

JAERI-Tech

95-038



NUCEF 燃料調製設備における
ウラン燃料溶解

1995年7月

梅田 幹・阿見則男*・杉川 進・井沢直樹

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1995

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 日立高速印刷株式会社

NUCEF 燃料調製設備におけるウラン燃料溶解

日本原子力研究所東海研究所 NUCEF 試験室

梅田 幹・阿見 則男*・杉川 進・井沢 直樹

(1995年6月12日受理)

NUCEFに設置されている臨界実験装置 (STACY, TRACY) での臨界実験に向けて、燃料調製設備では1.5%濃縮ウラン酸化物ペレットと12%濃縮ウラン酸化物ペレットを混合、溶解し、10%濃縮ウランの硝酸溶液燃料150kgUを調製した。

本報では、溶解運転に先立ちペレット単位のビーカー規模で行った溶解基礎試験、これを基に実機のU溶解槽での最適条件を見つけるために行った溶解特性試験の結果及びその後の10%濃縮ウラン溶液燃料150kgUを調製する溶解運転の結果とそこから得られた知見等についてまとめた。溶解基礎試験及び溶解特性試験の結果より、今回使用したU溶解槽での最適運転条件としては硝酸濃度7M、温度80度、運転時間8時間と選定した。これらの条件下でのその後の溶解運転は順調に行われ、150kgUの溶液燃料を調製することができた。

Dissolution of Uranium with the Fuel Treatment System of NUCEF

Miki UMEDA, Norio AMI*, Susumu SUGIKAWA
and Naoki IZAWA

Department of NUCEF Project
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received June 12, 1995)

We prepared 150 kgU of 10%²³⁵U uranium solution for the critical assemblies(STACY, TRACY) by dissolution of mixture 1.5%²³⁵U uranium dioxide pellets and 12%²³⁵U uranium dioxide pellets with the fuel treatment system of NUCEF.

In order to find optimum operation conditions for dissolution, we carried out preliminary experiment using each one pellet and characteristic experiment using dissolver. In this report, results of these experiments and operation were described. As a result of these experiments, we obtained following operation conditions; initial nitric acid 7M, temperature 80°C, operation time 8h. Under these conditions, we dissolved UO₂ of over 99% satisfactorily and prepared 150kgU of fuel solution.

Keywords : Dissolution, Uranium Fuel, Critical Experiment, Fuel Solution, Uranium Dioxide Pellet, Nitric Acid, Dissolver, STACY, TRACY, NUCEF

* Chiyoda Maintenance Co. Ltd.

目 次

1. はじめに	1
2. 溶解基礎試験	2
2.1 概要	2
2.2 試験	2
2.3 結果と考察	3
2.4 まとめ	7
3. 溶解特性試験	8
3.1 概要	8
3.2 試験	8
3.3 結果と考察	9
3.4 まとめ	11
4. 溶解運転	12
4.1 概要	12
4.2 溶解運転	12
4.3 運転結果	13
4.4 まとめ	14
5. おわりに	15
謝 辞	15
参考文献	16

Contents

1. Introduction	1
2. Preliminary Experiments for Dissolution	2
2.1 Summary	2
2.2 Experiments	2
2.3 Results and Discussion	3
2.4 Conclusion	7
3. Characteristic Experiments for Dissolution	8
3.1 Summary	8
3.2 Experiments	8
3.3 Results and Discussion	9
3.4 Conclusion	11
4. Operation for Dissolution	12
4.1 Summary	12
4.2 Operation for Dissolution	12
4.3 Results	13
4.4 Conclusion	14
5. General Conclusion	15
Acknowledgment	15
References	16

List of Tables

1	Table 2.1 UO ₂ Pellet	17
2	Table 2.2 Conditions of Preliminary experiment	17
3	Table 2.3 Concentration of U and HNO ₃ (12%UO ₂ Pellet)	18
4	Table 2.4 Concentration of U and HNO ₃ (1.5%UO ₂ Pellet)	20
5	Table 2.5 Comparison of Dissolution Rate	21
6	Table 2.6 Nitric Acid Consumptions	21
7	Table 3.1 Conditions of Characteristic experiment	22
8	Table 3.2 Uranium Dissolution Fraction and Concentration of Nitric Acid (Exp. 1)	23
9	Table 3.3 Uranium Dissolution Fraction and Concentration of Nitric Acid (Exp. 2)	23
10	Table 3.4 Uranium Dissolution Fraction and Concentration of Nitric Acid (Exp. 3)	24
11	Table 3.5 Uranium Dissolution Fraction and Concentration of Nitric Acid (Exp. 4)	24
12	Table 3.6 Nitric Acid Consumption	25
13	Table 4.1 Specification of Equipments of Dissolution Facility	26
14	Table 4.2 Operation Conditions for Dissolution	26

List of Figures

1	Fig.1.1 Schematic Diagram of Fuel Treatment System	27
2	Fig.2.1 Equipment for Preliminary Experiment	28
3	Fig.2.2 Dissolution Curve of 12%UO ₂ Pellet (HNO ₃ : 7M)	29
4	Fig.2.3 Dissolution Curve of 12%UO ₂ Pellet (Temp. : 80°C)	30
5	Fig.2.4 Dissolution Curve of 1.5%UO ₂ Pellet (Temp. : 80°C)	31
6	Fig.2.5 Changes of Surface Area (Relative Value against Initial Surface Area)	32
7	Fig.2.6 Dissolution Rate against UO ₂ Pellet Density	33
8	Fig.3.1 Dissolver	34
9	Fig.3.2 Trend Graph of Temperature, Pressure, Density (Exp. 1)	35
10	Fig.3.3 Dissolution Curve (Exp.1)	36
11	Fig.3.4 Trend Graph of Temperature, Pressure, Density (Exp. 2)	37
12	Fig.3.5 Dissolution Curve (Exp.2)	38
13	Fig.3.6 Dissolution Curve (Exp.3)	39
14	Fig.3.7 Dissolution Curve (Exp.4)	40
15	Fig.3.8 Changes of NO _x Concentration in Off-gas	41
16	Fig.4.1 Schematic Diagram of Dissolution Facility	42
17	Fig.4.2 Behavior of NO _x in Dissolution	43
18	Fig.4.3 Changes of Solution Transfer time	44

1 はじめに

燃料サイクル安全工学施設(NUCEF:Nuclear Fuel Cycle Safety Engineering Research Facility)に設置されている燃料調製設備は、2つの臨界実験装置STACY(定常臨界実験装置)及びTRACY(過渡臨界実験装置)で使用する溶液燃料を調製し、供給するための設備である(Fig.1.1参照)。本設備の調整附属設備(溶解設備)を用いて、臨界実験に使用する10%濃縮ウランの硝酸溶液燃料150kgUを調製するために、1.5%濃縮ウラン酸化物ペレットと12%濃縮ウラン酸化物ペレットの混合、溶解運転を行った。今回用いた1.5%濃縮ウラン酸化物ペレットと12%濃縮ウラン酸化物ペレットは、焼結条件がそれぞれ1750°C、3時間及び1350°C、3時間と違っているため、密度もそれぞれ95.6%T.D.及び91.4%T.D.であった。このため、ウラン溶解運転に先立ち、各々のウラン酸化物ペレットの溶解特性及び実機溶解槽を用いた約10kgUのウラン酸化物ペレットの溶解時の特性について把握する必要があった。

本報は、最適溶解条件を見つけるために各ウラン酸化物ペレット1個を用いてビーカー規模で行った溶解基礎試験の結果、実機溶解槽を用いて約10kgUのウラン酸化物ペレットを溶解し最適溶解運転条件を求めた溶解特性試験の結果及び、その後の溶解運転により得られた知見等についてまとめたものである。

2 溶解基礎試験

2.1 概要

ウラン溶液燃料は、12%及び1.5%濃縮 UO_2 ペレットを秤量、混合し、硝酸に溶解して所定の濃度及び濃縮度のものを調製する。 UO_2 ペレットの溶解性は、溶解工程スケジュールに直接影響を及ぼす重要な因子であり、不溶解性残さは、移送ラインフィルタの目詰まりを生じる等、能率的な工程運転に支障を来す原因となる。また、 UO_2 ペレット製造過程で使用した油分が残存すれば、高温で運転する溶解槽では危険である。本試験は、このような観点から実機溶解槽での溶解条件を選定するために行った。12%及び1.5%濃縮 UO_2 ペレット各1個ずつを用いてウラン及び硝酸の濃度変化や溶解時間を測定し、 UO_2 ペレット密度、初期硝酸濃度及び溶解温度の溶解速度に対する影響や、硝酸消費量、不溶解性残さの有無ならびに油分の有無を調べた。そのため、ウランと硝酸の mol 比や初期硝酸濃度も実機溶解槽のそれと同じに設定した。試験結果から実機溶解槽の溶解条件を選定した。また、溶解データからは計算コード⁽¹⁾を用いて溶解曲線のフィッティングにより溶解速度を求めた。

2.2 試験

2.2.1 UO_2 ペレットと溶解装置

UO_2 ペレットには、12%及び1.5%濃縮2種類がある。各 UO_2 ペレットの性状を Table 2.1 に示す。12%濃縮 UO_2 ペレットの重量は約 22.1g であり、ウラン量は約 19.6g である。1.5%濃縮 UO_2 ペレットでは、同様に約 14.2g と約 12.4g である。

溶解装置は、実機溶解槽の形状を模擬し、溶解の様子が観察容易なガラス製とし、溶解速度に影響すると考えられるウランの濃度変化を実機のそれと合わせるため、 UO_2 ペレット1個のウラン量に応じ溶解液量が 31~46ml として使用できる大きさ及び形状とした。昇温はホットプレートを用い、オイルバスを介して溶解槽下部を加熱する方式とした。伝熱用オイルは、真空ポンプ用のシリコンオイルを用いた。Fig. 2.1 に試験装置の概略を示す。溶解槽上部には、二又管を介して冷却器を接続した。冷却器の出口は、三段のガス洗瓶 (NO_x 除去用水入り二段とミスト除去用に空瓶一段)を通し小型エアポンプで吸引し、フード内へ排気した。冷却水は、約 10ℓの水をポンプを用い、循環させた。二又管の他端には、熱電対式温度センサ、サンプリング用チューブを貫通

したテフロン栓を付けた。温度は、レコーダに接続し記録した。

2.2.2 試験条件とサンプリング

蒸留水で洗浄した溶解槽に12%または1.5%濃縮 UO_2 ペレット1個を挿入し、溶解後のウラン濃度が実機同様に約400g/lとなるような量の硝酸を注入した。すなわち、12%濃縮 UO_2 ペレットでは45.5ml、1.5%濃縮 UO_2 ペレットでは31mlである。溶解基礎試験の試験条件をTable2.2に示す。冷却器、ガス洗瓶、サンプリングライン及び温度センサの接続を確認してホットプレートの電源を入れた。液温は、レコーダを監視しながら調節した。A.L.Uriarteらの実験結果⁽²⁾から溶解時間は、7M硝酸中で約400分、10M硝酸中で約150分と見積り、この間に3~4回のサンプリングを設定した。運転は、目視により UO_2 ペレットが確認できなくなった時点をもって終了とした。サンプル量は、液量減少による濃度変化を考慮し、1回0.5mlとした。サンプルは、1ml程度を50mlビーカーに受け、ピペットで0.5mlを分析容器に分取し、残りは溶解槽に戻した。これは、チューブポンプの正逆転機能を用いて容易に行うことができた。サンプリングに伴う濃度変化は、最大約2.8%と考えられる。サンプルの分析は、アルカリ滴定法で行った。

2.3 結果と考察

2.3.1 12%濃縮 UO_2 ペレットの溶解性

12%濃縮 UO_2 ペレットを用いて3回の試験を行った。初期硝酸濃度7Mで溶解温度を約100°Cとした場合と初期硝酸濃度7M及び10Mとし、溶解温度を約80°Cにした場合である。これらの試験時のウラン及び硝酸の濃度の測定値をTable2.3に示す。初期硝酸濃度7Mで溶解温度が約100°Cの場合と約80°Cの場合のウラン及び硝酸の濃度変化をFig.2.2に示す。目視による観察によると、初期硝酸濃度7Mでの溶解では、溶解性が高いと予測された12% UO_2 ペレットでも室温では UO_2 ペレット表面に付着した燃料の微粉末が溶解したほか、溶解はわずかしか進行せず、溶液温度が60°Cくらいから活発に溶解が始まった。溶解温度が100°C近くでは反応が激しく、 NO_x による泡が溶解槽の出口高さ近くまで(静置液面上約70mm)を占め、ほぼ1時間半で全量溶解した。以上のことから、12%濃縮 UO_2 ペレットが大部分を占める実機溶解槽では、溶液温度を100°Cまで上げる必要はないと判断し、以後の12%濃縮 UO_2 ペレット及び1.5%濃縮 UO_2 ペレットでは、80°Cのみ試験を行った。また、硝酸濃度の変化は、ウラン濃度の変化を反映した形になっており、

溶解したウラン量が増加するに従い減少し、約1時間で一定の濃度に達した。次に溶解温度を約80°Cとし、初期硝酸濃度を7Mと10Mにした場合のウラン及び硝酸の濃度の時間変化をFig.2.3に示す。目視による観察によれば、初期硝酸濃度7Mでは前述の100°Cでの溶解同様、溶液温度が60°Cぐらいから活発に溶解が始まった。溶解温度80°Cでは比較的NO_x発生が穏やかで、泡の層も約5mm程度であり、約2時間で溶解が終了した。一方、初期硝酸濃度10Mでは7Mの場合に比べ溶解反応が速く進行し、溶解の初期、溶液温度40°C程度で溶液が緑色をおびた。これは亜硝酸の発生に起因するウラン(IV)の生成によると考えられる。この着色は、30分程度で消失し、ほぼ1時間で溶解が終了した。初期硝酸濃度10Mでの溶解でもNO_xガスによる泡の層は10mm程度の厚さを占めるにすぎなかった。硝酸濃度の変化は、初期硝酸濃度7Mと10Mでそれぞれ2時間と1時間で一定の濃度に達した。12%濃縮UO₂ペレットで特徴的なことは、いずれの溶解温度、初期硝酸濃度でもUO₂ペレット表面から崩れるように溶解が進行し、溶解終了後の溶液中にわずかの量の黒色微粉末状の不溶性物質が残った。溶解液に油分は目視では確認できなかった。

