru-103, Ce-144 が(ロ)のケースとしては Cs-137 が候補となる。

これらの核種はそのインベントリの大きさゆえに放射エネルギーを測定するよりも比を測定する方が、現実的と考えられる。(本節後記注参照) ところがある程度インベントリが大きい核種の放射

能比から求める場合、(イ)あるいは(ロ)の相関関係が成り立ちうる場合があるかを検討すると以下の通り結果は否定的である。

- (イ) 燃焼中の放射能比がほぼ一定であるためには、用いる両核種の半減期がほぼ同じくらいでなければならないが、炉から取り出し後放射能比が急激に変化するためには半減期が大幅に違うことが必要である。
- (ロ) 炉から取り出し後放射能比がほぼ一定であるためには、用いる両核種の半減期がほぼ同じくらいでなければならないが、燃焼中の放射能比が急激に変化するためには半減期が大幅に違うことが必要である。

したがって、ある程度インベントリの大きい核種の放射能比から冷却期間の補正をすることは困難であり、インベントリの小さい核種との比を検討する必要があるが、インベントリの小さい核種との放射能比を求めることは困難であるばかりでなく、できたとしても精度が問題になることは容易に想像できる。

以上より相関関係を利用する場合には、強い放射線場の中で、Ru-103などの放射エネルギーを測定しなければならないという困難があり、逆に払い出し側のデータを利用する場合には燃焼度と炉からの取り出しデータとの独立性がないため「二重偶発性の原理」に反してしまう問題が生ずる。

他方図3.3-2において、冷却後の減衰が比較的ゆっくりとしている場合には、測定した放射能が例えば図中の x_1 を上回るならば、燃焼は y_2 よりも進んでいたと言ってよい。すなわち燃焼度の管理が図3.3-2において y_2 （例えば受入基準）に対応した値以上であることであるとすると図3.3-1に示すような相関関係である必要はない。

このような核種としては図3.2-1(a)よりKr-85があり、しかもKr-85は単独で放射エネルギーの測定が可能である。

注) 燃焼度モニターを利用する場合、検出器のコリメーションを十分にしておいてマルチチャンネルアナライザーで解析することとなるが、アセンブリで燃焼度が不均一なため平均化するソフトが必要となってくる。溶解液をサンプリング分析する場合、サンプルを非常に希釈するためそれぞれの核種の放射能を求めるよりも、比を求めることの方が容易である。

4. 測定箇所と測定方法

以下において受入プールでの非破壊測定と溶解槽での測定につき、測定箇所の選択からくる利点、問題点及び測定方法の選択からくる利点、問題点について検討する。

4.1 受入プールでの非破壊測定

受入プールで燃焼度の測定を行う方法はいわゆる「燃焼度モニター」による方法で、燃料集合体が非常に強い放射能を持つことから必然的に測定は遠隔的であつ γ 線ないし中性子線測定のような間接的な残留濃縮度の測定とならざるを得ない。 γ 線を測定する場合でもなんらかのコーリメーションが必要となってくるし、測定系へのノイズ、稼働部の損傷等保守上の不安がある。

受入プールでの測定は受入プール以降の臨界安全設計において一律に低い濃縮度で設計できる利点があると考えられるが、前述したように必ずしもそうとはならない。

測定方法の点については、集合体において燃焼度分布があるため、測定値から平均燃焼度を導く操作が必要となってくる。また間接的な方法であるため Pu/U の初期濃縮度の補正を考える必要がある場合、初期濃縮度のデータは払い出し側のデータを用いることとなり、二重偶発性の原理との関連で疑問が生ずる。

また新たに「燃焼度モニター」の開発が必要となり、これに伴って、開発製作費用、定期保守費用などが必要となってくる。さらにモニターの信頼性の観点からは、強い放射線場でのモニターの計数値が、モニターの校正の方法と整合するかどうか考えられる。単一線源の弱い放射能で校正をした場合、実際に測定する対象が連続スペクトルの非常に強い放射能であるため、校正の妥当性につき例えば測定レンジの全くかけ離れたところで校正して意味があるのかといった疑問が生じる。また燃焼度の知れたる燃料で校正する場合には、既知の燃焼度の燃料のインベントリについては計算する必要があり、計算コードの信頼性をどう評価するのかという問題がある。例えば ORIGEN-II についてはいくつかの核種についてベンチマークが行われているが、⁴⁾ その精度は 5～15% となっている。

4.2 溶解槽での測定

4.2.1 サンプル分析

溶解槽から直接サンプリングを実施するならば、直接 U, Pu の同位体組成を測定することが可能であり、しかもその精度はきわめてよい。⁵⁾

直接サンプリングの場合サンプリング設備さえあればよく、なんらの測定装置も新たに設置する必要がないため、測定装置の開発費用、保守費用は不要である。ただ直接サンプリングでは高い放射エネルギーのサンプリングをしなければならぬという困難さが伴うため、自動サンプリ

ング設備及び自動分析設備が必要になってくる。

また溶解槽での測定では臨界安全設計上の不利のないことは前述のとおりである。

4.2.2 インライン測定

インライン測定による方法は、受入プールでの燃焼度モニターについて言えることはほぼそのままあてはまり、測定箇所が溶解槽に変わったということの利点は考えられない。

4.2.3 排気モニターでの測定

排気モニターでの Kr モニターの測定を行う方法は、排気モニタリングに利用する Kr モニターを利用すればよいため、あらたに設備を設けることに伴う費用は不要である。

しかも「受入基準」の方法を採用するならば前述したように初期濃縮度の補正も冷却期間の補正も不要となり、きわめて簡便であるばかりでなく、二重偶発性原理上の問題も起こらない。

ただし、図 4.2 - 1 に示すように Kr-85 の放出の経時変化は、溶解が終了していても幾分テイルがある点や、連続溶解の場合にどうするかといった問題が生ずることとなる。

5. まとめと今後の課題

我々はこれまで再処理施設の臨界安全設計と関連づけながら合理的な燃焼度管理の方法について検討したが、燃焼度の管理方法として「受入基準」の燃焼度を設けるならば、さほど精度を必要とせず、むしろ簡便性が求められること。そしてこの要求にあう方法として溶解時の Kr モニタリングの方法についてその成立性、優位性について定性的検討を行い、その可能性が十分あることを示した。

したがって、今後の課題はその成立性、優位性について定量的に実証することとなる。今後の主たる課題は以下のとおりである。

- ①溶解終了確認時点までの Kr-85 の測定値と燃焼度との対応づけ。
- ②連続溶解槽の場合の対応づけ。

なお、本報告では東海再処理工場を対象とせず、一般的に燃焼度の管理について考察した。東海再処理工場について検討する場合、初期濃縮度が 4 W/O を超える燃料に対して、その燃焼度の管理を溶解槽での Kr モニタリングで行う方法を適用するためには、溶解槽までの臨界安全設計をどう考えるか、また燃焼度管理の位置づけをどう考えるかについて考え方の整理を行う必要がある。

参 考 文 献

- 1) 須藤, 古川; 「高燃焼度燃料再処理の検討(1)-インベントリ(1)-」
PNC I 8430 88-009
- 2) ORNL-DWG 76-18043
- 3) "STANDARD DE CRITICITE", CEA-N-2051, '78
- 4) D.E.Blahnik, U.P.Jenquin, R.J.Guenter; Trans. Ameri. Nucl. Soc. 57 44, 1988
- 5) 加藤, 須藤, 古川; 「高燃焼度燃料再処理の検討(3)-溶解液のサンプリング分析-」
PNC I 8430 88-011

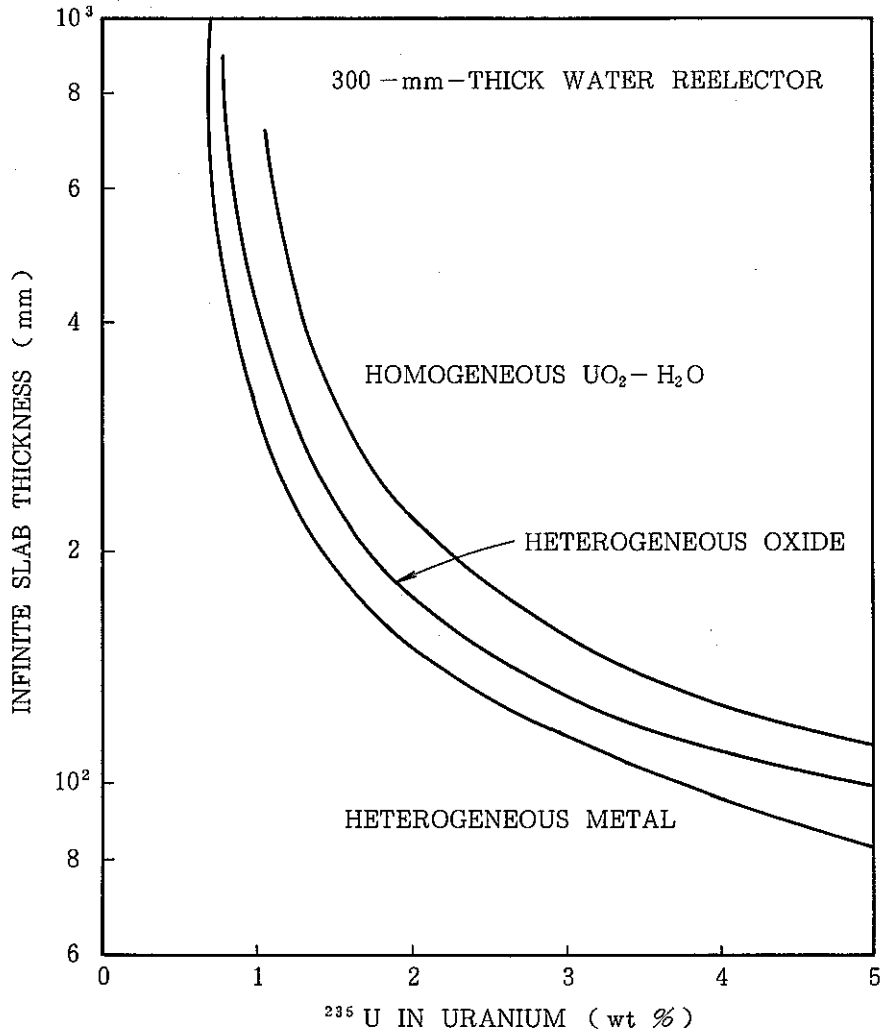


図1-1 水反射水減速 $U (\leq 5)$ の単一の平板
 についての臨界未満厚さ極限值

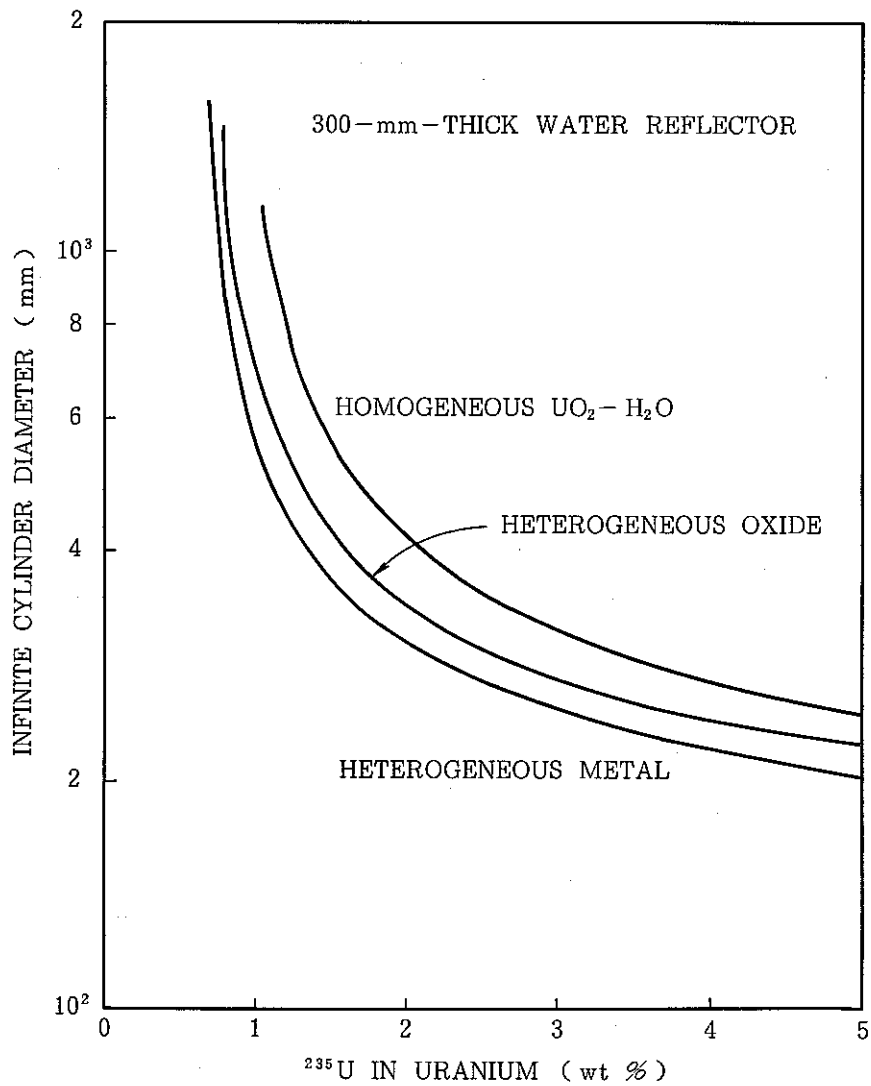


図 1 - 2 水反射水減速U (≤ 5) の単一の円筒
 についての臨界未満直径極限值

表1-3 臨界データ比較

| | 形 状 (20 cm 水平射) | 2w/o [cm] | 4w/o [cm] |
|--|--------------------|--------------|--------------|
| UO ₂ (NO ₃) ₂ - H ₂ O | 無限円筒直径 | ∞ | 45.6 |
| | 無限平板厚 | ∞ | 25.0 |
| UO ₂ F ₂ - H ₂ O | 無限円筒直径 | 64.0 | 34.5 |
| | 無限平板厚 | 33.0 | 17.5 |
| UO ₂ - H ₂ O (均質) | 無限円筒直径 | 41.0 | 27.6 |
| | 無限平板厚 | 23.0 | 14.0 |
| UO ₂ - H ₂ O (非均質) | 無限円筒直径 | 36.1 | 25.3 |
| | 無限平板厚 | 18.8 | 12.0 |