2.3.2 1.5%濃縮UO₂ペレットの溶解性

1.5%濃縮UO₂ペレットを用いて2回の溶解試験を行った。溶解温度を約80°Cとし、初期硝酸濃度7M及び10Mとした場合である。これらの試験時のウラン及び硝酸の濃度の測定値をTable2.4に示す。ウラン及び硝酸の濃度の時間変化をFig.2.4に示す。硝酸濃度7Mの場合は、反応がゆっくりと進行し、全量溶解に約4時間半を要した。硝酸濃度10Mの場合は、約2時間で全量溶解した。目視による観察によれば、室温ではほとんど溶解が起こらず、溶液温度60°Cぐらいから活発に溶解が始まった。全般的に1.5%濃縮UO₂ペレットでは、反応が穏やかで、泡の層の厚さも数mm以下であった。1.5%UO₂ペレットは、いずれの初期硝酸濃度の場合も12%UO₂ペレットのように表面から崩れるように溶解が進行することはなかった。また、溶解後の溶液中に不溶性の物質や油分は目視では確認できなかった。硝酸濃度の変化は、12%UO₂ペレット同様ウラン濃度の変化を反映した形になっており、初期硝酸濃度7Mと10Mでそれぞれ3時間と2時間でほぼ一定の濃度に達した。

2.3.3 溶解速度

ウラン酸化物ペレットの溶解速度(単位時間, 単位表面積当り)は, Taylor の表面積モデルに基づいて整理した。計算コードで用いた溶解速度基本式は, 次の通りである。

$$\text{溶解速度} \frac{d\phi}{dt} = A \times \exp(-B) \times C^\alpha \times a_0 \times F(\phi) \quad (1)$$

ここで, 記号は以下の通りである。

A	: 溶解速度 (mg/cm ² · min · mol ^α)
B	: = E/RT
	ここで, E は活性化エネルギー (15kcal/mol), R は気体定数 (1.986cal/mol·K),
	T は温度 (K)
C	: = f×[U]+[H]
	ここで, f はウラン濃度の濃度項中での寄与の割合 (1.0),
	[U], [H] はそれぞれウラン及び硝酸の濃度
α	: 定数 (= 2.1 試験結果へのフィッティングより求めた)
a ₀	: ペレットの初期表面積と UO ₂ 重量の比 (cm ² /g)
F(φ)	: ペレットの初期表面積に対する瞬時の表面積の比

F(φ)としては, Taylor らの値 (Fig.2.5) を使用した。Taylor らが F(φ) を求めたペレットは, 密度が 10.4±0.2 と 10.6±0.1 及び 10.74±0.05g/cm³であり, 本試験で使用した 10.01 及び 10.47g/cm³はこのうち 10.4 と 10.6g/cm³に近いと考えられるため Fig.2.5 にある曲線のうち上側のものを用いた。

また, ウラン及び硝酸の物質収支式

$$\frac{dC_U}{dt} = \frac{1}{V} \times \frac{W}{M} \times \frac{d\phi}{dt} \quad (2)$$

$$\frac{dC_H}{dt} = \frac{1}{V} \times \left(-H \times \frac{W}{M}\right) \times \frac{d\phi}{dt} \quad (3)$$

により, それぞれの濃度が計算される。ここで,

$$\left(\begin{array}{l} V : \text{溶解液の体積 (ℓ)} \\ W : \text{ペレット重量 (g)} \\ M : \text{UO}_2 \text{の分子量 (g/mol)} \\ H : \text{溶解したウラン 1mol 当りの硝酸消費量 (molHNO}_3\text{/molU)} \end{array} \right)$$

である。

計算コードへの入力は、(1) 式中の A, B, C, a_0 及び α と (2), (3) 式中の V, W 及び H である。計算コードによる最適な溶解曲線の選択は、試験結果のウラン濃度の時間変化に入力データのうち A と α をセットで変化させた計算コードによる溶解曲線を重ね、最も試験結果に近いケースを選ぶという方法で行った。これは、A と α が初期硝酸濃度や溶解温度に影響されない、UO₂ペレットに固有の数値であるとして扱ったためである。ここで得た A と α は、速度定数の計算に用いた。比較のために引用した文献では UO₂ペレット溶解速度は、ごく短時間の溶解 (溶解率で数%) で表面積や硝酸濃度に変化がない範囲で実験を行い、溶解速度 (mg/cm²·min) の形にしてある。前述の (1) 式のうち、

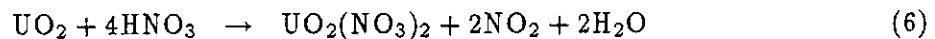
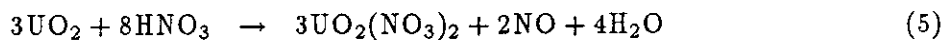
$$A \times \exp(-B) \times C^\alpha \quad (4)$$

の部分がこれらの文献中の溶解速度に相当する。前出の A, α , 及び活性化エネルギー, 気体定数, 溶解温度と初期硝酸濃度を用いて (4) 式を計算した。これらの値と、いくつかの文献値を Table 2.5 に示した。本試験で用いた UO₂ペレットのうち 1.5%UO₂ペレットは、標準的な原子炉燃料の密度と同じであるため比較すべき代表的な溶解速度を引用できたが、12%UO₂ペレットでは密度が低く一般的な性状でないため直接比較できる報告はなく、Urialte らの報告 (Fig. 2.6) をもとに考察した。本試験での 12%UO₂ペレットの溶解速度は、溶解温度 80°C の場合、初期硝酸濃度 7M と 10M でそれぞれ 65mg/cm²·min と 138mg/cm²·min であった。また本試験結果では、初期硝酸濃度 7M, 10M の場合とも 91.4%T.D. の UO₂ペレットの溶解速度は 95.6%T.D. の UO₂ペレットのその約 6 倍であった。Fig. 2.6 によれば、溶解速度は沸点条件のデータではあるが、UO₂ペレット密度 91.4%T.D. で 4.28mg/cm²·min, UO₂ペレット密度 95.6%T.D. で 2.86mg/cm²·min と前者は後者の約 1.5 倍である。本試験のような 12%UO₂ペレットの高い溶解性は製造履歴によっていることも考えられ、この点について今後調べる必要がある。溶解温度 100°C, 初期硝酸濃度 7M では溶解速度が 206mg/cm²·min であった。解析全体として活性化エネルギーを UO₂ペレットの値として一般的な 15kcal/mol であるとしてまとめたため、溶解温度 100°C の場合は、これを

反映した結果となり、溶解速度は80°Cの場合の約3倍となった。UO₂ペレット密度約96%T.D.の1.5%UO₂ペレットでは初期硝酸濃度7Mと10Mでそれぞれ溶解速度は、11mg/cm²·min及び23mg/cm²·minであった。Table2.5によれば、本試験で用いた1.5%UO₂ペレットに密度に近い94~96%T.D.での溶解速度のうち初期硝酸濃度7Mでは5.6~12mg/cm²·minの値が報告されている。また、初期硝酸濃度10Mでは、12~25mg/cm²·minの値である。本試験の結果は、いずれもこれらの値の範囲にあった。

2.3.4 硝酸消費量

二酸化ウランペレットは、硝酸水溶液中で以下に示す反応⁽³⁾ (もしくは類似の⁽⁴⁾)を起こすと考えられる。



これらの式のうち、硝酸濃度10M以下では、式(5)で示す反応が支配的であるとされている。いずれの式においても、発生するNO_xが全量回収される理想的な状況を仮定すると、1molのウランの溶解には2molの硝酸が必要となる。本試験における溶解終了時の溶液中硝酸濃度から計算したウラン1mol当りの硝酸消費量をTable2.6に示す。これは、溶解にともなう硝酸消費の他、NO_xとして系から逃げる硝酸も含めたものである。Table2.6によれば、ペレット密度によらず初期硝酸濃度7Mでは約2.9、初期硝酸濃度10Mでは約3.3となった。硝酸濃度の高い系では、発生するNO_xのうち多くが水に吸収されやすいNO₂であるため、NO_x回収率が高く、硝酸消費量は低くなるはずである。本試験結果が逆転しているのは、初期硝酸濃度10Mの方がNO_x発生量そのものが多いことと、溶解槽の液厚さが小さいための回収不足が原因であると考えられる。

2.4 まとめ

以上の結果をまとめると、実機溶解槽での溶解条件としては、溶解反応が穏やかに進むこと、臨界実験に使用するため溶解終了後の硝酸濃度が低くなることを考慮して、初期硝酸濃度7M、温度は80°Cで制御することが選定された。また、表面積モデルによる計算コードで溶解曲線をシミュレーションした結果、試験結果とほぼ合うことがわかった。

3 溶解特性試験

3.1 概要

前述の UO_2 ペレット 1 個ずつを用いた溶解基礎試験において、溶解条件としては、初期硝酸濃度 7M、温度 $80^{\circ}C$ という値を選定した。実機での溶解運転では、基礎試験とは温度制御法や UO_2 ペレット表面積等に関して違いがある。このため、実機溶解槽を用いて、昇温方法や溶解時間等の運転に関する条件について最適化を行う必要がある。本試験は、このような観点から実機溶解槽を用いて、実機溶解槽での最適運転条件を選定するために行った。試験は、実際の運転時と同じ初期 UO_2 ペレット装荷量、初期硝酸量で行い、昇温方法、空気通気の有無等の運転条件を変化させて、それぞれの条件におけるウラン溶解率及び硝酸濃度の変化や溶解時間等を測定した。試験結果より、実機溶解槽での最適運転条件を選定した。

3.2 試験

3.2.1 実機溶解槽

実機溶解槽の構造を Fig.3.1 に示す。溶解槽はステンレススチール(SUS304L)製で、外径 140mm、内径 130mm、高さ 2550mm、有効容量 25l であり、内径と高さに関しては 13%濃縮ウラン酸化物ペレット水系全濃度の臨界安全制限寸法である。溶解槽内部ほぼ中位に格子板があり、この上に周囲全面に 3mmφで穴を開け、底面をワイヤーにより格子状にして開口率を増したバスケット(SUS304L 製)を設置してある。 UO_2 ペレットはこのバスケット内に装荷される。昇温は、サイリスタ制御の電気ヒータを用いて溶解槽の下部を加熱する方法をとった。計装としては、温度計、液位計、密度計、圧力計、液位異常高検知等を備えており、これらのデータは DDCS(Direct Digital Control System) のトレンドロギング機能を用いて記録した。

3.2.2 試験条件とサンプリング

本試験は、溶解基礎試験の結果をもとに臨界実験に使用するため、溶解後の硝酸濃度をできる限り低く抑えることや溶解時間を短縮することを目的とした最適運転条件を選定するために 4 回行った。試験条件を Table3.1 に示す。本試験では、パラメータの変動範囲が狭くなっているが、これは特性試験 1 から順次最適運転条件を見いだすために、少しずつ条件を変化させて試験を行っ

ていく手法をとったためである。適当な時間間隔でサンプリングを行い、その分析結果が1回前の分析結果とはほぼ変わらなくなった時点を溶解の終了点とした。サンプリングは、溶解槽側面のノズル(内径13.3mm)から行った。配管内の前回のサンプリング残液を完全に置換してからサンプルを採取したので、1回当りの液抜き量(サンプル含む)は約100mlだった。サンプルの分析に関しては溶解基礎試験時と同じ方法(アルカリ滴定法)を用いた。

3.3 結果と考察

3.3.1 溶解特性試験1

溶解特性試験1における温度、圧力、密度のトレンドグラフをFig.3.2に示す。この時のウラン溶解率及び硝酸濃度の測定値をTable3.2に、それらの時間変化をFig.3.3に示す。

Fig.3.2より、溶解開始後30分から1時間の範囲で圧力が上昇し、通常負圧(-0.05kg/cm²)に制御されている圧力が、正圧のピークを示している。これは昇温速度が比較的速く(約13°C/10min)、溶解基礎試験と比較して装荷したウラン量が多かったため、溶解反応が加速的に進み、NO_xガスなどの放出が盛んに行われたためと考えられる。このため試験では、この時点でヒータを停止したが、その後も反応熱による温度上昇があった(Fig.3.2参照)。密度に関しては、圧力変動にともなう若干の変動があったが、全体としては溶解とともに徐々に上昇する傾向を示した。

Fig.3.3より、ウラン溶解率は溶解開始後数時間で急激に増加し、この溶解したウラン量の増加にともない硝酸濃度は減少している。この激しい溶解反応にともない硝酸濃度が低下したので、途中で硝酸を2ℓ追加した。硝酸追加にもかかわらず、最終的な硝酸濃度は1.31mol/ℓと低くなり、9時間の溶解にもかかわらず98%までしか溶解しなかった。

3.3.2 溶解特性試験2

溶解特性試験2では、溶解特性試験1の結果を踏まえて反応を穏やかにするために昇温速度を遅くした(約7.8°C/10min)。また、溶解反応にともない発生するNO_xを効率良く回収し、硝酸濃度の低下を抑えるために空気通気を行った。溶解特性試験2における温度、圧力、密度のトレンドグラフをFig.3.4に示す。この時のウラン溶解率及び硝酸濃度の測定値をTable3.3に、それらの時間変化をFig.3.5に示す。

Fig.3.4より、溶解特性試験1の時(Fig.3.2)にみられたような圧力変動はみられず、安定して

負圧に制御されている。温度に関しても、昇温速度を制御したことにより温度上昇は低く抑えられている。

Fig.3.5 より、ウラン溶解率及び硝酸濃度の時間変化の傾向は溶解特性試験 1 と同様となった。溶解特性試験 2 では、昇温速度を遅くし激しい反応を抑えたため、硝酸濃度の低下も抑えられ、途中 2.1ℓ の硝酸追加を行っての最終的な硝酸濃度は溶解特性試験 1 よりも高く、1.62mol/ℓであった。このため、8 時間の溶解で 99%以上が溶解した。

3.3.3 溶解特性試験 3

溶解特性試験 3 では、さらに昇温速度を遅くするために、液温 40°C の時点でヒータを停止し反応熱による温度上昇のみとした。これにより昇温速度は約 5.7°C/10min となった。その他の条件は溶解特性試験 2 と同様とし、途中での硝酸追加も 2ℓ 行った。この時のウラン溶解率及び硝酸濃度の測定値を Table3.4 に、それらの時間変化を Fig.3.6 に示す。

Fig.3.6 より、ウラン溶解率及び硝酸濃度の時間変化の傾向は溶解特性試験 1, 2 と同様となった。最終的な硝酸濃度は 2.06mol/ℓとなり、最も高い値となった。これより、昇温速度を抑えることにより溶解反応は穏やかになり、これにより NO_x の発生速度も遅くなり、NO_x の吸収効率が良くなるため最終硝酸濃度も高くなると考えられる。溶解時間については、昇温速度を約 5.7°C/10min まで遅くしても 8 時間で 99%以上が溶解した。

3.3.4 溶解特性試験 4

溶解特性試験 4 では、最終的な運転条件を確認するために、途中での硝酸追加を行わず初期硝酸液量を追加量分増量した。その他の条件は溶解特性試験 3 と同様にした。この時のウラン溶解率及び硝酸濃度の測定値を Table3.5 に、それらの時間変化を Fig.3.7 に示す。

Fig.3.7 より、ウラン溶解率及び硝酸濃度の時間変化の傾向は溶解特性試験 1, 2, 3 と同様である。最終硝酸濃度は 2.04mol/ℓで、溶解特性試験 3 より若干低い値となったが、8 時間で 99%以上が溶解しているので十分な値であると考えられる。