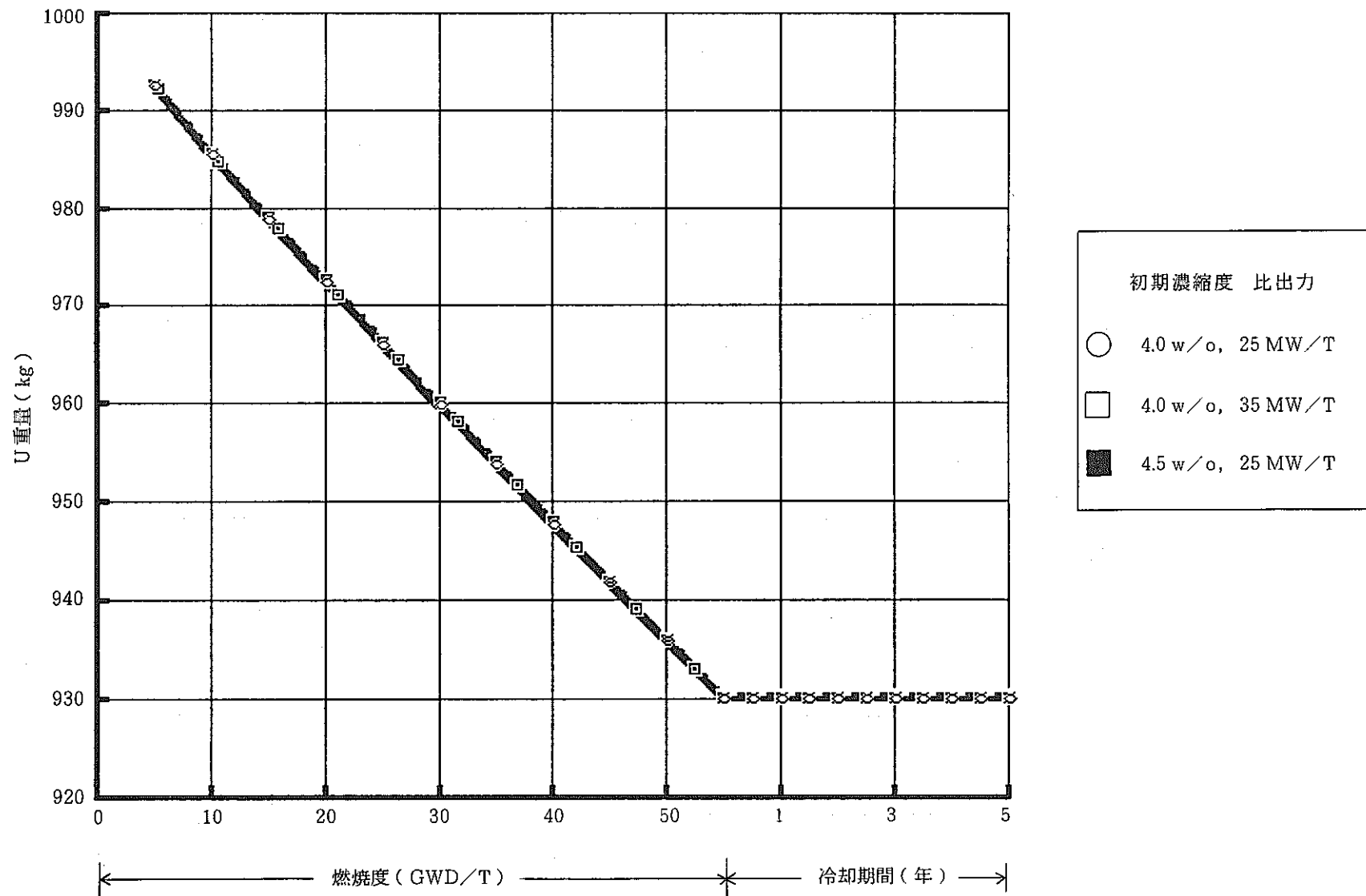


図 3.1 - 1(a) U重量-燃焼度, 冷却期間

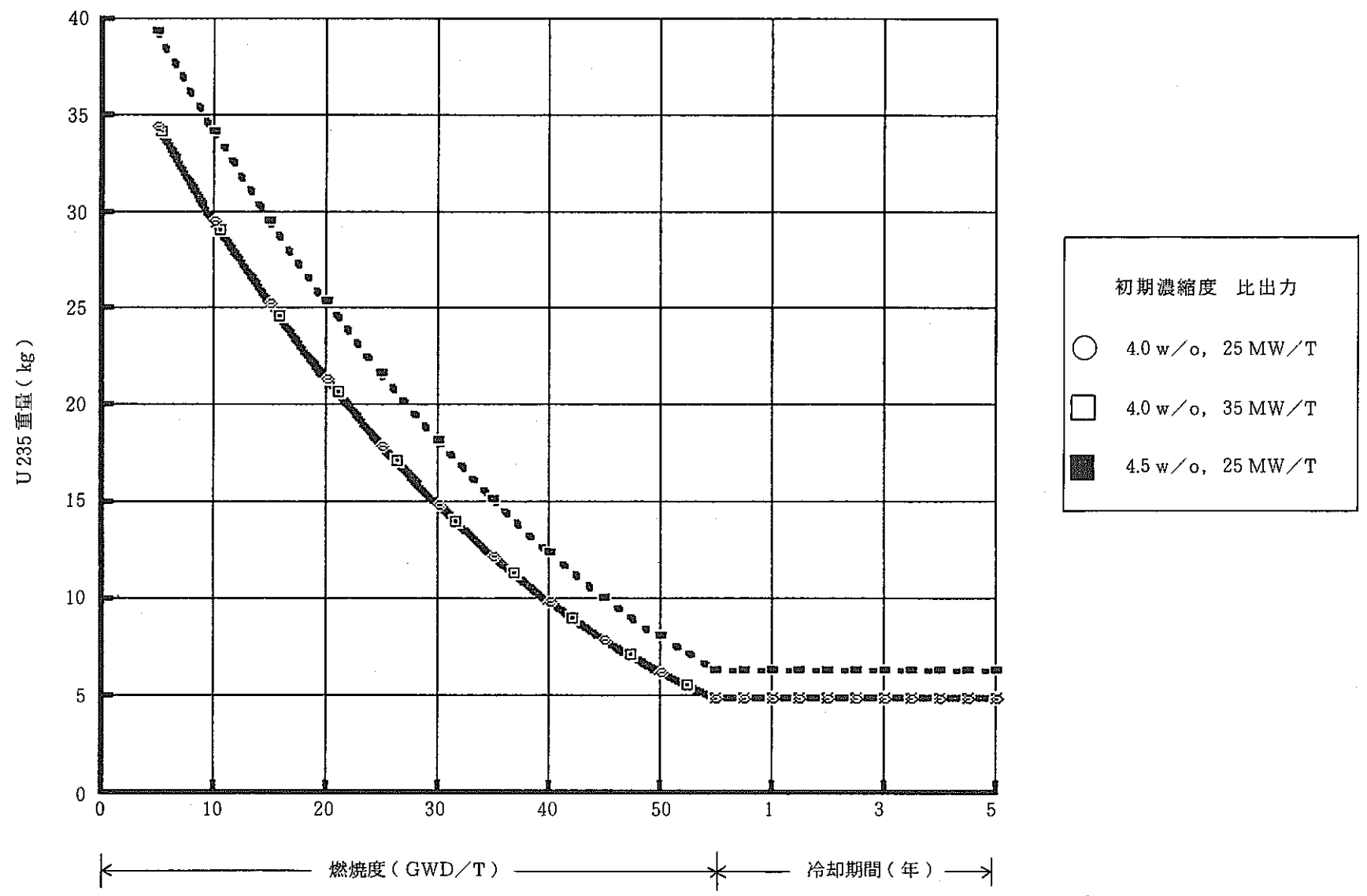


図 3.1 - 1(b) U 235 重量 - 燃烧度, 冷却期間

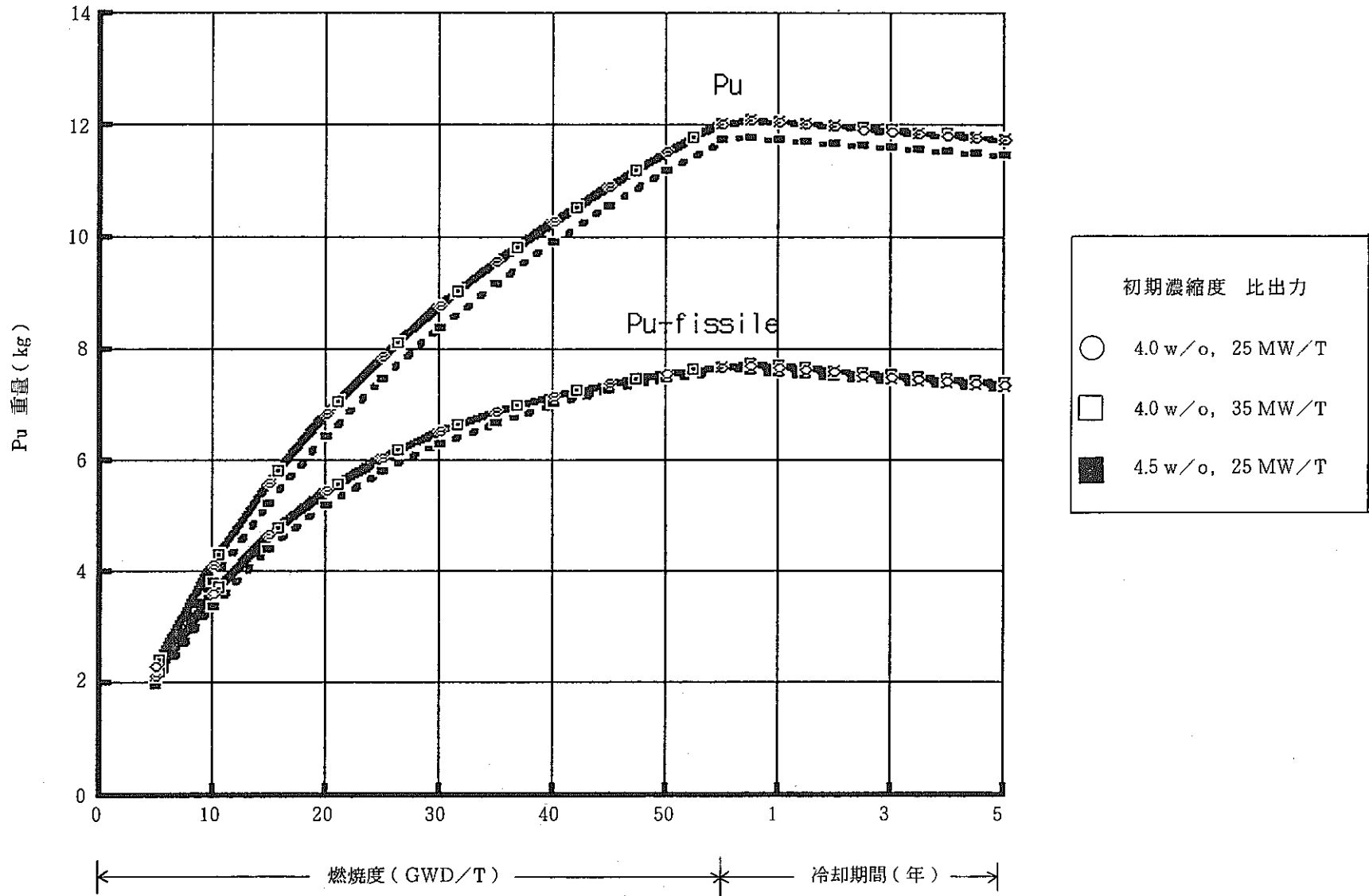


図 3.1 - 1(c) Pu, Pufissile - 燃焼度, 冷却期間

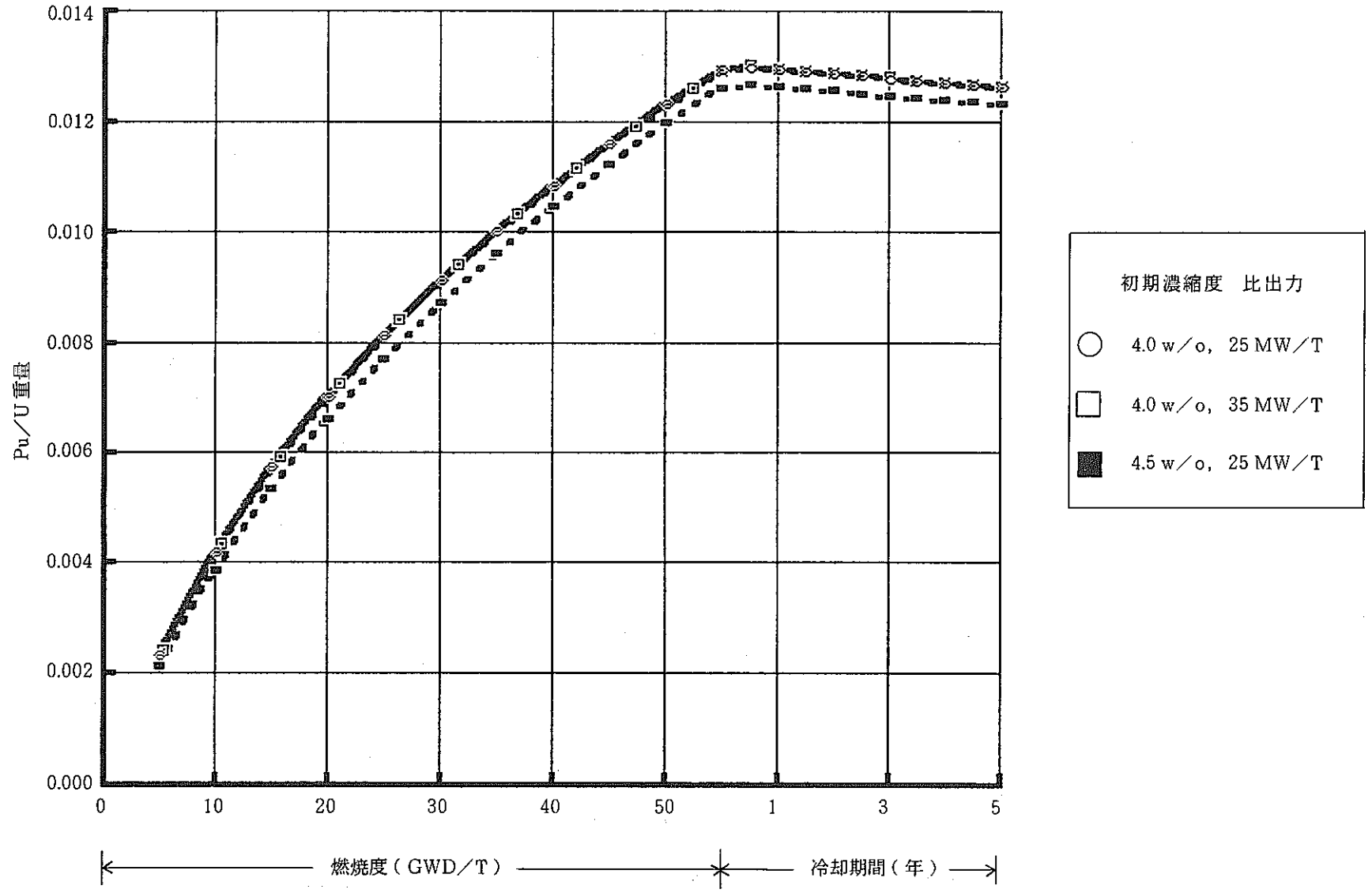


图 3.1 - 2(a) Pu/U - 燃烧度, 冷却期间

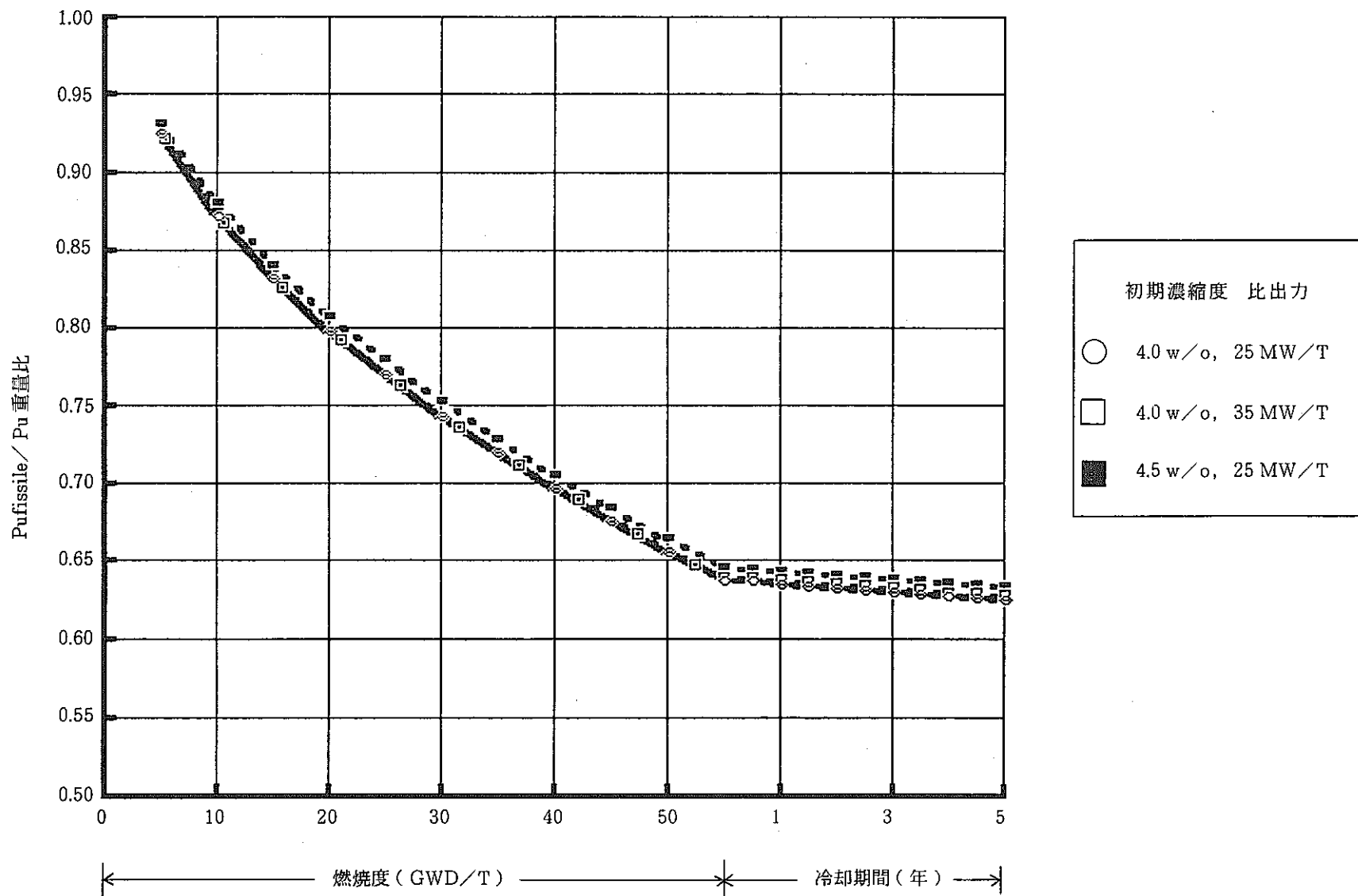


图 3.1 - 2(b) Pufissile/Pu - 燃烧度, 冷却期间

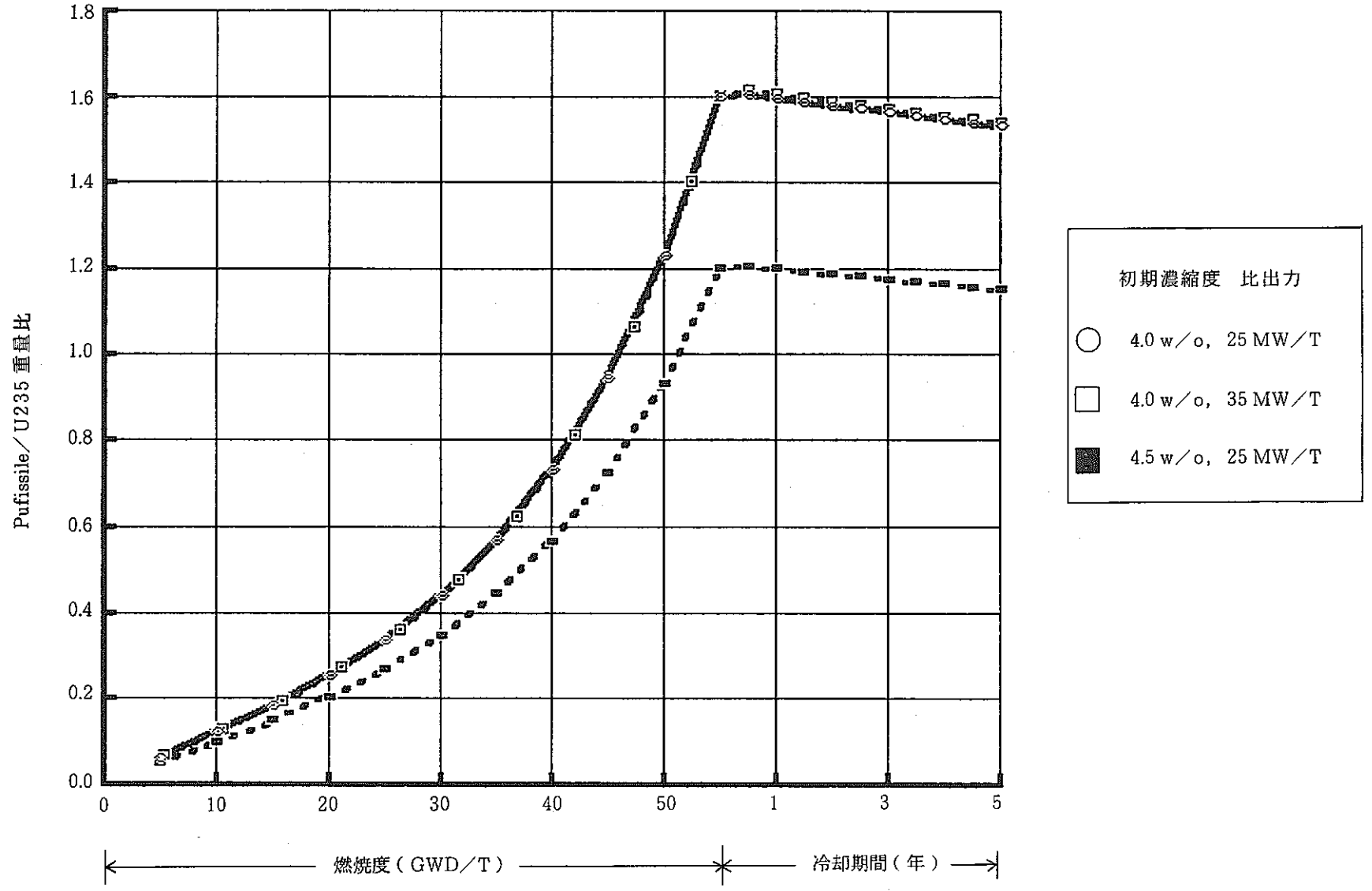


図 3.1 - 2(c) Pufissile/U235 - 燃焼度, 冷却期間

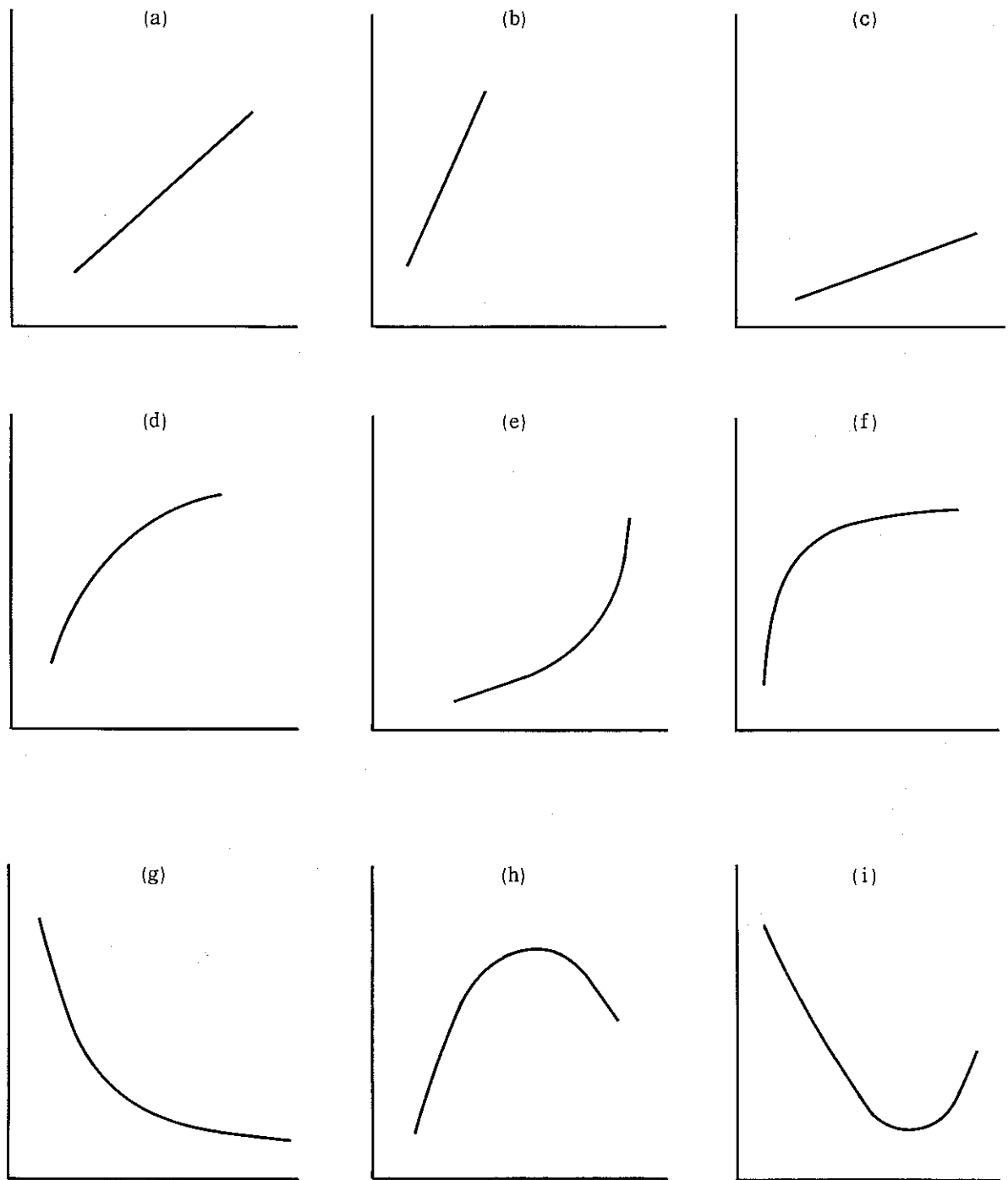


圖 3.1-3 相關關係

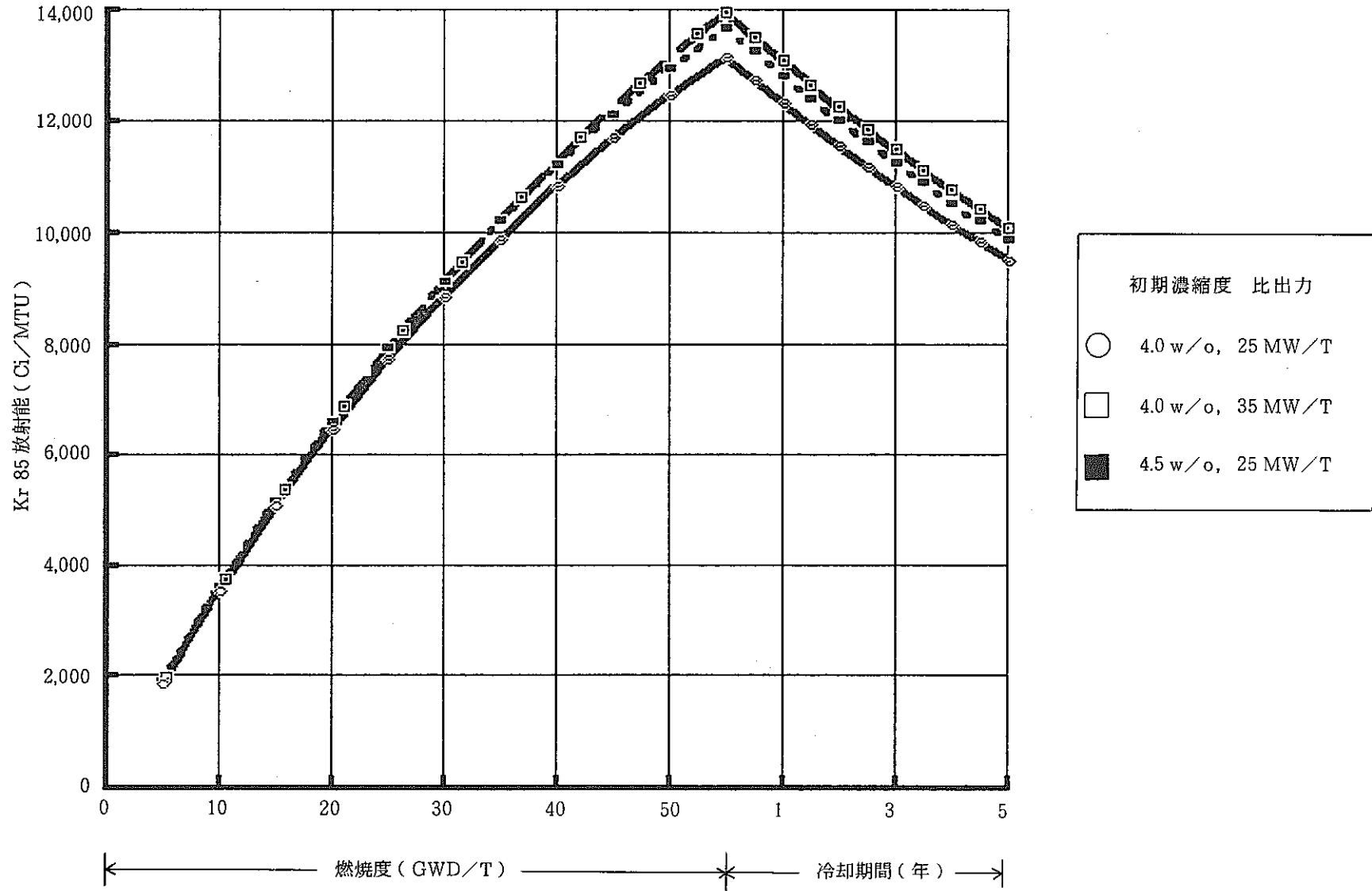


図 3.2 - 1(a) Kr 85 - 燃焼度, 冷却期間

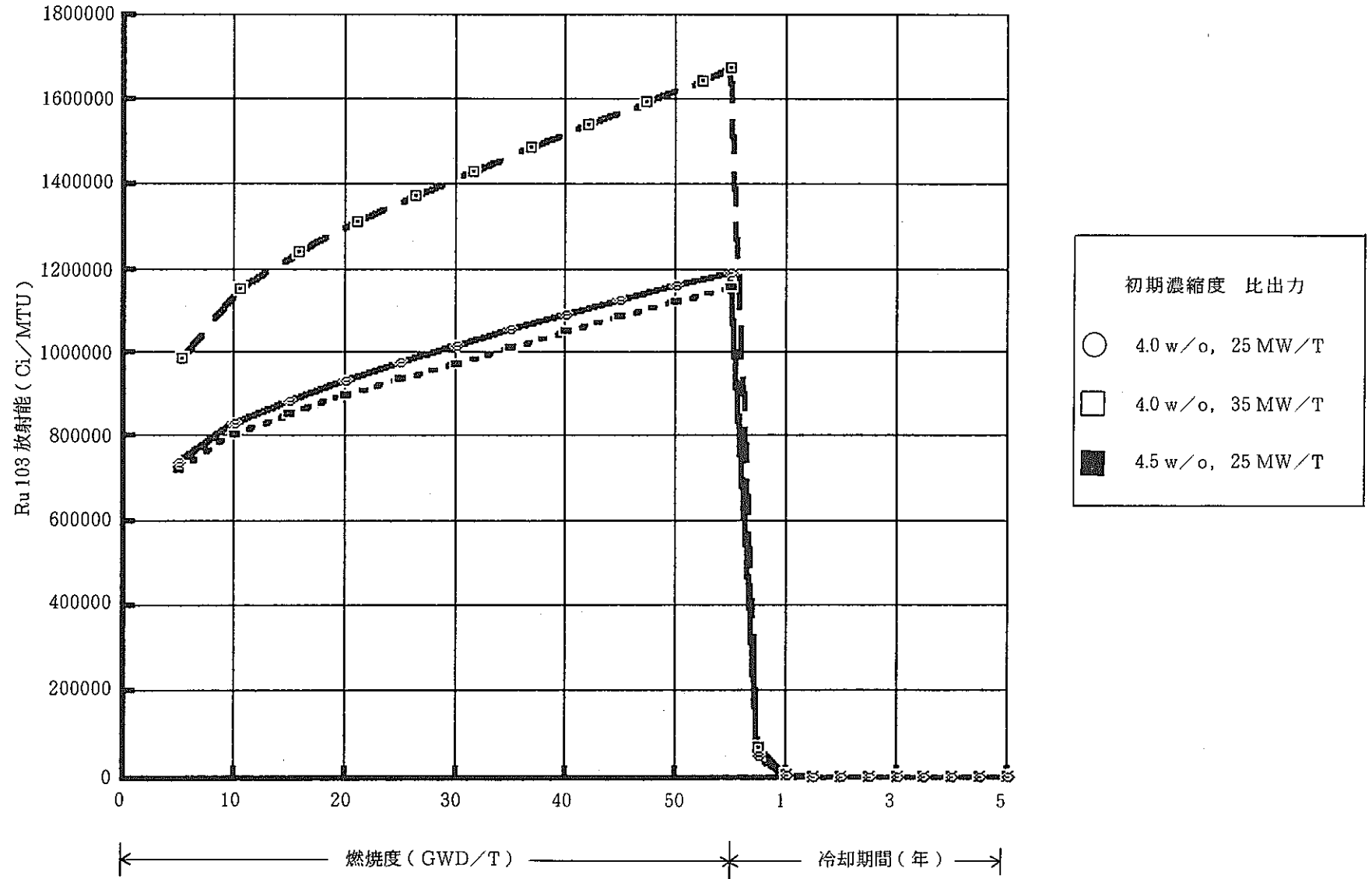


図 3.2 - 1(b) Ru 103 - 燃焼度, 冷却期間