3.3.5 硝酸消費量と NO_x濃度の時間変化

本試験における溶解終了時の溶液中硝酸濃度から計算したウラン 1mol 当りの硝酸消費量 (2.3.4 参照) を Table3.6 に示す。前述の通り理想的には硝酸消費量は 2.0 となるのであるが、本試験で

は2.6~3.4となった。溶解基礎試験の結果と比較して小さい値となっているのは、溶解反応で発生した NO_x の溶解槽内の液相中に滞在する時間が溶解基礎試験と比較して長いことにより、再び溶液に吸収される NO_x の量が増えたためと考えられる。また、溶解特性試験1, 2, 3の順に値が小さくなっている。これは、昇温速度の違いから生じる溶解反応の激しさ、つまり NO_x の発生の激しさによるものと考えられる。溶解特性試験1では、圧力変動を生じるほどの NO_x の発生があったために NO_x の吸収効率が悪くなり、硝酸消費量は大きくなったものと考えらる。空気通気に関しても、水に吸収され難い NO を水に吸収され易い NO_2 に変化させるという点で、空気通気を行った方が NO_x の吸収効率は良くなり、硝酸消費量の値は小さくなると考えられる。

本試験における溶解運転中の NO_x 濃度の時間変化をFig.3.8に示す。ここで NO_x 濃度は、溶解槽から出たオフガスが1つの凝縮器と2つの洗浄塔を通過した後での NO_x モニタでの値である。このため半定量的であるが、全体的に最初急激に増加し、溶解開始後約1時間後にピークを向かえ、その後ゆっくりと減少している。これはウラン溶解率の時間変化と対応しており、 NO_x 濃度は溶解反応の様子を知るため(溶解終了の判断等)の1つの目安となると考えられる。

3.4 まとめ

以上の結果をまとめると、溶解基礎試験の結果から得られた溶解条件の他に、運転条件として初期硝酸液量は23ℓ、温度に関しては昇温開始後約40°Cでヒータ停止、その後反応熱による温度上昇がおさまった後、80°Cに制御、運転時間は9時間と選定した。

4 溶解運転

4.1 概要

溶解基礎試験及び溶解特性試験において、実機溶解槽での溶解運転に関する溶解条件、運転条件を選定した。ここでは、これらの条件を用いて10%濃縮ウラン溶液燃料(150kgU)を調製した溶解運転について、溶解設備(調製設備)の概要、運転手順、溶解運転の結果と得られた知見等についてまとめる。

4.2 溶解運転

4.2.1 溶解設備の概要

溶解設備の概略図を Fig.4.1 に示す。溶解設備は、U 溶解槽、U 溶解オフガス凝縮器、U 溶解オフガス分離器、ろ過器、送液ポット、溶解液計量槽等から構成される。各機器の詳細を Table4.1 に示す。機器設計は、13%濃縮ウラン酸化物ペレット-水系全濃度臨界安全制限寸法以下の形状及び機器間制限とした。これら溶解設備の主要機器は、縦 100×横 492×高さ 563cm のグローブボックス内に設置されている。

U 溶解槽からのオフガスは、U 溶解槽オフガス凝縮器を通り、2つの洗浄塔(NO_x 洗浄塔、気廃洗浄塔)を経由してスタックより大気へ放出した(Fig.4.2 参照)。 NO_x 濃度のモニタは気廃洗浄塔を通過した後のオフガスに対して行った。

4.2.2 溶解運転手順

まず、12%及び1.5%濃縮 UO_2 ペレットをそれぞれ約 9.3kg、約 2kg 分取、秤量する。この時、12%濃縮 UO_2 ペレットは缶に入っているため、そのまま分取、秤量を行うことができるが、1.5%濃縮 UO_2 ペレットは燃料ピンに入っているため、燃料ピンの切断、 UO_2 ペレットの取り出しをした後に分取、秤量した。これらの UO_2 ペレットは、U 溶解オフガス凝縮器を液シールした後に U 溶解槽の上蓋を開けて投入した。U 溶解オフガス凝縮器の液シールは、U 溶解槽の上蓋を開けたときのグローブボックス内と槽ベント系の負圧度のバランスを保つためと、 UO_2 ペレットから出る微粉末が槽ベント系へ飛散するのを防ぐために行うものである。 UO_2 ペレット投入後は、液シールに用いた硝酸と試薬供給設備からの硝酸を注入し初期硝酸液量にした。この後空気通気を開始

し、昇温した。溶解特性試験の結果より、ヒータ起動後 40°C の時点でヒータを停止し、反応熱による温度上昇がおさまった後にヒータを再起動し、80°C に制御する方法をとった。溶解終了後はヒータを停止し、放冷してからサンプリング、分析を行い、分析値を確認した後に溶液の移送、次の溶解の準備を行った。UO₂ペレットを U 溶解槽に投入するまでは、グローブ操作により作業を行ったが、投入後の溶解、液移送は制御室の DDCS(Direct Digital Control System) により遠隔操作で行った。これら 1 バッチの溶解工程には、準備、片付けを含めて 3 日を要した。溶解運転条件を Table4.2 にまとめる。

4.3 運転結果

前述の溶解運転条件及び手順で調製を行ったウラン溶液燃料の組成を以下に示す。

・ ²³⁵ U 濃縮度	: 9.97%
・ウラン溶液量	: 403.4ℓ
・ウラン濃度	: 372.2gU/ℓ
・硝酸濃度	: 2.13mol/ℓ
・不純物濃度	: Fe-33ppm, Ni-12ppm, Cr-9ppm

また、全 15 バッチの溶解運転終了後の不溶解性残さの量は 150kgU の溶解に対して 1g であった。不溶解性残さの成分は、約 0.5g がウランであり、残りが Fe, Ni, Cr であった。不溶解性残さの量は全溶解量と比較するとわずかであるが、工程上はフィルタの目詰まりにより溶解液の移送時間に大きな影響を与えた。Fig.4.3 に溶解液の移送時間の変化を示す。Fig.4.3 は、各バッチの 8 回の液移送 (U 溶解槽に対して送液ポットの容量が小さいため、溶解液の移送は 9 回の真空移送を必要とした。9 回目の途中で溶解槽の液移送が終了するため、9 回目の移送はここでは除いた。) の最短時間と最長時間をたて方向に示すものである。各バッチとも 1 回目の液移送が最短時間となり、8 回目の液移送が最長時間となり約 2~3 倍の時間を必要とした。また、溶解運転バッチ数が増すごとに不溶解性残さの量も増え、移送時間は最短、最長ともに約 2~3 倍長くなっている。これより、溶解運転バッチ数が多くなるときは、適度に不溶解性残さの除去を行う必要があることがわかった。

U 溶解時に発生した NO_x の挙動について、Fig.4.2 に示す。U 溶解槽では、注入した硝酸の約 24% が NO_x 及び硝酸ミストとして発生した。この U 溶解槽から発生した NO_x 及び硝酸ミスト量

に対する割合で各機器での吸収効率を表すと、U 溶解オフガス凝縮器では約 33%、NO_x洗浄塔では約 42%、気塵洗浄塔では約 4%、スタックから大気へ放出されたのは約 21%となった。気塵洗浄塔での値が小さいのは、NO_x中の NO₂が NO_x洗浄塔でかなり吸収され、気塵洗浄塔にはほとんどが NO となって供給されたためと考えられる。洗浄塔での吸収効率の値は、文献値⁽⁵⁾と比較して妥当な値であった。

4.4 まとめ

溶解基礎試験、溶解特性試験の結果から得られた溶解運転条件により、10%濃縮ウラン溶液燃料 150kgU を調製することができた。また、2 ヶ月半におよぶ溶解運転により、不溶解性残さによる溶液移送時間の増加や溶解時の NO_x挙動に関する知見を得ることができた。

5 おわりに

STACY 及び TRACY での臨界実験用 10%濃縮ウラン溶液燃料 (150kgU) を調製することを目的とし、溶解基礎試験、溶解特性試験において溶解運転条件を選定し、その条件により溶解運転を行った。

溶解運転の結果としては、選定した溶解運転条件を用いて臨界実験用として十分な組成の溶液燃料を当初の計画通り調製することができた。

今後の課題としては、これからさらに約 570kgU の UO_2 ペレットの溶解運転が予定されているので、溶解開始後の激しい反応がおさまった時点で温度を沸点まで上げ、蒸気を発生させることにより U 溶解オフガス凝縮器からの硝酸リサイクル量を増加させ、反応後半での硝酸濃度の低下を抑えることなどによる溶解時間の短縮化や、不溶解性残さの定期的な除去法の検討などが上げられる。

謝辞

本試験及び運転を行ううえでご協力頂いた NUCEF 試験室臨界技術室の方々に深く感謝の意を表します。また、本書を作成するに当たって適切なコメントを頂いた NUCEF 試験室次長竹下功氏、原稿を査読して頂いたプロセス安全工学研究室副主任研究員内山軍蔵氏に深く感謝致します。

5 おわりに

STACY 及び TRACY での臨界実験用 10%濃縮ウラン溶液燃料 (150kgU) を調製することを目的とし、溶解基礎試験、溶解特性試験において溶解運転条件を選定し、その条件により溶解運転を行った。

溶解運転の結果としては、選定した溶解運転条件を用いて臨界実験用として十分な組成の溶液燃料を当初の計画通り調製することができた。

今後の課題としては、これからさらに約 570kgU の UO_2 ペレットの溶解運転が予定されているので、溶解開始後の激しい反応がおさまった時点で温度を沸点まで上げ、蒸気を発生させることにより U 溶解オフガス凝縮器からの硝酸リサイクル量を増加させ、反応後半での硝酸濃度の低下を抑えることなどによる溶解時間の短縮化や、不溶解性残さの定期的な除去法の検討などが上げられる。

謝辞

本試験及び運転を行ううえでご協力頂いた NUCEF 試験室臨界技術室の方々に深く感謝の意を表します。また、本書を作成するに当たって適切なコメントを頂いた NUCEF 試験室次長竹下功氏、原稿を査読して頂いたプロセス安全工学研究室副主任研究員内山軍蔵氏に深く感謝致します。

参考文献

1. 溶解工程計算コード(未公開): 藤根 私信
2. A.L.Uriartre, R.H.Rainey : "Dissolution of High-density UO_2 , PuO_2 , and UO_2 - PuO_2 Pellets in Inorganic Acids", ORNL-3695, Apr., (1965)
3. 例えば, M.Shabbir, R.G.Robins : "Kinetics of the Dissolution of Uranium Dioxide in Nitric Acid. I.", J.Appl.Chem., vol18, May, (1968)
4. R.F.Taylor, E.W.Sharratt, L.E.M.de Chazal, D.H.Logsdail : "Dissolution Rates of Uranium Dioxide in Nitric Acid Systems", J.Appl.Chem., 13, Jan., (1963)
5. Jhon W.Bartlett, et al. : "Alternatives for Managing Wastes from Reactors and Post-fission Operations in the LWR Fuel Cycle.", ERDA-76-43, (1976)

Table 2.1 UO₂ペレットの性状

	12%ペレット	1.5%ペレット
濃縮度 %	11.841	1.520
直径 mm	12.3	10.7
高さ mm	18.6	15.1
体積 cm ³	2.21	1.36
重量 g	22.1	14.2
密度 g/cm ³	10.01±0.12	10.47±0.02
(%TD)	91.4 ±1.1	95.6 ±0.2
焼結条件	1350°C 3時間	1750°C 3時間

Table 2.2 溶解基礎試験条件

run	燃料*1	初期硝酸濃度 (M)	溶液温度 (°C)	液量 (mℓ)	ウラン-硝酸比*2 (mol/mol)
1	12%ペレット	7	100	45.5	0.26
2	1.5%ペレット	7	80	31.0	0.24
3	12%ペレット	7	80	45.5	0.26
4	1.5%ペレット	10	80	31.0	0.17
5	12%ペレット	10	80	45.5	0.18

*1 ペレットは各runで1個ずつ使用

*2 実機のウラン-硝酸比は0.26

Table 2.3 12% UO₂ ペレットの溶解時のウラン及び硝酸濃度の測定値

100℃、7M

時間 (分)	ウラン濃度 (g/l)	硝酸濃度 (M)	液温 (°C)
0	0	7.06	26.8
35	385.4	2.74	97.4
68	421.7	1.75	97.5
87	429.4	1.84	92.3
210*	453.4	1.83	27

終了時液量 : 42.0ml

*: 放冷後。溶解は87分で完了

80℃、7M

時間 (分)	ウラン濃度 (g/l)	硝酸濃度 (M)	液温 (°C)
0	0	7.03	28.5
30	189.6	3.52	82.9
60	369.4	2.22	82.9
90	400.9	1.95	77.7
120	406.4	1.89	73.3

終了時液量 : 44.8ml

80 °C、10 M

時間 (分)	ウラン濃度 (g/l)	硝酸濃度 (M)	液温 (°C)
0	0	10.07	29.5
30	363.0	4.79	76.4
45	410.2	4.28	80.8
65	411.2	4.30	78.73

終了時液量 : 44.9 mL

Table 2.4 1.5% UO₂ ペレットの溶解時のウラン及び硝酸濃度の測定値

80 °C、7 M

時間 (分)	ウラン濃度 (g/l)	硝酸濃度 (M)	液温 (°C)
0	0	7.06	26.8
60	168.4	4.10	82.5
120	269.4	3.11	81.5
180	285.2	2.61	79.5
277	343.3	2.48	78.3
338*	398.7	2.38	44.8

終了時液量 : 28.0ml

* : 放冷後。溶解は277分で完了

80 °C、10 M

時間 (分)	ウラン濃度 (g/l)	硝酸濃度 (M)	液温 (°C)
0	0	10.07	26.7
60	321.0	5.25	83.5
120	386.2	4.49	85.3
135	388.4	4.58	79.7

終了時液量 : 29.0ml

Table 2.5 溶解速度の比較

初期硝酸濃度 (M)	溶解温度 (°C)	ペレット密度 (%TD)	濃縮度 (%)	速度定数 (mg/cm ² ·min)	文献
7	100	91.4	12	206	
7	80	91.4	12	65	
7	80	95.6	1.5	11	
7	BP	94		12	Uriarte等
7	80	95		6	Taylor等
7	90	96		5.6	Fukasawa等
10	80	91.4	12	138	
10	80	95.6	1.5	23	
10	BP	94		25	Uriarte等
10	80	95		12	Taylor等
10	90	96		15	Fukasawa等

BP; Boiling Point

Uriarte等; ORNL-3695, Apr., 1965

Taylor等; J. appl. Chem., 13, Jan., 1963

Fukasawa等; J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters, 106, 6, p345, 1986

Table 2.6 硝酸消費量

ペレット密度 g/cm ³	初期硝酸濃度 M	硝酸消費量 mol/mol U
10.01	7	2.90
10.47	7	2.84
10.01	7	2.97
10.47	10	3.31
10.01	10	3.33