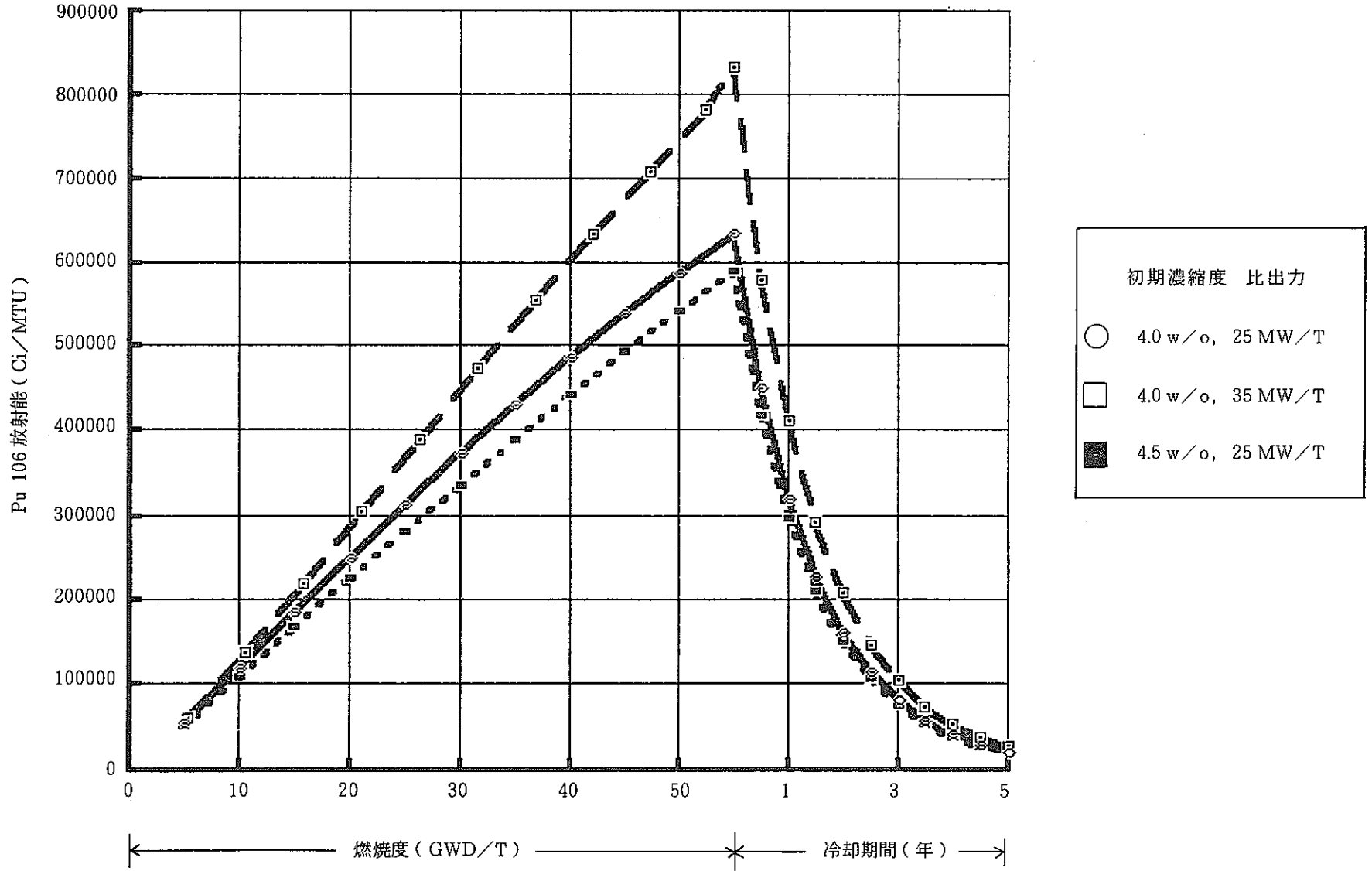


図 3.2 - 1(c) Ru 106 - 燃焼度, 冷却期間

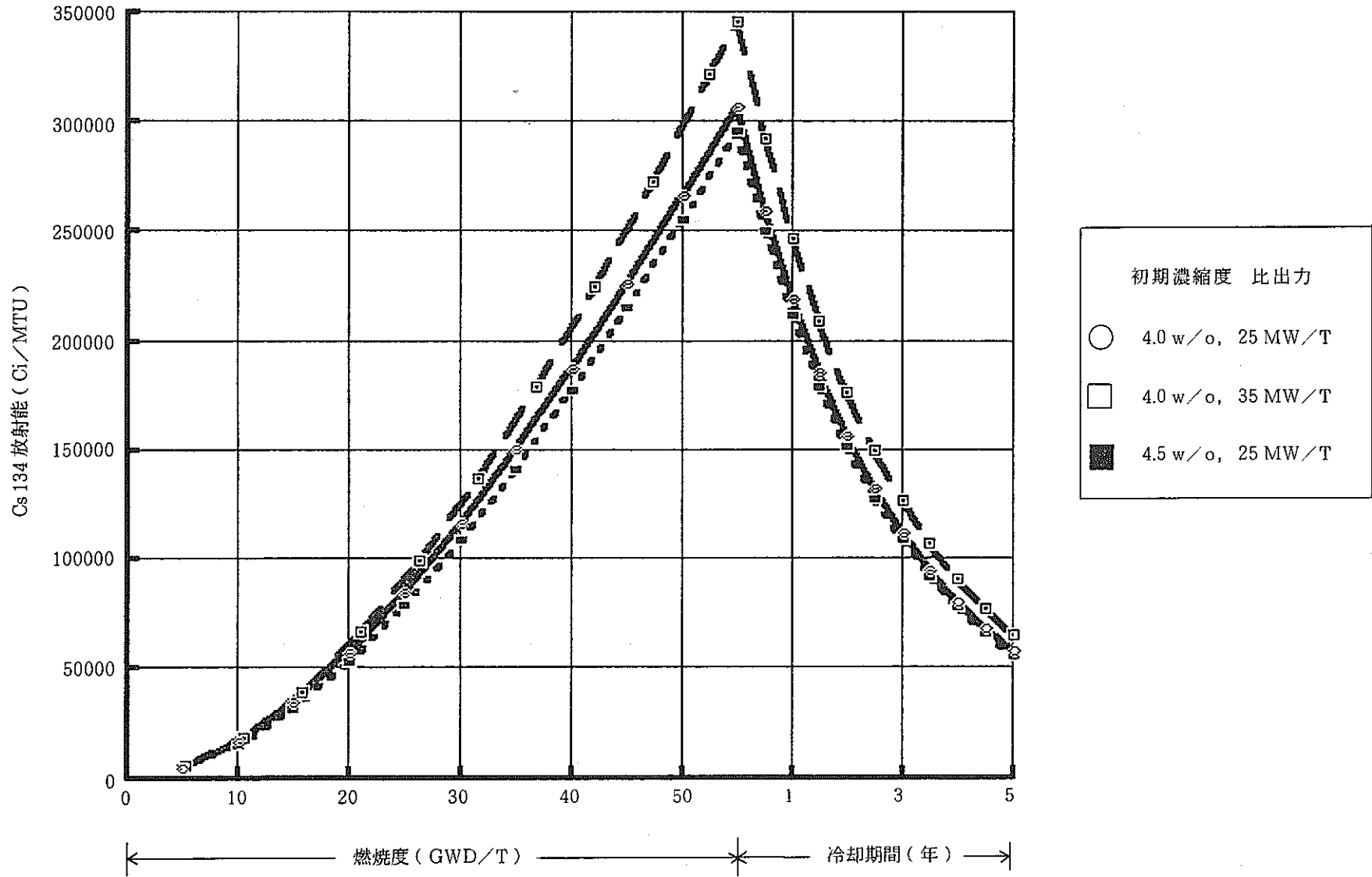


図 3.2 - 1(d) Cs 134 - 燃焼度, 冷却期間

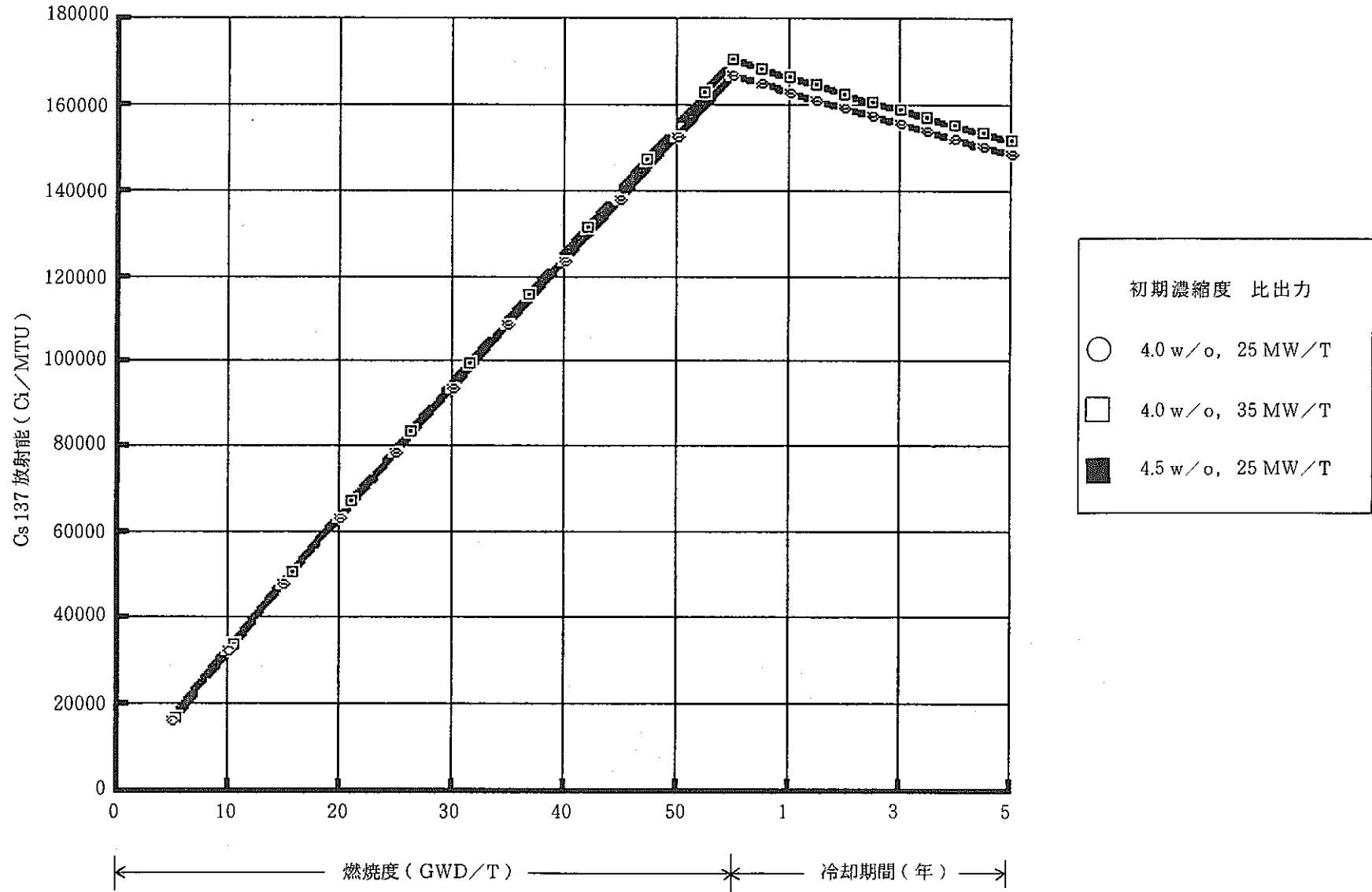


図 3.2 - 1(e) Cs 137 - 燃烧度, 冷却期間

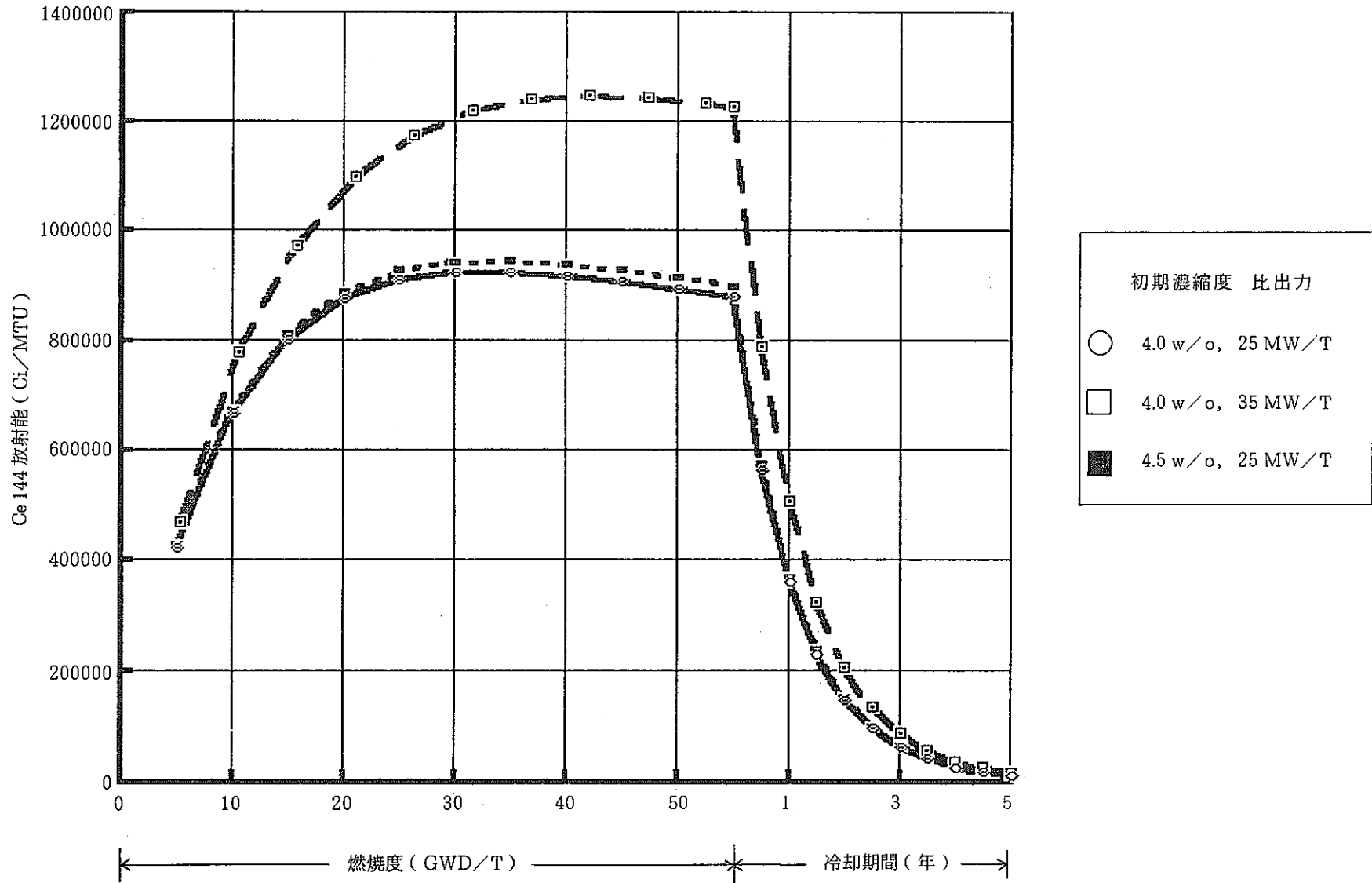


图 3.2 - 1(f) Ce 144 - 燃焼度, 冷却期間

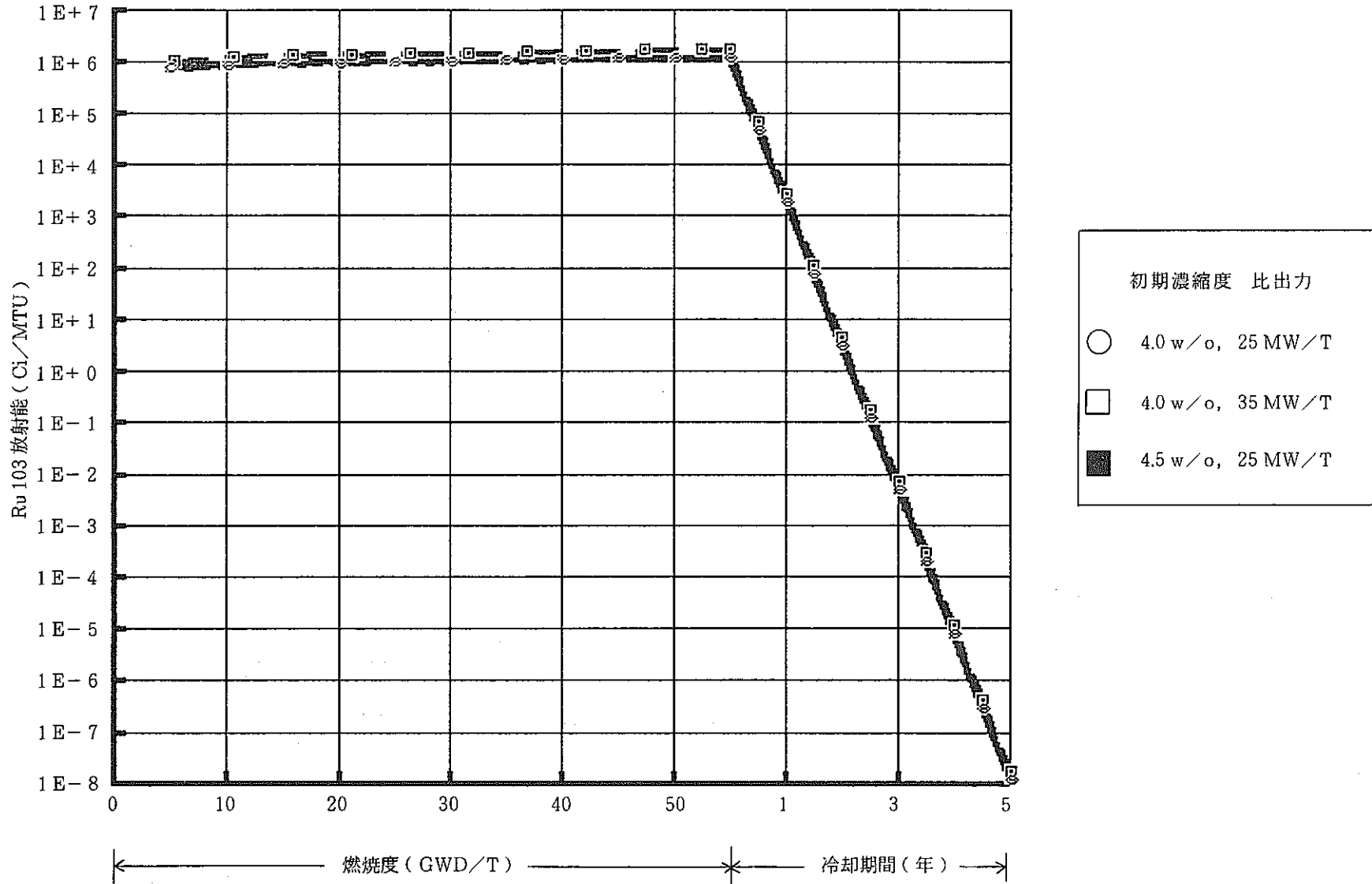


図 3.2 - 2(a) Ru 103 - 燃焼度, 冷却期間

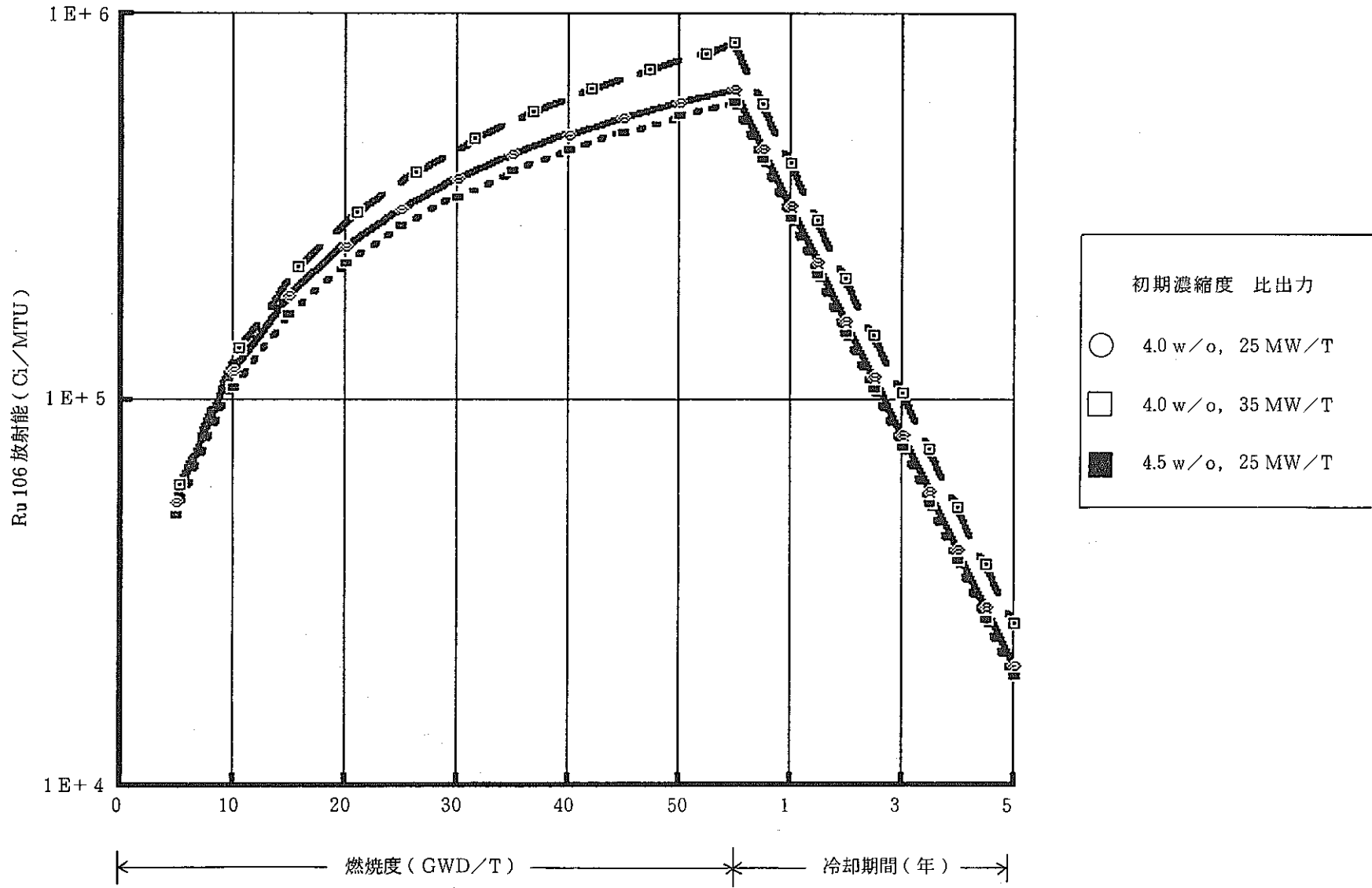


図 3.2 - 2(b) Ru 106 - 燃焼度, 冷却期間

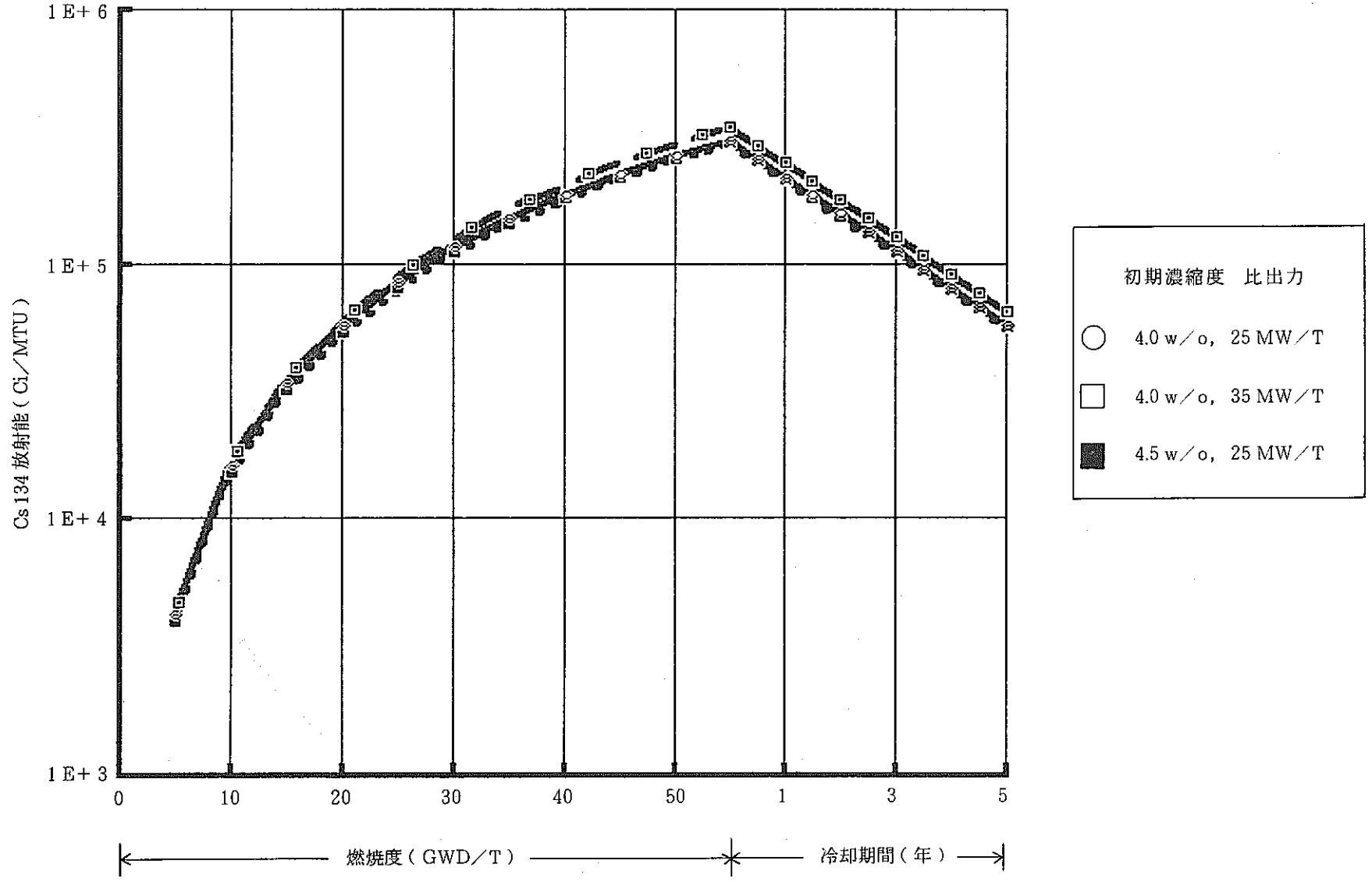


图 3.2 - 2(c) Cs 134 - 燃焼度, 冷却期間

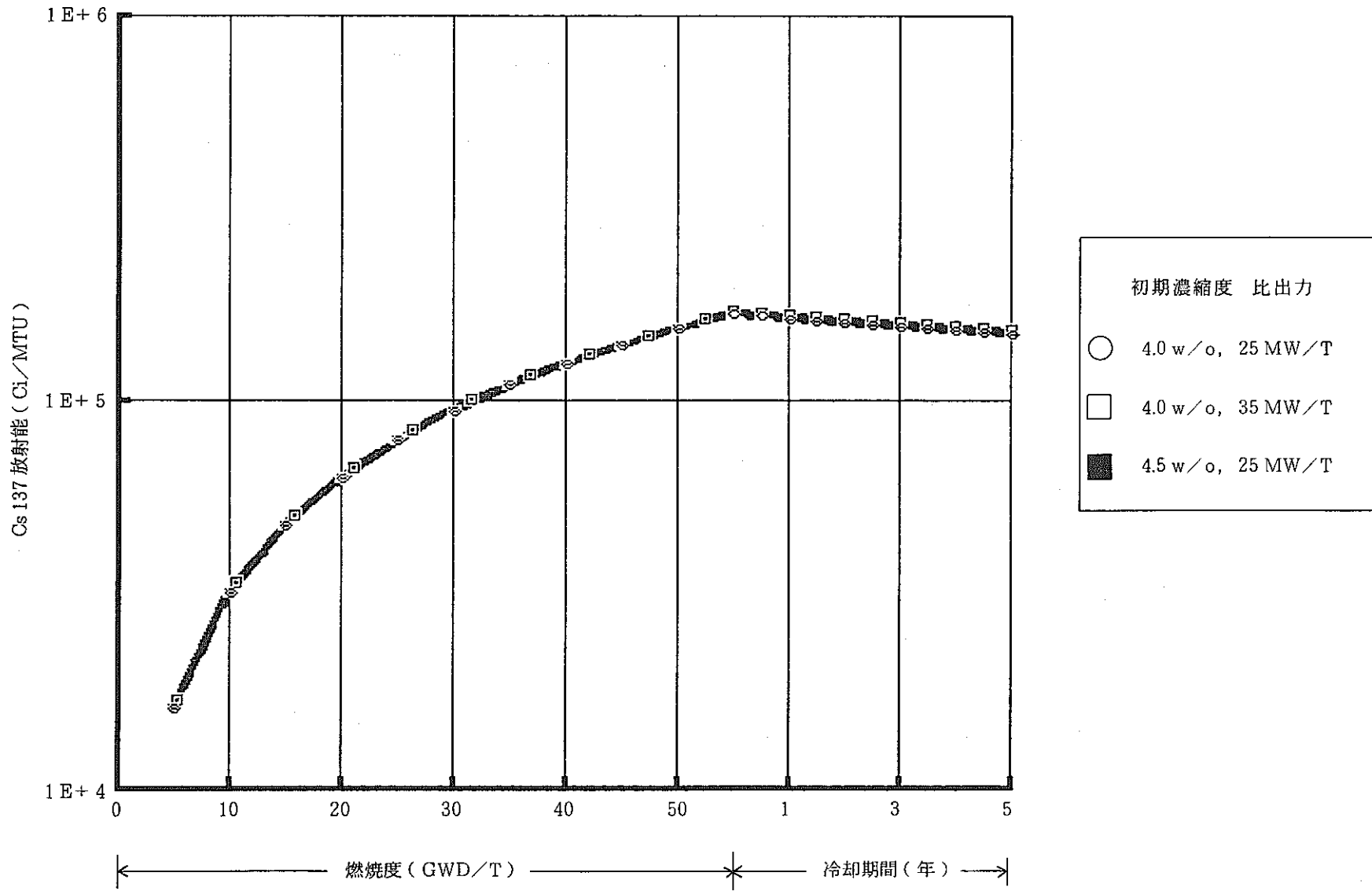


図 3.2 - 2(d) Cs 137 - 燃焼度, 冷却期間

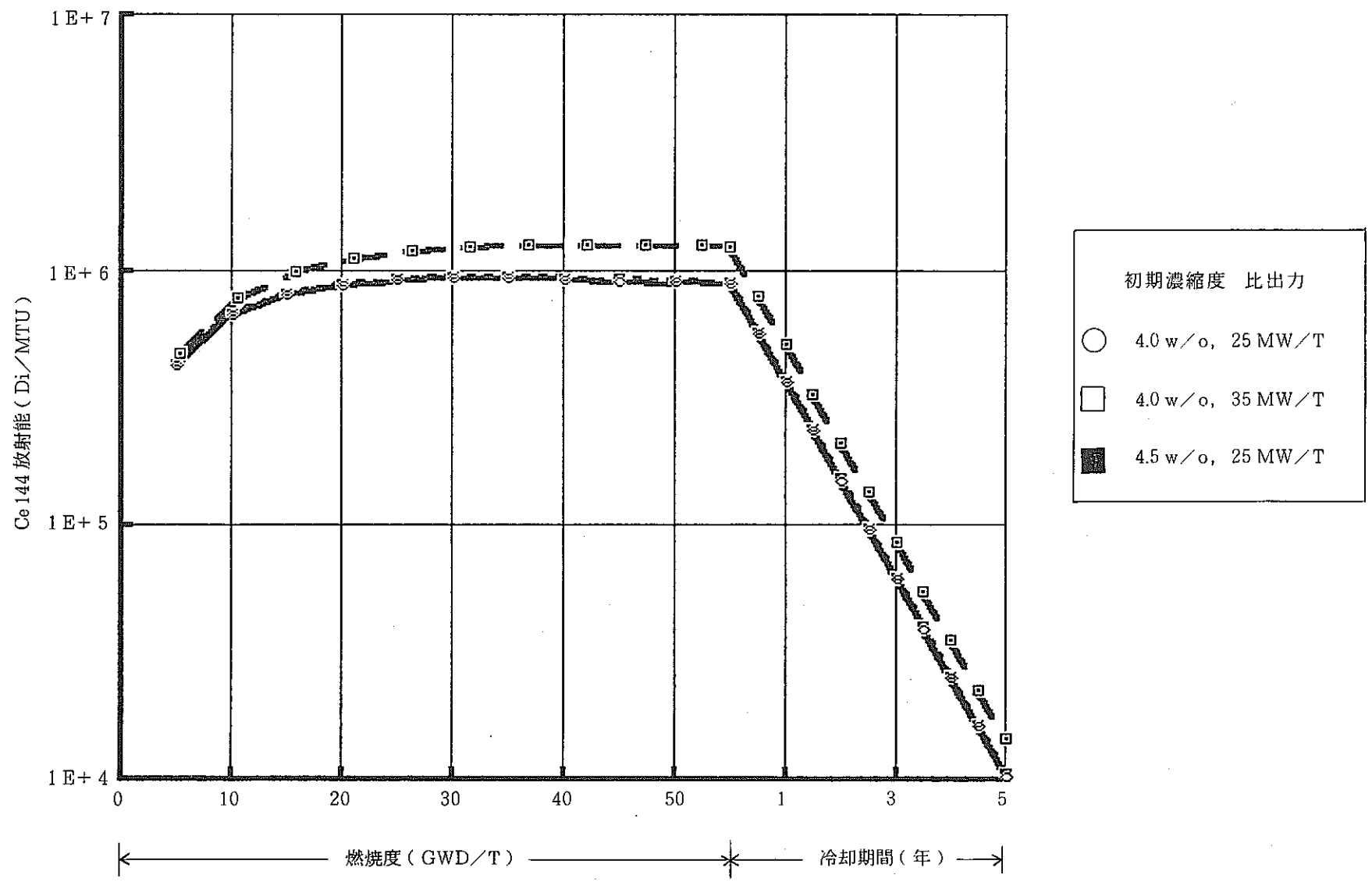


図 3.2 - 2(e) Ce 144 - 燃焼度, 冷却期間