* ウラン 1 mol 当たりの溶解に消費された硝酸の量

Table 3.1 溶解特性試験条件

特性試験	運転条件				
	UO ₂ 仕込量	硝酸初期濃度	硝酸液量	空気通気	溶解温度
1	12 % UO ₂ ペレット : 約 9.3 kg 1.5 % UO ₂ ペレット : 約 2 kg	7 mol/l	23 l 途中から 2 l 追加	無	昇温速度 : 約 13 °C/10 分 ~ 80 °C
2	〃	〃	20 l 途中から 2.1 l 追加	有 (0.2 m ³ /h)	昇温速度 : 約 7.8 °C/10 分 ~ 80 °C
3	〃	〃	20.8 l 途中から 2 l 追加	〃	昇温速度 : 約 5.7 °C/10 分 ~ 80 °C
4	〃	〃	23.2 l	〃	〃

Table 3.2 溶解特性試験1のU溶解率及び硝酸濃度の測定値

時間 (時)	U 溶解率 (%)	硝酸濃度 (M)
0	0.0	7.00
2	83.2	1.52
4	90.6	1.13
6	96.7	1.41
8	99.6	1.32
9	97.6	1.35

Table 3.3 溶解特性試験2のU溶解率及び硝酸濃度の測定値

時間 (時)	U 溶解率 (%)	硝酸濃度 (M)
0	0.0	7.00
1	79.8	2.36
3	95.0	1.51
5	100.9	1.74
7	103.6	1.62
8.5	101.1	1.63

Table 3.4 溶解特性試験3のU溶解率及び硝酸濃度の測定値

時間 (時)	U 溶解率 (%)	硝酸濃度 (M)
0	0.0	7.00
1	66.4	3.60
3	93.2	2.16
5	101.6	1.76
7	104.0	2.07
8	102.2	2.06

Table 3.5 溶解特性試験4のU溶解率及び硝酸濃度の測定値

時間 (時)	U 溶解率 (%)	硝酸濃度 (M)
0	0.0	7.00
1	60.2	4.14
2	83.4	2.99
6	98.2	2.26
8	102.9	2.04

Table 3.6 硝酸消費量

	硝酸消費量 molHNO ₃ /molU	備考
溶解特性試験 1	3.39	途中から硝酸 2.0 ℓ追加
溶解特性試験 2	2.83	途中から硝酸 2.1 ℓ追加
溶解特性試験 3	2.68	途中から硝酸 2.0 ℓ追加
溶解特性試験 4	2.74	

Table 4.1 溶解設備主要機器の詳細

名称	型式	概略仕様
U 溶解槽	縦型円筒槽	$\phi 139.8$ (外径) $\times 2527 \times t5$ mm
U 溶解オフガス凝縮器	横型多管式	0.4m^2 /基 (伝熱面積)
U 溶解オフガス分離器	縦型円筒槽	$\phi 165.2$ (外径) $\times 1229 \times t5$ mm
ろ過器	縦型円筒	$\phi 60.5$ (外径) $\times 507 \times t5.5$ mm
送液ポット	縦型円筒槽	$\phi 139.8$ (外径) $\times 546 \times t5$ mm
溶解液計量槽	縦型円筒槽	$\phi 139.8$ (外径) $\times 2644 \times t5$ mm

Table 4.2 溶解運転条件

12% UO_2 ペレット仕込量	約 9.3 kg
1.5% UO_2 ペレット仕込量	約 2.0 kg
硝酸濃度	7 mol/l
硝酸液量	23 l
温度	80°C で制御 (液温 40°C~70°C:ヒータ停止)
運転時間	8~9 時間

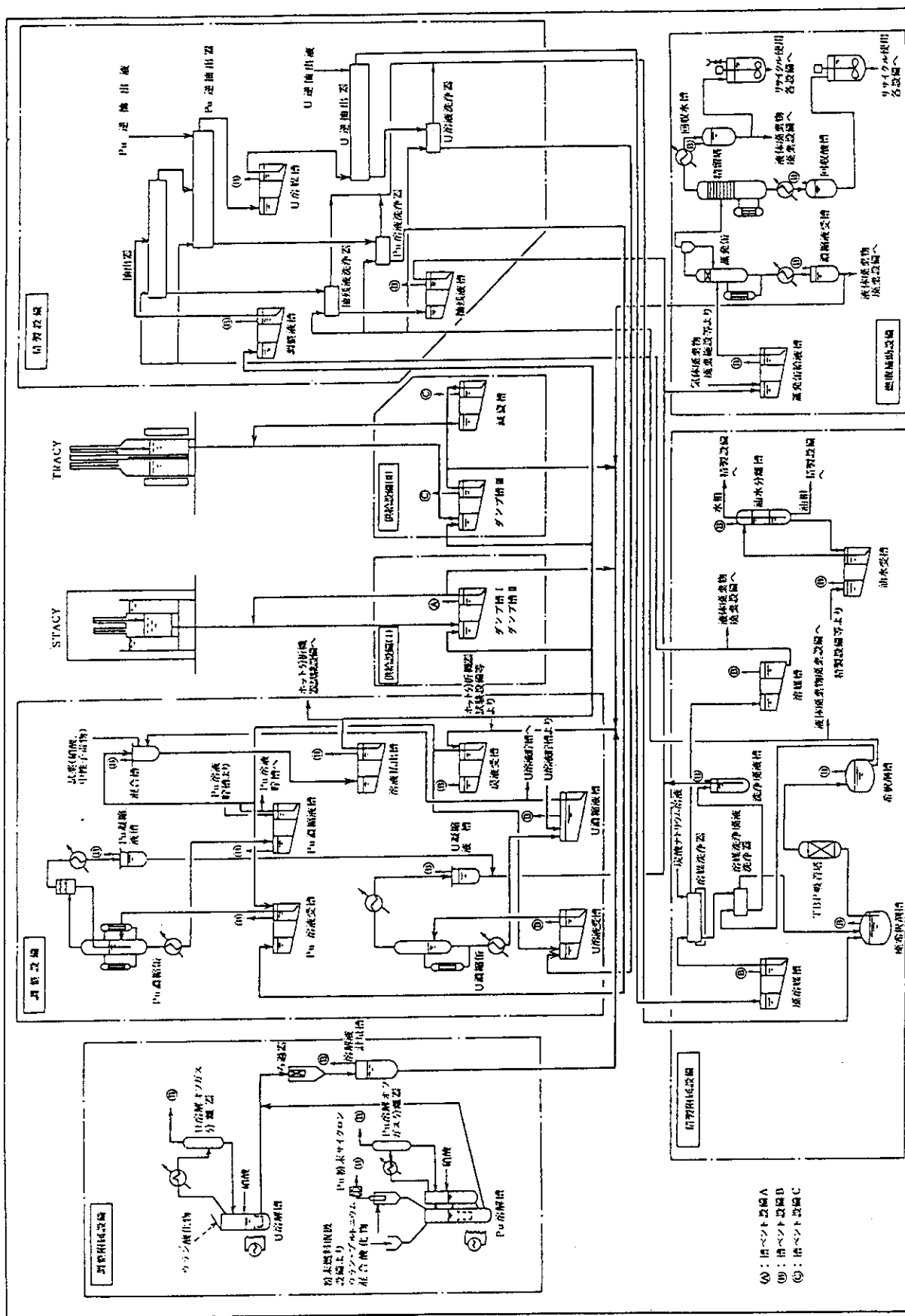


Fig.1.1 燃料調整設備の概略系統図

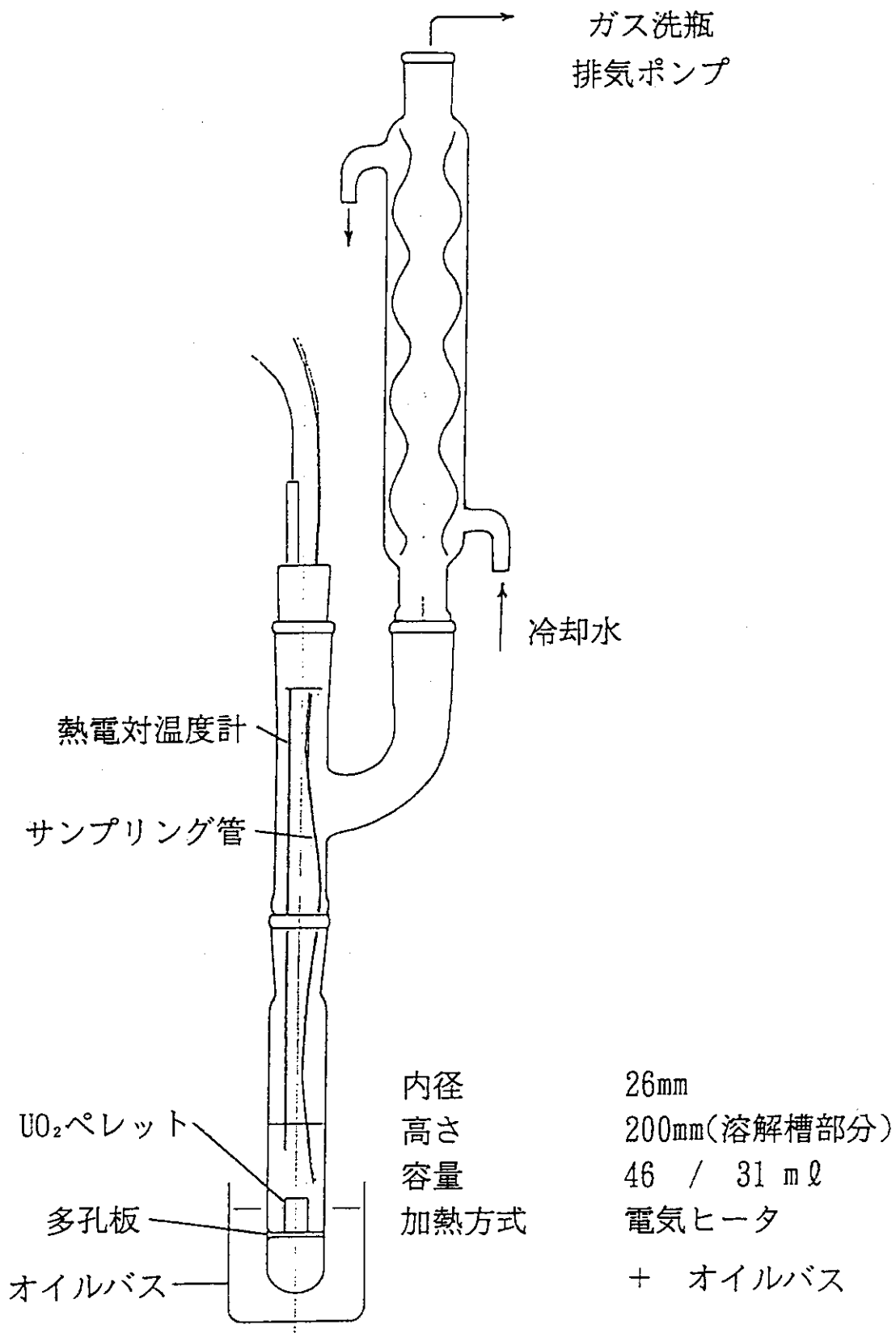


Fig.2.1 溶解基礎試験装置

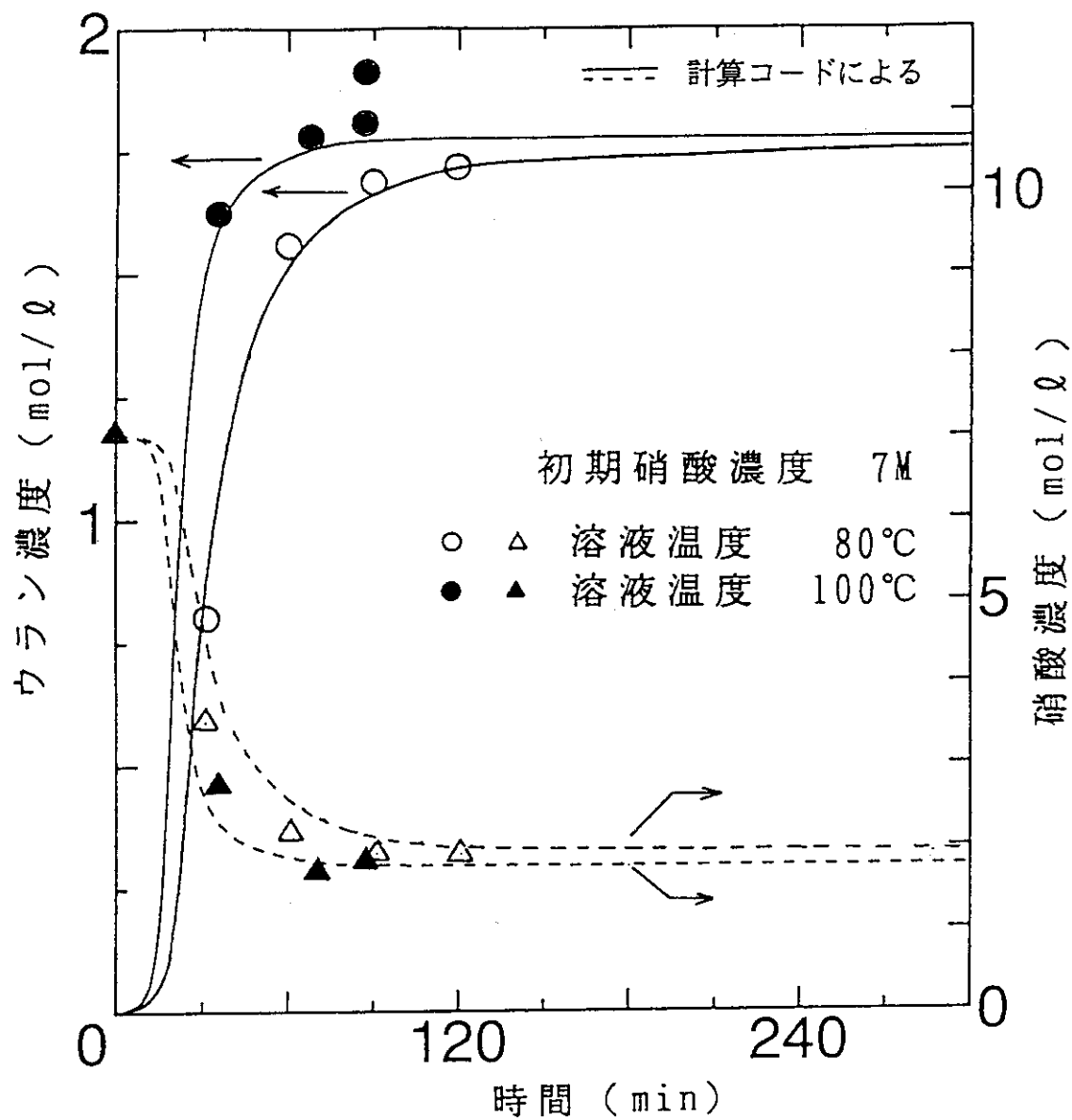


Fig.2.2 12% UO₂ペレットの溶解曲線 (HNO₃: 7M)