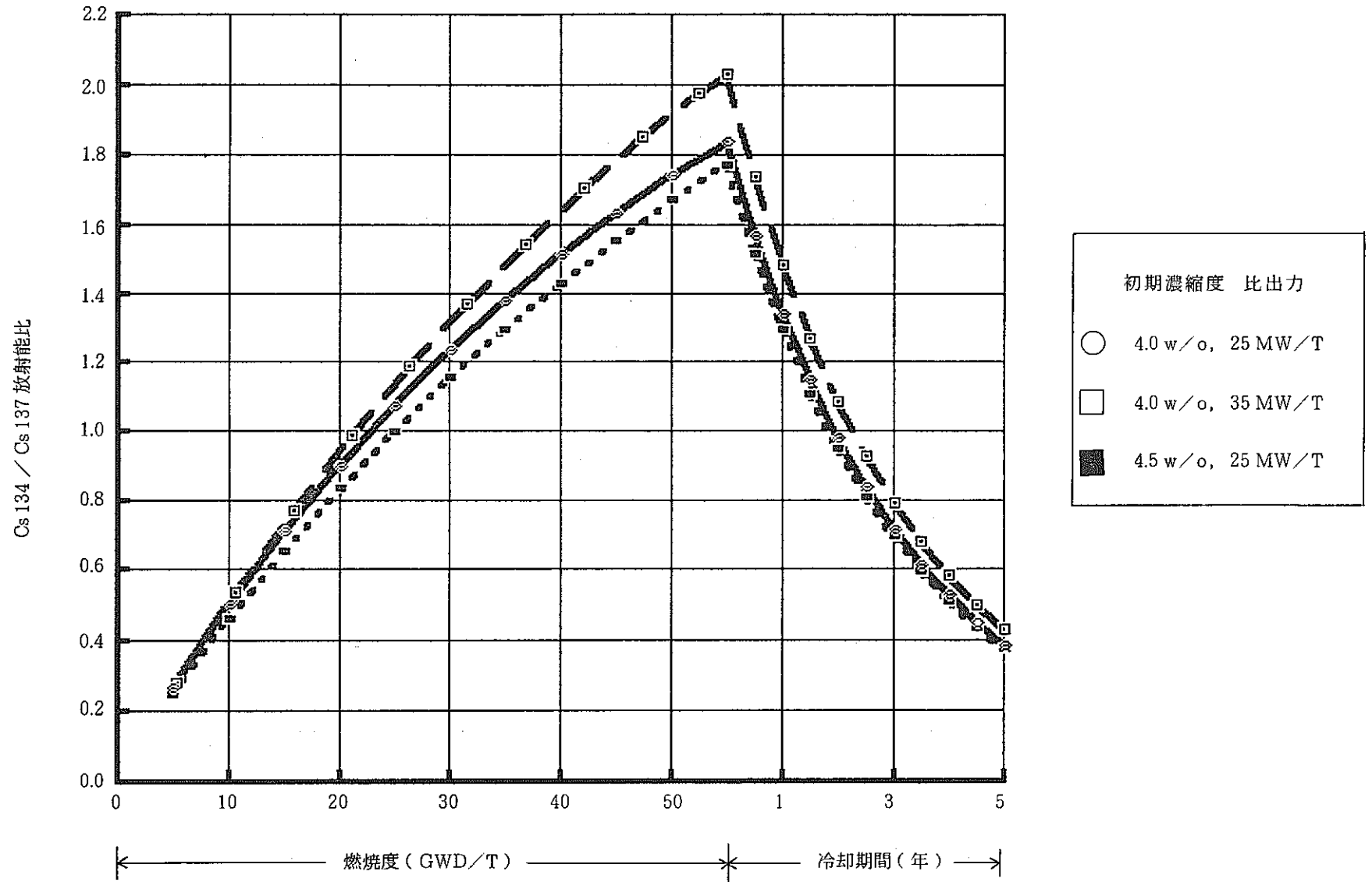


図 3.2 - 3(a) Cs 134 / Cs 137 - 燃焼度, 冷却期間

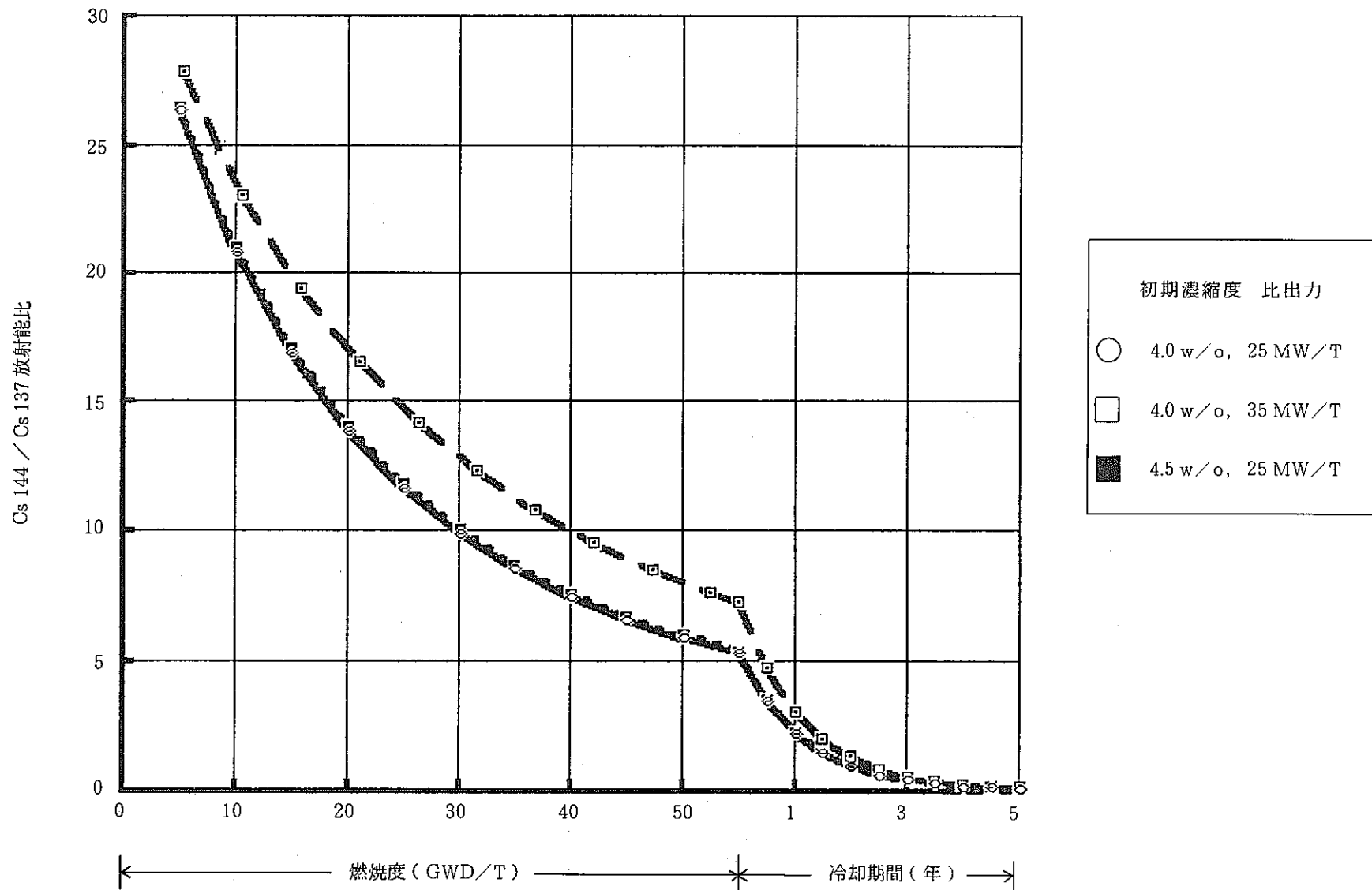


图 3.2 - 3(b) Ce144 / Cs 137 - 燃烧度, 冷却期间

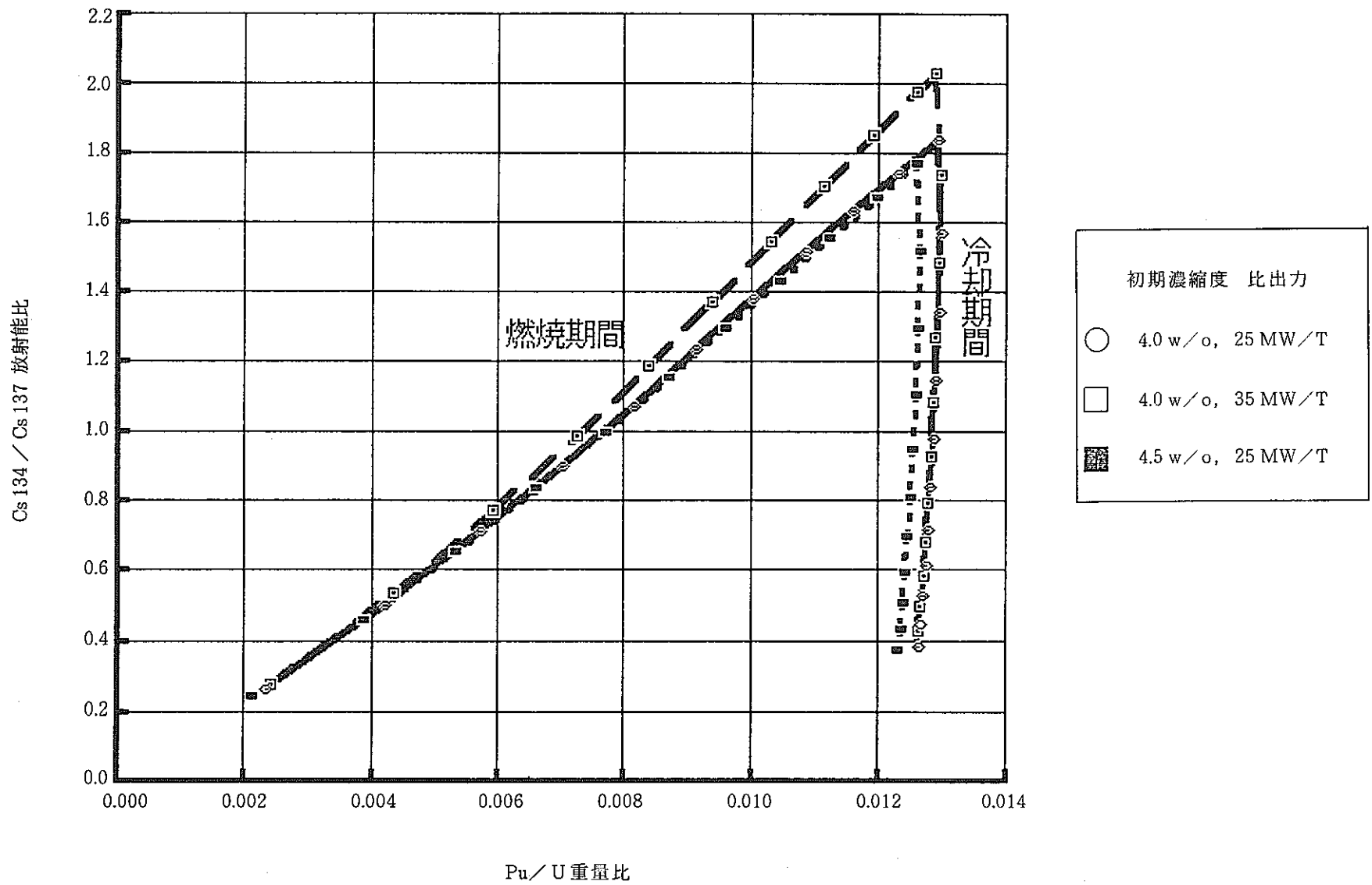


図 3.2 - 4 $Pu/U - Cs\ 134 / Cs\ 137$

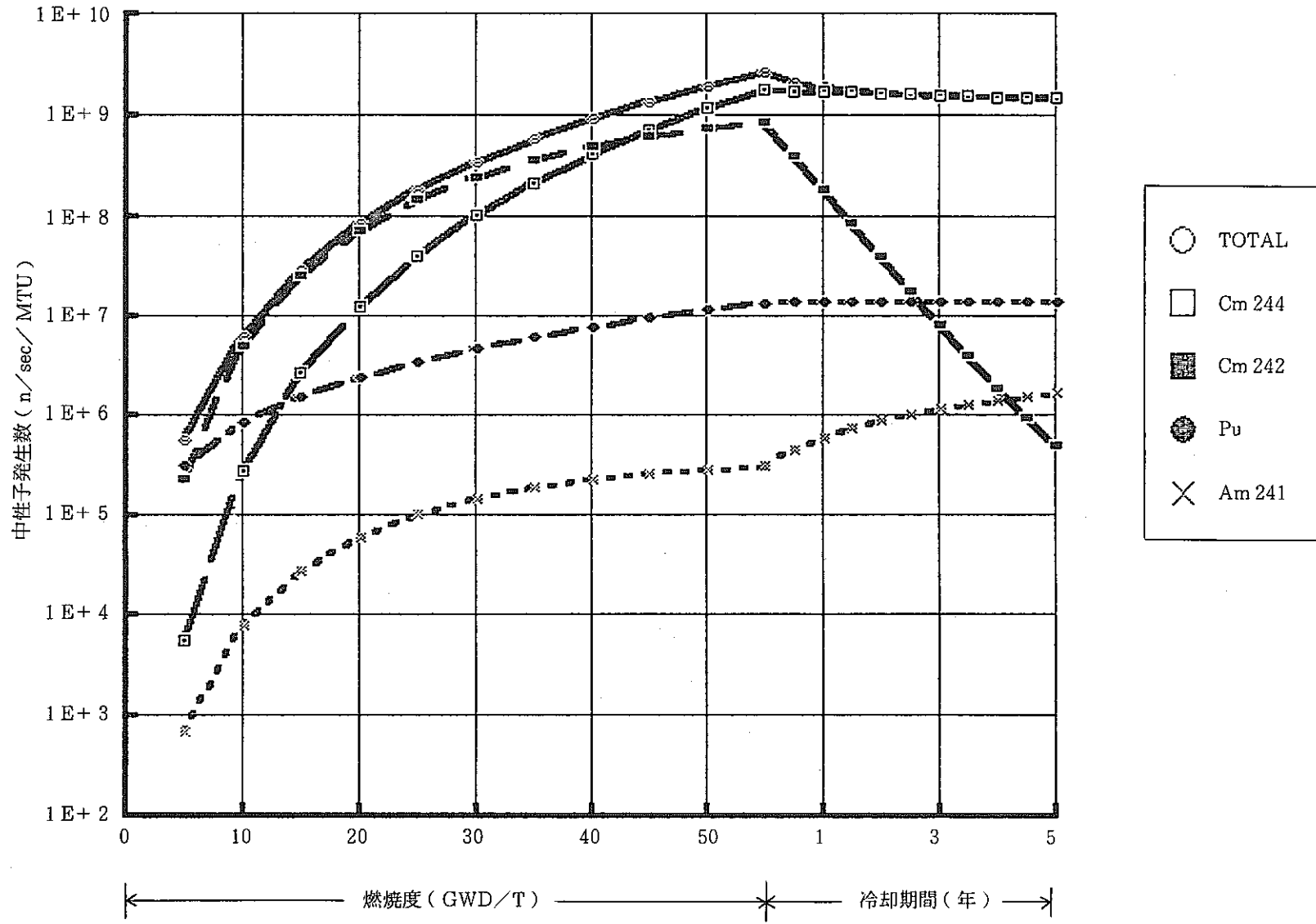


図 3.2 - 5(a) 中性子発生数-燃焼度, 冷却期間 (初期濃縮度 4.0 W/0, 比出力 25 MW/T)