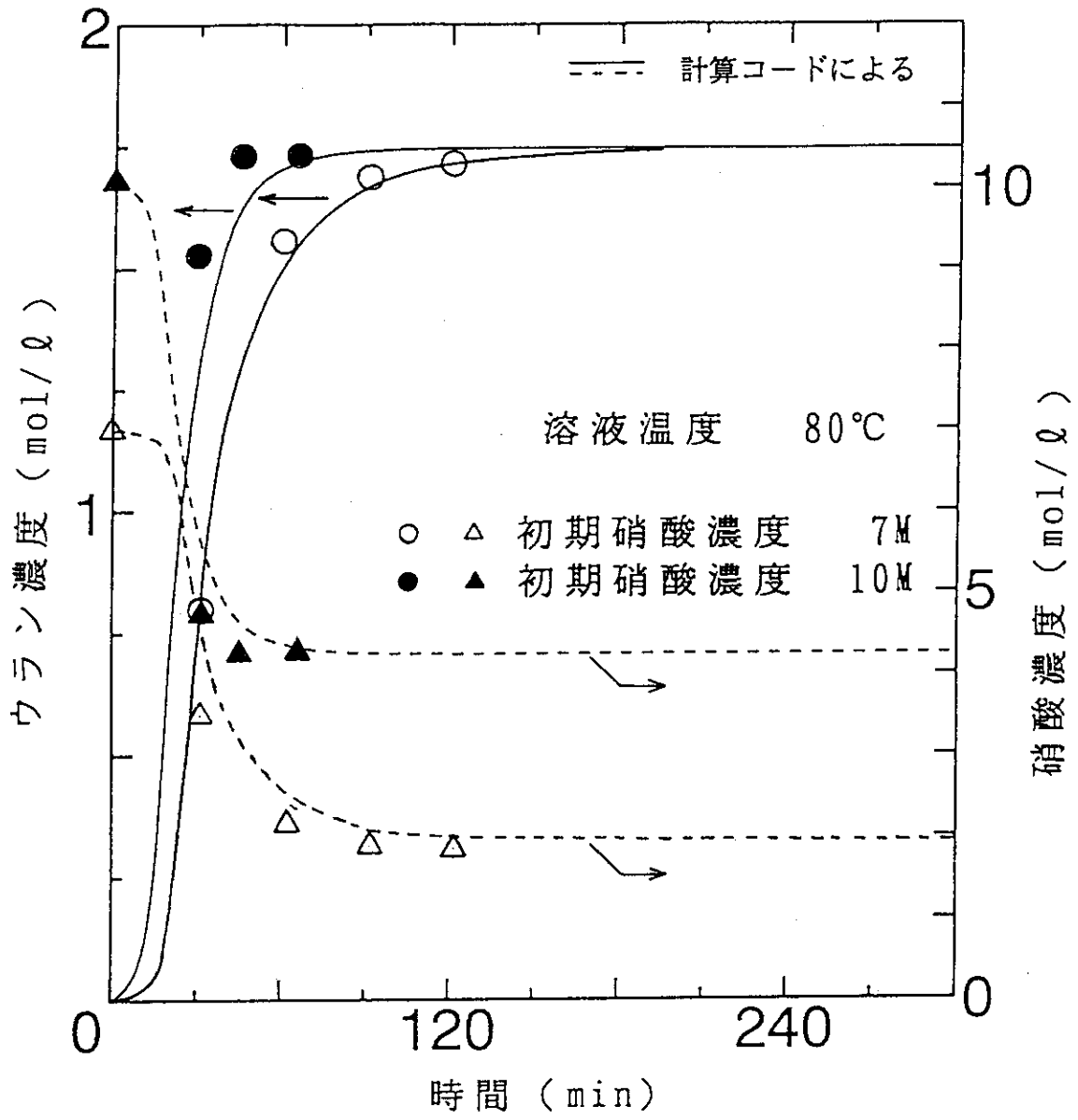


Fig.2.3 12% UO₂ペレットの溶解曲線 (Temp.: 80°C)

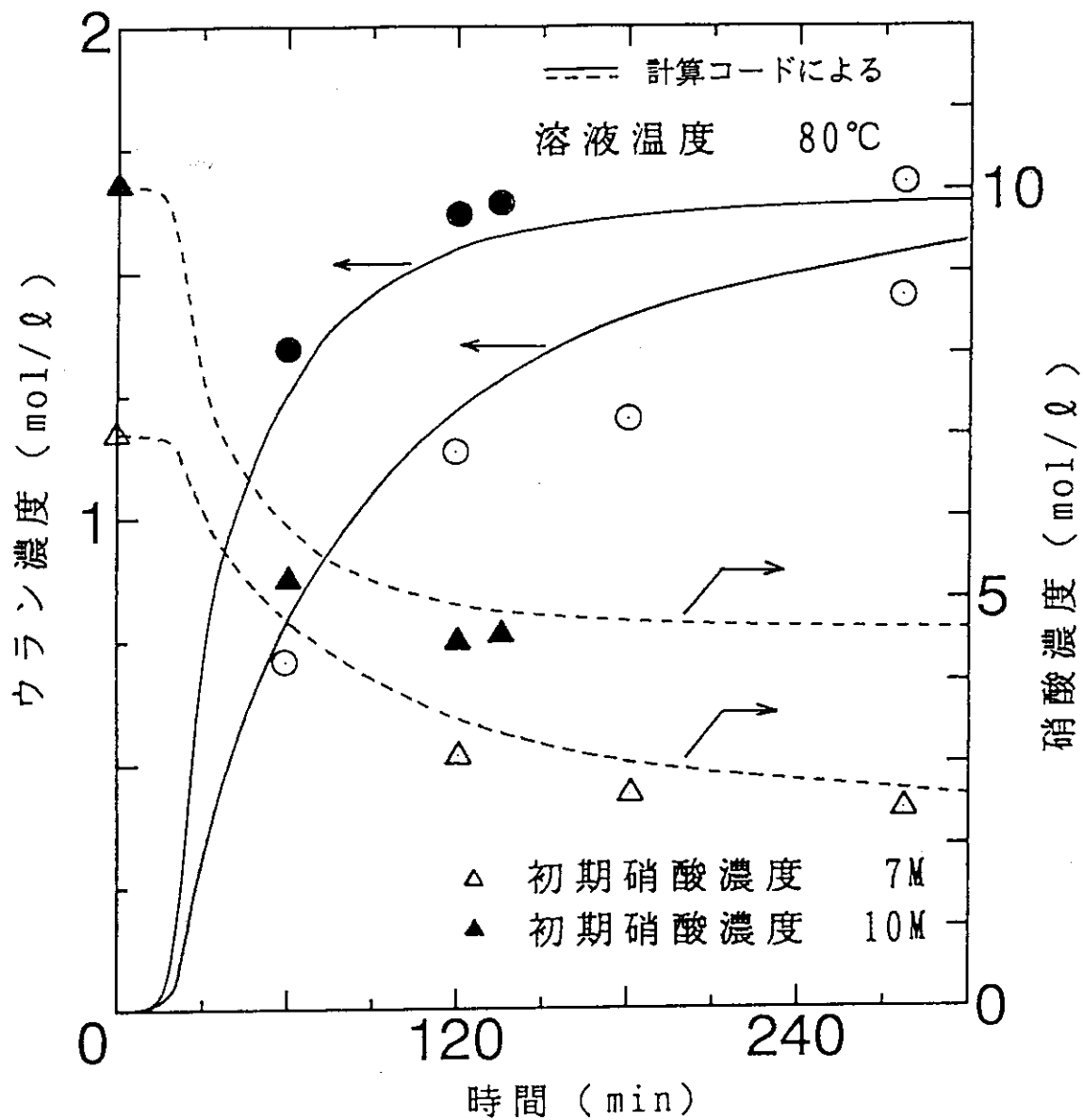
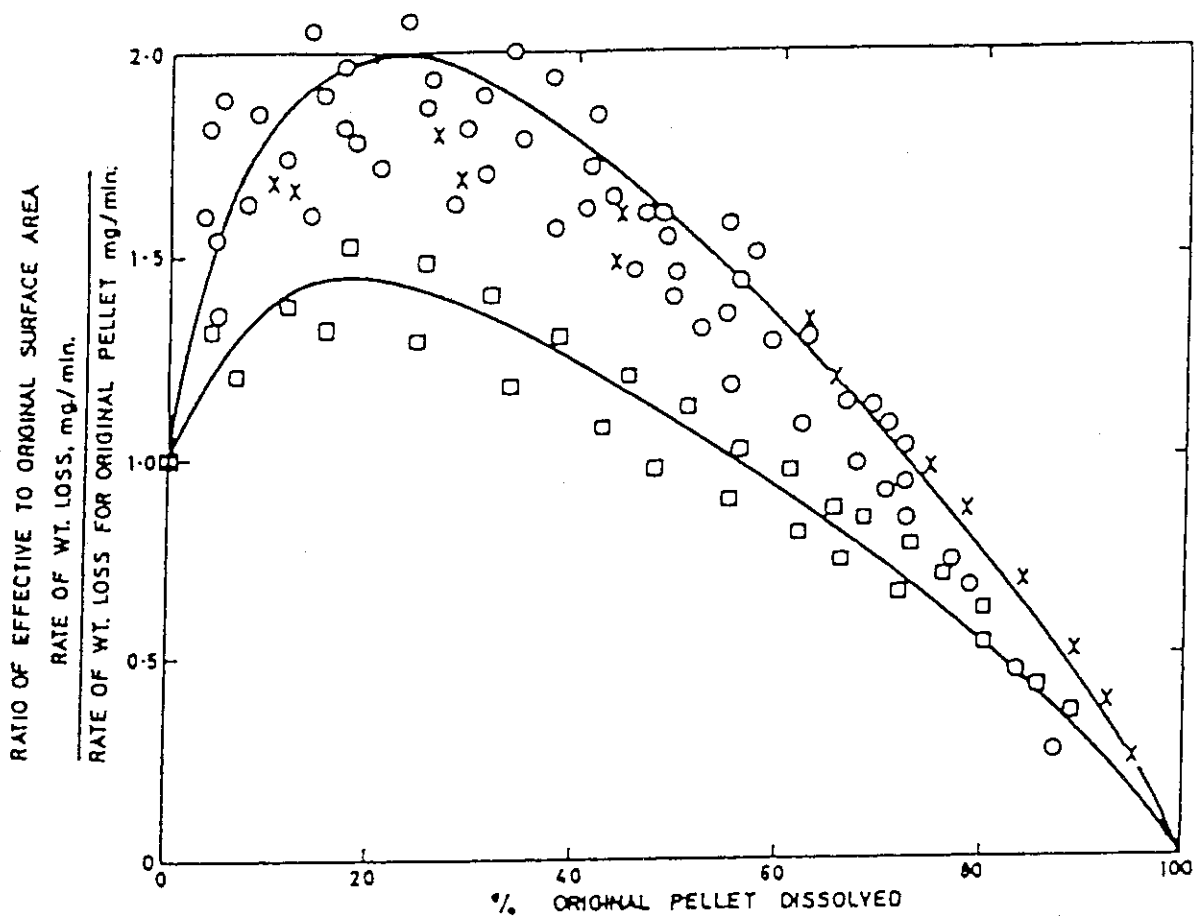


Fig.2.4 1.5% UO₂ ペレットの溶解曲線 (Temp.: 80°C)

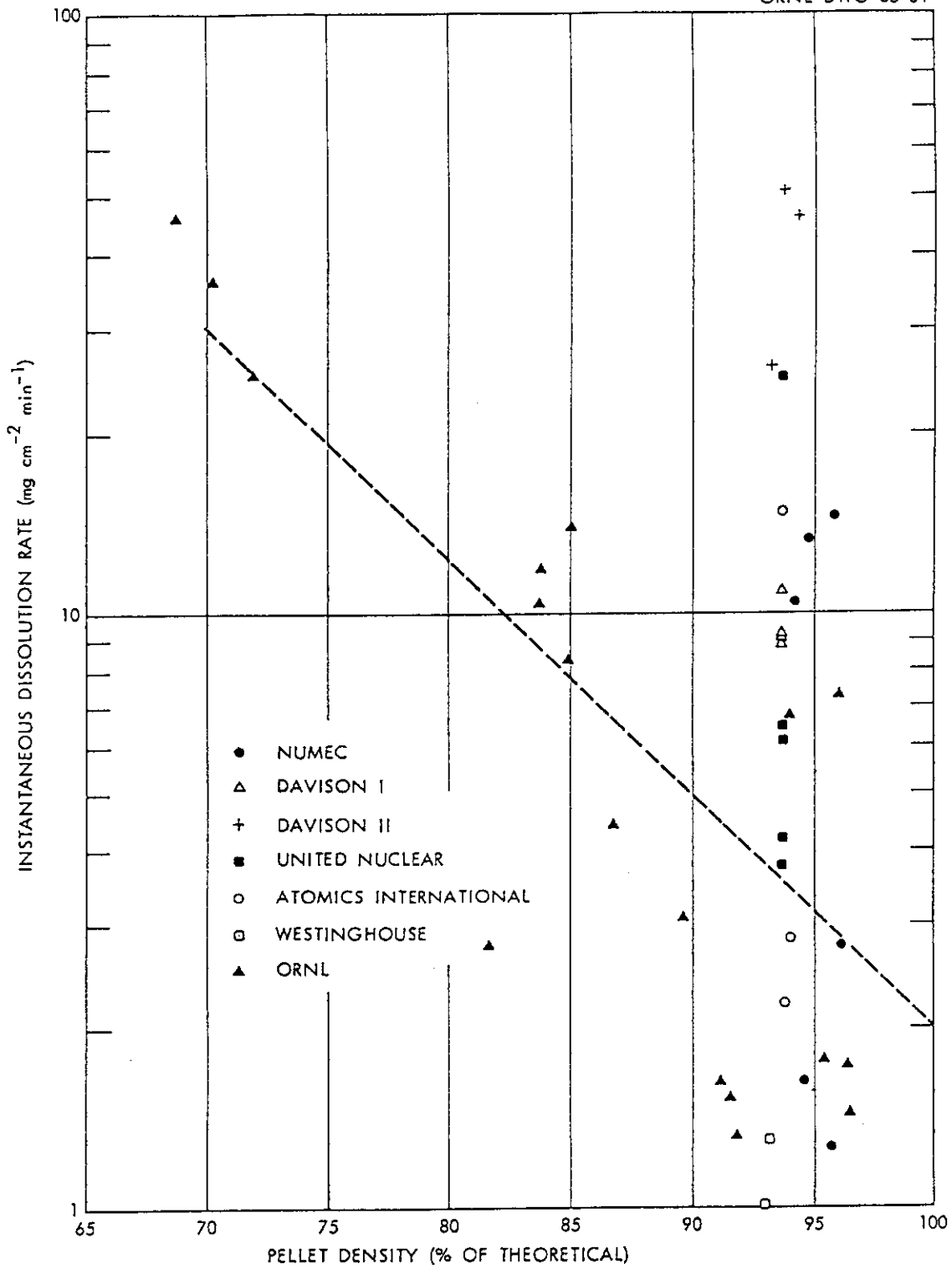


× Grade A ○ Grade B, Batch 6 □ Grade C, Batch 7
 Range of HNO₃ concn. 6—14N. Temp. 80—90°

Details of types of uranium dioxide used

Batch no.	Description	Final density, g./c.c.	Final composition
1	Non-stoichiometric sintered pellets	9.9 — 10.6	UO _{2.13} (approx)
2	Grade 'A' sintered pellets	10.4 ± 0.2	UO _{2.004} ± 0.003
3, 4, 5	Grade 'A' sintered pellets	10.4 ± 0.2	UO _{2.004} ± 0.003
6	Grade 'B' sintered pellets	10.6 ± 0.1	UO _{2.004} ± 0.003
7	Grade 'B' sintered pellets	10.74 ± 0.05	UO _{2.004} ± 0.003
8	Fused UO ₂ fragments	10.98	Variable

Fig.2.5 ペレット溶解時の表面積の変化 (初期表面積に対する相対値)



Effect of Density on Dissolution Rates of UO₂ Pellets in 6 M HNO₃.

Fig.2.6 ペレット密度変化に対する溶解速度変化

- 外径 : 140 mm
- 内径 : 130 mm
(13%濃縮ウラン酸化物ペレット
-水系全濃度臨界安全制限寸法)
- 高さ : 2550 mm
(13%濃縮ウラン酸化物ペレット
-水系全濃度臨界安全制限寸法)
- 有効容量 : 25 ℓ
- 加熱方式 : 電気ヒータ
(サイリスタ制御)
- 計装 : 温度計, 液位計, 密度計,
圧力計, 液位異常高検知

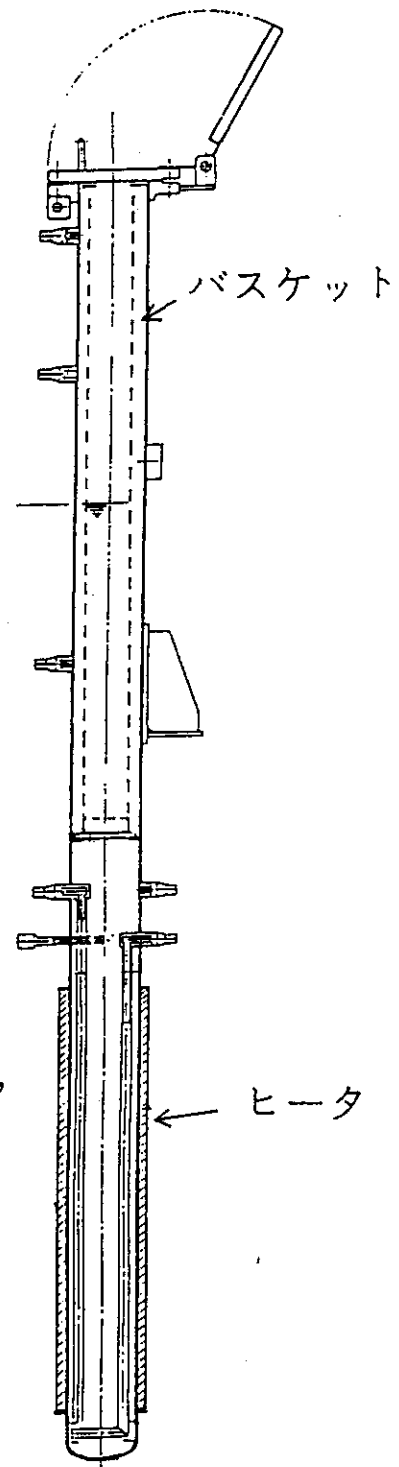


Fig.3.1 実機溶解槽

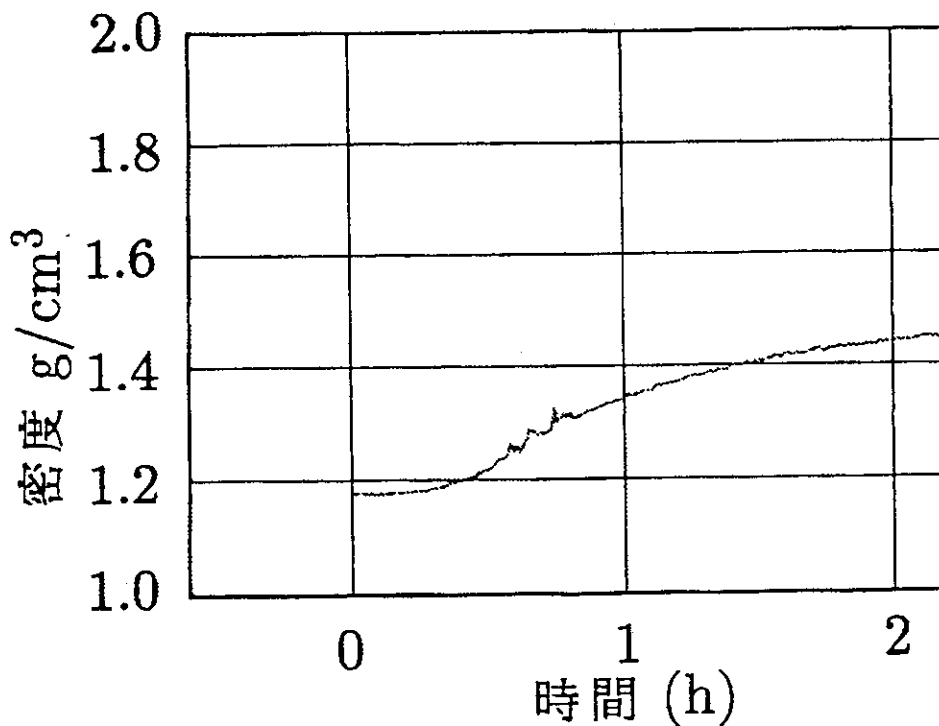
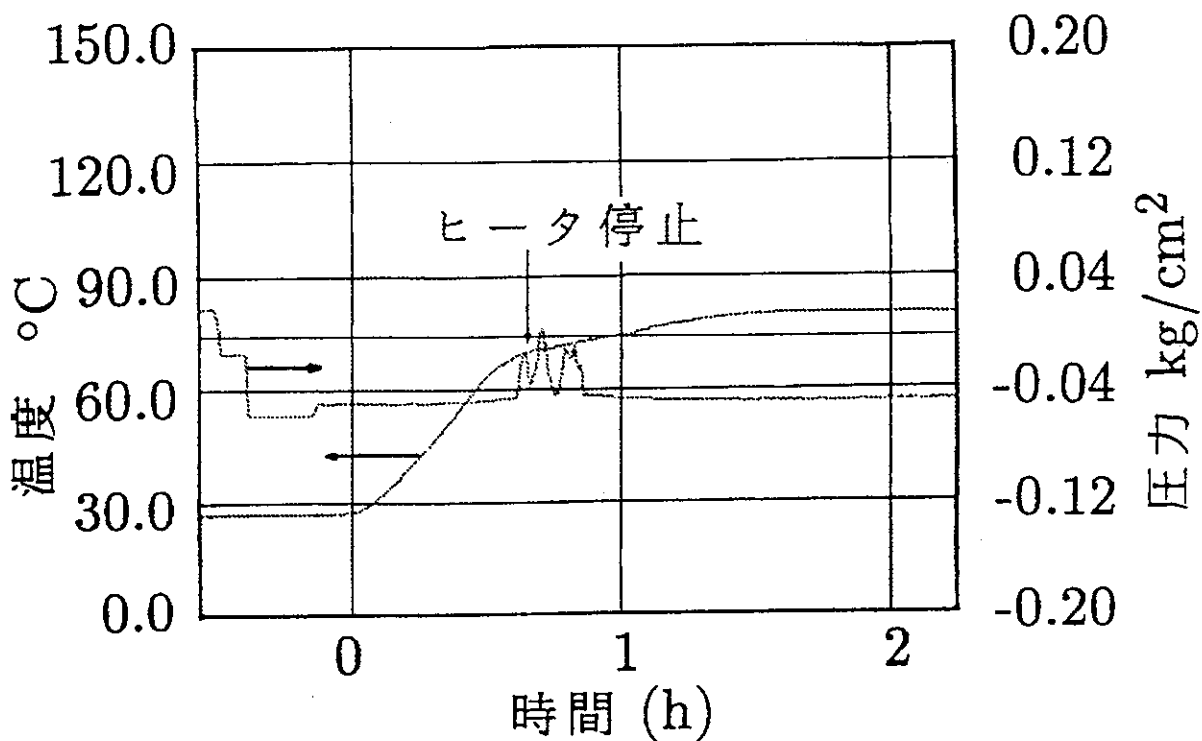


Fig.3.2 溶解特性試験1のトレンドグラフ (温度, 圧力, 密度の経時変化)