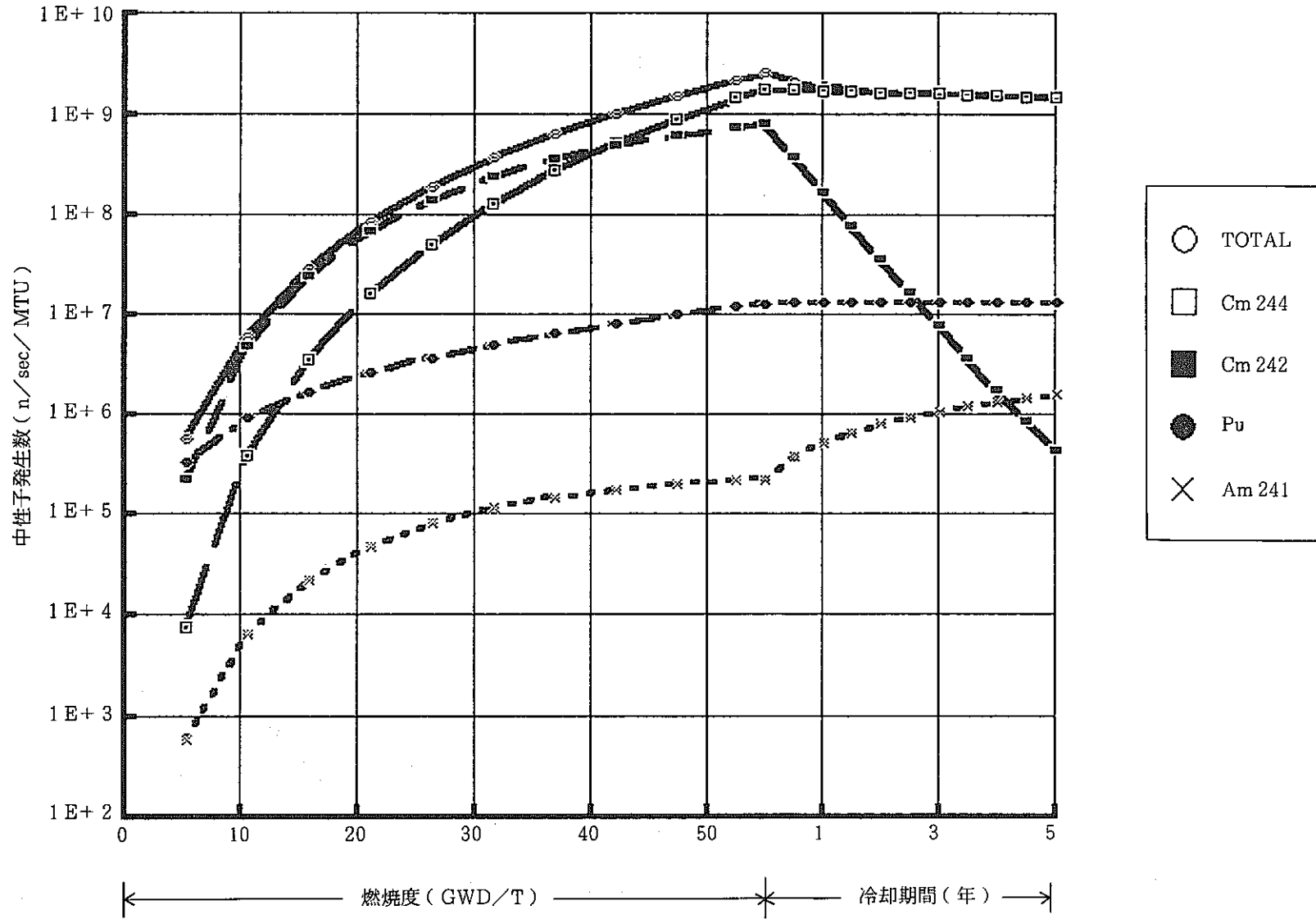


図 3.2 - 5(b) 中性子発生数-燃焼度, 冷却期間 (初期濃縮度 4.0 w/o, 比出力 35 MW/T)

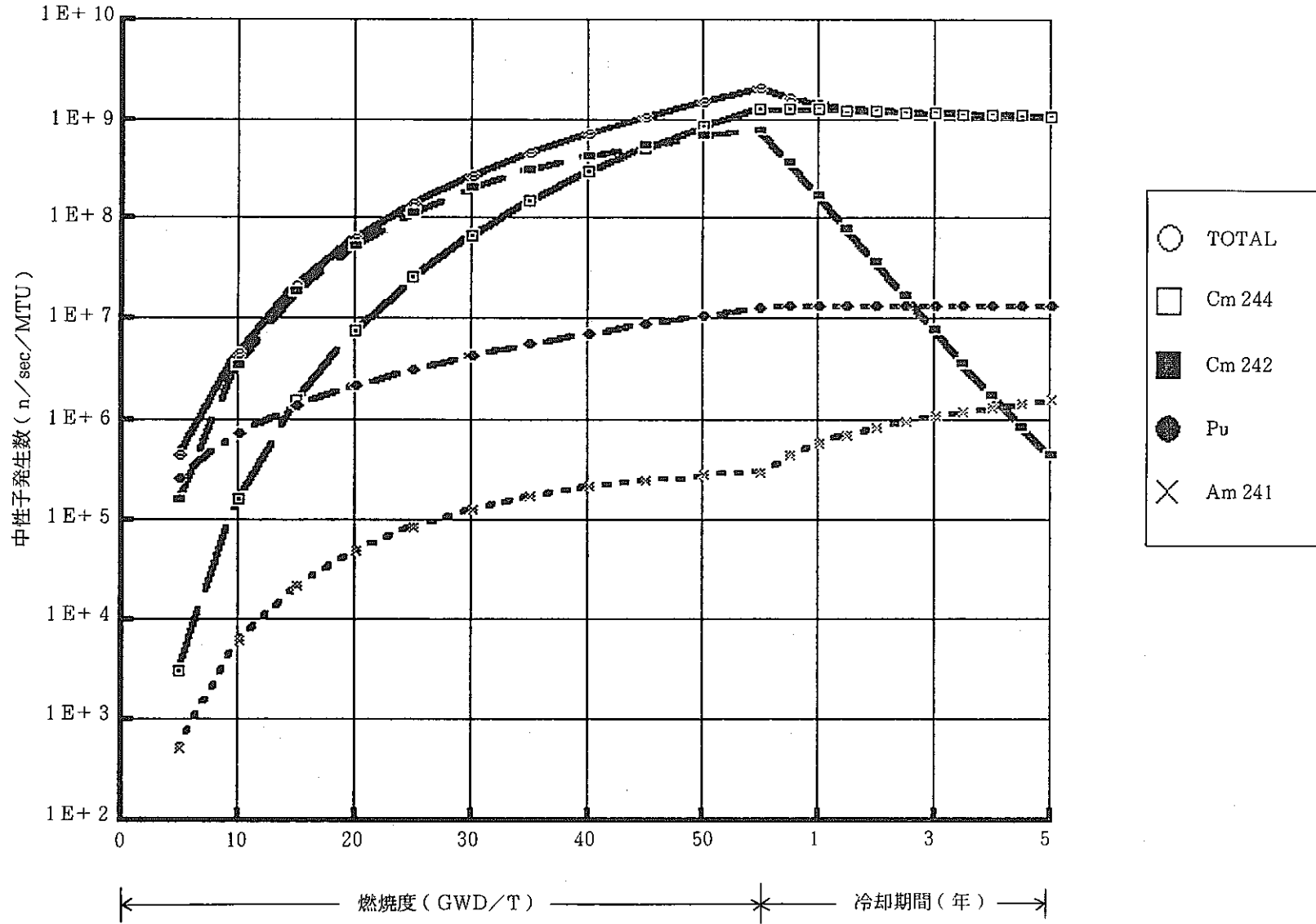


図 3.2 - 5(c) 中性子発生数 - 燃焼度, 冷却期間 (初期濃縮度 4.5 w/o, 比出力 25 MW/T)