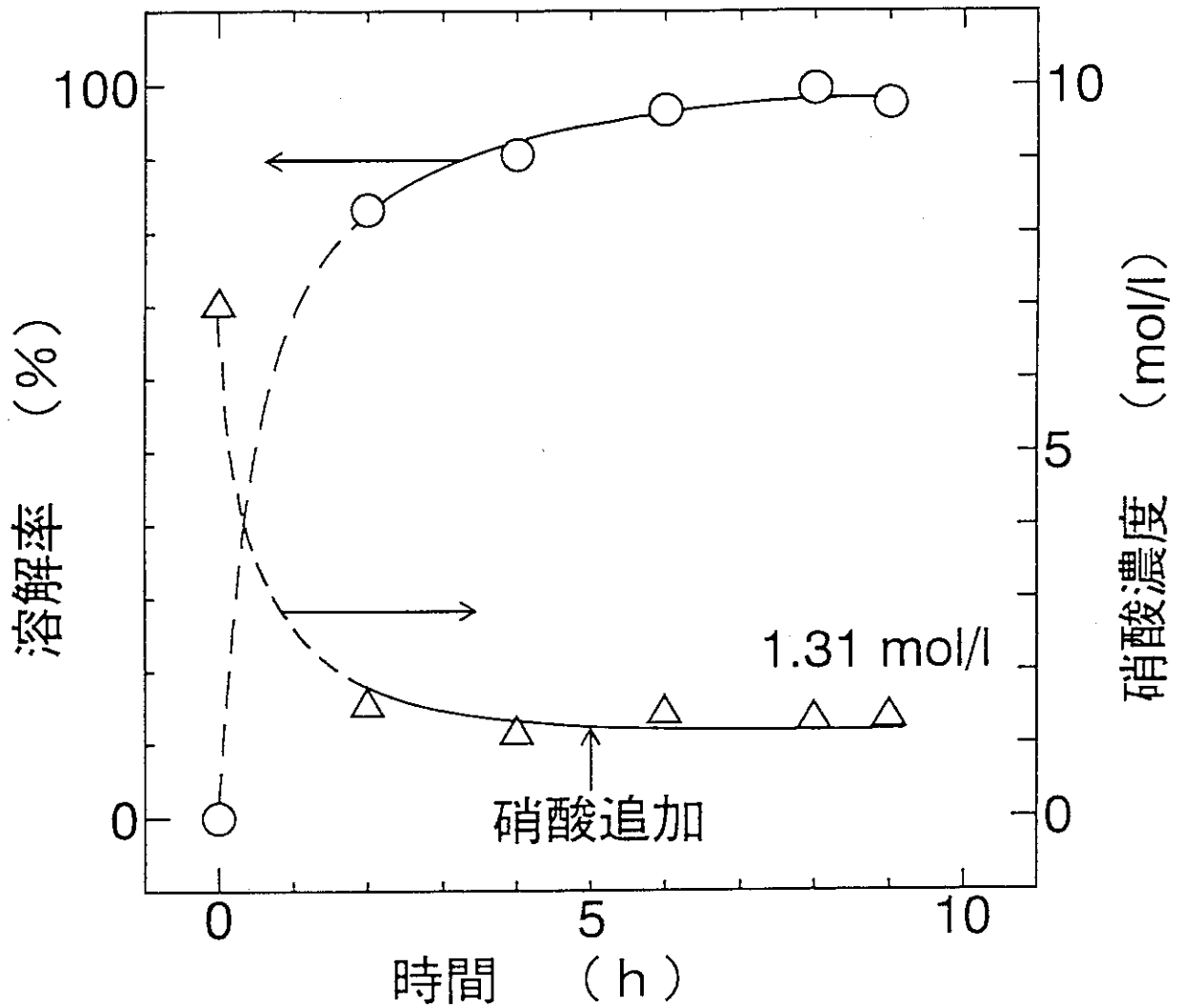


Fig.3.3 溶解特性試験1のU溶解率及び硝酸濃度の経時変化

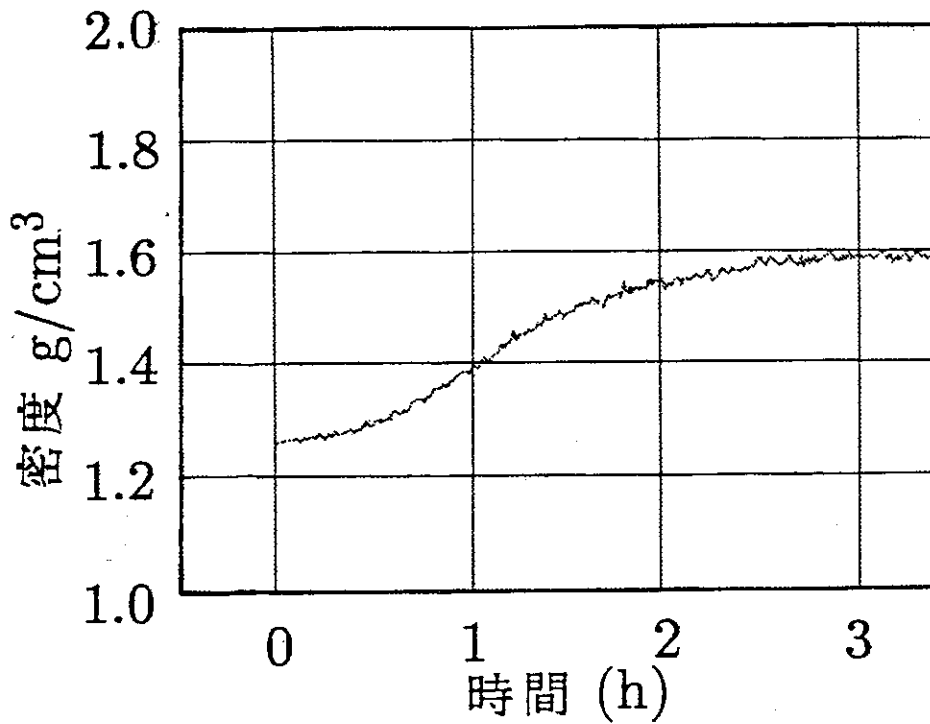
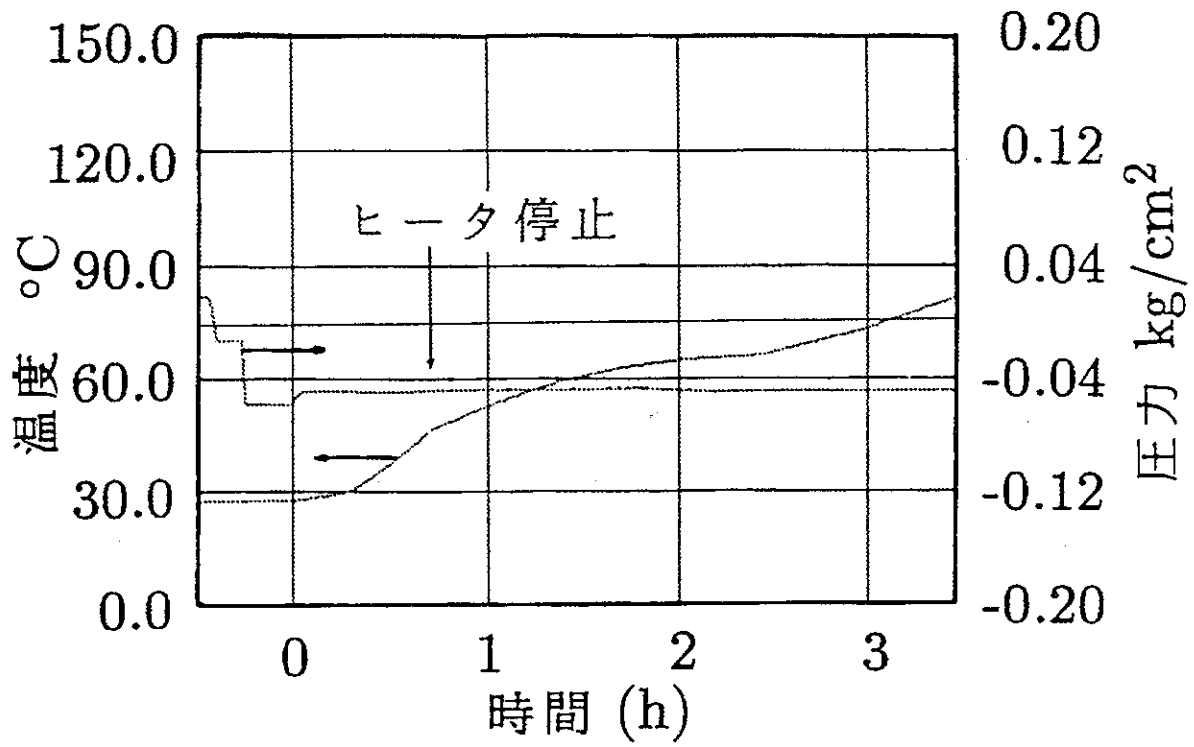


Fig.3.4 溶解特性試験2のトレンドグラフ (温度, 圧力, 密度の経時変化)

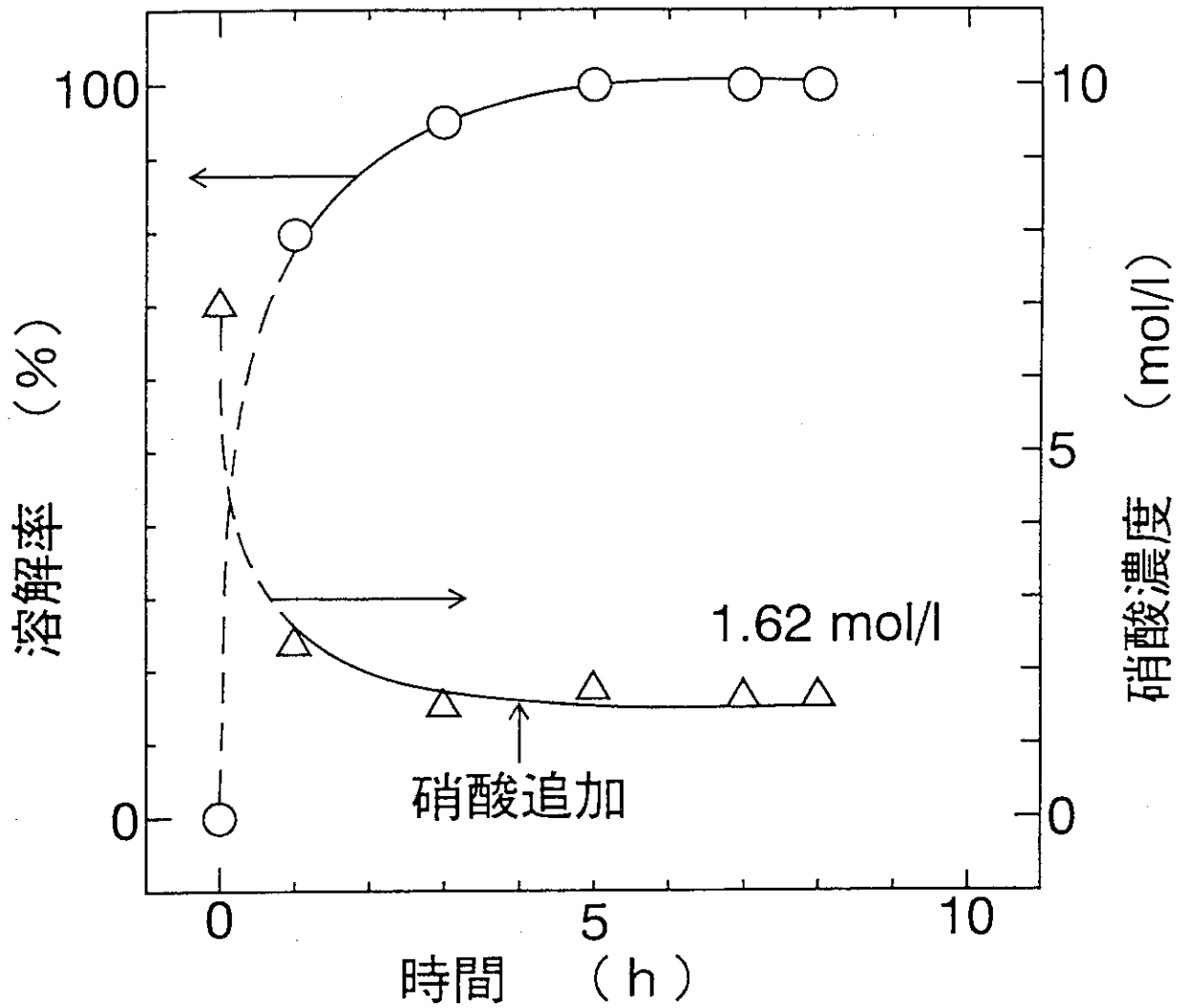


Fig.3.5 溶解特性試験2のU溶解率及び硝酸濃度の経時変化

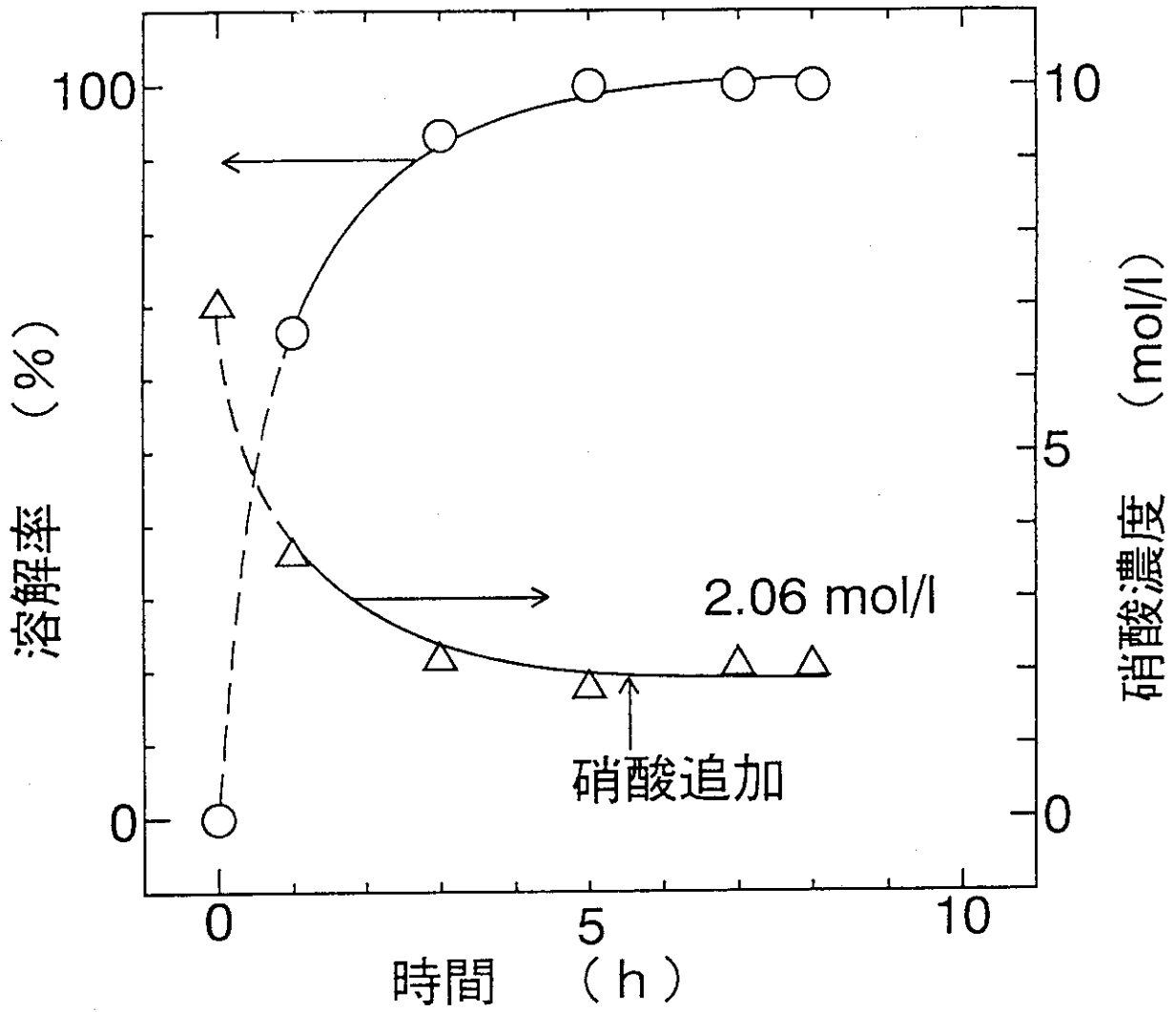


Fig.3.6 溶解特性試験3のU溶解率及び硝酸濃度の計時変化

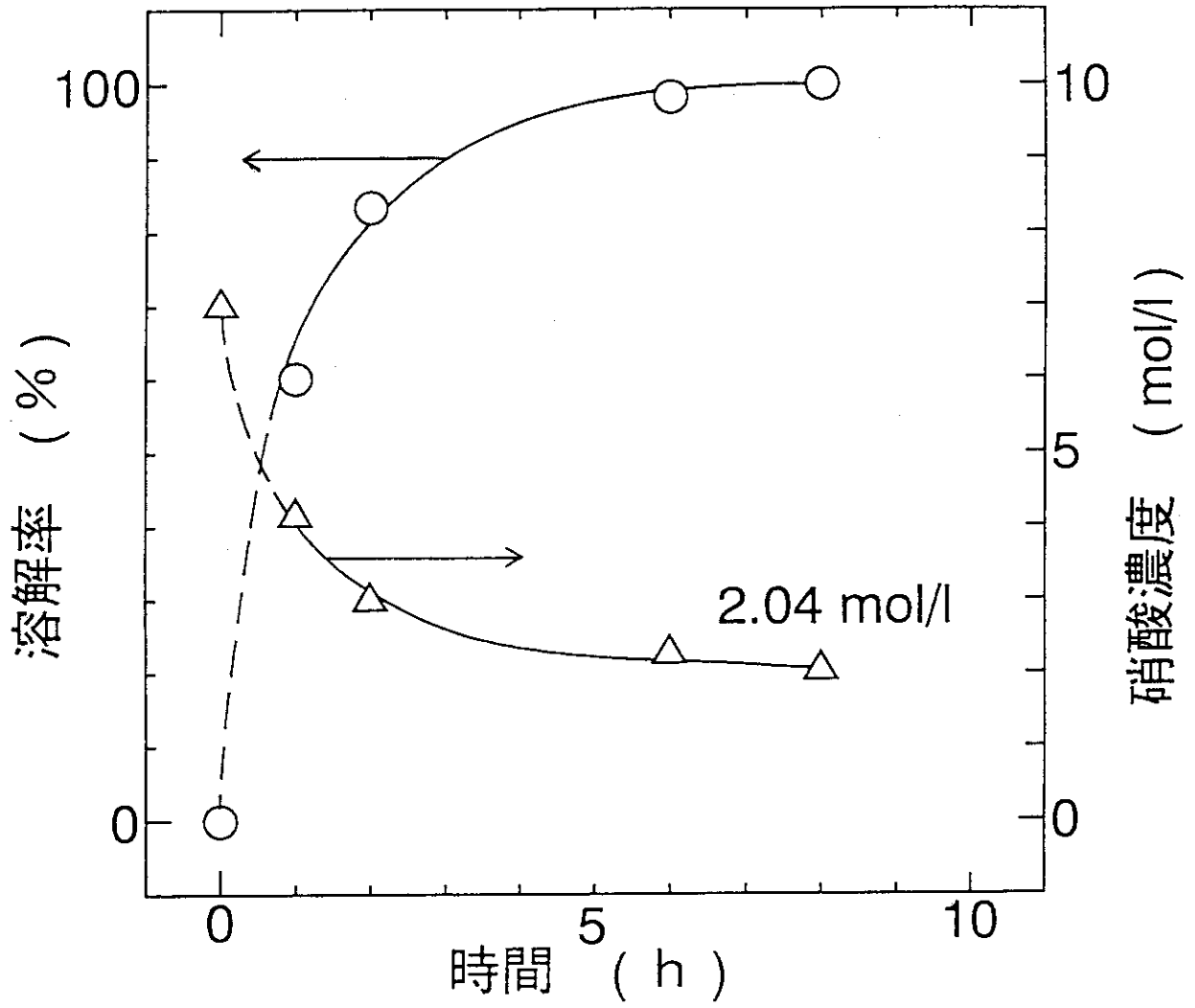


Fig.3.7 溶解特性試験4のU溶解率及び硝酸濃度の経時変化

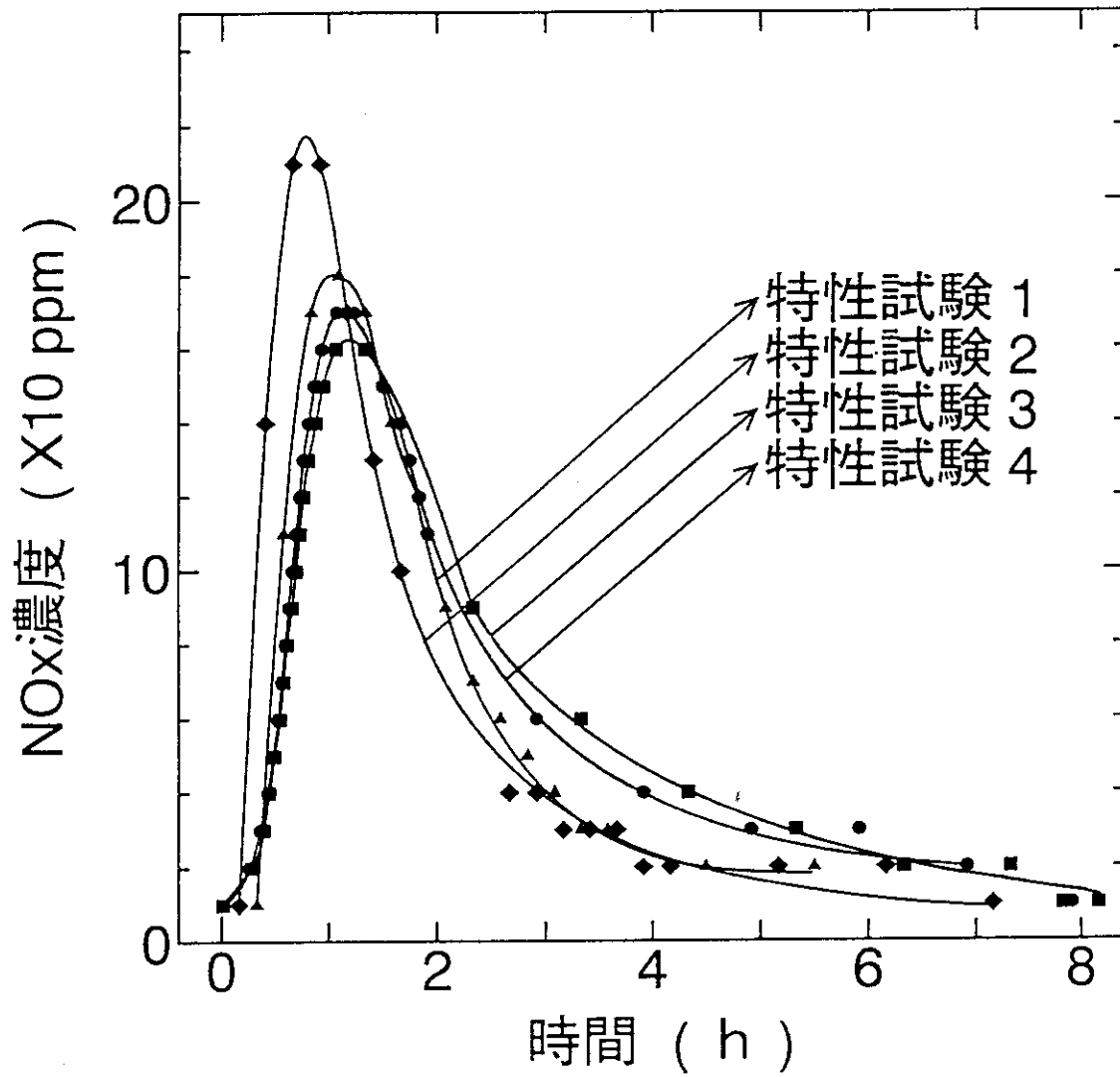


Fig.3.8 溶解オフガス中NO_x濃度の経時変化

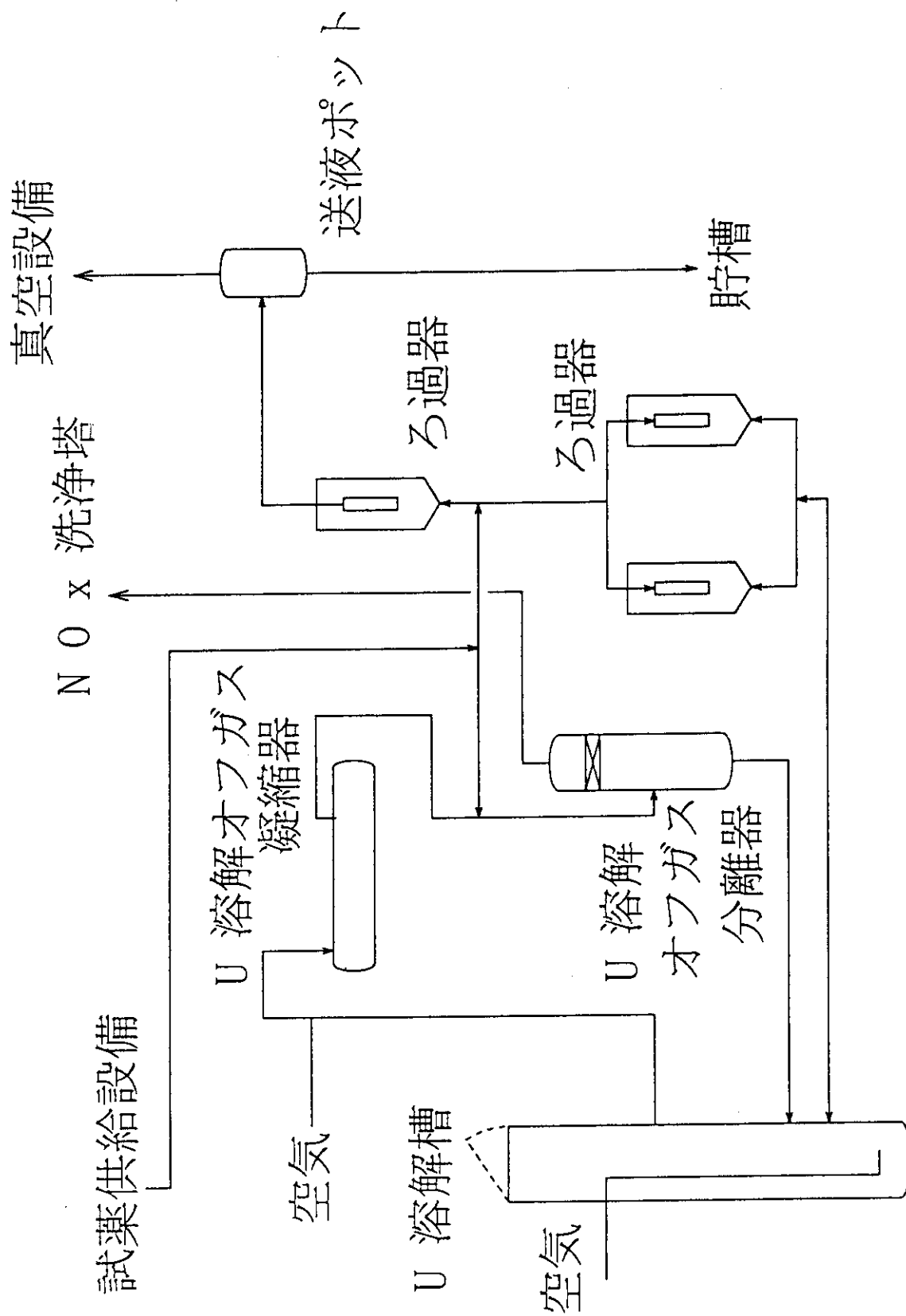


Fig.4.1 溶解設備の概略図

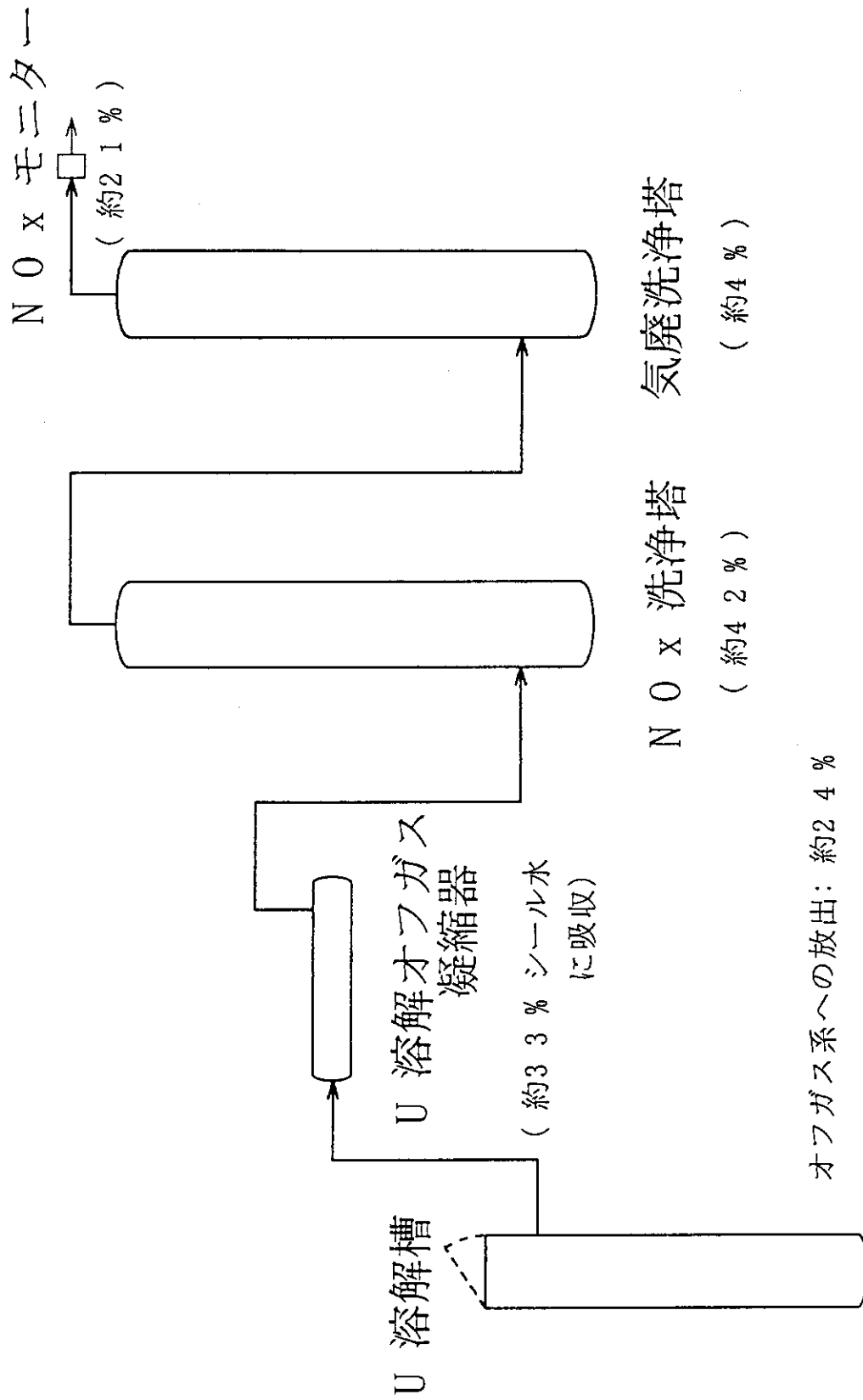


Fig.4.2 U溶解時NO_xの挙動

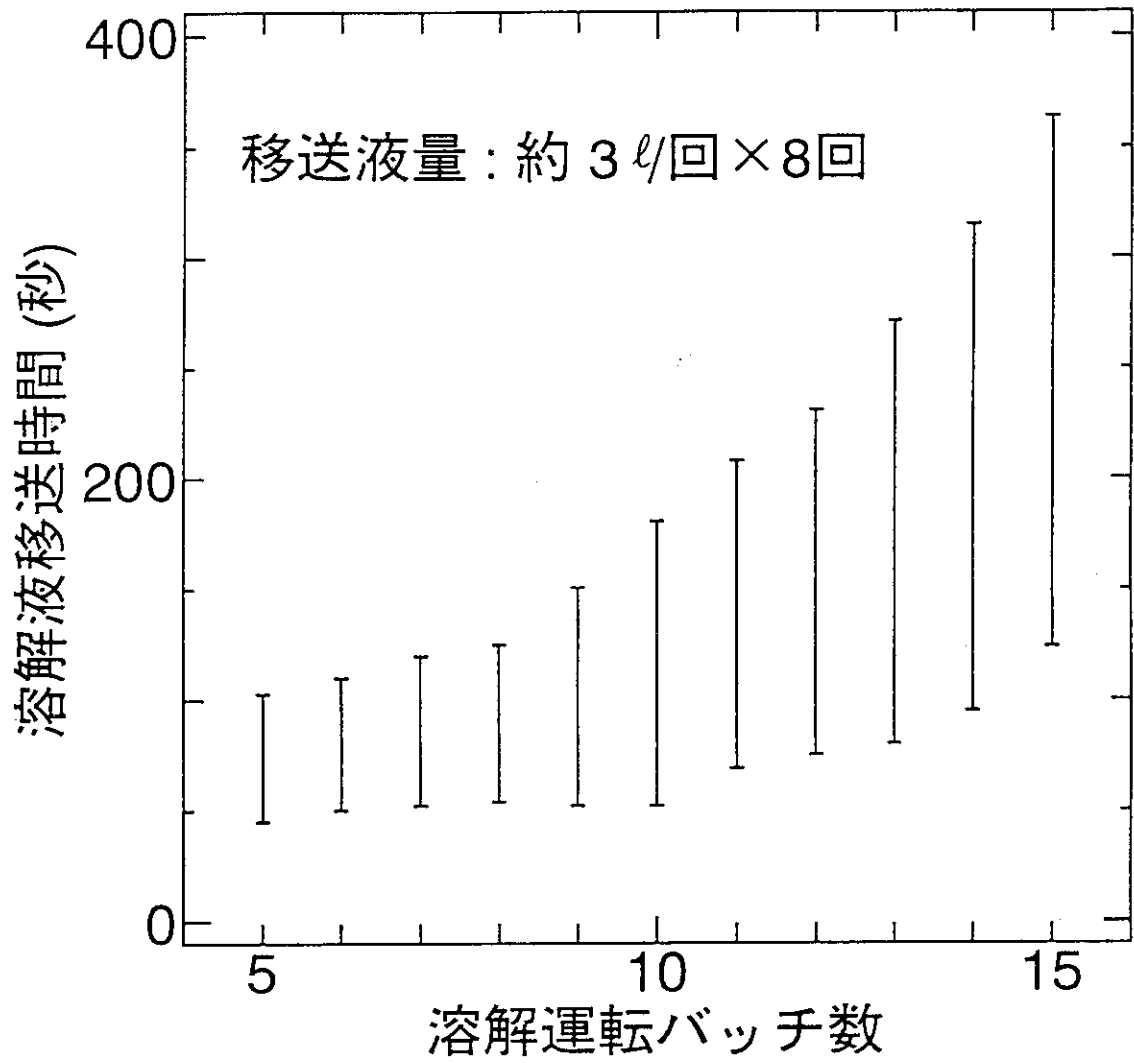


Fig.4.3 溶解液移送時間の変化