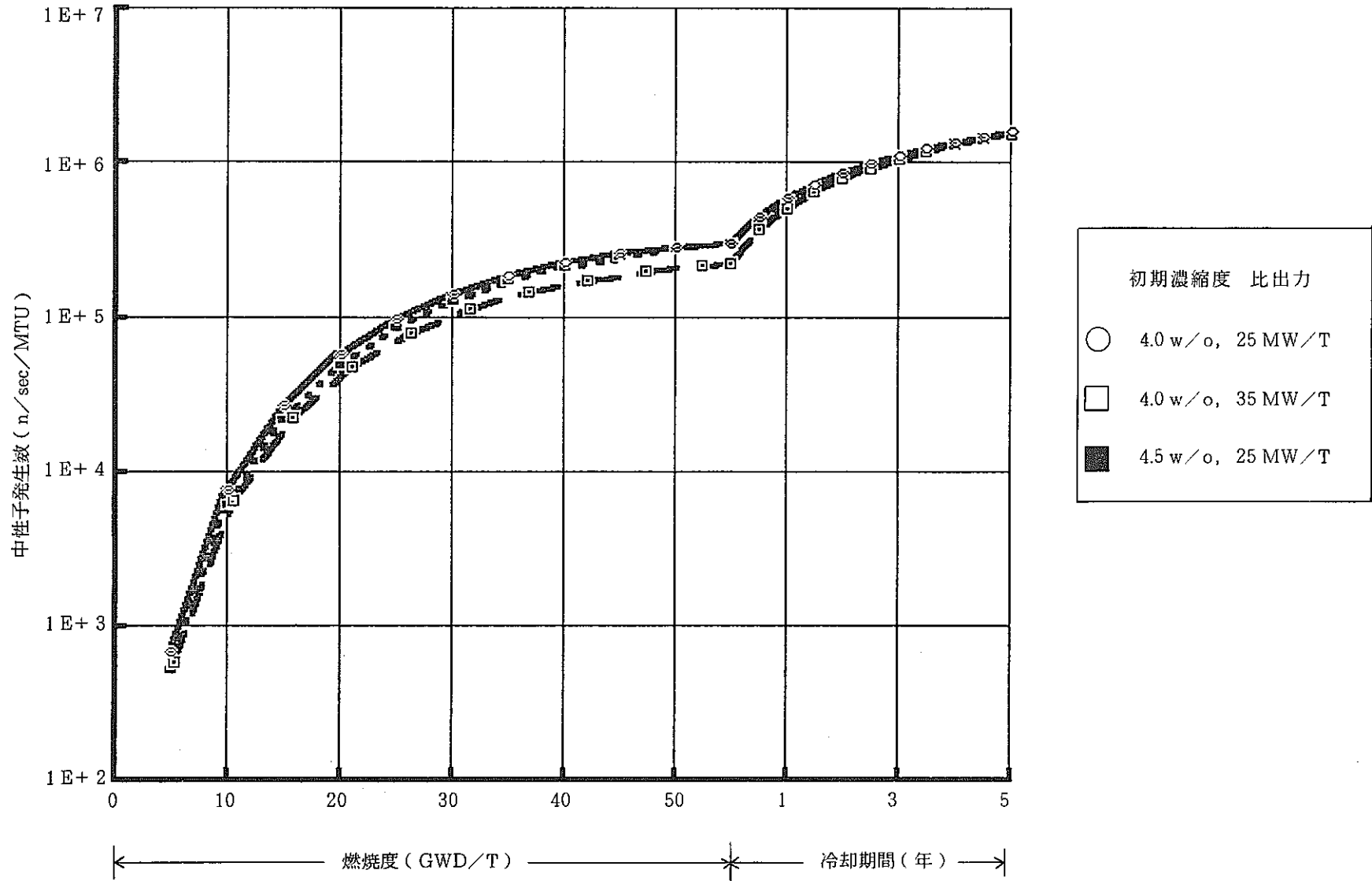


図 3.2 - 6(a) Am 241 による中性子発生数 - 燃焼度, 冷却期間

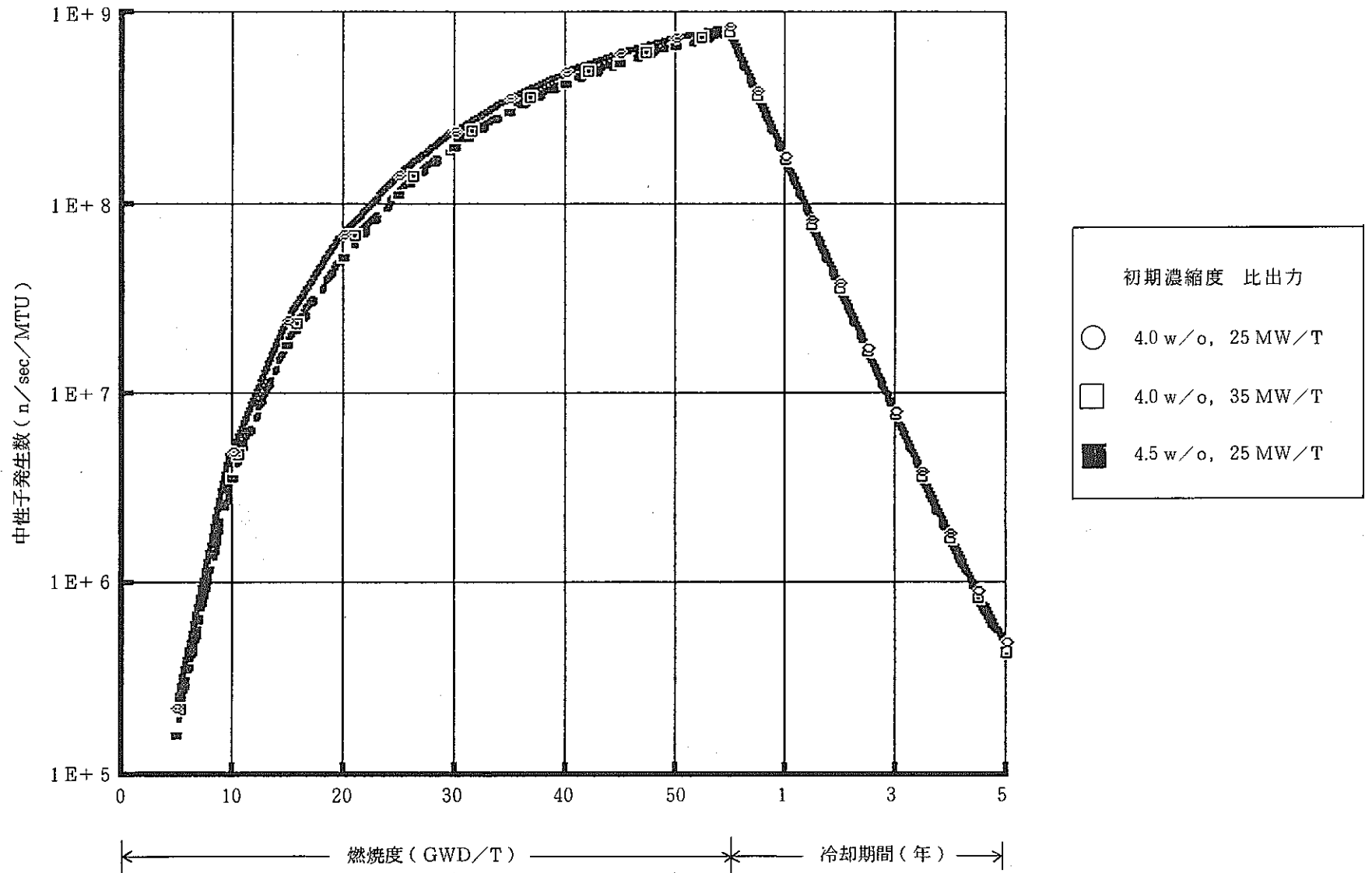


図 3.2 - 6(b) Cm 242 による中性子発生数 - 燃焼度, 冷却期間

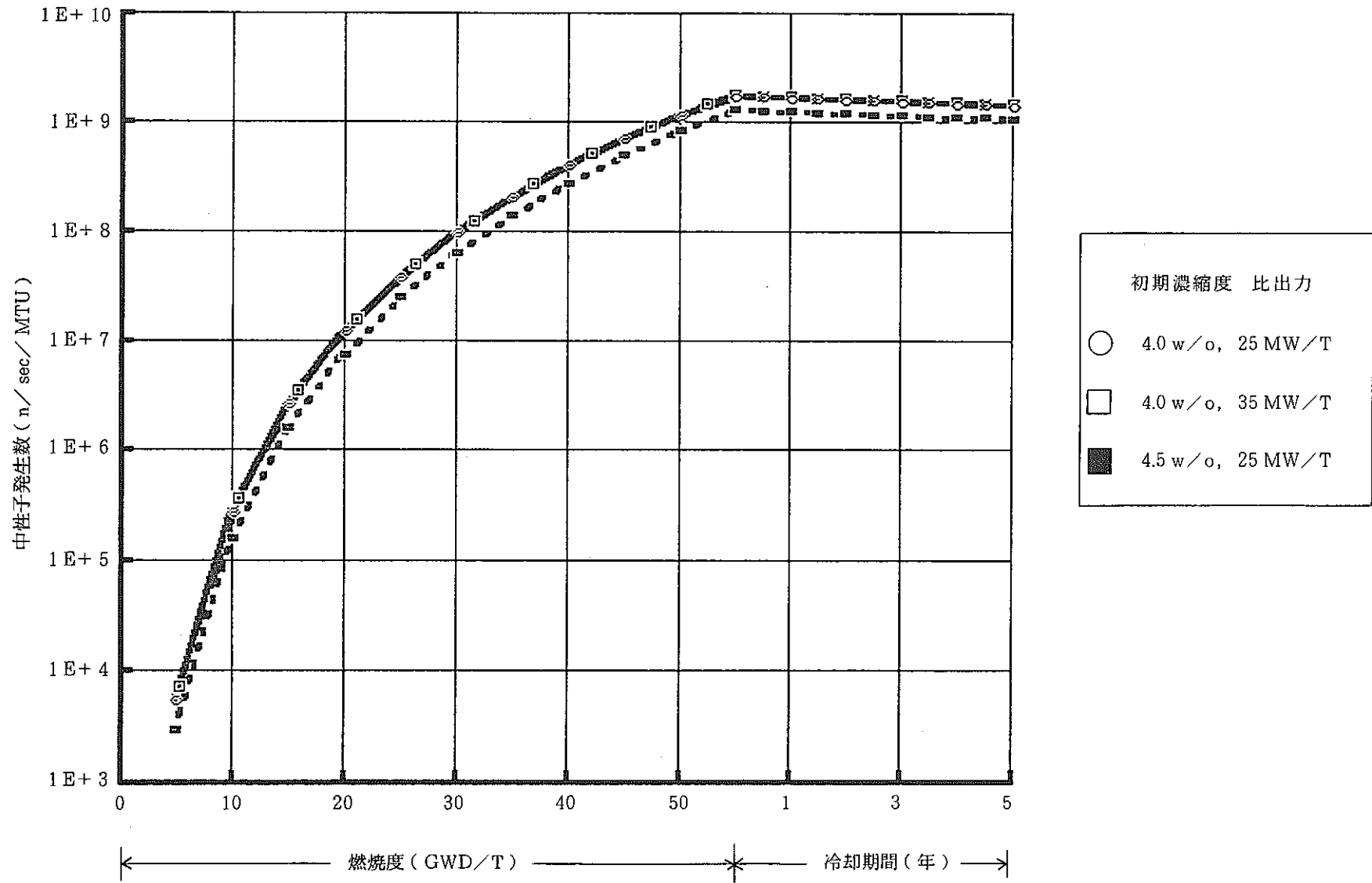


図 3.2 - 6(c) Cm 244 による中性子発生数 - 燃焼度, 冷却期間

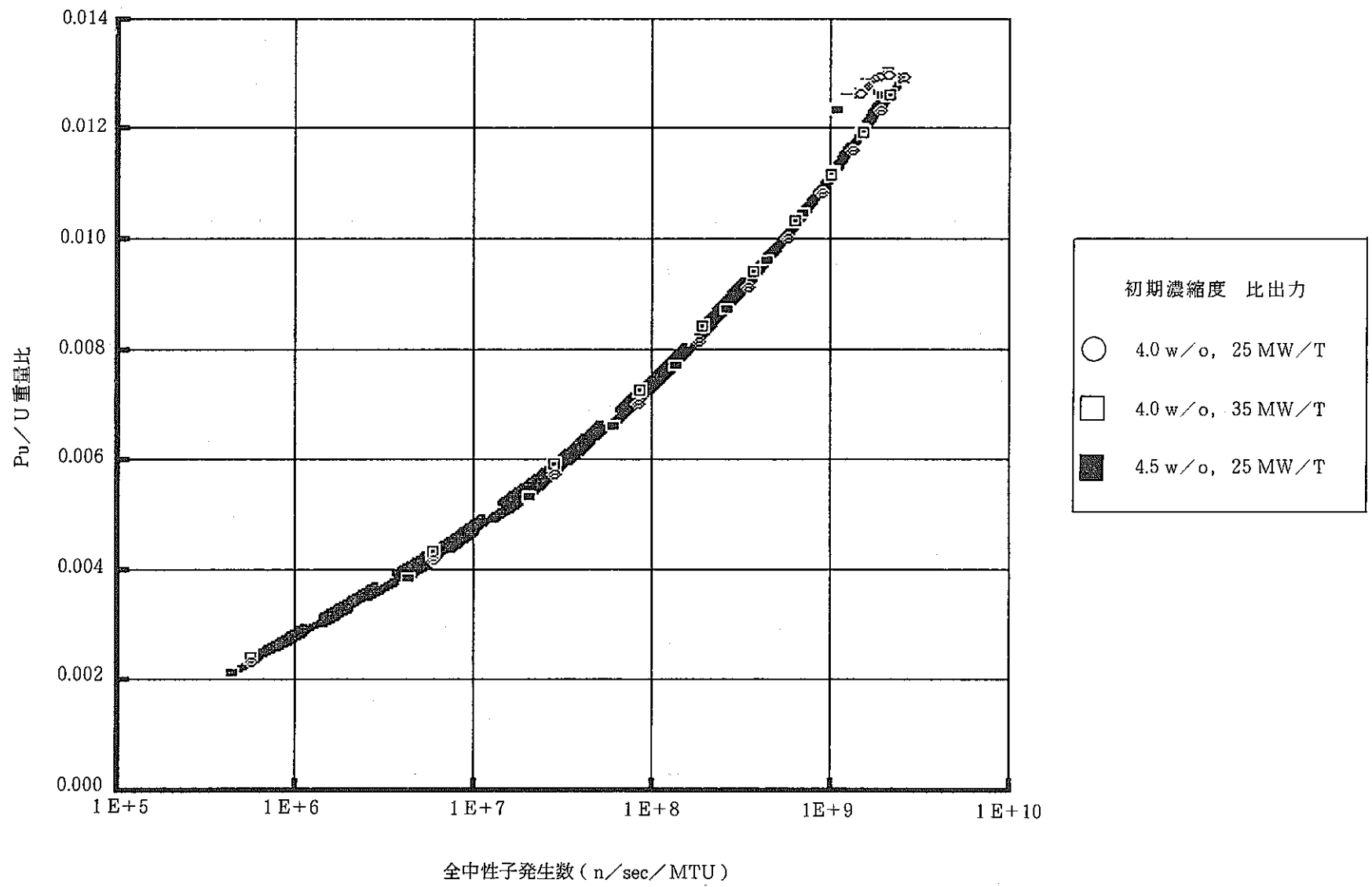


图 3.2 - 7(a) Pu/U-全中性子発生数

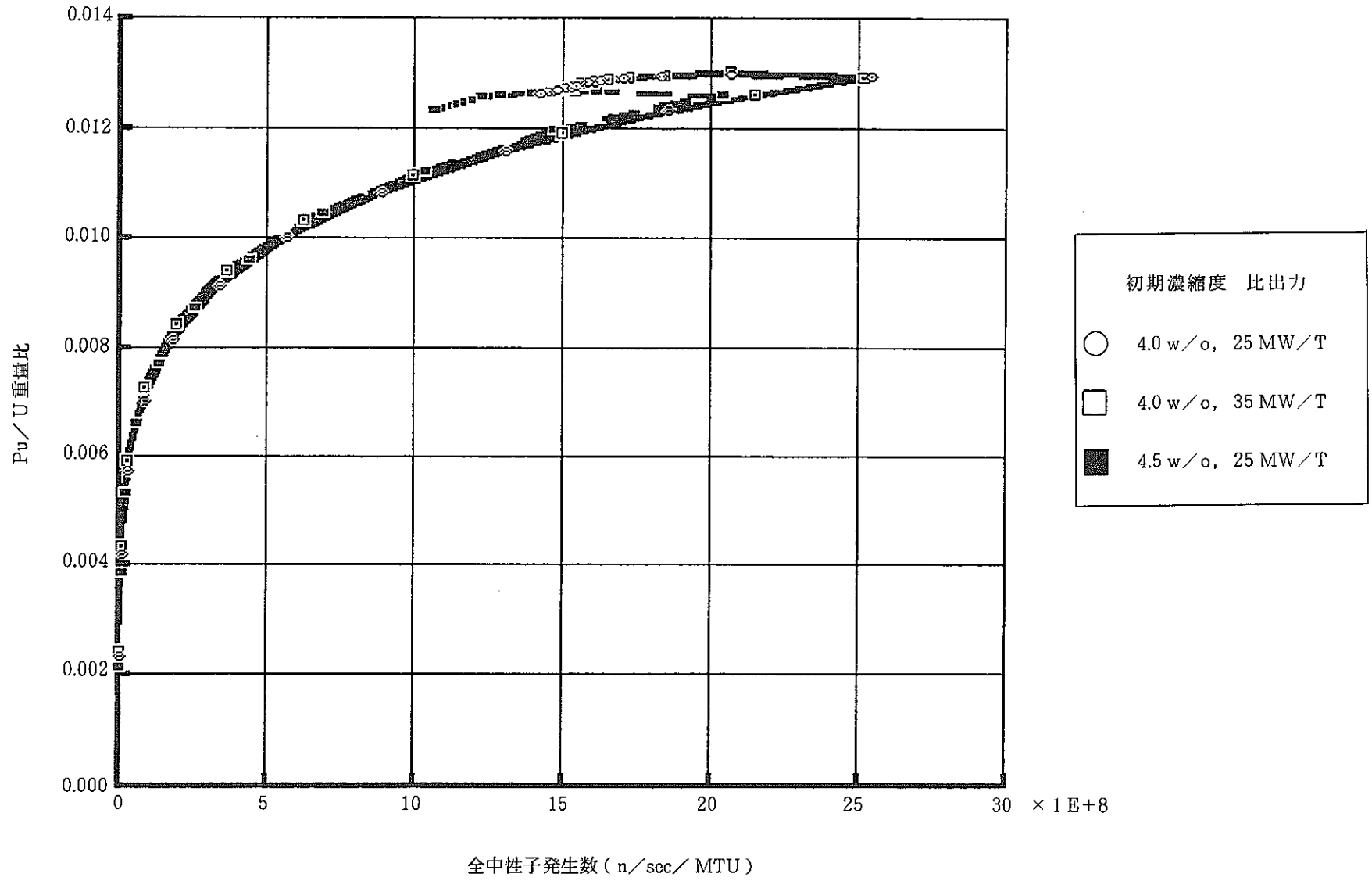
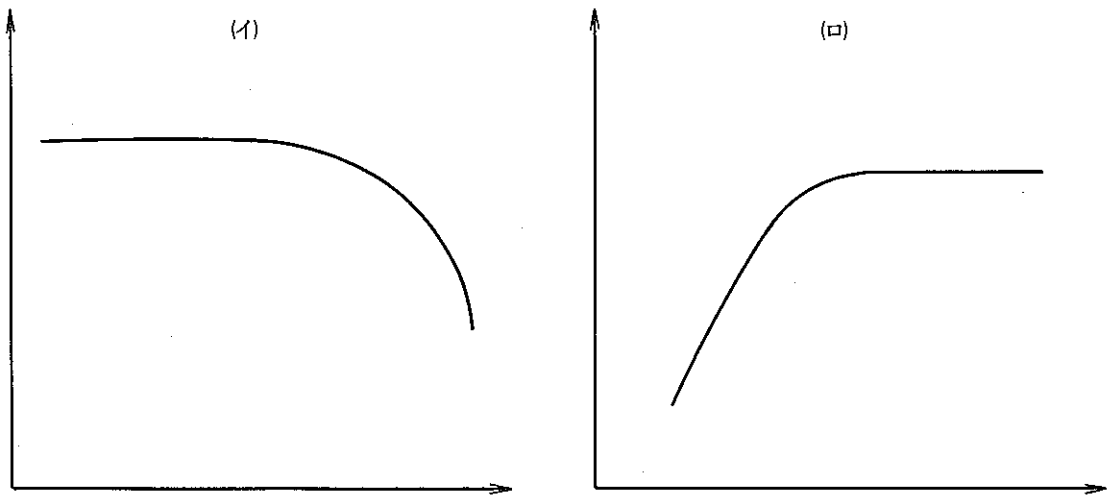


图 3.2 - 7(b) Pu/U-全中性子発生数



☒ 3.3 - 1

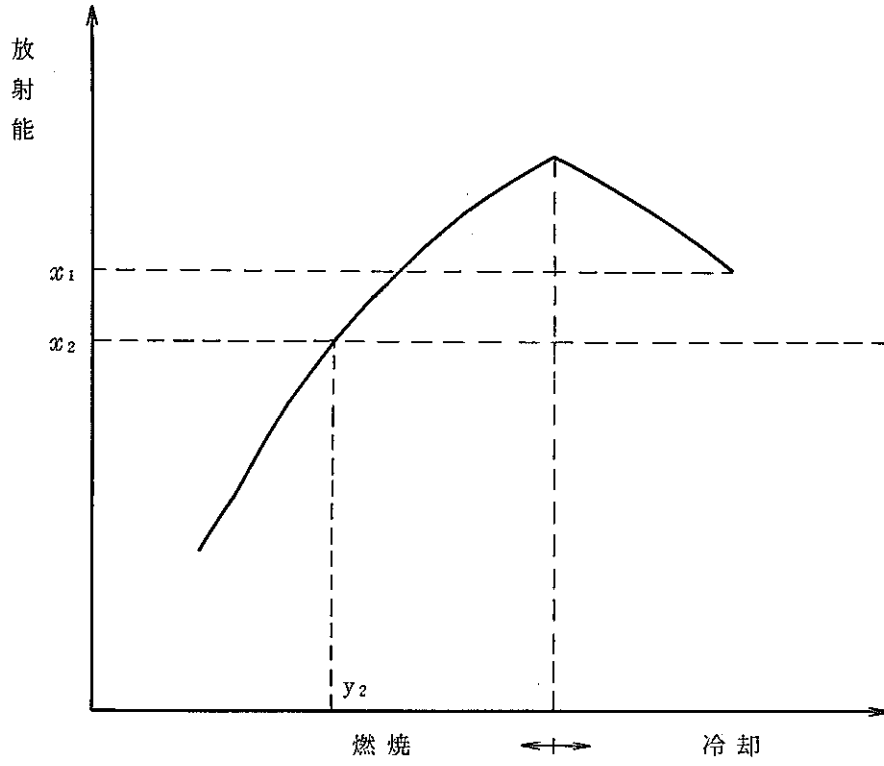


图 3.3 - 2

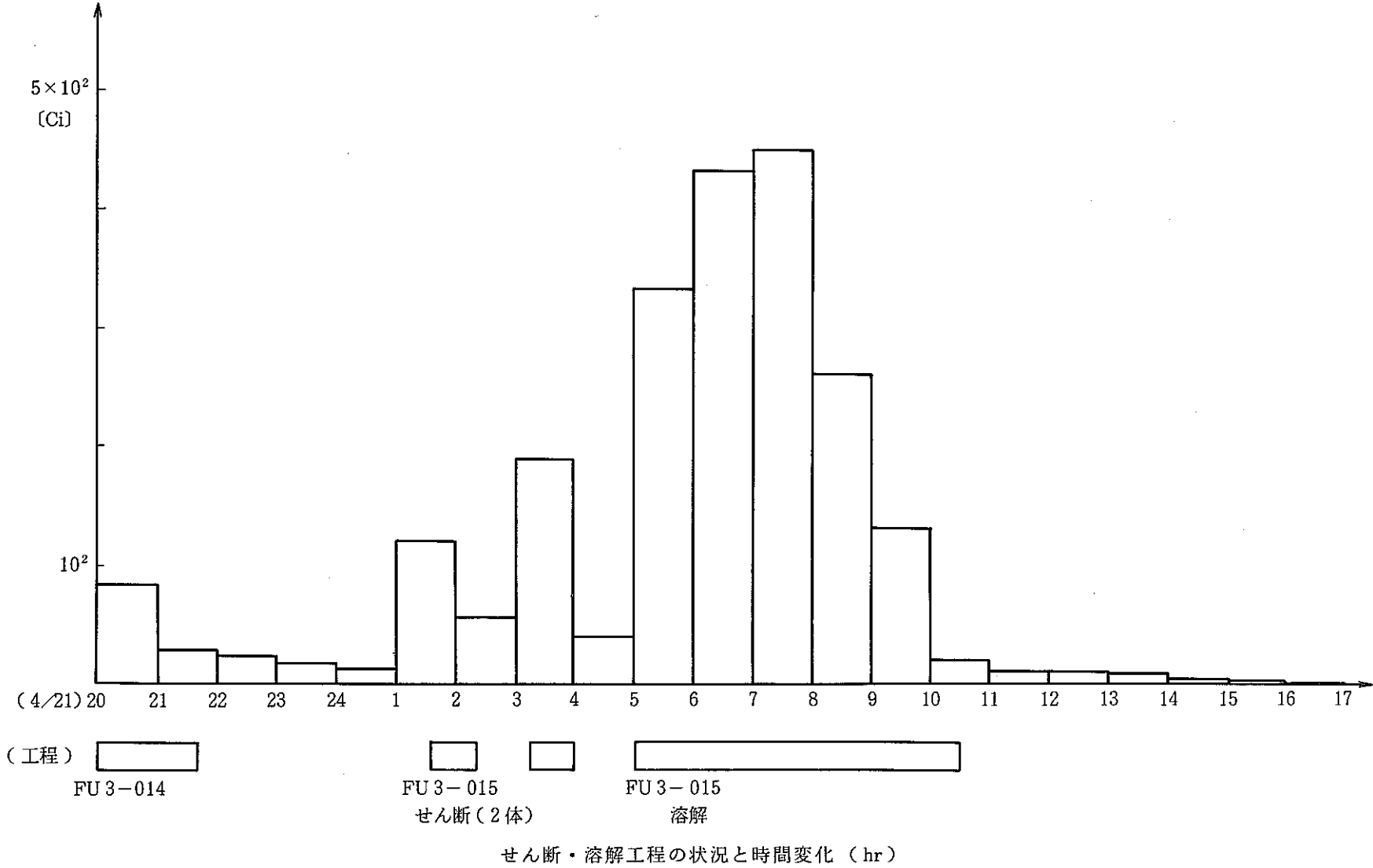


図 4.2-1 主排気筒における Kr-85 放出放射能の経時変化の例